淡水生物による放射性ルテニウムの摂取ならびに排出

本田嘉秀, 古賀妙子, 森嶋弥重, 佐藤安生*, 北脇重富*, 西脇 安**

近畿大学原子力研究所, *近畿大学理工学部, **国際原子力機関

1971年5月6日 受理

生物群落における淡水生物による放射性ルテニウムの摂取, 蓄積について, 淀川表流水, 淡水生物5種, 底砂から成る水槽生態系に $^{106}\text{RuNO-nitrato}$ を1回添加して実験を行なった。生物における放射能濃度は1~2日でピークとなったのち徐々に平衡状態になる傾向を示し, 底砂上部への蓄積は約7日で平衡状態になった。各生物の ^{106}Ru に対する平均濃縮係数はアオウキクサ, タニシ, カワニナ, カラスガイ, 小ブナの順に低くなった。貝類の軟組織においては ^{106}Ru の濃縮係数は水槽生態系では単一種飼育より約 $1/5 \sim 1/10$ 程度低い値を示した。生物に蓄積された ^{106}Ru の排出はニトロシル錯体よりもクロロ錯体のほうが速く, 組織により2つの生物学的半減期が観察された。

1. はじめに

水産生物による放射性ルテニウムの摂取, 蓄積についてはフォールアウトや放射性廃液の環境放出による環境汚染の調査研究^{1)~10)}あるいはトレーサー実験などにより多くの研究^{11)~17)}が行なわれているが, とくにわが国においては原子炉施設および核燃料再処理施設などが海岸近くに設置あるいは計画されることが多く, 海洋の放射能汚染と海産生物による放射性核種の濃縮について, 活発な研究が行なわれている。放射性ルテニウムが核分裂生成物中での重要核種であり, かつ多くの原子価をとり, その化学的挙動の複雑なことから環境とくに水圏における挙動と分布を知ることは放射能汚染を評価するうえにおいてきわめて重要であると思われる。淡水圏は海洋圏と異なり時と場所によりその陸水学的諸性状が大いに変化することが指摘され, 淡水中での放射性核種の存在状態もまた海水中とは異なるものと推測される。

筆者らは水圏中における放射性ルテニウムの動向, 分布に関する研究の一環として淡水水槽生態系を使って, 淡水圏における放射性ルテニウムの動向および生物群落におけるその摂取, 蓄積などについて実験し, 単一種飼育の場合と比較検討した。また淡水生物によるその排出についても若干の実験を行なった。

2. 実験材料および方法

1) 放射性ルテニウムは The Radiochemical Centre, Amersham(英国)で作られた ^{106}Ru で, 硝酸溶液中の nitrosyl ruthenium nitrato complexes(RuNO-nitrato)および塩酸溶液中の ruthenium chloride を主体とすると考えられる complexes (Ru-chloro)であ

る。nitrosyl ruthenium はそのまま, まず希硝酸で, ついで ρ 過河川水で希釈した。ruthenium chloro-complexes は濃塩酸で2回蒸発乾固ののち, 希塩酸に溶解, ついで ρ 過河川水で希釈した。

2) 実験に使用した淡水生物は小ブナ(体長平均6 cm, 体重平均2.0 g), カワニナ(体長平均2.5 cm, 体重平均2.0 g), タニシ(体長平均3 cm, 体重平均3.7 g), カラスガイ(体長平均11 cm, 体重平均72 g), アオウキクサで, いずれも奈良市内の養魚場で採取後, 研究室において飼育馴化した。

3) 河川水は大阪府守口市庭窪で採取した淀川表流水でその陸水学的性状を Table 1 に示した。

Table 1 Limnological characteristics of Yodo River on May 19, 1970

Temperature	25°C
pH	7.45
Conductivity	132 $\mu\text{mho/cm}$
KMnO ₄ Consumption	15.8 ppm
Total dissolved solids	90 ppm
Calcium	10.8 ppm
Potassium	2.4 ppm
Sodium	9.0 ppm
Chloride	10.2 ppm
Total iron	<0.1 ppm

