環境中の放射性ルテニウム†

岩島 清, 森田茂樹*

国立公衆衛生院 108 東京都港区白金台4-6-1

*茨城県公害技術センター 310 茨城県水戸市石川1-4043-36

Key Words: radioruthenium in environment, ruthenium-103, ruthenium-106, environmental contamination

環境中の放射性ルテニウムはそのほとんどが核実験および原子力施設からの管理放出に起因する人工的核分裂由来のものである。 ^{235}U , ^{238}U および ^{239}Pu の核分裂によって、質量数99から120までの安定同位体を含めて22種の Ru の同位体¹⁾ が生成する。このうち最も長半減期の ^{106}Ru とそれにつぐ ^{103}Ru が環境汚染のうえから問題となる放射性核種である。

核実験に由来する放射性降下物は地球規模の汚染を生ずるが、ここでは自然環境中の ^{106}Ru のレベルとその推移、および環境での動態特性について述べる。

原子力施設廃液の放出に起因する ^{106}Ru は、局地的放射能汚染をひきおこしている。そこで世界で最も放出量の多いとみられる英国の Windscale 再処理工場の廃液放出を中心に、 ^{106}Ru の放出量と環境汚染レベルの推移、および環境における動きについて考察してみたい。被曝線量評価についてもふれる。

1. 環境へ放出された放射性 Ru の量²⁾

核実験によって環境へ放出された ^{106}Ru の総量は、実測によって求めた ^{90}Sr の環境への放出量をもとにして、核分裂時に相当する両核種の放射能比から約 $3.3 \times 10^5 \text{Ci}$ と推定されている。核実験によって大気中に放出された ^{106}Ru は呼吸によって直接肺に取り込まれ、そこに留まりやすいため、体内被曝では肺の被曝が問題となる。その評価のために、空気中の ^{106}Ru の時間積分値がつぎのようにして推定されている。すなわ

ち、世界各地における多年にわたる測定から推定されている空気中放射能濃度の時間積分値と、いくつかの場所および時期において求められた ^{106}Ru と ^{144}Ce の沈積量密度積分値の比、および両核種の大気中濃度の時間積分値の比から仮定した比 (0.5) を用いて計算し、空気中の ^{106}Ru の時間積分値は北半球において $1.5 \text{pCi} \cdot \text{y} \cdot \text{m}^2$ 、南半球では $0.35 \text{pCi} \cdot \text{y} \cdot \text{m}^2$ と推定されている。

核燃料再処理の目的は、使用済み燃料から残っている U および核反応によって生成した Pu を分離回収し、FP を安全に処理、処分しようというものである。図 1 に使用済み核燃料中に存在する長寿命核種の量比の例³⁾を示す。核分裂で生成する Ru には核分裂収率が高く、半減期がきわめて短い核種および安定な核種があるので、生成する Ru の重量はかなりなものになる。表1¹⁾に核分裂により生成する Ru のうち ^{106}Ru および ^{103}Ru について、現在最も信頼できるとされているデータを示す。

大部分の FP は分離して長期間保存されるが、低レベル廃液は蒸発濃縮、凝集沈殿などの処理をしたのち、それぞれの国の規則に従って環境に放出される。再処理には冷却期間をとるので放出廃液中には半減期が比較的長く、核分裂収率が高く、かつ廃液処理による除染が比較的難しいものが存在するので、多くの場合 ^{106}Ru が放出放射能の50%以上を占めている。

Idaho Chemical Processing Plant を初めとする非商業用再処理施設からの放射性廃棄物の放出データは、放射線の影響に関する国連科学委員会 (The United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: UNSCEAR と略称) には報告されていない。

英国核燃料公社の Windscale 工場は1952年放出開始以来1976年までに、約 $6.2 \times 10^5 \text{Ci}$ の ^{106}Ru を海洋に放

† Radioruthenium in the Environment. Kiyoshi IWASHIMA and Shigeki MORITA*: Institute of Public Health, 4-6-1, Shiroganedai, Minato-ku, Tokyo 108, *Ibaraki-ken Environmental Pollution Research Center, 1-4043-36, Ishikawa, Mito-shi, Ibaraki-ken 310.

図1 使用済核燃料1トンあたりに存在する長寿命諸核種³⁵⁾表1 ¹⁰³Ru および ¹⁰⁶Ru の半減期と核分裂により生成する比率¹⁾

核種	半 減 期	核分裂収率	核 反 応
¹⁰³ Ru	39.60 ± 0.20 日	3.872 × 10 ⁻⁷	²³⁵ U 熱中性子
		4.3807 × 10 ⁻⁷	²³⁵ U 速中性子
		2.6698 × 10 ⁻⁸	²³⁸ U 速中性子
		9.8586 × 10 ⁻⁶	²³⁹ Pu 熱中性子
¹⁰⁶ Ru	1.010 ± 0.005 年	1.1266 × 10 ⁻⁵	²³⁵ U 熱中性子
		1.4542 × 10 ⁻⁵	²³⁵ U 速中性子
		1.3455 × 10 ⁻⁴	²³⁸ U 速中性子
		8.0759 × 10 ⁻³	²³⁹ Pu 熱中性子

