



環境と公衆の安全のためのアプローチ

— 放射性核種の生態系移行・代謝・線量推定 —

岩 倉 哲 男 編
中 島 敏 行

放射線医学総合研究所

放医研環境セミナーシリーズ No.20

環境と公衆の安全のためのアプローチ

— 放射性核種の生態系移行・代謝・線量推定 —

岩倉 哲男 編
中島 敏行

**Approach to the Nuclear Safety
for Environment and Members of Public
—Ecological Behavior, Metabolism,
Dose Evaluation of Radionuclides—**

**Proceedings of
The Twentieth National Institute of
Radiological Sciences
Seminar on Environmental Research
Chiba, December 10-11, 1992**

**Edited by
T. Iwakura
&
T. Nakajima**

**March, 1993
National Institute of Radiological Sciences
Chiba, Japan**

序にかえて

第20回放医研環境セミナーは、平成4年12月10日、11日の両日にわたって、放医研講堂で開催された。本シリーズNo.20は、当日のプログラムに基づき、担当演者の発表の内容を中心に編集したものである。

前回および前々回の本セミナーは、従来の環境放射線のテーマから少し離れ、近来とみに世間の関心を集めつつある地球環境の汚染問題、海洋の物質循環の問題について取り上げ、主に所外の先生方のお話を伺う形で開催され、大いに勉強させて戴いた。今回のセミナーは再び本来の姿に立戻り、本研究所で現在進行中で、本年が最終年度となる環境特研“環境と食物連鎖に係わる公衆の被曝評価に関する調査研究”のおおよそのまとめの形で、各サブグループの課題内容を発表してもらい、それと対応する形で各分野で活躍しておられる所外の先生方の研究内容を御発表戴くという組み合わせで、プログラムを編成した。

さらに特別講演としては、海洋および水産物放射能汚染研究の第一人者であられる東大の清水誠先生、線量評価モデル構築で第一線で御活躍の京大の森澤眞輔先生、また、近未来的トピックスとして、人間の宇宙空間定住時代に不可欠な閉鎖形生命維持システムについて、環境科学技術研究所の新田慶治先生に、それぞれ興味深く、有益なお話をうかがうことができた。何分にも、幅広い、環境全般に亙る問題の中の限られた内容でもあり、身内の課題研究内容がメインフレームであったがために、参加者の数に限りがあるとの懸念を抱きつつのセミナー開催ではあったが、実際には予想に反し、多数の方々の御参加を戴き、盛況裏に終了することができ、安堵の胸をなで下しているところである。これもひとえに、充実した内容の講演を給わった講師の方々をはじめ、所長、科学研究官の御支援、企画立案に携わった実行委員会のメンバーや会の運営に当たった事務局、関係各位の御努力の賜物であり、改めて感謝の意を表したい。また恒例ながら、日本保健物理学会の共催事業としてお認め戴き、御協力を給わった。併せて御礼申し上げます。

本プロシーデングが、原子力の環境安全に携わる多くの方々にとって、いささかなりともお役に立てば、望外の喜びである。

編者

岩 倉 哲 男

目 次

序文

座長・司会一覧

I. 海洋でのふるまい

1. 海洋生物中の金属元素キャラクタリゼーション……………石井 紀明 1
2. 海洋生物中の放射性元素濃縮と食物連鎖……………中原 元和 13
3. 海洋環境中のテクネチウム-99……………平野 茂樹 23

特別講演

海洋放射能研究の諸問題……………清水 誠 32

II. 陸でのふるまい(1)

1. 放射性核種の農作物への移行経路とパラメータ……………内田 滋夫 43
2. 植物における有害元素吸収およびその作用……………久保井 徹 52

特別講演

フォールアウト核種の地球規模動態と経口摂取……………森澤 眞輔 60
……Sr-90を例にして……

III. 陸でのふるまい(2)

1. 核融合施設に起因する環境トリチウム線量評価モデル……………村田 幹生 70
2. 植物及び食品への3Hの移行特性……OBTについて……………井上 義和 80

IV. 大気でのふるまい

1. 降雨沈着が大気中放射性核種濃度に及ぼす影響……………藤高 和信 89
2. 降水中のラドン娘核種濃度からの雲物理……………藤波 直人 97
パラメータの推定

V. 食品から人体への移行

1. 環境アルファ核種の定量法と存在量について……………山本 政儀 106
2. 日本人の元素摂取と線量推定……………白石久二雄 123
3. 標準日本人のアルファ線の線量算定とそのモデル……………河村日佐男 132

特別講演 宇宙定住時代の生命維持システム……………新田 慶治 139

VI. 体内でのふるまい

1. 乳幼児における放射性物質の代謝とその線量評価……………西村 義一 144
2. 主要な放射性物質（R I）の胎児移行……………松坂 尚典 153

VII. 線量推定

1. 日本人の線量評価のための人体ファントム……………本郷 昭三 160
2. 放射性セシウムによる内部被曝線量推定とファントム……………内山 正史 169
3. 環境放射線による集団実効線量の推定……………丸山 隆司 176

第20回放医研環境セミナー実行委員会一覧

Contents

Editorial Note
List of Chairpersons

I. Behaviors of Radionuclides in Marine Ecosystem

- 1.Characterization of Elements in Marine Organisms T. Ishii
- 2.Concentration of Technetium-99 in Marine Environment S. Hirano
- 3.Some topics on radioecological research in marine environment M. Shimizu

II. Behaviors of Radionuclides in Terrestrial Ecosystem (1)

- 1.The pathways of radionuclide transfer to crops and their parameters S. Uchida
- 2.Assessing the Accumulation of Potentially Toxic Elements in Plants T. Kuboi

Special Lecture 1:

Global Deposition of Fallout Radionuclides and Their Dietary Intake

—Discussions on Strontium-90 —S. Morisawa

III. Behaviors of Radionuclides in Terrestrial Ecosystem (2)

- 1.Dose Estimation Models for Environmental Tritium Released from Fusion Facilities M. Murata
- 2.Transfer Characteristics of Organically Bound Tritium into Plant and Foodstuffs Y. Inoue

IV. Behaviors of Radionuclides in Atmosphere

- 1.Effect of rain scavenging on the concentration of airborne radionuclides..K. Fujitaka
- 2.Estimation of Cloud Parameters from Short-Lived Rn Daughter Activity of Rainwater N. Fujinami

V. Transfer of Radionuclides from Foods to Human Body

- 1.Analytical Methods for Naturally Occurring Alpha-Emitting Nuclides and Their LevelsM. Yamamoto
- 2.Dietary Intake of Radionuclides and Dose Estimations.....K. Shiraishi
- 3.Model for assessing alpha doses for Reference Japanese Man H. Kawamura

Special Lecture 2:

Life Support System in Period of Space Habitation K. Nitta

VI. Behaviors of Radionuclides in Human Body

- 1.Biokinetics and Dose Assessment of Radionuclides in Juveniles Y. Nishimura
- 2.Transfer of Significant Radionuclides to Fetuses N. Matsusaka

VII. Dose Evaluation

- 1.Phantoms for Calculations of Absorbed Organ Dose S. Hongo
- 2.Estimation of internal dose from radiocesium and Phantom M. Uchiyama
- 3.Estimation of collective effective dose equivalent from environmental radiation and radioactive materials in Japan—a preliminary study—T. Maruyama

List of Members of the Organizing Committee of the Seminar

座長・司会一覧 (敬称略)

List of Chairpersons

			(所属は平成4年12月末現在)
I. 海洋でのふるまい	中村	清	放射線医学総合研究所
特別講演 1	鈴木	讓	放射線医学総合研究所
II. 陸でのふるまい(1)	大桃	洋一郎	環境科学技術研究所
特別講演 2	飯嶋	敏哲	原子力発電技術機構
III. 陸でのふるまい(2)	岩倉	哲男	放射線医学総合研究所
IV. 大気でのふるまい	越島	得三郎	放射線医学総合研究所
V. 食品から人体への移行	田中	義一郎	明治薬科大学
特別講演 3	中島	敏行	放射線医学総合研究所
VI. 体内でのふるまい	稲葉	次郎	放射線医学総合研究所
VII. 線量推定	隅元	芳一	放射線医学総合研究所
総合司会	岩倉	哲男	

1. 海洋生物中の金属元素のキャラクタリゼーション

石井 紀明
放射線医学総合研究所

Characterization of Elements in Marine Organisms

Toshiaki Ishii

Division of Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences
3609 Isozaki, Nakaminato-shi, Ibaraki, 311-12 Japan

ABSTRACT- Characterization of elements in marine organisms was carried out to estimate the behavior of radionuclides in marine ecosystem or to clarify the physiological roles of elements in marine organisms.

The concentrations of ^{238}U in fifty-five species of marine organisms were measured by inductively coupled plasma mass spectrometry. The concentrations of ^{238}U in soft tissues of marine animals ranged from 0.076 to 5000ng/g wet wt. Especially, the branchial heart of *Octopus vulgaris* showed the specific accumulation of ^{238}U .

The kidney granules of bivalve molluscs showed very high concentrations of Mn, Zn, ^{210}Pb , ^{210}Po etc. The XAFS study for the granules of *Cyclosunetta menstrualis* indicated that the chemical form of metals in the granules was phosphate (e. g. $\text{Mn}_3(\text{PO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$).

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

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

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

しかしながら、生物を含めた環境試料中の遷移金属の存在量は超微量であるため、現在考えられる最高の検出感度、分離能力を有する分析機器をもってしてもキャラクターゼーションの実施が非常に困難である場合が多い。

私共の研究室では、最新かつ最強の局所構造解析法の1つである XAFS(X線吸収微細構造)法を数種の海洋生物の適用し、Table 1 に示すような結果を得ることができた。

今回はその中からマダコのエラ心臓中のウラン、そしてワスレガイの腎臓顆粒中のマンガと鉛-210 に限定して説明する。

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

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

マダコのエラ心臓中のウラン

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

α 粒子の、線量当量に関わる線質係数が X 、 γ 、 β 線と比べて20倍も大きいことを考慮した時、 α 放射体であるウラン、特に99.280%と高い存在比を示す ^{238}U の環境試料中における濃度の把握は保健物理や環境科学等の分野では生物の放射線障害に関わる重要な研究課題となっている。特に海中での ^{238}U 濃度は、元素濃度で約3 ng/ml、放射能濃度で40 $\mu\text{Bq/ml}$ と他の α 放射体に比べてかなり高いことが知られており多くの海洋生物について ^{238}U の濃度レベルを調査する必要がある。更には、 ^{238}U を特異的に濃縮する生物を検索・抽出できれば、 ^{238}U 高濃度蓄積生物の体内摂取に伴う公衆の内部被曝線量の低減に役立つものと考えられる。

このような観点から、海洋生物のウラン濃度についてのスクリーニング作業の必要性が強調

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

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

1gU = 12.4kBq = 0.336 μCi (1ngU = 12.4 μBq = 0.336fCi).

されているにもかかわらず、日本産海洋生物の可食部中のウラン濃度に関する報告例が非常に少ないのが現状である。

私共^{1,2)}は、新しい多元素高感度分析法としての誘導結合プラズマ質量分析法(以下 ICP-MS)が希土類元素、鉛、ウラン等の重元素の分析に有効であることをすでに報告しているが³⁾、今回は ICP-MS を海洋生物中の²³⁸U の分析に適用し、主に可食部について²³⁸U 濃度を測定した。また²³⁸U による人体被曝線量評価のための資料として、濃縮係数と放射能濃度も併せて示す。

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

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

日本産頭足類の²³⁸U 濃度についてはこれまで全く報告例をみないが³⁾、可食部である腕や胴筋肉中の²³⁸U 濃度は魚肉と同レベルで 1 ng/g 生以下である。これに対して肝臓、顎、エラ心臓の値はかなり高く、特にマダコのエラ心臓では 5000ng/g 生と異常なほど蓄積されており、今回分析した試料の中では最も高い値を示した。またエラ心臓の²³⁸U 濃度を腕筋肉の値と比べると 20000 倍もの濃度差がみられており顕著な不均一分布が観察された。同じような傾向はミズダコ、イダコ、カミナリイカについても観察されることから頭足類のエラ心臓は²³⁸U を特異的に濃縮する器官であると判断された。

本邦産二枚貝、巻貝、カニ、エビそしてウニ類の可食部中の²³⁸U 濃度についても頭足類と同様現在のところ報告例は皆無に等しいが³⁾、Table 2 に示すようにこれらの生物中の²³⁸U 濃度は魚肉と比べて同等もしくはやや高い値を示す場合が多く、特に二枚貝の軟体部とウニ類の卵巣では高めであったがマダコのエラ心臓には及ばない。

以上述べてきたように、マダコのエラ心臓にはウランが高濃度に蓄積されているが³⁾、マダコのエラ心臓はウランだけでなくコバルト⁴⁾、アクチノイド元素⁵⁾、希土類元素⁶⁾等をも高濃度に蓄積することが知られておりこれらの元素に対して親和性をもつ生体構成成分の種類と量に関するトレースキャラクタリゼーションの必要性が指摘されており、私共の研究室においても親和性成分について生化学的手法による同定作業を行っている。ここではウランの存在場所と化学形について簡単に説明する。

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

更にこの顆粒に対して局所 X 線分析を実施すると、この顆粒状物質から、硫黄、亜鉛、鉄、

コバルト、ニッケル、そしてウランの特性 X 線が検出された。この結果から、エラ心臓中のウランの大部分は細胞内顆粒中に局在していると推定された。

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

私共が⁶、高速液体クロマトグラフィー、電気泳動法、アミノ酸分析法等で調査した結果、ウランの親和性物質は、最終代謝産物であるアデノクロームというタコ、イカ類に特有の色素であると考えている。

日本産海藻中の²³⁸U の値を、1 種当たり 3 ~ 5 試料の平均濃度として Table 3 に示す。

Table 3 にみられるように海藻中の²³⁸U 濃度は魚肉に比べるとはるかに高い値であるが、乾燥重量当たりの値であることを考慮すれば軟体動物の二枚貝の軟体部よりやや高い程度であると考えてよい。しかしながら種によって大きな濃度差がみられ、今回分析した 20 種の中ではアナアオサが最も低い値の 10ng/g 乾、最も高い値を示したのは 1986 年 4 月に茨城県一の磯崎海岸で採取したワカメでその元素濃度は 3700ng/g 乾であった(なおワカメ 4 試料の平均濃度は 1720ng/g 乾である)。

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

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

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

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

Miyake ら⁷⁾は、本邦産海藻についてウランの放射化学分析を行い、その結果として 12 種の

中ではオキツノリが 40ng/g 乾と最も低く、またイシゲが最も高い値の 2350ng/g 乾を示したと報告している。また Miyake らによる 12 種の平均ウラン濃度は 590ng/g 乾であり、本調査で得た平均濃度である 450ng/g 乾と大差ない。

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

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

Table 4 は、魚肉、頭足類の筋肉とエラ心臓、貝類の軟体部、甲殻類の筋肉、棘皮動物の卵巣そして海藻について各グループの平均濃度を求め、海水の値で除することにより濃縮係数を算定したものであるが、魚肉の濃縮係数は最も低い値の 0.1 であり濃縮が起きていないことを示している。また頭足類のエラ心臓の濃縮係数の平均は 500 であり、最も高いマダコのエラ心臓における濃縮係数は 1000 であった。Guary ら⁵⁾は、地中海のモナコ沖で採取したマダコのエラ心臓中の自然および人工放射性核種について分析し、 ^{241}Am 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{232}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{210}Po が高濃度に検出され、この時のエラ心臓のこれらの核種に対する濃縮係数は概ね 10^4 であったと報告している。

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

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

* Converted from $450 \pm 340\text{ng/g}$ dry wt. into $90 \pm 70\text{ng/g}$ wet wt. using average dry wt. percent(20%) of twenty species of algae.

以上述べてきたようにマダコのエラ心臓はいくつかの元素を高濃度に蓄積する特殊な器官で

あるが、このような特異的濃縮能力を有するマダコを重金属や放射性核種による海洋汚染に対するモニタリング生物として適用することは可能であると考えらる。

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

^{238}U は放射性壊変系列のウラン系列の最初の核種で、その壊変生成物 ($^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn} \cdots \rightarrow ^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po} \rightarrow \text{安定 Pb}$) の中には海洋生物への自然放射性核種による放射線被曝を考えた時、主要な被曝源になるものが少くない。たとえば ^{234}U は ^{238}U の娘核種の一つであるが、海水中では ^{234}U と ^{238}U とは放射平衡になく、 ^{234}U が平均して 13% 程度過剰に含まれていることが地球化学的に証明されている。Miyake ら⁹⁾ は海藻について ^{234}U と ^{238}U の放射能濃度の同位体比を求め、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} \cong 1.12$ と報告しているが、海藻に限らずあらゆる海洋生物は ^{234}U と ^{238}U とを区別しないで取り込んでいると推測できるので ^{234}U の生体中の放射能濃度は ^{238}U のそれとほぼ一致すると考えられる。

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

ここでマダコのエラ心臓に着目して自然および人工放射性核種の α 放射体による被曝線量を計算してみる。今回の分析で得られた ^{238}U の放射能濃度の 62mBq/g 生 に ^{238}U とほぼ放射平衡に達している ^{234}U の放射能濃度 62mBq/g 生 を加え、更に Guary ら⁷⁾ が測定した ^{241}Am 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{232}Th 、 ^{210}Po の放射能濃度の合計 (25mBq/g 生) を加えると 149mBq/g 生 となる。ここで生体中に α 放射体が $37\text{mBq/g 生} (= 1\ \text{pCi/g 生})$ で存在すると年間被曝線量として 0.0187Sv に相当する被曝を受けると概算されるのでマダコのエラ心臓における現時点で知り得た代表的な α 放射体からの線量当量の総和は約 75mSv/年 (旧単位では 7.5rem/年) という値になる。

海水中には、ウラン系列以外にトリウム系列 (^{232}Th 等) やアクチニウム系列 (^{235}U 等)、更には壊変系列を構成しない ^{40}K 、 ^{87}Rb 等、併せて 55 の地球起源の自然放射性核種が存在している。また ^{239}Pu や ^{242}Cm 等の超ウラン元素も原子力施設から水圏に放出されている。海洋生物は、これらの核種を選択的に、あるいは非選択的に体内に取り込み蓄積していると考えられる。そして最終的にはこれらの核種から放出される α 、 β 、 γ 線により体内被曝を受けることになるが、放射性核種の海洋生物に対する遺伝学的、資源学的影響についてはあまり研究が進んでいるとはいえない。この点については、水産食品摂取に伴う放射性核種の人体への移行率と併せてこれからの検討課題としたい。

ワスレガイの腎臓顆粒中のマンガンと鉛 -210

微量元素は生体内において均一に分布することはまれで、ある組織(器官)に偏在するのが普通である。それ故個体全体を分析試料に供し、個体としての平均濃度を求めている限り特異的濃縮生物を多くの生物種の中から効率よく検索することは殆ど不可能に近いといえる。しかしこのワスレガイは、個体全体の金属濃度を他の生物群あるいは同じマルスダレガイ科の貝類と比べた場合に100倍以上高い元素濃度を示している。例えば本邦産藻類、腔腸動物、軟体動物、節足動物、魚類のWhole organismとしてのマンガン濃度は1 ppm前後であるのに対してワスレガイは100ppm程度、最高1600ppmといったように個体別濃度比較の段階で既に際だった値を示すのである。

地球上の貝類は昆虫類について種類が多く8~10万種と称され、そのうち日本には約6000種の存在が確認されているが、現在までのところ本邦産貝類についてワスレガイに匹敵するような高濃度濃縮生物は報告されていない。

Table 5はワスレガイの軟体部(可食部)に含まれる元素の体内分布を示したもので、この表から、マンガンは腎臓において6820ppmも含有されており他の組織と比べて数千倍高く濃縮されていることがわかる。腎臓の重量%はわずか2%にすぎないが、軟体部中の総マンガンの95%以上が腎臓に集中していることになる。更に貝類(2 ppm)、体液(0.1ppm)を考慮に入れてもワスレガイ個体中の総マンガンの90%以上が腎臓に偏在していることになる。集中度は小さいが亜鉛、ストロンチウム等にも類似の傾向がうかがえる。

もしここで濃縮係数(CF)の定義をこの生物が満足するとして、腎臓のマンガンに対するCFを海水のマンガン濃度(3 ppb ; 鹿島灘の沖合水)との比から求めると $6820\text{ppm} \div 3\text{ppb} = 2.3 \times 10^6$ すなわち約200万という異常なほど高い値が得られる。ちなみに亜鉛では 2×10^5 、コバルトで 1×10^5 の高いCFが得られた。しかし放射性核種の ^{54}Mn 、 ^{65}Zn 、 ^{60}Co もこのような高い濃縮率で蓄積されるのであろうか?もしそうであるなら超高感度の生物検出器として海洋中での放射性物質のレベルをモニターするためにワスレガイの腎臓が使えるのである。

ある組織(器官)に特異的濃縮現象がみつかったとき、その組織について光学顕微鏡あるいは電子顕微鏡による形態観察を行うのが通例である。形態観察の結果、腎臓細管内腔の微じゅう毛に囲まれた中央付近に電子密度の高い顆粒状物質が観察された。このような細胞外顆粒が二枚貝の腎臓で観察されたとの報告は殆ど皆無に近く、ワスレガイ腎臓の形態的特徴となっている。この細胞外顆粒のサイズは $0.1 \sim 200 \mu\text{m}$ の範囲にあり $0.1 \mu\text{m}$ から $0.5 \mu\text{m}$ までの微細顆粒は球に近いが、 $10 \mu\text{m}$ を越え $50 \mu\text{m}$ ぐらいになると不定形になる。細胞外顆粒の電子密度が非常に高いことから、金属元素がこの場所において高濃度に蓄積されていることが容易に予測できた。エネルギー分散型X線検出器のついた電子顕微鏡を用いて $0.1 \mu\text{m}$ サイズの顆粒に対して局所分析を行ったところマンガが高濃度に蓄積されていることを示すX

Table 5 The concentrations of major and trace elements in various soft tissues of *C. mensturalis* ($\mu\text{g/g wet weight}$)

Element concentrations*1	Mantle	Gill	Foot	Digestive diverticulum	Kidney	Siphon	Adductor muscle	Gonad	Others	Whole soft tissue
Na	4350±240	5370±180	2040±330	2300±90	4560±230	4010±670	2790±560	2030±180	2400±1510	3450±550*2
K	2000±130	2360±380	3210±180	2570±150	2950±160	2530±200	2000±610	2420±90	1880±340	2030±370
Mg	1520±10	1090±660	410±70	430±10	4160±2020	690±90	510±100	350±90	460±240	820±80
Ca	790±230	530±100	200±60	1110±60	15420±7360	390±90	310±30	120±40	960±310	1000±330
S	5070±250	4290±750	4290±370	3300±500	4090±260	4460±510	2640±640	2220±180	2460±1040	3910±350
P	770±40	1210±240	1470±190	1550±160	14560±5790	1350±120	1160±300	1490±210	950±490	1300±230
Mn	3.9±1.5	9.0±3.6	1.1±0.2	2.1±1.0	6820±1760	5.1±3.3	5.1±3.2	1.4±0.8	12.8±2.3	121±39
Fe	27.0±2.7	36.9±9.2	16.3±1.6	86.8±51.8	690±160	77.3±39.5	12.8±3.4	28.6±9.8	61.5±18.0	61±24
Cu	4.5±1.6	35.4±8.1	2.6±0.5	57.1±7.7	29±8	7.2±1.4	3.0±2.0	5.9±1.6	5.8±3.6	7±2
Zn	12.5±1.0	20.5±5.2	14.9±1.7	23.5±2.9	2370±530	10.2±1.7	15.7±4.4	4.8±2.1	28.2±23.9	68±36
Al	8.2±3.4	7.2±3.2	1.8±0.2	69.3±42.8	49±29	35.3±25.3	2.6±1.6	2.6±1.1	13.5±4.7	10±5
Sr	4.8±1.2	4.9±0.9	1.6±0.2	5.4±0.5	310±130	3.7±0.7	2.9±0.3	1.4±1.0	7.4±5.0	10±4
Co	0.27±0.01	0.49±0.12	0.13±0.01	0.31±0.03	10.2±1.3	0.29±0.06	0.56±0.16	0.10±0.08	0.24±0.17	0.49±0.30
Ni	0.82±0.04	0.89±0.06	0.36±0.03	0.61±0.04	18.0±4.2	0.86±0.18	2.01±0.44	0.23±0.07	0.73±0.43	0.99±0.22
Cd	0.25±0.01	0.21±0.01	0.19±0.07	0.38±0.40	2.1±0.4	0.19±0.18	0.05±0.03	0.04±0.02	0.39±0.16	0.25±0.10
Sn	1.13±0.12	1.32±1.07	0.72±0.39	0.75±0.52	8.7±3.9	0.66±0.48	0.69±0.11	0.24±0.23	0.81±0.47	0.80±0.34
Pb	0.32±0.05	0.48±0.11	0.20±0.05	0.22±0.03	18.0±2.0	0.30±0.08	0.20±0.05	0.21±0.13	0.27±0.18	0.23±0.15
Rb	0.13±0.06	0.05±0.01	0.42±0.29	0.33±0.16	0.2±0.1	0.12±0.09	0.10±0.05	0.10±0.02	0.21±0.12	0.23±0.11
Weight percent(%)*2	17.8±2.9	2.7±0.7	36.5±8.7	10.4±1.6	2.0±0.4	2.7±0.6	9.8±1.4	9.6±2.9	8.5±3.5	100.0

*1 Mean and standard deviation of five groups. Each group is composed of five individuals.

*2 Mean and standard deviation of twenty individuals. Whole soft tissue samples are different from samples which are used to examine the distribution of elements.

*3 The weight percent of each tissue to the total soft tissues.

線スペクトルが得られた。更に1 μ m以上の顆粒を腎臓の軟組織から分離して取り出しICP-AESによる元素分析を行ったところTable 6に示すような結果が得られた(合わせてシャコガイの腎臓顆粒中の元素濃度を示す)。顆粒にはMg、Ca、Mn、Fe、Zn、Sr、P等の元素が数千から10万ppmと非常に高濃度に含まれていることから、ワスレガイ腎臓で観察されたMn、Zn、Fe等の高濃度の主たる原因が金属顆粒の存在によることを示している。

Table 6 Concentration(μ g/g) of elements in the dry granule samples isolated from the kidney tissues of five species of marine clams

Element	Wasuregai	Hirejakogai	Himejakogai	Shiranamigai	Syagougai
Ca	131000	181700	1790000	146000	185000
Fe	6310	480	760	780	240
Mg	30500	27700	29100	10900	13700
Mn	44200	3270	6430	7010	3870
Ni	104	480	570	1990	350
P	119000	155800	137100	103000	111600
Pb	300	89	85	190	50
Sr	3100	1300	2140	2150	1740
Zn	22800	970	570	1990	350

このように極度に金属を濃縮した物質の量的な変化は、金属顆粒の母体である腎臓あるいはワスレガイ個体そのものの金属濃度の変動にまで大きく関与するようになる。例えばFig. 1は、ワスレガイの殻長とマンガン濃度との関係を示したものであり、Life spanを通してのマンガン濃度の推移を表現しているものとみなすことができる。図に見られるように殻長(言いかえるなら成長)と共にマンガン濃度は増加傾向を示し、殻長7cm前後では10倍近い大きな差となってあらわれている。

Table 6に示したようなワスレガイやシャコガイの腎臓顆粒中のMnはどのような化学形で存在しているのであろうか。私共は高エネルギー物理学研究所の放射光実験施設を利用してXAFS分析を行った。その結果、顆粒中のMnは2価のリン酸塩として存在し、そのときの立体構造としてMnの囲りに酸素が6つ配列した八面体構造をとっていることが分かった。おそらく次に説明する 210 PbもMnと同じような化学形をとっているものと推定された。

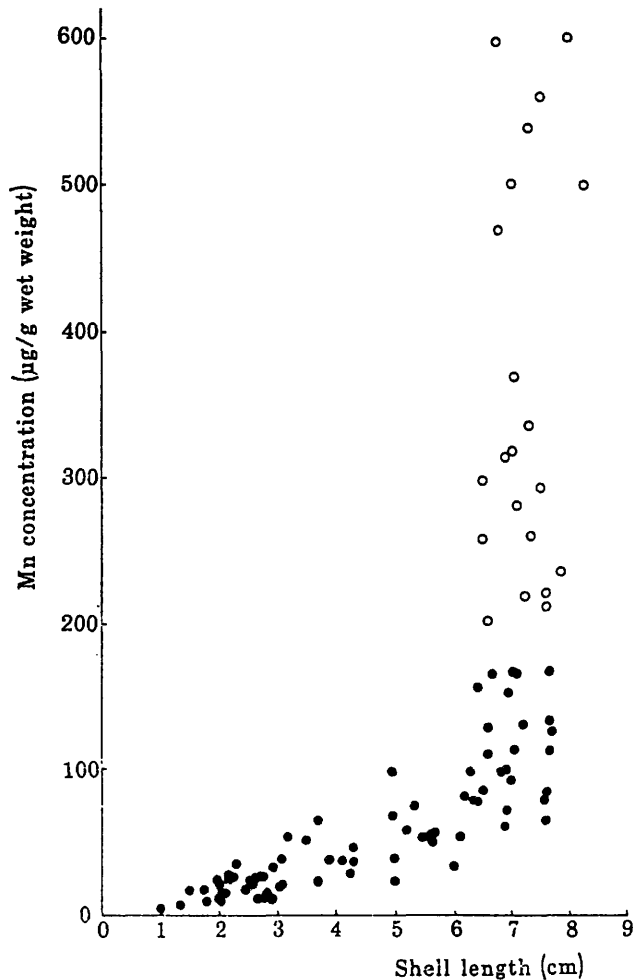


Fig.1 Relationship between the manganese concentration of below 200 $\mu\text{g/g}$ (●) and over 200 $\mu\text{g/g}$ (○) in the soft part and shell length of the clams (N=97).

^{210}Pb は半減期が 20 年の β 線を放出する自然放射性核種であり、海洋生物中の ^{210}Pb の平均放射能濃度は 1 mBq / g 前後であるとされている。ところがワスレガイの場合 50mBq / g を越える個体が多く存在している。ワスレガイの体内において大部分の ^{210}Pb は腎臓に集中しており、この時の ^{210}Pb 濃度は 3000mBq / g と非常に高いのである (^{210}Pb は腎臓の中の細胞外顆粒の中に閉じ込められていることも分かっている)。

通常の海洋生物は、取り込まれた ^{210}Pb 量と排出する ^{210}Pb 量とがほぼ平衡に達しているのであるが、ワスレガイは ^{210}Pb に対する特殊な代謝経路が存在していると考えている。すなわちワスレガイはエラや腸管から体内に取り込んだ ^{210}Pb を全て腎臓に集積し体外へ排泄しないという特殊な能力を持っていると推定している。

以上述べてきたように海洋生物の金属元素についてキャラクタリゼーションを実施すると、金属の濃縮機構や生理学的役割の解明ができる場合がある。また放射性物質による海洋汚染の

モニタリング生物を検索したり、放射性物質の臓器沈着防止剤の開発の糸口となる貴重な情報が得られるという二次的効果も期待できるのである。

文 献

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

2 海洋生物の放射性元素濃縮と食物連鎖

中原 元和
放射線医学総合研究所

Concentration of radionuclides by marine organisms and their food chain

Motokazu Nakahara

Division of Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences
3609 Isozaki, Nakaminato-shi, Ibaraki, 311-12 Japan

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

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

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

In the uptake experiments from radioactive food, the phytoplankton (Tetraselmis tetraele), the brown algae (Eisenia bicyclis) and the viscera of abalone were fed to bivalves, herbivorous gastropods and carnivorous molluscs, respectively. After single feeding of the labelled food with the nuclides, retention of the nuclides in whole body of the organisms was followed

for several weeks or more. The organisms showed relatively high retention of the nuclides in whole body, except ^{137}Cs and ^{54}Mn . Retention of ^{137}Cs and ^{54}Mn in the organisms one day after feeding of radioactive food was lower than 25% of the radioactivity dosed.

はじめに

海洋に導入された放射性元素は、先づ海水を介して直接に海洋生物を汚染する。植物プランクトンや海藻類は、海水と接する細胞表面または体表面に放射性元素を吸着し、さらに植物体内にも取り込むものと考えられる。海産の哺乳類を除く海洋動物は、海水に溶存する酸素を体内に取り込むために鰓呼吸をするが、その際に海水中の放射性元素も体内に取り込まれる。魚では鰓以外に鱗などの上皮組織からも放射性元素を取り込むことが報告されている¹⁾が、その他の無脊椎動物でも同様なことが予想される。海洋生物はこの様に海水中の放射性元素を直接吸着および吸収するが、この汚染経路の他に海洋動物では餌からの放射性元素の取り込み経路がある。海洋の生態系では、動物は自身の生長、生存および種属維持のために餌を必要とし、被食・捕食の関係が複雑に絡み合って食物連鎖が形成される。放射能で汚染された餌を摂取することで、放射性元素も消化管から栄養物と共に吸収される。被食・捕食の関係はその後も続けられ、放射性元素は食物連鎖を通して低次生産者から高次の消費者に移行していく。この章では放射性元素の濃縮を海洋生物の内、軟体動物を中心に海水取り込み・餌取り込みの両方の経路について検討し、さらに食物連鎖についても検討する。

1. 海産軟体動物

海産軟体動物には二枚貝類、巻貝類およびイカ・タコの仲間の頭足類が主要グループとして

Table 1 Mollusca used in the experiment

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

含まれる。これらのグループを食習性で見ると、二枚貝類は海水にケン濁する植物プランクト

ンその他を濾過して摂餌する草食性で、頭足類は貝・甲殻類や魚などを食べる純然たる肉食性である。一方、巻貝類にはサザエやアワビの様に海藻を食べる草食性のグループと、バイやニシの仲間の様な肉食性のグループがある。厳密には、バイの仲間は主に死んだ動物を食べる腐肉食性である。頭足類以外の軟体動物は比較的移動性に乏しく、また安定元素や放射性元素を良く蓄積するの²⁻⁹⁾で、特定海域の放射能汚染の指標生物として有効と考えられる。実験に供した軟体動物の種類とサイズ等について Table 1 にまとめた。

2. 海水からの放射性元素の取り込み

海水および餌からの取り込み実験は、複数の放射性元素をトレーサーとする方法で行った。数種類の放射性元素 (RI) を同時に添加した海水中で供試生物を 10 日前後飼育して RI を取り込ませ、その後非汚染海水に移して生物からの RI の排出を長期間観察した。生物全身による RI の取り込み・排出の観察は、生物個体にナンバーを付けたり、または 1 個体ずつカゴに入れて識別した 5 ~ 10 個体の放射能を経時的に計測して行った。これらの連続測定用の個体とは別のグループから経時的に 2 ~ 3 個体を解剖して、RI の各部位への分配も観察した。得られた各 RI の全身及び他の部位の蓄積・排出のグラフにコンパートメント・モデル (Fig.1) を当てはめて、取り込み定数、排出定数、平衡に達した時の濃縮係数等の生物濃縮パラメータを求めた。例としてウバガイ全身の取り込み・排出の結果を Fig.2 に、それから計算された生物濃縮パラメータを Table 2 に示した。海水からの取り込みの後、排出に移すと RI の種類によ

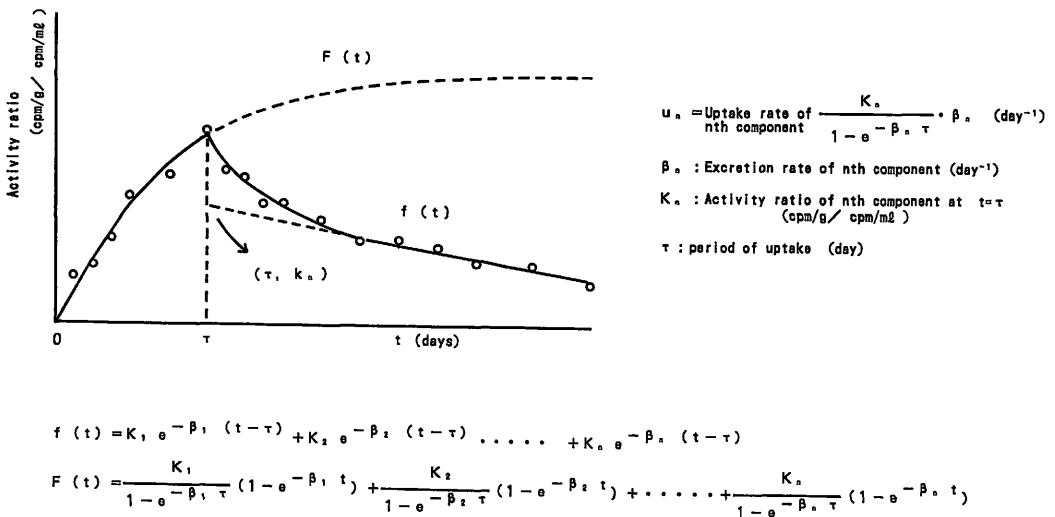


Fig.1 Exponential model used for the estimation of bioconcentration parameters in the experiment

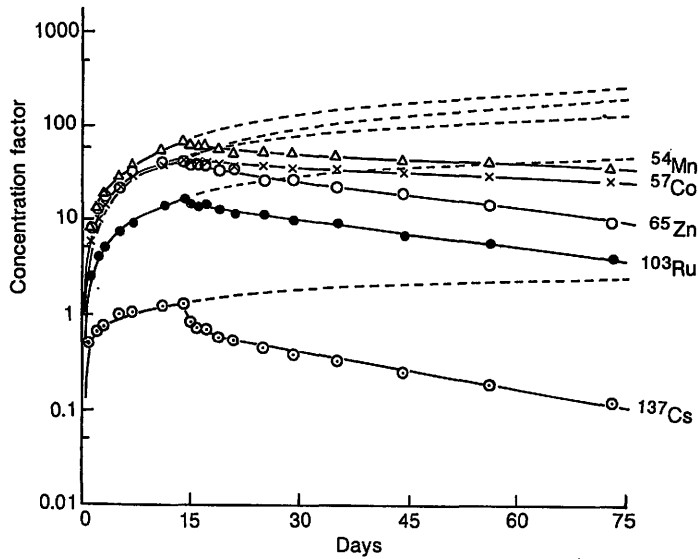


Fig.2 Accumulation and excretion of radionuclides by Spisula sachalinensis (from seawater at 10°C)

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

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

って程度の差はあるが、多くの海洋生物は排出初期に速く排出される成分 (1st component) と、その後比較的ゆっくりと排出される成分 (2nd component) の2成分からなる排出カーブを示す。排出の遅い成分は実際に生物の体内に取り込まれて代謝の流れに乗って排出されたものと考えられるが、排出の速い成分は生物の体表面にゆるく付着したり、組織の隙間に入りこんだものが生物の体から離れた為と推測されている。Table 2に示したような水槽でのRIトレーサー実験で得られる生物濃縮のパラメータは、海洋生態系で海水中の放射能レベルが変動する実際の場面で、海洋生物の放射能汚染を動的に解析するのに有効となる。他の軟体動物につい

ても各々の種類毎に生物濃縮パラメータが求められたが、その内の濃縮係数と生物学的半減期を Table 3 にまとめた。濃縮係数は個々のコンポーネント毎に求められた濃縮係数の和であり、生物学的半減期は、その元素の代謝を代表していると考えられる排出の遅いコンポーネントの値である。表中の元素の中では、 ^{137}Cs がすべての生物種で 10 以下の濃縮係数を示し、また生物学的半減期も種間でそれほど大きな差が見られないのに対し、 ^{57}Co 、 ^{65}Zn などは数百から千と概して大きな濃縮係数を示し、濃縮係数・生物学的半減期ともに種間の差も大きかった。マダコの鰓心臓と Co 、 $\text{U}^{10,11}$ など、シャコガイの腎臓と Co^{12} 、ワスレガイの腎臓と Mn^{13} 、アワビと Tc^{14} 、カキと Cu 、 Zn^{6} 等、軟体動物には特定の元素を特異的に濃縮するものが報告されているが、このような元素では全般に種間の差も大きくなるようである。

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

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

海水取り込み 14 日目にウバガイを解剖し、殻、殻を開けた時に出てくる液、肝臓（厳密には消化盲のう）、肝臓を除く軟体部に分けて、各部位への RI の分布% を Table 4 に示した。

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

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

^{103}Ru 、 ^{54}Mn は殻、 ^{137}Cs 、 ^{65}Zn は軟体部への分布が大きく、 ^{57}Co はその中間の分布割合であった。殻への分布は表面吸着によるものと考えられる。一方、殻の内液にも ^{57}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{65}Zn の 3 元素は 20 ~ 26 % の分布を示し、ほとんど分布の見られない ^{103}Ru 、 ^{54}Mn と明らかな差が見られた。ウバガイで観察された各 RI の体内分布の傾向は、他の貝類でも同

様であった。

3. 餌からの放射性元素の取り込み

餌からの取り込み実験では、二枚貝のウバガイ、ホタテガイに植物プランクトン (*Tetraselmis tetraele*) を、サザエ、クロアワビに海藻のアラメを、バイ、イイダコにクロアワビの内臓を餌として使用した。各々の餌は前もって前記の RI を高濃度を含む海水中で一週間程飼育または培養して RI を取り込ませた。実験は汚染餌を 1 回だけ投与し、その後は非汚染の餌を適宜与えながら全身の放射能の減少を観察した。Fig.3 にウバガイの測定結果を示した。汚染餌摂取直後の全身の放射能を 100% とし、その後の放射能の減少を体内残存% と

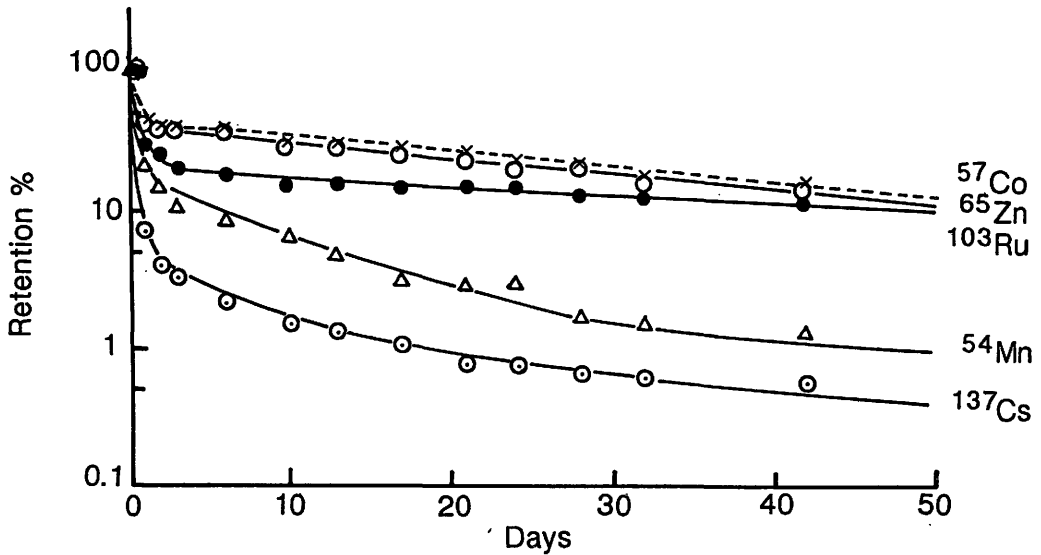


Fig.3 Loss of radionuclides from *Spisula sachalinesis* after single feeding(at 10°C)

して表した。汚染餌投与後の糞の排泄を観察すると、摂餌後数時間から 24 時間までに最大の排泄が見られ、遅くとも 48 時間までに排泄が終了するようであった。ウバガイの測定結果でも汚染餌摂取後 2 日目まですべての RI は急激に減少するが、この部分は糞の排泄と大いに関係していると思われる。Fig.3 から判断すると、 ^{57}Co 、 ^{65}Zn は餌から生物へ移行して保持され易く、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn は生物に保持されにくいようである。 ^{103}Ru はその中間であった。

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

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

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

次に各生物種毎に汚染餌摂取後 1 日目の各 RI の体内残存%と排出の遅い成分の生物学的半減期を Table 6 に示した。体内残存%は種間で差が見られるが、⁵⁷Co、^{95m}Tc、¹⁰³Ru、⁶⁵Zn

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

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

は¹³⁷Cs、⁵⁴Mn に比較して大きな残存%を示した。これらの値を魚での実験結果¹⁵⁻¹⁷⁾と比較すると、Co、Ru、Znでは軟体類が数倍以上高く、Cs、Mnでは逆に魚の方が高い結果となり、両者で餌経由の元素取り込みにかかなりの差があることが示唆された。

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

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

後に腐肉食性のバイであり、濃縮係数はプランクトンを除いて軟体部について計算した (Table 8)。食物連鎖の出発点となる植物プランクトンの濃縮係数は、RIトレーサー実験で

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

$$\text{Uptake rate constant } (u_i) = \frac{C F_i \times S \times D \times W \times R}{W \times S} = C F_i \times D \times R$$

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

Concentration factor = u_i / λ_i

λ_i : Excretion rate constant

Table 8 Change of concentration factors by food chain

	Phytoplankton (Tetraselmis)	Ubagai (Soft parts)	Iidako (Whole body)	Bai (Soft parts)
	C F from food			
⁵⁷ Co	10400	390	1800	1100
	from seawater	340	770	130
		730	2600	1230
¹⁰³ Ru	5100	390	90	190
		30	10	60
		420	100	250
¹³⁷ Cs	25	0.1	0.5	6
		20	10	10
		20		
⁵⁴ Mn	10200	90		
		260		
⁶⁵ Zn	58000	2300	2900	39000
		1200	1700	780
		3500	4600	40000

求めた。餌からの濃縮係数の計算には Table 7 に示した様に、生物が1日当たり食べる餌の量(日間摂餌量)が必要であるが、ここでは実験結果からウバガイは全体重の0.06%とし、イイダコ、バイは全体重の2.5%を食べると仮定した。各生物毎のRI蓄積における海水取り込みと餌取り込みの寄与を比較すると、⁵⁷Co、¹⁰³Ru、⁶⁵Znでは餌の寄与が大きな割合を占めるのに対し、¹³⁷Csでは海水の寄与が大部分で、餌からの取り込みは殆ど影響を与えないようであった。⁵⁴Mnについては、イイダコ、バイのデータが欠けているが、少なくとも植物プランクトンから二枚貝のウバガイ軟体部への⁵⁴Mnの移行は低く、¹³⁷Cs同様海水の寄与の方が大きくなりそうである。食物連鎖による放射性元素の動きを見た場合、⁵⁷Co、¹⁰³Ru、¹³⁷

Cs では高次の消費者への蓄積増加傾向は見られなかったが、 ^{65}Zn ではしだいに濃縮が増す傾向が見られた。

終わりに

RI をトレーサーとする水槽実験では、種々の海洋生物について濃縮係数をはじめ、取り込み定数、排出定数、生物学的半減期等の生物濃縮パラメータが求められる。濃縮係数は生物が元素を蓄積して生物と海水の元素濃度が平衡状態になった時の海水中の元素濃度と、生物中の元素濃度との比である。この係数は、自然の生態系で海水中の元素濃度が一定の場合に、生物が到達する最高の濃縮レベルと考えられるので、原子力発電所等の施設を建設する際の安全評価の時などに用いられる。しかし実際に放射性元素が海洋環境中に放出された場合、海水中の放射性元素濃度は経時的に変化し、その上、生物自身及び生物を取り巻く環境因子も変動する。この様な条件下での生物の放射能汚染の推移を予測するには濃縮係数ではなく、取り込み定数、排出定数などのパラメータが不可欠となるものと考ええる。

参考文献

- 1) Mashiko, K. and K. Jozuka (1964) : Absorption and excretion of calcium by teleost fishes with special reference to routes followed. *Ann. Zool. Japan.*, 37, 41-50.
- 2) Boyden, C. R. (1974) : Trace element content and body size in molluscs. *Nature*, 251, 311-314.
- 3) Bryan, G. W., G. W. Potts and G. R. Forster (1977) : Heavy metals in the gastropod mollusc Haliotis tuberculata (L.). *J. mar. biol. Ass. U. K.*, 57, 379-390.
- 4) Bryan, G. W. (1979) : Bioaccumulation of marine pollutants. *Phil. Trans. R. Soc., Ser. B*, 286, 483-505.
- 5) Cunningham, P. A. (1979) : The use of bivalve molluscs in heavy metal pollution research. In "Marine Pollution : Functional Responses", pp. 183-221, ed. by W. B. Vernberg, et. al., Academic Press.
- 6) 生田國雄 (1972) : ミドリガキに関する研究. 宮崎大学農学部研究報告, 19, 1 - 116.
- 7) Ireland, M. P. and R. J. Wootton (1977) : Distribution of lead, zinc, copper and manganese in the marine gastropods, Thais lapillus and Littorina littorea, around the Coast of Wales. *Environ. Pollut.*, 12, 27-41.
- 8) Phillips, D. J. H. (1977) : The use of biological indicator organisms to monitor trace metal pollution in marine and estuarine environments-A Review. *Environ. Pollut.*, 13, 281-317.
- 9) Romeril, M. G. (1971) : The uptake and distribution of ^{65}Zn in Oysters. *Marine Biology*, 9, 347-354.

- 10) Nakahara, M., T. Koyanagi, T. Ueda and C. Shimizu (1982) : Uptake and Excretion of Cobalt-60 Taken up from Seawater by Octopus vulgaris. Nippon Suisan Gakkaishi, 48, 1739-1774.
- 11) 石井紀明、中原元和、松葉満江、石川昌史 (1991) : 誘導結合プラズマ質量分析法による海洋生物中の²³⁸Uの定量。日本誌 57,779-787.
- 12) Ueda, T., Y. Suzuki, R. Nakamura and M. Nakahara (1982) : Accumulation of Co by Bivalve Tridacna crocea. Nippon Suisan Gakkaishi, 48, 1293-1297.
- 13) Ishii, T., K. Ikuta, T. Otake, M. Hara, M. Ishikawa and T. Koyanagi (1986) : High Accumulation of Elements in the Kidney of the Marine Bivalve Cyclosunetta menstrualis. Nippon Suisan Gakkaishi, 52, 147-154.
- 14) Spies, R. B. (1975) : Uptake of Technetium from Seawater by Red Abalone Haliotis rufescens. Health Physics, 29, 695-699.
- 15) Reed, J. R. (1971) : Uptake and excretion of ⁶⁰Co by Black Bullheads Ictalurus melas (Rafinesque). Health Physics, 21, 835-844.
- 16) 市川龍資、木村健一、須山一兵 (1972) : 海洋生物における⁶⁰Coのとりこみ試験。放射性廃棄物固化体からの放射性核種の溶出と環境での移動に関する試験 (昭和47年度原安協報告書), 71-82.
- 17) Pentreath, R. J. (1973) : The accumulation and retention of ⁵⁹Fe and ⁵⁸Co by the plaice, Pleuronectes platessa (L.). J. Exp. Mar. Biol. Ecol. 12, 315-326.

3 海洋環境中のテクネチウム-99

平野 茂樹
放射線医学総合研究所

Concentration of Technetium-99 in Marine Environment

Shigeki Hirano

Division of Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences

3609, Isozaki, Nakaminato-shi, Ibaraki, 311-12 Japan.

ABSTRACT- Seawater and brown algae have been collected along the coast of Ibaraki Prefecture. Technetium-99 was preconcentrated from seawater by anion exchange resin, Bio-rad AG1-X8, C1-form, 50-100 mesh, and was extracted by 30% tri-n-octylamine(TOA):xylene solution, followed by back-extraction with 5M NaOH solution. Technetium-99 was re-extracted into 2-butanone which was removed by rotary evaporator. The residue was dissolved by diluted sulfuric acid solution, in which 20 mg of cupric ion was added. Technetium-99 was co-precipitated with cupric ion carrier as TcS by adding a thioacetamide solution. Algae were dried and ignited in an electric furnace at 450 °C for 36h. The ash were digested with 4N nitric acid solution on a hot plate to leach technetium-99 into the nitric acid solution. The solution was centrifuged and the supernatant was processed by liquid extraction with 30% TOA-xylene solution as in the analysis of seawater.

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

緒言、テクネチウムは天然にほとんど存在しない元素であったが原子核エネルギーの解放に

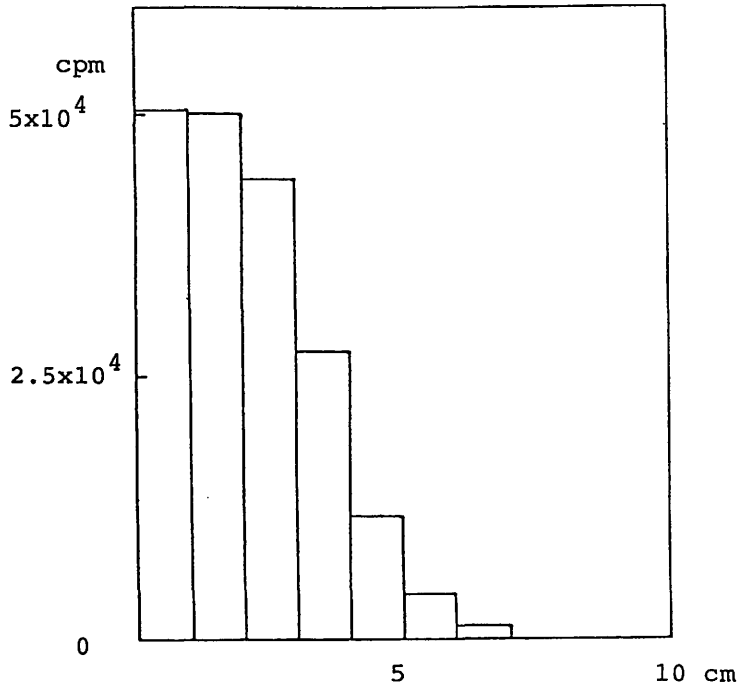


Fig.1 Adsorption of $^{95m}\text{TcO}_4^-$ ion from seawater on the anion exchange resin, Bio-rad AG 1-X8, Cl-form, 50-100 mesh.

ウムが吸着する事がわかる。また海水に添加した ^{95m}Tc の濃度を上下に10倍ずつ変化しても吸着パターンは変わらなかった。次に、このように ^{95m}Tc を吸着させたカラムにテクネチウムを加えてない通常の海水を30ℓ上から前と同様に通した結果Fig. 2に示すようなパターンが得られた。このグラフから樹脂に吸着したテクネチウムは単なる物理吸着ではなく可逆的な

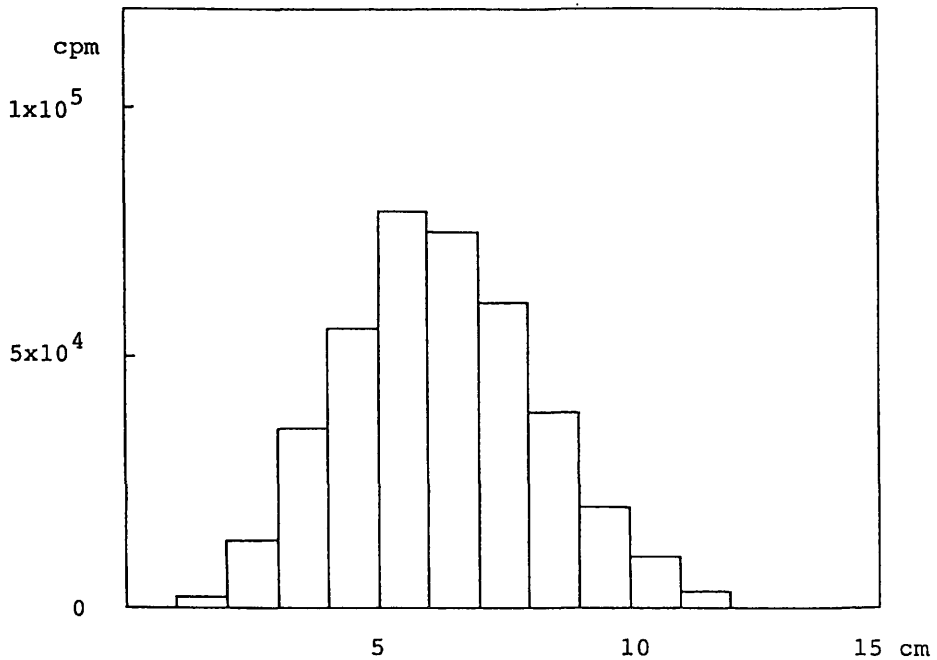


Fig.2 Chromatographic movement of ^{95m}Tc in the column by 30ℓ of normal seawater.