4) 実験水槽生態系は20W昼光灯照明付きのアクリル樹脂製水槽(66×25×37cm³)に細砂(粒径0.5~1.0 mm)4 kgを敷きガラスウール(50 g)をつめた通気型

循環浄化槽をつけ、淀川表流水40 l, 小ブナ50尾, カラスガイ13個, タニシ15個, カワニナ25個, アオウキクサ50 gを投入したものである。そして数日間, 系の安定を確かめたのち, 約350 μCi の $^{106}\text{RuNO-nitrato}$ を1回添加し, 以後経時的に ^{106}Ru の生物による摂取状況を観察した。

単一種飼育実験においてはそれぞれの生物種を単独で, 水槽飼育しこれに放射性ルテニウムを1回添加のち ^{106}Ru の摂取状況を観察した。また ^{106}Ru の摂取実験終了後に各生物を放射性核種の添加していない淀川表流水中に移し, 生物中の残留放射能を測定し排出状況を観察した。実験は水温17~32°Cで行なった。

5) 試料の放射能測定はウキクサ, 底砂などはそのまま, 動物は解剖のち, 各組織別に小試験管に入れ, 重量測定のち, 2 in. $\times$ 1 $\frac{3}{4}$ in. ウェルタイプ NaI (TI) シンチレーションカウンターを用いて行なった。そして同時に採取した飼育水の放射能濃度との比をもって濃縮係数を算出した。またそのさい, 試料の容量変化による計数率の補正を行なった。

3. 結果と考察

3.1 水槽生態系における $^{106}\text{RuNO-nitrato}$ の動向および分布

水槽生態系に放射性ルテニウムを1回添加後のその各成分における ^{106}Ru の放射能濃度の経時変化を

Fig. 1 Uptake of $^{106}\text{RuNO-nitrato}$ by some organisms in an aquarium ecosystem of fresh water. (Water temp. 22~27°C)

Fig. 1 に示した。小ブナについては放射能濃度の変動がいくぶん大きかったが, いずれの生物も1~2日目にピークとなったのち, 飼育水中の放射能濃度の減少にともない漸減しやがて平衡状態になる傾向を示した。底砂上部における放射能濃度は漸増して約1週間で平衡となった。各生物の組織別の放射能濃度変化のパターンは小ブナ, カワニナ, カラスガイについては組織間でほとんど相違がみられなかったがタニシについては殻と軟組織でやや異なり, 殻では徐々にその放射能濃度が増加して平衡状態になっていったのに対して軟組織では一度ピークとなったのちに減少してやがて平衡となる傾向を示した。環境水中の放射能濃度は投入後1~2日で急激に減少し, それ以後はほぼ一定となったが, これはRu粒子の形成と循環ろ過槽など容器への吸着のためと思われる。放射能投入後2日目における水槽生態系各成分への放射能分布をTable 2に示したが約80%が循環ろ過槽にあり, 生物群への分布は約3%であった。以上のような淡水生態系にお

Table 2 Percentage distribution of ^{106}Ru in an aquarium ecosystem of fresh water (on day 2)

Component	Total weight (g)	^{106}Ru Percentage of total activity (%)
Water	40000	10.3
Bottom sands	4000	5.3
Duckweeds	10	0.5
Crucian carps	95	0.3
River snails	28.2	0.5
Mud snails	51.4	0.7
Fresh water mussels	796	1.1
Filtration-aeration apparatus and others	—	81.3

る ^{106}Ru の動向, 分布をP.H. Whittaker¹⁸⁾の淡水水槽生態系における ^{32}P の動向, 分布と比較してみると, ^{32}P の場合にはまずはじめにプランクトンに摂取され底部および器壁にある藻類はそれより遅れ, これらの藻類を摂取する動物中の ^{32}P のレベルは約2週間後になお最高レベルに達せず, 沈積物中の放射能レベルは時間とともに上昇したと報告している。 ^{106}Ru の場合には生物によるそのような差がほとんどみられなかった。これは ^{32}P が主として水中でリン酸イオンとして存在し, その生物学的要求にしたがって摂取されるのに対して, ^{106}Ru は particulateとして存在する割合が