出した。同工場の環境放出規制値は、全ベータ: 3 × 10⁵ Ci/y, ¹⁰⁶Ru: 6 × 10⁴ Ci/y, ⁹⁰Sr: 3 × 10⁴ Ci/y, 全アルファ: 6 × 10⁵ Ci/y であり、これまでの¹⁰⁶Ruの年間放出量は規制値の50%を上下している^{2), 4), 5)}。米国の Nuclear Fuel Service (NFS) は¹⁰⁶Ruを1971年と1972年に廃液として合計 54.3 Ci, 大気中に 0.030 Ci を放出した。フランス核燃料公社の La Hague は¹⁰⁶Ruを1971年から1973年の間に合計 2.25 × 10⁴ Ci を廃液の形で環境に放出している。

2. 環境中のレベルと挙動

2.1 放射性降下物による汚染と挙動

核爆発実験に由来する環境汚染は1963年に最大値を示し、放射性ルテニウム降下量も同年の春から夏に高い値を示した。図2に桐生市における¹⁰⁶Ru月間降下量および減衰補正をした蓄積量を示す⁶⁾。中半減期の¹⁰⁶Ruが主として成層圏からの降下、いわゆるスプリングピークを示すのに対し、短半減期の¹⁰³Ruによる汚染は対流圏内の降下物によっている⁶⁾。これは、先駆物質の違いによる分別効果と、地表への到達時間の違いによるものと考えられる。分別効果については真室ら^{7)~11)}の詳細な研究があり、強放射能粒子では⁹⁵Zr-⁹⁵Nbに対する¹⁰³Ru比は小さく、浮遊塵ではその比が大きいことが指摘されている。Ogorodnikov ら¹²⁾は、その核種あるいは先駆物質が揮発性である核種¹⁰³Ru, ¹⁰⁶Ru や ¹³⁷Cs は主として 0.2 μm 以下の細かい粒子に保持され、それに対し⁹⁵Zr-⁹⁵Nb や ¹⁴⁴Ce は 0.2-0.5 μm の粒子に多く含まれていることを確かめている。Godeonov ら¹³⁾は¹⁰⁶Ru は 70% が水溶性の形で降下すると指摘している。また Skotnikova ら¹⁴⁾は放射性降下物

図2 ^{106}Ru 月間降下量および減衰補正蓄積量
(桐生市)¹⁶⁾

中の核種のイオン形は季節に依存し、 ^{106}Ru は夏期には有機錯体を形成し、陰イオン形のものが増加するという興味ある報告をしている。

地表に降下した放射性ルテニウムの土壌中での挙動を定量的に把握することは困難である。土壌中の移動はイオン種によって大きく異なる。一般に陽イオン種は土壌に吸着保持されやすいが、陰イオン錯体や荷電していないものは移動しやすい^{15)~17)}。土壌の物理的性状も移動に影響を与える。他の核種と同様に土壌粒径の小さいものに、より強く吸着するが、Amy¹⁷⁾のトレーサー実験の報告によると、ルテニウムの場合、土壌の粒径よりも、ルテニウムの化学形により多く依存しているようである。河川への流亡率を利根川(桐生市)における ^{106}Ru の河川水/雨水の比でみると、 $\text{Ru} > \text{Sr} > \text{Cs}$ となり、この値を用いて河川により海へ運ばれる量を推定すると、Ruでは14%となり、Srの7.2%、Csの1.3%と比べかなり移行しやすいと推定⁶⁾される。

陸上の植物への移行に関してはデータは多くはない。Mistryら¹⁸⁾は土壌から植物への移行しやすいは、黒土では $^{137}\text{Cs} > ^{106}\text{Ru} > ^{144}\text{Ce}$ で、ラテライトでは $^{137}\text{Cs} > ^{144}\text{Ce} > ^{106}\text{Ru}$ であると報告している。ラテライトからの移行率が低いのは、そこに含まれる多量の鉄とルテニウムの親和力が強いためと考えられる。

海水中に導入されたルテニウムは、その化学形や、

海洋環境要因によりかなり異なった挙動をとる。とくに沿岸海域では痕跡量の元素に対し、その存在形態や量に変動を与える要因、たとえば、陸岸からの供給と沿岸湧昇流によってもたらされる栄養塩にもとづく高い生物生産や、多量の無機、有機懸濁物の影響などが多く、とりわけルテニウムに対しては、それらが重要な因子となっている。既報¹⁹⁾でも触れているように、Greendaleらは海水中に存在する核実験由来のルテニウムは95%が粒子状に存在するとしているのに対し、Silkerは外洋水中の同ルテニウムのうち粒子状($>0.3\mu\text{m}$)で存在するのは1~3%にすぎないと報告している。

海水中の核実験由来の ^{106}Ru 濃度はきわめて低く、核実験の影響をかなり鋭敏に反映した変動を示している。図3に東海村周辺海域での ^{106}Ru 濃度の経年変動を示す²⁰⁾。

