

分置

PNC-~~5~~J1621 93-001

配布限定

本資料は 〇/年 10月 〇日付けで登録区分、
変更する。

[技術情報室]

天然放射性核種を用いた環境中長寿命
人工放射性核種の長期動態研究
(受託研究)

1993年3月

金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

本資料の全部または一部を複製・複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184

Japan

この資料は動力炉・核燃料開発事業団の開発業務を進めるため、限られた関係者だけに配布するものです。したがって、その取扱いには充分注意を払って下さい。なお、この資料の供覧、複製、転載、引用等には事業団の承認が必要です。



限定資料
PNC 1J1621 93-001
1993年3月

天然放射性核種を用いた環境中長寿命 人工放射性核種の長期動態研究

山本 政儀, 小村 和久, 上野 馨

要 旨

核燃料サイクル施設から一般環境に漏洩する可能性のある長寿命人工放射性核種の長期動態を評価・予測するための基礎研究として、すでに環境中で定常状態となっていると考えられる天然放射性核種の海洋における挙動研究を実施する。このため海水中に存在するウラン、トリウム、ラジウムあるいはポロニウムを構成する諸核種について、海洋での存在状態、海洋生物への濃縮、海底堆積物への移行・蓄積などについて調査・検討を行う。この報告書には、東海近辺（日立市久慈浜を含む）および比較対象として大洗の沿岸で採取した海産生物について ^{40}K , U 同位体, Th 同位体, ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Po および ^{137}Cs の分析を実施した結果を記した。海産生物は、東海事業所安全管理部環境安全課（事業団）で定期的に採取して測定を行っているシラス、カレイ（ヒラメ）、平貝（コタマ貝）およびアラメ（ヒジキ、カジメ）を対象とした。今回すべての海産物試料において、上記の核種を測定することができ、これら核種の生物への濃縮程度および生物間の種差の違いによるレベル差などを考察した。

本報告書は、金沢大学が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。
契約番号：040D0122
事業団担当部課室および担当者：東海事業所安全管理部環境安全課 清水武彦
※：金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

目 次

1. 今年度の調査目的	1
2. 試料	1
3. 分析・測定方法	10
3.1. 非破壊γ線スペクトロメトリー	
3.2. 化学分離・α線スペクトロメトリー	
3.2.1. U 同位体, Th 同位体および ^{226}Ra	
3.2.2. ^{210}Pb および ^{210}Po	
4. 測定結果	21
5. 考察	35
5.1 海産生物中の U 濃度	
5.2 海産生物中の Th 濃度	
5.3 海産生物中の ^{226}Ra 濃度	
5.4 海産生物中の ^{210}Po (^{210}Pb) 濃度	
5.5 海産生物中の ^{40}K 濃度	
5.6 海産生物中の ^{137}Cs 濃度	
5.7 放射性核種の生物濃縮の比較	
5.8 海産生物中の放射性核種間の放射能比	
6. 終りに	45
7. 参考資料 環境アルファ核種の定量法と存在量について — 食品から人体へ —	47

1 . 今年度の調査目的

昨年度は河口および沿岸海域と大洋における天然放射性核種 (U 同位体, Th 同位体, Ra 同位体, ^{210}Pb および ^{210}Po) の濃度, 存在状態, 海洋生物への濃縮, 海底堆積物への移行・蓄積などに関して, すでに報告されている文献を調査評価した。

今年度は, 東海近辺 (日立市久慈浜を含む) および比較対象として大洗沿岸で実際に採取した海産生物試料について上記核種の分析を実施し, それぞれの核種の濃度レベルや生物への濃縮程度を把握する。

2 . 試料

東海近辺および大洗の沿岸海域で事業団が四半期毎に採取した魚類 (シラス, カレイ, ヒラメ), 貝類 (平貝, ハマグリ) および海藻 (アラメ, ヒジキ, カジメ) を分析試料とした。海産生物の採取地点を図 1, 事業団において実施した前処理方法を図 2, 対象海産生物を表 1.1 ~ 表 1.4 に示す。また各海産生物についての測定対象核種を表 2.1 および表 2.2 に示す。

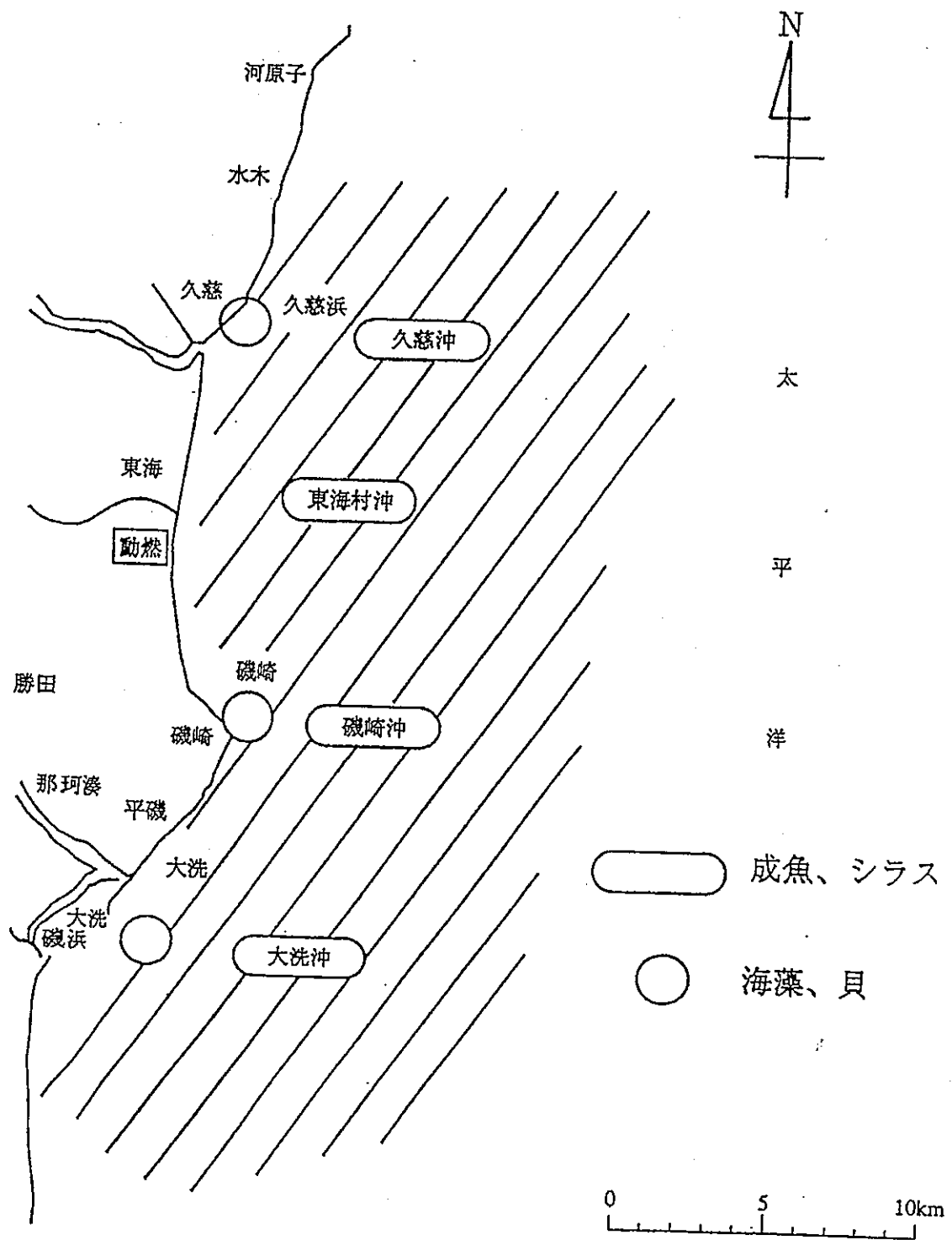


図1 海産生物試料の採取地点

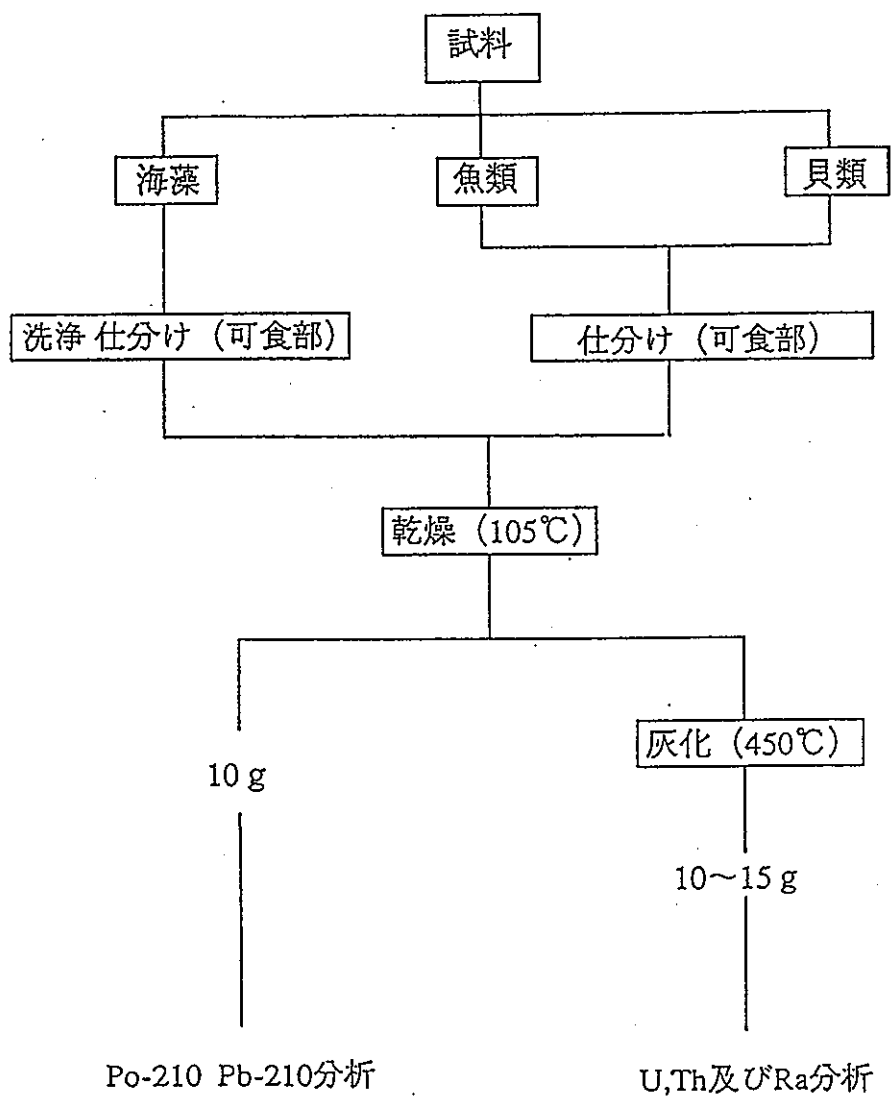


図2 海産生物試料の前処理法

表 1.1 依託試料一覧 (海藻：アラメ)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
7月～9月	久慈浜	92. 7. 3	182.	17.5	1040	22.0	3.04	724
	磯崎	92. 7. 4	120.	15.2	789	27.1	2.85	951
	大洗	92. 8.27	136.	23.6	576	25.5	2.86	892
10月～12月	久慈浜	92.10. 6	153.	20.6	742	29.0	3.33	985
	磯崎	92.10.11	172.	20.3	847	32.8	3.45	950
	大洗	採取予定						
1月～3月	久慈浜	平成5年度予定						
	磯崎	平成5年度予定						
	大洗	平成5年度予定						

表 1.2 依託試料一覧 (貝類: コタマ貝)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
7月～9月	久慈浜	92. 7. 7	34.8	13.5	258	31.4	2.35	1336
	磯崎	92. 7.16	24.9	9.49	262	31.7	1.67	1898
	大洗	92. 7. 6	35.7	14.5	246	32.2	2.06	1563
10月～12月	久慈浜 磯崎 大洗	採取予定 採取予定 採取予定						
1月～3月	久慈浜 磯崎 大洗	平成5年度予定 平成5年度予定 平成5年度予定						

表 1.3 依託試料一覧 (魚類: カレイ、ヒラメ)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
カレイ 7月～9月	東海 磯崎 大洗	未採取	—	—	—	—	—	—
		92. 8. 27	110.	21.8	505	23.1	1.74	1328
		未採取	—	—	—	—	—	—
カレイ 10月～12月	東海 磯崎* 大洗	92. 11. 4	115	25.0	460	処理中	—	—
		92. 10. 13	116	22.8	509	32.3	1.68	1922
		未採取	—	—	—	—	—	—
1月～3月	東海 磯崎 大洗	平成5年度予定 平成5年度予定 平成5年度予定						

* ヒラメ

表 1.4 依託試料一覧 (魚類：シラス)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
シラス 7月～9月	東海 磯崎 大洗	92. 7. 20	164.	15.6	1050	26.9	1.80	1494
		92. 7. 20	112.	16.7	671	29.1	2.01	1448
		未採取	—	—	—	—	—	—
シラス 10月～12月	東海 磯崎 大洗	92.10.16	74.7	14.4	519	26.0	1.89	1376
		92.10. 7	170	16.5	1030	34.8	2.04	1706
		92.10. 1	130.8	17.3	751	32.0	2.12	1509
1月～3月	東海 磯崎 大洗	平成5年度予定 平成5年度予定 平成5年度予定						

表 2.1 各海産物試料（海藻、貝類）に対する測定核種の一覧

種 類	採取時期	採取場所	採取年月日	対象核種					分 析 件 数
				^{210}Po	^{210}Pb	U同位体	Th同位体	Ra同位体	
海 藻 (アラメ)	7月～9月	久慈浜	92. 7. 3	○	○	○	○	○	3 試料×5 核種 = 15 件
		磯 崎	92. 7. 4	○	○	○	○	○	
		大 洗	92. 8. 27	○	○	○	○	○	
	10月～12月	久慈浜	92.10. 6	○	○	○	○	○	3 試料×5 核種 = 15 件
		磯 崎	92.10.11	○	○	○	○	○	
		大 洗	92.12.14	○	○	○	○	○	
平 貝 (コマ貝)	7月～9月	久慈浜	92. 7. 7	○	○	○	○	○	3 試料×5 核種 = 15 件
		磯 崎	92. 7.16	○	○	○	○	○	
		大 洗	92. 7. 6	○	○	○	○	○	
	10月～12月	久慈浜	92.11.16	○	○	○	○	○	3 試料×5 核種 = 15 件
		磯 崎	92.12.1	○	○	○	○	○	
		大 洗	92.11.19	○	○	○	○	○	
合 計							60 件		

表 2.2 各海産物試料（魚類）に対しての測定核種の一覧

種 類	採取時期	採取場所	採取年月日	対象核種					分 析 件 数
				^{210}Po	^{210}Pb	U同位体	Th同位体	Ra同位体	
魚類 (カレイ) *ヒラメ	7月～9月	東海 磯崎 大洗	未採取 92. 8. 27 未採取	- ○ -	- ○ -	- ○ -	- ○ -	- ○ -	1 試料×5 核種 = 5 件
	10月～12月	東海 磯崎* 大洗	92. 11. 4 92. 10. 13 92. 12. 11	○ ○ ○	○ ○ ○	○ ○ ○	○ ○ ○	○ ○ ○	3 試料×5 核種 = 15 件
魚類 (シラス)	7月～9月	東海 磯崎 大洗	92. 7. 20 92. 7. 20 未採取	○ ○ -	○ ○ -	○ ○ -	○ ○ -	○ ○ -	2 試料×5 核種 = 10 件
	10月～12月	東海 磯崎 大洗	92. 10. 16 92. 10. 7 92. 10. 1	○ ○ ○	○ ○ ○	○ ○ ○	○ ○ ○	○ ○ ○	3 試料×5 核種 = 15 件
合 計								45 件	

3. 分析方法

3.1. 非破壊γ線スペクトロメトリー

灰化試料のうち一定量(≈20g)をとり油圧式のプレスで直径 5 cm の円盤状の線源を作成し、線源の重量を秤定した後、汚染の防止と ^{222}Rn の損失を防ぐためサランラップで包み、さらにポリエチレン袋に封入して約 1 ヶ月間保存した。γ線測定は通常の Ge(Li) 検出器を用いて 1 ~ 2 日間行った。標準試料としては、NBL(New Brunswick Laboratory)が売出している U 標準試料の既知濃度を特級 NaCl 試料に均一に混ぜたものおよび特級 KCl 試薬を用いた。Ge(Li) 検出器を用いたシラス、アラメ、平貝のγ線スペクトル例を図 3.1 および図 3.2 に示す。γ線のピークとしては、 ^{40}K (1460 keV)のγ線が顕著なピークとして検出され、その他に ^{137}Cs (661 keV)、U 系列核種 ^{214}Pb (295 keV, 352 keV), ^{214}Bi (609 keV)および Th 系列核種 ^{212}Pb (239 keV), ^{208}Tl (583 keV), ^{228}Ac (338 keV, 911 keV) が検出されている。しかしながら検出器のバックグラウンドを考慮すると、今回の一連の海産物試料に対しては ^{40}K および ^{137}Cs のみが定量可能であった。

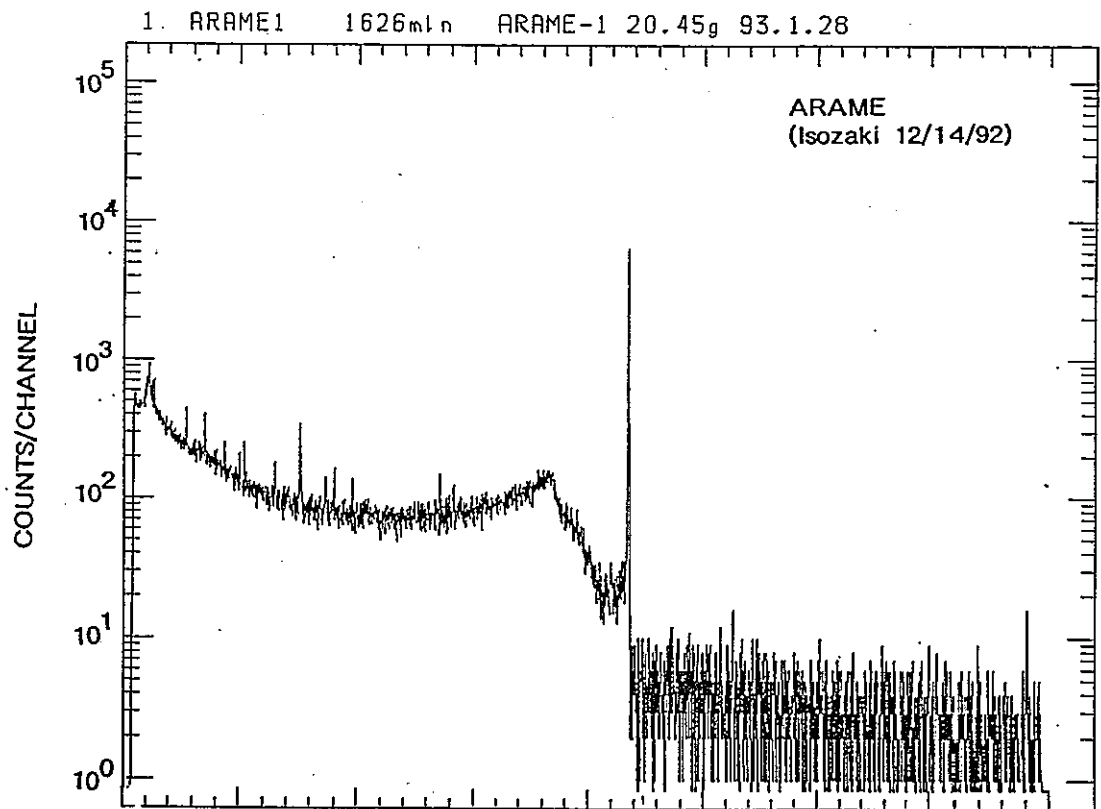
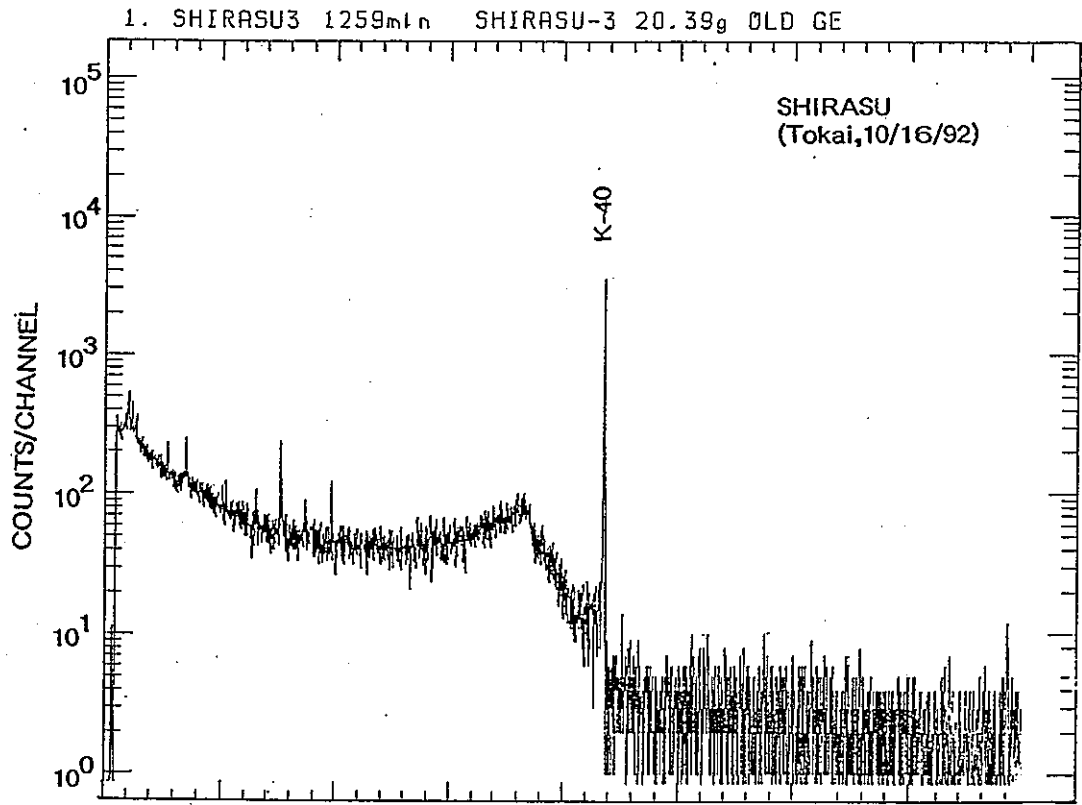