多く、水産生物への蓄積が市川ら¹⁴⁾も指摘するように表面現象に依存する点がより大きいと思われる。

環境水の放射能濃度がほぼ一定に達したのちの期間における各生物の¹⁰⁶Ruに対する濃縮係数の平均値をTable 3に示した。アオウキクサがいちばん高く、タ

Table 3 Average concentration factors for ¹⁰⁶Ru in fresh water organisms with different rearing conditions
Chemical form of ¹⁰⁶Ru : RuNO-nitrato
Water volume : 40 l

Rearing condition		Single species, fresh water alone	aquarium ecosystem
Component			
Duckweeds		—	171
Mud snails	soft tissues	229	21.9
	shell	207	51.0
	whole body	207	35.4
River snails	soft tissues	42.0	8.4
	shell	28.5	43.8
	whole body	31.7	33.2
Fresh water mussels	muscle	1.6	0.5
	mantle	3.0	1.2
	gill	2.8	2.0
	visceral mass	15.7	1.3
	shell	53.3	11.3
	soft tissues	8.2	1.6
	whole body	33.9	6.4
Crucian carps	visceral mass	10.8	13.4
	other parts	0.6	0.7
	whole body	2.9	3.5
Bottom sands		—	10.5

ニシ、カワニナ、カラスガイ、小ブナの順に低くなっていた。

¹⁰⁶Ruの蓄積がアオウキクサ、貝殻などに比較的高かったのはその蓄積がもっぱら表面現象であり、したがって単位重量あたりの表面積の大きさに依存していると思われる。カラスガイにおいて各組織別の¹⁰⁶Ruの濃縮係数を比較すると殻、エラ、内臓、外套膜、筋肉部の順になり海産アサリ¹⁴⁾の場合と同じであった。

実験期間中の水槽生態系における飼育水の性状および水中の¹⁰⁶Ruをミリポアフィルターで分画した結果をTable 4に示した。これによると飼育水中の¹⁰⁶Ru NO-nitratoの約90%以上がミリポアフィルターHA

Table 4 Analytical data and fractionation of ¹⁰⁶Ru in rearing water

Days after addition of ¹⁰⁶ Ru	pH	Conductivity $\mu\text{mho}/\text{cm}$	Percentage distribution of ¹⁰⁶ Ru in each fraction (%)				Mass balance of ¹⁰⁶ Ru at the time of fractionation(%)
			SM	RA	HA	HA filt.	
0	8.2	196	—	—	—	—	—
5	8.0	340	1.9	1.2	1.2	95.7	84.3
12	6.7	360	9.1	1.2	1.0	88.7	93.7
23	6.4	470	1.7	1.2	1.3	95.9	92.5

SM: Millipore filter, mean pore size 5 μ

RA: Millipore filter, mean pore size 1.2 μ

HA: Millipore filter, mean pore size 0.45 μ

型の口液画分(HA-filtrate)中に存在することが認められた。これはおそらく水中に存在した粒子状の¹⁰⁶Ruの大部分が循環口過槽に吸着されたためと思われるが、W.J. Lammers¹⁹⁾はWhite Oak Lakeの廃液中の¹⁰⁶Ruを遠心分画してその大部分が可溶性画分にあることを報告しているので淡水中では海水中よりも粒子形成は少ないのではないと思われる。