伴い種々の同位体が生成されるようになり、これまでに質量数 90 から 110 まで 30 の核種が知られている。大部分の同位体が短寿命であるが、97、98 および 99 の質量数のものが長寿命核種であり、この内⁹⁹Tc はウラン、トリウム或いはプルトニウムの核分裂による収率が高く¹⁾、従って使用済み核燃料の再処理—リサイクルの過程における挙動が注目される²⁾。また放射性医薬として近年大量に使用されている^{99m}Tc も壊変の結果⁹⁹Tc になるのでその処分後の行末についても大きな関心が持たれている。

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

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

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

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

1. 実験方法

1-1. テクネチウムの前濃縮

テクネチウムは酸素の十分溶解している海水中では安定な過テクネチウム酸イオン、 TcO_4^- の形で存在しているので陰イオン交換体によく吸着する。本報では Biorad、AG 1- \times 8 樹脂で海水から TcO_4^- の捕集を行った。内径 20 mm のカラムに上記の陰イオン交換樹脂、50 ~ 100 メッシュ、Cl 型を充填した後、^{99m}TcO₄⁻ を添加した海水を 50 ml/min の流速で通しテクネチウムの吸着挙動を観察した。カラムの中の樹脂を駒込ピペットで上から 1 cm ずつ静かに取りプラスチック製の試験管に入れ^{99m}Tc の γ 線を測定した。その結果、Fig. 1 に示す様な吸着パターンが得られた。これは海水 30 l に 12.6KBg の^{99m}Tc を添加して樹脂カラムを通した時の吸着パターンであるがグラフから明らかのように上から 7 cm の樹脂にほぼ 100 % のテクネチ

イオン交換吸着である事がわかる。以上、 ^{95m}Tc をトレーサーとして陰イオン交換樹脂によるテクネチウムの前濃縮を検討した結果定量的に大容量の海水中から捕集できる事がわかったので環境中の ^{99}Tc の分析に用いる事にした。テクネチウム-99と-95 mの半減期の比は約 10^9 であるのでここでトレーサーとして用いた ^{95m}Tc の濃度、 0.4KBg/l は ^{99}Tc の約 10^{-6}Bg/l に相当しほぼ海洋環境試料中の濃度に同じである。従って本法を直接 ^{99}Tc の分析に使用しても濃度の違いによる分析誤差の問題は無い。

海水中の ^{99}Tc 濃度は $\sim 10^{-6}\text{Bg/l}$ 程度の濃度であり、後に述べるベータスペクトロメータの検出限度から500から1,000 lの海水を分析してようやく実測出来る量の ^{99}Tc を捕集できると考えられる。従って海水中の ^{99}Tc を分析するにはトレーサー実験で用いたものよりカラムの断面積が10倍のものを用いて前濃縮を行い、Fig. 3に示す方法で ^{99}Tc の分析定量を行った。 ^{95m}Tc を用いたトレーサー実験はこの10分の1の規模で行い、収率が65%で誤差が20%であった。テクネチウムは安定同位体が無いために収率補正が難しいので、トレーサー実験で得られたこの値、65%を仮の収率として海水の分析定量の際に使用した。

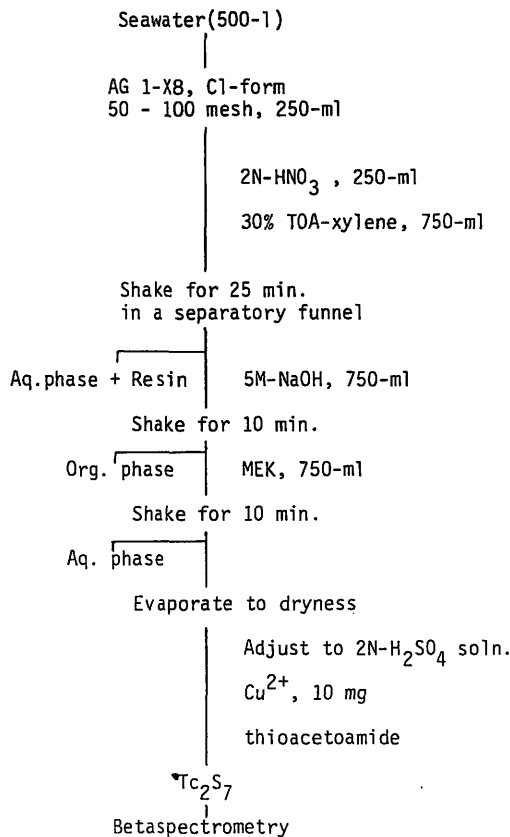


Fig.3 Scheme for the determination of ^{99}Tc in Seawater

1-2. 海藻中のテクネチウムの分析法

海藻中のテクネチウムの分析定量についても ^{95m}Tc を用いてトレーサー実験により分析法の検討を行った。実験用水槽に海水を入れ ^{95m}Tc を添加した後に褐藻類のアラメ、Eisaria bicyclisを投入して ^{95m}Tc を濃縮させた。十分な放射能をアラメが蓄積した後水槽から取り出してビーカーに移し、濃硝酸をアラメ1kg生当たり1ℓ加えて時計皿でフタをして加熱した。ほぼ2昼夜加熱する事により完全に溶解した。この操作でテクネチウムの放射能は減少しなかった。この硝酸溶液を水で希釈して種々の硝酸濃度の溶液にトリー-n-オクチルアミン(TOA)の30%のキシレン溶液を等量加えて分液ロートで抽出した結果Fig. 4に示す曲線が得られた。この図から硝酸の濃度が4N以下ならば95%以上の抽出率で有き相にテクネチウムが移行する事がわかる。また海藻を110℃で乾燥した後、電気炉で450℃で灰化したものを硝酸に溶解しても同様な結果が得られた。Fig. 5にその分析法を示した。海水の分析と同様に実際に試料の分析定量には収率モニターを使用せず、トレーサー実験で得られた値、70%を仮の収率として使用した。

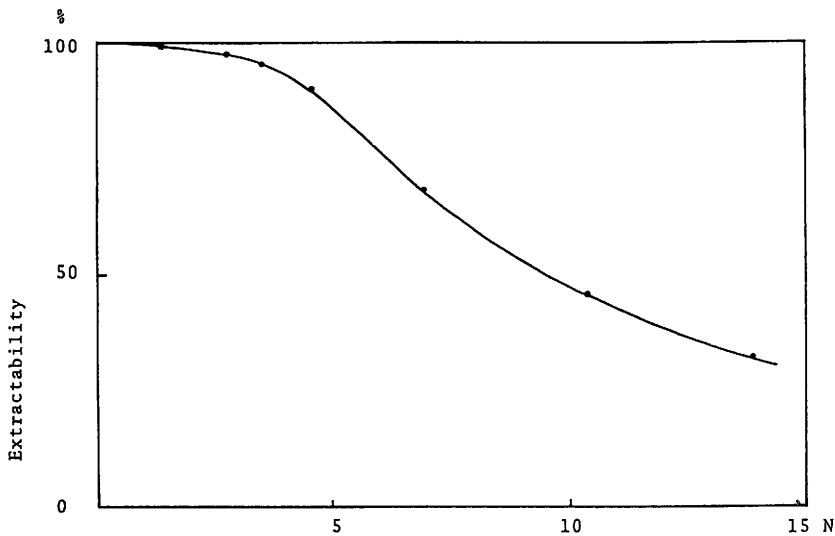


Fig.4 Change in the extractability of ^{95m}Tc by 30% TOA-xylene from various concentration of HNO_3

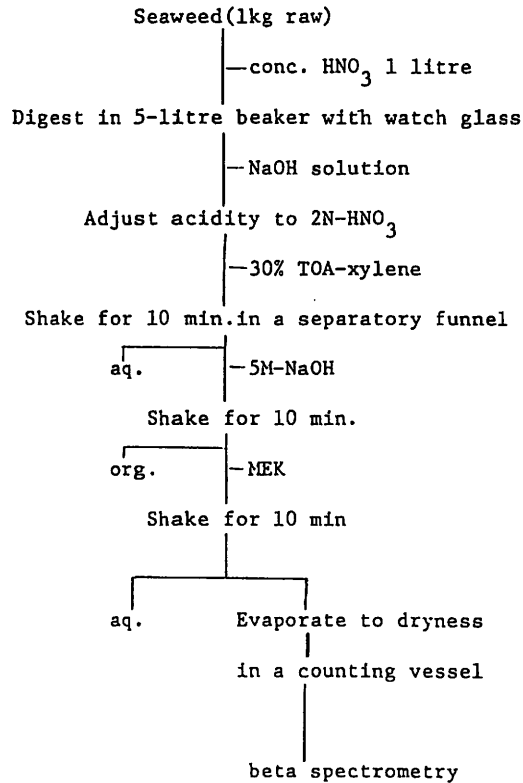


Fig.5 Scheme for the determination of ^{99}Tc in Seaweeds
Activity of Technetium-99 in Seawater

2. 海水および海藻中のテクネチウム-99 濃度

当初トレーサー実験に使用したカラムと同じ型のもので海水 100 l を前濃縮して分析を行ったが ^{99}Tc は検出されなかった。従って、これと同じカラムの 10 本分、すなわち 1,000 l の海水を分析した結果 Fig. 6 の斜線で囲ったヒストグラムに示す濃度の ^{99}Tc を定量する事ができた。その後内径 70 mm の大容量のカラムを用い、500 l/min の流速で 500 l の海水を分析定量した値を黒塗りのヒストグラムで示した。この定量に用いた海水は茨城県那珂湊市にある放医研・那珂湊支所前の海岸からポンプ揚水した海水である。1988 年から 1990 年の測定期間中にかなり ^{99}Tc の濃度の変動が見られるが、一番高い濃度でも約 0.2mBq/l の低い値であった。

この海水中の ^{99}Tc 濃度の変動に対して海藻中のその濃度がどのように変化するかを調査した結果、Fig. 7 に示すような変化を示す事がわかった。これはウミトラノオ、Sargassum thunbergii の ^{99}Tc 濃度を Bq/kg 生で表わしたものであるが、海水中の ^{99}Tc の変動にかなり敏感に応答してその濃度を变化させる事がわかる。

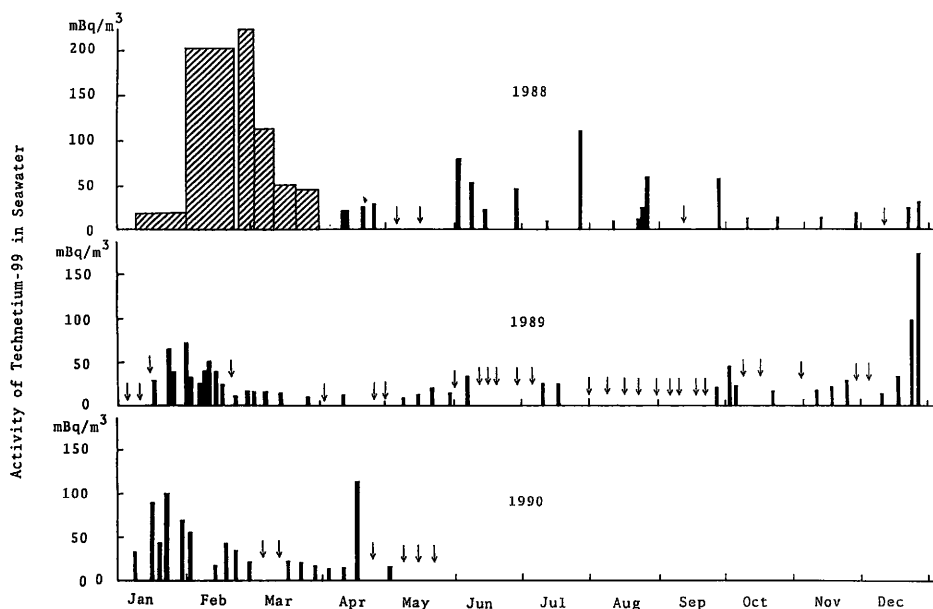


Fig.6 Change in the concentration of ^{99}Tc in seawater collected in Nakaminato-shi.

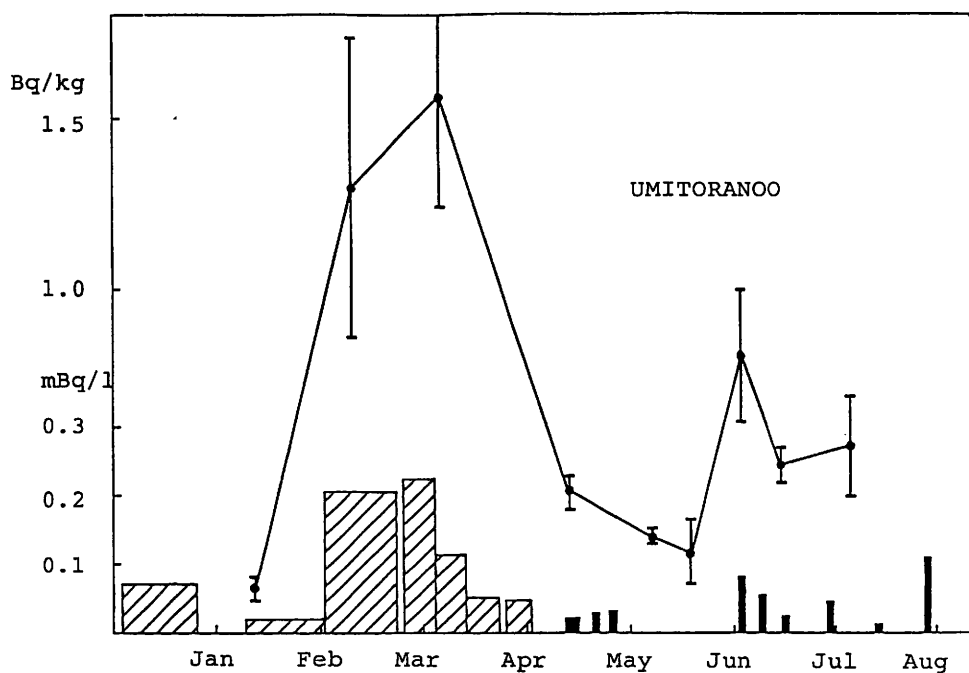


Fig.7 Change in the concentrations of ^{99}Tc in Umitoranoo with those in seawater.

このウミトラノオはホンダワラの仲間では食用にはならない海藻であるが、テクネチウムの海洋環境における濃度をモニタリングする際に指標生物として利用できる。ウミトラノオの濃縮係数 (CF) は那珂湊における実測値と $^{95\text{m}}\text{Tc}$ を用いたトレーサー実験の結果から5,000から20,000の範囲にある。この値を基礎に各地の褐藻の分析値からその地点の海水の ^{99}Tc の濃度

の測定を試みた。Table 1 に茨城県北茨城市五浦、千葉県の御宿と銚子、そして青森県で採取した褐藻の分析値を表にまとめた。この実測値と濃縮係数の値から⁹⁹Tcの濃度の推定値を最後の欄に示した。この欄の下から二つ目と最後の行の値はそれぞれ青森県六ヶ所村と鱒ヶ沢で海水1 m³を分析した実測値であり、太平洋岸では検出されず、日本海側では検出限界付近の値が得られた。

Table 1 CONCENTRATION OF ⁹⁹Tc IN BROWN ALGAE AND SEAWATER

Species	Sampling Date	⁹⁹ Tc Measured in Algae	⁹⁹ Tc Estimated in Seawater
Umitoranoo (Izura)	1989- 3 -10	10.6±6.6 mBq/kg raw	0.53-2.1 mBq/m ³
	5 - 8	18.3±6.8	0.92-3.7
	6 - 5	16.9±2.7	0.85-3.4
	7 -19	18.2±2.3	0.91-3.6
	1990- 3 -14	6.3±7.2	
	5 -14	7.3±2.8	0.36-1.5
	7 -23	9.3±2.3	0.47-1.9
Nejimoku (Onjuku)	1989- 5 - 9	3.6±1.03	0.7
Hijiki (Choshi)	1990- 3 -30	3.9±0.52	0.8
Akamoku (Aomori)	1990- 6 -20	3.0±0.67	*N.D.
(Ajigasawa)			*6.0±2.3

Concentration Factors: 5,000-20,000 for Umitoranoo, 5,000 for Nejimoku, Akamoku and Hijiki.
* Measured in Aomori and Ajigasawa.

3. まとめ

日本近海の⁹⁹Tc濃度はまだかなり低く、一部の地域を除き1 mBq/m³前後の濃度であろうと予想される。この値は現在のところ直接海水を分析定量して測定できる限界より低いので種々の褐藻類の測定値からの推定であるが褐藻類は実測値であるので海洋環境中にはすでに⁹⁹Tcが広く存在しているのは確かである。海洋における¹³⁷Csの分布はよく調査されており海域により多少の違いはあるが、3 mBq/l前後の値を示している。セシウムとテクネチウムは共に海水中で溶存状態にありその挙動が類似しているとされている。⁹⁹Tcの海水中の濃度が1 mBq/m³とすると¹³⁷Cs/⁹⁹Tcの放射能比が 3×10^3 となり、核実験で生成した両者の放射能比を¹³⁷Csの減衰を考慮して核分裂収率から求めると約 3.5×10^3 となり非常によく一致する。

- 1) G. H. Cartledge, J. Am. chem. Soc. 77, 2658(1955)
- 2) T. J. Anderson and R. L. Walker, Anal chem 52 709(1980)
- 3) 久保田益充、日本原子力学会誌 29, 775(1987)
- 4) R. J. Pentrea th et al. "Marine radioecology"
P. 203(1979), NEA-OECD, TOKYO.
- 5) R. E. Wildung et al. Health Phys. 32 315(1977)
- 6) S. Hirano et al. RADIOISOTOPES, 37, 186(1989)

海洋放射能研究の諸問題

清水 誠

東京大学農学部水産学科

Some topics on radioecological research in marine environment

Makoto Shimizu

Faculty of Agriculture, University of Tokyo

1-1-1, Yayoi, Bunkyo-ku Tokyo, 113 Japan

ABSTRACT- In Japan, systematic researches on marine environmental radioactivity started in 1954 when “Bikini incidence” occurred. After several years of handling emergency situations, basic studies were carried out to understand processes and mechanisms of contamination of aquatic organisms by radionuclides. At this period “Hiyama Group” had a large contribution to the development of this new field of research. Important concepts and items have already been dealt with in this Grant Group.

Toward the end of “Hiyama Group”, a new project started in Nuclear Safety Research Association. This project, so-called “Kaihohtoku”, aimed at gathering necessary information for safety assessment on the release of low-level radioactive liquid wastes from a newly planned spent-fuel reprocessing plant at Tokai. NIRS-Nakaminato Branch was established first as Marine Radioecological Station in this project. The term “radioecology” got popularity also in this period. Many important results were obtained and scientific basis of the safety assessment was established in this project.

Today we have not any urgent matter to be handled concerning radioecology in our coastal environment. Nuclides found are exclusively of fallout and of a quite low level. We have also established methodology of radiological assessment. So, what is the problem? The problem is “from conservative to realistic”, which is the trend in the world. Here, from this viewpoint, some topics

such as models and parameters including concentration factors and their validation and verification in the natural environment were discussed.

はじめに

わが国で海洋放射能研究が組織的に始まったのは“ビキニ”以来であり、それから40年近い年月が流れた。当初“原爆マグロ”の対応に追われたが、やや落ちついてから汚染機構の解明の基礎的研究が始められ、フィールドでの調査と室内での代謝実験が平行して行われた。濃縮係数の概念が普及し、この係数で結果の整理が行われるようになっていった。この間、研究の推進に大きな役割を果たしたのは文部省科学研究費の“桧山班”で、多くの重要な課題がすでにとりあげられている。¹⁾

桧山班の終わりの時期に始まったのが、新たに建設されるわが国初の使用済み核燃料再処理施設の安全評価のための基礎知見を得ることを目的とした研究組織“放射性廃液の海洋放出調査特別委員会(原子力安全研究協会)”、通称海放特、である。²⁾見えざる研究所とも言われたこのプロジェクトの成果も大きなもので、その後の研究及び安全評価の方法論の発展の基礎を築いた。現放医研那珂港支所が臨海実験場として作られたのも、このプロジェクトが契機となっている。このプロジェクトの開始と前後して、ラジオエコロジーという言葉がよく使われるようになったが、研究対象の認識の仕方が変わってきたことを示すものでもある。³⁾

わが国では原子力発電所、再処理施設いずれも沿岸立地で、排水は海洋に放出される。そのためあって、海洋での調査・研究は進んでいるが、淡水・汽水域での調査・研究が手薄というのが現状である。⁴⁾

わが国周辺海域の放射能レベルも1970年代以降フォールアウトの減少とともに低下し、沿岸立地の施設からの放出放射能も僅かの例を除いてはほとんど海洋環境から検出されていない。安全評価の方法も原理的にはほぼ確立されたといえよう⁵⁾。調査・研究の枠組みも整理されており(Fig. 1)、水中・堆積物中での核種の水・底泥・生物における挙動を定量的に記述することが求められるわけである。これも多くの部分が解決済みともいえる。もちろん、まだ十分でない部分もあるのは事実で、堆積物が関係してくる問題であるとか、食物連鎖モデルなど重要な課題も残されてはいる。

このような経過、現状を踏まえて、海洋放射能研究に今求められるのは、何であろうか。それはさらに深く実態に迫ることであろう。安全評価の方法もある意味で確立されているとはいえ、それはかなり過大に安全側に見積もる方法が一般で、必ずしも現実を忠実に追っているとはいえない。安全側であることが望ましいとはいえ、それが過度になれば、資源・エネルギーの無駄遣いにつながらないでもない。こういったことを考えながら、いくつかの話題を取り上げ、今後の検討の方向について述べることにする。

なお、海洋拡散と生物影響(特に生態系影響)の分野は海洋放射能研究の重要な課題を含む

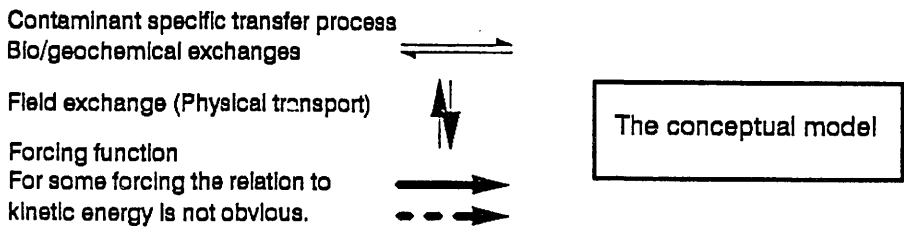
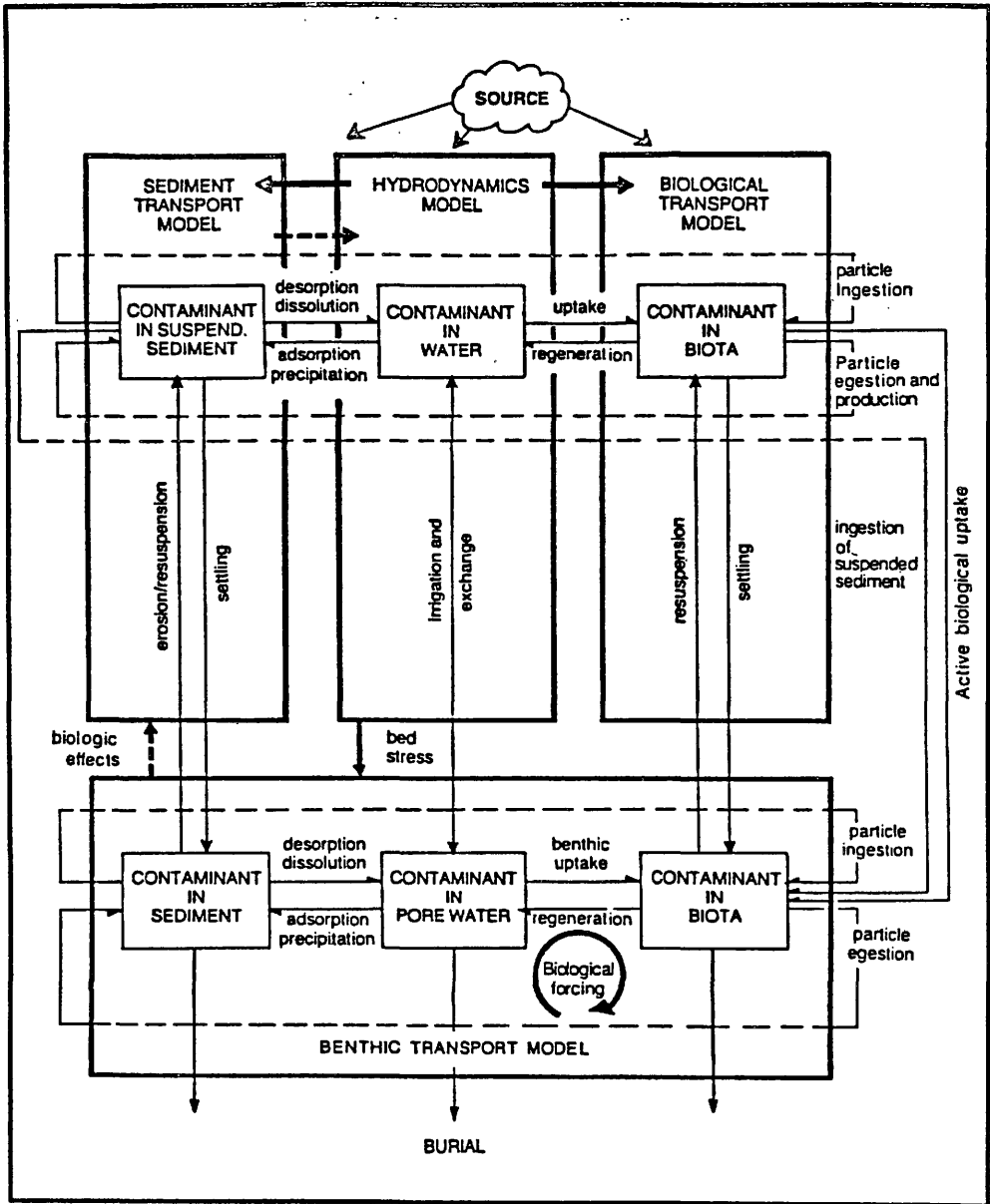


Fig.1 Conceptual model for nuclide transport in aquatic environment (IAEA 1991)

が、ここでは触れない。

1. 濃縮係数

濃縮係数が海洋放射能研究において果たした役割の大きさは、誰もが認めるところであろう。従来からあった地球化学の存在比の概念の応用ではあるが、調査結果の理解に、実験結果の整理に、安全評価に、ときわめて便利に使われてきており、今後も使われるであろう。放射能以外の重金属・有害化学物質等による水界汚染においても大いに使われている。

濃縮係数については古くからいろいろの論議がなされ(例えば清水(1979)⁶⁾)、また、IAEA⁷⁾を始めいくつものまとめもあり、当面一般的な評価には問題はない。もちろん、AmなどのアクチノイドやTcなどまだ十分な情報のない核種もあり、今後も知見の充実に努める必要はある。しかし濃縮係数に関しては新たな知見を得る努力と同等あるいはそれ以上に、地球化学・生態学・生理学・生化学などの視点から、その本質に迫る努力が必要とされよう。その本質とは元素・核種の性質と生物の性質から濃縮の原理・機構を予測することであり、何らかの法則性を見いだすことである。さもないと、核種-生物の種の無限の組み合わせについて、実験・分析が必要となってしまう。例えば、竹松は懸濁物質と元素との親和性の検討に関連して濃縮係数についても整理を行い、吟味すれば生物種が異なっても濃縮係数に規則性のあることを見いだした⁸⁾。しかし、IAEAの示している値をプロットしてみると、明瞭な規則性が認められない。(Fig. 2)このことはまとめられた数値をさらに吟味する必要があることを示唆している。

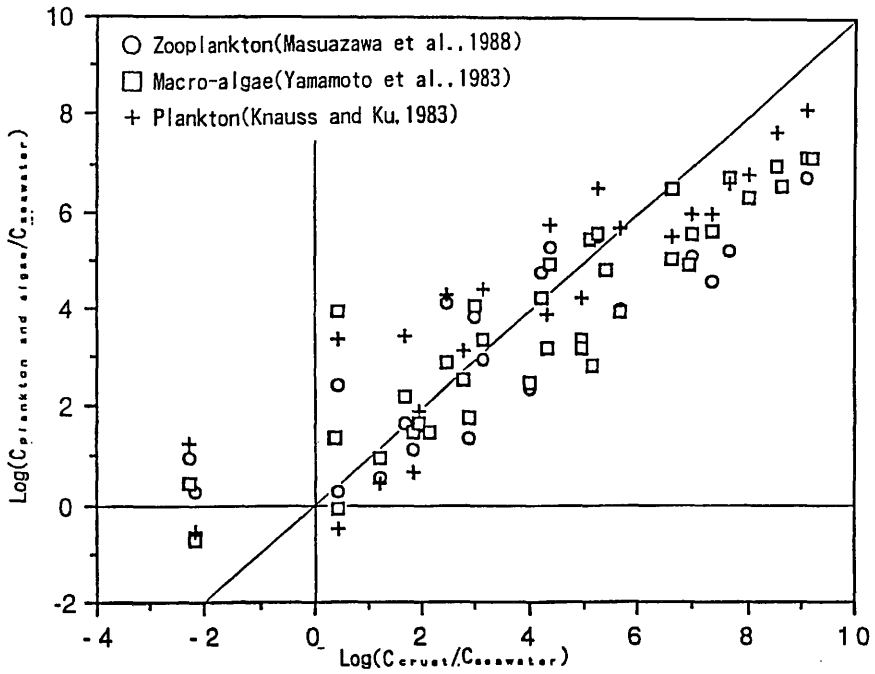
また当然ながら、数値があるからといって濃縮係数を得る際に満たされるべき条件を満たしているかどうかの検討なしに使ってはならない。低レベル放射性固体廃棄物の深海投棄に関連した東海区水産研究所(現中央水研)の調査で、深海生物の濃縮係数が問題になったことがあった。¹³⁷Csの生物中濃度を生息深度の海水中濃度で割って濃縮係数を算出したところ、ホカケダラ類で 10^4 に近い値が得られた⁹⁾。これは餌として濃度の高い上層に生息する生物を利用しているために起きていることと推測されるわけで、こういった見かけの濃縮係数については慎重になる必要がある。中央水研の吉田はその後の安定Csの分析結果からホカケダラの真の濃縮係数はずっと低く他の魚類と変わらないことを証明している。¹⁰⁾

濃縮係数についてこれから求められるのは、使われる場に応じた推奨値を設定することであろう。これによってできるだけ実態に近い評価が可能になると考えられる。評価に使う濃縮係数を選ぶ手順としては、できるだけ評価対象地域の現場で得られたものを最優先とし、適当なデータがない場合には問題となる生物種・核種について新たに分析を行うことも必要となろう。

2. モデルとパラメータ

生物による核種の取り込み・蓄積・排出の記述には当然モデルが必要となる。これまでにい

a) CF for organisms in eastern Pacific



b) CF IAEA Tech. Rept. Ser. No.247

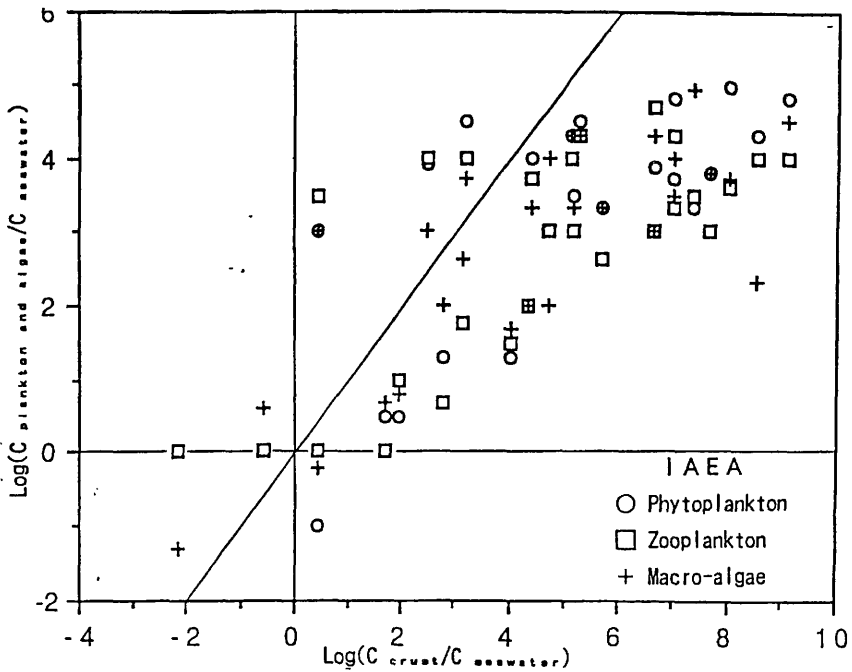


Fig. 2 Relationships between concentration factors and crust/seawater concentration ratio

ろいろのモデルが提案されているが、これも目的に応じて使い分ける必要がある。また、必要とされるパラメータに関する知見が十分かどうかによっても使えるモデルが制約を受ける。例えば食物連鎖を通しての核種の移行・蓄積を検討した際、濃縮係数を主とした静的アプローチと代謝回転を考えた動的アプローチが検討の対象となったが、用いるパラメータの信頼性が静的アプローチの場合が優っているため、評価は主にこの方法で行われた。¹¹⁾

取り込み・蓄積・排出の記述に理論的接近においても現場データの解釈にも最もよく使われるのはコンパートメントモデルであり¹²⁾、いろいろの場合に適用可能であるが、使えない場合もあることに留意しなければならない。コンパートメントモデルの基本的仮定はコンパートメントの大きさ一定というものだが、成長とともに代謝プールの大きさも変わるといった場合にはこの仮定が満たされないこととなり、使えない。このような場合に適用するモデルの素案が提示されている¹³⁾が、さらに詳細に広く検討されるべきであろう。

食物連鎖モデル、あるいは生態系モデルについても今後の発展が大いに期待される。食物連鎖に関連して付言すれば、取り込み・蓄積への水と餌の寄与の大きさについて、まだまだ知見が十分とはいえない。

濃縮係数も含めてモデルとパラメータに関して重要なのは、現場での検証であろう。環境放射能研究である以上、環境中での核種のふるまいを理解することが最重要課題であって、実際に使えなければ意味がない。実験などは理解のための補助手段である。そういった観点からして、ラジオエコロジーのフィールドがほしいというのが切実な願いである。しかし、幸か不幸か日本周辺の水域にはこれがない。(ある時期の浦底湾がそう呼べたかも知れないが。)従ってフィールドでモデルやパラメータの検証を行う機会があったら逃してはならない。そういう意味でチェルノブイリは一つのいい機会であった。大気中の拡散等についてはかなりの取り組みがなされたが、水の中の問題については十分とはいえないであろう。もちろん、いろいろ制約はあった。Fig. 3は公表されているデータ(Radioactivity Survey Data in Japan)を拾ったもので魚類、貝類、海藻類で1986年に明瞭に高くなっているものもあれば、影響が全く見られないものもある。こういった一般的な調査での年1回のサンプリングでは影響の把握はむずかしい。

もう少し細かく変化を追った(それでも十分ではないが)データについて、理解を試みて見よう。Fig. 4は福井県で測定されたホンダワラの丹羽大橋での¹³¹Iの観測値を降下量を基にして記述を試みたものである。丹羽大橋の試料は浅いところに生息していて降下物あるいは河川の影響を強く受けているという¹⁴⁾。ここで試みたシミュレーションは降下量が河川を通して影響するという仮定に基づくもので、毎日の降下量の測定値と代謝回転速度を用いてホンダワラ中濃度を計算している。なお、河川を通して影響を考えているため1日の時間遅れ効果を組み込んでいる。図中の計算結果は敦賀と美浜の降下量をそれぞれ使ったものだが、いずれも有効半減期6日に相当する代謝回転速度で計算したものが、観測値に最もよく適合した。この試みはまだ粗いものだが、今後いろいろの検討がなされることを期待したい。なお、先に

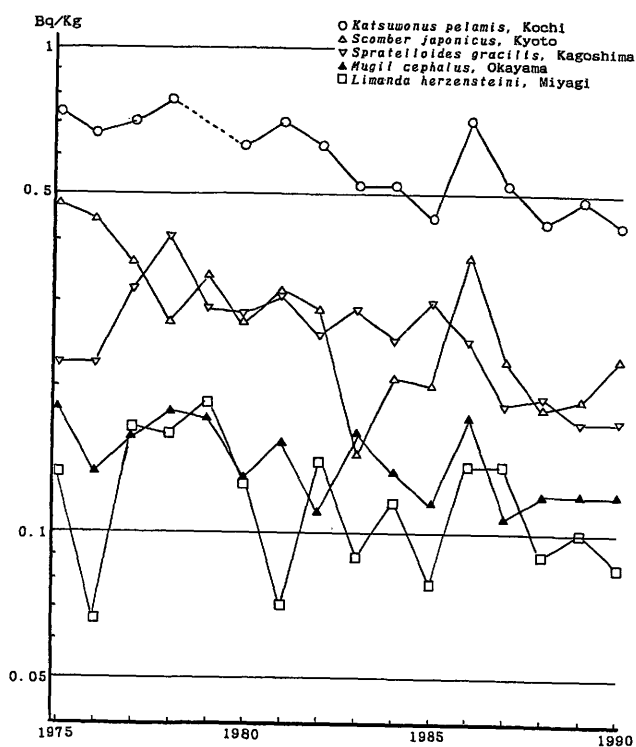


Fig.3-1 Cs-137 in marine fish in coastal waters around Japan

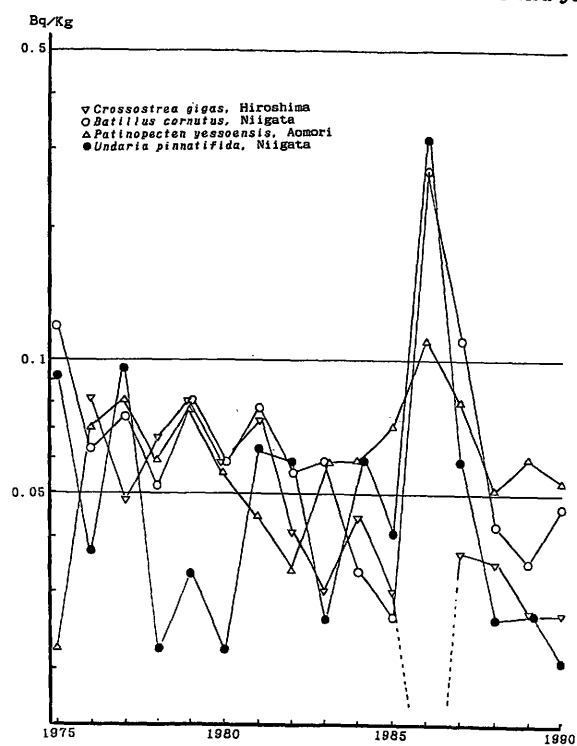


Fig.3-2 Cs-137 in molluscs and sea weeds in coastal waters around Japan

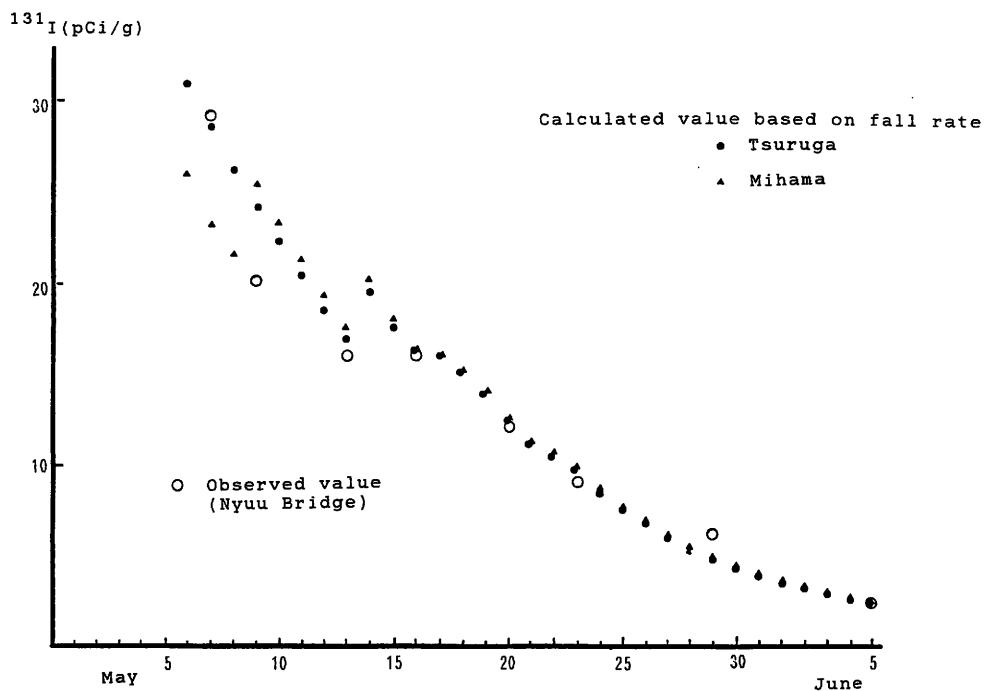


Fig.4 ^{131}I in Sargassum after Chernobyl accident observed in Fukui Pref.

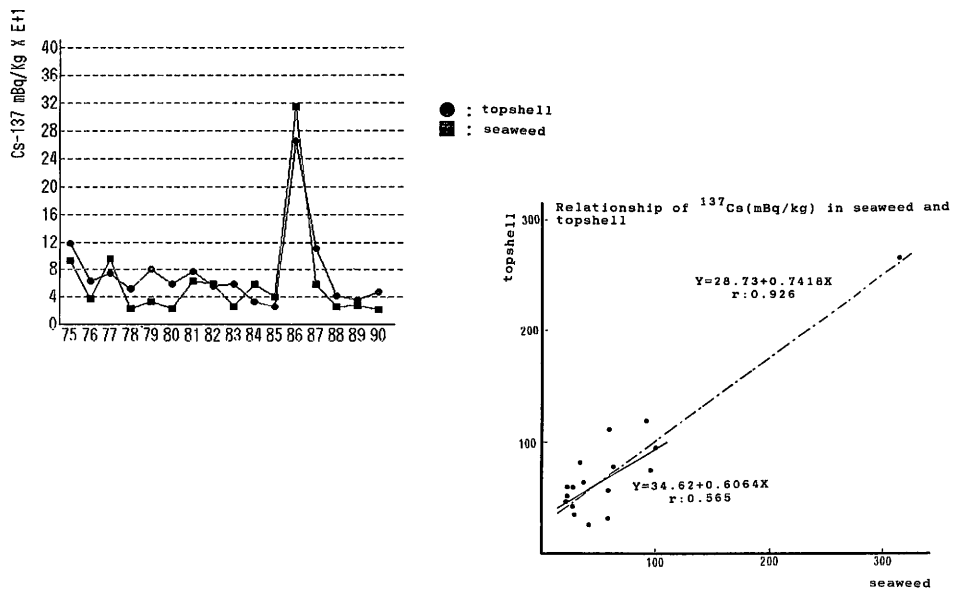


fig.5 ^{137}Cs in brown seaweed (Undaria pinnatifida) and topshell (Batillus cornutus) at Ryoutu

Fig. 3 に示したデータはサンプリングの問題もあって解釈が難しいことを述べたが、そのほかにも考慮すべき点がある。Fig. 5 は毎年5月にサンプリングされている新潟県両津のサザエとワカメについて、サザエの濃度変化が相当部分ワカメの濃度変化で説明できることを示したもののだが、この場合試料についてさらに検討を加える必要がある。それはサザエの試料がおそらく複数の年齢群からなり、毎年その組成が一定しているとは限らないという問題である。Fig. 3 に示したデータはほとんどすべて同じ問題を含んでおり、今後、個体だけではなく個体群の取り込み・蓄積・排出を扱うモデルを考える必要がある。

モデルをあてはめてパラメータを推定することに関連して「加速法」¹⁵⁾の利用に触れたい。その名称は誤解を産み易いが、比較的短期間の実験で平衡に達していなくても計算で濃縮係数等のパラメータを得る方法とされている。しかし、決して代謝過程を加速するわけではないので、代謝の遅いコンパートメントがあった場合、短期間の実験でこれを定量的に把握するのは困難であるという推定における基本的な制約を免れるわけではない。実験期間の何倍もの半減期を推定するなどということは、かなり難しい。Fig. 6 は適当にばらつかせたデータを作っ

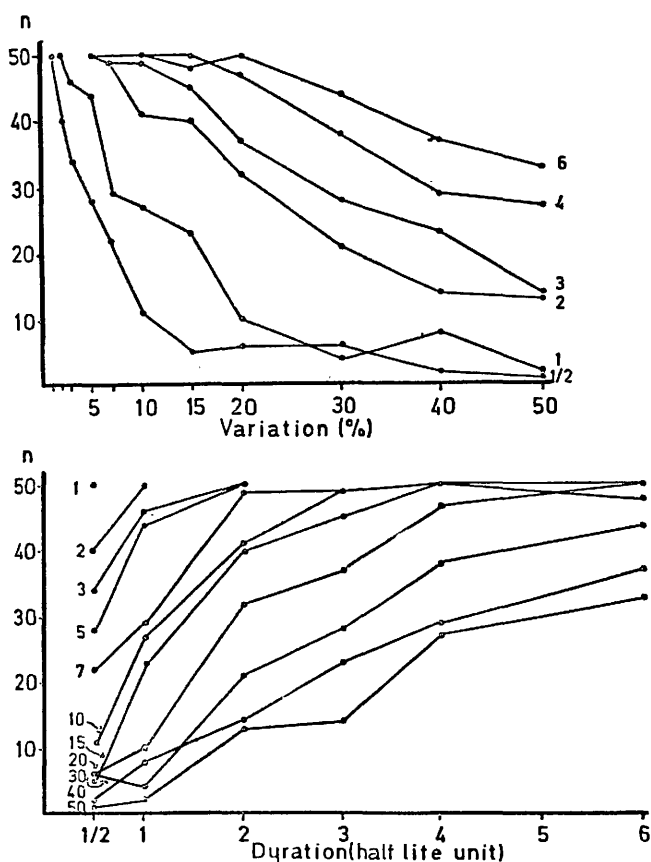


Fig.6 Relationship between the number of estimates of Q_e fallen within a range of 800-1200 and variation or duration.

て、それに式の当てはめを行ってパラメータを求め、推定値がどのくらい設定値(真の値)に一致するかをみた試みのまとめの図だが、実験期間が設定半減期の数倍ないと十分信頼性のある数値は推定できないことを示している¹⁶⁾。よほど観測データのばらつきが小さければ、短い実験期間である程度信頼できる結果が得られないでもないが、いずれにしても得られた結果を現場の値(例えば安定元素の分析で得た濃縮係数等)と比べて検証するなど、総合的な検討を経て、初めて使えるかどうかの判断が下されるべきである。

おわりに

以上、いくつかの問題に触れたが、環境放射能の研究はこれまでも他の汚染研究をリードしてきた実績がある。今後も積極的に他の分野での研究に参入し、折角の実績を広く役立てる義務と責任があろう。

引用文献

- 1) 桧山義夫(編) 放射線影響の研究 東京大学出版会 (1971)
- 2) 原子力安全研究協会 放射性廃液の海洋放出調査特別委員会5ヵ年のあゆみ NSRA MEMO-17 (1981)
- 3) 清水 誠 ラジオエコロジー Isotope News No. 184: 2-4 (1969)
- 4) 清水 誠 汽水域における汚染評価の試み 海洋と生物 12(6): 457-463(1990)
- 5) 清水 誠 水圏における放射性核種の移行 原子力学会誌 34(5): 395-401(1992)
- 6) 清水 誠 生物濃縮—とくに水産生物における濃縮係数とその変動 Isotope News No. 302: 2-5(1979)
- 7) IAEA Sediment Kds and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment IAEA Tech. Rept. Ser. No. 247(1985)
- 8) 竹松 伸 海洋環境における元素の沈澱機構と粒状物質に対する元素の分配係数あるいは濃縮係数
海洋放射能挙動評価専門委員会海域モデルワーキンググループ中間報告 原子力安全研究協会(印刷中)
- 9) 原子力環境整備センター 低レベル放射性廃棄物の試験的海洋処分に関する調査研究報告書昭和58年度(1984)
- 10) 吉田勝彦 深海性ソコダラ類の¹³⁷Cs濃度と比放射能 平成4年度日本水産学会秋期大会講演要旨集 p.39(1992)
- 11) Doi, T. et al. A preliminary assessment of biological transport of radionuclides dumped at sea bottom in "Marine Radioecology"(OECD / NEA) PP. 95-110(1979)
- 12) Hiyama, Y. and Shimizu, M. Uptake of radioactive nuclides by aquatic organisms: The application of the exponential model in "Environmental Contamination by

Radioactive Materials” (IAEA) pp. 463-476(1969)

- 13) Shimizu, M. and Taguchi, M. Variation of metals in shark with size and its prediction by a simple growth model Int. Conf. “Heavy Metals in the Environment” Heidelberg, September 1983 pp. 630-633(1983)
- 14) 福井県 チェルノブイリ原子力発電所事故に関連した臨時放射能調査報告書(速報)(1986)
- 15) 松尾昌季 生物濃縮速度論 「海産生物汚染機構の動的解析」(放医研環境セミナーシリーズNo.14)NIRS-M-70 pp. 1-11(1988)
- 16) Shimizu, M. Conditions necessary on estimating parameters for kinetics of radionuclides in aquatic organisms Presented at Int. Symp. “Interaction between Water and Living Matter” 6-10 October 1975, Odessa, USSR

1 放射性核種の農作物への移行経路とパラメータ

内田 滋 夫
放射線医学総合研究所

The pathways of radionuclide transfer to crops and their parameters

Division of Radioecology

Shigeo Uchida

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences
3609 *Isozaki, Nakaminato-shi, Ibaraki, 311-12, Japan*

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

In this paper, the author introduces the values of the parameters of radioiodine and technetium obtained by our research group. Laboratory experiments on the transfer parameters of radionuclides from the environments to crops (rice plant and leaf and root vegetables) were carried out in the following two systems:(1)soil-to-crops (root uptake) and (2) atmosphere-to-crops (deposition).

The soil-plant transfer factors of radioiodine for polished rice and for brown rice on a dry weight basis at the harvest were 0.002 and 0.006, respectively. The ratio of radioiodine in brown rice to polished rice was about 1:0.3. The ratios of the iodine activities in different organs compared to flag leaf were the following, root (3.4):flag leaf (1.0):rachis (0.52):hull (0.053):brown rice (0.0023) on a dry weight basis, i.e., the radioiodine concentration decreased significantly

from root to brown rice. These findings suggest that radioiodine taken up by the root is only slightly translocated to rice grains.

The transfer factor of Tc for brown rice was less than 0.005. In contrast to this, the transfer factors for wheat plants were higher.

It is known that the typical chemical species of gaseous iodine in the atmosphere are elemental iodine and methyl iodide. The deposition characteristics of both chemical species of gaseous iodine to rice grains were obtained.

Mass normalized deposition velocity (V_D) and grain number normalized deposition velocity (V_S) of gaseous elemental iodine (I_2) and also methyl iodide (CH_3I) on unhulled rice were measured. Both V_D and V_S of methyl iodide were about one percent those of elemental iodine. Distribution pattern of methyl iodide between unhulled rice and brown rice was much different from that of elemental one.

1. はじめに

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

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

本研究は、大気または土壌から農作物への長半減期核種(¹²⁹Iおよび⁹⁹Tc)の移行パラメータに関して研究を行ったものである。すなわち、沈着経路については、放射性ヨウ素(I_2 および CH_3I)の水稲や葉菜類などへの移行を研究した。経根吸収経路については、これまであまりデータが得られていない¹²⁹Iおよび⁹⁹Tcの2核種について、トレーサ実験により、土壌から米や葉菜類などへのわが国の環境条件下における移行係数(TF)を求めた。

本報告では、紙数の関係で水稲への移行についてだけ記述する。

2. 実験方法

2. 1. 沈着経路

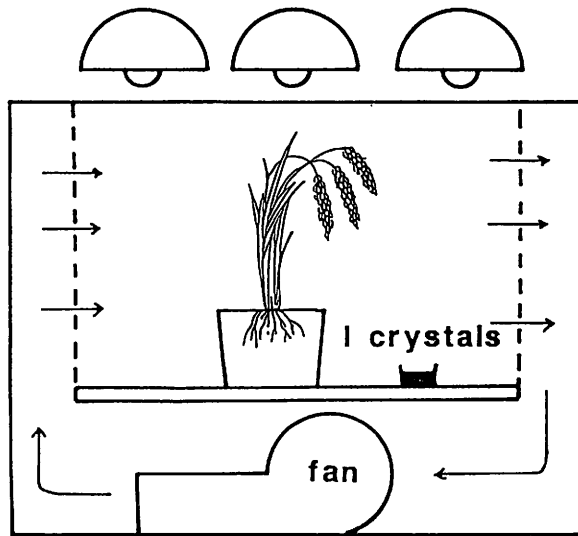


Fig.1-1 Schematic of the iodine exposure chamber.

本実験では、ポット栽培した水稲を用いて沈着実験を行った。乾性沈着の場合は、Fig.1-1に示すように、ある生育段階の水稲を放医研ヨウ素曝射装置内に置き、安定ヨウ素 (I_2 および CH_3I) を暴露した。暴露後、沈着速度を求めるため水稲各部位を採取した。さらに、ビニールハウス内で収穫まで栽培し、沈着したヨウ素の生物学的半減期を求めた。一方、湿性沈着の場合は、実験室内で放射性ヨウ素 (I^- および IO_3^-) を添加した水溶液 $CaCl_2$ 溶液 (Ca 2 ppm) を用いて、モミへの沈着量やモミから玄米への移行量に関し、化学形の違い、さらに経過時間による違いを検討した (Fig.1-2)。

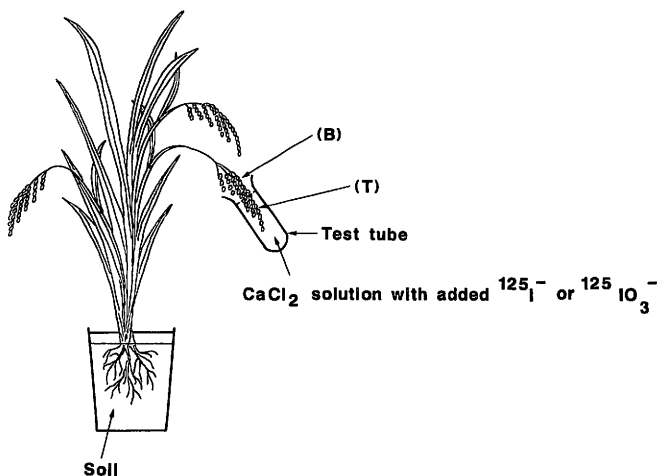


Fig.1-2 Illustration of the uptake experiment from unhulled rice. (T); top of the ear (dipped part of the ear) ; (B); bottom of the ear (non-dipped part of the ear)

2. 2. 経根吸収経路

茨城県内で採取した水田および畑土壌を風乾した後、ふるい(5 mm×5 mm)で小石や植物根を取り除いたものをポット実験に使用した。この供試土壌をワグネルポット(5千分の1アールおよび2千分の1アール)に、肥料および¹²⁵Iまたは^{95m}Tcを加え、均一になるように十分混合した。これらのポットに井戸水を加えた後、水稻(日本晴れ)の苗をポットに移植した。移植後、直ちにポットをグロース・チェンバー(Puffer-Hubbard38-15HLE)に移し、収穫までその中で栽培を続けた。栽培中の温度、湿度および日照時間は、茨城県におけるフィールドでの値を参考にコントロールした。照度は、光源下15 cmで約10万ルクスである。収穫時に水稻各器官および土壌中の放射能濃度を測定し、TFを求めた。

3. 実験結果および考察

3. 1. 沈着経路

3. 1. 1. 乾性沈着

1) 転流

最初に、転流の有無を検討した。水稻は、生育期間が長く、可食部の部位であるモミに比べて、茎葉部の表面積は大きいので、この茎葉部に沈着する放射性ヨウ素の量は、モミよりもかなり大きいものと考えられる。したがって、茎葉部に沈着した¹²⁹Iが可食部である米へ転流するかどうかは、線量評価上、重要なパラメータとなる。実験の結果、出穂期以前および以後、ともに、 I_2 のモミ以外の部位からの転流はほとんどない³⁾ことが明らかとなった。また、 CH_3I についても、同様の結果⁴⁾が得られた。

2) モミへの沈着速度

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

3つの生育段階におけるモミへの元素状ヨウ素(I_2)および有機ヨウ素(CH_3I)の沈着速度^{5,6)}をTable 1-1およびTable 1-2に示す。元素状ヨウ素の単位重量当たりの沈着速度(V_D)は、0.07~1.0の範囲であり、1ヶタ以上の変動があるが、100粒当たりの沈着速度(V_S)で表した場合は、0.2~0.6となり、その変動幅は約3倍程度である。これは、モミの重量変化は大きいけれども、その表面積は、出穂期に大気中に露出してから収穫まで、ほとんど変化しないためと思われる。一方、有機ヨウ素では、生育時期による変動はあまり無いが沈着速度は、ガス状ヨウ素の約百分の一である。

モミへの沈着速度について、粒当たりの沈着速度(V_S)を被曝評価で用いられる単位面積当たり生育する植物への沈着速度(V_g) [$cm \cdot s^{-1}$]へ換算すると、 I_2 では約 $7.6 \times 10^{-4} cm \cdot s^{-1}$ 、 CH_3I では $2.5 \times 10^{-5} cm \cdot s^{-1}$ になる。

4) モミ、玄米、白米間の分配比について

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

Growth stages	V_D $cm^2 g^{-1} s^{-1}$	V_s $cm^2 (100grains)^{-1} s^{-1}$
Heading period	1.0 ±0.06	0.62±0.1
Milky stage	0.073±0.02	0.22±0.05
Dough stage	0.15 ±0.03	0.44±0.07

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

Growth stages	$V_D(x10^{-3})$ $cm^2 g^{-1} s^{-1}$	$V_s(10^{-3})$ $cm^2 (100grains)^{-1} s^{-1}$
Heading period	1.0 ±0.2	0.67±0.1
Early dough stage	0.45±0.08	1.1 ±0.2
Late dough stage	0.35±0.03	1.0 ±0.2

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

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

3. 1. 2. 湿性沈着

湿性沈着、すなわち、雨水中に含まれる放射性物質がどの程度農作物へ移行するかというデータは、少ない。

本実験は、雨水中に溶けた放射性ヨウ素のモミへの沈着およびモミ表面から玄米への移行を検討したものである。

本実験により得られた結果⁸⁾を、以下に示す。

(1) 放射性ヨウ素を添加した水溶液にモミを浸す時間を 15 分から 120 分まで変化させても、モミに沈着する ^{125}I 量は、あまり増加しなかった。この傾向は、 I^- でも IO_3^- でも同じである。雨水中の放射性ヨウ素は、積極的にモミ表面へ沈着するのではないことが分かった。この結果から、放射性ヨウ素のモミへの湿性沈着移行では、連続降水時間よりもモミが保持できる

雨水量が重要なファクターである事が示唆された。

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

3. 2. 経根吸収経路

Table 3に、水稻の各器官のTFとその標準偏差⁹⁾を示す。TFの最も高いのは、根であり

Table 2 Distribution of iodine in rice grain

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

3) 生物学的半減期

モミに沈着したヨウ素の生物学的半減期を得るため、安定ヨウ素を曝射後、収穫期まで栽培を続けた。そして、適当な間隔でサンプリングを行い、粒当たりのヨウ素含量の変化を検討した。元素状ヨウ素の結果⁷⁾をFig. 2に示す。横軸は曝射直後からの経過日数を、たて軸は100粒当たりのモミのヨウ素含量を曝射直後の値で除した相対濃度を示す。この結果から、モミに沈着したヨウ素は、ほとんど減少しないことがわかる。この実験は、糊熟期(後期) [Run-B] および黄熟期 [Run-C] のモミに曝射した場合の結果である。有機ヨウ素に関してもほぼ同じ結果⁴⁾が得られた。

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

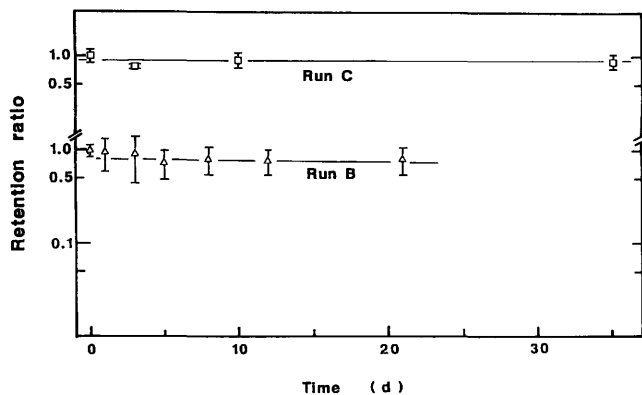


Fig.2 Retention ratios of iodine deposited in rough rice as a function of time (i.e., days after iodine exposure). Retention ratio is defined as the iodine content in rough rice samples after exposure divided by that in rough rice samples at harvest.

Table 3 Transfer factor (TF) OF ^{125}I from soil to rice plants at harvest (on a dry weight basis).

Organ	mean	SD(%)	Organ	mean	SD(%)
Brown rice	0.006	22	Leaf blade		
Hull	0.15	44	(First)	3.2	43
Rachis	1.4	15	(Second)	5.1	19
Root	9.0	22	(Third)	2.6	23

約 9.0 である。次に、葉身、枝梗、モミガラ、玄米の順に小さくなっている。葉身の値は約 2.5 ~ 5.0、枝梗の値は 1.5 であるが、モミガラでは枝梗の十分の一、玄米では枝梗の百分の一以下である。これらの結果から、ヨウ素の土壌から水稻各部位への移行において、枝梗からモミへ、特に玄米へ移行しにくいことが分かる。このことは、葉身などで作られた光合成産物が玄米へ運ばれるときに、ヨウ素がそれと共に積極的に移行しないことを示唆しているものと思われる。また、モミ中の ^{125}I の 85% はモミガラに分布しているが、これはヨウ素が根から枝梗を経てモミに移行する際、主としてモミガラに移行するものと予想される。ヨウ素の植物体内での分布・挙動については、まだ不明な点も多く、さらに研究を進める必要がある。

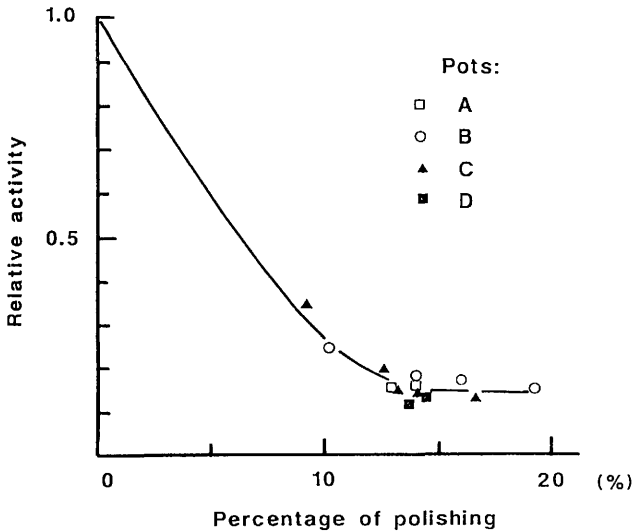


Fig. 3. Loss of radio-iodine from brown rice by polishing.

