氏 名 木 村 雄一郎

学位の種類 農 学 博 士

学位記番号 論 農 博 第810号

学位授与の日付 昭和54年7月23日

学位授与の要件 学位規則第5条第2項該当

学位論文題目 水圏における放射性物質の物理化学的挙動と生体濃縮に関する

研究

(主 查) 論文調查委員 教授 桂山幸典 教授 門田 元 教授 岩井 保

## 論文内容の要旨

本論文では、まず、原子力施設から放出される放射性物質の周辺環境における挙動に関し、放射生態学ならびに放射線管理学の立場から重要視されている 60Co 106Ru 及び 144Ce をとりあげ、これ等の淡水及び海水中における物理化学的挙動を調べている。次にこれ等放射性物質の環境水圏における生体濃縮について、クロレラ、人工受精した虹鱒卵、孵化稚魚及び幼魚、また、指標生物としてよく用いられるムラサキインコ貝を用いその発育増殖過程における摂取、蓄積及び排出に関し実験水槽を用い研究している。その主な内容は次のとおりである。

- 1.  $^{60}$ Co は,海水及び淡水中において導入当初は主として単一陽イオン種として存在するが, 時間とともに不安定となり電気的中性種が増加した。単一陽イオン種以外としては,加水分解によるハイドロオキシ錯体が生成し,特に海水中では  $SO_4{}^{2-}$  とのイオン対生成の可能性が認められた。また,溶存有機物質としてのアミノ酸が比較的豊富に存在するときには,アミノ酸コバルト錯体が生成することを確かめた。
- 2. 108Ru は、各種のイオン形で存在するが、その割合は 108Ru のもとの化学形によりそれぞれ異なることが確かめられた。特に核燃料再処理廃液中に存在するニトロシルルテニウム錯体は、その高次錯体が水中におけるエイジングとともに低次錯体となり、特に海水中では荷電種もコロイド状や粒子状で存在することが多いことを確かめた。
- 3. <sup>144</sup>Ce は、海水及び淡水中において導入初期に陽イオン種として存在したものが 比較的速やかに加水分解され、その結果として電気的中性種あるいは陰イオン種が増加し、これ等は強い吸着性を示すとともにコロイド状あるいは粒子状で存在することを確かめた。
- 4. 海水培地におけるクロレラによる蓄積については、そのパターンが放射性物質の存在状態により異なることが認められた。 濃縮係数は、 $^{60}$ Co で  $2\times10^{3}$ 、 $^{144}$ Ce で  $6\times10^{3}$ 、 $^{106}$ Ru で  $3\times10^{2}$  であった。
- 5. 虹鱒卵による放射性物質の摂取蓄積及び排出については、全般に水中に溶存する  $^{60}$ Co,  $^{137}$ Cs は速く  $^{131}$ I,  $^{144}$ Ce がこれに次ぎ  $^{106}$ Ru は遅い。また、実験的に得た濃縮係数と指数関数モデルに基づく算出値がほぼ同じであることを確かめた。しかし胚に対する被曝線量の孵化率への影響には有意差が認められ

なかった。

6. 虹鱒の孵化稚魚及び幼魚の発育段階における放射性物質の摂取、蓄積及び排出に関しては、放射性物質の存在形態と稚魚の成長段階とによって異なり幼魚においては特に明確になることを認めた。

さらに胚における被曝線量と孵化率との関係では、 $^{60}$ Co の 2.7 ラドから  $^{106}$ Ru の約 4.5 ラドの範囲では有意差が認められなかった。

7. ムラサキインコ貝によるトリスグリシナトコバルト錯体と無機イオン形コバルトの摂取蓄積及び排出の比較研究の結果、全体的な濃縮係数は無機イオン形の方が大でありまた、両化学形とも足糸、消化管を含む内臓及び鰓において高い濃縮がみられた。実験水槽における挙動に関しては、両化学形の間に顕著な差が認められた。すなわち、トリスグリシナトコバルト錯体では約90%が水中に存在したのに対し無機イオン形では約50%で両者の海洋中における分布と挙動が異なることを明らかにした。