3.2 水槽生態系と単一種飼育における¹⁰⁶Ru (Ru-NO)の摂取、蓄積の比較

水槽生態系と単一種飼育における濃縮係数の比較をTable 3に示した。貝類すなわちタニシ(軟組織)、カワニナ(軟組織)、カラスガイ(軟組織)においては水槽生態系の場合のほうが、約 $1/5 \sim 1/10$ 程度低い値を示した。市川ら¹⁴⁾は砂泥中でアサリを飼育した場合、放射性砂泥を取り込むため内臓の濃縮係数が高いことを指摘しているが、今回の淡水水槽生態系の実験ではむしろ低かった。これは底砂の性状の相違による他に摂取の競合が考えられる。すなわち生物群落においては食物連鎖の形成とともに食性の類似した生物種の間では摂取の競合の影響がより大きいと思われる。蓄積平衡時の生物の各組織における¹⁰⁶Ruの分布をTable 5に示した。フナの場合RuNOではエラを含む内臓に約80%が分布しているが、水槽生態系のほうが若干高かった。これは汚染されたアオウキクサやその他の生物

Table 5 Comparison of percentage distribution of ^{106}Ru in fresh water organisms with different rearing conditions

¹⁰⁶ RuNO-nitrato			
Rearing condition		Single species, fresh water alone (%)	aquarium ecosystem (%)
Organisms			
Crucian carps	visceral mass	77	85
	other parts	23	15
Fresh water mussels	soft tissues	10	30
	shell	90	70
Mud snails	soft tissues	46	10
	shell	54	90
River snails	soft tissues	34	19
	shell	66	81

の排泄浮遊物質を経口摂取したためではないかと思われる。カラスガイについてはともに軟組織への分布は低かったが同じ貝類でも巻貝のタニシ、カワニナについては生態系に比べて単一種飼育では軟組織への分布が増加していた。このことは単一種飼育のタニシ、カワニナにおいて軟組織の濃縮係数が殻のそれと同じくらいにあるいは高くなっているのと同じく一致していた。

3.3 ^{106}Ru の化学形による摂取、蓄積の比較

単一種飼育において ^{106}Ru の化学形の相違による濃縮係数の比較を Table 6 に示した。アオウキクサ、カワニナ、カラスガイの軟組織についてはchloro-complexes のほうがいくぶん高く、小ブナの内臓については逆に nitrosyl nitrato のほうが高かった。しかしこれらの相違については測定個体数が多くなく、かつ測定値のバラツキを考慮すると必ずしも明確なものとはいえないと思われるが、海産生物においては化学種による濃縮係数の相違が指摘^(14), 20)されているので、今後なお検討を要するものと思われる。また Table 7 に示すように小ブナにおいてはchloro-complexesでは内臓への分布が nitrosyl nitrato よりも低かった。これは後記するように chloro-complexes が nitrosyl よりも排出が速いことによるためと思われる。

3.4 生物に蓄積された ^{106}Ru の排出

^{106}Ru の蓄積がほぼ平衡に達した生物を使ってその排出実験を行なった。Fig. 2 にアオウキクサにおけ

Table 6 Comparison of average concentration factors for different chemical forms of ^{106}Ru in fresh water organisms

Rearing condition: Single species, fresh water alone

Organisms		Chemical form	Ru-chloro (%)	RuNO-nitrato (%)	Water volume (l)
Duckweeds			183	103	1.5
Mud snails	soft tissues		—	1.2	1.5
	shell		—	60.9	
	whole body		—	19.6	
River snails	soft tissues		8.0	1.4	1.0
	shell		32.0	52.2	
	whole body		19.5	21.4	
Fresh water mussels	muscle		1.1	0.9	3.0
	mantle		2.2	2.9	
	gill		3.6	3.8	
	visceral mass		7.7	0.4	
	shell		25.9	24.7	
	soft tissues		5.8	1.2	
Crucian carps	whole body		17.0	11.0	40
	visceral mass		2.3	10.8	
	other parts		0.9	0.6	
	whole body		1.1	2.9	

Table 7 Comparison of percentage distribution of different chemical forms of ^{106}Ru in fresh water organisms

Rearing condition: Single species, fresh water alone

Organisms		Chemical form	Ru-chloro (%)	RuNO-nitrato (%)
Crucian carps	visceral mass		44	77
	other parts		56	23
Fresh water mussels	soft tissues		11	7
	shell		89	93
River snails	soft tissues		13	3
	shell		87	97

Fig. 2 Loss of ^{106}Ru from duckweeds.

