

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 27 日現在

機関番号：33920

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24592568

研究課題名(和文) 耳石における放射性物質の動態変化と濃縮予防への挑戦

研究課題名(英文) Effects of Fukushima nuclear power plant accident on radioactive materials in fish and fish otoliths

研究代表者

谷川 徹 (Tanigawa, Tohru)

愛知医科大学・医学部・准教授

研究者番号：10367758

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：2013年7月に福島県と広島県で捕獲したアユを使用し、耳石から見た福島原発事故による放射性物質の魚体への影響について検討した。アユ魚体のセシウム濃度はGe半導体検出器で測定。体内セシウム排泄遅延の指標として耳石のSr/Ca比を質量分析計にて測定した。耳石自体の放射能汚染についてはイメージングプレートで計測した。

福島県産アユでは、 $6.2 \pm 3.5$  Bq/Kgと微量ではあるがセシウム(134+137)が検出された。両群とも耳石のSr/Ca比は低下しておらず、セシウム排出遅延の影響は少ないと考えられた。耳石自体からの放射性物質の検出も認めなかった。原発事故後の魚体の汚染は軽度なものと考えられた。

研究成果の概要(英文)：We investigated effects of Fukushima disaster in fish. Ayu were collected from Fukushima and Hiroshima in July 2013. Cesium concentrations were measured with a germanium semiconductor detector. As an index of the cesium elimination delay, Sr/Ca ratios in otoliths from the two sites were compared using laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry. As an index of radiostrontium contamination, beta ray emissions from the otoliths were measured using an imaging plate.

Radiocesium was not detected in Hiroshima ayu but was in Fukushima ayu ( $6.2 \pm 3.5$  Bq/Kg-wet of 134Cs plus 137Cs). No differences in Sr/Ca ratio was found between otoliths from the two sites, and otoliths did not emit beta rays. Examination of otoliths revealed that Fukushima and Hiroshima ayu grew under environments of near-identical salinity, suggesting that the former exhibited no delay in radiocesium elimination. Overall, contamination of ayu after the Fukushima nuclear power plant accident appears slight.

研究分野：耳科学

 キーワード：魚類 放射性セシウム 耳石 微量元素 レーザーアブレーション 質量分析 イメージングプレート  
ベータ線



製 GEM25P4-70、相対効率：29.40%、コバルト-60 (60Co) の半値幅分解能：1.78keV) 付きガンマ線スペクトロメータを使用した。この機器には多重波高分析器 (SEIKO EG&G 社製 DSPEC-jr-2.0-POSGE) およびガンマ線スペクトル分析ソフトウェア (SEIKOEG&G 社製「ガンマスタジオ」および「環境ガンマ線核種分析」) が付属する。

測定方法：バックグラウンド補正には、各ガンマ線スペクトロメータの遮へい体内に試料を入れない状態で 3,000 秒測定して作成したバックグラウンドファイルを使用した。バックグラウンドファイルは測定日毎に更新した。

試料を充填した容器をポリ袋に入れ、試料の充填密度、試料の充填高さに応じた測定時間を設定して測定し、スペクトルファイルを得た後、試料中の放射性物質 (134Cs および 137Cs) の濃度を求めた。定量には、134Cs は 604.7 keV、137Cs は 661.6 keV の線を用いた。ピーク面積の計算はコベル法により行った。自己吸収補正を行った。試料材質は水を設定した。134Cs にはサム効果補正を行った。なお、U8 容器を用いた測定では、測定試料の充填高さを測定して内挿法による高さ補正をおこなった。放射性セシウム 134 及び 137 の線数計数は、U8 容器に検体を入れて原則 20,000 秒間とした。この条件で計数した場合の検出限界は、セシウム 134、137 の合計でおおむね 3 から 4 Bq/kg であった。

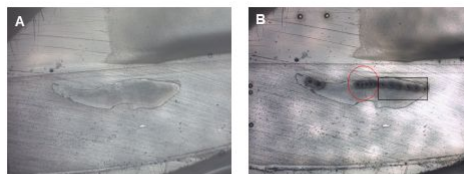
#### (4) 耳石の切片作成

乾燥した耳石 (右側) を長軸方向に垂直な面で半分に切断。耳石の突面が上になるように、市販のキシレン系接着剤 (株式会社ファルマ エクセルマウント) によりスライドガラスに貼り付けた。耳石の核 (中心) が露出するまで (厚さ 0.5 ミリ) 突面から研磨機で研磨し、#2000 (粒度 9 ミクロン) -4000 (3 ミクロン) のラッピングフィルム (三共理化学株式会社) で研磨面を鏡面仕上げして、切片を完成させた (右上図 A)。

#### (5) レーザーアブレーション ICP 質量分析 (LA-ICP-MS) 法による耳石中の微量元素の測定

5 つの同位元素 (23Na, 24Mg, 43Ca, 64Zn, 88Sr) の耳石の各部位における濃度は、レーザーアブレーション ICP 質量分析 (LA-ICP-MS) 法で測定した [15]。使用した LA-ICP-MS システムは Agilent Technologies 社製 7500cx 質量分析計に New Wave Research 社製 UP213 レーザーアブレーション装置 (波長 213nm Nd-YAG レーザーで operate) を付属させたものである。

