

審査の結果の要旨

氏名 辰野 宇大

2011 年の福島第一原子力発電所事故により、周辺環境中に大量の放射性セシウム (Cs) が飛散した。福島県では県面積の 71% が森林であり、その大半は除染されていない。大流域スケールでは、森林流域からの地下水や河川、大気を通した Cs の流域外への流出はごくわずかであることが報告されている。一方で、生活スケールに近いメートル(m) スケールでは、粘土粒子や有機物に吸着した形態による移動・流出も報告されている。本論文では、森林の林床を想定し、土壌中の溶存有機物が福島県で広く分布する花崗岩風化土壌中の Cs の移動に与える影響について検討している。

本論文では、1 章で背景と目的について説明し、2 章で既往の研究レビューを行い、従来の Cs 研究において移動中の Cs 吸着反応時間の影響についての検討が不足していること、実験で仮定してきた溶存有機物 (DOM) 濃度が自然界に比べて過大であることなど、本論文で検討すべき課題について述べている。

3 章では濃度の異なる Cs 溶液を用いて平衡状態を仮定したバッチ試験で吸着選択性の異なるサイトへの Cs の吸着の評価を行い、さらに、自然界の濃度に近い DOM 溶液を試料に与え、Cs の土壌への吸着や脱離に DOM が与える影響について検討している。Cs 濃度の高い場合、粘土粒子への DOM の吸着が Cs の吸着を促進する一方で、Cs 濃度が低くなると、DOM の吸着に伴って Cs 吸着は減少する。本論文は、この違いが、Cs の吸着が主として粘土粒子平面部で生じるか、それとも六員環 (SDC)、フレイドエッジサイト (FES) といった選択性の高い部位で生じるかに依ることを明らかにした。

4 章、5 章では、3 章の結果を念頭に粘土粒子平面部の寄与が大きい高濃度 Cs の場合と SDC や FES の寄与が顕著になる低濃度 Cs の場合の二種類のカラム実験を行うと共に、実験後の土壌から Cs を逐次抽出し、Cs 濃度と Cs の土壌への吸着や DOM が Cs 移動に与える影響について検討が行われている。

高濃度 Cs 条件では交換態 Cs の吸着割合が高く、土壌に DOM が吸着することで吸着容量が増し、より多くの Cs が土壌に吸着すること、また、ここに DOM を供給すると、DOM が土壌に吸着した交換態 Cs を脱離させると共に Cs と DOM が結合した複合体を形成することを示した。一方、低濃度 Cs 条件では、高濃度 Cs 条件と比べ固定態 Cs の吸着割合が高い結果、土壌に吸着した DOM が土壌への Cs の吸着を阻害することで土壌からの Cs 流出を増やしたこと、すなわち、土壌溶液中の Cs 濃度の高低によって、Cs 吸着・脱離の機構が異なること

を明らかにしている。さらに、平衡状態にはならない浸透水中における Cs の動態が平衡を仮定したバッチ試験である程度評価できることも本論文で明らかになった。

6 章では、5 章のカラム通水実験の結果を対象に、汎用溶質移動モデル Hydrous -1D を用いて土壌中の Cs 移動の数値実験を行っている。平衡吸着や非平衡吸着を含む複数の吸着モデルでカラム実験を再現する数値実験を行った結果、高濃度 Cs 条件において、土壌に DOM が吸着することで、土壌へ Cs が吸着しやすくなることをモデル計算でも確認している。低濃度 Cs 条件では、DOM の添加によって非平衡吸着サイトへの吸着定数が減少するとともに平衡吸着サイトの脱離定数が増加する結果から、低濃度 Cs 条件では、DOM が FES のような不可逆的な吸着を示すサイトへの Cs 吸着を阻害するだけでなく、実験では判別できなかった粘土粒子に吸着した DOM に Cs が脱離しやすい状態で吸着する現象を数値実験結果から指摘している。

7 章では総合考察として、3 章バッチ実験、4、5 章のカラム通水実験、6 章の数値モデル実験の結果をもとに、吸着選択性の異なるサイトへの Cs 吸着が Cs の移動に与える影響について考察を行い、8 章で本論文の結論をまとめている。

最終審査に先立って、7 月 8 日に予備発表、8 月 3 日の審査会の前に本発表を公開で行った。本論文で扱うような、高濃度、低濃度の Cs を対象にバッチ試験（平衡条件）、カラム実験（非平衡条件）を系統的に実施した研究はほとんどなく、非常に貴重なデータを得ていると同時に、Cs の土壌中の移動を数値モデルである程度再現できていることは、今後、長期にわたる放射性物質汚染の推移を精密予測する技術の糸口となる重要な研究成果であると言える。

一連の研究成果は、学術上応用上寄与するところが少なくない。よって、審査委員一同は本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。