る排出の状況を示した。これによると非汚染水に移してから10日後のアオウキサの残留放射能は $^{106}\text{RuNO}$ -nitratoの場合は初めの放射能の約50%であるのに対して, chloro-complexesの場合は約3%でchloro-complexesの排出が非常に速かった。またはじめ数日間はそののちに比べてかなり速いことが認められた。Fig. 3に小ブナにおける排出状況を示したが、10日目の残留放射能は $^{106}\text{RuNO}$ で約30%、クロロ錯体で約20%であった。小ブナについてもクロロ錯体の排出が

Fig. 3 Loss of ^{106}Ru from crucian carp.

速かったが、これらの結果は市川ら¹³⁾のマハゼの実験結果と同じ傾向であった。また排出の経過において、各組織への ^{106}Ru の分布を円内に示したが、これによ

ると内臓への分布は初めの5日間は急激に減少し、それ以後では減少は緩やかとなった。12日目におけるその分布は内臓に約30%であった。このことは放射性の腸管内容物はほぼ5日間で排出され、その後は腸管あるいはその他の内臓組織自身の残留放射能を示していると思われる。そして内臓全体に含まれた放射能のうち約15%が長生物学的半減期成分であり、組織自身に存在したものと思われる。

カラスガイにおける排出は殻、軟組織とも初期の急激な減少は見られず、両者でよく似た排出パターンを示した。これに反してタニシの殻においてははじめの数日はやや速く、それ以後は緩慢な排出を示した。

そしてその長生物学的半減期成分は約30%であった。タニシの軟組織においては初期の放射能値のパラツキがやや大きかったが、これは放射性排泄物をふたたびとり込んだためではないかと思われる。

4. まとめ

通気循環ろ過槽をつけた淡水水槽生態系を用い、 ^{106}Ru の動向、分布および生物群落におけるその摂取、蓄積などについて実験し、つぎの結果を得た。

- 1) 水中の放射能濃度は放射能を添加後1~2日で急激に減少し、その後はほぼ一定となったが水槽生態系の各生物における $^{106}\text{RuNO}$ -nitratoの濃度は1~2日でピークに達しその後減少しつつ平衡に達する傾向を示した。底砂上部での濃度は徐々に上昇し約1週間で平衡に達した。各生物の ^{106}Ru に対する平均濃縮係数はアオウキサ171, タニシ35.0, カワニナ33.2, カラスガイ6.4, 小ブナ3.5であった。
- 2) 各生物の $^{106}\text{RuNO}$ -nitratoに対する濃縮係数は単一種飼育の場合に比してタニシ, カワニナ, カラスガイの軟組織については数分の1以下であったが、フナにおいてはほとんど差はみられなかった。
- 3) 小ブナにおける ^{106}Ru の分布は蓄積平衡時で消化管を含む内臓に約80%であった。
- 4) 生物に蓄積された ^{106}Ru の排出は nitrosyl nitrato complexesよりも chloro-complexesのほうが速く、組織により長短2つの生物学的半減期が観察された。