図3.1 海産生物（シラス、アラメ）の γ 線スペクトル例

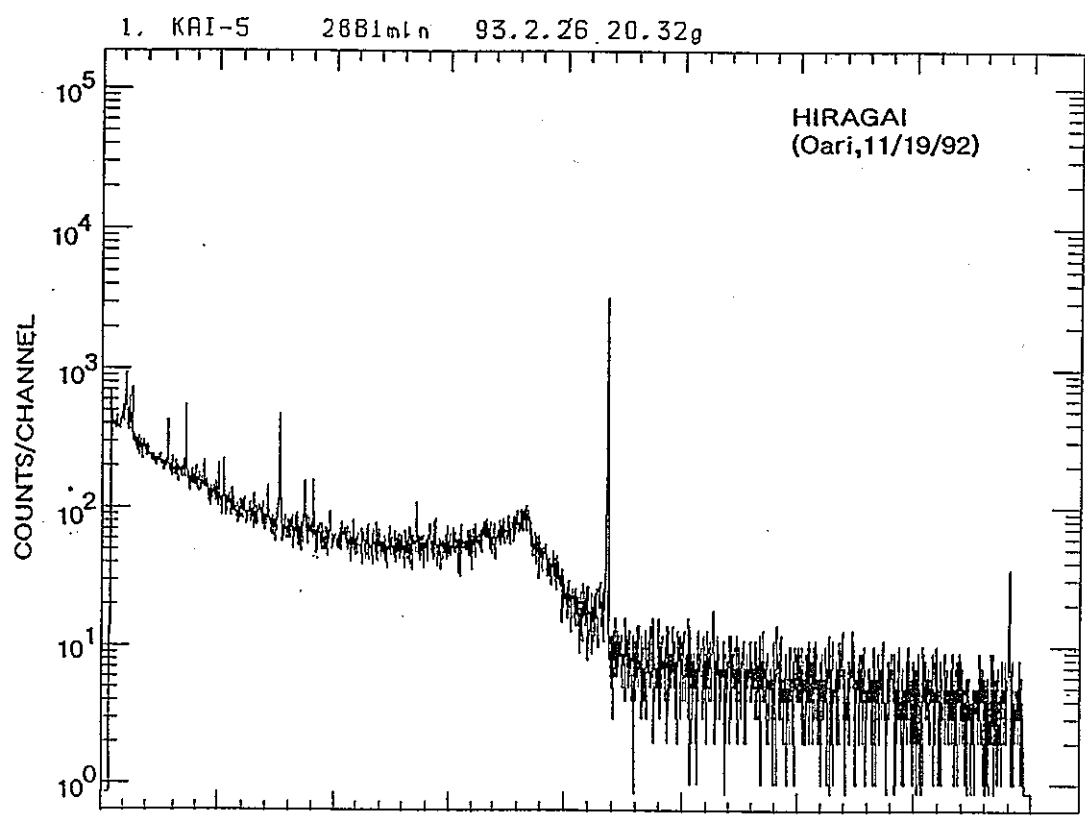


図3.2 海産生物（コタマ貝）の γ 線スペクトル例

3.2. 化学分離, α 線スペクトロメトリー

U 同位体 (^{238}U , ^{234}U), Th 同位体 (^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th), ^{226}Ra および ^{210}Po は α 線を放出する核種である。放射能レベルが高い場合には, 上記核種の幾つかを非破壊 γ 線スペクトロメトリーで測定できるが, レベルが低い場合には化学分離を行い α 線の吸収の少ない均一線源を調製して, Si (Li) 検出器で測定する方法が通常よく用いられる。その際, できることなら同一の試料からすべての核種を逐次的に化学分離した方が, 湿式灰化の時間の短縮, 貴重な試料を保存できることなどから好都合である。そこで, 今回の試料の分析においては, U 同位体, Th 同位体および ^{226}Ra は灰化試料を用いて同一試料から逐次分離を行った。一方 ^{210}Po および ^{210}Pb については, 特に ^{210}Po が試料の灰化 (約 450°C で一晩) 中に飛散するので, 乾燥試料を用いて分析を行った。

3.2.1. U 同位体, Th 同位体および ^{226}Ra

分析には灰化試料 10 ~ 20 g を用い, U, Th および ^{226}Ra の収率補正用のトレーサーとして ^{232}U および ^{229}Th - ^{225}Ra を一定量添加した後, HNO_3 - H_2O_2 - HClO_4 で完全に分解した。その後 8M HNO_3 50 ~ 100 ml に溶解し, 蒸留水で約 700 ml に希釈した。不溶成分 (主に砂) がある場合には, 0.45 μm フィルターでろ過操作を行って取り除いた。得られた溶液に Ra 同位体を含まない Ba キャリアーを 20 mg 添加し, H_2SO_4 - $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ で BaSO_4 沈殿をつくり, Ra をまず始めに共沈させた。ろ過後, 次にその上澄液に Fe キャリアー 20 ~ 40 mg を添加し, NH_4OH で水酸物等の沈殿をつくり, U および Th を共沈させた。まず U の分析については, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 等の沈殿を 10M HCl に溶解し, 大部分の Fe を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 8M HNO_3 でカラムに残っている Fe を除去, 次いで 0.5M HCl 約 100 ml で U を溶離する。Th は HCl 系からの陰イオン交換樹脂に吸着しないので, カラムを通過した溶液を蒸発乾固し, 8M HNO_3 に溶解後, 陰イオン交換カラムに通して Th を吸着させ, 8M HNO_3 で十分にカラムを洗浄した後, 10 M HCl 70 ~ 100 ml で Th を溶離した。以上のようにして精製した U および Th をそれぞれ硫酸アンモニウム系電解溶液に溶解し, ステンレス板上に電着 (0.7 ~ 0.8 A, 2 時間) した後, α 線スペクトロメトリーにより U 同位体お

よび Th 同位体を定量した。U 同位体および Th 同位体の α 線測定例を図 4 および図 5 に示す。U については 1 日程度の測定で数百カウントの計数を得ることができたが、Th については特に魚類で 3 ~ 4 日間の測定でも数十カウント (20 ~ 40 カウント) 程度で、かなり大きな測定誤差を伴っている。

^{226}Ra の分析については BaSO_4 沈殿を用い、図 6 に示す当研究室で開発した方法に従って分析した。この方法で得たアラメおよび平貝の α 線スペクトル例を図 7 に示すが検出限界は 5000 分測定で約 $0.2\text{mBq}/\text{試料}$ である。試料採取直後に分析した場合には ^{224}Ra も同時に定量できる。また 1 年程度電着板を保存して再測定すると ^{228}Ra から成長してくる ^{228}Th を測定することができ、間接的に ^{228}Ra を定量することが可能である。

3.2.2. ^{210}Pb および ^{210}Po

^{210}Pb および ^{210}Po の分析は、特に ^{210}Po が試料灰化中に飛散するので、乾燥試料を用いて行った。分析には乾燥試料 10 ~ 15 g を用い、 ^{210}Po および ^{210}Pb の化学収率補正用のトレーサーとして ^{209}Po および安定 Pb (^{210}Pb を含まない Pb : 2 ~ 4 mg) を一定量添加した後、 $\text{HNO}_3 - \text{H}_2\text{O}_2 - \text{HClO}_4$ で完全に湿式分解した。数 10 mg のアスコルビン酸の存在下で約 0.5M HCl 溶液から 70 ~ 90 °C で約 6 時間かけて銀板上に Po を自己析出させたものを測定線源として α 線スペクトロメーターにより ^{210}Po を測定した。 β 線放射体で ^{210}Po の親核種 ^{210}Pb は、濃度が低く非破壊 γ 線測定では十分な測定精度が得られないため、上記溶液中に残存している ^{210}Po (^{209}Po) を陰イオン交換法 (HCl 系) により、完全に除去した後、3 ~ 6 ヶ月放置して溶液中に ^{210}Pb から成長した ^{210}Po を測定する間接定量を行った。収率補正用の安定な Pb は原子吸光分析法で定量し、収率を求めて ^{210}Pb 濃度を求める際に考慮した。なお、採取直後に分析を行う場合を除いて、採取時点の ^{210}Po 濃度を正しく評価するためには、試料採取から分析までの期間中に ^{210}Pb から成長した ^{210}Po の寄与を差し引くことが必要である。今回用いた分析スキームを図 8 に、また ^{210}Po の測定で得たヒラメおよび平貝の α 線スペクトル例を図 9 に示す。

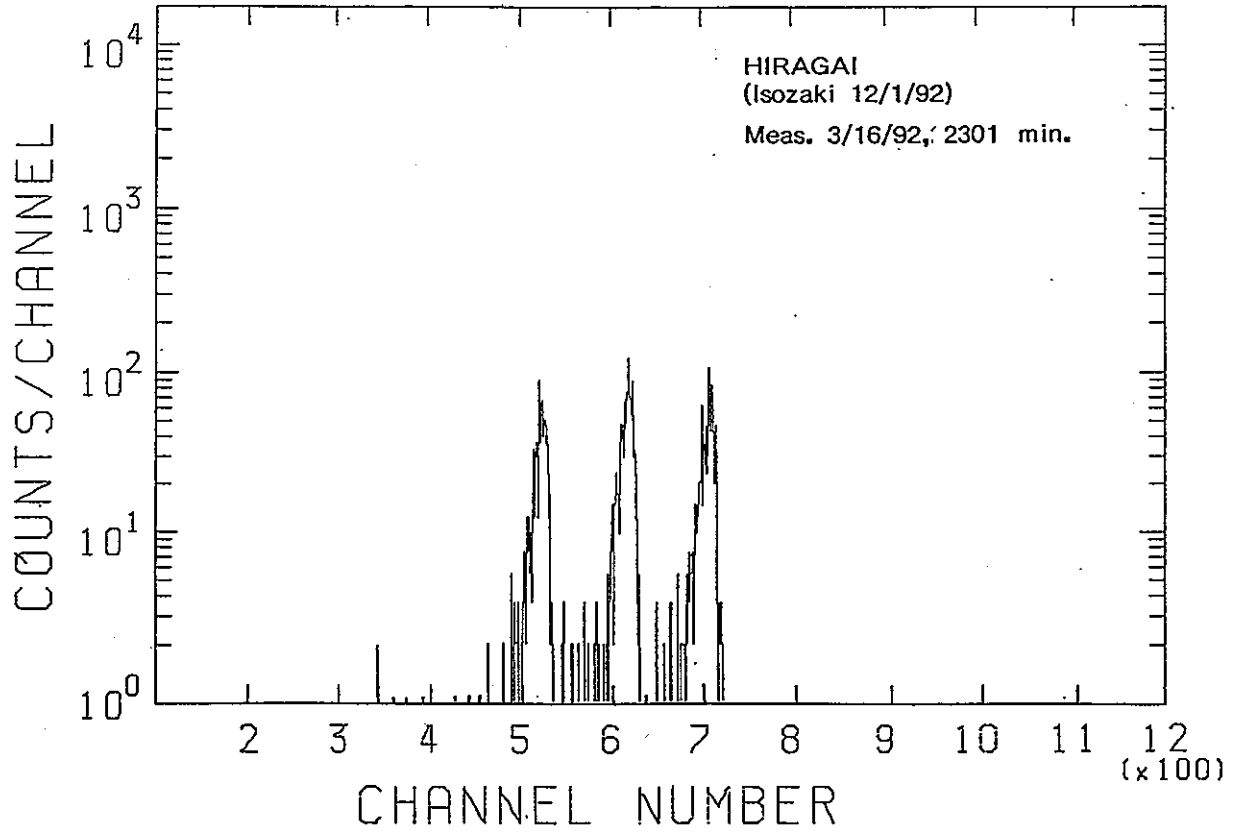
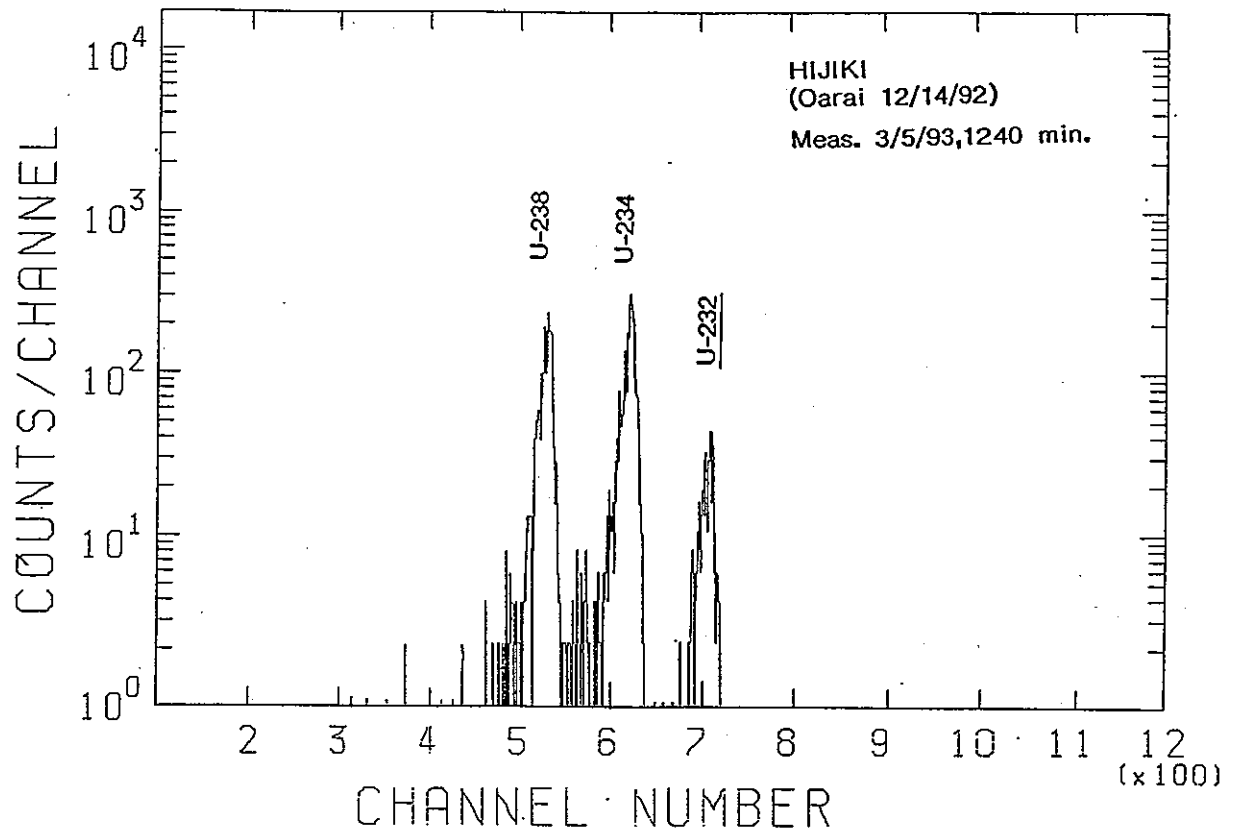


図4 海産生物 (ヒジキ、コタマ貝) のウランの α 線スペクトル例

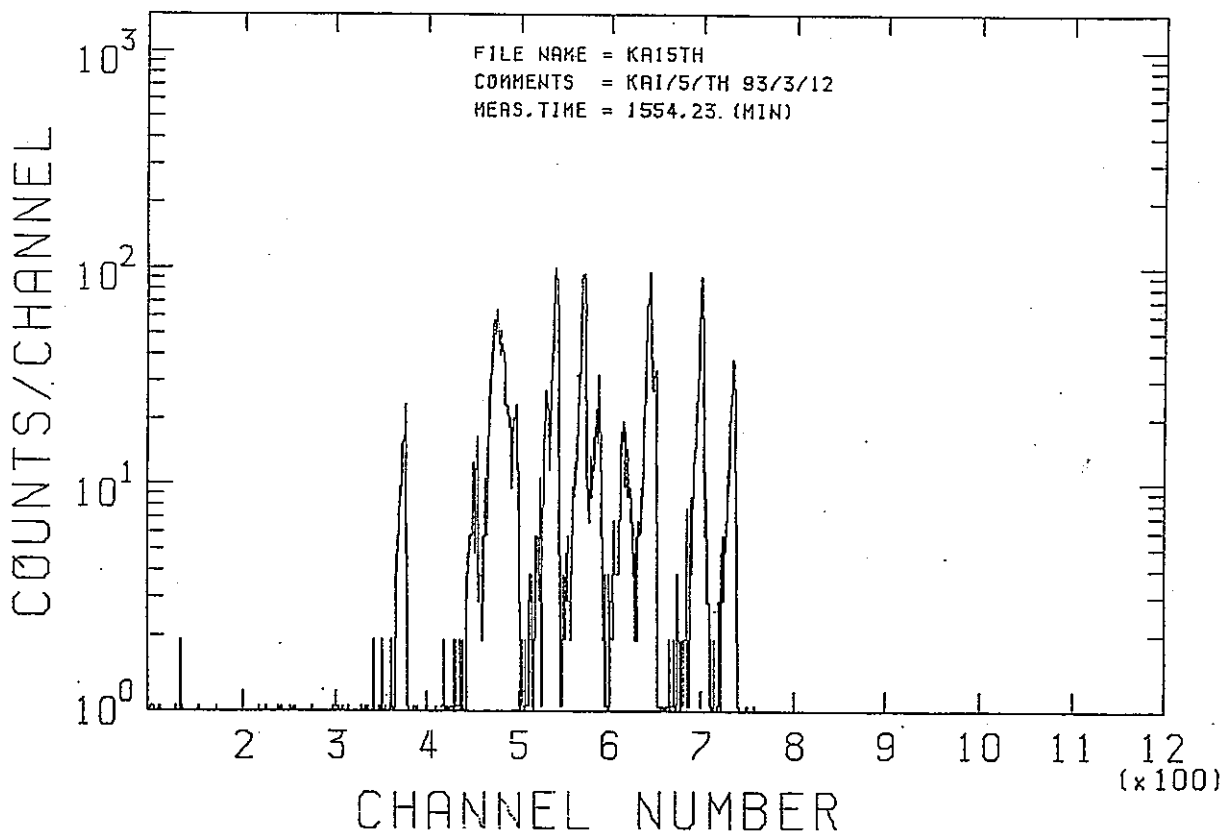
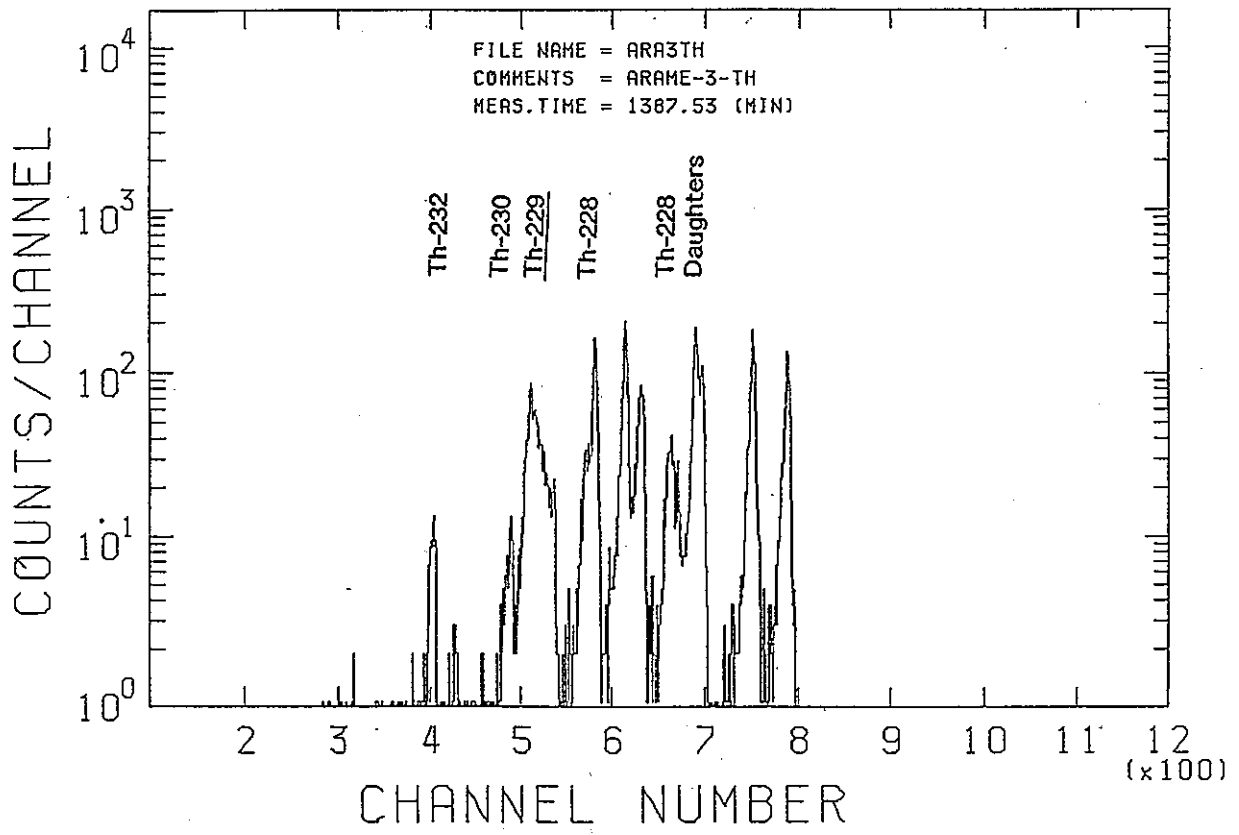