## 論文審査の結果の要旨

原子力施設から放出される放射性物質の環境生態系における摂取,蓄積及び排出などの挙動は、最終的に周辺環境に住む人の被曝線量を推定評価する上で重要である。特に生物における濃縮係数は、核種とその化学形、生物の種類とその生育の時期などによって異なるため従来多くの研究が行なわれているがまだ十分解明されたとは言えない。また、水生生物のうちでも魚卵、稚魚及び幼魚を対象としたものはきわめて少ない。

本論文は,放射性核種として重要視されている  $^{60}$ Co, $^{108}$ Ru 及び  $^{144}$ Ce を主としてとりあげ,さらに比較のため  $^{131}$ I 及び  $^{137}$ Cs なども用い,海水及び淡水中におけるこれ等放射性物質の挙動と水圏生態系における濃縮等について,クロレラ,虹鱒及びムラサキインコ貝などを用い,実験的に研究したものである。

まず、放射性物質の海水及び淡水中における物理化学的挙動に関し、6°Co は導入初期には単一陽イオン種であるが時間の経過とともに不安定となり、電気的中性種が増加することを確かめた。また、加水分解によって種々のハイドロオキシ錯体が生成し、特に海水中にアミノ酸(グリシン、アラニン、アスパラギン酸など)が比較的豊富に存在する場合にはアミノ酸コバルト錯体などが生成することを確かめた。106Ruは陽イオン種、陰イオン種及び電気的中性種として存在するがその存在割合はもとの化学形により特徴のあること、また、ニトロシルルテニウム錯体は時間とともに高次から低次の錯体あるいは非錯体に変化し海水中ではコロイド状あるいは粒子状として存在することなどを確かめた。144Ce は導入初期には、陽イオン種として存在するが比較的速やかに加水分解され、電気的中性種と陰イオン種が増加し、これ等はコロイド状あるいは粒子状で存在し強い吸着性を示すことを明らかにした。

クロレラによる放射性物質の蓄積については、放射性物質の存在化学形によって異なることを明らかにし、蓄積平衡時における濃縮係数として、 $^{144}$ Ce は  $6\times10^3$ 、 $^{106}$ Ru は  $3\times10^2$ 、 $^{60}$ Coは $2\times10^2$  を得ている。

人工受精した虹鱒卵では,摂取,蓄積及び排出とも,その速度がイオン状で存在する  $^{60}$ Co と  $^{137}$ Cs の場合には速く, $^{131}$ I 及び  $^{144}$ Ce がこれに次ぎ,錯体として存在する  $^{106}$ Ru では概して遅い。また,蓄積平衡時における濃縮係数として, $^{144}$ Ce は  $^{120}$ ,  $^{106}$ Ru はニトラ錯体で  $^{14.5}$ , ニトロ錯体で  $^{11.0}$ , 複核錯体で  $^{6.8}$ ,  $^{60}$ Co は  $^{7.0}$ ,  $^{131}$ I 及び  $^{137}$ Cs は  $^{0.4}$ を得ている。

虹鱒の稚魚及び幼魚では成長とともに摂取率、代謝回転率などに差があり、幼魚では消化管を含む内臓 及び鰓の濃縮係数が高いことを明らかにしている。

ムラサキインコ貝による実験では、放射性物質の蓄積等について、トリスグリシナトコバルト錯体と無機イオン形コバルトとの比較を行ない、両化学形とも濃縮係数は足糸、消化管を含む内臓及び鰓で高く、全体としては無機イオン形が高いことを明らかにした。また、実験水槽内でトリスグリシナトコバルト錯体は約90%が水中に存在したのに対し無機イオン形コバルトは約50%と少なく海水中における両者の挙動に大きな差のあることを明らかにしている。

以上のように、この研究は環境水圏における放射性物質の物理化学的挙動とクロレラ、虹鱒及びムラサキインコ貝など生体による濃縮等について解明したもので、放射線管理学ならびに放射生態学に寄与するところが大きい。

よって、本論文は農学博士の学位論文として価値あるものと認める。