

生態系における放射性物質の
挙動に関する基礎的研究

1976年4月

青 山 勲

生態系における放射性物質の
挙動に関する基礎的研究

1976年4月

青 山 勲

序

1972年6月5日から11日間、“かけがえのない地球(Only One Earth)”というスローガンをかかげて、スウェーデンの首都ストックホルムで最初の「国連環境会議」が、世界100ヶ国以上の参加のもとに開かれ、人間環境宣言を採択して幕を閉じた。

人間環境宣言とは裏腹に、わが国においては、あらゆる形態の環境汚染・公害の問題が一層激化し、ますます複雑・多様化しつつある現状に戦慄を感じるのを禁じ得ない。この会議では、原子力利用に伴う環境の放射能汚染について、多くは論じられていないが、既に、米・ソを中心とする五大核保有国による大気圏での核実験の結果、世界中くまなく放射性物質による汚染を受けた。さらに又、世界の原子力発電が、現在かかえている諸問題をそのままに開発、進展してゆくなら、近い将来 ^3H 、 ^{85}Kr を始め、核分裂生成物質や誘導放射性物質によって、全地球的な放射能汚染を引き起こすと危惧される。近年わが国においても、あらゆる分野において、原子力の利用開発は著しいものがある。原子力について論じる場合、とかく核エネルギーの利用面が強調されがちであるが、原子力の本質をなすものは、核エネルギーと放射能との2つであることを忘れてはなるまい。

日本国民の放射能との第一の出会いは1945年広島・長崎での原子爆弾の投下であった。第二の出会いは、それから9年後の1954年“ビキニ事件”と呼ばれる第5福竜丸のビキニ環礁での水爆実験による被災である。そして第三の出会いとしては、原子力発電に伴う放射性廃棄物による環境汚染からの放射線被曝をあげることができよう。前二者が、大量の放射能の一時被曝であるのに対して、第三の出会いは低線量の長期連続被曝であることが極めて特徴的である。

わが国で、初めて原子力の火がともされたから、既に10数年たち、この間に放射性廃棄物処理に関する研究は主要な課題として、研究面および実際面でも、すぐれた成果が得られ、その基礎技術は、一部の放射性核種に対する処理を除いて、一応確立されていると考えられる。しかし、処理後の放射性廃棄物の最終的処分については、まだ経験も浅く、未解明な問題が極めて多い。どの様な処分方法をとっても、処分された放射

性物質の一部が人間の生活環境の中にもたらされることは不可避的であり、そのため、人間に対する放射線影響を評価する上に、放射性物質の環境中での移行、蓄積過程および、それに基づく人間の被曝過程を明らかにすることは極めて重要な課題である。

本研究は、とりわけ人間と深いつながりを有する生態系の放射能汚染に関するいくつかの問題について研究を行なったものである。本研究を通じて、放射能による環境汚染の重大性がさらに認識されるとともに、未だ新しいこの分野の研究に新たな一歩が加えられることを期待するものである。

1976年4月

青 山 勲

目 次

序	1
目次	3
第 1 章 緒 論	8
第 1 節 緒 言	8
第 2 節 放射性廃棄物とその管理	9
2 - 1 放射性廃棄物の発生源と量	9
2 - 2 放射性廃棄物の管理	12
第 3 節 放射生態学とその対象	14
3 - 1 放射生態学 (Radioecology) とは	14
3 - 2 生態系における放射性物質の挙動と被曝過程	16
3 - 3 放射生態学における数理モデル	19
第 4 節 本研究の目的と概要	22
第 2 章 放射性廃棄物の深海投棄処分に伴う影響評価に関する研究	28
第 1 節 概 説	28
第 2 節 セメント固体からの放射性核種の浸出	29
2 - 1 浸出に関する理論的検討	29
2 - 1 - 1 拡散による浸出	29
2 - 1 - 2 溶解による浸出	30
2 - 2 実験材料および方法	31
2 - 3 実験結果および考察	32
2 - 3 - 1 水-セメント比の影響	32
2 - 3 - 2 浸出液組成の影響	33
2 - 3 - 3 浸出液温度の影響	33
2 - 3 - 4 圧力の影響	35

第 3 節	放射性固体廃棄物の深海投棄処分による 海洋表面での放射能濃度予測	35
3 - 1	はじめに	35
3 - 2	表面混合層における放射能濃度予測	37
3 - 2 - 1	放射性廃棄物発生量の仮定	37
3 - 2 - 2	セメント固化体からの放射性核種の浸出量	38
3 - 2 - 3	海底から表層への放射性核種の拡散輸送	41
3 - 2 - 4	表層における平均濃度	43
3 - 3	計算結果および考察	45
第 4 節	感度解析によるパラメーターの不確定性の評価	50
4 - 1	はじめに	50
4 - 2	感度式の導出	51
4 - 2 - 1	^{137}Cs の場合	51
4 - 2 - 2	^{60}Co の場合	53
4 - 3	計算結果および考察	54
第 5 節	被曝線量の試算	59
5 - 1	線量予測試	59
5 - 2	計算結果および考察	61
第 6 節	要約	61
第 3 章	水中における放射性核種の物理化学的 存在形態に関する実験的研究	70
第 1 節	概説	70
第 2 節	金属の錯体形成	73
2 - 1	錯形成反応	73
2 - 2	配位子濃度	75
2 - 3	計算結果	76
第 3 節	実験材料および方法	81

3 - 1	試料水の採取および調整	81
3 - 2	メンブランフィルターへの吸着	82
3 - 3	透析膜による分離	82
3 - 4	イオン交換樹脂への吸着	82
3 - 5	遠心分離法	83
第 4 節	実験結果および考察	83
4 - 1	^{65}Zn の存在形態	83
4 - 2	$^{115\text{m}}\text{Cd}$ の存在形態	86
4 - 3	^{60}Co の存在形態	
4 - 4	^{90}Sr - ^{90}Y の存在形態	
4 - 5	その他の元素	
第 5 節	要約	
第 4 章	藻類による放射性核種の濃縮に関する研究	97
第 1 節	概説	97
第 2 節	従来の研究	99
第 3 節	藻類による放射性核種の濃縮過程の理論的考察	103
3 - 1	理論的考察	103
3 - 2	計算結果および考察	107
第 4 節	放射性核種の藻表面への吸着	109
4 - 1	実験に関する共通事項	109
4 - 2	実験材料および方法	114
4 - 3	実験結果および考察	115
第 5 節	藻の増殖過程と放射能の濃縮過程	115
5 - 1	実験材料および方法	116
5 - 2	実験結果および考察	116
第 6 節	藻の生体量と濃縮係数	122
6 - 1	実験材料および方法	123

6 - 2	実験結果および考察	123
第 7 節	要 約	124
第 5 章	水圏生態系における放射性核種の移行	129
第 1 節	概 説	129
第 2 節	従来の研究	130
第 3 節	食物連鎖を通過しての放射性物質の移行	134
3 - 1	理論的考察	135
3 - 2	実験材料および方法	137
3 - 3	実験結果および考察	138
第 4 節	食物網を通過しての放射性物質の移行	141
4 - 1	理論的考察	141
4 - 2	数値計算および考察	145
第 5 節	モデルパラメーターの不確定性評価	148
5 - 1	感度解析による評価	148
5 - 2	数値計算および考察	155
第 6 節	要 約	157
第 6 章	水産生物による放射性核種の濃縮過程に関する確率論的研究	164
第 1 節	概 説	164
第 2 節	単純マルコフ過程の適用	166
2 - 1	理論的考察	166
2 - 2	実験材料および方法	174
2 - 3	実験結果および考察	176
2 - 4	本理論の問題点と課題	187
第 3 節	出生死滅過程の適用	188
3 - 1	理論的考察	189
3 - 2	実験材料および方法	195
3 - 3	実験結果および考察	199

3 - 4	食物連鎖過程への適用の理論的展開	210
第 4 節	要約	219
第 7 章	水圏における放射能汚染のモニタリングに関する研究	224
第 1 節	概説	224
第 2 節	水産生物の放射能汚染の情報理論的評価	225
2 - 1	理論的考察	225
2 - 1 - 1	不確定性の測度としてのエントロピー	225
2 - 1 - 2	マルコフ過程とエントロピー	228
2 - 2	計算結果および考察	229
第 3 節	モニタリングのためのサンプリングに関する考察	231
3 - 1	はじめに	231
3 - 2	試料数の決定	232
3 - 3	計算結果	234
第 4 節	海洋における放射能汚染の探知計画	236
4 - 1	原子力船からの放出放射能の監視体制の現状と問題点	236
4 - 2	放射能の探索モデルの設定	237
4 - 3	探索モデルの理論的考察	239
4 - 3 - 1	発見確率	239
4 - 3 - 2	発見ポテンシャル	240
4 - 3 - 3	探索の遅れ時間	243
4 - 3 - 4	最適探索経路	244
4 - 4	計算結果および考察	246
第 5 節	要約	255
第 8 章	結論	260
第 1 節	本研究の概要と主要な成果	260
第 2 節	本研究の問題点と今後の課題	264
第 3 節	結語	268

第1章 者論

第1節 言

人類は古来、自然放射能すなわち、宇宙線や地殻からの放射線、あるいは生物自身の体内に存在する ^{40}K などの放射線と関連を持ちながら、今日まで生存してきたが、近年に至り、原子力発電所や各種の原子力施設の増設に伴う人工放射能との強い関係を持つに至った。原子力発電所では、その運転の過程で膨大な放射性物質が生成され、蓄積される。万一原子炉の暴走、爆発というような大きな事故が起きた場合には、これらの放射性物質は環境中に放出され、重大な環境汚染と人間の放射線被曝をもたらすことになる。また日常の運転時においても、事故時と比べると微量ではあるが、絶えず気体、液体の放射性物質が廃棄物として放出されており、環境の放射能汚染源の一つとなっている。

原子力発電所の増設に付随して、使用済核燃料の再処理工場が建設される。再処理工場からは原子力発電所以上の放射性物質が常時、環境中に放出されることになる。今後、再処理工場は質・量の両面において、最大の放射性物質の発生源として注目され、綿密な技術的管理のもとに置かれねばならない。

その他にもアイントープ利用施設、病院、研究所等、環境の放射能汚染源となり得る施設は数多くあるが、現段階で、地球規模の放射能汚染源となっている最大の原因は、核兵器の大気圏での実験による放射性降下物 (Fall out) である。

環境の放射能汚染は、ただちに人間の放射線被曝を招き人類に重大な影響をおよぼす潜在的な可能性を秘めている。環境に放出された放射性物質は、大気圏、水圏、地圏における環境、周囲に生する生物を汚染しつつ複雑な経路をたどって人間に還元されることになる。放射性物質の環境、生態系での挙動を研究することは、環境放出される放射性物質の合理的な管理法を検討するという実際的な問題解決の観点から、また生態系の構造と機能を明らかにするという生態学的な観点からも極めて重要である。

第2節 放射性廃棄物とその管理

2-1 放射性廃棄物の発生源と量

原子力発電が核燃料であるウランに核分裂を生じさせて、核エネルギーを取り出す以上、“死の灰”と呼ばれる放射性廃棄物の発生は日常的で、不可避的である。放射性廃棄物の発生源としては、ウランの製錬加工、プルトニウムの取扱加工、原子力発電、大型原子力研究活動、ラジオアイソトープの利用等、多岐にわたっている。それらからの放射性廃棄物の発生量の推定については、原子力委員会廃棄物処理専門部会による報告書や、科学技術庁原子力局に設置された放射性廃棄物処理、処分検討会報告等⁽¹⁾に詳しいので、ここでは、第2章で取扱う原子力発電所から排出される放射性廃棄物に限って、その概要に触れるに止めておく。

原子力発電所から排出される放射性廃棄物は、量的にも質的にも、原子炉の型式によって異なる。一般に主な発生源は、原子炉冷却材中に溶け出した腐蝕生成物、補給冷却材中に存在する不純物および冷却材自身の中性子による放射化生成物、燃料被覆の破損時に、冷却材中に漏洩す

る核分裂生成物等が考えられる。U-235の核分裂生成物の時間的組成変化を Table 1-1 に示す⁽²⁾。核種の物理的半減期によつて、時間の経過とともに核分裂生成物の組成比が変化し、半減期の長い核種ほど、長期的にはその相対的重要性が増してくる。したがって、これらの放射性物質が生成され、環境に放出されるから、人間に到達す

Table 1-1 Activity Ratio of Fission Products of U-235

After 20 days		After 1 year		After 5.5 years	
Nuclide	%	Nuclide	%	Nuclide	%
La-140	13.9	Ce-144	52.8	Cs-137	33.0
Ba-140	12.0	Nb-95	14.7	Sr-90	26.0
Pr-143	12.0	Zr-95	7.2	Pm-147	22.5
Ce-141	9.7	Pm-147	5.7	Ce-144	12.0
Xe-133	6.3	Y-91	3.8	Ru-106	3.0
Zr-95	5.9	Sr-89	2.7	Sm-151	2.0
Y-91	5.6	Ru-106	4.9	Kr-85	1.2
I-131	5.6	Sr-90	3.7		
Sr-89	5.0	Cs-137	2.9		
Ru-103	4.4	Ru-103	1.6		
Nb-95	4.2				
Pr-144	2.6				
Ce-144	2.3				
Mo-90	1.3				
I-132	1.1				
Te-132	1.1				

る迄にかかる時間は、被曝線量を予測する上に重要な因子の一つとなる。しかし、一般には、原子力施設のスタックから放出される核種以外は、放出から人間の放射線被曝まで、長時間要すると思われるので、保健物理学的には、短半減期の核種は余り重要でないと考えて良い。

放射性廃棄物の発生量は、たとえ同型炉であっても、腐蝕の程度や運転実績により異なるので、その推定は困難であり、すでに稼動している原子炉の運転実績に頼るより方法がない。炉の型式はいろいろあるが、ここでは加圧水型(PWR)、沸騰水型(BWR)を中心に述べる。

(1) 気体廃棄物

炉内で発生する蒸気中には、原子炉冷却水および溶存空気の放射化によって生じる ^{13}N 、 ^{16}N 、 ^{19}O 、 ^{41}Ar 等が含まれる。 ^{13}N は ^{16}O の核反応によって生じ、 ^{41}Ar は、 ^{40}Ar の中性子捕獲によって生成する。また燃料被覆が破損した際には、気体状の核分裂生成物である希ガス、 ^{85}Kr 、 ^{133}Xe も含まれる。 ^{85}Kr と ^{133}Xe の混合物中の同位体組成は、燃料の照射履歴とその放出時における混合物の経過時間によって異なる。アメリカの経歴では100万kWのPWRでの放出放射能は ^{85}Kr の場合3200 Ci/年、 ^{133}Xe については800 Ci/年と予想されている⁽³⁾。更に少量ではあるが ^3H も放出される。

(2) 液体廃棄物

原子炉冷却水中には、冷却系統に用いられるステレス鋼の腐蝕によって生じた放射性腐蝕生成物と、炉内から冷却水中へ漏洩した核分裂生成物とが含まれる。大型の水冷却炉では、炉心で放射化される腐蝕生成物は、1日にはば⁽³⁾100g生成されると見積られている⁽³⁾。これら腐蝕生成物は、中性子照射により放射化され、 ^{59}Fe 、 ^{60}Co 、 ^{64}Cu 、 ^{54}Mn などの放射性核種を生じる。冷却水中に存在すると推定される放射性核種濃度をその半減期とともにTable 1-2に示す。液体廃棄物は、原子炉冷却系以外にも、タービン系などの機器ドレインからの廃液、復水脱塩装置樹脂の再生廃液が主要な発生源である。この他に化学分析室からの床ドレインや、洗濯や除染などによる低放射能廃液がある。

Table 1-2 Radioactivity in Cooling Water of a Reactor

Fission Products			Corrosion Products		
Nuclide	Concentration (Ci/ml)	Half-Life	Nuclide	Concentration (Ci/ml)	Half-Life
I-131	6×10^{-2}	8.0 d	F-18	4×10^{-3}	112 m
I-132	6×10^{-1}	2.3 h	Mn-54	4×10^{-5}	291 d
I-133	4×10^{-1}	21 h	Mn-56	5×10^{-2}	2.6 h
I-134	1	52.5 m	Ni-65	3×10^{-4}	2.6 h
I-135	6×10^{-1}	6.7 h	Cu-64	2×10^{-2}	12.8 h
I-136	1×10^{-1}	86 m	Zn-65	2×10^{-6}	245 d
I-137	1×10^{-1}	22 s	Zn-69m	3×10^{-5}	13.8 m
I-138	4×10^{-2}	5.9 s	Na-24	2×10^{-3}	14.9 h
Br-83	6×10^{-2}	2.3 h	W-187	2×10^{-4}	24.0 h
Br-84	2×10^{-1}	6.0 m	Co-58	5×10^{-3}	71.3 d
Br-85	1×10^{-1}	3 m	Co-60	5×10^{-5}	5.2 y
Br-87	1×10^{-1}	55.6 s	Fe-59	8×10^{-5}	45.1 d
Br-88	6×10^{-2}	15.5 s	P-32	2×10^{-5}	14.2 d
Tc-99	6×10^{-2}	2.1×10^5 y	Cr-51	5×10^{-4}	27.8 d
Mo-99	2×10^{-1}	66 h	Ag-110m	6×10^{-5}	253 d
Total	4		Total	9×10^{-2}	

(T.Itakura and T.Hashimoto)

(3) 固体廃棄物

原子力発電所からの固体廃棄物としては、(1)使用済イオン交換樹脂、(2)フィルタースラッジ、(3)蒸発法による濃縮廃液、(4)雑固体廃棄物、等がある。30万kW規模の発電所から一年間に発生すると予想される固体廃棄物の量を Table 1-3 に示す⁽⁴⁾。これらの放射性廃棄物の発生量は、発電量

Table 1-3 Solid Wastes from Power Station in One Year

Wastes	Activity	Volume
Spent Resin	96 Ci	30 m ³
Filter Sludge	522	45
Concentrates by Evaporator	3	300
Miscellaneous Solid Wastes	-	15
Total	621 Ci	395 m ³

にほぼ比例すると考えて良からう。

スース 放射線性廃棄物の管理

原子力発電所における放射線性廃棄物の管理は、そのその発生量が発電所の建設とともに、今後ますます増大することが予想されるので、重要な問題となってきた。現在のところ、原子力発電所で発生する放射線性廃棄物は、各施設毎に処理、処分されている。ここで処理 (Treatment) とは、放射線性廃棄物を物理化学的な手法で高濃度のものと低濃度のものとに仕分けする操作のことを言い、処分 (Disposal) とは、仕分けしたものをできるだけ人間の生活環境から隔離あるいは閉じ込めることである。1972年ウィーンで開かれた「高レベルおよび放射線性廃棄物の国際貯蔵の可能性を検討するパネル」で同意された「処分」の定義によると「廃棄物を取り出す意図もなく、あるいはそのための設備も設けずに永久的と考えられるようばやり方で放置すること⁽⁴⁾とされている。これら処理と処分を一貫した考え方を管理 (Management) と呼び、放射線性廃棄物の発生から処分に至るまでのプロセス全体を管理しようという考え方が定着しつつある。

放射線性廃棄物の処理系統は、放射線性物質の環境への放出をできるだけ少なくするように設計されている。既に述べたように、放射線性廃棄物には、気体、液体、固体の3つに分類でき、処理・処分の方きもそれぞれの系統に分けて行われる。

(i) 気体廃棄物の処理・処分

気体廃棄物は原子炉一次系からの放射線性ガスであり、空気抽出器から抽出された排ガスは、ガス減衰タンクに一定時間貯留 (BWR で30分程度、PWR では最大45日間程度の貯留も可能である) して放射線を減衰してのち、フィルターで浄過して、排気筒から大気中に放出処分される。⁽⁵⁾

(ii) 液体廃棄物の処理・処分

液体廃棄物中、原子炉一次冷却系の廃液はフィルターや脱塩装置で処理して、冷却水の補給水として再使用される。イオン交換樹脂の再生廃液等、濃度の高いものは蒸発濃縮後、濃縮液は固化して、固体廃棄物として処分される。床ドレインや、洗濯、除

染などの雑廃水で低放射能のものはそのまま海へ放出される。

(iii) 固体廃棄物の処理・処分

固体廃棄物は一定期間貯蔵した後、セメント、その他の固化剤で固化し、ドラム缶詰して、発電所敷地内の固体廃棄物貯蔵所に保管される。上に述べた国際原子力機関 (IAEA) のパネルでの議論によると、貯蔵 (Storage) とは、「廃棄物を、それが検査でき、監視でき、取り出すことができ、さらに処理することができ、あるいは置場を変えることができるような環境に保存すること」と定義され、廃棄物が人間の管理下にあるかどうか、貯蔵と処分との相違点である。

放射性廃棄物の最終処分の方法としては、現在、(1)海洋処分、(2)地中処分、(3)宇宙処分、(4)中性子照射による消滅処分が考えられている。放射性廃棄物の処理技術は著しい進歩、発展が見られるが、最終処分については、これといった決定的な方法は未だ確定されるに至っていない。上に述べた内、後の2つは、技術的、経済的問題が多く残されており、今後の研究にまたれる点が多い。前2つの方法については各国で経験が積み重ねられているが、それぞれ一長一短がある。消滅処分とは、保健物理学的に重要な長半減期核種に高密度の中性子照射を行ない、核反転によって安定核種あるいは半減期の短い毒性の弱い核種に変換する方法である。宇宙処分とは、放射性廃棄物を宇宙ロケットに積み込んで、地球の引力圏外へ捨てる方法である。地中処分は、土の持つ大きなイオン交換容量を利用し、例えば地中に放射性核種が浸出しても、土壌に吸着され、自己減衰により、放射能を消滅させようとする方法である。⁽⁷⁾ 海洋処分は、海洋の膨大な希釈能力に期待して、低・中レベルの放射性廃棄物を沿岸あるいは深海に放出する方法である。海洋処分については、米国では、大西洋岸、太平洋岸、メキシコ湾に、1961年までに約 60000 Ci の投棄を行ってきたが、現在では地中処分⁽⁸⁾ によってかわられ、海洋投棄処分は行われていない。European Nuclear Energy Agency (ENEA, 現 NEA) はイギリス、フランス、西ドイツ、オランダ、ベルギーの5ヶ国の参加を得て、1967年以後、1971年までに、都合3回にわたって総計 40000 Ci 以上の放射能を投棄し、1972年には第4回目の投棄を行っており、5000 m の海底に毎年 10000 Ci を処分しても、人体に摂取される放射性物質は

ICRP の勧告値に比べて、十分に低い値になると、楽観的に評価を行っている。⁽⁹⁾ わが国の経験では、1955年から15年間に、日本放射性同位元素協会（現日本アイソトープ協会）が伊豆諸島沖に試験投棄を行ってきたが、その処分量は総量 407 Ci であると報告されている。

放射性廃棄物の最終処分の問題は、処分に関わる技術的な問題もさることながら、むしろ環境における放射性物質の挙動が科学的に十分解明されていない所に重大な問題が残っている。したがってこの問題の解明こそ、放射性廃棄物の最終処分法を確立する急務であると言えよう。しかし、環境に放出された放射性物質が許容量以下より安全であるということは、放射能の場合、本来的にはあり得ないはずであるから、放射性廃棄物の処理にあたっては施設内でのクローズドシステムの構想こそ最も合理的である。

本節は放射性廃棄物の処理・処分に関する全貌を述べることを目的とせず、一例として原子力発電施設における問題の概要を述べるに止めたが、放射性物質による環境汚染という観点から考えると、核燃料再処理工場から発生する放射性廃棄物は、質的にも重要視され、その適切な処理処分は最大の問題である。また今後、長期的には核燃料製造、核燃料再処理等に伴う放射線の処理・処分が重要な課題となってくるものと思われる。

第3節 放射生態学とその対象

3-1 放射生態学 (Radioecology) とは

生態学 (Ecology) ⁽¹⁰⁾⁽¹²⁾ の歴史は18世紀、博物学の時代にさかのぼることができるが、近代生態学が方法論として確立してきたのは20世紀以後であり、C.S. Elton の著書 ⁽¹³⁾ *Animal Ecology* は生態学に一つの転機をもたせたとされている。Odum ⁽¹⁴⁾ によると生態学とは「自然における構造と機能を研究する学問」とであると定義されている。自然に対する生態学的な見方は、⁽¹¹⁾ 生物的自然を“主体-環境”一体として見ることである。具体的には、生物間の関係をも、自然の中において、(1)食物連鎖 (Food Chain) (2)餌の量 (Size of Food), (3)数のピラミッド関係 (Pyramid of Numbers), (4)生態学

的地位 (Ecological Niche) の4つの視点から捉えることが重要であると考える。

さて、放射生態学 (Radioecology) 又は放射線生態学 (Radiation Ecology) については、⁽¹⁶⁾ Odum はその著書の中で、放射生態学は生態学の一分子であるとは見なす立場から、放射性物質、放射線、環境と関連を持ち、

(1) 個体、集団、群集、生態系に対する放射線影響に関する側面と

(2) 環境に放出された放射性物質の移行と生態学的群集や集団が放射性物質の分布にどのように関与するかという二つの重要な側面について、全く異なった研究方法があると述べている。一方 Polikarpov ⁽¹⁶⁾ は、放射線の生物に対する影響の研究は放射生物学 (Radiobiology) に代表されるのであって、Thermoecology (熱生態学) や Photoecology (光生態学) というような分野が認められていないことをあげて、生態学の一分子であるとは見なさず、Radiobiology の一分子であると考えている。この両者の意見に代表されるように、放射生態学などの学問分野に属するかは研究者によっていろいろ異なるであろうが、放射生態学の目的や研究方法については余り異論はないと思われる。前述の Odum は、生態学的な思考方法は人類の環境におこる各種の汚染、特に放射能汚染問題を解く上に不可欠であると述べている。また Polikarpov は水圏生態系において、水産生物の放射能汚染に関する研究内容を次の6つに分類している。

(1) 放射性核種の水産生物への移行に関する生物・物理化学的諸機構—データの収集と解析法の確立

(2) 水産生物による放射性核種の濃縮性の実態と能力—濃縮係数の問題

(3) 環境水中における放射性核種の移行や分布に関する水産生物の役割—生物循環、再生速度の問題

(4) 自然状態での水産生物中の放射能—自然状態での生命にかかわる過程と生物の一般的な進化における天然放射能の役割と意義の決定

(5) 水産生物の放射能感受性—放射線生物学的影響

(6) 生物集団におよぼす放射線遺伝学的影響

筆者は、放射生態学を生態学の一分子であるとは見なす立場から、対象を前に述べた二つの方法と4つの視点から捉えることが重要であると考えている。この観点から、上

述の6つの課題のうち、(5)、(6)の課題は、生物に対する放射線影響の問題を対象としており、研究の方法論的には、放射線生物学の範疇に入るものであろう。しかし、水産生物に対する放射線影響を単に個体レベルにおける生物化学的反応としてのみ見るのではなく、生態系の中であって、環境との相互作用としての集団への影響を見ろという観点には生態学的な視点に基づいた研究であると言えよう。本来自然のあり方は、個別科学が対象としているように縦割として存在しているのではないから、とりわけ、境界領域の分野の研究では、学問の分野論と言葉の定義にこだわることなく、総合的な視野からの判断が必要である。

3-1-1 生態系における放射性物質の挙動と被曝過程

生態系における放射性物質の挙動に関する研究は、大気中における核兵器実験がもたらせたフォールアウト(放射性降下物)に起因する放射性核種について始まり、生物地球化学的な一連の研究は、今日原子力の平和利用に伴う環境の放射能汚染問題に多くの示唆を与えている。ここでは、本研究の本論に入る前に、生態系における放射性物質の挙動について、特に人間の放射線被曝過程を中心に一般的な問題について触れ、本論文の導入としたい。

前節で述べたように、原子力発電所を始め、各種の原子力施設、研究所等で生成される放射性物質は相当量に達し、その一部は廃棄物として環境中に放出され、人間の放射線被曝をもたらし得ることになる。環境・生態系に放出された放射性物質による人体への放射線影響を評価する場合、放射性物質による環境汚染の実態、放射性物質の環境中での伝播移行過程を十分に知っておくことが重要である。

原子力施設から環境に放出される放射性物質は種々の経路を経て人間に至る。放射性物質の生態系での挙動の模式図を Fig.1-1 に示す。原子力施設の排気塔から放出された放射性ガスは拡散によって揮散され、その放射性雲から人体は直接に外部被曝し、またその汚染空気を呼吸摂取することによって内部被曝する。さらに雨によって地上に洗い落とされたり、重力沈降した放射性物質は陸上での土壌汚染、水圏での海洋、河川汚染を引起し、次いで農作物、牛乳、水産生物の放射能汚染をもたらし、間接的に人間に摂取される。放射性ガスからの被曝の大部分は γ 線による直接的な全身外部被曝

である。原子力発電所の平常運転時における放射性ガスの放出に起因する周辺住民の放射線被曝年線量率は、最近では数mrem/y程度に⁽¹⁸⁾減されていると推定されており、バックグラウンド放射能の変動巾に入ってしまうので、大気中環境放射能の統計・確率的な変動特性を十分に把握しておくことが重要である。⁽¹⁹⁾⁽²¹⁾

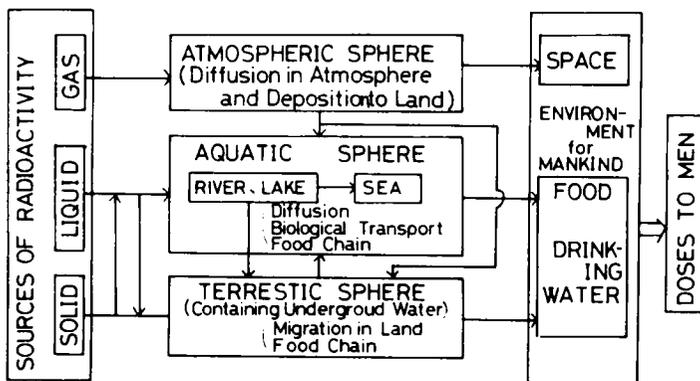


Fig. 1-1 Transport Process of Radioactivity in Ecosystem

放射性廃液は水圏・地圏の両方に放出されるが、これによる環境汚染で最も問題になるのは、放射性物質が水を介して、農・水産物の食物連鎖 (Food Chain) を経て人体に濃縮・蓄積される汚染形態である。わが国では、原子力発電所は、水利上全て沿岸に立地されており、必然的に水圏生態系・海洋汚染が主要な問題となる。低レベルの放射性廃液は海洋に放出され、放出された放射性核種の海洋中での挙動はその物理化学的な存在形態によって異なり、環境要因によって支配されるものと考えられる。物理的な挙動としては、放射性物質は海流や潮流によって運ばれ、また渦動拡散、混合希釈を受けながら広範囲に分散される。水中でイオンとして存在する核種は海水の物理的な混合過程によって拡散する。一方、コロイドや粒子状で存在する核種は、単独に、あるいは水中の浮遊懸濁物に付着して懸濁物とともに凝集、沈降現象を起し、海底に堆積するであろうと推察される。核種の生物学的な挙動としては、生物が汚染された環境水から放射性核種を選択的に吸収する生物学的濃縮の問題が重要である。生物学的濃縮には大別して、直接汚染と間接汚染とがある。⁽²²⁾ 直接汚染とは、放射性核種が環境水中から直接にエラ、その他の体表を通じて生物体内に摂取されるものである。間接汚染とは、直接汚染によって生じた汚染生物を経口的に水産生物が摂取することによって起こる汚染のことで、水圏生態系における複雑な食物連鎖の経緯にしたがって、栄養

レベルの低いものから高いものへと順次移行してゆく。¹³⁷Cs

の食物連鎖の一例を Fig.1-2 に示す。この食物連鎖によって、水産生物中の放射エネルギーは、直接汚染の場合だけよりも、はるかに高くなる場合がある。一つの生態系において、一次生産者である植物プランクトンは光エネルギーを利用し、水中の溶解成分を栄養物として固定し、新しい有機物を合

成する。このとき、海水中の放射性核種も他の栄養塩と同様に生物内に固定される。栄養レベルの上位にあるものは、下位にあるものを栄養物として摂取することにより、間接汚染が生じる。これら水産物の一部は捕獲採取され、人間に摂取される。残りの大部分は死に、海底に運ばれて、バクテリアの分解作用を受け、放射性核種も再び環境水中に戻ることになる。長期的にはこのような物質循環が起こる。しかし底質に沈降、吸着した放射性核種の一部は海底土中に拡散進入して、海底、堆積物の恒久的汚染を引き起こす。汚染された水産生物から人間の放射線被曝を解析、評価し、海域の放射能汚染の安全管理を行う上に、水産生物による放射性物質の濃縮の程度を定量的に知っておくことはきわめて重要である。生物のとり込む放射性物質の量は、生物の種類によっても、臓器、組織によっても異なる。また放射性核種の水中での存在形態によっても異なるものである。ある特定の臓器に、特定の放射性核種が特異的に高く濃縮されるとき、それを決定臓器、決定核種と呼ばれ、放射能汚染評価を行う上に重要な概念である。一般に一定濃度の放射性核種を含む水中における生物体内濃度が平衡に達した時、生物体中の核種濃度 (C_i/g) の海水中の核種濃度 (C_i/ml) に対する比を濃縮係数 (Concentration Factor, CF と略記する) といい、この係数の大きさを濃縮の程度を表し、評価の指標として用いられている。

水圏生態系での放射能汚染の水産生物に対する生物学的影響を考える場合、2つの側

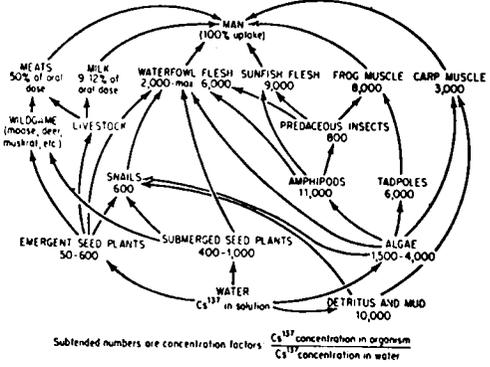


Fig.1-2 The Complexities of the Food Pathways as Illustrated by the Movement of Cs-137 from Fresh water to Man (23)

面について考える必要がある。一つには、水産生物に対する放射線の直接的影響である。すなわち、水中に生ずる水産生物の卵や植物の発生初期の細胞分裂のさかんな時期に、放射性核種が生物体内に取りこまれて内部から、あるいは環境水中から直接に放射線の照射を受けることによって、生物の発生異常や発育障害を起こしたりすることである。第二には、人間が汚染された水産生物を食用に供することによって、人間に放射線の内部照射を与える原因になることである。ここでは第二の問題に関連してのみ考える。放射性物質による海洋汚染に起因して人間が放射線照射を受ける過程には、汚染された水産生物の摂食による放射性物質の経口摂取、海水しぶきの肺からの吸入摂取、皮膚・傷口からの直接摂取等による内部被曝と、遊泳時の海水からの被曝、海浜の砂からの被曝、汚染物の体表面への付着による被曝等の外部被曝とがある。一般的には、外部被曝よりも内部被曝の方が、放射線の生物学的影響が大きく、また日本人は水産食品を常食としていることから、特に経口摂取による内部被曝が問題になる。

以上、主として海洋生態系の問題について述べてきたが、淡水生態系においても、海水と淡水との両者の間の質的な相異がもたらすいろいろな影響、挙動の相異があるにせよ、多くの現象は大同小異であろうと思われる。とは言え、これまで海洋生態系を対象とする研究は比較的多いが、淡水生態系での研究は少ないので、淡水生態系での放射性核種の挙動について、今後とも研究されねばならない課題は多い。

3-3 放射生態学における数理モデル

筆者は放射生態学(Radioecology)を生態学(Ecology)の一分科であるとの見解から、生態系における個々の現象に関する研究と同時に、生態系を Total System として把握し、その構造と機能とも明らかにすることが、放射生態学の分野において、学問的にもまた生態系の放射能汚染という現実的な課題に対しても重要であると考えられる。また環境の管理・制御を行う上において工学的にも重要な意味を持っている。

一般に生物学・生態学の分野においては数理モデルの研究は困難視され、他分野に比して遅れているが、その主要な原因は、生態系の多種、多様な構成要素を支配している法則が十分に認識されていないことにあると思われる。生物学的な現象は多くの環境要因に支配されやすく、したがって対象とする現象をどのように認識し、定式化するか

が最大の問題となる。生物学の分野では、系全体の挙動について、その系の部分についての挙動以上のことがわかっている、系全体の挙動から系の部分の性質を推論できることが望ましいのであるが、⁽²⁴⁾ 現在ではまだこのような方法論はない。したがって必然的に、分析的な研究から、総合化への方法をとらざるを得ない。すなわち、生態系を構成する部分の性質について、ある仮定のもとに推論し、この仮定が正しいとの前提のもとに系全体の挙動を推論し、実験や観測データと比較して仮説を検証してゆくのである。

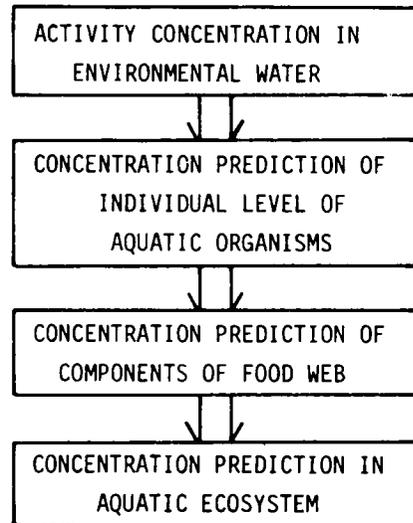


Fig.1-3 Level Classification of Mathematical Model for Radioecology in Aquatic Ecosystem

水圏生態系における放射能汚染がもたらす放射線被曝を評価する場合、まず環境水中の放射能濃度予測から出発する。水圏生態系における数理モデルの対象をレベル分類して Fig.1-3 に示す。人間に対する放射線被曝を直接的に評価する上で、水産生物の個体レベルでの放射性物質の濃縮過程が最も重要な課題であるが、生態学的な視点からは、とりわけ、近代生態学の概念的な枠組みが確立されるようになってからは、生物の個体レベルの汚染評価から、生態系(Ecosystem)としての評価を行う研究が増加しており、現象の一般的、定量的な把握を行うための数理モデルの研究が進められつつある。^(25~29)

数理モデルには、決定論的な方法と、確率論的な方法とがあり、前者は大きな生物集団の平均的な挙動を予測するのに適したモデルであり、計算が容易なことから、対象とするシステムのモデルが複雑になればなる程、優位性を発揮する。しかし反面、平均化をするために、内部の変動を捉えることができず、重要な発見を見落すこともあり得る。一方後者の方法は、対象がランダムな現象で、確定的に定まらず、多くの環境要因によって支配されやすい場合の挙動については有意な情報を得ることができ、不確定

な現象に対して予測が介入するような問題にはすぐれた手法である。この方法は前者の方法とは逆に、対象とするシステムが複雑になる程、計算が繁雑になる欠点がある。しかし電子計算機の発展と普及により、これを利用することによって、計算の繁雑さを解決し得る。

生態系における放射性核種の挙動をモデル化するのに、システム工学的な視点から、次の2通りの方法が考えられる。

- (1) シミュレーション—システムを構成するいくつかのサブシステムを組合せて大きなシステムを構成する。
- (2) シンセシス—対象とするシステム全体の把握から始め、対象の主要な側面に着目してシステムを作る。

上記2つの方法はシステムをモデル化する方向が丁度正反対になっている。しかし一度モデルが構成されると、それ以後の数学的な取扱いは全く同じである。自然における生態系では、その構成要素は極めて複雑な様相を呈しているため、化学工場のシステム解析と異なり、放射性物質の挙動の主要な経路のみ着目した後者の方法によるのが望ましいと考える。この場合、次の手順に従って生態系モデルを考えると良い。

- (1) 対象を解析し、主要な側面を明らかにする。
- (2) 対象を階層的に分析する。
- (3) 現象の定性的な側面と定量的な側面とを正しく捉える。
- (4) 適切な理想化・簡単化を行う。
- (5) 機能的なモデルを作る。

Bernhard⁽²⁸⁾ は生態系における放射性物質の挙動を数理モデルで表現することの重要性を強調し、一般には余り研究されていないことを指摘している。数理モデルの目的と利点は次のようにまとめることができる⁽³⁰⁾。

- (1) 現象の科学的(普遍的、定量的)把握—生物学的現象は多くの場合、その系の構成要素を支配する法則について、十分に認識されている事は少ない。多くの実験、観測からモデル化を通じて現象の普遍的な法則性を知る事が主要な目的である。
- (2) 系全体の挙動についての予測—全生態系(Total System)の放射能汚染を論じる場合、その系の部分(Sub System)の性質について適当な仮設を立て、この仮設が正しい場合は全生態系での核種の挙動を予測できる。

(3)生態系の質的構造の把握—推測されたモデルを解くことにより、系の構造とその特徴を知ることができる。

(4)新しい質の発見—モデルと実際の観測値とを比較することによってモデルの妥当性を知り、又モデルにあわない現象が現われた時には、そこから、隠された新しい変数、メカニズムを発見することができる。更に、対象要素の分析、例えばモデルのパラメータの構造を分析することにより、新しい質が発見され、系の挙動を予測するためには、その系を構成するどの成分の性質をより詳細に知らなければならぬかを明確にすることができる。言い換えれば、目的のために、モデルは、何を測定し、何を調査、検討しなければならぬかを教えてくれるのである。数理モデルの利点を強調するとともに、一方でその限界を明らかにしておくことが重要である。特に次の点について触れておきたい。

(1)現象の客観的過程の一面的把握—実際の生態系は極めて複雑であるが、モデルでは主要な側面についてしか記述できない。従って、多くの現象は捨象され、時には重要な質が落される可能性がある。

(2)モデル構築における前提条件の限界性—(1)とも関連するが、モデルをたてる際全ての条件を満足させるモデルを構築することはできない、すなわち前提条件に限界があり、それと合致しない条件下での評価、判断はできない。

放射生態学における数理モデルの研究は、単に放射能汚染の影響評価だけでなく、生態系における物質の循環・エネルギーの流れを把握するという生態学的な観点からも重要であり、対象とする系の素過程の解明と、それに影響を及ぼす主要な因子および両者の関係を正しく把握する事が大切である。

第4節 本研究の目的と概要

原子力の平和利用、原子力諸施設の増大に伴ない、環境の放射能汚染は不可避的である。特に水圏生態系の放射能汚染は、わが国における原子力発電所や核燃料再処理工場など、主要な放射性廃棄物の発生源となる諸施設が、沿岸部に立地されるという制約条件から、またわが国の生活様式の特異性から、とりわけ重要な問題である。

本研究の主要な目的は次の2点である。まず第1に、原子力施設から発生する放射性廃棄物の最終処分に関連して、工学的な安全管理、環境制御と行う立場から、水圏生態系の放射能汚染に伴う放射線被曝線量推定とするための基礎的な知見を得ることである。そのために、水圏生態系における放射性物質の挙動に関して、幾つかの断面に着目し、生態学的な観点から、現象における素過程の解明と、放射能汚染の影響評価、モニタリングに関する基礎的研究を行い、水圏生態系の放射能汚染を総合的に把握し、評価することを研究目的とする。水圏生態系における放射性物質の挙動は、極めて環境要因に支配されやすく、種々の不確実性が介在する現象であるので、影響評価を行う上で、ある程度正確な判断を下すためには、不確実な現象を定量的に評価する事が必要である。第2の研究目的は、この評価法を提起することにある。各章別の概要を以下に述べる。

先ず第1章において、放射性廃棄物の管理および生態系における放射性物質の挙動に関して概括し、放射生態学の問題について論じた。

既に述べたように、放射性廃棄物の最終処分の一方法として、深海投棄処分が考えられている。第2章においては、深海に投棄されたセメント固化体からの放射性核種の浸出および、海洋における拡散による表層への移行、表層における放射能濃度を求め、水産生物の放射能汚染に伴う人間の個人および集団に対する被曝線量の予測を行うことにより影響評価をする。

生態系における放射性核種の挙動は、物理・化学・生物学的過程が総体となっている。水圏環境に導入された放射性核種は、水中におけるそれらの物理化学的存在形態に依存する。海水中における存在形態の研究は、これまで一定程度進められてきているので、第3章においては、河川水中での挙動について、実験的な検討を行う。

4章、5章、6章においては、生態系における一次生産者である植物プランクトンおよび高次の捕食生物による放射性核種の濃縮過程について、決定論的、確率論的なアプローチから現象把握を行い、濃縮という素過程の統一体としての食物連鎖を通しての放射性核種の移行について論じる。

環境中における放射性核種の挙動の不確実性の評価は、本研究の主要な課題の一つであるが、これについては、第2章の表層における放射能濃度の予測および第5章の食物

連鎖を通しての放射性核種の濃縮過程を表現する数式の構造安定性の問題として、感度解析の手法を用いて評価を行う。また、対象が環境や生物という、多くの要因によって支配されやすい不確定性の強い現象に対して、偶然ないしは予測の介入する様な問題についてある程度正確な判断を下したい場合には、確率論的な把握が有効であると考え、第6章では、放射性核種の濃縮過程に、確率過程を導入して、現象の一般的把握を試みる。更に、第7章においては、水圏における放射能汚染の示標生物としての水産生物のモニタリングに関して、観測値の確率・情報論的評価、統計的・有意な試料数の問題について論述する。第7章では、原子力船による海洋の放射能汚染を一例として取り上げ、放射能のモニタリング体制について、発見確率の概念を導入し、合理的な放射能の探索方法について論じる。

参考文献

- (1) 放射性固体廃棄物処理・処分検討会報告書上・下 (昭和47年) 実業公報社
- (2) 向坊 隆編, (1970) 原子力と安全性. 朝日新聞社
- (3) 放射性廃棄物処理の運転経験. (昭和44年) 日本原子力産業会議
- (4) 固体廃棄物処理・処分委員会中間報告書 (1969) 原子力安全協会報告書
- (5) 阪田貞弘, (1973) 高レベルおよび放射性廃棄物の国際貯蔵所設立の可能性
検討パネルに出席して. 日本原子力学会誌, Vol.15, No.4 pp.233-234
- (6) 野村顕雄, (1972) 福島原子力発電所の放射性廃棄物処理. 原子力工業
Vol.18, No.3
- (7) 井上頼輝, (1970) 放射性廃棄物の地中処分. 原子力工業, Vol.16
No.7, pp.25-32
- (8) 原子動力研究会, (1964) 放射性廃棄物処理総説. 日本原子力産業会議
- (9) ENEA, (1969) 太平洋における放射性廃棄物の海洋処分に関する報告.
NSRA memo, 10 原子力安全研究協会誌
- (10) 川那部浩哉, (1969) 生態学の歴史と展望. 岩波講座, 現代の生物学
9. 生態と進化. 岩波書店
- (11) 沼田 真, (1966) 生態学方法論. 古今書院
- (12) 渋谷寿夫, (1969) 生態学史の諸問題. 法律文化社
- (13) C.S. Elton, (1927) Animal Ecology. (邦訳) 渋谷寿夫, 動物の生態学
科学新社
- (14) 木野寿彦(訳), (1967) オダム生態学. 築地書館
- (15) E.P. Odum, (1971) Fundamental of Ecology. Third Edition, W.B.
Saunders Company, London
- (16) G.G. Polikarpov, (1966) Radioecology of Aquatic Organisms. (Eng-
lish Translation edited by V. Schultz and A.W. Klement, Jr.,
North-Holland Pub. Company

- (17) 角川正義, (1971) 原子炉対策用野外放射線監視システムに於ける考察.
JAERI 1193 日本原子力研究所
- (18) 桑島謙臣, (1972) 原子力発電所における放射性廃棄物の放出低減対策.
原子力工業, Vol.20, No.1, pp.20-24
- (19) 井上頼輝, 青山 勲, 小山昭夫, (1972) 環境放射能のモニタリング — 原子力施設周辺の空間線量率の統計解析. 第27回土木学会年次学術講演会
pp.701-702
- (20) 井上頼輝, 青山 勲, 小山昭夫, (1972) 原子炉からの放射能とバックグラウンドとの統計的分離について. 原子力学会保健物理分科会予稿集, pp.4-5
- (21) 井上頼輝, 青山 勲, 小山昭夫, (1973) 環境放射能のモニタリング (その2) — バックグラウンド放射能のパターン認識 —, 第28回土木学会年次学術講演会 pp.511-512
- (22) 松山義夫, (1964) 水産生物の放射能汚染, 原子力工業, Vol.10, No.7
pp.18-22
- (23) R.C. Pendreton and W.C. Hanson, (1958) Absorption of Cesium-137 by Components of an Aquatic Community. Proc. of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol.18, P/392 pp.419-422
- (24) J.M. Smith, (1969) Mathematical Ideas in Biology
(邦訳) 押田勇雄, 数理生物学, みすず書房
- (25) G.E. Rainess, S.B. Bloom and A.A. Levin, (1969) Ecological Models Applied to Radionuclides Transport in Tropical Ecosystems.
Bio Science, Vol.19, No.12, pp.1086-1091
- (26) S.G. Bloom and G.E. Raines, (1969) A Preliminary Mathematical Model for Predicting the Transport of Radionuclides in the Marine Environment. USAEC-Report BMI-171-123
- (27) S.G. Bloom, A.A. Levin and W.E. Martin, (1970) Mathematical Methods

for Evaluating the Transport and Accumulation of Radionuclides.

USAEC-Report

BMI-171-30

- (28) M. Bernhard, (1971) The Utilization of Simple Models in Radioecology. CNEN-RT/PROT(72)12 pp.129-187
- (29) L.L.Eberhardt and R.E. Nakatani, (1969) Modeling the Behavior of Radionuclides in Some Natural Systems. Proc. of the Second National Symposium on Radioecology, pp.740-750
- (30) 青山 勲, (1974) 放射生態学における数理モデル, 環境放射能研究会シンポジウム - 放射生態学におけるモデルの問題 - pp.1-2 *

第二章 放射性廃棄物の深海投棄処分に 伴う影響評価に関する研究

第1節 概説

放射性廃棄物は一般に、その放射能レベルと性状、最終処分の形態に応じて適当な処理が施こされたから環境への放出を前提として「貯蔵」もしくは「処分」される。現在我が国で法規上認められている最終処分法は保管貯蔵と海洋投棄である。これまでは廃棄物の処理後固化して施設内に保管されてきた。その発生量は炉型、操業条件により異なるが、原子炉一基あたり、年間ドラム缶1,000個を越すといわれている。⁽¹⁾

1972年、原子力委員会から出された「原子力開発利用長期計画」によると、昭和60年度には6000万kW、65年度には1億kWの電力を原子力発電によってまかなうと述べられており、発電所以外の原子力施設からの放射性廃棄物の発生をも考えると年々膨大な量が保管されることになり、いずれはこれらの最終処分が考えられねばならない。原子力委員会では昭和50年代初期までには海洋処分の見通しを得ると述べている。

放射性廃棄物は固化することにより、放射性物質の拡散を抑えることができるが、現在の技術段階では、固化体からの放射性物質の浸出や漏洩を完全に防止することは不可能であり、これらの環境におよぼす影響や人体の放射線被曝などについて、十分な安全性が確認されることが重要である。寺島等^(2~5)は放射性廃棄物のセメント固化処理と海洋処分に関して詳細な研究を行っており、また科学技術庁原子力局から処理処分に関して広範な問題について報告書が出されている。既に前章で述べたように、放射性廃棄物の海洋処分に使われている固化体はセメントでドラム缶内に固めたものである。これは必要な強度と比重が得られるため、今後ともセメントは主要な固化材となるであろう。固体廃棄物の深海投棄処分に伴う人体への放射線被曝量を評価するには、セメント固化体からの放射性核種の浸出特性、海洋における深海から表層への拡散移行、水産生物による放射性核種の濃縮、人間の水産生物摂取量などに関する十分な情報が得られていることが必要である。セメント固化体⁽²⁾からの放射性核種の浸出については既に詳細な研究がされているが、本章では特に固化体の空隙率や水圧、水温と核種の浸

出性との関係について、上記の実験データを補充する観点から若干の実験を行なうとともに、放射性核種の固化体からの浸出後海洋での拡散により、最終的に人間にどの程度の放射線被曝が長期的に起こるかを評価することを試している。

第8節 セメント固化体からの放射性核種の浸出

8-1 浸出に関する理論的検討

固化体中の放射性核種や各種の塩はセメント成分と化学的に結合し、あるいは単独の結晶として固化体中に分散した状態で存在しているが、これらが環境水と接触すると、水中の化学成分との化学反応や、解離により、溶解性物質は液相に移行する。水-セメント比によって異なるが、セメント固化体は30~40%の高い空隙率を有しており、このような多孔質の固化体の場合、固化体内部に環境水が浸入し、固化体表面のみならず、内部の空隙においても上と同様の現象が起こる。固化体中の放射性核種が環境水中に移行する過程は(1)固化体から内部間隙への溶解、(2)内部間隙を通しての外部への拡散、(3)固化体表面境界層における拡散、(4)固化体表面における溶解の4つに分けることができるが、放射性核種が固化体から環境水中へ移行するのどの過程が支配的であるかは、放射性核種の固化体中での存在形態に依存することが確認されている^(2,5)。上の4つの過程のうち(1)と(4)は同じ現象であり、結局全体的には、拡散による浸出と固化体自身の溶解による浸出との二つに大別される。浸出に関する理論的検討は上述の論文に詳しいので、ここでは簡単に述べるにとどめる。

8-1-1 拡散による浸出

¹³⁷Csのようにセメント固化体中でもイオンとして存在する核種は固化体内部拡散が⁽⁷⁾全体としての浸出を律速していると推定される。この時、固化体内部における核種の挙動は次の拡散方程式で表わされる⁽⁵⁾。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(D_c \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z^2} \left(D_c \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \lambda C \quad (2-1)$$

ここに、 C は放射性核種の固化体内濃度 [$\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$]、 D_c は内部拡散係数 [cm^2/day]、 λ は核種の物理的崩壊定数 [$1/\text{day}$] である。ここで、簡単のため、固化体表面からの溶出だけを対象とし、 $\partial C/\partial r = 0$ とおき、(2-1) 式の初期および境界条件を次のように与える。

$$\begin{cases} C(r, 0) = C_0 & |r| \leq R \\ C(R, t) = 0 \\ \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 \end{cases} \quad (2-2)$$

ここに R は固化体の半径 [cm]、 C_0 は固化体内部の初期濃度 [$\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$] である。これらの初期および境界条件のもとで (2-1) 式を解くと、固化体内の濃度分布、固化体側面からの浸出速度 N [$\mu\text{Ci}/\text{cm}^2/\text{day}$]、浸出量 M と初期量 M_0 との比 (浸出比) はそれぞれ次のように表わされる。

$$\frac{C}{C_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2J_0\left(\frac{r}{R} \beta_n\right)}{\beta_n J_1(\beta_n)} \exp\left\{-\left(\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t\right\} \quad (2-3)$$

$$N = -D_c \left. \frac{\partial C}{\partial r} \right|_{r=R} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2C_0 D_c}{R} \exp\left\{-\left(\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t\right\} \quad (2-4)$$

$$\frac{M}{M_0} = \frac{2\pi R h \int_0^t N dt}{\pi R^2 h C_0} = \sum \frac{4D_c}{(D_c \beta_n^2 + \lambda R^2)} [1 - \exp\left\{-\left(\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t\right\}] \quad (2-5)$$

ここに、 h は円柱固化体の高さ、 J_0 、 J_1 はそれぞれ第 0 次および 1 次の Bessel 関数、 β_n は $J_0(\beta) = 0$ の根である。

2-1-2 溶解による浸出

^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{106}Ru のような核種はセメント水和物に対する吸着性が強く、ほとんど固相に固定されており、また固化体内間隙水中における移動性は極めて小さいと推定される。⁽⁷⁾ このような場合、固化体から環境水中への核種の移行は固化体表面における溶解が律速すると考えるのが妥当である。この時、固化体表面からの放射性核種

の浸出速度は固化体中の濃度に比例すると考え、溶解速度定数を定義することによって、

$$N = \alpha C_0 = \alpha \frac{M_0}{V} \quad (= \text{const.}) \quad (2-6)$$

と表わせる。この場合、単位面積当りの放射性核種の浸出率は一定となる。

固化体からの放射性核種の浸出性を評価するための表現法は各国まちまちであるため相互の比較をすることが困難な現状にある。原安協では、わが国において、固化体からの放射性核種の浸出実験を整理する方法として、次の二つの方法が妥当であるとされている。⁽⁶⁾

- ① 主たる整理方法：拡散係数 [cm^2/sec 又は cm^2/day]
- ② 副次的な整理方法：浸出率 [$\text{g}/\text{cm}^2 \cdot \text{day}$]

既に述べたように、固化体からの浸出形態は核種によつて異なるので、どちらが主、副ということなく、核種毎に使いわけることが必要である。

スース 実験材料および方法

固化体からの放射性核種の浸出実験の多くは常温、常圧下で行なわれたものである。しかし、深海に投棄された固化体は数百気圧の高圧を受け、また水温も、場所によつて異なるが、太平洋で数度C以下であるといわれている。⁽⁷⁾ 本節では低温、高圧下での浸出性と常温、常圧下での浸出性との比較を目的として以下の実験を行なった。用いた核種は ^{137}Cs 、 ^{90}Sr である。

セメントの練り混ぜ水は水道水を用い、 CsNO_3 、 $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ を担体として加え、濃度がそれぞれ 10^{-3}mol/l となるように調整した。これにトレーサとして ^{137}Cs 、 ^{90}Sr を加えて模擬廃液とした。普通ポルトランドセメントにこの模擬廃液を、水-セメント比が40、50、60%となるようにして加え、練り混ぜた後、200gドラム缶とほぼ相似な形状を持つ高さ50mm、内径35mmの塩化ビニール製の円筒型型枠の中に打設し、十分突固めて均一な固化体試料を作製する。セメントの打設後、ビニール袋に入れて密封し、水張りしたデシケータの中で湿度100%に保って養生する。型日型枠をはずし、円柱形固化体の上下面にエポキシ樹脂系接着剤で塩ビの内板を接着し、前記の解析法通りに、核種の浸出が側面からのみ起こるようにした。

室温で一週間の養生後、試料を浸出液に浸し、核種の浸出実験を開始した。

浸出液には水道水、海水（若狭湾で採水）、人工海水を用いた。人工海水については、フランス原子力委員会から IAEA に提出された「固体廃棄物中の放射性物質の水の中への拡散に関する標準解析方法（案）」に基づいて、Table 2-1 に示す組成のものを用いた。（筆者らの研究後に、国際原子力機関から、放射能浸出の測定試験法や、結果の整理方法等に関する暫定指針が提起されている。⁽⁹⁾）

浸出実験は次の各要因のおよぼす影響について検討した。

- (i) 水-セメント比 (40, 50, 60%) の差異
- (ii) 浸出液の組成 (水道水, 海水, 人工海水)
- (iii) 浸出液の温度 (2, 15, 25℃)
- (iv) 高压下の浸出 (200気圧)

Table 2-1 Components of Artificial Sea Water

Total Salinity	200ppm
NaCl	115 mg
CaSO ₄	47 mg
KCl	34 mg
MgCO ₃	14 mg
Pure Water	1 l

1 l のポリビンに所定の浸出液 500 ml を入れ、各固化体試料を浸漬させた。水温 2℃ の実験は低温恒温槽内で、15℃, 25℃ のものは水中ヒーターで水温調整を行った。二つの水槽にポリビンを入れて、浸出液の水温を一定に保った。実験開始後、初めの 1 週間は毎日浸出液を新しいのと交換し、それ以後は数日から 10 日間隔で液の交換を行なった。液の交換毎に液 1 ml をサンプリングし、ガスフローカウンターでその放射能濃度を測定し、固化体から浸出した放射エネルギーを求めた。

2-3 実験結果および考察

2-3-1 水-セメント比の影響

水-セメント比 (W/C) を変えた場合の浸出比の経時変化を Fig. 2-1 に示す。両核種とも W/C の増加とともに増加している。これは W/C の増加がセメント固化体内の空隙率を高めることになり、空隙率が大きい程固化体内で液相に移行した放射性核種は拡散しやすくなっていることを示している。寺島らは ¹³⁷Cs の場合、W/C が 50% までについて、空隙率 f と拡散係数 D との関係は、

$$D = \frac{f}{\tau} \times \bar{D} \quad (2-7)$$

(D : 液相中の拡散係数, τ : Tortuosity factor)

で近似的に表わされるとし¹⁾てとしては $1.2 \sim 1.8 \times 10^2$ に値を得ている²⁾。本実験ではさらに水-セメント比を60%まで高めて実験を行なったが、ほぼ同様の結果が得られた¹⁾。空隙率を因上で100%まで外挿すると、拡散係数は $7.5 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$ となり、これはイオンの水中における拡散係数とほぼ一致する。⁹⁰Srの場合は¹³⁷Csの場合よりほぼ1ケタ小さい。

ス-3-2 浸出液組成の影響

一例として、水-セメント比40%、水温15°Cの場合についての実験結果をFig. 2-2に示す。¹³⁷Csの場合、水道水<海水<人工海水の順で浸出比は高くなる。しかしその差はわずかで、特に海水と人工海水との差は小さく、有意な差があるとはいえない。水温が8°Cの場合には全く両者の間に差はなかった。⁹⁰Srの場合には、どの水温に対しても、水道水<人工海水<海水の順に浸出比が高くなり、時間の経過とともに、その差が著しくなる傾向がある。これは海水中化学成分のセメント水和物に対する化学作用の結果、セメント水和物が浸蝕されて、固化体内の細孔構造が変化し、空隙率が増加することとなって、拡散係数が大きくなったためと思われる。

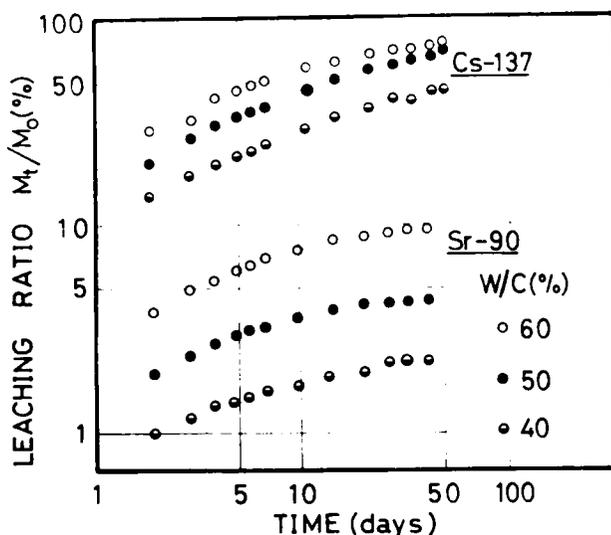


Fig. 2-1 Leaching Ratio of Cs-137 and Sr-90 in Artificial Sea Water

ス-3-3 浸出液温度の影響

水温の変化は、固化体の内部構造の微視的変化や、分子やイオンの間隙内の移動性に影響を及ぼすと考えられるが、これらの現象は固化体からの放射性核種の浸出量の評価という観点からは、総括的には内部拡散係数の変化として把握することができる。

実験データの一例を Fig.2-3 に示す。
 実験開始 10 日後の拡散係数を ^{137}Cs に
 ついて見ると、水・セメント比(W/C)
 が 40% で、水道水に浸漬した後、2°
 C で、 $4.5 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、25°C で
 $11.8 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、海水中では、そ
 れぞれ、 7.5×10^{-8} 、 $11.1 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$
 、人工海水中では、 9.0×10^{-8} 、 $17 \times$
 $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であった。

一般的に、水温の高い程、浸出比は高
 くになっている。浸出液や水・セメン
 ト比によって 2°C と 15°C とが逆に
 なることもあった。

水温と拡散係数との関係について、
 例えは次に示す Stokes-Einstein
 の式がある。⁽²⁾

$$D = \frac{kT}{6\pi R} \propto T \quad (2-8)$$

ここで k や R は物質固有の値であるか
 ら、結果拡散係数は温度 T に比例する
 ことを示している。

既に述べたように、固化体中の放射
 性核種の拡散移動は水・セメント比、
 言い換えれば空隙率に大きく依存する。
 固化体は各試料ともなるべく均一とな
 るように作製したが、型枠にセメント
 パーストを打設する際に空気がトラップ

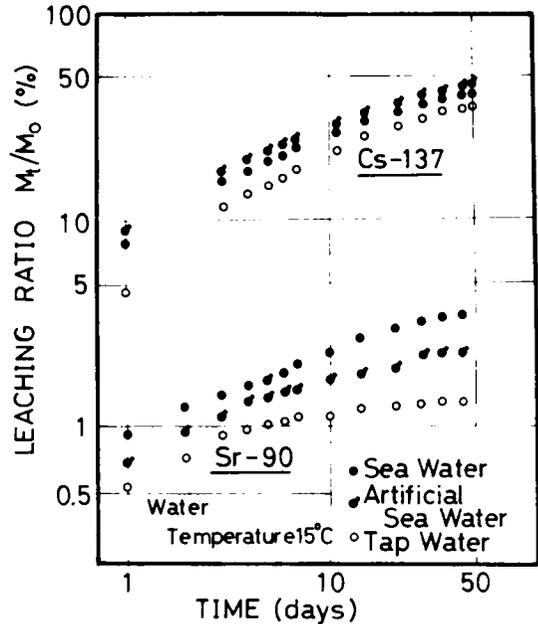


Fig.2-2 Leaching Ratio of
 Cs-137 and Sr-90

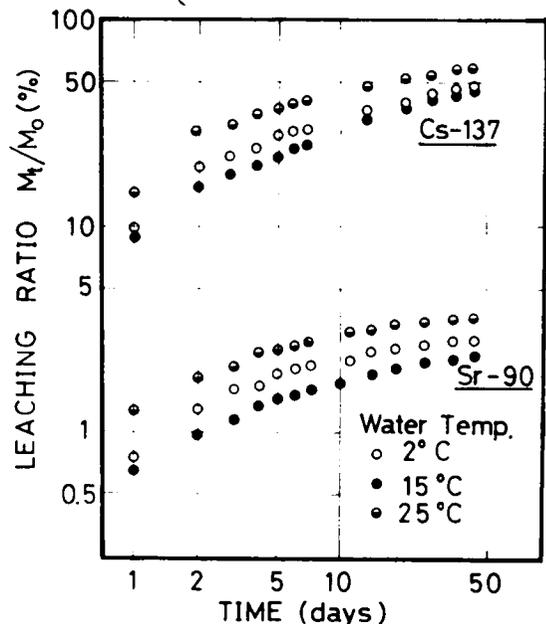


Fig.2-3 Leaching Ratio of Cs-137
 and Sr-90 in Artificial Sea Water

アされるなど、浸出液の水温度変化の影響を検討する程、十分均一な試料が得られなかったものと思われる。

ス-3-4 圧カの影響

高压下での浸出実験に用いた固化体も上述のものと同じである。水セメント比は40%で¹³⁷Csについてのみ実験した。加圧圧力は200気圧である。実験結果をFig. 2-4に示す。圧カの影響におよ

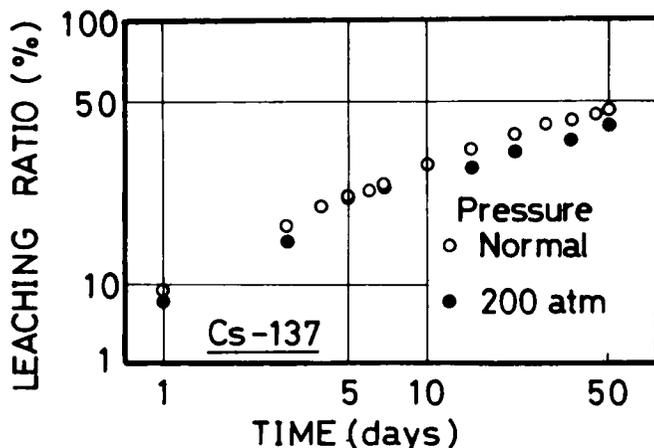


Fig.2-4 Effect of Water Pressure on Leaching Ratio

ぼす影響については、分子の自由エネルギーが拡散に影響を与えるが、分子運動論的には、圧力は他の要因に比べて無視し得る程小さく、本実験結果も、常圧と200気圧とでは浸出比に有意な差異を見い出せなかった。寺島による実験結果では、水温が20°Cから3°Cに低下することによって、拡散係数Dは2/5に、水圧が大気圧から300 kg/cm²に増加することによって、1/2に減少すると報告されている。筆者の実験結果は、圧力に関しては、有意な差異が見られなかったが、他の実験については、おおむね、同じような結果が得られた。

第3節 放射性固体廃棄物の深海投棄処分による海洋表面での放射能濃度予測

3-1 はじめに

放射性廃棄物をセメント固化することにより、放射性物質の一時的な拡散を抑えることは可能であるが、水中において放射性物質の固化体からの浸出や漏洩を完全に防止することは不可能であり、これらの最終処分にあたり、環境におよぼす影響や人間の放射線被曝などについて十分な安全性が確認されることが重要である。放射性廃棄物

を海洋に投棄処分した場合、それらの人間の手によるコントロールは不可能であるから人間の放射線被曝を計測によって知ることはできない。それだけに、深海投棄処分の安全性を確保するためには、事前に十分な調査と評価がなされなければならぬ。

放射性廃棄物の深海投棄処分の影響評価については、これまでも篠崎、寺島らによってなされている。前者では、原子力発電所から生成される放射性廃棄物を対象として、種々の容器の寿命を仮定し、その寿命をすぎると、その容器から放射性廃棄物の半分が漏洩すると仮定している。海洋での放射性物質の拡散について、水平方向の拡散は鉛直方向に比べると十分はやいと考えると、全海深に放射性物質が平均してすてられた場合を想定し、海表面から1000m毎に放射能濃度を試算している。後者では、投棄処分地として太平洋を想定し、閉鎖系の長方体プールと見なして、底面および側面での反射を考慮した3次元拡散モデルを用いて、海表面での濃度予測、廃棄物の許容投棄量について試算している。これらの試算では、いずれも個体からの放射性核種の浸出は、固化体の一定の寿命の後に一時的に起こると仮定している。しかし実際には、前節で述べたように核種によって浸出特性は異なるが、固化体が海水と接触後、直ちに浸出が起こるので、それらの特性に応じた解析をするのが望ましいと思われる。また海洋における海水の挙動は未知の問題が多いが、海洋における物質の拡散を考える場合には、表面混合層と深層部とは別けて考えるのが合理的であろう。そこで、本研究においては、従来の研究成果に基づきながら、固化体からの核種の連続的な浸出特性を考慮に入れ海洋を上記の2層に分け、海洋表面における放射性核種濃度を予測することを試みた。^{(13,14) (15)}

更に以下述べる濃度予測式に含まれるパラメータの値は決して一意的に決定される固定的なものではなく、種々の環境要因によって支配されやすく、極めて不確定な値であることに留意しなければならぬ。このようにパラメータの値が不確定な場合、それらの値がある一定の基準値からずれた場合、予測濃度がどの程度変動するかを知らしておくことも影響評価を行う上で重要な要素である。これはパラメータの値の変動の濃度予測を行う方程式の構造の安定性に対する一つの測度を与える問題である。感度解析の手法は、この様な測度を定量的に表現する方法である。この感度解析によって、どのパラメータが、濃度変動に最も強い影響を与えるかを知り、海洋投棄処分を行う場

合に、それによる人間の被曝線量を少なくするための有効な手段を講じることができ
 放射性廃棄物の深海投棄処分の影響評価を行うための試算の順序をFig. 2-5に
 示している。

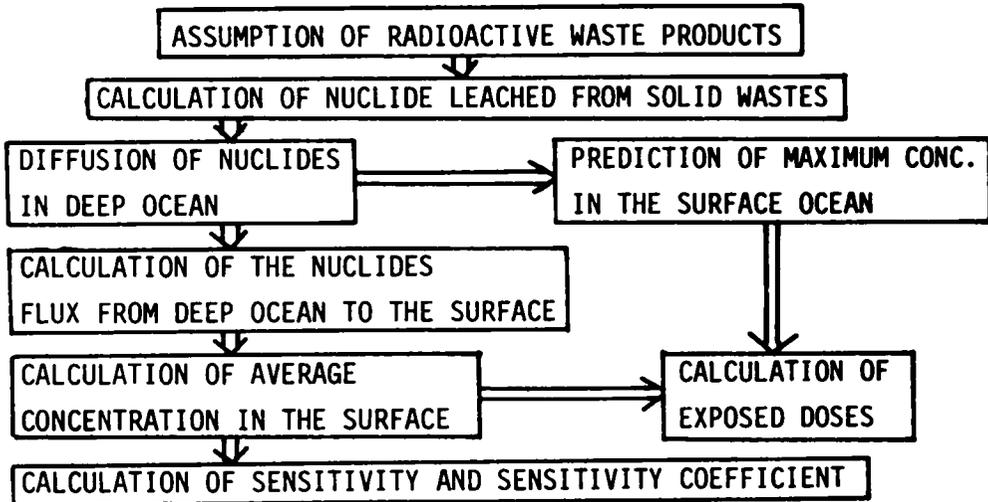


Fig.2-5 Flowsheet of the Calculation

3-2 表面混合層における放射能濃度予測

3-2-1 放射性廃棄物発生量の仮定

放射性廃棄物の発生は、核燃料再処理工場からのものが質的にも、量的にも支配的であるが、再処理工場から生じる高レベル放射性廃棄物の海洋処分は実際には推奨されないとされており、⁽⁶⁾ 低レベルもしくは中レベルの廃棄物について、管理され、限定された条件のもとでのみ海洋処分が可能である。それ故、ここでは原子力発電所から通常の運転で発生する固体廃棄物のみを対象とし、その発生量は発電量に比例すると考えた。

⁽¹⁸⁾ 「原子力利用長期計画によると、原子力による総発電量は、1980年(昭和55年)には3200万kW、1985年には6000万kW、1990年には11000万kWと約5年毎に倍増すると計画されている。これに従い、ここでは、簡単化のため、1970年から発生し、1990年に発電量は1億kWになり、それ以後も直線的に増加すると仮定した。

影響評価の対象とする放射性核種は、保健物理学的に重要で、かつセメント固化体からの浸出機構に異なる代表的な核種として、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co を選んだ。発電量 100MW_e あたりのそれぞれの核種の発生量は次の通りである⁽⁶⁾。

$$^{137}\text{Cs} ; 10 \text{ Ci}/100 \text{ MW}_e \text{ -year}$$

$$^{60}\text{Co} ; 200 \text{ Ci}/100 \text{ MW}_e \text{ -year}$$

年間廃棄物の発生量は直線的に増加すると仮定しているので、 t 日後の1日当りの発生量は、放射エネルギーで表わすと次のようになる。

$$f(t) = at \quad [\mu\text{Ci}/\text{day}] \quad (2-9)$$

$$^{137}\text{Cs} : a = 3.75 \times 10^3 \quad [\mu\text{Ci}/\text{day}^2]$$

$$^{60}\text{Co} ; a = 7.51 \times 10^4 \quad [\mu\text{Ci}/\text{day}^2] \quad (2-10)$$