図5 海産生物 (アラメ、コタマ貝) のトリウムの α 線スペクトル例

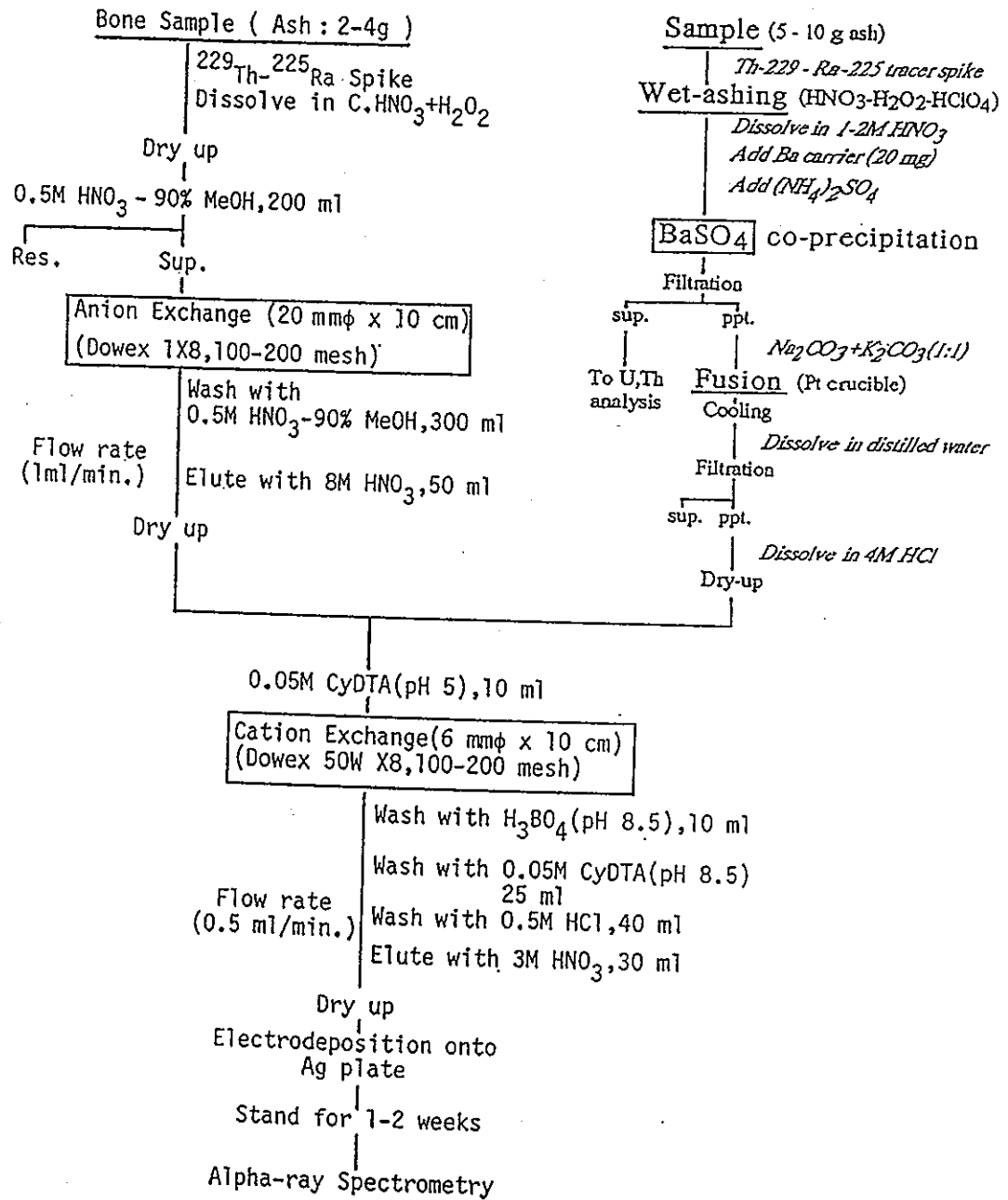


図6 海産生物試料のラジウムの分析スキーム

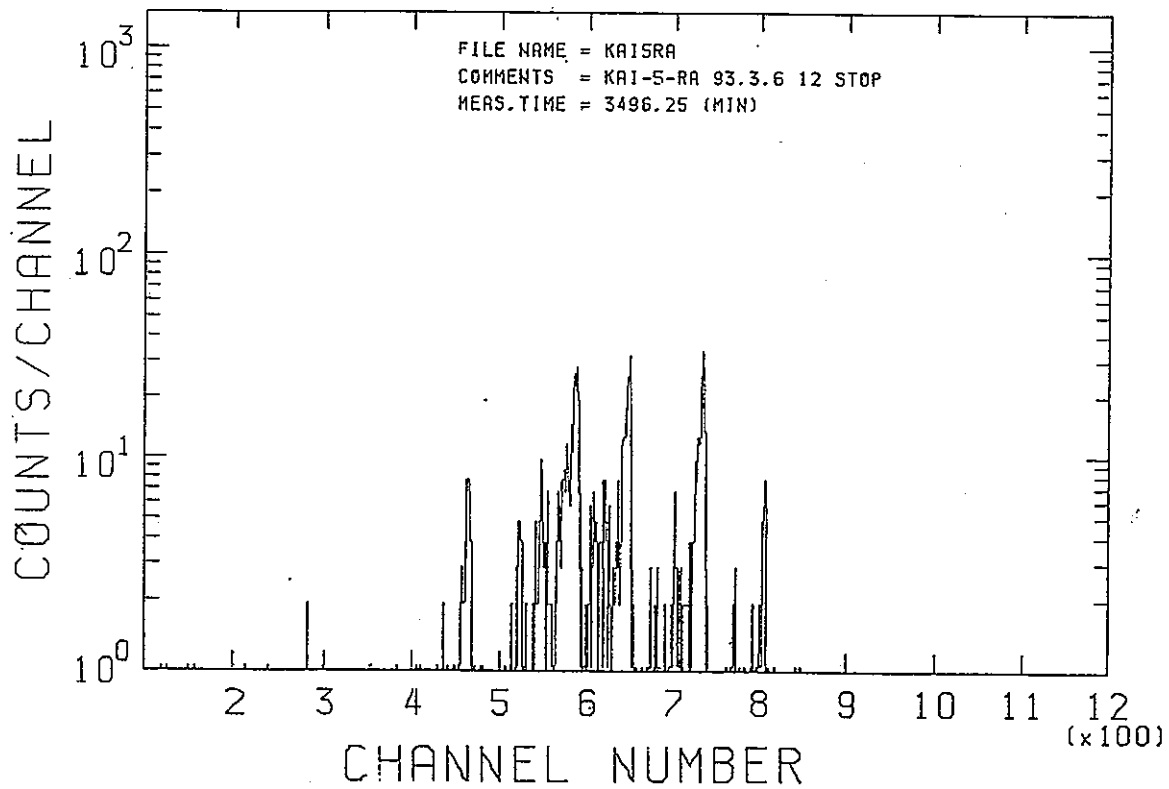
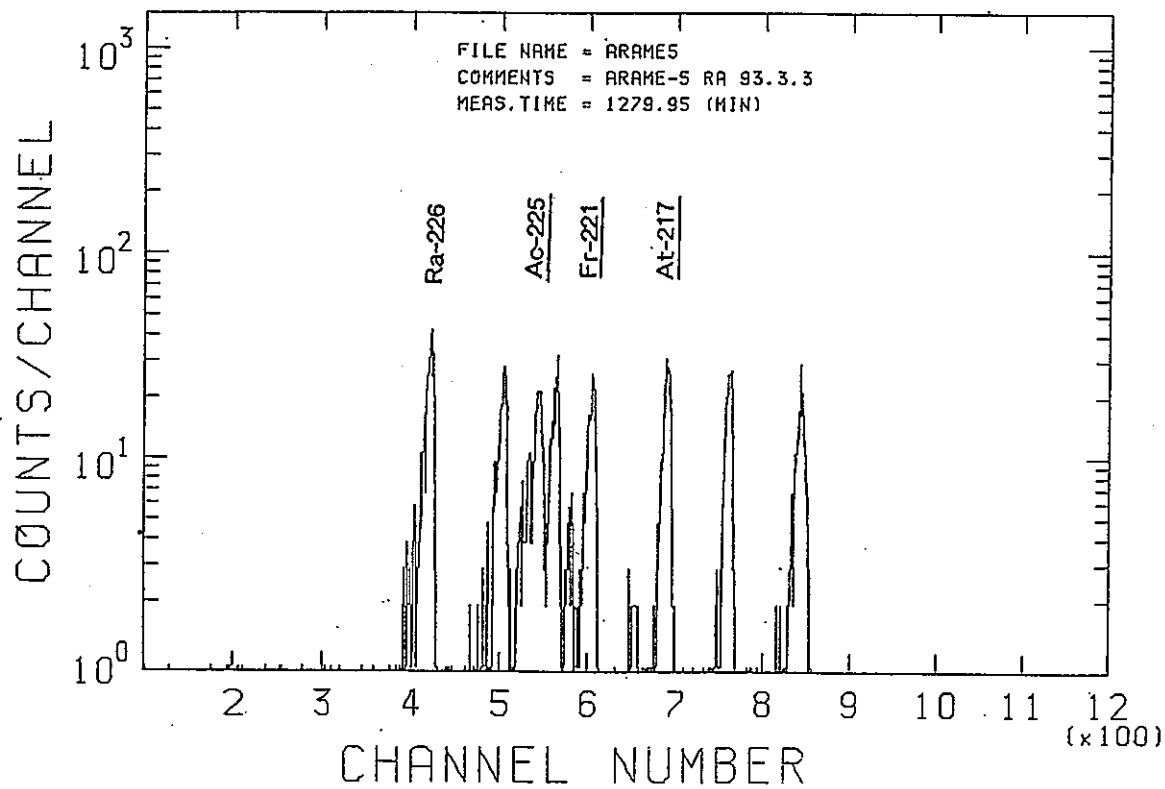


図7 海産生物 (アラメ、コタマ貝) のラジウムの α 線スペクトル例

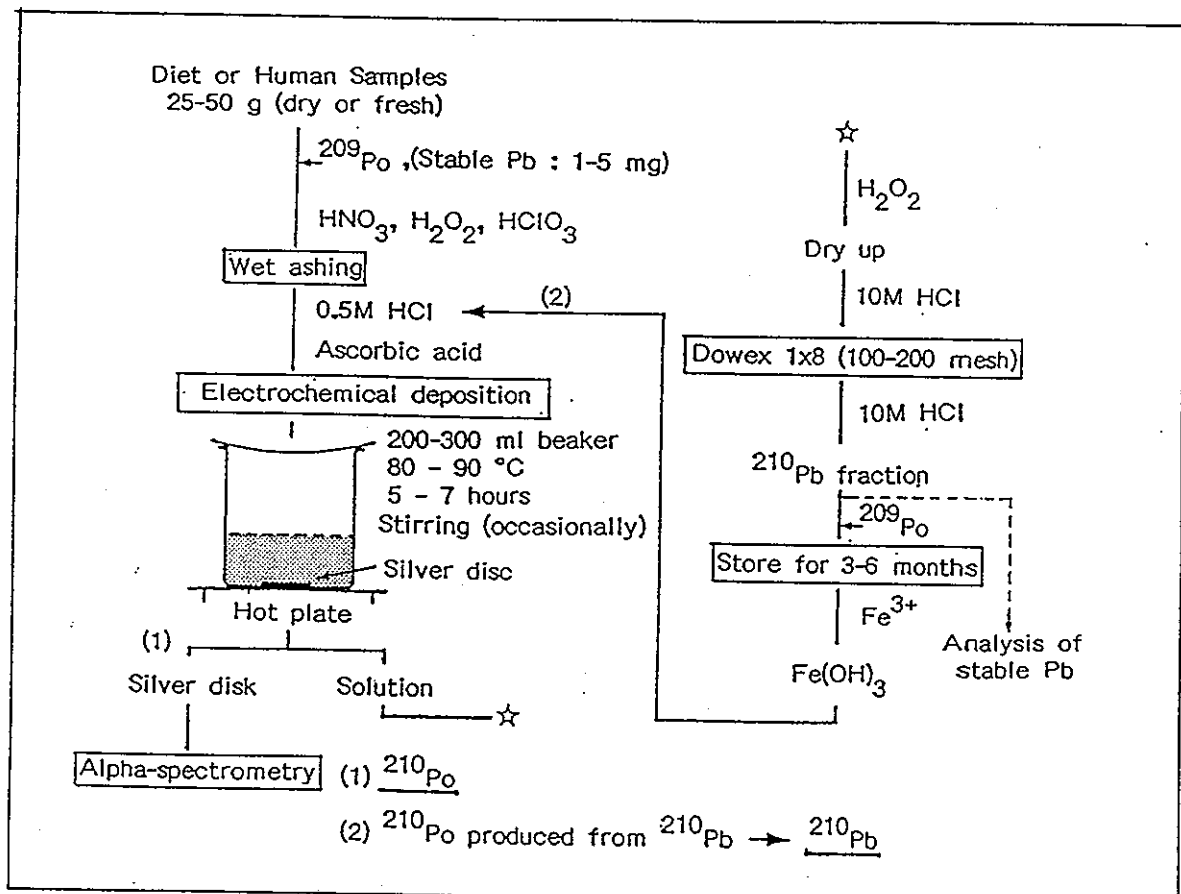


図8 海産生物試料のPo-210とPb-210の分析スキーム

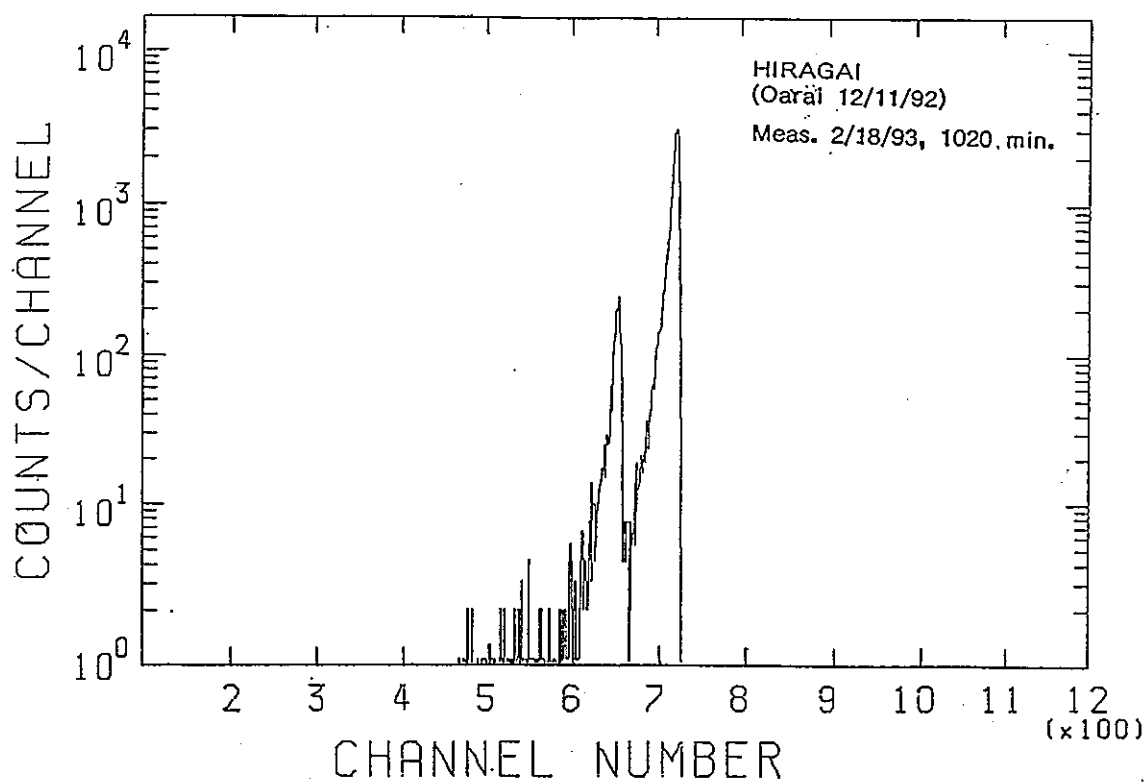
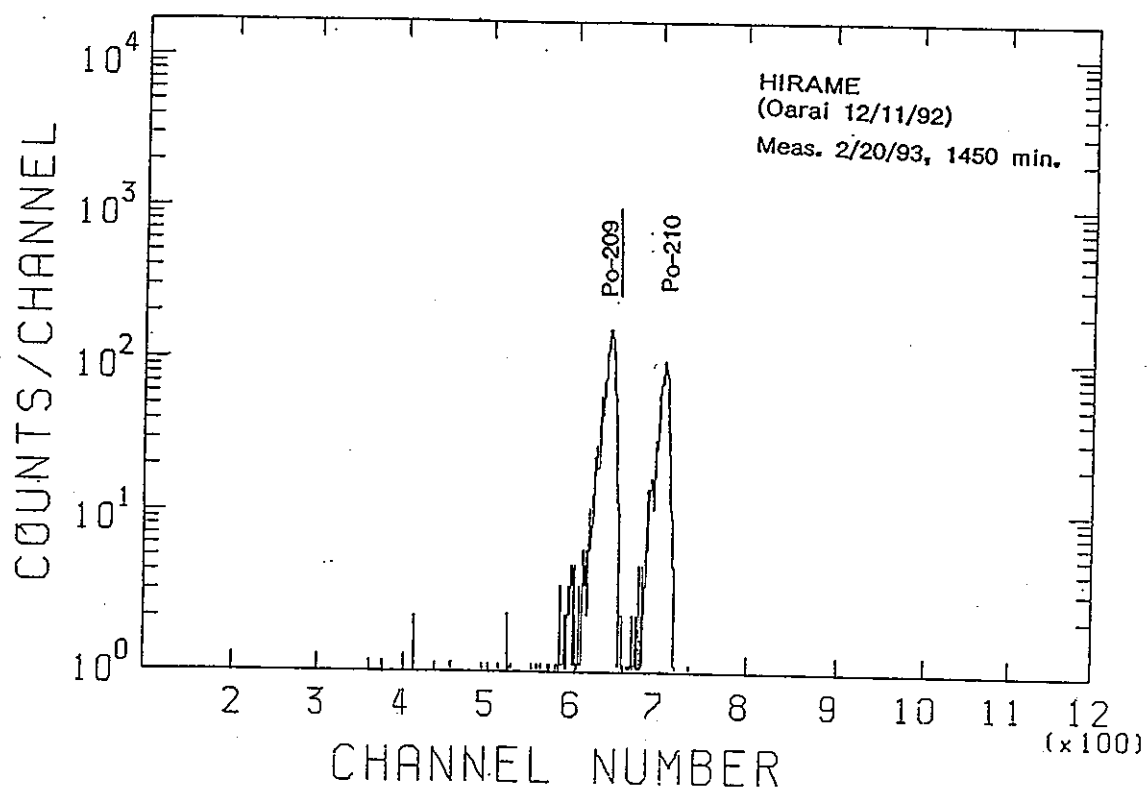


図9 海産生物（ヒラメ、コタマ貝）のPo-210の α 線スペクトル例

4. 測定結果

本年度行った東海近辺および比較対象としての大洗沿岸で採取した海産物 23 試料の ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Po および ^{137}Cs の測定結果をそれぞれ表 3.1 ~ 表 3.4, 図 10.1 ~ 図 10.4 に示す。表中のデータはすべて試料採取日での Bq/kg.dry 単位での濃度で表わしてある。 ^{210}Pb と ^{210}Po に関しては, いくつかの試料でデータが抜けているが, それらについては現在 ^{210}Pb からの ^{210}Po の成長を待っているところである。表 4 には, 表 3.1 ~ 表 3.4 のデータを1つにまとめた結果を, また図 11 には, 表 4 の各海産物の平均でそれぞれの核種の濃度を比較したものを示した。表 5 には他のデータとの比較を容易にするために Bq/kg.wet 単位で表した濃度を示した。さらに表 6 と図 12 には, 今回測定した核種についての U 同位体や Th 同位体などの放射能比をまとめた結果を示した。

表 3.1 海産生物 (海藻 : アラメ) の放射性核種濃度 (Bq/kg dry weight)

1) Marine algae (Arame)

Sampling site	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma$ ***)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
	7/3/92	1417 \pm 12	0.029 \pm 0.003	2.37 \pm 0.13	0.67 \pm 0.05	0.73 \pm 0.07	8.3 \pm 0.6	0.51 \pm 0.09
Kujihama	10/6/92	1350 \pm 11	0.032 \pm 0.004	3.64 \pm 0.22	1.13 \pm 0.05			0.57 \pm 0.11
	10/6/92*					0.44 \pm 0.04	8.7 \pm 0.7	
	/93							
	7/4/92	828 \pm 6	0.117 \pm 0.008	3.93 \pm 0.27	1.02 \pm 0.05	1.54 \pm 0.13	19.3 \pm 1.5	0.41 \pm 0.06
Isozaki	10/11/92	1313 \pm 11	0.065 \pm 0.005	2.54 \pm 0.11	0.66 \pm 0.05	1.03 \pm 0.08	13.1 \pm 1.1	0.62 \pm 0.11
	/93							
	8/27/92	754 \pm 7	0.027 \pm 0.003	2.29 \pm 0.12	0.54 \pm 0.04			0.60 \pm 0.07
Ooarai	8/27/92*					0.39 \pm 0.04	16.4 \pm 1.1	
	12/14/92**	5234 \pm 36	0.047 \pm 0.004	5.74 \pm 0.25	0.52 \pm 0.03			0.72 \pm 0.21
	/93							

*: Kajime, **: Higiki, ***: Propagated counting error.