図3 東海村沿岸海域における海水中の
 ^{106}Ru および ^{144}Ce 濃度の経年変動²⁰⁾

海底堆積物中の ^{106}Ru 濃度は、海水中の ^{106}Ru 濃度とかなり良い相関を示す²¹⁾。 ^{106}Ru の海底堆積物への吸着率は化学形により大幅に異なるが、Freundlichの吸着等温式を満足することから、 ^{106}Ru は粒子表面に化学力によって保持されていると推定される²²⁾。東海村沖で採取した海底堆積物中の ^{106}Ru 分析値を対数正規確率紙にプロットした例²³⁾(図4)によれば、調査点により南北に区分した場合、分布に明らかな差があることが示された。北側海域で蓄積量が高く、濃度分布幅の小さいのは、鉄含量が高く、比較的酸化電位⁴⁴⁾の高い海域であるためと考えられる。一方、南側海域で蓄積量が少なく、また測定値分布の幅が広いのは、堆積物の組成に変動が大きく、還元側に傾いた点があるためと考えられる。ふつう、堆積物への核種の吸着能を表すのに分配係数が用いられる。東海村沿岸海域における海底堆積物への放射性降下物由来の ^{106}Ru の分配係数は400前後である。

生物による元素あるいは核種の濃縮の程度を示すものとして、水棲生物の場合、濃縮係数がよく用いられ

る。この係数が重要な意味をもつのは、未汚染水域に放射性核種が放出される場合、影響予測に用いられるからである。そのためには、濃縮係数は一定条件のもとで定数でなければならないが、すでに報告された多数の例は、その値は非常にバラツキが多い。その変動要因等については清水の総説^{24), 25)}で詳しく議論されている。南迫²⁶⁾は東海村沿岸水域における野外調査

から、一般的に栄養段階の低いほど ^{106}Ru 濃度が高いと報告しており、茨城県公害技術センターの調査でも同様な結果²⁷⁾が得られており、食物連鎖を通しての濃縮は少ないようにみられる。表2におもな海産生物の ^{106}Ru 濃縮係数として、放射性降下物由来のデータ^{28), 29)}, および再処理廃液放出によるデータ^{30)~33)}をあわせて例示する。

図4 東海村沿岸における海底堆積物中の ^{106}Ru 濃度の対数正規確率分布²³⁾

表2 海産生物に対する ^{106}Ru 濃縮係数算出例

生 物	動燃事業団 ²⁸⁾ フィールドデ ータ	茨城県公害技術 センター ²⁹⁾ フ イ ー ル ド デ ー タ	Windscale ^{30)~33)} フ イ ー ル ド デ ー タ
魚			
稚魚(シラス)	26	45	—
成 魚	25	50	91
海 褐			
藻	97	260	460 459
藻 紅	441	—	1770 1219
軟 貝			
体 類	345	220	
頭 足	20	135	1,200~2,000
甲 殻			
類	177	160	25~600

2.2 再処理施設周辺環境の ^{106}Ru のレベルと挙動

Windscale 再処理工場における ^{106}Ru の年間放出量と周辺環境試料中の ^{106}Ru 濃度の推移を図5に、また参考のために図6に ^{95}Zr - ^{95}Nb について示す^{2), 4), 5), 36)}。工場の2.5kmの沖合に放出された ^{106}Ru の海水中の濃度は1963~1966年の期間についてのデータしか見なかったが、 ^{95}Zr - ^{95}Nb と同様に放出口から離れるに従って急速に減少している⁴⁾。出口周辺海域では ^{106}Ru の20%~40%が孔径1.2 μm のメンブランフィルターでろ別され、 ^{144}Ce およびプルトニウムは約80%, ^{95}Zr - ^{95}Nb は95~100%がろ別される状態にあるが、出口から43~65km離れた海域では ^{106}Ru のろ別される割合は5~10%にすぎない。このような存在状態は ^{106}Ru 錯体の化学的性質だけでなく、海水中に共存する懸濁物質の量と質に依存するものと考えられている^{22), 37)}。また海岸付近では ^{106}Ru の85%, ^{95}Zr - ^{95}Nb の96%, ^{144}Ce の97%, そして ^{137}Cs の10%がろ別される状態にあると報告されている³⁸⁾。

Windscale の放出廃液中の ^{106}Ru の物理化学的状态については Wilson³⁹⁾ の報告例があるが、固形物として55 $\pm$ 10%, コロイド状として7 $\pm$ 3%, 溶解しているものが38 $\pm$ 10%で、溶解している ^{106}Ru のうち陰イオンが51.2 $\pm$ 5.1%, 陽イオンが13.0 $\pm$ 1.4%, 中性のものが45.8 $\pm$ 5.3%であった。粒子状の ^{106}Ru は廃液中に共存する水酸化鉄とほとんど不可逆に結合しており、一方、溶解している化学種はニトロシルルテニウム (RuNO) の各種錯体で、かなり安定に存在する。Ru の海水中的挙動を研究する一つの方向として、海水中的の Ru-有機化学種の存在の推定⁶²⁾, 溶存有機物と Ru の相互作用についての研究^{63)~66)}に注目したい。また、海水表面で生成したエアロゾルによって陸地に ^{106}Ru およびその他の核種が運ばれるという報告⁶⁷⁾はモニタ