最初にレーザーをスポット径 30 μm、周波数 4Hz、出力 70% の条件にて試料表面にスポット照射して微粒子を生成した。照射は耳石の核付近を 50 μm 間隔で 5 点 (右上図、赤) 核～辺縁部付近までを 100 μm 間隔で 6 点 (右上図、黒) 施行した。



生成した微粒子を ICP-MS に搬送し、質量数 2 ~ 240m/z (但し測定禁止質量の 14N, 16, 18O, 36, 38, 40Ar を除く) の総イオン強度を測定。半定量解析にて分析元素の含有量を算出した。耳石主成分 (CaCO3) 中の炭素、及び、酸素は LA-ICP-MS では装置起因 (大気プラズマや He・Ar キャリアガス) の影響で、バックグラウンドイオン強度が高く評価できるイオン強度の検出ができないので、それらを除く総イオン強度を CaCO3 中の Ca モル濃度 = 40% でノーマライズして含有量を補正した。すべての元素濃度データはカルシウムに対する相対比 (Na/Ca, Mg/Ca, Zn/Ca, Sr/Ca) で記載した。

#### (6) 耳石の放射能イメージング及び線量測定

ストロンチウム 90 は線を出し、セシウム 134 と 137 は線放出を放出する。イメージングプレートでは線 + 線が検出可能である。魚体からセシウムが検出された福島産のアユ 6 匹および検出されなかった広島産のアユ 6 匹について、左耳石からこれらの放射線が測定されるかどうか、イメージングプレート画像を用いて分析した。

使用蛍光観察装置：Typhoon 9400 (GE Healthcare, 以下 Typhoon)

使用器具：イメージングプレート用カセット BAS Cassette 2025 (FUJIFILM)、イメージングプレート BAS-MS2025 (FUJIFILM)、および市販のクリアファイルを使用。

蛍光観察装置 (Typhoon 9400) の設定：イメージングプレート撮像時の設定は、励起波長 633nm、測定波長 390nm、ピクセルサイズ 25 μm、PMT 電圧 = 規定値。切片プレート撮像時の設定は、励起波長 457nm、測定波長オープン (フィルターなし) ピクセルサイズ 25 μm、PMT 電圧 400V とした。

試験方法：耳石切片スライドガラスをクリアファイルの中に並べて張り付けた (以下、切片プレート)。切片プレートの耳石面をイメージングプレートに重ね、コンタクト中に動かないようにしっかりと固定した。その際、イメージングプレートと切片プレートの撮像画像の重ね合わせの位置調整用に、クリアファイルの四隅に合わせ、イメージングプレートにマジックで印を付けた。これを 3 週間コンタクトした後、Typhoon 9400 (GE Healthcare) でイメージングプレートの蛍



光値(輝尽発光)を読み取り画像化した(放射能イメージング)。また、切片プレートの短波長の吸光度を測定し、切片の形状を画像化した。

解析方法: 付属のソフトウェア ImageQuant TL を使用し、イメージングプレートの撮像画像における耳石周辺に ROI(関心領域)を設定し、総蛍光値、平均値等を算出した。また、切片プレートとイメージングプレートの撮像画像より、重ね合わせ画像を作成した。

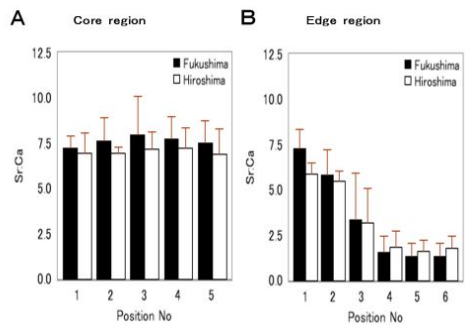
#### 4. 研究成果

##### (1) アコ魚体のセシウム濃度

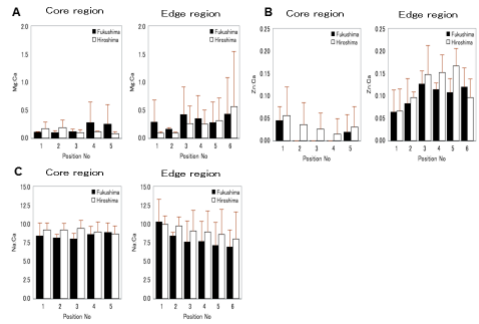
広島県で捕獲したアコ6試料では、セシウムは検出されなかった。福島県で捕獲されたアコ6試料のうち、全試料で放射性 Cs 137 が  $5.8 \pm 2.4$  Bq/Kg と微量ではあるが検出された。また、放射性 Cs 134 は6試料中1試料でのみ微量検出された(2.3 Bq/Kg)