表 3.2 海産生物 (貝類: コタマ貝) の放射性核種濃度 (Bq/kg dry weight)

2) Marine molluscs (Hiragai)

Sampling site	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma^{**}$)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
Kujihama	7/7/92	428 \pm 5	0.195 \pm 0.012	0.68 \pm 0.03	0.115 \pm 0.009	3.10 \pm 0.19	152 \pm 14	0.32 \pm 0.05
	11/16/92*	185 \pm 2	0.172 \pm 0.014	0.37 \pm 0.02	0.035 \pm 0.003			0.12 \pm 0.02
	/93							
Isozaki	7/16/92	433 \pm 7	0.287 \pm 0.026	0.69 \pm 0.02	0.145 \pm 0.011	3.61 \pm 0.26	245 \pm 20	0.43 \pm 0.07
	12/1/92	165 \pm 3	0.091 \pm 0.008	0.27 \pm 0.01	0.022 \pm 0.003			0.17 \pm 0.03
	/93							
Ooarai	7/6/92	448 \pm 6	0.409 \pm 0.033	0.80 \pm 0.03	0.103 \pm 0.010	2.23 \pm 0.19	110 \pm 11	0.30 \pm 0.06
	11/19/92	206 \pm 2	0.098 \pm 0.010	0.34 \pm 0.01	0.066 \pm 0.008			0.17 \pm 0.03
	/93							

*: Hamaguri, **: Propagated counting error.

表 3.3 海産生物（魚類：カレイ、ヒラメ）の放射性核種濃度 (Bq/kg dry weight)

3) Marine fishes (Karei, Hirame)

Sampling site	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma^{**}$)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
	—							
Toukai	11/4/92	555 \pm 4	0.008 \pm 0.001	0.052 \pm 0.002	0.035 \pm 0.004	0.402 \pm 0.031	18.6 \pm 1.6	0.55 \pm 0.04
	/93							
	8/27/92	533 \pm 5	0.009 \pm 0.002	0.042 \pm 0.002	0.033 \pm 0.004	0.333 \pm 0.028	17.7 \pm 1.5	0.75 \pm 0.06
Isozaki	10/13/92*	625 \pm 8	0.010 \pm 0.002	0.044 \pm 0.002	0.032 \pm 0.005	0.214 \pm 0.017	10.3 \pm 0.9	
	/93							
	—							
Ooarai	12/11/92*	882 \pm 7	0.015 \pm 0.002	0.094 \pm 0.006	0.051 \pm 0.005			1.12 \pm 0.08
	/93							

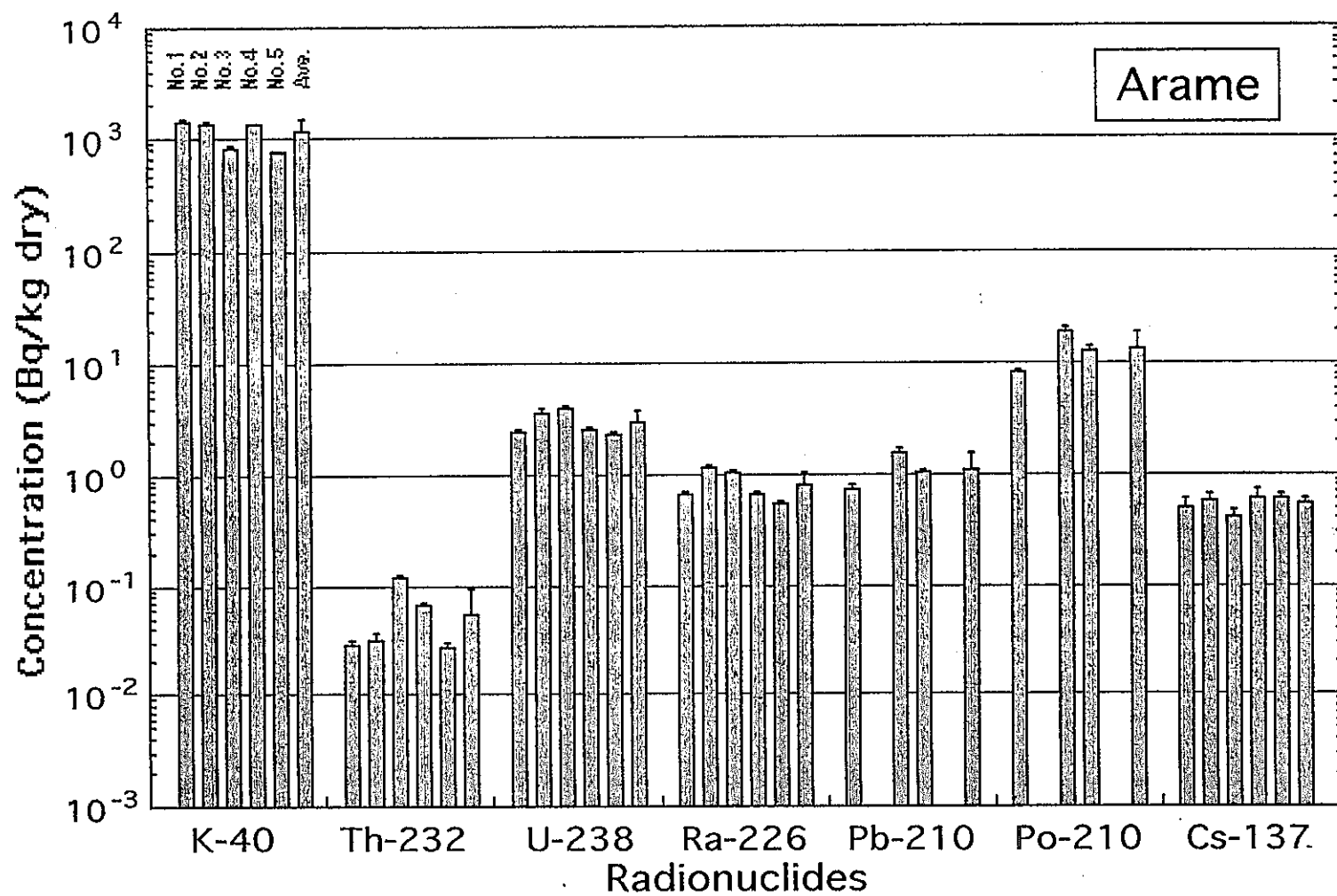
*: Hirame, **: Propagated counting error.

表 3.4 海産生物（魚類：シラス）の放射性核種濃度 (Bq/kg dry weight)

4) Marine fishes (Shirasu)

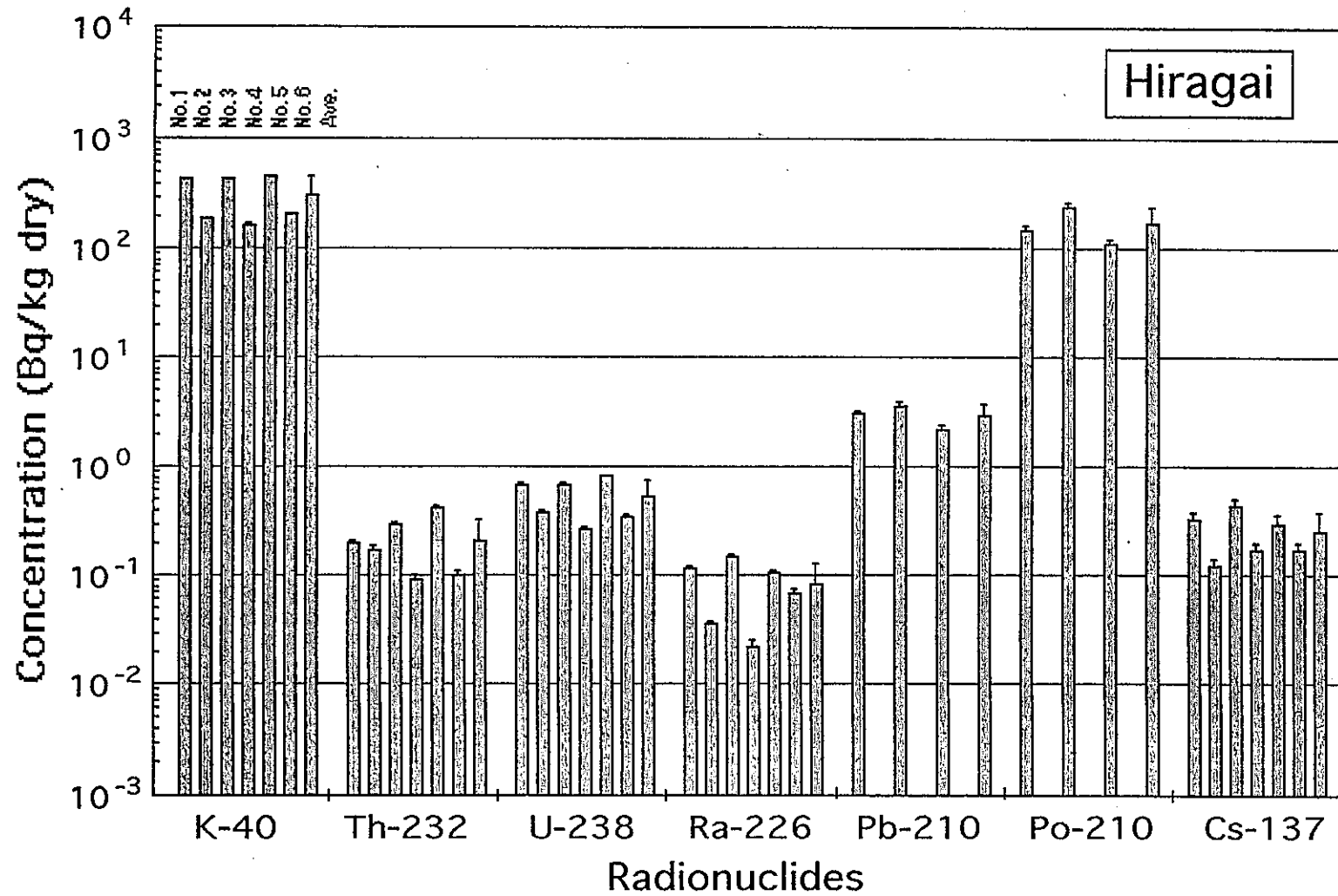
Sampling site	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma^*$)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
	7/20/92	720 \pm 5	0.011 \pm 0.003	0.100 \pm 0.003	0.041 \pm 0.004	0.51 \pm 0.05	154 \pm 13	0.79 \pm 0.04
Toukai	10/16/92	732 \pm 8	0.015 \pm 0.003	0.176 \pm 0.008	0.054 \pm 0.005	1.08 \pm 0.08	225 \pm 14	0.78 \pm 0.08
	/93							
	7/20/92	716 \pm 4	0.016 \pm 0.002	0.107 \pm 0.006	0.028 \pm 0.003	0.51 \pm 0.04	160 \pm 13	0.80 \pm 0.05
Isozaki	10/7/92	677 \pm 8	0.018 \pm 0.003	0.185 \pm 0.004	0.036 \pm 0.004	0.78 \pm 0.07	241 \pm 18	0.57 \pm 0.07
	/93							
	—							
Ooarai	10/1/92	721 \pm 7	0.037 \pm 0.003	0.110 \pm 0.006	0.026 \pm 0.003	0.80 \pm 0.08	274 \pm 22	0.49 \pm 0.07
	/93							

* : Propagated counting error.



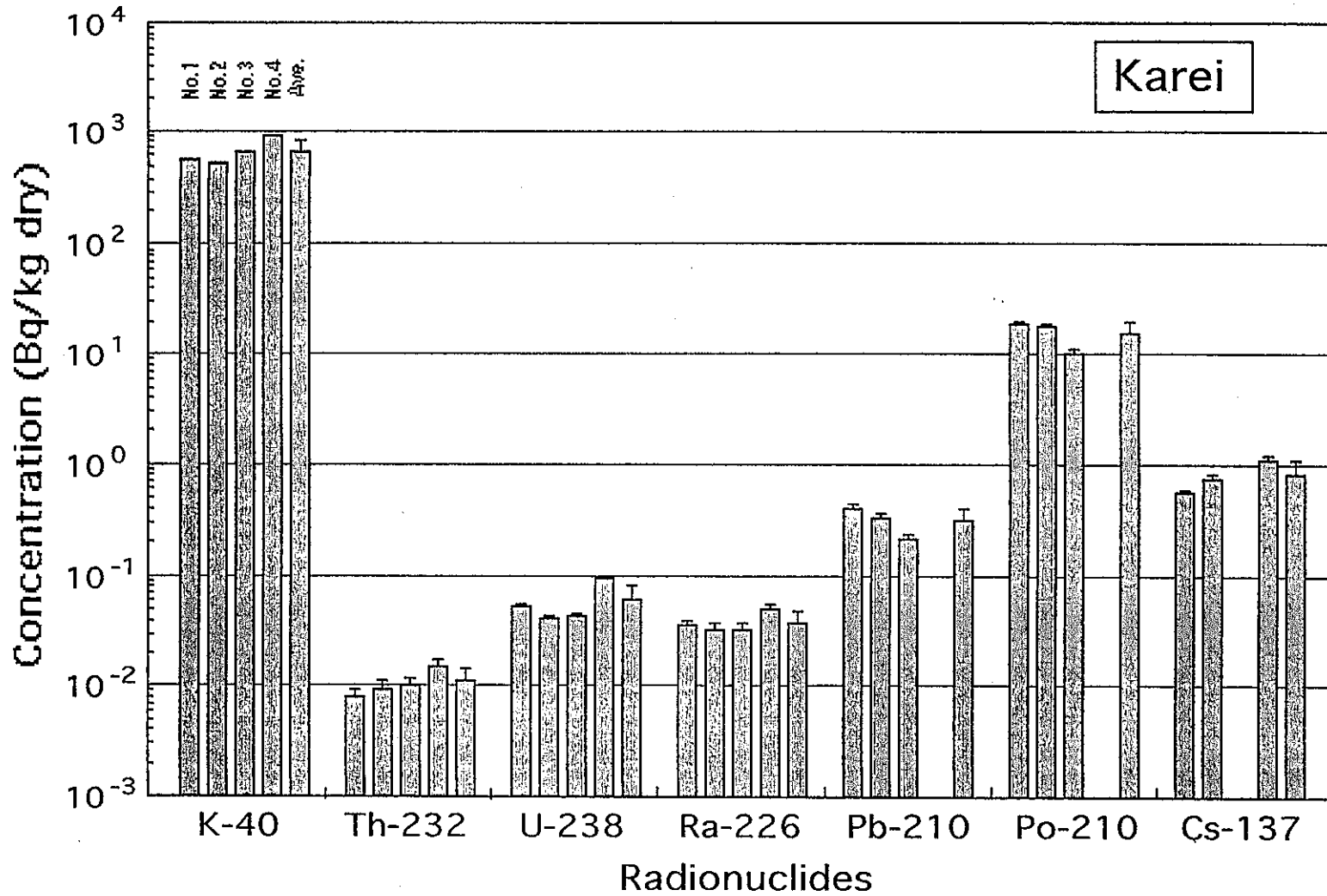
Radionuclide contents in Arame collected from Toukai coastal site

図10.1 海産生物（海藻：アラメ）の放射性核種濃度(Bq/kg dry weight)の比較



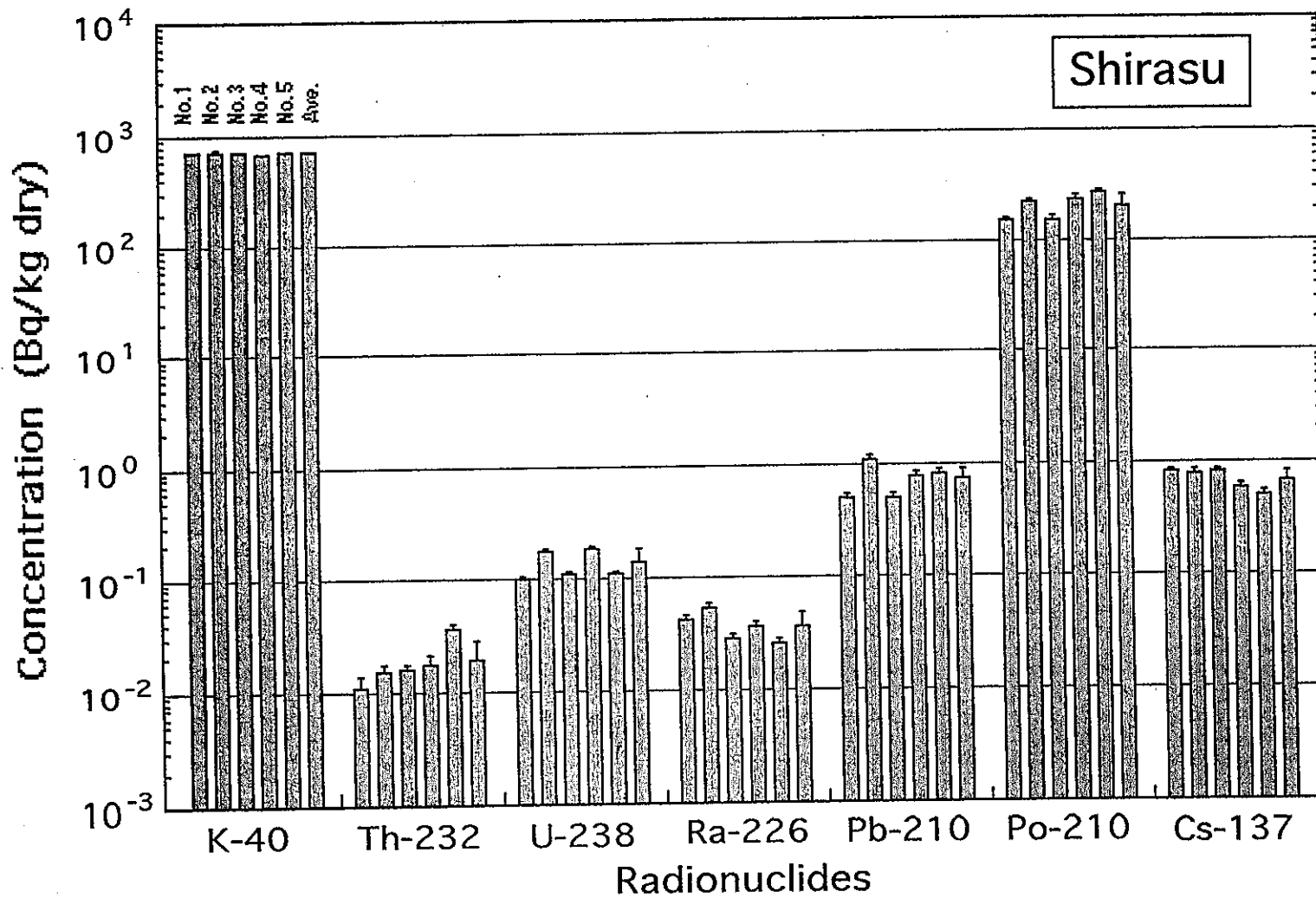
Radionuclide contents in Hiragai collected from Toukai coastal site

図10.2 海産生物（貝類：コタマ貝）の放射性核種濃度(Bq/kg dry weight)の比較



Radionuclide contents in Karei and Hirame collected from Toukai coastal site

図10.3 海産生物（魚類：カレイ、ヒラメ）の放射性核種濃度(Bq/kg dry weight)の比較



Radionuclide contents in Shirasu collected from Toukai coastal site

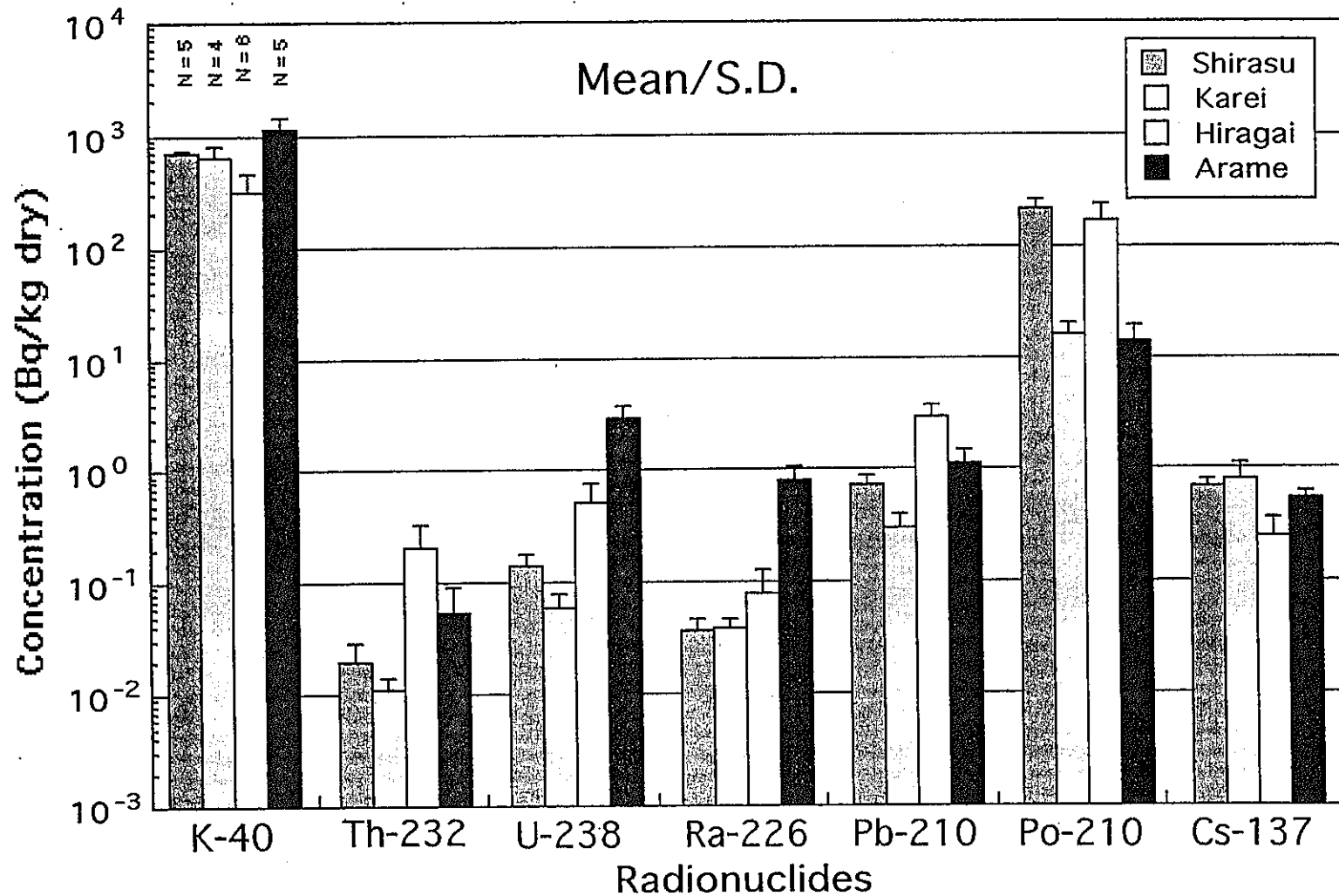
図10.4 海産生物（魚類：シラス）の放射性核種濃度(Bq/kg dry weight)の比較