図5 Windscale における ^{106}Ru の年間放出量と周辺環境試料中の ^{106}Ru 濃度

図6 Windscale における ^{95}Zr および ^{95}Nb の年間放出量と周辺環境試料中の ^{95}Zr - ^{95}Nb 濃度

リングの立場から注目される。海水中の安定 Ru の存在量と存在状態を明らかにすることも今後の一つの課題であろう。海水中の含有量については Dixon ら⁴⁰⁾によって溶存している Ru (孔径 $0.45\mu\text{m}$ のフィルターを通過した) の濃度が $7 \times 10^{-4} \mu\text{g/l}$ 、ろ別された Ru はそれより 1 桁低いと報告されているが、種々の海域での調査研究が必要である。水環境において Ru のコロイドがよく問題とされるが、Ru(IV)水酸化物、および RuNO(III)水酸化物のコロイド粒子の半径は $34\text{\AA}$ であるという報告⁵¹⁾がある。

つぎに ^{106}Ru の挙動における堆積物とのかかわりについては、図5では蓄積の傾向は認められない。Windscale³⁸⁾では ^{106}Ru の分配係数として、シルトで 1.1×10^4 、砂で360、また Trombay の再処理施設は低レベル廃液を Bombay 港湾に放出しているが、ここでは懸濁シルトについて平均 4.86×10^3 ($1.75 \times 10^3 \sim 8.72 \times 10^3$) という値を得ている。

Bombay 港湾の廃液放出海域から採取した堆積物中 ^{106}Ru の浸出実験が行われた。たとえば、1N酢酸アンモニウム溶液 (pH7.0) では ^{106}Ru はまったく浸出しないことから、堆積物中の ^{106}Ru はイオン交換可能な形では存在せず、また堆積物の過酸化水素処理の結果から有機的結合をもった ^{106}Ru の存在が推察されている。さらに、5%EDTA (pH: 7) で浸出される ^{106}Ru は35%にもなり、水域環境中に存在する類似の錯化剤

によって可溶化する可能性のあること、海水中に ^{106}Ru はコロイド状あるいは有機錯体として存在することなどが報告されている^{41), 42)}。

堆積物への吸着、あるいはそれからの脱離は放射性核種の化学的性質、海水および堆積物の物理・化学的条件および生物学的条件(粒子の表面積、pH、酸化・還元電位、有機物の種類と濃度、生物活性など)に影響される。たとえば、 ^{106}Ru の堆積物に対する分配係数は酸化的雰囲気の方が還元的雰囲気より大きいこと⁴⁴⁾、有機物を含む堆積物は、含まないものの6~7倍高い吸着が認められたことなど、実験室的研究を含めると実に多くの関連知見が報告されている。ここでは割愛するが、海洋堆積物および懸濁物と放射性核種との反応に関する Duursma らの精力的な研究^{45)~48)}、および海洋ではないが ORNL^{49), 50)} のグループによる ORNL からの放出廃液中の放射性 Ru の環境挙動についての詳細な研究は有用な知見をあたえてくれることをとくに記しておく。

海水中の放射性 Ru は海藻に蓄積されやすい²⁶⁾。図5、図6に見られるように Windscale からの放出廃液中の ^{106}Ru は、Porphyra (紅藻、アサクサノリと同属) に ^{95}Zr - ^{95}Nb より多く蓄積している。 ^{106}Ru と ^{95}Zr - ^{95}Nb の放出量はほぼ同じである。海水でもシルトでも ^{106}Ru と ^{95}Zr - ^{95}Nb の濃度は同じレベルであるのに対して、Porphyra については核種による蓄積のちがいがはっ

きり認められる。また海水および *Porphyra* 中の ^{106}Ru 濃度はいずれも放出口から離れるに従って減少するが、その減りかたは海水と *Porphyra* とでは異なっている(図7)⁵²⁾。そのため放出口近傍では濃縮係数が1800であるのに、遠ざかると600になる。これは ^{106}Ru の存在形態が一樣でなく、近傍では海藻に蓄積されやすい部分が多く、遠ざかるとこの部分が減るためであると考えられている⁵³⁾。また海水中における ^{106}Ru の存在状態の変化を示唆する魚についての報告もある。Windscaleの放出口周辺の南約40km離れた海域で魚獲したエイでは、皮の全 β 放射能が他の内部組織に比べてかなり高いのに対して、北方の水域のエイでは皮と筋肉ではほぼ同じであった。さらに放出口近傍のエイではすべての組織および臓器について ^{106}Ru 濃度が高い値を示したことなどから、放出廃液中の ^{106}Ru は、自然環境にはいて数時間ないし数日間でその物理的あるいは化学的状态は変化するであろうし、皮へ表面吸着しやすい海水中の ^{106}Ru の量は、内部組織に蓄積されやすい ^{106}Ru の量との関連で変化するであろうと推察されている⁵⁴⁾。

^{106}Ru の存在状態以外にも、生物への蓄積を支配する大きな間接的要因がある。Windscaleの廃液放出口

図7 Windscale 周辺の *Porphyra* 中の ^{106}Ru 濃度の放出口からの距離との関係⁵²⁾

図8 Windscale パイプラインから4マイル以内の4海域で採取した *Porphyra* 中の年平均 ^{106}Ru 濃度(放出率平均2000 Ci/日あたり)³⁵⁾

から6.4km (4マイル) 以内の6海域で10年間毎月採取した *Porphyra* 中の ^{106}Ru 濃度は、1959年以外はきわだった変化はない(図8)³⁵⁾。1959年の値が特別に高いのは、夏季の異常な風のために拡散が非常にゆっくり行われたからだという^{4), 35)}。