1970年10月, 第13回日本放射線影響学会, 東京にて発表

終りに本研究にあたりご討論をいただいた河合広教授に感謝します。

文 献

- 1) H.J. Dunster: Proc. 2nd Intern. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, United Nations, Geneva, **18**, 390 (1959)
- 2) N. Yamagata and K. Iwashima: *J. Rad. Res.*, **3**, 48 (1962)
- 3) Y. Hiyama and J. Matsubara Khan: Records of Oceanographic Works in Japan, **7**, 79 (1964)
- 4) N.V. Timofeev-Resovskii, E.A. Timofeeva, G.A. Milyutina and A.B. Getsova: *Doklady akad. Nauk SSSR*, **132**, 1191, cited in Ref. 10, 511 (1960)
- 5) H. Tsuruga: *Bull. Jap. Soc. Sci. Fisheries*, **28**, 1149 (1962)
- 6) H.J. Dunster: *Nuclear Energy*, **13**, 343 (1959)
- 7) 森, 佐伯: 日本農芸化学会誌, **31**, A79 (1957)
- 8) L.R. Donaldson: 第6回日本アイソトープ会議報文集, p.820 (1966)
- 9) S.I. Auerbach and J.S. Olsen: "Radioecology" Ed. V. Schultz and A.W. Klement, Jr., 509, Reinhold Publ. Corp., New York (1963)
- 10) R.S. Harvey: *Health Phys.*, **17**, 149 (1969)
- 11) J.L. Wilihm: *Health Phys.*, **18**, 277 (1970)
- 12) 佐伯, 他: 原安協報告 **13**, 859 (1968)
- 13) K. Kimura and R. Ichikawa: *Bull. Jap. Soc. Sci. Fisheries*, **35**, (5) 434 (1969)
- 14) K. Kimura and R. Ichikawa: *Bull. Jap. Soc. Sci. Fisheries*, **36**, (7) 653 (1970)
- 15) 原子力安全協会: 海洋放出特別委員会, 生物分科会(1967)
- 16) 原子力安全協会: 海洋汚染対策基礎調査専門委員会, 1965年度研究報告(1967, 4)
- 17) 原子力安全協会: 海洋汚染対策基礎調査専門委員会, (1967, 11)
- 18) E.P. Odum: Fundamentals of ecology, Second Edition, 470, W.B. Saunders Corp., London (1969)
- 19) W.J. Lammers: Union Carbide Corp., Nucl. Div. Report, No. 1758 (1968)
- 20) 小柳, 池田, 佐伯: 日本原子力学会昭和46年年会報告, 393 (1971)

Abstract

Uptake and Loss of Radioactive Ruthenium by Freshwater Organisms

Yoshihide HONDA, Taeko KOGA, Hiroshige MORISHIMA,
Yasuo SATO*, Shigetomi KITAWAKI*
and Yasushi NISHIWAKI**

Atomic Energy Research Institute, Kinki University,

*Faculty of Science and Engineering, Kinki University,

**At present at the International Atomic Energy Agency, Vienna

The uptake of radioactive ruthenium by freshwater organisms in a biocenose was studied in an aquarium ecosystem which consisted of natural river water, duckweeds, mud snails, river snails, freshwater mussels, crucian carps and bottom sands. The aquarium was equipped with a filtration-aeratian apparatus.

After a single addition of ^{106}Ru in nitrosyl ruthenium nitrato complex forms into the aquarium ecosystem, the uptake and distribution of ^{106}Ru in organisms were observed.

The loss of ^{106}Ru from organisms were also studied.

The radioactive concentration in rearing water rapidly decreased in 1 or 2 days and then maintained a constant level. The radioactive concentrations of ^{106}Ru in organisms reached peaks in 1 or 2 days, then gradually decreased with a gradual tendency to reach an equilibrium state. The deposition of ^{106}Ru in upper layer of bottom sands reached an equilibrium state in about 7 days.

The average concentration factors for ^{106}Ru in organisms showed a decreasing tendency in following order: duckweeds, mud snails, river snails, freshwater mussels and crucian carps.

In soft tissues of mud snails, freshwater mussels and river snails, the concentration factors for $^{106}\text{Ru}(\text{RuNO-nitrato})$ were less than about several times in rearing single species.

However, in crucian carps no significant difference of the concentration factor for ^{106}Ru was observed with different rearing conditions.

In crucian carps, about 80% of total radioactivity was distributed in visceral mass including digestive tract.

The loss of ^{106}Ru in chlorocomplex forms from some organisms was more rapid than that of ruthenium in nitrosyl nitrato complex forms. Two biological half-lives of ^{106}Ru were observed in some tissues.

(Received May 6, 1971)