表4 海産生物試料の乾燥重量での放射性核種濃度(Bq/kg dry weight)のまとめ

Radionuclide Concentrations in Marine Products Collected from Toukai Coastal Site

Sample name	Sampling site	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma^*$)							
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137	
<i>Fishes</i>									
Shirasu-1	Toukai	720 \pm 5	0.011 \pm 0.003	0.100 \pm 0.003	0.041 \pm 0.004	0.51 \pm 0.05	154.1 \pm 13.2	0.79 \pm 0.04	
Shirasu-2	Toukai	732 \pm 8	0.015 \pm 0.003	0.176 \pm 0.008	0.054 \pm 0.005	1.08 \pm 0.08	224.8 \pm 14.2	0.78 \pm 0.08	
Shirasu-3	Isosaki	716 \pm 4	0.016 \pm 0.002	0.107 \pm 0.006	0.028 \pm 0.003	0.51 \pm 0.04	159.5 \pm 12.5	0.79 \pm 0.05	
Shirasu-4	Isosaki	677 \pm 8	0.018 \pm 0.003	0.185 \pm 0.004	0.036 \pm 0.004	0.78 \pm 0.07	240.6 \pm 18.3	0.57 \pm 0.07	
Shirasu-5	Ooarai	721 \pm 7	0.037 \pm 0.003	0.110 \pm 0.006	0.026 \pm 0.003	0.80 \pm 0.08	273.5 \pm 21.9	0.49 \pm 0.07	
Ave. $\pm 1s.d$		713 \pm 21	0.019 \pm 0.010	0.14 \pm 0.04	0.037 \pm 0.011	0.74 \pm 0.16	211 \pm 52	0.68 \pm 0.14	
Karei-1	Toukai	555 \pm 4	0.008 \pm 0.001	0.052 \pm 0.002	0.035 \pm 0.004	0.40 \pm 0.03	18.6 \pm 1.6	0.55 \pm 0.04	
Karei-2	Isozaki	533 \pm 5	0.009 \pm 0.002	0.042 \pm 0.002	0.033 \pm 0.004	0.33 \pm 0.03	17.7 \pm 1.5	0.75 \pm 0.06	
Hirame-3	Isozaki	625 \pm 8	0.010 \pm 0.002	0.044 \pm 0.002	0.032 \pm 0.005	0.21 \pm 0.02	10.3 \pm 0.9		
Hirame-4	Ooarai	882 \pm 7	0.015 \pm 0.002	0.094 \pm 0.006	0.051 \pm 0.005			1.12 \pm 0.08	
Ave. $\pm 1s.d$		649 \pm 160	0.011 \pm 0.003	0.060 \pm 0.020	0.038 \pm 0.009	0.31 \pm 0.09	15.5 \pm 4.6	0.81 \pm 0.29	
<i>Moluscs</i>									
Hiragai-1	Kujihama	428 \pm 5	0.195 \pm 0.012	0.681 \pm 0.030	0.115 \pm 0.009	3.10 \pm 0.19	151.6 \pm 13.5	0.32 \pm 0.05	
Hiragai-2	Kujihama	185 \pm 2	0.172 \pm 0.014	0.374 \pm 0.016	0.035 \pm 0.003			0.12 \pm 0.02	
Hiragai-3	Isozaki	433 \pm 7	0.287 \pm 0.026	0.687 \pm 0.022	0.145 \pm 0.011	3.61 \pm 0.26	245.0 \pm 19.8	0.43 \pm 0.07	
Hiragai-4	Isozaki	165 \pm 3	0.091 \pm 0.008	0.268 \pm 0.011	0.022 \pm 0.003			0.17 \pm 0.03	
Hiragai-5	Ooarai	448 \pm 6	0.409 \pm 0.033	0.803 \pm 0.028	0.103 \pm 0.010	2.23 \pm 0.19	110.1 \pm 10.6	0.30 \pm 0.06	
Hiragai-6	Ooarai	206 \pm 2	0.098 \pm 0.010	0.345 \pm 0.015	0.066 \pm 0.008			0.17 \pm 0.03	
Ave. $\pm 1s.d$		311 \pm 138	0.209 \pm 0.122	0.530 \pm 0.220	0.081 \pm 0.048	2.98 \pm 0.70	169 \pm 69	0.25 \pm 0.12	
<i>Algae</i>									
Arame-1	Kujihama	1417 \pm 12	0.029 \pm 0.003	2.370 \pm 0.127	0.668 \pm 0.050	0.73 \pm 0.07	8.3 \pm 0.6	0.51 \pm 0.09	
Arame-2	Kujihama	1350 \pm 11	0.032 \pm 0.004	3.640 \pm 0.225	1.132 \pm 0.048			0.57 \pm 0.11	
Arame-3	Isozaki	828 \pm 6	0.117 \pm 0.008	3.932 \pm 0.270	1.021 \pm 0.051	1.54 \pm 0.13	19.3 \pm 1.5	0.41 \pm 0.06	
Arame-4	Isozaki	1313 \pm 11	0.065 \pm 0.005	2.541 \pm 0.110	0.660 \pm 0.046	1.03 \pm 0.08	13.1 \pm 1.1	0.62 \pm 0.11	
Arame-5	Ooarai	754 \pm 7	0.027 \pm 0.003	2.291 \pm 0.120	0.541 \pm 0.038			0.60 \pm 0.07	
Ave. $\pm 1s.d$		1132 \pm 315	0.054 \pm 0.038	2.955 \pm 0.771	0.804 \pm 0.256	1.10 \pm 0.41	13.6 \pm 5.5	0.54 \pm 0.08	
Hijiki-1	Ooarai	5234 \pm 36	0.047 \pm 0.004	5.736 \pm 0.248	0.525 \pm 0.033			0.72 \pm 0.21	
Kajime-1	Ooarai					0.39 \pm 0.04	16.4 \pm 1.1		
Kajime-2	Kujihama					0.44 \pm 0.04	8.7 \pm 0.7		

*: Propagated counting error.



Radionuclide content (mean/S.D.) in marin products from Toukai coastal site

図11 海産生物試料（シラス、カレイ、コタマ貝、アラメ）の各放射性核種の平均濃度（Bq/kg dry weight）の比較

表5 海産生物試料の新鮮重量での放射性核種濃度(Bq/kg wet weight)のまとめ

Radionuclide Concentration (Bq or mBq/kg wet weight $\pm 1\sigma^*$) in Marine Organisms

Sample name	Sampling site	Dry (%)	K-40 (Bq/kg wet)	Th-232 (mBq/kg wet)	U-238 (mBq/kg wet)	Ra-226 (mBq/kg wet)	Pb-210 (mBq/kg wet)	Po-210 (Bq/kg wet)	Cs-137 (mBq/kg wet)
<i>Fishes</i>									
Shirasu-1	Toukai	15.6	112 \pm 1	1.77 \pm 0.47	15.6 \pm 0.4	6.36 \pm 0.62	79 \pm 7	24.0 \pm 2.1	123 \pm 6
Shirasu-2	Toukai	14.4	105 \pm 1	2.21 \pm 0.43	25.4 \pm 1.1	7.78 \pm 0.72	156 \pm 12	32.4 \pm 2.0	112 \pm 12
Shirasu-3	Isosaki	16.7	120 \pm 1	2.59 \pm 0.33	17.8 \pm 0.9	4.76 \pm 0.50	86 \pm 7	26.6 \pm 2.1	132 \pm 8
Shirasu-4	Isosaki	16.5	112 \pm 1	2.93 \pm 0.50	30.6 \pm 0.6	5.92 \pm 0.66	129 \pm 11	39.7 \pm 3.0	94 \pm 12
Shirasu-5	Ooarai	17.3	125 \pm 1	6.40 \pm 0.52	19.0 \pm 1.0	4.52 \pm 0.52	139 \pm 14	47.3 \pm 3.8	85 \pm 12
Ave. \pm 1s.d									
Karei-1	Toukai	25.0	139 \pm 1	1.94 \pm 0.25	13.0 \pm 0.6	8.65 \pm 1.00	101 \pm 8	4.7 \pm 0.4	138 \pm 10
Karei-2	Isozaki	21.8	116 \pm 1	1.96 \pm 0.44	9.2 \pm 0.5	7.28 \pm 0.87	73 \pm 6	3.9 \pm 0.3	164 \pm 13
Hirame-3	Isozaki	22.8	143 \pm 2	2.34 \pm 0.46	10.0 \pm 0.5	7.20 \pm 1.14	49 \pm 4	2.4 \pm 0.2	
Hirame-4	Ooarai	14.6	129 \pm 1	2.22 \pm 0.29	13.7 \pm 0.8	7.50 \pm 0.73			164 \pm 12
Ave. \pm 1s.d									
<i>Moluscs</i>									
Hiragai-1	Kujihama	13.5	58 \pm 1	26.3 \pm 1.6	91.9 \pm 4.1	15.5 \pm 1.2	418 \pm 25	20.5 \pm 1.8	43 \pm 7
Hiragai-2	Kujihama	23.7	44 \pm 1	40.8 \pm 3.3	88.7 \pm 3.7	8.36 \pm 0.71			28 \pm 5
Hiragai-3	Isozaki	9.5	41 \pm 1	27.3 \pm 2.5	65.2 \pm 2.1	13.8 \pm 1.0	343 \pm 25	23.2 \pm 1.9	41 \pm 7
Hiragai-4	Isozaki	26.7	44 \pm 1	24.2 \pm 2.1	71.5 \pm 3.0	5.76 \pm 0.80			45 \pm 8
Hiragai-5	Ooarai	14.5	65 \pm 1	59.3 \pm 4.8	116.5 \pm 4.1	15.0 \pm 1.5	323 \pm 28	16.0 \pm 1.5	44 \pm 9
Hiragai-6	Ooarai	25.8	53 \pm 1	25.3 \pm 2.6	89.0 \pm 3.8	17.1 \pm 2.1			44 \pm 8
Ave. \pm 1s.d									
<i>Algae</i>									
Arame-1	Kujihama	17.5	248 \pm 2	5.12 \pm 0.53	414.7 \pm 22.2	116.9 \pm 8.8	128 \pm 12	1.46 \pm 0.10	89 \pm 16
Arame-2	Kujihama	20.6	278 \pm 2	6.61 \pm 0.82	749.8 \pm 46.3	233.1 \pm 9.9			117 \pm 23
Arame-3	Isozaki	15.2	126 \pm 1	17.8 \pm 1.2	597.7 \pm 41.0	155.2 \pm 7.8	233 \pm 19	2.94 \pm 0.23	62 \pm 9
Arame-4	Isozaki	20.3	267 \pm 2	13.1 \pm 1.0	515.9 \pm 22.4	134.0 \pm 9.3	210 \pm 17	2.67 \pm 0.22	126 \pm 22
Arame-5	Ooarai	23.6	178 \pm 2	6.34 \pm 0.71	540.8 \pm 28.4	127.7 \pm 9.0			142 \pm 17
Ave. \pm 1s.d									
Hijiki-1	Ooarai	10.2	534 \pm 4	4.77 \pm 0.41	585.1 \pm 25.3	53.5 \pm 3.4			73 \pm 21
Kajime-1	Ooarai								
Kajime-2	Kujihama								

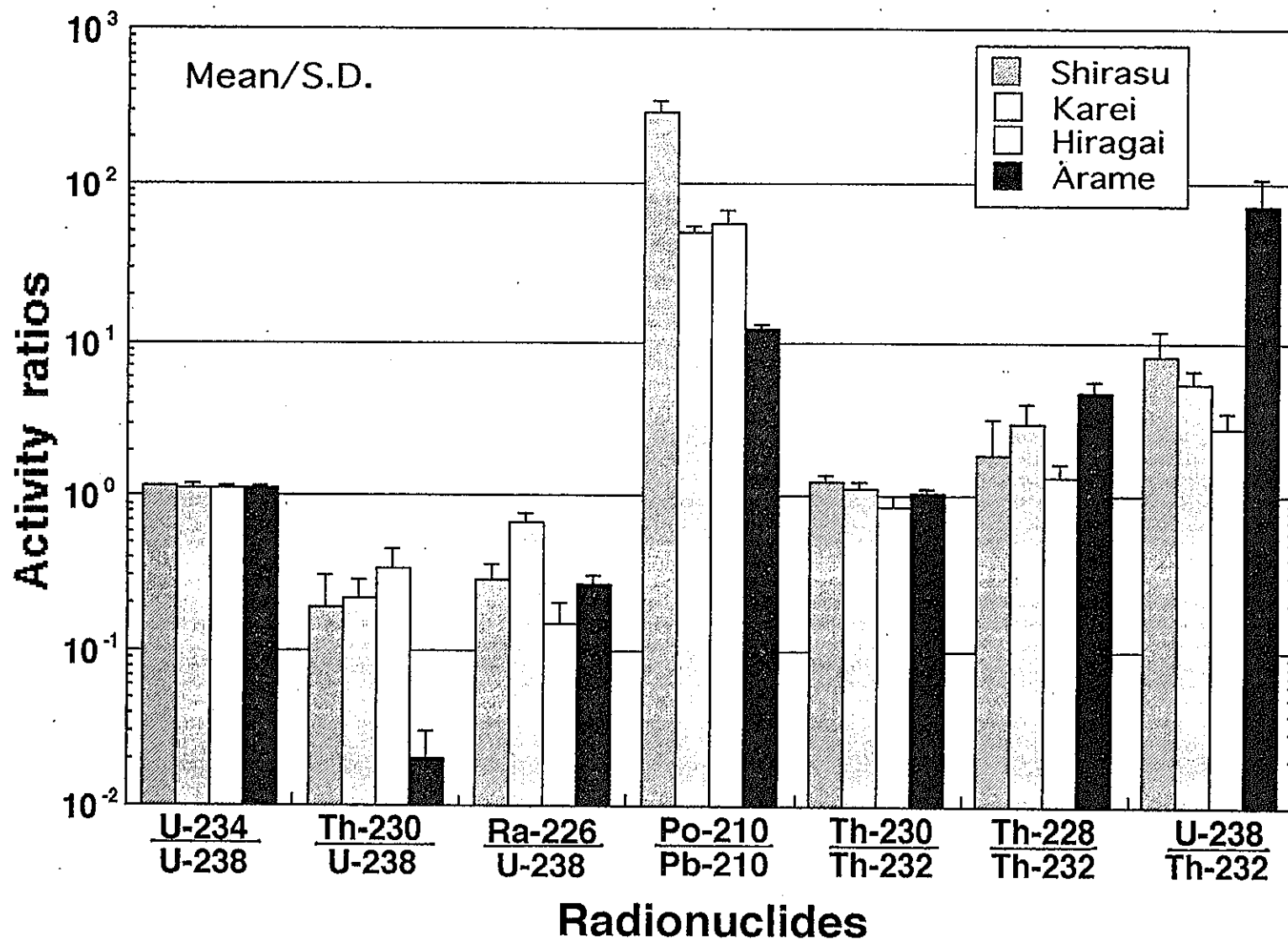
*: Propagated counting error.

表6 海産生物試料の各放射性核種間の放射能比

Activity ratios among radionuclides in marine products collected from Toukai coastal site

Sample name	Sampling site	$\frac{U-234}{U-238}$	$\frac{Th-230}{U-238}$	$\frac{Ra-226}{U-238}$	$\frac{Po-210}{Pb-210}$	$\frac{Th-230}{Th-232}$	$\frac{Th-228}{Th-232}$	$\frac{U-238}{Th-232}$
<i>Fishes</i>								
Shirasu-1	Toukai	1.12 ± 0.04*	0.150 ± 0.030	0.408 ± 0.042	303 ± 39	1.33 ± 0.44	4.18 ± 1.14	8.8 ± 2.4
Shirasu-2	Toukai	1.14 ± 0.07	0.098 ± 0.018	0.307 ± 0.031	208 ± 20	1.13 ± 0.29	1.03 ± 0.24	11.5 ± 2.3
Shirasu-3	Isosaki	1.16 ± 0.08	0.199 ± 0.021	0.267 ± 0.031	310 ± 34	1.36 ± 0.22	1.77 ± 0.26	6.9 ± 1.0
Shirasu-4	Isosaki	1.15 ± 0.03	0.120 ± 0.016	0.194 ± 0.022	307 ± 35	1.25 ± 0.27	1.40 ± 0.26	10.4 ± 1.8
Shirasu-5	Ooarai	1.16 ± 0.08	0.376 ± 0.041	0.238 ± 0.030	341 ± 44	1.12 ± 0.14	0.94 ± 0.09	3.0 ± 0.3
Ave. ± 1s.d		1.15 ± 0.02	0.189 ± 0.110	0.283 ± 0.080	294 ± 50	1.24 ± 0.11	1.86 ± 1.34	8.1 ± 3.4
Karei-1	Toukai	1.07 ± 0.07	0.154 ± 0.021	0.667 ± 0.083	46 ± 5	1.03 ± 0.19	4.06 ± 0.58	6.7 ± 0.9
Karei-2	Isosaki	1.08 ± 0.09	0.236 ± 0.049	0.789 ± 0.105	53 ± 6	1.11 ± 0.33	2.60 ± 0.62	4.7 ± 1.1
Hirame-3	Isosaki	1.20 ± 0.08	0.292 ± 0.048	0.720 ± 0.119	48 ± 6	1.25 ± 0.31	3.47 ± 0.70	4.3 ± 0.9
Hirame-4	Ooarai	1.11 ± 0.09	0.181 ± 0.024	0.546 ± 0.063		1.12 ± 0.20	1.85 ± 0.28	6.2 ± 0.9
Ave. ± 1s.d		1.12 ± 0.06	0.22 ± 0.060	0.68 ± 0.100	49 ± 4	1.13 ± 0.09	3.00 ± 0.97	5.47 ± 1.2
<i>Moluscs</i>								
Hiragai-1	Kujihama	1.17 ± 0.07	0.204 ± 0.020	0.169 ± 0.015	49 ± 5	0.71 ± 0.08	1.16 ± 0.12	3.5 ± 0.3
Hiragai-2	Kujihama	1.12 ± 0.07	0.498 ± 0.043	0.094 ± 0.009		1.08 ± 0.12	1.36 ± 0.15	2.2 ± 0.2
Hiragai-3	Isosaki	1.09 ± 0.05	0.386 ± 0.013	0.212 ± 0.017	68 ± 7	0.92 ± 0.08	1.22 ± 0.15	2.4 ± 0.2
Hiragai-4	Isosaki	1.16 ± 0.07	0.261 ± 0.028	0.081 ± 0.012		0.77 ± 0.10	1.11 ± 0.12	3.0 ± 0.3
Hiragai-5	Ooarai	1.09 ± 0.05	0.445 ± 0.016	0.129 ± 0.013	49 ± 6	0.87 ± 0.07	1.18 ± 0.12	2.0 ± 0.2
Hiragai-6	Ooarai	1.15 ± 0.07	0.248 ± 0.028	0.193 ± 0.025		0.87 ± 0.13	1.91 ± 0.24	3.5 ± 0.4
Ave. ± 1s.d		1.13 ± 0.04	0.34 ± 0.120	0.15 ± 0.050	55 ± 11	0.87 ± 0.13	1.32 ± 0.30	2.75 ± 0.7
<i>Algae</i>								
Arame-1	Kujihama	1.14 ± 0.09	0.013 ± 0.001	0.282 ± 0.026	11 ± 1	1.05 ± 0.15	4.05 ± 0.54	81 ± 9
Arame-2	Kujihama	1.12 ± 0.08	0.010 ± 0.001	0.311 ± 0.023		1.14 ± 0.19	5.68 ± 0.76	113 ± 16
Arame-3	Isosaki	1.16 ± 0.06	0.027 ± 0.003	0.260 ± 0.022	13 ± 1	0.92 ± 0.09	3.93 ± 0.36	34 ± 3
Arame-4	Isosaki	1.08 ± 0.07	0.027 ± 0.002	0.260 ± 0.021	13 ± 1	1.07 ± 0.11	5.82 ± 0.64	39 ± 3
Arame-5	Ooarai	1.14 ± 0.08	0.013 ± 0.001	0.236 ± 0.021		1.09 ± 0.16	4.37 ± 0.57	85 ± 10
Ave. ± 1s.d		1.13 ± 0.03	0.02 ± 0.010	0.27 ± 0.030	12 ± 1	1.05 ± 0.08	4.77 ± 0.91	70.54 ± 34
Hijiki-1	Ooarai	1.18 ± 0.07	0.009 ± 0.001	0.092 ± 0.007		1.08 ± 0.13	3.24 ± 0.34	123 ± 11
Kajime-1	Ooarai				42 ± 5			
Kajime-2	Kujihama				20 ± 2			

*: Propagated counting error.