ここに、 a は発生する放射能の1日あたりの増加速度を表わす比例定数 ($\mu\text{Ci}/\text{day}^2$) である。

Fig.2-5に示したように、表層での放射能濃度予測を行なうまでに、各段階に分けて計算を進めるので、各段階と時間変数との関係を Fig.2-6 に示す。

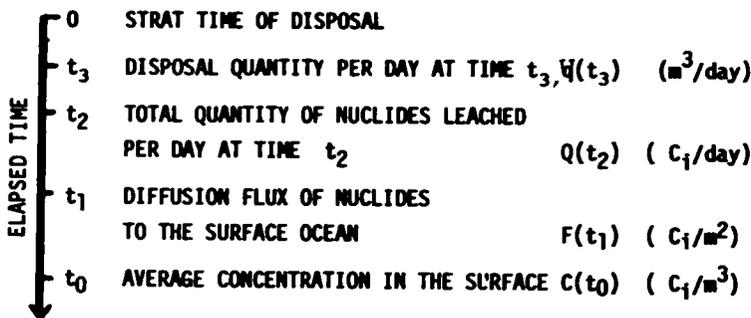


Fig.2-6 Time Axis and calculation

3-2-2 セメント固化体からの放射性核種の浸出量

固化体からの放射性核種の浸出性を評価するための表現法は各国まちまちであるため相互の比較を行うのが困難な現状にある。原安勲では、わが国で、固化体からの放射

放射性核種の浸出実験を整理する方法として、上に述べたように、2つの手法が妥当であるとしている。⁽⁶⁾ 固化体からの浸出形態は核種によって異なるので、主・副ということなく核種の特性に応じて使い分けることにする。¹³⁷Csの場合、2-1-1で述べたように¹³⁷Csはセメント固化体中でもイオンとして存在すると考え、この時、固化体内における核種の拡散は次の方程式で表わされる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (D_c \frac{\partial C}{\partial r}) - \lambda C \quad (2-11)$$

円柱全面からの浸出についても解析されているが、ここでは簡単のため(2-1-1)式で表わされるように、円柱側面からの浸出についてだけ考えることにする。また、実際には、セメント固化体が被覆されずそのまま海中に放出されることなく、ドラム缶に入れられて投棄される。

固化体内の濃度分布 C 、固化体表面からの核種の浸出速度 [$\mu\text{Ci}/\text{cm}^2/\text{day}$]、総浸出量 M と、初期量 M_0 との比、すなわち、浸出比を再記するとそれぞれ次のようである。

$$\frac{C}{C_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2J_0(\frac{r}{R} \beta_n)}{\beta_n J_1(\beta_n)} \exp\{-\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda)t\} \quad (2-12)$$

$$N = -D_c \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=R} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2C_0 D_c}{R} \exp\{-\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda)t\} \quad (2-13)$$

$$\frac{M}{M_0} = \frac{2\pi R h \int_0^t N dt}{\pi R^2 h C_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4D_c}{D_c \beta_n^2 + R^2 \lambda} [1 - \exp\{-\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda)t\}] \quad (2-14)$$

今、時刻 t_3 において投棄された固化体の総着積を $W(t_3)$ と表わすと、投棄固化体の数は $W(t_3)/\pi R^2 h$ で表わされるので、時刻 t_3 において投棄された固化体から、時刻 t_2 に浸出する放射能の1日あたりの浸出速度 [Ci/day^2] は

$$q(t_2) = 2\pi R h \frac{W(t_3)}{\pi R^2 h} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2C_0 D_c}{R} \exp\{-\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda)(t_2 - t_3)\} \quad (2-15)$$

(2-15)式で $W(t_3) \times C_0$ は時刻 t_3 において1日あたり投棄された放射性核種の量になるから、これを(2-9)式を用いて表わすと(2-15)式は次のようになる。

$$q(t_2) = \frac{4aD_c t_3}{R^2} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left\{-\left(\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)(t_2 - t_3)\right\} \quad (2-16)$$

実際の投棄作業は一定の期間毎に行われることになると思われるが、計算を簡単にするため、投棄処分が $t=0$ から $t=t_2$ まで連続的に行われるとすると時刻 t_2 における放射能の総浸出量 $Q(t_2)$ [$\mu\text{Ci/day}$] は(2-16)式を積分して得られる。

$$Q(t_2) = \int_0^{t_2} q(t_3) dt_3 = \frac{4aD_c}{R^2} \sum \left[\frac{R^2}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \left(t_2 - \frac{R^2}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \right) + \frac{R^4}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \exp\left\{-\left(\frac{D_c \beta_n^2}{R^2} + \lambda\right)t_2\right\} \right] \quad (2-17)$$

^{60}Co の場合、前述のように、 ^{60}Co についての固化体表面からの放射能核種の浸出速度は、

$$N = \alpha C_0 = \alpha M_0 / V \quad (2-18)$$

と表わされる。1 固化体、全表面からの浸出速度 N_s は、固化体表面積を S で表わすと、

$$\begin{aligned} N_s &= N \cdot S = \alpha \frac{M_0}{V} S \\ &= \alpha \frac{M_0}{\pi R^2 h} (2\pi R^2 + 2\pi R h) = 2\alpha M_0 \left(\frac{1}{h} + \frac{1}{R} \right) \end{aligned} \quad (2-19)$$

1日あたりの投棄固化体の個数を n とすると、1個あたりの放射能 M_0 は(2-10)式から、

$$M_0 = f(t)/n = at/n \quad (2-20)$$

となる。したがって、時刻 t_3 において投棄された固化体から、時刻 t_2 において浸出する放射能量は、放射能の自己減衰を考慮して、次式で表わされる。

$$\begin{aligned}
 q(t_2) &= nN_s e^{-\lambda(t_2-t_3)} \\
 &= 2\alpha\alpha t_3 \left(\frac{1}{h} + \frac{1}{R} \right) \exp[-\lambda(t_2-t_3)]
 \end{aligned}
 \tag{2-21}$$

^{137}Cs の場合と同様に、連続投棄を行った時、時刻 t_2 における総浸出量 $Q(t_2)$ は、次式で示される。

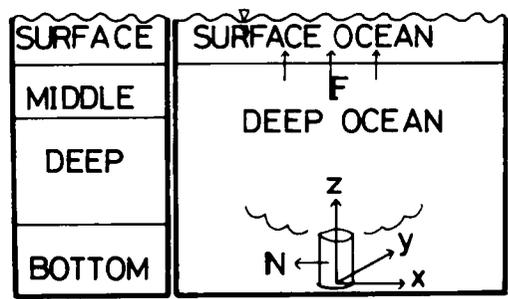
$$\begin{aligned}
 Q(t_2) &= \int_0^{t_2} q(t_2) dt_3 \\
 &= 2\alpha\alpha \left(\frac{1}{h} + \frac{1}{R} \right) \left\{ \frac{1}{\lambda} (t_2 - \frac{1}{\lambda}) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\}
 \end{aligned}
 \tag{2-22}$$

3-3-3 海底から表層への放射性核種の拡散輸送

深海からの物質の拡散を考える場合、海洋における水塊の構造をどのようにモデル化するかは重要な問題である。一般に、海洋における水温と塩分濃度のプロフィールから、海水の鉛直構造をいくつかの層に別けて考えることができる。海洋における物質移動を考えるための海洋モデルは、今日までに次の4つが提案されている。⁽¹⁹⁾ (1)

the two-layer model, (2) the outcrop model, (3) the three-box model, (4) the world ocean model. これらのモデルは、いずれも表面混合層 (mixed layer) と深層部 (deep reservoir) とに分けて考えている。混合層と深層との間には混合層が存在して、これを境として、上下の

混合は起こりにくい。又、両層での鉛直拡散係数の値も著しく異なっている。ここでは計算を簡単化するために Fig.2-7 に示すような二層モデル (the two-layer model) によって、以下の試算を行った。



Real Ocean Two Layer Model
Fig.2-7 Two Layer Model of the Ocean

セメント固化体から浸出した放射

放射性核種は、海洋の深層部を拡散によって上昇し、混合層に達する。混合層内に入った核種は深層部での拡散時間に比べて、比較的短時間の内に、混合層内で一様に混合されると考えられるので、この表層を完全混合層と見なして、一様な平均放射能濃度を求める。

拡散の基礎式は一般に次式で与えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}(D_x \frac{\partial C}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(D_y \frac{\partial C}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z}(D_z \frac{\partial C}{\partial z}) - u \frac{\partial C}{\partial x} - v \frac{\partial C}{\partial y} - w \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C \quad (2-23)$$

ここに、 C は海水のある点 (x, y, z) における放射能濃度 (Ci/m^3)、 D_x, D_y および D_z は水平 (x, y) および鉛直方向 (z) の渦動拡散係数 (m^2/day)、 u, v および w はそれぞれ x, y および z 方向の海水の流速成分 (m/day)、 λ は放射能の物理的崩壊定数 ($1/\text{day}$) を表す。(2-23) 式を解くにあたって、半無限空間での拡散を仮定すると、深層部での水平方向の流速成分は最大濃度地点の原点からのずれと表わすだけであり、鉛直方向の上昇流速成分は無視し得る程に、十分小さいので、これらは無視し、又同一層内での拡散係数を一定と見なして、底面での反射だけと考えることにする。すると(2-23) 式は次式のようになる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \lambda C \quad (2-24)$$

時刻 t_2 において $Q(t_2)$ の放射性物質が一点で浸出したとすると、時刻 t_1 における放射能濃度分布は次式で与えられる。

$$C'(x, y, z; t_1) = \frac{Q(t_2)}{4\{\pi(t_1-t_2)\}^{3/2}(D_x D_y D_z)^{1/2}} \exp\left\{-\frac{x^2}{4D_x(t_1-t_2)} - \frac{y^2}{4D_y(t_1-t_2)} - \frac{z^2}{4D_z(t_1-t_2)} - \lambda(t_1-t_2)\right\} \quad (2-25)$$

廃棄物の投棄が、時刻 $t=0 \sim t_1$ にわたって連続的に行われる場合には(2-25) 式を積分すれば良い。

$$C(x, y, z; t_1) = \int_0^{t_1} C'(x, y, z; t_1) dt_2 \quad (2-26)$$

したがって、深層部における濃度分布は、 ^{137}Cs に対しては (2-17) 式と、 ^{60}Co に対しては (2-22) 式とそれぞれ (2-26) 式に代入すれば良い。

^{137}Cs に対して

$$C(x, y, z; t_1) = \int_0^{t_1} \frac{aD_c}{\{\pi(t_1-t_2)\}^{3/2} (D_x D_y D_z)^{1/2}} \sum_{n=1}^{\infty} \left[\frac{1}{D_c n^2 + R^2} \left\{ t_2 - \frac{R^2}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} (1 - \exp(-\frac{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2} t_2)) \right\} \right] \exp\left\{ -\frac{1}{4(t_1-t_2)} \left(\frac{x^2}{D_x} + \frac{y^2}{D_y} + \frac{z^2}{D_z} \right) - \lambda(t_1-t_2) \right\} dt_2 \quad (2-27)$$

^{60}Co に対して

$$C(x, y, z; t) = \int_0^{t_1} \frac{\alpha \alpha \left(\frac{1}{h} + \frac{1}{R} \right)}{2\{\pi(t_1-t_2)\}^{3/2} (D_x D_y D_z)^{1/2}} \left\{ \frac{1}{\lambda} \left(t_2 - \frac{1}{\lambda} \right) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \times \exp\left\{ -\frac{1}{4(t_1-t_2)} \left(\frac{x^2}{D_x} + \frac{y^2}{D_y} + \frac{z^2}{D_z} \right) - \lambda(t_1-t_2) \right\} dt_2 \quad (2-28)$$

3-2-4 表層における平均濃度

海洋においては、1つの観測点での水温、塩分の相関曲線が直線を示す場合には、1つの水塊と見做すことができ、拡散は鉛直方向だけの一次元的な取扱いが可能であるとされている。⁽²⁰⁾ 既に述べたように、ここでは計算を簡単化するために2つの水塊からなる二層モデルを仮定している。

海底に投棄された放射性物質の鉛直上方向への拡散も一次元モデルで近似すると、拡散基礎式は次式となる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \lambda C \quad (2-29)$$

この時, (2-27), (2-28) 式はそれぞれ次のように改められる。

$$\begin{aligned}
 {}^{137}\text{Cs} \text{ に対して,} \\
 C_L(z; t) = \int_0^{t_1} \frac{2aD_C}{\sqrt{\pi(t_1-t_2)D_z}} \sum_{n=1}^{\infty} \left[\frac{1}{D_C\beta_n^2 + \lambda R^2} \left\{ t_2 - \frac{R^2}{D_C\beta_n^2 + \lambda R^2} (1 - \exp\{-\frac{D_C\beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2}\}) \right\} \right] \\
 \times \exp\{-\frac{z^2}{4(t_1-t_2)D_z} - \lambda(t_1-t_2)\} dt_2 \quad (2-30)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 {}^{60}\text{Co} \text{ に対して,} \\
 C_L(z; t_1) = \int_0^{t_1} \frac{\alpha\alpha(\frac{1}{h} + \frac{1}{R})}{\sqrt{\pi(t_1-t_2)D_z}} \left\{ \frac{1}{\lambda}(t_2 - \frac{1}{\lambda}) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \\
 \times \exp\{-\frac{z^2}{4(t_1-t_2)D_z} - \lambda(t_1-t_2)\} dt_2 \quad (2-31)
 \end{aligned}$$

ここに $C_L(z, t_1)$ は時刻 t_1 における深さ z 点での線濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{m}$) を表わしている。
 。表面混合層と境界 H 面 (海底から H m の深さ) を通しての, 時刻 t_1 における放射能核種の拡散フラックス $F(H, t_1)$ は次式で与えられる。

$$F(H; t) = -D_z \frac{\partial C}{\partial z} \Big|_{z=H} \quad (2-32)$$

${}^{137}\text{Cs}$, ${}^{60}\text{Co}$ 両核種のフラックスはそれぞれ次のようになる。

$$\begin{aligned}
 {}^{137}\text{Cs} \\
 F(H, t_1) = \int_0^{t_1} \frac{aD_C H}{\sqrt{\pi D_z (t_1-t_2)^3}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{D_C\beta_n^2 + \lambda R^2} \left\{ t_2 - \frac{R^2}{D_C\beta_n^2 + \lambda R^2} \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{D_C\beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2} t_2\right) \right\} \right\} \exp\left\{-\frac{H^2}{4(t_1-t_2)D_z} - \lambda(t_1-t_2)\right\} dt_2 \quad (2-33)
 \end{aligned}$$

時刻 $t=0 \sim t_0$ までに混合層に浸入した総フラックス $F(H, t_0)$ (μCi) は, その間の放射能崩壊による自己減衰を考慮すると次式で与えられる。

$$F(H; t_1) = \int_0^{t_1} F(H; t_1) \exp\{-\lambda(t_0-t_1)\} dt_1 \quad (2-34)$$

同様に, ^{60}Co に対して,

$$F(H;t) = \int_0^{t_1} \frac{\alpha \alpha (\frac{1}{h} + \frac{1}{R}) H}{\sqrt{\pi} D_z (t_1 - t_2)^{3/2}} \left\{ \frac{1}{\lambda} (t_2 - \frac{1}{\lambda}) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \exp\left[-\frac{H^2}{4(t_1 - t_2) D_z} - \lambda(t_1 - t_2)\right] dt_2 \quad (2-35)$$

混合層の体積を $V(\text{m}^3)$ で表わすとすると, 両核種とも, 平均濃度 $C(t_0)$ は次式で与えられる。

$$C(t_0) = F(H;t_0)/V \quad (2-36)$$

3-3 計算結果および考察

放射性廃棄物の深海投棄処分起因する人間の放射線被曝は, 海洋における表層海水からと, 表層に生ずる汚染生物の摂取によるもの等があるが, 量的には後者の経路がより支配的である。いずれにせよ, 海水中の放射能濃度の予測が全ての影響評価を行う上に必要は第一の手続である。

Table 2-2 Value of Parameters Used for Calculation

Parameters	Nuclides	
	Cs-137	Co-60
λ (1/day)	6.33×10^{-5}	3.61×10^{-4}
a (Ci/day^2)	3.75×10^3	7.51×10^4
D_c (cm^2/sec)	3.4×10^{-8}	-
α (cm/day)	-	2.0×10^{-6}
D_x (cm^2/sec)	1000	
D_y (cm^2/sec)	1000	
D_z (cm^2/sec)	2, 20, 100, 200	
H (m)	2000, 4000	
R (m)	0.28	
h (m)	0.86	

ここで計算に用いられたパラメータの値は Table 2-2 にまとめられている。なお, 太平洋の広さは $15000\text{km} \times 8000\text{km}$ の長方形と仮定し, 表層の混合深さは 100m とした。計算に用いられたパラメータの内, 核種の浸出に関しては, これまでに得られている文献のデータ⁽⁵⁾によった。廃棄物の投棄地点の海洋深度は, 表中に示されているように, わが国の法律で許容された深さの 2000m と, 太平洋の平均深度 4000m と

と送った。投棄地点深度による表層深度に及ぼす影響を検討するためである。パラメーターのうち、値を推定するのが最も困難なものは、海洋における拡散係数である。特に深層における水平方向の拡散係数は全くデータがないので、深層部の水塊は表層に比べて安定しているということから、表層の実測データより大きくなることはないだろうという仮定のもとに、 D_x 、 D_y とともに $10^3 \text{ cm}^2/\text{sec}$ という値と仮定した。 D_z には例えば角首⁽²¹⁾は ^{14}C および ^{226}Ra の鉛直分布から $1\sim 2 \text{ cm}^2/\text{sec}$ という値を報告している。それ以前には Munk や Craig は ^{14}C の測定値から、それぞれ 1.3 および $2.2 \text{ cm}^2/\text{sec}$ という小さい値を出している。一方 Miyake らは核実験によって生成した ^{90}Y や ^{137}Cs の水深 $2000\sim 4000 \text{ m}$ における鉛直分布から $200 \text{ cm}^2/\text{sec}$ という値を報告しており、鉛直方向の拡散係数の見積りは広い範囲にわたっている。ここでは $2\sim 200 \text{ cm}^2/\text{sec}$ の範囲で4通りの拡散係数について計算し、その影響の度合いを比較・検討した。

計算にあたっては、二重積分の内側の数値積分は Gauss-Regendre の方法と Simpson 法とを比較した所、精度的には両者はほとんど差はなかったが、計算時間は前者が速いのでこれをとった。外側の積分は矩形近似した。計算機は京都大学大型計算機 Facom 230-75を使用した。

計算結果と ^{137}Cs については Table 2-3, Fig. 2-8, ^{60}Co については Table 2-4, Fig. 2-9 に示す。以下計算結果から得られる一般的な考察について述べるが、ここに言う最大濃度とは (2-27) および (2-28) 式で $x=y=0$, $z=2000 \text{ m}$, 又は 4000 m すなわち、深層部での水平方向の流れと考慮しない時、放射能廃棄物の投棄地点の直上点における濃度のことである。平均濃度とは (2-36) 式から求めたものである。

^{137}Cs について

表層での放射能濃度はパラメーターの値によって当然異なるが、計算した中で、最も厳しい条件 ($H=2000 \text{ m}$, $D_z=200 \text{ cm}^2/\text{sec}$) で見ると、平均濃度で、10年後には 10^{-5} pCi/l , 50年後で、 10^{-3} pCi/l , 100年後では、 10^{-2} pCi/l のオーダーとなる。しかし最大濃度では、特に深層部での湧昇流を考えなくとも10年後に、 10 pCi/l , 50年後で、 100 pCi/l , 100年後にはさらにその数倍まで高くなる可能性が予想される。しかし、そのような高濃地点は極めて限られた狭い範囲となるであろう。濃度の増加

速度は、当然、初期の項程著しいが、50年以後ではゆるやかに増加する。廃棄物の投棄地点深度が4000mの場合と、2000mの場合とを比較すると数倍後者の方が、濃度は高くなる。鉛直方向の拡散係数 D_z の予測濃度に及ぼす影響について見ると、投棄開始後、初期の頃には、オーダーが大きく変る程の強い影響を受けるが、50年以後では、 D_z が100および $200\text{cm}^2/\text{sec}$ の場合、濃度はほとんど変らず、 $D_z = 20\text{cm}^2/\text{sec}$ では1オーダー、小さくなり、 $D_z = 2\text{cm}^2/\text{sec}$ と仮定した場合には数オーダー以上も小さく予測される。このことは、実際の投棄海域における正確な拡散係数を測定することの重要性を示唆している。

Fig.2-8は100年後の海表面における水平方向の濃度分布をプロットしたものを示している。これによると、原点から水平方向に30km以上離れた地点では、 D_z が $20\text{cm}^2/\text{sec}$ 以上の値では、ほとんど濃度は変

Table 2-3 Activity Concentration of Cs-137 in the Surface Layer

H (m)	D_z (cm^2/sec)	t (year)	2	4	6	8	10	30	50	70	100
H = 4000	$D_z = 200$	Maximum Conc. (pCi/l)	1.3×10^{-3}	4.2×10^{-2}	1.9×10^{-1}	5.0×10^{-1}	9.6×10^{-1}	9.6×10^{-1}	3.4×10	5.9×10	1.0×10^2
		Average Conc. (pCi/l)	1.2×10^{-9}	9.3×10^{-8}	7.4×10^{-7}	2.9×10^{-6}	5.9×10^{-6}	3.5×10^{-4}	1.5×10^{-3}	3.3×10^{-3}	7.4×10^{-3}
H = 4000	$D_z = 100$	Maximum Conc. (pCi/l)	2.2×10^{-5}	3.9×10^{-3}	3.3×10^{-2}	1.2×10^{-1}	2.8×10^{-1}	6.8	2.0×10	3.8×10	6.7×10
		Average Conc. (pCi/l)	1.4×10^{-11}	6.5×10^{-9}	9.5×10^{-8}	5.4×10^{-7}	1.7×10^{-6}	1.6×10^{-4}	8.1×10^{-4}	2.0×10^{-3}	2.0×10^{-3}
H = 4000	$D_z = 20$	Maximum Conc. (pCi/l)	3.4×10^{-17}	1.6×10^{-9}	9.4×10^{-7}	2.9×10^{-5}	2.6×10^{-4}	2.7×10^{-1}	1.8	4.8	1.1×10
		Average Conc. (pCi/l)	7.3×10^{-24}	9.2×10^{-16}	1.1×10^{-12}	6.2×10^{-11}	7.6×10^{-10}	4.1×10^{-6}	5.4×10^{-5}	2.1×10^{-4}	6.7×10^{-4}
H = 4000	$D_z = 2$	Maximum Conc. (pCi/l)	-	3.2×10^{-72}	4.5×10^{-48}	1.1×10^{-36}	9.0×10^{-30}	9.0×10^{-11}	1.0×10^{-6}	6.7×10^{-5}	1.7×10^{-3}
		Average Conc. (pCi/l)	-	-	4.0×10^{-78}	3.6×10^{-55}	4.0×10^{-43}	3.3×10^{-16}	9.9×10^{-12}	1.1×10^{-9}	4.7×10^{-8}
H = 2000	$D_z = 200$	Maximum Conc. (pCi/l)	1.1×10^{-1}	8.3×10^{-1}	2.3	4.3	6.9	5.4	1.2×10^2	1.8×10^2	3.1×10^2
		Average Conc. (pCi/l)	8.3×10^{-8}	1.4×10^{-6}	6.0×10^{-6}	1.6×10^{-5}	3.3×10^{-5}	7.9×10^{-4}	2.8×10^{-3}	5.9×10^{-3}	1.2×10^{-2}
H = 2000	$D_z = 100$	Maximum Conc. (pCi/l)	2.4×10^{-2}	3.2×10^{-1}	1.1	2.3	4.0	3.9	9.3×10	1.5×10^2	2.5×10^2
		Average Conc. (pCi/l)	1.5×10^{-8}	4.6×10^{-7}	2.5×10^{-6}	7.6×10^{-6}	1.7×10^{-5}	5.5×10^{-4}	2.2×10^{-3}	4.7×10^{-3}	9.5×10^{-3}
H = 2000	$D_z = 20$	Maximum Conc. (pCi/l)	1.1×10^{-5}	3.6×10^{-3}	3.8×10^{-2}	1.5×10^{-1}	3.8×10^{-1}	1.1	3.6×10	6.7×10	1.2×10^2
		Average Conc. (pCi/l)	3.1×10^{-12}	2.0×10^{-10}	5.0×10^{-9}	3.1×10^{-8}	1.1×10^{-6}	1.3×10^{-4}	6.7×10^{-4}	1.7×10^{-3}	4.1×10^{-3}
H = 2000	$D_z = 2$	Maximum Conc. (pCi/l)	1.1×10^{-35}	5.8×10^{-19}	3.9×10^{-13}	4.1×10^{-10}	3.0×10^{-8}	1.0×10^{-1}	2.3×10^{-1}	1.0	3.5
		Average Conc. (pCi/l)	5.0×10^{-43}	7.4×10^{-26}	1.0×10^{-19}	2.2×10^{-16}	2.4×10^{-14}	5.8×10^{-8}	2.4×10^{-6}	1.6×10^{-5}	8.6×10^{-5}

らず、100 km も離れると6~7
 オーダーも濃度は低くなる。
 このことは、言う迄もなく水平
 方向の拡散係数のとり方によっ
 て異なるものであるが、比較的
 狭い範囲に放射能のホットエリ
 アが現われる可能性を示すもの
 で、そこが漁場にあたることが
 ないよう、投棄地点から表層
 までの水塊の挙動についての十
 分な調査、観測が必要とされよ
 う。

^{60}Co について

全般的な特徴は ^{137}Cs の場
 合とほぼ同じである。 $H = 2000$
 m , $D_z = 200 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 場合で、10
 年後の最大濃度は 10^{-1} pCi/l ,
 平均濃度は 10^{-6} pCi/l , 50
 年後でそれぞれ 10^0 , 10^{-5}
 pCi/l のオーダーとなる。

Fig. 2-9に ^{60}Co の海表面における水平方向の濃度分布を示している。これにつ
 いて見ると、 ^{137}Cs の場合よりも傾向は著しく、 D_z が $20 \text{ cm}^2/\text{sec}$ 以上については
 20 30km以上離れると濃度はほとんど変わらず、 $D_z = 2 \text{ cm}^2/\text{sec}$ の値をとった場合も、
 わずか50 kmも離れると、 D_z 値による濃度差ははるく、濃度減少の勾配から判断すると
 、むしろ原点から遠くへ離れると、 D_z が小さい程、濃度は高くなる。試算に用いた
 パラメーターの値では、 D_z の値 $2 \sim 200 \text{ cm}^2/\text{sec}$ に比べ水平方向の拡散係数の値 D_x
 ($1000 \text{ cm}^2/\text{sec}$) が大きいため、このような結果が得られた。拡散係数の値の選び
 方によっては、もっと著しい傾向が現われるであろう。ある一定の基準放射能濃度以

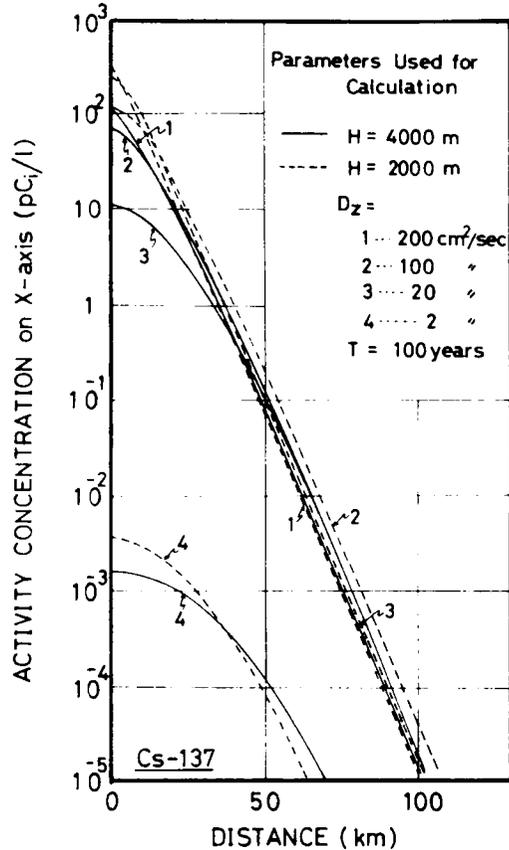


Fig. 2-8 Concentration Distribution of Cs-137 at the Surface of the Ocean

上になる汚染海域以上の広さは、水平および鉛直方向の拡散係数の選択のしちに依存することに留意しなければならない。

次に、同じ値のパラメータの組み合わせについて、 ^{137}Cs と ^{60}Co とを平均濃度で比較すると、投棄された廃棄物中に含まれる放射性核種量は、 ^{60}Co の方が ^{137}Cs よりも20倍多いにもかかわらず、 ^{137}Cs の濃度の方が、1~2オーダー以上も高くなっている。これは ^{60}Co のセメント固化体からの浸出性が ^{137}Cs に比べて、極めて遅いことと、半減期が短かいためにより自己崩壊による放射性能の減少が起っているためと考えられる。このことは、固化体からの放射性核種の浸出性と技術的に少なくする方を講じることの有効性を示唆している。投棄地点の深さについて2000 mと4000 mでは、

Table 2-4 Activity Concentration of Co-60 in the Surface Layer

H (m)	t (year)	5	10	20	30	50	70	100
$D_z = 4000$	Maximum Conc. (pCi/l)	1.3×10^{-3}	1.5×10^{-2}	8.5×10^{-2}	1.9×10^{-1}	4.1×10^{-1}	6.4×10^{-1}	9.8×10^{-1}
	Average Conc. (")	7.0×10^{-9}	1.8×10^{-7}	2.0×10^{-6}	5.6×10^{-6}	1.6×10^{-5}	2.7×10^{-5}	4.4×10^{-5}
$D_z = 100$	Maximum Conc. (")	1.5×10^{-4}	3.5×10^{-3}	3.0×10^{-2}	7.5×10^{-2}	1.8×10^{-1}	2.9×10^{-1}	4.5×10^{-1}
	Average Conc. (")	6.2×10^{-10}	3.6×10^{-8}	6.5×10^{-7}	2.2×10^{-6}	6.9×10^{-6}	1.2×10^{-5}	2.0×10^{-5}
$D_z = 4000$	Maximum Conc. (")	2.3×10^{-12}	2.0×10^{-6}	2.2×10^{-4}	1.3×10^{-3}	5.2×10^{-3}	1.0×10^{-2}	1.7×10^{-2}
	Average Conc. (")	2.3×10^{-18}	8.0×10^{-12}	3.2×10^{-9}	2.8×10^{-8}	1.8×10^{-7}	4.0×10^{-7}	7.5×10^{-7}
$D_z = 4000$	Maximum Conc. (")	-	1.7×10^{-53}	3.1×10^{-27}	1.3×10^{-18}	5.6×10^{-12}	1.9×10^{-9}	6.0×10^{-8}
	Average Conc. (")	-	7.2×10^{-60}	6.5×10^{-33}	5.4×10^{-24}	6.0×10^{-17}	3.6×10^{-14}	1.9×10^{-12}
$D_z = 2000$	Maximum Conc. (pCi/l)	2.8×10^{-2}	1.5×10^{-1}	5.9×10^{-1}	1.1	2.3	3.5	5.2
	Average Conc. (")	9.8×10^{-8}	1.1×10^{-6}	7.4×10^{-6}	1.8×10^{-5}	4.4×10^{-5}	6.7×10^{-5}	1.1×10^{-4}
$D_z = 100$	Maximum Conc. (")	1.1×10^{-2}	8.2×10^{-2}	3.7×10^{-1}	7.4×10^{-1}	1.5	2.4	3.6
	Average Conc. (")	3.6×10^{-8}	5.4×10^{-7}	4.4×10^{-6}	1.1×10^{-5}	3.0×10^{-5}	4.9×10^{-5}	7.3×10^{-5}
$D_z = 2000$	Maximum Conc. (")	1.5×10^{-4}	4.6×10^{-3}	4.5×10^{-2}	1.1×10^{-1}	2.9×10^{-1}	4.7×10^{-1}	7.3×10^{-1}
	Average Conc. (")	2.8×10^{-10}	2.2×10^{-8}	4.6×10^{-7}	1.6×10^{-6}	5.3×10^{-6}	9.5×10^{-6}	1.6×10^{-5}
$D_z = 2000$	Maximum Conc. (")	3.0×10^{-26}	1.5×10^{-12}	2.9×10^{-7}	2.6×10^{-5}	2.8×10^{-4}	7.0×10^{-4}	1.4×10^{-3}
	Average Conc. (")	5.4×10^{-33}	1.3×10^{-19}	9.9×10^{-13}	2.1×10^{-10}	4.0×10^{-9}	1.8×10^{-8}	2.9×10^{-8}

D_z の値が入さい ($20 \sim 200 \text{ cm}^2/\text{sec}$) と、濃度は数倍から稍々1オーダーしか違わないが、 D_z の値を $2 \text{ cm}^2/\text{sec}$ と小さくとると、数オーダー以上の差が生ずると予想される。

ここでの試算は、海洋における深層部での海流を無視したり、海洋構造を最も単純化して考える等、また平均濃度を計算する場合には、表面混合層に入った放射能は放射能崩壊による自己減衰以外には、濃度の減少は起らないというような、単純化した仮定をしておき、それらに関しては安全側に濃度推定を行っている。しかし、現在なお深海における水塊の挙動についての知見は乏しく、特に着しい湧昇流が起った場合には、試算によって得られた値以上のホットスポットが現われる可能性もあるので、十分安全側に見積もっておくことが必要であろう。

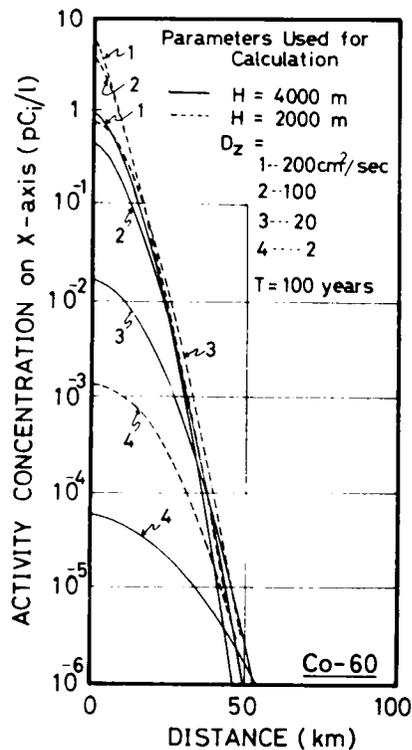


Fig. 2-9 Concentration Distribution of Co-60 at the Surface of the Ocean

第4節 感度解析によるパラメータの不確定性の評価

4-1 はじめに

(2-34) 式や (2-36) 式に見られるように、環境汚染を評価するための状態変数は、非常に多くのパラメータを含む関数で表わされている。これらのパラメータの値は厳密に決定されるものではなく、むしろ大部分のものは種々の環境要因によって支配されやすく、極めて不確定な要素を内在している。このようなパラメータの不確

定性や変動が状態変数に及ぼす影響の度合は一律ではなく、状態変数を表わすシステムの構造によって異なるものである。システムパラメーターの変動によって状態変数がどのような変動を受けるか、すなわちシステムの構造安定性を知ることは、環境汚染を評価する上に重要なことである。汚染評価上、影響の小さいパラメーターを考慮から除外し、環境汚染を効率よく評価する上に役立つだけでなく、逆に環境汚染を低減化するための有効な手段を講じることにも可能となる。このような評価測度を定量化する方法として、感度解析が有効である。^(25, 26)

4-2 感度式の導出

状態変数を表わす関数に含まれるパラメーターの値の微小変動によって状態変数の解軌道がどのような変動をするか、その程度を評価するが感度解析であり、その感度は一般に次式で定義される。

$$S_{k_i}^{X_i} = \frac{\partial \ln X_i}{\partial \ln k_i} = \frac{X_i}{k_i} \cdot \frac{k_i}{X_i} \quad (2-37)$$

ここに、 $S_{k_i}^{X_i}$ は状態変数 X_i のシステムパラメーター k_i に対する感度、 $\partial X_i / \partial k_i$ は感度係数である。

^{137}Cs については、(2-34) 式に含まれるパラメーターのうち、人為的に選択可能な固化体の半径 R 、固化体内の拡散係数 D_c 、海洋中の鉛直方向の拡散係数 D_z 、投棄地点の海底からの深さ H の4つのパラメーターについて感度を計算する。また ^{60}Co についても(2-36)式中のパラメーターのうち、 ^{137}Cs の場合と同様に R 、 D_z 、 H および固化体の高さ h について計算する。以下、それぞれのパラメーターについての感度係数を表わす関数を列記する。なお、 α の値や、 ^{60}Co の溶離速度定数 λ も人為的に変えることができるが、(2-27)、(2-28) 式から明らかのように、これらは濃度 C に対して線型比例するので、感度は常に1になる。

4-2-1 ^{137}Cs の場合

① 固化体の半径 R の感度係数

$$\frac{\partial C(t_0)}{\partial R} = \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \left[\int_0^{t_1} \frac{aD_c H}{\sqrt{\pi D_z (t_1 - t_2)}^3} \exp\left\{-\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2)\right\} \right. \\ \left. \times \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{\partial F_1}{\partial R} \right) dt_2 \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_1, \quad (2-38)$$

ここに,

$$\frac{\partial F_1}{\partial R} = \frac{2}{(D_c \beta_n^2 + \lambda R^2)^2} \left[\lambda R t_2 - \frac{R(D_c \beta_n^2 - \lambda R^2)}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} + \left\{ \frac{R(D_c \beta_n^2 - \lambda R^2)}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} + \frac{D_c \beta_n^2}{R} \right\} \right. \\ \left. \times \exp\left\{-\frac{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2} t_2\right\} \right].$$

② 固体体内拡散係数 D_c の感度係数

$$\frac{\partial C(t_0)}{\partial D_c} = \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \left[\int_0^{t_1} \frac{aH}{\sqrt{\pi D_z (t_1 - t_2)}^3} \exp\left\{-\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2)\right\} \right. \\ \left. \times \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{\partial F_2}{\partial D_c} \right) dt_2 \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_1, \quad (2-39)$$

ここに,

$$\frac{\partial F_2}{\partial D_c} = \frac{1}{(D_c \beta_n^2 + \lambda R^2)^2} \left[\lambda R^2 t_2 - R^2 (\lambda R^2 - D_c \beta_n^2) + \right. \\ \left. \left\{ \frac{R^2 (\lambda R - D_c \beta_n^2)}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} - D_c \beta_n^2 t_2 \right\} \exp\left\{-\frac{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2} t_2\right\} \right].$$

③ 投棄深度 H の感度係数

$$\frac{\partial C(t_0)}{\partial H} = \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \int_0^{t_1} \frac{aD_c}{\sqrt{\pi D_z (t_1 - t_2)}^3} \left(\frac{\partial F_3}{\partial H} \right) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \left[t_2 - \frac{R^2}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \right. \\ \left. \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2} t_2\right) \right\} \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_2 dt_1, \quad (2-40)$$

ここに,

$$\frac{\partial F_3}{\partial H} = \left\{ 1 - \frac{H^2}{2(t_1 - t_2)D_z} \right\} \exp\left\{ -\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2) \right\}$$

④ 海洋における鉛直拡散係数 D_z の感度係数

$$\begin{aligned} \frac{\partial C(t_0)}{\partial D_z} &= \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \int_0^{t_1} \frac{\alpha D_z H}{\sqrt{\pi D_z (t_1 - t_2)}^3} \left(\frac{\partial F_4}{\partial D_z} \right) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \left[t_2 - \frac{R^2}{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2} \right. \\ &\quad \left. \times \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{D_c \beta_n^2 + \lambda R^2}{R^2} t_2 \right) \right\} \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_2 dt_1 \end{aligned} \quad (2-41)$$

ここに,

$$\frac{\partial F_4}{\partial D_z} = \frac{1}{2\sqrt{D_z^3}} \left\{ \frac{H^2}{2(t_1 - t_2)D_z} - 1 \right\} \exp\left\{ -\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2) \right\}$$

4-2-2 60°C の場合

① R の感度係数

$$\begin{aligned} \frac{\partial C(t_0)}{\partial R} &= \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \left[\int_0^{t_1} \frac{-\alpha k H}{4\sqrt{\pi D_z (t_1 - t_2)}^3 R^2} \left\{ \frac{1}{\lambda} \left(t_2 - \frac{1}{\lambda} \right) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \right. \\ &\quad \left. \times \exp\left\{ -\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2) \right\} dt_2 \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_1 \end{aligned} \quad (2-42)$$

② 固相体の高さ h の感度係数

$$\begin{aligned} \frac{\partial C(t_0)}{\partial h} &= \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \left[\int_0^{t_1} \frac{-\alpha k H}{4\sqrt{\pi D_z (t_1 - t_2)}^3 h^2} \left\{ \frac{1}{\lambda} \left(t_2 - \frac{1}{\lambda} \right) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \right. \\ &\quad \left. \times \exp\left\{ -\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2) \right\} dt_2 \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_1 \end{aligned} \quad (2-43)$$

③ D_z の感度係数

$$\frac{\partial C(t_0)}{\partial D_z} = \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \left[\int_0^{t_1} \frac{\alpha k \left(\frac{1}{h} + \frac{1}{R} \right) H}{4\sqrt{\pi} (t_1 - t_2)^3} \left\{ \frac{1}{\lambda} (t_2 - \frac{1}{\lambda}) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \right. \\ \left. \times \left(\frac{\partial F_1}{\partial D_z} \right) dt_2 \right] \exp\{-\lambda(t_0 - t_1)\} dt_1 \quad (2-44)$$

ここに,

$$\frac{\partial F_1}{\partial D_z} = \frac{1}{2\sqrt{D_z^3}} \left\{ \frac{H^2}{2(t_1 - t_2)D_z} - 1 \right\} \exp\left\{ -\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2) \right\}$$

④ H の感度係数

$$\frac{\partial C(t_0)}{\partial H} = \frac{1}{V} \int_0^{t_0} \left[\int_0^{t_1} \frac{\alpha k \left(\frac{1}{h} + \frac{1}{R} \right)}{4\sqrt{\pi} D_z (t_1 - t_2)^3} \left\{ \frac{1}{\lambda} (t_2 - \frac{1}{\lambda}) + \frac{1}{\lambda^2} e^{-\lambda t_2} \right\} \right. \\ \left. \left(\frac{\partial F_2}{\partial H} \right) dt_2 \right] \cdot \exp -\lambda(t_0 - t_1) dt_1 \quad (2-45)$$

ここに,

$$\frac{\partial F_2}{\partial H} = \left\{ 1 - \frac{H^2}{2(t_1 - t_2)D_z} \right\} \exp\left\{ -\frac{H^2}{4(t_1 - t_2)D_z} - \lambda(t_1 - t_2) \right\}$$

4-3 計算結果および考察

^{137}Cs の計算結果を $H=4000\text{m}$ の場合について Tables 2-5~2-8 に示す。表中の数字で、深さ H の感度の値が負になっているのは、濃度関数が H に関して減少関数である事を表わしている。言うまでもなく、投棄深度を深くする程、表層での濃度は小さくなる。感度解析の結果は、表層での放射能濃度の変化から大を予想される通りである。一般に、投棄地点深度が 2000m 、 4000m いずれの場合も、投棄開始 30 年経過後では、絶対値で比較すると深さ H の感度が最も大きく、それも D_z の値が小さい程、強く影響することがわかる。次いで同心体の半径 R 、鉛直方向の拡散係数 D_z 、同心体中の拡散係数 D_0 の順序に感度の値は小さくなっていくが、投棄開始直後、10 年未満位までは D_0 の感度が最も大きく、時間とともに小さくなっていく。また D_z の値が大きい時には、 R の感度は大差なくなり、100 年後では 1 オーダーしか違わない。

Table 2-5 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Cs-137

t (year)	2	4	6	8	10	30	50	70	100
R Sensitivity Coeff.	3.0×10^{-6}	1.5×10^{-4}	9.9×10^{-4}	3.3×10^{-3}	7.5×10^{-3}	2.2×10^{-1}	7.7×10^{-1}	1.6	3.0
R Sensitivity	7.5	4.6	3.7	3.2	2.9	1.9	1.5	1.3	1.2
D _C Sensitivity Coeff.	3.5×10	5.8×10^2	2.0×10^3	4.3×10^3	7.3×10^3	7.9×10^4	2.3×10^5	4.5×10^5	8.8×10^5
D _C Sensitivity	1.3×10^2	2.7×10	1.2×10	6.4	4.5	9.8×10^{-1}	6.9×10^{-1}	5.8×10^{-1}	5.2×10^{-1}
H Sensitivity Coeff.	-2.9×10^{-10}	-1.4×10^{-8}	-8.7×10^{-8}	-2.8×10^{-7}	-6.2×10^{-7}	-1.6×10^{-5}	-5.2×10^{-5}	-1.1×10^{-4}	-2.0×10^{-4}
H Sensitivity	-9.8	-5.8	-4.6	-3.8	-3.4	-1.8	-1.4	-1.2	-1.0
D _Z Sensitivity Coeff.	3.3×10^{-10}	1.8×10^{-8}	9.9×10^{-8}	3.2×10^{-7}	7.0×10^{-7}	1.8×10^{-5}	5.9×10^{-5}	1.2×10^{-4}	2.3×10^{-4}
D _Z Sensitivity	4.9	3.0	2.3	1.9	1.7	8.7×10^{-1}	6.9×10^{-1}	6.4×10^{-1}	5.3×10^{-1}

H = 4000 m , D_Z = 200 cm²/sec

Table 2-6 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Cs-137

t (year)	2	4	6	8	10	30	50	70	100
R Sensitivity Coeff.	4.5×10^{-8}	1.2×10^{-5}	1.4×10^{-4}	6.7×10^{-4}	1.9×10^{-3}	1.1×10^{-1}	4.4×10^{-1}	9.7×10^{-1}	2.0
R Sensitivity	9.0	5.2	4.0	3.5	3.1	2.0	1.5	1.4	1.2
D _C Sensitivity Coeff.	8.1×10^{-1}	6.5×10	3.9×10^2	1.1×10^3	2.3×10^3	4.1×10^4	1.3×10^5	2.8×10^5	5.7×10^5
D _C Sensitivity	2.6×10^2	4.4×10	1.7×10	9.3	5.9	1.1	7.2×10^{-1}	6.0×10^{-1}	5.2×10^{-1}
H Sensitivity Coeff.	-5.9×10^{-12}	-1.6×10^{-9}	-1.8×10^{-8}	-8.3×10^{-8}	-2.3×10^{-7}	-1.1×10^{-5}	-4.2×10^{-5}	-9.0×10^{-5}	-1.8×10^{-4}
H Sensitivity	-1.6x10	-9.7	-7.3	-6.0	-5.2	-2.7	-2.1	-1.7	-1.5
D _Z Sensitivity Coeff.	1.3×10^{-11}	3.7×10^{-9}	4.2×10^{-8}	1.9×10^{-7}	5.1×10^{-7}	2.5×10^{-5}	9.5×10^{-5}	2.0×10^{-4}	4.2×10^{-4}
D _Z Sensitivity	8.2	4.9	3.7	3.0	2.5	1.4	1.0	8.7×10^{-1}	7.5×10^{-1}

H = 4000 m , D_Z = 100 cm²/sec

Table 2-7 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Cs-137

t (year)	2	4	6	8	10	30	50	70	100
R	Sensitivity Coeff.	5.5×10^{-22}	2.8×10^{-14}	2.3×10^{-11}	1.0×10^{-9}	1.1×10^{-8}	3.2×10^{-5}	3.3×10^{-4}	1.1×10^{-3}
	Sensitivity	2.1x10	8.7	5.8	4.7	4.1	2.3	1.7	1.5
D _c	Sensitivity Coeff.	3.6×10^{-14}	5.0×10^{-7}	1.8×10^{-4}	4.3×10^{-3}	3.3×10^{-2}	1.7x10	1.1×10^2	3.3×10^2
	Sensitivity	2.1×10^3	2.4×10^2	7.5x10	3.4x10	1.9x10	1.9	9.3×10^{-1}	6.9×10^{-1}
H	Sensitivity Coeff.	-1.2×10^{-25}	-8.4×10^{-18}	-7.0×10^{-15}	-3.1×10^{-13}	-3.2×10^{-12}	-7.7×10^{-9}	-7.2×10^{-8}	-2.3×10^{-7}
	Sensitivity	-6.4x10	-3.6x10	-2.5x10	-2.0x10	-1.6x10	-7.5	-5.3	-4.4
D _z	Sensitivity Coeff.	1.4×10^{-24}	9.5×10^{-17}	7.9×10^{-14}	3.5×10^{-12}	3.6×10^{-11}	8.6×10^{-8}	8.2×10^{-7}	2.6×10^{-6}
	Sensitivity	3.3x10	1.8x10	1.3x10	9.8	8.1	3.6	2.7	2.2

H = 4000 m , D_z = 20 cm²/sec

Table 2-8 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Cs-137

t (year)	2	4	6	8	10	30	50	70	100
R	Sensitivity Coeff.	-	7.4×10^{-76}	2.8×10^{-53}	1.9×10^{-41}	1.4×10^{-34}	4.3×10^{-15}	9.2×10^{-11}	8.4×10^{-9}
	Sensitivity	-	5.2x10	2.2x10	1.3x10	1.0x10	3.7	2.7	2.1
D _c	Sensitivity Coeff.	-	9.6×10^{-68}	1.9×10^{-45}	7.3×10^{-34}	3.5×10^{-27}	1.0×10^{-8}	8.0×10^{-5}	4.3×10^{-3}
	Sensitivity	-	1.0×10^4	2.3×10^3	8.1×10^2	3.8×10^2	1.3x10	3.6	1.7
H	Sensitivity Coeff.	-	-3.2×10^{-79}	-1.9×10^{-56}	-1.6×10^{-44}	-1.3×10^{-37}	-3.8×10^{-18}	-7.3×10^{-14}	-6.2×10^{-12}
	Sensitivity	-	-3.1×10^2	-2.1×10^2	-1.6×10^2	-1.3×10^2	-4.5x10	-2.9x10	-2.2x10
D _z	Sensitivity Coeff.	-	3.6×10^{-77}	2.2×10^{-54}	1.8×10^{-42}	1.5×10^{-35}	4.3×10^{-16}	8.3×10^{-12}	7.0×10^{-10}
	Sensitivity	-	1.6×10^2	1.0×10^2	8.1x10	6.4x10	2.3x10	1.4x10	1.1x10

H = 4000 m , D_z = 2 cm²/sec

Table 2-9 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Co-60

t (year)	5	10	20	30	50	70	100
Sensitivity Coeff.	-1.9×10^{-8}	-4.8×10^{-7}	-5.4×10^{-6}	-1.5×10^{-5}	-4.3×10^{-5}	-7.3×10^{-5}	-1.2×10^{-4}
Sensitivity	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75
Sensitivity Coeff.	-2.0×10^{-9}	-5.1×10^{-8}	-5.7×10^{-7}	-1.6×10^{-6}	-4.6×10^{-6}	-7.7×10^{-6}	-1.3×10^{-5}
Sensitivity	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25
Sensitivity Coeff.	2.2×10^{-11}	3.8×10^{-10}	3.0×10^{-9}	7.4×10^{-9}	1.8×10^{-8}	3.0×10^{-8}	4.7×10^{-8}
Sensitivity	5.5	3.7	2.6	2.3	2.0	1.9	1.9
Sensitivity Coeff.	-2.0×10^{-8}	-3.7×10^{-7}	-3.2×10^{-6}	-8.2×10^{-6}	-2.1×10^{-5}	-3.5×10^{-5}	-5.5×10^{-5}
Sensitivity	-1.1×10^4	-8.1×10^3	-6.3×10^3	-5.7×10^3	-5.2×10^3	-5.0×10^3	-5.0×10^3

H = 4000 m, $D_z = 200 \text{ cm}^2/\text{sec}$

Table 2-10 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Co-60

t (year)	5	10	20	30	50	70	100
Sensitivity Coeff.	-1.7×10^{-9}	-9.7×10^{-8}	-1.8×10^{-6}	-5.9×10^{-6}	-1.9×10^{-5}	-3.2×10^{-5}	-5.4×10^{-5}
Sensitivity	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75
Sensitivity Coeff.	-1.8×10^{-10}	-1.0×10^{-8}	-1.9×10^{-7}	-6.3×10^{-7}	-2.0×10^{-6}	-3.4×10^{-6}	-5.7×10^{-6}
Sensitivity	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25
Sensitivity Coeff.	6.3×10^{-12}	2.4×10^{-10}	2.9×10^{-9}	8.3×10^{-9}	2.3×10^{-8}	3.8×10^{-8}	6.1×10^{-8}
Sensitivity	8.7	5.6	3.9	3.3	2.9	2.7	2.6
Sensitivity Coeff.	-1.3×10^{-9}	-5.3×10^{-8}	-7.0×10^{-7}	-2.1×10^{-6}	-5.9×10^{-6}	-1.0×10^{-6}	-1.6×10^{-5}
Sensitivity	-8.4×10^3	-5.7×10^3	-4.2×10^3	-3.7×10^3	-3.3×10^3	-3.2×10^3	-3.1×10^3

H = 4000 m, $D_z = 100 \text{ cm}^2/\text{sec}$

Table 2-11 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Co-60

t (year)	5	10	20	30	50	70	100
Sensitivity Coeff.	-6.2×10^{-18}	-2.2×10^{-11}	-8.6×10^{-9}	-7.5×10^{-8}	-4.8×10^{-7}	-1.1×10^{-6}	-2.0×10^{-6}
Sensitivity	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75
Sensitivity Coeff.	-6.6×10^{-19}	-2.3×10^{-12}	-9.0×10^{-10}	-8.0×10^{-9}	-5.1×10^{-8}	-1.1×10^{-7}	-2.1×10^{-7}
Sensitivity	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25
Sensitivity Coeff.	6.4×10^{-19}	1.0×10^{-12}	2.0×10^{-10}	1.4×10^{-9}	7.1×10^{-9}	1.4×10^{-8}	2.6×10^{-8}
Sensitivity	4.9x10	2.2x10	1.1x10	8.4	6.8	6.3	6.0
Sensitivity Coeff.	-5.0×10^{-18}	-6.7×10^{-12}	-1.7×10^{-9}	-1.2×10^{-8}	-6.2×10^{-8}	-1.3×10^{-7}	-2.3×10^{-7}
Sensitivity	-8.7×10^3	-3.2×10^3	-2.0×10^3	-1.6×10^3	-1.3×10^3	1.3×10^3	-1.2×10^3

H = 4000 m , $D_z = 20 \text{ cm}^2/\text{sec}$

Table 2-12 Sensitivity and Sensitivity Coefficient for Co-60

t (year)	5	10	20	30	50	70	100
Sensitivity Coeff.	-	-1.9×10^{-59}	-1.8×10^{-32}	-1.5×10^{-23}	-1.6×10^{-16}	-9.7×10^{-13}	-5.1×10^{-12}
Sensitivity	-	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75	-0.75
Sensitivity Coeff.	-	-2.1×10^{-60}	-1.9×10^{-33}	-1.5×10^{-24}	-1.7×10^{-17}	-1.0×10^{-14}	-5.4×10^{-13}
Sensitivity	-	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25	-0.25
Sensitivity Coeff.	-	1.0×10^{-48}	4.6×10^{-32}	2.5×10^{-23}	1.7×10^{-16}	2.7×10^{-14}	1.7×10^{-12}
Sensitivity	-	2.4×10^2	1.2×10^2	8.1x10	4.9x10	3.5x10	1.5x10
Sensitivity Coeff.	-	-7.8×10^{-60}	-3.5×10^{-33}	-2.0×10^{-24}	-1.3×10^{-17}	-5.7×10^{-15}	-2.1×10^{-13}
Sensitivity	-	-4.2×10^3	-2.1×10^3	-1.4×10^3	-8.6×10^2	-6.2×10^2	-4.4×10^2

H = 4000 m , $D_z = 2 \text{ cm}^2/\text{sec}$

D_2 の値が小さいと、初期の頃には、セメント固化体内の ^{137}Cs の拡散係数が、表面濃度にもっと強く影響を及ぼすので、この様な場合には、固化体からの核種に浸出するのをなるべく低減化するように工夫することが最も有効であることがわかる。

^{60}Co の計算結果を ^{137}Cs と同様に $H=4000\text{m}$ の場合について Tables 2-9-2-12 に示す。 ^{60}Co の場合には、感度の式から明らかのように、 R および固化体の高さ h の感度は経過時間にかかわらず一定である。ここで試算では固化体の半径 R の感度は h のそれの丁度3倍の値になっているが、このことは、表層の放射能濃度を減少させる手段として、固化体の形状を変える場合、 h を大きくするよりも、 R を大きくした方が倍の効果があることを示している。しかし、 $R=h$ のとき、両者の感度はともに -0.5 となって等しくなるので、それ以上 R を大きくすれば、今度は感度の大きさは逆転する。 R 、 h 、 D_2 等の感度に比べ、 H の感度がスエーデンオーダー以上も大きいので、固化体の形状に多少の変更を加えるよりも、投棄地点をなるべく深い所に確実に投棄するようにした方が、表層での放射能濃度を低下させるのに有効であることがわかる。

感度解析の計算結果は、表層での放射能濃度を低く抑えるためには、できる限り深い所に確実に固化廃棄物を投棄することが最も効果的であるとの一般的な常識を裏づけることとなった。しかし制御し得るパラメータの感度は、投棄開始後の経過年数によって異なるので、長期的な深海投棄処分の見通しのもとに、各核種の特性を総合的に考慮して、評価すべき時期における感度の値から固化体の処分の適切な方策を講じることが重要である。

第5節 被曝線量の試算

5-1 線量予測式

深海に投棄処分された放射性核種を表層における海水のサンプリングによりモニタリングすることは実際上不可能であるので、事前の十分な影響評価を行うことが重要である。ここでは第3節で求めた海洋表層における放射能濃度を基にして、汚染した水生生物の摂取による人間の被曝線量の試算をした。試算式は次式によった。

個人に対して,

$$D_I = D \frac{C_{sw} \times CF \times F_s}{(MPC)_w \times 2200} \quad [\text{rem/year}] \quad (2-46)$$

ここに	D_I :	個人の被曝線量率	[rem/year]
	D :	職業人に対する許容年線量率	[rem/year]
	C_{sw} :	海水中の放射性核種濃度	[$\mu\text{Ci}/\text{ml}$]
	CF :	海産生物の濃縮係数	[ml/g]
	$(MPC)_w$:	ICRP が勧告している飲料水中の最大許容濃度	[$\mu\text{Ci}/\text{ml}$]
	F_s :	1日あたりの海産物の摂取量	[g/day]
	2200 :	1日に飲用に供する水の量	[ml]

試算に用いたパラメータの値は次の通りである。

^{137}Cs に対して,

$$D = 5 \text{ [rem/year]} \quad CF = 10^2 \text{ [ml/g]}$$

$$F_s = 300 \text{ [g/day]} \quad (MPC)_w = 2 \times 10^{-4} \text{ [}\mu\text{Ci/ml]}$$

^{60}Co に対して,

$$D = 15 \text{ [rem/year]} \quad CF = 10^3 \text{ [ml/g]}$$

$$F_s = 300 \text{ [g/day]} \quad (MPC)_w = 5 \times 10^{-4} \text{ [}\mu\text{Ci/ml]}$$

CF の値は水産生物によって異なるが、安全側をとって大きい値を採用した。また R の値は一日あたりの蛋白質の必要量のすべてを海産食品から摂取するとして 330 g/day の値をとった。特定の個人については、最大濃度の汚染海域で獲れた海産物を摂取する可能性のあることを考慮して、 C_{sw} の値は最大濃度を選んだ。

次に、集団に対する線量率 D_p は、

$$D_p = N \cdot D_I \quad [\text{man-rem/year}] \quad (2-47)$$

で表わされる。ここに N は対象とする集団の人口である。この集団として日本人を対象とすると、 N の値にその人口をとると $N=10^8$ man となる。集団に対する R の値は、平均的な値を考えれば良いので、わが国の年間漁獲高から海産物の1人1日あたりの平均摂取量を求めることができる。すなわち、わが国の太平洋における年間漁獲高

は 880 ton で、その内、約 $\frac{2}{3}$ が食用に供されており、さらに可食率を 50% とすると、 F_s は次のように計算できる。

$$F_s = 880 \times 10^4 \times 10^6 \times \frac{2}{3} \times \frac{1}{2} \times \frac{1}{365} \times \frac{1}{10^8}$$

$$\approx 80 \quad [\text{gr./day}] \quad (2-48)$$

また、 C_{sw} には混合層における平均濃度を採った。

5-2 計算結果および考察

計算結果を Tables 2-13~2-16 に示す。投棄開始後しばらくの間は、特に重要な被曝線量になるとは考えられない。しかし長期にわたって投棄処分が続けられるなら、例えば最大濃度から計算した ^{137}Cs による個人に対する被曝線量が 0.1 rem/year になることが予想され、この値は現在法律で定められた公衆に対する線量限度の値に匹敵するものであり、海産物中に含まれる単一核種の摂取だけ、しかもわが国の原子力発電所から発生する放射性廃棄物の投棄だけで、この様な大きな値になり得る可能性のあることは注意を要する。しかしこのような最大濃度が現われる地点は、既に述べたように比較的狭い範囲に限られているので、これらの試算は平均的には過大値を与えることになろう。集団に対する被曝線量を考える時、ここでは日本の人口だけを対象としたが、太平洋全面に及ぶ平均濃度を考えているので、太平洋から海産物を捕獲し、利用している全ての国々を問題とし、海洋の放射能汚染からの割当線量等の国際的な議論、評価が行われることも必要となるであろう。

第6節 要約

本章における研究の主要な目的は、原子力発電所で生成される低レベル放射性廃棄物をセメント固化して、深海投棄処分した場合の影響評価を行うことである。⁽²⁸⁾ 先ず始めに、セメント固化体からの放射性核種の浸出特性を実験的に明らかにした。この実験の一部は従来の研究成果を追認することとなり、^(2, 4, 5, 11) セメント固化体の水・セメント比の増加は固化体の内部空隙率を高めることになり、また水温の上昇は分子運動を活発に

Table 2-13 Exposed Doses Calculated from Maximum Concentration of Cs-137 in the Surface Layer

t (year)		2	4	6	8	10	30	50	70	100	
Exposed Dose Rate (rem/year)	D_z (cm ² /sec)	2									
	H(m)	2000	2.0x10 ⁻³⁹	1.3x10 ⁻²²	1.3x10 ⁻¹⁶	1.4x10 ⁻¹³	1.0x10 ⁻¹¹	3.5x10 ⁻⁶	7.8x10 ⁻⁵	3.5x10 ⁻⁴	1.2x10 ⁻³
		4000	-	1.1x10 ⁻⁷⁵	1.5x10 ⁻⁵¹	3.8x10 ⁻⁴⁰	3.1x10 ⁻³³	3.6x10 ⁻¹⁰	2.3x10 ⁻⁸	5.6x10 ⁻⁷	
		20	3.8x10 ⁻⁹	1.2x10 ⁻⁶	1.3x10 ⁻⁵	5.1x10 ⁻⁵	1.3x10 ⁻⁴	3.9x10 ⁻³	1.2x10 ⁻²	2.3x10 ⁻²	4.1x10 ⁻²
		4000	1.2x10 ⁻²⁰	5.4x10 ⁻¹³	3x10 ⁻¹⁰	9.9x10 ⁻⁹	8.9x10 ⁻⁸	9.2x10 ⁻⁵	6.2x10 ⁻⁴	1.7x10 ⁻³	3.9x10 ⁻³
		100	8.3x10 ⁻⁶	1.1x10 ⁻⁴	3.7x10 ⁻⁴	7.9x10 ⁻⁴	1.4x10 ⁻³	1.3x10 ⁻²	3.2x10 ⁻²	5.3x10 ⁻²	8.4x10 ⁻²
		4000	7.6x10 ⁻⁹	1.3x10 ⁻⁶	1.1x10 ⁻⁵	4.0x10 ⁻⁵	9.5x10 ⁻⁵	2.3x10 ⁻³	6.9x10 ⁻³	1.3x10 ⁻²	2.3x10 ⁻²
		200	3.7x10 ⁻⁵	2.8x10 ⁻⁴	7.7x10 ⁻⁴	1.5x10 ⁻³	2.4x10 ⁻³	1.8x10 ⁻²	3.9x10 ⁻²	6.3x10 ⁻²	1.0x10 ⁻¹
		4000	4.4x10 ⁻⁷	1.4x10 ⁻⁵	6.6x10 ⁻⁵	1.7x10 ⁻⁴	3.3x10 ⁻⁴	4.5x10 ⁻³	1.2x10 ⁻²	2.0x10 ⁻²	3.5x10 ⁻²

Concentration Factor = 100, $F_s = 300$ gr/day

Table 2-14 Population Doses Calculated from Average Concentration of Cs-137 in the Surface Layer

t (year)		2	4	6	8	10	30	50	70	100	
Population Dose Rate (man-rem/y)	D_z (cm ² /sec)	2									
	H(m)	2000	4.6x10 ⁻³⁹	6.7x10 ⁻²²	9.1x10 ⁻¹⁶	2.0x10 ⁻¹²	2.2x10 ⁻¹⁰	4.6x10 ⁻⁴	2.2x10 ⁻²	1.5x10 ⁻¹	7.8x10 ⁻¹
		4000	-	3.6x10 ⁻⁷⁴	3.3x10 ⁻⁵¹	3.6x10 ⁻³⁹	3.6x10 ⁻³²	3.0x10 ⁻¹²	9.0x10 ⁻⁸	1.0x10 ⁻⁵	7.8x10 ⁻⁴
		20	2.8x10 ⁻⁸	1.8x10 ⁻⁶	4.6x10 ⁻⁵	2.8x10 ⁻⁴	1.0x10 ⁻²	1.2	6.1	1.6x10	3.7x10
		4000	6.6x10 ⁻²⁰	8.4x10 ⁻¹²	1.0x10 ⁻⁸	5.6x10 ⁻⁷	6.9x10 ⁻⁶	3.7x10 ⁻²	4.9x10 ⁻¹	1.9	6.1
		100	1.4x10 ⁻⁴	4.2x10 ⁻³	2.3x10 ⁻²	7.2x10 ⁻²	1.5x10 ⁻¹	5.0	2.0x10	4.3x10	8.6x10
		4000	1.3x10 ⁻⁷	5.9x10 ⁻⁵	8.6x10 ⁻⁴	4.9x10 ⁻³	1.5x10 ⁻²	1.5	7.4	1.8x10	4.4x10
		200	7.6x10 ⁻⁴	1.3x10 ⁻²	5.5x10 ⁻²	1.5x10 ⁻¹	3.0x10 ⁻¹	7.2	2.5x10	5.4x10	1.1x10 ²
		4000	1.1x10 ⁻⁵	8.5x10 ⁻⁴	6.7x10 ⁻³	2.6x10 ⁻²	5.4x10 ⁻²	3.2	1.4x10	3.0x10	6.7x10

$N = 10^8$ man, Concentration Factor = 100, $F_s = 80$ gr/day

Table 2-15 Exposed Doses Calculated from Maximum Concentration of Co-60 in the Surface Layer

t (year)		5	10	20	30	50	70	100
2	2000	1.2×10^{-28}	6.2×10^{-15}	1.2×10^{-9}	1.1×10^{-7}	1.1×10^{-6}	2.9×10^{-6}	5.7×10^{-6}
	4000	-	7.0×10^{-56}	1.3×10^{-29}	5.3×10^{-21}	2.3×10^{-14}	7.8×10^{-12}	2.5×10^{-10}
20	2000	6.2×10^{-7}	1.9×10^{-5}	1.8×10^{-4}	4.5×10^{-4}	1.2×10^{-3}	1.9×10^{-3}	3.0×10^{-3}
	4000	9.4×10^{-15}	8.2×10^{-9}	9.0×10^{-7}	5.3×10^{-6}	2.1×10^{-5}	4.1×10^{-5}	7.0×10^{-5}
100	2000	4.5×10^{-5}	3.4×10^{-4}	1.5×10^{-3}	3.0×10^{-3}	6.2×10^{-3}	9.8×10^{-3}	1.5×10^{-2}
	4000	6.2×10^{-7}	1.4×10^{-5}	1.2×10^{-4}	3.1×10^{-4}	7.4×10^{-4}	1.2×10^{-3}	1.8×10^{-3}
200	2000	1.1×10^{-4}	6.2×10^{-4}	2.4×10^{-3}	4.5×10^{-3}	9.4×10^{-3}	1.4×10^{-2}	2.1×10^{-2}
	4000	5.3×10^{-6}	6.2×10^{-5}	3.5×10^{-4}	7.8×10^{-4}	1.7×10^{-3}	2.6×10^{-3}	4.0×10^{-3}

Concentration Factor = 1000, $F_s = 300$ gr/day

Table 2-16 Population Doses Calculated from Average Concentration of Co-60 in the Surface Layer

		5	10	20	30	50	70	100
Population Dose Rate (man-rem/y)	t (year)							
	D_z (cm ² /sec) H(m)							
	2	5.9x10 ⁻²⁸	1.4x10 ⁻¹⁴	1.1x10 ⁻⁷	2.3x10 ⁻⁵	4.4x10 ⁻⁴	1.4x10 ⁻³	3.2x10 ⁻³
	4000	-	7.9x10 ⁻⁵⁵	7.2x10 ⁻²⁸	5.9x10 ⁻¹⁹	6.6x10 ⁻¹²	4.0x10 ⁻⁹	2.1x10 ⁻⁷
	20	3.1x10 ⁻⁵	2.4x10 ⁻³	5.1x10 ⁻²	1.8x10 ⁻¹	5.8x10 ⁻¹	1.0	1.8
	4000	2.5x10 ⁻¹³	8.8x10 ⁻⁷	3.5x10 ⁻⁴	3.1x10 ⁻³	2.0x10 ⁻²	4.4x10 ⁻²	8.3x10 ⁻²
	100	4.0x10 ⁻³	5.9x10 ⁻²	4.8x10 ⁻¹	1.2	3.3	5.4	8.0
	4000	6.8x10 ⁻⁵	4.0x10 ⁻³	7.2x10 ⁻²	2.4x10 ⁻¹	7.6x10 ⁻¹	1.3	2.2
	200	1.1x10 ⁻²	1.2x10 ⁻¹	8.1x10 ⁻¹	2.0	4.8	7.4	1.2x10
	4000	7.7x10 ⁻⁴	2.0x10 ⁻²	2.2x10 ⁻¹	6.2x10 ⁻¹	1.8	3.0	4.8

N = 10⁸ man , Concentration Factor = 1000, F_s = 80 gr/day

するために放射能核種の固化体内の拡散係数は増加した。しかし圧力については、実験を行った範囲内では有意な差は得られなかった。

次に、深海に投棄処分された放射能廃棄物から浸出した放射能核種の海洋表層における放射能濃度の試算例は他にもあるとは言え、大部分のところは大きな仮定を置いて計算しなければならない現状にある。とりわけ、海洋の深海における水塊の挙動が十分に解明されていない点は、深海から表層への物質輸送の現象を拡散方程式で表現する場合の大きな問題点として残されている。ここで得られた主要な成果は、次のようにまとめられる。これまでに行われた試算の大部分は固化体からの核種の浸出特性を無視して、容器の破壊とともに、内部の放射能物質が瞬時に漏洩すると仮定していた。寺島は容器の破壊を考慮した溶出モデルを提案している。⁽²¹⁾ 本研究では¹³⁷Csと⁶⁰Coの浸出特性の違いを考慮して解析した。その試算結果の比較から、固化体の核種の保持能力が表層の放射能濃度を減じる上に有効であることがわかった。鉛直方向の拡散係数の値については、これまで広い範囲の値が測定され、提起されているが、特に小さい値をとらなければ、長期的な連続投棄を行う場合、表層での濃度に及ぼす影響は、計算の誤差、精度を考えると、有意な差をもたらすとは言い難い。

濃度予測式に含まれる多くのパラメーターのうちで、表層の放射能濃度に及ぼす影響の最も強い因子、重要因子(Key Factor)は廃棄物の投棄地点の深度である。したがって、実際に投棄処分を行う場合には、なるべく深い海域を選び、いかにうまくその場所に投棄するかという投棄方法の技術的なことも問題になろう。

この種の問題の影響評価をするには、なお詳細な検討が必要であるし、いくつかの評価法について、相互の比較検討が必要であろう。また、わが国だけの問題ではなく、海洋汚染に対する割当線量の問題等については国際的な議論がなされることが望まれる。

記号表

C	: セメント固化体内における放射性核種濃度	[$\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$]
D_c	: セメント固化体内における放射性核種の拡散係数	[cm^2/day]
λ	: 放射性核種の物理的崩壊定数	[1/day]
R	: 円柱セメント固化体の半径	[cm]
h	: 円柱セメント固化体の高さ	[cm]
S	: 円柱セメント固化体の表面積	[cm^2]
V	: 円柱セメント固化体の体積	[cm^3]
J_0, J_1	: 第1種, 0次および1次の Bessel 関数	
B_n	: $J_0(B) = 0$ の根	
a	: 投棄処分される放射能の1日あたりの増加速度	[$\mu\text{Ci}/\text{day}^2$]
M_0	: セメント固化体1個中に含まれる放射能量	[μCi]
$C(x, y, z; t)$: 時刻 t , 点 (x, y, z) における海水中の放射能濃度	[$\mu\text{Ci}/\ell$]
D_x, D_y, D_z	: 海洋深層部における x, y, z 方向の渦動拡散係数	[cm^2/day]
V_s	: 太平洋表面混合層の体積	[m^3]
D_I	: 個人の被曝線量率	[rem/year]
D_p	: 集団の被曝線量率	[man-rem/year]
D	: 職業人の許容年線量率	[rem/year]
C_{sw}	: 海水中の放射能濃度	[$\mu\text{Ci}/\text{m}\ell$]
$C.F$: 海産生物の濃縮係数	[mℓ/g]
$(MPC)_w$: ICRP 勧告による飲料水中の最大許容濃度	[$\mu\text{Ci}/\text{m}\ell$]
F_s	: 1日1人あたりの海産物の摂取量	[g/day]
N	: 日本の人口	[man]

参考文献

- (1) 中島篤之助, (1973) “放射性廃棄物処理処分の現状I”, 科学, 岩波書店, Vol.43 (8), pp.501-507
- (2) 寺島 泰, (1969) “放射性廃棄物の固化処理と海洋処分に関する研究—セメントほどによる固化処理法と固化体の海洋処分に伴う影響とを中心として—”, 京都大学学位論文
- (3) 岩井重久, 井上頼輝, 寺島 泰, 青山 勲 (1966)”, 高放射性廃液のセメント固化に関する研究” 保健物理, Vol.1 (1), pp.12-19
- (4) 岩井重久, 井上頼輝, 寺島 泰, (1968) “固化体中放射性核種の溶出に関する研究” 保健物理, Vol.3 (2), pp.261-272
- (5) 寺島 泰, 青山 勲, 岩井重久, 井上頼輝, (1972) “セメント固化体中 ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co の溶出機構について”, 工本学会論文集, No. 201, pp.51-60
- (6) 科学技術庁原子力局, (1972) “放射性固体廃棄物処理・処分検討会報告書上・下”
- (7) 寺島 泰, (1971) “放射性廃棄物固化体中の放射性核種の溶出に関する研究—セメントミルク中における放射性核種の挙動について—” 保健物理 vol.6(3)
- (8) H.U.Sverdrup, M.R.Johnson and R.H.Fleming, (1968) The Oceans, Their Physics, Chemistry, and General Biology. Prentice-Hall Inc.
- (9) IAEA, (1968) Treatment of Low and Intermediate Level Radioactive Waste Concentrates, Appendix II Determination of Leaching Rate and Application of Result, Technical Report Series No.82, pp.101-105
- (10) 寺島 泰, 岩井重久, 井上頼輝, 福井正美, (1970) “放射性廃棄物固化体中の放射性核種の溶出に関する研究—モルタルその他の多孔体中におけるイオンの有効拡散係数—” 保健物理, Vol.5 (1), pp.13-23
- (11) 岩井重久, 井上頼輝, 青山 勲, 吉川 進, (1970) “放射性廃棄物の海洋処分—セメント固化体内核種の溶出機構について—” 京都大学工研彙報 35

- (12) R.B.Bird, W.E.Stewart and E.N.Lightfoot, (1960) Transport Phenomena. John Wiley & Sons, Inc. pp.514
- (13) 猿橋勝子, (1967) 放射性廃棄物の深海投棄と海水の循環, 原子力工業, Vol.13 (9), pp.27-31
- (14) 三宅泰雄, 猿橋勝子, 市川竜資, (1969) 放射性廃棄物の深海投棄による影響についての試算, 日本放射線影響学会第12回大会講演要旨集 p.417
- (15) 寺島 泰, (1972) 深海投棄処分の影響評価法について一再処理などによる環境放射能の影響とその防御に関する基礎的研究Ⅲ, 文部省科学研究費, 総合研究 (A) No.40703 (1971) 報告書 pp.30-34
- (16) 井上頼輝, 青山 勲, 山本正史, (1973) 放射性廃棄物の海洋放出に伴う影響評価に関する研究, 土木学会第28回年次学術講演会概要集, 第2部 pp.513-514
- (17) 井上頼輝, 青山 勲, 山本正史, (1974) 低レベル放射性固体廃棄物の深海投棄処分による影響評価, 日本保健物理学会第 4 回研究発表会要旨集. p.24
- (18) 森 一久, (1972) 新「原子力開発利用長期計画」とその問題点, 日本原子力学会誌, Vol.14 (9), pp.481-486
- (19) W.Brocker, (1963) Radioisotopes and Large-Scale Oceanic Mixing. In the Sea, Ideas and Observations on Progress in the Study of the Seas, M.N.Mill, Ed. Vol.2 pp.88-108, John Wiley and Sons.
- (20) 松本美二, (1973) 海洋における物質の鉛直混合とその意義, 科学, 岩波書店, Vol.43 (11), pp.698-702
- (21) 角音静雄, (1972) 深層水の鉛直渦動拡散係数の見積り, 日本海洋学会誌, Vol.18, pp.145-151
- (22) W.H.Munk, (1966) Abyssal Vecipes. Deep Sea Res. Vol.13.pp.707-730
- (23) H.Craig, (1969) Abyssal Carbon and Radiocarbon in the Pacific. Journal of Geophysics Research, Vol.74, pp.5491-5506
- (24) Y.Miyake, K.Saruhashi, Y.Katsuragi and T.Kanazawa, (1962) Penetration of ^{90}Sr and ^{137}Cs in Deep Sea Layers of the Pacific and

Vertical Diffusion Rate of Deep Water, J. Radiation Research,
Vol.3, pp.141-147

(25) R.Tomovic, (1962) Sensitivity Analysis of Dynamic Systems, McGRAW-
HILL BOOK COMPANY INC.

