

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 ( 理 学 )	氏名	BEKELESI Wiseman Chisale
学位授与の要件	学位規則第 4 条第①・2 項該当		
論文題目			
<p style="text-align: center;">Difference in Migration of Radioactive Element Originating from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident: Factors affecting transfer factor of <sup>137</sup>Cs from soil to rice and Difference in migration between <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in the Environment</p> <p style="text-align: center;">(福島第一原子力発電所事故に由来する放射性元素の移行の相違：土壌からコメへの<sup>137</sup>Cs の移行係数に及ぼす因子と環境中での<sup>137</sup>Cs と<sup>90</sup>Sr の移行の違い)</p>			
論文審査担当者			
主 査	教 授	中島 覚 (自然科学研究支援開発センター)	
審査委員	教 授	井上 克也	
審査委員	教 授	水田 勉	
審査委員	教 授	石坂 昌司	
〔論文審査の要旨〕			
<p>2011 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故では、環境中に大量の放射性物質が放出された。その中でも <sup>137</sup>Cs は大量に放出され、30.1 年と長い半減期を持つために現在でも関心事であり、土壌からコメへの移行は公共の安全にとっても重要である。一方、<sup>90</sup>Sr の放出量は <sup>137</sup>Cs の放出量の約 1/1000 程度であるが、アルカリ土類金属であるため、骨へ蓄積されやすい。したがって、両核種の環境中での移行の違いを理解することは外部被ばく、内部被ばくを抑えるためにも重要である。これらは福島復興に向けて特に重要な研究課題となる。この研究は化学が貢献できる場所であり、また、放射線災害復興を推進するフェニックスリーダー育成プログラムにとって重要な研究課題である。</p> <p>土壌からコメへの <sup>137</sup>Cs の移行については多くの研究がある。同族元素であるカリウムが多いと、特に交換性カリウムが多いと <sup>137</sup>Cs の移行係数が小さくなることが知られている。また、土壌の粒径分布と移行係数との関係も研究されており、粒径が小さくなると粘土成分が増え、セシウムは粘土成分のフレイドエッジサイトに強く吸着されるので、移行係数が小さくなる傾向があることも知られている。本研究では、まず福島市の田と川内村の田で土壌の性質と移行係数との関係を比較して <sup>137</sup>Cs のコメへの移行に及ぼす土壌の物理的、化学的性質を詳細に明らかにすることを目的とした。</p> <p>土壌中の <sup>137</sup>Cs 濃度は、福島市の田の方が高く、プルームの移行した経路の違いや川内村の田の除染作業などが推測された。コメへの移行係数は川内村の田の方が福島市の田に比べて 5 倍程度大きかった。これは福島市の田の方が、交換性カリウム濃度が高いためである。さらに <sup>40</sup>K の放射能濃度と <sup>40</sup>K の天然存在度を用いて土壌中の全カリウム量を算出し、1M 酢酸アンモニウムを用いて抽出された交換性カリウムから交換性カリウムの割合を求めると福島市の土壌の方が高かった。また 1M 酢酸アンモニウムで抽出した後の土壌の放射能測定を行って交換性の <sup>137</sup>Cs を求め、交換性 <sup>137</sup>Cs の割合が川内村の土壌の方が高く、移行係数が高くなることも説明した。篩を用いて土壌を粒径ごとに分けて交換性の Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>,</p>			

$Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ の濃度を測定した。75 $\mu m$ 以上の土壌は福島土壌の方が交換性  $K^+$ 濃度が高かったが、75 $\mu m$ 未満の土壌では逆転した。福島土壌では比較的粒径の大きい土壌に吸着された $^{137}Cs$ は交換性のカリウムが多いためにコメの根に吸収されにくくなっていることが推測された。さらに、交換性の $Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ の濃度が全粒径で福島土壌の方が高く、その効果も推測された。

粉末 X 線回折測定により土壌を分析すると、福島土壌ではカオリナイトなどの粘土成分が川内村の土壌に比べて少し多くなる傾向がみられ、粘土成分に吸着された $^{137}Cs$ の脱着が起きにくいことと矛盾しなかった。土壌が還元的雰囲気になると交換性のカチオンが溶け出して $^{137}Cs$ の吸収が抑制されるとの報告があるが、メスバウアースペクトルからは二つの田で逆の傾向がみられた。両者のメスバウアースペクトルには磁性成分の有無にも違いが認められ、さらなる検討が必要であった。