生物への ^{106}Ru の蓄積およびその機構については、1975年までの研究を本田³⁴⁾が概説し、問題点を明示している。その他にも海水中での ^{106}Ru の存在状態と生物への蓄積されやすさに関する報告^{55)~60)}がある。

2.3 環境試料中の放射性ルテニウムの定量法

ルテニウムの放射化学分析に関しては、その複雑な化学的挙動に対応した分離操作を必要とし、マトリックスに変動要因の多い環境試料を対象とした場合、困難な問題が多く、再現性が低いことで知られている。このような状況をうけ、分析測定値の信頼性を検討する試みがいくつか行われ、近年ではIAEA海洋研究所が主催した比較測定⁶¹⁾や、わが国のおもな環境放射能測定機関が参加した比較測定がある。それらのデータについて解析した結果を図9に示す。他の核種に比べ ^{106}Ru の定量精度は良くないが、本邦の研究機関による環境試料中の低レベルの ^{106}Ru の放射化学分析結果は、扱った放射能レベルからみてかなりよいものと判断される。

低レベルの放射性ルテニウムを γ 線スペクトロメトリで定量することは困難なため、一般には、放射化学的に分離し、 β 線計測により定量する方法が用いられる。これまでも分析法に関する研究が数多く報告され、いくつかの概説^{70), 75)}も出されている。標準的な分析法としてはWHOの方法⁷¹⁾があるが、目標とするレベルもやや高い。フォールアウト・レベルまで検出できるような分析法として、科学技術庁編の放射能測定法シリーズに「放射性ルテニウム分析法⁷²⁾」が新たに加えられた。

分析上で注意すべきことは、分離過程で補正不能の損失を出さないことであり、とくに対象核種が加えた担体とつねに同一の挙動をとるよう配慮しなければならない。分析操作過程上最も問題のあるのは灰化、共沈捕集、浸出などの前処理操作の段階である。生物試料を乾式灰化するさいに、灰化温度が550°Cを超えると急激に揮散率が上昇^{73), 74)}するので、灰化は450~500°Cで行う。

海水などから放射性ルテニウムを捕集する方法については、1970年までのおもな報告は Gmelins Handbuch⁷⁵⁾に要領よくまとめられている。種々の化学形

図9 IAEA および国内の比較測定における放射能レベルに対する測定値分布幅⁶⁹⁾

のルテニウム化合物に対して良好な捕集率を示す方法としては、アルカリ性で酸化還元を行い水酸化マグネシウムに共沈捕集する方法⁷⁰⁾およびチオアセトアミドを用い、均質沈殿法で硫化コバルトへ共沈捕集する方法⁷⁴⁾があり、科学技術庁の方法にもこの両法が採用されている。

海底堆積物からルテニウムを溶出する方法としては、熱硝酸により浸出する方法が再現性が比較的良好。また浸出にさき立ち、試料を500°Cで4時間ほど焼いて有機物を分解しておくとともに好結果が得られる。ややレベルの高い試料に対しては強リン酸により分解する方法⁷⁹⁾を用いると精度良い分析値を得ることができる。

酸化蒸留、酸化溶媒抽出によるルテニウム分離法はほぼ確立した方法と考えられる。使用する酸化剤については、甲田の研究⁸⁰⁾やGmelineの概説⁷⁹⁾が参考になる。

データの再現性の良否を左右する要因としてさらに放射能標準体と担体がある。ルテニウムは酸性溶液からは徐々に揮散する可能性がある。Gladneyら⁸¹⁾はルテニウムの担体溶液として1M塩酸溶液を推奨している。

3. 被曝線量の推定

内部被曝をもたらすルテニウムの人体組織への取込みと沈着は、汚染食物の経口摂取による経路と、浮遊ルテニウムの吸入による経路がある。

核実験に起因する放射性降下物中の放射性ルテニウムによる内部被曝についてみると、食物摂取による経路からの被曝は非常に少なく無視できるが、吸入による肺被曝は有意な寄与が認められる。ICRP⁸²⁾の肺モ

デルによると肺-線量間の関係はRu pCi・y・m⁻³あたり29.2 mradと推定され、UNSCEAR報告²⁾では、先項で述べた空気中濃度の時間積算値を用いて計算し、北半球で41, 南半球で10 mradとしている。

原子力施設から放出される放射性ルテニウムが問題になるのは核燃料再処理施設からのもので、それらが環境におよぼす影響は局地的に限定される。核燃料再処理施設の典型的な例としてWindscaleと、NFSの両施設から放出される放射性ルテニウムによる局地住民の発電量 MW(e)yあたりの集団線量推定値を表3に示す²⁾。

Windscale 再処理施設から放出される放射性ルテニウムによる影響を評価するために、critical pathway methodが採用され、ルテニウムを濃縮しやすい *Porphyrin* に注目し追跡調査が行われている。この海藻からは主としてラヴァブレッドが作られるが、海藻の収穫、食習慣の変化により、これが集団線量におよぼす寄与率は最近はかなり低下してきている^{4), 5)}。しかし、わが国のように海産物に依存する割合の高い地域では、海産物摂取による内部被曝はより比重が大きい。