(26).高松武一郎, 橋本伊織, (1970) “プロセスシステムの最適化と感度解析,” 制
御工学, 第14巻, 第6号, pp.323-334

(27)水産庁, (1972) “水産統計指標” (45年 - 65年)

(28) I.Aoyama, M.Yamamoto and Y.Inoue, Evaluation of the Radioactive
Wastes Disposal onto the Deep Ocean. Submitted to the Journal of

Health Physics

(29) 寺島 泰, (1972) “深海投棄処分における許容投棄量の試算方法について,”
土木学会第27回年次学術講演会概要集, 第2部 pp.707-708

第3章 水中における放射性核種の物理化学的 存在形態に関する実験的研究

第1節 概 説

環境中に放出された放射性核種は、種々の環境要因に規制されながら、複雑な食物連鎖を経て、人間に摂取される。環境中での放射性核種の挙動は、その物理化学的な存在形態に強く制約される。一般に、水中における放射性核種存在形態は、イオン状、コロイド状、粒子状の3つに分類することができる⁽¹⁾。生態系での放射性核種の挙動を見ると、例えば、土壌中では、放射性核種がイオン状で存在していると、土壌に含まれる種々の鉱物とイオン交換反応を受けながら、土壌中の空隙を流れる水を媒介として、ゆらくりと移動する⁽²⁾。コロイドあるいは粒子状であると、それらの粒径が空隙の孔径より小さいと、土壌粒子との衝突により物理的な吸着をくり返しながら、容易に水の動きに応じて移動する。また水系では、放射性核種がイオン状で存在すると、水の移動や拡散と同じように挙動し、一般には、水産生物に摂取されやすい。コロイド、あるいは粒子状であると、水中懸濁物に吸着されやすく、凝集・沈降を起して底層へ移行しやすい。また放射性核種の化学形態によって水産生物による放射性核種の濃縮に影響を与えることは、例えば、ルテニウムのクロロ、ニトрат、およびニトロ錯体のメジナ、ハマグリ、ヒジキ等を用いた濃縮実験から、上記3つの化学形態ルテニウム間の濃縮順位はニトрат>クロロ>ニトロとなることが明らかにされている⁽³⁾。このように放射性核種の水産生物による利用価値はその物理化学的形態に依存する⁽⁴⁾。このように放射性核種の生態学的挙動という観点から見ると、それぞれの核種が自然水中でどのような物理化学的存在形態で存在しているかということが、放射性核種の影響評価を行う上に極めて重要である。一般に水中での放射性核種の物理化学的な存在形態と研究する方法として、次のような方法があげられている⁽⁵⁾。(1) 吸着、(2) 脱着、(3) 透析、(4) 限外ろ過、(5) 遠心分離、(6) 拡散、(7) 電気泳動、(8) 電気化学的分離、(9) ラジオグラフィー、(10) 抽出などである。ここで10個々の方法について詳述することを避けるが、それぞれ一長一短があり、現在なお、水中での微量金属の存在形態を的確に定量的に測定する方法は確定していない。それ故、それぞれの研究目的に

応じて、いくつかの研究手法から総合的に把握することが望ましい。純水中における微量放射性核種の存在形態については、既に古くから研究されており、CTRHK の著書⁽⁵⁾にまとめられている。最近では、核実験や原子力開発に伴う海洋の放射能汚染に対する関心から、海水中における放射性核種の存在形態についての研究が行なわれている^(6~7)。また、一般重金属による環境汚染の問題から、淡水中における微量重金属の存在形態に関する研究も今後一層重要性を増してくるものと思われる。本章では、数種の元素について、河川水中におけるそれらの存在形態に関して、放射性核種をトレーサとして、実験的検討を行う。既に述べたように、存在形態に関する研究方法が必ずしも確立していない現段階において、どの様な方法を選ぶかということ自体が問題となろう。本研究では、なるべく手軽な方法を選び、以下述べる数通りの方法について比較検討した。

(1) ろ過法

いろいろの孔径を持つフィルターに放射性トレーサを含む液を通して、分画することにより、溶液中に存在するコロイド粒子を直接確認することができる。この方法では、使用したフィルターの孔径より大きい粒子のものは完全にフィルター上に保持できるが、液体の濾過においては、ファンデルワールスカ、孔道のおずかな湾曲による落ち込み作用、更に、先フィルターに捕捉された粒子上への付着等の現象により、所定の孔径よりも小さい粒子もフィルター上に捕捉される。そのため、この方法では、定性的なコロイド形の確認をするにとどまる。

(2) 透析法

透析法は、物質のコロイド状態を直接に決定する方法で、コロイド粒子は半透膜を、通って拡散できないということに基づいている。半透膜によって外部と区分された透析器(ここではセロファン膜を袋状にしたものを使用)の中に放射性核種を含む溶液を入れ、これを袋の内部と同じ化学組成で、放射性核種を含まない溶液中に吊す。一定時間経過すると、イオン状で存在する放射性核種核種は、透析膜内外の化学ポテンシャルの差(浸透圧)によって半透膜を、通って、膜内外のイオン濃度が一定になるまで透析するが、コロイド粒子は内部液に保持される。放射性核種の透析膜への吸着損失を無視すると、透析膜内外の放射能の和($A_{in} + A_{ou}$) は透析器の内部に入れた最

初の放射能 A_0 に等しいはずである。つまり

$$A_{in} + A_{ou} = A_0 \quad (3-1)$$

透析膜内外における放射能濃度および容積をそれぞれ C_{in} , C_{ou} , v_{in} , v_{ou} , と表わすと、イオン形百分率は次式で求められる。

$$\text{イオン形百分率} = \frac{C_{ou} \times (v_{in} + v_{ou})}{A_0} \times 100 \quad (\%) \quad (3-2)$$

(3) イオン交換樹脂への吸着

次節で述べるように、水中でイオン状で存在する金属は単独で、あるいは陰イオンと結合して錯体を形成している。これら金属の水溶液中での電荷状態を検討するには、陰陽両イオン交換樹脂への吸着特性を調べれば良い。イオン交換吸着の特性は金属を含む溶液とイオン交換吸着剤との間の分配係数 K_d で表わされる。

$$K_d = \frac{M_s}{M_l} \times \frac{v}{m} \quad (3-3)$$

ここで M_s はイオン交換体上の金属の量、 M_l は溶液中の金属量、 m はイオン交換体の重量、 v は溶液の容積である。これは、次のようにも表わされる。

$$K_d = \frac{(M_i - M_l)}{M_l} \times \frac{v}{m} \quad (3-4)$$

ここで M_i は初期の溶液中の金属量である。分配係数 K_d をバッチ式で求める時は、イオン交換による吸着と、物理的な吸着とが同時に起こるので、(3-4)式から得られる K_d 値は見かけの分配係数である。しかし、前者に比べて後者による量はわずかであるので、無視して考えて良い。

(4) 超速べ分離法

この方法は、大きな重い粒子の沈降速度は、小さな軽い粒子の沈降速度よりも大きいということを利用したものである。粒子の大きさはStokesの法則から次式によつて

求められる⁽¹²⁾。

$$r^2 = \frac{gn(\log x_2 - \log x_1)}{2(\rho - \rho_0)\omega^2 t} \quad (3-5)$$

ここで、 r : 粒子の半径、 g : 重力の加速度、 n : 内部摩擦係数、 x_1, x_2 : 遠心分離の始めと終りの粒子の回転軸からの距離、 ρ : 粒子の密度、 ρ_0 : 溶媒の密度、 ω : 角速度、 t : 遠心分離時間である。Ichikawa et al.⁽¹³⁾は遠心分離法により Europium のコロイド分率を求めている。この方法は、遠心分離中における温度勾配や、回転数の変動、減速中における試料の慣性等が遠心チューブ内での対流や舞上りを起こしたり、また遠心チューブへの放射性核種の吸着などが起ったりして正確な実験データを再現することはなかなか困難である。この様な実験操作上の技術的な困難はあるが、自然の状態下でのコロイド粒径の測定には、遠心分離法は比較的容易に行える有力な方法である。

第2節 金属の錯体形成

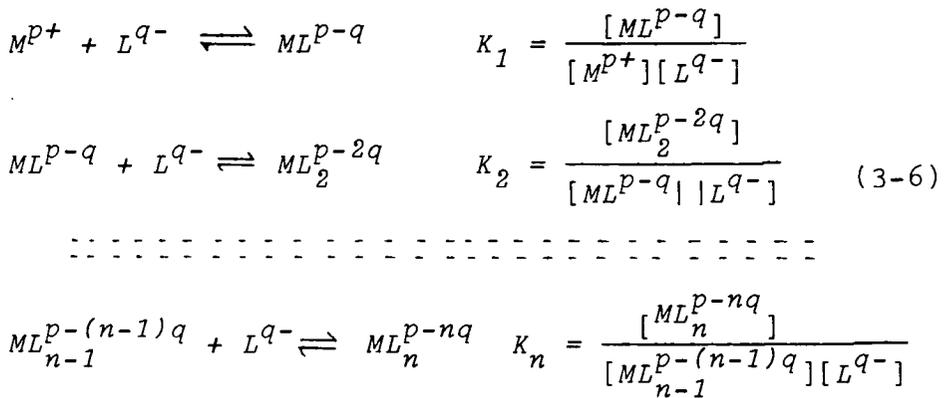
2-1 錯形成反応⁽¹⁴⁻¹⁶⁾

水中における金属の存在形態は、イオン状、コロイド状、粒子状の形態のあることは前節で述べた通りである。このうちイオン状で存在するものも、 M^{n+} のように真の“裸”のイオンとして存在するのは高温の気相のみであって、溶液中では、金属イオンは常に溶媒和している。水中における金属イオンの存在形態は、水中に存在する種々の陰イオンや、水溶液の化学状態(例えば pH、酸化還元電位、イオン強度、温度、圧力等)に支配される複雑な化学反応システムによって決定されるが、本節では最も簡単な錯形成反応について述べる。

水中では、金属イオンは水分子を引きつけて、アquoイオン $[M(OH_2)_n]^{p+}$ として存在している。水溶液中の他の陰イオンが存在すると、たいていの金属イオンは、この陰イオン(配位子)と錯体を形成しようとする傾向を示す。以下では簡単のためにアコ

イオンを表わすのに、 H_2O の電子ドナーを省略して、単に M^{p+} で、配位子を L で表わすことにする。溶液中での錯体平衡は、単核錯体 ML_n を生成する反応と、多核錯体 M_mL_n を生成するものがあるが、金属イオンと加水分解生成物の濃度の和が十分小さければ、多核錯体の関与する複雑な平衡を無視できる。環境中に存在する放射性核種濃度は化学的には、極めて低濃度であるので、ここでは、単核錯体反応のみについて論じる。

錯形成反応は、逐次的に進行し、平衡は存在する錯体の数だけの定数によって表わされる。すなわち、



ここで、 K_1, K_2, \dots, K_n は反応の逐次安定度定数である。 n は金属イオンの配位数で、それぞれの金属に固有のものであるが、中心原子の原子価や配位子の性質によっては、配位数を2つ以上とることもある。主な金属イオンの配位数⁽¹⁵⁾を Table 3-1 に示す。

Table 3-1 Coordination Number of Metal Ions

Number of Coordination	Metal Ion	Direction of Coordination Bond
2	Cu(I), Hg(I), Hg(II)	Linear
4	Cu(II), Mg(II), Zn(II), Cd(II), Hg(II) Pb(II), Sn(IV)	Tetrahedoron
4	Cu(II), Pb(II), Mg(II), Ca(II), Cr(III) Mn(II), Mn(III), Fe(II), Fe(III)	Square on Plane
6	Cd(II), Zn(II), Al(III), Si(IV), Sn(II) Sn(IV), Pb(II), Pb(IV), Cu(II)	Octahedoron

(入門キレート化学⁽¹⁵⁾より)

水溶液中の金属Mの分析濃度を C_{MT} で表わすと、それぞれの錯体の存在百分率は次のように表わせる。

$$\alpha_0 = \frac{[M^{p+}]}{C_{MT}}, \quad \alpha_1 = \frac{[ML^{p-q}]}{C_{MT}}, \quad \dots \quad \alpha_n = \frac{[ML_n^{p-nq}]}{C_{MT}} \quad (3-7)$$

$$\alpha_0 + \alpha_1 + \alpha_2 + \dots + \alpha_n = 1$$

分析濃度 C_{MT} は、

$$C_{MT} = [M^{p+}] + [ML^{p-q}] + [ML_2^{p-2q}] + \dots + [ML_n^{p-nq}] \quad (3-8)$$

であるから、(3-6) 式より

$$C_{MT} = [M^{p+}] \{1 + \beta_1 [L] + \beta_2 [L]^2 + \dots + \beta_n [L]^n\} \quad (3-9)$$

となる。ここで $\beta_n = \prod_{i=1}^n K_i$ である。

したがって

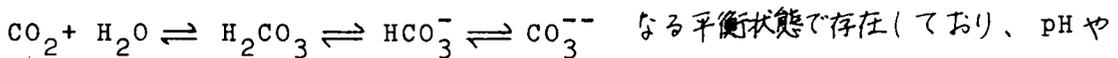
$$\alpha_0 = \frac{1}{1 + \beta_1 [L] + \beta_2 [L]^2 + \dots + \beta_n [L]^n} \quad (3-10)$$

$$\alpha_1 = \beta_1 [L] \alpha_0, \quad \alpha_2 = \beta_2 [L]^2 \alpha_0, \quad \dots \quad \alpha_n = \beta_n [L]^n \alpha_0$$

(3-10)式から安定度積 β_n 、配位子濃度 $[L]$ がわかれば、おのおのの錯体濃度が計算で求められる。

2-2 配位子濃度

ここでは、最も簡単な単核錯体の生成についてのみ考える。配位子については、無機のものに比べ、有機配位子の種類は無数にあり、種々の金属に対する安定度定数も数多く得られているが、ここでは、次節で述べる河川水の水質分析から得られた無機配位子のみを対象とする。この配位子濃度をTable 3-2に示す。水中の炭酸物質は



温度、また海水中ではCl⁻によっても、それぞれの種の存在百分率は異なってくる⁽¹⁸⁾。

Table 3-2 Concentration of Ligand

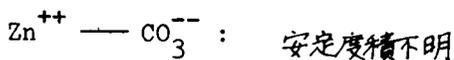
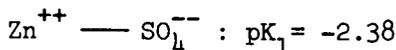
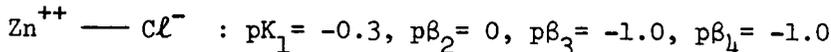
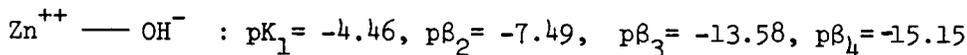
Ligand	Concentration	
	ppm	M/l
Cl ⁻	17.6	4.96x10 ⁻⁴
SO ₄ ²⁻	9.1	9.51x10 ⁻⁵
CO ₃ ²⁻	9.9	1.64x10 ⁻⁴
HCO ₃ ⁻	40.0	6.56x10 ⁻⁴

2-3 計算結果

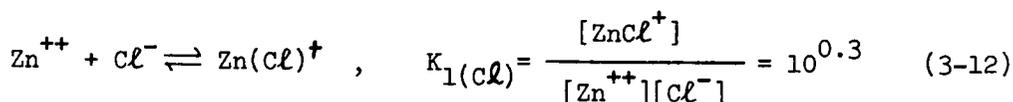
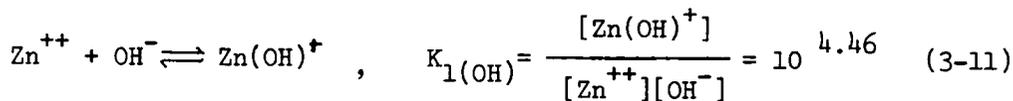
ここでは、Cs⁺、Ag⁺、Zn²⁺、Cd²⁺、Co²⁺、Pb²⁺、Y³⁺についての錯体生成の計算結果について論じる。

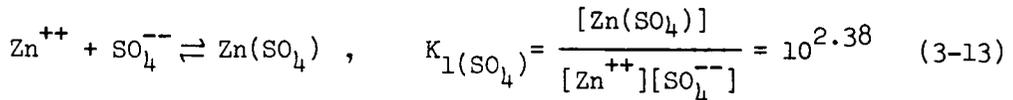
それぞれの微量金属イオンの錯形成の厳密な計算は、すべての配位子について、(3-8)式と同様の連立方程式を立てて計算しなければならないが、一般には、オー錯生成反応の計算だけで、その概要を十分知ることができるとされている^(18,19)。そこでZn²⁺を例として、以下に述べる方法で配位子の卓越種を決定し、それぞれの錯体百分率を求めた。

Zn²⁺についての安定度積は次の通りである⁽⁷⁾。



したがって、配位子OH⁻、Cl⁻、SO₄²⁻についてのオー段階反応は





ここで $[\text{M}]$ は金属 M のモル濃度を表わしている。水酸イオン濃度 $[\text{OH}^-]$ は、 20°C で、 $[\text{H}^+][\text{OH}^-] = 10^{-14}$ であるから、水溶液の pH を x で表わすと、 $[\text{OH}^-] = 10^{x-14}$ で表わされる。オ一段階反応生成物である $\text{Zn}(\text{Cl})^+$ と $\text{Zn}(\text{OH})^+$ 濃度とについて比較すると、

$$\begin{aligned} \log[\text{Zn}(\text{Cl})^+] - \log[\text{Zn}(\text{OH})^+] &= \log K_{1(\text{Cl})} + \log[\text{Cl}^-] - \log K_{1(\text{OH})} \\ &\quad - \log[\text{OH}^-] = 6.5 - x \end{aligned} \quad (3-14)$$

となるので $\text{pH}(=x)$ が 6.5 より小さいと $[\text{Zn}(\text{Cl})^+] > [\text{Zn}(\text{OH})^+]$ となるので、この時の卓越する配位子は $[\text{Cl}^-]$ であると考えられる。又 pH が 6.5 より大きいと、逆に $[\text{OH}^-]$ が卓越種になる。

同様にして、

$$\begin{aligned} \log[\text{Zn}(\text{Cl})^+] - \log[\text{Zn}(\text{SO}_4)] &= \log K_{1(\text{Cl})} + \log[\text{Cl}^-] - \log K_{1(\text{SO}_4)} \\ &\quad - \log[\text{SO}_4^{--}] = -1.36 < 0 \end{aligned} \quad (3-15)$$

$$\therefore [\text{Zn}(\text{Cl})^+] < [\text{Zn}(\text{SO}_4)]$$

また

$$\begin{aligned} \log[\text{Zn}(\text{SO}_4)] - \log[\text{Zn}(\text{OH})^+] &= \log K_{1(\text{SO}_4)} + \log[\text{SO}_4^{--}] - \log K_{1(\text{OH})} \\ &\quad - \log[\text{OH}^-] = 7.9 - x \end{aligned} \quad (3-16)$$

(3-14)~(3-16)式より

$$\text{pH} < 7.9 \text{ では } [\text{Zn}(\text{SO}_4)] > [\text{Zn}(\text{Cl})^+] > [\text{Zn}(\text{OH})^+] \quad (3-17)$$

$$\text{pH} > 7.9 \text{ では } [\text{Zn}(\text{OH})^+] > [\text{Zn}(\text{SO}_4)] > [\text{Zn}(\text{Cl})^+] \quad (3-18)$$

となる。 $\text{pH} < 7.9$ では、 $[\text{Zn}^{++}]$ — $[\text{SO}_4^{--}]$ 系が卓越するので、(3-10)式より、

$$\alpha_0 = \frac{[\text{Zn}^{++}]}{C_{\text{Zn T}}} = \frac{1}{1 + \beta_1[\text{SO}_4^{--}]} = 0.97 \quad (3-19)$$

$$\alpha_1 = \frac{[\text{Zn}(\text{SO}_4)]}{C_{\text{Zn T}}} = \beta_1[\text{SO}_4^{--}]\alpha_0 = 0.03 \quad (3-20)$$

となる。pH 7.9 では $[\text{Zn}^{++}] - [\text{OH}^-]$ 系が卓越する。(3-10)式に $\beta_1 \dots \beta_4$ の値を代入し、 $[\text{OH}^-]$ を $\text{pH}(=x)$ の関数で表わすと、

$$\alpha_0 = \frac{[\text{Zn}^{++}]}{C_{\text{Zn T}}} = \frac{1}{1 + 10^{x-9.54} + 10^{2x-20.51} + 10^{3x-28.42} + 10^{4x-40.85}}$$

$$\alpha_1 = 10^{x-9.54}\alpha_0, \quad \alpha_2 = 10^{2x-20.51}\alpha_0 \quad (3-21)$$

$$\alpha_3 = 10^{3x-28.42}\alpha_0, \quad \alpha_4 = 10^{4x-40.85}\alpha_0$$

となる。これを Fig.3-1 に示す。

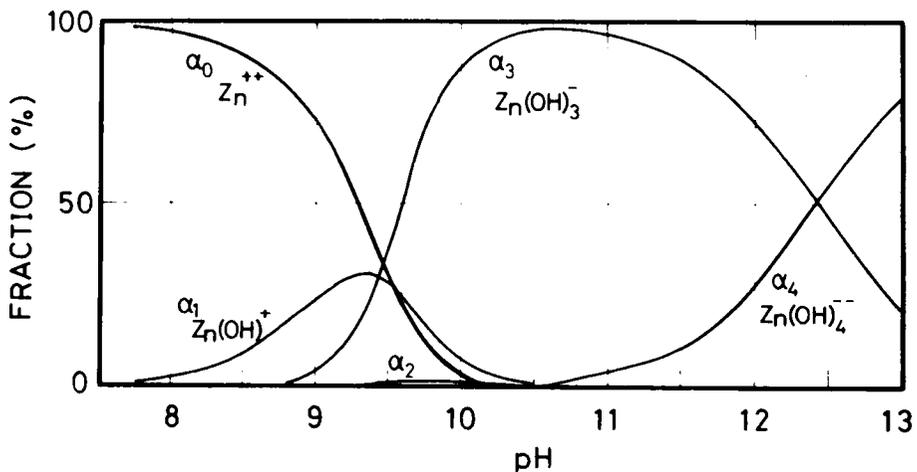


Fig.3-1 Distribution Diagram for Zink Hydroxo Complexes in the Aqueous System (River Water)

他の元素について、上と同様にして得られた卓越種の錯体百分率を Table 3-3, Figs. 3-2~ 5 に示す。

Table 3-3 Theoretical Values of Complex Fraction (%)

Cs^+	$CsCl$	Ag^{++}	$AgCl^+$	$AgCl_2$	$AgCl_3^-$	Y^{++}	YSO_4
99.2	0.8	0	0.3	85.7	13.9	99.8	0.2

at pH < 6.3

Cd^{++}	$CdCl^+$	$CdCl_2$	Co^{++}	$CoSO_4$	Pb^{++}	$Pb(CO_3)$	$Pb(CO_3)_2^{--}$
99.0	1.0	0	97.6	2.4	2.9	0	97.1

at pH < 8.2 at pH < 8.1 at pH < 10.4

Ce^{4+}	$CeSO_4^+$	$Ce(SO_4)_2$	$Ce(SO_4)_3^-$	Zn^{++}	$ZnSO_4$
11.5	65.8	22.6	0.1	97.0	3.0

at pH < 7.9

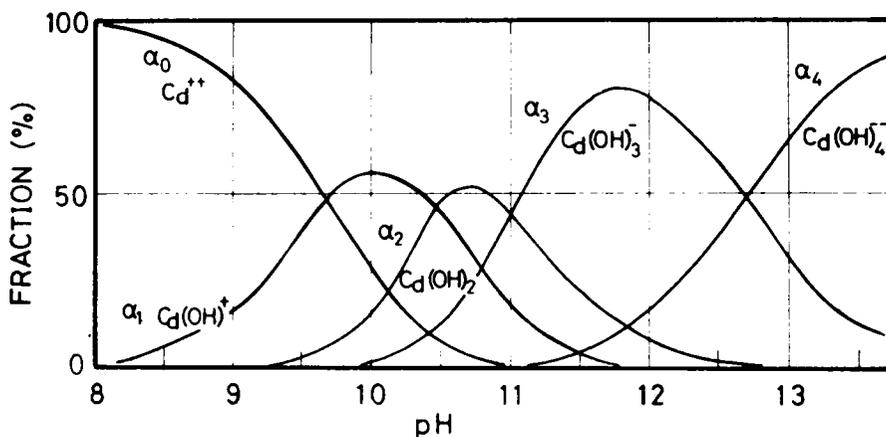


Fig. 3-2 Distribution Diagram for Cadmium Hydroxo Complexes in the Aqueous System

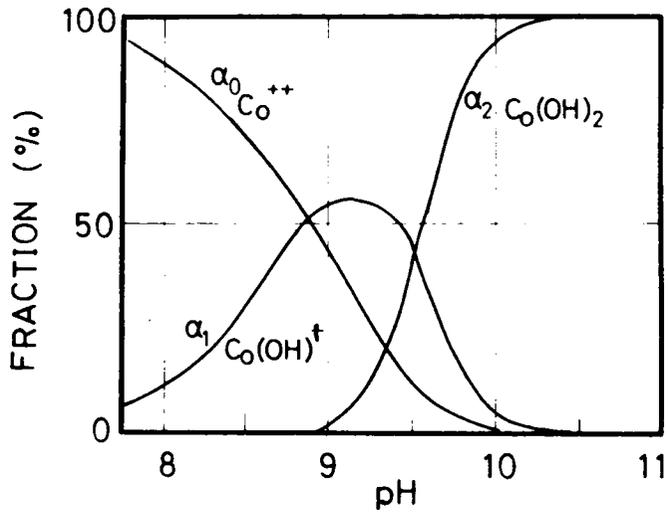


Fig.3-3 Distribution Diagram for Cobalt Hydroxo Complexes in the Aqueous System

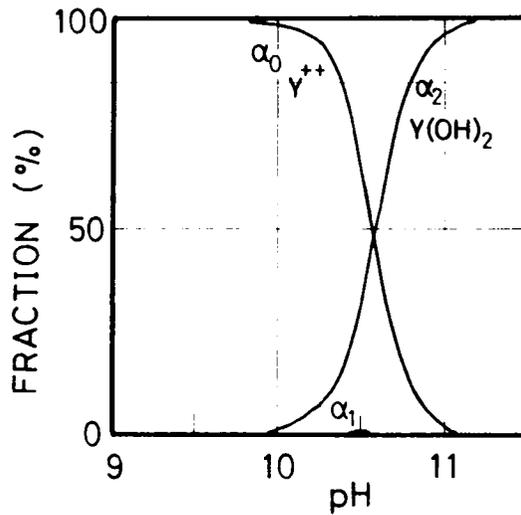


Fig.3-4 Distribution Diagram for Yttrium Hydroxo Complexes in the Aqueous System

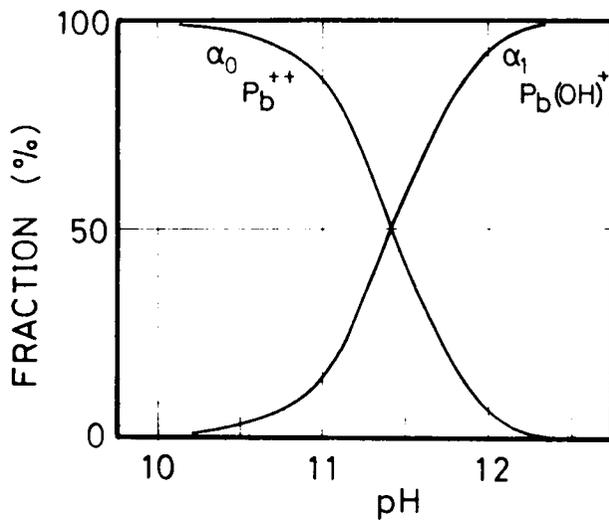


Fig.3-5 Distribution Diagram for Lead Hydroxo Complexes in the Aqueous System

第3節 実験材料および方法

3-1 試料水の採取および調整

本実験では、河川水中における放射性核種の存在形態について検討する。淡水試料水としては、京都市内を貫流する鴨川から採取したものをを用いた。原水には、ゴミその他の巨大懸濁物が含まれ、その量は時々によって大きく変る。そこで、このような懸濁物への放射性核種の吸着の影響をなるべく小さくし、実験結果に一般性をもたせるために、原水をガラスウールで濾過し、巨大懸濁物を除去し、5μの孔径を有するメンブランフィルターで濾過したものを20ℓのポリビンに保管した。以下に述べるそれぞれの実験に先立ち、さらに0.45μのメンブランフィルターで濾過した濾液を試料水とした。試料水に、それぞれの放射性核種を投入し、酸性側を塩酸溶液で、アルカリ性側を水酸化ナトリウム溶液で所定のpHに調整する。これを外部の空気に触れないように密封状態にして2日間エージングする。その後、以下のおのおの実験に供した。河川水の水質をTable 3-4に示す。

Table 3-4 The Quality of the River Water

Elements	Concentration (meq/l)	Elements	Concentration (meq/l)
Ca ⁺⁺	0.61	HCO ₃ ⁻	0.65
Mg ⁺⁺	0.29	CO ₃ ⁻⁻	0.08
Na ⁺	0.30	Cl ⁻	0.50
K ⁺	0.04	SO ₄ ⁻⁻	0.05
Total Cation	1.24	Total Anion	1.28

pH (at 18°C) 7.1

3-2 メンブタンフィルターへの沈着

エーシング後、70ml余の試料水を分取し、これを1.2, 0.8, 0.45, 0.22, 0.10, 0.05, 0.025 μm の孔径を持つメンブタンフィルターで、それぞれ10mlずつ濾過する。各フィルターに沈着した放射能をガスフローカウンターで測定し、通水した試料水中の全放射能量に対するフィルターに沈着した放射能量の比を求めた。

3-3 透析膜による分離

試料水を調整する際、放射能を含まない同じpHの溶液250 mlを別に調整しておく。容量500 mlのポリビニルに保存しておく。放射能を含む試料水25mlを袋状にした透析用セルコースチューブ(孔径24A)の中に移し、これを前述のポリビンの中に浸漬させる。浸漬液1mlを定期的にサンプリングし、放射能を測定して、透析されたイオン状の放射性核種の濃度の経時的変化を平衡に達するまで追跡する。

3-4 イオン交換樹脂への吸着

容量100mlのポリエチレン製のエーレンマイヤーフラスコに試料水20 ml入れ、これに陽イオン交換樹脂および陰イオン交換樹脂をそれぞれ別個に0.5g加え、振とう器で連続2時間振とうし、その後上澄み液をサンプリングして、この放射能濃度を測定した。実験に用いた陽イオン交換樹脂はDowex 50x4, 50 100mesh Na型、陰イオン交換樹脂はDowex 1x8, 50 100mesh Cl型である。実験に先立ち、イオン交換樹脂をカラムに充填し、3N NaOH、および6N HClを交換容量の約10倍量を通水し、数回再生吸着を繰返してconditioningを行った。

3-5 遠心分離法

実験に用いた装置は日立製分離用超遠心機(京都大学放射性同位元素総合センター所属のものを借用)で、アングロロータ RP65 である。これを用いて試料を 6500rpm で 1 時間、3.5 時間遠心分離を行った。1 時間の遠心分離により 200 Å 以上の、また 3.5 時間の遠心分離では 100 Å 以上の粒径を持つ粒子を沈降させることができる。遠心分離操作中の試料水の水温は 10.5~11.0°C に保たれた。遠心分離後ただちに遠心チューブの上層部の液をサンプリングし、放射能を測定した。

採取した河川水の pH は 7.1 で弱酸性の放射性溶液を加えた所、pH は 6.4~6.7 に低下したが、本実験では pH の調整を行わず、そのまま実験に供した。

第4節 実験結果および考察^(20,21)

4-1 ⁶⁵Zn の存在形態

Fig.3-1, Table 3-3 には pH による錯体形成比が示されている。Table 3-5 は遠心分離の結果を、Table 3-6 はメンブランフィルターへの沈着率を、Table 3-7

Table 3-5 Ion and Colloid Percentage in the River Water

Radionuclide	pH	Dialysis		Centrifuge	
		Ionic (<24Å)	Colloidal (>24Å)	(100Å<)	(200Å<)
Zn-65	6.4	81.1%	18.9%	11.0%	11.0%
Cs-137	6.4	94.2	5.8	12.7	13.6
Co-60	6.7	84.2	15.8	43.3	26.2
Fe-59	6.4	3.1	96.9	95.8	88.9
Ag-110m	6.4	43.9	56.1	4.7	19.3

はイオン交換樹脂による分配係数を、Fig.3-6 は透析曲線を示している。透析実験ではどの pH の場合もほぼ 10 時間で平衡に達している。pH 8.2 以下では、イオン存在率は 80~90% であるが、pH 9 以上になると 70% に減少している。メンブランフ

Table 3-6 Deposit Rate of Zn-65 to Membrane Filter

pH	5.1	6.6	7.1	8.0	8.9	10.2
Membrane Filter						
RAWP (1.2 μ)	0.39%	0.21%	0.24%	0.39%	0.40%	1.26%
AAWP (0.8 μ)	0.11	0.17	0.15	0.38	0.39	1.84
HAWP (0.45 μ)	0.15	0.12	0.14	0.49	0.32	3.33
GSWP (0.22 μ)	0.25	0.19	0.28	0.75	0.58	3.34
VCWP (0.1 μ)	0.22	0.29	0.43	0.86	1.28	27.2
VMWP (0.05 μ)	0.18	0.26	0.43	0.93	1.33	17.3
VSWP (0.025 μ)	0.27	0.41	0.70	1.51	4.11	43.5

Table 3-7 Distribution Coefficient of Zn-65 by Ion Exchange Resin (ml/g)

pH	5.1	6.6	7.1	8.0	8.9	10.2
Type of Resin						
Cation Resin	6040	1521	2107	827	659	420
Anion Resin	2.7	67	10.5	24	23	433

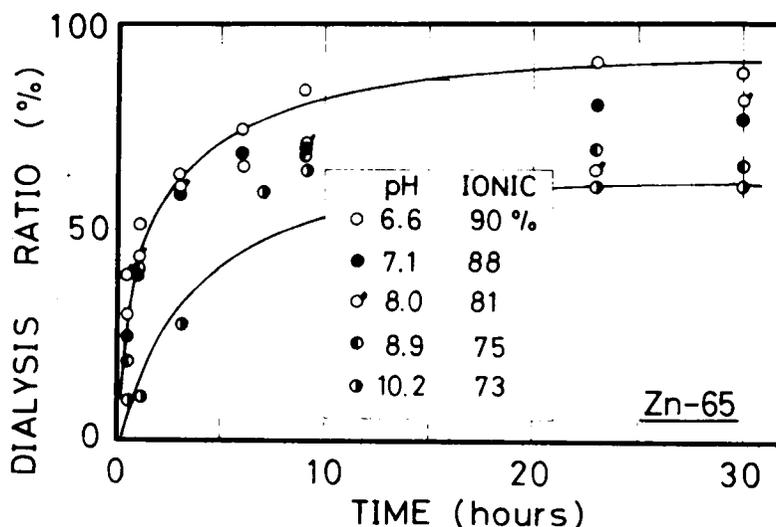


Fig.3-6 Dialysis Curve Ionic Fraction of Zn-65

Table 3-8 Deposit Rate of Cd-115m to Membrane Filter

Membrane Filter	pH					
	5.0	6.1	7.1	8.0	9.0	10.1
R A W P	0.50%	0.65%	0.71%	1.63%	1.00%	0.96%
A A W P	0.57	0.75	0.93	1.73	0.85	1.05
H A W P	0.54	0.79	0.91	1.36	1.21	1.21
G S W P	0.37	0.68	0.91	1.34	2.10	2.18
V C W P	0.52	0.95	1.03	1.61	2.63	4.29
V M W P	0.54	1.04	0.93	1.15	2.82	4.31
V S W P	0.97	1.07	1.47	1.65	2.99	5.33

Table 3-9 Distribution Coefficient of Cd-115m by Ion Exchange Resin (ml/g)

Type of Resin	pH					
	5.0	6.1	7.1	8.0	9.0	10.1
Cation Resin	4808	511	140	96	34	14
Anion Resin	0.8	2.0	9.3	26	42	168

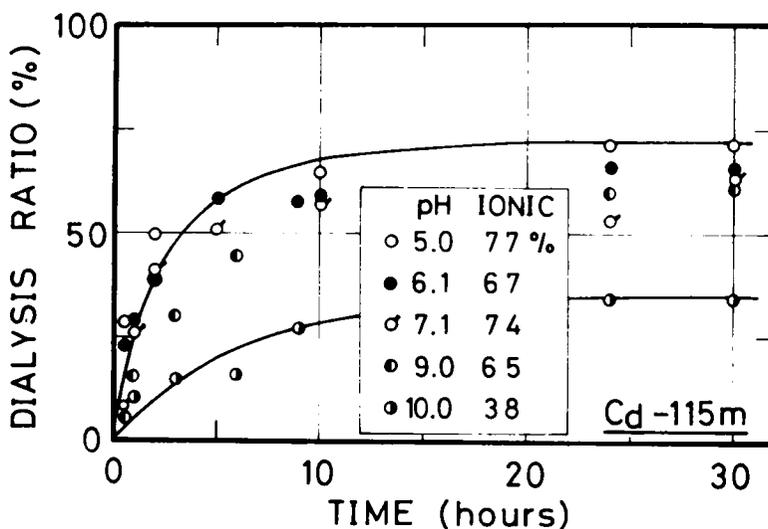


Fig.3-7 Dialysis Curve and Ionic Fraction of Cd-115m

ilter-への沈着率は pH9以上になると急に増加し、pH10.2では 0.1 μm の孔径を持つフィルターへ約 30%、0.025 μm のフィルターには 43.5% も沈着している。透析実験の結果とフィルターへの沈着率とを比較すると、pH9以下では、コロイドは 24 \AA 以上 250 \AA 以下の粒径であるが、pH10以上になると 250 \AA 以上の粒子に成長することが予想される。しかし、フィルターは通水量が多くなると目づまりを起こしてくるので、全ての粒子が 250 \AA 以上になっている訳ではない。pH 6.4 での遠心分離の結果を見ると、100 \AA 以上の粒子状亜鉛は 11% を占めており、透析実験の結果と良い一致を示している。陽イオン交換樹脂による分配係数 K_d は pH の増加とともに減少している。これはメンブランフィルターによる吸着実験の結果と一致しており、加水分解の開始を示している。一方陰イオン交換樹脂による K_d 値は逆に増加している。錯形成反応の計算結果を見ると、pH8 からイオン濃度 $[\text{Zn}^{++}]$ は減少し始め $[\text{Zn}(\text{OH})^+]$ が生成し pH9 を超えると負の電荷を持つ $[\text{Zn}(\text{OH})_3^-]$ が増加してくる。分配係数 K_d 値の pH による変化の傾向は錯体形成の計算結果と一致している。すなわち、pH が高くなるにつれて陽イオン交換樹脂による K_d 値が減じ、pH10 では、負の電荷を持つ $[\text{Zn}(\text{OH})_3^-]$ が大部分を占めるので、陰イオン交換樹脂による K_d 値が増加している。前節で述べたように、pH7.9 以下では Zn^{++} は SO_4^{--} と反応し、スルファト錯体の生成が卓越する。

4-2 ^{115}mCd の存在形態

^{115}mCd の実験結果を Tables 3-8, 9, Fig. 3-7 に示す。 ^{115}mCd の透析率は低く、イオン存在率は pH 5.0 でさえ 77%、pH 8.5 で 65%、pH 10.0 になると 38% にまで下がった。しかしメンブランフィルターへの沈着率は少なく、pH 10.1 で孔径 250 \AA フィルターへの沈着率は 5.33% であった。亜鉛のコロイドに比べ、カドミウムコロイドの粒径は小さい。 Cd^{++} イオンは酸溶液中ではほとんどアコイオンとして存在する。計算によると、Fig. 3-2, Table 3-3 に示されているように、pH 8.2 以下での卓越種であるフロロ錯体比は小さく、pH 8.2 以上ではヒドロキソ錯体が形成される。pH 8.2 以上で $\text{Cd}(\text{OH})^+$ 、pH 9.5 以上で $\text{Cd}(\text{OH})_2$ 、pH 10 以上で $\text{Cd}(\text{OH})_3^-$ 、pH 11 以上で $\text{Cd}(\text{OH})_4^{--}$ の存在比が増加してくる。しかし、陽イオン交換樹脂による K_d 値は pH 6 以上では急激に減少し、また陰イオン交換樹脂による K_d は pH

10.1 で急に増加しており、負の電荷を持つ $\text{Ca}(\text{OH})_3^-$ の生成される pH と良い一致が得られた。

4-3 ^{60}Co の存在形態

実験結果を Tables 3-10, 11, Fig. 3-8 に示す。通常の水溶液中の化学では、II 価と III 価の 2 つがコバルトの重要な酸化状態であるが、錯形成剤の含まれていない水溶液中では、Co(III) への酸化はきわめて起こりにくいので、ここでは II 価のコバルトについてのみ考える。Table 3-3 から予想されるように、pH が低い (8.1 以下) とほとんどイオン状 (Co^{++}) で存在しており、陽イオン交換樹脂による K_d 値は 1000 以上の高い値が得られている。メンブランフィルターへの沈着率は、pH 8.3 くらいまでは特に有意な差は見られないが、pH 9.5 では数%まで高くなっている。透析実験の結果も pH の増加とともに透析率が減少、pH 9.5 ではイオン存在率は 74%であった。錯形成の計算によると (Fig. 3-3), pH 9.5 で約 45%が $[\text{Co}(\text{OH})^+]$ になっており、陽イオン交換樹脂による K_d も 34 と小さくなっている。

Table 3-10 Deposit Rate of Co-60 to Membrane Filter

Membrane Filter	pH					
	5.4	6.4	7.0	7.8	8.3	9.5
R A W P	0.78%	2.28%	0.38%	0.53%	0.68%	1.53%
A A W P	1.36	2.21	0.36	0.48	0.60	1.38
H A W P	0.65	1.76	0.52	0.53	0.66	1.55
G S W P	0.89	1.23	0.55	0.65	0.73	2.25
V C W P	0.78	2.41	0.57	0.63	0.90	5.39
V M W P	0.66	1.26	0.52	1.40	1.30	5.08
V S W P	0.76	1.95	0.64	1.43	1.46	5.33

Table 3-11 Distribution Coefficient of Co-60 by Ion Exchange Resin (ml/g)

Type of Resin	pH					
	5.4	6.4	7.0	7.8	8.3	9.5
Cation Resin	2243	1077	1778	991	362	33.9
Anion Resin	5.2	1.4	1.3	6.2	10.2	38.6

遠心分離の実験結果を見ると、pH 6.7 でさえ、 100 \AA 以上の粒径を持つ Co の存在比が 43% と高い値になっているが、上の結果から考えて、実験操作上の誤りであろうと思われる。

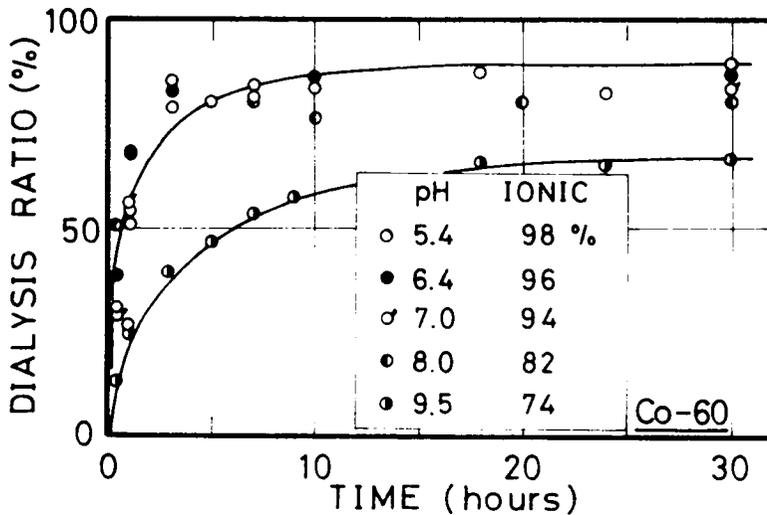


Fig.3-8 Dialysis Curve and Ionic Fraction of Co-60

4-4 ^{90}Sr — ^{90}Y の存在形態

実験結果を Tables 3-12 15, Figs.3-9,10 示す。本実験には放射平衡にある ^{90}Sr — ^{90}Y を用いたので、実験直後のサンプルの放射能強度と約3週間後の新たな放射平衡に達した後の放射能強度とから計算によって ^{90}Sr と ^{90}Y とを分離し、それぞれの核種の放射能濃度を求めた。 ^{90}Sr は広い pH 領域にわたってイオン状で存在することが予想され、pH 10 近い所でも、透析法では90%近いイオン存在率が得られ、陽イオン交換樹脂による K_d 値は高く、またメンブランフィルターへの沈着率も少ない。ストロンチウムが微量の場合には純水中にコロイド状態のものは観察されなかったという報告がなされている⁽⁵⁾。一方、 ^{90}Y は錯形成反応論からは、pH 10 以下ではイオン状のイットリウムはほとんど錯体を形成しない。しかし、透析実験では、pH 8.8 でイオン存在率は36%となっており、pH 5-10の範囲で、陰陽両イオン交換樹脂とも K_d 値は低く、メンブランフィルターへの沈着率は10%程度である。このことから、実験を行った pH の範囲内では、イットリウムは中性の粒子またはコロイド状で存在す

る割合が高いと予想される。

Table 3-12 Deposit Rate of Sr-90 to Membrane Filter

pH	4.8	6.0	7.1	8.4	8.8	10.1
Membrane Filter						
R A W P	0.48%	0.58%	0.45%	0.48%	0.34%	0.52%
A A W P	0.42	0.39	0.39	0.28	0.39	0.42
H A W P	0.42	0.40	0.43	0.42	0.40	0.49
G S W P	0.42	0.40	0.48	0.37	0.39	0.51
V C W P	0.49	0.40	0.54	0.42	0.49	0.51
V M W P	0.43	0.44	0.60	0.46	0.44	0.63
V S W P	0.50	0.59	0.60	0.52	0.51	0.55

Table 3-13 Distribution Coefficient of Sr-90
by Ion Exchange Resin (ml/g)

pH	4.8	6.0	7.1	8.4	8.8	10.1
Type of Resin						
Cation Resin	19920	14073	14723	14648	14435	22470
Anion Resin	2.8	7.0	9.0	7.0	9.1	16

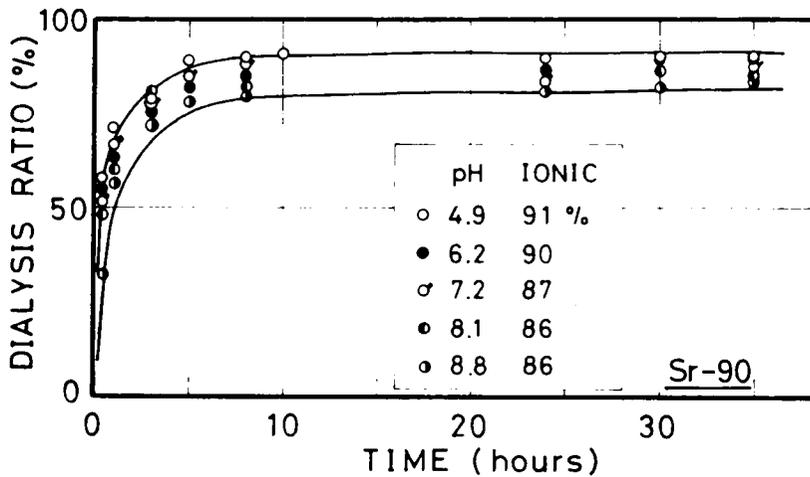


Fig.3-9 Dialysis Curve and Ionic Fraction of Sr-90

Table 3-14 Deposit Rate of Y-90 to Membrane Filter

pH	4.8	6.0	7.1	8.4	8.8	10.1
Membrane Filter						
R A W P	4.3 %	7.3%	7.7 %	7.1 %	7.2 %	21.9 %
A A W P P	2.6	7.5	6.1	6.8	6.2	20.9
H A W P	2.9	8.6	8.7	10.8	10.0	24.1
G S W P	2.2	10.1	9.7	11.2	10.2	24.7
V C W P	2.1	11.0	10.4	14.1	12.6	24.5
V M W P	2.6	11.4	11.3	14.7	13.0	24.7
V S W P	2.4	12.7	11.6	13.1	15.5	20.7

Table 3-15 Distribution Coefficient of Y-90 by Ion Exchange Resin

pH	4.8	6.0	7.1	8.4	8.8	10.1
Type of Resin						
Cation Resin	18	18	39	44	48	57
Anion Resin	83	85	74	81	49	99

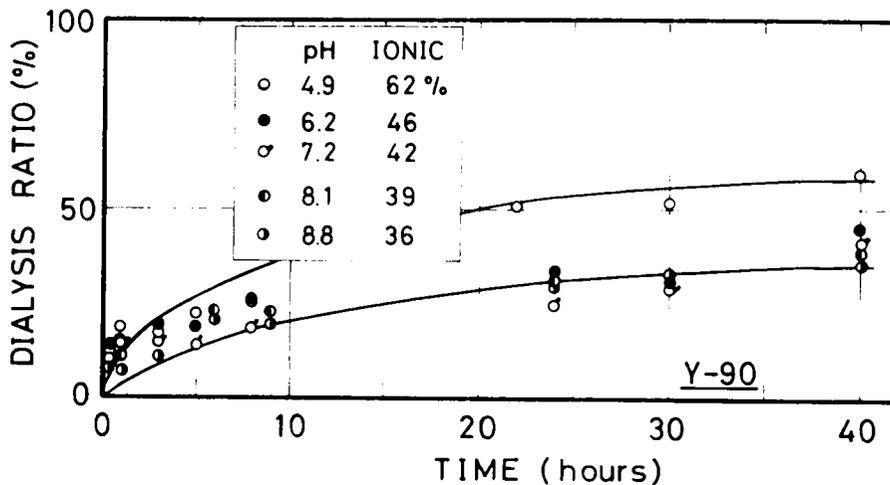


Fig.3-10 Dialysis Curve and Ionic Fraction of Y-90

4-5 その他の元素

図には示されていないが、アルカリ金属である ^{137}Cs は広いpH範囲でイオン状で存在し、実験の範囲内(pH 6-10)では、どれもほぼ100%の透析率を示した。陽イオン交換樹脂による K_d 値は350前後であった。亜鉛やコバルトに比べて、セシウムの分配係数が小さいのは前者の酸化状態が2価であるのに対し、セシウムは1価であるためである。Agは Cl^- イオンが存在すると AgCl_2^- となって沈殿することは既知の事実であるが、Table 3-4に示されているように、一部 AgCl_3^{2-} なるクロロ錯体を形成し、負の電荷を持つことが予想される。同様にPbはpHが10.4以下では、大部分がカルボナート錯体 $[\text{Pb}(\text{CO}_3)_2]^{2-}$ を形成し、負の電荷を有する。pHが11以上では加水分解を起こして、ヒドロキソ錯体 $[\text{Pb}(\text{OH})^+]$ が増加してくる。4価のセリウムはスルファート錯体が卓越種となり、大部分は $\text{Ce}(\text{SO}_4)^{++}$ または $\text{Ce}(\text{SO}_4)_2$ として存在することが化学平衡論的に推察される。金属の物理化学的存在形態を調べる場合、その酸化状態はイオン交換樹脂への分配係数によく反映される。形態がイオンかあるいはコロイド、粒子状であるかを見るには、セロファン膜を利用した透析実験によって24Åを境にして分離できる。またコロイドや粒子の粒径を求めるには、遠心分離法がよい実験法であると思われる。

第5節 要約

本章では数種の放射性核種の、河川水中における物理化学的存在形態に関する実験的な検討を行った。また最も簡単な単核錯体について、金属錯体平衡論から、その第一段階反応の卓越種について、錯体百分率を計算し、実験結果との比較を行っている。ここでは、各核種についての考察を繰返して述べることをしないが、簡単な配位子しか含まれない水溶液中の錯形成反応は、一般的には、卓越種についてのみ考慮すれば十分であると思われる。しかし、実際の環境では、数多くの有機配位子の存在が考えられるし、また複核錯体を形成するなど極めて複雑な平衡が成立していると考えられる。金属の錯体反応の安定度は、配位子の種類によって、多少順位が変動するので一定でない

が、ほぼ次の順序となることが報告されている⁽²³⁾。

1 価 $Ag > Na > K > Tl > Li > Rb > Cs$

2 価 $Pd > Hg > UO_2 > Be > Cu > Ni > Co > Pb > In > Cd > Fe > Mn >$
 $Mg > Ca > Sr > Ba$

3 価 $Fe > Ga > Al > Sc > Y > Pr > Ce > La$

第1段階反応から決定した卓越種の錯形成反応の結果とイオン交換樹脂による分配係数 K_d 値の pH による増減傾向とは定性的に良く一致している。メンブランフィルターへの吸着は、どの核種も一般に pH の増加と共に増加しているが、一部のデータを除いて、孔径 ($1.2\mu m \sim 0.05\mu m$) による有意な差は認められず、 $0.025\mu m$ のフィルターへの吸着量は幾分多い。コロイドまたは、粒子状で存在するものの大部分の粒径は、透析膜を通過しない 24 \AA 以上からメンブランフィルターの最小孔径 $0.025\mu m$ (250 \AA) の間にあるものと思われる。ここで対象とした元素は、河川水中では、一般に pH の増加と共に、陽イオン交換樹脂による分配係数は減少し、逆に陰イオン交換樹脂による値は増加する傾向にある。その変化傾向は連続的ではなく、各元素の化学状態に応じて飛躍的な変化を起すことが認められた。これは錯体形成反応や、負に帯電したコロイドの生成などに原因するものと思われる。

本章では、河川水を対象として実験的検討を行ったが、河川水の水質は海水のように安定している。また緩衝力も弱いので、pH の影響を受けやすい。したがって、ここで述べた結果は1つの事例研究と考えるべきであるが、一般的な性質は失なわれていないと考えてよい。ここで対象とした河川水は十分酸素が供給されており、酸化性の環境にあると考えられる。しかし、深海のように溶存酸素の低い所や、浅海であってもヘドロの堆積しているような所、あるいは淡水系でも閉鎖的-半閉鎖的な酸素の供給の少ない還元性の環境下では、酸化還元電位 (Eh) が負になり、重金属の存在形態は著しく異なってくる。

天然水は複雑なシステムであり、その化学的性質は多くの変数を考えることなしに記述できない。この複雑さを取り除くために、上に述べたような熱力学的平衡の理論によって、単純化されたモデルがたてられ、実際のシステムを理解し、予測する手助けと

なる。しかし、これは飽くまで、モデルの1つであり、実現象を説明するためには、十分な実験データの蓄積が必要であると思われる。実際この分野の研究は、一方では理論的な追求が行われている⁽⁶⁾とともに、他方では、種々の方法による実験的研究がすすめられている。物理化学熱力学に基づく重金属の存在形態に関する理論的研究が、複雑な自然システムにおける現象をどこまで表現し得るか、あるいは逆に自然システムをどこまで簡略化して考えることにより理論的取り扱いが可能となり、放射性物質や一般重金属による環境汚染問題に対処し得るようになるかは今後の重要な課題である。

参 考 文 献

- (1) A.E.Greenale and N.E.Ballov, (1954) Physical State of Fission Product Elements Following Their Vaporization in Distilled Water and Sea Water. USNRDL-436
- (2) 井上頼輝, (1970) 放射性廃棄物の地中処分に関する基礎的研究。京都大学学位論文
- (3) 石川昌史, 佐迫誠道, (1973) ルテニウム-106の海水中における化学挙動と生物濃縮について — ニトロシルルテニウム—クロロおよびニトラト錯体分画イオン種とその生物濃縮 —。日本放射線影響学会第16回大会講演要旨集 p.68
- (4) F.G.Lowman T.R.Rice and E.A.Richards, (1971) Accumulation and Redistribution of Radionuclides by Marine Organisms. in Radioactivity in the Marine Environment, The Report of National Academy of Science
- (5) И.Е. СТАРИК, (1960) ОЧОБ ЪЛ ПАИОХИМИИИ. 邦訳 市川富士夫, 岡下宏, 石渡良志 記, 放射化学の基礎, 南江堂
- (6) A.Piro, (1970) Physico-chemical States of Some Trace Elements in Sea Water Which are of Interest from the Radiocontamination Stand-Point. Rev. International Oceanography Med. Tome XX, Rt/Prot(72)10
- (7) A.Piro, et al., (1972) Incomplete Exchange Reactor Between Radioactive Ionic Zinc and Stable Natural Zinc in Sea Water. Symposium on the Interaction of Radioactive Contaminants with the Constitute of the Marine Environment, IAEA/SM-158/2
- (8) S.Hirano, T.Koyanagi and M.Saiki, (1972) On the Physico-chemical Behavior of Radioactive Cerium in Sea Water. Symposium on the Interaction of Radioactive Contaminants with the Constitute of the Marine Environmrnt, IAEA/SM-158/3

- (9) J.Ancellin, (1972) Aspect Biologiques et Physico-Chimiques de la Contamination Radioactive d'Espèces et de Sediments Marins. Symp. on the Interaction of Radioactive Contaminants with the Constituent of the Marine Environment, IAEA/SM-158-19
- (10) F.G.Lowman and R.Y.Ting, (1972) The State of Cobalt in Sea Water and Its Uptake by Marine Organisms and Sediments. Symp. on the Interaction of Radioactive Contaminants with the Constituent of the Marine Environment, IAEA/SM-158/23
- (11) 本田嘉秀, (1975) 海水中におけるRIの物理、化学的挙動。海のラジオエコロジー予稿集, オ2回放射医研環境セミナー, pp.16-18
- (12) 日立分離用超遠心機 (65P形) 取扱説明書
- (13) F.Ichikawa and T.Sato, (1966) Studies of the Behavior of Carrier Free Radioisotopes, II. The Colloid Formation of Radioactive and Nonradioactive Europium in Solutions of Extremely Low Concentration. Radiochimica Acta, Band 6, Heft 3, pp.128-133
- (14) A.Ringbom, (1963) Complexation in Analytical Chemistry. John Wiley Willey and Sons Inc., New York, 邦訳 田中信行, 杉清子 錯形成反応—分析化学における応用—, 産業図書
- (15) 上野景平, (1969) 入門キレート化学. 南江堂
- (16) W.Stumm and J.J.Morgan, (1970) Aquatic Chemistry. John Willey and Sons, Inc., 邦訳 安部喜也, 中谷高久 一般水質化学上, 共立出版
- (17) L.G.Sillén and A.E.Martell, (1971) Stability Constants of Metal-Ion Complexes. Supplement No.1, Special Publication No.25 The Chemical Society, London
- (18) 堀部純男, (1970) 海水の化学. 海洋化学基礎講座 10 東海大学出版会
- (19) L.G.Sillén, (1968) 海水と配位化学. 脇博彦 訳, 化学の領域, 増刊号 84, pp.71-84

- (20) 井上頼輝, 青山 勉, 橋本徳昭, (1973) 水中における微量重金属の存在形態に関する実験的研究。土木学会才 28 回年次学術講演会概要集, 才 2 部, II - 240
- (21) 井上頼輝, 青山 勉, 酒井孝志, (1975) 水中における微量重金属の存在形態と底質汚染, 土木学会関西支部年次学術講演会概要, II - 69
- (22) F.C.Cooton and G.Wilkinson, (1962) Advanced Inorganic Chemistry. John Willey & Sons, Inc., 邦訳, 中原勝儼, (1972) 無機化学(下) 培風館
- (23) 柴岡雄次, 木村健二郎監修, (1959) 無機化学全書 XV-2 錯塩, pp.383 岩波書店

第4章 藻類による放射性核種の濃縮に関する研究

第1節 概説

種々の発生源から水圏生態系に導入された放射性核種は、それぞれの物理化学的な存在形態に応じて、水中での挙動が異なることが前章で述べられた。例えば、海洋生態系では、フォールアウト（放射性降下物）によってもたらされる放射性核種は、気象の特性によって局地的に放射性物質の降水量にちがいはあるにせよ、ほぼ海面一様に分布して海洋の放射能汚染を引起こした。原子力施設から沿海洋へ放出される低レベル放射性廃液は、フォールアウトに比べると、比較的高い放射能汚染を引起こすが、海洋での水平方向の拡散は鉛直方向の拡散に比べて著しく大きく、初期における放射性核種の表層での拡散に次いで、鉛直方向の拡散が起こり、極めて長期間の間に放射性核種は海底の深層部にまで達し、海洋全体に放射性核種が分布するようになる。海洋に導入された放射性核種の輸送と海洋での再分布は、上に述べたような海洋の地球化学的挙動に依るものとすると、生物学的なサイクルによる挙動も軽視できない。水圏生態系での放射性核種は次の3つのうちのいずれかの形態で存在している。すなわち、

- (1) 溶解性あるいは浮遊物のままで水中に存在する。
- (2) 海底に沈降、沈殿し、また再浮遊する。
- (3) 動植物に摂取され、やがて生物の分解とともに水中に再移行する。

放射性核種はこれらの3つの過程により、水中、沈殿物、生物の間を Fig.4-1 に示すように、相互に関連し合いながら、生態学的、物理、化学的作用を受けつつ生態系を循環する。水圏生態系に生息する生物は

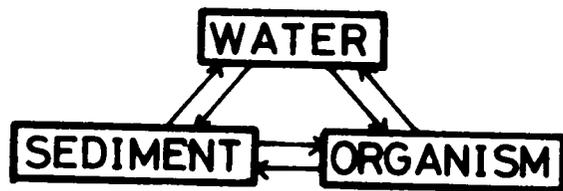


Fig.4-1 Transport of Radionuclides in Aquatic Environment

、環境水から直接に、あるいは食物連鎖を経て間接的に放射核種を吸収、摂取し、蓄積、濃縮する。一方ではこれとは逆に、放射核種は生物の生理的な排泄と分解とによって、生物から再び環境水の中へ移行する。この様に水産生物による放射性物質の移行は、平面的な移行だけでなく、海を深層部への移行に大きな役割を果たしていると考えられる。1945年以来の大気圏での核実験の結果、フォールアウトとして海洋中にもたらされた ^{137}Cs 、 ^{90}Sr が、深海6000~8000mの地点から検出されており⁽¹⁷⁾、これには、放射核種の鉛直拡散による移行とともに、生物による輸送も決して少なくないと思われる。底棲生物による放射核種の蓄積は、主に表面水からのプランクトン⁽⁵⁾のような有機物の堆積と無微的粒子の沈降とから起きている。三宅らは深海水の滞留時間の推定を行なうのに、放射性炭素 ^{14}C を測定しており、生物遺体の分解による放射核種の移行の寄与が少なくないことを指摘している。海洋においては浮遊性の藻類はその量が最も多いために、環境水からの放射核種の除去に大きな役割を果たすことになるであろう。ある特定の放射核種に対する濃縮係数が一定ならば、生体量 (Biomass) の最も大きい生物種が放射核種の移行に最大の役割を演じる。また生態学的な食物連鎖を通してのエネルギーと物質の流れから考えると、海洋での生物の生産は藻類の生産に基礎を置いており、一般には生態学的地位 (Ecological Niche) が食物連鎖の下位にあるもの程、生物の個体数、生体量ともに急激に増加する^(9~11)。このように、植物プランクトンは水圏生態系における第一次生産者として、放射性物質循環の主要な担い手として、特に重要な生態学的地位を占めている。藻類による放射核種の濃縮は、藻細胞の微妙な生理化学的現象に影響されることが多く、それに付随しての実験データの解釈の困難さと実験操作上の繁雑さがあることから、研究論文の数は比較的少ない。更に研究対象が人間の放射線被曝に直接的に関係する魚類に移り、1960年代の半ば以後には余り目立たず研究は行なわれていない様である。特に放射核種の濃縮過程の動力学的側面からの研究は少ない。しかし、放射核種のみならず一般重金属による水圏生態系の汚染が著しくなりつつある今日、従来はされてきた生物濃縮の生理学的なアプローチだけでなく、生態学的な視点からの研究が一層重要になってきていると考える。それ故、本章では植物性プランクトンによる放射核種の濃縮について、現在まだ十分明らかでない濃縮過程の動力学的な側面からの

研究を重点的に行なう。

第2節 従来の研究

生物システムにおける放射性核種の移行に関する生物学的な研究は、古くは1943年 Robinson⁽¹²⁾の研究に見られ、その後原子力エネルギーの開発による海洋の放射能汚染以来一層進んできている。1950年代半ばには、最大許容濃度(MPC)や生物濃縮⁽¹³⁾についての概念が確立された。動物プランクトンによる放射性核種の吸着、濃縮に関する研究も、第一節で述べたように、その生態学的地位や、放射性核種の水圏環境での輸送に果たす役割の重要性から古くから研究されてきた課題である。淡水性プランクトンより海洋性プランクトンについての研究がこれまでより多くはされているのは、核兵器の実験に伴うフォールアウトによる海洋の放射能汚染が人類の放射線被曝にとって重要な問題を提起しているためであろうと思われる。プランクトンの種類は極めて多種、多様であり、更に保健物理学的に重要な放射性核種の数、あるいは種々の環境要因を考えると、その組み合わせ数は膨大なものであり、放射生態学におけるこの分野の研究が比較的古くから行なわれたとは信ぜ、研究されなければならぬ課題の数から見ると、現在なお未だその緒についたばかりであると言っても過言ではあるまい。放射性核種の種類については ^{32}P および ^{32}P の有機化合物についての研究が古くから見られる⁽¹⁴⁾⁽¹⁷⁾。これらは放射性物質による環境汚染という視点からの研究というよりも、むしろ生物にとって必須元素であるリンのプランクトンによる代謝過程に関する細胞生理化学的研究という視点からなされたものと理解されよう。以下、いく種類かの藻類による放射性核種の濃縮に関して、これまでに得られたいくつかの知見について、若干の支離的考察を行なう。

Polikarpov⁽¹⁶⁾は放射生態学の分野で、生物による放射性核種の濃縮係数に影響を及ぼす因子として、次の6項目をあげている。①放射性核種の濃度、②担体濃度③pH、④共存イオン濃度、⑤光量、⑥錯塩形成物質の濃度。この分野の研究でこれまで行なわれてきた主要な研究は上記の環境要因の他に、藻類生体量、藻細胞の分裂速度、細胞の生理的機能等が藻類によるいろいろな放射性核種の濃縮性におよぼす影響に

ついて調べることにあった。

先ず種々の環境要因の放射性核種の濃縮におよぼす影響について見る。

Bachmann⁽¹⁸⁾ は6種の海洋底棲藻類を暗ビンおよび明ビン中で培養し、⁶⁵Znの摂取速度と一次生産性との関連について論じている。それによると、明ビン中では明確な⁶⁵Znの摂取が起こるが、暗ビン中では測定可能な有意な摂取は起こらなかったと述べられている。しかしOdum et al.⁽¹⁵⁾ は7種の藻類について、藻類の単位生体量あたり³²Pの摂取速度をBachmannと同じ手法で求め、明ビン、暗ビンいずれの場合も同じであったと論じている。両者は*Fucus vesiculosus* (ヒバマタ属の海藻)を除いて異なる種の藻類、放射性核種を実験に用いていたので、^(18,19)これらの結果から一般的な結論を導き出すことはできない。またTaylor et al.⁽²⁰⁾ は海洋底棲藻類による⁵⁹Fe, ⁴⁵Ca, の摂取について実験を行い、やはり明ビン中および暗ビン中いずれの培養の場合にも感知される程の差はないとしている。Bachmannの実験結果では、光のある場合とない場合とでは⁶⁵Znの摂取に関して藻細胞の生理機能は明らかに差があり、Odumの実験結果では³²Pの摂取に関しては、生理機能に有意な差がないことを示唆している。リンは生物にとって必須元素であるが、亜鉛は必ずしも必須元素であるとはいえないので、両者の結論の相異は元素の違いに起因するものか、それとも藻類の種の違いに起因するものか明らかでない。Polikarpov⁽¹⁶⁾ は、カリウムやセシウムのような第1族の元素の植物による濃縮は、光合成やそれに関連する過程に影響されるということから、ある種の元素の濃縮に関して、光は大きな影響を持っていると論じている。彼は同じ著書の中で、放射性核種の蓄積に及ぼす温度の影響は少ないと述べているが、温度の影響についての研究は他に余り見当たらないようである。

水中における放射性核種の物理化学的な存在形態は環境水のpHによって異なることを既に第3章で述べたが、水産生物による放射性核種の濃縮もpHによって影響を受けるといふ論文がいくつか報告されている。Rice⁽²⁰⁾ は培養液のpH 8.2を対照群として、pH 6.0とpH 9.0との培養液について、緑ソウ類 *Carteria* 細胞によるストロンチウムの濃縮実験を行い、三者を比較している。それによると、pH 8.2の対照群の濃縮係数は975、pH 6.0では273、pH 9.0では85になったと報告されて

おり、彼は培養液 pH が対照群の pH と比べて酸側に片寄っても、又アルカリ側に片寄っても濃縮係数が小さくなる原因は水素イオン (H^+) によって影響されるばかりでなく、細胞の分裂速度の減少にも起因すると説明している。細胞分裂と濃縮係数との関連性については後述する。自然状態での海水中では、水素イオン濃度は極めて安定しているのだ。海洋プランクトンを対象とする場合には pH の影響については特に考慮を私ねなくとも良く、環境要因によって pH の変わりやすい淡水プランクトンの場合に注意を要するであろう。

藻類による放射性核種の濃縮におよぼす環境要因の一つとして、特に、ストロンチウム-カルシウム、セシウム-カリウムのような同族イオンの濃縮に及ぼす影響についての研究が見られる。Pickering et al⁽²¹⁾ はカルシウムイオン濃度を 0 - 60 ppm の範囲内で変動させ、藻類によるストロンチウムの濃縮係数を求め、両者の間に次のような実験式を得ている。

$$\log(C.F)_{Sr} = 2.17 - 1.05 \log [C_a^{++}] \quad (4-1)$$

ここに $(CF)_{Sr}$ はストロンチウムの濃縮係数、 $[Ca^{++}]$ はカルシウムのイオン濃度を表わしている。この関係はストロンチウム-カルシウムの差別係数 (Discrimination Factor, $(CF)_{Sr} / (CF)_{Ca}$) が一定であることから導かれる。また Rice⁽²⁰⁾ はカルシウムの高濃度溶液を用いて実験を行っており、*Carteria* sp. では、高濃度のカルシウム液 (150 - 300 ppm) 中では、藻類によるストロンチウム摂取はカルシウム濃度にほとんど影響されないうが、75 ppm 以下になると、カルシウム濃度の減少とともにストロンチウム摂取が増加すると述べている。しかし Rice はまた、藻類による生物学的な代謝作用において、ストロンチウムはカルシウムの代用にはなり得ないことも示している。いずれにせよ、水産生物によるストロンチウムの濃縮係数の大きさを論じる時には溶液中のカルシウム濃度が明示されていなければ実際的な意味をもたないことになる。Williams⁽²²⁾ は *Chlorella* と *Euglena* による ^{137}Cs の摂取におよぼすナトリウムとカリウムの影響について実験を行っている。これによると、*Euglena* では ^{137}Cs の濃縮にナトリウムはわずしかし

影響を及ぼさないが、カリウムは著しく濃縮性を減じる。*Chlorella* では、ナトリウムの影響はほとんど見られないが、カリウムは *Euglena* の場合と同様に強い影響を及ぼすと述べられている。

この章における研究の主要な目的は、藻の生体量 (Biomass) と藻細胞の分裂速度による放射性核種の摂取に及ぼす影響を調べることにあるが、この点に関しては研究者によってさまざまな結果が報告されており、現象に対する統一的认识には至っていないと思われる。例えば Fedrov は濃縮係数は生体量に依存する、つまり、生体量が減じる程、水産生物は放射性物質をより濃縮し、濃縮係数は増加すると述べている。これに対して Polikarpov は Fedrov 自身の実験データから、そのような現象はあり得ないと主張している。⁽¹⁶⁾ Morgan et al.⁽²³⁾ は *Chlorella* による ⁹⁰Y の摂取実験 Gloyna et al.⁽²⁴⁾ は ²⁰³Hg の摂取実験を行い、その結果から生体量の増加とともに濃縮係数は減少すると述べている。この実験は初期の *Chlorella* の密度を7段階に分けて、実験を開始し、24 時間後における藻の放射能濃度を測定したものである。*Chlorella* はまだ増殖と放射能の濃縮過程にあり、実験結果はその過程の一断面を表わしているのである。⁽²⁵⁾ Rice et al は *Nitzschia* による ¹⁴⁴Ce の濃縮実験を行い、細胞分裂による生物学的希釈 (Biological Dilution) のために、細胞分裂が起る度ごとに、藻細胞中の放射能は元の1になると述べている。Watt et al.⁽²⁶⁾ も藍藻類 *Plectonema purpureum* による ¹³⁷Cs の摂取実験で、細胞分裂毎に放射能は50%ずつ分かれると述べている。⁽²⁷⁾ 本田等は *Chlorella* の恒温振盪培養により、⁶⁰Co, ¹⁰⁶Ru, ¹⁴⁴Ce, の摂取実験を行い ¹⁰⁶Ru, ¹⁴⁴Ce は Rice と同様に生物学的希釈による藻細胞の比放射能の減少と認めており ⁶⁰Co については減少しなかったと報告している。彼等はこの摂取パターンの違いを、水中における放射性核種の存在形態の違いによるものであろうと推定している。Rice⁽²⁰⁾ は又、*Carteria* 細胞によるストロンチウムの摂取については、細胞分裂が活発に行なわれる程多くのストロンチウムが培地から藻によって除去されると述べ、これは新しい原型質の形成に関係があるにちがいないと論じている。

浮遊性藻類による放射性核種の摂取・蓄積に関するこれ迄の研究の一端を上に述べてきたが、これらの研究の多くは海洋性のプランクトンを対象にしたものであり、プラン

クトンの種類の多様性, それに加えて放射性核種の水中における物理化学的な存在形態, 挙動の複雑さと相俟って, この分野の研究はまだまだ緒についたばかりの感がある。従来の研究から: pH, 光量, 共存イオンという様な環境要因の濃縮に及ぼす影響については, ほぼ一般的な傾向を論じることができるようである。しかし, 放射性核種の濃縮過程において, 藻類の生体量や細胞の分裂速度等の果す役割については, 生物種, 放射性核種の種類により異なり, 又生理学的な影響の複雑, 多様性のために十分な研究が行われていず, まだ一般的な見解には達していないように思われる。

第3節 藻類による放射性核種の濃縮過程の理論的考察

3-1 理論的考察

第5章において詳述するように, 水産生物による放射性核種の濃縮過程を表わす動力学は, 多くの場合に一次の微分方程式から導かれる指数関数則によって表現されるといわれている。⁽²⁸⁾ しかし前節において, 藻類による放射性核種の濃縮に関する従来の研究について述べたように, この分野における理論的な研究は極めて少ない。わずかに,

Barinov⁽²⁰⁾ が Roginsky の理論に基づいて3つの型の公式をあげているに過ぎない。これを Table 4-1

に示す。それぞれの式は

Table の右欄に示した

各種の吸着速度式に対応す

るものである。⁽²⁹⁾ 藻類による

放射性核種の取り込みの

機構に関して, 次の6つの

代謝および非代謝過程があ

げられている。^(30,31) すなわち,

(1)見かけの自由空間 (Apparent free space) への侵入, (2)吸着交換, (3)物理的吸着, (4)代謝蓄積, (5)漏出, (6)拡散交換の6つの過程である。

Barinov の3つの公式は, 藻細胞表面での吸着のみに注目したものである。

Table 4-1 Mass Transfer Models

Calculation Formula (from "Radioecology of Aquatic Organisms")	Adsorption Rate Equation
Logarithmic $K = K_1 + n \cdot \ln(t)$	Samejima $V = B + k \cdot \ln(t)$
Power $K = K_1 \cdot t^n$	Bangham $V = k \cdot t^m \quad (m > 1)$
Power-logarithmic $K = K_1 (\ln t)^n$	
Exponential $K = K_s (1 - e^{-t})$	Langmuir $V = V_e (1 - e^{-t})$

藻類とくに単細胞藻類はその体積に比して、表面積が広いので、核種の種類あるいは核種の存在形態によつては、細胞内への吸収蓄積よりも細胞表面での吸着の方が重要な役割を果すことは十分考えられる。しかし単細胞藻類と言えども、生命を有するものであり、物質の摂取と排泄というその生物学的代謝の機構を無視することはできないであらう。このような観点から、筆者は Barinov の言う様に、生物による放射性核種の取り込みを吸着速度式によつてのみ論じることには一定の限界があると考えられる。事実、Table 4-1に示した吸着速度式では、時刻 $t=0$ や $t=\infty$ における核種の濃縮量は定義されず、一定の時間範囲内における現象的な、実験値と計算値との一致が得られても、生理学的に予言している。またさらに、よりマイクロには、細胞の生物物理学的なアプローチから、主としてナトリウムイオン、カリウムイオンの生体膜を通してのイオン輸送の研究がなされており、^(32~35)決して表面吸着だけではなく、細胞の内部へイオンが取り込まれることは明らかである。生物による放射性核種の細胞内蓄積の問題を本質論的に把握するためには、このような細胞の生理化学、生物物理学的な研究方法論を避けて通ることは出来ないのであろう。しかし生態系における放射能汚染の影響を評価するという観点からは、もっとマクロな視点から見た現象論的な認識段階で十分目的を達成できよう。ここではそのような見地から、細胞の生理学的な厳密な反応はさておき、細胞活動による放射性核種の摂取と排泄の關係のみに注目して、藻類による放射性核種の濃縮過程に指数関数モデルの適用を行い、また Rice⁽²⁵⁾ や 本田⁽²⁷⁾らの実験結果に見られる生物学的希釈の現象、すなわち藻細胞の分裂、増殖による藻中の比放射能の減少を数理モデルから説明することを試みる。^(36,37)

生物一個体あるいは臓器についての放射能の濃縮過程を表わす指数関数モデルは、体内の放射能濃度の時間的变化が単位時間当たりの放射能の摂取量と排泄量との差によつて定まり、摂取量は環境水中濃度 C_w に比例し、排泄量は体内濃度 C_t に比例するという仮定に基づいており、次式で表わされる。

$$\frac{dC_t}{dt} = \alpha C_w - \beta C_t \quad (4-2)$$

ここに α は摂取速度定数、 β は排泄速度定数である。

今植物プランクトンの場合のように、放射能の摂取速度に比べて、かなり速い増殖が起る場合、生体量の増加を無視することはできず、藻の増殖によるプランクトン中の放射能濃度の減少、すなわち生物学的希釈効果が予想される。単位培養地当たりのプランクトンの生体量を M_t [mg/ml] とすると、プランクトンについての放射能の物質収支は

$$\frac{d(M_t C_t)}{dt} = \alpha M_t C_w - \beta M_t C_t \quad (4-3)$$

となる。

一般に微細藻類の生育は各細胞の容積が増大し、ついでこれが n 個の娘細胞に分裂するという過程をたどる。多くの藍藻などでは $n=2$ であるが *Chlorella* では4(38)ないし16である。その生育は一定の条件下では一般に、

$$\frac{dM}{dt} = kM \quad (4-4)$$

の形で表わすことができる。ここで M は藻の生体量、 t は時間、 k は生育速度定数である。 k の値は温度、照度、栄養条件などによって支配されるが、環境条件を一定に保てば、長時間にわたってほぼ一定に保たれることが示されている。

しかしフラスコを用いた Batch 方式による培養では、 k 値は漸次低下するようになる。 CO_2 ガスを炭素源として、光を照射して培養を行なった場合には、その生育曲線は Fig.4-2 に示すように藻密度の時間的变化は、対数期、直線期、定常期の3段階に分類ができる。(38) このようなる3つの相を

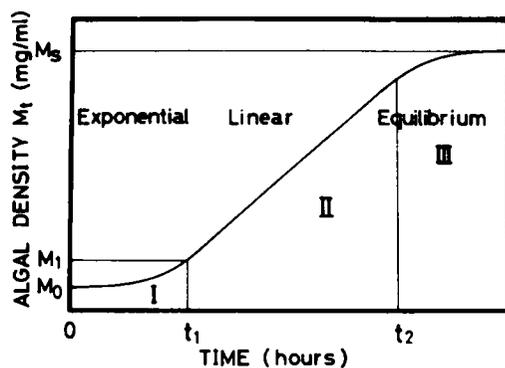


Fig.4-2 Growth Curve of Algae
 (Ist stage is Exponential Growth.)
 (IInd stage is Linear Growth.)
 (IIIrd stage is Equilibrium.)