被曝線量評価上、玄米だけではなく白米への TF も重要である。小型精米器で玄米を精米したときに、 ^{125}I がどれだけ白米に残るかを重量減少率に対してプロットしたもの⁹⁾を、Fig 3 に示す。図から、玄米中の ^{125}I の大部分は糠に存在し、白米中には多くないことが分かる。通常、精米の歩留りが約 90% 程度であることを考慮すると、白米中のヨウ素は玄米の約 30% となり、白米の TF は約 2×10^{-3} となる。また、図から精米の程度によって白米中のヨウ素

量は変化するが、十分に精米しても玄米に含まれるヨウ素の約15%が白米中に残ることが分かる。高城ら¹⁰⁾は、水田土壌および玄米・白米中の安定ヨウ素の分析を行い、白米のTFとして 2×10^{-3} を報告している。また、結田ら¹¹⁾も同様の手法により、水田土壌から白米へのTFとして、 1.1×10^{-3} を得ている。土壌の種類や実験条件などが異なることを考慮すると、これらの値は良い一致をしていると思われる。

Table 4 Transfer factors (TF) of ^{95m}Tc from soil to various parts of rice plants (on a dry weight basis)

	TF
Grain(hulled)	≤ 0.005
Hull	≤ 0.02
Rachis	≤ 0.04
1st leaf (flag leaf)	≤ 0.0
2nd leaf	≤ 0.03
3rd leaf	0.059 ± 0.002
4th leaf	0.076 ± 0.011
5th leaf	1.1 ± 0.36
Steam	≤ 0.03
Root(large)	0.58 ± 0.21
Root(fine)	3.3 ± 0.34

± : Standard deviation of 3 samples.

Table 4に、土壌から水稲各部位へのTcの移行係数¹²⁾を示す。Tcは、ヨウ素と比べて水稲へは移行しがたいことが分かる。これは、Tcは還元状態では土壌に吸着されやすいため、植物にとっては吸収しがたいためと思われる。

これらの結果から、可食部である玄米へのヨウ素およびTcの移行係数(0.006および0.005)は、IAEAが推奨している値(0.02および5.0)よりも、約1ケタ以上小さい。農作物の種類や栽培方法などにより、元素の移行が非常に異なることが分かる。

5. おわりに

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

参考文献

- 1) 大桃洋一郎, 内田滋夫, 住谷みさ子: 原子力誌, 27, 388-394, 1985.
- 2) 内田滋夫, 鎌田博, 横須賀節子, 大桃洋一郎: 保健物理, 22, 511-522, 1987.
- 3) Sumiya, M., Uchida, S., Muramatsu, Y., Ohmomo, Y., Yamaguchi, S. and Obata, H.: Hoken Butsuri, 22, 265-268, 1987.
- 4) 住谷みさ子, 村松康行, 内田滋夫, 大桃洋一郎, 小畑仁, 山口秀甫; 有機ヨウ素の大気から水稲への移行, 日本放射線影響学会第31回大会要旨集, p.83, 1988.
- 5) Uchida, S., Sumiya, M., Muramatsu, Y., Ohmomo, Y., Yamaguchi, S., Obata, H. and Umabayashi, U.: Health Phys., 55, 779-782, 1988.
- 6) Muramatsu, Y., Ohmomo, Y., Uchida, S. and Sumiya, M.: Transfer of elemental iodine and methyl iodide from the atmosphere to rice plants and leaf vegetables, in "Proceedings of the International Symposium on Radioecology", Znojmo, October 12-16, 1992.
- 7) Uchida, S., Muramatsu, Y., Sumiya, M. and Ohmomo, Y. Health Phys., 60, 675-679, 1991.
- 8) 内田滋夫, 吉田聡, 村松康行, 住谷みさ子, 大桃洋一郎, 湿性沈着による放射性ヨウ素の米への移行, 日本放射線影響学会第34回大会要旨集, p.94, 1991.
- 9) Muramatsu, Y., Uchida, S., Sumiya, M., Ohmomo, Y. and Obata, H.: Water, Air, and Soil Pollution, 45, 157-171, 1989.
- 10) 高城裕之, 木村敏正, 小林宏信, 岩島清, 山根登: 水田土壌から米への安定ヨウ素の移行について, 保健物理, 20, 251-257, 1985
- 11) 結田康一, 義村利秋, 庄司和彦, 福嶋浩一: 全国各地の水田土壌および水稲中ヨウ素濃度-生育過程における推移-, 日本放射線影響学会第31回大会講演要旨集, p.89, 1988.
- 12) Yanagisawa, K., Muramatsu, Y., and Kamada, H., : RADIOISOTOPES, 41, 397-402, 1992.

2 植物における有害元素吸収およびその作用

久保井 徹

静岡大学農学部応用生物化学科

Assessing the Accumulation of Potentially Toxic Elements in Plants

Toru Kuboi

Faculty of Agriculture, Shizuoka University

836, Ohya, Shizuoka 422, Japan

ABSTRACT- Regression and principal components analyses were applied to understand the accumulation characteristics of potentially toxic elements (PTEs) in plants. The relation between tissue (tc) to soil (sc) Cd concentrations can be expressed as; $\log(tc) = \alpha' + \beta' \log(sc)$. For another soil, the equation will change to; $\log(tc) = \alpha' + \beta' \log(sc')$. Based on both equations, the relationship between sc' and sc becomes; $\log(sc') = (\alpha - \alpha') / \beta' + (\beta / \beta') \log(sc)$. The values of the intercept and slope can be used to evaluate the difference of Cd availability between two soils.

The values of α and β were used to characterize Cd accumulation in various plants. Plant families were classified into 3 groups based on α values; (1) low accumulation, Leguminosae; (2) moderate accumulation, Gramineae, Liliaceae, Cucurbitaceae and Umbelliferae; and (3) high accumulation, Chenopodiaceae, Cruciferae, Solanaceae and Compositae. Values of β also enabled to discriminate the families.

Principal components analysis was applied to the contents of Li, Na, K, Rb, Cs, Mg, Ca, Sr, and Ba in leaf samples of 62 species. These elements except for Na could be classified into 2 groups with respect to their accumulation in leaves; the alkali metals and alkaline earth metals. Factors scores of 1st and 2nd components revealed three groups of plant species; alkaliophilic, alkaline earthphilic, and neutral.

1 はじめに

微量元素が土壤に負荷されたり、土壤中では可溶化すると、それは植物にも反映して濃度が高まる。その結果、植物自身が障害を受け、あるいは植物連鎖を通じて人体に悪影響を及ぼすことがある。“有害元素”は、潜在的にこのような事態を引き起こしうる元素と定義される。

植物中の有害元素濃度は、必ずしも土壤中の濃度に比例しない。たとえば、Alは土壤の主要な無機成分であるにもかかわらず、通常は土壤粒子付着の指標とされるほど植物中には少ない。ところが、土壤が酸性化すると多量に吸収されて植物に障害を及ぼす。このように、植物が吸収しうる土壤中の元素の存在形態(可給態)は、様々な化学形態の一部にすぎず、土壤条件によって変化する。

可給態は土壤中の特定の化学形態と対応する概念ではなく、植物種によっても異なる。さらには共存する元素の組成と濃度によって、特定の元素の可給度は変化する。これらの現象は個別的・定性的には把握されているが、再現性に乏しく、体系だった解析や定量的な評価は不十分であった。

土壤の有害元素汚染がもたらす影響を予測・評価するには、実用的かつ合理的な数学モデルを構築する必要がある。そのためには、上記の問題を始めとする元素の挙動を全体的に整理・解析するとともに個々の機構を詳細に検討することが不可欠である。ここでは、土壤-植物間の元素濃度データの解析例をもとに、挙動を支配する因子を推定し、作用を考えたい。

2 植物からみたCd可給性の土壤間差

植物移行モデルは、土壤や植物等の因子を取り込んだ複雑・精緻なものへ発展しつつあるが、基本的には、植物中の元素濃度(tc)と土壤中の濃度(sc)との関係を $tc = a(sc-b)$ の関数形で表したものと言える。ここでは、各種の実データに単純な関数形をあてはめ、そのパラメータ値の変化から土壤の因子を逆に考察する。

Cdを対象とした場合、 sc に対する tc の変化は直線的ではないが、両者を対数変換すると一次式にあてはめることができる(Fig. 1)¹⁾。2種類の土壤に種々濃度のCdを添加し、同一の植物を栽培した場合、

$$\text{土壤1では、} \quad \log tc = \alpha + \beta \log sc \dots\dots\dots (1)$$

$$\text{土壤2では、} \quad \log tc = \alpha' + \beta' \log sc' \dots\dots\dots (2)$$

が得られる。2土壤に栽培した植物のCd濃度が等しい条件では、式(1)と(2)から

$$\log sc' = p + q \log sc \dots\dots\dots (3)$$

$$[p = (\alpha - \alpha') / \beta'; q = \beta / \beta']$$

が得られる。 p と q は、土壤間の可給性の違いを植物を通じて表すパラメータと言える²⁾。

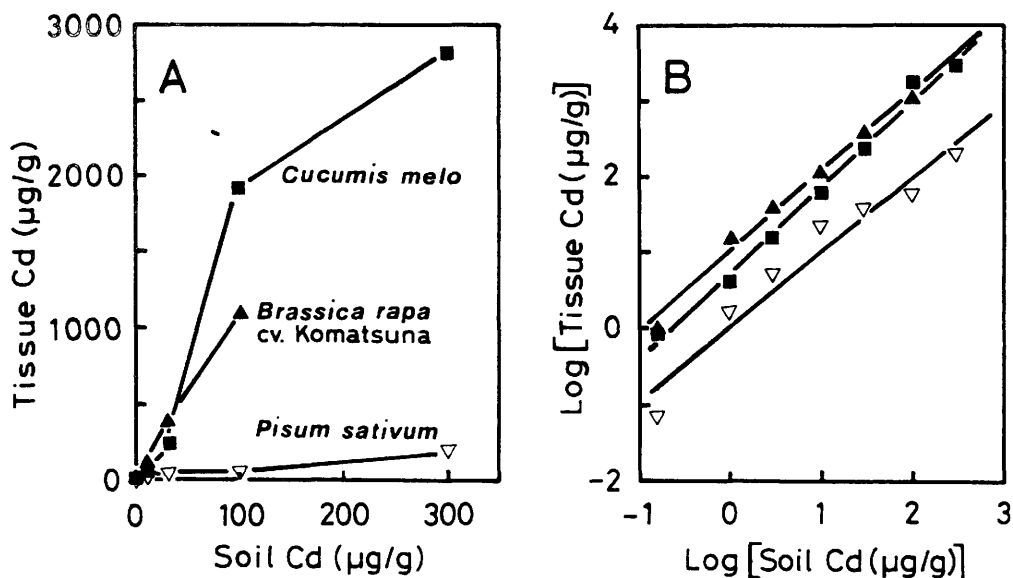


Fig.1. Arithmetic (A) and logarithmic (B) representations of Cd uptake by selected plants as affected by Cd levels in soil to which Cd was added.

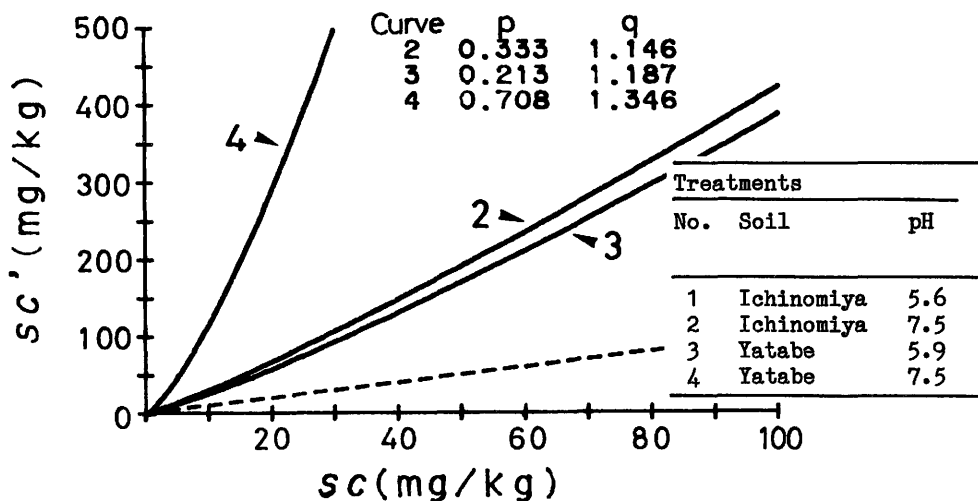


Fig.2. Difference in Cd-supplying capacity among the soils of the four treatments which varied with the type and pH of soil. The soil Cd was extracted by DTPA, and radish was used as a test plant. sc represents the soil Cd levels in Treatment 1 and sc' refers to the soil Cd levels in Treatments 2 (Curve 2), 3 (Curve 3), and 4 (Curve 4). If the extractants were able to remove the actually available Cd from the soils, the dotted line would be obtained for all cases ($p=0$ and $q=1$).

式(3)の概念を実験値に即して検討した。実験³⁾は、砂質土壌と黒ボク土壌に種々濃度で Cd を添加し、pH を 2 水準 (矯正、未矯正) とした 4 処理区で行った。tc は栽培したダイコンの

地上部 Cd 濃度、 sc は土壤中の Cd 濃度 (DTPA 抽出) である。各処理区について α と β の値を最小 2 乗法により求め、pH 未矯正の砂質土区を基準として他の処理区との間の p、q 値を計算した。これらを式(3)に代入して得られる曲線 (Fig. 2) は、Cd 可給性が砂質土 > 黒ボク土、低 pH > 高 pH であることを示しており、土壤種や pH の違いによる可給性の相違をよく表現できている²⁾。さらに、植物にとっての可給態は、DTPA 抽出では完全に置き換えることができないことも明白である。

3 Cd 蓄積特性の植物種間差

同一の土壤に異なる植物を栽培した場合、式(1)のパラメータ (α , β) は、植物種による Cd 蓄積特性の違いを表す指標として利用できるはずである。そこで、34 種の作物を Cd を添加した土壤に栽培し、植物種ごとの α と β の値を求めた。 $\alpha\beta$ 平面に各作物の得点をプロットした結果 (Fig. 3)¹⁾、マメ科植物は蓄積能が低く (α 小)、かつ sc が増加すると tc が頭打ちになり (β 小)、アブラナ科植物はその逆であるなど、Cd 蓄積特性は科のレベルで異なっていることが判明した。 α 値の大きい植物は生育障害も受けにくかった⁴⁾。

種間差は根による吸収と地上部への移行のいずれの段階でも存在していたが⁵⁾、特に後者の寄与が大きかった。また、 sc の増加に伴って、Cd 濃度の地上部 / 地下部比が増加する種と低

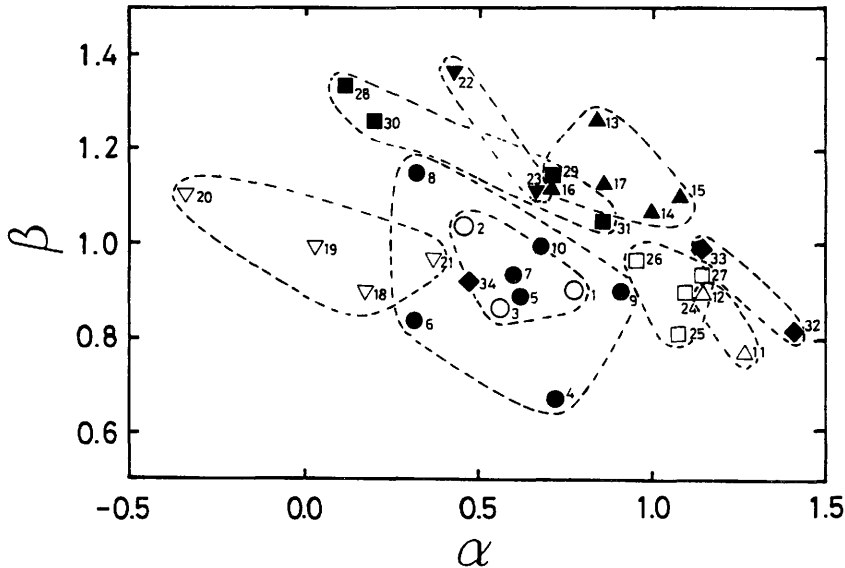


Fig.3. Plotting of species scores on axes α and β from eq. (1). Numbers on the right-hand side of each symbol refer to the species number. Symbols: O, Liliaceae; ●, Gramineae; ▲, Chenopodiaceae; ▲, Cruciferae; ▽, Leguminosae; ▼, Umbelliferae; □, Solanaceae; ■, Cucurbitaceae; ◆, Compositae.

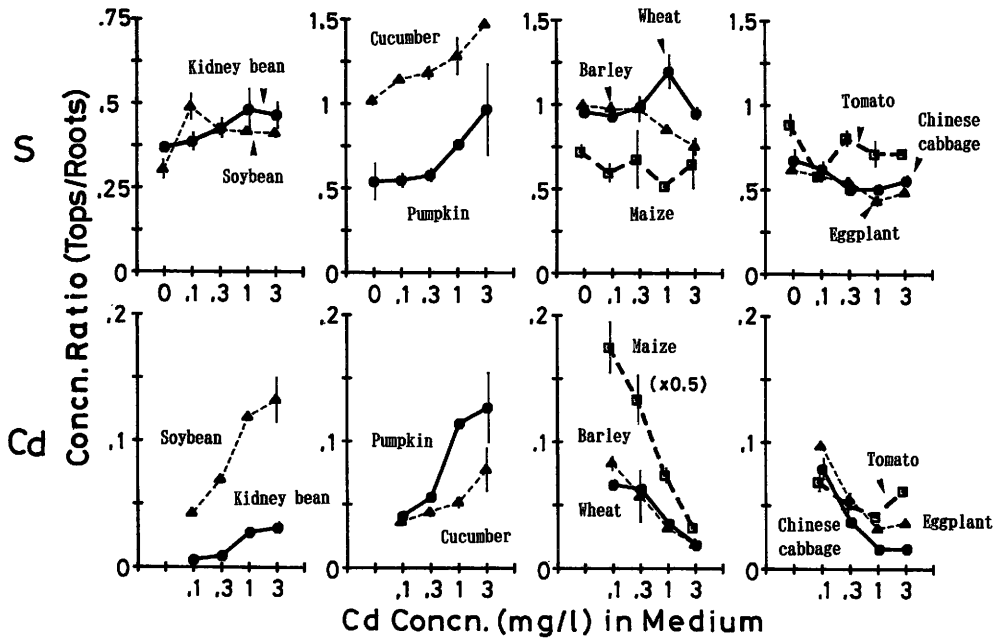


Fig.4. Tops/roots ratio of Cd and S concentrations as affected by Cd levels in medium.

下する種とがあり、これはS濃度比の変化と一致していた (Fig. 4)⁵⁾。Cd 結合ペプチドとの関連も考えられる。

実験・栽培条件(土耕・水耕栽培等)が異なれば、同一植物でも α 、 β 値は異なる。しかし、式(3)を用いれば、これらを基準と定めた栽培条件下の値に変換することができる。各種の文献から計算した植物ごとの α 、 β 値をこのようにして変換したところ、Fig. 4 と同様の傾向が認められた。それゆえ、栽培条件によらず、植物の Cd 蓄積特性は種(科)によって異なる と結論した。

ここで扱ったパラメータには多くの土壤、植物因子が混在しているが、データの質によって中心となる因子は変化する。データ変動の規則性から抽出された情報は、実験的・理論的な機構解明のための研究に引き継がれる必要がある。

4 アルカリ金属型植物とアルカリ土類金属型植物

植物は、その機能の発揮に必要な元素をかなり厳密に使っている。同属の元素であっても、例えば Mg と Ca とは生理的役割が異なり、Sr は不要な元素とされている。それにもかかわらず、根からの吸収の段階では同属元素を峻別することはできず、不要な元素もある程度付随して取り込まれる。

自然植生においても、同属元素間で挙動の類似性が認められるか否かの情報は植生の元素分

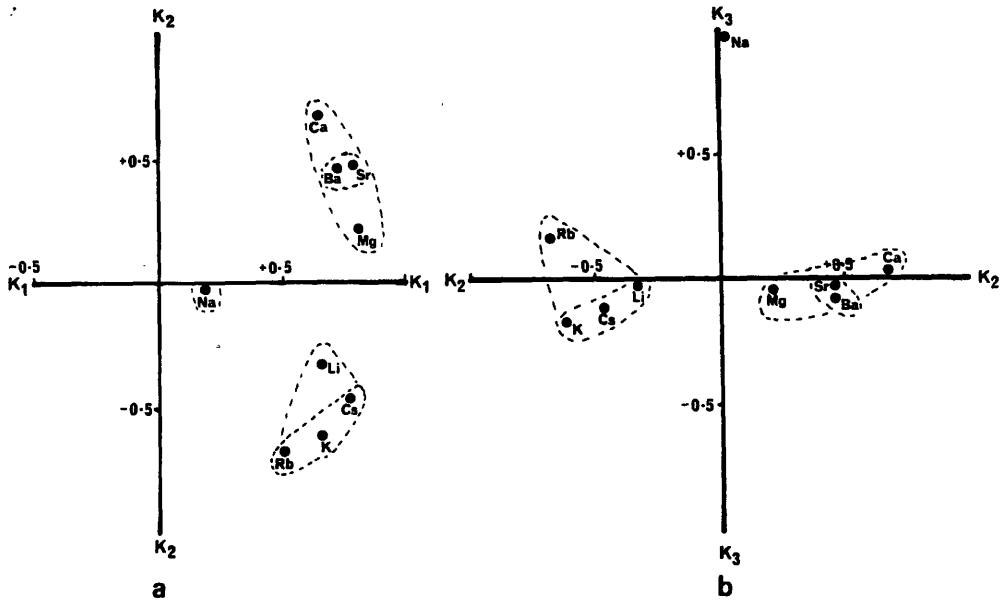


Fig.5. Alkali and alkaline earth metals ordination with regard to their content in the leaves of 62 plant species (graph of factor loading calculated from the principal component analysis). a. Between components K_1 and K_2 . b. Between components K_2 and K_3 .

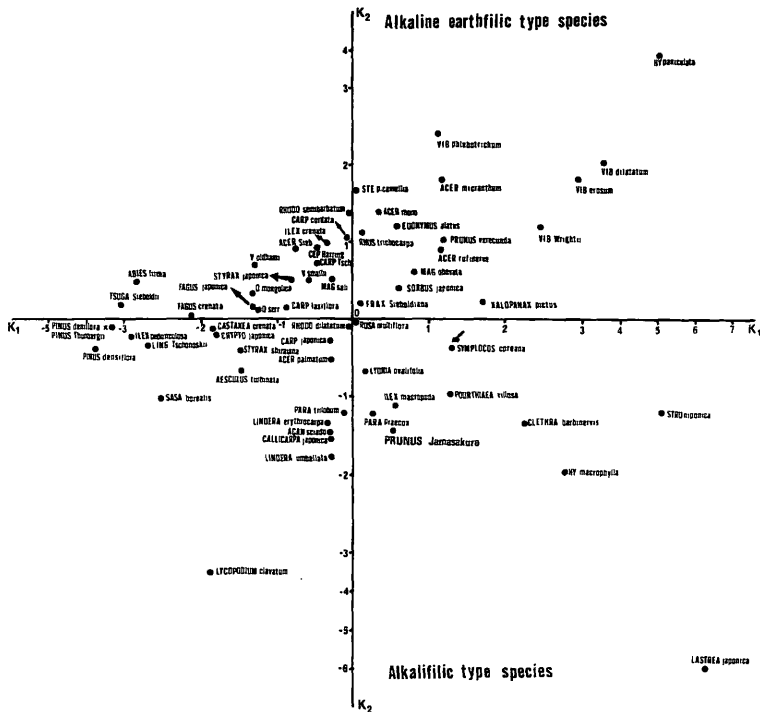


Fig.6. Plotting of species scores on axes K_1 and K_2 from principal component analysis.

析値間の関係に埋もれているはずであり、多変量解析によってそれを抽出できる可能性がある。そこで、同一地域内から得た62植物種の葉中Li, Na, K, Rb, Cs, Mg, Ca, Sr, Baを対象に主成分分析を行った⁶⁾。その結果、第2主成分でアルカリ金属とアルカリ土類金属とが分離し(Fig. 5)、これら同属の元素は互いに似通った挙動を示すことが判明した。Naの挙動だけは他と全く異なっていた。

第1主成分(全体的な含有率の多寡を示す)と第2主成分とを軸とする平面上に各植物の得点をプロットすると(Fig. 6)、アルカリ金属型とアルカリ土類金属型の植物群が分離した。また、特異蓄積植物は、それぞれの群の頂点に位置していた。なお、遷移元素に関する主成分分析ではZnとCdの挙動が著しく類似していた。

このように、CsやSrなどの有害元素の挙動は、KやCaなど、同属の多量必須元素との相互作用を無視して議論することはできない。有害元素間の相互作用は非常に複雑であり、また研究成果の再現性も乏しいのが現状である⁷⁾。実験による機構の解明には、作業仮説と綿密に計算された試験設計が必要と思われる。

5 おわりに

過去の激甚な汚染を背景として、有害元素研究はごく限られた元素について、かつ植物に障害をもたらす過剰領域に集中して行われてきた。そのため、微量放射性核種の挙動に対してこれらの知見を単純にあてはめることはできない。しかしながら、元素の挙動解明にトレーサー法が欠かせず、放射性核種の挙動解明に有害元素で蓄積された知見が取り入れられているのは、両者が本質的に同じ因子に支配されているからである。本稿に示した結果も放射性核種の挙動と同列に議論することはできないが、手法面では参考になるのではなかろうか。

今後、土壌-植物分野における有害元素研究と放射性核種研究とは、今まで以上に不可分の関係になるものと思われる。第1の理由は、多様な元素による低レベル汚染が問題になりつつある現在、放射性核種の環境移行に関する知見が有害元素研究に役立つと思われる点にある。第2は、微量元素(核種)の挙動が共存する多量元素の影響を特に受けることにある。

放射線が有害元素の挙動に影響を与える可能性が第3点目であるが、実験的な裏付けは未だ十分ではない。グルタチオン(GSH)は、植物の重金属結合ペプチド⁸⁾〔PC_S; (γ -glutamyl-cysteinyl)_n glycine〕の前駆体である⁹⁾ばかりでなく、活性酸素除去経路の鍵物質でもある¹⁰⁾。活性酸素は放射線や紫外線によって植物体内で生成するため、GSHを介して有害元素と放射線とが密接な関係にあるとしても不思議ではないだろう。動物では、重金属結合タンパクを誘導しておくことで放射線に対する抵抗性が増加しており¹¹⁾、また筆者らは、Cd抵抗性の植物培養細胞が過酸化水素抵抗性を持ち合わせているとの予備的結果を得ている¹²⁾。

環境影響の予測と評価のための数学モデルは、調査・実験データの十分な吟味をもとに構築される。特定の手法に偏ることなく、有害元素研究と放射性核種研究が相補的に発展することを望みたい。

参考文献

- 1) Kuboi, T., Noguchi, A., and Yazaki, J.: Family dependent cadmium accumulation characteristics in higher plants, *Plant Soil*, 92, 405-415, 1986
- 2) Kuboi, T., and Noguchi, A.: Use of plants to evaluate the difference in available cadmium between soils, *Commn. Soil Sci. Plant Anal.*, 18, 445-456, 1987
- 3) 久保井徹, 野口章, 矢崎仁也: 硝酸アンモニウムによる可給態カドミウム抽出法の有効性と限界, *日本土壤肥科学雑誌*, 60, 22-28, 1989
- 4) Kuboi, T., Noguchi, A. and Yazaki, J.: Relationship between tolerance and accumulation characteristics of cadmium in higher plants, *Plant Soil*, 104, 275-280, 1987
- 5) Kuboi, T. ; Differences in the uptake and translocation of cadmium among plant species, *Transact. 14th Intern. Congr. Soil Sci. (Kyoto, Japan)*, IV, 692-693, 1990
- 6) Memon, A. R., Kuboi, T., Fujii, K. Ito, S., and Yatazawa, M.: Taxonomic character of plant species in absorbing and accumulating alkali and alkaline earth metals grown in temperate forest of Japan, *Plant Soil*, 70, 367-389, 1983
- 7) 久保井徹: 植物における有害元素間の相互作用, *日本土壤肥科学雑誌*, 60, 246-256, 1989
- 8) Grill, E., Winnacker, E. -L., and Zenk, M. H.: Phytochelatins, a class of heavy-metal-binding peptides from plants, are functionally analogous to metallothioneins, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 84, 439-443, 1987
- 9) Grill, E., Loffler, S., Winnacker, E. -L., and Zenk, M. H.: Phytochelatins, the heavy-metal-binding peptides of plants, are synthesized from glutathione by a specific γ -glutamyl-cysteine dipeptidyl transpeptidase(phytochelatin synthase), *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 86, 6838-6842, 1989
- 10) Tanaka, K., Masuda, R., Sugimoto, 2 T., Kawamura, Y., and Kuboi, T.: An H_2O_2 -decomposing system in cultured tobacco cells, *Agric. Biol. Chem.*, 54, 2003-2008, 1990
- 11) Matsubara, J., Tajima, Y., and Karasawa, M.: Promotion of radioresistance by metallothionein induction prior to irradiation, *Environ. Res.*, 43, 66-74, 1987
- 12) 久保井徹, 廣瀬結城夫: ニンジン細胞におけるカドミウム耐性と過酸化水素耐性との関連性, *日本農芸化学会中部・関西支部合同大会講演要旨集*, p. 40, 1991

フォールアウト核種の地球規模動態と経口摂取 - Sr-90 を例にして -

森 澤 眞 輔
京 都 大 学 工 学 部

Global Deposition of Fallout Radionuclides and Their Dietary Intake
-Discussions on Strontium-90-

Shinsuke Morisawa

Department of Environmental & Sanitary Engineering, Kyoto University,
Sakyo-ku, Kyoto City 606-01 Japan

ABSTRACT- Japanese foods depend largely on foreign countries and domestic food supply now is no more than 30 percents if feedstuffs for live-stocks are included. Therefore not only ecological / natural but also social, e. g., human activities related, transportation of fallout radionuclides are to be taken into accounts for estimation of baseline internal irradiation dose and health risks of Japanese peoples through dietary intake of radionuclides.

In this study, mathematical model is developed and examined for practical application on estimating Japanese dietary intake level of fallout strontium-90, which is accumulated in various kinds of foodstuffs and is transported to Japan associated with worldwide trades of foods, under appropriate limitations such that direct deposition on plants and seafood intake pathways are not evaluated. Deposition of strontium-90 onto the surface soil was simulated using the model, the compartment model described by a set of ordinary differential equations, and the estimates were examined by comparing them with the observed data collected and compiled by the global scale environmental monitoring networks. Sensitivity analysis is also practised to find possible reduction of dietary intake of fallout radionuclides and the related potential health risks.

1. はじめに

わが国の飼料用穀物を含めた穀物自給率は現在 30% にすぎず、日本人の放射性核種の経口摂取量を評価するためには、降下した放射性フォールアウトが食糧と共にわが国へ人為的に輸送され、食品として食卓に供され、摂取される経路を無視することはできない。ここでは、地球の各地に降下したフォールアウト⁹⁰Sr を例にして、日本人の⁹⁰Sr 経口摂取量の経年変動を把握するために、⁹⁰Sr の地球規模降下特性を解析する数学モデルを構築し、モニタリングデータに照らしてモデルの妥当性を検証すると共に、輸入農・畜産物が⁹⁰Sr 摂取量に及ぼす効果を含めて、日本人による⁹⁰Sr のバックグラウンド摂取量を評価する手順と、その評価例について報告する。

2. ⁹⁰Sr の移行を評価する数学モデル

数学モデルは、①地球規模フォールアウト⁹⁰Sr の緯度別降下特性を評価するサブモデル、②農産物中および③畜産物中での⁹⁰Sr 濃度を評価するサブモデル、④農・畜産物の輸出入と市場での混合を評価するサブモデル、⑤日本人の⁹⁰Sr 経口摂取量を評価するサブモデル、で構成される。ただし、水産物摂取の経路と、農作物への直接沈着の効果は無視している。評価対象期間は、フォールアウト降下率については 1946 年～1990 年に、食品への移行と経口摂取については 1960 年～1990 年に設定した。

評価対象に設定した⁹⁰Sr の移行経路を Fig.1 に示す。

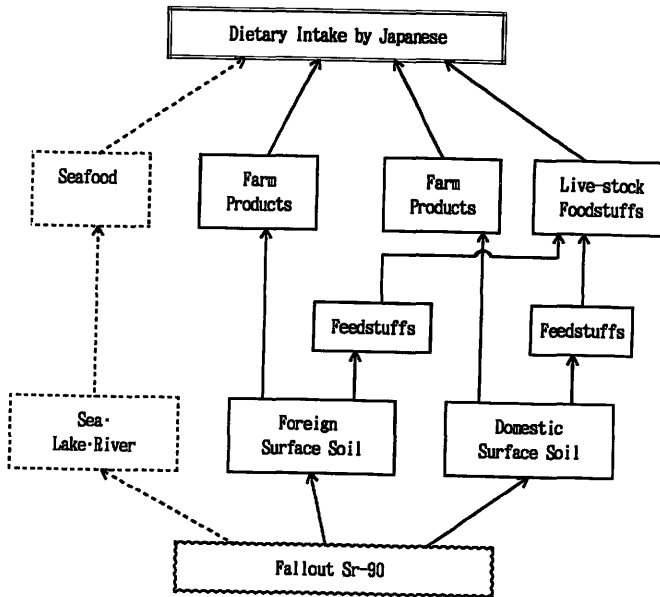


Fig 1 Ecological/Social Pathways of Fallout Sr-90 to the Dietary Intake by Japanese

2. 1 地球規模フォールアウト

^{90}Sr の降下特性を評価するサブモデルでは、地球大気を成層圏と対流圏に、また地表付近の風系と気候帯に注目して緯度別に 8 帯 (南北各 60 度、40 度、10 度及び赤道で区分) に、かつ地表面を 8 帯の陸圏と南北半球水圏に区分し、各領域ごとに ^{90}Sr の存在量を従属変数にするコンパートメントモデル (常微分方程式群) で記述した。

2. 2 農・畜産物への移行

土壌中濃度は ^{90}Sr 降下量、環境減衰速度係数 (降雨による深地層への輸送効果) および放射性崩壊係数を用いて、農産物・飼料用穀物 (植物) 中濃度は土壌中濃度に対して定義された経根移行係数 (Table 1 参照) を用いて、畜産物中濃度は評価対象の各動物性食品の類型別に与

Table 1 Transfer Factor of Sr-90 from Surface Soil to Plants

Plants	Range	Lower limit	Median	Upper limit
Rice		0.006	0.012	0.024
Wheats		0.07	0.14	0.28
Potatoes		0.005	0.01	0.02
Vegetables		0.04	0.08	0.16
Fruits		0.002	0.004	0.008
Beans		0.032	0.063	0.13

えられている ^{90}Sr の残留関数を用いて、それぞれ算定した。ここでは日本人の食品を植物性食品 (米類、小麦類、いも類、野菜類、果実類、豆類) と動物性食品 (牛肉、豚肉、鶏肉、鶏卵、牛乳) に分類している。

2. 3 農・畜産物の輸出入

農・畜産物および飼料用穀物等の輸出入は実績統計値を用い、輸入された農・畜産物と国内産農・畜産物とは市場において均質に混合するものとした。また、ある年度に収穫された農産物、屠殺された家畜はその年度内に消費されるとし、輸送や貯蔵期間中の放射性崩壊による減衰効果は無視している。

日本人が摂取する植物性食品および家畜飼料の輸入相手国別の 1990 年度の比率を Fig.2 に示す。

2. 4 経口摂取量

各食品中の平均 ^{90}Sr 濃度と各食品の摂取量との積を算定し、それらの和によって日本人の ^{90}Sr 経口摂取量とした。摂取食品中の平均濃度は、各摂取食品中濃度の食品摂取量による加重平均値で与えられる。

日本人による食品摂取量の経年変化を Fig.3 に示す。

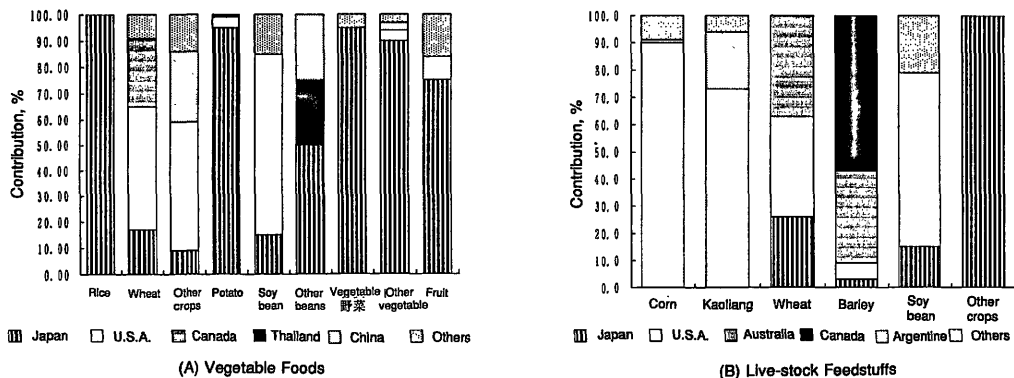


Fig 2 Contribution of Each Country Which Exports Live-stock Feedstuffs and Vegetable Foods to Japan in 1990

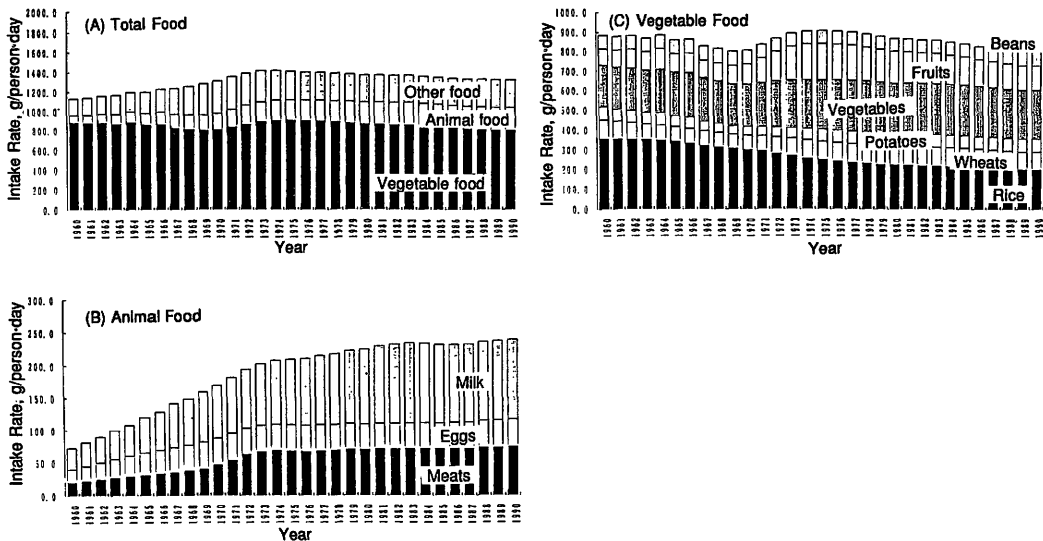


Fig 3 Variation of Japanese Dietary Intake

3 評価モデルの検証

3. 1 ^{90}Sr 降下率

地球規模 ^{90}Sr の降下率の数学モデルによるシミュレーション結果の一例を実測値と共に Fig.4 に示す。同図に示すシミュレーション結果は主として米国 EML によるモニタリングデータを用いて設定(フィッティング)された関連パラメータを用いて計算されており、その結果が英国 AERE によるモニタリングデータをよく説明していることから、数学モデルの妥当性が示されたといえる。同図には、成層圏・対流圏における ^{90}Sr 輸送パラメータを南北半球で対称になるように設定するケース(破線:対称パラメータ)と非対称に設定するケース(実線)の計算値を共に示している。

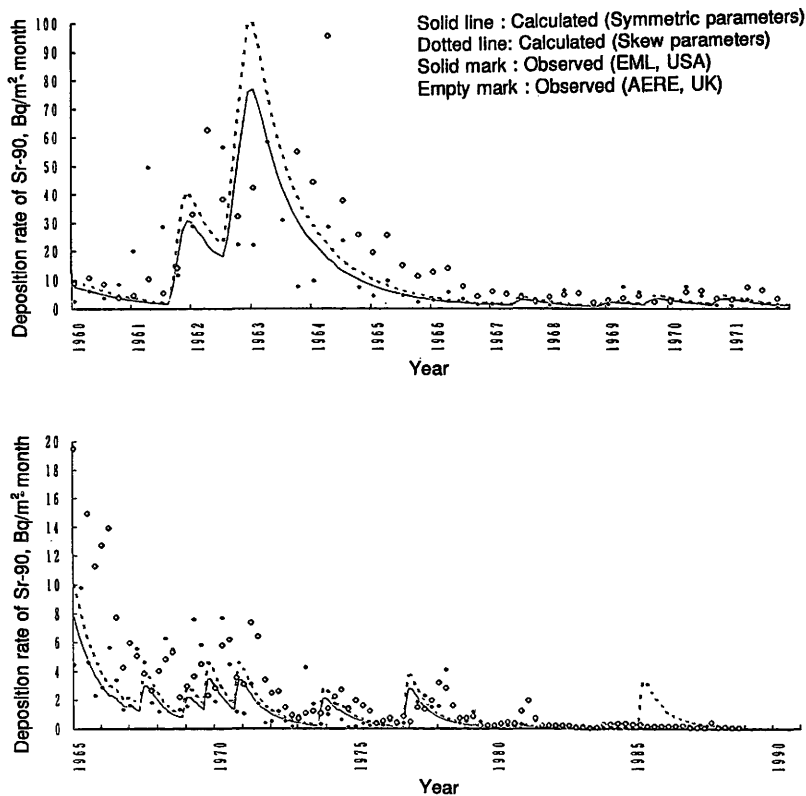


Fig 4 Comparison of the Observed Fallout Sr-90 Deposition with the Calculated for the N60-40 Zone

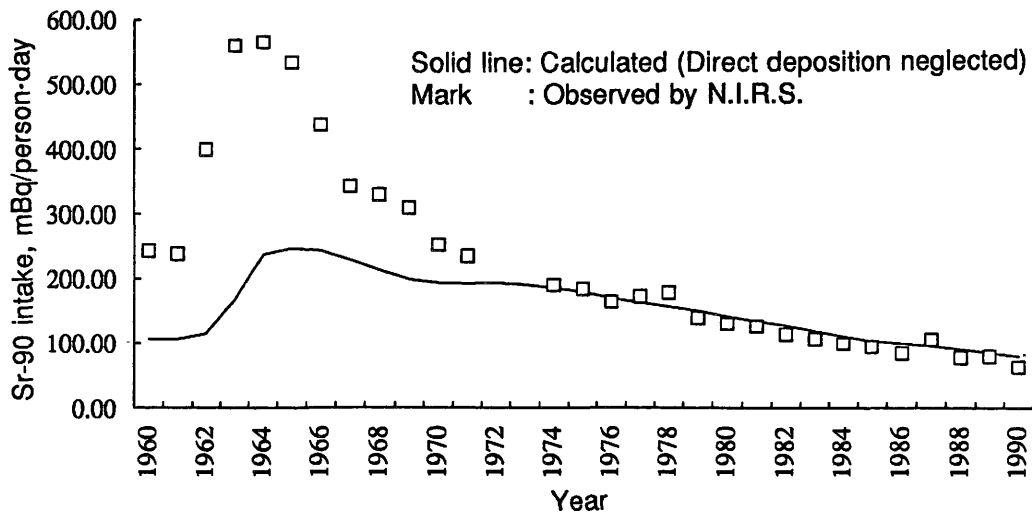
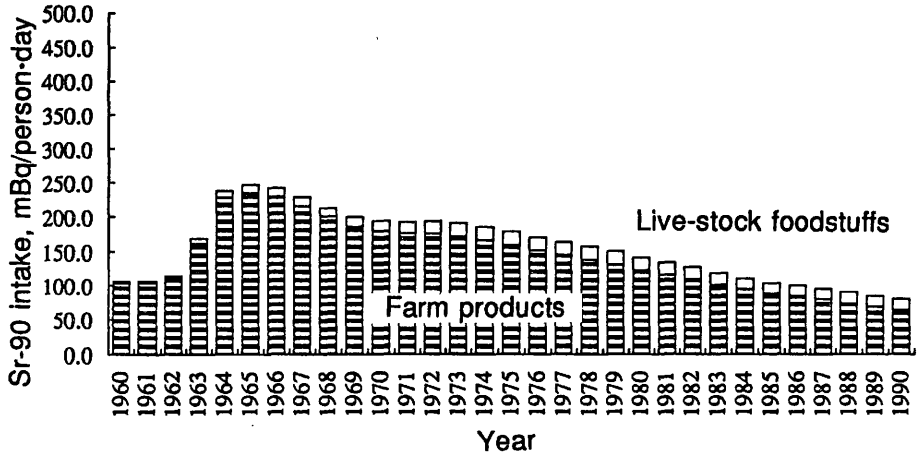


Fig 5 Comparison of the Observed Dietary Intake of Sr-90 by the Japanese Public with the Calculated

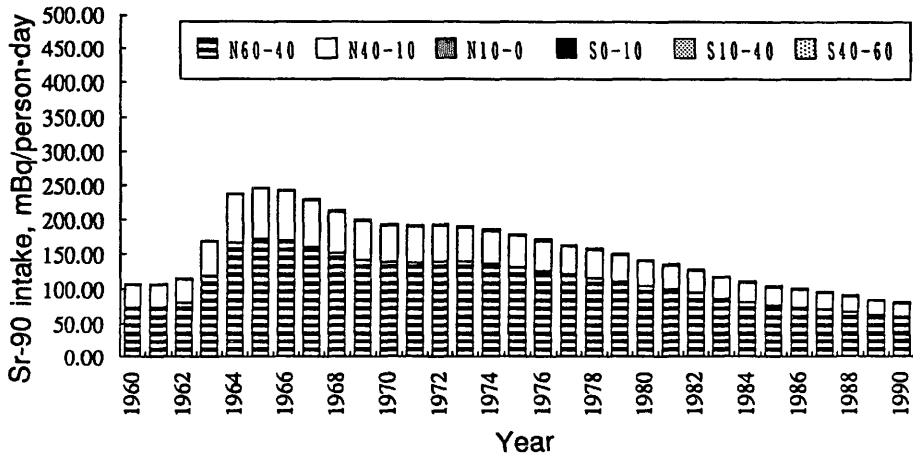
3. 2 経口摂取量

日本人が摂取する食品の生産緯度帯を特定し、 ^{90}Sr の輸入量と経口摂取量を評価した。日本人によるフォールアウト ^{90}Sr 経口摂取量の経年変化のシミュレーション結果を放射線医学総合研究所による実測値と共に Fig.5 に示す。日本人による ^{90}Sr の経口摂取量のモデルによる計算値は、特に ^{90}Sr の低下率が小さくなり農産物への移行が主として経根経路で行われるようになる1970年以降には、実測値とよく一致した。

4. 数値シミュレーションの結果と考察



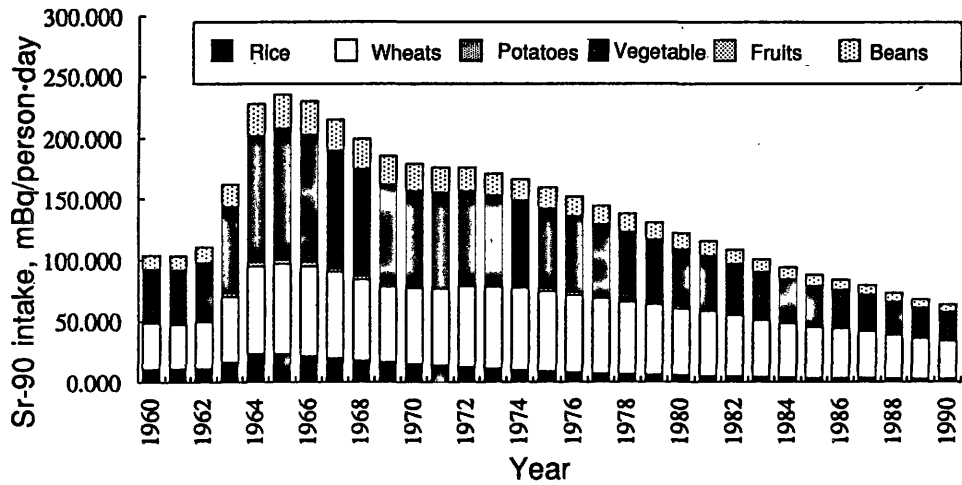
(A) Contribution of Farm Products and Live-stock Foodstuffs



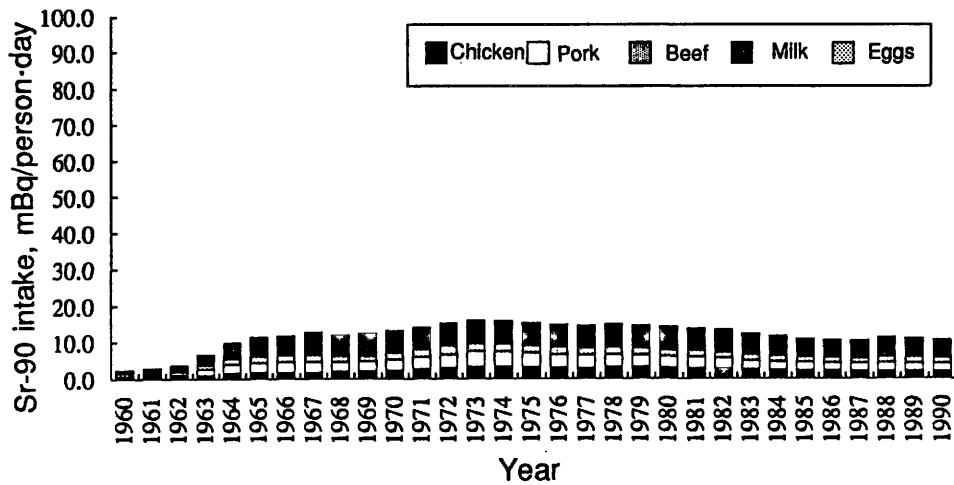
(B) Contribution of Production Region of Farm Products and Live-stock Foodstuffs

Fig 6 Dietary Intake of Sr-90 through Farm Products and Live-stock Foodstuffs

4. 1 パラメータ感度解析



(A) Contribution of Each Kind of Farm Products



(B) Contribution of Each Kind of Live-stock Foodstuffs

Fig 7 Dietary Intake of Sr-90 through Each Kind of Farm Products and Live-stock Foodstuffs

農産物・畜産物からの ^{90}Sr の摂取量とその生産緯度帯別寄与の経年推移を Fig.6、Fig.7 に示す。日本人の ^{90}Sr 摂取量は、畜産物に較べて農産物が支配的 (Fig.6(A) 参照) であり、生産域では北半球特に北緯 40 ~ 60 度域の寄与が大きい (Fig.6(B) 参照) ことがわかる。この緯度帯での ^{90}Sr 降下量が大きく、また飼料用を含めこの緯度帯で生産された農産物が、多量に輸入され消費されているためである。 ^{90}Sr のほぼ全量が北緯 10 ~ 60 度域から供給され (Fig.6(B) 参照)、農産物の中では野菜類、小麦類 (小麦、大麦等) の寄与が、また畜産物の中では牛乳の寄与が大きいことが伺える (Fig.7 参照)。

大気圏内での核実験が停止されている最近では、日本人に供給される農・畜産物の生産帯が変化しない限り、経口摂取される ^{90}Sr 量は表層付近の耕作土壌に保持されている ^{90}Sr 量、従って環境減衰速度係数に支配される傾向がよい。

Fig.8(A) は、環境減衰速度係数を標準値 (実線)、標準値の 2 倍 (点線)、半分 (破線) にし

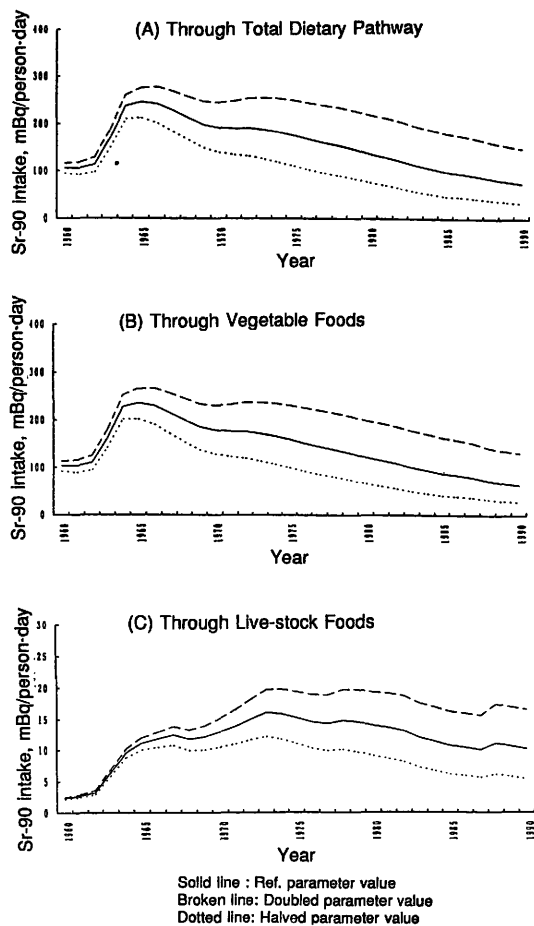


Fig 8 Parameter Sensitivity Analysis for Environmental Decay Coefficient of Sr-90 in Surface Soil

た場合の⁹⁰Sr 経口摂取量の変化を、また Fig.8(B)、(C) はそれぞれ摂取経路を植物性食品、動物性食品に限定した場合の変化を示している。Fig.9 は、経根以降係数が⁹⁰Sr 経口摂取量に及ぼす効果を図示している。

4. 2 経口摂取量低減の可能性

食糧・飼料の輸入相手先を、耕作土壌中の⁹⁰Sr 濃度が小さい南半球に完全に転換した場合(破線)、全て国内自給する場合(点線：実線とはほぼ一致)の経口摂取量を、現状での摂取量(実線)と共に Fig.10(A) に示す。Fig.10(B) は、小麦食を完全に米食に転換する場合(破線)、米食を完全に小麦食に転換する場合(点線)の経口摂取量を、現状での摂取量(実線)と共に示している。ただし農産物への⁹⁰Sr の直接沈着の効果、水産物摂取の寄与は無視している。

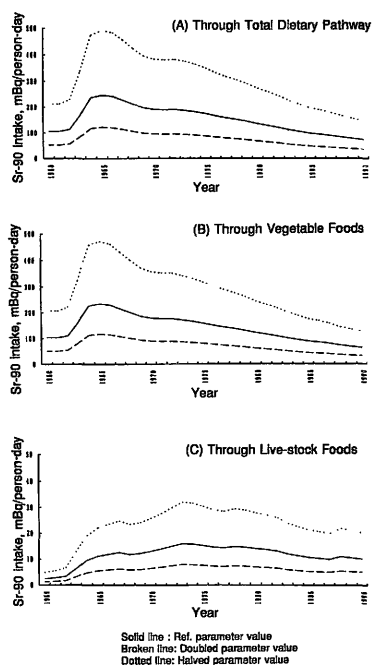


Fig 9 Parameter Sensitivity Analysis for Transfer Factor of Sr-90 through Root Uptake

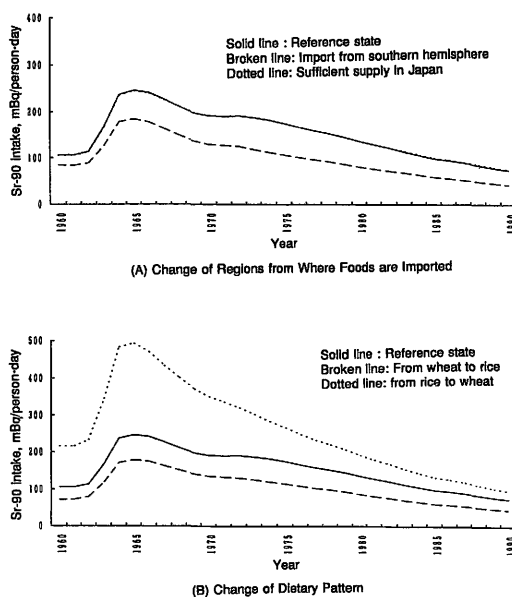


Fig 10 Possible Reduction of Sr-90 Dietary Intake

5. おわりに

⁹⁰Sr の降下量が多い期間に、直接沈着により農産物中の核種濃度が増加する効果を評価できるように、モデルの一部を改良する他、水産物の寄与率を吟味する等、なお検討を要する事項が多く残されているが、地球規模での⁹⁰Sr の降下特性とその日本人による経口摂取の概要を把握するモデルが構築されたといえる。

謝 辞

本研究の推進にあたり懇切なご指導を戴いた京都大学工学部井上頼輝教授、数値計算等にご協力戴いた島田洋子、浜口敬三の両氏に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 市川龍資：保健物理，21, pp325 ~ 329, (1986)
- 2) 科学技術庁資源調査会：四訂日本食品標準成分表，大蔵省印刷局，(1982)
- 3) 葛城幸雄：死の灰のゆくえ，新草出版，(1986)
- 4) 栗原武：近代経営養豚の実際，養賢堂，(1967)
- 5) 原子力環境整備センター：土壌から農作物への放射性物質の移行係数(環境パラメータシリーズ1)，(1988)
- 6) 総理府統計局：日本の統計，1960年版～1991年版
- 7) 中央畜産会：日本標準飼料成分表，1980年版，信陽堂
- 8) 坪井八十二，他編：農業気象ハンドブック，養賢堂，(1974)
- 9) 日本貿易振興会：輸入農林水産物の現況，1961, 1966 各年版
- 10) 同上：農林水産物の貿易，1971, 1976, 1981, 1986, 1991 各年版
- 11) 農山漁村文化協会編：畜産全書，(1983)
- 12) 農林水産省畜産局流通飼料課：濃厚飼料統計年報，昭和38・39年度版，日本飼料協会
- 13) 農林水産省畜産局流通飼料課：飼料便覧，1976, 1982, 1986, 1991 各年版，農林統計協会
- 14) 農林水産大臣官房調査課：食糧需給表，平成元年度版，農林統計協会，(1991)
- 15) 森澤眞輔，井上頼輝，島田洋子：第45回土木年講，II - 108, pp.868-869, (1990)
- 16) 森澤眞輔，他：原子力誌，27〔7〕，643-657(1985)
- 17) National Institute of Radiological Sciences: Environmental Materials, Radioactivity Survey Data in Japan, No. 1 ~ No. 95, (1963 ~ 1991)
- 18) P. J. COUGHTREY & M. C THORNE: Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, A Critical Review of Data, (1983)
- 19) R. S. Cambray et als.: Radioactive Fallout in Air and Rain, Results to the end of 1988, AERE-R-13575, DOE / RW / 90 / 031, (1989) 他
- 20) Z. R. Juzdan: Worldwide Deposition of Sr-90 through 1985, Environmental Measurement Laboratory, USDOE, EML-515, (1988) 他

III 陸でのふるまい(2)-----

1 核融合施設に起因する環境トリチウム線量評価モデル

村田 幹 生

日本原子力研究所保健物理部

Dose Estimation Models for Environmental Tritium Released from Fusion Facilities

Mikio Murata

Department of Health Physics, Japan Atomic Energy Research Institute

2-4 Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-11 Japan

ABSTRACT- Various mathematical models are being developed to predict the behavior of HT released to the natural environment and their consequent impact. This report outlines models and the major findings of HT field release studies in France and Canada. The models are constructed to incorporate the key processes thought to be responsible for the formation of atmospheric HTO from a release of HT. It has been established from the experiments that HT oxidized in surface soil is incorporated almost entirely into soil water as HTO. This tritium may be reemitted to the atmosphere in the form of HTO through exchange of soil and atmospheric moisture as well as through the bulk water mass flux from the soil to the atmosphere due to evaporation and transpiration. The direct conversion of HT to HTO in air and direct uptake of HT by vegetation are expected to be negligible for the time and space scales of interest in considering short duration releases. HTO emitted to the air can further exchange with soil and vegetation water. Validation of these models against experimental data is conducted to demonstrate their credibility. It may be concluded that further laboratory and field works are needed in order to develop a sufficiently good understanding of the dependence of the key processes on environmental factors (including diurnal cycling and seasonality) to allow the rates of the processes to be predicted from a knowledge of

environmental conditions.