経口摂取による内部被曝の算出は次式により行う。

$$r = r_0 \times A / 2, 200 (\text{MPC})_w$$

ここで、 r ：決定臓器の被曝線量 (rem/yr)

r_0 ：決定臓器の職業人に対する最大許容線量 (rem/yr)

A ：1日あたりの当該核種の摂取量 (Ci/day)

$(\text{MPC})_w$ ：職業人に対する水中の最大許容濃度 (Ci/cm³)

1日あたりの摂取量 A は、実際に摂取する食物中の核種濃度を定量して求めるのが实际的である。

再現性の良い被曝線量推定を行ううえで重要な因子の一つは影響の予測される周辺海域に漁場をもつ沿岸漁民を含めた住民の食品消費量である。これに関して食品消費量実態調査が大桃ら⁸³⁾によって精力的に進められている。さらに重要なのは、人体内における移行代謝に係る因子の $(\text{MPC})_w$ であろう。山県ら⁸⁴⁾は、ICRPが示す $(\text{MPC})_w$ に対し、実験動物についての値を人に補外したものが含まれている点と、人に関する実験にもとづく場合もそれが人種、食習慣の異なる人によって異なる点に疑問をもち、みずから実験台になり¹⁰³Ruと¹⁰⁶Ruを用いて、代謝実験を行い、全身に対し年間線量5 remを与える¹⁰³Ruの毎日摂取量を $1.8 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/cm}^2$ と算出している。これはICRPの勧告値 $2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/cm}^2$ より1桁あまり低い値である。この値

表3 再処理施設からの放出物中の ^{106}Ru による集団線量²⁾

施設名	放出経路	正規化 放出放射能 (Ci/MW(e)y)	集団線量 (man rad/MW(e)y)		
			全 身	消化管	肺
Nuclear Fuel Service	大気 淡水	4×10^{-5} 0.075	(外) 7.6×10^{-5} 4×10^{-4}	2×10^{-2}	2.2×10^{-4}
Windscale	海水	12	3×10^{-4}	5×10^{-2}	

表4 再処理施設廃液放出による住民の ^{106}Ru による被曝の推定

海産物	放出口 からの 距離 (km)	海水中 ^{106}Ru 濃度 (Ci/ml)	山県，岩島の試算値 ⁵⁾				森田，岩島，小山の試算値 ⁸⁾			
			摂取量 (g/日人)	濃縮 係数	^{106}Ru による 被曝線量 (mrem/yr)		摂取量 (g/日人)	濃縮 係数	^{106}Ru による 被曝線量 (mrem/yr)	
					消化管	全 身			消化管	全 身
貝類	5	3.6×10^{-15}	10	3×10^3	7.6	0.14	10	220	0.5	0.010
海藻類	5	3.6×10^{-15}	30	10^3	7.6	0.14	35	260	2.3	0.042
シラス	1	1.9×10^{-14}	20	20	0.5	0.009	30	45	1.7	0.032
成魚	1	1.9×10^{-14}	180	3	0.7	0.013	200	50	12.7	0.235
エビ	1	1.9×10^{-14}	10	5	0.06	0.001	10	120	1.5	0.028
計					16	0.3			18.7	0.35

を用いて山県らは再処理工場からの廃液放出による住民の ^{106}Ru による消化管および全身の被曝線量を，廃液の希釈，拡散に伴うそれぞれの地点での海水中 ^{106}Ru 濃度と，濃縮係数文献値，海産物摂取量等の各パラメータをあてはめて算出し，消化管で 16 mrem/yr，全身で 0.3 mrem/yr と推定⁵⁾している（表4）。なお，濃縮係数に放射性降下物に関する東海村沿岸海域におけるフィールド・データから求めた値²⁾をあてはめて算出し直した結果⁸⁾でも，総合した被曝線量ではほぼ同じ値が得られた（表4）。しかし，試料による線量寄与率には入れ換えがみられ，前者では貝類，海藻類が高い寄与率を示していたが，後者では成魚からの寄与率が上がっている。東海村沿岸については critical pathway は，なお流動的であるといえる。

終りに，本稿を執筆するにあたり資料を提供していただいたつぎのかたがたに深く感謝いたします。

阿部史朗 氏，五十嵐信一 氏，石森達二郎 氏，市川富士夫 氏，上田泰司 氏，清水 誠 氏，田辺 裕 氏，野村 保 氏（以上50音順）

文 献

- 1) P.F. Rose and T.W. Burous: BNL-NCS-56545 (E NDF-243) (1976)

- 2) Report of the United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation, UN (1977)
- 3) 原子力産業会議：“原子力ハンドブック” 原産，272 (1977)
- 4) Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles, Technical Report FRL 1, 2, 7, 8, 9, 10; Ministry of Agriculture, Fisheries and Food Radiobiological Laboratory, Lowestoft Suffolk. (1963-66, '67, '69, '70, '71, '72-73)
- 5) *ibid.*: Technical Report FRL 11, 12, 13; Ministry of Agriculture, Fisheries and Food Directorate of Fisheries Research, Lowestoft Suffolk. (1974, '75, '76)
- 6) K. Iwashima and N. Yamagata: *J. Radiat. Res.*, **7**, 91 (1966)
- 7) 真室，吉川，松並，藤田，東：日本原子力学会誌，**4**, 860 (1962)
- 8) 真室，吉川，松並，藤田：日本原子力学会誌，**8**, 242 (1966)
- 9) 真室，松並：日本原子力学会誌，**8**, 416 (1966)
- 10) 真室，松並，藤田：日本原子力学会誌，**9**, 464 (1967)
- 11) 真室，松並，藤田，吉川：日本原子力学会誌，