まとめれば生長サイクルと呼ばれるが、これは微生物の特性に関わるものではなく、生物と環境との相互作用の結果として起ることである。それぞれの生育段階に対して藻密度を次のように表わす。

$$\text{I. } M_t = M_0 e^{at} \quad (0 \leq t \leq t_1) \quad (4-5)$$

$$\text{II. } M_t = b(t-t_1) + M_0 \quad (t_1 \leq t \leq t_2) \quad (4-6)$$

$$\text{III. } M_t = M_0 \quad (= \text{Constant}) \quad (t_2 < t) \quad (4-7)$$

ここで、 M_0 はそれぞれの生育段階における藻密度の初期値、 a, b は増殖速度係数である。(4-5, 6, 7) 式を(4-3) 式に代入し、初期条件として、 $t=0$ において $C_t = C_I$ とおき、環境水中の放射能濃度 $C_w = C_0$ (Constant) のときの解は次のように表わされる。

$$\text{I. } C_t = \frac{\alpha C_0}{a+\beta} \{1 - e^{-(a+\beta)t}\} + C_I e^{-(a+\beta)t} \quad (4-8)$$

$$\text{II. } C_t = \frac{\alpha C_0}{\beta} \cdot \frac{1}{bt+M_0} \{b(t-\frac{1}{\beta}) + M_0 - (M_0 - \frac{b}{\beta}) e^{-\beta t}\} + \frac{M_0 C_I}{bt+M_0} e^{-\beta t} \quad (4-9)$$

$$\text{III. } C_t = \frac{\alpha C_0}{\beta} (1 - e^{-\beta t}) + C_I e^{-\beta t} \quad (4-10)$$

また、環境水中の放射能濃度が指数関数的に減少する時、 $C_w = C_0 e^{-mt}$ と表わされ、それぞれ、

$$\text{I. } C_t = \frac{\alpha C_0}{a+\beta-m} \{e^{-mt} - e^{-(a+\beta)t}\} + C_I e^{-(a+\beta)t} \quad (4-11)$$

$$\text{II. } C_t = \frac{\alpha C_0 e^{-mt}}{(\beta-m)(bt+M_0)} \{b(t-\frac{1}{\beta-m}) + M_0 + (\frac{1}{\beta-m} - M_0) e^{-(\beta-m)t}\} + \frac{M_0 C_I}{bt+M_0} e^{-\beta t} \quad (4-12)$$

$$\text{III. } C_t = \frac{\alpha C_0}{\beta-m} (e^{-mt} - e^{-\beta t}) + C_I e^{-\beta t} \quad (4-13)$$

となる。ただしここでは、半減期の長い核種についてのみ考えており、その物理的崩

環境数を無視している。もしこれが他のパラメータの値に比べて無視し得ない場合は、上式中の β の代りに $(\beta + \lambda)$ を代入すれば良い。

3-2 計算結果および考察

先に3-1で述べた理論式に含まれるパラメータの値は、多くの環境要因によって影響を受けやすいので、本節で述べた理論式と次節以後で述べる実験結果との一般的、定性的な一致の検討を行うため、予めパラメータ(摂取速度係数 α 、排泄速度係数 β 、生育速度定数 a, b)の値を適当に仮定して、藻中の放射能の相対濃度の時間的変化の特性を調べた。計算結果

のうち数例を Figs. 4-3, 4, 5, 6に示す。Figs. 4-3, 4, 5は環境水中の放射能濃度が一定の場合について、生育段階がそれぞれI, II, III, の場合を、Fig. 4-6は環境水中の放射能濃度が指数関数的に減少する場合の直線増殖期における

藻中の放射能濃度の変化を示している。式の形から明らかのように、藻の生育過程の第I段階と第III段階では同じ濃縮パターンを示すが第I段階では、藻が指数関数的に増殖するので、濃度が平衡に達するまでの時間は短い。どの段階でも環境水中の放射能濃度が一定で、藻中初期放射能濃度 C_I が0なら、漸近的に平衡値に近づく。第II段階を例と

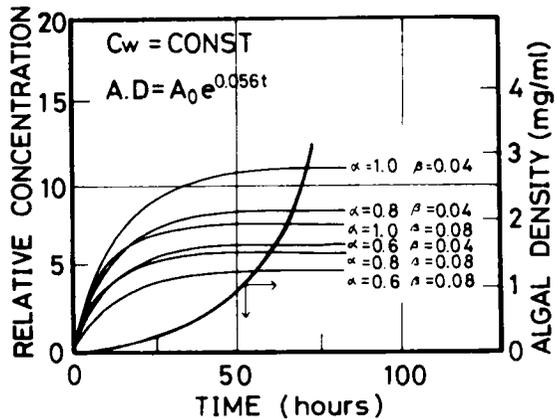


Fig. 4-3 Relative Concentration vs. Time

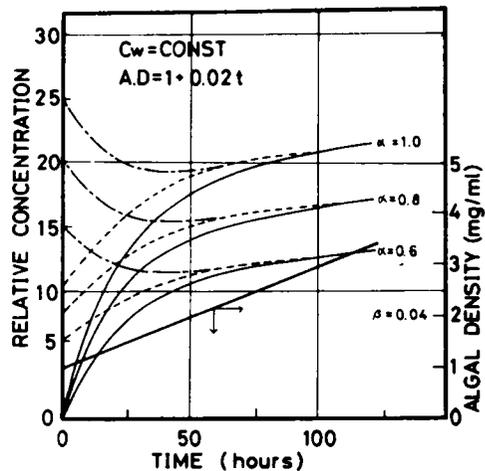


Fig. 4-4 Relative Concentration vs. Time

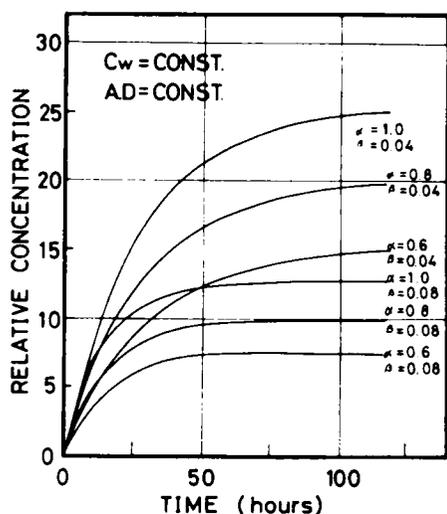


Fig.4-5 Relative Concentration vs. Time

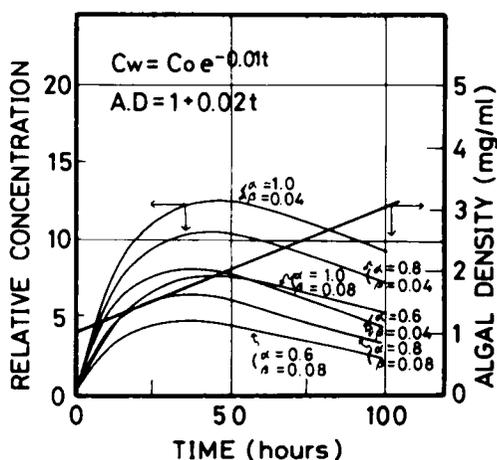


Fig.4-6 Relative Concentration vs. Time

して Fig.4-4 に点線および一点鎖線で示されているように、初期濃度がある一定の値よりも高い場合、藻の増殖に従って、藻の単位重量あたりの相対濃度が減少することが見られる。これは(4-12)式の右辺第2項の影響である。t=0 から相対濃度が増加するか減少するか、同式第1項の増加速度と第2項の減少速度の大小関係に依存する。第2項は減少関数であり、この寄与が小さくなると、初期値の大きさにかかわらず、やがて平衡濃度に近づいてゆく。環境水中濃度が減少する場合には、藻中濃度は一度ピークに達した後減少し続ける。また当然であるが、生育速度定数 α, β の値が大きいく程、生物学的希釈の度合は大きくなる。

ここで述べた理論では、トレーサーレベルの濃度を考え、環境水中の他の元素が藻によって摂取され、増殖する過程とは独立に放射性核種の摂取が起こると考えているのでこの理論で、全ての元素の摂取機構を説明することはできない。

例えばリンのような元素は、細胞の初期の増殖過程で過剰に摂取、貯蔵される。それ以後、ほとんど新しくは摂取されず、細胞内に貯蔵されたリン(P)を消費して、細胞増殖(39, 40)が起る。このような場合は、明らかに上のモデルとは摂取機構が異なる。

栄養塩の摂取と、放射性核種や一般重金属とが独立に摂取されるという仮定の妥当性

は、元素の種類によって濃縮係数が異なるという事実から、何らかの生理学的な選別が行われていると考えた。

第4節 放射線核種の藻表面への吸着

4-1 実験に関する共通事項

先ず始めに、本章における実験に関する共通事項について、まとめて述べておく。

(1) 放射線核種

本章で実験に使用した放射線核種は ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{45}Ca , ^{65}Zn , の塩化物で、いずれも日本アイソトープ協会から購入したものを塩酸酸性溶液で希釈し ^{45}Ca を除き、無担体の状態で実験に使用した。Ca の場合は後述するように、培養液中にカルシウム化合物が栄養塩として添加されている。上記の核種を選んだ理由は、 ^{137}Cs , ^{60}Co は半減期が長く、保健物理学的に重要な核種であり、 ^{45}Ca は栄養塩のトレーサーとして、他の核種との比較を行うために、また ^{65}Zn は生物への濃縮性が非常に高い核種の一例として選んだ。

(2) 植物プランクトン

実験に使用した植物プランクトンは藍藻類の一種である *Anabaena variabilis* である。これは淡水中に生息する単細胞藻類で、その増殖は8個の母細胞に分裂して進行する。細胞の大きさはほぼ数 μm である。

(3) 培養液の調整

培養液の組成を Table 4-2 に示す。藍藻用培地にもいろいろあるが、ここでは Kratz-Myers (38) の培地を基礎にして、幾通りかの培地を調整し、

Table 4-2 Constituents of Culture Medium

KNO_3	: 3.0 g	<u>A5 Solution</u>	
$\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$: 0.25 g	H_3BO_3	: 2.86 g
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$: 0.025 g	$\text{MnCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$: 1.81 g
K_2HPO_4	: 1.0 g	$\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$: 0.22 g
$\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$: 0.004 g	$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$: 0.08 g
$\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7\text{Na}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$: 0.165 g	Na_2MnO_4	: 0.021 g
A5 Solution	: 1.0 ml	Conc. H_2SO_4	: 1 drop
Distilled Water	: 1.0 l	Distilled Water	: 1.0 l

生育実験を行ない、その中で最も葉の生育状態の良いものを選んだ。

(4) プランクトンの培養

実験装置の概要を Fig.4-7 に示す。500 ml 偏平培養ビン内に300 ml の滅菌済の上記培養液を入れ、バクテリアが混入しないように火炎滅菌しながら、これに葉を接種し、純粋培養を行なった。種株は東大応微研より入手した。培養器具や培養液はオートクレーブを用い、120℃、2気圧下で滅菌した。実験の操作過程でバクテリアの混入を防ぐため、操作は無菌箱の中で行なった。照明には東芝カラー蛍光灯ピンク(40W)と植物飼育用 NEC ヴィタルックス A(40W)を各3本ずつ、実験期間中水槽の側面から照明した。培養液の水温は、ヒーターとサーモスタットでコントロールされた水槽内に培養ビン

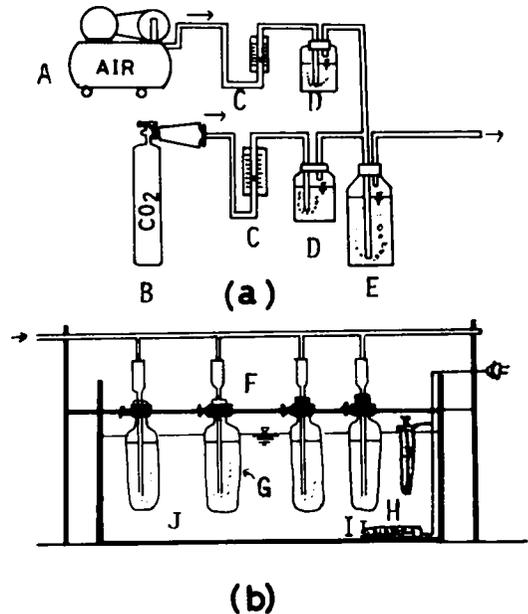


Fig.4-7 The Culture Vessel

- A: Air Compressor, B; CO₂ Bombe
- C: Flow Meter, D: Trapper
- E: Mixing Tank
- F: Glass Pipe fixed with Cotton
- G: Culture Bottle H: Thermostat
- I: Heater, J: Aqualium

を浸漬させることにより30 ± 2℃に保った。藻類は水中に溶存しているCO₂ ガスを利用して生育しているが、実験ではCO₂ ガス-空気の混合気体を一定流量(ほぼ20 cc/min)で培養液に供給した。両者の流量を調節し、CO₂ 濃度が約5%となるようにした。CO₂ ガスおよび空気を0.1%の昇こう水中を通過させることにより滅菌した。

(5) 葉密度の測定

生育段階が定常期に達した十分高密度の葉を含む培地10 mlをホールピペットで分

取し、ミソポアフィルター AAWP (0.8 μ m) 上に濾過した。これを約5時間デシケータ内で自然乾燥させ、重量減少のなくなった時点で、藻密度 (mg-wet/ml) を求めた。同じ培地を10, 20, 30, 50, 100, 200倍に蒸留水で希釈し、希釈した培地の濁度を測定し、濁度計の読みと、藻密度との関係を方眼紙上にプロットして校正曲線を描いた。両者の間には相関係数 $r=0.994$ の良い結果を得た。用いた濁度計は東京光電製 NEPHELO METER ana-14S である。

(6) 放射能の測定

藻密度に応じて、藻量が5~20 mg程度となるように培養ビンより培地を5~40 ml採取し、メンブレンフィルター (AAWP) 上に濾過し、これをアルミ製料皿に移し、ガスフローカウンターで放射線を測定した。次式によって藻中放射能の相対濃度を求めた。

$$\text{藻中放射能の相対濃度} = \frac{\text{藻} / \text{gあたりの放射能} [\text{cpm/gr}]}{\text{培養液} / \text{mlの放射能} [\text{cpm/ml}]} = \left[\frac{\text{ml}}{\text{gr}} \right] \quad (4-14)$$

液中の放射能は濾液1 mlを試料皿にとり、赤外線ランプで乾燥後ガスフローカウンターで測定した。

(7) メンブレンフィルターへの放射能吸着の補正

水中において粒子あるいはコロイド状態で存在する核種はフィルター上の吸着が起りやすいので、藻の放射能を測定する際、フィルター上に吸着された放射能を無視し得ない場合がある。この場合の補正を行うために以下の実験を行った。

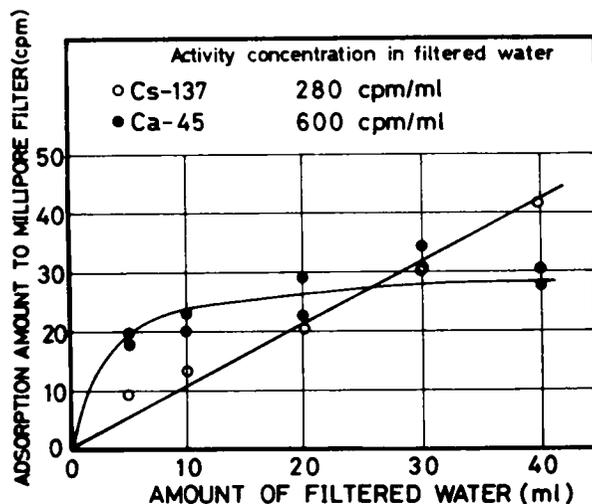


Fig. 4-8 Adsorption Amount of Radionuclides vs. Amount of Filtered Water

培養液に放射性核種を投入し、約30分間混合ガスを吸きこんだ後、培養液を5~40 ml 濾過し、メンブランフィルター(AAWP)の上に吸着した放射能を測定して、これを補正量とした。濾液の通水量と放射能の吸着量との関係は Figs. 4-8, 9 に示すように通水量が実験の範囲内では、 ^{45}Ca を除きほぼ直線関係が得られたので、次式に従って吸着量を求めた。

$$A = a \cdot x \quad (4-15)$$

ここに A : 吸着量 (cpm), a : 比例定数 (cpm/ml), x : 濾水量 (ml) である。 a の値は環境水の放射能濃度によって実験毎に決定した。 ^{45}Ca については5 ml 以上の濾過量に対して、吸着量は緩やかに増加しか示さなかったため、濾過量に関係なく一定値として補正した。いずれも吸着量は濾過した放射能に比べて十分小さい値であった。エージングの時間によって金属の存在形態母の存在比が異なるものと思われるが、前節で検討したように、pH 8前後では、エージング2日後でも、フィルター(AAWP)への放射能の吸着量は1%以下であり、実質的に無視してさしつかえない。

(8) 藻の厚みによるβ線の自己吸収の補正

藻中の放射能の測定にガスフローカウンタを用いβ線の測定を行なったので、藻の厚みによる自己吸収の影響を無視し得ない。そこで補正を次のようにして行なった。

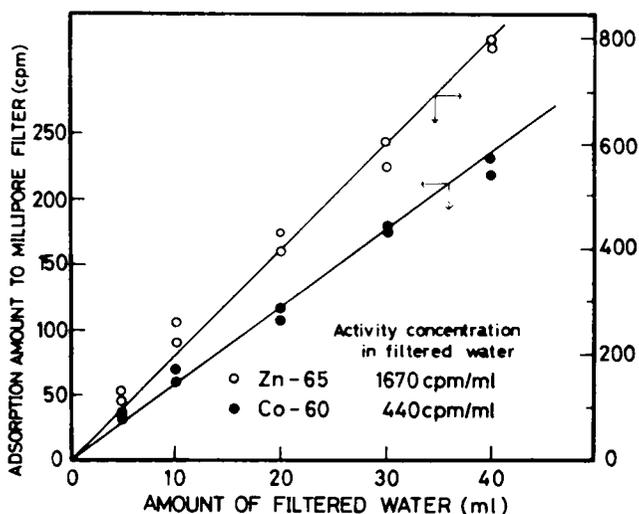


Fig. 4-9 Adsorption Amount of Radionuclides vs. Amount of Filtered Water

既にある程度放射性核種を濃縮した藻をメンブランフィルター上に濾過し、蒸留水で藻表面に吸着している放射性核種を洗淨後放射能を含まない清潔な培養液に藻を移し、藻密度を測定する。これを適当量ずつ、濾過量を変えて再度フィルター上に濾過し、放射能を測定する。β線のエネルギーは連続スペクトルを有するため、α線のように単一エネルギーとして扱った自己吸収の簡単な式では厳密には表わすことはできないが、ここでは簡単のために同じような概念で解析する。すなわち吸収体の厚さを x_0 [mg/cm] 吸収体に入射するβ線の強さを I_0 [cpm]、通過後の強さを I [cpm]、質量吸収係数を μ [cm²/mg] で表わすと、 I_0 と I との関係は

$$I = I_0 e^{-\mu x_0} \quad (4-16)$$

となる。自己吸収の場合、藻の厚さを x [mg/cm²] とし、測定された放射能を N [cpm/mg]、藻の単位厚さあたりの放射能を N_0 [cpm/cm²] とし、空気による吸収を無視すると、

$$N = \int_0^x N_0 e^{-\mu x} \quad (4-17)$$

したがって

$$N = \frac{N_0}{\mu} (1 - e^{-\mu x}) \quad (4-18)$$

が得られる。実験結果を Figs. 4-10, 11 に示す。実験結果と計算値とはかなり良い一致が得られたので、自己吸収の補正は(4-18)式で十分可能であると思われる。得られた質量吸収係数とそれぞれの核種のβ線の最大エネルギーを Table 4-3 に示す。

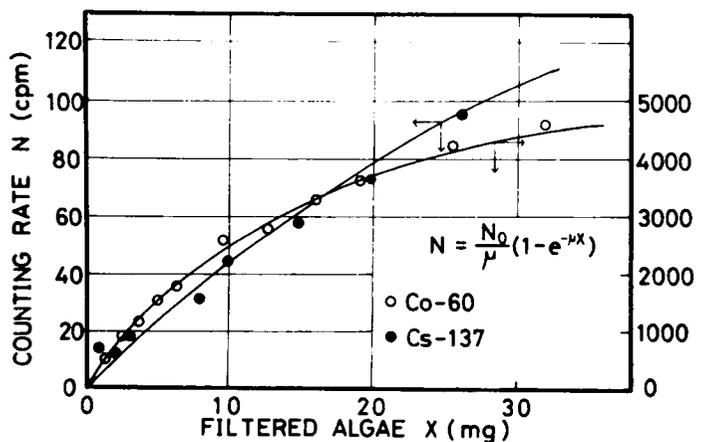


Fig. 4-10 Effect of Self-Adsorption of β -ray

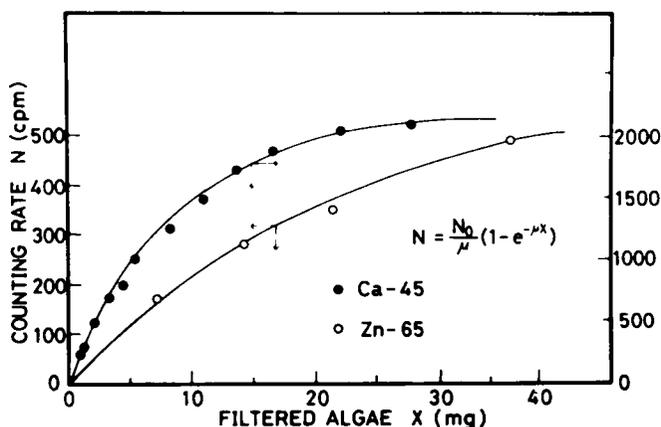


Fig.4-11 Effect of Self-Absorption of β -ray

実際の実験での測定値は、メンブランフィルターに吸着された放射能の藻による吸収効果も考慮しなければならないので、全体としては

Table 4-3 Mass Absorption Coefficient and Maximum Energy of β -ray

Nuclide	Mass Absorption Coefficient	Maximum Energy of β -ray
Ca-45	0.11 cm^2/mg	0.254 MeV
Co-60	0.075	0.312
Zn-65	0.050	0.324
Cs-137	0.025	0.514

$$N = \frac{N_0}{\mu}(1 - e^{-\mu x}) + Ae^{-\mu x} \quad (4-19)$$

したがって、藻の単位重量あたりの放射能は次式で与えられる。

$$N_0 = \frac{\mu(N - Ae^{-\mu x})}{1 - e^{-\mu x}} \quad (4-20)$$

4-2 実験材料および方法

既に述べたように、微細藻類による放射性物質の濃縮が、藻表面への吸着だけによるものか、内部へも能動的に摂取されるものか議論の分かれる点である。前章では、放射性核種の藻細胞内部への取り込みを主と考えて理論展開してきたが、細胞表面への吸着も核種によって無視し得ないことも十分あり得ると思われるので、以下の方法によ

て検討した。

定常生育期に達した藻を10%ホルマリン液中に30分間浸漬させ、藻を固定する。これをミリポアフィルターで濾過し、蒸留水で数回洗浄した後、放射性核種を含む培養液中に移し、混合ガスを吹き込んで培養ビン内の水を攪乱し、藻がビンの底に沈降しないようにして、経時的にサンプリングを行ない、藻表面への放射能の吸着量を測定した。測定値については、藻の自己吸収、フィルターへの吸着など、前述の方法によって補正した。

4-3 実験結果および考察

藻の細胞表面への放射性核種の吸着量は、 ^{137}Cs 、 ^{65}Zn については実験開始後6時間たっても有意に検出することができなかった。物質の表面吸着は比較的短時間の間に起こると考え、6時間で打切った。長時間実験を続けると、生体膜を通してのイオンの拡散輸送によって細胞内部へ透過することが考えられる。

^{60}Co 、 ^{45}Ca の実験結果をFig.4-12に示す。両核種とも最初の2時間に大部分が吸着され、その後の吸着量は緩やかに増加した。

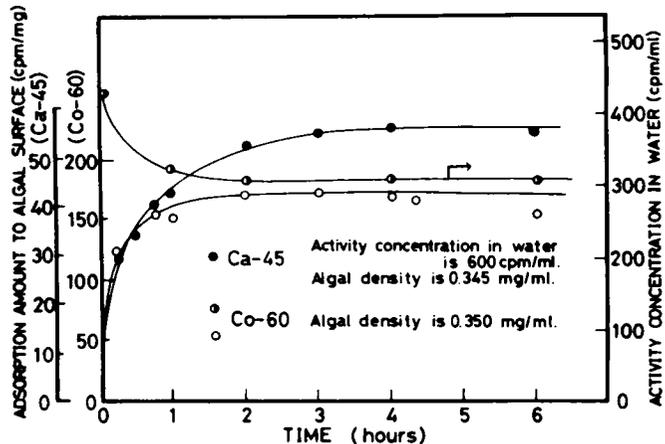


Fig.4-12 Adsorption Amount vs. Time

^{60}Co 、 ^{45}Zn の実験結果を

Fig.4-12に示す。両核

種とも最初の2時間に大部分が吸着され、その後の吸着量は緩やかに増加した。

第5節 藻の増殖過程と放射能の濃縮過程

藻の増殖過程において、藻の比放射能が生物学的希釈を受ける主要な原因を細胞分裂によるものと考え、本章第3節で理論的考察を行ったように、藻の3つの段階の増殖過程、すなわち、指数増殖期、直線増殖期、定常増殖期における放射性核種の摂取、蓄積の過

程を追跡した。

5-1 実験材料および方法

(i) 実験に用いた試料生物の *Anavaena varibilis* や培養装置等は前節で述べたのと全く同じである。滅菌した培養フラスコを恒温水槽に浸し、培養液が所定の温度になるのをまって、親培地から一定量の藻と分取し、新しい培地に接種した。指数増殖期での濃縮実験では、藻を親培地から分取後、数時間、新しい培地に馴ませた後にオートクレーブで滅菌した放射性核種を培地に投入し、適当な時間間隔でサンプリングを行い、藻密度、藻の放射能および伊過した培養液の放射能を測定した。藻の直線および定常増殖期での濃縮実験では、新しい培地に藻を接種後、藻密度がそれぞれ直線期、定常期に達する迄培養を続け、その後に放射性核種を投入して、以下同様の実験操作法に従った。直線増殖期においては、実験開始当初と終り頃では藻密度が著しく異なるので、培地のサンプリング量による放射線の自己吸収の影響を小さくするために、藻密度に応じて、培地のサンプリング量と時間とともに減じることにより、放射能測定を行う藻体量をなるべく等しくなるように調整した。

(ii) 藻からの放射性核種の排泄と細胞分裂による生物学的希釈

藻細胞の分裂による比放射能の生物学的希釈と生理的な細胞からの排泄の程度を調べるために、明ビンおよび暗ビン中で藻を培養し、両者に対する放射能の損失の程度を比較した。予め高濃度に放射性核種を濃縮している高密度の藻培地から 20 ml 分取し、0.8 μm の孔径を持つミリポアフィルタ上に捕集して、上から放射能を含まない滅菌した培養液 50 ml を通して、藻細胞表面に吸着している放射能を洗浄し、この藻をフィルターごと放射能を含まない清澄な新しい培地に接種した。一つはそのまま蛍光灯による照明下におき、藻の細胞分裂による比放射能の減少を追跡した。他方は培養ビン全体をアルミホイルで包み、内部への光を完全に遮断して、藻からの放射能損失を追った。両方とも 5% 炭酸ガスを含む空気を送り、炭酸ガスを供給するとともに、空気によるビン内の対流を起こして、ビンの底に藻が沈着するのを防いだ。適当な時間間隔でサンプリングを行い、藻の比放射能および培養液の放射能濃度を測定した。

5-2 実験結果および考察

^{137}Cs , ^{65}Zn , ^{60}Co , ^{45}Ca のそれぞれの放射性核種に対する各生育段階における放射性核種の濃縮パターンを Figs.4-13 ~ 4-21 に示す。

(1) ^{137}Cs の濃縮

^{137}Cs の実験結果を

Figs.4-13 ~ 4-17 に示す。藻の生育段階がどの段階にある場合も、指数関数型の単調増加とする濃縮パターンが見られ、ほぼ50時間位で藻中の放射能濃度は最高値に達する。相対濃度は5~30位である。Fig.4-13は対数生育期から定常期まで連続して実験を行なったものである。(4-8)式から、対数期では藻の増殖のために、藻中の放射能濃度は早く最高値に達すると予想されるように、実験結果もほぼ30時間で最高値に達しており、その値も小さい。その後増殖が進むにつれて生物学的希釈効果の現象が見られる。Fig.4-14のRun

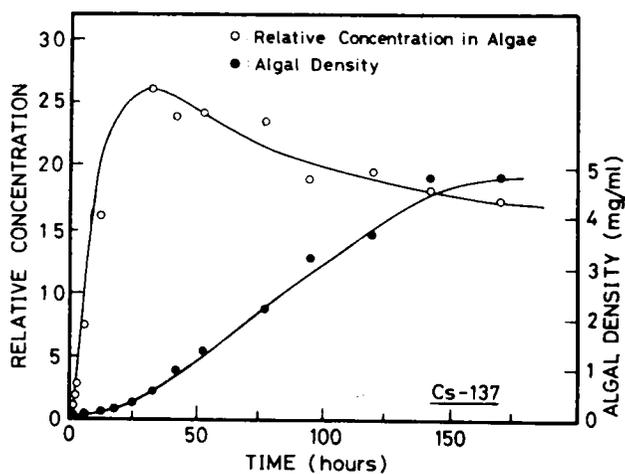


Fig.4-13 Changes of Relative Concentration and Algal Density

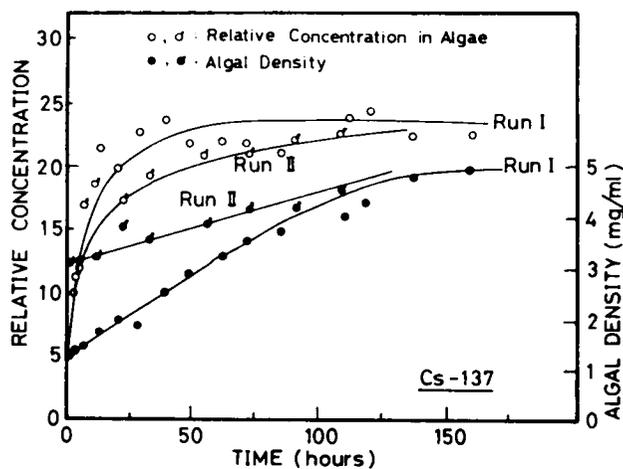


Fig.4-14 Changes of Relative Concentration and Algal Density

I, IIは直線期で生育速度が異なる場合である。理論式からも予想されるように生育速度が速いと、藻中の放射能濃度は早く最高値に達する。しかし、この場合平衡時では生育速度にかかわらず濃縮係数は等しい。Fig.4-16, RunIは明ビン(光照射下)

中での、藻からの放射能の排泄, Fig. 4-16, Run II は暗ビン中での排泄を調べた実験結果である。明ビン中では藻の増殖とともに藻中の放射能濃度は急速に減少するのが見られる。暗ビン中では藻密度は一定であり, 生理的な排泄による放射能の減少が見られるが, 生物学的希釈効果がないため, 明ビン中の実験ほど著しくはない。この場合, 排出された放射能も再度上昇するという結果が見られた。この現象は, 現段階では理論的には説明し得ず, 今後十分なデータの蓄積が必要であると思われる。

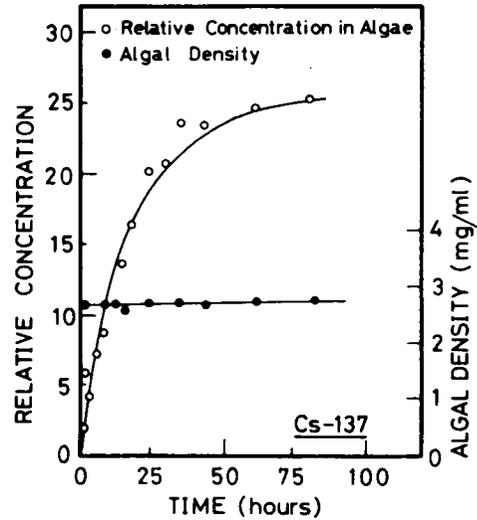


Fig.4-15 Changes of Relative Concentration and Algal Density

暗ビン中においても, 光照射下と同じように, 藻が放射能を摂取するかどうかを検討するために, 暗ビン中に放射能を投入して濃縮実験を行なった所 Fig.4-17

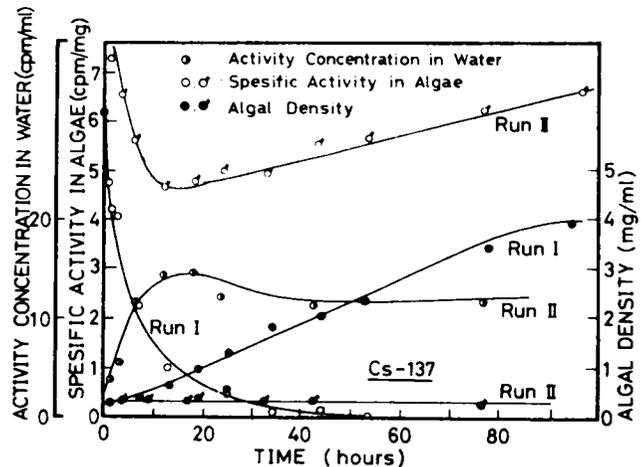


Fig.4-16 Changes of Specific Activity and Algal Density

明ビン中の結果(Fig.4-15)と比較すると, 摂取速度は遅く, 平衡時における放射

能の相対濃度も低い, 濃縮パターンはどちらも同じように指数関数的に増加している。暗ビン中においても, 藻による放射能の摂取という生理機能は低下することはない。失なうことなく持続するものと思われる。

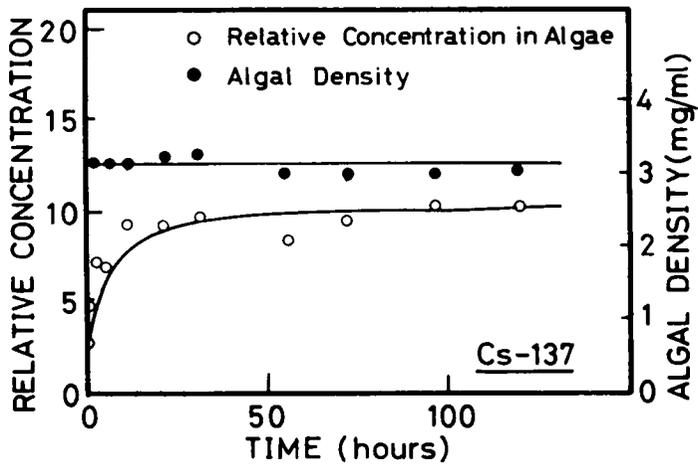


Fig.4-17 Changes of Relative Concentration and Algal Density

(2) ^{65}Zn の濃縮

実験結果をFigs 4-18~20に示す。 Fig.4-18 に示されたRun Iは生育過程の指数期から Run IIは直線期から濃縮実験を開始したものであるが、いずれの場合も初期濃縮が大きく、藻の増殖とともに放射能濃度は減少傾向が見られ、対数期から直線期への過程における放射能濃度は ^{137}Cs

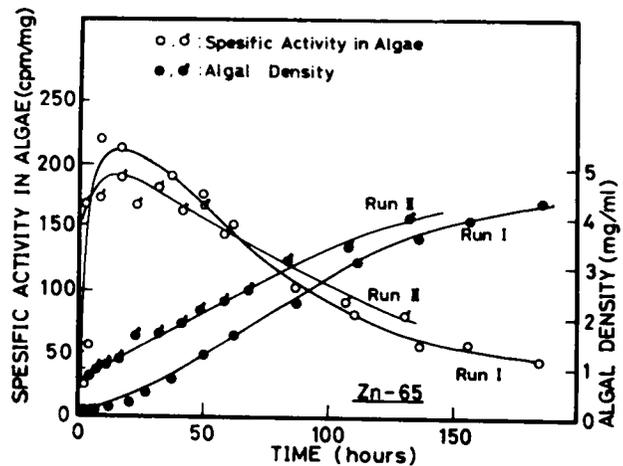


Fig.4-18 Changes of Specific Activity and Algal Density

の場合よりも激しく、

^{65}Zn と ^{137}Cs では濃縮機構が異なるのか、あるいは摂取・排泄係数等のパラメータの値が生育過程において変化するのか明らかでない。この現象の確認のため数回実験を繰り返した所、実験上のバラツキはあったが、どれも同じ濃縮パターンが認められた。

また図には示されていないが、定常期における ^{65}Zn の濃縮パターンは指数関数型を示しており、その相対濃度は、他の生育段階における平衡時の値とほぼ同じ値を得た。Figs.4-19,20には ^{65}Zn の排泌実験の結果を示している。 ^{137}Cs の場合と同様に、明ビン中の藻中の比放射能の減少 (Fig.4-19) は暗ビン中 (Fig.4-20) と比べて著しい。

(3) ^{60}Co の濃縮

実験結果の例を Fig.4-21 に示す。 ^{60}Co の場合は実験開始後、約10時間で放射能濃度はピークに達し、その後急速に減少する。その濃度減少の速度は藻の細胞分裂による生物学的希釈に起因すると思われる。

よりも急速である。藻中の放射能濃度が定常には、た時相対濃度は50程度で、ホルマリン固定した藻の細胞表面への吸着量よりむしろ小さい。しかし濃縮実験の開始10時間後には、平衡時の約20倍の相対濃度を示しており、 ^{137}Cs とは明らかに異なる濃縮機構に支配されているものと思われる。

(4) ^{45}Ca の濃縮

実験結果の一例を Fig.4-22 に示す。 ^{45}Ca の場合は他の核種とちがってどの生

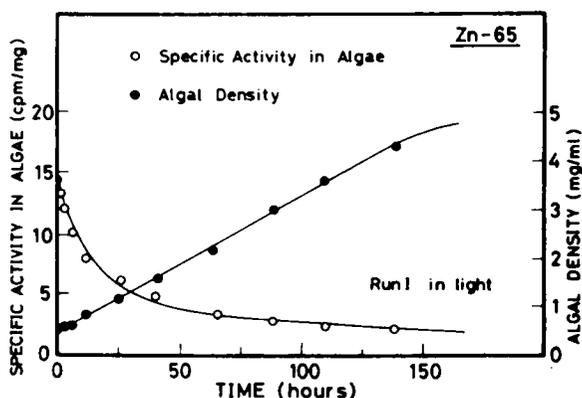


Fig.4-19 Changes of Specific Activity and Algal Density

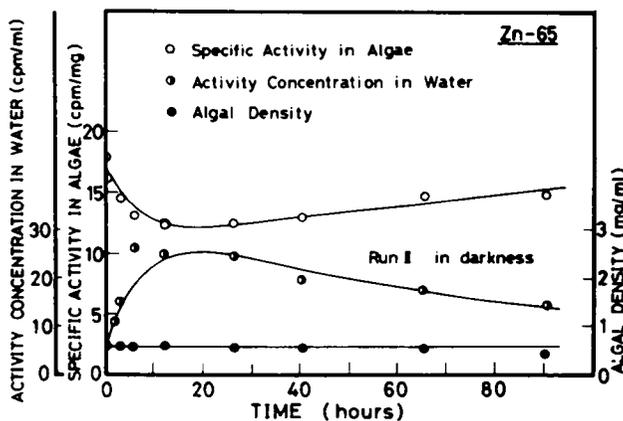


Fig.4-20 Changes of Specific Activity in Algae and Activity Concentration in Water

育段階においても、藻中の放射能の減少は見られなかった。 ^{45}Ca の実験では栄養塩として担体に加えられており、その濃度によって濃縮性に影響があるものと考えられる。 ^{45}Ca 摂取の追跡は栄養塩としてのカルシウム摂取の機構を見ることになろう。培養液中の ^{45}Ca の濃度は、藻の放射能摂取量に応じて減少している。藻中の ^{45}Ca 濃度が藻の増殖にもかかわらず生物学的希釈効果が認められないのは、藻の増殖に応じて必要なカルシウムが摂取されているためであろう。

これらの実験結果を通じて、単細胞性藻類による放射能種の濃縮は、物理的吸着、細胞膜を通じての拡散浸透、細胞膜における能動的輸送、⁽⁴²⁾飲細胞運動による⁽⁴³⁾等の現象が複雑にからみあっているものと考えられる。また元素の種類によっては、細胞の増殖に応じて必要量を摂取したり、第3節の理論式で説明されるように、細胞の増殖過程に応じて、一様な速度で摂取され、排泄されるものや、初期の段階に急速に摂取し、それ以後細胞分裂が起り増殖しても、新しい元素を摂取しないものもある。最後に述べた現象は、ある種の栄養塩の場合にも見られると言われ^(39, 40, 43)ており、筆者らによる *Chlorella pyrenoidosa* を用いた ^{32}P の摂取実験では、

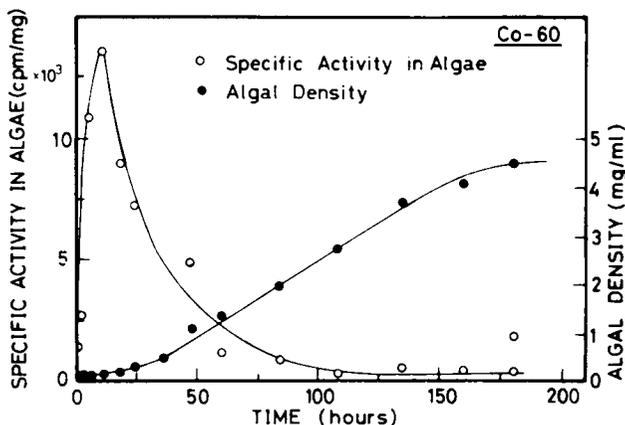


Fig.4-21 Changes of Specific Activity and Algal Density

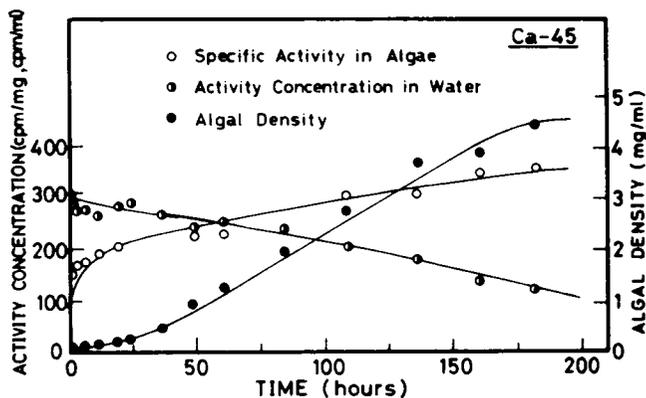


Fig.4-22 Changes of Specific Activity and Algal Density

藻の生育段階による³²Pの摂取速度の明らかな相異が認められている。⁽⁴⁵⁾

第6節 藻の生体量と濃縮係数

藻の生体量と濃縮係数との関係を論じる場合、これまで、藻の増殖過程における各断面での藻の濃縮係数と生体量との関係で論じられてきたようである。⁽²⁴⁾ このように増殖過程における各断面での把握のしやすさでは、例えば、環境水の放射能濃度の変化が起こった場合に、生物による放射性核種の濃縮の遅れが濃縮係数の値に影響を与えることになり、今対象とする課題を明らかにすることにできていない。また、すでに述べたように、藻の増殖過程において、生物学的希釈と呼ばれる藻中放射能濃度の減少という現象が観察される。これは藻の増殖過程で、生体量の変化に基づくものであって、生体量あるいは藻密度に関係しないものである。筆者は⁽⁴¹⁾ある現象—ここでは藻による放射性物質の濃縮現象—に及ぼす生体量の影響の問題を論じる場合、他の環境要因が一定な条件のもとで、同一場所、地域に生物がある生体量で集団として生息しているときに—これは生態学的な一つの存在状態を意味しているのであるが—、その生体量あるいは藻密度に応じて、問題としている現象(放射能濃縮)が影響を受ける場合に行き始めて、生体量と対象とする現象との直接的な因果関係を正しく論じられるものと考えている。しかし、生体量の変化という量的な変化が、環境条件を変え、細胞生理の機能に影響を及ぼすというような質的な変化を誘因し、その結果、二次的に、放射能濃縮に影響を与えるということも十分あり得るので、このような間接的な影響の問題への考慮をも怠ってはならない。

そこで、安定な藻密度の増加速度が得られる直線増殖期において、藻の初期密度の異なる条件下での濃縮実験を以下に述べる方法で行い、藻密度の濃縮係数に及ぼす影響を検討した。

前節で述べたように、元素によって濃縮パターンは異なると思われるので第3節で述べた理論解析が適用できる、すなわち、藻の増殖過程において、核種の摂取および排泄係数が一定と見なす¹³⁷Cs をトレーサ核種として用いた。

6-1 実験材料および方法

藻細胞が最も活発に活動している時期、すなわち細胞分裂が直線増殖期にある時期を選んで、放射性核種の濃縮実験を行なった。本研究に用いた藻 *Anabaena variabilis* は、その藻密度がほぼ $0.6 \sim 4.0$ mg-wet/mlとなる期間が直線増殖期になるので、この期間における適当な藻密度で実験を開始した。予め滅菌した培養液をいくつか用意し、高密度の培地から適当量の藻をこの培養液に接種し、それぞれの培養ビンの藻密度が所定の値に達した時に放射性核種を投入し、以後前節までの実験と同様に直線生育期の間、適当な間隔でサンプリングし、藻の比放射能を測定した。一定の環境条件、正常な細胞活動の行なわれているもとで、生体量の濃縮係数に与える影響を見るために、藻の初期密度を変えて上述の実験を行なったのである。第5節で述べたように、 ^{137}Cs 以外の核種は、直線生育過程において、放射能の濃縮機構が、第3節で述べた指数関数モデルでは説明しきれない現象があると思われるので、理論式と比較検討し得るように、本節では ^{137}Cs をトレーサ核種として用いた。

6-2 実験結果および考察

実験結果の一例が Fig.4-14 に示されている。直線生育期における濃縮実験で、同図の Run I は藻の初期密度 M_0 が小さく生育速度 b の大きい場合、Run II は初期密度が高く生育速度が遅い場合である。両者とも平衡時における放射能の相対濃度はほぼ等しいが、平衡に達するまでの経路に若干の差異が認められる。これは第3節で述べた (4-9) 式から説明づけることができる。(4-9) 式において、この実験では $C_I=0$ であるから、右辺の第1項を見ると、 $t = \infty$ とすると、藻中の濃度 M_0 や b の値にかかわらず ac_0/b と一定値に近づくが、初期の項には、 M_0 の影響で、この値が大きい程、放射能濃度は低くなることが予想される。すなわち、増殖速度のちがいが、生物学的希釈効果に影響を与えることにより、濃縮過程における藻中の相対濃度が異なるものと考えられる。図には示されていないが、Fig.4-15 と同じ定常生育段階を有し、藻密度の異なる状態で実験を行なった所、ほぼ同じ程度の相対濃度が得られ、生体量による ^{137}Cs の濃縮係数に有意な差異は認められなかった。このように、藻の増殖過程における生物学的希釈効果を無視して、生体量と濃縮係数との関係を論じること

はできないと考える。

バッチ培養は、これまで多くの藻類の研究に採用されてきた研究方法であるが、培養の経過時間とともに、培養液組成が変化するので、長時間にわたる藻の生理学的研究を行うためには長期にわたって、環境条件が一定に保たれる連続フロー培養で実験を行う方が望ましいと思われる。

第7節 要約

本章では、水圏生態系において、第1次生産者である植物プランクトンを対象として、それによる放射能核種の濃縮過程に関する研究を行なった。従来この分野の研究は、濃縮の動力学について論じた研究は極めて少なかった。本研究は、藻の増殖と、増殖した藻集団における放射能の濃縮能について論じたものであり、実験によって以下の知見が明らかになった。

- ① 単細胞藻類による放射能核種の濃縮は元素の種類によって、濃縮機構が生理的に異なる。
- ② ^{137}Cs のような核種は、藻の全生育過程において、摂取および排泄係数をほぼ一定と見なすことができ、藻の増殖を考慮した指数関数モデルで、藻集団による濃縮の動力学を表現し得るが一般に、藻の増殖速度が大きい程、放射能核種の摂取速度も大きいと思われる。
- ③ 従来見解の分かれていた生体量と濃縮係数との関係について論じる場合、藻の増殖による生物学的希釈効果を考慮に入れる必要がある。
- ④ 単細胞藻類のように、増殖の激しい生物について、生体量と濃縮係数との関係を見る時、バッチ実験では、増殖過程のどの断面で現象を把握するかによって異なり、また元素によって濃縮機構が異なるので環境条件を一定に保ち得る連続フロー培養によって検討することが望ましい。

参 考 文 献

- (1) 松山義夫編, (1971) 放射線影響の研究, 東京大学出版会
- (2) 岩下光男他編集, (1970) 海洋物理I, 海洋科学基礎講座, 東京大学出版会
- (3) 角苔静男, (1972) 深層水の鉛直渦動拡散係数の見積り,
- (4) W.S.Brocker and T.H.Peng, (1971) The Vertical Distribution of Radon in the Bomex Area. Earth and Planetary Science Letters Vol.11 pp.99-108
- (5) F.G.Lowman, T.R.Rice and F.A.Richards, (1971) Accumulation and Redistribution of Radionuclides by Marine Organisms. in Radioactivity in the Marine Environment, National Academy of Science pp.161-199
- (6) T.R.Rice, (1965) The Role of Plants and Animals in the Cycling of Radionuclides in the Marine Environment. Health Physics, Vol.11 pp.953-964
- (7) 三宅泰雄, (1974) 地球環境の放射能汚染, 化学教育第20巻, 第3号 PP.222-230
- (8) 三宅泰雄, 猿橋勝子, (1973) 海洋の放射性炭素モデル—深海水の滞留時間の推定—, 日本放射線影響学会第16回大会講演要旨集
- (9) 水野弄彦訳, (1967) オダム生態学, 築地書館
- (10) 時岡 隆, 原田英司, (1972) 海の生態学, 築地書館
- (11) E.Odum, (1971) Fundamental of Ecology. Third Edition. W.S. Saunders Company. London
- (12) W.O.Robinson, (1943) The occurrence of Rare Earths in Plants and Soils. Soil Science, Vol.56. pp.1-6
- (13) K.R.Rice, (1971) A Critical Review of Biological Accumulation, Discrimination and Uptake of Radionuclides Important to Waste Management Practices, AEC Report BNWL-B-148 pp.1943-1971

- (14) L.R.Pomeloy, H.M.Mathews et al.,(1963) Excretion of Phosphate and Soluble Organic Phosphorus Compounds by Zooplankton. Limnology and Oceanography, Vol.8, pp.50-55
- (15) E.P.Odum et al. (1958) Uptake of ^{32}P and Primary Productivity in Marine Benthic Algae. Limnology and Oceanography, Vol.3, pp.340-345
- (16) G.G.Polikarpov, (1966) Radioecology of Aquatic Organisms. North-Holland Publish Company, New York
- (17) L.O.Morgan and J.Myers, (1953) Biological Accumulation of Inorganic Materials by Algae. Technical Report to USAEC. Contract At(40-1)-1039, The University of Texas
- (18) R.B.Bachman and E.P.Odum, (1960) Uptake of ^{65}Zn and Primary Productivity in Marine Benthic Algae. Limnology and Oceanography, Vol.5 pp.349-355
- (19) E.Swift and W.R.Taylor, (1960) Uptake and Release of Calcium-45 by *Fucus Vesiculosus*. Biological Bulletin. Vol.119, pp.342
- (20) T.R.Rice, (1956) The Accumulation and Exchange of Strontium by Marine Planktonic Algae. Limnology and Oceanography, Vol.1 pp.123-138
- (21) D.C.Pickering and J.W.Lucas, (1962) Uptake of Radiostrontium by an Alga and the Influence of Calcium ion in the Water. Nature, March 17, Vol.193, pp.1046-1047
- (22) L.G.Williams, (1960) Uptake of Cesium-137 by Cells and Detritus of Euglena and Chlorella. Limnology and Oceanography, Vol.5 (3), pp.301-311

- (23) L.O.Morgan and J.Meyers, Biological Accumulation of Inorganic Materials by Algae. Technical Report to the Office of Naval Research . Contact N80 nr 7800, The University of Texas.
- (24) S.Matsui and E.F.Gloyne, (1972) Radioactivity Transport in Water — Biological Accumulation of Mercuric and Methyl Mercury by Chlorella Pyrenoidosa. Technical Report to the USAEC. Contact at (11-1) -490, The University of Texas.
- (25) T.R.Rice and V.M.Willis, (1959) Uptake, Accumulation and Loss of Radioactive Cerium-144 by Marine Planktonic Algae. Limnology and Oceanography, Vol.4, pp.277-290
- (26) J.R.Watts and R.S.Harrey, (1963) Uptake and Retention of Cs¹³⁷ by a Blue-Green Alga in Continuous Flow and Batch Culture Systems. Limnology and Oceanography, Vol.8, pp.45-49
- (27) 本田壽秀, 木村雄一郎, 来田秀雄, 福光秀明, (1973) プランクトンによる海水+放射性核種の摂取, 蓄積, 近畿大学原子力研究所年報, 第9号
- (28) J.J.Davis and R.F.Foster, (1967) Bioaccumulation of Radioisotopes. Biology of Pollution, U.S.Department of the Interior,FWPCA, PP.41-46
- (29) 磨伊富長, (1972) 吸着, 共立全書
- (30) J.Gutknecht, (1963) ⁶⁵Zn Uptake by Benthic Marine Algae. Limnology and Oceanography, Vol.8, pp.31-38
- (31) G.C.Laties Active Transport of Salt into Plant Tissue. Ann. Rev. Plant Physiology, Vol.10, pp.87-112
- (32) A.B.Hope, (1971) Ion Transport and Membranes — A Biophysical Outline — . Butterworth & Co Publishers Ltd., London
- (33) R.D.Keynes, (1952) The Ionic Movements During Nervous Activity. Journal of Physiology, Vol. 14, pp.119-150

- (34) R.D.Keynes and P.R.Lewis, (1951) The Resting Exchange of Radioactive Potassium in Crab Nerve. Journal of Physiology, Vol. 13 pp.73-98
- (35) R.D.Keynes, (1951) The Leakage of Radioactive Potassium from Stimulated Nerve. Journal of Physiology, Vol.13, pp.99-114
- (36) 井上頼輝, 青山 勲, 井面光司, (1973) 植物プランクトンによる放射性核種の濃縮(1), 日本放射線影響学会第 16 回大会論演要指集, pp.2A10
- (37) 井上頼輝, 青山 勲, 井面光司, (1974) 植物プランクトンによる放射性核種の濃縮, 第 29 回土木学会年次学術講演会概要集, pp.568-569
- (38) 田宮 博, 渡辺 篤編, (1965) 藻類実験法, 南江堂
- (39) F.J.Mackereth, (1953) Phosphorus Utilization by *Asteriorella formosa* Hass. J.of Exptl. Botany, Vol.4, pp.296-313
- (40) H.W.Harvey, (1960) The Chemistry and Fertility of Sea Water. Cambridge University Press
- (41) I.Aoyama, K.Imono and Y.Inoue, (1976) Uptake and Release of Some Radionuclides by Fresh Water Phytoplankton in Batch Culture. J. of Radiation Research, Vol.17(2), 716-721
- (42) A.B.Hope, (1971) Ion Transport and Membranes - A Biophysical Outline - Butterworth & Co Ltd.
- (43) W.D.McElroy, (1971) Cell Physiology and Biochemistry. Prentice-Hall Inc. Englewood Cliffs, N.J.
- (44) G.E.Fog, (1965) Algal Cultures and Phytoplankton Ecology. The University of Wisconsin Press
- (45) I.Aoyama, Unpublished Data

第5章 水圏生態系における放射性核種の移行

第1節 概 説

前章においては、水圏生態系における食物連鎖過程において重要な生態学的地位を占めていた藻類による放射性核種の濃縮に関する問題を論じた。人間に放射線被曝をもたらす汚染源の中でも、食物の汚染は、しばしば飲料水や空気からの汚染源と同じ位に重要であると指摘されている⁽¹⁾。特にわが国のように、主要な蛋白源を水産生物に依存している国においては、水産生物の放射能汚染は重要な問題である。水圏生態系の放射能汚染を評価するのに、放射性核種の水産生物による濃縮係数が重視され、今日まで精力的な実験的研究がなされ、数多くの水産生物、放射性核種についてのデータが集積されてきている^(2~10)。一方近代生態学の概念的な枠組みが確立されるようになり、生態系における元素の循環が生態系を特徴づける重要な統制的過程であり、その重要性の認識が高まってきた。一方それを反映して、水圏生態系における放射性核種の循環・移行に関する研究は、個体レベルの汚染評価から、生物地球化学的および、生態学的な視点から見た Ecosystem の汚染評価を行う研究に移行してきた。

Auerbach⁽¹¹⁾ によると、放射性核種の循環とは「生物圏の生態系間およびその内部における放射性元素の循環・移行を意味している。」と定義している。大気圏での核実験による地球レベルの放射能汚染が起こっていることを既に述べたが、地球レベルでの長半減期核種の移動と再分布を支配し、長期的挙動に最も影響する要素は、放射性核種の生物地球化学的循環における生態学的過程であろう。放射性核種の循環に関する放射生態学的研究の概念は次の4つのカテゴリーに分類される⁽¹¹⁾。

- (1) さまざまな生態系の異なる栄養レベルに存在するフォールアウト核種の研究から導びかれる演繹的解析
- (2) 食物連鎖における環を明らかにし、その連鎖における移行速度に関する情報を得るためのトレーサ実験
- (3) 一つの栄養レベルにおける特定の放射性核種の turnover 速度に関する研究

(4) 一生態系における完全なサイクルを明らかにし、定量化するトレーサを使用した実験
放射能核種を利用したこのような研究は、単に水圏生態系における放射能汚染の影響
評価を行うという視点だけにとどまらず、生態系における構造と機能を研究するという
生態学的な視点からも重要である。

本章では上記の4つの範ちゅうで言え、主として(2)および(3)のカテゴリーに入る課
題を数理モデルで表われ、水圏生態系における一つの側面から、放射能物質の移行を定
量的に表現することを試み、数理モデルから逆に食物連鎖を通しての放射能物質の移行
における重要な環について考察する。

第2節 従来の研究

水圏生態系における放射能汚染を評価する場合、放射能核種の挙動を論じるのに、水
産生物の個体レベルでの挙動と生態系における挙動とを統一的に評価しなければならな
い。前者は系を構成する基本要素として、とりわけ重要である。水産生物による放
射能核種の濃縮過程を記述する数理モデルに関して、環境水中の放射能核種が直接に水
産生物に移行する形態すなわち、直接汚染の過程に関する動的機構の解析はコンパート
メントモデルによって指数関数表した決定論的方法^(12~14)と、次章で述べる筆者によ
る確率論的方法^(15~17)とが提案されており、実験的にも検証されている^(5, 6, 13)。環境
水中の放射能核種が食物連鎖を通じて、水産生物に摂取され、濃縮される現象いわゆる
間接汚染の現象については、例えば Pndleton et al. ⁽¹⁸⁾は ^{137}Cs が環境
水から人間に到るまでの経路における生態系の構成要素の放射能濃度分布を図で示し、
食物連鎖による放射能核種の濃縮の重要性を論じている。しかし、中には食物連鎖に
よる放射能核種の摂取は、水産生物による放射能核種の蓄積にとって主要な経路でない
と主張する研究者もいる⁽¹⁹⁾。この意見の不一致は、両方の考え方を支持する事実が共
に偶然的で、限定された実験に基づくものであるために避けられないとの指摘がある⁽¹⁹⁾。
食物連鎖による放射能核種の移行の考え方は、水中での低い放射能濃度にもかかわらず、
魚の消化器官に相当高濃度の放射能が検出されたという結果や研究室での実験結果に

よって支持されている^(20~22)。環境水からの直接摂取が主要な経路であるとする考
方は、Townesley et al.⁽²³⁾ の食物連鎖に沿った⁶⁵Znの移行についての実
験結果や文献の再調査に基づいたPolikarpov⁽⁷⁾らによって支持されている。

Polikarpovの調査した文献に記載されている実験例では、餌料生物の放射能濃度は
環境水の放射能濃度とほぼ同じ位か、あるいは2ケタも低い濃度のものを用いているの
で、後述するように、食物連鎖による影響に有意の差が現われなかったのは、あし
ろ当然であろうと思われる。食物連鎖によって放射性核種が移行することを支持する
研究結果はその後いく人かの研究者によって報告されている。例えばBaptist
et al.⁽¹⁹⁾ はPhytoplankton, brine shrimp, postlarval
fish, さらに, mummichog を用いて、人為的な食物連鎖を通して、⁶⁵Zn,
⁵¹Crの移行についての実験を行ない、一般に全ての栄養レベルにおいて、これらの核
種の摂取にとって食物連鎖は有効な経路であることを示している。King⁽⁴⁾ は
¹³⁷Csで標識化されたdaphnia をfingerlings に与えると高い濃縮係数を
示したと述べている。Williams et al.⁽²⁴⁾ も同じ生物を使って¹³⁷Csと
⁹⁰Srの食物連鎖の実験を行ない、環境水だけからよりも高い濃縮係数を得ている。
またKimura et al.⁽²⁵⁾ は⁶⁰Coによる汚染餌料をcommon goby に
投餌し、経口投与に基づく⁶⁰Coの蓄積実験から、毎日の投餌実験の終りに魚体内に残
存している放射能は全投与量の約60%になると報告している。これら以外にも食物連
鎖による放射性核種の移行を室内実験あるいは環境調査から実証する報告がいくつか見
られる^(26,27)。これらの研究は投餌された放射性餌料生物の量、捕食生物の重量や放射
性核種の同化率等について、必ずしも定量的に表現されていないため、食物連鎖による
上位の栄養レベルへの放射性核種の移行量を定量的に評価することができない。現象
を定量的に把握するためには数理モデルによる表現が最も一般的であり、理解しや
い。定常的な汚染状態にある水産物が環境水から放射性物質を濃縮する過程の動力学
を表わす数理モデルはAten⁽¹²⁾, 岩井⁽¹³⁾, Hiyama⁽¹⁴⁾等によってコンパートメン
トモデルから誘導された指数関数による表現がある。Hiyama et al. は多
くの核種の場合について、指数関数モデルによって放射性核種の濃縮過程が良く説明さ
れることを実験的に確かめている。食物連鎖を対象とした数理モデルの研究は数少な

く、前述の論文も実験的に検証されていない。食物連鎖の最も簡単なモデルは、環境水、被食生物、捕食生物の3つの要素からなる3コンパートメントモデルである。AtenはFig. 5-1 に示すようなモデル(

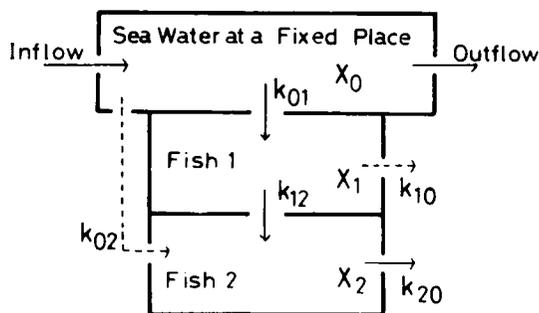


Fig.5-1 Three compartment model of a food chain with two successive trophic levels which is modified from the Aten's original figure

但し Aten の原因には点線で示されている部分はない)を考へ、Fish 2 の放射能を表わす式として次式を提起している。

$$A_2 = A_e \left(1 + \frac{k_{20}}{k_{12} - k_{20}} e^{-k_{12}t} + \frac{k_{12}}{k_{20} - k_{12}} e^{-k_{20}t} \right) \quad (5-1)$$