はじめに

日、米、EC、ロシアの4極の協力のもとに共同設計が行われている国際熱核融合実験炉 (ITER)、あるいは国内で考えられている次期核融合実験炉 (FER) は概念設計の段階を経て工学設計段階へと移りつつある。これらの段階で、実験炉の安全設計に反映させることを目的として、核融合炉等から放出されるトリチウムの環境安全性を現実的なモデルに基づいて正確に評価するためのコードの開発が各国において進められている。トリチウムの特殊性を考慮して開発中のコードに、カナダの ETMOD (Ontario Hydro)、UFOTRI (KFK)、H3DISP (Studsvik)、TRIDOSE (原研) はかなどがある。

軽水炉や重水炉の場合には、環境に放出されるトリチウムは HTO、DTO などの酸化物 (以下では HTO と記す) が主であるが、核融合炉では T₂、HT などのガス (以下では HT と記す) が主となる可能性が大きく、環境中での被ばくに到る過程が両者で大きく異なってくる。以下に、施設を中心として比較的狭い範囲 (~ 20 km 程度まで) を対象とした評価コードについて、モデルを中心にその開発現況を概説するとともに、関連して行われている HT ガス野外放出実験を紹介する。

1. 環境トリチウム線量評価モデルの特徴

Fig. 1 にトリチウム移行の局所モデルを示す。現在知られている事実として^{1),2)}、HT ガスは環境に放出されると、大気拡散の過程で地表面に接したとき、土壤中に拡散浸透し、そこに存在する微生物の作用によって比較的速やかに HTO に転換される。HTO は土壤水に組み込まれ、土壤水と同じ挙動をするようになる。大気中を移行する間の転換は、狭域拡散の時間スケールでは無視できる程度とされている。植物に直接沈着する HT ガスは常に少なく問題と

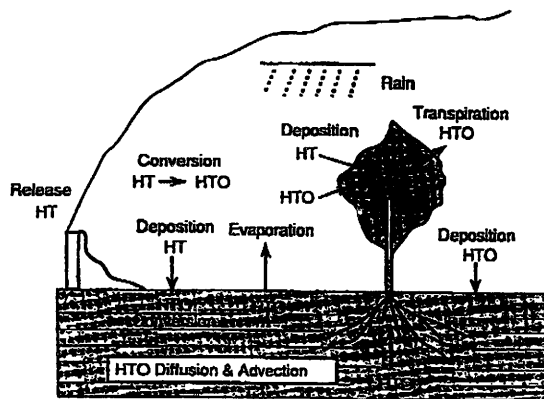


Fig.1 An illustration of tritium dispersion in the environment.

されない。土壌水中の HTO は、蒸発および根を通して葉からの蒸散で大気中に還元される。このようにして、HT で放出されたにもかかわらず、大気中に HTO が存在する結果となる。土壌中の HTO は分子拡散と土壌水の動きにしたがって移動する。降雨は、土壌中の HTO を地中深くへ移動させ、大気中の HTO 濃度に大きな影響を与える。

大気中に還元された HTO の一部は、再び大気拡散の過程で風下の土壌、植物に沈着する。このようなサイクルを繰り返し、トリチウムは風下に移動してゆく。ICRP-Publication30³⁾によれば、HTO は HT に比べて被ばく線量への寄与率が4桁も大きいので、HT から生成される HTO の評価精度が、結果としての被ばく線量の値に大きな影響を与える。

2. コンパートメントモデル

前記の移行の諸過程をモデル化した、大気、土壌、植物、地下水のローカルコンパートメントの例を Fig.2 に示す。土壌が HT ガスに 30 分間暴露されたとき、カナダでの実験結果では、ガスは 25 cm 程度の深さまで浸透し、HTO の深度分布が形成されることが観察されている⁴⁾。植物中では、有機結合トリチウムが生成されるが、現在この部分に研究のウェイトが置かれて、実験とモデルの開発が進められている^{5),6)}。

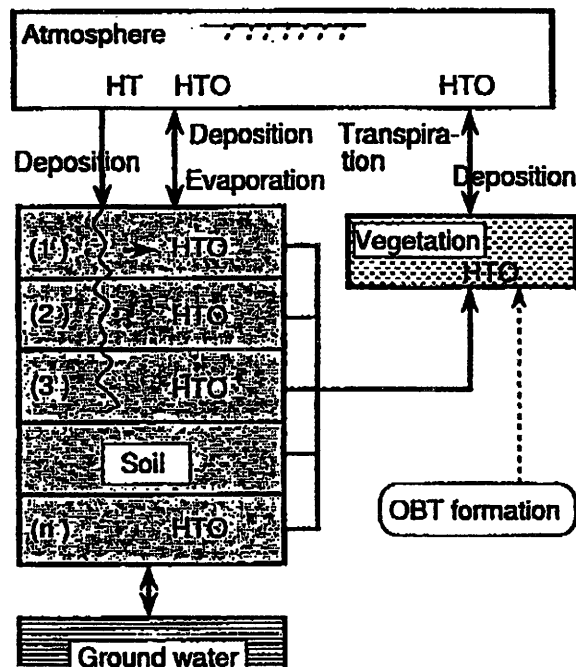


Fig.2 A local compartment model of tritium transport.

Fig.2 のコンパートメントモデルで必要な移行に関するパラメータには次のものがある。地勢に関するものとして、

土壌含水率、空隙率、植生、粗度

気象に関するものとして、

風速、大気安定度、湿度、気温、雨量

トリチウム特有のものとして、

HT ガスの土壌沈着速度と土壌内拡散係数

HTO の土壌沈着速度と土壌内拡散係数

HT ガスの土壌内での HTO への転換速度定数

HTO の蒸発と蒸散速度

等がある。トリチウム特有のパラメータの収集のために多くの実験が行われているが、なお、実測データが得られていない場合には、つぎに例示するような計算法から求められる値が使われることがある。

3. 移行係数の推定

a) 沈着速度

ばく線量当量に最も大きく影響する沈着速度の計算には、適当な実測値がない場合には、計算値が用いられている。

$$V_{HT} = \frac{D_{HT} \times \theta}{0.023 \times \tau} \quad (1)$$

または、

$$= \theta \times (K_C \times D_{HTS})^{0.5} \quad (2)$$

$$V_{HTO} = \frac{k \times U_*}{\ln(k \times U_* \times Z_r / D_{HTO})} \quad (3)$$

(1)式は、Dunstall⁷⁾によって室内実験から得られた経験式で、 τ を1.5として、土壌の体積空隙率の測定からHTの沈着速度が計算される。土壌微生物が活性で、適度な含水率の範囲で適用できるとされている。(2)式は理論的に導かれたもので、 K_C の値が必要である。また、 D_{HTS} は、 $\theta \times D_{HT} / \tau$ から導かれる。(3)式は、Tadmor⁸⁾によって導かれた式で、HTOの沈着速度は、摩擦速度の測定から、計算することができる。

V_{HT} , V_{HTO} : 沈着速度

k : カルマン定数

U_* : 摩擦速度

D_{HT} : HT分子の気相拡散係数

D_{HTS} : HT分子の土壌内実効拡散係数

D_{HTO} : HTO分子の気相拡散係数

K_C : 土壌内におけるHT-HTO転換速度定数

τ : 土壌空間の曲がり係数

θ : 土壌の体積空隙率

z_r : 基準高さ

b) 蒸発速度

蒸発速度の計算には、熱収支法と空気力学法を結合した Penman 式⁹⁾などが用いられる。この場合には、風速、湿度、放射収支量の測定から、蒸発速度が計算される。

$$E = \frac{\Delta \times R}{r} + \frac{f(u) \times (e_s - e)}{((\Delta / r + 1.0) \times L)}$$

$$f(u) = 0.26 \times (0.5 + 0.54 \times U)$$

E : 蒸発速度

R : 地面への太陽光純放射量

Δ : 飽和水蒸気圧曲線の大気温度における勾配

r : 乾湿計定数

L : 水の蒸発潜熱

U : 2 m 高での風速

e_s, e : 大気の飽和水蒸気圧および水蒸気圧

c) 蒸散速度

対象の植物に対して蒸散量が既知でない場合は、Hicks ら¹⁰⁾の複合抵抗モデルから交換速度を推定し、次式からバルク水の蒸散速度 T_e が計算される。

$$T_e = V_{ex} \times (h_s - h)$$

また、放射能の交換フラックスは、空気水分および土壌水のトリチウム比放射能を考慮して、次式で表される。

$$F_{HTO} = V_{ex} \times (C_a - h_s \times C_{PW})$$

T_e : バルク水の蒸散速度

F_{HTO} : 葉面での HTO の交換フラックス

V_{ex} : 交換速度

C_a : 大気中の HTO 濃度

C_{PW} : 葉の自由水中の HTO 濃度

h_s, h : 葉の温度における飽和湿度および周辺の湿度

以上の計算式によるパラメータの推定値の妥当性については、いっそうの検証が現在も進められている。

4. トリチウムガスの野外放出実験

移行のモデル化に必要な挙動の観察、種々の移行に関するパラメータ値の収集、サンプリングおよび測定分析法の相互比較、およびベンチマーク計算用のデータセットを構築すること

どを目的として、HT ガスの野外放出実験が国際協力のもとに実施された。フランスの実験¹¹⁾ (1986, EC 諸国、カナダ) は、実験場に 256TBq の HT ガスを 40 m のスタックから 2 分間で放出して行われた。大気安定度は B、風速は 3.5m/s (40 m 高さ) で、風下 4.5 km までの観測が行われた。一方、カナダの実験¹²⁾ (1987, 加、米、独、仏、スウェーデン、日) では、少ないトリチウムガスを用いて効果的に土壌や植物への沈着を生じさせるために、400m の実験場に 3.5TBq の HT ガスを 1 m の高さから 30 分間で放出して挙動が調べられた。大気安定度は B-C、風速は 2.3m/s であった。

Table 1 HT deposition velocities to soil measured in the field release experiments^{11,12)}

Participants	HT deposition velocity ($\times 10^{-4}$ m/s)		
	France	Canada	
		Grassy area	Sandy area
AECL/OHRD		7.8 \pm 2.6	4.3 \pm 1.2
JAERI		1.7	2.4 \pm 0.7
CEA	1.0-5.5		
KFK	7.1-15		
NIR	2.2	3.6 \pm 1.7	1.6 \pm 0.8
KFA	2.2	6.6 \pm 2.5	3.1 \pm 1.5
Studsvik	2.4	8.1 \pm 1.8	

実験から得られた HT の土壌への沈着速度を Table1 に示す^{11,12)}。空気中の HT ガス濃度と土壌に沈着した HTO の測定から求められた沈着速度は、フランス実験では、(1.0 ~ 15) $\times 10^{-4}$ m/s の範囲に、カナダ実験では草地の場合 (1.9 ~ 10) $\times 10^{-4}$ m/s の範囲に、砂地の場合には 1/2 程度の (0.8 ~ 5.5) $\times 10^{-4}$ m/s (砂地) の範囲にあった。また、土壌に沈着した HTO が主として空気中への放散によって失われてゆく割合 (消失率) を Table 2^{11,12)} に示す。

Table 2 HTO loss rates from soil measured in the field release experiments^{11,12)}

Participants	HTO loss rate (%/h)		
	France <24h	Canada	
		<48h	>48h
AECL/OHRD		1.1-2.4	0.25-1.07
JAERI		1.3-4.7	0.47-2.1
CEA	5.6	1.6-6.7	
KFK			
NIR	2	1-8	0.32-0.56
KFA	1.7	2-4	
Studsvik	1.4	1.5-3.7	1.5

この値は、土壤の HTO の沈着量の時間変化から求められたもので、蒸発と蒸散を合わせた消失と考えると、計算に利用することが可能である。消失率は、平均化する時間 (HT プルーム通過後の) によって異なるが、初期の方が大きい傾向にある。

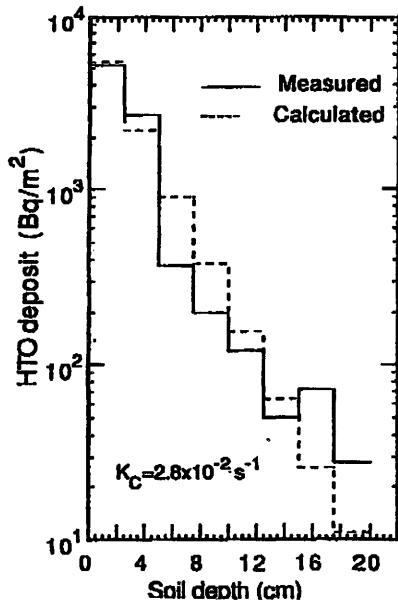


Fig. 3 Depth profile of HTO deposit in soil measured in the HT field release experiment in Canada (site E)³⁾

Fig. 3 にカナダ実験場の風下 400 m の地点で測定された、トリチウムの土壤沈着プロファイルを示す⁴⁾。沈着量は、深さ方向に指数関数的に分布することが示されている。破線は、モデルから計算された沈着量分布であり、HT から HTO への転換速度定数を $2.8 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ としたときに、最も実験値とのよい一致が得られている。

5. 計算例と考察

他の核種と比較してトリチウムの場合の特徴は、HT ガスのプルームが対象フィールドを通り抜けた後においても、沈着によって土壤の広い面積にわたり HTO 汚染源が残され、長期にわたる HTO 放出源が形成されることである。実際の計算にあたっては、フィールドを地面上で多くのメッシュに分割し、各メッシュを HTO の面積線源と考えて、多数の面積線源からの HTO の大気放散および地中移行の計算が行われる。各メッシュの垂直方向には、Fig. 2 に示したローカルコンパートメントが構成される。

6. 計算結果と考察

ITER のベンチマーク計算で与えられたパラメータの一例を Table3 に示す¹³⁾。Fig. 4 は、100g(3.5PBq) のトリチウムが HT および HTO の化学形で放出された場合の風下距離と最大の被ばくをする個人の実効線量当量の関係を示している¹³⁾。トリチウムは、20 m の高さから

2分間で放出され、大気安定度がF、風速3 m/s(60 m高)で、ビルディングウエイクが考慮されている。プルームの拡散パラメータはSCN/CENの実測値が使用されている。与えられた条件のセットは必ずしも合理的とはいえない値のものがあるので、計算結果の絶対値そのものはまだ検討の余地があるものと考えられている。

Table 3 An example of ITER tritium release benchmark conditions¹³⁾

HT dry deposition velocity	5.0×10^{-4} m/s
HTO dry deposition velocity	1.8×10^{-2} m/s
Diffusion coefficient of HT in soil	5.0×10^{-6} m ² /s
Diffusion coefficient of HTO in soil	2.0×10^{-9} m ² /s
Reemission rate of HTO from soil	3 %/h
Pore volume of soil	0.3
Water content of soil	0.2
Water fraction of vegetation	0.8
Vegetation density	1kg-dry/m ²
Transpiration rate of vegetation	1kg-H ₂ O/kg-dry/d

最大被ばく地点はいずれの化学形の場合にも、200 m近辺にある。この地点でのHTOの線量当量約100mSvは、HTの約1mSvの100倍である。この比は、風下へ行くほど小さくなる傾向を示している。HTOはHTに比べて被ばく線量への寄与率が4桁も大きいはずであるが、計算値では100程度であるのは、HTから生成されるHTOの線量当量への寄与が重要な意味をもつことを示している。HTの放出により生じるHTOの相対的な寄与の程度は、両者の時間積算濃度を比べるとわかる。HTガスの野外放出実験からも、Fig. 5¹⁴⁾に示すように、時間積算濃度としてみたHTに対するHTOの寄与率は、一般的な傾向として時間とともに、また、放出点から遠くなるほど増加する傾向がある。

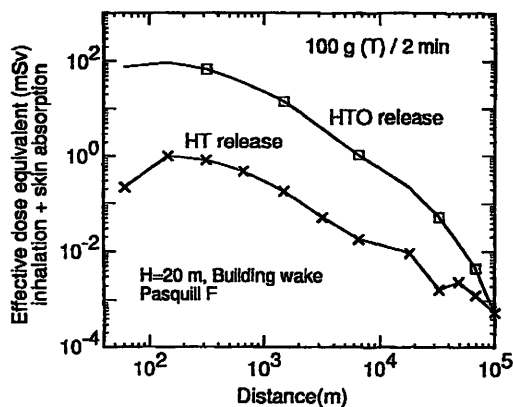


Fig.4 Effective dose equivalent delivered to a maximum exposed individual due to inhalation and skin absorption¹³⁾.

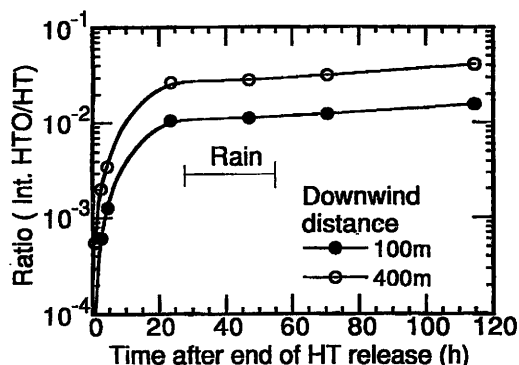


Fig.5 Ratios of accumulated air concentration of HTO to that of HT as a function of time measured in the HT field release experiment in Canada¹⁴⁾.

おわりに

施設からの寄与による環境中のトリチウムに対する比較的狭域の線量当量評価の手法について簡単に述べた。評価の実践的な適用のために、実測値パラメータが多くの実験によって収集されつつあり、総合的には、野外放出実験による裏づけが行われつつある。また、ベンチマーク計算条件も整備されつつあり、国際間の比較のもとに各国のコード開発が進められている。今後の研究の方向は、大気安定度、風速のような気象条件とHTOの沈着速度、蒸発速度、蒸散速度との間での一致性を確立することや、植物中の有機結合トリチウム(OBT)モデルの開発に向けられているように感じられる。

参考文献

- 1) Murphy, C. E.:Modelling tritium transport in the environment, Radiat. Prot. Dosim., 16, 1(1986).
- 2) Shaw, P. V. & Haywood, S. M.:A dynamic model to predict movement of tritium in the environment, *ibid*, 59(1986).
- 3) ICRP:ICRP Publication30Part-1:Limits for intakes of radionuclides by workers (1978).
- 4) 村田幹生、野口宏：自然環境未攪乱土壤中におけるHTガスの拡散係数およびHTOへの転換速度定数の推定、日本原子力学会誌、34, 149(1992)。
- 5) Diabate, S. & Honig, D.:Conversion of molecular tritium to HTO and OBT in plants and soils, Fusion Technol., 14, 1235(1988).
- 6) Papke, H. & Forstel, H.:Formation rate of nonexchangeable organically bound tritium from tritiated soil water, Health Phys., 60, 773(1991).
- 7) Dunstall, T. G. & Ogram, G. L.:Diffusion and biological oxidation as component

processes regulating the deposition of tritiated hydrogen to soils, OHRD Report No. 90-235-K (1991).

- 8) Tadmor, J.:Deposition of Kr-85 and tritium released from a nuclear fuel reprocessing plant, Health Phys., 24, 40(1973).
- 9) Penman, H. L.:Estimating evaporation, Trans. Am. Geophys. Union, 37, 43(1956).
- 10) Hicks, B. B., Baldocchi, D. D., Meyers, T. P., Hosker, Jr., R. P. & Matt, D. R.:A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities, Water Air Soil Pollut., 36, 311(1987).
- 11) Djerassi, H. & Gulden, W.:Overview of the tritium release experiment in France, Fusion Technol., 14, 1216(1988).
- 12) Ogram, G. L.:The Canadian HT dispersion experiment at Chalk River-June1987:Summary report, CFFTP-G-88027(1988).
- 13) ITER:ITER Safety and environmental impact, ITER-TN-SA-9-1(1989).
- 14) Murata, M., Noguchi, H., Matusi, T., et al.:Experimental results of JAERI in the Canadian HT field release study of June10, 1987, JAERI-M88-232(1988).

2 植物および食品への³Hの移行特性… OBT について

井上 義和

放射線医学総合研究所

Transfer Characteristics of Organically Bound Tritium into Plant and Foodstuffs

Yoshikazu Inoue

Environmental Health, National Institute of Radiological Sciences

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

ABSTRACT- From the significance, with respect to dose, of organically bound tritium (OBT) in diet, ratios (SAR) of the specific activity of OBT to that of tissue free water tritium (TFWT) were investigated for various kinds of foodstuffs. The ratio of Japanese rice and Chinese rice ranged between 0.6 and 0.8 proved that the specific activity of OBT becomes less than unity due to the isotope discrimination in the assimilation process under the steady state condition. The ratio of about unity was also demonstrated for various kinds of world-wide foodstuffs. Very high SAR values reported by Italian studies on food items are therefore discounted. The difference of residence time between OBT and TFWT in plant, and the influence of atmospheric HTO vapor on both TFWT and exchangeable OBT were observed and considered to be the major causes of the variation of SAR value of foodstuffs under the dynamic condition.

1. 序

施設から放出される³H(T)の公衆に対する線量を評価する現実的なモデルの開発とその信頼性を確かめる検証研究が、現在世界的に着目され研究されている。その中での未解決の課題は、環境移行に関する環境から人体への有機形 T(OBT)の移行率(速度)と体内代謝における OBTの線量換算係数に関する諸問題である。

後者に関しては、従来 HTOのみからの被曝を仮定していたが、植物中の OBTの一部が直

接人体内の有機組織に効率的に取り込まれ、滞留時間も長いことから、OBTの線量寄与が無視出来ないと考えられるに至った。すなわち、エトニア¹⁾は、図1に示す様に飲食物中に含まれるOBTの割合が増加するとともに、全線量は体水分のTのみからの線量よりも増大することを示した。生物体内の組織自由水TをTFWT(Tissue Free Water Tritium)、有機形Tまたは組織結合TをOBT(Organically Bound Tritium)と呼ぶと、線量は食品の比放射能比SAR(Specific Activity Ratio = OBT / TFWT 濃度比)の増大とともに増大するとい換えることができる。

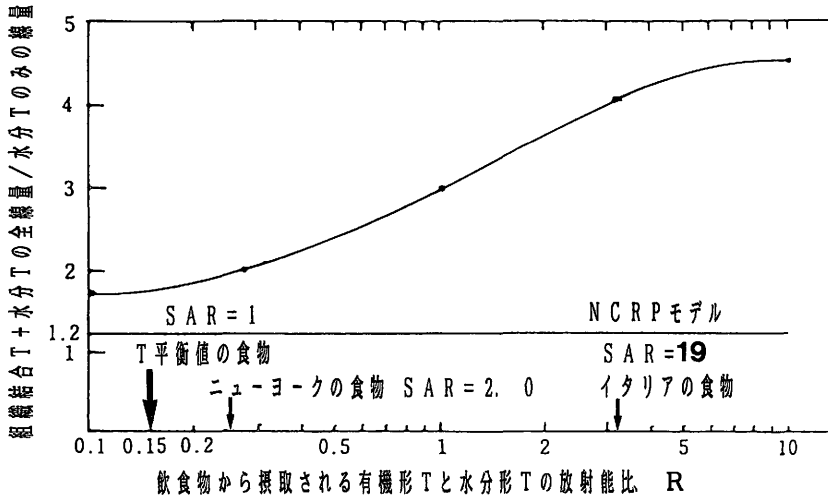


図1 組織結合Tの寄与を含む全線量と水分のみから受ける線量の比と飲食物から摂取される有機形Tと水分形Tの放射能比、Rとの関係

他方、武田^{2,3)}らは動物を用いてHTOとT標識食品を投与する比較実験を実施した結果、T食品の線量換算係数は、HTOの2倍以上であることを示した。以上のことから、環境移行モデルの中に、Tが環境から動物・植物性食品中へOBTの形で生成・移行する過程を組み込むことが重要であることが分かる。

生物のTの比放射能比は、濃度が平衡で定常状態の環境中では1または1以下であること、すなわち同位体濃縮が起こらないことが食物連鎖系を含む多くのトレーサ実験により確立されていた⁴⁾。ところがアメリカ(表1)^{5,6)}やイタリア(表2)⁷⁾の1970年代の人体組織を含む種々の環境試料のSARが、1を大きく超える例が相次いで報告され、OBT問題が注目され出した。アメリカの1970年代前半と後半の2度の測定例において、土壌→植物→動物→人の食物連鎖段階において、下位になるほどSARが小さくなり、また核実験に由来する環境HTO濃度がピークを示した1963年以降、時間が経過するほどSARが増大する点が注目に値する。

本稿では、環境から植物性食品への移行特性の中で、比放射能比(SAR)が1を超える“みかけの濃縮”問題に焦点を絞り、その発生機構または変動要因について、我々の環境試料の測定データを基に検討する。分析法については、水分形T(TFWT)は、凍結乾燥器または真空

表1 アメリカの環境・人体組織試料の³HのSAR*^{5,6)}

試料	採取年	S A R	採取年	S A R
土壌	1972	5.4	1975-77	1.3
植物性食品	1970-71	3.7	1978	3.8
動物性食品	1970-71	1.9	1978	2.5
人体組織	1972	1.6	1975	2.0

* SAR = (OBT/TFWT) の比放射能比

表2 イタリアの環境試料中の自由水の³H濃度とSAR*

試料 (1970年後半採取?)		自由水 ³ H 濃度 (Bq/l)	SAR推定値
有機物	食事	15	1.9
	血液	50	6.6
	尿酸	280	2.6
	糞	44	
	人体組織	56	
		100	
		40-56	6.6-8.3
水試料	飲料水	10	
	雨水	10	
	空気中水	15	
	淡水	14	

* 久松俊一、滝沢行雄 Radioisotopes, 38, 381, (1989)⁷⁾中の表4に基づく。

蒸留装置を用い、コールドトラップで回収した。有機形 T(OBT) は、乾燥試料を低温灰化装置により燃焼し水に変えコールドトラップで回収した。T濃度は、試料水を蒸留精製後、低バックグラウンド液体シンチレーション計数器(LSC)で測定した。比放射能比(SAR)は、両者の水のT濃度比(OBT/TFWT)で示される。

2. 自然環境で生産された食品の比放射能比

2-1. 日本と中国の米のSAR⁸⁾

日本全国から1985年産の精米を生産地の17道府県から27試料、消費地の10道府県から10試料、合計37試料採取した。また、中国の黒龍江省の4ヵ所の生産地で1983-84年産の精米4試料を採取し、分析した。TFWTとOBTの比放射能およびSARの平均値を表3に示した。米のSARは、両国とも0.6~0.8の範囲で、自然環境で1を超えないことが実証された。この場合は、稲の種子の水素源が、生産期間中T濃度がほぼ一定の水田の水であるの

で、定常状態の濃度平衡下で生育する植物の SAR は、同位体分別効果のため 1 以下になっことを示唆している。これは、多くのトレーサ実験の結果とも一致する。我々の結論は、その後秋田県内の水田で収穫した粳を分析する追試⁹⁾により再確認された。

表3 日本と中国の米の TFWT 濃度、OBT 濃度および比放射能比 (SAR)⁶⁾

国	生産年	TFWT	OBT	SAR
		Bq l ⁻¹ , ± 2 SD	Bq l ⁻¹ , ± 2 SD	± 2 SD
日本	1985	2.7 ± 0.7	2.0 ± 0.8	0.83 ± 0.32
中国	1983-85	10.8 ± 0.8	6.7 ± 0.8	0.62 ± 0.05

2-2. 世界の食品の SAR¹⁰⁾

日本人は食物の多くを外国産食品に頼っているので、その放射能濃度は国民線量評価上からも重要であるが、ここではその SAR について述べる。

世界で 1980 年後半に生産された加工品を含む種々の植物性、動物性食品について、TFWT と OBT 濃度を分析した。1 例として、ヨーロッパの食品の結果を図 2 に示した。生産地が気候学的に異なる数カ国に及び、食品種も不統一であるため、濃度は大多数が 1 ~ 6 Bq/l の広い範囲に分布し、平均値は約 3 Bq/l であった。両化学形の濃度は、加工品が多いにもかかわらず、大多数が互いにほぼ同じ濃度レベルを示した。その結果、SAR の平均値は、約 1.2 であった。この結果は、イタリアの環境試料の TFWT 濃度と SAR に関する異常に大きい報告値(表 2)を否定する。

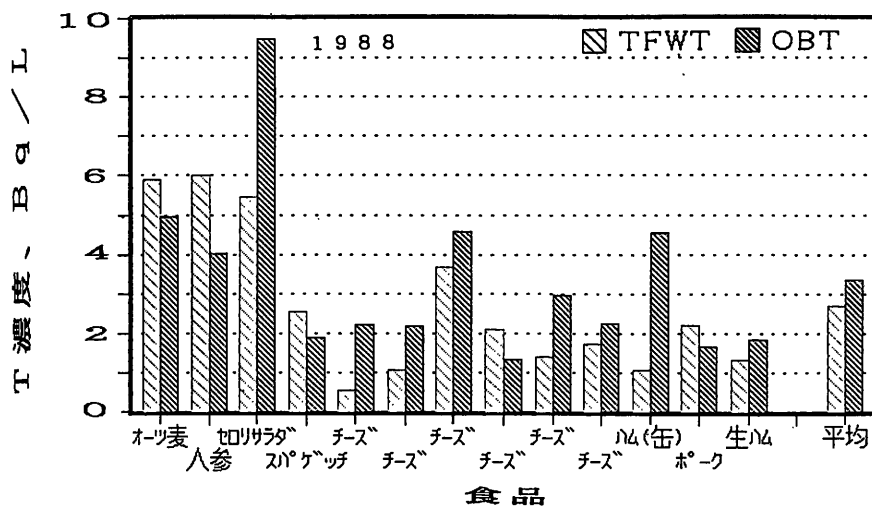


図2 ヨーロッパ産食品の TFWT 濃度と OBT 濃度

北半球の数地域で生産された種々の食品の TFWT と OBT の平均値間の相関は、図 3 に示す様に非常に良く、T レベルが他地域と比べて数倍高い中国の場合を含め、食品の SAR の各地域の平均値がほぼ 1 であることが分かった。また、濃度は生産地域のフォールアウト T レベルを反映していると推定された。

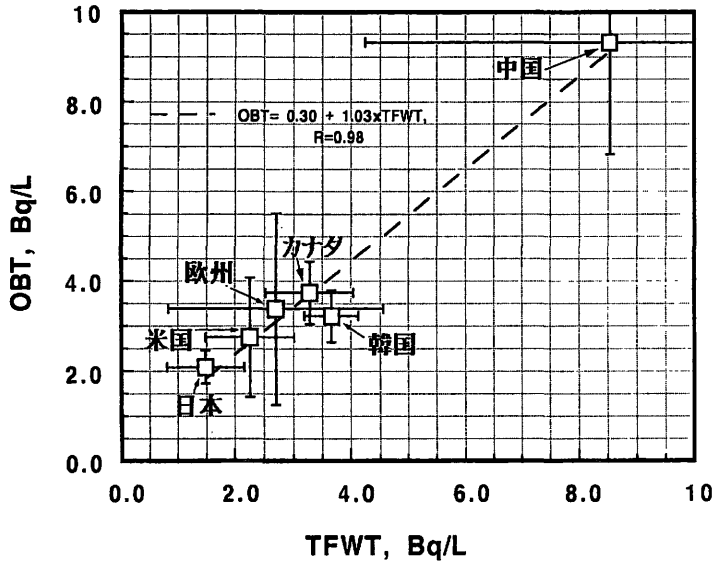


図 3 北半球地域の食品の TFWT 濃度と OBT 濃度間の相関関係

地球規模核実験から約 25 年が経過し、T 濃度が平衡に近づきつつある自然環境での上述の結果は、定常的平衡下の環境で生育した生物の比放射能比は、1 を大きく超えることはないことを示唆している。

3. SAR が 1 を超える機構および変動要因

次に表 1 や 2 に示した SAR が 1 よりはるかに大きくなる現象の機構および変動要因について検討する。

3-1. 環境中での OBT と TFWT の滞留時間差

1982 年 6 月、東海村内の研究用重水炉から大気中へ通常の週間放出率の 10 ~ 10² 倍 (推定) の HTO の放出があった。この放出は、放出地点から南西約 700 m の地点で通常より 1 桁高い月間降雨と TFWT 濃度の上昇をもたらしたが、OBT 濃度は、同年前半期の 2 倍程度の上昇に留まった。その後月間降水の濃度が急速に低下するのに伴い、TFWT 濃度も見かけの半減期約 10 日で急速に低下したが、一方 OBT 濃度の低下速度は極めて緩慢であった。このため OBT 濃度は 1983 年末まで常に TFWT 濃度より高い状態、すなわち SAR が 1 を超える状態が長期間継続した。図 4 は松葉の SAR の年平均値の変化を示している。SAR が 1 まで低下するまでに約 3 年が経過したと推定される¹¹⁾。

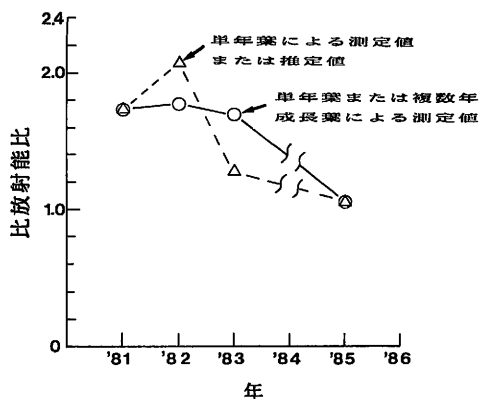


図4 東海村の施設周辺環境の定点で観測した松葉の比放射能比の年平均値の推移

この現象は、地球規模核実験により T の高沈着があった 1963 年から約 7 ~ 13 年が経過したアメリカで、環境試料の SAR が 1 より大きい状態が長期間継続した例 (表 2) と類似している。これらのことから、一時的に多量の T が放出された後では、生合成された OBT の滞留時間が TFWT よりはるかに長いので、SAR が 1 より大きい状態が長期間継続すると推定される。

3-2. 大気中 HTO の濃度変動が SAR に及ぼす影響¹²⁾

カナダの Deep River の小売店の (A) 穀類と豆類、(B) 缶詰食品の他、(C) カナダ産の他地域産の食品の TFWT と OBT 濃度を測定した。図 5 に示す様に A 群の TFWT 濃度は 20 ~ 160 Bq l⁻¹ と非常に高く、SAR は全て 0.5 以下であった。一方 B, C 群の濃度すべて 10 Bq l⁻¹ 以下で、SAR は約 1 であった。A 群の OBT 濃度は、図 6 に示す様に極低濃度 T 水で 2 回洗浄すると全て 8 Bq l⁻¹ 以下となった。これらの結果とその後の追試実験の結果から以下のことが分かった。

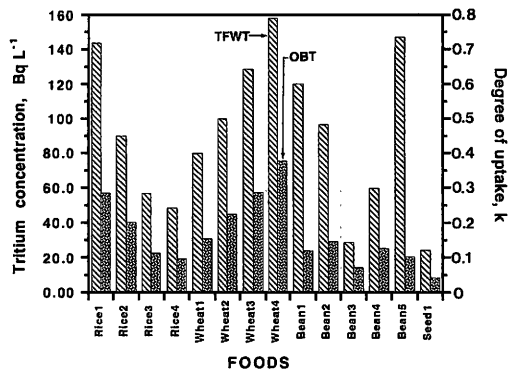


図5 カナダの DEEP RIVER の小売店で購入した食品の TFWT 濃度と OBT 濃度および大気水蒸気 T 濃度との平衡度、k (推定値)

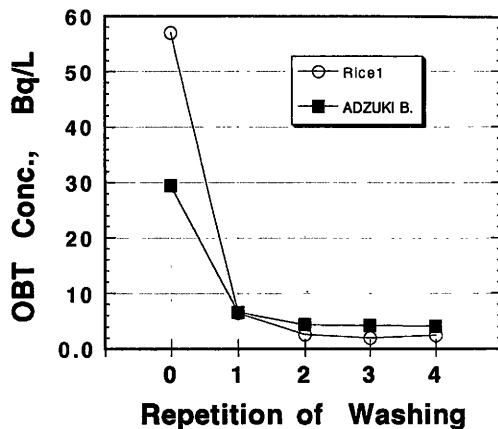


図6 大気水蒸気から T を取り込んだ食品の無トリチウム水による洗浄の回数と有機形 T(OBT) 濃度の変化

- 1) 大気に曝されている食品は、速やかに大気-食品間の水蒸気分圧差および HTO 濃度差に比例して HTO を取り込むか放出する。
- 2) 有機成分の変換性水素も食品水分の HTO と速やかに交換する。
- 3) 有機成分の組成比および交換性水素の割合は、食品の種類によりほぼ一定であるので、大気 HTO による汚染を受けた食品の SAR は、1 以下の食品固有値を示す。
- 4) 線量評価モデルの信頼性を向上させるためには、食品の大気 HTO の取り込み過程をモデルに新たに組み込む必要がある。

3-3. 大気 HT が植物 OBT の生成に及ぼす影響

高島ら¹³⁾は、1983年に採取した日本の21ヵ所の松葉中のTを分析した結果、平均値としてTFWT濃度が 46pCi/l 、OBT濃度が 66pCi/l そしてSARが1.5と報告した。そしてSARが1を超える原因として、比放射能(T/H原子数比)がHTOより $10^4 \sim 10^5$ 倍高い大気中のHTの直接取り込みであると示唆した。なお、1988年の日本の大気中HTおよびHTO濃度(H/T原子数比)は、それぞれ $45\text{mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ (0.94×10^6) および $23\text{mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ (17)と報告されている¹⁴⁾。

アメリカの研究者らもかなり以前この考えを示唆していたが⁵⁾、その後一政¹⁵⁾らは、HTの植物による酸化速度の測定結果に基づきこの可能性を否定した。

我々は、野口ら¹⁶⁾が行ったカナダにおけるHTの野外放出実験の際採取された松葉のOBTを分析した。結果の一部である図7は以下の様に解釈できる。大気中を拡散したHTは、表層土壌で細菌により酸化された後、その一部は大気に蒸発・移行する。その結果、松葉は気孔を通じてHTOを取り込み、TFWTの濃度が上昇するが、その後低濃度の大気に曝されるのでTFWT濃度は低下する。一方土壌中を拡散したHTOは根を通じて松に取り込まれるので、時間が遅れて松葉のTFWT濃度が再び上昇する。一方、実験期間中ビニール袋で覆われた松葉では、図7の経根経由に相当するTFWT濃度の上昇のみが観測された。

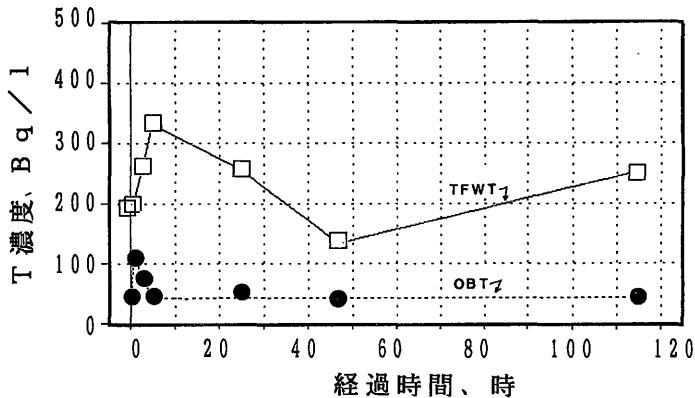


図7 裸松葉中のTFWTとOBT濃度のHT放出後の時間変化(経葉+経根摂取)

観測地点における大気中HTの比放射能(T/H比)は、大気中HTOのその約400倍高

かったので、もし HT の松葉への直接沈着が OBT の生成の原因であるなら、実験期間中に OBT の濃度上昇が観測される可能性があった。しかし、いずれの場合も OBT 濃度の上昇は認められなかったので、HT の OBT への直接沈着説は、野外実験でも否定された。

4. 結論

以上の結果を推論も含め総合して以下のようにまとめることが出来る。

- 1) T 濃度が定常的平衡下の環境で生育した生物の比放射能比 (OBT / TFWT) は、1 を超えることはない。すなわち、同位体濃縮は起こらず、むしろ同位体効果のため 1 以下になる可能性がある。
- 2) 比放射能比が変動し、1 から大きくずれる可能性として次のような場合が考えられる。
 - a) 植物のように同一地点で生(成)育する生物に関しては、多量の T 沈着のため一時的に環境 HTO 濃度が上昇した後減少する場合、生物体内に生合成された OBT は、滞留時間が TFWT のそれより長いので、SAR は 1 よりかなり大きくなり、その状態が長期間継続する。
 - b) 動物など移動性生物が、高(低)レベル環境で生育後、低(高)レベル環境に移動した場合、OBT のみが生育時の高(低)レベルを保持しているため、SAR は 1 以上(下)を示す。()内は逆の場合である。
 - c) 食品などが収穫・生産時前後で大気中 HTO 濃度の大きな変化に曝された場合も、前述の b) の原則が適用出来る。

以上、SAR が 1 からずれる程度は、環境中の HTO 濃度の変化の大きさと交換性有機水素の含有率に依存する。

4. 文献

- 1) Etnier, E. L. et al: Radiat. Res., 100, 487(1984).
- 2) Takeda, H.: J. Radiat. Res. 26, 131(1985).
- 3) Takeda, H. et al., J. Radiat. Res., 33, 309(1992)
- 4) 猪股つや子: 放射線生物研究 22, 205(1987).
- 5) Bogen, D. C. et al. : Health Phys., 20, 203(1976).
- 6) Bogen, D. C. et al.: Behaviour of Tritium in the Environment, STI / PUB / 498, 567, IAEA, Vienna (1979).
- 7) 久松俊一他、Radioisotopes, 36, 381(1989).
- 8) Inoue, Y., et al: J. Radiat. Res., 31, 311(1990).
- 9) Hisamatsu, S. et al.: J. Radiat. Res., 32, 389(1991).
- 10) Inoue, Y. and Iwakura, T.: Proc. China - Japan Workshop "Radiation Biology, Medicine and Protection", Beijing1992(in Press).

- 11) Inoue, Y. et al.: Proc. 7th Inter. Congr. IRPA, "Radiation Protection Practice", 706(1988).
- 12) Inoue, Y. et al.: Fusion Technol., 21, 494(1992).
- 13) Takasima, Appl. Radiat. Isot., 38, 255(1987).
- 14) Okai, T. et al: Appl. Radiat. Isot., 42, 389, (1991).
- 15) Ichimasa, M. et al.: J. Radiat. Res., 30, 323(1989).
- 16) Noguti, H. et al.: Fusion Technol., 14, 1187, (1988).

1 降雨沈着が大気中放射性核種濃度に及ぼす影響

藤 高 和 信

放射線医学総合研究所

Effect of rain scavenging on the concentration of airborne radionuclides

Kazunobu Fujitaka

Division of Environmental Health, National Institute of Radiological Sciences

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

ABSTRACT Concentration of radon, which is the main component of the airborne radionuclides, is largely controlled by meteorological conditions including states of rain, wind and temperature profile. Among all, rain scavenging plays the leading role in changing the radon concentration in a short period. It also causes enhancement of external radiation level through wet deposition of radon daughters onto the ground. In this study, the time variation of external radiation level was used to monitor the change of the concentration. In this relation, simultaneous measurements of the radiation level and rain had been conducted for several years by the use of highly sensitive rainmeter (> 0.004 mm) and NaI(Tl)scintillation monitor ($2" \phi \times 2"$). Analyses of those data showed that ① the external radiation level enhances at the onset of a rain, ② the enhancement is large when the rain is discrete while it is vague during a continuous rain, ③ it takes about two days in winter and one day in summer for atmospheric radon concentration to recover after it suffered a rain scavenging, ④ the shortest recovery time is about three hours, and ⑤ the longest time is at most one month. The relative increment of the external radiation level (y : % of the base line level) at the onset of a rain can be formulated experimentally as a function of preceding dry period (t hour; $t > 1.5$ hour) as $y = \log 28.5(1 - \exp(-2.21 \log t))$. Those findings can be used to develop a transport model of the atmospheric radon.

1. はじめに

環境中の大気放射能の主成分は公衆の呼吸器被曝にとって重要なラドンである。Fig. 1に示すようにラドンはローカルな地質から出るものと、遠くから運ばれるものに大別できる。ローカルなものは地面から出て乱流拡散で広がり、大気安定度の影響を受け、また雨の洗浄効果を受ける。一方遠方起源のものは季節変化が大きく、夏は太平洋から薄いラドンが運ばれ、冬は大陸の濃いラドンが運ばれる。この移流効果を検討するため、昨年から米国の海洋気象衛星ノアと日本の気象衛星ひまわりのデータを受信中であるが、なおデータ蓄積を要するので、ここではローカルなラドン収支について述べる。

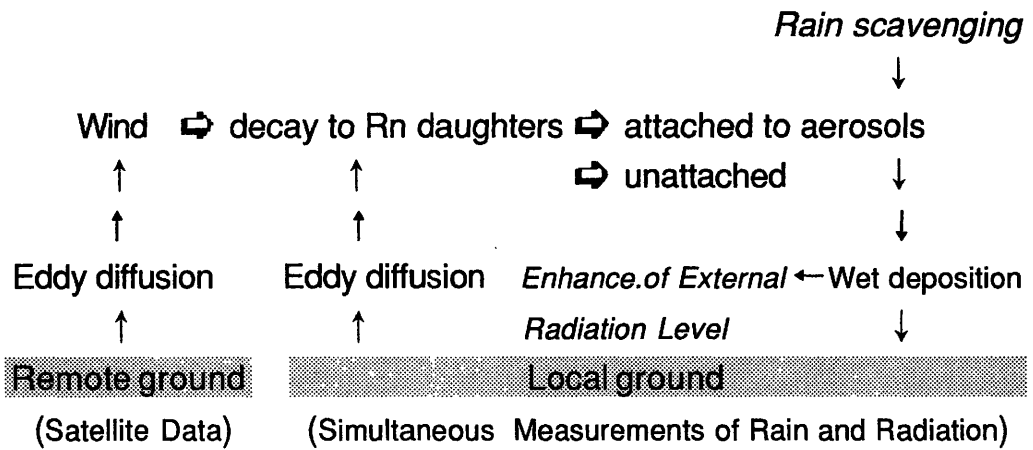


Fig.1 Transport of radon in the environment.

Fig. 2は鉛直方向のプロセスの概念図である。ラドンガスは大気中で娘核種に壊変して多くはエアロソルに付着し、遠くまで運ばれる。もし雨で洗浄されると地面に沈着し、空間放射線

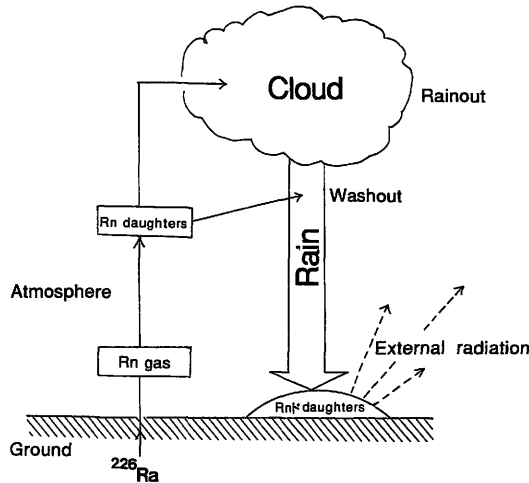


Fig.2 Local transport of radon in the vertical.

レベルが上昇するとともに娘核種の大気中濃度が低下する。この空間放射線変動をモニタとして利用すればラドン挙動を推定できる。この研究初期に空間放射線レベルと大気放射能など9つのパラメータを形態学的に解析したが、当時の雨量計は感度0.5 mmの転倒マス型のものであった。その雨量と空間放射線の同時観測データの中に次のような例があった。

Fig. 3 左は典型的な例で、降雨開始時に空間放射線レベルが立ち上がる。しかし同図右では、降雨開始前から空間放射線上昇が認められる。これは転倒マス型の雨量計では微量の雨を検知できないためと考えられる。

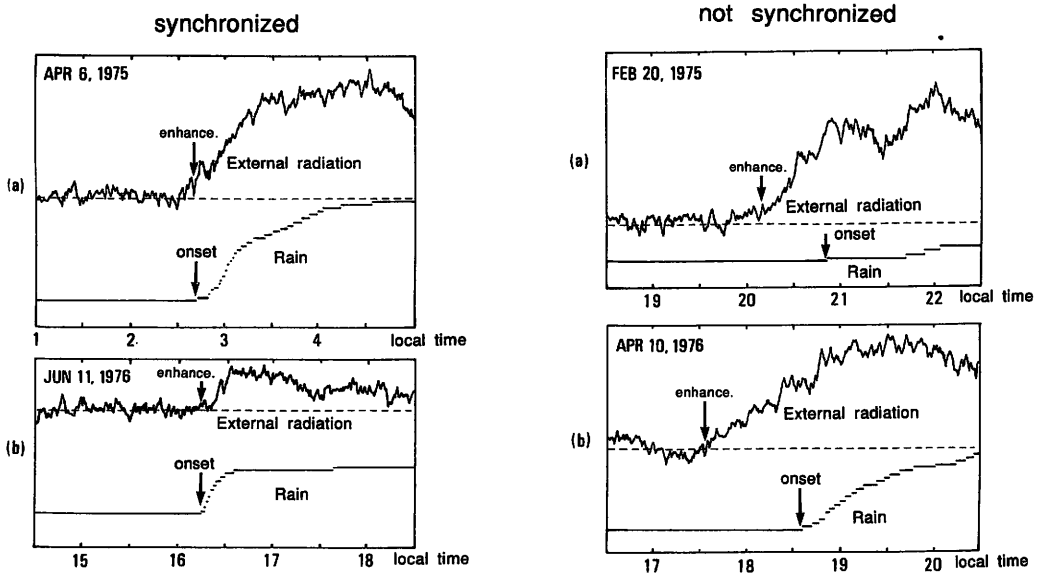


Fig.3 Onset of rains and enhancement of the external radiation level observed with a conventional “seesaw”-rainmeter. Rains are plotted as integrated rainfalls. Ordinate scales are arbitrary.

2. 観測システムについて

そこで1985年にもっと高感度の光学式雨量計(感度は従来の転倒マス型の約100倍)と直径2インチのNaIガンマ線モニタを放医研内に設置し、雨量とガンマ線レベルに絞った同時連続観測を開始した。両者は約3 m離れており、雨量計は地表、放射線モニタは地上約1.5 mにある。周囲は開放的な地勢であり、また人工放射線の混入を避けている。また雨量計の漏斗についた水滴等まで記録するのを避けるため、最小雨量のデータ(約0.00426 mm)は無視することにした。

3. 降雨沈着の形態学的考察

Fig. 4 は高感度雨量計によるデータの例である。最初のA群の雨の降り始めに空間放射線は明瞭に立ち上がり、2度目のB群に対してはやや小さく立ち上がる。C群に対してはさらに小さい。このように空間放射線上昇は、突然降り始めた雨に対して最も顕著で、続けて降る雨に

対しては不明なことが分かる。C群のように余り小さな雨では放射線変動は小さい。当然、Fig. 5のように連続的に降り続く場合は放射線変動を判別しにくい。

このように特徴は298個の降雨イベントの観察で確認した。降雨に伴う放射線上昇が顕著になるための要件をまとめると以下の通り：

- (1) 降雨率がある程度大きいこと
- (2) 雨がある程度まとまった塊になっていること
- (3) 雨の間にある程度の空白時間があること

これらは、大気中ラドン濃度が雨の洗浄で増減し、地面へ沈着して空間放射線の立ち上がりが見られるとして説明できる。「雨の空白時間」と呼ぶものは、雨で一旦減ったラドンが回復するための時間と考えられる。

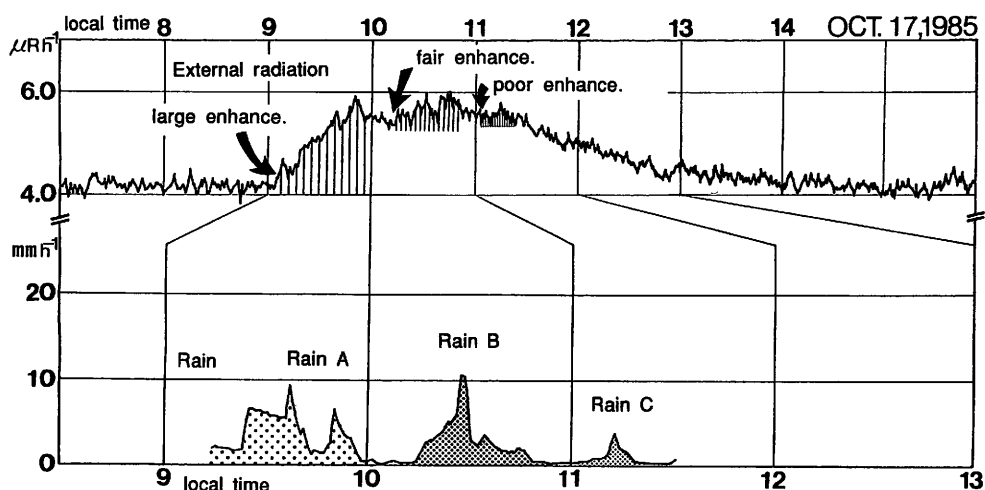


Fig.4 External radiation level with discrete rains.

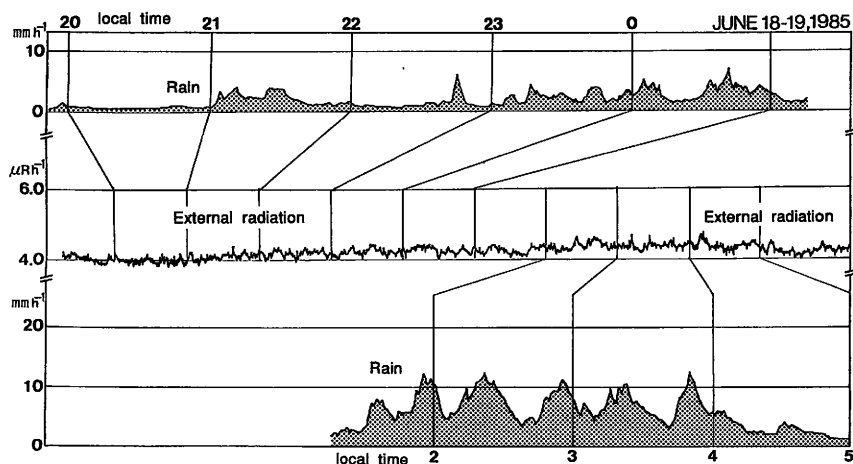


Fig.5 External radiation level with a continuous rain.

4. 大気放射能濃度の回復時間

この空白時間に注目してデータを整理すると Fig. 6 の例のように、放射線上昇イベントの発生頻度は空白時間 (t) に対して指数関数型になる。その頻度分布を $\exp(-kt)$ で近似してカーブフィッティングで k を決め、さらに $T = 0.693/k$ を計算すると、T はこの分布を全体として特徴づける時定数になる。それは降雨洗浄で低下した大気中ラドン娘核種濃度が再補給されて回復するための時間にあたる。T は明瞭な季節変化を見せ、Fig. 7 のように冬で約 2 日、夏で約 1 日である。

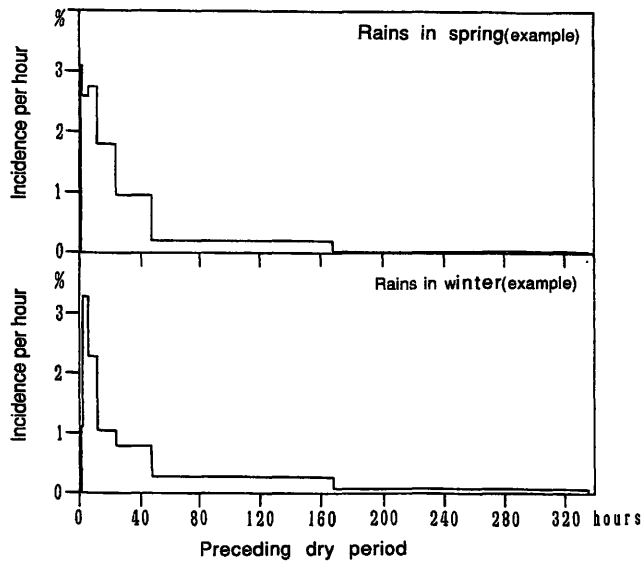


Fig.6 Incidence of the radiation enhancement against the preceding dry period.

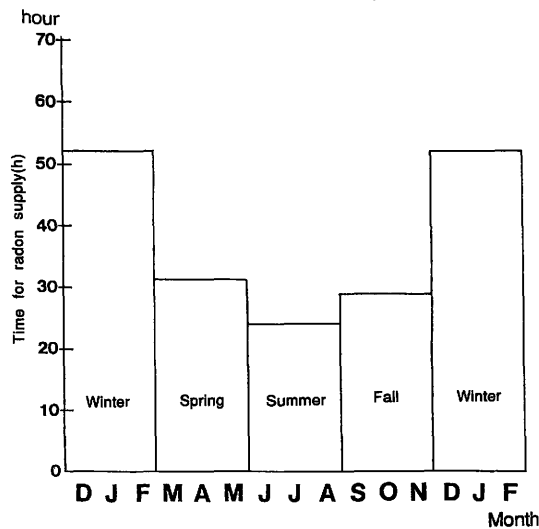


Fig.7 Time for the radon supply (preceding dry period) necessary to cause a large wet deposition.

