河川における放射性核種の移行と存在形態に関する研究

学位論文内容の要旨

本研究は、大気中に放出された放射性核種により河川の流域を含む広域的な地表面の汚染が起きた場合の環境への影響評価手法を確立することを目的に行ったものである。原子力発電所等の安全評価において用いられる環境中の放射性核種の移行モデルは、多くの場合、大気・土壌そして農作物に関わる部分モデルから構成されている。土壌を経由して河川水が汚染されて飲料水・灌漑水などに移行する経路は、その寄与は小さなものとして従来重視されてこなかった。しかし、チェルノブイル事故は河川経路寄与が人の被ばくについての決定経路の1つになる場合があること、そしてその寄与の大きさは水利用の内容で大きく変わることを示した。このため、河川経路による放射性核種の移行モデルを開発し、国内の環境における河川移行寄与の大きさを評価する必要がある。本研究では、放射性核種の河川移行過程に着目し、環境影響評価のために重要な2つの課題、すなわち放射能汚染が流域土壌から水利用を行う地域へどれだけ移行するのかという移行割合の評価ならびに河川における放射性核種の存在状態について、野外研究ならびにモデル解析による研究を行った。以下に各章の概略を述べる。

本論文は4章で構成した。第1章は序論であり、本研究の目的と背景、これまでの関連研究、そして本論文の構成を述べた。第2章では、河川流域における放射性核種の移行の特性について、国内の2つの河川流域、久慈川流域（茨城県）と斐伊川流域（島根県）で研究を行った。久慈川流域では大気圏内核実験起因の ^{137}Cs そして自然起因の ^{210}Pb 、 ^7Be を研究対象とした。そして、これらの放射性核種の河川による移行量を、河川流量との回帰式から推定する解析手法を確立した。この手法に基づいた年間移行量の推定の結果、それら土壌構成成分への吸着性の強い放射性核種にあっては、河川水中の粒子状懸濁物に含まれて移行する形態（懸濁態）が卓越することを定量的に明らかにした。また、核実験起因の ^{137}Cs の流域蓄積量と年間移行量から、久慈川流域において、その下流へ年間に移行する割合を導いた。斐伊川流域では、流域から下流の水系（宍道湖）の湖底堆積物へ移行した核実験起因の ^{137}Cs を利用し、その蓄積量の経年的な変化を解析した。そして、流域からのその移行割合が1950年代から1990年代に至るに伴って減少していることを示し、一般に流域からの放射性核種の移行量については地表に蓄積後の経年変

化を考慮すべきことを述べた。

第3章では河川における放射性核種の移行過程において、遠方への移動性の観点ならびに浄水プロセスなど水利用の観点から重要な、河川水中での放射性核種の存在形態を研究した。存在形態研究のためには放射性核種の高い濃度レベルが必要であるため、1986年の事故により高度の放射能汚染が生じているチェルノブイル原子力発電所近傍の水系を研究の場とした。同発電所から5~50 km に位置する河川・湖沼において、河川水ならびに水中懸濁物に含まれる放射性核種濃度の一斉分析を行った。その結果、物理的な存在形態区分である溶存態・懸濁態の間の ^{137}Cs 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am の分配については、核種ごとに一定の分配比を適用できることを示した。 ^{90}S の分配比については、pH および共存イオンの影響による炭酸塩の形成を考慮する必要が示唆された。化学的存在形態の研究では、河川水中に溶存する $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am が腐植物質から成る天然有機物と溶存錯体を形成して存在することをチェルノブイルの自然環境で明らかにした。

第4章では、河川水中における放射性核種と腐植物質との錯形成を化学平衡モデルにより解析し、チェルノブイル地域の水環境条件において、Pu、Am 同位体が腐植物質と強く錯形成することを理論的に明らかにした。この結果、野外での観測結果(3章)の合理性を検証することができた。また、国内の河川(久慈川)の環境条件においても、Pu、Am 同位体が溶存する場合、そのほとんどが腐植物質と錯形成して存在することが推定され、河川水における Pu、Am 同位体と腐植物質との錯形成は、一般性のある事象として移行過程の上で考慮すべきことが示唆された。また、堆積物などの固相に広く存在し、放射性核種と結びつき、その移動性に影響を与える鉄・マンガンの酸化物の生成に関しても、室内・野外の観測結果を化学平衡モデルにより合理的に説明した。ここでの結果は放射性核種の河川水中での存在形態の推定に化学平衡モデルの有効性を示している。

以上、本論文に述べた研究により、流域からの放射性核種の移行量の推定手法を示すとともに、河川水中の放射性核種の存在形態の特徴と支配因子を明らかにした。また、河川水中の放射性核種の腐植物質との結びつきを野外観測ならびに化学平衡モデルにより明らかにした。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 澤 村 貞 史