ここで、 A_2 は Fish 2 の放射能、 A_e は平衡に達した後の A_2 の放射能、 k_{20} は Fish 2 から環境水への移行係数、 k_{12} は Fish 1 から Fish 2 への移行係数である。Aten のモデル図および(5-1)式から逆に放射能の移行速度式は次のように予想される。

$$\frac{dA_1}{dt} = k_{01}A_0 - k_{12}A_1 \quad (5-2)$$

$$\frac{dA_2}{dt} = k_{12}A_1 - k_{20}A_2 \quad (5-3)$$

これを $t=0$ で $A_1=A_2=0$ の初期条件のもとで解くと(5-1)式の解が得られる。但し $A_e = k_{01}A_0 / k_{20}$ で A_0 は環境水中の放射能である。Aten は A_1, A_2 を放射能(Activity)と書いてあるだけで、それぞれの比放射能を表わすのか、それとも Fish 1, Fish 2 に属する生物の集団に蓄積された放射能の総量を表わ

れているのか不明確である。もし A_1, A_2 が前者のように魚の比放射能を意味するのならば、式(5-2)のパラメータ k_{12} は Fish-1 の放射性物質の排泄速度係数を意味し、式(5-3)の K_{12} は Fish-2 が Fish-1 を摂食することによって放射性物質が移行する速度係数であらねばならないので、式(5-2)と式(5-3)とではパラメータ k_{12} の意味する所が矛盾することになる。後者のように、集団の放射能を表わすならば、式(5-2)の中にさらに、Fish-1 の排泄による放射能の減少速度を表わす項を加えねばならない。またこの場合には、各栄養レベルに存在する生物量をどの様に定義するかを明示することなしに論じることはできないであろう。このように

Aten のモデルは、水産生物の食物連鎖によって放射性物質が摂取、濃縮される過程を表わすものとして、特にパラメータの生態学的な意味があいまいである。一方、岩井等⁽¹³⁾ は Fig.5-2 に示すモデルを考へ、 n 段生物の濃度変化を表わす基礎式として、次式を提案している。

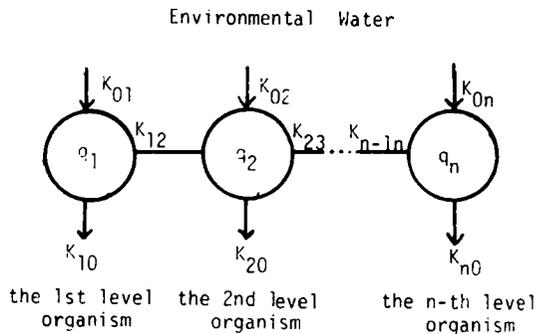


Fig. 5-2 Transfer Pathway of Radionuclides by Direct and Indirect Contamination

$$\frac{dq_n}{dt} = k_{0n}C + k_{n-1,n}q_{n-1} - (k_{n0} + \lambda)q_n \quad (5-4)$$

$$q_n = k_{0n}e^{-(k_{n0}+\lambda)t} + \int_0^t (C + \frac{k_{n-1,n}}{k_{0n}}q_{n-1})e^{-(k_{n0}+\lambda)t} dt \quad (5-5)$$

$$(n = 1, 2, \dots)$$

ここに、 C は環境水中の放射能濃度、 q_n は n 段生物体内の放射能濃度、 k_{0n} は直接摂取係数、 $k_{n-1,n}$ は直接摂取係数、 k_{n0} は n 段生物の排泄速度係数である。このモデルでは、一連の食物連鎖における n 段目の栄養レベルに位置する生物は、環境水および $(n-1)$ 段目の生物からのみ放射性物質を摂取するという事で $(n-2)$ 段

目以下に位置する栄養レベルの生物は無視されている点、また食物連鎖と食物連鎖の横の関連性を表わす食物網の関係が論じられていない点において、実際の生態系における生物相互の連関を記述するには必ずしも十分ではないと思われる。

水圏生態系における水産生物だけを対象とした食物連鎖を通しての放射性物質の挙動について理論的に論じた研究は上記以外にほとんど見当たらない。前にも述べたように、この分野における研究が、個体レベルの汚染解析から、単一の生態系、さらには大気圏、水圏、地圏の3圏を含む生物圏における放射性物質、その他一般の汚染物質の挙動を生物地球化学的視点から見た研究へと発展しつつある。例えば Bloom et al. (32~34) はクレータを掘るための核爆発利用に伴う影響評価を行うため、拡散方程式を解き、海洋での放射能濃度予測を行うことから始め、人間に対する内部被曝線量の推定を試みている。その他にも生態系をいくつかのコンパートメントに分画し、その間を移行する放射性物質の挙動を Compartment Model で表現することが試みられている(35~36)。Bernhard (37) は生態系における放射性物質の挙動を表わすのに Compartment Model が非常に有効であることを強調している。しかし、極めて複雑な生態系の中から何と何を基本的な構成要素として選り出すかは、モデル数式化以前の重要な本質的な問題であろう。

第3節 食物連鎖を通しての放射性物質の移行

水圏生態系における放射性物質の挙動は、大別して、拡散や沈降のような物理的な挙動、環境水と底質とにおける相互作用のような物理化学的挙動、それに水産生物による放射性物質の濃縮のような生物学的挙動の3つに分類されよう。水産生物を主要な蛋白源とする我国では、とりわけ第3の生物学的過程が重要である。前節で述べたように、食物連鎖を通しての放射性物質の移行を定量的に扱った研究は極めて少なく、Aten, 岩井等の論文もモデルの提案だけで実験的な検証がなされていない。そこで、この節では、従来の指数関数モデルに改良を加え、更に餌料生物、捕食生物間の物質移行係数の生理学的な意味を明らかにし、実験によってモデルの妥当性を明らかにする

3-1 理論的考察

食物連鎖の最も簡単なモデルはFig.5-1に示れたThree Compartment Modelである。どんなに複雑な食物網も、その基本となる構成要素は、餌料生物と捕食生物との関係であって、これをいくつか組み合わせることによって構成し得る。従って、Fig.5-1に示れた餌料生物-捕食生物間の放射性物質の移行に関する基本的な関係を定量的に把握しておきさえすれば、水圏生態系における複雑な食物網を通しての放射性物質の移行を定量的に予測し得ると考へる。

さて、Fig.5-1はAtenの原因に、筆者が点線以示れた係数を加えることにより改良したものである。Atenの式は放射能の成長と崩壊の理論から良く知られているBateman formulaを使つて表わされたものがあるが、これには既に述べたような不合理な点がある。筆者は、水産生物による放射性物質の濃縮過程を次のように考へてモデルの改良を行つた。餌料生物(Fish 1)は環境水濃度に比例した一定の速度で、生物の表皮やエラ膜を通して環境水から直接に放射性核種を摂取し、体内に蓄積された放射能は体内の放射能濃度に比例して排出される。これらの摂取および排泄速度係数は、Fig.5-1でそれぞれ k_{01} 、 k_{10} で表わされている。捕食生物(Fish 2)は餌料生物と同様に、環境水から放射性核種を直接摂取するとともに、餌料生物の摂取を通して、その餌料生物の放射能濃度に比例した放射能を摂取する。捕食生物の排泄は放射能の摂取経路の如何にかかわらず、体内濃度に比例して行はれる。これらの速度係数を k_{02} 、 k_{12} 、 k_{20} とおく。このような仮定が許される時、Fig.5-1に示れたThree Compartment Modelによる放射性核種の移行速度を表わすシステム方程式は次のように表わされる。

$$\frac{dX_1(t)}{dt} = k_{01}X_0(t) - (k_{10} + \lambda)X_1(t) \quad (5-6)$$

$$\frac{dX_2(t)}{dt} = k_{02}X_0(t) + k_{12}X_1(t) - (k_{20} + \lambda)X_2(t) \quad (5-7)$$

ここに、 $X_1(t)$ は餌料生物(Fish 1)の放射能濃度($\mu\text{Ci/g}$ 又は cpm/g), $X_2(t)$ は捕食生物(Fish 2)の放射能濃度(Ci/g 又は cpm/g), λ は物理的崩壊定数($1/\text{day}$)である。長半減期の核種では λ の値は k_{20} の値に比べて小さいので、以下の議論では無視して取扱ふ。これは岩井等のモデルで、 $n=2$ とおいたものに等しくなる。

次に餌料生物—捕食生物間の物質移行係数 k_{12} ($1/\text{day}$)の生理的意味について考察する。捕食生物による餌料生物の初期の摂餌によって取込まれる放射性物質の移行速度式および物質収支式を次のように近似する。

$$\frac{dX_2(t)}{dt} = k_{12}X_1(t) \quad (5-8)$$

$$M_2 \frac{dX_2(t)}{dt} = \theta \cdot M_1 \cdot X_1(t) \quad (5-9)$$

ここに、 M_2 は捕食生物の重量(決定臓器を対象とする時にはその重量)(g), M_1 は捕食生物が餌料生物を一日平均摂餌する量(g/day), θ は次式で定義される放射性物質の同化率である。

$$\theta = \frac{\text{全摂取量} - \text{排泄量}}{\text{全摂取量}} = \frac{\text{体内残留量}}{\text{全摂取量}} \quad (5-10)$$

(5-8), (5-9)の両式より、生物間の物質移行係数 k_{12} は次のように表わされる。

$$k_{12} = \theta \cdot \frac{M_1}{M_2} \quad (5-11)$$

(5-11)式に示されるように、 k_{12} は捕食生物による一日平均摂餌量 M_1 と放射性核種の同化率 θ に依存することがわかる。また、モデルは、生物個体あるいは決定臓器に入ってきた放射性核種の完全混合を仮定しているので、 k_{12} は捕食生物の個体または決定臓器の重量 M_2 にも依存する。この係数を摂餌速度係数と名づける。

λ を無視し、環境水の放射能濃度が一定 ($X_0(t) = X_0$) である時、初期条件、 $t=0$ で $X_1(0) = X_2(0) = 0$ のもとで (5-6), (5-7) 式を解くと、解は次のようになる。

$$X_1(t) = \frac{k_{01}}{k_{10}} (1 - e^{-k_{10}t}) X_0 \quad (5-12)$$

$$X_2(t) = \frac{k_{02}}{k_{20}} (1 - e^{-k_{20}t}) X_0 + k_{01} k_{12} \left\{ \frac{1}{k_{10} k_{20}} + \frac{e^{-k_{12}t}}{k_{10} (k_{10} - k_{20})} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20} (k_{20} - k_{10})} \right\} X_0 \quad (5-13)$$

(5-13) 式の右辺の第1項は捕食生物の環境水からの直接摂取によって起こる放射性核種の蓄積量を表し、第2項は食物連鎖によって起こる核種の蓄積量を表している。

上に述べたのと同様にし、環境水中の放射能濃度が $X_0(t) = X_0 e^{-at}$ のように表わされる時、(5-6), (5-7) 式の連立常微分方程式の解は次式で表わせる。

$$X_1(t) = \frac{k_{01}}{k_{10} - a} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) X_0 \quad (5-14)$$

$$X_2(t) = \frac{k_{02}}{k_{20} - a} (e^{-at} - e^{-k_{20}t}) X_0 + k_{01} k_{12} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{10} - a)(k_{20} - a)} + \frac{e^{-k_{10}t}}{(a - k_{10})(k_{20} - k_{10})} + \frac{e^{-k_{20}t}}{(a - k_{20})(k_{10} - k_{20})} \right\} X_0 \quad (5-15)$$

(5-12~15) 式に含まれるパラメータの値が実験的に、あるいは水圏環境の生態学的調査から求められれば、捕食生物の放射能濃度を計算によって容易に求めることができる。

3-2 実験材料および方法

食物連鎖による放射性核種の移行が 3-1 で述べた指数関数モデルで表わされることを示すために、Three Compartment Model が満足されるような実験を行なった。

上に述べたモデルでは、生物の1個体を1コンパートメントと見なしているのど、

この条件を満足する核種として ^{137}Cs をトレーサ核種として選んだ。 ^{137}Cs の決定臓器は筋肉であり、全身にほぼ等しく分布するので、モデルの条件に一致していると考えられる。

実験には餌料生物として赤めだか (*Topminnows*, 体長 2-3 cm, 体重 0.1~0.3 g) を、捕食生物には淡水魚パイアクリッド (*Pike cichlids*, 体長 4.5~5.5 cm, 体重 1.5~2.5 g) を用いた。赤めだかは比較的入手しやすいこと、個体差が少ないことなどの理由で、餌料生物として良く用いられている。餌料生物の *Topminnows* は 50 l の、捕食生物の *Pike cichlids* は 300 l のアクリル製水槽に水道水を入れて飼育された。環境水の水温は 18~20°C に保たれた。水槽の角にはガラスウールを充填したエアフィルターを設置して、空気を絶えず供給し、適度な水流を生じめるとともに、水中の排泄物やゴミを濾過して、環境水を清澄に保った。トレーサの ^{137}Cs は実験開始 2 日前に投入し、水槽内に放射能の濃度分布が生じないように、エアポンプで十分に攪拌した。環境水中の ^{137}Cs の放射能濃度は実験期間中を通して、せいぜい 10% 程度の変動で計測誤差の範囲内であると思われるので、一定として解析した。捕食生物の飼育に用いた水槽は、魚が自分自身の排泄物を摂食しないようにするために二重構造になっている。餌料生物は内部水槽の 10 cm 四方に区画された箱の中で一匹ずつ飼育された。各箱の側壁には小さな穴がいくつか開けてあり、この穴を通して、内部の水は隣の箱や外部水槽の水と自由に入出できる。箱の底には、魚が出入できない程度の目を付けたネットが張られており、この網の目を通して、魚の排泄物は直ちに下部の水槽に落ちるようになっている。上部の水槽は ^{137}Cs を含む環境水を満たした下部の水槽内に吊されている。下部の水槽の水深は約 30 cm あり、上部の水槽は水面から 15 cm の深さまで浸漬している。

捕食生物による環境水からだけの放射能の直接摂取と、食物連鎖を介しての間接摂取とを比較するために、実験期間中、捕食生物の一つのグループには放射能を含む環境水中で、捕食生物と同時に飼育を開始した餌料生物 *Topminnows* を、他方のグループには非放射能の清澄な環境水中で飼育された *Topminnows* を毎日一匹ずつ投餌した。餌料生物の *Topminnows* には、実験開始 5 日前から、実験期間中を通して一切の投餌を行わなかった。

放射性的環境水中で飼育された Topminnows を、水槽から採取後、体表面を水で洗い、秤量し、放射能を測定した後、捕食生物に投与した。捕食生物の Pike cichlids は、採取後、冷血動物用麻酔薬 (meta aminobenzoic acid ethylester methanesulfonate, MS222) で麻酔させ、その間に秤量し、放射能を測定して再びもとの水槽に戻した。麻酔薬の濃度を麻酔時間が10分間程度となるように調整し、覚醒後、水槽内びとに述べた Topminnows を投餌した。全この試料生物は γ 線液高分析器を用いて、 ^{137}Cs のエネルギーピーク (0.662 MeV) を選別して、Whole-body の放射能が測定された。

一方、捕食生物 Pike cichlids の ^{137}Cs の同化率を測定した。この実験では Pike cichlids は放射能を含まない水中で飼育され、これに予め、既知の放射能を蓄積した Topminnows を投餌し、翌日24時間経過後、Pike cichlids が排泄を終えた時を見はから、Pike cichlids の放射能を全身計測した。必要は測定値を(5-10)、(5-11)式に代入して、摂餌速度係数 k_{12} を算出した。

3-3 実験結果および考察

試料生物 (Topminnows と Pike cichlids) による ^{137}Cs の摂取パターンが Fig. 5-3 に示されている。環境水中の放射能濃度は、実験期間中を通し、ほぼ 450 cpm/ml に一定に保たれていた。Fig. 5-3 に示されている試料生物の放射能濃度はどれも環境水中の放射能濃度 X_0 で割られた相対濃度を表わしている。したがって、平衡時の値は濃縮係数を表わすことになる。試料生物中の放射能濃度は5匹の平均値が取られている。餌料生物の Topminnows および非放射性的の餌料を投与された捕食生物 Pike cichlids の実験結果から、(5-12)、(5-13)式を満足するよう摂取速度係数 (k_{01} , k_{02}) と排泄速度係数 (k_{10} , k_{20}) の値を求めた。この場合、捕食生物には非放射性的の餌料が与えられたのであるから(5-13)式中のパラメータ k_{12} の値は0とおいた。

^{137}Cs を蓄積した Topminnows を投与した場合の Pike cichlids による ^{137}Cs の同化率を求める実験結果を Table 5-1 に示した。5つの試料の平均値を(5-11)式に代入して摂餌速度係数 k_{12} を算出した。これらの速度係数の値を Table 5-2

に示す。これらの値を(5-12)、(5-13)式に代入して計算された餌料生物および捕食生物の濃度変化の理論曲線が Fig.5-3 の実線で示されている。実験結果と理論値とはかなり良い一致が得られ、食物連鎖を通過しての ^{137}Cs の移行は compartment model による指数関数表示で十分良く説明され得る。このモデルでは、生物体内にほぼ均一に分布すると考えられる ^{137}Cs のような核種に対して、生物 1 個体を 1 compartment として取扱われている。特定の決定臓器を有するような核種に対しては、生物 1 個体をいくつかの compartment に分割して考えることにより、このモデルを広く適用できる。松原等は水生生物に注射で放射性核種を 1 回注入した時、決定臓器の放射能濃度の変化は two compartment model で説明できると報告している(42)。

本節で述べたモデルから、餌料生物から捕食生物への放射性核種の物質移動係数

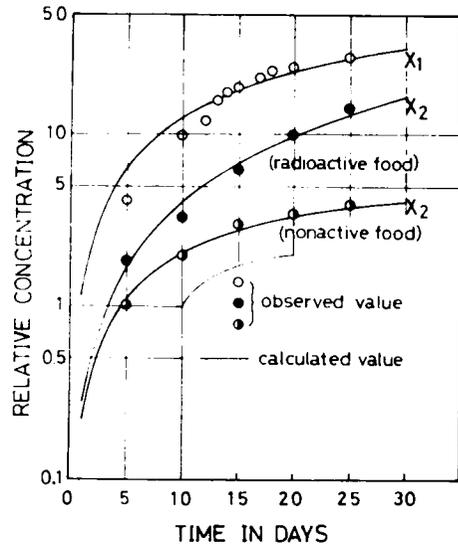


Fig.5-3 Transfer of ^{137}Cs through two successive trophic levels with daily feeding
The symbols O, ●, ○, in the figure show the change of radioactivity in minnows (the first trophic level), pike chichlid (the second trophic level) with active feeding and pike chichlid with non-active feeding respectively

Table 5-1 Assimilation rate for ^{137}Cs in pike cichlid

Weight of M_2 (g)	Weight of M_1 (g)	Feeding dose (cpm)	Residue in the body (cpm)	Assimilation rate θ
1.344	0.090	448	313	0.699
1.302	0.113	428	234	0.547
1.686	0.086	213	146	0.685
1.648	0.071	277	216	0.780
1.668	0.128	203	145	0.711
Average 1.530	0.098			0.685

$$k_{12} = \theta \frac{M_1}{M_2} = 0.044$$

Table-5-2 The values of parameters obtained from the experiment

Transfer rate coefficient	k_{01}	k_{10}	k_{02}	k_{20}	k_{12}
Value (1/day)	1.1	0.014	0.24	0.04	0.041

として、摂餌速度係数が定義され、その生態学的、生理学的な意味が明らかにされた。係数の定義から明らかになるように、水産生物による放射性核種の蓄積過程で、食物連鎖を通しての物質移動に寄与する重要な要因は、放射性核種の同化率と一日平均摂餌量とであるとわかった。この実験結果から水産生物のそれぞれの核種に対する摂取および排泄速度係数、同化率のような生理学的な要因と食物連鎖の構造のような生態学的な要因とに関する基本データを実験や野外調査によって収集することの重要性が強調される。

第4節 食物網を通しての放射性物質の移行

水圏生態系において、放射性核種は複雑な食物網 (Food Web) の経緯にしたがって、栄養レベルの低いものから高いものへと順次に移行してゆく。Raines⁽³⁴⁾, Bloom⁽³³⁾⁽³⁶⁾, Martin⁽⁴³⁾等は放射性物質の移行を compartment model で表わし、水圏環境の構成要素中の放射性核種の再分布と蓄積とを予測する方法について論じている。

筆者は前節において、餌料生物から捕食生物への放射性物質の移行速度係数の意義を具体的に明らかにし、放射性物質の移行が compartment model によって表現されることを実験的に明らかにした。本節ではこの結果に基づいて、水圏生態系の食物網を簡単な compartment model で表わし、数値計算を行ない、各々の compartment 生物の放射能濃度を予測し、パラメーターの値によって食物連鎖の影響の程度を評価した⁽⁵⁰⁾。

4-1 理論的考察

食物網 (Food Web) とは、いくつかの食物連鎖が相互に関係し合っている総体のことである。食物網の基本単位は最低2つの食物連鎖から構成されることによる。compartment の数を増やせば、どんな複雑な食物網を構成する生態系モデルでも作ることが出来るが、実際の食物網は季節によっても変ることがある⁽⁴⁴⁾。また、食物連鎖のエネルギー論的な観点からは連鎖の数はせいぜい4~5に限られると言われている⁽⁴⁵⁾。それ故、水圏生態系では、最上位にある人間を除くと、3~4段階の連鎖を考へ

れば十分であると考えられる。

食物網の基本単位として Fig. 5-4 に示す compartment model について考える。

前節で論じたと同様に、捕食生物の放射能蓄積は、環境水からの直接摂取と餌料生物からの間接摂取とによって起こると考えると、各栄養段階の生物中の放射能濃度の変化速度は次の連立常微分方程式によって記述される。

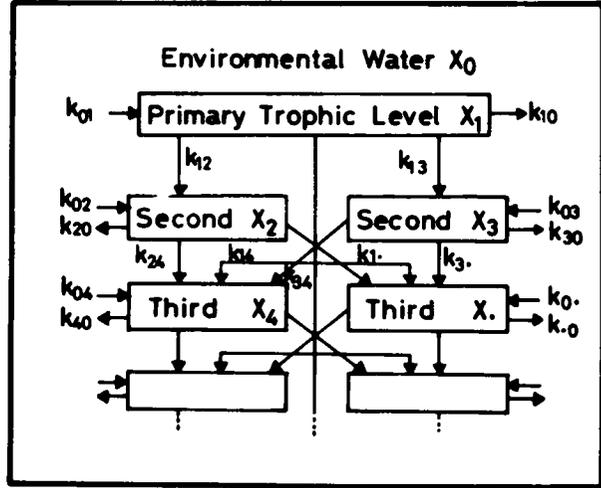


Fig.5-4 Simple food web composed of the two succession of chains

$$\frac{dX_1(t)}{dt} = k_{01}X_0(t) - (k_{10} + \lambda)X_1(t) \quad (5-16)$$

$$\frac{dX_2(t)}{dt} = k_{02}X_0(t) + k_{12}X_1(t) - (k_{20} + \lambda)X_2(t) \quad (5-17)$$

$$\frac{dX_3(t)}{dt} = k_{03}X_0(t) + k_{13}X_1(t) - (k_{30} + \lambda)X_3(t) \quad (5-18)$$

$$\frac{dX_4(t)}{dt} = k_{04}X_0(t) + k_{14}X_1(t) + k_{24}X_2(t) + k_{34}X_3(t) - (k_{40} + \lambda)X_4(t) \quad (5-19)$$

ここに $X_0(t)$ は環境水中の放射能濃度 (Ci/ml), $X_i(t)$ は i 番目の compartment 生物の放射能濃度 (Ci/g), k_{ij} は compartment i から compartment j への放射能物質の移行速度定数 (1/day), k_i は i 番目の compartment 生物の排泄速度係数 (1/day), λ は放射能核種の物理的崩壊定数 (1/day) である。以下の議論では $k_{i0} = k_i + \lambda$ としている。

これらの方程式の解は Laplace 変換法によって容易に求められる。環境水中の放射能濃度が一定 ($X_0(t) = X_0$) である時、

$$\text{初期条件. } t = 0 \text{ で } X_1(0) = X_2(0) = X_3(0) = X_4(0) = 0 \quad (5-20)$$

のちとて解くと、解は次のようになる。

$$X_1(t) = \frac{k_{01}}{k_{10}}(1 - e^{-k_{10}t})X_0 \quad (5-21)$$

$$X_2(t) = \frac{k_{02}}{k_{20}}(1 - e^{-k_{20}t})X_0 + k_{01}k_{12}\left\{\frac{1}{k_{10}k_{20}} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{10}-k_{20})} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{20}-k_{10})}\right\}X_0 \quad (5-22)$$

$$X_3(t) = \frac{k_{03}}{k_{30}}(1 - e^{-k_{30}t})X_0 + k_{01}k_{13}\left\{\frac{1}{k_{10}k_{30}} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{10}-k_{30})} + \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{30}-k_{10})}\right\}X_0 \quad (5-23)$$

$$\begin{aligned} X_4(t) = & \frac{k_{04}}{k_{40}}(1 - e^{-k_{40}t})X_0 + k_{01}k_{14}\left\{\frac{1}{k_{10}k_{40}} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{10}-k_{40})} + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{40}-k_{10})}\right\}X_0 + k_{02}k_{24}\left\{\frac{1}{k_{20}k_{40}} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{20}-k_{40})} \right. \\ & + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{40}-k_{20})}\left.\right\}X_0 + k_{01}k_{12}k_{24}\left\{\frac{1}{k_{10}k_{20}k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} \right. \\ & - \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})}\left.\right\}X_0 + k_{03}k_{34}\left\{\frac{1}{k_{30}k_{40}} \right. \\ & + \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{30}-k_{40})} + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{40}-k_{30})}\left.\right\}X_0 + k_{01}k_{13}k_{34}\left\{\frac{1}{k_{10}k_{30}k_{40}} - \right. \end{aligned}$$

$$\frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})} \} X_0 \quad (5-24)$$

ある汚染された海域で、その内部の水が連続的に新しい水と更新されるような場合には、環境水中の放射能濃度は指数関数的に減少する。 $X_0(t) = X_0 e^{-at}$ と表わされる時、(5-16)~(5-19)式の解は、初期条件を前述と同じように考えた時、次のように表わせる。

$$X_1(t) = \frac{k_{01}}{k_{10}-a} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) X_0 \quad (5-25)$$

$$X_2(t) = \frac{k_{20}}{k_{20}-a} (e^{-at} - e^{-k_{20}t}) X_0 + k_{01} k_{12} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{10}-a)(k_{20}-a)} + \frac{e^{-k_{10}t}}{(a-k_{10})(k_{20}-k_{10})} + \frac{e^{-k_{20}t}}{(a-k_{20})(k_{10}-k_{20})} \right\} X_0 \quad (5-26)$$

$$X_3(t) = \frac{k_{03}}{k_{30}-a} (e^{-at} - e^{-k_{30}t}) X_0 + k_{01} k_{13} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{10}-a)(k_{30}-a)} + \frac{e^{-k_{10}t}}{(a-k_{10})(k_{30}-k_{10})} + \frac{e^{-k_{30}t}}{(a-k_{30})(k_{10}-k_{30})} \right\} X_0 \quad (5-27)$$

$$X_4(t) = \frac{k_{04}}{k_{40}-a} (e^{-at} - e^{-k_{40}t}) + k_{01} k_{14} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{10}-a)(k_{40}-a)} + \frac{e^{-k_{10}t}}{(a-k_{10})(k_{40}-k_{10})} + \frac{e^{-k_{40}t}}{(a-k_{40})(k_{10}-k_{40})} \right\} X_0 + k_{02} k_{24} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{20}-a)(k_{40}-a)} + \frac{e^{-k_{20}t}}{(a-k_{20})(k_{40}-k_{20})} \right\} X_0$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{e^{-k_{40}t}}{(a-k_{40})(k_{20}-k_{40})} \} X_0 + k_{01}k_{12}k_{24} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{10}-a)(k_{20}-a)(k_{40}-a)} + \right. \\
& \frac{e^{-k_{10}t}}{(a-k_{10})(k_{20}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} + \frac{e^{-k_{20}t}}{(a-k_{20})(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})} + \\
& \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{(a-k_{40})(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})} \right\} X_0 + k_{03}k_{34} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{30}-a)(k_{40}-a)} + \frac{e^{-k_{30}t}}{(a-k_{30})(k_{40}-k_{30})} \right. \\
& + \frac{e^{-k_{40}t}}{(a-k_{40})(k_{30}-k_{40})} \} X_0 + k_{01}k_{13}k_{34} \left\{ \frac{e^{-at}}{(k_{10}-a)(k_{30}-a)(k_{40}-a)} + \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{10}t}}{(a-k_{40})(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} + \frac{e^{-k_{30}t}}{(a-k_{30})(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})} + \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{(a-k_{40})(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})} \right\} X_0 \tag{5-28}
\end{aligned}$$

環境中の放射能濃度がある任意の関数形で与えられるならば、上述のように各栄養段階にある生物の放射能濃度を予測することができる。

4-2 数値計算および考察

前節で述べたような簡単なシステムでは、実験によって各パラメータの値を得ることができ、本節で対象とするような複雑なシステムに対しては実験によってパラメータを求めることは容易でなく、実際の環境下における生態学的調査によらざるを得ない。生物個体の摂取速度係数および排泄速度係数は個別の濃縮実験から、平衡時での濃縮係数と、体内放射能濃度が平衡値の2分の1に達するに要する時間とから指数関数モデルを考へることによって求められる。このようにして寺島は文献調査からいくつかの生物についての速度係数を求めている(46)。これによると、放射性核種や生物の種類によって異なるが、摂取速度係数の値は0.1-0.4(1/day)、排泄速度係数の値は0.05-3.5(1/day)と広い範囲に及んでいる。Ivlevや他の生態学者は捕食生物の単位重量当たりの摂取量(ration; M_i/M_j)の値は平均0.1程度であり、最大0.2~0.3である

と報告している^(47,48)。放射能核種の水産生物による同化率についての研究はほとんど見当たらないが、栄養学分野では、生物のエネルギー収支の観点から、同化率が研究されている。例えば、*Daphnia pulex* を用いたエネルギー収支に関する研究によると、食物密度によって、同化率の値は0.1~0.8の広い範囲に分布している⁽⁴⁹⁾。これらのことから、前節で定義した摂餌速度係数 (ration rate coefficient, $k_{ij} = \theta M_i / M_j$) の値は最大0.2位とすると考えられる。食物連鎖を通じた放射能核種の濃縮の影響を調べるために、数組のパラメータの値を仮定して計算を行った。パラメータの値を仮定するに際しては次の点を考慮した。

- (1) 栄養レベルの低いもの程、一般に早く平衡濃度に達するものとして、排泄速度係数の値を大きくした。
- (2) Fig.5-5に示した食物網を構成する2つの連鎖系で、同じ栄養レベルにある生物のうち、一方の濃度を高く ($X_2 > X_3$) することによって、食物連鎖の、上位生物の濃度に及ぼす影響を調べた。
- (3) 栄養レベルの最上位に属する生物の餌料が、特に高い濃縮性を示す生物がいる場合の影響を調べるために、 X_1, X_2 が高い相対濃度を持つようにする。又逆に、どの栄養レベルの生物も、同じ程度の濃縮性しか示さない場合についても検討した。
- (4) 捕食生物が2種以上の餌料生物を摂取する場合、各餌料生物からの摂餌速度係数の和 ($\sum_{i=1}^{j-1} k_{ij}, j=2,3,4$) がどの捕食生物に対しても等しくなるように、摂餌速度係数の値を分配した。計算結果の数例を Figs.5-5~5-9に示す。計算値は相対濃度で示されている。ここで相対濃度とは、前章と同様に、環境水中の放射能濃度に対する、濃縮過程における水産生物中の放射能濃度の比のこと

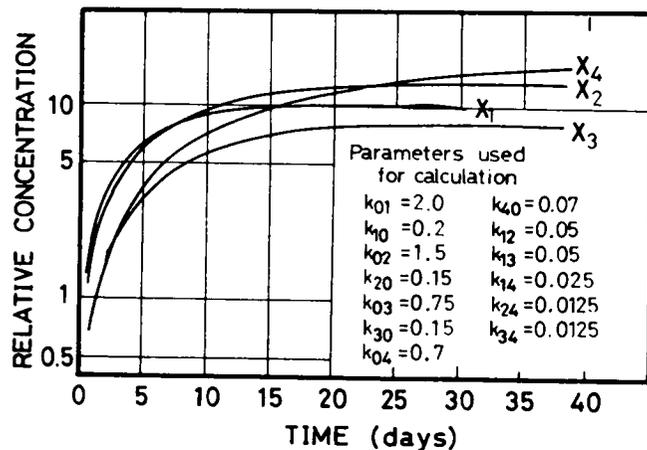


Fig.5-5 Estimated values of the relative concentration in organisms

である。生物が、環境水からのみ放射能を摂取するときの、平衡時における相対濃度を X_0 とすれば濃縮係数は $A = k_{0i}/k_{i0}$ と与えられる。これらの計算では、比較しやすいように、 A の値がそれぞれの生物に対して5, 10, 100となるようにパラメータの値が定められている。Fig. 5-5は各栄養レベルの生物とも A の値が同程度(5-10)の場合である。Fig. 5-6と5-7は

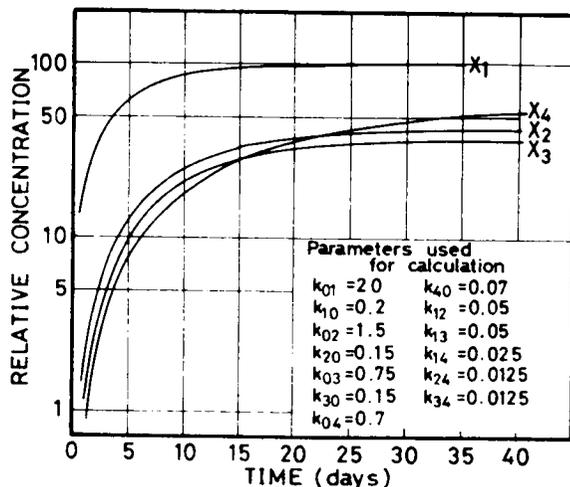


Fig. 5-6 Estimated values of the relative concentration in organisms

X_1 が100で他は5, 10となる場合で、Fig. 5-7と5-8とでは、捕食生物の摂取速度定数の値が異なっている。同様に、Fig. 5-8と5-9は X_0 が100となる場合を示している。汚染生物の摂取により、生物中の放射能濃度は、環境水からの直接摂取だけの場合よりも明らかに増加することがわかる。しかし、

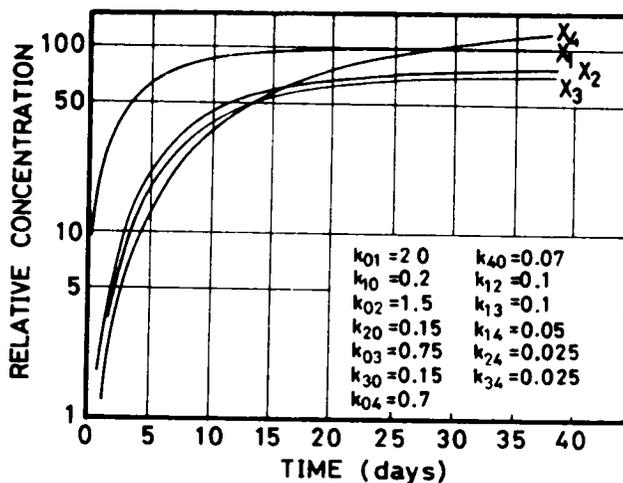


Fig. 5-7 Estimated values of the relative concentration in organisms

Fig. 5-6に典型的に示されているように、栄養レベルが上位にある生物中の放射能濃度が、下位の生物の濃度より必ずしも高くなるとは限らない。それは主として摂取速度定数に強く依存する。例えば X_4 の平衡時における相対濃度は次式で与えられる。

$$\frac{X_4}{X_0} = \frac{k_{04}}{k_{40}} + \frac{k_{01}k_{14}}{k_{10}k_{40}} + \frac{k_{02}k_{24}}{k_{20}k_{40}} + \frac{k_{01}k_{12}k_{24}}{k_{10}k_{20}k_{40}} + \frac{k_{03}k_{34}}{k_{30}k_{40}} + \frac{k_{01}k_{13}k_{34}}{k_{10}k_{30}k_{40}} \quad (5-29)$$

式(5-29)の右辺が1項は直接摂取のみの場合の濃縮の寄与を表わしている。が2項は $X_0-X_1-X_4$ の経路から摂取された寄与を、が3項は $X_0-X_2-X_4$ の経路を、同様にして、が4項は、 $X_0-X_1-X_2-X_4$ が5項は $X_0-X_3-X_4$ 、が6項は、 $X_0-X_1-X_3-X_4$ と、各食物連鎖の経路の寄与を表わしている。

したがって、各パラメータの値を(5-29)式に代入すると、平衡時における相対濃度が予測でき、また各項の値を比較することにより、食物連鎖の主要な経路を見い出すことができる。

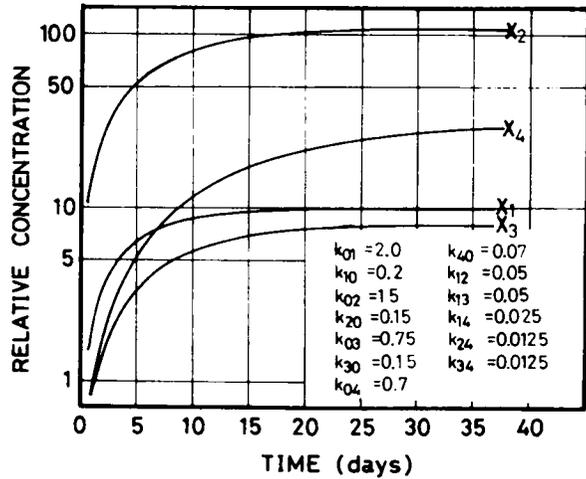


Fig.5-8 Estimated values of the relative concentration in organisms

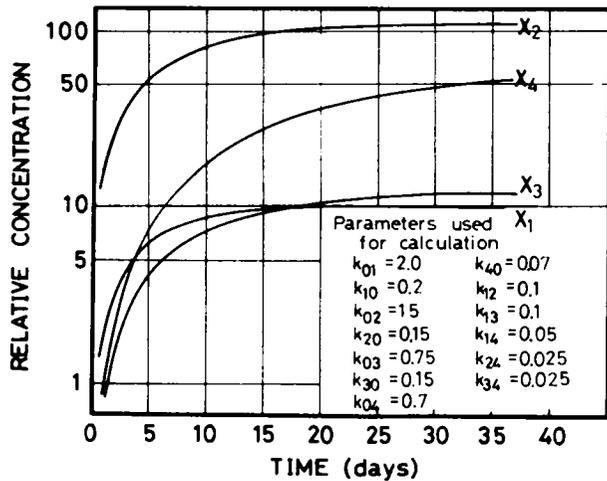


Fig.5-9 Estimated values of the relative concentration in organisms

第5節 モデルパラメータの不確定性評価

5-1 感度解析による評価

これまで、水生生物による放射性物質の摂取パターンは、一般に、一次の常微分方程式で表わされると仮定してきた。しかし、生物や放射性核種の種類によって、前節で記述されたような簡単な指数関数によつて十分に表現されない濃縮パターンも見られ

る(5.6)。 Fig.5-10の●印は第3節で得られた実験データの一部であるが、今これらの実験値の最近似曲線が関数 $f(t, K)$ を表わされたとする。この時、パラメータの値を K のまわりで ΔK だけ微小変動させて計算すると、その解軌道として、図中の3つの曲線が得られる。この時、実験値と理論曲線との不一致について、次の二つのことが推測される。まず第一に、この濃縮パターンは、一般に、 $f(t, K)$ という関数型で表現できるが、何らかの環境要因によって、パラメータの値が変化したため、図に示されるような結果が得られたと考へる。才

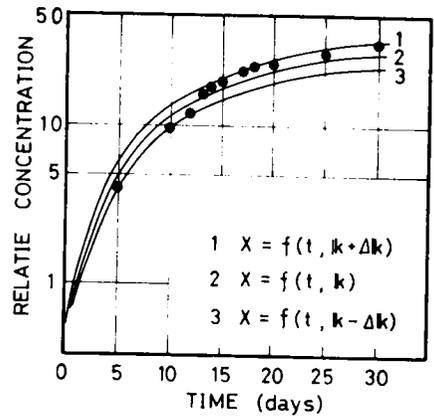


Fig.5-10 Daily changes of solution tracks which show the relative concentration

二には、この濃縮パターンは $f(t, K)$ という関数型で表現され得ないが、少なくとも、パラメータの値を K のまわりに $\pm \Delta K$ だけ変化させれば、実験値はその関数の変動の中に入るので、おおむね、現象はその関数型で近似し得ると考へる。この二つの考へ方は、生物による放射性核種の濃縮過程の生理学的な解釈に本質的な相異があるが、どちらの考へ方にせよ、ここでは濃縮パターンの数式モデルによる現象論的近似表現を許すものであり、実験値のバラツキは、式中のパラメータ K の不確定性の問題として取扱うものである(57)。

一連のシステム方程式で表わされる、ある特定の生物の放射能濃度に対し、どのパラメータが最も強く影響するのか、あるいは種々の環境要因によるパラメータの変動は、生物の濃度変化にどの程度の影響を与えるのか、すなわち数学的にはシステムの構造安定性の問題と、モデルを設定する際に関数表現による近似性の問題について知る事が重要である。これらは才2章においても少し触れた感度解析の手法(51,52)によって評価できる。

システムの微分方程式が、一般にあるパラメータの基準値 に対して、次のような常微分方程式であらわされておるとする。

$$\frac{d\mathbf{X}(t)}{dt} = f(\mathbf{X}; t, \mathbf{K}) \quad (5-30)$$

すなわち

$$\frac{dX_i(t)}{dt} = f_i(X_1, X_2, \dots, X_n; t, k_1, k_2, \dots, k_n) \quad (5-31)$$

($i = 1, 2, \dots, n$)

ここに、 $\mathbf{X} = (X_1, X_2, \dots, X_n)^t$ (t は転置ベクトルを表す) は n 次元の状態量ベクトルであり、 $\mathbf{K} = (k_1, k_2, \dots, k_m)^t$ は m 次元のシステムパラメーターベクトルである。

システムパラメーターが微小量 $\Delta\mathbf{K}$ だけ変化した時、システムの状態量 $\tilde{\mathbf{X}}$ は次の式で表わされる。

$$\frac{d\tilde{\mathbf{X}}(t)}{dt} = f(\tilde{\mathbf{X}}; t, \mathbf{K} + \Delta\mathbf{K}) \quad (5-32)$$

この時、システムの状態量 \mathbf{X} の変動量 $\Delta\mathbf{X} = (\Delta x_1, \Delta x_2, \dots, \Delta x_n)^t$ は次式で定義される。

$$\Delta\mathbf{X} = \tilde{\mathbf{X}}(t) - \mathbf{X}(t) \quad (5-33)$$

この変動量 $\Delta\mathbf{X}$ は \mathbf{K} について Taylor 展開することによって、

$$\Delta\mathbf{X}(t, \Delta\mathbf{K}) = \frac{\partial\mathbf{X}}{\partial\mathbf{K}} \Delta\mathbf{K} + \frac{1}{2} \Delta\mathbf{K} \frac{\partial^2\mathbf{X}}{\partial\mathbf{K}^2} \Delta\mathbf{K} + \dots \quad (5-34)$$

より、 $\Delta\mathbf{K}$ が十分小さいとすれば、この変動量 $\Delta\mathbf{X}$ は式 (5-34) の第一項で近似できる。 $\Delta\mathbf{X}$ の $\Delta\mathbf{K}$ に対する比は、パラメーターの値が変化した時に受ける影響の程度を表す一つの指標であり、感度係数と呼ばれる。例えば i 番目の状態変数 X_i 、すなわち第 i 番目の compartment に属する生物の放射能濃度 X_i の第 j 番目のパラメーター k_j に対する感度係数は次式で定義される。

$$Y_{ij} = \left. \frac{\partial X_i}{\partial k_j} \right|_{\Delta K=0} \quad \begin{array}{l} i=1, 2, \dots, n \\ j=1, 2, \dots, m \end{array} \quad (5-35)$$

X_i の変動量 ΔX_i はこの感度係数 Y_{ij} とパラメーターの変動量 Δk_j との積によって近似的に求められることができる。今ある生物中の放射能濃度 X_i に対するパラメーター k_j の変動の影響を無次元化して考えると、すなわち、パラメーターの変動率 $\Delta k_j/k_j$ に対する状態量の変動率 $\Delta X_i/X_i$ の比は感度と呼ばれ、(5-36)式で定義される。

$$S(X_i, k_j) = \frac{\partial X_i / X_i}{\partial k_j / k_j} = \frac{\partial X_i}{\partial k_j} \cdot \frac{k_j}{X_i} \quad (5-36)$$

この感度の絶対値が大きい程、そのパラメーターの変動率の、生物中の放射能濃度の変動率に及ぼす影響の大きいことを示しており、濃度変動に及ぼすパラメーターの重要性の指標となるものである。したがって、この感度を計算することによって、水圏生態系の放射能汚染を評価する上に、重要な影響を及ぼすパラメーターを定量的に評価し得るのである。

水圏生態系における Food Web は Fig.5-5 に示すように、高々3~4段階考えれば十分であろうと思われる。栄養段階で最上位に属するものが、食物連鎖の影響を最も強く受けることにあるので、ここでは、第3段階に属する生物中の放射能濃度 X_4 についてのみ、その感度係数を以下に記す。

$$\begin{aligned} \frac{\partial X_4}{\partial k_{01}} = & k_{14} \left\{ \frac{1}{k_{10} k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})} \right\} X_0 + k_{12} k_{14} \left\{ \frac{1}{k_{10} k_{20} k_{40}} - \right. \\ & \left. \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})} \right\} X_0 \\ & + k_{13} k_{34} \left\{ \frac{1}{k_{10} k_{30} k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})} - \right. \end{aligned}$$

$$\frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})}X_0 \quad (5-37)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{02}} = k_{24} \left\{ \frac{1}{k_{20}k_{40}} - \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{40}-k_{20})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{20}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-38)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{03}} = k_{34} \left\{ \frac{1}{k_{30}k_{40}} - \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{40}-k_{30})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{30}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-39)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{04}} = \left\{ \frac{1}{k_{40}} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}} \right\} X_0 \quad (5-40)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{12}} = k_{01}k_{24} \left\{ \frac{1}{k_{10}k_{20}k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-41)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{13}} = k_{01}k_{34} \left\{ \frac{1}{k_{10}k_{30}k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-42)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{14}} = k_{01} \left\{ \frac{1}{k_{10}k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-43)$$

$$\frac{\partial X_4}{\partial k_{24}} = k_{02} \left\{ \frac{1}{k_{20}k_{40}} - \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{40}-k_{20})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{20}-k_{40})} \right\} X_0 + k_{01}k_{12} \left\{ \frac{1}{k_{10}k_{20}k_{40}} \right.$$

$$\begin{aligned}
& - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})} - \\
& \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-44)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_4}{\partial k_{34}} = & k_{03} \left\{ \frac{1}{k_{30}k_{40}} - \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{40}-k_{30})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{30}-k_{40})} \right\} X_0 + k_{01}k_{13} \left\{ \frac{1}{k_{10}k_{30}k_{40}} - \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} - \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})} - \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})} \right\} X_0 \quad (5-45)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_4}{\partial k_{10}} = & k_{01}k_{14} \left[- \frac{1}{k_{10}^2 k_{40}} - \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{40}-k_{10})} \left\{ t + \frac{1}{k_{10}} - \frac{1}{k_{40}-k_{10}} \right\} + \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})^2} \right] X_0 + k_{01}k_{12}k_{24} \left[- \frac{1}{k_{10}^2 k_{20}k_{40}} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} \right. \\
& \left. \left\{ t + \frac{1}{k_{10}} - \frac{1}{k_{20}-k_{10}} - \frac{1}{k_{40}-k_{10}} \right\} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})^2(k_{40}-k_{20})} + \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})^2(k_{20}-k_{40})} \right] X_0 + k_{01}k_{13}k_{34} \left[- \frac{1}{k_{10}^2 k_{30}k_{40}} + \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})} \left\{ t + \frac{1}{k_{10}} - \frac{1}{k_{30}-k_{10}} - \frac{1}{k_{40}-k_{10}} \right\} + \right. \\
& \left. \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})^2(k_{40}-k_{30})} + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})^2(k_{30}-k_{40})} \right] X_0 \quad (5-46)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_4}{\partial k_{20}} &= k_{02}k_{24} \left[-\frac{1}{k_{20}^2 k_{40}} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{40}-k_{20})} \left\{ t + \frac{1}{k_{20}} - \frac{1}{k_{40}-k_{20}} \right\} + \right. \\
&\quad \left. \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{40}(k_{20}-k_{40})^2} \right] X_0 + k_{01}k_{12}k_{24} \left[-\frac{1}{k_{10}k_{20}^2 k_{40}} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})^2 (k_{40}-k_{10})} + \right. \\
&\quad \left. \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})} \left\{ t + \frac{1}{k_{20}} - \frac{1}{k_{10}-k_{20}} - \frac{1}{k_{40}-k_{20}} \right\} \right. \\
&\quad \left. + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})^2} \right] X_0 \quad (5-47)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_4}{\partial k_{30}} &= k_{03}k_{34} \left[-\frac{1}{k_{30}^2 k_{40}} + \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{40}-k_{30})} \left\{ t + \frac{1}{k_{30}} - \frac{1}{k_{40}-k_{30}} \right\} + \right. \\
&\quad \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{30}-k_{40})^2} \right] X_0 + k_{01}k_{13}k_{34} \left[-\frac{1}{k_{10}k_{30}^2 k_{40}} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})^2 (k_{40}-k_{10})} + \right. \\
&\quad \left. \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})} \left\{ t + \frac{1}{k_{30}} - \frac{1}{k_{10}-k_{30}} - \frac{1}{k_{40}-k_{30}} \right\} + \right. \\
&\quad \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})^2} \right] X_0 \quad (5-48)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial X_4}{\partial k_{40}} &= k_{04} \left\{ -\frac{1}{k_{40}} + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}} \left(t + \frac{1}{k_{40}} \right) \right\} X_0 + k_{01}k_{14} \left[-\frac{1}{k_{10}k_{40}^2} + \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{40}-k_{10})^2} \right. \\
&\quad \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})} \left\{ t + \frac{1}{k_{40}} - \frac{1}{k_{10}-k_{40}} \right\} \right] X_0 + k_{02}k_{24} \left[-\frac{1}{k_{20}k_{40}^2} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{40}-k_{20})^2} \right.
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{20}-k_{40})} \left\{ t + \frac{1}{k_{40}} - \frac{1}{k_{20}-k_{40}} \right\} X_0 + k_{01}k_{12}k_{24} \left[-\frac{1}{k_{10}k_{20}k_{40}^2} + \right. \\
& \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{20}-k_{10})(k_{40}-k_{10})^2} + \frac{e^{-k_{20}t}}{k_{20}(k_{10}-k_{20})(k_{40}-k_{20})^2} + \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{20}-k_{40})} \\
& \left. \left\{ t + \frac{1}{k_{40}} - \frac{1}{k_{10}-k_{40}} - \frac{1}{k_{20}-k_{40}} \right\} \right] X_0 + k_{03}k_{34} \left[-\frac{1}{k_{30}k_{40}^2} + \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{40}-k_{30})^2} \right. \\
& \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{30}-k_{40})} \left\{ t + \frac{1}{k_{40}} - \frac{1}{k_{30}-k_{40}} \right\} X_0 + k_{01}k_{13}k_{34} \left[-\frac{1}{k_{10}k_{30}k_{40}^2} + \right. \\
& \frac{e^{-k_{10}t}}{k_{10}(k_{30}-k_{10})(k_{40}-k_{10})^2} + \frac{e^{-k_{30}t}}{k_{30}(k_{10}-k_{30})(k_{40}-k_{30})^2} + \\
& \left. \frac{e^{-k_{40}t}}{k_{40}(k_{10}-k_{40})(k_{30}-k_{40})} \left\{ t + \frac{1}{k_{40}} - \frac{1}{k_{10}-k_{40}} - \frac{1}{k_{30}-k_{40}} \right\} \right] X_0 \quad (5-49)
\end{aligned}$$

上に述べた式はどれも環境水の放射能濃度が一定の場合についての感度係数であるが、任意の関数について同様にして感度係数を得ることができる。

5-2 数値計算および考察

ここで用いたパラメーターの値は前節と同様で、一例として計算を行なった。感度の計算例がFigs.5-11, 12に示されている。これらの図は、Fig.5-4に示した食物網の各構成要素の放射能濃度がFigs.5-5, 6に示された濃縮パターンを取る時、栄養段階の最上位にある生物の放射能濃度 X_4 の、各パラメーターに対する感度の日変化を表わすものである。感度係数の関数から明らかのように、排泄速度係数 k_{20} に対する感度は常に負であるが、図では絶対値で示されている。摂取速度係数 k_{04} に対する感度だけが減少関数で、他のパラメーターの感度は全て増加関数で、新次平衡値に近づ

いてゆく。感度の大きさやその順位は時間的に変化するので、放射能の濃縮過程における初期と平衡時とでは、生物中の濃度変動に及ぼすパラメータの重要性が変わることに注意する必要がある。Fig.5-12に見られるように、食物網の下位の栄養段階にある生物の中で、特に高い放射能を有する生物が存在する場合には、その生物の摂取速度係数、排泄速度係数および摂餌速度係数が特に重要である。平衡時で、感度の最大値と最小値とでは、約2桁位の差があり、感度の小さいパラメータは生物中の放射能濃度を予測する場合、無視し得るであろう。これらの試算例から、予想できるように、感度の小さい摂餌速度係数に關与する餌料生物からの放射能濃縮の寄与は小さいので複雑な食物網を通じた放射能濃縮がある場合でも、全この餌料生物からの寄与を考慮しなくとも、特に高い濃縮性を示す1~2の餌料生物の寄与だけを考之れば良い。

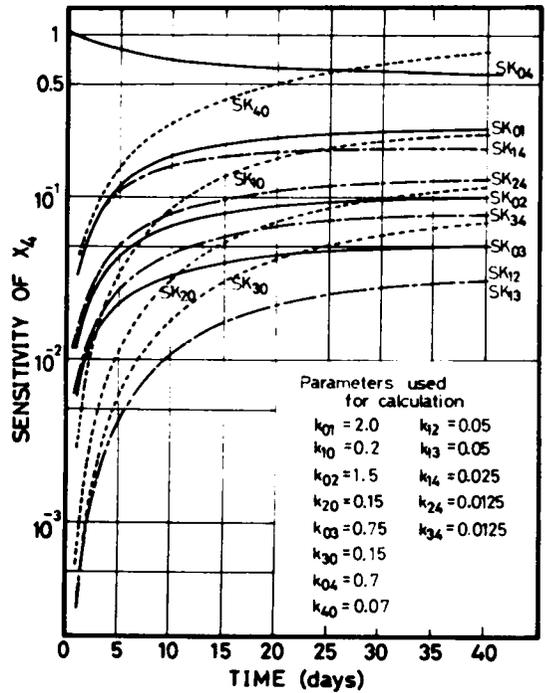


Fig.5-11 Daily changes of sensitivity

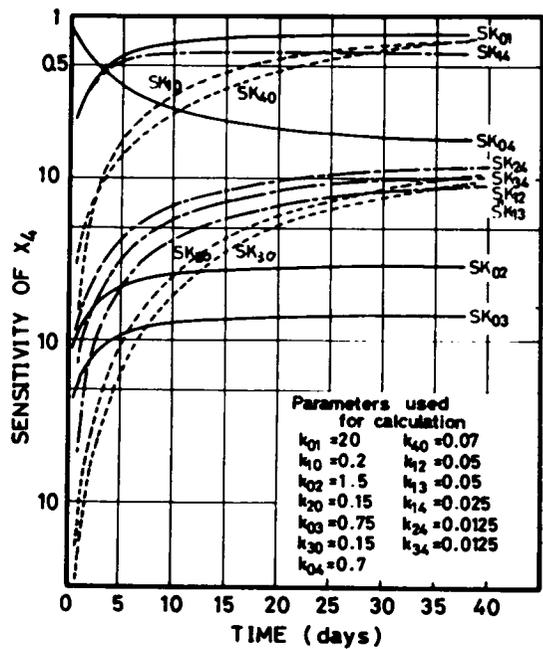


Fig.5-12 Daily changes of sensitivity

第6節 要約

従来、水圏生態系における食物連鎖を通しての放射性核種の濃縮に関して、それを否定する議論もあった。またそれを支持する論文も実験条件が不明瞭で、現象を定式化する上に、パラメータの生態学的意味が明らかにできず、モデルも不十分な点があった。本研究においては、水圏生態系の放射能汚染を推定し、評価する場合、食物連鎖を通しての放射性物質の移行を無視し得ないことを実験的に検証し、摂餌速度係数の新しい概念を定義して、従来のモデルを改良、発展させた。食物連鎖を通しての放射性物質の移行が、環境水からの直接摂取よりも卓越するかどうかは、種々の生態学的パラメータ、摂餌量、同化率、摂取速度係数、排泄速度係数等に強く依存することが、数値計算から明らかにされ、また感度解析の手法によって、それぞれのパラメータの放射能濃縮における影響の程度が定量化された。しかし、本研究で他の安定元素や、同位元素の存在の影響については考慮されておらず、また実際に起る餌料密度の影響などはモデルに組み込まれておらず、今後の研究課題である。更に、放射性物質の環境水からの直接摂取と、食物からの間接摂取とはそれぞれ独立に起ると仮定している。この点については、第3節の実験結果から、少なくとも、必須栄養塩では無く、低濃度で環境水中に存在する核種に対しては考慮しなくてはならないと考へる。

本章で述べたモデルを実際の環境に適用して、放射能汚染を評価する場合、現場での食物網の構造、摂餌量、餌量密度、それぞれの核種についての同化率など、時間的、空間的要因をも含めて、総合的な生態学的、物理化学的環境要因に関する情報を収集することが重要な課題となる。

参考文献

- (1) J.S.Olson, (1966) Progress in Radiation Ecology : Radionuclide Movement in Major Environments. Nuclear Safety, Vol.8(1), pp.53-58
- (2) H.Broughs and S.T.Townsley, (1956) The Metabolism of Radionuclides by Marine Organisms, The Uptake, Accumulation and Loss of Sr⁸⁹ by Fishes. Biological Bulletin, Vol.1(3), pp.336-351
- (3) R.C.Pendleton and W.C.Hanson, (1958) Absorption of Cesium-137 by Components of an Aquatic Community. Proc. of 2nd United Nations Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol.18, Geneva, pp.419-422
- (4) S.F.King, (1964) Uptake and Transfer of Cs-137 by *Clamynomonas daphnia* and Bluegill Fingerlings. Ecology, Vol.45(4), pp.852-859
- (5) Y.Hiyama and M.Shimizu, (1964) On the Concentration Factors of Radioactive Cs,Sr,Cd,Zn and Ce in Marine Organisms. Records of Oceanographic Works in Japan, Vol.17(2), pp.43-77
- (6) Y.Hiyama and J.Matsubara Khan, (1964) On the Concentration Factors of Radioactive I,Co,Fe, and Ru in Marine Organisms. Records of Oceanographic Works in Japan, Vol.17(2), pp.79-106
- (7) G.G.Polikarpov, (1966) Radioecology of Aquatic Organisms. North-Holland Pub. Company
- (8) T.M.Beasley, T.A.Jokela and R.J.Eagle, (1971) Radionuclides and Selected Trace Element in Marine Protein Concentrates. Health Physics, Vol.21, pp.815-820
- (9) K.R.Price, (1972) A Critical Review of Biological Accumulation, Discrimination and Uptake of Radionuclides Important to Waste Management Practice, 1943-1971. AEC Report, BNWL-B-148

- (10) S.M.Jinks and M.Eisenbud, (1972) Concentration Factors in the Aquatic Environment. Radiation Data and Report, pp.243-247
- (11) S.I.Auerbach, (1965) Radionuclide Cycling : Current Status and Future Needs. Health Physics, Vol.11, pp.1355-
- (12) A.H.W.Aten Jr., (1958) Radioactivity in Marine Organisms. Proc. of the 2nd United Nations Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol.18, Geneva, pp.414-418
- (13) 岩井重久、井上頼輝、寺島泰(1968), 水生生物の放射能汚染に関する基礎的研究、工本学会論文集、第154号、pp.23-33
- (14) Y.Hiyama and M.Shimizu, (1969) Uptake of Radioactive Nuclides by Aquatic Organisms, The Application of the Exponential Model. Environmental Contamination by Radioactive Materials. Proc. of a Seminar, Vienna, IAEA pp.463-476
- (15) 青山勲、吉川進、井上頼輝、岩井重久(1970), 放射性物質の水生生物への濃縮過程—その確率論的考察—, 保健物理,
- (16) I.Aoyama and Y.Inoue, (1974) A Stochastic Study on the Concentration Process of Radioactive Substances to Aquatic Organisms. Health Physics, Vol.26 (Feb), pp.191-108
- (17) I.Aoyama, M.Yamamoto and Y.Inoue, (1974) A Stochastic Model for the Concentration Process of Radioactive Substances. 5th Intern. Congress of Radiation Research, Seattle, Washington, pp.172
- (18) R.C.Pendleton and W.C.Hanson, (1958) Absorption of Cesium-137 by Components of an Aquatic Community. Proc. of the 2nd United Nations Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol.18 Geneva, pp.392-422
- (19) J.P.Baptist and C.W.Lewis, Transport of ^{65}Zn and ^{51}Cr through on Estuarine Food Chain. AEC Report, CONF-670-103, pp.420-431

- (20) L.Berner, Jr., R.Bieri, E.D.Goldberg, D.Martin and R.M.Wisner, (1962) Field Studies of Uptake of Fission Products by Marine Organisms. *Limnology and Oceanography*, Vol.7(Suppl.) lxxxii xci
- (21) C.Osterberg, W.G.Pearcy and H.Curl, Jr., (1964) Radioactivity and its Relationship to the Oceanic Food Chain. *J.of Marine Research*, Vol.22 (1), pp.201-212
- (22) T.R.Rice, (1963) Reviews of Zinc in Ecology. *Proc. of the First National Symp. on Radioecology*, pp.619-631
- (23) S.J.Townsley, D.F.Reid and W.T.Ego, (1960) Uptake of Radioisotopes and Their Transfer through Food Chains by Marine Organisms. USAEC Report TID-6630, 40p.
- (24) L.G.Williams and Q.Pickering, (1961) Direct and Food Chain Uptake of Cesium-137 and Strontium-85 in Bluegill Fingerlings. *Ecology* Vol.42 (1), pp.205-206
- (25) K.Kimura and R.Ichikawa, (1972) Accumulation and Retention of Ingested Cobalt-60 by Common goby. *Bulletin of the Japanese Society of Scientific Fisheries*, Vol.38 (10), pp.1097-1103
- (26) T.W.Duke, E.R.Ibert and K.M.Rae, (1961) Availability of Sediment-Materials to Marine Biota. in *Symposium on Radioecology* (Ed. V.Shultz and A.W.Klement Jr.) Reinhold, New York, pp.171-174
- (27) T.R.Rice, (1961) The Role of Phytoplankton in the Cycling of Radionuclides in the Marine Environment. *ibid*, pp.179-186
- (28) R.C.Ball and F.F.Hooper, (1961) Translocation of Phosphorus in a Trout Stream Ecosystem. *ibid*, pp.217-222
- (29) W.L.Minckley, J.E.Carddock and L.A.Krumholz, (1961) Natural Radioactivity in the Food Web of the Banded Sculpin *Cottus Carolinae* (Gill) *ibid*, pp.229-236

- (30) T.R.Rice, (1961) Review of Zinc in Ecology. *ibid*, pp.619-632
- (31) C.Osterberg, W.G.Percy and H.Curl Jr., (1964) Radioactivity and and its Relationship to Oceanic Food Chain. *Journal of Marine Research*, Vol.22 (1), pp.2-12
- (32) B.S.Schreiber, (1972) Plankton and Sediments, First and Last Step of the Radioactivity Diffusion in the Sea. in Symposium on the Interaction of Radioactive Contaminants with the Constituents of the Marine Environment, IAEA, SM-158/18
- (33) S.G.Bloom, A.A.Levin and W.E.Martin, (1970) Mathematical Methods for Evaluating the Transport and Accumulation of Radionuclides. USAEC Report, BMI-171-30
- (34) G.E.Reines, S.G.Bloom and A.A.Levin, (1969) Ecological Models Applied to Radionuclides Transfer in Tropical Ecosystem. *Bio Science*, Vol.19 (12), pp.1086-1091
- (35) G.M.Woodwell, (1967) Toxic Substances and Ecological Cycles. *Scientific American*, Vol.216 (3), pp.24-31
- (36) S.G.Bloom and G.E.Reines, (1969) A Preliminary Mathematics Model for Predicting the Transfer of Radionuclides in the Marine Environment. USAEC Report, BMI-171-123
- (37) M.Bernhard, (1971) The Utilization of Simple Models in Radioecology. CNEN-RT/PROT(72) 12, pp.129-187
- (38) 岩井重久、井上頼輝、青山勲、吉川進、井面光司(1971), 水生生物の食物連鎖による放射能汚染の評価と推定—Compartment Model による計量化への試み—. 日本保健物理協議会第6回研究発表会, pp. 40
- (39) 岩井重久、井上頼輝、青山勲、吉川進、井面光司,(1971), 淡水魚による微量金属の濃縮過程。 土木学会関西支部年次学術講演会 pp. II-54-1~54-2

井上頼輝、青山勲、吉川進、井面光司(1971), 水圏生態系における食物連鎖による放射能汚染の推定と評価, 第26回土木学会年次学術講演会, pp. 643-644

- (41) I.Aoyama and Y.Inoue, (1973) Estimation and Evaluation of Radioactive Contamination through a Food Web in an Aquatic Ecosystem (1) — An Application of the Compartment Model to Transfer of Radioactive Substances through a Food Chain — . Journal of Radiation Research, Vol.14 (4), pp.375-381
- (42) 松原純子、町田和彦、野山修、吉田和子(1972), コンパートメンタル・アナリシスによるマウスにおける ^{109}Cd および ^{203}Hg の臓器別生物学的半減期の推定。日本放射線影響学会第15回大会講演要旨集 pp.2A11
- (43) W.E.Martin, Early Food-Chain Kinetics of Radionuclides Following Close-in Fallout from a Single Nuclear Detonation. USAEC Report COF-765
- (44) 崎岡隆、原田英司、西村二郎。(1972), 海の生態学。生態学研究シリーズ3。築地書館
- (45) E.P.Odum, (1971) Fundamentals of Ecology. Third Edition. W.B. Saunders Company
- (46) 寺島泰, (1969), 放射性廃棄物の固化処理と海洋投棄処分に関する研究—セメント灰による固化処理法と固化体の海洋処分に伴う影響とを中心として— 京都大学博士論文
- (47) В.С.ИВЛЕВ, (1955) ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ . ЭКОЛОГИЯ ПИТАНИЯ РЫБ, ПИЩЕПРОМИСЛАД, МОСКВА
(児玉康雄、若原友告訳, (1965) 魚類の栄養生態学, 新科学文献刊行会)
- (48) G.M.Woodwell, (1967) Toxic Substances and Ecological Cycle. Scientific American, March, Vol.26 (3) pp.24-31
- (49) 水野寿彦, (1971) 池沼の生態学, 築地書館

- (50) I Aoyama and Y.Inoue, (1975) Estimation and Evaluation of the Radioactive Contamination through a Food Web in an Aquatic Ecosystem (2) — Systems Analysis of the Transfer of Radionuclides through a Food Web — J. of Radiation Research, Vol.15(2),pp.132-141
- (51) R.Tomovic, (1964) Sensitivity Analysis of Dynamic Systems. McGraw-Hill Book Company, Inc.
- (52) 高松武一郎, 橋本伊織, (1970) プロセスシステムの最適化と感度解析(I) 最適化における不確定性の存在について。制御工学, 14巻第5号。 pp.257-262

第6章 水産生物による放射性核種の濃縮過程に関する確率論的研究

第1節 概説

既に前章、第4節で述べたように、実験的に得られた濃縮係数、あるいは、自然環境で採取された種々の水産生物の濃縮係数の値は、同一生物、同一核種について見ても、種々の環境要因、環境水中における放射性核種の存在状態、核種と生物とが接触する確率、あるいは生物の個体差等、物理化学的な現象から、生物の生理学的あるいは生態学的な現象までを含めた広範囲、多様な要因によって数倍から十数倍におよんで変動することが報告されている。(1~4) これを Table 6-1 に示す。この表に示された濃縮係数ほどの様な環境条件、どの様な実験条件で求められたかについては、明らかでないため、一概に論じることができないにしても、同一の環境条件下で棲息する水産生物による放射性物質の濃縮係数が広い範囲に分布する可能性を十分に汲みとることができよう。こうした濃縮係数の分布は、一般的に生物学的データと同様に、対数正規分布や、ポアソン分布によって近似し得ると考えられる。この様な複雑な現象に支配される放射性物質の生物による摂取、排泄過程を数式モデルで表現しようとする場合、平均的には、前章で取扱ったような指数関数モデルで表現できるとしても、分布として、時間的に変化するパターンを簡単な、決定論的な数式モデルで表現することは容易ではない。上述の現象の様に、ほんらかの形で偶然あるいは予測が介入する様な問題について、ある程度、正確な判断を下したい場合には、現象を確率論的に把握し、表現することが有効であると考えられる。

本章では、水産生物による放射性核種の濃縮過程において、濃度分布が対数正規分布、あるいはポアソン分布に従うことに着目し、さらにこの濃度分布の経時的変化と時系列定常確率過程に従うものと仮定し、濃縮過程を分布の変化として、定量的に把握することと試みるものである。第2節では、環境水の放射能濃度が一定の場合について、マルコフ連鎖過程で濃縮過程を表現し、第3節では、同様に確率過程の一つである出生死滅過程の応用により、環境水濃度が変化する場合にも適用できる様に、より一般的

は確率的表現を行い、さらに食物連鎖への適用についても理論的展開を行っている。

Table 6-1 Ranges of Element Concentration Factors in Marine Organisms at Various Trophic Levels (3)

Element	Algae			Grazers		Predators		
	Sessile	Plankton (Phytoplankton and Sargassum)	Plankton (Copepods, Pteropods Salps, Doliolid)	She fish	Plankton [Euph-ausiids, Planktonic Amphipods, Shrimp (Acanthephyra, Paleomonetes)]	Fish	Squid	
Ag	100-1000	100-220	100	330-2x10 ⁴	45-900	10	900-3000	
Cd	11-20	350-6000	80-10 ⁵	10 ⁵ -2x10 ⁶	300-10 ⁴	10	2800	
Ce	100-3300	2000-4500		40-300		5-12		
Co	15-740	75-1000	110-10 ⁴	24-260	70-1300	28-560	200-5x10 ⁴	
Cr	100-500	70-600	15-10 ⁴	6x10 ⁴ -3x10 ⁵	55-3900	3-30	70	
Cs	16-50	16-22	6-15	3-15		6-10		
Fe	10 ³ -5x10 ³	750-7x10 ⁴	440-6x10 ⁴	7x10 ⁴ -3x10 ⁵	3x10 ³ -3x10 ⁴	400-3x10 ³	10 ³ -3x10 ³	
I	160-7x10 ³			40-70		10		
Mo	10-200	3-17	2-175	30-90	2-14	200	10	
Mn	20-2x10 ⁴	300-7x10 ³	21-4x10 ³	3x10 ³ -6x10 ⁴	270-1600	95-10 ⁵	10 ³	
Ni	50-1000	25-300	2-1000	4x10 ³ -10 ⁴	17-90		30-80	
Pb	8x10 ³ -2x10 ⁴	10 ³ -3x10 ⁶	3x10 ³ -2x10 ⁶	39-5x10 ³	200-6x10 ⁴	5-10 ⁴	100-2x10 ⁵	
Ru	100-1000	200	10-6000	1-16	160-2400		400-2100	
Sr	0.1-90	0.9-54	1-85	50	1.2-10	4-5	C.9-1.2	
Ti	200-3x10 ⁴	600-10 ⁴	28-3x10 ⁴		110-2x10 ⁴		300-3000	
Zn	80-3000	200-1300	125-500	1400-10 ⁵	50	280-2x10 ⁴	2500	
Zr	200-3000	1000-2x10 ⁴	360-3x10 ⁴	8-36	80-4x10 ⁴	5	2x10 ⁴	

第2節 単純マルコフ過程の適用 ^(5~7)

2-1 理論的考察

(i) 一般的表現

放射能汚染を受けた水圏環境中に棲息する水産生物が、環境水中からえらや皮膚を通して放射性物質を吸収し、これを体内に蓄積してゆく過程、すなわち濃縮係数の変化してゆく過程を、一つの時間的に変化可能なシステム(系)として考え、離散的な時点 $t = t_1, t_2, \dots, t_i, \dots$ における放射性核種の濃縮係数の頻度分布を考える。環境水の放射能濃度が一定に保たれる場合には、濃縮係数の平均値はやがて平衡に達する。この平衡時での値を最高値として、濃縮係数を n 個の汚染段階に分割して、それらの状態を次式の様に、集合 S で表わす。

$$S = \{S_1, S_2, \dots, S_i, \dots, S_n\} \quad (6-1)$$

(6-1) 式で表わされる状態空間 S をもつシステムの変数 x を、ある時点 $t = t_i$ において、状態が $x_i = S_i$ であるような確率変数列 $\{x_i\}$ で表わすと、確率変数の時間的変化が $x_1 = S_1, x_2 = S_2, \dots, x_i = S_i, x_j = S_j$ であった時、 $x_j = S_j$ とする条件付確率が条件 $x_i = S_i$ だけに關係して、それ以前の経過には無關係であるような確率過程は、マルコフ連鎖過程 (Markov Chain Process) ^(8,9) と呼ばれ、次式で表わされる。

$$P(x_j = S_j \mid x_1 = S_1, x_2 = S_2, \dots, x_i = S_i) \\ = P(x_j = S_j \mid x_i = S_i) = P_{ij}(t_i, t_j) \geq 0 \quad (6-2)$$

$$\sum_{j=1}^n P_{ij}(t_i, t_j) = 1 \quad (6-3)$$

(6-2) 式で表わされる確率 $P_{ij}(t_i, t_j)$ は、確率変数 x が、時刻 $t = t_i$ で、状態 S_i にあったものが、時刻 $t = t_j$ で、状態 S_j に変わる推移確率を表わしている。この推移確率は、次のような行列の形で表わすことができる。

$$P(t_i, t_j) = \left\{ \begin{array}{cccc} p_{11} & p_{12} & \cdots & p_{1n} \\ p_{21} & p_{22} & \cdots & p_{2n} \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ p_{n1} & p_{n2} & \cdots & p_{nn} \end{array} \right\} \Bigg|_{(t_i \rightarrow t_j)} \quad (6-4)$$