Activity ratios among radionuclides in marine products collected from Toukai coastal site

図 1 2 海産生物試料の各放射性核種間の平均放射能比の比較

5. 考察

海水中に存在する（あるいは放出された）放射性物質が生物に達するまでの経路を単純に模式化し、図 13 に示す。さまざまな放射性元素の種々の生物への移行・濃縮は、元素の物理、化学的性質および存在状態、生物の種類、生息環境、さらに生物の餌などに大きく依存する。

このようなことを念頭において、以下に今回測定したいいくつかの生物種のさまざまな放射性核種の濃度レベルを比較検討する。

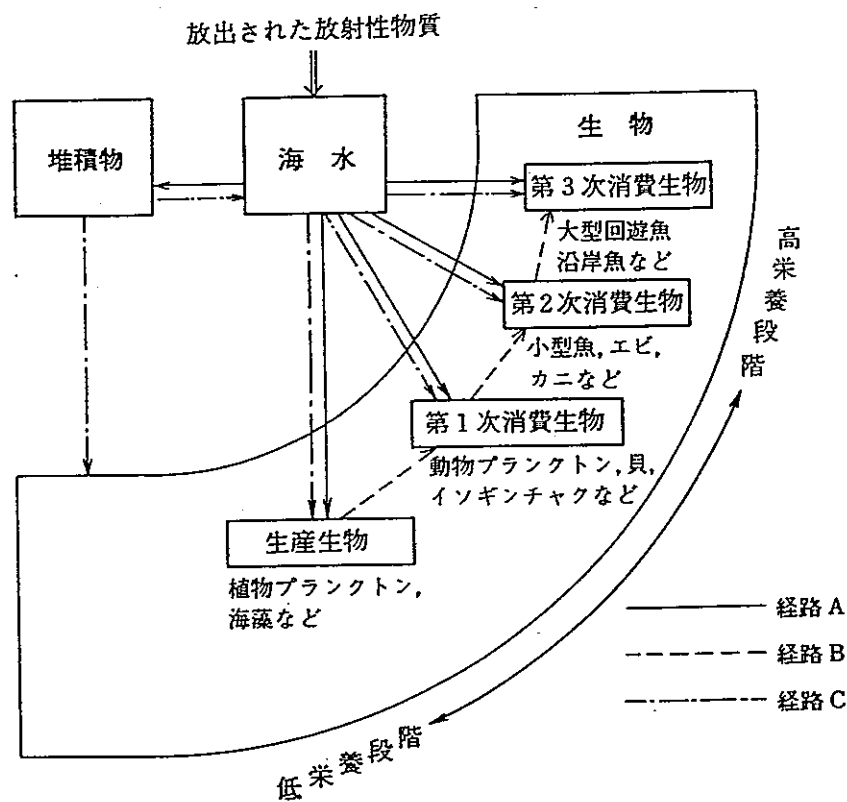


図 13 沿岸における放射性核種の移行経路

5.1. 海洋生物中の U 濃度

海水中での ^{238}U 濃度は、元素濃度で約 $3 \mu\text{g}/\text{l}$ 、放射能濃度で約 $37 \text{mBq}/\text{l}$ と他の α 線放射体に比べてかなり高いことが知られているが海産生物中のウラン濃度に関する報告例は非常に少ない。表 4 にまとめた結果からわかるように、カレイやヒラメの魚肉中の ^{238}U 濃度が $0.04 \sim 0.09$ (平均 0.06 ± 0.02) $\text{Bq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ で最も低く、シラス $0.10 \sim 0.19$ (平均 0.14 ± 0.04) $\text{Bq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ 、平貝 $0.37 \sim 0.80$ (平均 0.53 ± 0.22) $\text{Bq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ 、海藻のアラメ $2.29 \sim 3.93$ (平均 2.96 ± 0.77) $\text{Bq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ の順で高い値になっている。東海近辺と比較対象の大洗沿岸で採取した同じ生物種間の ^{238}U 濃度の差はない。最近、石井らは、1985 年 4 月から 1989 年 9 月にかけて北海道から沖縄に至る日本沿岸で採取した 55 種 of 海産生物について ICP-MS で測定した ^{238}U 濃度を報告している。そのデータによると、測定した 14 種の魚肉中の ^{238}U 濃度は $0.076 \sim 0.89$ (平均 0.37 ± 0.22) $\text{ng}/\text{g}\cdot\text{wet}$ の範囲にあり $1 \text{ng}/\text{g}\cdot\text{wet}$ ($12 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{wet}$) を超える種は存在していない。今回測定したカレイおよびヒラメの生重量での値 (表 5) は $9 \sim 14 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{wet}$ であり、石井等の報告値とほぼ一致する。一方シラスについては、生重量換算で $16 \sim 31 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{wet}$ の範囲にあり、魚肉のみの値よりやや高い傾向にある。シラスの場合は、全魚体を含めて分析しており、魚肉以外に、いわゆる硬組織とよばれる魚骨、エラ、ウロコが含まれている。石井らによれば、海産動物の硬組織中の ^{238}U 濃度は生物種によって大きな濃度差が見られるが、軟組織の ^{238}U 濃度と比べると同等もしくはやや高い値になっている。シラスの ^{238}U 濃度のやや高い値は、高い ^{238}U 濃度を示す硬組織が全魚体中の ^{238}U 濃度の押し上げに寄与しているものと考えられる。

二枚貝、巻貝類の可食部中の ^{238}U 濃度については、 $200 \sim 1500 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{wet}$ の範囲の値が報告されている。今回測定した平貝の値は $65 \sim 117 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{wet}$ とやや低い値である。海藻については、石井らは 20 種について ^{238}U 測定を行っており、数 $100 \sim$ 数 $1000 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ の高い濃度範囲にあることを報告している。本調査で得たアラメの値は $2300 \sim 3900 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ 、ヒジキはアラメよりもやや高い $5700 \text{mBq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ であり、石井らのデータと大差ない。

海水中の ^{238}U 濃度は今回測定していないが、 $3 \text{ng}/\text{ml}$ ($37 \text{mBq}/\text{l}$) の値を用いて、仮にみかけの濃縮係数 (生物と海水中の放射性核種の濃度比) を試算すると、カレイ、ヒラメ、シラス、平貝およびアラメに対して、それぞれ $0.24 \sim 0.38$, $0.43 \sim 0.83$, $1.8 \sim$

3.1 および 62 ~ 105 となる。魚類の値は 1 以下であり濃縮が起きていないことを示している。U 同位体比に関しては、表 6 に示すように $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は 1.09 ~ 1.20 の範囲にあり、海水での値 1.13 ~ 1.15 とほぼ一致する。一部の試料（アラメ）で ^{235}U も検出でき、 ^{238}U との放射能比は 0.046 ~ 0.050 で天然の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比と変わらない。

5.2. 海洋生物中の Th 濃度

^{232}Th については、半減期が長くその比放射能が小さいことや海水への溶解度が小さいことなどにより海水中の濃度についての報告は非常に少ない。平均的な元素濃度は $1 \times 10^{-4} \mu\text{g/l}$ 、放射能濃度で 0.0004 mBq/l で ^{238}U の放射能濃度の約 $1/10^5$ である。海産生物中の ^{232}Th 濃度に関しては、上述した ^{238}U 濃度の報告よりもはるかに少ない。

表 4 にみられるように魚類の ^{232}Th 濃度はシラスで $0.011 \sim 0.037$ (平均 0.019 ± 0.010) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ 、カレイとヒラメは $0.008 \sim 0.015$ (平均 0.011 ± 0.003) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ でほぼ同じレベルにあり、アラメは $0.029 \sim 0.117$ (平均 0.054 ± 0.038) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ でやや高い。最も高い値を示したのは平貝で ^{232}Th 濃度は $0.09 \sim 0.41$ (平均 0.21 ± 0.12) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ であった。山本等は 1989 年 9 月に石川県の能登沿岸で採取した 5 地点からのサザエについて可食部と内臓部の Th 同位体の分析を行い、平均濃度としてそれぞれ $0.073 \pm 0.006 \text{ Bq/kg}\cdot\text{wet}$ 、 $0.11 \pm 0.02 \text{ Bq/kg}\cdot\text{wet}$ の値を報告している。本調査での平貝の生重量での値は $0.026 \sim 0.059 \text{ Bq/kg}\cdot\text{wet}$ であり、サザエの可食部の値とはほぼ同じレベルにある。 ^{238}U の場合と同様に、海水中の ^{232}Th 濃度 0.0004 mBq/l を用いてみかけの濃縮係数を試算すると、シラス、カレイ、ヒラメの魚類、アラメおよび平貝で、それぞれ $(2 \sim 6) \times 10^3$ 、 $(1 \sim 5) \times 10^4$ 、 $(0.6 \sim 1.5) \times 10^5$ となる。

Th に関しては ^{232}Th 以外に ^{230}Th および ^{228}Th の測定も併せて行った。表 6 に ^{232}Th との放射能比でその結果を示したが、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比はいずれの生物種も 1 に近い値が得られている。一方 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比は平貝およびアラメでそれぞれ比較的良好な値 1 および 4 前後の値になっているが、魚類では 1 ~ 4 と多少ばらつきがある。 ^{228}Th については、 ^{228}Th が生物に直接取り込まれるよりもむしろ先行核の ^{228}Ra からの成長の寄与が大であると考えられる。

5.3 海産生物中の ^{226}Ra 濃度

天然ラジウム同位体のうち、ウラン系列に属する ^{226}Ra ($T_{1/2}=1600\text{y}$) とトリウム系列に属する ^{228}Ra ($T_{1/2}=5.76\text{y}$) は、海水中では ^{226}Ra の親核種である ^{230}Th および ^{228}Ra の親である ^{232}Th が難溶性であるため放射平衡になっておらず、かなり過剰に存在している。海水中の ^{226}Ra 定量研究はかなり多く、大洋表層水ではほぼ均一で約 $5 \times 10^{-14}\text{g Ra/l}$ (1.85 Bq/1000 l) であるが、深さとともに増し、深海底近くでは海底土からの Ra の溶出拡散による供給をうけ 10^{-13} g Ra/l をやや超えるものもある。沿岸水の濃度は外洋水より高くなっており、 $2 \sim 3\text{ Bq/1000 l}$ 程度の値が報告されている。一方、 ^{228}Ra については、一般に外洋表面水で低く、太平洋ではわずかに数 dpm/1000 l である。沿岸海域では数 100 dpm/1000 l にも達する値が報告されており、大洋より濃度ははるかに高い。本調査で測定した海産生物中の ^{226}Ra 濃度をまとめて表 4 に示した。表からわかるように、シラスの ^{226}Ra 濃度は $0.026 \sim 0.054$ (平均 0.037 ± 0.011) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ でカレイ、ヒラメの ^{226}Ra 濃度 $0.032 \sim 0.051$ (平均 0.038 ± 0.009) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ と同等である。平貝の ^{226}Ra 濃度 $0.022 \sim 0.115$ (平均 0.081 ± 0.048) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ は魚類のシラス、カレイ、ヒラメのそれよりも多少高い傾向にある。海藻のアラメで最も高い ^{226}Ra 濃度 $0.54 \sim 1.13$ (平均 0.8 ± 0.26) $\text{Bq/kg}\cdot\text{dry}$ が見いだされた。

海水中の一般的な ^{226}Ra 濃度は約 2 mBq/l であるので、各海産生物の生重量当りでの ^{226}Ra 濃度 (シラス: $4.5 \sim 7.8\text{ mBq/kg}\cdot\text{wet}$, カレイ, ヒラメ: $7.2 \sim 8.7\text{ mBq/kg}\cdot\text{wet}$, 平貝: $5 \sim 17\text{ mBq/kg}\cdot\text{wet}$ および アラメ: $117 \sim 233\text{ mBq/kg}\cdot\text{dry}$) と比較すると、すべての生物において Ra-226 の濃縮が起こっていることがわかる。上記の海水および生物中の ^{226}Ra 濃度を用いてみかけの濃縮係数を試算すると、シラス, カレイ, ヒラメで $2 \sim 4$, 平貝で $2 \sim 9$, アラメで $50 \sim 100$ になる。貝殻や骨のような硬組織が、軟組織に比較して Ra をより多く濃縮することが報告されている。

5.4. 海産生物中の ^{210}Po (^{210}Pb) 濃度

沿岸海域の表層海水中の ^{210}Po および ^{210}Pb 濃度は地域の状態を反映して変化が大きいが、詳細な研究はなされていない。日本近海のデータとして、北海道の噴火湾の表層海水中の ^{210}Po および ^{210}Pb 濃度が 1978 年 8 月採取水で、それぞれ $1.1 \pm 0.1 \text{ Bq}/1000 \text{ l}$ および $1.7 \pm 0.1 \text{ Bq}/1000 \text{ l}$ で $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は 0.64 であると報告されている。また一方、東京湾および大阪湾の ^{210}Pb 濃度は平均 $0.57 \text{ Bq}/1000 \text{ l}$ および $0.55 \text{ Bq}/1000 \text{ l}$ で噴火湾の値よりも低い値が報告されている。

今回測定した海産生物中の ^{210}Po および ^{210}Pb 濃度をまとめて表 4 に示したが、特に ^{210}Po 濃度は生物種によって大きく変動している。魚類についてみると ^{210}Pb 濃度はシラスとカレイおよびヒラメとでは大差ないが ^{210}Po 濃度はシラスの方がカレイ、ヒラメの 10 ~ 15 倍高い。平貝の ^{210}Pb 濃度は今回測定した生物中で最も高く 2.2 ~ 3.6 (平均 3.0 ± 0.7) $\text{Bq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ であり、 ^{210}Po 濃度はシラスとほぼ同じレベルの 110 ~ 245 (平均 170 ± 70) $\text{Bq}/\text{kg}\cdot\text{dry}$ であった。海藻のアラメについては ^{210}Pb , ^{210}Po ともにカレイ、ヒラメの値に近い。

^{210}Po については、海洋生物へのこの元素の蓄積が高く、自然放射性核種による海洋生物への放射線被曝上で主要な核種と考えられ、古くから調査研究が行われている。最近は、上記の観点からのみならず生物が生息している環境でどのような餌を食べているのかのトレーサーとして有望視されている。 ^{210}Po の生物への濃縮に関しては、食物連鎖を介しての濃縮は顕著には認められていない。

5.5. 海産生物中の ^{40}K 濃度

K は生物にとって必須元素の 1 つである。それ故、同種の生物では濃度に大きな違いはない。

5.6. 海産生物中の ^{137}Cs 濃度

日本近海の家産生物中で検出される ^{137}Cs は、ほとんど 100 % が大気圏内核実験からのフォールアウトである。この核種についてはすでに多くの調査研究が行われており、今回測定した生物の ^{137}Cs レベルは、たとえば福井県や石川県で原子力発電所周辺海域で採取している生物種に対して検出されている値と比べて大差ない。

5.7 放射性核種の生物濃縮の比較

生物への放射性物質（安定元素についても同様）の濃縮程度は、一般に生物と海水中の放射性物質の濃度比で表される。放射性元素が安定元素と地球化学的に平衡に達していると仮定したうえで、この比のことを濃縮係数と呼ぶ場合がある。実際に報告されてきた値の間には、変動幅が大きく 2 ~ 4 桁に及ぶものもあり、環境および生物自身のさまざまな要因が関与している。前者については、目的とする元素の海水中での存在状態、共存元素などであり、後者については、生物の餌のとり方、生長段階、季節的生理変化などが考えられる。それ故、この濃度比を絶対値としてとられるのではなくて、むしろその海域あるいはその沿岸で、そこに生息する生物が種々の放射性核種をどれほど蓄積しているかの相対的比較の目安と考えた方がよい。もちろん、生息する生物が平衡時に最高でどの程度の放射性核種を蓄積しうるかを表わす手段として用いることもできるが、上記したように変動幅が大きいことに常に留意すべきである。

今回測定した放射性核種間の生物への濃縮程度を全体像としてわかりやすく把握するために、報告されている海洋や沿岸での放射性核種濃度 (^{238}U : 40.8 mBq/l, ^{232}Th : 0.0004 mBq/l, ^{226}Ra : 3 mBq/l, ^{210}Pb : 1 mBq/l, ^{210}Po : 0.5 mBq/l, ^{137}Cs : 3.5 mBq/l, ^{40}K : 11.3 mBq/l) を用いて試算した濃度比（以後、この値をみかけの濃縮係数と呼ぶ）を栄養段階別生物の順にまとめて見た結果を図14に示した。みかけの濃縮係数で比較すると、 ^{232}Th , ^{210}Po が $10^3 \sim 10^5$ で最も高く、次いで ^{210}Pb , ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra で ^{238}U が最も小さい値になっている。栄養段階別に見ると、 ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th は栄養段階が高位に移るに従って、みかけの濃縮係数が漸減している。一方 ^{40}K や ^{137}Cs はどちらかと言えば栄養段階に無関係のように見える。 ^{210}Po については栄養段階別に増加する傾向も見うけられるが、カレイ、ヒラメの筋肉で低くなっておりはっきりしたことはまだ言えない。プルトニウムについては、栄養段階が高位に移るにつけてプルトニウムのみかけの濃縮係数が減少していることが見いだされており、生物によるこの元素の濃縮に対する食物連鎖の影響は一般に小さい場合が多いと言われている。事業所が測定している今回の海産生物の Pu や Am のみかけの濃縮係数がどの程度の値になっているかについては非常に興味もたれる。

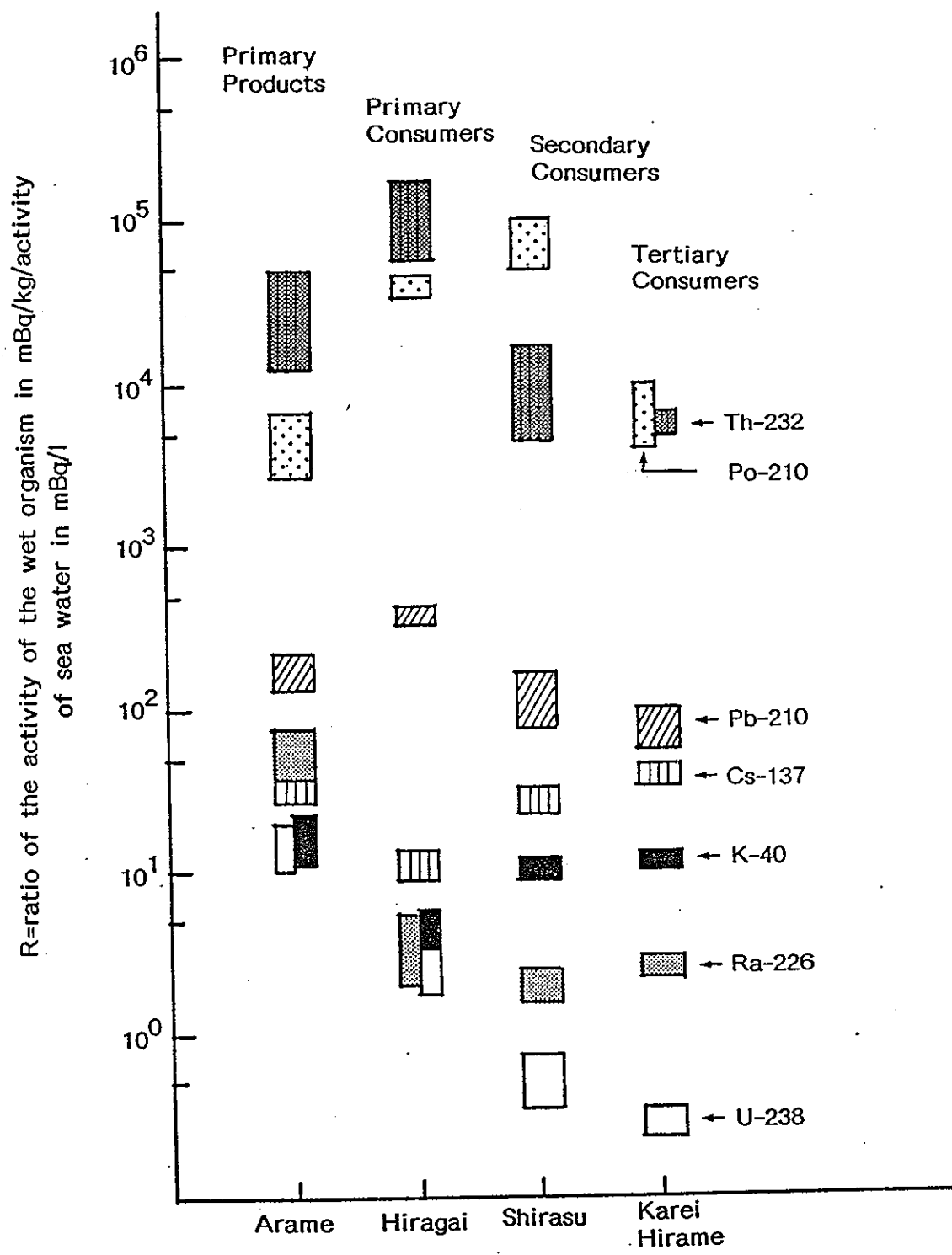


図14 海産生物試料の各放射性核種のみかけの濃縮係数の比較

5.8 海産生物中の放射性核種間の放射能比

^{40}K を除けば、今回測定したすべての核種は ^{238}U および ^{232}Th の系列核種である。すなわち、 $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ および $^{232}\text{Th} \rightarrow (^{228}\text{Ra}) \rightarrow ^{228}\text{Th}$ である。たとえば ^{234}U は ^{238}U の娘核種の 1 つであり、海水中では $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は 1.13 でほぼ一定である。今回測定した生物についての $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比はほぼ海水の値 1.13 と一致している。

Th 同位体には、 ^{232}Th 、 ^{230}Th 、 ^{228}Th があるが、難溶性のため、それらの濃度レベルは ^{238}U と比べて極端に低い。ただ ^{228}Th は ^{232}Th と放射平衡になく、 ^{228}Th の過剰がみられ、これには両核種の間にある ^{228}Ra の役割が大きい。今回 ^{228}Ra の測定は行わなかったが、 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比は 1 より大きくアラメでは 4 ~ 5 である。一方 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ は 1 前後の値になっている。海水中の Ra については、半減期の長い ^{226}Ra と半減期 5.7 年の短い ^{228}Ra に興味がある。特に ^{228}Ra については、海洋の生物が ^{228}Th を直接取りこむ量が無視できるならば、 ^{228}Th の成長をもとにその生物の年齢を推算できるなど、生物起源炭酸塩硬組織の生育機構解明にも役立つ。