- 10, 618 (1968)
- 12) B.I. Ogorodnikov, O.G. Skitovich, L.S. Soldeva and I.E. Konstantinov: *At. Energ.*, **32**, 488 (1972)
- 13) L.I. Gedeonov, M.I. Zhilkina, Z.G. Gritchenko and V.M. Flegontov: *Issled. Protsessov Samochishcheniya Atmos. Radioaktiv. Izotop. Sb. Dokl., Soveshch.*, 1966, p.181 (1968)
- 14) O.G. Skotnikova and I.E. Konstantinov: *Fiz. Aspekty Zagryaz. Atmos., Tezisy Dokl. Mezhdunar. Konf.*, p.57 (1974)
- 15) R.L. Blanchard, B. Kahn and G.G. Robeck: *ORNL-2475*, 35 (1958)
- 16) H. Nishita, B.W. Kowalewsky, A.J. Steem and K.H. Larsen: *Soil Sci.*, **81**, 317 (1956)
- 17) J.P. Amy: *CEA-R-4168*, p.87 (1971)
- 18) K.B. Mistry, B.M. Bhujbal and T.J. D'Souza: *Environ. Behav. Radionuclides Released Nucl. Ind., Proc. Symp.*, p.303 (1973)
- 19) 岩島, 渡利, 榎本: *Radioisotopes*, **16**, 55 (1967)
- 20) 茨城県公害技術センター: 茨城県における放射能調査, 16-22 (1971-77)
- 21) 森田: 環境放射能調査研究成果論文集, **20**, 114 (1978)
- 22) R.F. Jones: *Limnology and Oceanography*, **5**, 312 (1960)
- 23) 木村, 大和, 平山: 日本保健物理学会要旨集, 25 (1978)
- 24) 清水: *Radioisotopes*, **22**, 662 (1973)
- 25) M. Shimizu: *Tech. Rep. Ser.*, No. 167, IAEA, 121 (1975)
- 26) 南迫, 梅津: 東海区水産研究所報告, **77**, 103 (1974)
- 27) 森田, 平井: 放射能調査研究成果発表会論文集, **15**, 128 (1973)
- 28) 動力炉・核燃料開発事業団: 再処理施設からの低レベル廃液の海洋放出に係る安全性に関する書類 (1977)
- 29) 森田, 平井: 放射能調査研究成果発表会論文集, **16**, 151 (1974)
- 30) S.E. Tompson: *UCRL-50564 Rev.*, p.1 (1972)
- 31) D.S. Woodhead: *IAEA-SM-158/31*, p.499 (1973)
- 32) F.L. Harrison: *IAEA-SM-158/28*, p.453 (1973)
- 33) R.J. Pentreath: *IAEA-SM-158/26*, p.421 (1973)
- 34) 渡利, 星野, 木下, 岩島, 本田: 日本原子力学会誌, **18**, 336 (1976)
- 35) 阪上: アクチニド. “環境被曝線量評価”, 日本原子力学会誌, p.193 (1975)
- 36) H. Longley and W.L. Templeton: *Marine Environmental Monitoring in the Vicinity of Windscale, Radiological Monitoring of the Environment*, edited by B.C. Godbold, J.K. Jones, Pergamon, 219 (1963)
- 37) W.L. Templeton and A. Preston: *Transport and Distribution of Radioactive Effluents in Coastal and Estuarine Waters of the United Kingdom in “Disposal of Radioactive Wastes into Seas, Oceans and Surface Waters” IAEA-SM-72/16*, 267 (1966)
- 38) A. Preston and D.F. Jefferies: *IAEA-SM-117/44*, 183 (1969)
- 39) P.D. Wilson: *PG-Rep.-819(w)*, (1968)
- 40) D.W. Dixon, J.F. Slowey and D.W. Hood: *AEC Accession No. 43086, Rep. No. TID-23295* (1966); *C.A.* 66, 118724. (1967)
- 41) K. Pillai, N.N. Dey, E. Mathew and B.U. Kothari: *Behavior of Discharged Radionuclides from Fuel Reprocessing Operations in the Aquatic Environment of Bombay Harbour Bay in “Impacts of Nuclear Releases into Aquatic Environment” IAEA-SM-198/16*, 277 (1975)
- 42) S. Ganapathy, K.C. Pillai and A.K. Ganguly: *Adsorption of Trace Element by Near Shore, Sea Bed Sediments, BARC Rep., BARC-376* (1968)
- 43) P. Guegeniat and J. Le Gall: *Thalssia Jugosl.*, **9**, 177 (1973)
- 44) 吉田: 海洋における放射性物質の挙動 “原子力産業における環境問題”, ソフトサイエンス社, p.215 (1972)
- 45) E.K. Duursma and C.J. Bosch: *Netherlands Journal of Sea Research*, **4**, 395 (1970)
- 46) E.K. Duursma and D. Eisma: *ibid.*, **6**, 265 (1973)
- 47) S.R. Aston and E.K. Duursma: *ibid.*, **6**, 225 (1973)