この行列とマルコフ連鎖の推移確率行列と言う。

明らかに

$$p_{ij} \geq 0, \quad i, j = 1, 2, \cdots, n \quad (6-5)$$

$$\sum_{j=1}^n p_{ij} = 1 \quad i = 1, 2, \cdots, n \quad (6-6)$$

である。

今、システムの状態を S の添字 i で簡単に表わすと、時刻 m で、確率変数 $x(m)$ が状態 i にあった時、時刻 $m+k$ で状態 j にある確率 $\Pr\{x(m+k)=j | x(m)=i\}$ はマルコフ性を仮定すれば、推移確率行列 $P=[p_{ij}]$ の要素を用いて次の様に表わることができる。

$$\begin{aligned} & \Pr\{x(m+k)=j | x(m)=i\} \\ &= (i_1, i_2, \cdots, i_{n-1}) \Pr\{x(m+k)=j, x(m+k-1)=i_{n-1}, \cdots, x(m+1)=i_1 | x(m)=i\} \\ &= \sum \Pr\{x(m+1)=i_1 | x(m)=i\} \Pr\{x(m+2)=i_2 | x(m)=i, x(m+1)=i_1\} \cdots \\ & \quad \times \Pr\{x(m+k)=j | x(m)=i_1, \cdots, x(m+k)=i_{n-1}\} \cdots \\ &= \sum \Pr\{x(m+1)=i_1 | x(m)=i\} \Pr\{x(m+2)=i_2 | x(m+1)=i_1\} \cdots \\ & \quad \times \Pr\{x(m+k)=j | x(m+k-1)=i_{k-1}\} \\ &= (i_1, i_2, \cdots, i_{k-1}) \sum p_{i_1 i_1}^{(m, m+1)} p_{i_1 i_2}^{(m+1, m+2)} \cdots p_{i_{k-1} j}^{(m+k-1, m+k)} \\ & \quad (i, j = 1, 2, \cdots, n) \end{aligned} \quad (6-7)$$

これを行列を用いて表わすと、

$$P(m, m+k) = P(m, m+1)P(m+1, m+2) \cdots P(m+k-1, m+k) \quad (6-8)$$

と書くことができる。時刻 m における確率変数の分布をベクトル $Q(m)$ で表わすと、時刻 $m+k$ における分布は $Q(m)$ と (6-8) 式とを使って、次の様に表わせる。

$$Q(m+k) = Q(m)P(m, m+k) \quad (6-9)$$

$$Q(m+k) = Q(q_1, q_2, \dots, q_i, \dots, q_n | t = t_{m+k}) \quad (6-10)$$

(6-10) 式で表わされるベクトルの成分 $q_1, q_2, \dots, q_i, \dots, q_n$ はそれぞれ、時刻 t_{m+k} において、確率変数 x が、状態 $S_1, S_2, \dots, S_i, \dots, S_n$ に存在する絶対確率を表わしている。

推移確率 (6-4) 式が、時刻 t_i に無関係である時、このマルコフ連鎖過程は時間的に一様であるといい、推移確率行列 $P(m, m+1)$ は、単に P と略記される。この時、単位時間後の推移確率行列 $P(k)$ は P の k 乗で表わされる。すなわち

$$P(k) = P^k \quad (k = 0, 1, 2, \dots) \quad (6-11)$$

$$\text{ただし, } P^0 = I \quad (I \text{ は単位行列})$$

水産生物による放射能核種の濃縮過程が、上述のマルコフ連鎖過程に従う定常な推移確率、すなわち、時間的に一様な推移確率 P_{ij} を有する時、 $t=0$ なる初期段階において、濃度分布ベクトルが $Q(0)$ で表わされるなら、 k 単位時間後の濃度分布ベクトル $Q(k)$ は次式の様に表わされる。

$$Q(k) = Q(0)P^k \quad (k = 0, 1, 2, \dots) \quad (6-12)$$

(6-12) 式の左辺の濃度分布ベクトルの各成分は k 単位時間後において、確率変数 x 、すなわち、今ここで問題としている水産生物の放射能濃度を表わす汚染段階が、それぞれ状態 $S_j (j=1, 2, \dots, i, \dots, n)$ に存在する絶対確率を表わすものである。したがって、初期の水産生物の放射能汚染濃度ベクトル $Q(0)$ が既知であるとして、適当な方法で推移確率行列 P を決定できると、離散的な任意の時刻における濃度分布ベクトルを予測することができる。

(ii) 吸収過程を想定した表現

(i) においては、水産生物の放射能汚染段階が、単位時間の中に、状態 i から状態 j に移る確率、すなわち推移確率 P_{ij} は一定であるとして、定常単純マルコフ過程を仮定し

て、(6-12) 式を導いた。環境水の放射能濃度が一定である場合には、ある対象とする水産生物の一個体にとって、その放射能汚染段階が、過去にどのような汚染段階の経路をたどってこようとも、それ以後の汚染段階は、現在存在している汚染段階にのみ依存すると考えることは極めて妥当であると思われる。したがって、濃縮過程において、定常単純マルコフ性を仮定することも妥当であると考えられる。さらに、環境水の放射能濃度が一定であるという条件下では、放射能汚染を受けた水産生物が、一定時間の経過した後、ある汚染レベルに達すると、言い換えれば、ある状態 S_i に達すると、環境条件が変わらない限り、その状態よりも低い汚染レベルの状態には下らないと仮定する。すなわち、一旦水産生物の体内に取り込まれて濃縮された放射性核種の濃度値は、それ以後においては、環境水の放射能濃度の低下という様な、環境の変化や、生物自身の、特別な生理学的変化が起こらない限りは低下しないと仮定する。こうした仮定を許す場合の推移確率は、

$$P_{ij} = 0 \quad (\text{ただし, } i > j \text{ のとき}) \quad (6-13)$$

となり、推移確率行列は、次の様な簡単な三角行列で表わすことができる。

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & P_{13} & \cdots & P_{1n} \\ 0 & P_{22} & P_{23} & \cdots & P_{2n} \\ 0 & 0 & P_{33} & \cdots & P_{3n} \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & P_{nn} \end{pmatrix} \quad (6-14)$$

したがって $\sum_{j=1}^n P_{ij} = 1$ であることから、 $P_{nn} = 1$ となる。このことは、状態 S_n は、水産生物の放射能汚染段階が、この状態から他の状態へ移行しない吸収状態であることを表わしており、水産生物が一定の環境状態にとどまって生息している限り、ある一定時間後における水産生物の放射能汚染レベルは、全て、吸収状態にとどまっていることを示している。他の状態 $S_i (i < n)$ は、過度的な状態で、 S_n の吸収状態に対して、非吸収状態と呼ばれる。

既に、第5章で詳しく論じたが、水産生物による放射能核種の濃縮過程の決定論的アプローチを再記して見ると、水産生物による放射能核種の摂取と、排泄との動的関係から、ある時刻における放射能核種の生物体内濃度を $x(t)$ 、環境水濃度を $C(t)$ 、($C=C_0$, constant), 摂取速度係数を α 、排泄速度係数を β 、放射能核種の物理的崩壊係数を λ で表わすと、次の式が成り立つ。

$$\frac{dx(t)}{dt} = \alpha C(t) - (\beta + \lambda)x(t) \quad (6-15)$$

これを初期条件、 $t=0$ で $x(0)=0$ のもとで解くと、次の解が得られる。

$$x(t) = \frac{\alpha C_0}{\beta + \lambda} (1 - e^{-\beta t}) \quad (6-16)$$

(6-16)式は、時間 t が大きくなると、生物の放射能濃度 $x(t)$ は $\alpha C_0 / (\beta + \lambda)$ という平衡値に近づくことを示している。ここで述べた確率モデルでは、この平衡値に達した状態を吸収状態と考えるのである。

上に述べた様に、水産生物による放射能物質の濃縮過程を定常な吸収マルコフ過程で近似することによって、さらに理論的な展開から、次の二つの新しい情報を得ることができる。すなわち、

- ① 水産生物による放射能核種の濃縮過程において、生物の放射能汚染段階を表わす確率変数 x_i は、それぞれの非吸収状態に平均何日とどまっているか。
 - ② 同様の濃縮過程において、確率変数が吸収状態に至るまでに平均何日かかるか。
- 実際の水圏環境においては、環境水の放射能濃度が一定に保たれるという仮定は、ある特定の水域においては、十分成立し得ると思われるが、水産生物が長時間一定の水域に滞留し、生息することは、底棲生物を除き、普通の回遊性の生物では、むしろまれであると考えられる。この点から、一旦汚染水域に侵入してきた水産生物が、他の水域へ移行する間に、水産生物の放射能汚染レベルがどの程度に達するかをより正確に推定し、評価する上に、上に述べた二点は重要な情報となる。

つぎに、この二つの情報を導く一般的な手法について述べる。(6-1)式で定義された吸収マルコフ連鎖に従う一般的な n 個からなる状態空間 S を、 a 個の吸収状態と b

個の非吸収状態とに分類して、推移確率行列を次の様な標準形に書き直す。

$$P_{ij} = \begin{array}{c} a \quad b \\ \left(\begin{array}{c|c} \mathbf{I} & \mathbf{0} \\ \hline \mathbf{R} & \mathbf{Q} \end{array} \right) \end{array} \quad (6-17)$$

ここで、 $a+b=n$ で、行と列の要素の個数を表わしている。(6-17)式の両辺を m 乗すると、

$$P_{ij}^m = \left(\begin{array}{c|c} \mathbf{I} & \mathbf{0} \\ \hline \mathbf{R}_m & \mathbf{Q}^m \end{array} \right) \quad (6-18)$$

が得られる。ここに \mathbf{I} は $a \times a$ の単位行列、 \mathbf{Q} は $a \times b$ のゼロ行列、 \mathbf{R}, \mathbf{R}_m はともに $b \times a$ の行列、 \mathbf{Q} は $b \times b$ の行列を表わしている。(6-18)式の右辺の推移確率行列の各成分は、確率変数がそれぞれの状態から出発して、それぞれの状態に存在する確率を与えるものである。例えば、ある一つの成分 P_{ij} は、初期状態で状態 i にあった確率変数が、 m 単位時間経過後において、状態 j に存在している確率を表わしている。したがって、(6-18)式で、行列 \mathbf{I} に属する各成分は $P_{ij}=1$ および $P_{ij}=0 (i \neq j)$ であって、吸収状態から出発した確率変数は当然のことながら、何時間たっても、同じ吸収状態にとどまっているということである。また行列 \mathbf{Q}^m で表わされる各成分は、可能な非吸収状態から出発して、 m 単位時間後にも、それぞれが可能な非吸収状態に存在する確率を与えるものである。吸収マルコフ連鎖の定理から、経過時間 m が無限大になると、確率変数が非吸収状態に存在する確率 \mathbf{Q}^m は0に近づく。それ故、その確率行列の総和は(6-19)式で表わされる。これはマルコフ連鎖の基本行列と呼ばれるものである。

$$\mathbf{N} = \mathbf{I} + \mathbf{Q} + \mathbf{Q}^2 + \dots = (\mathbf{I} - \mathbf{Q})^{-1} \quad (6-19)$$

$$\text{ただし、} \mathbf{Q}^0 = \mathbf{I}, \quad \mathbf{Q} < \mathbf{I}$$

この基本行列 \mathbf{N} の各成分は、汚染段階を表わす確率変数が、それぞれの可能な非吸収状態から出発したとして、吸収状態に至るまでに、それぞれの非吸収状態に存在する平均単位時間数を与えるものである。これによって第一の情報が得られた。

つぎに、(6-19)式で表わされる基本行列の各成分の意味から明らかのように、各成

分が基本行列の各行の和によって得られるような列ベクトル，すなわち，基本行列 N に，すべての成分が1であるような単位列ベクトル C を乗じて得られる列ベクトル NC の各成分は，それぞれ確率変数が可能な非吸収状態から出発して，吸収状態に至るまでの平均単位時間数を与えるものである。この計算によって，前述の第 s の情報が得られる。

今，(6-14) 式について，これを標準形に直すと次の様に表わせる。

$$P_s = (-1)^{n+m} \times \left[\begin{array}{c|cccc} p_{nn} & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ \hline p_{1n} & p_{11} & p_{12} & p_{13} & \cdots & p_{1n-1} \\ p_{2n} & 0 & p_{22} & p_{23} & \cdots & p_{2n-1} \\ p_{3n} & 0 & 0 & p_{33} & \cdots & p_{3n-1} \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ p_{nn} & 0 & 0 & 0 & \cdots & p_{n-1n-1} \end{array} \right] \quad (6-20)$$

(6-20) 式中の要素 $p_{nn}=1$ であるから，(6-20) 式の両辺を m 乗して，

$$P_s^m = \left[\begin{array}{c|cccc} I & 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 \\ \hline R & & & & & Q^m \end{array} \right] \quad (6-21)$$

ここで，

$$Q^m = \left[\begin{array}{cccc} p_{11} & p_{12} & p_{13} & \cdots & p_{1n-1} \\ 0 & p_{22} & p_{23} & \cdots & p_{2n-1} \\ 0 & 0 & p_{33} & \cdots & p_{3n-1} \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & p_{n-1n-1} \end{array} \right]^m = \left[\begin{array}{cccc} q_{11} & q_{12} & q_{13} & \cdots & q_{1n-1} \\ 0 & q_{22} & q_{23} & \cdots & q_{2n-1} \\ 0 & 0 & q_{33} & \cdots & q_{3n-1} \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & q_{n-1n-1} \end{array} \right] \quad (6-22)$$

とおくと，(6-22) 式右辺の行列の成分 q_{ij} は，水産生物の汚染段階が，初期段階において，状態 s_i に存在していたものが， m 単位時間経過後には状態 s_j に存在している確率を表わしている。

(iii) 推移確率の決定法

これまでの論述では、推移確率行列 P_{ij} は既知のものとして理論を展開してきた。しかし水産生物による放射性核種の濃縮過程に、この理論を実際に適用するにあたっては、この推移確率行列の各成分の値を決定することから始めねばならない。次にこの値を決める方法について述べる。

今、ある水産生物、放射性核種に対する推移確率行列が、 n 行 n 列の行列 P_{ij} で表わされるとし、この行列の第 i 行、第 j 列の構成要素を P_{ij} 、確率変数の初期状態を行ベクトル $Q(0)$ で表わし、単純定常マルコフ過程を仮定すると、 l 単位の時間経過後の状態行ベクトル $Q(l)$ は、

$$\begin{aligned} Q(l) &= Q(0) \times [P_{ij}]^l \\ &= Q(1) \times [P_{ij}]^{l-1} = \dots = Q(l-1) \times [P_{ij}] \end{aligned} \quad (6-23)$$

となる。したがって $Q(0)$ の第 i 要素を q_i^0 、 $Q(l)$ の第 i 要素を q_i^l 、推移確率行列 $[P_{ij}]^l$ の (i, j) 要素を P_{ij}^l で表わすと、

$$q_i^l = \sum_{j=1}^n q_i^0 P_{ji}^l = \sum_{j=1}^n q_i^{l-1} P_{ij} \quad (6-24)$$

となる。(6-24) 式において、 q_i^l および q_i^{l-1} はそれぞれ l 単位時間および $l-1$ 単位時間後における汚染生物の状態 i にある存在確率であるから、これは実験によって求めることができる。また右辺の q_i^{l-1} は放射能汚染段階の初期状態であるから、これも汚染段階の測定によって得られる。結局、推移確率行列 $[P_{ij}]$ を求めるためには、

(6-24) 式の $n \times n$ 個の推移確率 P_{ij} を未知数とする一次連立方程式を解けば良いことになる。さらに、 $\sum_{j=1}^n P_{ij} = 1$ なることから第 i 行の n 個の未知数のうち 1 個は他の $n-1$ 個の推移確率が決まれば、自動的に決定されるから、 $n \times n - n = n(n-1)$ 個の未知数を持つことになる。したがって、一連の濃縮過程の実験において、 $n(n-1)$ 回のサンプリングを行い、各経過時間での確率変数の存在確率ベクトル $Q(l)$ を求め(6-24) 式に代入して、連立方程式を作り、これを解くことにより P_{ij} を求めることができる。 (ii) で述べたように、状態 S_n を吸収状態として取扱うことができ、汚染段階は元へ戻らないと仮定できる場合には、推移確率行列は(6-14) 式に示されるように、三角行

列で表わされるので、未知な推移確率の数は $n(n+1)/2$ となり、前述のように、
 $\sum_{j=1}^n P_{ij}=1$ なる条件から、 $n(n+1)/2 - n = n(n-1)/2$ となる。したがって、濃縮過程でのサンプリング回数は $n(n-1)/2$ 回が良いことになる。しかし、それでもなお、 n の数が入きいと、サンプリング回数は大きくなり、実験室で同時に飼育し得る試料数には制限があり、また例えば飼育できてもすべての試料生物を同一条件下で飼育することは困難であり、十分な回数のサンプリングを行なうことは不可能になる。例えば、5行5列の推移確率行列を考えると、三角行列で表示するとしても10回のサンプリングを行う必要がある。統計的に有意な分布を得るために、一回当たり100匹の試料をサンプリングするとすれば、実験開始時には1000匹の水産生物を同時に飼育しなければならぬ。また実験期間中の生物の自然死による試料数の減損を考慮すると、さらに多数の試料生物を飼育しなければならなくなる。この様な場合には、小さな実験室では、上述した必要なサンプリング回数を取ることは、実際上不可能になる。そこで筆者は、後述するように、予め幾通りもの推移確率行列を仮定して、電子計算機を用いて、各時刻における濃縮段階を表わす存在確率を計算しておき、計算による濃度分布の予測値と、実験による濃度分布とが最も良い一致を示す推移確率を持って、その確率行列として採用した。この時、計算による理論分布と、実験による分布との、各段階での個々の値の差の分散が最小となる推移確率を選ぶのが妥当であろうと思われる。

2-2 実験方法および実験材料

前に述べた水産生物による放射性核種の濃縮過程の確率モデルの妥当性を検討するために、試料生物として、市販の赤めだか (*Topminnows, Oryzias latipes*) を用いて、放射性核種の濃縮実験を行った。この魚は体長 2~3cm 体重 0.1~0.3g 程度の大きさを有する淡水魚で、比較的個体差の少ない試料生物として、いろいろな生物実験に、良く用いられているものである。実験に用いた放射性核種は、保健物理学上、重要な ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 $^{115\text{m}}\text{Cd}$ をトレーサとして用いた。これらの放射性核種はいずれも塩化物であり、日本アイソトープ協会より購入したものである。またこの実験はキャリアフリーで行った。40cm x 40cm x 80cm の大きさを持つアクリル製水槽に、約 100ℓ の水道水を入れ、これに所定の放射性核種を投入し、水産生物の飼育用環境水

として用いた。この水槽内で400~500匹の赤めだかを飼育し、エアーポンプで水槽内も絶えず曝気することにより、環境水に酸素の供給をほかり、あわせて適度の水流を生ぜしめた。また生物の排泄物をガラスウールフィルターで除去し、自からの排泄物を採取することによる二次的な間接汚染を防ぐようにした。この実験に用いた水道水の水質および放射能濃度を Tables 6-2, 3 に示す。試料生物の赤めだかを購入

Table 6-2 The Quality of the Water

Element	Concentration(meq/l)	Element	Concentration(meq/l)
Ca ⁺⁺	1.08	HCO ₃ ⁻	0.08
Mg ⁺⁺	0.58	Cl ⁻	0.82
Na ⁺	0.60	SO ₄ ⁻⁻	0.61
K ⁺	0.03	NO ₃ ⁻	0.03
		F ⁻	0.01
Total cation 2.29 meq/l		Total ionic ion 2.27 meq/l	
pH (at 15°C) 7.8			

後、約1週間、清澄な水道水中で、無投餌で飼育し、排泄を促進させることにより、実験開始後の排泄物がなるべく少なくなるようにした。これに引き続く濃縮実験の開始後も食餌物

Table 6-3 Activity Concentration Used for Experiments

Nuclide	Concentration
Cs-137	300 cpm/ml
Cd-115m	250
Co-60	1500

の投与は一切行われなかった。これは既に述べたように、排泄物の投餌による間接汚染を避けるためである。すでに前章において述べたように、水産生物による放射性核種の濃縮におよぼす食物連鎖の影響は決して小さくなく、また全ての生物個体の放射性核種の濃縮度と一様高めめるのではなく、各生物個体の投餌量や同化率によって異なるので、^(11~15)濃縮係数を求める場合、一般には餌の投与をせずに実験が行われる。試料生物のサンプリングは、放射性核種の濃縮の速さにより、適宜2~10日間の間隔で行った。1回のサンプリングについて、試料生物100匹を実験水槽から取り出し、清澄な水道水

の流水で体表面を洗浄し、ただちにメチルアルコール中に浸漬させ、仮死させた後、重量を秤量し、放射性核種の放射能濃度をNaIシンチレーションカウンターを用いて測定して、単位生体湿潤重量に対する濃縮係数の値と求めた。生物の体表面への放射性核種の吸着は、流水およびメチルアルコール内で洗浄を行ったので無視した。一部の実験には、メチルアルコールで生物を仮死させる代わりに、冷血動物用麻酔薬 (meta amino benzoic acid ethylester methanesulfonate) を用いて、一時的に眠らせ、放射能の測定後、試料生物が麻酔から覚めるのを待って、再び実験用飼育水槽に戻して、次の段階での測定に反復使用した。この手法によると、実験に用いる試料生物の数が少なくてすむだけでなく、同一生物について、放射性核種の濃縮度を時間の経過とともに追跡できるという利点がある。

スー3 実験結果および考察

(i) ^{137}Cs の濃縮

1回のサンプリング当たり、100匹の試料生物を取り、放射能を測定して濃縮係数を求めた。この濃縮係数の値を0~0.2, 0.2~0.4, 0.4~0.6, ...

のように0.2ずつの間隔で濃縮係数の階級をランク付けして、おのおのの階級に入る濃縮係数の生起確率を算出し、濃度分布を求めた。この生起確率(確率密度)を縦軸にとり、濃縮係数を横軸に、普通目盛および対数目盛にプロットした結果をそれぞれFigs.6-1,2に示す。

また生起確率の累積パーセントを対数確率紙にプロットしたものを Fig.6-3に示す。

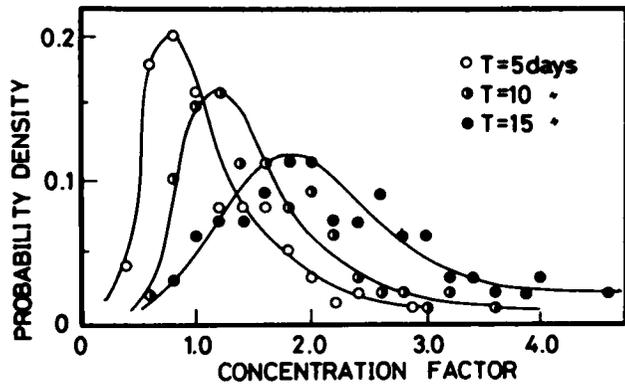


Fig.6-1 Distribution Curve of C.F.

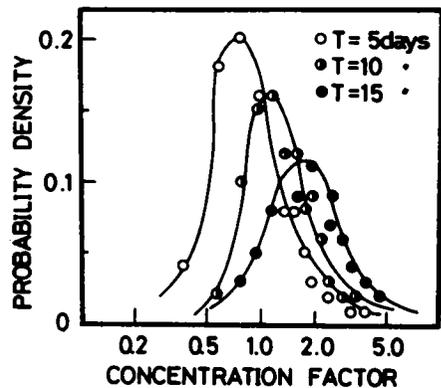


Fig.6-2 Distribution Curve of C.F.

この Fig. 6-3 に示された縦軸の値，累積パーセントは，横軸に指定された濃縮係数の値以下の汚染度の生じ得る確率，すなわち非超過確率をパーセントで表わしている。Fig. 6-3 に示した対数確率紙へのプロットの結果を見ると，どの時間についても，かなり良く直線にのっており，濃度分布は対数正規分布で近似することができるようである。しかし Fig. 6-1 に示された分布の変化を見るとポアソン分布の形を示すとも思われる。この濃度分布にポアソン分布を当てはめた結果について， χ^2 分布の統計的検定を行ったところ，自由度 14 で，5% の有意水準のもとでは，このポアソン分布当てはめの仮説は棄却されないことがわかった。

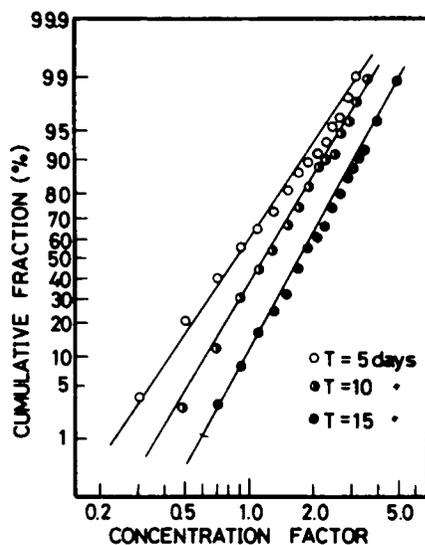


Fig. 6-3 Plots of C.F. on Logarithmic Probability Paper

次節において詳述するように，水産生物による放射性核種の濃縮過程として理論的な展開を行っていくと，この濃度分布は正規分布よりもポアソン分布の分布則に従うと考え方が妥当である。

次に濃度分布の経時的変化と，すでに述べた単純マルコフ過程に従うとして解析を試みる。本章スースで述べたように，数多くの状態空間を考慮して解析しようとするとき，推移確率の数が急激に増加するので，問題をなるべく簡略化するために，5つの状態空間を考慮する。すなわち，濃縮係数の値が0~1.0の間にある場合を状態 S_1 ，1.0~2.0の間にある場合を状態 S_2 ，2.0~3.0の間にある場合を状態 S_3 ，3.0~4.0の間にある場合を状態 S_4 ，4.0以上にある場合を状態 S_5 と5段階の階級に分類する。

(a) 吸収状態の存在を仮定する場合

吸収状態の存在を仮定する場合には，状態 S_5 は吸収状態である。この時，(6-14)式の推移確率行列は，次式に示すように5行5列の三角行列式で表示される。

$$P_{ij} = \begin{bmatrix} p_{11} & p_{12} & p_{13} & p_{14} & p_{15} \\ 0 & p_{22} & p_{23} & p_{24} & p_{25} \\ 0 & 0 & p_{33} & p_{34} & p_{35} \\ 0 & 0 & 0 & p_{44} & p_{45} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & p_{55} \end{bmatrix} \quad (6-25)$$

$$\sum_{j=1}^5 p_{ij} = 1$$

$t=0$ においてはじめて生物が汚染水域と接触すると考えると、初期状態で、すべての確率変数 (= 濃縮係数) の値は 0 であり、換言すれば、状態 S_1 に存在すると考えて良いから、初期の濃度分布ベクトル $Q(0)$ は

$$Q(0) = (1, 0, 0, 0, 0) \quad (6-26)$$

となる。

この実験では、試料生物数の制約上、 $t=5, 10, 15$ の 5 日間毎に 3 回しかサンプリングできなかったため、推移確率の数 15 コの未知数について、15 個の連立一次方程式を解いて推移確率を求めることはできない。そこで、既に述べたように、予め、 $\sum_{j=1}^5 p_{ij} = 1$ を満足するような約 100 組の推移確率行列 P_{ij} を仮定し、この値を (6-23) 式に代入して、数値計算によって m 単位時間後の濃度分布ベクトル $Q(m)$ を求めた。その計算結果の数例を示す。

Case 1

$$P_{ij} = \begin{bmatrix} 0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 & 0.00 \\ 0 & 0.68 & 0.26 & 0.05 & 0.01 \\ 0 & 0 & 0.75 & 0.20 & 0.05 \\ 0 & 0 & 0 & 0.85 & 0.15 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (6-27a)$$

のとき,

$$\begin{aligned}
 Q(1) &= (0.55 \quad 0.35 \quad 0.04 \quad 0.11 \quad 0.00) \\
 Q(2) &= (0.32 \quad 0.49 \quad 0.16 \quad 0.04 \quad 0.11) \\
 Q(3) &= (0.17 \quad 0.47 \quad 0.26 \quad 0.10 \quad 0.03) \\
 Q(10) &= (0.00 \quad 0.06 \quad 0.20 \quad 0.34 \quad 0.40)
 \end{aligned}
 \tag{6-27b}$$

Case 2

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.55 & 0.35 & 0.09 & 0.01 & 0.00 \\ 0 & 0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 \\ 0 & 0 & 0.65 & 0.30 & 0.05 \\ 0 & 0 & 0 & 0.75 & 0.25 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}
 \tag{6-28a}$$

のとき

$$\begin{aligned}
 Q(1) &= (0.55 \quad 0.35 \quad 0.09 \quad 0.01 \quad 0.00) \\
 Q(2) &= (0.30 \quad 0.39 \quad 0.25 \quad 0.05 \quad 0.01) \\
 Q(3) &= (0.17 \quad 0.32 \quad 0.24 \quad 0.13 \quad 0.04) \\
 Q(10) &= (0.00 \quad 0.02 \quad 0.10 \quad 0.26 \quad 0.62)
 \end{aligned}
 \tag{6-28b}$$

Case 3

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.50 & 0.38 & 0.11 & 0.01 & 0.00 \\ 0 & 0.65 & 0.25 & 0.09 & 0.01 \\ 0 & 0 & 0.75 & 0.20 & 0.05 \\ 0 & 0 & 0 & 0.20 & 0.05 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}
 \tag{6-29a}$$

のとき

$$\begin{aligned}
 Q(1) &= (0.50 \quad 0.38 \quad 0.11 \quad 0.01 \quad 0.00) \\
 Q(2) &= (0.25 \quad 0.44 \quad 0.23 \quad 0.07 \quad 0.01) \\
 Q(3) &= (0.13 \quad 0.38 \quad 0.31 \quad 0.16 \quad 0.04) \\
 Q(10) &= (0.00 \quad 0.03 \quad 0.16 \quad 0.35 \quad 0.46)
 \end{aligned}
 \tag{6-29b}$$

上に記述した3つの計算例は、次に述べる実験結果と比較的よく一致する例を示したものであるが、これらの数値計算の結果と比較すると、推移確率の値がわずかに変動することにより、水産生物の放射能濃度分布を表わす確率ベクトルは、 $m=10$ 単位時間後になると、かなりの差が生じてくることが予想される。

前述の赤めたかを用いた飼育実験によって求めた濃縮係数 γ と5つの状態空間に再分類して得た $t = 5, 10, 15$ 日後の濃度分布ベクトルを(6-30)式に示す。
 実験結果

$$\begin{aligned}
 5 \text{ 日後 } \quad Q(1) &= (0.58 \quad 0.32 \quad 0.09 \quad 0.01 \quad 0.00) \\
 10 \text{ 日後 } \quad Q(2) &= (0.32 \quad 0.52 \quad 0.13 \quad 0.03 \quad 0.00) \\
 15 \text{ 日後 } \quad Q(3) &= (0.09 \quad 0.46 \quad 0.31 \quad 0.12 \quad 0.02)
 \end{aligned} \tag{6-30}$$

実験では5日間ごとにサンプリングを行ったので、推移確率の1単位時間の経過は5日間の経過を表わしており、 $Q(m)$ は、 $5 \times m$ 日後の濃度分布ベクトルを表わすものである。(6-30)式に示した実験結果と理論式から求めた数値計算の結果との分布の統計的検定を行った χ^2 値と両者の

の偏差の二乗平均値とを Table 6-4 に示す。但し、以下の χ^2 値および偏差の二乗平均値とを計算する時の数値は、各状態空間

Table 6-4 Values of χ^2 and Variation σ^2 for Cs-137

m	Case 1		Case 2		Case 3	
	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2
1	8.01	17.8	0.42	3.6	2.56	20.8
2	0.75	3.6	12.03	64.4	8.76	46.0
3	3.50	11.2	11.23	54.8	4.92	20.0
Σ	12.26	32.6	23.68	12.28	16.27	86.8

での確率変数の存在確率をパーセントで表わされたものである。Table 6-4 によると、Case 1 と Case 3 の場合に、どの時間においても、濃度分布の実験結果と理論分布とは有意水準 5% で一致すると言える。しかし偏差の二乗平均値の各段階の総和は、Case 3 の場合よりも Case 1 の場合の方が小さい。実験値と理論値の分布の適合性はどちらの場合にも統計的には有意ではあるが、偏差の二乗平均値、すなわち分散の小さい方が、両者の分布はより良く一致していると言える。したがって、この場合 Case 1 に示す推移確率行列を採用する。こうして得られる推移確率行列を仮定し、行列式の演算によって、水産生物の濃縮過程における放射能の濃度分布の経時的変化をほぼ近似的にすることができる。例えば、 $m=10$ 単位時間後、すなわち 50 日後には、水産生物の ^{137}Cs による汚染レベルが状態 S_1 に存在する確率は 0.0% 状態 S_2 に存在する確率 6% 同様に状態 S_3 の存在確率は 20% 状態 S_4 の存在確率は 34% 状態 S_5 では 40% であることが予想される。

次に(6-27)式を(6-17)式に示す標準形に書き直して(6-19)式の基本行列を計算

すると、
標準形は、

$$P_{ij} = \left(\begin{array}{c|cccc} \mathbf{I} & \mathbf{0} & & & \\ \hline \mathbf{R} & \mathbf{Q} & & & \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c|cccc} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0.00 & 0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 \\ 0.01 & 0 & 0.68 & 0.26 & 0.05 \\ 0.05 & 0 & 0 & 0.75 & 0.20 \\ 0.15 & 0 & 0 & 0 & 0.85 \end{array} \right) \quad (6-31)$$

基本行列は、

$$\mathbf{N} = (\mathbf{I} - \mathbf{Q})^{-1} = \left(\begin{array}{cccc} 2.21 & 2.78 & 3.25 & 5.41 \\ 0 & 3.21 & 3.25 & 5.38 \\ 0 & 0 & 4.00 & 5.34 \\ 0 & 0 & 0 & 6.67 \end{array} \right) \quad (6-32)$$

となる。したがって、(6-32)式の右辺の行列の各成分の値 P_{ij} は、状態 S_i から出発した生物が、吸収状態に至るまでに、非吸収状態 S_j にとどまっている平均段階数を表わしている。例えば、状態 S_1 から出発したものが、吸収状態 S_5 に至るまでに、状態 S_1 にとどまっている平均段階数は 2.21、状態 S_2 にとどまっている平均単位時間数は 2.78、以下同様に、状態 S_3 では 3.25、状態 S_4 では 5.41 の単位時間数となり、汚染段階が大きくなるにしたがって、その状態にとどまっている平均単位時間数は長くなることが予想される。このことは第5章で述べた簡単な指数関数モデルで表わした水産生物の濃度変化のパターンからも予想されることである。また状態 S_2 から出発したものとすれば、その場合には(6-32)式の行列の第2行目のベクトルによって、各々の非吸収状態にとどまる平均単位時間数が表わされる。この実験の場合でもそうであるが、一般に初期分布は(6-26)式に示されているように、すべて状態 S_1 から出発したと仮定できるから、第一行目のベクトルだけを考慮すれば良い。さらに、可能な非吸収状態から出発して、吸収状態に至るまでの平均単位時間数は、各状態での平均単位時間数を加え合わせてゆけば良い。すなわち $\mathbf{N} \mathbf{C}$ を計算すれば良いことになる。

$$\mathbf{N} \times \mathbf{C} = \left(\begin{array}{cccc} 2.21 & 2.78 & 3.25 & 5.41 \\ 0 & 3.21 & 3.25 & 5.38 \\ 0 & 0 & 4.00 & 5.34 \\ 0 & 0 & 0 & 6.67 \end{array} \right) \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 13.67 \\ 11.75 \\ 9.34 \\ 6.67 \end{pmatrix} \quad (6-33)$$

したがって、例えば、非吸収状態 S_1 から出発して、吸収状態 S_5 に達するまでの平均単位時間数は 13.67 であると予想される。

(b) 吸収状態の存在を仮定しない場合

(a)では、吸収状態を仮定し、その状態に達したものは、最早、もとの状態には戻らないと仮定して計算される。しかし濃縮過程が十分平衡に達した後にも、水産生物の放射能濃度は、すべてが必ずしも一定の状態にあるのではなく、濃度分布を持っているので、水産生物による放射性核種の濃縮過程を吸収マルコフ連鎖過程で仮定することは必ずしも妥当であるとは言い難い面がある。そこで、吸収状態が存在しないと仮定した場合の推移確率行列を実験結果から合理的と思われる値でもって、適当に決め、約100通りの組合せについて計算した。その内の数通りについて、以下に示す。

Case 4

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 & 0.00 \\ 0.05 & 0.65 & 0.23 & 0.05 & 0.02 \\ 0.00 & 0.05 & 0.70 & 0.20 & 0.05 \\ 0.00 & 0.00 & 0.05 & 0.85 & 0.10 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.20 & 0.80 \end{pmatrix} \quad (6-34a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.55 \ 0.40 \ 0.04 \ 0.01 \ 0.00) \\ Q(2) &= (0.32 \ 0.49 \ 0.14 \ 0.04 \ 0.01) \\ Q(3) &= (0.20 \ 0.45 \ 0.23 \ 0.09 \ 0.03) \\ Q(10) &= (0.02 \ 0.11 \ 0.22 \ 0.44 \ 0.20) \end{aligned} \quad (6-34b)$$

Case 5

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 & 0.00 \\ 0.05 & 0.65 & 0.23 & 0.05 & 0.02 \\ 0.00 & 0.05 & 0.70 & 0.20 & 0.05 \\ 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.75 & 0.15 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.30 & 0.70 \end{pmatrix} \quad (6-35a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.55 \ 0.40 \ 0.04 \ 0.01 \ 0.00) \\ Q(2) &= (0.32 \ 0.49 \ 0.14 \ 0.04 \ 0.01) \\ Q(3) &= (0.20 \ 0.45 \ 0.23 \ 0.09 \ 0.03) \\ Q(10) &= (0.02 \ 0.12 \ 0.27 \ 0.39 \ 0.20) \end{aligned} \quad (6-35b)$$

Case 6

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 & 0.00 \\ 0.08 & 0.60 & 0.24 & 0.06 & 0.02 \\ 0.00 & 0.05 & 0.70 & 0.20 & 0.05 \\ 0.00 & 0.00 & 0.15 & 0.08 & 0.05 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.90 \end{pmatrix} \quad (6-36a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.55 & 0.40 & 0.04 & 0.01 & 0.00) \\ Q(2) &= (0.33 & 0.46 & 0.15 & 0.05 & 0.01) \\ Q(3) &= (0.22 & 0.42 & 0.23 & 0.10 & 0.03) \\ Q(10) &= (0.03 & 0.11 & 0.30 & 0.37 & 0.14) \end{aligned} \quad (6-36b)$$

前と同様に, Cases 4~6 の場合について, 実験結果との統計的検定の結果と偏差の二乗平均値とを Table 6

-5 に示す。推移確率

行列の各値の決め手が,

必ずしも綿密でないので

, Tables 6-4, 5 に

示した結果だけからは一

概に論じることはできないが, ^{137}Cs の場合は, 吸収状態を仮定して十分に現象と解析し得る。

(ii) ^{60}Co の濃縮

実験方法や実験データの解析法等については, 前述の ^{137}Cs の場合とまったく同様である。水産生物の放射能濃度分布が, 環境要因によってのみ依存するならば, 少なくとも一定の環境条件下で棲息する生物は, 十分な時間が経過した後は, ほぼ同じ程度にまで放射能を濃縮し, 濃縮係数は同一生物, 同一核種に対して同じ値を持つ, すなわち前述の確率モデルでは吸収状態に達するという仮定が妥当である。しかる ^{137}Cs の考察でも少し触れたが, 例えば, 生物の個体差のような要因によって濃度分布を示すと考えられるならば, 平衡時においても濃度分布を示すはずであり, 吸収状態の存在を仮定することは, 前節で述べた二つの情報が得られるという実際的な利点とは別に, 理論的な妥当性が等まることは否めない。それ故, 以後は吸収状態を持たないと仮定して解

Table 6-5 Values of χ^2 and Variation σ^2 for Cs-137

m	Case 4		Case 5		Case 6	
	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2
1	8.01	19.6	8.01	19.6	8.01	19.6
2	1.51	2.4	1.51	2.4	2.88	9.2
3	10.19	39.2	10.20	39.3	11.55	50.8
Σ	19.71	61.2	19.72	61.3	22.44	79.6

析する。 サンプルングは実験開始後は、3日、9日、18日後に3回行った。 環境水の放射能濃度は1500 cpm/ml状態空間のきざみ巾は濃縮係数で2ずつ区切った。 計算例の中から3通りを抽出して、その結果と実験結果とを以下に示す。

Case 1

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.42 & 0.58 & 0.00 & 0.00 & 0.00 \\ 0.12 & 0.58 & 0.30 & 0.00 & 0.00 \\ 0.00 & 0.08 & 0.62 & 0.30 & 0.00 \\ 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.60 & 0.30 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.90 \end{pmatrix} \quad (6-37a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.42 & 0.58 & 0.00 & 0.00 & 0.00) \\ Q(3) &= (0.17 & 0.49 & 0.28 & 0.05 & 0.10) \\ Q(6) &= (0.08 & 0.29 & 0.33 & 0.20 & 0.10) \\ Q(10) &= (0.04 & 0.15 & 0.26 & 0.27 & 0.31) \end{aligned} \quad (6-37b)$$

Case 2

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.45 & 0.55 & 0.00 & 0.00 & 0.00 \\ 0.12 & 0.58 & 0.30 & 0.00 & 0.00 \\ 0.00 & 0.08 & 0.62 & 0.30 & 0.00 \\ 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.60 & 0.30 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.20 & 0.80 \end{pmatrix} \quad (6-38a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.45 & 0.55 & 0.00 & 0.00 & 0.00) \\ Q(3) &= (0.19 & 0.48 & 0.27 & 0.05 & 0.00) \\ Q(6) &= (0.08 & 0.29 & 0.33 & 0.21 & 0.09) \\ Q(10) &= (0.05 & 0.15 & 0.25 & 0.29 & 0.26) \end{aligned} \quad (6-38b)$$

Case 3

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.30 & 0.40 & 0.25 & 0.05 & 0.00 \\ 0.18 & 0.52 & 0.20 & 0.10 & 0.00 \\ 0.08 & 0.23 & 0.52 & 0.15 & 0.02 \\ 0.00 & 0.05 & 0.30 & 0.50 & 0.15 \\ 0.00 & 0.00 & 0.05 & 0.30 & 0.65 \end{pmatrix} \quad (6-39a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.30 & 0.40 & 0.25 & 0.05 & 0.00) \\ Q(3) &= (0.15 & 0.35 & 0.31 & 0.16 & 0.03) \\ Q(6) &= (0.11 & 0.29 & 0.32 & 0.20 & 0.08) \\ Q(10) &= (0.10 & 0.27 & 0.31 & 0.24 & 0.15) \end{aligned} \quad (6-39b)$$

実験結果

$$\begin{aligned}
 3 \text{ 日後} & \quad Q(1) = (0.29 \quad 0.35 \quad 0.15 \quad 0.15 \quad 0.06) \\
 9 \text{ 日後} & \quad Q(3) = (0.19 \quad 0.45 \quad 0.23 \quad 0.08 \quad 0.05) \\
 18 \text{ 日後} & \quad Q(6) = (0.01 \quad 0.29 \quad 0.39 \quad 0.16 \quad 0.15)
 \end{aligned} \tag{6-40}$$

^{60}Co の単位経過時間は

日間である。理論値と実験結果との分布の適合度についての統計的検定を行った χ^2 値と偏差の二乗平均値をと Table 6-6に示す。

Table 6-6 Values of χ^2 and Variation σ^2 for Co-60

m	Case 1		Case 2		Case 3	
	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2
1	6.94	67.6	10.34	102.4	1.86	12.4
3	7.62	11.2	13.72	19.2	7.89	43.2
6	10.52	31.5	6.28	19.4	10.96	42.8
Σ	25.08	110.3	30.34	141.0	20.71	98.4

(iii) ^{115}mCd の濃縮

実験方法は前記と同様である。環境水の放射能濃度は 250 cpm/ml 試料生物のサンプリングは、実験開始後 2日, 4日, 10日, 14日後の4回行った。試料生物, 赤めだかによる ^{115}mCd の濃縮性は強く, 濃縮係数が最大150以上におよぶ測定値も見られた。状態変数の分割巾は濃縮係数で 0~16, 16~32, ... と16毎に区切った。計算例および実験結果を前記と同様に以下に示す。

Case 1

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.45 & 0.32 & 0.20 & 0.03 & 0.00 \\ 0.10 & 0.65 & 0.20 & 0.05 & 0.00 \\ 0.00 & 0.15 & 0.20 & 0.05 & 0.00 \\ 0.00 & 0.00 & 0.15 & 0.75 & 0.10 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.15 & 0.85 \end{pmatrix} \tag{6-41a}$$

のとき

$$\begin{aligned}
 Q(1) &= (0.45 \quad 0.32 \quad 0.20 \quad 0.03 \quad 0.00) \\
 Q(2) &= (0.24 \quad 0.38 \quad 0.20 \quad 0.03 \quad 0.00) \\
 Q(5) &= (0.08 \quad 0.31 \quad 0.36 \quad 0.17 \quad 0.08) \\
 Q(7) &= (0.05 \quad 0.26 \quad 0.35 \quad 0.22 \quad 0.12) \\
 Q(10) &= (0.04 \quad 0.21 \quad 0.32 \quad 0.25 \quad 0.18)
 \end{aligned} \tag{6-41b}$$

Case 2

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.45 & 0.32 & 0.20 & 0.03 & 0.00 \\ 0.05 & 0.70 & 0.15 & 0.08 & 0.02 \\ 0.00 & 0.10 & 0.75 & 0.10 & 0.05 \\ 0.00 & 0.00 & 0.15 & 0.75 & 0.10 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.90 \end{pmatrix} \quad (6-42a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.45 & 0.32 & 0.20 & 0.03 & 0.00) \\ Q(2) &= (0.22 & 0.39 & 0.29 & 0.08 & 0.02) \\ Q(5) &= (0.08 & 0.31 & 0.36 & 0.17 & 0.08) \\ Q(7) &= (0.05 & 0.26 & 0.35 & 0.22 & 0.18) \\ Q(10) &= (0.04 & 0.21 & 0.32 & 0.25 & 0.18) \end{aligned} \quad (6-42b)$$

Case 3

$$P_{ij} = \begin{pmatrix} 0.45 & 0.32 & 0.20 & 0.03 & 0.00 \\ 0.05 & 0.70 & 0.15 & 0.08 & 0.02 \\ 0.00 & 0.15 & 0.70 & 0.10 & 0.05 \\ 0.00 & 0.00 & 0.15 & 0.75 & 0.10 \\ 0.00 & 0.00 & 0.00 & 0.10 & 0.90 \end{pmatrix} \quad (6-43a)$$

のとき

$$\begin{aligned} Q(1) &= (0.45 & 0.32 & 0.20 & 0.03 & 0.00) \\ Q(2) &= (0.22 & 0.39 & 0.29 & 0.08 & 0.02) \\ Q(5) &= (0.05 & 0.29 & 0.35 & 0.20 & 0.11) \\ Q(7) &= (0.03 & 0.22 & 0.33 & 0.24 & 0.18) \\ Q(10) &= (0.02 & 0.16 & 0.31 & 0.26 & 0.25) \end{aligned} \quad (6-43b)$$

実験結果

$$\begin{aligned} 2 \text{ 日後} & \quad Q(1) = (0.56 & 0.18 & 0.08 & 0.14 & 0.04) \\ 4 \text{ 日後} & \quad Q(2) = (0.17 & 0.37 & 0.26 & 0.16 & 0.03) \\ 10 \text{ 日後} & \quad Q(5) = (0.06 & 0.26 & 0.41 & 0.09 & 0.03) \\ 14 \text{ 日後} & \quad Q(7) = (0.00 & 0.28 & 0.28 & 0.22 & 0.22) \end{aligned} \quad (6-44)$$

^{115}mCd の単位経過時間は

m 日間である。分布の適

合度についての検定結果と

Table 6-7に示す。

Table 6-7 Values of χ^2 and Variation σ^2 for Cd-115m

m	Case 1		Case 2		Case 3	
	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2	χ^2	σ^2
1	9.21	65.2	9.21	65.2	8.36	65.2
2	17.50	37.5	9.48	22.8	9.48	22.8
5	2.00	11.6	2.00	11.6	12.04	43.2
7	4.63	52.7	4.63	52.7	6.45	18.0
Σ	33.33	167.0	25.32	152.3	36.33	149.2

ス-4 本理論の問題点と課題

実験に用いたどの放射性核種の場合も、濃縮段階の理論分布と実験的に得られた濃度分布とは、有意水準5%のもとで、おおむね良い一致を示した。しかし、 ^{137}Cs のように、濃縮性の低い核種の場合は、状態空間の数を小さく取ることができるが、 ^{115}mCd の場合のように、濃縮性の高いものは状態空間の数をむつと増やすが望ましいと思われる。しかし既に述べたように、状態空間の数を増加させると、それだけ推移確率の数が増加するので、その値を決定することが困難になる。

ス-1で述べたような確率的手法を用い、水産生物による放射性核種の濃縮過程を濃度分布の経時変化として、現象論的に把握することができる。本節で述べたように、特定の放射能汚染海域に棲息する水産生物の放射能濃度が一定でなく、広い範囲にわたる濃度分布を有するならば、放射能による汚染生物からの人間の放射線被曝を考える時、単純に観測値の平均値をとって評価することは危険である。個人に対する放射線の被曝評価だけでなく、人間の集団に対する被曝を平均値で評価する時にも、その平均値とともに、母集団の統計的特性を十分に把握しておくことが重要である。このことの重要性については、古くから認識されていたと思うが、最近に限り、その種の論文がいくつか見られる。

本節で展開した単純マルコフ過程による放射性核種の濃縮過程の解析は、簡単な行列の演算によって、水産生物の放射能濃度分布を求めることができる。しかしなおいくつかの問題点と、今後究明されなければならぬと思われる課題が2,3ある。これを次に列記しておく。

- ①. 状態空間の数が増加しても、数多くの推移確率を容易に、しかも正確に推定する手法を開発する必要がある。
- ②. 生物や放射性核種の種類に応じて、推移確率を決定する単位経過時間とどの程度に送るのが最も妥当であるかと究明しなければならない。
- ③. 環境水の放射能濃度が変化した場合、その変化に応じた推移確率の決め方についての数学的手法を考求する必要がある。
- ④. 水産生物による放射性核種の濃縮過程における生物集団としての濃度分布の変化の確率論的把握と、生物一個体の濃縮過程における濃度変化との矛盾の問題。 すな

わち、水産生物が環境水の放射能濃度が一定の場所に生棲している時、生物一個体の放射能濃度は、平衡状態に達するまで、増加し続ける。このことは負の方向の推移確率は0となるということである。この場合には、平衡状態をマルコフ過程における吸収状態として仮定することは妥当である。しかし、吸収状態を仮定すると、平衡時には全ての生物の放射能濃度は一律な吸収状態に達し、生物間に濃度分布が存在することを説明できなくなる。従って、平衡時での個体間濃度分布を理論的に説明するためには、生物個体により平衡状態が異なると考えざるを得ないし、また、理論と観測値との現象論的な一致を得るためには、一般的には吸収状態をもたず、負の方向の推移確率の存在を仮定して取扱う方が合理的となる。上記のように放射性核種の濃縮過程における生物の個体レベルでの生理的な現象と、生物の放射能の濃縮性に関する個体差等に起因する集団としての濃縮過程の単純マルコフ過程としての把握には矛盾が存在することになる。

本節で述べたように、放射能の濃縮過程を確率過程として、単純マルコフ連鎖過程を仮定して解析することには一定の有効性を持っているが、最後に述べたように、水産生物による放射性核種の摂取、排泄という生理的な現象を上に述べた数学的手法で表現することにはいくつかの問題点が残されている。このような問題点を解決し、更に、環境水の放射能濃度が変化する場合も、一般的に取扱える手法について次節で述べる。

第3節 出生死滅過程の適用^(16~20)

前節では、水産生物による放射性核種の濃縮過程を単純マルコフ連鎖過程でモデル化し、濃度分布の時系列変動として把握することと試み、環境水の放射能濃度が一定の場合には、水産生物によって濃縮された放射能濃度分布の変化を予測し得ることを示した。濃度分布の理論的な予測値と実験値との現象論的な一致が見られたとは言え、しかしなお水産生物による放射能の濃縮過程の生理学上の問題と確率的数理モデル上の問題など、いくつかの理論的な限界と課題とが内在している。

本節では、放射能の濃縮過程の、更に一般的に理論的解析をめぐり、従来の放射能

の濃縮過程に関する摂取と排泄という生理学的現象に立脚した数理モデル=指数関数モデルとの関連性を考慮しつつ、水産生物の放射能濃度分布がポアソン分布で近似できるといふ実験的結果⁽⁶⁾に基づいて、確率過程の一つである出生死滅過程を適用することにより、水産生物による放射性核種の濃縮過程の一般的理論的解析を試みており、理論の妥当性と実験的に検証している。更にここで述べられた手法を簡単な食物連鎖過程に適用するための理論的展開が行われている。

3-1 理論的考察

第5章において述べたように、水産生物による放射性核種の濃縮パターンは、多くの放射性核種や、生物(組織、器官に対しても同様である)に対して、平均的には、指数関数モデルの適用によって近似的に表現され得る。このモデルを再記すると次のようである。

$$\frac{dq(t)}{dt} = k_{01}C(t) - (k_1 + \gamma)q(t) \quad (6-45)$$

ここで、 $q(t)$: 生物体(または組織、器官)内の放射能濃度(Ci/g または cpm/ml)、 $C(t)$: 環境水の放射能濃度(Ci/ml または cpm/ml)、 k_{01} : 摂取速度係数(1/day)、 k_1 : 排泄速度係数(1/day)、 γ : 放射性核種の物理的崩壊定数(1/day)である。

(6-45) 式に含まれる諸速度係数、 k_{01} や k_1 は、通常には定数として取扱われるが、実際には、放射性核種の物理化学的状態や、生物学的な原因、その他さまざま環境要因に起因して時間的にも変化するという不確定な要素を含んでいるものである。この不確定性についての決定論的な評価は、第5章、第5節で論じた。このように、パラメータの値が不確定な要因によって変化するため、結果としての水産生物の放射能濃度 $q(t)$ の観測値は、 $q(t)$ の平均値の周囲に分散した値として得られる。この濃度の頻度分布は、後述するよ

うにポアソン分布で近似される。

今、Fig.6-4 に示すように、放射能汚染を受けた生物

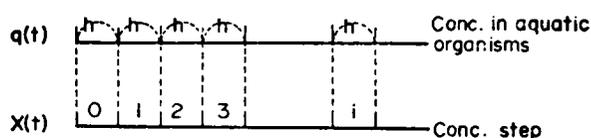


Fig. 6-4 A concept of state space.

の体内放射能濃度は適当な中(Ci/gまたはcpm/g)で分割し、小さい方から順番に、離散的な濃縮段階 i ($i=0, 1, 2, \dots$) を設定して、これを状態空間 $S\{S_i : i=0, 1, 2, \dots\}$ とするある任意の時刻 t における水産生物の放射能濃度分布の経時的変化を表わす確率過程を考える。

ある時刻 t における水産生物の放射能の濃縮段階が、前述の状態空間 $S_i=i$ に存在する確率を次のように表わす。

$$P_r\{X(t)=i\} = P_i(t) \quad (6-46)$$

ここで $X(t)$ は確率変数で、時刻 t における離散的な放射能の濃縮段階を表わしている。水産生物による放射性核種の濃縮が、環境水からの直接摂取のみによる場合について、その濃縮過程を、微小時間 Δt の間に、濃縮段階 i が変化する確率で表わすと、次の4つの仮定が設定される。

- (1) 時刻 t において、水産生物の濃縮段階が、状態空間内で i に存在する時、微小時間 Δt の間に、濃縮段階が、状態 i から状態 $i+1$ に移る確率は $\lambda_i \Delta t + o(\Delta t)$ で表わされる。
- (2) 上と同様にして、状態 i から状態 $i-1$ に移る確率は $\mu_i \Delta t + o(\Delta t)$ である。
- (3) 状態 i から状態 $i+1$ あるいは状態 $i-1$ 以外の濃縮段階へ移る確率は $o(\Delta t)$ である。
- (4) 上記(1), (2), (3)の仮定から、状態が微小時間 Δt の間には変わらない確率、すなわち状態 i が同じ状態にとどまっている確率は $1 - (\lambda_i + \mu_i) \Delta t + o(\Delta t)$ である。

このような4つの仮定で表現される過程は、マルコフ連鎖過程の代表的な例の一つである出生死滅過程 (Birth-Death Process) と呼ばれる確率過程である。このような状態の推移を模式的に Fig. 6-5 に示す。図中の矢印は状態が変

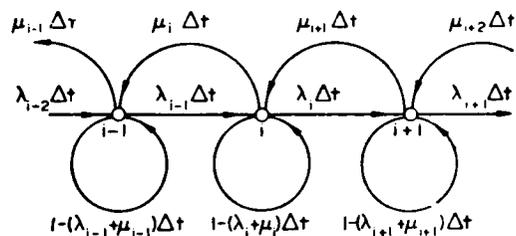


Fig. 6-5 The Transient Probability of the Concentration Step

てゆく方向を表わし、記号は状態の推移確率を表わしている。

上の4つの仮定に従えば、時刻 $t + \Delta t$ における水産生物の放射能濃縮段階が状態 i に

存在する確率 $P_i(t+\Delta t)$ は次式で表わせる。

$$P_i(t+\Delta t) = \{1 - (\lambda_i + \mu_i)\Delta t\}P_i(t) + \lambda_{i-1}\Delta t P_{i-1}(t) + \mu_{i+1}\Delta t P_{i+1}(t) + o(\Delta t) \quad (6-47)$$

したがって、

$$\frac{P_i(t+\Delta t) - P_i(t)}{\Delta t} = -(\lambda_i + \mu_i)P_i(t) + \lambda_{i-1}P_{i-1}(t) + \mu_{i+1}P_{i+1}(t) + \frac{o(\Delta t)}{\Delta t} \quad (6-48)$$

($i = 0, 1, 2, \dots$)

ここで、 $\mu_0 = 0$, $\lambda_{-1} = 0$ とする。

$o(\Delta t)$ の項を無視し、 $\Delta t \rightarrow 0$ とすると、(6-48) から次の微分方程式が得られる。

$$\frac{dP_0(t)}{dt} = -\lambda_0 P_0(t) + \mu_1 P_1(t) \quad (6-49)$$

$$\frac{dP_i(t)}{dt} = -(\lambda_i + \mu_i)P_i(t) + \lambda_{i-1}P_{i-1}(t) + \mu_{i+1}P_{i+1}(t) \quad (6-50)$$

($i \geq 1$)

また、時刻 $t=0$ で、濃縮段階が状態 i に存在するならば、初期条件は次式で与えられる。

$$P_j(t) = \delta_{ij} \quad (\delta_{ij} : \text{Kronecker のデルタ}) \quad (6-51)$$

(6-50) 式に含まれるパラメータ λ_i , μ_i はそれぞれ、水産生物による放射能核種の濃縮段階が状態 i に存在する時の単位時間当たりの濃縮段階の増加および減少の平均推移確率を示している。したがって、水産生物による放射能核種の濃縮段階の増加は、水産生物が放射能核種を摂取することに起因するものであるから、 λ_i はすべての状態 i に対して環境水濃度に比例し、また濃縮段階の減少は、水産生物の生理的放射能核種の排泄に起因するものであるから、 μ_i は水産生物の濃縮段階の状態 i に比例すると考えられる。それ故、 λ_i , μ_i はそれぞれ次式のように表わせる。

$$\lambda_i \text{ (1/day)} = k_{01} C(t) / h \quad (6-52)$$

$$\mu_i \text{ (1/day)} = k_{10} \cdot i \quad (6-53)$$

ここで、 k_{01} と k_{10} は比例定数、 h は既に述べた分割巾、 $C(t)$ は環境水の放射能濃度

を表現関数である。(6-52)式の右辺が分割巾で割られているのは、水産生物の放射能濃度が濃縮段階を表現する状態空間で表現されるので、環境水の放射能濃度も同じ次元をもつ状態空間で表現するためである。

(6-52)式、(6-53)式と(6-50)式に代入すると、

$$\frac{dP_i(t)}{dt} = -\left(\frac{k_{01}C(t)}{h} + k_{10} \cdot i\right)P_i(t) + \frac{k_{01}C(t)}{h} P_{i-1}(t) + (i+1)k_{10}P_{i+1}(t) \quad (6-54)$$

となる。(6-54)式を、(6-51)式で示した初期条件のもとで解くために、次の確率母関数を導入することにより、通常の方法で(6-54)式の解が得られる。^(9, 21)

$$F(s, t) = \sum_{i=0}^{\infty} P_i(t) S^i \quad (6-55)$$

初期条件 $P_j(t) = \delta_{ij}$ を(6-55)式に代入して、

$$F(s, 0) = S^j \quad (6-56)$$

(6-54～56)式から、次式が得られる。

$$\frac{\partial F(s, t)}{\partial t} + k_{10}(s-1)\frac{\partial F(s, t)}{\partial s} = k_{01}\frac{C(t)}{h}(s-1)F(s, t) \quad (6-57)$$

環境水の放射能濃度が一定($C(t) = C_0$ で表わされるとする)の場合について、(6-57)式を解くと、解は次式のように表わせる。

$$F(s, t) = \exp\left\{-\frac{k_{01}C_0}{k_{10}h}(1-s)(1-e^{-k_{10}t})\right\} \{1-(1-s)e^{-k_{10}t}\}^j \quad (6-58)$$

(6-58)式の“ j ”は水産生物の放射能濃縮段階の初期状態である。もし $t=0$ で濃縮段階が状態0に存在していたとすると、(6-58)式は、

$$F(s, t) = \exp\left\{-\frac{k_{01}C_0}{k_{10}h}(s-1)(1-e^{-k_{10}t})\right\} \quad (6-59)$$

となる。確率母関数の定義式から明らかのように、任意の時刻 t における濃縮段階の平均値 $m(t)$ 、分布の分散 $V(t)$ 、状態 i の存在確率 $P_i(t)$ はそれぞれ次のように表わすことができる。

$$m(t) = \sum_{i=0}^{\infty} iP_i(t) = \left. \frac{\partial F}{\partial s} \right|_{s=1} = \frac{k_{01}C_0}{k_{10}h}(1 - e^{-k_{10}t}) \quad (6-60)$$

$$\begin{aligned} V(t) &= \sum_{i=0}^{\infty} \{i - m(t)\}^2 P_i(t) = \left. \frac{\partial^2 F}{\partial s^2} \right|_{s=1} + m(t) - \{m(t)\}^2 \\ &= \frac{k_{01}C_0}{k_{10}h}(1 - e^{-k_{10}t}) \end{aligned} \quad (6-61)$$

$$\begin{aligned} P_i(t) &= \frac{\left. \frac{\partial^i F}{\partial s^i} \right|_{s=0}}{i!} \\ &= \frac{\left\{ \frac{k_{01}C_0}{k_{10}h}(1 - e^{-k_{10}t}) \right\}^i}{i!} \exp\left\{ -\frac{k_{01}C_0}{k_{10}h}(1 - e^{-k_{10}t}) \right\} \\ &= \frac{\{m(t)\}^i}{i!} \exp\{-m(t)\} \end{aligned} \quad (6-62)$$

環境水の放射能が一定である場合について、理論展開を行ってきたが、濃度が時間的に変化するある関数型で与えられる場合にも、上とまったく同様にして(6-57)式を解けば良い。例えば、汚染された湾内の水が絶えず、新しい海水と一定の割合で交換するような場合には、湾内の環境水濃度は指数関数 $C(t) = C_0 e^{-at}$ で与えられる。この場合にも、同様に、初期条件として、 $j=0$ で与えられるとすると、(6-57)式の解の確率母関数は、

$$F(s, t) = \exp\left\{ \frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h}(s-1)(e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \right\} \quad (6-63)$$

となる。したがって、この時の分布の平値 $m(t)$ 、分散 $V(t)$ 、存在確率 $P_i(t)$ はそれぞれ、

$$m(t) = \left. \frac{\partial F}{\partial s} \right|_{s=1} = \frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \quad (6-64)$$

$$V(t) = \left. \frac{\partial^2 F}{\partial s^2} \right|_{s=1} + m(t) - \{m(t)\}^2 = \frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \quad (6-65)$$

$$P_i(t) = \frac{\left. \frac{\partial^i F}{\partial s^i} \right|_{s=0}}{i!}$$

$$= \frac{\left\{ \frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \right\}^i}{i!} \exp\left\{ -\frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \right\}$$

$$= \frac{\{m(t)\}^i}{i!} \exp\{-m(t)\} \quad (6-66)$$

と表わせる。一般に $P_i = m^i e^{-m} / i!$ は m をパラメータとするポアソン分布の密度関数を表わしている。したがって、(6-62)式、(6-66)式で表わされる存在確率は、それぞれ

$$\frac{k_{01}C_0}{k_{10}h} (1 - e^{-k_{10}t}) \quad \text{と} \quad \frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \quad \text{とをパラメータ}$$

とするポアソン分布の確率密度関数を表わしていることがわかる。

さて一方、(6-45)式の両辺を分割巾 h で割って、

$$\frac{1}{h} \frac{dq(t)}{dt} = \frac{k_{01}C(t)}{h} - (k_1 + \gamma) \frac{q(t)}{h} \quad (6-67)$$

$q(t)/h = i(t)$ とおくと、環境水濃度が一定 ($C(t) = C_0$) の時、(6-67)式の解は既に第5章で述べた様に、次のようになる。

$$\frac{q(t)}{h} = i(t) = \frac{k_{01}C_0}{k_{10}h} (1 - e^{-k_{10}t}) \quad (6-68)$$

(ただし、 $k_{10} = k_1 + \gamma$ とおく)

同様にして、環境水濃度が、 $C(t) = C_0 e^{-at}$ で与えられる時は、

$$\frac{q(t)}{h} = i(t) = \frac{k_{01}C_0}{(k_{10}-a)h} (e^{-at} - e^{-k_{10}t}) \quad (6-69)$$

となる。(6-68), (6-69) 式の右辺はそれぞれ(6-62), (6-66)式で表わされるポアソン分布を表わす確率密度関数のパラメータと同じ式である。すなわち $i(t) = m(t)$ となっている。言い換えると、ある時刻 t において、水産生物が濃縮した放射能の濃度分布は、その分布の平均値に等しい値をパラメータとするポアソン分布則に従い、その平均値の大きさは、水産生物による放射性核種の濃縮過程の指数関数モデルで得られる水産生物の放射能濃度の一点推定値に等しくなる。(6-68)式から明らかのように、環境水濃度が一定の場合には、生物体内の放射能濃度の分割巾 i の大きさを環境水の放射能濃度 C_0 に等しくとると、濃縮段階の状態 i の平均値は相対的濃度、又は見かけの濃縮係数と呼ばれるものと等しくなる。平衡時においては、この値は濃縮係数となる。ポアソン分布のパターン変化を Fig.6-6 に示す。この分布のパターンはパラメータ m の値にのみ依存する。又、パラメータ m の値が十分大きくなるとポアソン分布は正規分布で近似できる。

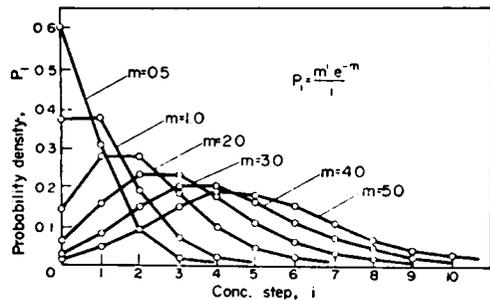


Fig.6-6 Poisson Distribution Of Parameter m

3-2 実験材料および方法

(i) 環境水の放射能濃度が一定の場合:

上に述べた確率過程の一つである出生死滅過程の、水産生物による放射性核種の濃縮過程への適用の妥当性について検討するために以下に述べる実験を行った。本実験は前節の実験と同様に、多数の試料生物を必要とするので、比較的入手しやすい淡水魚赤めだかを用いた。透明のアクリル製水槽に約80ℓの水道水を入れ、これに所定の放射性核種を投入し、約500匹の赤めだかを飼育して実験に供した。実験に用いた放射性核種は、 ^{137}Cs , ^{60}Co , $^{115\text{m}}\text{Cd}$ の塩化物で、いずれも日本アイソトープ協会から購

入したものである。実験期間中における試料生物自身の排泄物の摂食による間接汚染を避けるために、試料生物の購入後、実験期間中を通して、食餌物の投与は一切行われなかった。なお、試料生物の購入後から実験開始迄の期間はおよそ一週間程度である。このような絶食状態で実験を行うことに起因する水産生物の放射性核種の濃縮に対する生物の生理的影響は、本研究の目的からは無視してもさしつかえないと考える。試料生物のサンプリングは一回について100匹を採取し、これを水洗後、メチルアルコール中に浸漬させ、仮死せしめた後、生物の体表面の水分をペーパータオルでふきとり、重量を秤量した。赤めだかに濃縮された放射能とγ線はNaIエシントンカウンタで、β線はGMカウンタを用いて、ホールボディカウンタとして測定した。この測定値からバックグラウンド放射能と差引いた値を生物の重量で割り、赤めだかの比放射能を求めた。なお、生物の体表面への放射性核種の吸着は、試料生物と水道水およびメチルアルコールで洗浄しているのが無視された。実験はキャリアフリーで行われた。環境水の放射能濃度の変化は、実験期間中を通して、放射能測定上の統計的変動をも含めて、最大10%程度だったので、以下の解析では環境水の放射能濃度は一定であるとした。環境水の水温は水槽中に水中ヒータとサーモスタットとを設置し、実験期間中 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ に保たれた。又水槽内には ^{137}Cs の場合にはガラスウールを濾材とする濾過器を設置し、エアープンプで空気を供給した。 ^{60}Co 、 $^{115\text{m}}\text{Cd}$ の場合にはガラスウールへの吸着が激しいので濾材を使用しなかった。実験に用いた環境水の水質をTable 6-2に示す。

Table 6-2 The Quality of the Water (pH 7.8 at 15°C)

Element	Concentration (meq/l)	Element	Concentration (meq/l)
Ca^{++}	1.08	HCO_3^-	0.80
Mg^{++}	0.58	Cl^-	0.82
Na^+	0.60	SO_4^-	0.61
K^+	0.03	NO_3^-	0.03
		F^-	0.01
Total cation	2.29 meq/l	Total ionic ion	2.27 meq/l

(ii) 環境水の放射能濃度が変化する場合

実験に用いた試料生物、放射性核種は前記と同じである。水槽は透明のアクリル製で、約 40cm x 40cm x 40cm の水槽が4つ直列に連結されており、個々の水槽を区切る隔壁の高さ 30cm のところに直径 2 cm の穴があけてあって、一方の水槽に流入してきた水はこの穴を通して隣の水槽に越流するようになっている。したがって各水槽の有効容積は約 48ℓ である。 Fig.6-7 に示す。 Fig.6-7 の水槽1 に体積 V ml の水が満たされており、水槽内の初期の放射能濃度を C_0 cpm/ml とし、これに放射能を含まない清澄な水を単位時間あたり v ml 供給すると、水槽1 内の水が完全混合されると仮定して、水槽1 内の水の放射能濃度は次式で求められる。

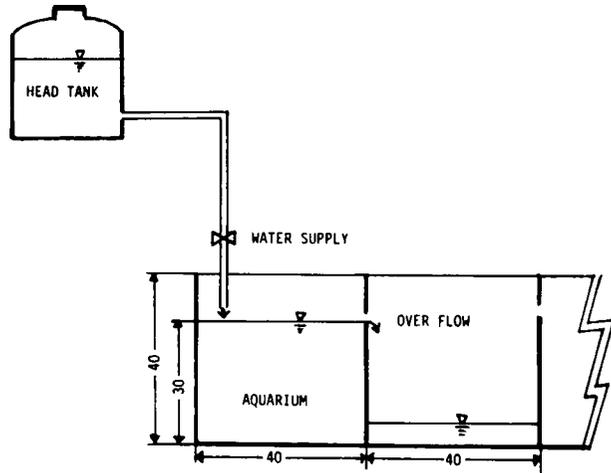


Fig.6-7 Aquarium used for the Experiment

$$V \frac{dC(t)}{dt} = -(v + \lambda V)C(t) \quad (6-70)$$

ここで λ は放射性核種の物理的半減期である。これと初期条件 $t=0$ で、 $C = C_0$ のもとで解くと、

$$C(t) = C_0 e^{-\left(\frac{v}{V} + \lambda\right)t} = C_0 e^{-at} \quad (6-71)$$

となる。供給する水の量 v を適当に調節することによって、任意の速さで水槽内の放射能濃度が指数関数的に減少するように操作することができる。水温は $20 \pm 1^\circ\text{C}$ に保たれた。以上が各放射性核種に共通の実験方法である。次にそれぞれの放射性核種に特有の実験方法について述べる。

(a) ^{137}Cs の場合

水槽1に水道水を満たし、約0.4mCiの ^{137}Cs をキャリアフリーで投入し、試料庄物の赤めだか約500匹を入れて実験を開始した。ヘッドタンクからの放射能と含まない水の量は約4.5 l/dayの速度で水槽1に供給した。この時の水槽1内の ^{137}Cs の放射能濃度の変化は Fig.6-14 に示されている。これは次式の指数関数で表わされる。

$$C(t) = C_0 e^{-0.093t} \quad (6-72)$$

$(C_0 = 1120 \text{ cpm/ml}, \quad t; \text{ days})$

サンプリングした赤めだかは、流水で体表面を十分に洗浄した後、冷血動物用麻酔溶液中に浸漬させて眠らせ、体表面の水分をペーパータオルでふきとってから秤量した。放射能の測定は400チャンネルγ線波高分析器により、 ^{137}Cs の娘核種である

^{137}Ba から放出されるγ線(γ線エネルギーは0.662MeV)をディスクリミネイトして測定された。この場合、γ線の物質透過力は強いので、試料生物自身によるγ線の自己吸収による影響を無視した。試料生物の放射能測定後、ビーカーに入れた ^{137}Cs を含む環境水中に入れ、赤めだかが覚醒するのを待って、もとの水槽に戻した。赤めだかを麻酔してから、それが覚醒する迄の時間は約10分程であった。

(b) ^{60}Co の場合

^{137}Cs の場合と同様に、水槽1に水道水を満水させ、 ^{60}Co の塩化物約0.3mCiをキャリアフリーで投入し、約300匹の赤めだかを飼育した。清澄水の供給量は4.5 l/dayである。コバルトは水酸化物を作りやすく、水槽の側壁やろ材のガラスウールに吸着されやすい。そのために清澄水の供給量は ^{137}Cs の場合と同じ量であるにもかかわらず Fig.6-15 に示すように、環境水の放射能濃度の減少速度は著しい。濃度変化は次式で与えられる。

$$C(t) = 180e^{-0.4t} \quad (6-73)$$

放射能の測定は、γ線波高分析器を用いて1.33MeVのピークを中心にディスクリミネイトして計測した。 ^{60}Co のγ線ピークは1.17 MeVと1.33MeVの二つがあるが、エ

エネルギーの低い方の計測値は高いエネルギーの γ 線によるコンプトン散乱による影響を受け、放射能の強さによって、そのつど補正を行わなければならないので、そのような繁雑さを避けるために、エネルギーの高い方の γ 線ピークのみを計測した。

(c) ^{115}mCd の場合

水槽に約35ℓの水道水を入れ、 ^{115}mCd の塩化物約0.6mCiを投入し、約300匹の赤めだかを飼育した。 ^{115}mCd の場合も、 ^{60}Co の場合程激しくはないが浮材への吸着がみられ、清澄水の供給を行わずとも Fig.6-16 に示すような環境水の放射能濃度の減少が見られた。環境水の放射能濃度の変化は次式で近似される。

$$C(t) = 2900 e^{-0.061t} \quad (6-74)$$

放射能の測定には GM カウンタを用い、 ^{115}mCd から放出される β 線を測定した。 β 線の物質による吸収は著しいので、生物の体内放射能濃度を算定するにあたっては、 β 線の自己吸収の影響を補正した。

3-3 実験結果および考察

(i) 環境水の放射能濃度が一定の場合

(6-68)式に示した濃縮段階 i の確率分布 P_i を求めるためには、同式中に含まれるパラメータ k_{01} 、 k_{10} を決定することから始めなければならない。既に述べたように、 k_{01} 、 k_{10} は(6-68)式で表わされる摂取速度定数 λ 、排泄速度定数 μ と等しいから、これらのパラメータの値は生物体内の放射能濃度の平均値 $\bar{C}(t)$ から $\bar{C}(t)-t$ 曲線を

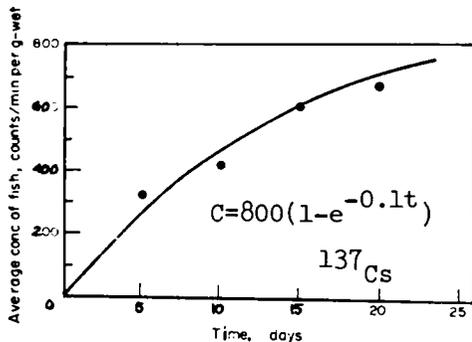


Fig.6-8 Daily Change of the Concentration

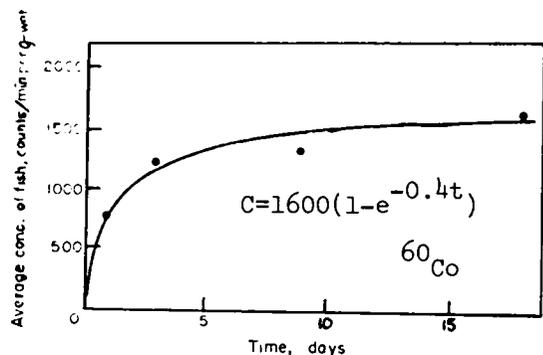


Fig.6-9 Daily Change of the Concentration

描くことにより決定できる。これを Figs. 6-8, 9, 10 に示す。分割巾 h の大きさは濃縮段階の階級数 k を決めることにより自動的に決定される。階級数 k を一意的に決定することは難かしいが、H.A. Sturges⁽²²⁾ は k のとり方について、二項分布と度数との関係から、試料数を N 個とすると、

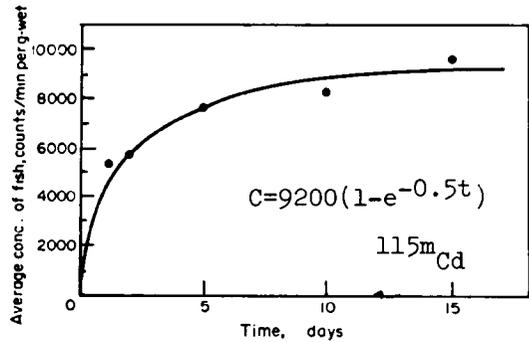


Fig. 6-10 Daily Change of the Concentration

$$k = 1 + \log_{10} N / \log_{10} 2 \approx 1 + 3.32 \log_{10} N \quad (6-75)$$

を満足する値が良いと述べている。これは階級数を決定する一つの基準を示すものであるが、試料数 N が 100 以上の時には、これより少し大きい値にするのが良いとも言われている。⁽²³⁾ ここでは、隣り合う二つの濃縮段階の間で、水産生物の放射能汚染の影響評価をするとに有意な差があるように、また放射能計測に伴う統計的変動の影響を受けない程度の値を考慮し、生物体内の放射能の最大濃度をほぼ 10 等分する程度にして、分割巾 h と Table 6-8 に示すように決定した。この分割に従って、それぞれの核種

Table 6-8 Parameters Used for Theoretical Calculation

Radio nuclide	Concentration of water C_0 (counts/min/ml)	Dividing range h (counts/min/g)	Parameter of the Poisson distribution $m(t) = \frac{\lambda C_0}{\mu h} (1 - e^{-\mu t})$
¹³⁷ Cs	300	100	7.5 (1 - e ^{-0.11})
⁶⁰ Co	1500	250	6.4 (1 - e ^{-0.44})
^{115m} Cd	250	1500	6.0 (1 - e ^{-0.67})

についての濃縮段階 i を設定した。一方定期的にサンプリングした赤めだかの放射能を測定し、生体湿潤単位重量当たりの放射能濃度を算定して、それぞれの放射性核種に対する各濃縮段階の頻度分布を百分率で算出した。その結果を Tables 6-9, 10, 11 に示す。この頻度分布は各濃縮段階における存在確率を表わしており、前節で得られた

Table 6-9 Percentage f_i of Concentration Step

Step	Days		
	5	10	15
0	1	0	0
1	29	4	0
2	28	29	9
3	12	19	13
4	14	19	18
5	6	12	16
6	3	8	11
7	3	3	12
8	3	3	9
9	1	2	3
10	0	1	6
11	0	0	3
Total	100	100	100
χ^2	31.14	16.90	15.89

Radionuclide ^{137}Cs .