^{210}Pb と ^{210}Po については、大気中からのフォールアウトの $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は 0.05 ~ 0.1 で ^{210}Pb が 10 - 20 倍多い。しかし、海洋に入ると、この比は 1 に近くなる。すなわち、フォールアウトの寄与よりも海洋中の ^{226}Ra からの供給が大であり、一般に ^{210}Po の方が ^{210}Pb に比べて表層から除かれやすい。沿岸海域では ^{210}Pb 、 ^{210}Po の両核種ともその濃度に季節変動が認められることが報告されており、 ^{210}Pb と ^{210}Po 間の放射性非平衡はいろいろな情報を与えてくれる。海産生物については、 ^{210}Po が生物に濃縮され易く、特に海産物を多く摂取する日本人に対しての被曝線量との関係で重要視されている。

6. 終りに

今年度は、東海近辺および大洗の沿岸で採取した海産生物について主として天然の放射性核種 ^{238}U (^{234}U)、 ^{232}Th (^{230}Th , ^{228}Th)、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb および ^{210}Po を測定した。その結果、東海近辺に生息する海産生物について、上記核種の蓄積程度を明らかにすることができ、長寿命人工放射性核種の $^{239,240}\text{Pu}$ や ^{241}Am との比較を可能にすることができた。今後は、その海域の海水や堆積物について上記核種の濃度の分布や変動を明らかにし、この海域の天然および人工放射性核種の動態をより詳細に考察していきたい。

7. 参考資料

環境アルファ核種の定量法と存在量について

— 食品から人体へ —

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 ^{235}U fission reaction is considered to be the most sensitive. Recently, the development of inductively coupled plasma mass spectrometry (ISP-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）摂取をつう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書¹⁾によれば、自然放射線源から受ける線量は2.4 mSvで、その内ラドン、トロン等の分が約1.3 mSv、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 ^{210}Po (^{210}Pb) 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、 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{226}Ra および ^{210}Po 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 ^{238}U 、 ^{235}U 、 ^{232}Th 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、 ^{238}U 系列と ^{232}Th 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⁾。 ^{238}U 系列は、

(1) $^{238}\text{U}(\alpha) \rightarrow ^{234}\text{U}(\alpha)$ 、(2) $^{230}\text{Th}(\alpha)$ 、(3) $^{226}\text{Ra}(\alpha)$ 、(4) $^{222}\text{Rn}(\alpha) \rightarrow ^{218}\text{Po}(\alpha)$ そして (5) $^{210}\text{Pb}(\beta^-) \rightarrow ^{210}\text{Po}(\alpha)$ の5つに分けられる。一方 ^{232}Th 系列は、(1) $^{232}\text{Th}(\alpha)$ 、(2) $^{228}\text{Ra}(\beta^-) \rightarrow ^{228}\text{Th}(\alpha) \rightarrow ^{224}\text{Ra}(\alpha)$ 、(3) $^{220}\text{Rn}(\alpha) \rightarrow ^{216}\text{Tl}(\beta^-)$ の3つのサブ系列に分けられる。 ^{210}Pb と ^{228}Ra 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。 ^{235}U 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 UNSCEAR 1988 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 110 mBq/d、ついで ^{226}Ra が 41 mBq/d、 ^{238}U が 14 mBq/d、そして ^{232}Th と ^{230}Th が 5 mBq/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。

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 1 g には 4つの放射性核種がそれぞれ 12 kBq を含むと仮定させる。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 日当りの食物摂取量は普通の自然放射能レベルの地域で約 14 mBq である。地域によって多少異なるが 12 ~ 30 mBq/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 ~ 50 mBq/kg であり、生重量で 100 g 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。

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きている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 γ (X)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

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	皮質骨	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 (Rn-222)	2.7	2.7	2.7 100 ^{b)}	170	170	2.7	2.7	2.7	2.7	2.7
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 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): トロンガス。

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10 mg
容量分析法	数 mg
吸光分光分析法 (アルセナゾIII)	数 μ g
○固体ケイ光光度法	数100～数10 ng
非破壊 γ (X)線スペクトロメトリー (Th-234測定)	数 μ g～数100 ng
○ α 線スペクトロメトリー (U同位体比測定可能)	数100～数10 ng
○機器中性子放射化分析法 (Np-239測定)	数10 ng
○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

ベクトロメトリー法、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、 $0.1 \mu\text{g}$ 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 8M HNO_3 で残っている Fe をカラムから除去、次いで多量の 8M HNO_3 (または 0.5M HCl) で U を溶離する。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できる。 ^{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。

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オントラック法が一般に多様されている。五十嵐等が人体組織の灰化試料 10 mg を用いてフィッシュオ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オントラック法は、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。

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 ^{238}U や ^{232}Th 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に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

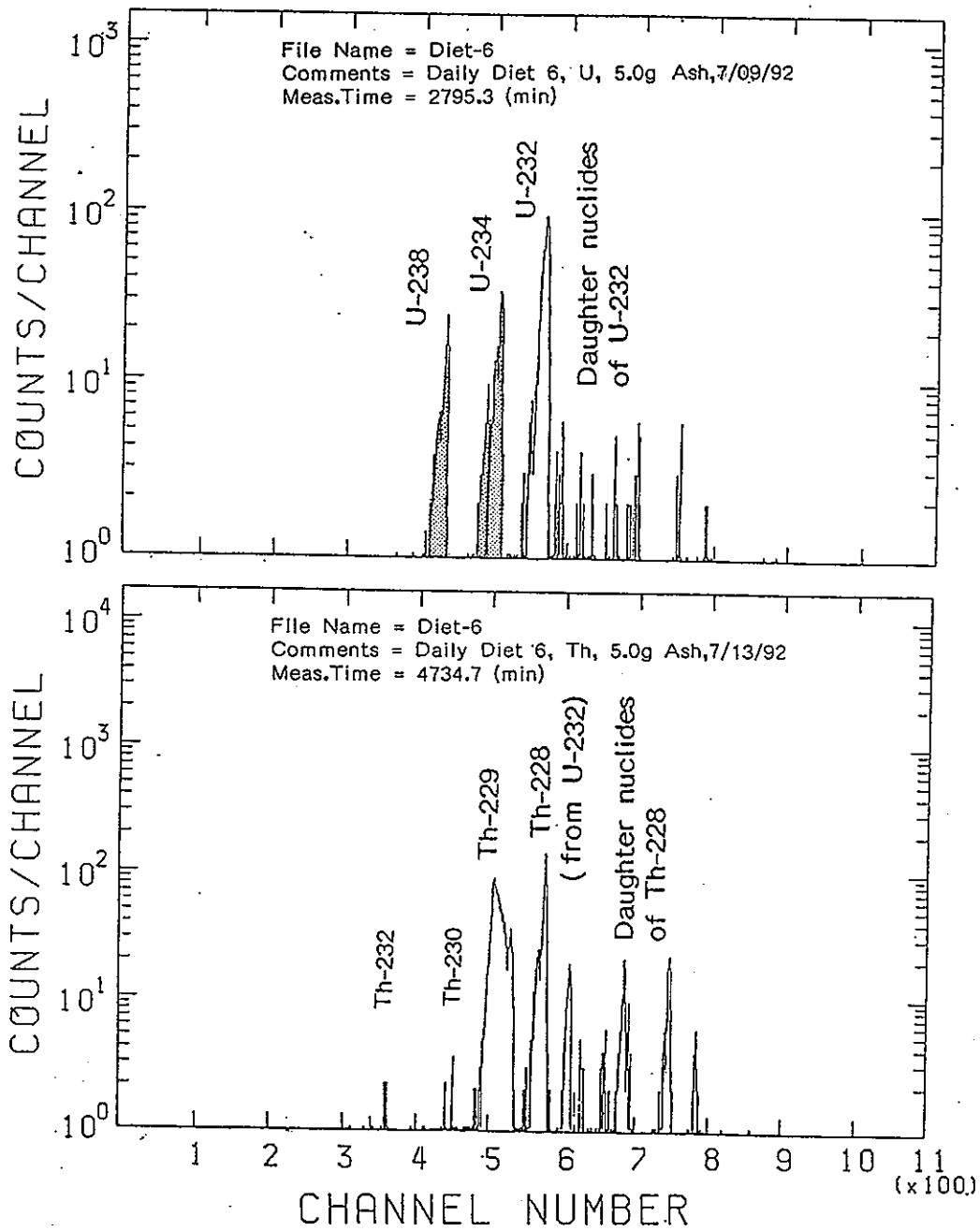


図1 α 線スペクトロメトリーによる日常食中のUとTh測定のスเปクトル例[5]
 Fig.1 Example of α -ray spectra for the determination of U and Th in daily diet sample[5]

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

表5 人体組織中のウラン濃度(フィッシュントラック法)[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	4.8 (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, B G : 5 cps,
 単位質量あたりの測定時間: 90 s、溶液導入量: 0.5 ml/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

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 ^{232}Th と同じ系列のサブグループ $^{228}\text{Ra} \rightarrow ^{224}\text{Ra}$ 中にある ^{228}Th 、さらにウラン系列の ^{230}Th 同位体がある。食品や人体組織中の ^{232}Th と ^{230}Th レベルは、土壌中の ^{232}Th と ^{232}U (^{230}Th) 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。 ^{228}Th については、そのサブ系列の始めの ^{228}Ra 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。

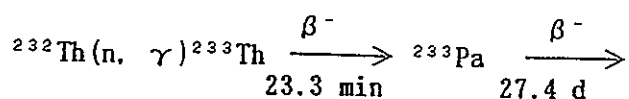
トリウムの分析法は、ウランの分析法と同様に歴史は古く、数十mg以上を対象とする重量分析法、さらに鉱石の分析などにかかりの濃度まで適用できる容量分析法、吸光分光分析法があるが、日常食や人体試料のような低レベルの ^{232}Th を測定する場合には化学分離・ α 線スペクトロメトリー法や中性子放射化分析法がよく用いられている。化学分離・ α 線スペクトロメトリーで ^{232}Th を測定する場合、化学収率 70% で、測定効率 30% の Si(Li) 検出器を用いて 4 日間の測定で 50 カウント程度の計数を得ようとするケースを考えると、用いる試料には少なくとも 0.7 mBq (0.04 dpm) の ^{232}Th が必要になる。実際に日常食の灰化試料 5 g 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 ($T_{1/2}=27.4$ d $E_{\gamma} = 300$ keV (6.3%), 312 keV (34%)) を測定する。

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 μ g = 0.24 dpm = 4 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.



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 ${}^{233}\text{Pa}$ を最初に MnO_2 に共沈、次いで BaSO_4 に共沈させて $\text{Ge}(\text{Li})$ 検出器で測定し、これまでに数多くの環境試料や人体試料中の ${}^{232}\text{Th}$ データを報告している^{10, 11)}。

最近は、 ${}^{238}\text{U}$ と同様に、ICP-MS による ${}^{232}\text{Th}$ 測定も試みられ^{7, 8)}、表 6 に示すように pg/ml オーダ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 ${}^{226}\text{Ra}$ とトリウム系列の ${}^{228}\text{Th}$ や ${}^{224}\text{Ra}$ の α 線放射体を形成するサブ系列の先行核 ${}^{228}\text{Ra}$ のみが重要である。表 2 に示した摂取量で見ると、 ${}^{226}\text{Ra}$ と ${}^{228}\text{Ra}$ は等しく 41 mBq/d で、 ${}^{238}\text{U}$ や ${}^{232}\text{Th}$ 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。 ${}^{228}\text{Ra}$ も骨で 50 mBq/kg (生重量) とやや高いが、他の組織は ${}^{232}\text{Th}$ とほぼ似たレベルにある。

環境試料中の ${}^{226}\text{Ra}$ 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) ① 2π ガスフロー比例計数管または② 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 ${}^{226}\text{Ra}$ 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 ${}^{226}\text{Ra}$ を用い 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 ${}^{226}\text{Ra}$ 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 ^{225}Ra 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, ^{225}Ac , ^{221}Fr , ^{217}At が成長するので, 他の α 線の妨害を受けない ^{217}At のピークを用いて容易に ^{226}Ra の化学収率を求めることができる (図 3)。図 4 に 2 - 4 g 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 ^{226}Ra 分析 (灰化試料 2 - 4 g 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 5 g 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 0.2 mBq/試料であり, 実試料に十分適用できる。一方, ^{228}Ra については, この核種が壊変に伴って最大エネルギー 55 keV (6.7 keV 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, 通常分析では, ^{228}Ra の娘核種 ^{228}Ac をミルクキングして測定される場合が多い。

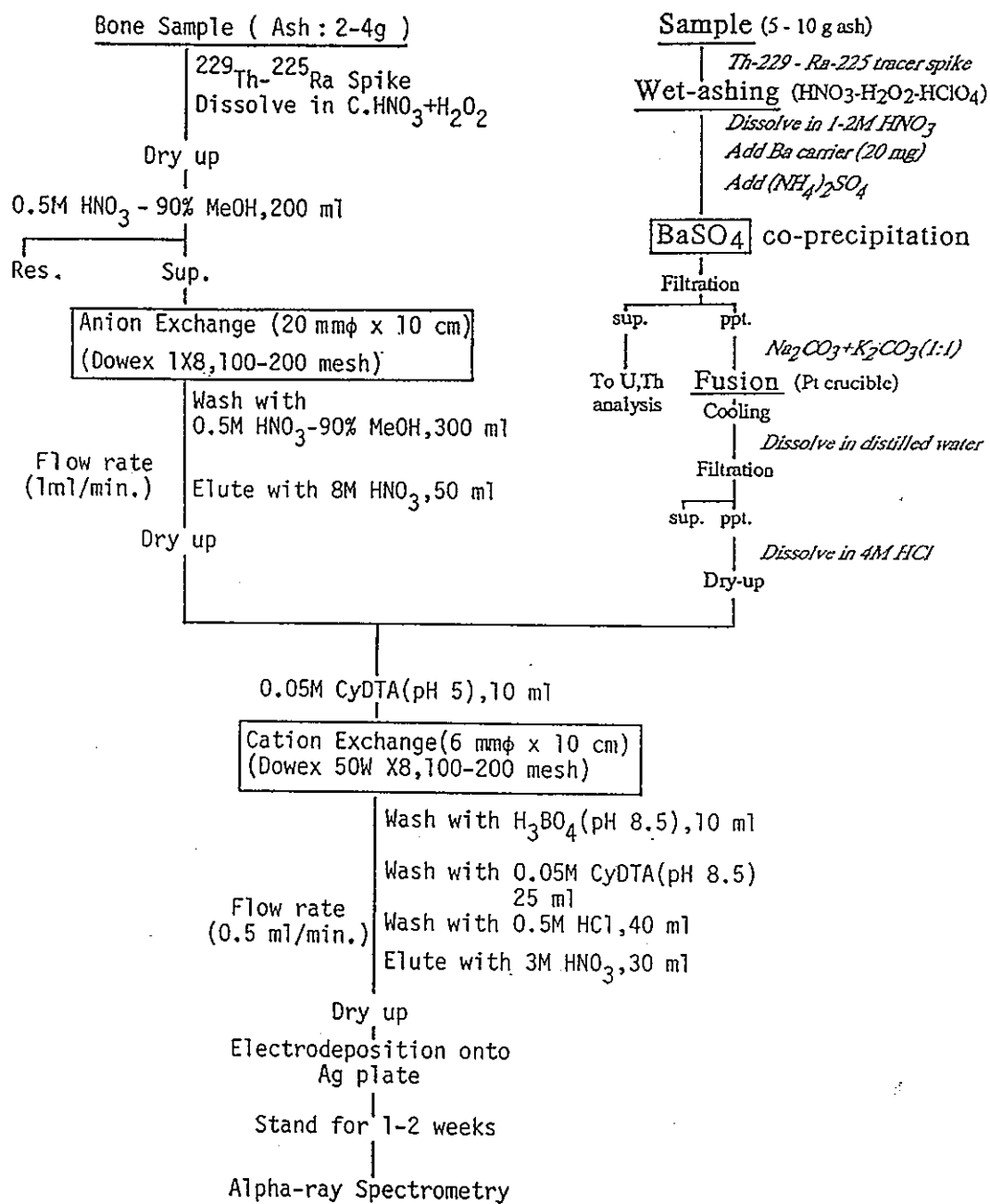


図2 日常食および人骨中の微量Ra-226測定のアナリスキーム[5,14]
 Fig.2 Analytical flowsheet for the determination of low-level Ra-226 in daily diet and human bone samples by α -ray spectrometry[5,14]

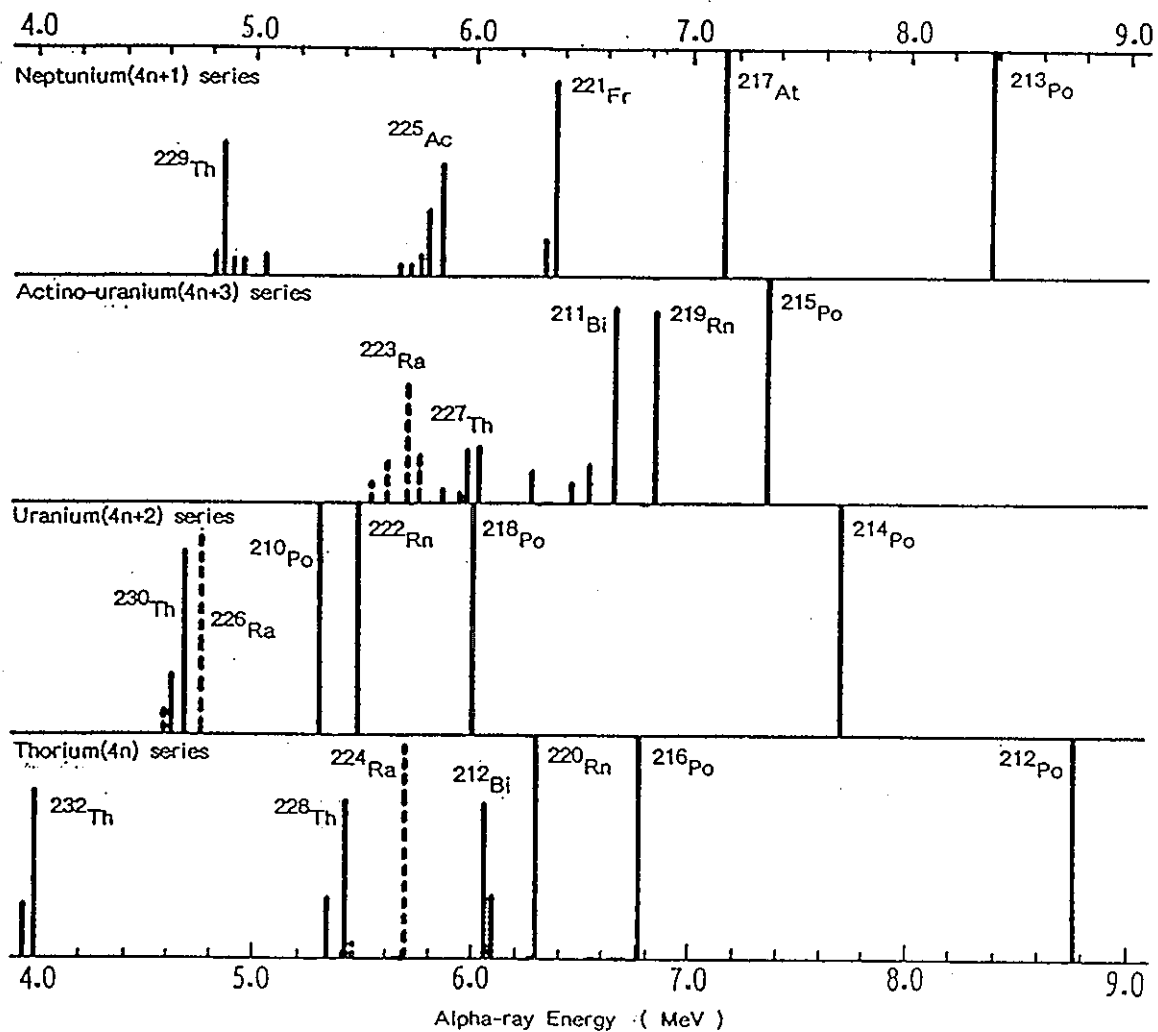


図3 ラジウム同位体とそれらの壊変生成物の α 線エネルギー[14]
 Fig.3 Alpha-ray energies of radium isotopes and their decay products[14]

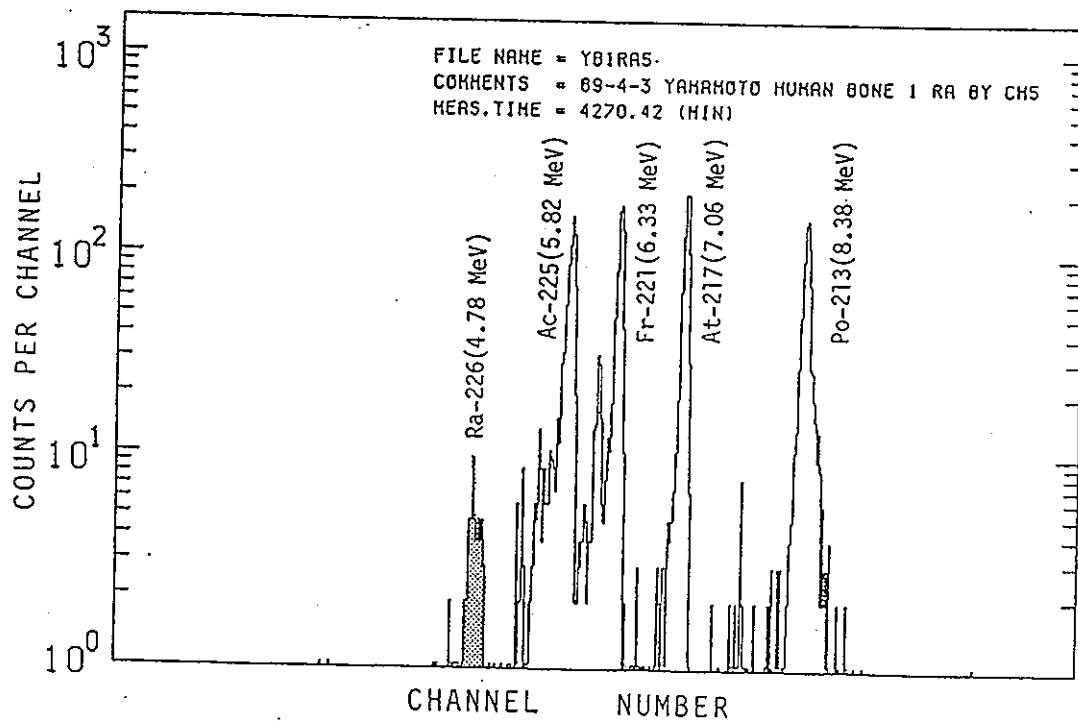


図4 α 線スペクトロメトリーによる人骨中のRa-226測定のスเปクトル例[13]
 Fig. 4 Example of α -ray spectrum for the determination of low-level Ra-226
 in human bone ash sample[13]