- 48) E.K. Duursma, P. Parsi and G. Strathan: Fixation of Radionuclides with Time by Marine Sediment in "Activities of the International Laboratory of Marine Radioactivity" IAEA-SM-163, 107 (1974)
- 49) T.F. Lomerick: *Health Phys.*, **9**, 835 (1963)
- 50) P.H. Carrigan, R.J. Pickering, T. Tamura and R. Forbes: ORNL-3721, Suppl. 2A (1967)
- 51) F. Kepak and J. Kriva: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **32**, 719 (1970)
- 52) A. Preston and J.W.R. Dutton: The Application of Neutron Activation Analysis to the Study of Trace Elements in United Kingdom Coastal Waters in "International Symposium on the Application of Neutron Activation Analysis on Oceanography" (NATO Subcommittee on Oceanic Research, Bruxelles, IRSNB), p.117 (1968)
- 53) 清水: モニタリングと指標生物 "生物濃縮", 山県編著, 産業図書, p.253 (1978)
- 54) J. Mauchline and A.M. Taylor: *Limnol. and Oceanog.*, **9**, 303 (1964)
- 55) J. Ancellin and P. Bovard: Commis. Eneg. At., Rep. CEA-CONF-1464, 8 (1968)
- 56) V.V. Gromov, V.I. Spitsyn and V.V. Surikov: *Radiokhimiya*, **16**, 312 (1974)
- 57) A. Fraizier: Comp. Stud. Food Environ. Constam., Proc. Symp., 1973 (1974)
- 58) J.C. Ancellin: Impact Nucl. Release Aquat. Environ., Proc. Int. Symp., 49 (1975)
- 59) B. Patel, C.D. Mualy and A.K. Ganguly: *Estuarine and Coastal Marine Science*, **3**, 13 (1975)
- 60) M. Ishikawa, T. Koyanagi and M. Saiki: *Nippon Suisan Gakkaishi*, **42**, 287 (1976)
- 61) 中村, 鈴木, 上田: NIRS-5, I-2-2 (1976)
- 62) P. Guegueniat: CEA-R-4215 (1970)
- 63) Y. Belot and N. Pignon: *Health Phys.*, **15**, 443 (1963)
- 64) M.V.M. Desai and A.K. Ganguly: B.A.R.C-448, (1970)
- 65) I. Ya. Koshcheeva, et al.: Radioekologiya Vodykh Organizmov, III, 116 (1973)
- 66) 石山, 松村: グリシンが配位したニトロシルルテニウム(II)錯体, 日本化学会第38春季年会, 講演集I, p.223, IJ05 (1978)
- 67) A. Fraizier, M. Masson and J.C. Guary: *J. Rech. Atmos.*, **11**, 49 (1977)
- 68) R. Fukai, S. Ballestra and C.N. Murray: IAEA-SM-158/1 (1973)
- 69) 山県, 阿部, 岩島, 笠井, 清水: 環境中の自然放射性物質の挙動ならびに測定精度に関する研究, 京都大学原子炉実験所 Technical Rep. KUR-RI-TR-155, p. 45 (1977)
- 70) M. Shiozaki, N. Yamagata and K. Iwashima: IAEA Tech. Rep. Ser. No. 169, 121 (1970)
- 71) WHO: Methods of Radiochemical Analysis, WHO (1966)
- 72) 科学技術庁編: "放射性ルテニウム分析法" (1977)
- 73) R. Nakamura, Y. Suzuki, E. Kawachi and T. Ueda: *J. Radiat. Res.*, **13**, 149 (1972)
- 74) K. Iwashima: *ibid.*, **13**, 127 (1972)
- 75) R.J. Meyer, E.H.E. Pietsch, A. Kotowski, M. Becke-Goehring and K.C. Buschbeck: Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie (1970)
- 76) M. Shiozaki: *Rep. of Hydrographic Researches*, **1**, (5) 33 (1966)
- 77) A. Yamato, S. Watanabe and K. Miyabara: Tokai Jigyo-sho, Doryokuro Kakunenryo Kaihatsu Jigyo-dan, Rep., N831-70-02, 79 (1970)
- 78) 森田: 茨城県公害技術センター放調資料, **51**, (5) 77 (1976)
- 79) T. Kiba, K. Terada, T. Kiba and K. Suzuki: *Talanta*, **19**, 451 (1972)
- 80) 甲田: 名古屋工業試験所報告, **13**, 185 (1964)
- 81) E.S. Gladney: *Anal. Chim. Acta*, **85**, (2) 393 (1976)
- 82) ICRP: *Health Phys.*, **12**, 173 (1966)
- 83) 大桃: 放射能クリティカル経路調査報告書, 原子力安全研究協会 (1973, '74, '75)
- 84) N. Yamagata, K. Iwashima, T.A. Inuma, K. Watari and T. Nagai: *Health Phys.*, **16**, 159 (1969)
- 85) N. Yamagata and K. Iwashima: *Bull. Inst. Publ. Health*, **24**, 55 (1975)
- 86) 森田, 岩島, 小山: 日本公衆衛生学会要旨集, **22**, (10) 424 (1975)