Table 6-10 Percentage f_i of Concentration Step

Step	Days		
	1	9	18
0	2	1	0
1	22	6	2
2	20	18	6
3	21	20	17
4	20	20	14
5	10	16	18
6	3	12	12
7	0	0	12
8	1	0	11
9	1	7	3
10	0	0	5
11	0	0	0
Total	100	100	100
χ^2	6.69	8.58	22.23

Radionuclide ^{60}Co .

Table 6-11 Percentage f_i of Concentration Step

Step	Days		
	2	4	10
0	28	4	0
1	20	10	6
2	9	17	9
3	11	13	15
4	0	13	26
5	9	20	18
6	8	0	13
7	9	10	6
8	5	10	3
9	1	0	2
10	0	0	2
11	0	3	0
Total	100	100	100
χ^2	169.3	36.31	8.56

Radionuclide ^{115m}Cd .

濃縮段階の理論分布と一致するかどうかを統計的に検定するために、 χ^2 の適合度検定を行った。(6-63)式に示されているように、濃縮段階の理論確率分布は、

$$P_i(t) = \frac{\{m(t)\}^i \exp\{-m(t)\}}{i!} \quad (6-76)$$

となる。この $m(t)$ は時刻 t における水産生物の放射能濃度の平均値であって、ポアソン分布のパラメータとなる。各核種についての $m(t)$ の関数を Table 6-3 に示す。今、帰無仮説として Tables 6-9~11 に示した濃縮段階の分布が(6-76)式のポアソン分布式に従うとすると、次式によって計算した χ^2 値は、仮説が真である時、漸近的に自由度 $k-1$ の χ^2 分布に従う。⁽²⁴⁾

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^k \frac{\{f_i - P_i(t)\}^2}{P_i(t)} \quad (6-77)$$

ここで、 f_i は実験で得られた濃縮段階の状態 i の存在確率、 $P_i(t)$ は(6-76)式の計算から得られた存在確率の理論値である。これを計算すると、一部のデータを除いて、5%の有意水準のもとでは、この仮説は一般に棄却されないことが確認された。

χ^2 の計算値は Tables 6-4, 5, 6 に示されている。この結果から、水産生物による放射能物質の濃縮過程における濃縮段階の分布はポアソン分布の時間的变化として、出生死滅過程の適用により表現し得ることが明らかになった。しかし、例えば Table 6-6 に示されている ^{115m}Cd の濃縮の第2日目、第4日目のデータのように分散が大きく、5% の有意水準のもとで、分布の適合性の仮説が棄却される場合もあり得る。いろいろ値の有意水準のもとでの、自由度 10 に対する値と Table 6-12 に示している。

Table 6-12 χ^2 Distribution Table

p^*	0.90	0.80	0.70	0.50	0.30
χ^2	4.80	6.18	7.27	9.34	11.78
p^*	0.20	0.10	0.05	0.02	0.01
χ^2	13.44	15.99	18.31	21.16	23.21

* Significance level for freedom 10.

次に実験過程における種々の不確定要因による放射能濃縮に

及ぼす影響を考慮に入れて、実験で得られた濃縮段階の存在確率 f_i の統計的な意味について考察する。これまで、サンプリングした n 匹の試料生物中、放射能核種の濃縮段階が状態 i にあるものの数が x 匹であった時、この観測値から、濃縮段階 i の生起確率 f_i の推定値を $f_i = x/n$ として扱ってきた。ところでこの観測値 x 自身が確率変数であるため、推定値 f_i もまた確率変数となる。すなわち、この推定値 f_i は一意的に決定されるのではなく、未知の母集団の真の確率 P_i の周辺に分布し、 P_i に近い値をとったり、 P_i から遠い値をとったりする。生態系の放射能汚染に対する影響評価という実際的な問題としては、濃縮段階を表現する状態 i の存在確率 P_i の点推定値 $f_i = x/n$ とともに、その値の信頼性、つまり、母集団の真の存在確率 P_i が推定値 f_i の周辺のどの範囲に存在すると見させるかが重要な問題となるであろう。一般にある数値を推定し、評価する場合に平均値を用いるとしても、その母集団の分布や分散がわかっていることが重要である。したがって、水産生物の放射能汚染を評価するのに、 f_i の真値に対して、観測値 x の値に基づく下限値 $P(x)$ と上限値 $\bar{P}(x)$ とを定め、

$$P(x) \leq f_i \leq \bar{P}(x) \quad (6-78)$$

の区間推定を行うことが合理的であると考えられる。一般に n 回の独立試行のうち x 回、ある事象が生じた時、その事象に対する生起確率 f_i の信頼区間として、下限 $P(x)$ 、

上限 $\bar{P}(x)$ は次式で与えられる。

$$\underline{P}(x) = \frac{x}{x + (n-x+1)F_{2x}^{2(n-x+1)}} \quad (6-79)$$

$$\bar{P}(x) = \frac{(x+1)F_{2(n-x)}^{2(x+1)}}{(n-x) + (x+1)F_{2(n-x)}^{2(x+1)}} \quad (6-80)$$

ここで F_m^n は自由度 n, m を持つ F -分布の表から求められる値である。(6-79) と (6-80) 式から求めた信頼区間と分布の理論値とを実験結果とともに Figs. 6-11, 12, 13 に示す。これから、実験データは95%の信頼度を持つ信頼区間で、ほぼ理論値を満足している。また濃縮段階の実験結果の平均値と分散および理論値のそれとの比較もかなり良い一致が得られた。これを Table 6-13 に示す。

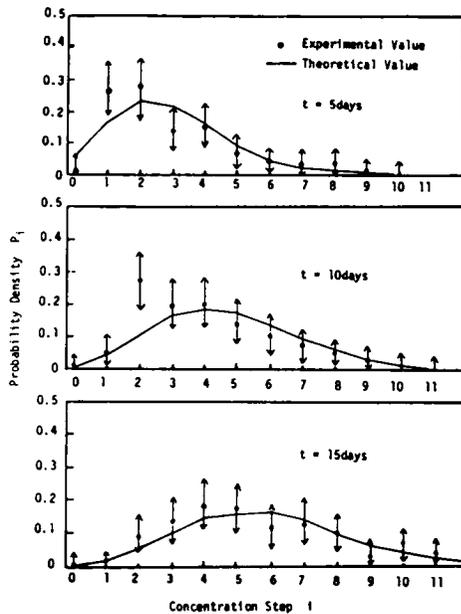


Fig. 6-11 ^{137}Cs Plots of P_i versus Concentration Step
 (\longleftrightarrow means the confidence interval for experimental values with the confidence coefficient 95%)

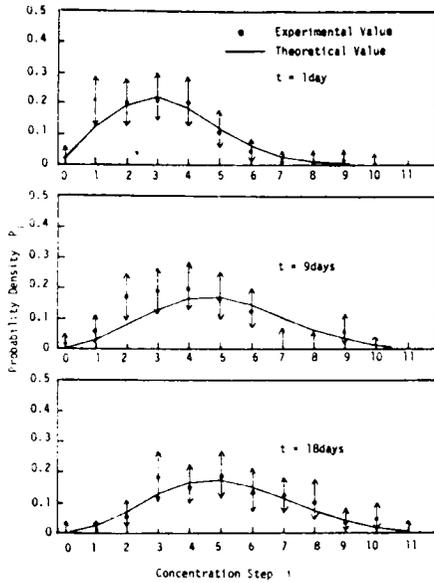


Fig. 6-12 ⁶⁰Co Plots of P_i versus Concentration Step

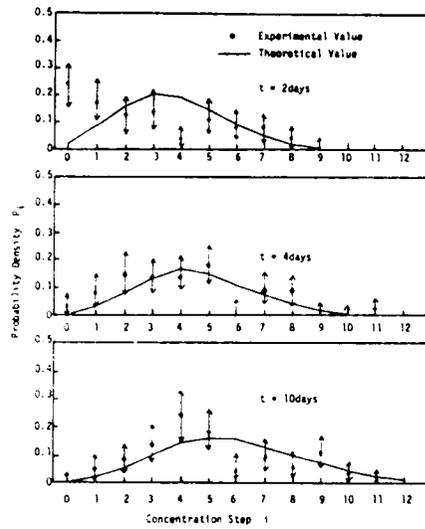


Fig. 6-13 ^{115m}Cd Plots of P_i versus Concentration Step

Table 6- 13 Comparison of the Experimental Values with the Theoretical Values of Contamination Step

Days	Experimental		Theoretical (mean)
	Mean	Variance	
¹³⁷Cs			
5	2.8	3.7	2.9
10	3.8	3.7	4.7
15	5.5	5.7	5.8
⁶⁰Co			
1	2.9	2.2	2.2
9	4.0	3.9	6.2
18	5.4	5.6	6.4
^{115m}Cd			
2	2.8	7.4	3.8
4	4.2	6.4	5.0
10	4.8	5.5	6.0

(ii) 環境水の放射能濃度が指数関数的に減少する場合

環境水の放射能濃度が一定の場合と同様に、それぞれの放射性核種に対する試料生物めだか100匹の平均濃度の時間的变化を Figs. 14, 15, 16 に示す。これらの曲線に最も良く適合するパラメータの値を

(6-69)式に従って推定した。濃縮段階の階級数の

値は前記と同様に $k=10$ とした。この時の分割ゆらおるポアソン分布のパラメータを Table 6-14 に示す。濃縮段階の分布の実験結果と理論分布および95%の信頼度のもとでの実験結果の信頼区間を

Figs. 6-17, 18, 19 にまとめて示す。また濃縮段階の実験結果の平均値と分散および理論的との比較を Table 6-15 に示す。濃縮された ^{137}Cs の平均濃度は指数関数モデルに良く適合している。 ^{60}Co の場合には、実験開始後

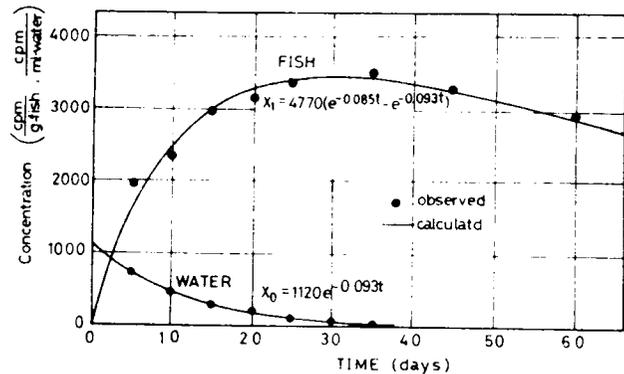


Fig. 6-14 Change of Cs-137 Concentration in Fish and Water

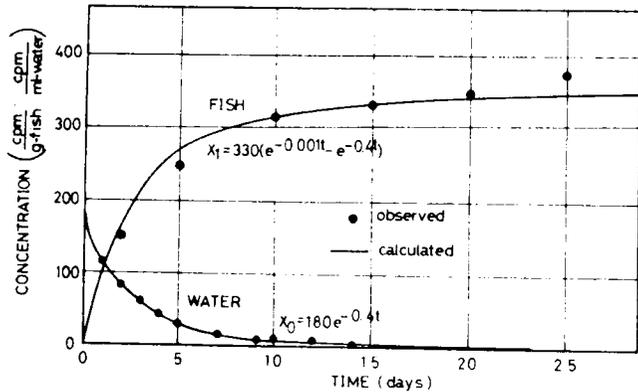


Fig. 6-15 Change of Co-60 Concentration in Fish and Water

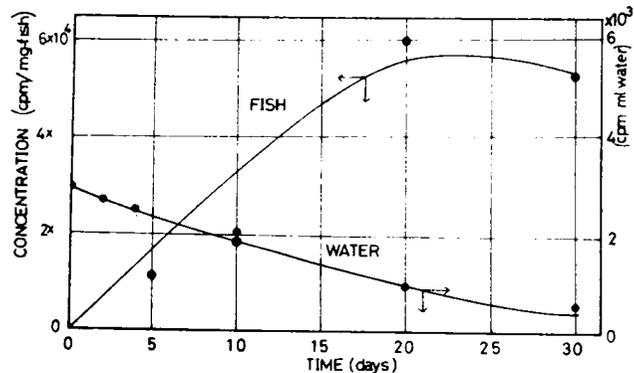


Fig. 6-16 Change of Cd-115m Concentration in Fish and Water

Table 6-14 Parameters used for Theoretical Calculation

Radio-nuclide	Dividing Range h (cpm/g)	Parameter of the Poisson Distribution (m(t))
Cs-137	800	$6.0(e^{-0.085t} - e^{-0.093t})$
Co-60	100	$3.3(e^{-0.001t} - e^{-0.4t})$
Cd-115m	10000	-----

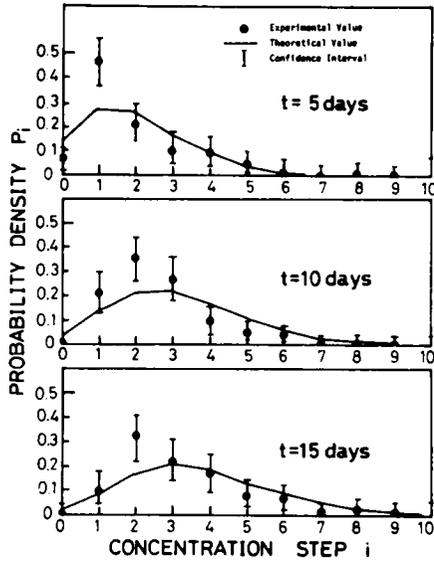


Fig.6-17 Cesium-137 plots of P_i vs. the concentration step

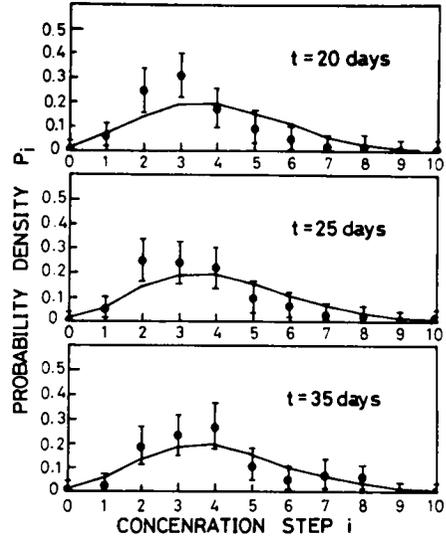


Fig.6-17 (continued)

20日目位までは良く適合している。
 しかし、それ以後になると、環境水の放射能が低濃度ではあるが横ばいになり、それ迄と同じパターンで指数関数的に減少しなくなった。これは水槽や、ガラスウールに吸着していた ^{60}Co が環境水の濃度が減少したために脱着してきたものと考えられる。水の濁りは微妙な環境の変化による魚の生理的機能の異変

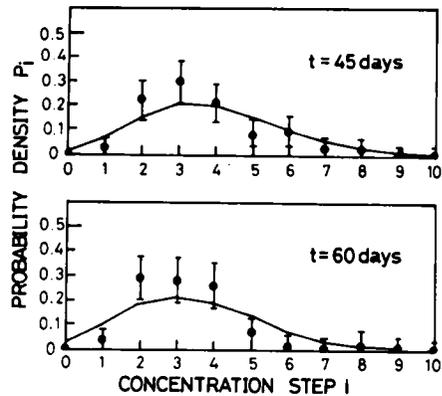
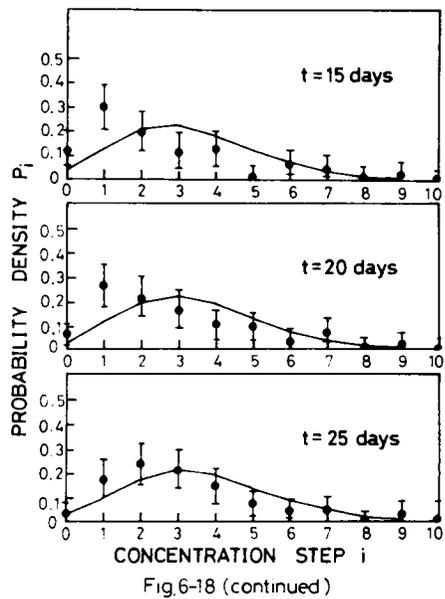
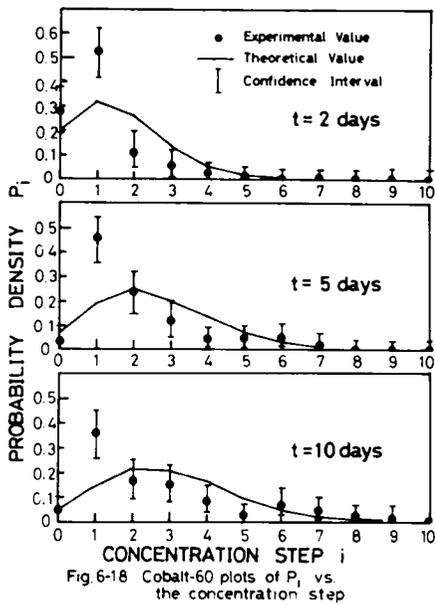
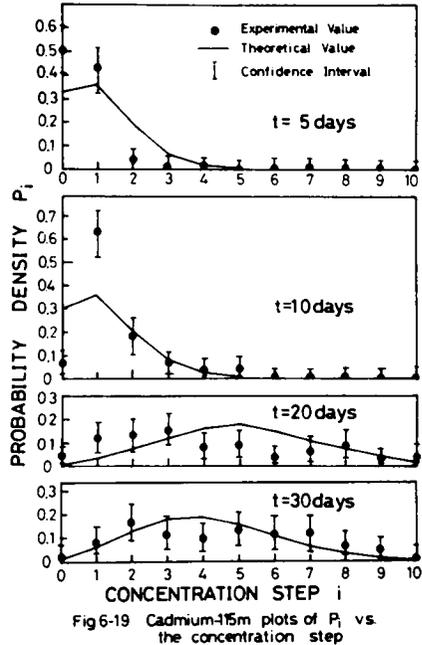


Fig 6-17 (continued)



から起こってきたものと思われる。いくつかの原因が重なって、この実験では、魚の平均放射能濃度の変化はS字型になり、指数関数で近似することができなかった。それ故 Table 6- や Fig. 6-16 には、生物内の ^{115m}Cd の濃度変化を表わす指数関数が記されていない。Fig. 6-19 に示したポアソン分布の理論値は、その分布のパラメータに実験結果の平均値を用いて計算されている。生物実験は数多くの環境要因によって、また微妙な生物自身の生理的機能の変化によって極めて影響されやすいにもかかわらず、環境水の放射能濃度が指数



関数的に変化する場合にも理論値と実験は一部を除いて、

95%の信頼度のもとでの区間推定を考えると、おおむね良い一致を示していると言える。

環境水の放射能濃度が一定の場合であれ、変化する場合であれ、 ^{137}Cs の核種実験結果が他の核種の場合よりも理論値との適合度がより良いことが示されている。この理由は、ここで述べたモデルでは試料生物一個体を平均化してその比放射能を計測しているためであると思われる。

すなわち ^{137}Cs は生物の体内全身にほぼ均一に分布すると見なし得るので、放射能濃度の平均的な取扱いとすることが可能であるが、 ^{60}Co や $^{115\text{m}}\text{Cd}$ のように決定臓器が比較的、局部に固定している核種では、体内の放射能濃度を平均化して考えることには少し無理が生じるであろう。

決定臓器の明らか核種に対しては、その決定臓器についての放射能濃度を考える

Table 6-15 Comparison of the Experimental Values with the Theoretical Values of Concentration Step

Cs-137			
Days	Experimental		Theoretical
	Mean	Variance	Mean
5	2.4	3.6	2.2
10	2.7	2.2	3.1
15	3.3	4.0	3.8
20	3.9	4.8	4.1
25	3.9	3.7	4.2
35	3.9	3.7	4.2
45	3.8	4.4	4.0
60	3.3	2.2	3.6

Cd-115m			
Days	Experimental		Theoretical
	Mean	Variance	Mean
5	0.7	1.1	-
10	1.3	1.2	-
20	5.4	17.1	-
30	4.3	7.9	-

Co-60			
Days	Experimental		Theoretical
	Mean	Variance	Mean
2	1.1	1.5	1.6
5	2.3	2.6	2.6
10	3.2	5.2	3.1
15	3.4	7.4	3.3
20	3.4	4.5	3.5
25	3.9	7.4	3.7

のが望ましいと思われる。ちなみに ^{60}Co , $^{115\text{m}}\text{Cd}$ の決定臓器はともに消化管である。

3-4 食物連鎖過程への適用の理論的展開

前章で述べたように、実際の水圏生態系においては複雑な食物網が構成されており、栄養レベルの経緯に従って、放射性物質は生態学的移行をする。本章においては、水産生物が環境水からのみ放射性核種を摂取するような場合においても、種々の環境要因、生物学的要因によって水産生物の放射能濃度は広く分布することを述べてきた。環境水からの直接汚染に加えて、食物連鎖を通しての間接汚染による栄養レベルの上位にある水産生物の放射能の濃度はより一層複雑になることが予想される。実際の水圏環境における放射能汚染のモニタリング生物として捕食生物を用いる場合、また可食生物の放射能レベルの観測を行う場合、その放射能の計測値を評価しようとする場合には、予めどの程度の放射能の濃度分布をするかを知らしておくことが望ましいと考える。ここでは、本章 3-1 で論じた環境水からのみ放射能を摂取する場合の濃縮過程の確率モデルの考え方を、食物連鎖を通しての放射性物質の移行に適用した場合の理論的展開を行う。

まず始めに、第 5 章 3-1 で述べた最も簡単で基本的な二段階の栄養レベルから構成される食物連鎖過程について論じる。

Fig. 6-20 に示されているように、餌料生物および捕食生物の放射能濃度を確率変数でそれぞれ $x_1(t)$, $x_2(t)$ と表わす。ある時刻 t において餌料生物の放射能濃縮段階が状態 i に存在し、同様に捕食生物の濃縮段階が状態 j に存在する時、その同時確率を次のように表わす。

$$P_{ij}(t) = \Pr\{x_1(t)=i, x_2(t)=j\} \quad (6-81)$$

この時、状態 i および j の変化する確率を考える時、次の仮定を設ける。

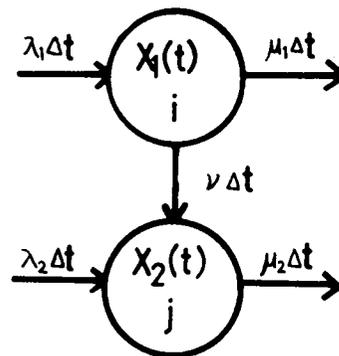


Fig. 6-20 Stochastic Model of Two Trophic Food Chain

時刻 t で 2 つの栄養レベルから成る食物連鎖を構成する系が状態 (i, j) に存在する時、すなわち、 $x_1(t) = i$, $x_2(t) = j$ である時、微小時間 $(t, t + \Delta t)$ の間に、状態 (i, j) の変化する確率が次のように表わせるとする。

- (i) 状態 $(i+1, j)$ に移る確率 ; $\lambda_1 \Delta t + o(\Delta t)$
- (ii) 状態 $(i-1, j)$ に移る確率 ; $i\mu_1 \Delta t + o(\Delta t)$ ($i \neq 0$)
- (iii) 状態 $(i, j+1)$ に移る確率 ; $(\lambda_2 + i\nu) \Delta t + o(\Delta t)$
- (iv) 状態 $(i, j-1)$ に移る確率 ; $j\mu_2 \Delta t + o(\Delta t)$, ($j \neq 0$)
- (v) 隣り以外の状態に移る確率 ; $o(\Delta t)$
- (vi) 変化が起こらずその状態に留まる確率

$$1 - \{\lambda_1 + \lambda_2 + i(\mu_1 + \nu) + j\mu_2\} \Delta t + o(\Delta t)$$

上記の仮定から時刻 $(t + \Delta t)$ において、系が状態 (i, j) に存在する同時確率 $P_{ij}(t + \Delta t)$ は直ちに次のように導かれる。

$$\begin{aligned} P_{ij}(t + \Delta t) = & [1 - \{\lambda_1 + \lambda_2 + i(\mu_1 + \nu) + j\mu_2\} \Delta t] P_{ij}(t) + \lambda_1 \Delta t P_{i-1j}(t) \\ & + (i+1)\mu_1 \Delta t P_{i+1j}(t) + (\lambda_2 + i\nu) \Delta t P_{ij-1}(t) + (j+1)\mu_2 \Delta t P_{ij+1}(t) \end{aligned} \quad (6-82)$$

$P_{-1j}(t)$, P_{i-1} を共に 0 とおくと、次の確率に関する微分方程式が得られる。

$$\frac{dP_{00}(t)}{dt} = \mu_1 P_{10}(t) + \mu_2 P_{01}(t) - (\lambda_1 + \lambda_2) P_{00}(t) \quad (6-83)$$

$$\begin{aligned} \frac{dP_{0j}(t)}{dt} = & \mu_1 P_{1j}(t) + (j+1)\mu_2 P_{0j+1}(t) + \lambda_2 P_{0j-1}(t) \\ & - (\lambda_1 + \lambda_2 + j\mu_2) P_{0j}(t) \quad (j \neq 0) \end{aligned} \quad (6-84)$$

$$\begin{aligned} \frac{dP_{i0}(t)}{dt} = & (i+1)\mu_1 P_{i+10}(t) + \mu_2 P_{i1}(t) + \lambda_1 P_{i-10}(t) \\ & - \{\lambda_1 + \lambda_2 + i(\mu_1 + \nu)\} P_{i0}(t) \quad (i \neq 0) \end{aligned} \quad (6-85)$$

$$\begin{aligned} \frac{dP_{ij}(t)}{dt} &= (i+1)\mu_1 P_{i+1j}(t) + (j+1)\mu_2 P_{ij+1}(t) + \lambda_1 P_{i-1j}(t) \\ &\quad + (\lambda_2 + \nu)P_{ij-1}(t) - \{\lambda_1 + \lambda_2 + i(\mu_1 + \nu) + j\mu_2\}P_{ij}(t) \end{aligned} \quad (6-86)$$

初期条件は次式で表わす。

$$P_{ij}(t) = \delta_{\ell, m} \quad (6-87)$$

$$\left(\begin{array}{l} \ell = i, \quad m = j \quad \text{のとき} \quad \delta_{\ell, m} = 1 \\ \ell \neq i, \quad \text{または} \quad m \neq j \quad \text{のとき} \quad \delta_{\ell, m} = 0 \end{array} \right)$$

ここで、同時確率 $P_{ij}(t)$ の母関数

$$F(r, s, t) = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} P_{ij}(t) r^i s^j \quad (6-88)$$

を考えて、

$$\frac{\partial F}{\partial r} = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} i r^{i-1} s^j P_{ij}(t) \quad (6-89)$$

$$\frac{\partial F}{\partial t} = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{\partial P_{ij}(t)}{\partial t} r^i s^j \quad (6-90)$$

$$\frac{\partial F}{\partial s} = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} j r^i s^{j-1} P_{ij}(t) \quad (6-91)$$

これから次の偏微分方程式が導びかれる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial F}{\partial t} + \{\mu_1(r-1) - \nu r(s-1)\} \frac{\partial F}{\partial r} + \mu_2(s-1) \frac{\partial F}{\partial s} \\ = \{\lambda_1(r-1) + \lambda_2(s-1)\} F \end{aligned} \quad (6-92)$$

(6-92)式が解析的に解くことができる場合には、前と同様にして容易に状態 (i, j) の同時確率を求めることができるが、(6-92)式の解析解を得ることは無理なので、

(6-86)式の確率に関する微分方程式から次のモーメントに関する微分方程式を導く。
 $x_1(t)$ の平均濃縮段階と $\langle i \rangle$, 自乗平均値と $\langle i^2 \rangle$, $x_2(t)$ の平均濃縮段階と $\langle j \rangle$
 自乗平均値と $\langle j^2 \rangle$ と表わすと,

$$\langle i \rangle = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} i P_{ij}(t) \quad (6-93)$$

$$\langle j \rangle = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} j P_{ij}(t) \quad (6-94)$$

$$\frac{d\langle i \rangle}{dt} = \frac{d\{\sum \sum i P_{ij}(t)\}}{dt} = \sum \sum i \frac{dP_{ij}(t)}{dt} \quad (6-95)$$

(6-86) 式より,

$$\begin{aligned} i \frac{dP_{ij}(t)}{dt} = & i(i+1)\mu_1 P_{ij}(t) + i(j+1)\mu_2 P_{ij+1}(t) + i\lambda_1 P_{i-1j}(t) \\ & + i(\lambda_2 + i\nu) P_{ij-1}(t) - i(\lambda_1 + \lambda_2 + i(\mu_1 + \nu) + j\mu_2) P_{ij}(t) \end{aligned} \quad (6-96)$$

したがって, (6-95) 式は,

$$\frac{d\langle i \rangle}{dt} = \lambda_1 \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} P_{ij}(t) - \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} i\mu_1 P_{ij}(t), \quad (6-97)$$

ここで, $\sum \sum P_{ij}(t) = 1$ であるから,

$$\frac{d\langle i \rangle}{dt} = \lambda_1 - \mu_1 \langle i \rangle \quad (6-98)$$

また,

$$\langle i^2 \rangle = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} i^2 P_{ij}(t) \quad (6-99a)$$

$$\frac{d\langle i^2 \rangle}{dt} = \frac{d\{\sum \sum i^2 P_{ij}(t)\}}{dt} = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} i^2 \frac{dP_{ij}(t)}{dt} \quad (6-99b)$$

(6-86) 式より,

$$i^2 \frac{dP_{ij}(t)}{dt} = i^2(i+1)\mu_1 P_{i+1j}(t) + i^2(j+1)\mu_2 P_{ij+1}(t) + i^2\lambda_1 P_{i-1j}(t) \\ + i^2(\lambda_2 + i\nu)P_{ij-1}(t) - i^2\{\lambda_1 + \lambda_2 + i(\mu_1 + \nu) + j\mu_2\}P_{ij}(t) \quad (6-100)$$

したがって, (6-99) 式は,

$$\frac{d\langle i^2 \rangle}{dt} = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \lambda_1 P_{ij}(t) + \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} 2\lambda_1 i P_{ij}(t) \\ + \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \mu_1 i P_{ij}(t) - \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} 2\mu_1 i^2 P_{ij}(t) \quad (6-101) \\ = \lambda_1 + (2\lambda_1 + \mu_1)\langle i \rangle - 2\mu_1 \langle i^2 \rangle$$

と表わせる。以下同様にして, モーメントに関する微分方程式は次のように表わせる。

$$\frac{d\langle j \rangle}{dt} = \lambda_2 + \nu \langle i \rangle - \mu_2 \langle j \rangle \quad (6-102)$$

$$\frac{d\langle j^2 \rangle}{dt} = \lambda_2 + \nu + (2\lambda_2 + \mu_2)\langle j \rangle + 2\nu \langle ij \rangle - 2\mu_2 \langle j^2 \rangle \quad (6-103)$$

$$\frac{d\langle ij \rangle}{dt} = \lambda_2 \langle i \rangle + \lambda_1 \langle j \rangle + \nu \langle i^2 \rangle - (\mu_1 + \mu_2)\langle ij \rangle \quad (6-104)$$

ここで, i と j の分散および共分散の式

$$\sigma_i^2 = \langle i^2 \rangle - \langle i \rangle^2 \quad (6-105)$$

$$\sigma_j^2 = \langle j^2 \rangle - \langle j \rangle^2 \quad (6-106)$$

$$\gamma_{ij} = \langle ij \rangle - \langle i \rangle \langle j \rangle \quad (6-107)$$

代入すると次式が得られる。

$$\frac{d\sigma_i^2}{dt} = \lambda_1 + \mu_1 \langle i \rangle - 2\mu_1 \sigma_i^2 \quad (6-108)$$

$$\frac{d\sigma_j^2}{dt} = \lambda_2 + \nu + \mu_2 \langle j \rangle + 2\nu\gamma_{ij} - 2\mu_2 \sigma_j^2 \quad (6-109)$$

$$\frac{d\gamma_{ij}}{dt} = \nu\sigma_i^2 - (\mu_1 + \mu_2)\gamma_{ij} \quad (6-110)$$

$$\langle i \rangle = \frac{\lambda_1}{\mu_1} (1 - e^{-\mu_1 t}) \quad (6-111)$$

$$\langle j \rangle = \frac{\lambda_2}{\mu_2} (1 - e^{-\mu_2 t}) + \lambda_1 \nu \left\{ \frac{1}{\mu_1 \mu_2} + \frac{e^{-\mu_1 t}}{\mu_1 (\mu_1 - \mu_2)} + \frac{e^{-\mu_2 t}}{\mu_2 (\mu_2 - \mu_1)} \right\} \quad (6-112)$$

$$\langle \sigma_i^2 \rangle = \frac{\lambda_1}{\mu_1} (1 - e^{-\mu_1 t}) \quad (6-113)$$

$$\langle \sigma_j^2 \rangle = \frac{1}{2\mu_1 \mu_2 (\mu_1 + \mu_2)} (\lambda_1 \mu_1 \nu + \lambda_1 \mu_2 \nu + 2\lambda_1 \nu^2 + 2\lambda_2 \mu_1^2 + 2\lambda_2 \mu_1 \mu_2$$

$$+ \mu_1^2 \nu + \mu_1 \mu_2 \nu) + \frac{\lambda_1 \nu}{\mu_1 \mu_2 (\mu_1 - \mu_2) (\mu_1 - 2\mu_2)} (2\mu_1 \nu - \mu_2^2 - 2\mu_2 \nu) e^{-\mu_1 t}$$

$$- \frac{\lambda_1 \nu + \lambda_2 \mu_1 - \lambda_2 \mu_2}{\mu_2 (\mu_1 - \mu_2)} e^{-\mu_2 t} - \frac{2\lambda_1 \nu^2}{\mu_2 (\mu_1 + \mu_2) (\mu_1 - \mu_2)} e^{-(\mu_1 + \mu_2) t}$$

$$+ \frac{v}{2\mu_2(\mu_1 - \mu_2)(\mu_1 - 2\mu_2)} (\lambda_1\mu_1 - \lambda_1\mu_2 - 2\lambda_1v - \mu_1^2 + 3\mu_1\mu_2 - 2\mu_2^2) e^{-2\mu_2 t} \quad (6-114)$$

$$\langle \gamma_{ij} \rangle = \frac{v\lambda_1}{\mu_1} \left(\frac{1}{\mu_1 + \mu_2} + \frac{1}{\mu_2} \right) - \frac{v\lambda_1}{\mu_1} e^{-\mu_1 t} \left(\frac{1}{\mu_2} + \frac{e^{-\mu_2 t}}{\mu_1 + \mu_2} \right) \quad (6-115)$$

環境水の放射能濃度が一定の場合、パラメーター μ_1 , μ_2 , λ_1 , λ_2 , v の代りに、第5章および(6-52), (6-53)式で定義されたように、 $\lambda_1 = k_{01}C_0/h_1$, $\mu_1 = k_{10}$, $\lambda_2 = k_{02}C_0/h_2$, $\mu_2 = k_{20}$, $v = k_{12}x_1(t)/h_2$ とおくと前章で述べたコンパートメントモデルで得られるパラメーターの値を使って、状態 i と j の平均値、分散、共分散を求めることができる。又、餌料生物および捕食生物の放射能濃縮段階の平均値 $\langle i \rangle$, $\langle j \rangle$, は前節と同様に、決定論モデルにおける一点推定値と等しいことがわかる。しかし、このような考え方では(6-81)式で定義された餌料生物、捕食生物のそれぞれの濃縮段階 (i, j) の同時確率分布を得ることはできず、また食物連鎖の構成要素が増加した複雑な系では、計算が極めて繁雑で、分散さえ求めることが困難で、一般的に適用は不可能になる。そこで問題を単純化するために、状態 (i, j) の同時確率を考えずに、餌料生物および捕食生物それぞれの状態の存在確率を単独に、独立的に考えることにする。この場合、餌料生物に対しては、本章 3-1 において展開した理論と全く同一となる。捕食生物に対しては、その状態 j の変化の増加確率は、環境水からの直接摂取による λ_2 と、放射能汚染を受けた餌の捕食による増加確率 v との和で表わされるとする。この時、捕食生物は餌料生物の放射能濃度の平均値を摂取するものと考えると(6-52)式と同様に、 v は次式で表わされる。

$$v = k_{12} \sum_{i=0}^{\infty} i h_1 P_i(t) \quad (6-116)$$

ここで k_{12} は(5-11)式で定義された摂餌速度係数、 i は餌料生物の濃縮段階、 h_1 は餌料生物の分割巾、 $P_i(t)$ は餌料生物の濃縮段階 i の存在確率である。したがって全体としての λ_2 は、3-1 で述べたように、指数関数モデルのパラメーターを使って表わ

すとは、

$$\lambda_j = \frac{1}{h_2} \{k_{02}x_0(t) + k_{12} \sum_{i=0}^{\infty} ih_1 P_i(t)\} \quad (6-117)$$

ここで、 h_2 は捕食動物に対する分割力、 k_{02} は捕食生物の摂取速度係数、 $x_0(t)$ は環境水の放射能濃度を表わしている。また定義から明らかのように

$$\sum_{i=0}^{\infty} iP_i(t) = \frac{x_1(t)}{h_1} \quad (6-118)$$

であるから、結局濃縮段階の増加確率 λ_2 は次のように表わすことができる。

$$\lambda_j = \frac{1}{h_2} \{k_{02}x_0(t) + k_{12}x_1(t)\} \quad (6-119)$$

また、捕食動物の減少確率 μ_j は体内濃度に比例すると考えて、3-1 で述べたのと同様にして、

$$\mu_j = k_{20} \cdot j \quad (6-120)$$

と表わす。捕食生物に対して、 λ_j 、 μ_j はそれぞれ(6-118)、(6-119)で定義したように与えると、理論的取り扱いの前に展開したと同様にして、以下確率母関数 $F(s, t)$ および状態 j の存在確率 $P_j(t)$ は次のように表わせる。

(i) $x_0(t) = C_0 = \text{constant}$ の場合

$$F(s, t) = \exp(s-1)m(t) \quad (6-121)$$

$$P_j(t) = \frac{m(t)^j}{j!} \exp\{-m(t)\} \quad (6-122)$$

$$m(t) = \frac{k_{02}C_0}{k_{20}h} (1 - e^{-k_{20}t}) + \frac{k_{01}k_{12}C_0}{k_{10}k_{20}h_2} \left(1 + \frac{k_{20}e^{-k_{10}t}}{k_{10} - k_{20}} - \frac{k_{10}e^{-k_{20}t}}{k_{10} - k_{20}} \right) \quad (6-123)$$

(ii) $x_0(t) = C_0 e^{-at}$ の場合

$$F(s, t) = \exp\{(s-1)m(t)\} \quad (6-124)$$

$$P_j(t) = \frac{m(t)^j}{j!} \exp\{-m(t)\} \quad (6-125)$$

$$m(t) = \frac{k_{02}C_0}{(k_{20}-a)h_2} (e^{-at} - e^{-k_{20}t}) + \frac{k_{01}k_{12}C_0}{(k_{10}-a)h_2} \left(\frac{e^{-k_{20}t} - e^{-at}}{k_{20}-a} + \frac{e^{-k_{20}t} - e^{-k_{10}t}}{k_{10}-k_{20}} \right) \quad (6-126)$$

これらの式から明らかなる様に、環境水濃度の関数形によらず、確率母関数は $F(s, t) = \exp\{(s-1)m(t)\}$ で表われ、この式から導びかれる捕食生物の放射能の濃度分布はポアソン分布で表わせる。本章 3-1 の初めに述べた 4 つの仮定はもともと水産生物の濃縮段階の変化確率に対して設けられたものであるが、これらの仮定はポアソン過程を定義するものであり、この確率過程から導びかれる確率分布はいずれもポアソン分布に帰着する。従って、前章の第 5 節で述べたような食物網を構成するそれぞれの栄養段階に属する水産生物に対しても、その濃縮段階の増加確率を (6-118) 式で定義した様に、

$$\lambda_j = \frac{1}{h_j} \{ k_{0j}x_0(t) + \sum_{i=1}^{j-1} k_{ij}x_i(t) \} \quad (6-127)$$

と定義することによって、その濃度分布をポアソン分布として求めることができる。またこの分布の母数 $m(t)$ は、前章で展開したコンパートメントモデルから得られる捕食生物の放射能濃度の点推定値 $x_j(t)$ を分割巾 h_j で割ったものに等しい。

この様に、食物連鎖を通しての放射能の濃縮過程に、確率モデルを適用した場合 (6-126) 式に示した λ_j の概念を導入することによって、複雑な食物網を構成する系に対しても、各構成要素における生物の放射能濃度分布を計算によって容易に予測することが可能

である。

第4節 要約

本章では、水産生物による放射性物質の濃縮過程において、種々の環境要因や生物自身の生理学的要因に起因する水産生物の放射能濃度分布の時系列変化と確率過程でモデル化することとを試みた。

第1節では、放射性物質の濃縮過程を単純マルコフ過程で記述した。実験に用いた放射性核種は ^{137}Cs 、 $^{115\text{m}}\text{Cd}$ 、 ^{60}Co の3核種である。元素によっては、マルコフ過程の推移確率行列と吸収状態を有する三角行列で近似することにより十分に濃度分布の時間的変化を表し得ることがわかった。推移確率行列と三角行列で表わすことの利点は、計算によって、確率変数の状態が、各濃縮段階に止まっている平均日数、状態が吸収状態に達するまでに要する平均日数を求め得ることである。しかし、元素によっては、特に高い濃縮性を示すものに対しては、三角行列では十分に現象を説明し得ないことがある。またこの場合には、状態の数を増やすことが必要で、状態の数に応じて推移確率 P_{ij} の数も増加し、これを決定するためには、数多くの試料生物と実験とが必要である。この方法は、簡単な計算によって容易に水産生物の放射能濃度の分布を計算し得るという利点があるが、環境水の放射能濃度が変化するような場合には一般的な適用ができない。そこで、第3節では、上述のような欠点を補う方法について論じている。すなわち、放射性核種の濃縮過程におけるエルゴード性を仮定して、マルコフ過程の一つである出生死滅過程の適用により、濃縮過程の一般的把握を試みた。この方法では、環境水中の放射能濃度が変化する場合にも、その濃度変化をある関数形で近似できる限り、適用することが可能で、また食物連鎖を通して放射性物質が濃縮されるような場合、食物連鎖を構成する栄養レベルの上位にある生物に対しても、その放射能の濃縮分布を時間の関数として表現できる。これによると、水産生物の放射能の濃度分布はポアソン分布になり、分布の母数は、濃縮過程をコンパートメントモデルに基づく指数関数で表わした一点推定値と等しいことがわかった。

本章で述べたように、水産生物の放射性物質による汚染のレベルと濃度分布の変化として動力学的に把握することは、水産生物の放射能汚染からの人間の放射線被曝を評価する際、被曝特性を知る上で重要であると考えられる。

参考文献

- (1) 松山義夫, (1964) "水産物の放射能汚染" 原子力工業,
- (2) G.G.Polikarpov, (1969) Radioecology of Aquatic Organisms. (Translated from the Russian), Reinhold, New York
- (3) V.T.Bowen, J.S.Olson, C.L.Osterberg and J.Ravera, (1971) Ecological Interactions of Marine Radioactivity. in Radioactivity in the Marine Environment, National Academy of Science, pp.200-222
- (4) S.M.Jinks and M.Eisenbud, (1972) Concentration Factors in the Aquatic Environment. Radiation Data and Reports, pp.243-247
- (5) 岩井重久, 井上頼輝, 青山 勲, 赤木文行, (1970), "淡水魚による ^{137}Cs の濃縮過程—その確率論的考察—", 日本保健物理協議会, 第5回研究発表会, 要旨集, 2月, pp.23
- (6) 青山 勲, 吉川 進, 井上頼輝, 岩井重久, (1970) "放射性物質の水産生物への濃縮過程—その確率論的考察—", 保健物理, Vol.5 pp.135-140
- (7) 岩井重久, 井上頼輝, 青山 勲, 吉川 進, (1970) "重金属の水産生物への濃縮過程—その確率論的考察—", 土木学会第25回年次学術講演会概要集第2部, 11月, pp.515-516
- (8) 北川敏男, (1967) "マルコフ過程" 共立出版株式会社
- (9) 魚返 正, (1968) "確率論" 朝倉書店
- (10) 篠原尚文, (1967) "メダカの飼育と発生の観察", 科学の実験編集部編, 生物デモ実験の新しい進め方 II, 共立出版株式会社 pp.67-72
- (11) J.P.Baptist and C.W.Lewis, Transfer of ^{65}Zn and ^{51}Cr through an Estuarine Food Chain. USAEC Report CONF-670-103,
- (12) L.G.Williams and Q.Pickering, (1961) Direct and Food Chain Uptake of Cesium-137 and Strontium-85 in Bluegill Fingerings. Ecology Vol.42 (1), pp.205-206

- (13) S.F.king, (1964) Uptake and Transfer of Cesium-137 by *Chlamydomonas*, *Daphnia*, and *Bluegill Fingerings* . Ecology, Vol.45 (4) pp.852-859
- (14) 井上頼輝, 青山 勲, (1972) "水圏生態系における放射能汚染評価に関する考察", 日本放射線影響学会第15回大会講演要旨集, pp.1A14
- (15) I.Aoyama and Y.Inoue,(1973) Estimation and Evaluation of Radioactive Contamination through a Food Web in an Aquatic Ecosystem (1) — An Application of the Compartment Model to Transfer of Radioactive Substances through a Food Chain — . Journal of Radiation Research, Vol.14 (4), pp.375-381
- (16) 井上頼輝, 青山 勲, (1971) "水産生物による放射性物質の濃縮過程—その確率論的考察—", 土木学会第26回年次学術講演会概要集, 第2部, 10月 pp.641-642
- (17) 井上頼輝, 青山 勲, 山本正史, (1972) "放射性物質の水産生物への濃縮過程に関する確率論的検討", 日本保健物理協義会第7回研究発表会, 要旨集, pp.36
- (18) 井上頼輝, 青山 勲, 山本正史, (1972) "水産生物による放射性核種の濃縮過程に関する確率論的研究" 土木学会関西支部年次学術講演会講演概要集, 6月 II, pp.231-232
- (19) I.Aoyama and Y.Inoue, (1974) A Stochastic Study on the Concentration Process of Radioactive Substances to Aquatic Organisms. Health Physics, Vol.2 (26), pp.191-198
- (20) I Aoyama, M.Yamamoto and Y.Inoue, (1974) A Stochastic Model for the Concentration Process of Radioactive Substances. The 5th International Congress of Radiation Research, Seattle, Wash. U.S.A.
- (21) M.S.Bartlett, (1966) An Introduction to Stochastic Process. Cambridge University Press, (邦訳, 確率過程入門津村善郎他訳, 東京大学

出版会)

- (22) H.A.Sturges, (1926) The Choice of Class Interval. Jour. Amer. Stat. Assoc. Vol.21, pp.65-66
- (23) 鈴木栄一, (1970) "気象統計学" 地人書館
- (24) 北川敏男, (1971) "推測統計学 I" 岩波全書

第7章 水圏における放射能汚染の モニタリングに関する研究

第1節 概 説

種々の原子力施設で生成される放射性物質の環境への放出処分に関して、モニタリング行為は廃棄物の管理制御システムの全体にとって欠くことのできない重要な部分である。環境放射能のモニタリングの目的や実際の方法は各国それぞれの状況に応じて異なっており、又歴史的にも変化している(1~8)。環境モニタリング・プログラムの大きな目標は、ICRPのPub.7「放射性物質の取扱いに関する環境モニタリングの諸原則」に示されている原則の点においてほとんども大体一致している。それによると、目標は次の3点に要約されている(9)。

- (a) 人の環境中に存在する放射性物質または放射線による、人の現実の被曝あるいは潜在的被曝の算定、またはこのような被曝として考へうる上限値の推定。
- (b) 時には被曝の算定に関連し、また時には他の目標に関連する科学的調査
- (c) 対公衆関係の改善

環境放射能のモニタリングについての目標での一致はあっても、その解釈や具体的な内容等は既に述べたように各国まちまちであり、わが国においてもさまざまな見解があり、十分なコンセンサスを得るに至っていない(10)。しかし、方法のちがいによらずモニタリングの究極の目的は施設周辺の公衆の健康と安全を守ることであり、公衆の被曝線量が把握されることが重要であろう。モニタリングシステムとしては本節の始めに述べたように、環境の管理制御を行うためのフィードバックループを有していることが不可欠の要素があるが、大体次の手順でモニタリングプログラムが作成される。

モニタリング場所の選定 → サンプルング又は測定器の配置 → 放射能又は放射線の測定 → データの解析・評価

環境に放出された放射性物質の挙動は極めて複雑であり、前述したモニタリングの目標が達成されるためには十分な配慮が必要である。モニタリングプログラムで問題になるのは、(1) モニターの時空間的配置方法 (2) サンプルの数 (3) 測定法 (4) データの解

釈である。これらはモニタリングプログラムを有効に実施し、前章で述べた不確定な現象を正確に把握する上に重要である。不確定な要因の介在する現象では、データのバラツキも大きく、そのデータの解釈をめぐって、そのあいまいさを定量的に評価することは重要な課題であろう。本章では、上述の点から6章で得られた成果をもとに、水産生物のモニタリングに関して、データのバラツキの評価、統計的に有意な試料数について考察し、更に、原子力船による汚染の放射能汚染のモニタリングを具体例として例示しながら、汚染海水のサンプリング場所(モニターの配置)の問題について論述する。

第2節 水産生物の放射能汚染の情報理論的評価

水産生物による放射性核種の濃縮過程においては、種々の環境要因、あるいは生物自身の生化学的要因のために、その体内の放射能濃度は個体によって必ずしも一定にならないので、影響の評価を行なう場合、濃縮過程を確率過程として把握することが合理的であることを前章で述べた。本節では前章で述べた水産生物による放射能濃縮の確率的表現の不確定性について、情報理論的に評価する方法を述べる。

2-1 理論的考察^(11,12)

2-1-1 不確定性の尺度としてのエントロピー

水産生物の放射能汚染を予測し、影響評価をするのに、第5章で述べたように、現象を決定論的に表現できる場合は、観測値からその値について、例えば、許容濃度との比較において直接に論じることが出来る。しかし、確率的な現象に対しては、生起する事態を完全に予知することは不可能であり、観測によって得られる情報には、いろいろ程度の不確定性、あいまいさが介在している。既に述べたように、前章では、水産生物による放射性核種の濃縮過程をとりあげ、不確定性の介在する現象を確率過程として表現することを試みたのである。

ある確率事象に対して、 n 個の異なる値のみをとる確率変数 X があるとし、

$\Pr(X=x_i) = q_i, i=1, 2, \dots, n$ と表わされる時、このような事象は有限排反完全事象と言われ、次のように表わされる。

$$X = \begin{pmatrix} x_1, x_2, x_3, \dots, x_n \\ q_1, q_2, q_3, \dots, q_n \end{pmatrix} \quad (7-1)$$

第6章、第3節では、各確率変数 x_i に相当するものとして、ある濃度中(分割中)でもつて状態空間 $S(S_1, S_2, \dots)$ を定義している。ある実験結果あるいは実際のフィールドにおける生物モニタリングデータの結果が(7-1)式で表わされた時、このような確率変数 x_i の実現値に対する不確定性の測度を情報理論で用いられるエントロピーで定義することを試みる。

前章の第2節においては、水産生物による放射性核種の濃縮過程を単純マルコフ過程で表現した。このマルコフ過程の確率的な構造は推移確率 P_{ij} と状態確率 Q_i とにより記述される。状態確率の実現値 $Q(q_1, q_2, \dots, q_n)$ が得られた時、状態 $S_1, S_2, \dots, S_i, \dots, S_n$ のうち、どの状態が実現するかを予見する場合の不確定性の測度を表わすエントロピー $H(q_i)$ は次式で与えられる。

$$H(q_i) = - \sum_{i=1}^n q_i \log q_i \quad (7-2)$$

こに対数の底は1より大にとるものとする。対数の底を2にとる時の単位はビット(bit)、10の時はハートレ(hartley)、自然対数の底 e の時はナット(nat)と呼ばれる。例えば、底を2にとった場合 $\log_2 2 = 1$ であるから、2者のうち1つを選択する時のあいまいさが単位になっている。これに対して、10を底にとった場合には、同様にして、 $\log_{10} 10 = 1$ であるから、10個の内から1個を選択する場合に感ずるあいまいさを表現していることとなる。情報理論では、底を2にとることが多い。

次にエントロピーの情報論的な意味について述べる。ある排反完全事象系 X に対して、 X は確率変数で、 $\Pr(X=x_i) = q_i$ であるから、 $X=x_i$ という事象に付随する自己情報量 I_i は

$$I_i = - \log \Pr(X=x_i) = - \log q_i \quad (7-3)$$

と表わされる。言い換えると、事象 x_i が起こったことが解かった時、 I_i の情報を受けとったということである。このような自己情報量の期待値は、

$$H(X) = \bar{I} = E(I_i) = \sum_{i=1}^n q_i I_i = - \sum_{i=1}^n q_i \log q_i \quad (7-4)$$

となり、結局、ある事象に対する不確定性の測定を表わすエントロピー H とは、自己情報量の期待値を表わしていることになる。

今ある事象系において、確率変数 X は状態 S_1 と S_2 の2つの値だけをとるものとし、状態 S_1 とする確率を p 、状態 S_2 とする確率を $q=1-p$ とすると、この時のエントロピー関数は

$$H(p) = -p \log p - q \log q = -p \log p - (1-p) \log (1-p) \quad (7-5)$$

となる。上式で、 $p=0$ または 1 の時には $H(p)$ は求まらないが、この場合には $H(p)=0$ と定義しておく。 $H(p)$ のエントロピー関数を Fig. 7-1 に示す。この図から明らかなように、 $p=0.5$ のときエントロピーは最大になる。一般にエントロピーの値は等確率の場合に、最大になることが数学的にも容易に証明される。ある事象の実現に対して、何らの情報もない場合に、すなわち、情報がゼロの場合に、

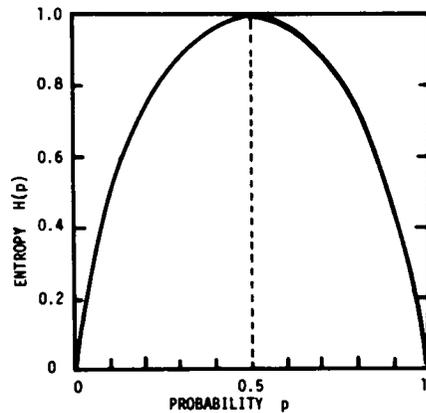


Fig. 7-1 Entropy Function

各事象に対する生起確率を等確率におかざるを得ないということであり、何らかの情報が得られれば、生起確率は等確率でなくなって、それだけ実現値に対するあいまいさは減少するものと考えて良い。(7-5)式で $p=0$ または 1 である時には、状態 S_2 または状態 S_1 の存在確率がそれぞれ 1 ということ、エントロピー $H(p)$ はともに 0 になり、状態はどちらかに確定しているのであるから、あいまいさは存在しないということである。

2-1-2 マルコフ過程とエントロピー

第6章では、水産生物による放射性物質の濃縮過程を単純マルコフ過程で表現した。マルコフ過程では、その情報源としての性質は遷移確率行列が与えられれば完全に定まるものと考えて良い⁽²⁾。マルコフ情報源を取り扱う場合には状態 (State) の概念が重要である。これには情報源がとり得るいくつかの状態があり、この状態間を確率変数が遷移する様子を視覚的に表わすのに情報理論ではシャノン線図 (Shannon Diagram) が使われている。一例として、(6-14)式で表わされる推移確率行列のシャノン線図を Fig.7-2 に示す。

初期の濃縮段階の分布を Q_0 , n 単位時間後の分布を Q_n , 推移確率行列を P で表わすと、

$$\begin{aligned}
 Q_n &= Q_0 \times P^n \\
 &= Q_0 \times \begin{pmatrix} p_{11} & p_{12} & p_{13} & \cdots & p_{1n} \\ p_{21} & p_{22} & p_{23} & \cdots & p_{2n} \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ p_{n1} & p_{n2} & p_{n3} & \cdots & p_{nn} \end{pmatrix} \\
 &= Q_{n-1} \times P = (q_1 \ q_2 \ q_3 \ \cdots \ q_n) \quad (7-6)
 \end{aligned}$$

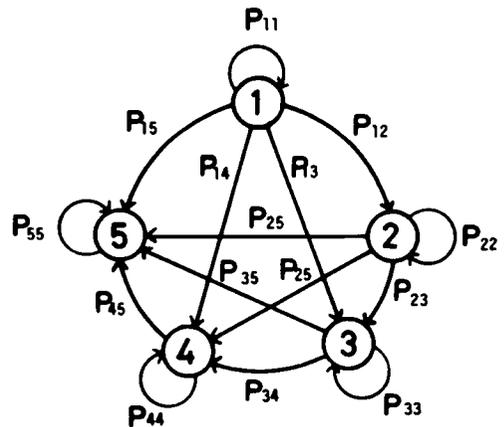


Fig. 7-2 Shannon Diagram with Sink Point

となることは即以前章で述べた。

(7-6)式で表わされるような情報源の状態が i であるとする、状態 j への推移確率は $- \log_2 P_{ij}$ の情報量を持ち、平均情報量は

$$H(i) = - \sum_{j=1}^n p_{ij} \log_2 p_{ij} \quad (\text{bit}) \quad (7-7)$$

である。これを状態 i のエントロピーと名づける。これを各状態での存在確率 (q_1, q_2, \dots, q_n) で平均化したものを、マルコフ情報源のエントロピー H と定義す

る。

$$H = \sum_{i=1}^n q_i H(i) = - \sum_{i=1}^n q_i \sum_{j=1}^n p_{ij} \log_2 p_{ij} \quad (7-8)$$

このエントロピー H はマルコフ過程で表わされるシステム全体の「あいまいさ」を表わす測度と考えられる。

2-2 計算結果および考察

第6章で得られた実験および理論分布の計算値をもとに、各核種に対するエントロピーの計算結果をTables 7-1~6に示す。濃度分布を表わす状態ベクトルのエントロピーは時間の経過と共に増加している。これらの実験は、環境水中の放射能濃度が一定の場合について扱ったもので、このような系のもとにおける水産生物による放射性物質の濃縮過程では、状態ベクトルのエントロピーは増大するという法則性が認められた。それに対し、定常マルコフ過程を仮定した推移確率 P から求められる状態 i およびマルコフ情報源のエントロピーは、そ

Table 7-1 Entropy of Cs-137 Calculated from Markov Process

Entropy of State Vector		
Days	Theoretical	Observed
5	1.54 bit	1.36 bit
10	1.99	1.55
15	1.94	1.83
50	1.77	-

Entropy of State i

i	1	2	3	4	5
$H(i)$	1.26	1.17	0.99	0.61	0 (bit)

Entropy of Markov Information Source

Days	5	10	15	50
H	1.21	1.20	1.08	0.48 (bit)

Table 7-2 Entropy of Cs-137 Calculated from Birth-Death Process

T Days	Theoretical			Observed		
	$H(q)$	S.D	$H(q)/S.D$	$H(q)$	S.D	$H(q)/S.D$
5	2.63 bit	1.70	1.55	2.63 bit	1.99	1.32
10	2.83	2.17	1.30	2.76	1.93	1.43
15	3.23	2.40	1.35	3.08	2.23	1.38

$H(q)$: Entropy
S.D : Standard Deviation

れぞれ、高い状態になる程、また、時間の経過とともに減少している。この理由は、状態空間に上限を設けているため、時間の経過とともに高い状態への推移確率、高い状態での確率が増加するためである。すなわち、時間の経過とともに、濃縮段階は高い状態の平衡状態に移行し、単位時間当りの変動は相対的に小さくなるため、高い状態のあいまいさ、マルコフ情報源のあいまいさは小さくなると解釈される。

Tables 7-2, 4, 6に、出生死滅過程で解析した濃度分布から計算されたエントロピーの値と濃度分布の標準偏差(S,D)の値とを比較して示している。標準偏差も分布の特徴を表わす1つの指標であるが、これは2次モーメントを取るため、平均値との差が大きいデータがいくつかあると、その影響を受けて、標準偏差の値が大きくなることがある。そのため、分布

Table 7-3 Entropy of Co-60 Calculated from Markov Process

Entropy of State Vector					
Days	Theoretical			Observed	
1	1.77	bit		2.11 bit	
9	2.04			1.97	
18	2.15			1.95	
30	2.27			-	

Entropy of State i					
i	1	2	3	4	5
H(i)	1.77	1.73	1.79	1.65	1.14 bit

Entropy of Markov Information Source				
Days	1	9	18	30
H	1.72	1.73	1.69	1.77 bit

Table 7-4 Entropy of Co-60 Calculated from Birth-Death Process

T Days	Theoretical			Observed		
	H(q)	S.D.	H(q)/S.D	H(q)	S.D	H(q)/S.D
3	2.86	1.82	1.57	2.61	1.66	1.57
9	3.18	3.30	0.96	2.74	2.01	1.36
18	3.18	3.30	0.96	3.20	2.36	1.36

Table 7-5 Entropy of Cd-115m Calculated from Markov Process

Entropy of State Vector					
Days	Theoretical			Observed	
2	1.66	bit		1.79 bit	
4	1.93			2.05	
10	2.07			2.03	
14	2.09			1.99	
20	2.13			-	

Entropy of State i					
i	1	2	3	4	5
H(i)	1.66	1.39	1.19	1.05	0.47 bit

Entropy of Markov Information Source					
Days	2	4	10	14	20
H	1.46	1.35	1.21	1.15	1.09 bit

の広がり、時間の経過とともに大きくなっているが、標準偏差は必ずしも広がりに対応がとれていない。それに比べ、エントロピーは、既に述

Table 7-6 Entropy of Cd-115m Calculated from Birth-Death Process

T Days	Theoretical			Observed		
	H(q)	S.D	H(q)/S.D.	H(q)	S.D	H(q)/S.D
2	2.97	1.95	1.52	2.84	2.75	1.04
4	3.15	2.24	1.41	3.00	2.56	1.17
10	3.28	2.45	1.34	3.19	2.28	1.39

べたように、どの核種の場合も、時間とともに増加しており、理論分布から求めたエントロピーと、実験値から求めたエントロピーとは良い一致を示している。エントロピー $H(q)$ と標準偏差 (S.D) との比は大部分は 1.3~1.5 の間に入っており、エントロピーの値は状態変数のあいまいさ (情報量) の尺度とともに、分散の度合も表わしている。最大エントロピーの値は、各濃縮段階の確率が等しい時である。データを 10 段階に分類した時の最大エントロピーの値は

$$H(q) = - \sum_{i=1}^{10} q_i \log_2 q_i = -10 \times \frac{1}{10} \log_2 \frac{1}{10} = 3.32$$

となる。放射能濃度がほぼ平衡値に達したと思われる時のエントロピーは最大エントロピーにかなり近い値になっている。

ここで定義した濃度分布のあいまいさの尺度としてのエントロピーなる概念は、次の 2 つの意義を持っている。1 つは実在の系そのものに附随した物理量ではなくて、仮想的にわれわれが頭の中で構築したアンサンブルに対して定義された量で、われわれのもつ知識の尺度という意義である。他の 1 つは、水産生物による放射性物質の濃縮過程という実在の系の時間的发展に対して、エントロピーの増大という 1 つの法則性を表現している点である。

第3節 モニタリングのためのサンプリングに関する考察

3-1 はじめに

原子力施設から環境中に放出された放射性物質のモニタリングの一環として行われる

環境試料のサンプリングは、人間の潜在的放射線被曝量を推定する上に重要である。特にわが国では、原子力発電所が沿岸に立地されているので、海洋と水産生物中の放射能検査は常時行われていなければならない。環境試料の放射能測定から線量評価を行う場合、分析法による測定精度の問題と、サンプリングした試料がどの程度環境試料としての代表性を有しているかという2つの問題がある。特に水産生物をモニターとして使用する場合、前章で述べたように、水産生物の個体差があり、同一種の生物であっても、放射能の濃縮度は広い範囲に分布するものと思われるので、十分統計的に有意な試料を採取することが要求される。試料数については、松山⁽¹⁰⁾が、1種類について、100点(最感)ぐらいが良いと述べているが、これ以外に、科学的な根拠をもって、モニタリングに必要な試料数についてはほとんど論じられていない。そこで本節では、統計的検定論からこの問題について論じる。

3-2 試料数の決定

水産生物中の放射能濃度分布がポアソン分布で近似されることは前章で述べた。このポアソン分布の特性は分布の平均値だけで決定されるので、ある時刻における水産生物をモニタリングのために採取する時の必要数は、統計的に有意な平均値が得られるように定めれば良いと考える。ある分布を有する観測値から統計的に有意な平均値が得られるような試料数を考えることは、すなわち、平均値の統計的検定の問題で、局所推測論の問題⁽¹¹⁾として考察する。今、帰無仮説を H_0 、対立仮説を H_1 、棄却域を ω で表わす。

$$Pr\{X \in \omega | H_0\} \leq \alpha \quad (7-9)$$

$$Pr\{X \in \omega | H_1\} \geq 1 - \beta \quad (7-10)$$

上の2式は検定感度に関する条件で、検定力関数と呼ばれ、 H_0 と H_1 が近い程、又 α 、 β が小さい程、試料数 n は大きくなる。

以下の議論では、一般的仮定として、母分散 σ^2 が正規母集団を前提とし、検定すべき当面の仮説 H_0 として、未知母平均 μ の値が μ_0 であるとする。ポアソン分布の平

均値が大きくなると正規分布で近似できるので、上の前提は妥当であると考えられる。

環境中の水産生物の放射能濃度(母集団)の母平均 μ も母分散 σ^2 も共に未知の場合、母平均だけに関して、複合仮説 $H_0: \mu = \mu_0$ を検定するには t -検定を用いるのが常道である。ここに \bar{x} を大きさ n の標本から得られた標本平均として、母分散 σ^2 の不偏推定として $\nu U_V^2 / \sigma^2$ が自由度 ν のカイ=集分布に従うような \bar{x} と独立な統計量 U_V^2 があるとき、統計量 t を

$$t = \frac{\sqrt{n}(\bar{x} - \mu_0)}{U_V} \quad , \quad (\nu = n-1) \quad (7-11)$$

$$U_V^2 = \frac{1}{n-1} \cdot \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2$$

と置く。

帰無仮説を $H_0: \mu = \mu_0$ と置き、対立仮説を $H_1: \mu = \mu_1 = \mu_0 + |\delta| U_V$ と置く。この時、(1) $|t| > t_V(\alpha)$ ならば H_0 を棄却、(2) $|t| \leq t_V(\alpha)$ ならば H_0 を採択する。
 ・ 検定力関数は

$$1 - \beta = \Pr\{|t| > t_V(\alpha); H_1\} = 1 - \int_{-t_V(\alpha)}^{t_V(\alpha)} f_V(t; \sqrt{n}|\delta|) dt \quad (7-12)$$

(| δ | > 0)

となり、片側検定の感度($\mu_0, \alpha; \mu_1, \beta$)を与えて、上の式を満足する試料数 n を求めると⁽¹⁵⁾、

$$n \geq \left(\frac{U_V}{\mu_1 - \mu_0} \right)^2 \{n_V(\beta; \alpha)\}^2 = \left(\frac{U_V}{\mu_1 - \mu_0} \right)^2 \frac{(K_\alpha + K_{2\beta})^2}{1 - C(\nu)^2 F_\infty^1(\alpha)} \quad (7-13)$$

ここに、 $n_V(\beta; \alpha)$ は次の条件をみたす δ として定義される。

$$(1) \Pr\{|t(\nu; 0)| > t_V(\alpha)\} = \alpha, \quad (2) \Pr\{|t(\nu; \delta)| < t_V(\alpha)\} = \beta$$