Fig. 8 は降雨沈着で空間放射線が上昇する程度を放射線のベースラインに対する相対上昇率 (y%) で表したものである。但し空白時間が 1.5 時間以上のデータに限っている。分布形を実験式で表すと次のようになる :

$$\log y = \log 28.5 (1 - e^{-2.211 \log t})$$

上記のような分布を放射線上昇の絶対値で表したのが Fig. 9 である。降雨間隔が 3 時間を越えると急激に上昇幅が増すのが分かる。

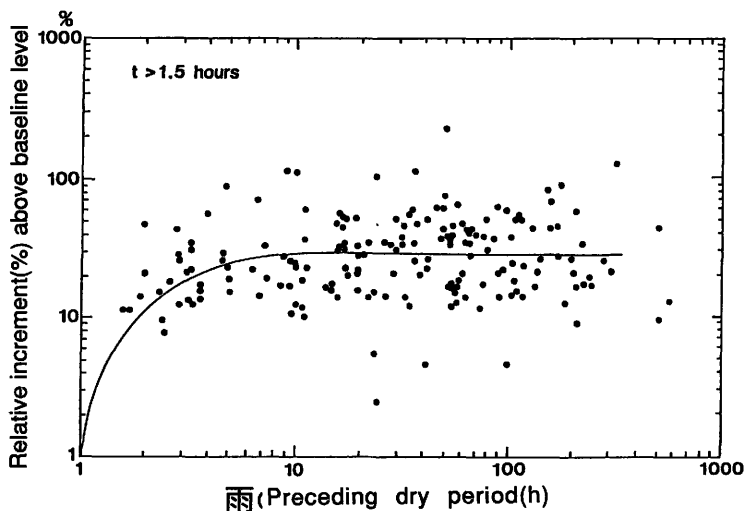


Fig.8 Relative increment of the external radiation level against the preceding dry period.

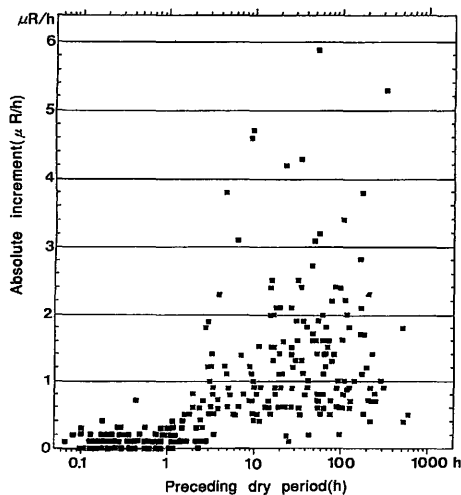


Fig.9 Absolute increment of the external radiation level against the preceding dry period.

Fig. 10 は降雨沈着を起こす雨のもう一つ前の雨の強さの影響を簡単に推定する材料である。前の雨の規模は、それが停止したと見なす降水率の數居値で代表させる。先行する降雨率は少

なくとも敷居値以上あるはずだからである。横軸はそのような敷居値(前の雨の規模)、縦軸は一定時間内に次の雨が降って放射線が上昇した頻度である。幾つかの一定時間毎のグラフが描いてある。

全体として見ると、前の雨が強いほど長い空白時間を要するが最長で1ヶ月程度である。逆に前の雨が弱ければ空白時間が短くても上昇し易い。これらは大気中放射性物質の降雨洗浄/沈着モデルで説明でき、またこの空白時間(降雨間隔)をラドン娘核種の再補給時間と考えることと矛盾しない。

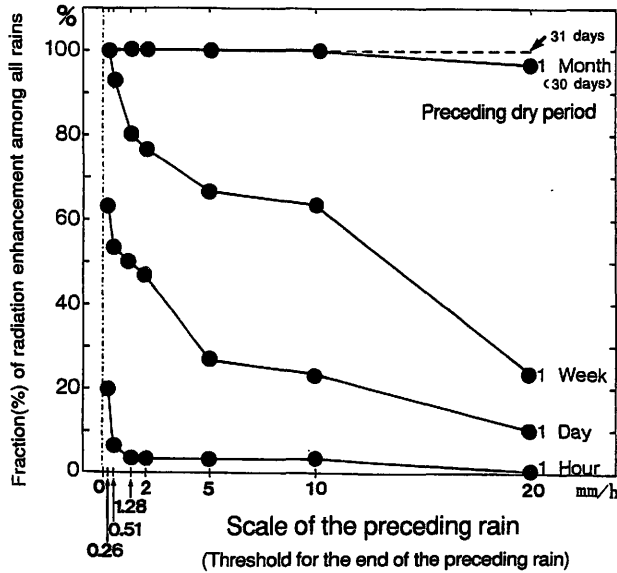


Fig.10 Dependence of radiation enhancement on the scale of the preceding rain.

5. 結論

得られた解析結果を整理する次のようになる。

- (1) 降雨に伴う空間放射線上昇は、大気中ラドン娘核種の洗浄/沈着によると考えられる。
- (2) 上記が顕著に起きるのは、降雨がある程度独立してまとまった場合である。
- (3) 降雨で減少した大気中ラドン娘核種濃度が回復するための代表的補給時間は夏で約1日、冬で約2日である。
- (4) 洗浄/沈着効果が検知し易くなる最小補給時間の目安は3時間程度である。
- (5) 強い降雨のあとは長い補給時間を要するが、最長でも1ヵ月程度である。

参考文献

- (1) Fink, R. R. and Persson, B. R. R. : Natural Radiation Environment III , CONF-780422, 357-369(1980).
- (2) Minato, S.: Natural Radiation Environment III , CONF-780422, 370-382(1980).

- (3) Hayakawa, H.: 保健物理, 22, 47-52(1987).
- (4) Fujinami, N., Esaka, S. and Minato, S.: J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters95, 2, 111-118(1985).
- (5) 西川嗣雄:九州大学工学部博士論文(1988).
- (6) 藤高和信, 阿部史朗, 阿部道子:放医研刊行物 N I R S - R -17, 89 - 95, (1989).
- (7) Fujitaka, k., Matsumoto, M., Kaiho, K. and Abe, S.: Radiation Protection Dosimetry (in press)
- (8) 藤高和信, 松本雅紀:「環境ラドン」, 下道国, 辻本忠編集, 電子科学研究所発行, 1992.

3

IV 大気でのふるまい

2 降水中のラドン娘核種濃度からの雲物理パラメータの推定

藤波直人、江阪 忍、湊 進*
京都府衛生公害研究所 * 名古屋工業技術試験所

Estimation of Cloud Parameters from Short-Lived Rn Daughter Activity of Rainwater

Naoto Fujinami, Shinobu Esaka and Susumu Minato *
Kyoto Prefectural Institute of Hygienic and Environmental Sciences
395 -Murakami-cho, Fushimi-ku, Kyoto, 612 Japan
* Government Industrial Research Institute, Nagoya
Hirate-machi, Kita-ku, Nagoya, 462 Japan

ABSTRACT- A simple model has been designed to derive information on cloud depth, liquid-water content of cloud, removal rate of cloud liquid-water, and radon daughter concentration in cloud from radon daughter concentration in precipitation observed on the ground. This model is convenient to obtain cloud information using the radon daughter in precipitation as a tracer, since values of cloud parameters estimated with it are consistent with common views on cloud physics and some observed results.

はじめに

雨雲は大気中のラドン娘核種を取り込み、降水と共にこれを地表面に輸送することによって、ラドン及びその娘核種の循環に大きな役割を果たしている。そして、雨雪水中のラドン娘核種濃度と降水強度の間には負の相関があることもよく知られている¹⁻⁴⁾。このような降水による雨雲中のラドン娘核種の除去については、既にいくつかのモデルが提案されているが^{1,3,5-7)}、本報告では雨雪水中のラドン娘核種濃度の降水強度依存性に着目し、これを説明し得る簡単なモデルを提案する。

さらに、このモデルを用いて、地上で観測した雨雪水中のラドン娘核種濃度から雲水中のラドン娘核種濃度、雲水量、雲の厚さ、雲水の除去率等に関する物理パラメータを推定する。

モデル

本モデルでは、雨雲を次のように仮定する。

- ① 雲は一様な水柱である。
- ② 雲中でラドン(Rn-222)とその娘核種は一様に分布する。
- ③ 雲中で RaB(Pb-214) 及び RaC(Bi-214) は平衡状態にある。
- ④ 簡略化のため、RaB と RaC を Ra(B + C) として単一核種のごとく取り扱い、RaA(Po-218) の代わりに直接 Ra(B + C) が供給されると考える。
- ⑤ 雲中から除去された雲水は、すべて降水として地表に輸送される。

記号を次のように定める。

H : 雲の厚さ (m)

A : 雲中の Ra(B + C) 濃度 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)

M : 雲水量 ($\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)

S : Ra(B + C) の供給率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

P : 降水強度 ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

Ψ : 雲水の除去率 (s^{-1})

D : Ra(B + C) の降下量 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

λ : Ra(B + C) の崩壊定数 (s^{-1})、RaB と RaC の平衡から出発した崩壊成長曲線において放射能が初期値の $1/e$ になるまでの時間の逆数を崩壊定数とする。これによって、崩壊定数は $\lambda = 3.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、Ra(B + C) の半減期は 38 分となる。

T : 雲底から地表への雲水の到達時間 (s)、Ikebe et al.⁵⁾ の報告によれば降水の RaC / RaB 比は、降水強度にかかわらず、およそ 1.2 となっている。ここで、平衡状態から出発した RaC と RaB の放射能比が 1.2 となるのは、計算によると 480 秒後であるため、解析に当たっては到達時間を $T = 480 \text{ s}$ とする。

したがって、雲中の Ra(B + C) 濃度は次式で表される。

$$\frac{dAH}{dt} = SH - (\lambda + \Psi) \cdot AH \quad (1)$$

ここで、平衡 ($dAH / dt = 0$) を仮定すると、式(1)より、

$$AH = \frac{SH}{\lambda + \Psi} \quad (2)$$

また、降水強度は

$$P = \Psi MH \quad (3)$$

Ra(B + C) の降下量は、

$$D = \Psi AH \exp(-\lambda T) \quad (4)$$

で表されるので、式(2)より Ra(B + C) の降下量 D と降水強度 P の間には、次の関係が成り

立つ。

$$\frac{1}{D} = \exp(\lambda T) \left[\frac{M}{S/\lambda} \cdot \frac{1}{P} + \frac{1}{SH} \right] \quad (5)$$

解 析

雨雪水中の Ra(B + C) 濃度と降水強度の観測値が利用できる文献を Table 1 に示す。この表で a) の研究者のデータは多数の降水の観測に基づいているのに対して、b) に示した Damon et al.¹⁾ や池辺ら⁸⁾ のデータは 1 降雨の間に継続的に分取した雨水試料毎に、濃度と降水強度を観測している。次に、これらのデータから得られた雨雪水中の Ra(B + C) 濃度と降水強度の関係を Fig. 1 に示す。いずれも降水強度が大きくなると、Ra(B + C) 濃度が減少する傾向が明らかである。これらの雨雪水中の Ra(B + C) 濃度と降水強度の実測データから降水量 D を求め、降水量の逆数 1/D と降水強度の逆数 1/P の関係を調べると、Fig. 2 に示すように、両者の間には概ね直線関係が認められる。したがって、最小二乗法によって式(5)の傾き $(\lambda M / S) \exp(\lambda T)$ と切片 $\exp(\lambda T) / SH$ を求めると、それぞれのデータグループ毎に MH、SH 及び $(S / \lambda) / M$ を推定することができる。さらに、得られた MH と実測された降水強度 P の平均値から式(3)により、雲水の除去率 Ψ の平均値を推定することができる。

Table 1 Cloud parameters estimated from measurements of Ra(B + C) concentration in precipitation

a) From observation of many precipitation events

Measurement site	Period of measurements	MH ($g \cdot m^{-2}$)	SH ($Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$)	$(S/\lambda)/M$ ($Bq \cdot g^{-1}$)	Ψ (s^{-1})	References
Maizuru, Japan	Dec. 1, 1977 - June 30, 1988					Fujinami et al. (1985) ⁹⁾ + Recent data
	Summer	3500	2.3	2.2	1.3×10^{-4}	
	Winter	2300	3.3	4.7	1.0×10^{-4}	
Tsuruga, Japan	Jan. 1, 1977 - Dec. 31, 1982					Hayakawa (1985) ⁴⁾
	Summer	2000	1.9	3.0	—	
	Winter	2100	3.1	4.9	—	
Fukui, Japan	Nov. 1, 1982 - Aug. 22, 1984	1300	4.3	11	5.7×10^{-4}	Nishikawa et al. (1985) ¹⁰⁾
Nagoya, Japan	Jan. 1, 1977 - Apr. 30, 1980					Minato (1983) ³⁾
	Summer	1300	1.1	2.8	—	
	Winter	1300	1.9	5.0	—	
Bombay, India	June - Sep. 1983 - 1984	11000	1.2	0.38	1.4×10^{-3}	Rangarajan and Eapen (1985) ¹¹⁾

b) From observation of one precipitation event

Measurement site	Period of measurements	MH ($\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$)	SH ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$)	(S/ λ)/M ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$)	Ψ (s^{-1})	References
Nagoya, Japan	Aug. 8, 1977 30 samples	6000	6.7	3.7	4.3×10^{-4}	Minato (1980) ²⁾
	Jan. 26, 1977 18 samples	170	0.87	17	3.9×10^{-3}	Minato (1980) ²⁾
	Cumuliform cloud					
	Sep. 26-28, 1983 36 samples	5100	1.3	0.87	5.6×10^{-4}	Ikebe et al. (1985) ³⁾
July 16-17, 1983 22 samples	6100	1.9	1.0	4.4×10^{-4}		
Stratiform cloud						
May 6, 1982 34 samples	440	0.93	7.1	1.5×10^{-3}	Ikebe et al. (1985) ³⁾	
June 16, 1983 18 samples	500	0.65	4.4	1.6×10^{-3}		
Arkansas, U.S.A.	Dec. 19-20, 1952 18 samples	1500	0.94	2.0	2.7×10^{-4}	Damon and Kuroda (1954) ¹⁾

結果と考察

得られた雲物理パラメータを Table 1 に示す。この表中の a, b 間、すなわち、多数の降水について観測を行ったか、1 降水について観測を行ったかの違いに依るパラメータ値の差は認められない。

文献によれば^{12,13)}、雲水量 M は、 $0.3 < M < 2\text{g}/\text{m}^3$ 、雨雲の厚さ H は、 $1500 < H < 10000\text{m}$ であるので、雲水量と雲の厚さの積 MH は、 $450 < MH < 20000\text{g}/\text{m}^2$ と予想される。これに対して、本モデルに依って推定された MH の値は概ねこの範囲内にある。

池辺ら⁸⁾のデータから得られた雲水量と雲の厚さの積 MH は、層状雲に対して小さく、対流雲に対して大きいという、一般的な観測例に合った結果となっている。またインド・ボンベイのデータに対しては、 MH がさらに大きく、熱帯モンスーンの激しい雨の特徴を示している。得られた雲水の除去率 Ψ は $1.0\times 10^{-4} \sim 3.9\times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ であり、Davis¹⁴⁾の観測値 $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ と矛盾しない。

降水強度 $P = 0$ の場合の雲水中の $\text{Ra}(\text{B} + \text{C})$ 濃度 $(\text{S}/\lambda)/M$ は、夏に低く、冬に高い結果となっており、地上で観測した雨雪水中の $\text{Ra}(\text{B} + \text{C})$ 濃度の季節変化に対応している。また、 $\text{Ra}(\text{B} + \text{C})$ の供給率と雲の厚さの積 SH は、夏期に比べて冬期に大きい値となっており、日本が冬期に大陸性高気圧に覆われることと関連していると考えられる。

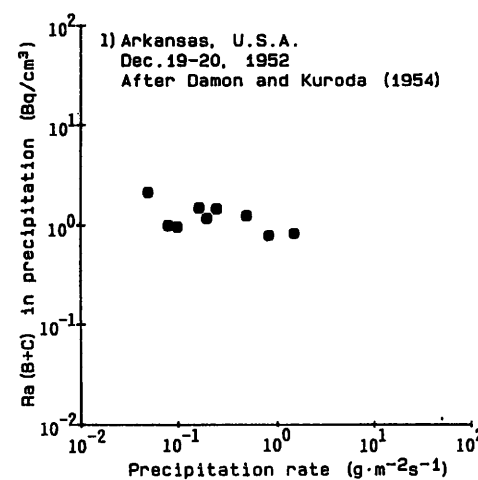
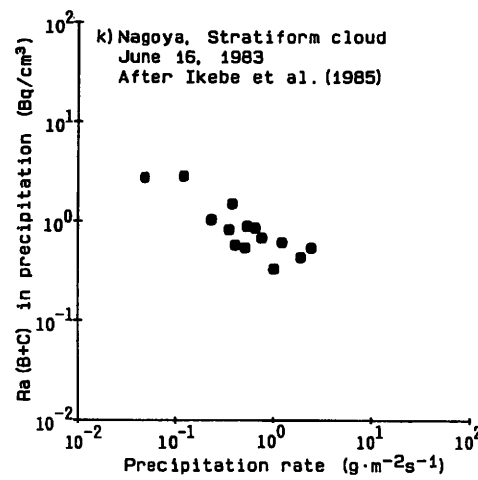
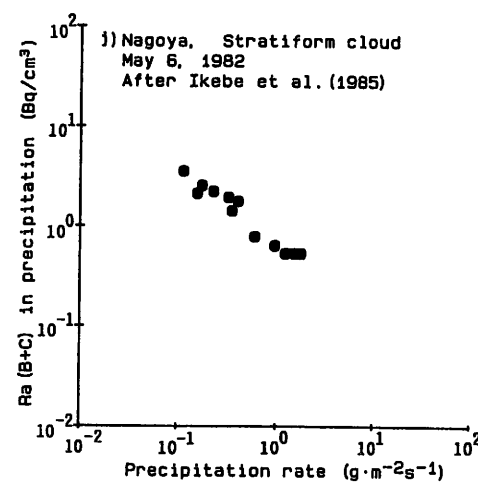
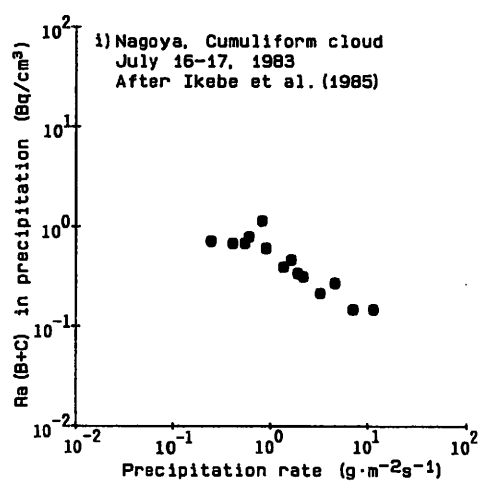
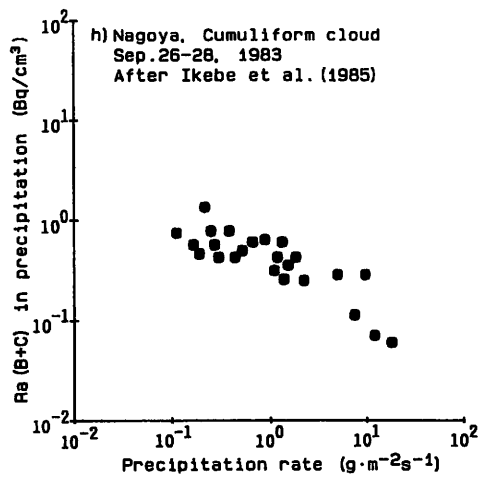
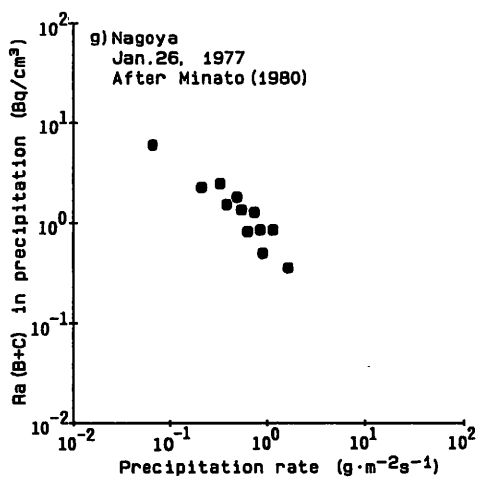
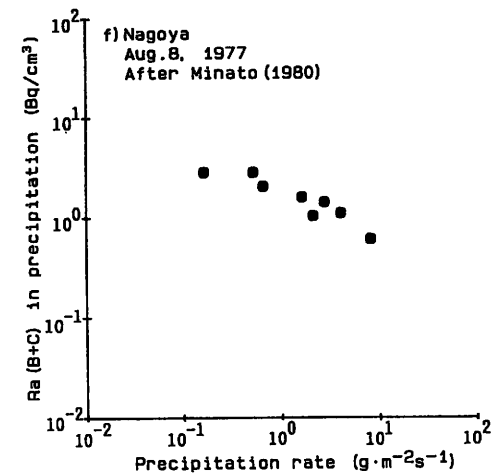
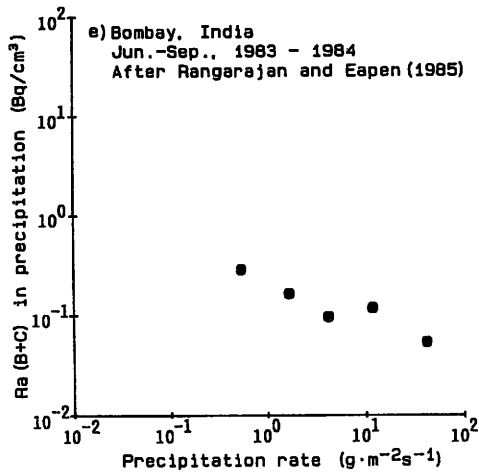
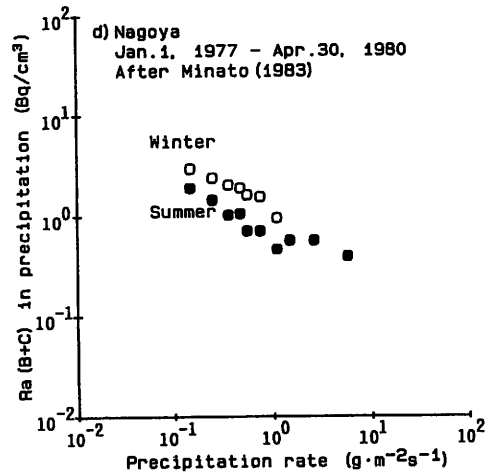
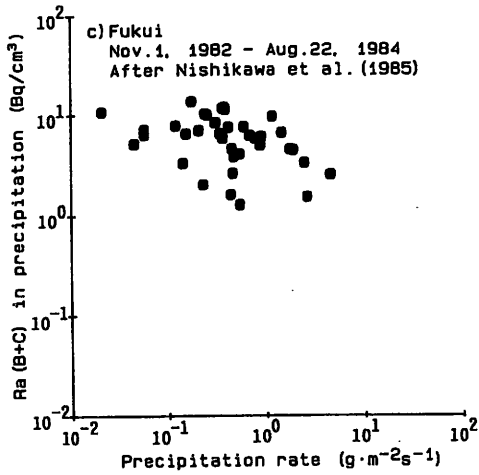
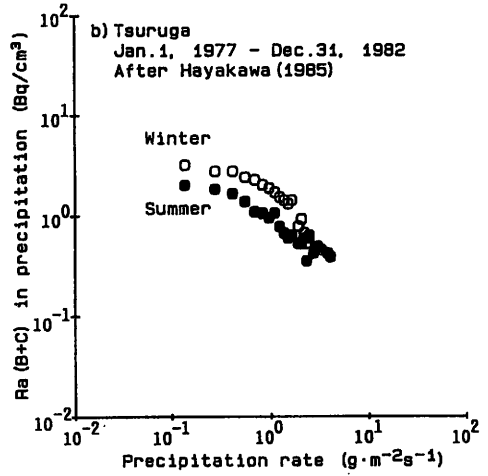
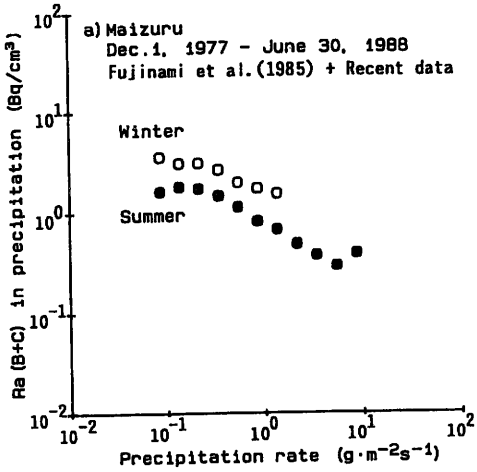


Fig. 1 Relationship between Ra(B + C) concentration in precipitation and precipitation rate observed in various parts of the world



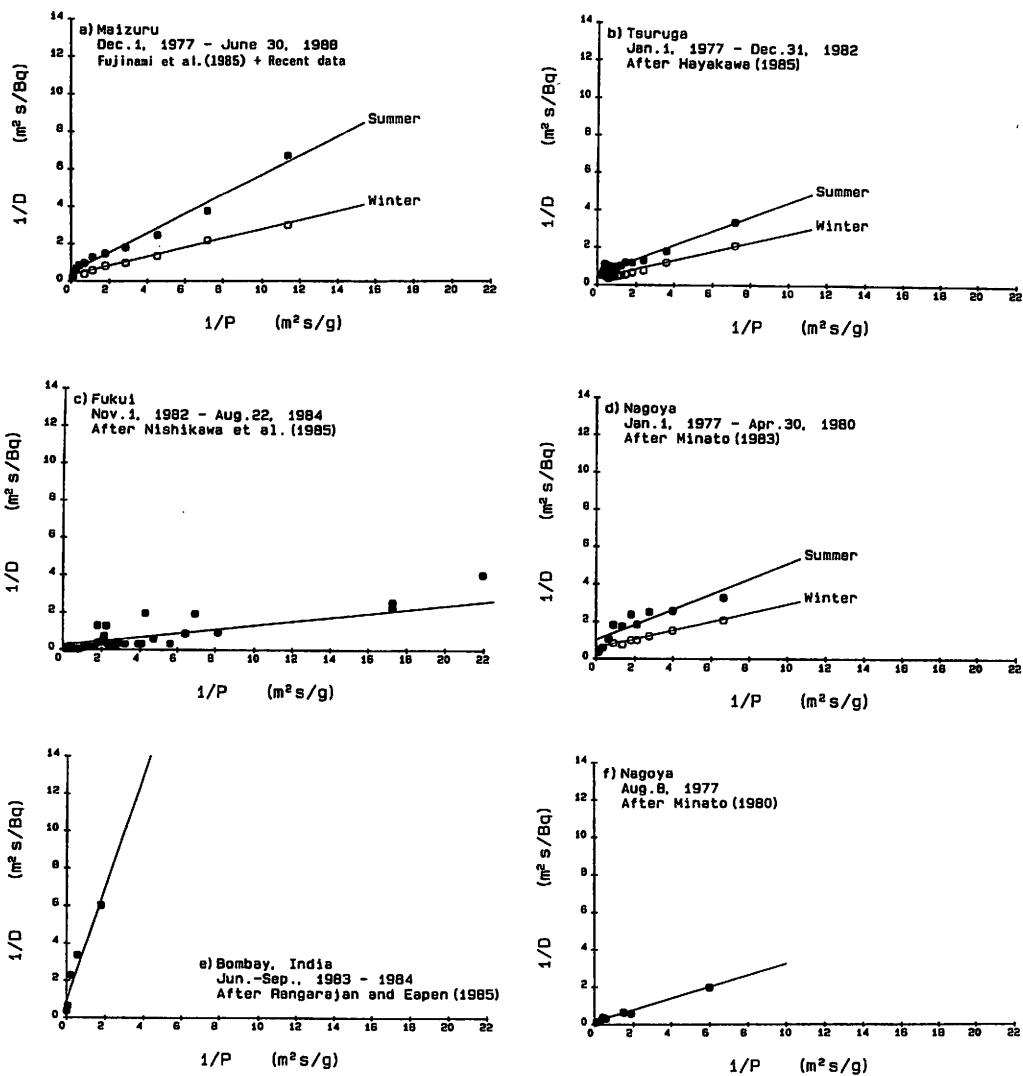


Fig. 2 Relationship between the reciprocal of precipitation rate $1/P$ and that of deposition rate $1/D$ of $Ra(B+C)$

まとめ

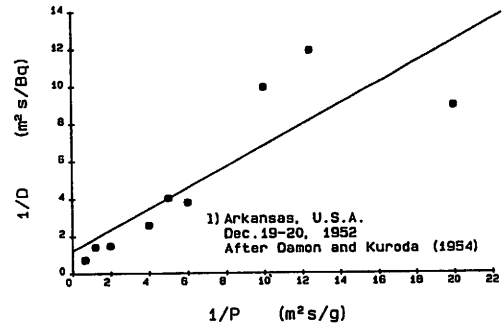
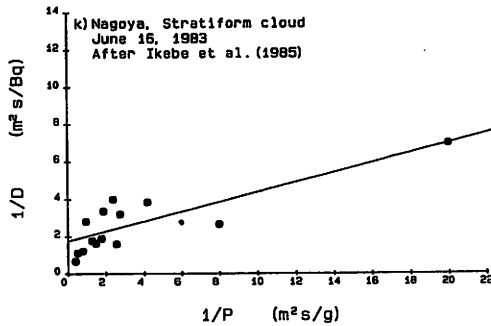
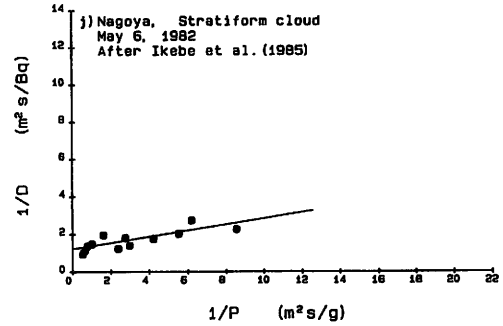
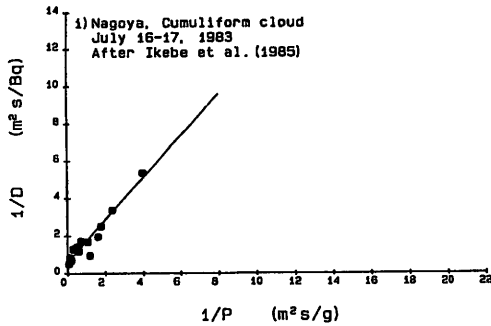
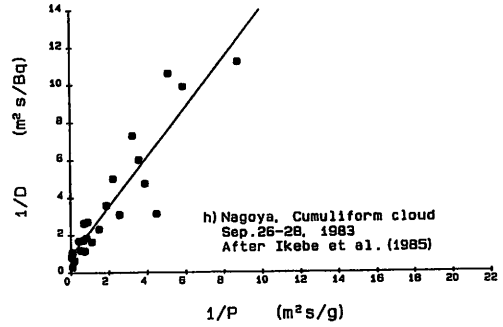
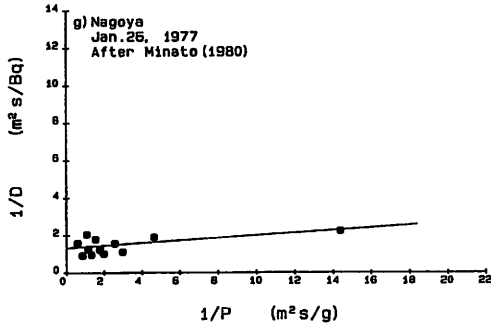
本報告で提案したモデルは、非常に簡単であるにもかかわらず、雨雪水中の $Ra(B+C)$ 濃度の降水強度依存性を説明することができた。また、このモデルによって、地上で観測した雨雪水中の $Ra(B+C)$ 濃度から雲物理パラメータの推定が可能であり、より精密なモデルに続く第一段階のモデルとして、有用なデータを提供するものと考えられる。得られた知見をまとめると次のとおりである。

①本モデルによって得られた雲物理パラメータ値は、概ね文献値の範囲内にあり、雲水量と雲の厚さの積 MH は、層状雲よりも対流雲に対して大きく、熱帯モンスーンの雨雲に対しては

更に大きい値となっている。

②雲水への Ra(B + C) の供給量及び雲水中の Ra(B + C) 濃度には、冬に高く、夏に低い季節変動が認められる。

③雨雪水中のラドン娘核種は、本モデルを用いて、その降水をもたらした雨雲に関する情報を得るためのトレーサーとして有効である。



引用 文献

- 1) Damon, P. E. and Kuroda, P. K., Trans. Amer. Geophys. Union, 35, 208-216, 1954.
- 2) Minato, S., "Natural Radiation Environment III", CONF-780422, pp. 370-382, 1980.
- 3) Minato, S., J. Radioanal. Chem., 78, 199-207, 1983.
- 4) Hayakawa, H., J. Nucl. Sci. Technol., 22, 292-300, 1985.

- 5) Ikebe, Y., Saijo, K., Iida, T., Nagai, H. and Takeda, T., Res. Lett. Atmos. Electric., 5, 17-21, 1985.
- 6) Jacobi, W., Geofisica Pura e Applicata, 50, 260-277, 1961.
- 7) Takeuchi, N. and Katase, A., J. Nucl. Sci. Technol., 19, 393-409, 1982.
- 8) 池辺幸正、西條敬二、飯田孝夫、永井英男、中島敬行、片岡敏夫、武田高男、“大気中のラドン族と環境放射能(岡部茂編)”, pp. 203-210, 日本原子力学会, 1985.
- 9) Fujinami, N., Esaka S. and Minato, S., J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 95(2), 111-118, 1985.
- 10) Nishikawa, T., Aoki, M. and Okabe, S., Health Phys., 49, 1284-1289, 1985.
- 11) Rangarajan, C. and Eapen, C. D., J. Geophys. Res., 90(D5), 8155-8159, 1985.
- 12) 高橋浩一郎、“雲を読む本”, pp. 33, 講談社, 東京, 1982.
- 13) Mason, B. J., “Clouds, rain and rain-making”, Cambridge University Press, London, 1962.
- 14) Davis, W. E., J. Geophys. Res., 77, 2159-2165, 1972.

1 環境アルファ核種の定量法と存在量について

山本政儀

金沢大学理学部附属
低レベル放射能実験施設

Analytical Methods for Naturally Occurring Alpha-Emitting Nuclides and Their Levels

Masayoshi Yamamoto

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

Tatsunokuchi-machi, Nomi-gun, Ishikawa 923-12, Japan.

ABSTRACT- Ingestion and inhalation of naturally occurring radionuclides, especially alpha-emitting nuclides, give rise to internal radiation dose. Their contribution to the radiation dose derived from various natural sources is considered to be a little compared with those from inhaled radionuclides, mainly the short-lived decay products of ^{222}Rn , and external radiation dose. However, data on human food chain are urgently to establish more realistic models for internal dose assessment for Japanese.

Recent progress in the methods of naturally occurring alpha-emitters such as ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra and ^{210}Po for diet and human tissue samples has been reviewed with some measured data. For the determination of ^{238}U and ^{232}Th , alpha-ray spectrometry after chemical separation has been applied widely. Instrumental neutron activation analysis is more sensitive, while, for ^{238}U detection, fission track method using ^{238}U fission reaction is considered to be the most sensitive. Recently, the development of inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) introduced the method for determining ^{238}U and ^{232}Th at pg / ml level. On the other hand, for the determination of ^{226}Ra and ^{210}Po in diet and human materials, alpha-ray spectrometry after chemical purification is more sensitive and accurate by adding yield tracers, ^{225}Ra and ^{209}Po (or ^{208}Po), respectively.

1. はじめに

環境中に存在する放射性核種が、経口(吸入)摂取を通じて人体に移行することについて最終的に重要となる問題は、人に対する影響・リスク評価であることはあらためて言うまでもない。そのためには、環境中に存在するどのような放射性核種がどの程度経口(吸入)摂取を通じて人体に移行し、どの程度人体に蓄積するかの量的側面と人体に蓄積した放射性核種が放出する放射線の線質特性などに関する質的側面について吟味をしなければならない。特に内部被曝線量の評価については、“より現実的な”線量算定法の確立が、ICRP30の一般公衆への適用問題、さらに個人や集団の被曝線量が加重係数を入れた実効線量当量での全身の線量として評価されるようになって以来、各種放射線源からの線源別の実効線量当量の国民全体に対する評価の必要性とも関連して強く望まれている。

現在、種々の放射線源の中で、自然放射線源が人の受ける線量に最も大きく寄与している。1988年の国連科学委員会報告¹⁾によれば、自然放射線源から受ける線量は2.4mSvで、その内ラドン、トロン等の分が約1.3mSv、宇宙線やガンマ線による分が約1 mSvで、U、ThおよびRa同位体や²¹⁰Po(²¹⁰Pb)などの自然 α 線放射体による内部被曝の分はほんのわずかである。しかしながら、上記した食品-人体の体系を確立する意味で、本邦でデータの少ない自然 α 線放射体の食品および人体についてのレベルをできるだけ正確に把握することは極めて重要であると考えられる。

以上のような観点に立って、ここでは、食品、主として日常食および人体試料中の自然 α 線放射体、²³⁸U、²³²Th、²²⁶Raおよび²¹⁰Poの定量法の現状を述べながら、測定成果の若干を紹介する。

2. 自然 α 線放射体

自然には²³⁸U、²³⁵U、²³²Thを親核種とする系列の放射性核種が広く分布・存在している。内部被曝線量評価においては、²³⁸U系列と²³²Th系列は先行核の放射能が壊変生成物の放射能の大半をコントロールするサブ系列に区分される¹⁾。²³⁸U系列は、(1)²³⁸U(α) \rightarrow ²³⁴U(α)、(2)²³⁰Th(α)、(3)²²⁶Ra(α)、(4)²²²Rn(α) \rightarrow ²¹⁴Po(α)そして(5)²¹⁰Pb(β^-) \rightarrow ²¹⁰Po(α)の5つに分けられる。一方²³²Th系列は、(1)²³²Th(α)、(2)²²⁸Ra(β^-) \rightarrow ²²⁸Th(α) \rightarrow ²²⁴Ra(α)、(3)²²⁰Rn(α) \rightarrow ²⁰⁸Tl(β^-)の3つのサブ系列に分けられる。²¹⁰Pbと²²⁸Raを除けば、サブ系列の最初の核種はすべて α 線放射体である。²³⁵U系列は線量的には重要でないとしている。

3. 摂取量と人体組織中の一般的な放射能レベル

分析・測定法を述べるさい、まず問題となるのは α 線放射体の食品や人体組織中の濃度レベルである。通常地域に住む人々の α 線放射体の年間食物摂取量と人体組織中の濃度がUNSCEAR1988報告書¹⁾にそれぞれ表1、表2に示すように報告されている。摂取量では、

^{210}Po (^{210}Pb)が 110mBq/d 、ついで ^{226}Ra が 41mBq/d 、 ^{238}U が 14mBq/d 、そして ^{232}Th と ^{230}Th が 5mBq/d となっている。人体組織については、組織ごとに濃度が大きく変動しており、 ^{210}Po (^{210}Pb)で最も高く、 ^{226}Ra 、 ^{238}U 、 ^{232}Th ($\approx^{230}\text{Th}$)の順でレベルが低くなっている。このようなレベルを念頭において、以下にそのレベルを測定できる分析・測定法を若干の測定例を混えながら述べてみる。

表1 普通の地域におけるU-238およびTh-232とそれらの壊変生成物の摂取量[1]
Table 1 Intakes of U-238, Th-232 and their decay products in normal areas[1]

線源	吸入摂取		経口摂取	
	(Bq/y)	(mBq/d)	(Bq/y)	(mBq/d)
U-238系列:				
U-238	0.01	0.03	5	14
Th-230	0.01	0.03	2	5
Ra-226	0.01	0.03	15	41
(Rn-222)	200000		300	
Pb-210	4	11	40	110
Po-210	0.3	0.82	40	110
Th系列:				
Th-232	0.01	0.03	2	5
Ra-228	0.01	0.03	15	41
(Rn-220)	100000		—	

表2 人体組織中のU-238およびTh-232とそれらの壊変生成物の平均放射能濃度(mBq/kg生重量)[1]
Table 2 Average specific activities in organs and tissues of U-238, Th-232 and their decay products(mBq/kg fresh weight)[1]

線源	生殖腺	乳房	肺	皮膚骨	海綿 ^{a)} 質骨	赤色 ^{a)} 骨髄	甲状腺	腎臓	肝臓	その他の 組織
U-238系列										
U-238	7	2	15	50	50	2	2	5	3	2
Th-230	0.3	0.3	20	20	70	0.3	0.3	10	7	0.3
Ra-226	2.7	2.7	2.7	170	170	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
(Rn-222)			100 ^{b)}							
Pb-210	200	200	200	3000	3000	140	200	200	200	200
Po-210	200	200	100	2400	2400	100	200	200	200	200
Th-232系列										
Th-232	0.15	0.15	20	6	24	0.15	0.15	3	2	0.15
Ra-228	0.5	0.5	15	50	50	0.5	0.5	10	5	0.5
Th-228										
(Rn-220)			40 ^{c)}							

a):乾燥骨(骨格5kgの乾燥骨は2.7kgの灰を生じる)。b):ラドンガス。c):トリロンガス。

4. ウラン

ウランにおいては、 ^{238}U 、 ^{235}U 、 ^{234}U の重要な同位体がある。被曝線量評価においては、ウランは ^{238}U からなり、 ^{234}Th 、 $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 、 ^{234}U とは放射平衡にあり、ウラン1gには4つの放射性核種がそれぞれ12kBqを含むと仮定される。実際には、 ^{234}U の放射能レベルは ^{238}U のそれよりも1~3倍高く非平衡状態になっていることが多い。

^{238}U の 1 日当たりの食物摂取量は普通の自然放射能レベルの地域で約 14mBq である。地域によって多少異なるが 12 ~ 30mBq / d の値が広く報告されている²⁾。1 日分の日常食を灰化処理してその全量を分析すると約 1 μg 、半分を使用するとすれば 0.5 μg となり少なくとも 0.1 μg 程度までの定量可能な方法が望まれる。一方人体組織については、表 2 にみるように 2 ~ 50mBq / kg であり、生重量で 100g 前後使用すれば 0.02 μg ~ 0.4 μg とさらに低いレベルの測定が要求される。

表 3 ウランの分析・測定法の比較
Table 3 Comparison of methods for U analysis

分析・測定法	おおよその検出限界
重量分析法	数10mg
容量分析法	数mg
吸光分光分析法(アルセナゾⅢ)	数 μg
○固体ケイ光光度法	数100~数10ng
非破壊 $\gamma(\text{X})$ 線スペクトロメトリー(Th-234測定)	数 μg ~数100ng
○ α 線スペクトロメトリー(U同位体比測定可能)	数100~数10ng
○機器中性子放射化分析法(Np-239測定)	数10ng
○フィッシュントラック法(U-235測定)	数ng
○質量分析法(U同位体比測定可能)	< 数ng

U の分析法についてはその歴史は古く、種々の化学分離・定量法が以前から開発されている³⁾。分析方法としては、重量分析法、容量分析法、吸光分光分析法、固体ケイ光光度法、非破壊 $\gamma(\text{X})$ 線スペクトロメトリー法、化学分離・ α 線スペクトロメトリー法、放射化分析法、フィッシュントラック法、質量分析法がある。表 3 にそれぞれの分析法の特徴とおおよその検出限界を比較して示した。我が国においては、海水、土壌、海産物、農作物、大気浮遊塵などの環境試料を対象とした“ウラン分析法”がすでに作成されており⁴⁾、その標準分析法には、0.1 ~ 数 μg までの定量可能な吸光分光分析法、化学分離・ α 線スペクトロメトリー法、固体ケイ光光度法が採用されている。日常食のウランを測定する場合には、表 3 に示す種々の分析法の検出限界や簡便さを考えると、試料や分析に供する試料量によっても多少異なるが、0.1 μg 程度のウランが測定可能な吸光分光分析法、化学分離・ α 線スペクトロメトリー法、固体ケイ光光度法が最適であろう。化学分離・ α 線スペクトロメトリー法の実例として、日常食の灰化試料 5 g を用いてウランを測定した α 線スペクトル例と測定結果を図 1 と表 4 に示す⁵⁾。ここでは ^{232}U ($T_{1/2} = 72\text{y}$, $E_{\alpha} = 5.32\text{MeV}$) を化学分離の際の収率補正用のトレーサーとして一定量添加し、 $\text{HNO}_3 - \text{H}_2\text{O}_2 - \text{HClO}_4$ で試料を完全に分解して、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈後、沈殿を 10M HCl 溶液に調整し、大部分の Fe をまず、イソプロピルエーテルで除去する。その後、陰イオン交換カラムで U を捕集し、少量の 8 M HNO_3 で残っている Fe をカラムから除去、次いで 0.95M HCl で U を溶解する。以上のようにして精製した U を硫酸アン

モニウム系電解液に溶解させ、ステンレス板上に電着する。数百カウントの計数を得るためには2~4日の測定が必要であるが、 ^{234}U の情報も同時に得ることが出来る。 ^{234}U の定量については、他の諸方法よりも α 線スペクトロメトリーが不可欠であり、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の検討より、地球化学的な反跳化学、さらにウランの起源など興味ある知見が得られる。

表4 日常食中のU-238(U-234)とRa-226濃度(α 線スペクトロメトリー)[5]
Table 4 Concentrations of U-238(U-234) and Ra-226 in daily diet samples (by α -ray spectrometry)[5]

試料	U-238 (mBq/g ash)	U-234/U-238 Activity Ratio	Ra-226 (mBq/g ash)
全日本試料(D P S **:1981-1982)			
北日本	0.49±0.04	0.96±0.08	1.23±0.07
中部	0.87±0.06	1.32±0.07	1.12±0.10
関東	0.56±0.04	1.14±0.08	1.30±0.09
関西	0.47±0.04	1.24±0.10	1.58±0.13
中国・四国	0.48±0.03	1.08±0.07	1.77±0.13
九州	0.50±0.04	1.01±0.05	2.22±0.15
水戸試料(D P S **:1984-1989)			
1 B	0.53±0.04	1.18±0.06	0.97±0.08
2 A	0.46±0.04	1.09±0.08	1.10±0.08
3 A	0.84±0.05	1.13±0.06	1.45±0.10
4 A	0.10±0.01	1.37±0.09	0.60±0.05
5 A	0.35±0.03	1.02±0.06	1.21±0.10
6 A	0.30±0.02	1.11±0.05	1.17±0.09
7 A	0.22±0.02	1.16±0.06	1.09±0.08
食品群別試料(M B S ***:水戸,1989 3月)			
1群	0.06±0.01	0.95±0.18	1.53±0.12
2群	0.61±0.06	1.18±0.11	1.34±0.11
3群	3.84±0.06	1.11±0.06	2.26±0.16
4群	n.d.		0.89±0.06
ワカメ	21.2±0.8	1.14±0.04	12.3±0.8
コンブ	0.60±0.04	1.18±0.07	1.94±0.14

*約5gの灰化試料を用いてU,Th,Raの逐次分析を実施(Th:検出不可能)。

陰膳方式、*マーケット・バスケット方式

一方、人体試料のUについては、日常食よりさらに濃度が低く、組織ごとにその濃度も10倍程度異なる。それ故、検出感度に優れている中性子放射化分析あるいはフィッシュントラック法が一般に多用されている。五十嵐等が人体組織の灰化試料10mgを用いてフィッシュントラック法で測定した結果を表5に示す⁶⁾。検出材として雲母を用い、熱中性子照射($1.5 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ で6時間、または $8 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ で40分間)後1~3週間冷却して、雲母につくられた核分裂片のトラックをHFによるエッチングで拡大し、光学顕微鏡で計数し、標準との比較により ^{238}U を定量している。このようなフィッシュントラック法は、原子炉の使用や計数に労力を要する欠点はあるものの、高感度な方法でその適用が拡大されつつある。

表5 人体組織中のウラン濃度(フィッショントラック法)[6]

Table 5 Uranium concentrations in human tissues (by fission track method)[6]

(U-238 : 1 μ g = 0.74 dpm = 12 mBq)

Tissue	n	Arith.Mean(σ) (mBq/kg wet)	Geo.Mean(σ g) (mBq/kg wet)
Lung	22	16.7(12.7)	13.3(24.2)
Liver	19	2.6(1.2)	2.3(19.6)
Kidney	22	1.8(2.7)	4.1(22.4)
Spleen	15	2.5(1.2)	2.2(23.1)
Muscle	22	7.0(5.6)	5.8(23.3)
Heart	5	5.4(3.8)	3.6(46.3)
Cerebrum	2	1.9(0.1)	1.9(13.6)
Bone*	20	8.5(3.6)	7.7(19.8)

*skull,rib and femur

表6 長寿命放射性核種について評価した ICP-MS*での検出限界(仮定, BG : 5 cps, 単位質量あたりの測定時間 : 90 s, 溶液導入量 : 0.5ml/min)[8]

Table 6 Estimated detection limits of ICP-MS for long-lived radionuclides[8]

Nuclide	Half life/year	Decay const./s ⁻¹	Detection limit	
			(Bq/ml)	(pg/ml)
Tc-99	2.1 × 10 ⁵	1.1 × 10 ⁻¹³	1.0 × 10 ⁻⁴	0.16
Th-232	1.4 × 10 ¹⁰	1.6 × 10 ⁻¹⁸	1.5 × 10 ⁻⁹	0.37
Np-237	2.1 × 10 ⁶	1.1 × 10 ⁻¹⁴	1.0 × 10 ⁻⁵	0.38
U-238	4.5 × 10 ⁹	4.9 × 10 ⁻¹⁸	4.7 × 10 ⁻⁹	0.38
Pu-239	2.4 × 10 ⁴	9.2 × 10 ⁻¹³	8.9 × 10 ⁻⁴	0.38

* 四重極型ICP-MS(VG/Elemental Plasma Quad PQ2 Plus)

以上の諸方法のほかに、最近急速にその利用が進んでいる高感度多元素分析が可能な誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)がある。五十嵐、白石、河村等によって、すでに²³⁸Uや²³²Thをはじめとする環境中の長寿命放射性核種の定量に実用化されており、表6に示すように極めて低いレベルまで比較的容易にかつ迅速に測定できる^{7,8)}。ICP-MSによるこのような低いレベルの測定ではスペクトル干渉やマトリック効果などの干渉があるので⁹⁾、内部標準(たとえばBiやTl)の添加あるいは同位体希釈法の適用、また化学分離をする必要がある場合など種々の注意が必要であるが、新しい高感度分析法として大きな威力を発揮している。

5. トリウム

トリウムには、トリウム系列の始めの²³²Thと同じ系列のサブグループ²²⁸Ra → ²²⁴Ra中にある²²⁸Th、さらにウラン系列の²³⁰Th等の同位体がある。食品や人体組織中の²³²Thと²³⁰Thレベルは、土壌中の²³²Thと²³⁸U(²³⁰Th)濃度がほぼ等しく、また物理的半減期も長いので非常に似かよっている。²²⁸Thについては、そのサブ系列の始めの²²⁸Raが重視されて

いる。それ故トリウム同位体の中では少なくとも ^{232}Th が測定できる方法が望まれる。食品や人体試料の ^{232}Th 濃度は、表1、2からわかるように ^{238}U よりも数倍低く、人体組織では ^{238}U に比べて十分の一以下である。

トリウムの分析法は、ウランの分析法と同様に歴史は古く、数十mg以上を対象とする重量分析法、さらに鉱石の分析などかなりの濃度まで適用できる容量分析法、吸光分光分析法があるが、日常食や人体試料のような低レベルの ^{232}Th を測定する場合には化学分離・ α 線スペクトロメトリー法や中性子放射化分析法がよく用いられている。化学分離・ α 線スペクトロメトリーで ^{232}Th を測定する場合、化学収率70%で、測定効率30%のSi(Li)検出器を用いて4日間の測定で50カウント程度の計数を得ようとするケースを考えると、用いる試料には少なくとも0.7mBq(0.04dpm)の ^{232}Th が必要になる。実際に日常食の灰化試料5g前後を用いて、 ^{232}U と ^{229}Th トレーサーを添加して逐次的にUとThを陰イオン交換カラムを用いて分離・精製し、ステンレス板上に電着した後、 α 線スペクトロメトリーを試みた結果、 ^{238}U (^{234}U)については前述したように比較的容易に検出できたが、 ^{232}Th については、4日間近い測定でも不可能であった(図1、表4)。それ故、化学分離・ α 線スペクトロメトリー

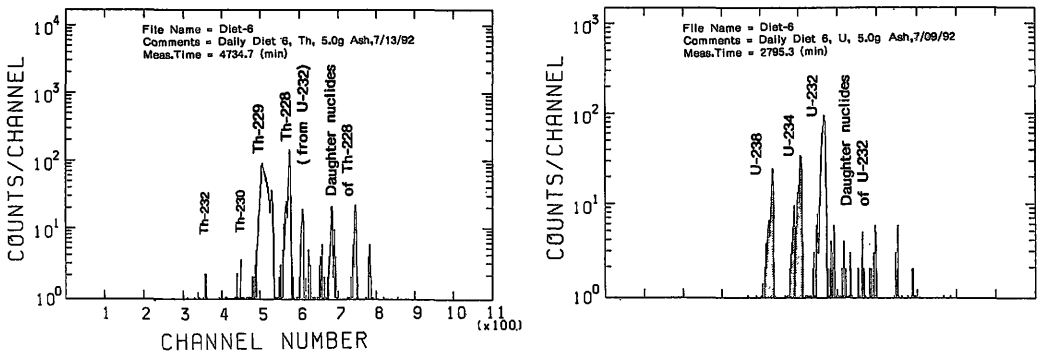
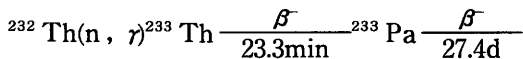


図1 α 線スペクトロメトリーによる日常食中のUとTh測定のスเปクトル例[5]

Fig.1 Example of α -ray spectra for the determination of U and Th in daily diet sample[5]

で ^{232}Th を測定する場合には相当量の試料を使用しないかぎり精度のよい測定は無理であるように思われる。人体試料中の ^{232}Th と ^{230}Th を α 線スペクトロメトリーで測定した五十嵐等の測定結果を表7に示す⁶⁾。いずれの試料も生重量で数100g以上用いており、測定時間は3日以上であるが、測定誤差は大きい。 ^{232}Th の分析法として最もよく用いられているのは放射化分析であり、以下の反応で生成する ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27.4\text{d}$ $E_{\gamma} = 300\text{keV}(6.3\%)$ 、 $312\text{keV}(34\%)$)を測定する。



インドのSuntaらは、熱中性照射・5日程度冷却した後、生成した ^{233}Pa を最初に MnO_2 に共沈、次いで BaSO_4 に共沈させてGe(Li)検出器で測定し、これまでに数多くの環境試料や

表7 人体組織中のTh-232とTh-230濃度(α 線スペクトロメトリー)[6]

Table 7 Concentrations of Th-232 and Th-230 in human tissues (by α -ray spectrometry)[6]

(Th-232 : $1 \mu\text{g} = 0.24 \text{ dpm} = 4 \text{ mBq}$)

Sample	Th-232 (mBq/kg wet)	Th-230 (mBq/kg wet)
Lung 443(53,F)	8.88 \pm 1.48	4.81 \pm 1.11
1217(87,F)	9.99 \pm 2.22	9.25 \pm 2.22
Liver 443(53,F)	0.37 \pm 0.15	0.78 \pm 0.26
1217(87,F)	0.74 \pm 0.33	1.07 \pm 0.48
Spleen Composite	1.04 \pm 0.33	0.63 \pm 0.33
Kidney Composite	0.96 \pm 0.19	0.78 \pm 0.19
Muscle Composite	1.11 \pm 0.26	1.33 \pm 0.33

分析試料 : >数100 g wet.