##### (2) アコ耳石における元素分析

生育域の塩分環境の違いを検討するために  $^{88}\text{Sr}$  に着目して検討をおこなった。福島県で捕獲されたアコ2匹(No 3 と 4)、広島県で捕獲されたアコ1匹(No 6)は Sr 値が耳石の中心部分でも低いことから、海水から河川に移動していないアコと考えられた。そこで、これらのアコを除いた福島県で捕獲されたアコ4匹と広島県で捕獲されたアコ5匹で、Sr/Ca 比の比較検討を行った。耳石 Sr/Ca 比は、耳石中の中心部(Core region)および周辺部(Edge region)のすべての部位において、福島県で捕獲されたアコと広島県で捕獲されたアコとに有意差を認められなかった(下図 A と B)。

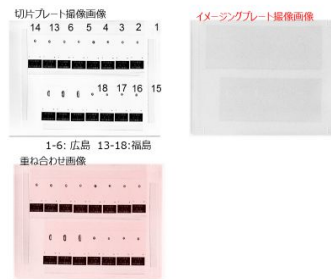


また、Mg、Zn、Na の成分分析の定量も行ったが、2群間にて、これら元素含有量に違いは認めなかった(右図 A ~ C)。過去の報告と同様に、福島産、広島産ともに、Mg および Zn の含有量は耳石の周辺、すなわち低塩分環境下で増加していた。以上から、福島県で捕獲されたアコのセシウム検出には、セシウム排出遅延の影響は少ないと考えられた。



##### (3) 耳石の放射能イメージング及び線量測定

一般的に、放射線防護の際に問題となるのは、線、線、線、X線 および 中性子で、ストロンチウム90は 線を放出する。イメージングプレート(IP)は 線や低エネルギーの 線に対して高い感度を持っている。イメージングプレート撮像 ROI (ROI: region of interest) 設定(下図)による蛍光強度のまとめを表に示す。すべての検体で、耳石由来の放射線はスライドガラス由来の放射線とほぼ同等あるいはそれ以下であった。イメージングプレートで検出できる程の放射能が無かったものと考えられた。



試料 No	試料名	Fluorescence Intensity					
		Total	Average	Min	Max	SD	
1	14	450	1488.85	2.32	0.01	107.8	1.87
2	7	764	2227.25	2.82	0.09	12.61	2.33
3	807	1245.46	2.47	0.07	13.96	2.1	
4	828	2728.82	2.82	0.12	12.84	2.06	
5	481	1950.02	2.35	0.13	18.4	2.31	
6	184	1709.42	2.62	0.2	15.75	2.2	
7	11	801	1483.3	2.1	0.05	11.24	1.29
8	936	1896.14	2.09	0.02	16.84	1.88	
9	898	1228.34	2.17	0.18	14.4	2.08	
10	747	2242.25	2.82	0.08	16.13	2.74	
11	728	1789.01	2.46	0.05	11.75	2.04	
12	3225	1288.89	2.14	0.05	12.24	1.92	
13	3128	1882.44	2.17	0.08	10.16	1.8	
14	3040	2722.76	2.81	0.02	14.61	2.28	
15	18150	28792.29	2.17	0.01	42.35	1.91	
16	3204	7248.8	2.23	0.02	13.24	1.97	
17	12040	28824.49	2.49	0.01	45.14	2.17	
18	17540	31446.78	1.82	0.01	50.85	1.78	

- スライドガラスの平均蛍光強度は2~3程度であり、各耳石の平均値も同様に2~3程度であった。
- 最高蛍光強度は耳石周辺 (Inner BG1) 部分が70と最も高く、耳石では通番16の35が最高であった。

#### (4) 考察

2013年に福島県で捕獲されたアユにおいて、放射性 $^{134}\text{Cs}$ や $^{137}\text{Cs}$ が検出されたが、その程度はごく微量であった。また、福島県で捕獲されたアユの耳石のSr/Ca比は低下しておらず、生育域の塩分環境の違いによるセシウム排出遅延の影響は少ないものと考えられた。また、耳石自体からの放射性物質の検出も認めなかった。これらの事実は、現状の福島原発事故後の放射性物質の魚体への影響は軽度なもので、ただちに健康に被害を及ぼす程度ではないことを示唆している。

各自治体の定期検査では、魚介類の放射性物質の濃度は、全体的には低下傾向にある。一部でなお濃度の高い魚が見つかる理由は分かっておらず、被災地の漁業の復興に向け詳しい原因の解明が課題となっている。水産総合研究センターの24年度報告書の中でも汚染持続のメカニズムを解明することで、水産物の信頼性確保と風評被害の防止に貢献できると述べている。本研究では、検討した魚の数が少なく、アユだけの検討であるが、耳石を用いることにより、詳細にまた簡便に放射性物質の魚体への影響について検討できることを示している。今後も継続して調査を行う予定である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計1件)

谷川徹、柴田玲、片平信行、野々山宏、堀部裕一郎、矢野原元、星野哲郎、植田広海  
耳石から見た福島原発事故による放射性物質の魚体への影響について  
第117回日本耳鼻咽喉科学会総会  
平成28年5月21日 名古屋市

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

谷川 徹 (TANIGAWA TOHRU)  
愛知医科大学耳鼻咽喉科・准教授  
研究者番号：10367758

##### (2) 研究分担者

なし

##### (3) 連携研究者

なし