$K_\alpha, K_{2\beta}$ は α, β を決めると統計数値表から得られる。 F_∞^1 は自由度 $(1, \infty)$ のF分布表から得られる。又 $C(\nu)$ は次の式から計算すればよい。

$$c(v) = b(v)/a(v), \quad b(v) = \sqrt{1-a(v)^2} \quad (7-14)$$

$$a(v) = \frac{\Gamma(\frac{v+1}{2})}{\sqrt{(\frac{v}{2})\Gamma(\frac{v}{2})}}$$

3-3 計算結果

(7-13)式から試料数 n を求めるためには、 $U_v, \mu_1, \mu_0, \alpha, \beta$ の値を決めることが必要である。対立仮説 H_1 で $\mu_1 = \mu_0 + |\delta| U_v$ とおいているので、これを (7-13) 式に代入すると、

$$n \geq \left(\frac{1}{|\delta|}\right)^2 \frac{(K_\alpha + K_{2\beta})^2}{1 - c(v)^2 F_\infty^2(\alpha)} \quad (7-15)$$

となる。第1種および第2種の過誤 α, β をどの様にして決めるかは、それぞれの検定の目的に応じて決めてやれば良いが、いずれにせよ合理的に決定する方法はない。第1種の過誤、すなわち、仮説が真であるにもかかわらず、これを偽りであるとして、棄却する過誤はなるべく小さい方が良く、また第2種の過誤、すなわち、帰無仮説が偽りであるにもかかわらず、これを棄却しない過誤は、第1種の過誤ほど小さくともなくても良いと考えられる。そこで、経験的によく用いられている α, β の値として、 $\alpha=0.01, 0.05, \beta=0.1, 0.2$ とおいた場合に

Table 7-7 Relation Between Sample Numbers and Errors of the First and the Second Kind

α	β	$ \delta $	n
0.01	0.1	0.5	63
		1.0	19
		1.5	9
		2.0	8
	0.2	0.5	51
		1.0	16
		1.5	9
		2.0	7
0.05	0.1	0.5	45
		1.0	13
		1.5	7
		2.0	5
	0.2	0.5	34
		1.0	10
		1.5	6
		2.0	4

ついて計算して見る。 δ の値については、なるべく精確なデータを必要とする場合には、小さい値を、概略的なデータが良い場合には、大きい値をとれば良い。 計算結果を Table 7-7 に示す。 これを見ると、第1種の過誤すなわち、帰無仮説の統計的検定を行う時の有意水準 α や第2種の過誤 β よりも、 $|\delta|$ の値によって統計的に有意なデータを得るに必要な試料数 n の値は大きくなっていくことがわかる。 既に述べたように、 α や β の値を合理的に決める方法はなく統計学以前の問題であるが、 $|\delta|$ についてはモニタリングの目的によって一定程度合理的に決定することが可能である。 すなわち、 $|\delta|$ は平均値の統計的検定を行おうとする時の帰無仮説 ($H_0: \mu = \mu_0$) と対立仮説 ($H_1: \mu = \mu_0 + |\delta| U_v$) との差 ($|\delta| U_v$) が観測値の不偏分散 (U_v) の何割まで認めるかによって決められる。 モニタリングの精度を、母集団の平均値と観測値の平均値との差 $|\delta| U_v$ が不偏分散の50%以内になるように抑えようとするれば、数十から5~60の試料数を必要とするが、不偏分散の1.5倍程度まで誤差を認めると、試料数はせいぜい10あれば十分であると思われる。 しかし、これは、同一場所に生息している生物集団に対する試料数を述べたものであった。 異なる生物種や生物集団については、異なる視点からの考察が必要である。

第4節 海洋における放射能汚染の探知計画

環境放射能のモニタリングを実施するに際しては、環境試料のサンプリングから、放射能測定、データ解析、評価が一環して行われることが必要である。特にサンプリング地点をどのように選ぶかは、モニタリングの有効性に大きく関与する。これまで汚染物質のモニタリング計画について、固定汚染源、固定観測点に関する研究が進められてきたが、^(16~18)汚染源や観測点自身が移動する場合についての研究はほとんど見られない。観測点が移動するような例として、大気汚染観測のモニタリングカーや原子力艦船の入出港時におけるモニタリングボート等がある。本節では後者のケースを例として、汚染源および観測点がともに移動する場合のモニタリング地点の選定のしかた、言い換れば、モニタリングボートの最適航路を求める問題について論じる。

4-1 原子力船からの放出放射能の監視体制の現状と問題点

わが国における原子力船は「むつ」一隻であるが、中性子線漏洩事故のため現時点では運行の見透しがたっていない。ここで対象とするのは米軍原子力艦船のわが国への入出港時のボートによる放射能モニタリングである。入港先は米軍基地の存在する横須賀、佐世保および沖縄のホワイトビーチである。横須賀、佐世保両港における原子力艦船の放射能監視体制は、いくつかの相異点があるが、大要は一致している。ここでは新聞報道をともに、監視体制の現状と問題点について簡単に触れる。なおホワイトビーチには後に述べるモニタリングボートは配置されていない。

4-1-1 監視体制の現状

- (1) 定期検査—4半期毎に1回、海水、海底土、海産物を採取し、全β線の計測および核種分析が行われる。
- (2) 非寄港時調査—一次の通りの手法によって調査されている。
 - ① モニタリングポスト—一定地点で空間、海水中の放射能測定
 - ② モニタリングポイント—一定地点で空間の集積線量の測定
 - ③ モニタリングボート—毎月1回以上、所定のコースを巡行し、空間海水中の放射能水準の測定

(3) 寄港時調査 非寄港時調査に加えて、モニタリングボートが一日一回以上所定のコースで連続して測定する。また原子力船舶の出港後、海水および海底土を採取し、核種分析を行う。Fig.7-3に横須賀における放射能監視体制を示す。

4-1-1 監視体制の問題点

モニタリングポストでは、海水中の放射能検出器として、 $\phi 3$ インチのNaIシンチレーションカウンターが用いられているが、ポストは岩壁に配置されており、原子力船舶から数100m以上離れているため、原子力炉の爆発というような大事故の場合を除いて、原子力船舶の一次冷却水などによる放射能汚染に対しては、ごく近接した範囲でし

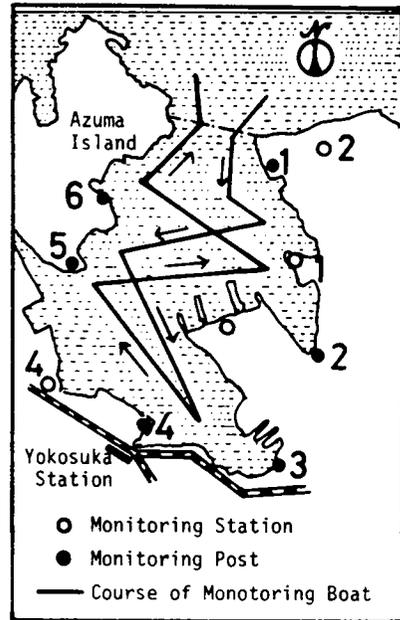


Fig. 7-3 Monitoring System in Yokosuka Port

か、放射能の検出能力はない。モニタリングポイントには、ガラス線量計とフィルムバッジが設置されており、それぞれヶ月および1ヶ月に一度交換される。これらの測定法は長時間で平均化されるため異常事態は発見されず、モニタリングの主要な役割である早期発見の点で、その監視能力は低い。これらに比較してボートによるモニタリングは、原子力船舶を追尾して、放射能を測定することができるので機能的である。しかし現行のモニタリングボートは、原子力船舶との至近距離での航行は行われず、1日1回所定のコースを走行するだけであるため、原子力船舶から放出された放射能を検出し得る確率に問題がある。本節では、従来のモニタリングボートの走行コースでは、放射能の検出確率は極めて小さいことを示し、走行コースによって検出確率(発見確率)がどの様になるかと述べ、最適な走行コースの決定方法について論述する。

4-2 放射能の探索モデルの設定

探索者が目標物を探索する方法についてのモデルを考える場合、Fig.7-4に示すよ

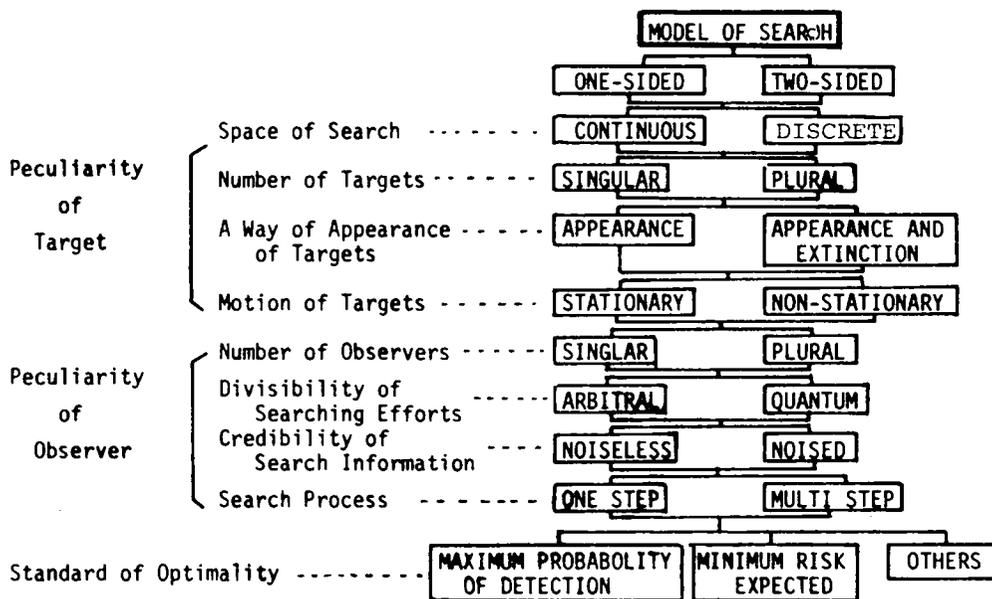


Fig. 7-4 Classification of Search Model

から、観測者および目標物の特性によって幾通りものモデルに分類して考えることができる。⁽¹⁹⁾ 本節では原子力船から放出された放射能（目標物）を、モニタリングボート（探索者）で航行しながら検出（探索）する方法についてのモデルを考え、対象とする目標物および探索者の特性を次のように仮定する。

(1) 目標物の特性

- ① 平面2次元の連続的空間（海洋）において、目標物は非停留的な存在形態をとる。
- ② 目標物の存在は時間的経過に従って変化する確率分布則に従う。
- ③ 目標物は上記の確率分布に従って、消滅状態→出現状態→消滅状態へとその状態を変える。

(2) 探索者の特性

- ① ここで観測者は一隻のモニタリングボートであり、これが海上を航行して目標物を探索する。
- ② 目標物探索のための投入努力は任意に可分できる。
- ③ 探知状態の信憑性に関しては、放射能のバックグラウンドや検出器や特性などの雑

音を考慮しない。

④ 探索過程は連続, 多段的に行う。

Fig.7-4 に示したように, 目標物の特性, 探索者の特性, および努力配分に関する最適性の基準という3つの分類に従って, それらと適当に結合すると, 探索モデルは多数の組合せが存在する。しかし現在までに研究されたモデルはそれらの中のほんの一部にすぎず, 複雑なモデルについては今後の研究に待つ点が多い。ここでは上に述べた場合について論述する。

4-3 探索モデルの理論的考察

4-3-1 発見確率

4-2で設定した目標物および探索者の特性を前提として, 探索開始後, 時刻 t までの目標物の発見確率を次のように定式化する。

- (1) 時刻 t までに目標物が発見されない確率を $Q(t)$,
- (2) 時刻 t における目標物の瞬間探知確率密度を $\gamma(t)$ と表わす。但し, 二次元平面上において, $\gamma(t)$ は $\iint_{\infty} \gamma(t) dx dy = 1$ を満足していなければならない。時刻 $(t+\Delta t)$ において, 目標物が発見されない確率は

$$Q(t+\Delta t) = Q(t) \{1 - \gamma(t) \Delta t\}, \quad (7-16)$$

(7-16)式を変形して,

$$\frac{1}{Q(t)} \left\{ \frac{Q(t+\Delta t) - Q(t)}{\Delta t} \right\} = -\gamma(t) \quad (7-17)$$

$\Delta t \rightarrow 0$ なる極限において, 上式は

$$\frac{d \log Q(t)}{dt} = -\gamma(t) \quad (7-18)$$

となる。これは確率 $Q(t)$ が満たすべき微分方程式で, 解は

$$Q(t) = Q_0 e^{-\int_0^t \gamma(t) dt} \quad (7-19)$$

時刻 $t=0$ すなわち探索行動の開始前に, 目標物が発見されることはあり得ないから, 初

期条件は $Q(0) = Q_0 = 1$ とする。したがって、時刻 t における目標物の発見確率 $P(t)$ は次のように表わすことができる。

$$P(t) = 1 - Q(t) = 1 - e^{-\int_0^t \gamma(t) dt} \quad (7-20)$$

4-3-2 発見ポテンシャル

探索行動が経路 C に沿って行われる時、

$$F(C) = \int_C \gamma(t) dt = \int_0^t \gamma(t) dt \quad (7-21)$$

とおくと、(7-20)式は、

$$P(C) = 1 - e^{-F(C)} \quad (7-22)$$

と書くことができる。 $F(C)$ は発見ポテンシャルと呼ばれ(7-22)式から明らかのように、この発見ポテンシャルの大きい程、目標物の発見確率は大きくなる。

今、探索過程の経路 C が n 個の部分経路 C_1, C_2, \dots, C_n の合成から成り立つ時、このことを表わすのに $C = \sum_{i=1}^n C_i$ と定義しておく。経路 C_i をたどった時の発見確率は

$$P(C_i) = 1 - e^{-F(C_i)} \quad (7-23)$$

各経路 C_1, C_2, \dots, C_n での発見確率はそれぞれ独立であると思わせるから、

$$\begin{aligned} P(C) &= P\left(\sum_{i=1}^n C_i\right) = 1 - \prod_{i=1}^n \{1 - P(C_i)\} \\ &= 1 - e^{-\sum_{i=1}^n F(C_i)} \end{aligned} \quad (7-24)$$

一方、定義より、

$$P(C) = 1 - e^{-F(C)} = 1 - e^{-F\left(\sum_{i=1}^n C_i\right)} \quad (7-25)$$

(7-24), (7-25) 両式より、

$$F\left(\sum_{i=1}^n C_i\right) = \sum_{i=1}^n F(C_i) \quad (7-26)$$

となる。探索経路がいくつもの部分経路より合成される場合には、それぞれの部分経路上での発見ポテンシャルの総和が全経路上での発見ポテンシャルになる。すなわち、発見ポテンシャル $F(C)$ は加法性を有している。

さて、ここで、瞬間探知確率密度 $\gamma(x, y; t)$ を x, y 次元平面 (x, y) 上における放射能の存在確率(濃度)の期待値に比例するものと仮定する。この仮定は $\int_0^{\infty} \int_0^{\infty} \gamma(t) dx \cdot dy = 1$ を満たしているが、実際には、測定器の検出感度以上の濃度で放射能が存在する場合には、放射能の検知が行われるのであり、ここでは瞬間探知確率密度を期待濃度に

比例させることによって重みを持たせることになる。したがって(7-22)式に示された発見確率とは、時刻 t までの探索行動によって放射能が検知される確率という意味ではなく、経路 C 上での探索行動による発見能とも言うべき一つの概念的な測度として定義されたものとして解釈すべきである。以下の議論では、主として発見ポテンシャルについて考察をすすめる。

簡単のため、モニタリングの対象となる湾を Fig. 7-5 に示すような矩形湾で考える。今、無限平面上の一点に単位量の汚染物質が放出された時の濃度分布は、一般に次式で与えられる。

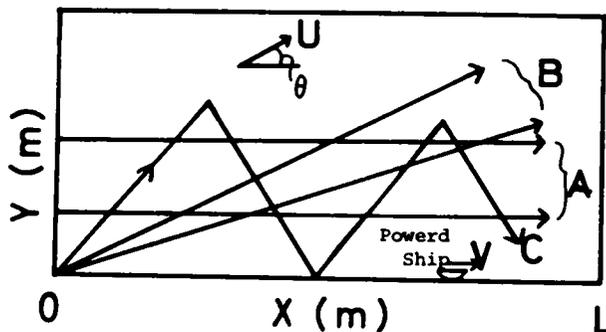


Fig. 7-5 Search Course of a Observer in a Model Bay

$$C_1(x, y; t) = \frac{1}{4\pi t \sqrt{D_x D_y} \cdot D_M} e^{-\left\{ \frac{(x-U_x t)^2}{4D_x t} + \frac{(y-U_y t)^2}{4D_y t} + \lambda t \right\}} \quad (7-27)$$

- ここに、 D_x, D_y : x, y 軸方向の渦動拡散係数 [$m^2/\text{min.}$]
 D_M : 混合深さ [m]
 U_x, U_y : 潮流の x, y 成分 [$m/\text{min.}$]
 λ : 放射性核種の物理学的崩壊定数 [$1/\text{min.}$]

原子力船が x 軸正方向に v の一定速度で航行しながら、出発後、時刻 t において放射能を一時的に放出した時、時刻 T における濃度分布は

$$C_2(x, y; T) = \frac{1}{4\pi(T-t)\sqrt{D_x D_y} \cdot D_M} e^{-\left[\frac{\{x-vt-U_x(T-t)\}^2}{4D_x(T-t)} + \frac{\{y-U_y(T-t)\}^2}{4D_y(T-t)} + \lambda(T-t) \right]} \quad (7-28)$$

となる。モータリングの範囲を湾内に限るとし、原子力船は、停泊地から湾口までの距離 L を航行中に放射性物質を放出する可能性があるとし、放出場所に関する情報が無い時、この航路上の微小区間 dx における放射能の放出確率密度 $q(x)$ はどの地点においても一定であると考え、放出確率は

$$q(x)dx = \begin{cases} 0, & x < 0 \\ \frac{dx}{L}, & 0 \leq x \leq L \\ 0, & L \leq x \end{cases} \quad (7-29)$$

と表わされる。

原子力船の航速は v であり、出発後、湾口まで航行するのに要する時間を T_B とすると、

$$dx = vdt, \quad L = vT_B \quad (7-30)$$

となる。(7-29)式と同様に時間に関して放出確率を表わすと、

$$p(t)dt = \frac{dt}{T_B}, \quad 0 \leq t \leq T_B \quad (7-31)$$

となる。したがって、時刻 T における放射能濃度分布の期待値 $E[C(x, y; t)]$ は次式で与えられる。

$$E[C(x, y; T)] = \int_0^T C_2(x, y; t)p(t)dt \quad (7-32)$$

瞬間探知確率密度 $\gamma(t)$ は期待濃度分布に比例すると仮定しているため、 $\gamma(t)$ は一次の様に表わせる。但し以下の議論では、長半減期の核種の λ の値は小さいので、 λ を含む項を無視している。

$$\gamma(T) \propto E[C(x, y, ; T)]$$

$$= \int_0^T \frac{1}{4\pi D_M(T-t) \sqrt{D_x D_y}} e^{-\left[\frac{\{x-vt-U_x(T-t)\}^2}{4D_x(T-t)} + \frac{\{y-U_y(T-t)\}^2}{4D_y(T-t)} \right]} dt \quad (7-33)$$

$$(0 \leq t \leq T \leq T_B)$$

次に、モニタリングボートの時刻 T における位置を $O(x, y)$ とし、その速度ベクトルを $W(w_x, w_y)$ とすると、

$$O[x, y] = O[w_x^T, w_y^T] \quad (7-34)$$

と表わすことができる。 O はモニタリングボートの探索経路 C を表わしている。上式を用いて、時刻 T_0 までの発見ポテンシャルは、(7-21)式から、

$$F(C) = \int_0^{T_0} \int_0^T \frac{1}{4\pi D_M(T-t) \sqrt{D_x D_y} \cdot T_B} e^{-\left[\frac{\{w_x^T - vt - U_x(T-t)\}^2}{4D_x(T-t)} + \frac{\{w_y^T - U_y(T-t)\}^2}{4D_y(T-t)} \right]} dt dT \quad (7-35)$$

$$(0 < t \leq T \leq T_0 \leq T_B)$$

となる。 $O[w_x^T, w_y^T]$ を適当に選ぶことによって、任意の探索経路をたどった時の発見ポテンシャルが得られる。

4-3-3 探索の遅れ時間

監視体制の問題点で述べたように、原子力艦船の機密保持という理由から、モニタリングボートは原子力船に接近してモニタリングすることは許されていない、一定の距離において航行せざるを得ない。これも原子力船の出発後 t_d の時間遅れをもってモニタリングボートが発見すると考えると、ボートの位置は次のように表わせる。

$$O[x, y] = O[w_x(T-t_d), w_y(T-t_d)] \quad (7-36)$$

時刻 T_B において、原子力船は湾口 (B 点) に達しているが、モニタリングボートは t_d 時間の遅れがあるため、 B 点から $w_x t_d$ (m) 手前を航行していることになるので、

探索時間を T_B に等しくとるために、(7-35) 式の探索時間の積分範囲を $t_d \sim T_B + t_d$ とおく。この時、期待濃度分布を求めるのに、微小時間 dt における原子力船からの放射能の放出確率を $dt/T_B + t_d$ とおいて考える。モニタリングボートが湾口に達するまでの発見ポテンシャルは次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 F(C) &= \int_{t_d}^{T_B + t_d} \gamma(T) dT \\
 &= \frac{1}{4\pi D_M \sqrt{D_x D_y} (T_B + T_d)} \int_{t_d}^{T_B + t_d} \int_0^T \frac{1}{(T-t)} e^{-\left[\frac{\{w_x T - vt - U_x (T-t)\}^2}{4D_x (T-t)} + \frac{\{w_y T - U_y (T-t)\}^2}{4D_y (T-t)} \right]} dt dT
 \end{aligned} \tag{7-37}$$

4-3-4 最適探索経路

モニタリング方法の最適性の基準として次の三つが考えられる。

- (1) 発見確率の最大化
- (2) 限界効用（投資効率）の最大化
- (3) 発見時間の最小化

(1)の基準は確実性を、(2)は経済性を、(3)は迅速性を目的としている。これらの基準は現実のモニタリング活動において、どれもそれぞれの重要性を有しているが、ここで対象としているような問題では、経済性、迅速性よりも、まず第一に、放出された放射能が確実に検出されることが優先されるべきであると考えられる。それ故ここではモニタリングボートの探索経路の最適性の基準として、発見確率を最大にすることを取りあげる。既に述べたように、発見確率を最大にすることと、発見ポテンシャルを最大にすることとは同値の問題である。また、本研究で定義した発見ポテンシャルは1つの概念的な測度であるから、発見確率よりも発見ポテンシャルの最大化について論じる。

発見ポテンシャルを定義した(7-35)式で任意に変え得るパラメータはモニタリングボートの速度 (w_x, w_y) のみである。この式中右辺の積分項の指数部はモニタリン

グボートの位置，時刻によらず非正の値をとるので，この値が0となる時，発見ポテンシャルは最大になる。すなわち，

$$\begin{cases} x - vt - U_x(T-t) = 0 \\ y - U_y(T-t) = 0 \end{cases} \quad (7-38)$$

となるように， x, y の値，言い換えればボートの位置を決めれば良い。 T は原子力船の出発後の時間であり， t は放射性物質が放出された時間である。今 $t = t_0$ であることがわかった時，

$$\begin{cases} x = U_x(T-t_0) + vt_0 \\ y = U_y(T-t_0) \end{cases} \quad (7-39)$$

T について，消去すると，

$$y = \frac{U_y}{U_x}(x - vt_0) \quad (7-40)$$

となり，これが発見ポテンシャルを最大にする探索経路である。この時，モニタリンググボートの x, y 方向の速度成分 (w_x, w_y) は

$$\begin{cases} w_x^T = U_x(T-t_0) + vt_0 \\ w_y^T = U_y(T-t_0) \end{cases} \quad (7-41)$$

したがって，

$$\begin{cases} w_x = U_x + (v-U_x)\frac{t_0}{T} \\ w_y = U_y\left(1 - \frac{t_0}{T}\right) \end{cases} \quad (7-42)$$

となる。次に放射性物質の放出時刻 t について，何の情報も得られず，モニタリングによっても放射能が検出されない場合には，放射能は必ず原子力船からしか放出されないものであるから，放射能が検出されるまでは， t は T とともに変化すると考えるのが妥当であろう。したがって (7-38) 式で， $t = T$ とおくと，

$$x = vT, \quad y = 0 \quad (7-43)$$

が得られる。すなわち，モニタリンググボートは x 軸上を原子力船とともに航行するの

が最適であるとの結果が得られる。探査行為によって t_0 が変わった時点から(742)式に従って航路を変えれば良い。

4-4 計算結果および考察

4-4-1 瞬間探知確率密度(期待濃度分布)

(7-33)式に示すように、瞬間探知確率密度は期待濃度分布に比例すると仮定した。実際にはモニタリングボートによるモニターで、海水中の放射能が探知されるかどうかは、測定器の検出限界に依存し、検出限界以上の放射能濃度が存在する時に、放射能の発見確率は1になり、限界以下の場合には、確率は0になる。しかし、海洋の放射能汚染状況を把握し、影響の上限値を知るという点から、なるべく濃度の高い地点で測定するのが望ましいと考えられるので、上に述べた仮定は妥当であろうと思われる。計算に用いたパラメーターの値を Table 7-8 に示す。計算結果を Figs.7-6~10に示

Table 7-8 Value of Parameters Used for Calculation

Parameter	Value
Depth of the Mixed Layer ; D_m	10 m
Diffusion Coefficient ; D_x, D_y	1000 cm^2/sec
Time when the Ship Reached the Mouth of a Bay after Departure ; T_B	60 min.
Speed of a Powered Ship ; V	50 m/min.
Flow Velocity of Tide ; U	0, 5, 10, 15 m/min.
Angle between the Direction of a Powered Ship and that of Tide ; θ	0, $\pi/6$, $\pi/3$, $\pi/2$, $2\pi/3$, $5\pi/6$,
X-axis Component of a Speed of a Monitoring Boat ; W_x	50 m/min.
<u>for Parallel Course</u>	
Distance between the X-axis and the Course of a Monitoring Boat ; Y	0, 20, 40, 60 m
<u>for Linear Course</u>	
Y-axis Component of a Speed of a Monitoring Boat ; W_y	10, 6, 2, -2, -6 m/min.

している。これらの図は原子力船から単位量(1Ci)の放射能が放出された場合の海水中の放射能の等濃度線を pCi/ℓ の単位で示されている。瞬間探知確率密度は濃度に比例すると考えているので、これらの数値を $[\text{Ci}/\text{m}^3]$ の単位に変換すれば、 $\iint_{-\infty}^{\infty} \gamma(x, y; t) dx dy = 1$ を満す確率で表示することができる。

Fig.7-6は、湾内に海流がない場合($U=0$)に、原子力船が湾口に達した時、すなわ

ち、出発後60分後の期待等濃度（瞬間探知確率密度）の曲線である。 Fig.7-7 は

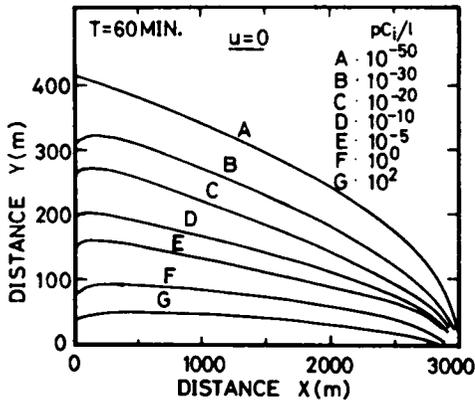


Fig.7-6 Contour Line of Radio-Activity Concentration (Instantaneous Probability of Detection)

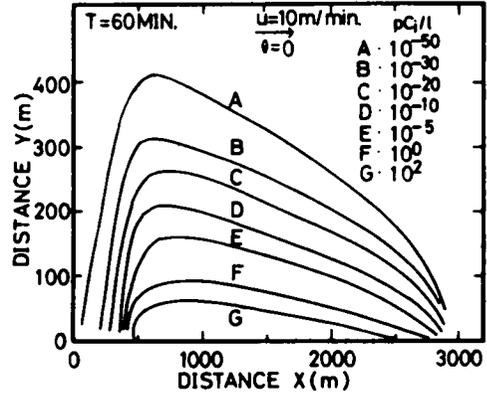


Fig.7-7 Contour Line of Radio-Activity Concentration (Instantaneous Probability of Detection)

海流が原子力船の進行方向と同方向で、流速 10 m/minの場合、Figs.7-8,9は $U = 10$ m/min. 流向が図に示すように、原子力船の進行方向に対して、 $\pi/3$ の角度(θ)を持つ時の、20分後、40分後、60分後の等濃度線、Fig.7-10は θ が $2\pi/3$ の場合の等濃度線を示している。

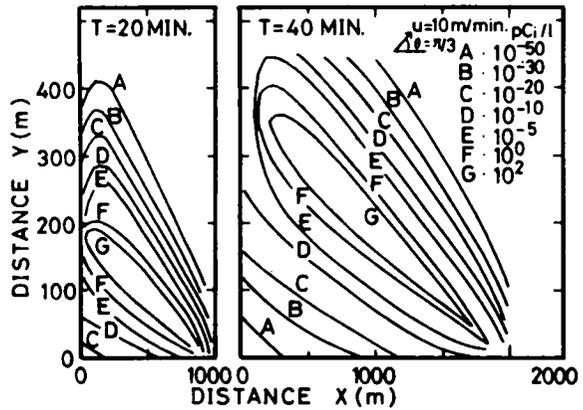


Fig.7-8 Contour Line of Radioactivity Concentration (Instantaneous Probability of Detection)

。原子力船の速度を50m/min. と仮定しているため、1 km,

2km, 3km の地点は、20分、40分、60分後の原子力船のそれぞれの時刻における航行地点を表わしている。

原子力船からの放射性廃棄物の放出に関する情報が全くない時、どこで放出されるか不明なので、原子力船の航路上、一律に確率で放出されると仮定した事は既に述べた。したがって、期待濃度分布（瞬間確率密度）を求めるのに、一点放出値の時間積分値と

計算した。これは計算の上では、原子力船が出発後、連続放出しながら航行している場合の濃度分布を計算していることになる。原子力船の現在地点の濃度よりも、出発点に近い周辺部の濃度の方が高くなっている。当然のことであるが、海流のない場合には、y軸方向へは、渦動拡散によって拡散してゆくが、海流のある場合には、その方向に等濃度曲線は圧縮されたり、引き伸ばされたりしている。

この事が後述するように発見ポテンシャルに影響を与えることになる。

4-4-2 発見ポテンシャル

発見ポテンシャル $F(C)$ は(7-35)式によって求められる。同式において、モニタリングボートの時刻 T における位置 $O(x, y)$ は、モニタリングボートの速度 $W(w_x, w_y)$ を与えることにより定められる。モニタリングボートの経路は、現状ではFig.7-3

に示したように所定の経路を進行しているだけである。Fig.7-5 に示すように、経路を単純化し、仮にAのような経路を平行探索(Parallel Search)、Bの経路を直線探索(Linear Search)、Cの経路をジグザグ探索(Zigzag Search)と名づけておく。この時、それぞれの経路は次のように表わせる。

平行探索 $x = w_x T, \quad y = Y (= \text{一定})$

直線探索 $x = w_x T, \quad y = w_y T$

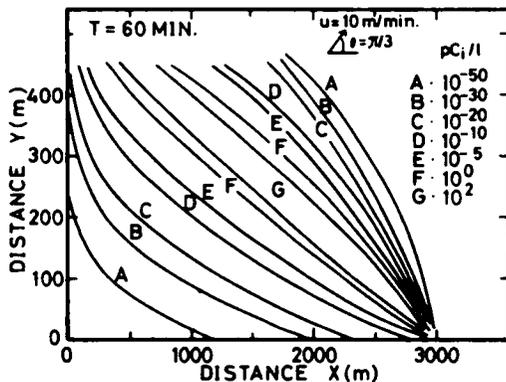


Fig.7-9 Contour Line of Radioactivity Concentration (Instantaneous Probability of Detection)

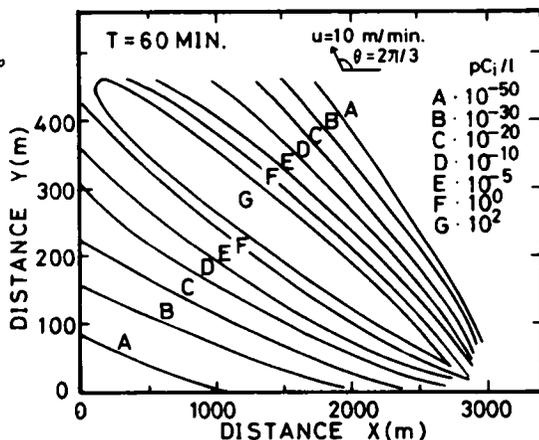


Fig.7-10 Contour Line of Radioactivity Concentration (Instantaneous Probability of Detection)

ジグザグ探索 $x = w_x T$

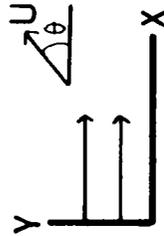
$$y = \begin{cases} w_y T & (0 < T \leq 10 \text{ min.}) \\ 10w_y - w_y(T-10) & (10 < T \leq 20 \text{ min.}) \\ w_y(T-20) & (20 < T \leq 30 \text{ min.}) \\ 10w_y - w_y(T-30) & (30 < T \leq 40 \text{ min.}) \\ w_y(T-40) & (40 < T \leq 50 \text{ min.}) \\ 10w_y - w_y(T-50) & (50 < T \leq 60 \text{ min.}) \end{cases}$$

モニタリングボートの速度の x 成分(w_x)は、どの場合にも、原子力船と同じ速度($V=50$ m/min.)で計算している。計算に用いたパラメーターの値をTable 7-8に示す。また計算結果をTables 7-9~11に示している。表の数値は期待濃度分布の場合と同様に、原子力船から $1C_i$ の放射能が、航路上で等確率で放出された場合の発見ポテンシャルに 10^{30} をかけたもので、例えば(.62E 38)と記されているのは実際は、(0.62×10^8)を意味し、又(.26E -3)は(0.26×10^{-33})のことである。先ず、平行探索の計算結果(Table 7-9)について見ると、海流の状況にかかわらず、モニタリングボートの航路と x 軸との距離(Y)によって、発見ポテンシャルは著しく異なる。原子力船の進行方向と海流の方向とのなす角度 θ が $0 \sim \pi/2$ の間では、海流速(U)が速い程ポテンシャルが高くなっている。これは、濃度分布の考察で述べたように、海流の方向に濃度分布が圧縮され、モニタリングボートが同方向に航行するためである。したがって、海流の x 成分が、ボートの進行方向と反対の場合には、海流速の増加につれて、ポテンシャルは減少する。それ故、この場合には、むしろボートの速度を遅くした方がポテンシャルは高くなると予想される。平行探索の最大ポテンシャルは、 $\theta=0$ 、 $U=15$ m/min.で、 x 軸上をモニタリングボートが航行した場合で、 0.91×10^8 であった。

直線探索の場合(Table 7-10)は、モニタリングボートの y 軸成分速度($w_y=10 \sim -6$ m/min.)によって、ポテンシャルは平行探索程の著しい差は認められない。 θ が 0 もしくは π の場合には、濃度分布は x 軸について対称であるから、発見ポテンシャルも、モニタリングボートが正負どちらの方向に進んでも、対称な値になっている。ボ

Table 7-9 Detection Potential for the Search of Parallel Course ($\times 10^{-30}$)

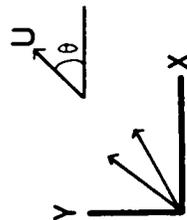
U m/min.		Y Potential m		θ		U mm/min.		Y Potential m		θ		U m/min.		Y Potential	
θ	Y	U	Potential	θ	Y	U	Potential	θ	Y	U	Potential	θ	Y	U	Potential
0	0	0	.62E 38									π	5	0	.54E 38
	20	0	.71E 1											20	.18E -2
	40	0	.33E-35											40	.18E-42
	60	0	.33E-78											60	0
5	0	5	.71E 38	2 π /6	0	5	.66E 38	4 π /6	0	5	.58E 38				
	20	5	.31E 5		20	5	.45E 6		20	5	.11E 3				
	40	5	.55E-26		40	5	.13E-25		40	5	.78E-33				
	60	5	.96E-64		60	5	.28E-48		60	5	.52E-66				
10	0	10	.81E 38	2 π /6	0	10	.69E 38	4 π /6	0	10	.53E 38				
	20	10	.14E 9		20	10	.44E 11		20	10	.11E 4				
	40	10	.55E-21		40	10	.12E-16		40	10	.64E-31				
	60	10	.38E-58		60	10	.28E-48		60	10	.52E-66				
15	0	15	.91E 38	3 π /6	0	15	.72E 38	5 π /6	0	15	.49E 38				
	20	15	.61E 12		20	15	.20E 15		20	15	.55E 4				
	40	15	.15E-14		40	15	.22E -8		40	15	.21E-29				
	60	15	.20E-51		60	15	.12E-36		60	15	.36E-63				
π /6	5	0	.69E 38	3 π /6	0	5	.62E 38	5 π /6	0	5	.55E 38				
	20	0	.58E -6		20	0	.19E 5		20	0	.32E 0				
	40	0	.20E-25		40	0	.24E-28		40	0	.58E-38				
	60	0	.16E-61		60	0	.86E-64		60	0	0				
10	0	10	.77E 38	3 π /6	0	10	.61E 38	5 π /6	0	10	.49E 38				
	20	10	.37E 11		20	10	.24E 8		20	10	.10E -1				
	40	10	.53E-16		40	10	.36E-22		40	10	.75E-41				
	60	10	.11E-49		60	10	.29E-54		60	10	0				
15	0	15	.85E 38	3 π /6	0	15	.59E 38	5 π /6	0	15	.43E 38				
	20	15	.16E 16		20	15	.13E 11		20	15	.26E -3				
	40	15	.36E -7		40	15	.11E-16		40	15	.74E-44				
	60	15	.95E-39		60	15	.13E-45		60	15	0				



ートのy成分速度が大きい程ポテンシャルは小さい。 θ と流速 U のポテンシャルに及ぼす影響は平行探査の場合と同様な関係にあるが、 θ が $2\pi/3$ までは海流速の速い程、ポテンシャルが高く、 θ が $5\pi/6$ 以上の場合に、逆の関係になっている。 しかしこの

Table 7-10 Detection Potential for the Search of Linear Course ($\times 10^{-30}$)

θ		U W _y Potential m/min.		θ	U W _y Potential m/min.		θ	U W _y Potential m/min.		θ	U W _y Potential m/min.	
0	0	10	.45E 18									
		6	.10E 26									
		2	.28E 33									
		-2	.28E 33									
		-6	.10E 26									
	5	10	.28E 20	27π/6	5	10	.11E 21	4π/6	5	10	.18E 19	π
		6	.13E 27		6	.28E 27	.63E 28			6	.21E 26	
		2	.63E 33		2	.82E 33	.23E 34			2	.21E 26	
		-2	.63E 33		-2	.19E 33	.13E 33			-2	.88E 32	
		-6	.13E 27		-6	.37E 25	.11E 25			-6	.28E 24	
	10	10	.19E 22		10	.19E 23	.63E 28			10	.49E 19	
		6	.15E 28		6	.63E 28	.36E 26			6	.42E 23	
		2	.15E 34		2	.23E 34	.49E 33			2	.60E 32	
		-2	.15E 34		-2	.13E 33	.27E 32			-2	.60E 32	
		-6	.15E 28		-6	.11E 25	.63E 22			-6	.42E 23	
	15	10	.13E 24		15	10	.22E 25			15	10	.92E 12
		6	.20E 29		6	.11E 30	.51E 26			6	.51E 26	
		2	.38E 34		2	.61E 34	.62E 33			2	.62E 33	
		-2	.38E 34		-2	.79E 32	.81E 31			-2	.81E 31	
		-6	.20E 29		-6	.25E 24	.12E 21			-6	.12E 21	
π/6	5	10	.12E 21	3π/6	5	10	.24E 20	5π/6	5	10	.88E 19	
		6	.30E 27		6	.11E 27	.34E 25			6	.34E 25	
		2	.64E 33		2	.51E 33	.21E 33			2	.21E 33	
		-2	.37E 33		-2	.11E 33	.92E 32			-2	.92E 32	
		-6	.25E 26		-6	.72E 24	.28E 24			-6	.28E 24	
	10	10	.30E 23		10	10	.82E 21			10	10	.13E 19
		6	.82E 28		6	.88E 27	.97E 24			6	.97E 24	
		2	.26E 34		2	.13E 34	.21E 33			2	.21E 33	
		-2	.37E 33		-2	.45E 33	.31E 32			-2	.31E 32	
		-6	.55E 26		-6	.41E 23	.66E 22			-6	.66E 22	
	15	10	.65E 25		15	10	.19E 23			15	10	.18E 16
		6	.20E 30		6	.57E 28	.27E 24			6	.27E 24	
		2	.60E 34		2	.24E 34	.13E 33			2	.13E 33	
		-2	.65E 33		-2	.16E 32	.10E 32			-2	.10E 32	
		-6	.11E 27		-6	.17E 22	.15E 21			-6	.15E 21	



場合もボートのy成分速度が負 ($w_y = -2, -6$ m/min.)の場合には, θ が $\pi/2$ 以上になると, 平行探索の場合と同様に, 海流速の増加とともに, ポテンシャルは減少している。

直線探索と平行探索とを比較すると, 前者の場合, w_y が負の場合にもポテンシャルが前者程に小さくならないのは, 探索の開始点を原点 (Fig.7-5の0点)から出発しており, Figs.7-6~10に見られるように, 原点での高い期待濃度地点でのモニタリ

グがなされているためである。それに対し、後者の場合には、ボートの出発点が、原点から離れている場合には、絶えず期待濃度の低い地点を航行するために、ポテンシャルは着しく小さくなる。これは後に述べるジグザク探索の場合にも同じことが見られる。直線探索の最大ポテンシャルは、 $\theta = \pi/6$, $U = 15 \text{ m/min.}$, $w_y = 2 \text{ m/min.}$ の場合で、 0.8×10^4 であった。

ジグザク探索 (Table 7-11) の場合は、海流の条件にかかわらず、ポテンシャルはほぼ同じであった。

表には示されていないが、モニタリングボートが湾口に達するまでのジグザクの振動数を同数にとれば、その振幅 (w_y に依存する) の大小にかかわらず、ポテンシャルは一定であった。これは先程も述べたように、 x 軸から離れた低濃度地点でのモニタリングが経路過程に存在しても

x 軸上の高い期待濃度地点でのモニタリングが、何度か (計算では、モニタリングボートが x 軸上を通るのは 4 回) あるため、 w_y を大きくして、振幅を広げても、あるいは狭くしても、影響は現われてこない。この場合の最大ポテンシャルは $\theta = 0$, $U = 15 \text{ m/min.}$ のとき、 0.3×10^7 で、 x 軸上を航行する平行探索のポテンシャルの約 1/20 であった。

4-4-3 時間遅れの影響

モニタリングボートが、原子力船の出航より遅れて出発する場合である。本章 4-1-2 で述べたように、現行ではモニタリングボートは原子力船から一定の距離を置いて航行することしか認められていないので、これを遅れ時間の問題として取扱う。遅れ時間が 2 分の場合の計算結果を Tables 7-12, 13 に示している。実際には船が定速に達する迄に時間がかかる訳であるが、計算では出発と同時に定速 ($V = w_x =$

Table 7-11 Detection Potential for the Search of Zigzag Course ($\times 10^{-30}$)

θ	U	Potential	θ	U	Potential
m/min.			m/min.		
0	0	.21E 37	$4\pi/6$	5	.20E 37
	5	.24E 37		10	.18E 37
	10	.28E 37		15	.17E 37
	15	.31E 37			
$\pi/6$	5	.24E 37	$5\pi/6$	5	.19E 37
	10	.27E 37		10	.17E 37
	15	.25E 37		15	.15E 37
$2\pi/6$	5	.23E 37	π	5	.19E 37
	10	.24E 37		10	.16E 37
	15	.25E 37		15	.14E 37
$3\pi/6$	5	.21E 37			
	10	.21E 37			
	15	.20E 37			

Table 7-13 Effect of Delay Time on Detection Potential ($\times 10^{-30}$)

θ	U m/min.	W _y Potential									
0	0	10 .76E-8 6 .11E-7 2 .26E-7 -2 .26E-7 -6 .11E-7									
	5	10 .22E-17 6 .30E-17 2 .73E-17 -2 .73E-17 -6 .30E-17	27/6	5	10 .12E-12 6 .23E-12 2 .67E-12 -2 .24E-12 -6 .22E-12	47/6	5	10 .14E-3 6 .29E-3 2 .83E-3 -2 .30E-3 -6 .27E-3	θ	5	10 .34E-1 6 .47E-1 2 .11E-2 -2 .11E-1 -6 .47E-1
	10	10 .77E-28 6 .11E-27 2 .26E-27 -2 .26E-27 -6 .11E-27		10	10 .20E-17 6 .30E-17 2 .84E-17 -2 .45E-18 -6 .17E-17		10	10 .32E-1 6 .46E-1 2 .13E-2 -2 .70E-0 -6 .26E-1		10	10 .19E-9 6 .26E-9 2 .63E-9 -2 .63E-9 -6 .26E-9
	15	10 .35E-39 6 .49E-38 2 .12E-38 -2 .12E-38 -6 .49E-39		15	10 .13E-22 6 .23E-22 2 .64E-22 -2 .13E-24 -6 .22E-23		15	10 .26E-5 6 .45E-5 2 .12E-6 -2 .21E-3 -6 .43E-2		15	10 .13E-16 6 .18E-16 2 .45E-16 -2 .45E-16 -6 .18E-16
$\pi/6$	5	10 .39E-16 6 .64E-16 2 .18E-15 -2 .11E-15 -6 .63E-16	37/6	5	10 .52E-8 6 .11E-7 2 .31E-7 -2 .89E-8 -6 .97E-8	57/6	5	10 .22E-0 6 .37E-0 2 .10E-0 -2 .62E-0 -6 .36E-0			
	10	10 .41E-25 6 .83E-25 2 .24E-24 -2 .70E-25 -6 .76E-25		10	10 .76E-8 6 .11E-7 2 .30E-7 -2 .66E-9 -6 .39E-8		10	10 .13E-7 6 .27E-7 2 .78E-7 -2 .23E-7 -6 .25E-7			
	15	10 .14E-34 6 .23E-34 2 .65E-34 -2 .65E-35 -6 .16E-34		15	10 .51E-8 6 .10E-7 2 .28E-7 -2 .74E-11 -6 .26E-9		15	10 .25E-13 6 .42E-13 2 .12E-14 -2 .12E-13 -6 .29E-13			

Linear Search

Delay ; 2 Minutes

(= 100 m On X-axis)

この傾向は、 x 軸上 ($Y=0$) の探索経路で最も著しく、 Y が大きくなる程、すなわち x 軸から離れてもモニタリングする場合程、ポテンシャルの減少の割合は小さくなる。しかし、Fig.7-10 の期待等濃度曲線からも推測されるように、 θ がある値、計算では、 $\pi/2$ より大きくかつ Y が40~60m以上になると、むしろある程度遅れ時間のあった方が、ポテンシャルは高くなっている。しかし、このような現象は他の探索経路の

場合には認められなかったが、期待濃度分布から、モニタリングボートの速度を変えることによってポテンシャルを高めることが可能になる。しかし、限度以上の遅れがポテンシャルを低下させることは言うまでもない。

4-3-4 で述べた最大発見ポテンシャルの得られる探索経路から計算した結果は 0.24×10^8 であった。これはこれまで計算して来た中での最大ポテンシャル、すなわち、 x 軸上を航行する平行探索の場合のポテンシャル 0.91×10^8 の約 2.6 倍に相当する。

以上のことから、放射性物質の放出に関する何の情報もない時には、現行のように、原子力船の出港後ただ所定のコースを航行してモニタリングを行うことは、非常に長時間の遅れ時間が生じることに相当するので、遅れ時間の発見ポテンシャルに対する影響を考えると、ほとんど役目を果し得ない事が推測される。最良な方法は、直感的な予測結果と一致する通り、4-3-4 で述べたように、原子力船の直後をモニタリングすることであり、その過程で情報が得られれば、モニタリングボートの進行方向を変えれば良い。

第5節 要 約

本章では水圏生態系における放射能汚染に伴う影響評価を行う立場から、モニタリングの問題の一つの側面について論じた。

第2節においては、放射性核種の水産生物による濃縮過程における不確定性を情報理論の立場から評価することを試みた。環境要因や水産生物の個体差等によって、放射能の濃縮度がポアソン分布をなし、その時系列変化が確率過程(マルコフ過程)で表現し得る事は前章で述べたが、その時、過率過程の情報や情報源の不確定性の測度としてエントロピーが濃縮過程に関して定式化された。これによると、濃縮係数(状態ベクトル)のエントロピーは時間と共に増大し、状態 i およびマルコフ情報源のエントロピーは逆に減少するという法則性が認められた。又実験データについて、状態ベクトルのエントロピーと標準偏差とを比較した所、両者の比(エントロピー/標準偏差)は 1.3 ~ 1.5 の範囲内での相関関係が認められた。すなわち、データのエントロピー(

あいまいさは分布の広がりをも表現している。標準偏差の場合には特異なデータがあると、そのために標準偏差の値が大きくなったり、小さくなったり影響を受けやすいが、エントロピーの場合には、上に述べた様に、時間的に一定の傾向を持って変化している。これは理論解析と良い一致が得られており、データの不確実性の評価を、場合によってはエントロピーで取扱う方が適切であろうと思われる。

第3節においては、従来ほとんど顧り見られなかったモニタリングのための水産生物の試料数について、統計的検定論から論じた。モニタリングデータの精度をどの様に決めるか、すなわち、統計的検定における第1種および第2種の過程 α , β を合理的に決定する方法については、なお問題点が残されているが、未知の母平均と不偏分散との比をモニタリングの目的、測定精度等から適当に決定することにより、どれだけの試料数が必要とされるかについて計算した。

第4節では、原子力船の出入港時のモニタリングのあり方を1例として、モニタリングボートによる、原子力船から放出された放射能の探索経路のあり方について、モデルを立案し、理論的な検討を行った。従来の研究は固定汚染源、固定観測点を対象とするものが多かったが、本章では、汚染源、観測点が共に移動する場合を扱っている。ここで扱った例のように、観測者(モニタリングボート)が任意の行動をとり、モニタリング者側にあたることができる場合には、発見ポテンシャルを最大にするような探索経路は、比較的容易に、等濃度曲線を描くことによって、直感的にも予測することができる。しかし、大気汚染の観測をモニタリングカーで、より有効に行いたい場合のように、道路によって制約を受けざるを得ない場合には、ポテンシャルの加法性から、経路ごとの発見ポテンシャルを計算し、それが最大になる経路を提議することができる。

参 考 文 献

- (1) H.J.Dunster, (1964) Environmental Monitoring Associated with the Discharge of Low Radioactive Waste from Windscale Works to the Irish Sea. Health Physics Vol.1, pp353-362
- (2) F.R.Kamath, (1969) Recent Guidelines for Developing Environmental Monitoring Programmes (Land and Water Near Nuclear Installations. in Environmental Contamination by Radioactive Materials. IAEA, Vienna, pp.295-308
- (3) G.M.Watson, (1969) Aquatic Monitoring Programmes. in Environmental Contamination by Radioactive Materials, IAEA, Vienna, pp.309-324
- (4) W.T.L.Neal, (1969) The United Kingdom Approach to Environmental Contamination by Radioactive Materials, IAEA, Vienna, pp.345-356
- (5) H.J.Dunster, (1970) The Objectives of Environmental Monitoring in the Vicinity of Nuclear Facilities in the United Kingdom. in Environmental Surveillance in the Vicinity of Nuclear Facilities. (Ed. William C. Reinig), Charles C Thomas Publisher, pp.5-11
- (6) C.A.Mawson, (1970) Objectives of Environmental Surveillance — A Canadian Viewpoint — . in Environmental Surveillance in the Vicinity of Nuclear Facilities, (Ed. William C. Reinig), Charles C Thomas Publisher, pp.12-13
- (7) J.B.Whipple, (1970) Objectives of Environmental Surveillance — The American Viewpoint — . in Environmental Surveillance in the Vicinity of Nuclear Facilities, (Ed. William C.Reinig), Charles C.Thomas Publisher, pp.14-18
- (8) G.M.Watson, (1972) Environmental Monitoring Program at the AAEC Research Establishment, Lucas Height. Peaceful Uses of Atomic Energy, Vol.11, IAEA, Vienna, pp.341-353

- (9) Principles of Environmental Monitoring Related to the Handling of Radioactive Materials : A Report Prepared by a Task Group of Committee 4, ICRP Publication 7, Pergamon Press (1966) 邦訳. 放射性物質の取扱いに関連する環境モニタリングの諸原則. 日本アイソトープ協会 仁科記念財団
- (10) たとえば, 環境放射能研究会夏季セミナー. 原子力利用と環境問題, 環境放射能研究会講演記録 (1974, 10)
- (11) 三根 久, (1964) 情報理論入門. 朝倉書店
- (12) 猪瀬博編, (1969) システム工学 II, 岩波講座, 基礎工学 21, 岩波書店
- (13) 寺本 英, (1967) マルコフ過程とカオス過程. 新物理学進歩シリーズ 2 槇書店
- (14) 松山義夫, (1964) 放射性物質の海洋処分¹⁾の放射線影響²⁾評価と規制法. 日本原子力学会誌, Vol.6 (7), pp.22-27
- (15) 北川敏男, (1958) 推測統計学 I. 岩波全書, 岩波書店
- (16) M.Kadokawa, (1972) Theoretical Aspects of the Field Radiological Monitoring System for a Reactor Accident, (I), Fundamental Descriptions. Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.9 (4) AEC of Japan pp.203-212
- (17) M.Kadokawa, (1972) Theoretical Aspects of the Field Radiological Monitoring System for a Reactor Accident, (II) Optimum Design Principles. Journal of Nuclear Science and Technology, AEC of Japan Vol.9 (6), pp.357-365
- (18) C.A.Pelletier, (1970) Performance and Design of an Environmental Survey. in Environmental Surveillance in the Vicinity of Nuclear Facilities. Proc. of a Symposium Sponsored by the Health Physics Society, Ed. W.C.Reinig, Charles C.Thomas Publisher, pp.55-65
- (19) 多田和夫, (1973) 探索理論. 日科技連出版社
- (20) B.O.Koopman, (1956) The Theory of Search I, Kinematic Bases. Operation Research, Vol.4 (4), pp.324-346

- (21) B.O.Koopman, (1956) The Theory of Search, II , Target Detection. Operation Research, Vol.4 (5), pp.503-531
- (22) B.O.Koopman, (1957) The Theory of Search III, The Optimum Distribution of Searching Effort. Operation Research, Vol.5 (5), pp.613-626
- (23) N.Blackmant and F.Proschan, (1959) Optimum Search for Objects Having Unknown Arrival Times. Operation Research, Vol.7 (5) pp.625-638
- (24) J.Guenin, (1961) Optimum Distribution of Effort ; An Extension of the Koopman Basic Theory, Operation Research, Vol.9 (1),pp.1-7
- (25) J.M.Dobbie, (1968) A Survey of Search Theory. Operations Research Vol.16 (5), pp.525-537
- (26) S.M.Pollock, (1970) A Simple Model of Search for a Moving Target. Operations Research, Vol.18, pp.883-903

第8章 結論

第1節 本研究の概要と主要な成果

本論文は、わが国の生活様式と関連の深い水圏生態系における放射性核種の挙動に関する多様な問題の中から、放射線影響評価を行うための基礎的な、研究をまとめたものである。ここでは、本研究の概要と主要な成果を、各章別に述べる。

第1章においては、環境の放射能汚染源となる放射性廃棄物の性状と発生の問題および、水圏生態系における放射性核種の挙動を研究する場合の筆者の考え方について述べた。

第2章では、低レベル放射性固体廃棄物の深海投棄処分に伴う影響評価を行った。セメント固化体からの放射性核種の浸出特性についての実験結果は従来の研究成果を、追認することになった。深海に放射性廃棄物が投棄処分された場合を想定して、海洋表層における放射能濃度をセメント固化体からの核種の浸出特性を考慮しながら、予測し、さらに、予測式中に含まれる種々のパラメータの、放射能濃度に及ぼす影響の程度を感度解析の手法によって定量的に評価した。放射性廃棄物を深海に100年間連続投棄すると、原子力発電所から発生する低レベルの放射性廃棄物だけでも、海洋表層における ^{137}Cs の平均濃度が 10^{-2} pCi/l になる可能性がある。 ^{60}Co の場合には、その発生量は ^{137}Cs より20倍も多いが、セメント固化体の ^{60}Co 保持力が強いいため、また、その物理的半減期が短いこともあって、表層の濃度は、 ^{137}Cs の約100分の1になることが予想された。濃度予測式中のパラメータの感度解析の結果、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co の両核種の場合とも、長期的には、廃棄物の投棄地点深度が、表層の放射能濃度に最も強い影響を及ぼすことがわかった。しかし短期的には、セメント固化体の核種保持力や深海における鉛直拡散係数が重要な因子になる場合があることが明らかになった。わが国では、低レベル放射性廃棄物の深海投棄処分が現実の問題となり、実施が日程にあがりつつある現在、本章での成果は、投棄処分を行う場合の一つの指針を与えることになる。

第3章においては、淡水中における放射性核種の存在状態に関する実験的な検討を行

い、併せて水中に存在する代表的な無機配位子との金属錯体形成反応について若干の理論的考察を行った。水中における重金属の存在形態として、コロイド状と粒子状とを実験的に分離することは、必ずしも容易ではない。しかし、イオン状との区別は、セロファン膜を用いた透析法による実験によって、セロファン膜の孔径 24\AA を境として可能である。実験に用いたどの元素も、透析開始後、約10時間ではほぼ平衡に達し、30時間後には、透析は完了したと見なし得た。元素によって変動はあるが、pH 5~10の範囲内で、透析率で約30%の差が認められた。又、陰陽両イオン交換樹脂への金属イオンの吸着特性を調べることによって、金属イオンの電荷状態を検討した。金属イオンの、イオン交換樹脂への分配係数の pH による変化と錯形成反応の計算結果とは良い傾向の一致を見た。すなわち、ある一定値以上の pH 領域では $[\text{OH}^-]$ の配位子と結合するヒドロキソ錯体が優位種となり、2次、3次と逐次反応が進むにつれて、金属イオンの酸化数は減少し、それに応じて、陽イオン交換樹脂による分配係数も減少した。 ^{90}Y を除くどの核種も、メンブランフィルターへの吸着は、pH9以下では2%程度で少なく、pH9.5~10位になると約5%と高くなった。 ^{90}Y では pH6.0 で10数%、pH10では20数%の吸着が認められ、コロイドの生成が予想された。

第4章では、藻類による濃縮過程の動力学に関するモデルについて論じた。藻による放射性核種の摂取速度に比較して、生体量の増加が速い生物の場合、生物集団における平均的な放射能の相対濃度が減少するという生物学的希釈効果が見られる。この生物学的希釈効果が存在することは既に従来の研究においても指摘されていたが、動力学的モデルとして、この現象を把握されてはこなかった。藻の生体量が一定の時、放射能の濃縮過程が一次の微分方程式で表現されることを確認した上で、このモデルに藻細胞の増殖速度を組み入れることによって、生物学的希釈効果の定量的表現を試み、実験的に検証した。しかし、この考え方は、セシウムのような核種の場合のように、一次の微分方程式から得られる指数関数モデルの適合するものと、元素によっては適合しないものが存在することが明らかになった。すなわち、水中における元素の存在形態や、対象とする元素が生物にとって、必須元素であるか否かによっても、藻による元素の摂取機構が異なることがわかった。本章で述べたモデルは、魚のような個体生物の成長過程と放射能濃縮過程とが同時に起る現象を説明することが可能になる。

第5章では、水圏生態系における放射性核種の移行の重要な一形態である食物連鎖 (Food chain) を通しての生物濃縮のモデルについて論じた。このモデルは、従来提案されていたモデルを改良、展開したものである。このモデルでは、食物連鎖による寄与を表わす摂取速度係数の概念を定義し、その生理学的、栄養生態学的な意義を明らかにした。すなわち、被食者 (Prey) および、捕食者 (Predator) の生体量と、放射性核種の捕食者による同化率とを用いて定義し、食物連鎖を通しての物質移行速度係数 (摂取速度係数) を実験的に求められることを示した。この考え方をふえんさせて、食物網 (Food Web) を通しての放射性物質の移行モデルを展開し、数値実験を行った。それにより、食物網における各栄養段階に存在する生物の放射性物質の濃縮能は、その位置する栄養段階のみに規定されるのではなく、種々の生態学的パラメータ、すなわち、各生物の生態学地位によって規定される摂取量や、生物個体に固有の元素同化率や摂取、および排泄速度係数等の生態系内における生物相互の相対的な関係によって決定されるということが明らかにされた。更に、感度解析によって、放射能の濃縮に及ぼす各パラメータの影響の程度を定量的に評価した。生態学において食物連鎖は、とりわけ重要な概念であり、この食物連鎖を通しての物質移動の研究は生態学的に重要な部分を占めている。本章では、放射性核種を対象として研究を行ったが、ここで述べた議論は、重金属や、他の一般環境汚染物質にも適用できるものであり、食品を通して、人間への有害物質の影響評価を行う場合にも有用な工学的示唆を与えるものと考えられる。

第6章では、水産生物による放射性核種の濃縮過程という不確定性の強い確率的現象を確率過程の導入により説明することが試みられた。

先ず始めに、放射能の濃縮過程を単純定常マルコフ過程で記述した。マルコフ過程は初期の状態ベクトルと推移確率行列とによって、全ての状態の時間的変化が決定される。この推移確率行列を吸収状態を有する三角行列で表現することによって、水産生物体内の放射能濃度分布の時間的変化を予測し得た。推移確率行列を三角行列で表現することの利点としては、計算が幾分容易になること、汚染状態が各非吸収状態に存在している平均日数および平衡値の吸収状態に至るまでに要する平均日数が計算できること等をあげることができる。マルコフ過程の定常性を仮定すると、推移確率行列が一

意的に決定されるので、環境水中の放射能濃度が増加するような場合には、一般的な適用ができない。問題は推移確率を求めることではなく、濃度段階の存在確率を得ることにある。そこで、この問題を解決するために、水産生物の個体レベルにおいて、微小時間内に摂取および排泄が起る現象を確率現象として見直した。これは、結局マルコフ過程の確率に関する微分方程式をたてることになり、マルコフ過程の一つである出生死滅過程(Birth-Death Process)と呼ばれるものに相当する。この方法により、推移確率を求めずとも、直接に存在状態の確率分布を得ることができ、更に環境水中の放射能濃度が増加する場合にも、また食物連鎖を通じた放射性物質の移行の問題に対しても、濃縮過程の確率論的、一般的把握が可能になった。この方法による計算から得られる水産生物の放射能濃度分布は、ポアソン分布になり、分布の平均値は第5章で述べた濃縮過程のコンパートメントモデルに基づく指教関数で表わした決定論的の一点推定値と等しくなることがわかった。

確率論的方法と決定論的方法は数学モデルを大別する一つのカテゴリーである。厳密には、ほとんどすべての生物過程は確率的であり、その意味において確率論的方法こそ、むしろ実用モデルであると言えよう。ただその生物過程における多くの個体は、平均として、一つの決定論的な経過をたどるものと考えられる。すなわち、上に述べたように、決定論的方法は現実の確率過程の平均の状態を表わしていることになる。

本章で述べたように、水産生物の放射能濃度を分布として把握することは、放射能汚染生物を人間が摂取した場合の個人被曝線量を評価する上に重要である。また平均値で評価する場合にも、その内部の統計的な構造を理解しておくことが必要である。更に放射能汚染域で、生物をモニタリングの指標とする際、本章で得られた結果は、データの統計的解釈をする上に重要な示唆を与えてくれる。

7章では水圏における放射能汚染のモニタリングに関して、示標生物の確率・情報論的評価の方法および、海洋における放射能汚染の探知計画について論じた。

先ず、第6章で述べた水産生物による放射性物質の濃縮過程における不確定性の測度を表わすために、情報理論におけるエントロピーの概念を導入した。本文中においても述べた様に、エントロピーは抽象的な概念規定であり、現象との物理的な対応はないが、濃縮過程の時間的变化とともに、濃度分布のエントロピーが増大するという、熱力

学的法則に一致する性質が発見された。 エントロピーと濃縮過程という実在の系との物理的な対応関係についての十分な考察を展開するに至ってはいないが、エントロピーはある分布についての判断に対するあいまいさの測度であると考えられ、また、個々の水生生物が放射能を摂取し、排泄するという現象を生物集団に対して、ランダム性の概念を用いて、拡散現象のように本質的に不可逆な現象であると考えれば、エントロピーが時間と共に、増大することが説明される。

次に統計的に有意な示標生物の試料数を決定する方法を平均値の統計的検定論の局所推定論の問題として考察した。 一般によく用いられている有意水準 ($\alpha=0.01, 0.05, \beta=0.1, 0.2$) のもとで、統計的に有意なデータを得るために必要な試料数は、有意水準の値よりも、平均値の統計的検定を行う時の帰無仮説と対立仮説の差を観測値の不偏分散の何割まで認めるかによって大きく異なることがわかった。 例えば、両者の比を50%以内に抑えようとするれば、50~60の試料数が必要であるが、その比を2倍にすると、せいぜい10あれば十分であるとの結果を得た。

海洋汚染の探知計画については、原子力船による放射能汚染を一例として取りあげ、水中の放射能濃度に比例した瞬間探知確率密度を仮定し、それに基づく発見ポテンシャルを定義した。 この発見ポテンシャルの大小によって、モニタリングポートによる探察行路の適否を判断し、最良な探察航路の決定方法について提案した。 これまで、汚染源や観測点が固定している場合についてのモニタリング方法に関するいくつかの提案がなされているが、汚染源や観測点自身が移動する場合についての研究はほとんど、見当らず、本章で述べた考え方は新しい提案であり、例えば、観測車で大気汚染を測定・監視する様な場合に、観測車の有効な走行コースを決定する問題に適用することができる。

第2節 本研究の問題点と今後の課題

前節では、本研究において得られた主要な成果について述べたが、ここで取りあげた問題はいずれも、なお研究過程にある問題であり、今後一層明らかにされねばならない

課題が多い。以下、順を追って問題点に触れる。

第2章で扱った放射性廃棄物の深海投棄処分は、我国においても、すでに具体的な計画段階に達している。本研究では、セメント固化体からの放射性核種の浸出を計算するとき、固化体が被覆されず、直接海水に接すると仮定しているが、実際にはドラム缶のような投棄容器の内に封じ込められるので、容器の物理的強度との関連で、放射性核種の浸出性は抑制されることになろう。しかし逆に容器が水圧のため破壊し、固化体が粉々になった場合には、浸出特性は、又、異なったものになろう。固化体が海底で遭遇すると思われるいろいろな状況のもとでの実験が必要である。一方海洋特に、深海における海象条件に関する知見が、極めて乏しい現時点においては、本文中で述べたような仮定のもとに近似的に評価せざるを得ない。海洋モデルについては、本文中で用いた二層モデル以外にもいくつかのモデルがあるので、相互に比較検討しておくことも必要である。さらに、具体的な投棄地点が決定されたなら、海象条件、生態学的条件を加味した海洋調査に基づいた、パラメータを決め、条件適合した新しいモデルの開発も必要となろう。

第3章では、元素の化学形態を知る実験を京都市内を貫流する河川水を試料とする、事例研究として行ったが、河川水の様には水質変動が激しい場合に、水中における微量重金属の物理化学的存在形態を、より一般的に論じるためには、十分な数の実験データを集積することが肝要である。また理論的には、非平衡な化学反応動力学として把握することも必要であろう。しかし、化学平衡論的に取り扱う場合も、系が、簡単な組成から成る時には良いが、天然水のように多成分から成る時には、手計算では、限界がある。また計算機によって解いたとしても、自然の状態を一般的に模擬することは、非常に困難であり、現象の個別性を、一般論として取扱い、放射生態学の問題にどのように取込むかは、今後の重要な課題である。

第4章の藻による放射性核種の濃縮実験は、バッチ培養によって行われた。バッチ実験では、藻の増殖に応じて培養液中の栄養塩濃度が変化してゆくので、長期間にわたる放射性物質の濃縮についての生理学的機構を、より一層厳密に研究するためには、環境条件を実験期間中一定に保つためのケモスタット(Chemostat)のような装置を用いて、連続フロー培養による実験を行うことが望ましいと思われる。本実験は、藻類

培養の一般的方法に基づいて、十分な栄養塩濃度が存在し、かつ高い藻密度の条件下で行われたものであるが、自然環境下では、藻は栄養塩濃度も低く、厳しい環境条件下にさらされている。また、自然界では、本実験のように純粋培養されるのではなく、多種の藻やバクテリアが混在している。この様に、特に藻の培養実験は自然環境下とは際立った相異があるので、自然条件下でのデータと、実験条件下でのデータとを相互に比較し、より一般性のある知見を得るための研究方法自体についての考察もなされなくてはならない。

第5章は1つの理想状態における食物連鎖を通しての放射性物質の移行の法則性について論じたものである。生態学において、生態系の構造に関する研究は、複雑な構成要素の中から主要な要素を抽出し、その相互の関連性を把握するという方法を取っており、本章の研究も、物質の移行という点に着目して、同様の研究方法に従った。しかし、実際の自然環境下では、餌料密度の変化、生物集団の空間分布の動態、分布の安定性、食物網の構造の季節変化等、時空間的な変動があるので、より現実に近いモデルをたて、野外での観測データとの対比を行うためには、今後、上に述べた種々の要因を含む総合的な生態学的、物理化学的環境要因に関する情報の収集と、それらを考慮に入れた実用モデルへの展開が計られねばならない。

第6章では、水産生物による放射性核種の濃縮過程を確率過程として把握し、まずオ1に、吸収状態を有する単純定常マルコフ過程で表現した。この様に吸収状態を仮定することは、 $t \rightarrow \infty$ において、放射能の濃縮段階が全て一つの状態(吸収状態)に集中することになり、濃縮過程では、濃度分布の理論値との現象論的な一致は得られても、 $t \rightarrow \infty$ の平衡時における分布が得られないという欠点がある。これを避けるためには、推移確率行列を三角行列で表わすのではなく、高い汚染状態から低い状態への推移確率を考えねばならない。そうすると、0でない行列の要素が増え、これら数多くのパラメータを実験的に決定することは、容易でない。確率論的な研究方法は、すべてそうであるが、本研究においても、放射性核種の生物学的濃縮という現象の生理的な本質に立脚した説明にはならない。しかし、放射性核種や一般重金属の生物学的濃縮において、何故濃度分布が起るかということが、生理学的に説明されることは極めて困難であると思われるので、確率論的な手法の有効性が失われることはないであろう。

第7章において、先ず第一に、放射性核種の水産生物による濃縮過程における不確定性の問題をエントロピーによって、定量的に評価したが、前にも述べたように、エントロピーは抽象的な概念であって、実在の系における現象との関連については、十分な説明がなされていない。第2番目には、統計的仮説検定による試料数が計算された。ここで問題になるのは、仮説検定に伴う2つの過誤、すなわち、帰無仮説が正しいにもかかわらず、それを棄却することによる第1種の過誤(α)と、対立仮説が正しいにもかかわらず、帰無仮説を採択することによる第2種の過誤(β)の値をどのようにして決定するかということである。これらの値をいくらにとるかは、統計学以前の問題であって、それは検定すべき対象によって、いろいろと異なるべき性質のものである。今、放射能汚染の指標物として、水産生物を取りあげた時、 α 、 β の値をどの様に決めるかは、たとえば、環境要因の不確定性と水産生物中の放射能濃度との関係、放射能測定信頼度、放射線影響評価の信頼度、等に依存すると思われるが、現在ではまだ考え方が確立するに至っていない。第3番目には、汚染探知のためのモニタリング行路の問題について論じ、ここでは観測者の経路決定の最適性の基準として、発見ポテンシャルの最大化を採用した。この基準には、他にも、発見確率の最小化、投入努力に対する限界効用の最大化等の最適性基準が考えられ、また探査のための投入努力の最適配分の問題等、数学的な新しい理論展開が期待される課題も多く残っている。さらに、本理論の出発点になっている瞬間探知確率密度については、放射能測定器の検出限界、ノイズとなるバックグラウンド放射能の影響などの問題を考慮した新しい別な定義付けも考えられるであろう。ここでは、計算を簡単化するため、瞬間探知確率密度を期待濃度分布に比例するとして、拡散方程式の解析解をそれに当てはめたが、実際の海洋では、解析解通りに、期待濃度分布が得られることは、あり得ないと考えた方が良く、現実に適合した濃度予測の方法を充たすことが必要とされる。いずれにせよ、汚染物質の探査行動のあり方を論じるのに、発見ポテンシャルの概念を軸とする理論展開が、なし得るであろうと思われる。

第3節 結語

本論文は水圏生態系における放射性物質の挙動に関連する多くの問題の中から、いくつかの基礎的な問題ととりあげて検討し、放射能汚染に関連する安全性、影響評価の問題について論じたものである。自然生態系の有する複雑性、多様性から見ると、放射生態学における現在の知見は余りにも乏しいものである。放射生態学自身も、まだ新しい分野で、十分な学問体系が確立されるに至っていない現状である。本研究もその問題点の一面に触れているにすぎないが、ここで展開した水圏生態系における放射性物質の挙動に関する研究は、環境の放射能汚染を論じる上に重要な一環をなすものだと確信している。

筆者は7~8年前に、エルトン著の Animal Ecology の本を読み、一見無秩序に見える自然の中に多くの法則性のあることに驚き、生態学に強い興味をもつようになった。その後放射生態学に関心を持つに至ったのは、ある水産学者の一言に触発されたためである。当時、生態学が環境問題と強い関連性を持つに至るとは考えなかったが、環境汚染を1つの研究対象とする衛生工学の研究者に多くの示唆を与えるものと感じていた。

今日程に、生態学が環境問題との関連で議論される以前から、筆者の関心を理解され、研究をすすめるにあたって御恩恵を賜った京都大学工学部衛生工学教室岩井重久教授に、先ず謝意を表す。また本研究を遂行するに際し、終始御懇切な御指導、御助言を賜わった。同、井上頼輝教授、本論文をまとめるに際して親切な御助言を賜わった。同、寺島泰助教授、京都大学原子炉実験所筒井天尊教授を始め、本研究の実験、計算等をすすめる上に御協力戴いた、放射線衛生工学研究室の関連方々に深甚の謝意を表する次第である。

なお、論文中の計算は京都大学大型計算センター FACOM 230-60, 75 を使用したことをここに記す。