人体試料中の ^{232}Th データを報告している^{10,11)}。

最近は、 ^{238}U と同様に、ICP - MS による ^{232}Th 測定も試みられ^{7,8)}、表6に示すように pg/ml オーダーまでの極めて低いレベルでの測定が可能になっている。

6. ラジウム

自然のバックグラウンドによる人間の放射線被曝の観点からは、ウラン系列の ^{226}Ra とトリウム系列の ^{228}Th や ^{224}Ra の α 線放射体を形成するサブ系列の先行核 ^{228}Ra のみが重要である。表2に示した摂取量で見ると、 ^{226}Ra と ^{228}Ra は等しく 41mBq/d で、 ^{238}U や ^{232}Th 摂取量の約3~8倍多い。人体組織については、Raは体内に取り込まれるとCaに似た代謝をするため骨に沈着し、そのレベルは他の組織と比べると約60倍多い。 ^{228}Ra も骨で50mBq/kg(生重量)とやや高いが、他の組織は ^{232}Th とほぼ似たレベルにある。

環境試料中の ^{226}Ra の分析法については、すでに諸成果を取り入れた“ラジウム分析法”が作成されている¹²⁾。ここでは土壌試料など比較的濃度が高く多量の試料が入手できる場合は非破壊 γ 線スペクトロメトリーによる測定を、レベルが低い場合には、 BaSO_4 共沈、あるいは陽イオン交換で予備濃縮捕集、精製して(1)2 π ガスフロー比例計数管またはZnSシンチレーションカウンターによる α 線測定、(2)液体シンチレーションカウンターによる測定、(3)電離箱、ZnSシンチレーションチャンバーによる測定(ラドンエマネーション法)を採用している。一方、ラジウム同位体ならびにその濃度を同時に求めることができる高感度の α 線スペクトロメトリーについては α 線の吸収の少ない均一線源の調整ならびに収率補正用トレーサーの入手の困難性もあって十分に開発されていない。山本等は食品や人体組織中の微量 ^{226}Ra を正確に精度よく測定する方法として、収率補正用トレーサーとして ^{225}Ra を用いて0.5M HNO_3 -90%メタノール混合溶液から陰イオン交換法¹³⁾または ^{226}Ra を含まないBa担体を用いて BaSO_4 共沈法でRaを濃縮し⁵⁾、その後BaとRaの分離に最適なCyDTA-陽イ

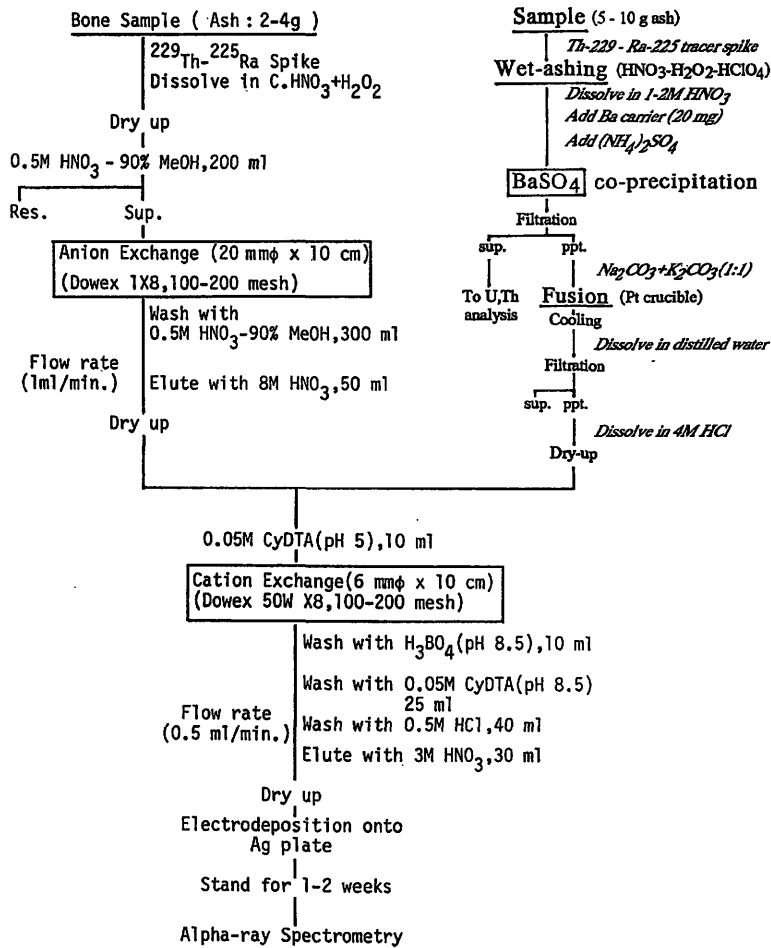


図2 日常食および人骨中の微量Ra-226測定のアナリスキーム[5,14]

Fig.2 Analytical flowsheet for the determination of low-level Ra-226 in daily diet and human bone samples by α -ray spectrometry[5,14]

オン交換樹脂カラム法で Ra を精製、電着後 α 線スペクトロメトリーで測定する方法を報告している¹⁴⁾。図2にその分析法を示す^{5,14)}。トレーサーとして用いる²²⁵Raは α 線を放出しないが測定線源調整後、比較的短時間(1~2週間)で α 線を放出する娘核種、²²⁵Ac、²²¹Fr、²¹⁷Atが成長するので、他の α 線の妨害を受けない²¹⁷Atのピークを用いて容易に²²⁶Raの化学収率を求めることができる(図3)。図4に2~4gの骨灰化試料を用いて分析した際に得られる代表的なRaの α 線スペクトルを示す¹³⁾。

この方法で得られた測定データ例として図5に主に東京で1981年から1987年にかけて採取した人骨試料の²²⁶Ra分析(灰化試料2~4gを使用)の結果¹⁵⁾を、また表4の第4欄に日常食の灰化試料5g前後を用いて分析した結果を示しておく¹⁶⁾。検出限界は5000分測定で約0.2mBq/試料であり、実試料に十分適用できる。一方、²²⁸Raについては、この核種が壊変に伴って最大エネルギー55keV(6.7keVの γ 線を放出するがその放出率は極めて小さい)の β

線しか放出しないため、通常の分析では、 ^{228}Ra の娘核種 ^{228}Ac をミルクングして測定される
 場合が多い。

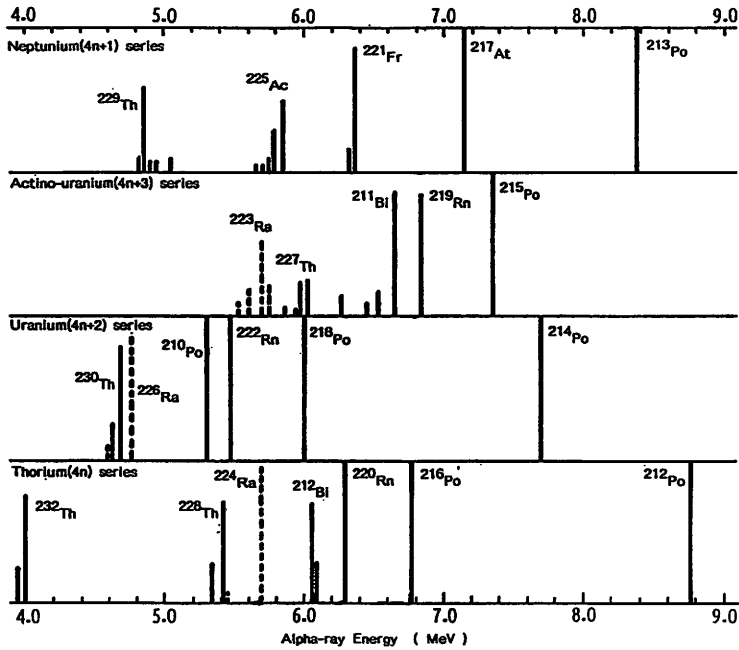


図3 ラジウム同位体とそれらの壊変生成物の α 線エネルギー [14]
 Fig.3 Alpha-ray energies of radium isotopes and their decay products [14]

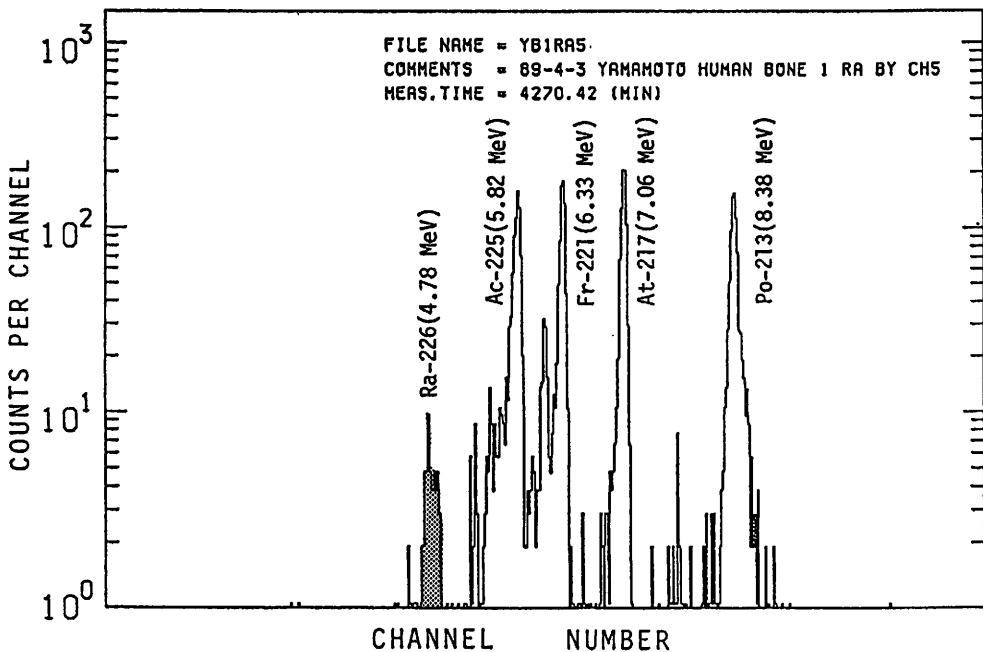


図4 α 線スペクトロメトリーによる人骨中の Ra-226 測定のス펙トル例 [13]
 Fig.4 Example of a α -ray spectrum for the determination of low-level Ra-226 in human bone ash sample [13]

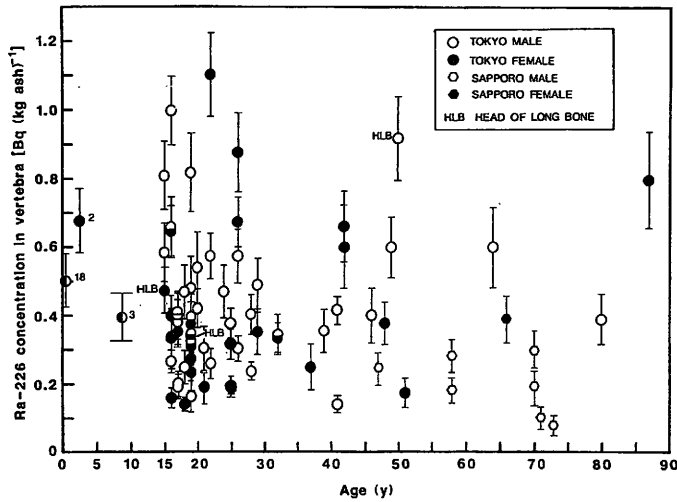


図5 人骨中のRa-226濃度(α 線スペクトロメトリー) [15]

Fig.5 Concentrations of Ra-226 in human bone at various ages (by α -ray spectrometry) [15]

7. ポロニウム

^{210}Po はウラン (^{238}U) 系列に属する半減期 138.38 日の α 線放射体である。その直接の親核種は ^{210}Bi であるが、半減期は 5.01 日と短いので半減期 (22.3y) の長い ^{210}Pb を親核種と見なすことができる。 ^{210}Pb のサブ系列からの吸収線量は主として ^{210}Po の高エネルギーアルファ粒子によるものであり、 ^{210}Pb と ^{210}Bi からのベータ線寄与は全体の約 10% にすぎない。環境中には ^{210}Pb と共に、岩石、土壌、水、大気中に揮散したラドンの娘核種として存在する。食物の摂取は ^{210}Pb と ^{210}Po が人体に入る普通最も重要な経路である。 ^{210}Pb と ^{210}Po の濃度は肉や牛乳では低く、穀類と野菜で中間で、海産物は高い。我が国では、海産物の消費が多いために、欧米諸国と比較して ^{210}Pb 、 ^{210}Po の摂取量が高いことが指摘されているが、測定データは少ない^{17,18)}。 ^{210}Po は半減期が短く、親核種の ^{210}Pb からの成長の寄与があるために、試料採集直後に測定する場合を除いて ^{210}Pb の測定が不可欠である。

^{210}Po の測定は、ポロニウムが外部起電力を利用しなくても簡単に銀板上に自発析出するので、普通試料の溶解後、希 HCl 溶液に調整し、Ag 板上にポロニウムを析出させ、 α 線スペクトロメトリーで行われる。収率用のトレーサーには α 線放射体の ^{208}Po ($T_{1/2} = 2.9\text{y}$ 、 $E\alpha = 5.12\text{MeV}$) または ^{209}Po ($T_{1/2} = 102.5\text{y}$ 、 $E\alpha = 4.88\text{MeV}$) が一般的である。 ^{209}Po と目的とする ^{210}Po ($E\alpha = 5.31\text{MeV}$) の α 線エネルギーが接近しているため、どちらかと言えば、 ^{209}Po の方が半減期的に見ても有利である (図 6)¹⁹⁾。Po は試料の通常の灰化処理 (約 450°C、24h) 中に、表 8 に示すように揮発するので⁵⁾、分析するには生試料または凍結乾燥試料を用いることが不可欠である。一方 Pb については、Po ほど明らかではないが、数% 飛散する恐れもあるので、できれば Po 分析と同様に処理した試料を用いる方が安全である。図 7 に、山本等²⁰⁾ がこれまでに日常食や人体組織中の ^{210}Pb と ^{210}Po の測定に適用してきた分析スキームを示

す。β線放射体の²¹⁰Pbは濃度が低く、非破壊γ線スペクトロメトリーでは十分な測定精度が得られないため、残存しているPoを陰イオン交換法により完全に除去した後、数ヶ月放置して²¹⁰Pbから成長した²¹⁰Poを測定することにより間接的に定量している。²¹⁰Pbについては、娘核種の²¹⁰Biを用いて測定することもよく行われているが、²¹⁰Pbのレベルが低い場合

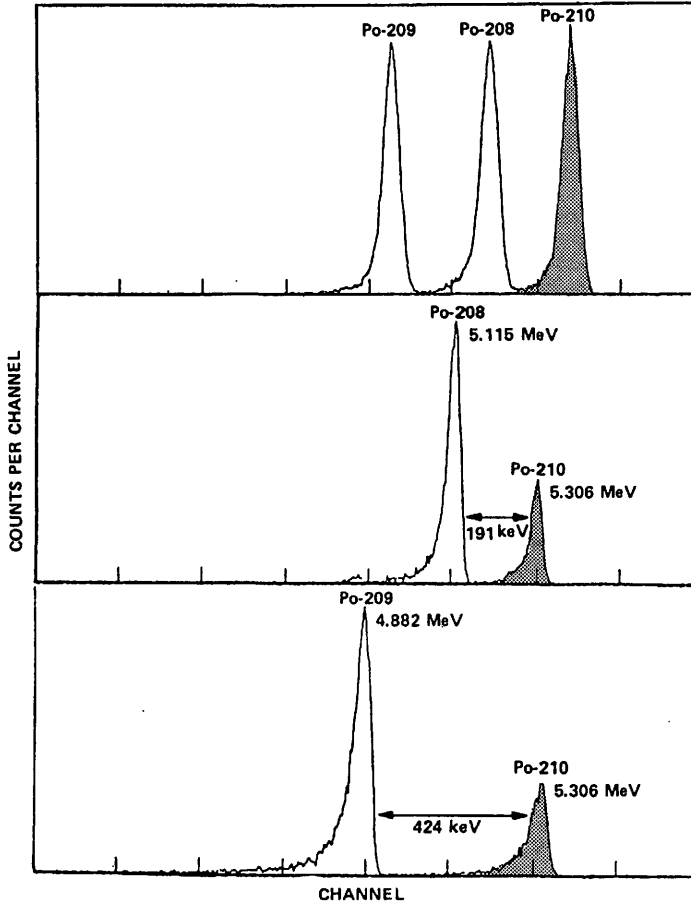


図6 ポロニウム同位体のα線スペクトルの比較[19]
Fig.6 Alpha-ray spectra of the polonium isotopes [19]

には、²¹⁰Poからの間接定量の方がα線スペクトロメトリーのバックグラウンドがほとんどないこと、さらに核種が明確に同定できることなどから有利である。

試料採取日での²¹⁰Po濃度(A₀^{Po})を正しく評価するためには下記式に示すように試料保存中に²¹⁰Pb(A₀^{Pb})から生成する²¹⁰Poの寄与、さらに分析日までの²¹⁰Poの減衰などを考慮することが必要である。

$$A_0^{Po} = A_1^{Pb} / f_1$$

$$A_0^{Po} = (A_1^{Pb} - f_3 \cdot A_0^{Pb}) / f_2$$

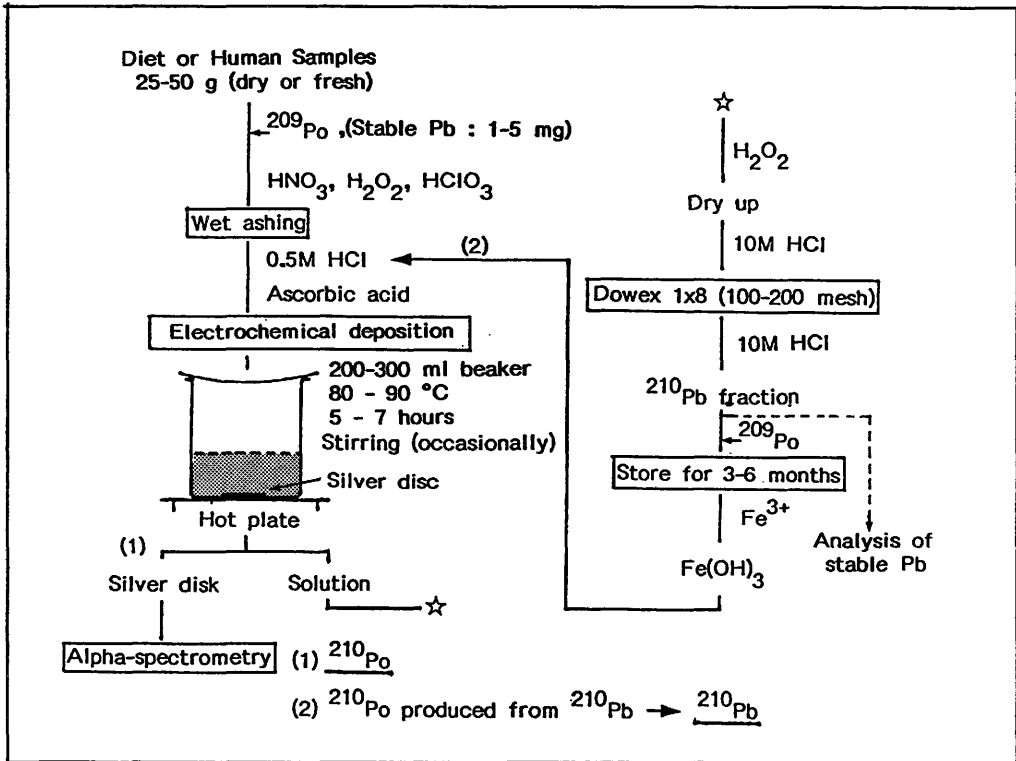


図7 食品および人体組織中のPb-210とPo-210の分析・測定スキーム[20]

Fig.7 Analytical flowsheet for the determination of Pb-210 and Po-210 in food and human tissue samples [20]

A_1^F : 時間 t_1 で測定した ^{210}Po 濃度

A_2^F : 時間 t_2 で測定した ^{210}Pb から生成した ^{210}Po 濃度

f_1 : $(t_2 - t_1)$ 時間に ^{210}Pb から生成する ^{210}Po の生成ファクター

表8 灰化处理(450°C)による食品中のPb-210とPo-210の飛散[5]

Table 8 Loss of Pb-210 and Po-210 in food by dry ashing [5]

(1) Pb-210

Sample	Drying (Freeze-drying)	Dry Ashing (450°C, 24h)	Recovery after Ashing
	(pCi/kg.dry)	(pCi/kg.dry)	(%)
Sazae (Muscle)	0.36 ± 0.02	0.32 ± 0.02	88.9 ± 7.9
		0.34 ± 0.03	94.4 ± 9.8
Sazae (Viscera)	5.90 ± 0.31	5.05 ± 0.47	85.6 ± 9.1
		5.43 ± 0.32	92.0 ± 7.9
Daily Diet-1	4.7 ± 0.3	4.3 ± 0.3	92 ± 9
Daily Diet-2	5.5 ± 0.4	5.0 ± 0.3	91 ± 8

(2)Po-210

Sample	Drying (Freeze-drying)	Dry Ashing (450°C, 24h)	Recovery after Ashing
	(pCi/kg.dry)	(pCi/kg.dry)	(%)
Sazae (Muscle)	1.95±0.11	1.31±0.06	67.2±4.9
		1.01±0.04	51.8±3.6
Sazae (Viscera)	13.8±0.5	8.64±0.35	62.9±3.4
		7.83±0.23	56.7±2.6
Daily Diet-1	22.1±1.6	2.2±0.2	10±1
Daily Diet-2	10.2±0.9	2.4±0.2	24±2

Anal.weight(dry base) of samples used: Sazae (Pb-210:10g, Po-210:2g), Daily diet(Pb-210,Po-210:50g)

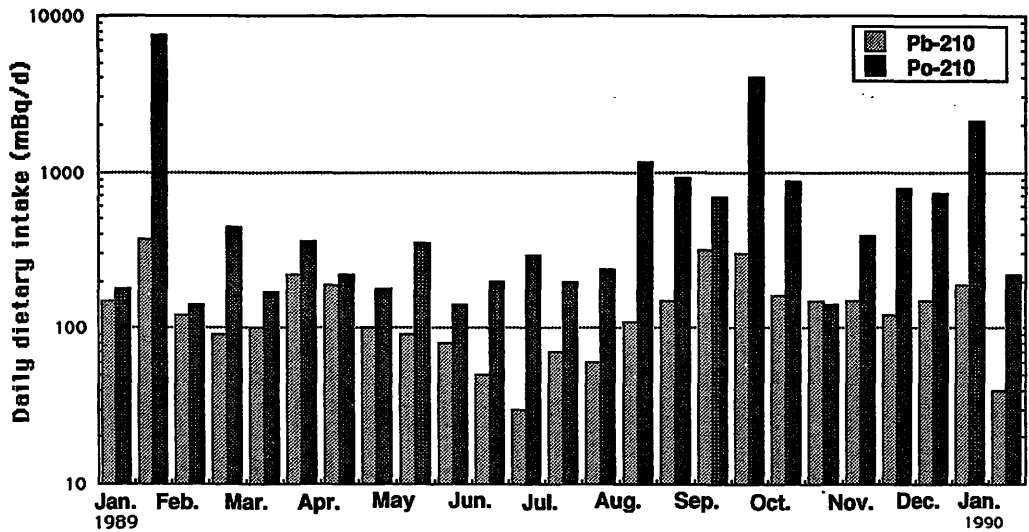


図8 日常食からの一人一日あたりのPb-210とPo-210摂取量(秋田大の病院の普通給食を利用)[21]
Fig.8 Intakes of Pb-210 and Po-210 from daily diets collected at hospital of Akita Univ. [21]

f_2 : $(t_1 - t_0)$ 時間に ^{210}Po の減衰ファクター

f_3 : $(t_1 - t_0)$ 時間に ^{210}Pb から生成する ^{210}Po の生成ファクター

このように ^{210}Po の測定では常に ^{210}Pb と ^{210}Po の対で測定することが重要であり、両核種の濃度のみならず、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比の検討から、より多くの情報を引き出すことができる。測定例として秋田大学の大学病院で1989年1月から1990年1月まで月2回の割合で朝、昼、夜を合わせた普通給食1日分を延べ25日分測定した結果を図8²⁰⁾に、また人体組織の結果を図9²¹⁾に示した。

なお、上記したように ^{210}Pb 濃度が比較的高い場合や、試料の量が十分多い場合には非破壊 γ 線測定による ^{210}Pb ($E_r = 46.5\text{keV}$ 、4.05%)の直接測定が可能であり、そのスペクトル例を図10に示しておく²²⁾。

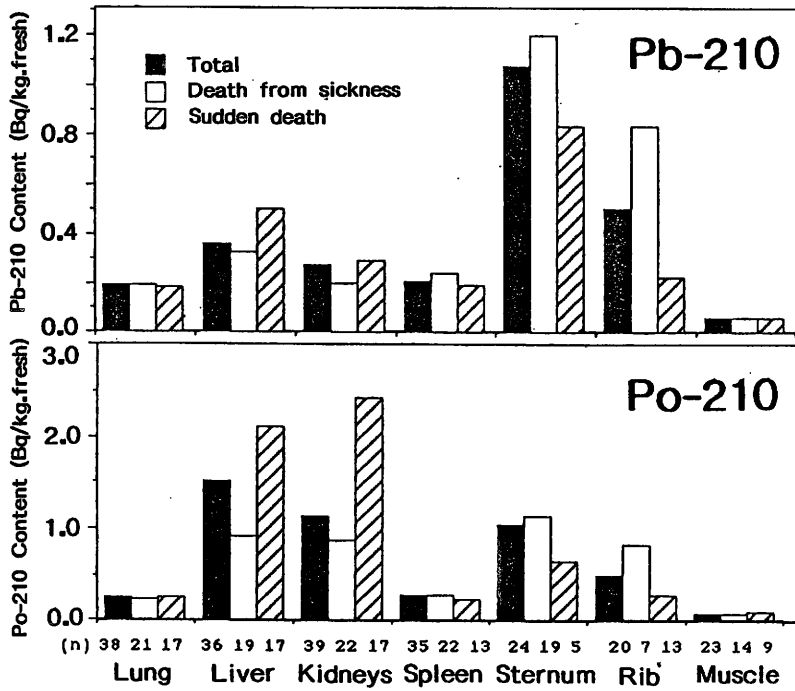


図9 日本人の人体組織中のPb-210とPo-210濃度[21]
 Fig.9 Concentrations of Pb-210 and Po-210 in Japanese human tissues [21]

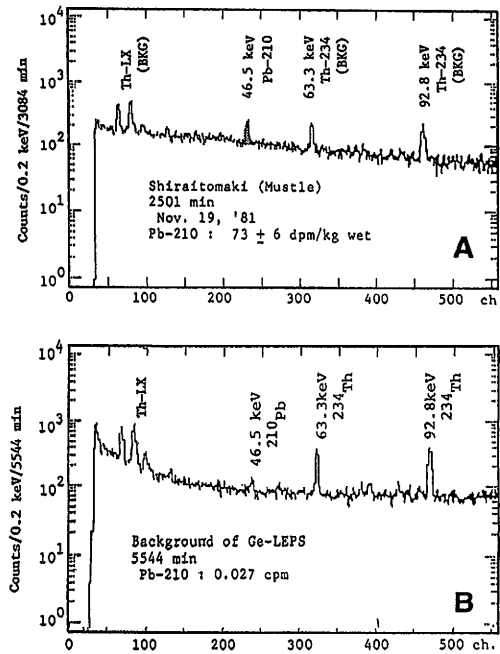


図10 Ge-LEPSによるPb-210の直接測定のためのγ線スペクトル例[22]
 Fig.10 Example of Ge-LEPS spectra for the determination of Pb-210 (A: sample, B: background) [22]

8. おわりに

食品および人体組織中の内部被曝線量評価上重要な自然 α 線放射体、U および Th 同位体、Ra 同位体さらに ^{210}Po (^{210}Pb) についてそれらの分析・測定法とレベルについて述べてきた。 ^{238}U や ^{232}Th については ICP - MS の利用により、非常に低レベルまで測定が可能になっている。一方 ^{226}Ra や ^{210}Po については、化学分離・ α 線スペクトロメトリーによる良法が開発されており、測定法に関しては現在それほど大きな問題はないように思われる。最も重要な問題は、“食品や人体組織試料”の収集である。できるだけ早く全国レベルで、このような試料を収集する体制をつくりあげることが急務であると考ええる。

最後に、原稿とりまとめにご協力いただいた当施設中本美智代氏に感謝します。

参考文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing radiation : Sources and biological effects, 1988report to the general assembly, with annexes (United Nations, New York)(1988).
- 2) J. H. Harley, In : Radionuclides in the Food Chain, M. W. Carter, J. H. Harley, G. D. Schmidt and G. Silini(eds), Springer-Verlag, New York Inc., p. 58(1988).
- 3) 阪上正信, 第 10 回放射医研環境セミナー「環境放射性物質に関する最近の分析測定法とその将来」, 放医研, p. 240(1983).
- 4) 科学技術庁 : 「ウラン分析法」(放射能測定シリーズ 14) 日本分析センター (1983).
- 5) 山本政儀, 未発表
- 6) Y. Igarashi, Dissertation presented to Department of Chemistry, University of Tsukuba (1987).
- 7) H. Kawamura, Y. Igarashi, K. Shiraishi, J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 138, 103(1990).
- 8) Y. Igarashi, C. K. Kim, Y. Takaku, K. Shiraishi, M. Yamamoto, N. Ikeda, Anal. Sci., 6, 157(1990).
- 9) 五十嵐康人, 白石久二雄, 高久雄一, Radioisotopes, 40(1), 44(1991).
- 10) C. M. Sunta, H. S. Dang, D. D. Jaiswal, J. Radioanal Nucl. Chem. Art., 115(1), 149(1987).
- 11) C. M. Sunta, H. S. Dang, D. D. Jaiswal, S. D. Soman, *ibid.*, 138(1), 138(1990).
- 12) 科学技術庁 : 「ラジウム分析法」(放射能測定シリーズ 19) 日本分析センター (1990).
- 13) M. Yamamoto, K. Kawamura, Y. Igarashi, K. Shiraishi, K. Ueno, Radiochim. Acta, 55, 163(1991).
- 14) M. Yamamoto, K. Komura, K. Ueno, Radiochim. Acta, 46, 137(1989).
- 15) H. Kawamura, M. Yamamoto, Y. Igarashi, K. Shiraishi, K. Ueno, Health Phys., 61(5), 615(1991).

- 16) K. Shiraishi, Y. Nishimura, S. Hongo, H. Yamaguchi, M. Yamamoto, K. Yoshimizu, in: Proceeding of International Conference on Radiation Effects and Protection, p. 413(1991).
- 17) N. Tanaka, H. Watanabe, R. Ichikawa, J. Radiat. Res., 9, 29(1968).
- 18) K. Kametani, H. Ikebuchi, T. Matsumura, H. Kawakami, Radioisotopes, 30, 681(1981).
- 19) P. E. Figgins, V. R. Casella, C. T. Bishop, A. A. Glosby, In : Radioelement Analysis, Progress and Problems, W. S. Lyon(ed), Ann. Arbor Science, Publishers Inc., Michigan, p. 39(1980).
- 20) 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設研究概要・年次報告, LLRL-AR-13, p.10(1989), LLRL-AR-15, p. 10(1991).
- 21) 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設研究概要・年次報告, LLRL-AR-16, p.14(1992).
- 22) 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設研究概要・年次報告, LLRL-AR-6, p.12(1982).

2 日本人の元素摂取量と線量推定

白石 久二雄

放射線医学総合研究所

Dietary Intake of Radionuclides and Dose Estimations for Japanese

Kunio Shiraishi

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences

3609 Isozaki, Nakaminato, Ibaraki, 311-12 Japan

ABSTRACT- Knowledge of dietary mineral intakes is important not only from the nutritional and medical viewpoints but also radiological protection purposes. Recently new powerful methodology, inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) is becoming a popular techniques for determining trace elements. ICP-MS offers most of the versatility in contrast to the conventional method (e. g., atomic absorption spectrometry, inductively coupled plasma atomic emission spectrometry, and radiation measurement including alpha spectrometry and neutron activation analysis). In this report, analytical methods of ^{232}Th , ^{238}U , and ^{226}Ra in total diet samples for Japanese were described. Furthermore, annual dose equivalent for Japanese were estimated.

Diet samples for males were collected by duplicate portion studies and a market basket study. The samples for one duplicate portion study were collected from 31 locations in Japan in the summer and winter of 1981. The market basket study was conducted in the Mito area in 1989. After the diet samples were dry-ashed, an aliquot ash was used for analysis of each radionuclide.

^{232}Th and ^{238}U were determined by ICP-MS with internal standard, ^{210}Bi . ^{226}Ra was determined by alpha-spectrometry after chemical separations. It was found that the daily intake per person of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{238}U were 25, 1.7, and 8.8 mBq, respectively. Incorporating the internal dose estimation system (IDES) with Japanese physical parameters and other parameters of ICRP 30, the annual

effective dose equivalents were estimated as 4×10^{-6} Sv for ^{226}Ra , 4×10^{-7} Sv for ^{232}Th , and 3×10^{-7} Sv for ^{238}U . Other age groups were also estimated.

はじめに

日本人の元素摂取量の代表値を知ることは、環境放射生態学の観点からだけでなく、医学・栄養学的にも重要である。又、最近の分析装置の開発は著しいものがあり、例えば誘導結合プラズマ・質量分析装置(ICP-MS)の開発・市販化は非放射性元素(安定元素)だけでなく、放射性元素の定量分析にも極めて有効な分析法としてクローズアップされている。特に、ppt(pg/ml)レベルの低い環境濃度の長半減期核種分析において、十分な可能性が報告されている¹⁾。このICP-MSを中心に、他の分析法も含め、食事の天然アルファ核種(^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{238}U)及び関連安定元素の分析法について述べる。さらに、日本人の摂取量の代表値の推定法および各々の代表値から日本人が受ける線量推定についても述べる。

1. 食事試料の収集法

食事試料は良く知られている陰膳方式(Duplicate portion study)とマーケット・バスケット方式(Market basket study)を用いて収集、処理した。陰膳方式の場合は複数(5人)の成人男子を対象とし、31都道府県より1981-82年に年2回行った広地域サンプリングである。一方のマーケット・バスケット方式は1988年の国民栄養調査のデータを用いて、1989年の春に食品を収集したものである。収集した食品は乾燥後、乾式灰化し、減容して分析するまで保存した。

2. ICP-MS法による食事の ^{232}Th と ^{238}U の分析

得られた灰分の約0.25gを秤量し、硝酸一過塩素酸でさらに湿式灰化した。繰り返し充分灰化したものを乾固後、10%高純度硝酸に溶解して、ICP-MSの分析試料とした。ICP-MS法の分析条件を表1に示した²⁾。まず、測定の正確さと精度の検討結果を表2に示す。標準物質NIST SRM1571中の ^{232}Th 、 ^{238}U の分析結果は保証値と良く一致しており、精度も数%であった³⁾。又、この時の検出限界は ^{232}Th で1.3 pg/ml、 ^{238}U で2.9 pg/mlであった。

ICP-MS法は名前が示すように質量分析の一種であるため、分光学的方法と異なり、化学干渉や分光干渉は無いといって良いが物理干渉は避けられない。この分析法の利点を生かすためには、できるだけ試料の前処理を少なくして、効率良く測定するための条件設定を行う必要がある²⁾。マトリクスの測定値への影響を見るために総塩濃度を200から1,400ppmに変化させた時の食事試料中の ^{232}Th と ^{238}U の定量値の変化を図1に示す。図から解るように、調整した食事試料を500~1,000ppm間の塩濃度に希釈して測定すればマトリクスの影響を避けら

Table 1. Operating conditions of ICP-MS²⁾

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

Table 2. Analytical results for NIST SRM1571 orchard leaves²⁾

Element	Concentration (μg/g dry wt.)		
	Present result	Certified values	Consensus values*
²³² Th	60.2 ± 0.5 **	64 ± 6	58 (3)
²³⁸ U	29.9 ± 0.5	29 ± 5	28 ± 3 (7)

* From Gladney, reference 3, numbers in parentheses are number of data used to obtain consensus values.

** Mean ± s.d. for three measurements.

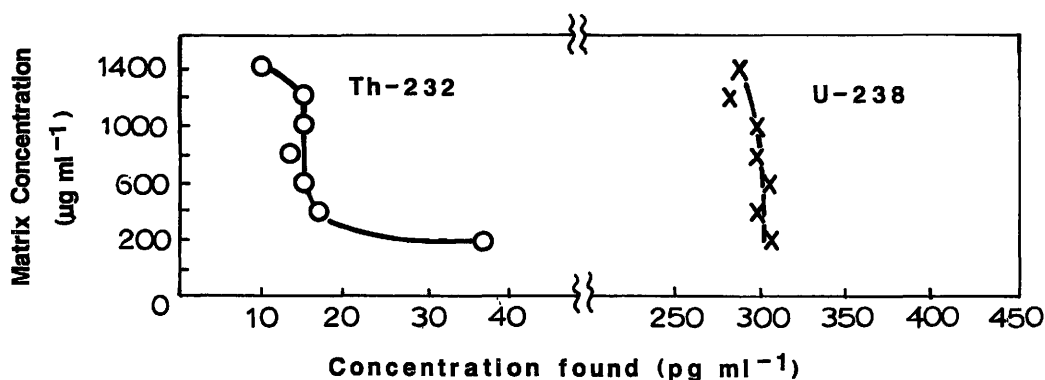


Fig. 1 Effect of the total matrix concentration on the determination of ²³²Th and ²³⁸U in a total diet sample²⁾

れることが³⁾解る。測定時の内部標準としては、²³²Th、²³⁸Uの分析に最適とされる²¹⁰Biを選び10ppbになるように添加した⁴⁾。²³²Thと²³⁸Uの食事62試料の灰分中濃度はそれぞれ25 ± 12ng/g、44 ± 20ng/gであった。又、成人男子1人1日当たりの摂取量は²³²Thで0.41 ± 0.21 μg、²³⁸Uで0.71 ± 0.31 μgであった⁵⁾。

Table 3. Comparison of daily intake of ^{232}Th and ^{238}U for six areas in Japan and two seasons⁵⁾

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

a Daily intake, μg per person

b Number of samples

c Ratio of geometric mean to arithmetic mean

摂取量の地域的な違いをみるため、全国 31ヶ所を北日本、関東、中部、近畿、中国・四国、九州の 6つの地域にわけた結果を表 3 にまとめた。算術平均と幾何平均値には大きな差は認められていない。 ^{232}Th の場合、地域的に差が認められたのは北日本と関東、北日本と中部、北日本と中国・四国の組み合わせであり、 ^{238}U の場合、関東と中国・四国、関東と九州の組み合わせにおいて、統計的に有意差が認められた。夏と冬の季節的摂取量の差を見た場合、両核種ともに、日本全体、東日本、裏日本内に統計的な差が認められた。これに対して西日本、表日本には差は認められなかった。(表 3 参照)。世界の摂取量の一覧表を表 4 に示した。 ^{232}Th の摂取量の報告値は少なく、日本人では $0.2 \sim 0.4 \mu\text{g}/\text{人}/\text{日}$ の範囲とされる⁶⁾。アメリカ人の $1 \mu\text{g}$ 、インド人の $2 \sim 3 \mu\text{g}$ と日本人に比べて摂取量は高く、標準人 (ICRP23, 1975)⁷⁾ では $3 \mu\text{g}$ を見積もっている。 ^{238}U については多くの報告がある。日本人の場合、ウラン鉱山近くでは $3 \sim 9 \mu\text{g}$ 、それ以外では $0.7 \sim 2 \mu\text{g}$ の範囲である。世界のデータではインドの高い値を除いて、 $1 \sim 3 \mu\text{g}$ であり、標準人では $1.9 \mu\text{g}$ を報告している。

3. アルファ分析法による ^{226}Ra の摂取量推定

^{226}Ra の摂取量推定に関しては先の ^{232}Th 、 ^{238}U と同一の食事試料の分析の他に、1984 - 1989 年の間に水戸在住の成人男子の摂取量を陰膳法を用いておこなった。さらにマーケット・バスケット法により収集した試料について食品群別に分析し、国民栄養調査のデータを用いて国民 1 人当たりの摂取量を推定した⁸⁾。

Diet sample

Ashed in a muffle furnace

Ash (4-5 g)

Added tracer, ^{225}Ra

Digested with $\text{HNO}_3\text{-H}_2\text{O}_2\text{-HClO}_4$

Residue

Dissolved in 2-3M HNO_3 (50-100 ml) and diluted to 500 ml

Co-precipitated by BaSO_4

BaSO_4 co-precipitate

Fused with $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-K}_2\text{CO}_3$ and dissolved in water

Residue(BaCO_3)

Dissolved in 4M HCl and evaporated to dryness

Dissolved by 0.05M CyDTA at pH 5.0

Cation exchange column

Washed with 0.05M CyDTA at pH 8.5

Washed with 0.5M HCl

Eluted with 3M HNO_3

Ra fraction

Electroplated from ethanolic medium onto a silver disk

Alpha-spectrometry

Minimum detectable level; 0.2 mBq/sample (5,000 min)

Fig. 2 Analytical procedure for ^{226}Ra in diet samples

これまでの ^{226}Ra の分析はラドン・エマヌエーション法(Rn emanation method)という方法等で行われていた⁹⁾。即ち娘核種である気体の ^{222}Rn を測定することによって、Raを定量していたために、検出限界は悪く(高く)、試料の量も10g程度の灰が必要であった。ここで用いた方法はスキーム(図2)に示した方法に従い、5g程度の灰を用い、検出限度0.2mBq/試料(5,000分測定)で効率よく ^{226}Ra を定量する事が出来た¹⁰⁾。化学処理の概略は、4~5gの灰にトレーサーとして ^{225}Ra を添加後、硝酸一過酸化水素一過塩素酸の混酸で湿式灰化した。残渣を硝酸に溶かしたのち、バリウム共沈を行った。沈殿は炭酸ナトリウム一炭酸カリウムでアルカリ溶融した。次にキレート剤、trans-1,2-cyclohexenediamine-N,N,N,N-tetra acetic acid(CyDTA)で処理したのち、陽イオン交換樹脂によりバリウム等を除去し、Ra画分を精製分離した。電着後、アルファ・スペクトロメトリにより定量を行った。

^{226}Ra の6地域別摂取量(成人男子1人1日当たり)は北日本21mBq、関東23mBq、中部20mBq、近畿25mBq、中国・四国28mBq、九州32mBqであり、西日本に高い傾向が認められる。全国平均は 25 ± 5 mBqである。水戸における1984~1989年の成人男子の平均摂

取量は 22 ± 2 mBq ($n = 7$) であった。マーケット・バスケット法による結果は国民一人当たり、 22 ± 0.9 mBq と推定できた¹¹⁾。日本人の摂取量に関しては、山崎ら¹²⁾の1960年代の札幌、京都における報告値、それぞれ15mBqと37mBqとの一致が認められた。

4. IDES による線量推定

IDES は本郷、山口らにより開発された、日本人用の内部線量評価システムである¹³⁾。ICRP モデル (ICRP30、1979)¹⁴⁾ に基づくものであり、日本人の物理的、生理学的パラメーターを入れ換えることによって、5種類の年齢群 (.1、5、10、15才、成人) の線量計算が可能となっている。

Table 4. A comparison of daily intake in adult males for ²³²Th and ²³⁸U between the present results and published data⁵⁾

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

a Sampling time or reported time

上述の日本人成人男子の摂取量から得られた値を日本人の代表値、即ち²²⁶Ra 25mBq / p / d、²³²Th 1.7mBq / p / d、²³⁸U 8.8mBq / p / d、として線量当量を求めた。ただ、現在

Table 5 Total weighted committed dose equivalent (WCDE) and annual dose equivalent (ADE) by ingestion for five age groups in Japanese calculated by using IDES¹⁴⁾

Age group	²³² Th		²³⁸ Ua		²²⁶ Ra	
	WCDE(Sv/Bq) ^b	ADE(Sv/y) ^c	WCDE(Sv/Bq)	ADE(Sv/y)	WCDE(Sv/Bq)	ADE(Sv/y)
1 year ^d	3E-06	2E-06	4E-07	1E-06	-	-
5 years ^d	2E-06	1E-06	2E-07	7E-07	-	-
10 years ^d	1E-06	7E-07	1E-07	4E-07	-	-
15 years ^d	7E-07	4E-07	9E-08	3E-07	-	-
Adult ^d	7E-07	4E-07	8E-08	3E-07	-	4E-06 ^f
Reference Man ^d	5E-07	3E-07	7E-08	2E-07	-	-
Reference Man ^e	7.4E-07	4.5E-07	6.3E-08	2.0E-07	3.1E-07	2.8E-06

a) The value of gut absorption ($f_1=0.05$) was used.

b) Total of weighted committed dose equivalent in targets per unit intake, Bq.

c) Annual dose equivalent.

d) Obtained by IDES. e) Data from ICRP Publ.30.¹³⁾

f) Estimated from the value (2.8E-06 Sv/y).

²²⁶Ra のデータ・ベースが IDES に入力されてなく、²²⁶Ra の計算は標準人 (ICRP30) に従った。また胃腸間内での核種の吸収係数が 1 つの問題であるが、水溶性の化学形と考え、安全側の大きい f_1 値 (²²⁶Ra 0.2、²³²Th 0.004、²³⁸U 0.05) を用いた。計算結果は表 5 に示す¹⁵⁾。例えば²³⁸U の場合、IDES に標準人のパラメーターを与えて、1 日摂取量 8.8mBq より単位 Bq 当たり線量を計算してみると 7E-08 Sv/Bq となり、ICRP30 による計算値 6.3E-08 Sv/Bq とほぼ一致がみられた。次に日本人の物理学的、生理学的パラメータを使って計算すると 8E-08 Sv/Bq (Adult) となった。

さらに 1 年間の摂取量から 3E-07 Sv/y の年線量当量が計算された。他の年齢群についても同様に処理した。低年齢ほど線量は高くなるのがわかる。²³²Th の場合、1.7mBq/p/d の摂取量より、成人男子の年線量当量 4E-07 Sv/y が推定された。²²⁶Ra の場合は標的組織 (器官) の性腺、赤色骨髄、骨表面の荷重預託線量当量 3.1E-08 Sv/Bq から年線量当量 2.8E-06 Sv/Bq を得た。日本人の体格等を考慮して²³⁸U と同じ倍率をかけて 4E-06 Sv/y と推定した。

5. アルカリ土類元素の摂取量

²²⁶Ra を含むアルカリ土類元素 (Mg、Ca、Sr、Ba) は向骨性核種 (元素) であり、放射線防護の点から重要と考えられる。又、放射性核種と安定元素の比は、⁹⁰Sr/Ca の例に見られるように、放射性核種の移行を観察するのに有効な役割を果たしている。日本人の成人男子の各元素摂取量はこれまでの研究から、それぞれ Mg 0.23g、Ca 0.59g、Sr 2.0mg、Ba 0.38mg、²²⁶Ra 0.62pg と推定できた。各元素の Ca に対する比を取って見てみると Mg/Ca 0.39、Sr/Ca 3.4×10^{-3} 、Ba/Ca 6.5×10^{-4} 、²²⁶Ra/Ca 1.1×10^{-12} となる。これに対して、日本人の脊椎骨の比は Mg/Ca 0.011、Sr/Ca 3.1×10^{-4} 、Ba/Ca 5.2×10^{-5} 、²²⁶Ra/

Ca 2.6×10^{-14} となり、摂取量と骨中では1桁から2桁の違いが認められた。ICRPの標準人においても同様な傾向が認められている。^{11,16)}

おわりに

以上、最近の機器分析法を用いて、自然放射性核種 (^{226}Ra 、 ^{232}Th 、 ^{238}U) の摂取量について、述べてきたが、他の自然放射性核種や人口放射性核種に関しても研究すべき重要な核種が残っている。また、線量評価の点からは、摂取・吸収時の化学形と f_1 値の問題が依然として残る。新しいICRPの内容も考慮していかなくてはならない。

参考文献

- 1) 五十嵐康人、白石久二雄、高久雄一：環境放射能分野への誘導結合プラズマ物質分析法の応用。
Radioisotopes, 40, 42-52, 1991.
- 2) Shiraishi, K., Takaku, Y., Yoshimizu, K., Igarashi, Y., Masuda, K., McInroy, J. F., and Tanaka, G.: Determination of thorium and uranium in total diet samples by inductively coupled plasma mass spectrometry. J. Anal. At. Spectrom., 6, 335-338, 1991.
- 3) Gladney, E. S., O'Mally, B. T., Roelandt, I. and Gills, I. E.: Compilation of elemental concentration data for NBS clinical, biological, geological, and environmental standard reference materials. NBS Special Publication 260-111, 1577(1)-1577(28). 1987.
- 4) Igarashi, Y., Kawamura, H., Shiraishi, K., and Takaku, Y.: Determination of thorium and uranium in biological samples by inductively coupled mass spectrometry using internal standardisation. J. Anal. At. Spectrom., 4, 571-576, 1989.
- 5) Shiraishi, K., Igarashi, Y., Takaku, Y., Masuda, K., Yoshimizu, K., Nishimura, Y., Hongo, S., and Yamaguchi, H.: Daily intakes of ^{232}Th and ^{238}U in Japanese Males. Health Phys., 63, 187-191, 1992.
- 6) Shiraishi, K., McInroy, J. F., Igarashi, Y.: Simultaneous multielement analysis of diet samples by inductively coupled plasma mass spectrometry and inductively coupled plasma atomic emission spectrometry. J. Nutr. Sci. Vitaminol., 36, 81-86, 1990.
- 7) Internal Commission on Radiological Protection: Report of the Task Group on Reference Man.
ICRP Pub. 23, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- 8) 白石久二雄、山本政儀、吉清水克己、五十嵐康人、上野馨：日本人の ^{226}Ra の摂取量の推定、第34回日本放射線影響学会要旨集、p295, 1991.
- 9) Kametani, K.: Determination of Ra-226 by means of measurement of Rn-226

radioactivity with proportional Counter. Radioisotopes , 24, 193-196, 1975.

- 10) 投稿中
- 11) In contribution: Dietary intake of alkaline earth metals in Japanese males.
- 12) 山崎文男、自然放射線源よりの被曝、“放射線影響の研究” 桧山義夫編、東京大学出版
p. p. 15-25, 1971.
- 13) 本郷昭三、山口寛、竹下洋：乳幼児のための実効線量当量の試算、第11回放射医研環境セ
ミナー報文集
NIRS-M-55, p33, 1985.
- 14) International Commission on Radiological Protection: Limits for Intakes of
Radionuclides by Workers. ICRP Pub. 30 , Pergamon Press, Oxford, 1978.
- 15) Shiraishi, K., Nishimura, Y., Hongo, S., Yamaguchi, Yamamoto, M., and Yoshimizu,
K.: Internal Dose estimated from the intakes of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{238}U by Japanese
using the internal dose estimation system(IDES).
Proceedings of International Conference Radiation Effects and Protection . Japan
Atomic Energy Research Institute, Tokyo, 413-416, 1992.
- 16) Shiraishi, K., Yoshimizu, K., Tanaka, G., and Kawamura, H.: Daily intake of 11
elements in relation to Reference Japanese Man. Health Phys ., 57, 551-557, 1989.
- 17) Shiraishi, K., Yamamoto, M., Yoshimizu., and Igarashi, Y.: Behavior of trace
radioactive elements and other stable elements in Japanese Diet. The Proceedings
of ISTERN 3rd Inter. Conf. and NTES Nordic Conf. on “Trace Elements in Health
and Disease” , Stockholm, p39, 1992.

3 標準日本人のアルファ線の線量算定とそのモデル

河村 日佐男

放射線医学総合研究所

Model for assessing alpha doses for a Reference Japanese Man

Hisao Kawamura

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences

3609 Isozaki, Nakaminato, Ibaraki 311-12 Japan

ABSTRACT- In view of the development of the nuclear fuel cycle in this country, it is urgently important to establish dose assessment models and related human and environmental parameters for long-lived radionuclides. In the current program, intake and body content of actinides (Pu, Th, U) and related alpha-emitting nuclides (Ra and daughters) have been studied as well as physiological aspects of Reference Japanese Man as the basic model of man for dosimetry. The ultimate object is to examine applicability of the existing models particularly recommended by the ICRP for workers to members of the public.

The result of an interlaboratory intercomparison of $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ determination including our result was published. Alpha-spectrometric determinations of ^{226}Ra in bone yielded representative bone concentration levels in Tokyo and Ra-Ca O. R. (bone-diet) which appear consistent with the literature value for Sapporo and Kyoto by Ohno using a Rn emanation method. Specific effective energies for alpha radiation from ^{226}Ra and daughters were calculated using the ICRP dosimetric model for bone incorporating masses of source and target organs of Reference Japanese Man.

Reference Japanese data including the adult, adolescent, child and infant of both sexes was extensively and intensively studied by Tanaka as part of the activities of the ICRP Task Group on Reference Man Revision. Normal

data for the physical measurements, mass and dimension of internal organs and body surfaces and some of the body composition were analyzed viewing the nutritional data in the Japanese population.

Some of the above works are to be continued.

1. はじめに

核燃料サイクルの整備が進展している現在、アクチノイドそのほかの長半減期核種による人体の被曝線量の推定のためのモデルおよびパラメータの確立が重要である。そのため「長半減期核種の食品-人体系における移行と体内分布並びに標準日本人の生理的特性」と題して、アクチノイドおよび関連核種の摂取量および体内量に関する研究と、これを並んで標準日本人の生理的特性に関する研究を進めてきた。いずれも人体またはその前駆物質からの内部被曝線量の算定モデルとそのパラメータの検討を目標に置いている。

主として体内量については筆者、摂取量については白石久二雄主任研究官、分析測定法については、五十嵐康人研究員(現在気象研究所)がICP-MS法を担当し、アルファ・スペクトロメトリーによる ^{226}Ra 定量には外来研究員(金沢大学山本政儀博士)の協力を得ている。標準日本人については、主として特別研究員(明治薬科大学田中義一郎博士)による業績である。

2. アクチノイドおよびその関連核種の体内量および線量当量の算定モデル

日本人における一般人のPu等の体内量に関しては、正常人のデータは報告されていないため、少量の試料を用いて $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ の濃度の分布を検討している。NISTとUSTR(合衆国超ウラン元素登録制度)が主催する人体標準試料中Puの国際相互比較分析の結果が報告された¹⁾。

体内のTh等の分析研究のため、ICP質量分析法の適用を検討し人体組織試料に対して高感度かつ迅速な分析法であることを見出し(図1)²⁾、内部標準法を開発し精度向上のためきわめて有効であることを示した³⁾。ICP-MSによる長半減期核種の定量法は、これを契機として五十嵐らにより精力的に進展した。

人骨中の ^{226}Ra については、U系列の長半減期アルファ放射体であること、Rnの親核種であることなどにより、大きな関心が払われてきたが、日本人については1960年代の文部省総合研究の成果があるものの人口の多い東京を中心とするデータが未確定であった⁴⁾。そこで、アクチノイドの関連核種として代謝モデルと線量評価の観点から ^{226}Ra を選び、東京地区および一部札幌地区の骨中濃度と年齢の関係を含めて検討した。骨中および食餌中の ^{226}Ra の化学分離-アルファスペクトロメトリーによる分析については、山本らと共同で行った^{5,6)}。各年齢群における脊椎骨中の ^{226}Ra 濃度を表1に示す。年齢依存性は不明確であり、胎児群を除く各年齢群における平均値およびメデียนはほぼ等しい。高年齢群の比較であるが、札幌地区では東京地区よりも濃度が低い傾向がある。地質基盤および生活環境の異なる京都および札幌の、

^{226}Ra の肋骨および食餌中の濃度が報告されている⁴⁾。今回の結果は両地区で報告された骨中濃度の変動範囲内にあるように見える。

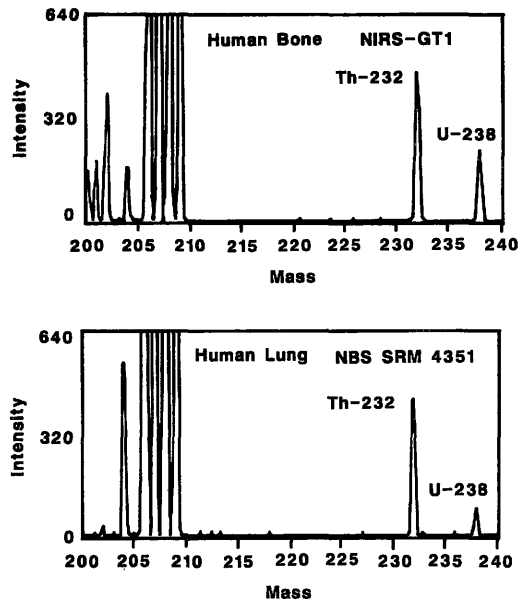


Fig. 1. ICP-MS spectra of the Human Bone and NIST (NBS) 4351 Human Lung samples, between 200 and 240 a.m.u. (ref. 2).

Table 1. Content of ^{226}Ra in bone of different age groups.

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

a Total number in pooled samples.

b Excluding one outlier.

成人群のメディアン値0.35Bq/kg灰分は、世界各地で報告されている値のほぼ中程度の水準

にある。他方、食餌中の ^{226}Ra 摂取量も得られており⁷⁾、別に求めたCa量を用いて食餌-骨間の移行率いわゆるO.R.値を求めると、

$$\begin{aligned} \text{Ra-Ca O. R.}_{\text{bone-diet}} &= \frac{0.35 \text{ mBq}/(\text{g 灰分} \times 0.375 \text{ gCa}/\text{g 灰分})}{25 \text{ mBq}/0.56 \text{ gCa}} \\ &= 0.021 \end{aligned}$$

となり、大野らのRa-Ca O.R._{bone-diet}の値0.016-0.019と近いことがわかった⁴⁾。一方、母親の食餌と胎児骨の間のO.R.値は同様にして、

$$\begin{aligned} \text{Ra-Ca O.R.}_{\text{fetal bone-mother's diet}} &= \frac{0.29 \text{ mBq}/(\text{g 灰分} \times 0.375 \text{ gCa}/\text{g 灰分})}{25 \text{ mBq}/0.56 \text{ gCa}} \\ &= 0.017 \end{aligned}$$

と求められる。これらをSr-Ca O.R._{bone-diet} 0.12およびSr-Ca O.R._{fetal bone-mother's diet} 0.055と比較すると興味深い^{8,9)}。また、アルカリ土類の代謝に関するICRP Publication 20のモデルの応用が現在の課題である。

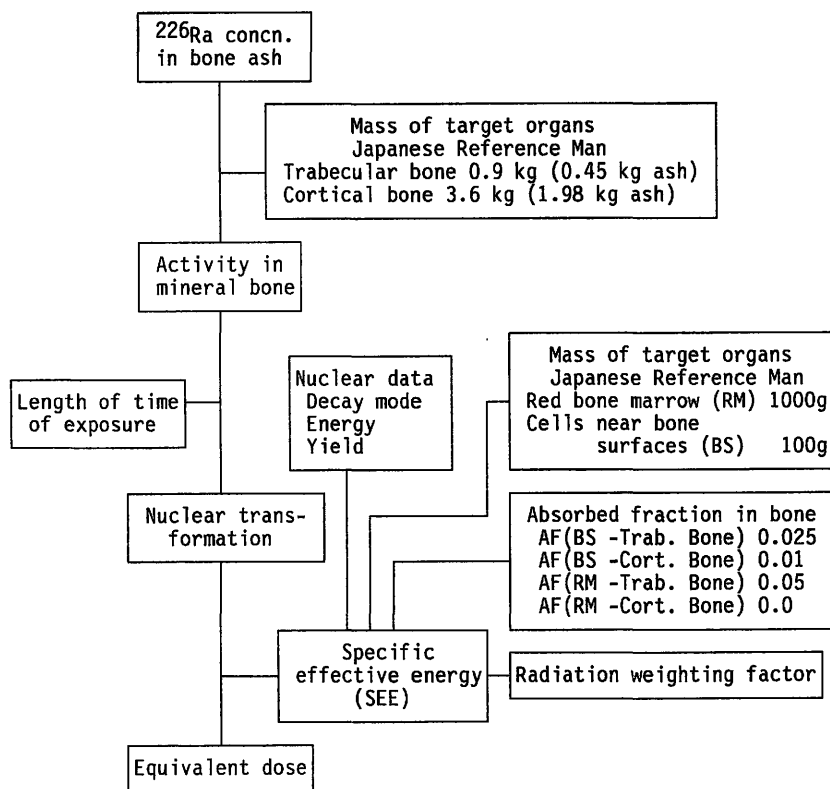


Fig. 2 Scheme for calculating alpha dose to bone tissues from ^{226}Ra in bone ash.

骨中の放射線感受性の組織が骨中の ^{226}Ra から受けるアルファ線による年線量当量の推定のため、線源組織と標的組織の重量として標準日本人の値を用い¹⁰⁾、ICRP標準人の値による結果と比較した(図2)。すなわち、骨皮質3600g、骨梁900gを用いて核変換数を、赤色骨髄1000g、骨表面の細胞100gを用いて比実効エネルギー(SEE)を算出した。線量算定モデルおよびアルファ粒子の吸収割合(AF)は、ICRP Publication 30によった¹¹⁾。骨中の単位濃度の ^{226}Ra および娘核種が与える年線量当量を表2に示す。 ^{226}Ra およびその娘核種のアルファ線から日本人成人男子の受ける年線量当量の合計は、赤色骨髄および骨表面の細胞に対して、それぞれ10および145 μSv となった。これらの値をICRP標準人の器官重量をそのまま用いた結果と比較すると、赤色骨髄で35%および骨表面の細胞で8%大きい。つまり、ICRP標準人のデータで器官線量の算定を行うと、過小評価が起きることになる⁶⁾。

Table 2. Annual dose equivalents per unit content of ^{226}Ra in bone due to alpha radiation, $\mu\text{Sv y}^{-1}$ per Bq (kg ash)⁻¹.

Nuclide	Alpha energy ^a (MeV)	Japanese Ref. Man		ICRP Reference Man	
		Bone surf.	Red marrow	Bone surf.	Red marrow
^{226}Ra	4.785(94.4%)	152	11.0	141	8.2
	4.602(5.55%)				
^{222}Rn	5.490 ^b				
^{218}Po	6.003 ^c	261	18.8	241	13.9
^{214}Po	7.687 ^c				
^{210}Po	5.297 ^c				
Sum		413	29.8	382	22.1

a Recoil alpha energies were included in calculation.

b One third of activity assumed to be retained in mineral bone.

c Equilibrium with ^{222}Rn assumed.