副 査 教 授 大 橋 弘 士

副 査 教 授 清 水 達 雄

副 査 教 授 大 西 俊 之

(医学研究科 (アイソトープ総合センター))

学 位 論 文 題 名

河川における放射性核種の移行と存在形態に関する研究

原子力発電所等の安全評価に用いられる環境中の放射性核種の移行モデルは、多くの場合、大気・土壌そして農作物に関わる部分モデルから構成されている。土壌を経由して河川水が汚染され飲料水・灌漑水などに移行する河川経路は、その寄与が小さいとして、これまで、重視されなかった。しかし、チェルノブイル事故は河川経路寄与が人の被ばくについての決定経路の1つになる場合があること、そしてその寄与の大きさは水利用の内容で大きく変わることを示した。

本論文は、このような状況の下、放射性核種の河川移行過程に着目し、環境影響評価のために重要な2つの課題、すなわち放射能汚染が流域土壌から水利用を行う地域へどれだけ移行するのかという移行割合の評価ならびに河川における放射性核種の存在状態について、野外研究ならびにモデル解析による研究を行ったものであり、主な成果は以下の点に要約される。

(1) 河川流域における放射性核種の移行の特性について、国内の2つの河川流域、久慈川流域(茨城県)と斐伊川流域(島根県)で研究を行っている。久慈川流域では大気圏内核実験起因の ^{137}Cs そして自然起因の ^{210}Pb 、 ^7Be の挙動に着目し、これらの放射性核種の河川による移行量を、河川流量との回帰式から推定する解析手法を確立した。この手法に基づいて年間移行量を推定した結果、土壌構成成分への吸着性の強い放射性核種にあっては、河川水中の粒子状懸濁物に含まれて移行する形態(懸濁態)が卓越することを定量的に明らかにした。また、核実験起因の ^{137}Cs の流域蓄積量と年間移行量から、久慈川流域において、その下流へ年間に移行する割合を明らかにした。

(2) 斐伊川流域では、流域から下流の水系(宍道湖)の湖底堆積物へ移行した核実験起因の ^{137}Cs を利用し、その蓄積量の経年的な変化を解析している。その結果、流域からのその移行割合が1950年代から1990年代に至るに伴って減少していることを示し、一般に流域からの放射性核種の移行量については地表に蓄積後の経年変化を考慮すべきことを明らかにした。

(3) 河川における放射性核種の移行過程において、河川水中での放射性核種の存在形態を調べている。存在形態研究には放射性核種の高い濃度レベルが必要なため1986年の事故により高度の放射能汚染が生じているチェルノブイル原子力発電所近傍の水系を研究の場とした。同発電所から5～50kmに位置する河川・湖沼において、河川水ならびに水中懸濁物に含まれる放射性核種濃度の一斉分析を行った結果、物理的な存在形態区分である溶存態・懸濁態の間の ^{137}Cs 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am の分配については、核種ごとに一定の分配比を適用できることを示した。 ^{90}S の分配比については、pHおよび共存イオンの影響による炭酸塩の形成を考慮する必要があるが示唆された。化学的存在形態の研究では、河川水中に溶存する $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am が腐植物質から成る天然有機物と溶存錯体を形成して存在することをチェルノブイルの自然環境で明らかにした。

(4) 河川水中における放射性核種と腐植物質との錯形成を化学平衡モデルにより解析し、チェルノブイル地域の水環境条件において、Pu、Am同位体が腐植物質と強く錯形成することを理論的に明らかにした。この結果、野外での観測結果の合理性を検証することを可能にした。また、国内の河川（久慈川）の環境条件においても、Pu、Am同位体が溶存する場合、そのほとんどが腐植物質と錯形成して存在することが推定され、河川水におけるPu、Am同位体と腐植物質との錯形成は、一般性のある事象として移行過程の上で考慮すべきことを示唆した。また、堆積物などの固相に広く存在し、放射性核種と結びつき、その移動性に影響を与える鉄・マンガンの酸化物の生成に関しても、室内・野外の観測結果を化学平衡モデルにより合理的に説明した。ここでの結果は放射性核種の河川水中での存在形態の推定に化学平衡モデルの有効性を示している。

これを要するに、著者は、河川流域における放射性核種の移行量、移行形態ならびに河川における放射性核種の存在状態を野外研究およびモデル解析より明らかにし、河川経路による放射性核種の移行モデル開発のための基礎を確立したものであり、環境放射能学、水環境保全工学、放射線保健物理学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。