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 (22.3 y) 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、殻類と野菜で中間で、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 ($T_{1/2} = 2.9$ y, $E_{\alpha} = 5.12$ MeV) または ^{209}Po ($T_{1/2} = 102.5$ y, $E_{\alpha} = 4.88$ MeV) が一般的である。 ^{208}Po と目的とする ^{210}Po ($E_{\alpha} = 5.31$ 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, 24 h) 中に、表 8 に示すように揮発するので⁵⁾、分析する際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 ^{210}Pb 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、数カ月放置して ^{210}Pb から成長した ^{210}Po を測定することにより間接的に定量している。 ^{210}Pb については、娘核種の ^{210}Bi を用いて測定することもよく行われているが、 ^{210}Pb のレベルが低い場合には、 ^{210}Po 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。

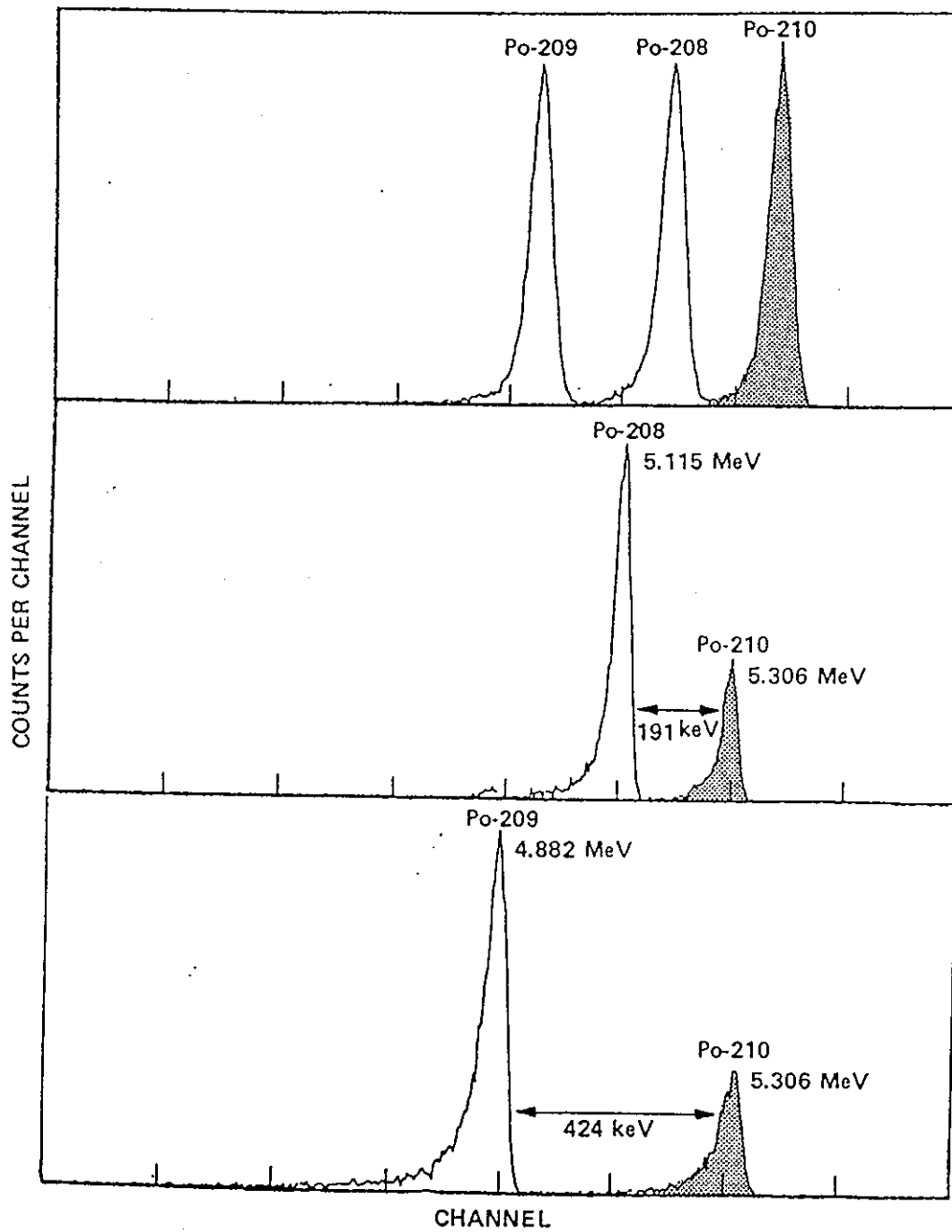


図6 ポロニウム同位体の α 線スペクトルの比較[19]
 Fig.6 Alpha-ray spectra of the plonium isotopes[19]

表 8 灰化処理(450℃)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	Dry Ashing	Recovery after
	(Freeze-drying)	(450℃,24 h)	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	Dry Ashing	Recovery after
	(Freeze-drying)	(450℃,24 h)	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)

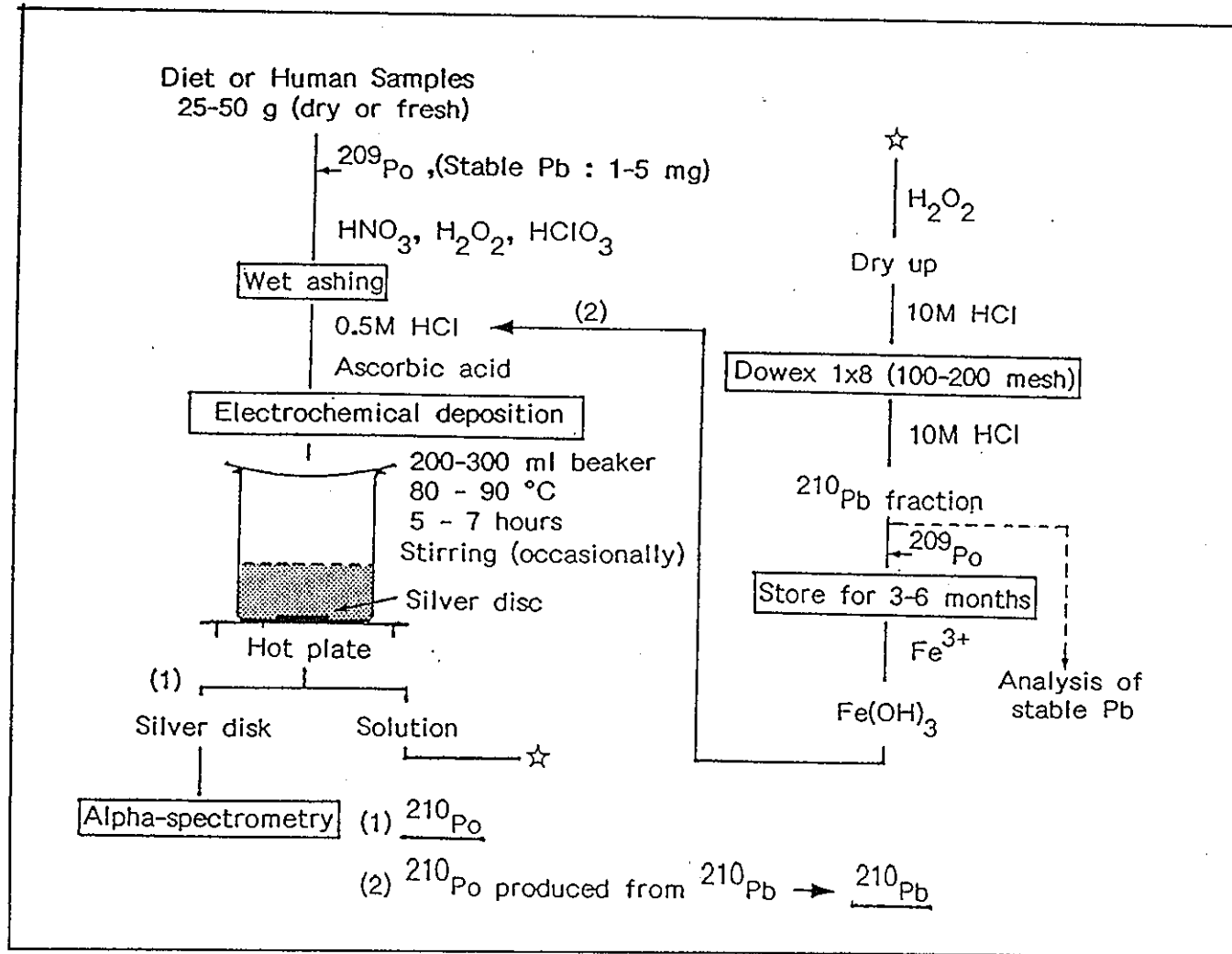
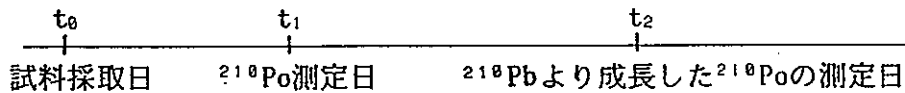


図7 食品および人体組織中のPb-210とPo-210の分析・測定スキーム[20]
Fig.7 Analytical flowsheet for the determination of Pb-210 and Po-210
in food and human tissue samples[20]

試料採取日での ^{210}Po 濃度 (A_1^0) 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 ^{210}Pb (A_2^0) から生成する ^{210}Po の寄与、さらに分析日までの ^{210}Po の減衰などを考慮することが必要である。

$$A_2^0 = A_1^0 / f_1$$

$$A_1^0 = (A_1^1 - f_3 \cdot A_2^0) / f_2$$



A_1^1 : 時間 t_1 で測定した ^{210}Po 濃度

A_2^1 : 時間 t_2 で測定した ^{210}Pb からの生成 ^{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

f_2 : $(t_1 - t_0)$ 時間の ^{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 ($E_\gamma = 46.5 \text{ keV}$, 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⁾。

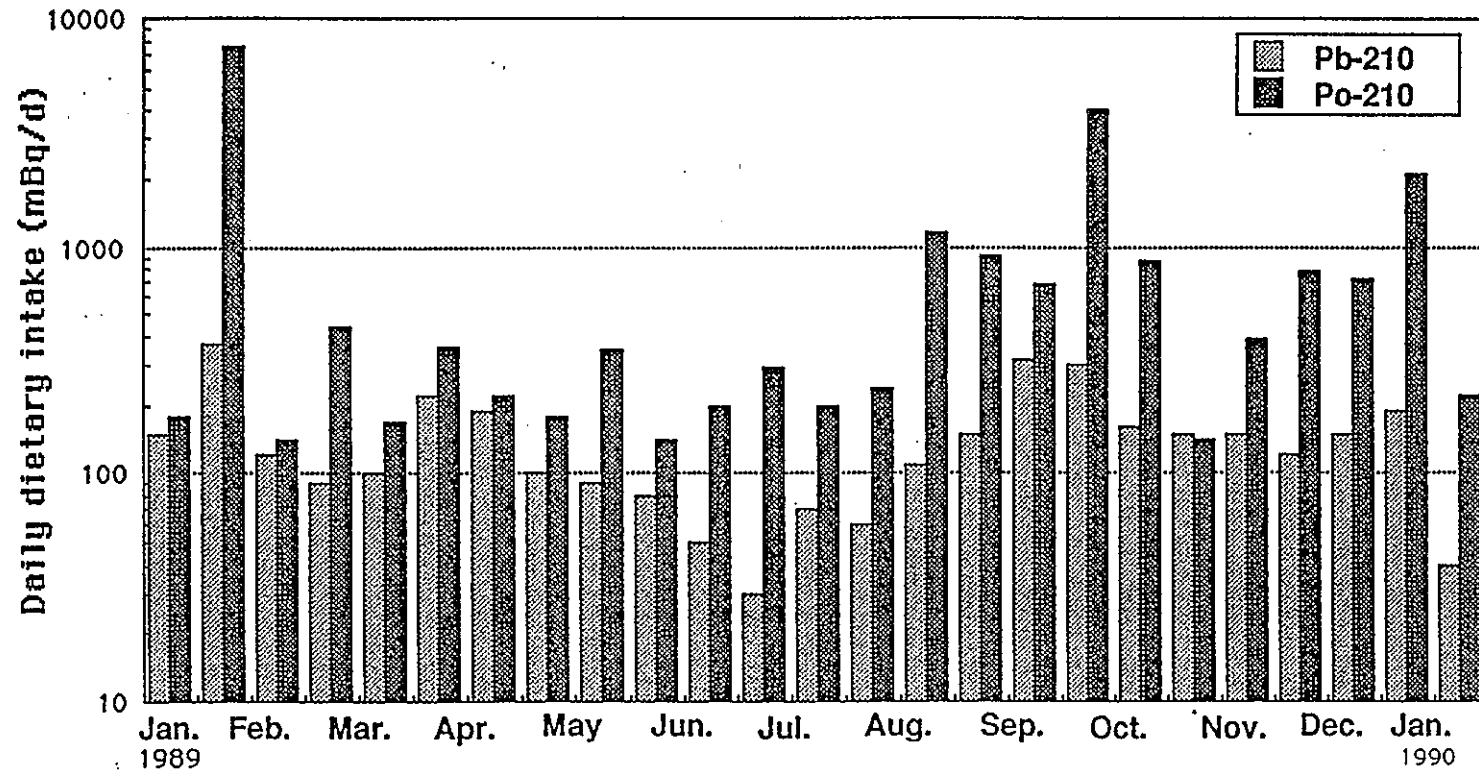


図8 日常食からの一人一日あたりのPb-210とPo-210摂取量
(秋田大の病院の普通給食を利用)[21]
Fig.8 Intakes of Pb-210 and Po-210 from daily diets collected at
hospital of Akita Univ.[21]

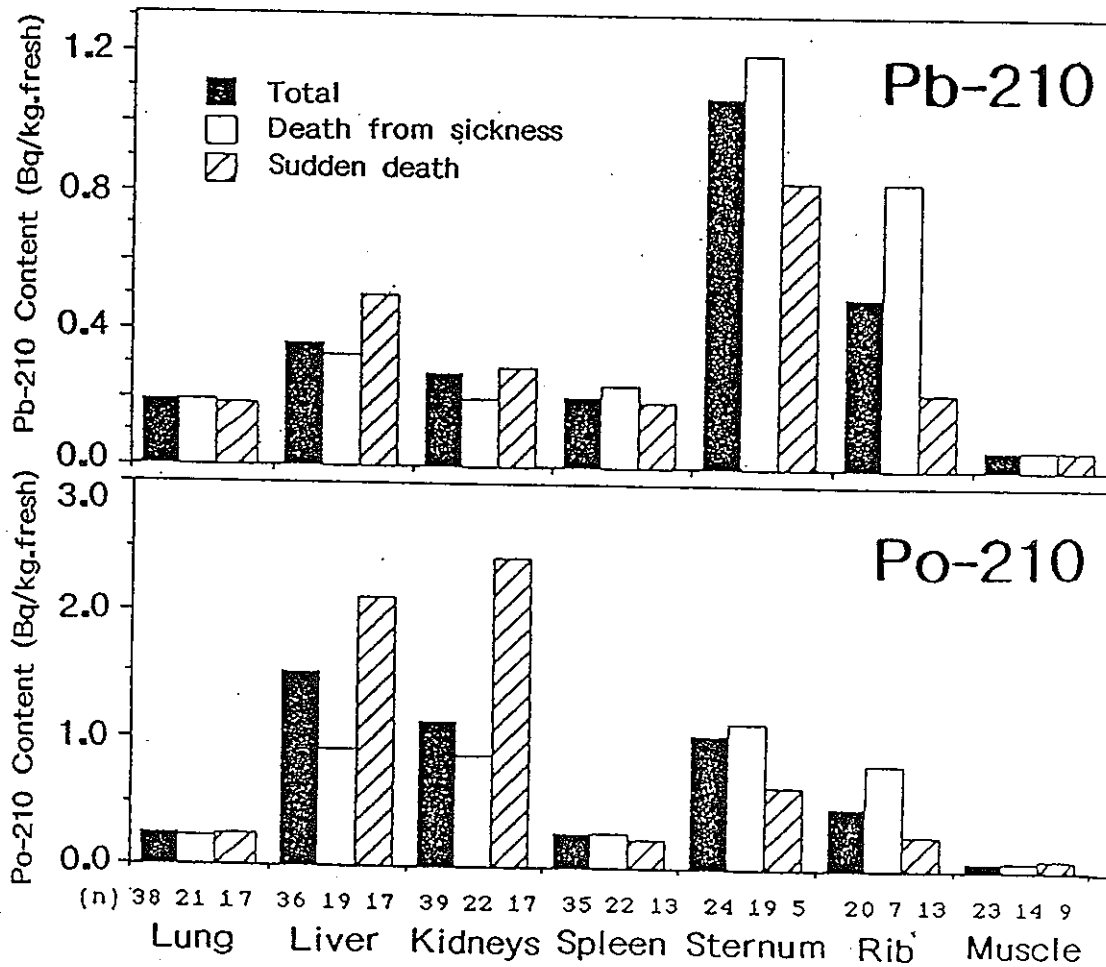


図9 日本人の人体組織中のPb-210とPo-210濃度 [21]

Fig.9 Concentrations of Pb-210 and Po-210 in Japanese human tissues [21]

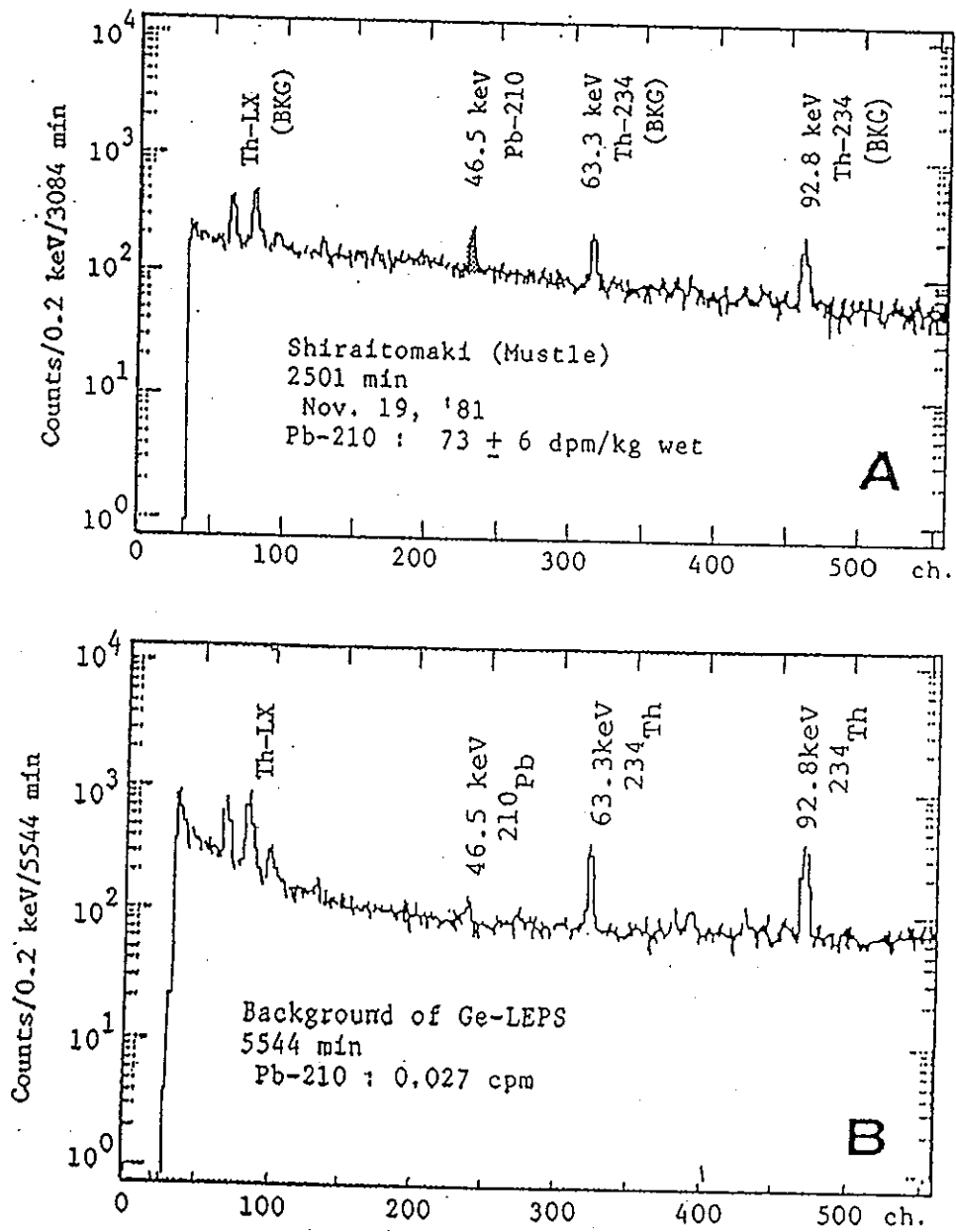


図10 Ge-LEPSによるPb-210の直接測定のスベクトル例[22]
 Fig.10 Example of Ge-LEPS spectra for the determination of Pb-210
 (A : sample, B: background)[22]

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るあげることが急務であると考える。

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, 1988 report 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, H.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).