Fisenneは、HarleyとPasternackの算定法により ^{226}Ra の世界23カ国の人口加重メディアン濃度を用いて、骨梁の表面から10 μm の距離にある骨髄が一年間に受けるアルファ線吸収量を4 μGy と報告している¹²⁾。同一の方法で求めた日本人成人の年吸収線量は4.2 μGy であり、前述したように世界の代表レベルに近いといえよう。

3. 標準日本人の生理的特性

ICRP Publication 23では、元素の摂取量は生理的データのひとつに分類されている¹³⁾。超微量成分元素の摂取量に関しては、データがほとんど無いといってよく、新しい適切な高感度分析法の応用が待たれていた分野である。ICP-MSによるBiなどを含む微量元素の日常食からの摂取量が検討された。U,ThおよびRaの日本人における摂取量については白石により詳述されている¹⁴⁾。

アジア地域のなかで日常食からの元素摂取量を比較してみると、フィリピンのマニラ地区対日本では、全般的に前者の摂取量がやや小さい傾向がみられた¹⁵⁾。重要なミネラルの代表で

あるCaに対する各元素の相対摂取量をみると、両者で類似した傾向が認められる。一方、ICRP標準人に与えられたデータをもとに欧米人のそれと比較すると、アジア人の元素摂取パターンの特徴がとらえられると考えられる。安定元素の摂取量は、放射性核種の骨腸管での吸収に影響を及ぼす可能性があるばかりでなく、それが食品構成を反映しており、放射性核種の移行経路の予測にも役立つデータである点で、線量との関わりをもつ。

正常日本人の解剖学的特性は、ICRP標準人改訂タスクグループの活動として、田中により精力的に進められてきた¹⁶⁾。線量算定のための基本的な人体モデルのパラメータを提供するためである。最近の代表的な成果は、日本人成人男子の114器官・質量の重量および組成の標準値の設定であり¹⁰⁾、その基礎となった正常日本人の主要器官の質量と大きさならびにその国民栄養の状態との関連の考察である¹⁵⁾。一例として1、5、10および15才および成人の器官重量の標準値を表3に掲げる¹⁷⁾。正常日本人の統計的なデータに基づいた標準日本人のデータは、日本人の線量計算のためのファントムにとって不可欠の基盤となっている。また、進行中のICRP標準人改訂タスクグループの活動に大きな寄与をなしている¹⁸⁾。同様に、IAEA-RCAのアジア人についての身体的、生理的および代謝特性に関する調査研究を牽引する役割を果たしている。

参考文献

- 1) Inn, K.G.W., Liggett, Jr., W.S., Volchok, H.L., Feiner, M.S., McInroy, J.F., Popplewell, D.S., Percival, D.R., Wessman, R.A., Bowen, V.T., Livingston, H.D., Kathren, R.L. and Kawamura, H.: Interlaboratory comparison of actinides in human tissue-²³⁹Pu and ²⁴⁰Pu. J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, **138**, 219-229, 1990.
- 2) Kawamura, H., Igarashi, Y. and Shiraishi, K.: Determination of Th and U in bone ash by ICP-ion source mass spectrometry. J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, **138**, 103-109, 1990.
- 3) Igarashi, Y., Kawamura, H. and Shiraishi, K.: Determination of thorium and uranium in biological samples by inductively coupled plasma mass spectrometry using internal standardization. J. Anal. At. Spectrom., **4**, 571-576, 1989.
- 4) Ohno, S, and Watanabe, H.: Measurement of radium-226 in bone of Japanese people. Radioactivity Survey Data in Japan, 15, 12-13, 1967. および大野茂: 低レベル放射性核種-環境から人体へ. 放射線科学, **32**, 367-372, 1989.
- 5) Yamamoto, M., Kawamura, H., Igarashi, Y., Shiraishi, K. and Ueno, K.: Measurement of lowlevel ²²⁶Ra in human bone by using ²²⁵Ra tracer and alpha-spectrometry: approach without use of Ba carrier. Radiochim. Acta, **55**, 163-166, 1991.
- 6) Kawamura, H., Yamamoto, M., Igarashi, Y., Shiraishi, K. and Ueno, K.: Naturally

- occurring ^{226}Ra concentrations in bone at various ages and α doses in adults. Health Phys., **61**, 615-622, 1991.
- 7) Shiraishi, K., Nishimura, Y., Hongo, S., Yamaguchi, H., Yamamoto, M. and Yoshimizu, K.: Internal dose estimated from the intakes of Ra-226, Th-232 and U-238 by Japanese using the internal dose estimation system (IDES), Proceedings of International Conference on Radiation Effects and Protection, held in Mito, March 18-20, 1992, 413-416.
 - 8) Tanaka, G., Kawamura, H. and Nomura, E.: Reference Japanese Man-II. Distribution of strontium in the skeleton and in the mass of mineralized bone, Health Phys., **40**, 601-614, 1991.
 - 9) Kawamura, H., Tanaka, G. and Shiraishi, K.: Distribution of strontium in the fetal skeleton. Health Phys., **50**, 159-162, 1986.
 - 10) 田中義一郎: 標準日本人 (Japanese Reference Man) 1988 の研究-III. - 器官・組織別質量に関する研究 - 日本医学放射線学会誌, **48**, 509-513, 1988.
 - 11) ICRP: Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Part 1, Ann. ICRP, **2**, 98, 1979.
 - 12) Fisenne, I. M., Keler, H. W. and Harley, N.: Worldwide measurement of ^{226}Ra in human bone: Estimate of skeletal α dose. Health Phys., **40**, 163-171, 1981.
 - 13) ICRP: Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23, Pergamon Press, Oxford, 1975.
 - 14) 白石久二雄: 日本人の元素摂取量と線量推定, 本報.
 - 15) de Leon, G. C., Shiraishi, K., Kawamura, H., Igarashi, Y., Palattao, Ma. V. and Azanon, E. A.: Elemental composition of Philippine total diet samples. Philipp. Nucl. J., **7**, 29-39, 1990.
 - 16) 田中義一郎: 標準日本人、保健物理, **25**, 49-60, 1990.
 - 17) Tanaka, G., Nakahara, Y. and Nakajima, Y.: Japanese Reference Man 1988-IV. Studies on the weight and size of internal organs of normal Japanese. 医学放射線学会誌, **49**, 344-364, 1989.
 - 18) Tanaka, G.: Reference Japanese Vol. 1, Anatomical Data, Safety Analysis Report, NIRS-M-85, 1992, 93.

宇宙定住時代の生命維持システム

新田 慶治

(財)環境科学技術研究所

Life Support System in Period of Space Habitation

Keiji Nitta

Institute for Environmental Sciences

504-20 Ooaza-Obuchi, Rokkasho-mura, Kamikita-gun, Aomori, 039-32 Japan

1. 生命維持システムとは

生命維持システムと云うと病院のICUで使う生命保持の機器のように聞こえるが、これから説明する生命維持システムは全くべつのものである。

人間が生きてゆくためには、人間の生理代謝に基づくある一定量の物質を摂取しなければならない。摂取すれば、自ずから排泄もある。また、このような物質の摂取や排泄だけでなく、周囲の環境は適温で快適な温度でなければならない。排泄したものは、居住環境から取り除かなければ環境を汚染してしまうことになる。ここで云う生命維持システムとは、これらの必要な環境とか、必要となる食糧などの物質を完全に補給し、排泄物を完全に取り除く総合システムを生命維持システムと呼んでいる。

2. これまでの宇宙用生命維持システム

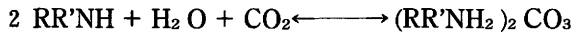
かれこれ約30年間、有人宇宙飛行が行われてきた。もっとも我が国では一昨年のポストーク宇宙船でミールステーションに行ったTBSの秋山氏と、現在シャトルで宇宙を飛んでいる毛利氏の2名だけが宇宙生活の経験者となるわけであるが、米国、ロシアなどでは日常的な活動となっている。米国の有人宇宙船を例にとって考えてみると、月面まで行ったアポロ宇宙船も、現在のスペースシャトルも、生命維持システムには大差がない。

宇宙は100kmも上に行けば殆ど真空とも云える。もともと人間は長い年月をかけて地球環境に適応してきた。少なくともガス環境は地上の環境に近いものでないと障害を起こすことになる。出来るだけ地上のそれに近づけるとなると、地球上の大気組成と同じような組成の大気を

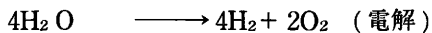
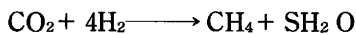
作ることが必要である。地球表面の平均温度は 15℃ ということになっているが、出来ればこの温度に近い温度であることが望ましい。温度にもよるが、25℃ 以上になればかなり熱いと感じられるし、10℃ 以下ではむしろ寒く感じられる。そのようなことから、宇宙船内の大気組成は、酸素 21%、二酸化炭素 300ppm から 700ppm と云った 1 気圧の大気が使われている。もっとも初期の宇宙船では、出来るだけ軽く作るため、アポロ宇宙船では 1/4 気圧の純酸素の大気であった。次第に打ち上げ用のロケットの能力が大きくなるにつれ、気圧が上げられると同時に窒素の混合比が上げられ、スペースシャトルからは地上の大気と同じ気圧、大気組成になった。気温、湿度は、ふく射放熱板を使い、15℃～18℃、湿度 50～60% になるようにシステムが作られている。問題は、人間が生活する限り酸素を摂取し二酸化炭素を排出するが、酸素は地上から持っていく酸素タンクから供給し、出てきた二酸化炭素は、水酸化リチウムによって吸収されている。トイレは大・小別々に採取されるようになっており、大便は、全てビニール袋が便器につけたまま持ち帰られる。小の方は、サンプルとして一部残すものの、大半は宇宙船外に投棄されるようになっている。

3. 宇宙ステーションの生命維持システム

スペースシャトルまでの生命維持システムでは、二酸化炭素は水酸化リチウムによって除去されてきた。水酸化リチウムは、使い捨ての二酸化炭素吸収剤であり再生が出来ない。吸収能力は高々 80% であるので、宇宙の滞在期間が長くなると、大量の水酸化リチウムを地球から持って行かなければならなくなるので、二酸化炭素の吸収剤は再生可能なものに変えると同時に、二酸化炭素から酸素を回収し、酸素のリサイクル効率を高めるように改められた。二酸化炭素の吸収剤として、固体アミンと云う物質が使われる予定である。この反応は、



のようなものであり、反応は常温では左から右へ進み、高温では右から左へと可逆的に反応が進むので、この可逆性を使って再生が行われる。この再生可能な固体アミン剤によって、宇宙船内に人間から放出された二酸化炭素を分離し、酸素を回収するために、サバチエ第一反応と呼ばれる反応をする反応炉に送られる。この反応炉では、水の電解で作られた水素と混ぜ合わせ反応を起こさせてメタンと水を得る。反応式は以下のとおりである。



消費した分だけの酸素は船内に戻し、残りの酸素とメタンは船外に投棄される。形式的には炭素と水を船外に捨てることによって、二酸化炭素から酸素を回収していることになる。また、水のリサイクル率を上げるため、蒸気圧縮蒸留法と呼ばれる蒸留器で尿の排水を浄化再生するように改められた。蒸気圧縮蒸留法とは次のとおりである。円筒のケースの内に回転するドラムが設置されており、ドラムの内側は負圧にしてある。この内側に浄化すべき汚水をパイプによって点滴する。ドラムが回転するので、ドラム内側には水の薄膜が生ずるが、負圧であるの

で蒸発する。蒸発した蒸気は、圧縮器によってドラムの外側の空間に押し込まれる。圧縮されることにより、ドラム外側とケース間で凝縮が起き蒸留水が得られる。凝縮の際に生じた熱はドラムの金属を通し内側に伝えられ、再び蒸発熱として使われる。この方式では、蒸発に要する熱が凝縮によって殆ど回収されるので高効率の蒸留法となっている。食料を地上から持って行き、大便などを地上に持ち帰る点はスペースシャトルと変わらない。

4. SEI (Space Exploration Initiative)

1990年から1991年にかけて、次の宇宙活動の目標として、SEIがブッシュ大統領によって打ち出された。米国のリーダーシップを守るためには、再び月に人間を送り、月面に基地を作り、その基地を使って火星の有人探査を行うと云うものである。月面基地が2005年、有人火星探査が2015～7年と云うのが目標とされている。全体の費用としては、60～70兆円と見積もられており、国際協力で実施しようとするものである。このSEIを推進するため、IAA(International Academy of Astronautics)とかIAF(International Astronautical Federation)などの学会が連合し、このSEIの推進活動が始められている。International Mars Exploration Committeeと呼ばれる検討会では、日本からは筆者なども参加している。1993年の7月頃までに、IAAの機関誌であるActa Astronauticsに学会側としての意見が発表されることになるであろう。

5. SEIを実施するための要求される技術開発項目

さて、SEIの本質のミッションは、まず月面基地を作り、次に有人火星飛行を行なおうと云うものである。既に、月に行って地上に帰ることは1969年に達成しているので、飛行だけに関してはそれほど大きな問題はないであろう。月の基地を使って火星に行くとなると話は別である。火星に行くとなると、出来るだけ軽量で、大きな推力を持つ輸送手段を開発しなければならない。少なくとも現在の技術からすれば、原子力ロケットエンジンの開発が最も大きな課題となるであろう。そして原子力ロケットエンジンから放射される放射能をどのようにして防御するかと云うのが第1の点となる。火星に行くとなると、おおよそ3年程度の宇宙飛行が必要となる。この間、地上から食料や水など生活に必要な物質を補給することはむずかしい。従って、どうしても完全に物質をリサイクルし、生活に必要な物質を得るための技術が要求される。少なくとも微量有害ガスのような処理すべき物質が極度に少ないものは別として、他の物質は完全にリサイクル出来るようにするのが第2点である。

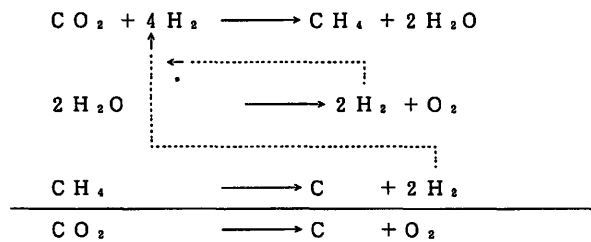
次に、現在の長期滞在の記録は、1年間程度のものであり、3ヶ年も宇宙特有の無重力状態で何の障害もなく生活出来るかどうかは全く判っていない。ミール宇宙船で約1ヶ年の宇宙滞在を行った実績があるが、このためには、日に4～5時間のトレーニングが欠かせないことが必須の条件であった。1日に4～5時間のトレーニングはあまりにも過酷であり、出来るならこのようなトレーニングを行わないで済むような環境を作ることが望ましい。このためには、

宇宙船を回転させ、人口重力を作り出す技術の開発が必要になる。他にもいろいろ開発すべき技術があるかもしれないが、原子力ロケットエンジン、完全リサイクル型生命維持技術、人口重力がSEIを実施するための3点セットと考えられる。

6. 完全リサイクル型生命維持システム

2及び3で示したように、人間が宇宙で生活するための生命維持技術は、地上の生活に較べればかなり高度の技術が使われていることはうなずけるであろう。しかし、人間の呼気から出てくる二酸化炭素から酸素を回収する際にしても、炭素及び水をメタンと酸素の型で船外に投棄しなければならないし、便や水の浄化の際に生じた濃縮汚水も地上まで持ち帰らなければならない。さらに、人間が生活する際に最も必要とされる食料を地上から持っていかなければならないものであった。従って、完全リサイクル型生命維持技術を開発するため次のような技術開発が要求されることになる。

先ず、船外投棄をせずに二酸化炭素を処理するためには、分離した二酸化炭素を食物の光合成に使うことである。そのため、宇宙での植物栽培技術を導入する必要がある。植物の光合成能は、種によっても、また生産段階によっても変わるので、ある時には分離した二酸化炭素だけでは足りない場合もあるし、またある時には余剰となることもある。余剰の場合には貯蔵しておき、不足した時に使えば良いわけだが、二酸化炭素をガス体で貯蔵するためには、莫大な貯蔵タンクが必要となるので実用的でない。このため、サバチエ第2反応と呼ばれる処理法を開発し、炭素の型で貯蔵する方法が必要になる。サバチエ第1反応と第2反応を反応式で示すと次のようになる。



このような方法でガスの処理はなんとか実現出来るだろう。最も難関なのは、人間の排泄物や濃縮汚水などを完全に処理し、これらの資源からどのようにして食料を得るかと言うことである。そこで、再び植物栽培が登場してくる。勿論化学的に食料を合成することは可能かも知れないが、現在の技術水準からすれば、炭水化物とか簡単な蛋白などが合成出来る程度のもので、人口的に合成した食料だけで生きていけるような段階にはない。植物は基本的に無機物を栄養として生長する。地上の植物は有機物が土壤微生物によって分解される時に生ずる無機物を摂取して生長しているが、宇宙船内に土壤微生物を持ち込むことは大変危険なことになる。土壤微生物は、単一な生物層だけでなく多層な生物層を形成しており、その中には病原菌など

も含まれ、狭い宇宙船内にリークした場合大変な問題となる。また、微生物による有機物分解では、二酸化炭素だけでなくメタンや他の有害ガスが発生するので、これらの処理がまた新しい課題を生み出してしまう。要は、排泄物や污水から植物の栄養となる無機成分を作り出せば良いわけで、簡単に言えば、酸化させれば良い。乾燥、燃焼させた場合、大量の煙が生ずる。煙の出ない燃焼法として、湿式酸化法と云うのがある。有機物を水に懸濁させ、炉に入れ、その上に酸素を封じ込め、加熱する方法である有機物中の炭素分は完全に二酸化炭素になり、窒素分は90%以上が窒素ガスになり、若干の窒素成分が硝酸の型で残液に残る。残液中には有機物に含まれていた無機物が溶液の型で残る。これらの技術は筆者らの手で研究開発が進められ、実用段階に近づきつつある。問題は、窒素分の90%以上が気体の窒素ガスになるので、物の窒素養分が不足する傾向にあり、これを補うため、窒素固定が行われる必要があり、小型、軽量の窒素固定装置の開発が環境科学技術研究所で進められている。以上のような技術を使えば完全リサイクル型の生命維持システムの開発は可能になる。

7. 完全リサイクル型生命維持技術の応用

動・植物を閉鎖空間に封じ込め、動・植物のそれぞれの生理代謝量に合わせた物質の循環がこのような完全リサイクル型生命維持技術を用いればコントロール出来るようになる。このことは地上の生態系がどのようにして成立しているか、また生態系が環境要因にどのような影響を与えるのか、また逆に、環境要因が変わった時に、生態系にどのような影響が現れるのかが実験的に検証出来るようになる。

現在、気候予測の際に用いられているSiB(Simple Biosphere Model)の妥当性を、この技術を使って検証する検討を行っているが、現段階では気候予測精度を高めるためにはSiBの改良が必要などころまではかなり明確になってきている。

完全リサイクル型生命維持技術を用いた閉鎖型の環境シミュレータは時空を越えた環境タイムマシンと云っても良いであろう。気候予測などの問題だけでなく、広範囲の環境研究に使えることは間違いないであろう。

種々の利用提案を期待している。

1 乳幼児における放射性物質の代謝特性とその線量評価

西村 義一

放射線医学総合研究所

Biokinetics and Dose Assessment of Radionuclides in Juveniles

Yoshikazu Nishimura

Division of Environmental Health, National Institute of Radiological Sciences

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

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

The IDES (Internal Dose Estimation System) which is based on the ICRP model was used for dose calculation. We modified the IDES using the biokinetic data which was gained animal experiment. The IDES is flexible because the absorbed dose can be calculated by substituting arbitrary physical and physiological parameters and also substituting ingested dose coefficients not only for the ICRP

Reference Man, but also for Japanese of 1 year old, 5 years old, 10 years old, 15 years old and the adult, respectively.

1. はじめに

ICRP は 1978 年に「作業による放射性核種の年摂取限度 (ALI)」を勧告したが¹⁾、これは成人の、しかも職業人を対象としたものであり、一般公衆への適用にあたっては多くの論議があった。職業人と公衆の線量評価で最も異なる点は公衆が乳幼児、広い意味では胎児から老人まできわめて幅広い年齢から構成される、という点である。とくに乳幼児においては生理機能、物質代謝が成人とは異なっているため、線量評価の際に単に体重、臓器の大きさ、呼吸量といった因子のみを縮小した形で適用するわけにはいかず、乳幼児の持つ代謝特性を十分に考慮する必要がある。

2. ICRP Publication 56

チェルノブイリ原子力発電所事故を契機として一般公衆の被曝線量評価が急務となり、ICRP もタスクグループを設けて年齢群別の線量係数 (単位摂取量あたりの線量) を設定する作業を開始した。その結果 1989 年に Publ. 56, Part 1 として 12 元素の体内動態をまとめ、年齢群別の線量係数を公表している²⁾。この作業は現在も続けられており、Part 2、Part 3 では 1990 年勧告に基づいた年齢群別の線量係数が公表される予定である。我が国においては先年 Publ. 26 を取り入れた法改正がなされたばかりで、現行ではこの方式で線量評価を行う必要があるが、将来は新勧告を取り入れた場合への対応策も必要になってこよう。Publ. 56 part 1 では代謝パラメータのうち、年齢群別に f_1 (消化管吸収率) を変えているのは Sr のみで、あとは成人の f_1 が 0.01 から 0.5 までの元素の場合、3 ヶ月齢児で成人の 2 倍、 f_1 が 0.01 以下で成人の 10 倍という値をとっている。また、Sr、Cs、I など一部の元素を除き臓器への移行割合、生物学的半減期は乳幼児での情報が少ないために成人と同じ値を用いている。Publ. 56 で取り扱っている元素も乳幼児での代謝情報が限られているために必然的に少なく、体内動態モデルは関連情報がないため Publ. 30 のモデルをそのまま用いている。しかし、一般に子供の胃腸管通過時間は短いものと考えられるため、胃腸管の線量を過大評価し、他の臓器の線量を過小評価しているなど、いくつかの問題が残っている。詳しくはタスクグループのメンバーである稲葉次郎氏が保健物理などに解説記事を書いているので³⁾⁻⁶⁾ それらを参照していただきたい。

3. 年齢群別体内代謝と解析・線量評価

筆者らは乳幼児の線量評価を行うために最も基本となる代謝パラメータを得るための動物実験を積み重ねているが、ここでは γ 線放出核種を経口摂取した場合の年齢依存性について筆者

らが行ってきたデータをまとめ、乳幼児における放射性核種の代謝特性とその線量評価について述べる。また、乳幼児の場合、母体胎盤や母乳から寄与を見逃すことはできないため、母乳移行についてもふれる。

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

- (1)成熟ラットで消化管吸収率は低いが哺乳児で一桁位高い元素
- (2)成熟ラットで吸収率は高く哺乳児ではほぼ完全に吸収される元素
- (3)哺乳児で消化管内の滞留がうかがわれる元素

の三つに大別される。

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

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

図-1~7に⁶⁰Co(塩化物)、¹²⁵Sb(塩化物)、⁷⁵Se(亜セレン酸ナトリウム)、⁶⁵Zn(塩化物)、⁵⁴Mn(塩化物)、^{110m}Ag(硝酸銀)、¹⁴¹Ce(塩化物)について成熟ラットと乳幼児ラット(0-5日齢)における経口投与後の体内残留率の時間変化を示した⁷⁾⁻¹²⁾。

一方、同じ元素でも化学形の違いによってその代謝が異なることが知られている。Coに関しては無機Coとその有機体であるシアノコバラミン(V-B₁₂)ではその吸収率、分布、生物学的半減期が全く異なっている。実際に食物連鎖を想定し、⁶⁰Co塩化物を添加した海水や培養

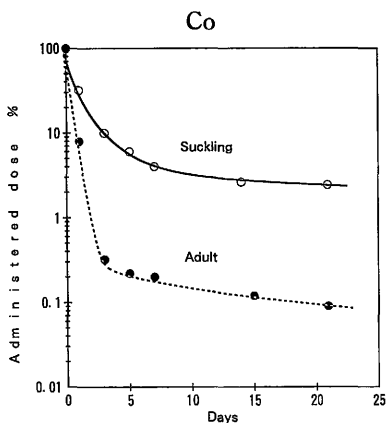


Fig.1 Whole-body retention of ⁶⁰Co-chloride in rats after a single oral administration

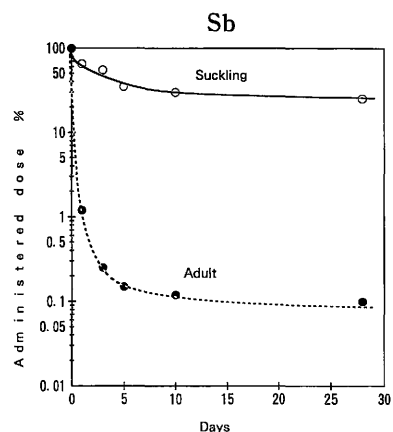


Fig.2 Whole-body retention of ¹²⁵Sb-chloride in rats after a single oral administration

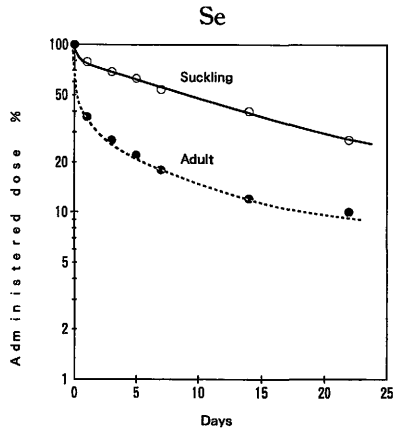


Fig.3 Whole-body retention of $\text{Na}_2^{75}\text{SeO}_3$ in rats after a single oral administration

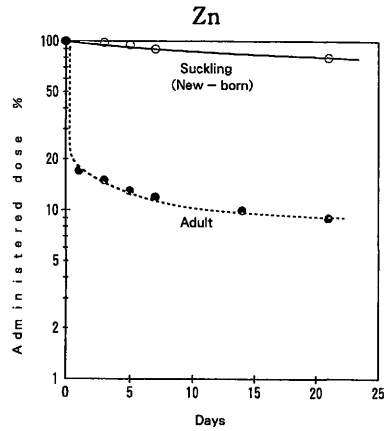


Fig.4 Whole-body retention of ^{65}Zn -chloride in rats after a single oral administration

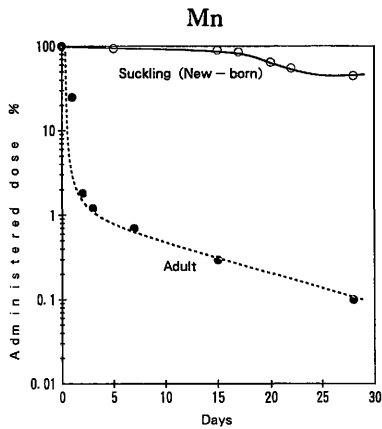


Fig.5 Whole-body retention of ^{54}Mn -chloride in rats after a single oral administration

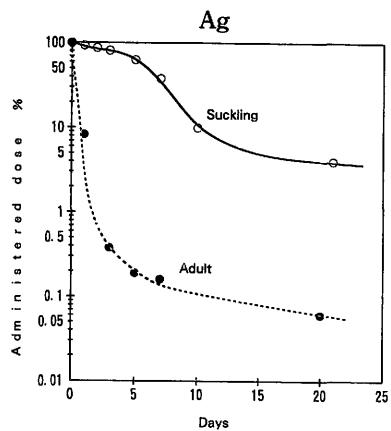


Fig.6 Whole-body retention of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ -nitrate in rats after a single oral administration

液中などでクロレラ、アオサ、メダカを飼育するとこれらの体内でV-B₁₂類縁物質が合成され、これをラットに経口投与すると体内残留率が著しく高くなることを筆者らは確かめている¹³⁾。また、Ruにおいても化学形の違いによる代謝の違いは顕著で、塩化物よりもニトロシル・ニトロ化合物での吸収率が一桁ほど高い。ICRP Publ. 56 Part2のドラフトではCoに関しては化学形を考慮し、成人の f_1 を0.3、乳幼児では0.6という値を用いているが、多くの核種において食品中の化学形に関しては不明な点が多く、精度の高い線量評価を行うためには、この情報を得ることが不可欠である。また、核種によっては動物差、種差も観察される。例えばラットにCeを経口投与した時に観察される上に凸の特徴的な残留曲線は哺乳乳ベール犬を用いた実験では認められていない¹⁴⁾(図-8)。これは消化管吸収に大きく係わっている小腸上

皮細胞の貪食能の違いが大きく関与しているものと推測されるが、種差、動物差についてはさらに詳細な検討が必要である。

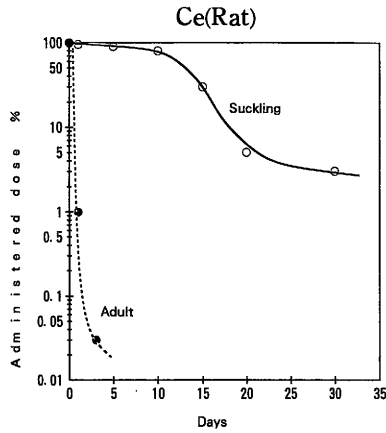


Fig. 7 Whole-body retention of ^{141}Ce -chloride in rats after a single oral administration

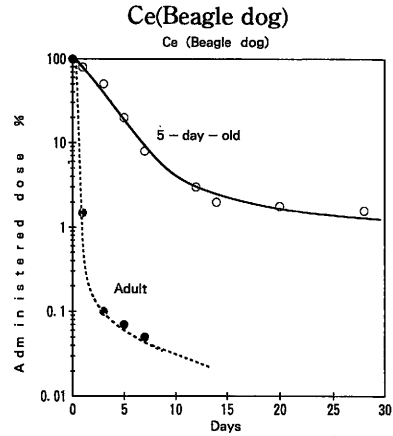


Fig. 8 Whole-body retention of ^{141}Ce -chloride in beagle dog after a single oral administration

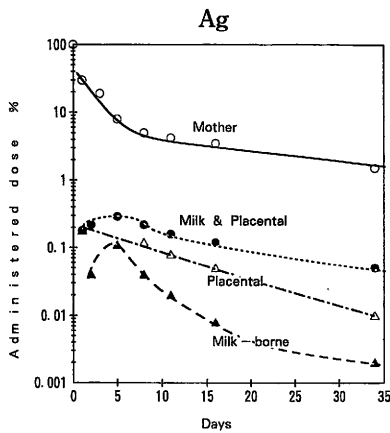


Fig. 9 Whole-body retention of $^{110\text{m}}\text{Ag}$ -nitrate in 21-day pregnant rats after a single intravenous administration

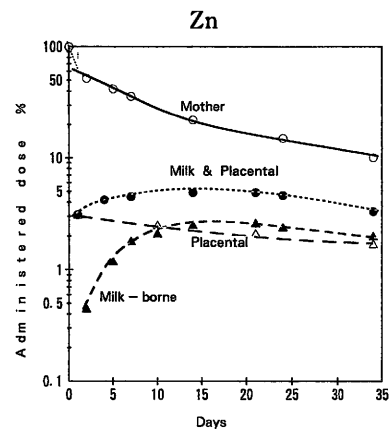


Fig. 10 Whole-body retention of ^{65}Zn -chloride in 21-day pregnant rats after a single intravenous administration

乳幼児では胎盤経由、あるいは分娩後は汚染母乳を摂取することにより体内被曝を引き起こす可能性がある。移行量はどの妊娠時期に摂取したかで異なるが、一般的には妊娠後半期に母体が摂取した場合の方が胎盤および母乳を經由して放射性物質が乳幼児に移行しやすい。母乳からの移行を観察するにはRIを投与した母親と無投与の母親との間で分娩と同時に子供の半数を交換して哺育させるフォスターマザー法がしばしば用いられる。図-9、10にチェルノブイリ事故後のフォールアウトで検出され、代謝情報も少ない $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と成熟ラットでの消化管吸収率の高い ^{65}Zn の、分娩前日の妊娠ラットに静脈内投与したときの新生児への移行デー

タを示した。一般的に亜鉛、セレンなど吸収率の高い核種では胎盤および母乳を經由しても新生児へ移行しやすい傾向にあり、亜鉛では胎盤および母乳由来の移行量をあわせると一腹あたりで70%以上に達し、母体の保持量を越えてしまう。

また、武田らは³H-リジンおよびHTOを分娩直後のラットに経口投与し、これらトリチウム化合物の新生児臓器への移行を観察し、脳や血液を除き、測定に供した各臓器間で両化合物とも相対濃度差がきわめて小さかったことを報告している¹⁵⁾。そこで、臓器間の相対濃度差が小さいことから、ややラフであるがこれらのトリチウム化合物が肝臓の相対濃度の値で全身に均等に分布するものと仮定し、新生児への移行量に換算してみた。すると、リジンでは授乳期間中に母親の投与量の約2%が母乳を介して新生児一匹あたりに移行するものと推定された。実験に用いたウィスター系ラットの平均産仔数は12匹で、一腹あたりに換算すると投与量の20数%が母乳から新生児に移行することになる。また、リジンは離乳後もほとんど代謝されずに体内に留まることがわかった。これに対してHTOの母乳から新生児への移行量はリジンの約1/4で、成長と共に急激に代謝される傾向がうかがわれ、化学形の違いにより代謝は異なるものの母乳から新生児への寄与が無視できないものであることが明らかになった。

(図-11)。

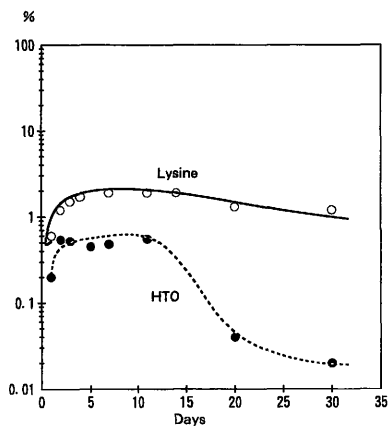


Fig.11 Milk transfer of Lysine and HTO from mother to new-born rats after a single oral administration.

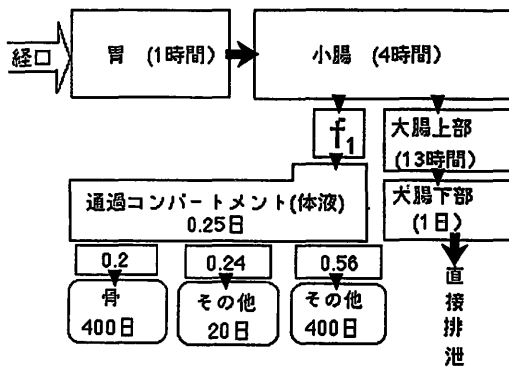


Fig.12 Biokinetic model of Zn(ICRP Publ. 30)

実験動物からヒトへの外挿は常に問題となるが、ヒトでのデータが得にくい動物実験から推定せざるを得ない場合の方が多い。そこで今回の動物実験で得られた結果を本郷らが開発した体内被曝線量計算システム(IDES)に適用し、乳幼児の体内被曝線量の試算を行った。IDESはICRPのモデルが基本となっているが、ICRP標準人のほか日本人の標準(成人)、15才、10才、5才および1才の体格データが組み込まれており、代謝パラメータを変えることによりそれぞれの年齢の日本人の体内被曝線量が計算できるように構成されている。線量の数値は信頼性にもかかわるため慎重に取り扱わなければならないが、ここでは一例として

^{65}Zn について線量係数を試算したものを表-1に示した。図-12は亜鉛の代謝モデルを模式化したもので、亜鉛では[1] 幼若齢のラットほど消化管吸収率が高くなる顕著な年齢依存性が認められること、[2] Publ. 30で与えている f_1 (消化管吸収率)と成熟ラットでの実験結果がよく一致していること、[3] 感度解析の結果、消化管吸収率の感度が最も高かったこと、などの理由により、線量係数の試算にあたっては f_1 のみを変更した。

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

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

(Sv/Bq)

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

4) おわりに

胎児期を含めて乳幼児の線量評価の上で最も基本となる代謝情報が未だ十分に得られていない核種も多く、今後ともこれらのデータ取得のための動物実験を積み重ねていく必要がある。

また、年齢群別食品摂取データ、化学形による代謝の違い、動物種差などに関しては未だ不明な点が多いため、動物実験からヒトへの外挿の問題も含めて総合的な研究を押し進めていく必要がある。さらに、組織荷重係数の年齢依存性に関してはほとんど情報が得られていないため、今後の大きな研究課題となつてこよう。

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

文献

- 1) ICRP Publication 30, Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. Pergamon Press, Oxford(1979)
- 2) ICRP Publication 56, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 1. Pergamon Press, Oxford(1989)
- 3) 稲葉次郎：ICRP第2専門委員会の年齢依存線量に関するタスクグループの千葉会合について、放射線科学, 32: 273-277(1989)
- 4) 稲葉次郎：ICRP Publication 56「放射性核種の摂取による公衆の構成員の年齢依存性, 保健物理, 25: 247-255(1990)
- 5) 稲葉次郎：ICRP 第2専門委員会「年齢依存線量に関するタスクグループ」のハンフォード会合報告, 放射線科学, 34:329-332(1991)
- 6) 稲葉次郎：公衆の線量評価に用いる環境パラメータ: VI. 公衆のための体内被曝線量係数, 日本原子力学会誌, 4: 401-404(1992)
- 7) Nishimura, Y., Inaba, J. and Ichikawa, R., Whole-body retention of $^{60}\text{CoCl}_2$ and ^{57}Co -cyanocobalamin in young and adult rats. J. Rad. Res., 17: 240-246(1976)
- 8) 西村義一、稲葉次郎、松坂尚典、壇原 宏：幼若期・胎児期ラットにおけるセレン代謝の特性について, Biomed. Res. on Trace Elements, 2: 11-19(1991)
- 9) 西村義一、稲葉次郎：マンガンの幼若期・胎児期における代謝特性に関する研究, 日本衛生学会誌, 38: 764-771(1983)
- 10) 西村義一、稲葉次郎：ラットにおける ^{110m}Ag の体内動態に関する研究(I), (II)日本保健物理学会第25回研究発表会(1990)
- 11) Inaba, J., Nishimura, Y., Takeda, H. and Takahashi, S., Placental transfer of cerium in the rai with special reference to route of administration. Radiation Disimetry, 41: No 2-4, 119-122(1992)
- 12) 西村義一、稲葉次郎、松坂尚典：幼若期における放射性核種の代謝の特性, 保健物理, 26: 147-153(1991)
- 13) Inaba, J., Nishimura, Y. and Ichikawa, R.: Comparative metabolism of ^{54}Mn , ^{59}Fe ,

^{60}Co and ^{65}Zn incorporated into *Chlorella* and inorganic form in rats. *Health Phys.*, 39: 611-617(1980)

- 14) 市川龍資、白石義行、稲葉次郎、西村義一、野田 豊：哺乳期ビーグル犬における経口投与した ^{141}Ce の消化管残留と臓器分布、幼若期における放射性核種代謝の特殊性に関する研究(II), *保健物理*, 11: 201-206(1976)
- 15) 武田 洋、西村義一、稲葉次郎：トリチウムおよび炭素-14の母体から新生児への移行, 日本保健物理学会第26回研究発表会(1991)

2 主要な放射性物質の胎児移行

松 坂 尚 典
岩 手 大 学

Transfer of Significant Radionuclides to Fetuses

Naonori Matsusaka

Department of Veterinary Medicine, Faculty of Agriculture, Iwate University
Ueda, Morioka, Iwate, 020 Japan

ABSTRACT- It is generally recognized that the embryo and fetus are more susceptible to radiation than adults; therefore, efforts have been made to establish the exposure limits of selected radionuclides to the embryo / fetus.

Several biological factors, such as metabolisms of nuclides, placental transfer rate, changes in the concentration during the progress of gestation in the embryo / fetus, and deposition in the fetal structures, may be needed to estimate the absorbed doses to the embryo / fetus from the internally deposited radionuclides. Most of this data is usually obtained by using experimental animals due to the difficulty of obtaining such data from humans. In the report of PNL-7445 prepared by Sikov, et al., priority nuclides are classified into six categories according to the placental transfer and biokinetic features.

In the present manuscript, the data for the placental transfer of several selected radionuclides (^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{106}Ru , ^{144}Ce , and actinides) are overviewed. In most cases, we encounter the broad patterns and factors influencing the placental transfer as follows: different animal species used, different ways of the pregnancy determination, different routes of nuclide administration, different chemical forms of administered nuclides, different period of observation after administration, a wide range of units employed for expressing the data, and so on. Therefore, it will be proposed to make a similar experimental design among scientists for obtaining information of comparative

aspects of the placental transfer in experimental animals.

1. はじめに

胚及び胎児の放射線感受性は、一般的に成熟動物のそれよりも高いと考えられている^{1,2)}。従って、放射線の胚及び胎児に対する影響あるいは線量評価について関心が持たれ、ヒト及び実験動物等によって研究が進められてきた。特に放射性物質 (RI) による胎児の被曝線量を求めるには、受精後の胚あるいは胎児の成長に伴う RI の取り込み、胎児体内における RI の分布、さらに濃度変化等の基礎的なデータが必要になる。また、RI によっては胎盤・胎膜に多く沈着するものもあるので、胎盤・胎膜・羊水における RI の挙動についても情報を得ておく必要がある。しかし、これらのデータを全てヒトで求めることが難しいため、実験動物によって必要な情報を得ているのが実情である。

2. 胎盤の形態と機能^{3,4)}

受精卵が子宮に着床すると、胎児側の絨毛膜が母体側の子宮粘膜と接続して胎盤が形成される。胎盤は母体側の血液と胎児側の血液との間で物質やガスの交換を行い、かつホルモンを生産する場でもあるが、胎盤で母体血液と胎児血液が混じり合うことはない。

胎盤の形態は動物種によって異なっている。ゲッシ類、霊長類、ヒトでは脱落性の盤状胎盤であるが、イヌやネコでは脱落性の帯状(環状)胎盤であり、そのほか非脱落性の宮阜性胎盤(ヒツジ、ウシ等)、非脱落性の散在性胎盤(ブタ、ウマ)などがある。

また、母胎盤(母体に属する子宮粘膜部)と胎児胎盤(胎児に属する脈絡膜絨毛部)の結合様式から、上皮絨毛胎盤(ブタ、ウマ)、結合組織絨毛胎盤(ヒツジ、ウシ)、内皮絨毛胎盤(イヌ、ネコ)、血内皮胎盤(マウス、ラット、モルモット、ウサギ)、血絨毛胎盤(ヒト、サル)のように分類されることもある。ヒトおよびゲッシ類の胎盤の形態および膜構成は、両者とも胎児血管内皮・絨毛結合組織・栄養膜の3層からなっており、形態的には盤状胎盤であるという類似性が認められる。

3. RI の胎児移行

母体血液に入った RI は、胎盤を経て胎児血液に移行することが多いが、なかには胎盤をほとんど通過できないものもある。Sikov らは、RI の胎児移行様式をもとに、RI を次の6つに分類している¹⁾。

- (1) 胎盤を自由に通過し、胚・胎児の濃度が母体の濃度と同じになる核種(例: H, C, Co, Cs)
- (2) 胎盤を自由に通過するが、母体臓器中の濃度より胎児臓器中の濃度が高くなる核種(例: 無機ヨウ素)
- (3) 胎盤をいくらか通過し、沈着のパターンが胎児と母体で類似している核種(例: Sr, Pb,

Ra)

- (4) 胎盤をごくわずか通過するが、母体組織中の濃度に比べて胎児組織中の濃度が低い核種 (例: Pu, Po, Th)
- (5) 胎児以外の組織に主として沈着する核種 (例: Ru, Po, Pu)
- (6) 胎盤の通過について情報が得られていない核種

4. 胎児移行データを比較するときの問題点

RI の胎児移行データを比較するとき、しばしば次のような問題に遭遇する。(1) 供試動物の違い、(2) 妊娠日決定の違い、(3) RI 投与経路の違い、(4) RI の化学形の違い、(5) 観察期間、飼育条件の違い、(6) データの表示の違い等である。また、動物の場合は多胎であることが多いので、RI の取り込み量については、胎児 1 匹当たりか 1 腹当たりの値であるかが明らかにされていないと、データの読みを誤ってしまう場合がある。

5. RI の胎児移行データについて

ICRP の Publication 56(Part 1)⁵⁾では、12 核種 (H, C, Sr, Zr, Nb, Ru, I, Cs, Ce, Pu, Am, Np) が取り上げられているが、さらに Part 2 では 12 核種 (S, Co, Ni, Zn, Mo, Tc, Ag, Te, Ba, Pb, Po, Ra) が追加される予定である。今回は、これらの主要な核種のなかから数種のものを選び、それらの胎児移行について検討する。特にデータ間の比較を容易にするという観点から、妊娠母体に RI を投与した後 24 時間目の胎児における取り込み量、あるいは投与直後から 24 時間目までの経時的な取り込み量、さらに妊娠期間の中期から後期に RI を投与したのち分娩時まで追跡した取り込み量のデータに焦点を絞る。

(1) ¹³⁷Cs

先に示した Sikov らの分類¹⁾によると、この核種は胎盤を自由に通過する範疇に入っている。腔栓検出日を妊娠 0 日として、妊娠 17 日のマウスに¹³⁷Cs を 1 回静脈内に投与したのち、

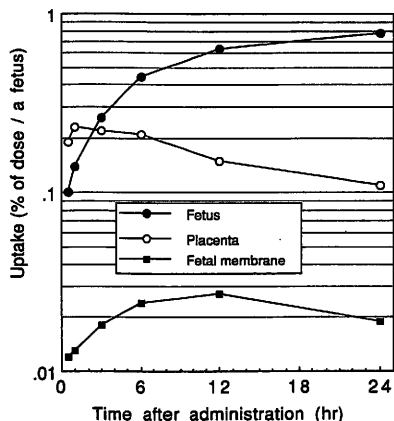


図 1 妊娠 17 日のマウスに¹³⁷Cs を静脈内に 1 回投与した後の胎児、胎盤、胎膜における¹³⁷Cs の取り込み
Uptake of ¹³⁷Cs in the mouse fetus, placenta and fetal membrane following a single intravenous administration of the isotope to the pregnant mice of gestation day 17.

経時的に胎児における取り込みを観察すると、24時間後における胎児1匹当たりの取り込み量は投与量の0.8% (1腹当たりになると約10%)となる(図1)⁶⁾。これに対して、ほぼ同様の妊娠日にあるラット胎児の場合は、その値が0.1-0.2%ほどであり⁷⁾、マウスとラットでは胎児における¹³⁷Csの取り込み量には差が認められる。

(2) ⁶⁵Zn

⁶⁵Znは胎児に移行しやすい核種の一つである⁸⁾。妊娠17日のマウスに⁶⁵Znを静脈内に1回投与し、胎児における取り込み量を経時的に調べた結果を図2に示した。投与後24時間目の胎児1匹当たりの取り込み量は、投与量の2.5%である。また、妊娠18日のラットにお

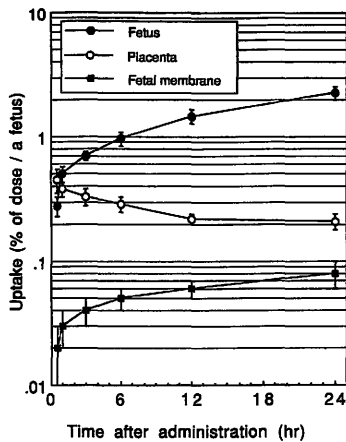


図2 妊娠17日のマウスに⁶⁵Znを静脈内に1回投与した胎児、胎盤、胎膜における⁶⁵Znの取り込み
Uptake of ⁶⁵Zn in the mouse fetus, placenta and fetal membrane following a single intravenous administration of the isotope to the pregnant mice of gestation day 17 (mean ± S.D.)

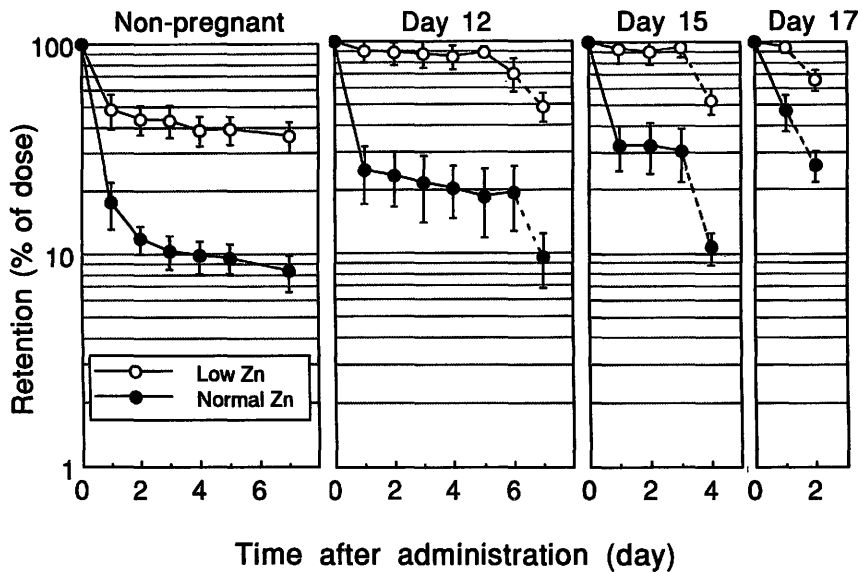


図3 低亜鉛飼料及び正常亜鉛飼料給与下の妊娠マウス(妊娠12、15及び17日)及び非妊娠マウスに⁶⁵Znを1回経口投与した時の体内残留率
Whole-body retentions of ⁶⁵Zn in the non-pregnant and pregnant mice of gestation day 12, 15, and 17 following a single oral administration of the isotope (mean ± S.D.)

る取り込みを同様に調べた Zylicz ら⁹⁾のデータでは、2.2%の値が得られており、マウスとラットでは値が類似している。

マウスおよびラットにおける⁶⁵Znの代謝は、飼料中の安定体重鉛濃度に大きく左右されることが知られている。妊娠12、15、17および18日のマウスに⁶⁵Znを1回経口投与すると、低重鉛飼料を給与されている妊娠マウスの体内残留率が正常重鉛飼料を給与されている妊娠マウスより著しく高くなり(図3)、それに伴って胎児の取り込み量も増加する。従って、⁶⁵Znの胎児への移行量は、妊娠母体の食事中重鉛濃度によって大きく変わる可能性がある¹⁰⁾。

(3) ¹⁰⁶Ru¹¹⁾および¹⁴⁴Ce^{12,13)}

両核種とも胎児には取り込まれ難く、その多くは胎盤および胎膜に沈着する。¹⁰⁶Ruの場合は、¹⁰⁶RuCl₃の方が¹⁰⁶RuNO-nitro complex よりも幾分胎児に移行しやすい。妊娠14、16、18および20日のラットに¹⁰⁶RuCl₃を1回静脈内投与した場合、24時間後の胎児における取り込み量はそれぞれ0.008%、0.01%、0.06%および0.08%であり、妊娠日が進むにつれて胎児における取り込み量が増加する。¹⁰⁶RuNO-nitro complex について妊娠16、18、20日のラットで同様に観察すると、それぞれ0.01%、0.02%および0.02%となり、¹⁰⁶RuCl₃に比べるとやや値が低くなっているが、桁が違うほどの差は認められない。

¹⁴⁴Ceも胎児には移行し難い核種である。妊娠15日および19日のラットに¹⁴⁴Ceを静脈内に1回投与後、24時間目に胎児を摘出して¹⁴⁴Ceの濃度を調べた結果では、それぞれ0.002%/gおよび0.02%/gの値が得られている。それらの値を胎児1匹当たりの取り込み量に換算すると、それぞれ投与量の0.001%および0.07%となり、妊娠の末期になるほど取り込み量が増加する。妊娠17日のマウス胎児で得られた値(0.01%/g)も妊娠19日のラット胎児で得られた値とほぼ一致している。さらに、妊娠17日のラットに化学形の異なる¹⁴⁴Ce化合物(¹⁴⁴Ce-EDTA, ¹⁴⁴Ce citrate, ¹⁴⁴CeCl₃)を静脈内投与して、胎児における取り込み量を経時的に調べたデータによる

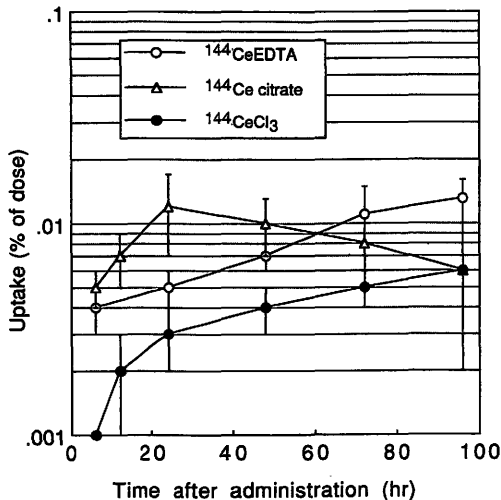


図4 妊娠17日のラットに種々の¹⁴⁴Ce化合物を静脈内に1回投与した時の胎児における¹⁴⁴Ceの取り込み(Beno, M., Health Phys. 14, 127-129, 1968, Table2のデータを図に改変) Uptake of various ¹⁴⁴Ce compounds in a single rat fetus following a single intravenous administration of the ¹⁴⁴Ce compounds to the pregnant rat of gestation day 17 (Table 2 in Health Phys. 14, 127-129, 1968 reported by M. Beno was altered into a figure. Mean ± S.D.)

と、24時間後では0.002% -0.01%であって大きな差は認められない(図4)¹³⁾。

(4) ^{233}U , ^{237}Np , ^{239}Pu

妊娠15日および19日のラットにクエン酸加の各アクチニドを静脈内投与し、24時間目に胎児、胎盤、胎膜、羊水中の濃度を比較すると、いずれの核種とも胎膜および胎盤における濃度が胎児のそれより著しく高くなることが観察されている(図5)¹⁴⁾。

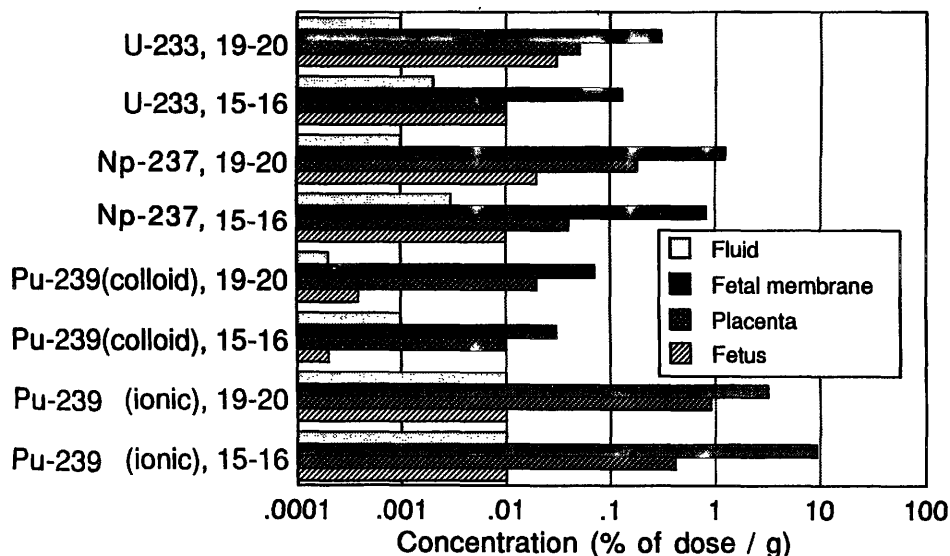


図5 妊娠15日及び19日のラットに ^{233}U 、 ^{237}Np 、 ^{239}Pu (colloidal)及び ^{239}Pu (ionic)を1回静脈内投与後24時間目の受胎産物における分布(Sikov, M.R. and D.D. Mahlum, Health Phys, 14, 205-208, 1968, Table 1のデータを図に改変)
Distribution of ^{233}U , ^{237}Np , ^{239}Pu (colloidal) and ^{239}Pu (ionic) in the rat conceptus 24 hr after a single intravenous administration to the pregnant rat of gestation day 15 and 19(a part of Table 1 in Health Phys, 14, 205-208, 1968 reported by M. R. Sikov and D. D. Mahlum was altered into a figure.)

6. まとめ

今回は数種のRIについて胎児移行データの比較を試みた。種々のRIについて胎児移行を追跡した結果が報告されているが、先にも述べたように研究者によって実験方法等が区々であり、直接比較できるデータを得ることは難しい。今後は、データを相互に比較できるような実験計画の立案が望まれる。そのことは必ずしも研究者個人個人の獨創性を満足させることにはならないかもしれないが、研究成果の応用には貢献するであろう。

参考文献

1. Sikov, M. R., R. J. Traub, T. E. Hui, H. K. Mezmarich and K. D. Thrall: Contribution of Maternal Radionuclide Burdens to Prenatal Radiation Doses, PNL-7445, Rev. 1,

- 1992.
2. 草間朋子：線量評価に係わる年齢依存性の問題 - とくに胎児に着目して - 放医研環境セミナーシリーズ No. 16, 118-122, 1988.
 3. Hurley, L. S. : *Developmental Nutrition*, pp. 5-64, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, 1980.
 4. Wegst, A. V. : *Physiology of transfer. In, Age-related Factors in Radionuclide Metabolism and Dosimetry* (Eds. Gerber, G. B., M. Metivier and H. Smith), pp. 293-301, Martinus Nijhoff Pub., Dordrecht, 1987.
 5. ICRP: ICRP Publication 56, *Annals of the ICRP, Part 1*, Pergamon Press, 1989.
 6. Daidoji, S., N. Matsusaka, Y. Matsuda, H. Kobayashi and A. Yuyama: ^{137}Cs transfer from dam to fetus in relation to gestational age in mice, *J. Fac. Agr, Iwate Univ.*, 13, 263-268, 1977.
 7. Wykoff, M. H. : *Distribution of ^{137}Cs in the conceptus of the pregnant rat. Radiat. Res.*, 47, 628-634, 1971.
 8. Matsusaka, N. : *Uptake of ^{65}Zn in the mouse fetus as a function of gestational age. Radiat. Res.*, 69, 83-89, 1977.
 9. Zylicz, E., R. Zablotna, J. Geisler and Z. Szot: *Effects of DTPA on the deposition of ^{65}Zn , ^{60}Co and ^{144}Ce in pregnant rat and in foetoplacental unit. Int. J. Radiat. Res.*, 28, 125-136, 1975.
 10. 松坂尚典、品川邦汎：亜鉛欠乏状態における放射性物質の代謝と放射線感受性に関する研究、昭和63年度科学研究費補助金（一般研究C；課題番号61560333）研究成果報告書、1989.
 11. Nishimura, Y., J. Inaba, K. Watari and N. Matsusaka: *Conceptus uptake of the $^{106}\text{RuNO}$ -nitro complex in relation to gestational stages. J. Radiat. Res.*, 31, 110-118, 1990.
 12. Mahlum, D. D. and M. R. Sikov: *Distribution of cerium-144 in the fetal and newborn rat. Health Phys.*, 14, 127-129, 1968.
 13. Beno, M.: *The fetal uptake of cerium-144-praseodymium-144 after injection of its chelates to pregnant rat. Health Phys.*, 25, 575-580, 1973.
 14. Sikov, M. R. and D. D. Mahlum: *Cross-placental transfer of selected actinides in the rat. Health Phys.*, 14, 205-208, 1968.

1 日本人の線量評価のための人体ファントム

本郷昭三/山口 寛/竹下 洋
放射線医学総合研究所

岩井 敏 岩井 一男
三菱原子力工業 日本大学

Phantoms for Calculations of Absorbed Organ Dose

S. Hongo, H. Yamaguchi, H. Takeshita, S. Iwai* and K. Iwai**

National Institute of Radiological Sciences

4-9-1, *Anagawa, Inage-ku, Chiba* 263 Japan

* Mitsubishi Atomic Power INC., Omiya 300 *Japan*

** *Nihon-University, Tokyo* 101 *Japan*

ABSTRACT We have developed a computer code IDES (Internal Dose Estimation System). In this code, MIRD Transformation Method is used and / or photon simulation by Monte Carlo method is possible.

We have studied Japanese phantoms in two procedures of mathematical phantom and "symbol phantom". Our mathematical phantoms realize their height and body weights but do not hold some of organ weights, which were measured by TANAKA and KAWAMURA. The symbol phantom can solve this discrepancy and realize a realistic phantom, although it remains problems of authorization and normalization. Errors were estimated for internal dose calculations and it was pointed out that to use realistic organ weights and parameters of kinetics was important competitively to reduce uncertainty of the results.

1. はじめに

放射線被曝による、臓器線量を計算するためには、ある線源器官から発生した放射線のエネルギーがどの程度対象とする標的器官に吸収されたかを知る必要がある。

この吸収割合：AF(Absorbed Fraction)を求める方法には実験による方法、コンピュータ・シミュレーションによる方法の二通りある。ICRPではコンピュータ・シミュレーションで求められたAFをもちいて年摂取限度(ALI)等を算出している。筆者らは体格変換法をもちいて、日本人の線量を計算するシステムIDESを開発した。現在当システムは、さらにモンテカルロ計算により、AFを求めることが出来るシステムに成長している。

システムの概要を図1に示した。内部被曝の計算には体格変換法で十分な精度が得られるものと考えられるが、ICRPが計算していない条件での線量計算や体格変換法の精度裏付のためにも、出来るだけ日本人に近い人体ファントムが必要である。日本人の人体ファントムの表現法としてはシンボル・ファントムと数式ファントムがある。シンボル・ファントムの特徴は表現の自由度が大きく、臓器の大きさ、形、位置を容易に変更することができることにあるが、この特徴はひるがえって、日本人の平均的体格を表現するなどの、標準化の場合修正の終点が決めるのが難しい、ポータビリティ(コンピュータ間の移植性)が悪いと言う難点をもつ。今回は数式表現による。日本人数学ファントムを作成したのでその概要を述べる。

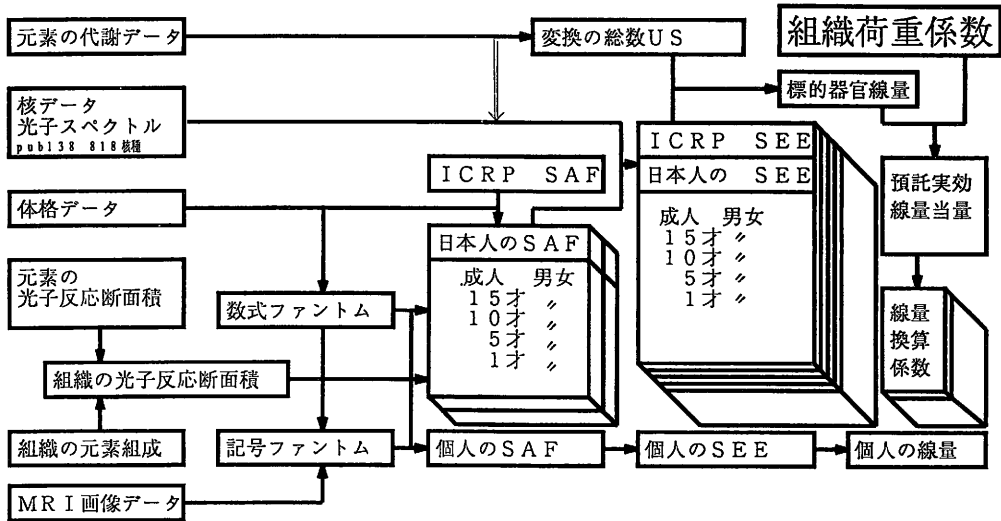


図1 線量計算システムIDESの概要

2. 作成の概要

作成には、放医研から発表された田中らの提案する Referrncece Japanese の体格データ、国勢調査の人口統計、厚生省の国民栄養調査等の最新のデータを総合的に用いた。体格、臓器

を表す数式については首の部分を除いて ORNL の Cristy ファントムを仮定しパラメータ

表1 人体ファントム作成に用いた日本人の臓器質量

Organ name	N. B.	1	5	10	15	ADULT
ADRENAL. M	4.3 ()	4.4 (40)	5.9 (54)	9.0 (51)	11.8 (30)	14.5 (43)
ADRENAL. F	4.5 ()	4.2 (37)	6.2 (50)	7.4 (43)	11.0 (34)	12.8 (41)
BRAIN. M	717.1 ()	1187.1 (15)	1388.5 (13)	1480.2 (12)	1465.4 (9)	1424.9 (8)
BRAIN. F	636.4 ()	1002.5 (28)	1226.8 (18)	1300.7 (14)	1320.7 (6)	1288.4 (8)
HEART. M	39.2 ()	61.6 (23)	105.2 (28)	174.1 (31)	276.7 (10)	354.1 (21)
HEART. F	29.9 ()	59.4 (26)	95.7 (33)	162.4 (18)	219.0 (26)	296.2 (22)
KIDNEY. M	47.3 ()	78.3 (45)	123.5 (55)	180.0 (32)	258.2 (24)	313.6 (34)
KIDNEY. F	47.6 ()	67.4 (43)	96.7 (34)	182.9 (16)	249.9 (27)	264.3 (37)
LIVER. M	262.1 ()	414.1 (30)	593.7 (29)	869.8 (22)	1235.0 (17)	1497.4 (23)
LIVER. F	234.3 ()	356.8 (34)	499.7 (30)	868.3 (20)	1082.2 (26)	1280.7 (26)
LUNG. M	127.1 ()	215.1 (43)	292.0 (41)	504.8 (14)	1022.6 (21)	1146.3 (45)
LUNG. F	112.8 ()	200.7 (36)	287.2 (46)	435.3 (39)	675.8 (26)	854.8 (43)
TESTS	2.8 ()	3.0 (160)	3.3 (40)	6.8 (86)	28.9 (46)	35.7 (42)
PANCREAS. M	12.1 ()	33.6 (74)	40.6 (35)	64.5 (35)	101.7 (26)	129.4 (28)
PANCREAS. F	17.3 ()	23.4 (28)	37.4 (22)	58.8 (23)	86.1 (21)	108.6 (27)
SPLEEN. M	22.4 ()	44.6 (70)	56.0 (58)	80.1 (29)	120.4 (30)	118.6 (43)
SPLEEN. F	19.0 ()	31.0 (34)	57.0 (38)	76.8 (31)	92.7 (45)	106.5 (44)
THYMUS. M	23.7 ()	22.1 (74)	25.3 (38)	41.5 (43)	34.9 (33)	28.8 (55)
THYMUS. F	21.9 ()	21.8 (47)	16.1 (61)	26.8 (25)	27.7 (72)	23.4 (44)
THYROID. M	2.2 ()	3.0 (53)	4.2 (35)	6.4 (33)	15.8 (28)	18.8 (33)
THYROID. F	2.4 ()	3.5 (106)	5.1 (24)	8.9 (36)	13.5 (20)	16.4 (36)
HIGHT. M	67.2 ()	84.7 (5)	110.3 (4)	138.9 (5)	165.7 (4)	166.1 (4)
SIGHT. M	43.8 ()	50.9 (6)	62.1 (4)	75.4 (5)	88.7 (4)	88.0 (4)
BODY. W. M	8.1 ()	12.0 (13)	19.2 (14)	34.6 (22)	55.8 (16)	62.5 (14)
HIGHT. F	65.9 ()	83.8 (6)	109.4 (5)	139.5 (5)	156.4 (3)	152.5 (4)
SIGHT. F	43.0 ()	50.2 (8)	61.8 (4)	75.4 (5)	88.7 (4)	82.2 (4)
BODY. W. F	7.8 ()	11.3 (13)	18.8 (15)	34.3 (20)	49.5 (13)	51.8 (15)

()内は相対標準偏差を%で表示 .M.F はそれぞれ男性、女性

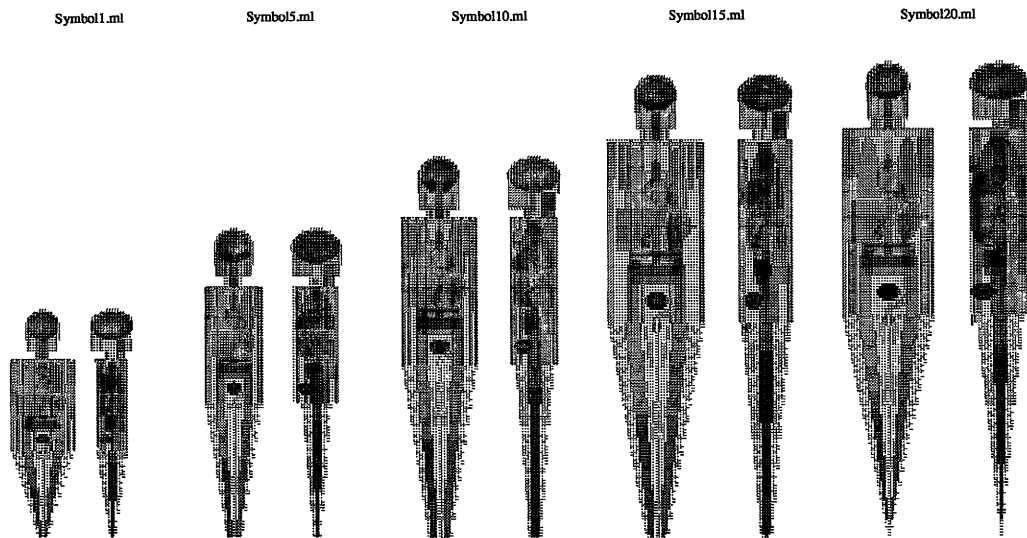


図2 線量計算のために作成した日本人男性ファントム

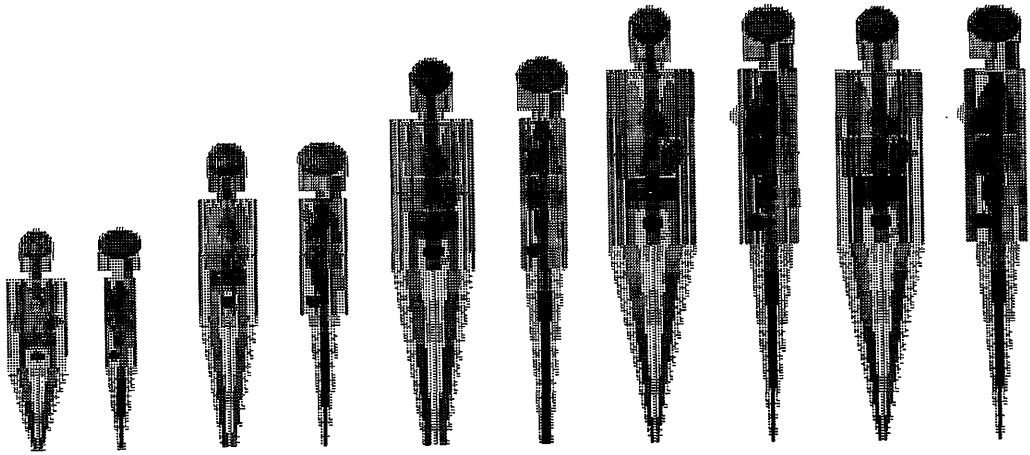


図3 線量計算のために作成した日本人女性ファントム

だけを変化させて対応させることとした。集められたデータは左右の臓器のあるものは合計し、人口統計で重みつけて ORNL の年齢区分に変換した。表1にその結果を示す。外形を日本人の体形に合致させることを目的として、以前に作成した第一次近似ファントムは体重、身長、座高を日本人の値にし、頭部(頭長、重さ)を BARAIN の質量から推定し、胸幅は胸厚を越えない、足部の質量は胴体のそれを越えない、胸幅、胸厚は ORNL の成人を越えない、等の条件から、体格記述パラメータを決定した。次に個々の臓器の記述パラメータを変化させてファントムを決定する予定であったが、日本人の体重、身長は ORNL のそれより小さいにもかかわらず、臓器質量は ORNL のそれより大きいものが多いため臓器の記述パラメータを変化させると、臓器と臓器が重なりあったり、体内からはみだしたファントムを決定することが不可能であった。そこで、今回は胴体の部分をできるだけ大きくし、身長、体重、臓器質量が出来るだけデータと整合するように試行錯誤を繰り返した。その結果、得られた日本人の男性、女性の人体ファントムを図2、3に示した。

3. 臓器線量計算の推定誤差

比実効エネルギー (Specific Effective Energy: S E E)

は次式で求められる。

$$\begin{aligned}
 S E E (T \leftarrow S) &= \sum_i Y_i \cdot E_i \cdot S A F (T \leftarrow S)_i \cdot Q_i \\
 &= \sum_{np} Y_{np} \cdot E_{np} \cdot S A F (T \leftarrow S)_{np} \cdot Q_{np} \\
 &+ \sum_p Y_p \cdot E_p \cdot S A F (T \leftarrow S)_p \cdot Q_p \\
 &= \sum_{np} N_{np} \cdot A F (T \rightleftharpoons S)_{np} / M T
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \sum_p N_p \cdot A F (T = S)_p / MT \\
& + \sum_p N_p \cdot A F (T \neq S)_p / MT \cdots (1)
\end{aligned}$$

ここで

Y_i : 変換当たりの種類 i の放射線の放出割合,

E_i : 放射線 i の平均あるいは単一エネルギー

Q_i : 放射線 i の線質係数

Y_{np} : 変換当たりの非透過性放射線の放出割合,

E_{np} : 非透過性放射線の平均あるいは単一エネルギー

Q_{np} : 非透過性放射線の線質係数

Y_p : 変換当たりの透過性放射線の放出割合,

E_p : 透過性放射線の平均あるいは単一エネルギー

Q_p : 透過性放射線の線質係数

MT : 標的器官の質量

$$N_{np} = Y_{np} \cdot E_{np} \cdot Q_{np}$$

$$N_p = Y_p \cdot E_p \cdot Q_p$$

預託線量当量は次式で求められる。

$$\begin{aligned}
HT &= C \times \sum U_s \times SEE (T \leftarrow S) \\
&= C \times \{ U_T \times \sum N_{np} \cdot A F (T \neq S)_{np} / MT \\
&\quad + U_T \times \sum N_p \cdot A F (T = S)_p / MT \\
&\quad + \sum U_s \times \sum N_p \cdot A F (T \neq S)_p / MT \} \\
&= H_{np} + H_p (T = S) + H_p (T \neq S) \cdots (2)
\end{aligned}$$

ここで

$$C : 1.6 \times 10$$

HT : 標的器官 T における預託線量当量

U_s : 線源器官 S 中の変換の総数

U_T : 標的器官 T 中の変換の総数

臓器線量計算の推定誤差の二乗は

$$\begin{aligned}
\delta HT^2 &= H_{np}^2 [\delta U_t + \delta_{np}^2 + \delta_u^2 T + \delta^2 MT] \\
&\quad + H_p (T = S)^2 [\delta U_t + \delta_p^2 + \delta^2 \Phi T + \delta_u^2 T + \delta^2 \Phi T + \delta^2 MT] \\
&\quad + H_p (T \neq S)^2 [\delta U_s + \delta_p^2 + \delta^2 \Phi_s + \delta_u^2 S + \delta^2 \Phi_s + \delta^2 MT] \\
&\quad \cdots (3)
\end{aligned}$$

ここで

$$\sigma_{U_t} = (\delta U T / U T)^2 \dots\dots\dots (4)$$

$$\sigma_{u T} = (\delta U T / U T)^2 \dots\dots\dots (5)$$

$$\sigma_{U_s} = (\delta U_s / U_s)^2 \dots\dots\dots (6)$$

$$\sigma_{u S} = (\delta U_s / U_s)^2 \dots\dots\dots (7)$$

$$\sigma_{M T} = (\delta M T / M T)^2 \dots\dots\dots (8)$$

$$\sigma_{n p} = (\delta N_{n p} / N_{n p})^2 \dots\dots\dots (9)$$

$$\sigma_{\Phi T} = (\delta A F (T = S)_p / A F (T = S)_p)^2 \dots\dots\dots (10)$$

$$\sigma_{\phi T} = (\delta A F (T = S)_p / A F (T = S)_p)^2 \dots\dots\dots (11)$$

$$\sigma_{\Phi_s} = (\delta A F (T \neq S)_p / A F (T \neq S)_p)^2 \dots\dots\dots (12)$$

$$\sigma_{\phi_s} = (\delta A F (T \neq S)_p / A F (T \neq S)_p)^2 \dots\dots\dots (13)$$

となる。

内部被曝では誤差要因として、生体内代謝の個人変動(式4、6)、体内代謝異常による変動(式5、7)、放射線データの誤差(式9、10)、モンテカルロ計算に由来する変動(式10、12)、体格の違いによる線量値の変動(式11、13)、臓器質量の固体差(式8)、が関与する。式11、13に対する変動は体格変換法から導くことができ

$$\sigma_{\phi T} = q(\delta m / m) \dots (14)$$

$$\sigma_{\phi_s} = 4(\delta X_g / X_g) \dots (15)$$

ここで

q : 体格変換法における変換係数 = 0.3

m : 標的器官の質量

Xg : 体格変換法における実効臓器距離

核医学診断での医薬品である Se-75 セレノメチオニンを例にとり、患者個人に対する線量を、MIRDのファントム上での計算値であるとしたら、どれほどの誤差になるかを推定した。式5、7は利用できるデータが見当らず評価対象外とした。他の式の値は文献値から求めた。数値計算の結果は以下の通りである。甲状腺については、全体の誤差に対して、各誤差が占める割合が体内代謝の個人変動が29%、放射線データの誤差0.09%、体格の違いによる線量値の変動が2.74%、臓器質量の固体差が59.6%となった。他の器官の結果等総合すると、(イ)肝臓のような大きい臓器でしかも放射能が高い場合には、肝臓への線量の確からしさは肝臓の質量の推定精度が大きく効く、(ロ)中程度の大きさの臓器では、生体内代謝の個人変動による誤差と臓器質量の誤差が競合するように効いてくる、(ハ)卵巣、こう丸のような小さな臓器では(ロ)の要因に加えてモンテカルロ計算に由来する変動要因が効いてくる。以上の結果から臓器質量の精度の重要さが示された。

4. 結果と考察

第一次近似日本人ファントムとして外形から定めた数式ファントムでは、作成したファントム臓器質量は統計データより小さかった。今回はそれを踏まえ首の部分を変更し胴体に加えるなどの工夫をおこなったが、改善はあったもののやはりファントムの臓器質量は統計データより小さいままであった。数式表現では胴体にぎっしり臓器を詰め込むことができず、今回の近似が限界であろうと思われる。内部被曝の線量評価では自己吸収の影響が最も大きいため、適切な臓器質量の値を使えば、体格変換法で十分な精度が得られよう。さらに高い線量評価精度が必要な場合、全身MRI等医療画像から3-Dの個人ファントムを作り、ファントムの出力形態をシンボル化することにより、インビボでの臓器質量の高精度の推定が可能になる。このファントムを用いてモンテカルロ計算から、線量計算すれば最も精度が得られる。また、モンテカルロ計算コードをもたない治療現場等でも、エネルギー付与過程(AF)はある程度の精度の日本人の数学ファントムを用いてモンテカルロで求めて置き、シンボル個人ファントムから得られる臓器質量でそれらを除すれば、かなり精度の高い線量推定値がえられると考えられる。その他、医療機器の校正等、の意味で正確な人体ファントムが必要とされる場合も、シンボル・ファントム等画像化手法を取入れた人体ファントムが有効であろう。IDESの計算手法は他の計算システムと同様であるが日本人の体格に相当する線量を計算する唯一のシステム(現在ではPIDECにも採用されている)である。関係研究者が利用できる開放型のシステムにするべく、70%程度がunixに翻訳され、電話回線等、当研究所以外からも利用可能となりつつある。

参考文献

- 1) International Commission on Radiological Protection: Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. ICRP Publication 30, Pergamon Press, Oxford(1979)
- 2) Yamaguchi, H., Kato, Y. and Shiragai, A. The Transformation Method for the MIRD Absorbed Fractions as Applied to Various Physiques., Phys. Med. Biol. 20, 593-601, 1975.
- 3) Yamaguchi, H. Estimation of Internal Radiation Dose for Various Physiques Using MIRD Adult Absorbed Fractions., Acta Radiol., 17, 429-439, 1978.
- 4) Yamaguchi, H. Nishizawa, K., Maruyama, T., Chiba, M., Fukuhisa, K. and Hashizume, T. A Computer Program to Calculate MIRD tables for Japanese Physiques. Hoken Butsuri, 18, 43-48, 1983.
- 5) Hongo, S., Yamaguchi, H. and Takeshita, H. An Estimation of Effective Dose Equivalent for Japanese Children - Internal Dose Estimation System for a personal computer and its application-, Proc. of the 11-th NIRS Seminar on "Exposure from

radioactive substances and its control", NIRS-M-55, 33-42, 1983.

- 6) 本郷昭三、山口 寛、竹下 洋：体内被曝線量評価コードの開発の現状、日本保健物理学会体内被曝線量評価コード専門委員会
- 7) Yamaguchi, H., Hongo, S., Takeshita, H., Maruyama, T. and Chiba, M.: Three dimensional digital representation of human phantom for organ dose calculation. (1) Hoken Butsuri, Vol.19, pp. 215-218 (1984), (2) Proc. of the XIV International Conference on Medical and Biological Engineering and VII International Conference on Medical Physics, pp. 528-529, ESPOO, Finland (1985).
- 8) 田中義一郎：Reference Japanese Vol.1 Anatomical Data, Sefty Analysis Report, NIRS-M-85, 1992.
- 9) Cristy, M. and Eckerman, K. F. : Specific Absorbed Fractions of Energy at various Ages from Internal Photon Sources.
 - I. Method, ORNL/TM-8381/V1,
 - II. One-Year-Old, ORNL/TM-8381/V2,
 - III. Five-Year-Old, ORNL/TM-8381/V3,
 - IV. Ten-Year-Old, ORNL/TM-8381/V4,
 - V. Fifteen-Year-Old and Adult Female, ORNL/TM-8381/V5,
 - VI. Newborn, ORNL/TM-8381/V6,
 - VII. Adult Male, ORNL-8381/V7,Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge (1987)
- 10) Dillman, L.T. and Von der Lage, F.C.: Radionuclide Decay Schemes and Nuclear Parameter for Use in Radiation Dose Estimation. MIRD Pamph. No.10. Society of Nuclear Medicine, New York (1975)
- 11) Henrichs, K. and Kaul, A.: Dosimetry of Internal Emitters, Dietrich Reimer Verlag, Berlin (1982)
- 12) International Commission on Radiological Protection: Report of Task Group of Reference Man. ICRP Publication 23, Pergamon Press, London (1974)
- 13) International Commission on Radiological Protection: Radiation Dose to Patients from Radiopharmaceuticals, ICRP Publication 53, Pergamon Press, Oxford (1988)
- 14) Jones, R. M., Poston, J. L., Hwang, J. L., Jones, T. D. and Warner, G. G.: The development and use of a fifteen years-old equivalent mathematical phantom for internal dose calculation. ORNL / TM-5278, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge (1976)
- 15) Kramer, R., Zankl, M., Williams, G. and Drexler, G.: The calculation of dose from external photon exposures using reference human phantoms and Monte Carlo

methods, Part 1: The Male(Adam) and female(Eva) adult mathematical Phantoms. GSF-Bericht S-885. Gesellschaft für Strahlen-und Umweltforschung mbH, München (1982)

- 16) Snyder, W. S., Ford, M. R., Warner, G. G. and Fisher, Jr. H. L.: Estimation of Absorbed Fraction for Monoenergetic Photon Source Uniformly Distributed in Various Organs of a Heterogeneous Phantom. MIRD Pamphlet No.5. Society of Nuclear Medicine, New York (1969)
- 17) Snyder, W. S. and Cook, M. J.: Preliminary indications of the age variation of the specific absorbed fraction for photons. Health Physics Division Annual Progress Report ORNL-4720, pp. 116-120. Oak Ridge National Laboratory.

2 放射性セシウムによる内部被曝線量推定とファントム

内山正史

放射線医学総合研究所

Estimation of Internal dose from radiocesium and phantom.

Masafumi Uchiyama

National Institute of Radiological Sciences

4-9-1 Anagawa Inage-ku Chiba 263.

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

A relationship between counting efficiency and body size was analyzed on ^{137}Cs incorporated into the whole body using a set of phantoms. Four sizes covering average Japanese physiques from infant to adult male, were chosen to prepare an anthropomorphic phantom System. Some hollow containers which simulated body segments were made from polyvinyl chloride and assembled to use as the phantom. The distribution of ^{137}Cs in aquatic solution was homogeneous through the phantom. A whole-body counter at the National Institute of Radiological Sciences, which had two 8 x 4 inch NaI(Tl) detectors sandwiching the subject, were used at a rate of 5 cm per minute in a scanning mode. The measurements were carried out in an iron room. Relations were

analyzed between counting efficiency and some anthropometric parameters. The best fit was given by a linear equation of both reciprocals of height in cm and weight in kg, with a correlation coefficient of 1.00.

The result was comparing with that from another whole-body counter that used 8 detectors in a static mode.

1. 緒 言

環境に放出された放射性核種による公衆の集団内部被曝を推定する場合には、環境中での放射性核種の挙動と共に、線源の社会経済学的移動及び人口動態から構成される複雑な線量算定モデルが一般に使用される。この計算結果の妥当性は検証されるべきものである。このような検証はモデルのいくつかの主要な段階で可能である。

放射性核種の人体中の放射能を知る方法は、人体の直接測定（直接法）と組織中濃度、排泄量ないし摂取量あるいは環境物質中の濃度の測定値から推定する間接的な方法（間接法）に大別される。数値の正確さ、適用できる対象人数、経費その他の要因を考慮すると、この2つの方法を場合により使い分け、あるいは併用して、内部被曝線量の推定を行うべきであろう。しかしある集団について間接法を用いて放射性核種による人体の放射能を推定した場合には、その構成員を直接法で測定することにより推定値の妥当性を評価することが望ましい。

放射性核種の体内量の段階での評価は内部被曝を推定する場合、線量推定過程に最も近い段階で線量推定モデルの妥当性を検証することになる。直接法による体内量評価の確立が重要で、緊要である由縁である。

公衆は年齢や体格、性、居住地域、食習慣などに大変に違いのある人達により構成されている。この集団について内部被曝線量を適切に推定するには、構成員の体内の放射性核種の放射能を正しく測定ないし、推定しなければならない。

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

放射性セシウムは壊変して、 β 線と γ 線とを放出する。この γ 線を被検者の体外においた放射線検出器で検出することができる。被検者の体内にある放射能は、その計測値を適切に作成された標準線源から放出される γ 線の測定値と比較して、校正することにより評価される。人体の立体構造は単純ではないので、 γ 線の放出方向もきわめて複雑である。的確な校正値を得るためには人体の形状を十分に近似した標準線源を使用することが肝要である。この標準線源をファントム（人体模型）と言う。

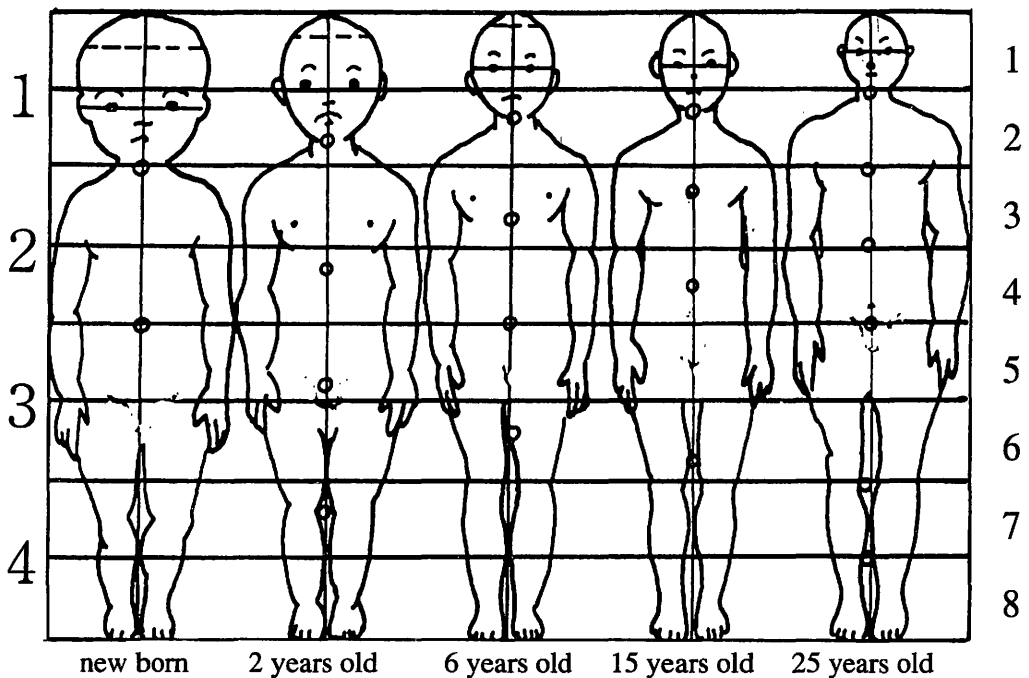


Fig.1 Balance of body segments in various ages (Redrawn from Matsuo and Morita, 1974)
 松尾保、守田哲朗共著「乳児栄養学」を修正して引用

図1に示したように身体各部位の比率は成長の過程により変化する。これらの比率の個人差に対する配慮は必要であるが、本研究では、平均的体格を持つ日本人の体内量の校正に目標を限定した。5ヵ月齢児から成人までを近似する4種類のサイズの放射性セシウム及びカリウムのファントムが作成された。放射線医学総合研究所(放医研)のホールボディカウンタ(WBC)でこれらのファントムの計数効率を実験的に決定し、ファントムの体格、とくに容易に測定できるパラメータとの関係が解析された。本稿ではセシウム137のファントムについての解析結果について記す。

2. セシウム137の体内分布とファントム

臓器規模で巨視的に比較すると、セシウム137の濃度は全身を構成するどの臓器にもほぼ均一に分布する。WBCで人体内のセシウム137の測定を行う場合にも、 γ 線検出器の視野に入る部位のセシウム137の分布はやはり巨視的には均一と考えてよい。したがって校正に用いるファントム中のセシウム137は、均一濃度で全身に分布していなければならない。このような条件を満たし、その上取扱いの簡便性、安全性さらには経済性等を考慮するため作成されるファントムの材質、使用する線源の形状は多岐にわたっている。

3. 本研究で作成されたファントム

塩化ビニルを熱成形して身体の各部位を近似した中空の容器に、セシウム 137 水溶液を充填したファントム(人体形結合型ファントム)を作成した。ファントムの体格は、成人男子用以外は 1978 / 81 年に既成服(ユニフォーム)作成のために行われた調査報告(1)を参考に決定した。(1)に明記されていないがファントムの作成に不可欠の数値、例えば横幅と矢状径との比については文献(2)を参照して数値を推定した。ファントムの形状が人体に近いほど、適切な校正を行うことができる。しかし、塩化ビニルの加工上の難点から、各部位の形状は直方体と半円柱の組合せ、円錐台あるいは円柱に限らなければならなかった。このため組み上げたときの総重量もモデルにした年齢の記載値といくらか異なっていた。長さ方向についての加工の難点はなかったため、身長に関してはモデルに合わせることができた。5 カ月齢児と成人男子ファントムについて各部位の重量構成を表 1 に示した。

Tab.1 Weight of Body Segments of Phantoms for Different Ages.

5-month phantom (unit kg)			Male adult phantom (unit kg)		
Segments	weight, without solution	weight, with solution	Segments	Weight, without solution	Weight, with solution
Head	0.55	2.40	Head	1.63	6.82
Trunk	1.07	6.03	Chest	2.07	12.41
Right Thigh	0.23	0.55	Waist	1.71	9.87
Left Thigh	0.23	0.55	Abdomen	2.21	13.57
Right Lower Leg	0.14	0.23	Right Thigh	1.25	4.96
Left Lower Leg	0.14	0.23	Left Thigh	1.25	4.72
Right Arm	0.22	0.44	Right Lower Leg	0.94	2.45
Left Arm	0.22	0.44	Left Lower Leg	0.89	2.42
Weight in total	2.80 (16.56%)	10.87	Right Arm	1.30	3.59
			Left Arm	1.31	3.55
			Weight in total	14.60 (22.68%)	64.36

In Parenthesis, ratios of weight of phantom without solution to that in total were indicated in %.

Tab.2 Physique and Radioactivity of ¹³⁷ Cs of Phantoms.

Age	Height	Weight	Radioactivity
5-monthes-old	66.5 ^{cm}	10.9 ^{kg}	1151 ^{*1} Bq
6 years old	119	25.8	2818 ^{*1}
11 years old	146	42.6	4857 ^{*1}
Adult Male	162	67.0	1216 ^{*2}

*¹ As of 9 August 1990

*² As of 4 August 1990

Specific gravity of phantom 1.08

作成した4種類ファントムの身長、重量と封入したセシウム137の放射能を表2に示した。なお、塩化ビニルの比重とファントムに使用されている容器重量および容器に充填したセシウム137水溶液重量から算出したファントムの比重は1.08で、ICRPのReference Manの1.07(3)との差は計数効率に影響しない程度であった。アクリル樹脂は相対的に加工が容易であり、人体計測学的に正しく再現されたファントムを作成することができる。このようなファントムを人体計測学的ファントムと言う。被検者の体内量の校正をさらに正確に行えるものと期待される。

4. 計数効率の測定

放医研にあるWBCの一つは8インチ径×4インチ厚の対向する1対のNaI(Tl)検出器を備え、走査法で体内の放射能を計数する。以下このホールボディカウンタをWBC-Aと称する。仰臥位のジオメトリでセシウム137を充填したファントムを頭頂から足まで、5cm/分の定速で走査する条件で放出されるγ線を計測して、計数効率を求めた。水を充填したファントムを同一条件で測定して、バックグランド(BG)を評価した。WBC-AについてBGの変動の2倍で定義したセシウム137の検出限界は、20Bqである。

5. 結果と解析

実際の定量に簡便に適用するには、WBCによる測定前に被検者について測定する身長あるいは体重と、計数効率の定量的関係を解析するのが適切と考えられる。

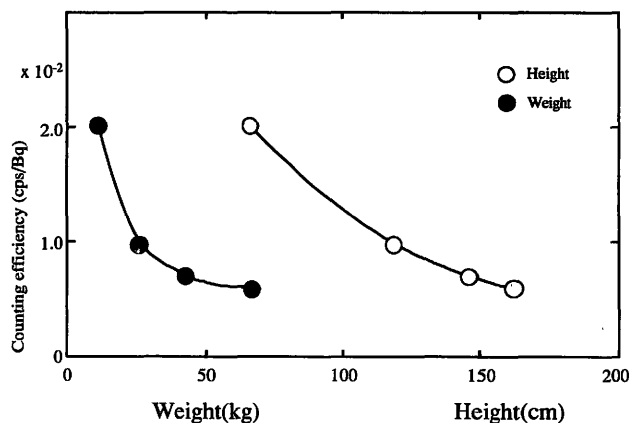


Fig.2 Relationship between Counting Efficiency and Height or Weight.

図2に計数効率と体重あるいは身長との関係を示した。

それぞれの体格パラメータの逆数、あるいは対数への計数効率の回帰を図3と図4に示した。

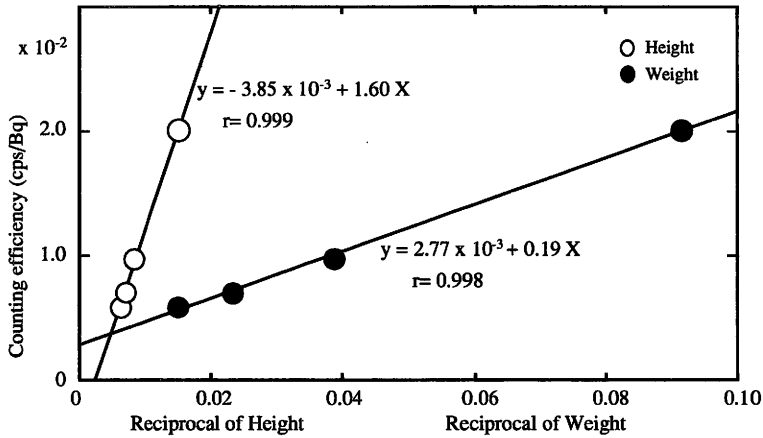


Fig.3 Relationship between Counting Efficiency and Reciprocal of Height or Weight.

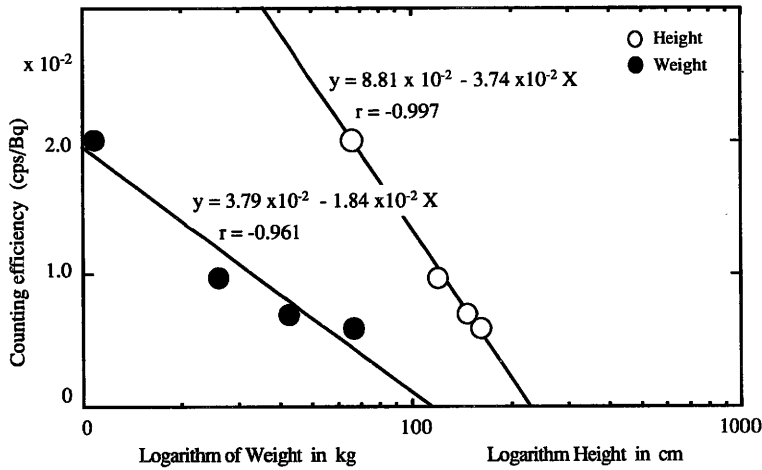


Fig.4 Relationship between Counting Efficiency and Logarithm of Height or Weight.

被検者についてこの2つの体格パラメータの組合せに個人差が大きいことを考慮に入れると、対応できるパラメータの組合せと計数効率への回帰を解析する必要があるであろう。cm表示の身長をH、kg表示の体重をW、cps/Bq表示の計数効率をYで表すと、H及びWそれぞれの逆数へのYの多変数直線回帰は次式で表された。

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

身長と体重の比、あるいはその平方根への計数効率の回帰についても検討した。これらのセシウム-137の計数効率の体格パラメータへの回帰の結果を表3に示した。計数効率の体重/身長あるいはその平方根への回帰が相対的に劣っていた。その他のパラメータへの回帰には大きな違いはないものの、体格に対応する計数効率の推定は(1)式を用いるのがより適切であると結論する。

6. 検出系と計数効率

検出系が異なれば、計数効率の体格パラメータへの回帰は異なることが多い。放医研には8×4 inch NaI(Tl)検出器を被検者から等距離に上下に4個ずつ取り付けて、検出器を固定したままで測定するWBC(WBC-B)がある。WBC-Bで前出の4ファントムを測定して得た計数効率に対するWBC-Aの計数効率は、5カ月齢の45%から成人男子の23.1%であった。両検出系で異なる検出器の視野と体格との関係が、計数効率の違いに明白に現れていた。

7. 結語

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

引用文献

- (1) 日本人の体格調査報告書-既製衣料の基準作成のための-(1978年~1981年)通商産業省工業技術院 日本規格協会 JIS衣料サイズ推進協議会(1984)
- (2) 松尾保、守田哲朗共著 乳児栄養学 医歯薬出版(昭和49年)
- (3) ICPR Pub. 23, Pergamon Press, Oxford (1975).

3 環境放射線による集団実効線量の推定

丸 山 隆 司

放射線医学総合研究所

Estimation of collective effective dose equivalent from environmental radiation and radioactive materials in Japan - a preliminary study -

Takashi Maruyama

Advisory Director, National Institute of Radiological Sciences

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

ABSTRACT- The peaceful uses of nuclear power and radiations have been developed into a stage of practical applications for human life. Radiation causes harmful effects to human beings, although human beings receives a number of invaluable benefits from the nuclear energy and the uses of radiation. In order to examine the optimisation of radiation protection in these practices, collective effective dose equivalent from environmental exposures due to natural and artificial radiations have been preliminarily evaluated using most recent data. The resultant collective doses were compared with those from medical and occupational exposures. It is noted that, in Japan, the collective effective dose from environmental radiation sources can be approximately same to that from medical exposure.

1. はじめに

X線および放線線が発見されてから、100年が経過しようとしている。この100年の間に、人類はX線以外に種々の放射線を発見し、それらを医療や産業の分野で役立ててきた。また、1942年にフェルミが原子炉を発見した。このときから、原子力という新しいエネルギーの利用が始まった。原子炉の利用により、比放射能の高い、多くの種類の放射性物質がつくられるようになった。第2次大戦後は、原子力、放射線および放射性物質の利用が盛んになり、一般

公衆は、自然放射線及び自然放射性物質からの被曝に加えて、あらたに人工放射線源や人工放射性物質からの被曝の可能性をもつことになった。

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

2. 集団線量

2. 1. 集団線量の定義

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

ICRP-26(1977年)¹⁾では、集団線量 S 、は次式で定義された。

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

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

しかし、ICRP-60(1990年)²⁾では、特定の臓器・組織 T における集団等価線量 S_T を次式で定義した。

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

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

等価線量 S_T は次式でも定義される。

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

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

また、集団実効線量、 S は次式で定義されている。

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

ここで、 E_i は集団のサブグループ i の平均実効線量である。

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

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

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

Table 1 Tissue weighting factors recommended by ICRP

Organ	Weighting factors	
	ICRP 60 (1991)	ICRP 26 (1977)
Gonads	0.20	0.25
Bone marrow(red)	0.12	0.12
Colon	0.12	—
Lung	0.12	0.12
Stomach	0.12	—
Bladder	0.05	—
Breast	0.05	0.15
Esophagus	0.05	—
Liver	0.05	—
Thyroid	0.05	0.03
Skin	0.01	—
Bone surface	0.01	0.03
Remainder	0.05	0.30

組織荷重係数は表1のように勧告されている。

実効線量当量及び実効線量は、いずれも直接測定できる線量ではなく、上に示した数式によって間接的に算出される線量である。われわれは、前回³⁾ファントム実験により、種々の実効エネルギーの光子ビームについて、臓器・組織線量を測定し、ICRPの勧告に従って実効線量当量を決定した。Petoussiら⁴⁾は、環境ガンマ線による臓器・組織線量を胎児、乳幼児、小児および成人について、モンテカルロ法を用いて計算している。原研の山口は、やはりモンテカルロ法を用いて種々のエネルギーの光子について、実効線量当量と実効線量を求め、両者の比較を行っている⁵⁾。Zanklら⁶⁾は、ICRPが勧告している標準人の体格に一致した数学的ファントムを用いて、モンテカルロ法により実効線量当量と実効線量を計算している。環境放射線被曝に利用するため、空気中に存在する半無限の均質容積線源、地上の深さ 0.5g cm^{-2} までに存在する半無限平面線源などによる地上1 mにおける実効線量当量および実効線量を自由空気中の空気カーマの比として表した。このように、環境放射線の外部被曝による実効線量当量および実効線量については、実験や計算データが利用できる。

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

3. 環境放射線のソースターム

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

3. 1. 外部被曝

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

3. 1. 1. 自然放射線源

a. 宇宙線

1次宇宙線と2次宇宙線からなる。宇宙線による線量は、電離成分と中性子成分について

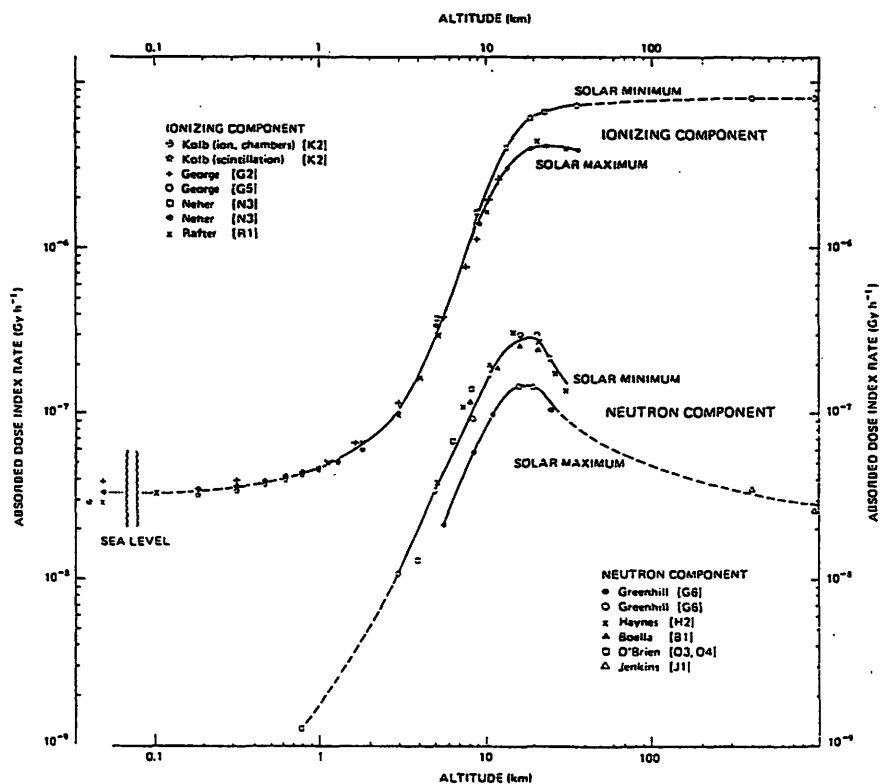


Fig. 1 Absorbed dose index rates at high geomagnetic latitudes from the ionizing and neutron components of cosmic rays at different altitude for 1969 and 1965.

別々に考える。ジェット機で測定した0-12 kmの範囲の空気中の吸収線量率は、緯度による変化は小さいが、高度による変化が大きいことを示している電離成分と中性子成分からの年間実効線量当量の高度による変化は図1に与えられている⁷⁾。宇宙線に対する住居等の遮蔽についてオランダや旧ソ連の測定データがあるが、国連科学委員会は、電離成分に対する家屋の平均的遮蔽係数として0.8を用いている。海面レベルに住む世界の人々が電離成分から1年間に受ける平均の実効線量当量を一人あたり約240 μ Svと推定している。中性子については、線質係数を従来値の2倍とし、家屋の遮蔽係数を無視すれば、海面レベルで一人あたり年あたり約40 μ Svになるとしている。

b. 大地からの放射線

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

(i) 屋外被曝: 土壌中の放射能、特にその基となる岩石の放射能濃度に直接関係すると考えられる。土壌中の⁴⁰K、²³⁸U及び²³²Th放射能濃度とそれに対応する地上1 mでの空気吸収線量率を表2に示す。世界の多くの国で自然放射線による屋外での線量率の測定が行われている。それらのデータに基づいて推定された世界の平均値は、約50nGyh⁻¹である。

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

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

a/ The typical range is given within brackets.

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

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

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

3. 1. 2. フォールアウトからの放射線

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

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

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

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

3. 1. 3. 原子力・放射線源の利用からの放射線

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

3. 1. 4. 雑線源からの放射線

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

3. 2. 内部被曝

3. 2. 1. 自然放射性物質

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

a. ^{40}K : 成年男子の体重1kgあたり約2gのカリウムが含まれている。 ^{40}K の同位体比は

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

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

1.18×10^{-4} であり、平均放射能濃度は約 60Bq kg^{-1} である。国連科学委員会は、 ^{40}K による年間実効線量当量を一人あたり平均で $180\mu\text{Sv}$ と推定している。

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

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

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

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

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

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

3. 2. 2. 石炭によるエネルギー生産

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

3. 2. 3. その他のエネルギー生産

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

3. 2. 4. リン鉱の利用

3. 3. フォールアウト

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

3. 4. 原子力・放射線源利用施設からの放射性物質

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

3. 5. 国連科学委員会報告

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

4. 集団実効線量当量の推定

われわれの回りには数多くの放射線源が存在し、微量とはいえ日夜、身体の外と内から被曝の洗礼を受けているのである。これらの放射線源からの被曝を、個人個人について測定・評価することはある程度は可能かも知れない。外部被曝については、身体の外に装着した特殊な個人線量計により被曝線量を測定し、なんらかの換算係数を乗ずれば原理的には実効線量当量が算定できるであろう。飲食物や大気などから個人が摂取した放射能をすべて測定・評価できるならば、内部被曝による実効線量当量の算定は可能のように思われる。しかし、このような線量評価をすべての個人について実行することは不可能である。そこで、食・住などの生活環境や職業・趣味などが類似したグループを対象に集団実効線量当量などを推定し、それらを環境被曝のメルクマールにする方法が用いられることになる。

すでに述べたように、環境被曝を引き起こす線源は種々雑多である。外部被曝の場合、同一種類の線源であっても、場所と時間、遮蔽などの付加的条件等いろいろな因子によって、自由空間中の被曝線量でさえも異なる。内部被曝にいたっては、同一食事をとったとしても、個人の消化吸收能力など生物学的特性によって、摂取する放射能には相違が生ずる。環境被曝からの集団実効線量当量などは(1) - (4)式によって求められるとする。

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

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

ここで、

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

$f_i(t)$: 状態 i の遮蔽係数、時刻 t における遮蔽状況による

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

$P_i(t)$: 時刻 t において状態 i に Δt 時間生活する線量別人口 (人口分布関数)、

{人 / (10^{-6} Sv h)}

4. 1. 外部被曝

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

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

遮蔽がない場合には、 $f_i(t) = 1$ (屋外の滞在時間について) とする。 (7)

ここで、 d : 家屋などの遮蔽の厚さ (m)

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

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

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

4. 2. 内部被曝

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

大気中 (吸入摂取の場合):

$$K:D \text{ } {}_{i, n}^j(t) = \sum_n C_n^i(t) Q_i (DF) {}_{i, n}^j \quad (8)$$

大気中 (経口摂取の場合):

$$K:D \text{ } {}_{i, n}^j(t) = \sum_n C_n^i(t) (DF) {}_{i, n}^j \sum_l f_{l, j} Q_l \quad (9)$$

水系中 (飲料水として経口摂取の場合):

$$M:D \text{ } {}_{i, n}^j(t) = \sum_n C_n^i(t) Q_i (DF) {}_{i, n}^j \quad (10)$$

水系中 (食料品として経口摂取の場合):

$$M:D \text{ } {}_{i, n}^j(t) = \sum_n C_n^i(t) (DF) {}_{i, n}^j \sum_l f_{l, j} Q_l \quad (11)$$

大気中 (食料品として経口摂取の場合):

$$T:D \text{ } {}_{i, n}^j(t) = \sum_n C_n^i(t) (DF) {}_{i, n}^j \sum_l f_{l, j} Q_l \quad (12)$$

人体中

$$N:D \text{ } {}_{i, n}^j(t) = \sum_n C_n^i(t) Q_i (DF) {}_{i, n}^j \quad (13)$$

ここで、 Q は摂取量、 l は食料品、 m は臓器・組織、 i は線源の各種別を意味している。 DF は線量算出係数で、次式で表される。

$$(DF) {}_{i, n}^j = K E_n^i W_{n, m}^j \quad (14)$$

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

$$S_m = \sum_i \int_0^T dt \int_0^\infty \sum_n D \text{ } {}_{i, n}^j(t) P_j(t) dD \quad (15)$$

4. 3. 線量推定に関連する因子

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

4. 3. 1. 外部被曝

a. 国民生活時間調査結果

外部被曝に関係する大地や大気からの線量などは、場所や時間、屋内か屋外などいろいろな因子に依存して変化する。個人の受ける線量を推定するには、その個人の日常生活を場所、時間及び状態の関数として把握する必要がある。毎日、どのような場所に、どの程度の時間、どのような状態ですごしたかを、国民一人一人について詳しく知ることは、大変難しいことである。このような情報を得るには、国勢調査規模での全国調査が必要であろう。国民の生活時間調査としては、NHKの国民生活時間調査¹²⁾、経済企画庁の国民生活時間調査などがある。それらの中で、サンプル数、調査地域、調査頻度数等を勘案して、NHKの国民生活時間調査結果が線量推定に適していると考えられる。NHKの場合、1都道府県あたり1,920人(総計90,240人)を対象に、調査対象日の時刻別(15分きざみ)の生活行動と住宅状況を中心に調査されており、それらの結果は、県別、時間別に集計されている。在宅時間は職業などによって異なるが、1990年調査の結果では、表のように国民全体では、平日で15.26時間(63.6%)、土曜日16.16時間(67.3%)及び日曜日で17.46時間(72.8%)である。平均すると一日のうち約65.5%は自宅に在り、残りの34.5%は自宅以外に在り。自宅の中での環境放射線による被曝線量は、家屋の構造などの条件がわかれば推定可能である。自宅以外での被曝線量は、通勤・通学の交通機関、通勤・通学先の建物の構造、農林漁業であれば働く場所の地形など諸々の条件に関係する。それらの条件についても、ある程度は生活時間調査結果から知ることができ、乗り物の中での線量、建物の種類別の屋内線量などについて、別個の調査が必要にならう。

b. 生活環境における線量分布

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

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

c. 体格による実効線量当量及び実効線量の相違

実効線量当量及び実効線量は、多くの臓器・組織線量に関係する。放射線場が同じであっても、臓器・組織線量は体格など個人の生物学的条件によって異なる。Petoussiら⁴⁾は、胎児、乳幼児(生後8カ月)、小人(7才)、成人男女について、10keVから10MeVまでのエネルギーの光子による臓器・組織線量を計算し、環境放射線による実効線量当量と実効線量を算出

している。計算結果は、自由空間中の空気カーマに対する実効線量当量及び実効線量の比率として与えられている。これらのデータは、日本人に対しても使用できる。

4. 3. 2. 内部被曝

環境中に存在する放射性物質が人体内に摂取される道筋は、吸入、飲食、皮膚表面などが考えられる。環境放射性物質からの内部被曝を取り扱う場合、空気中あるいは食物中の放射能濃度に関する情報、呼吸量や摂取量などに関する情報、摂取された放射性核種の体内での挙動に関する情報、さらには、臓器・組織の線量を算定する方法などが必要である。食肉類、魚菜類、調味料などの食料品類に含まれる放射能濃度については、フォールアウトの代表である¹³⁷Cs、⁹⁰Sr及び²³⁹Puなどを対象に測定・調査されている。しかし、それらの食料品の放射能分布が一様でなく、調理・加工の仕方などによって放射能の摂取が異なることから、環境放射能の人体への摂取と内部被曝線量との関係については今後なお研究すべき多くの問題がある。食品からの摂取に関しては、「国民栄養の現状」など厚生省の調査研究等により国民ひとりあたりの食品摂取量などの資料は入手できるが、魚肉類など多くの食品の生産地が全世界に分布していることなどから、食品中の放射能濃度を知ることは困難である。国連科学委員会の報告書などを利用して、地球規模での食物連鎖を研究することが必要になろう。

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

5. 集団実効線量当量の今日的結果

5. 1. 環境被曝からの集団実効線量当量

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

5. 1. 1. 外部被曝

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

屋外におけるラドンの影響を除く環境放射線からの各県別の集団実効線量当量を算定した結果を表6に示す。集団実効線量当量は、大地と大気から45,700人・Sv/年、宇宙線から32,900人・Sv/年と推定された。両者の和は78,600人・Sv/年であり、人口を1億2千4百

万人(1991年)とすれば、国民一人あたりの実効線量当量は0.6mSv/年となる。松田らのデータや放医研における実測データなどから、家屋による遮蔽効果と建築材からのガンマ線の影響とが拮抗するためか、屋内および屋外のガンマ線量はほぼ同じとしても集団線量には大きな差異を生じないと思われる。

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

5. 1. 2. 内部被曝

原子力安全研究協会は、日本国民が日常生活の中で被曝している放射線源(自然放射線やフォールアウトなど環境放射線、医療放射線など)からの実効線量当量の評価・推定値をまとめて報告している¹⁷⁾。そこでは、主な自然放射性核種について種々の食品中の放射能濃度が記載されている。チェルノブイリ事故の影響を避けるため、核実験フォールアウトについては1985年までのデータが纏められている。ラドンの吸入による被曝を除く主な環境放射性核種の内部被曝による実効線量当量を表7に示す。自然放射性物質とフォールアウトによる実効線量当量では、⁴⁰Kの寄与が大きいことがわかる。同一食品でも料理の仕方や個人の嗜好などによって、放射性物質の摂取量は相違し、同一摂取量であっても代謝など個人の生物学的条件等によって体内沈着量は異なる。環境放射性物質の内部被曝については、今後、解明すべき問題が山積している。

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

Radionuclide	Effective dose equivalent(mSv/year)
³ T (natural, fallout etc.)	2.9 x 10 ⁻⁵
¹⁴ C	1.4 x 10 ⁻²
⁴⁰ K	20 x 10 ⁻²
⁸⁷ Rb	0.3 x 10 ⁻²
²¹⁰ Pb- ²¹⁰ Po	16 x 10 ⁻²
¹³⁷ Cs (Fallout only)	0.088x10 ⁻²
⁹⁰ Sr	0.12x10 ⁻²
²³⁹ Pu- ²⁴⁰ Pu	0.28x10 ⁻²
²⁴¹ Am	0.10x10 ⁻²

5. 2. 医療被曝や職業被曝などとの比較

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

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

Prefecture	Population 10 ³	Annual collective effective dose equivalent	
		Terrestrial origin	Cosmic rays
Hokkaido	5,639	1,692	1,498
Aomori	1,474	295	488
Iwate	1,413	410	385
Miyagi	2,258	813	593
Akita	1,221	452	324
Yamagata	1,255	427	345
Fukushima	2,104	884	589
Ibaragi	2,859	1,144	752
Tochigi	1,938	814	535
Gunma	1,963	550	548
Saitama	6,452	1,678	1,704
Chiba	5,586	1,173	1,468
Tokyo	11,683	3,739	3,084
Kanagawa	7,985	1,118	2,113
Niigata	2,470	1,112	655
Toyama	1,118	470	295
Ishikawa	1,163	488	307
Fukui	818	515	217
Yamanashi	855	222	262
Nagano	2,151	814	718
Gifu	2,061	1,237	569
Shizuoka	3,665	1,283	974
Aichi	6,658	3,262	1,735
Mie	1,792	789	475
Shiga	1,225	686	330
Kyoto	2,558	1,023	673
Osaka	8,559	3,937	2,251
Hyogo	5,358	2,465	1,414
Nara	1,382	553	371
Wakayama	1,071	493	284
Tottori	614	270	163
Shimane	776	248	207
Okayama	1,920	864	528
Hiroshima	2,839	1,278	759
Yamaguchi	1,555	606	414
Tokushima	830	315	220
Kagawa	1,022	572	269
Ehime	1,511	771	400
Kochi	820	412	218
Fukuoka	4,803	2,257	1,263
Saga	876	403	231
Nagasaki	1,552	590	408
Kumamoto	1,839	644	493
Oita	1,232	505	330
Miyazaki	1,165	489	314
Kagoshima	1,789	519	474
Okinawa	1,224	416	323
Total	123,102	45,700	32,900

Table 8 Collective effective dose equivalent from medical exposure in Japan

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

似値というよりオーダーをみるだけの数値でしか得られなかった。

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

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

Table 9 Collective effective dose equivalent from occupational exposure in Japan

Occupation	Collective effective dose equivalent(person·Sv/year)
Medicine: Doctor	8.5
Nurse	2.0
Technician	7.6
Others	3.9
Industry: Non-destructive inspection)	2.8
General	5.5
Research and Education	0.7
Atomic industry	2.5
Nuclear power station	84
Total	118

参考文献

- (1) ICRP-26: 国際放射線防護委員会勧告(日本アイソトープ協会翻訳)、1977

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

第20回放医研環境セミナー実行委員会委員一覧

委員長	岩倉	哲男
副委員長	中島	敏行
委員	井上	義和
	内山	正史
	中村	良一
	本郷	昭三
	白貝	彰宏
	村松	康行
	内田	滋夫
	村上	正一
アドバイザー	鈴木	讓
事務局	城	正弘
	中	禎弘

放医研環境セミナーシリーズ No.20

環境と公衆の安全のためのアプローチ

－ 放射性核種の生態系移行・代謝・線量推定 －

1993年3月31日発行

編集 岩倉 哲夫／中島 敏行

編集協力 城 正弘／中 禎弘

放射線医学総合研究所

〒263 千葉市稲毛区穴川4-9-1

電話 043-251-2111