次に、 $^{90}Sr$ と $^{137}Cs$ の環境中での移行の違いを研究した。 $^{90}Sr$ は純 $\beta$ 核種で測定は容易ではない。 $\beta$ 線のエネルギーはゼロから最大値までとり、最大値のみが核種に固有である。そのために目的核種の化学分離が必須であり、既に報告されている方法に従って化学分離を行った。キャリアとして $^{88}Sr$ を加え、ICP-MSにより回収率を評価した。 $^{90}Sr$ の娘核種( $^{90}Y$ )も純 $\beta$ 核種であるため、化学分離後放射平衡になるのを待って、 $\beta$ 線測定を行った。

$^{137}Cs$ 濃度と $^{90}Sr$ 濃度の間に大まかな相関がみられた。その相関は原点から少しずれており、グローバルフォールアウトによる $^{90}Sr$ が示唆された。グローバルフォールアウトは場所によって異なるので、その寄与を正確に見積もることは困難であった。 $^{137}Cs$ 濃度に対する $^{90}Sr$ 濃度の割合は0.001程度であり、文献値とほぼ同程度であった。 $^{137}Cs$ 濃度と $^{90}Sr$ 濃度それぞれの変動係数は $^{90}Sr$ 濃度の方が大きく、 $^{90}Sr$ の環境中での移行は外部因子により影響を受けやすいことが示唆された。

茨ダム周辺森林土壌の放射能濃度と茨ダム湖底堆積物の放射能濃度を比較した。森林域での濃度に対する湖底堆積物濃度の比は $^{137}Cs$ では0.45であるのに対して $^{90}Sr$ では0.60であった。これは水平方向での移動が $^{90}Sr$ の方が $^{137}Cs$ に比べて早いことを示した。

森林土壌の $^{137}Cs$ 濃度と $^{90}Sr$ 濃度の垂直分布を調べた。横軸に深度、縦軸にそれぞれの濃度の対数を取るとほぼ直線的に減少した。 $^{90}Sr$ 濃度の傾きは $^{137}Cs$ 濃度の傾きに比べて小さく、 $^{90}Sr$ の方がより深く浸透していることが分かった。

湖底堆積物中の $^{137}Cs$ 濃度と $^{90}Sr$ 濃度の垂直分布を調べた。横軸に深度、縦軸にそれぞれの濃度の対数を取ると直線から大きくずれた。 $^{137}Cs$ 濃度では上に凸のカーブを描き、 $^{90}Sr$ 濃度では下に凸のカーブを描いた。 $^{137}Cs$ は堆積物に強く吸着され、表面付近の堆積物がかく乱によりほぼ同程度の濃度になったのに対して、表面付近の $^{90}Sr$ はかく乱により一部溶けだし、それが再度吸着したためであると考察した。 $^{137}Cs$ では水和エンタルピーが小さく容易にフレイドエッジサイトに吸着されるのに対し、 $^{90}Sr$ は水和エンタルピーが大きいためであると考えられた。

これらの結果は、 $^{137}Cs$ の土壌からコメへの移行、そして $^{137}Cs$ と $^{90}Sr$ の環境中での移行の違いについて詳細に示した。

以上、審査の結果、本論文の著者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認める。

公表論文

1. **W. C. Bekelesi**, T. Basuki, S. Nakashima, “ $^{137}\text{Cs}$  soil to rice transfer factor and soil properties: Fukushima and Kawauchi case”, *Radiation Safety Management*, **21**, 1-12 (2022). DOI 10.12950/rsm.220131
2. **W. C. Bekelesi**, T. Basuki, S. Higaki, S. Nakashima, “Distinction of Migration of Strontium-90 and Cesium-137 for Fukushima Soil and Sediment following the Fukushima Accident”, *Radiation Safety Management*, **21**, 26-35 (2022). DOI 10.12950/rsm.220527

参考論文

1. **W. C. Bekelesi**, E. O. Darko, A. B. Andam, Activity concentrations and dose assessment of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  in soil samples from Newmont-Akyem gold mine using gamma-ray spectrometry. *African Journal of Environmental Science and Technology*. <https://doi.org/10.5897/AJEST2016.2141>
2. **W. C. Bekelesi**, Determination of the Activity Concentrations of Radon-222 and Radon-220 in Water and Soil Samples from Newmont-Akyem Gold Mine Using Gamma Spectrometry. (2015). <https://ugspace.ug.edu.gh/handle/123456789/8571>
3. T. Basuki, **W. C. Bekelesi**, M. Tsujimoto, S. Nakashima, Air dose rate to  $^{137}\text{Cs}$  activity per unit area ratio for different land use 7 years after the nuclear accident -Case of the slope catchment, Ogi reservoir, Fukushima, *Radiation Measurements*, 137 (2020). <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2020.106424>
4. T. Basuki, **W. C. Bekelesi**, M. Tsujimoto, S. Nakashima, Investigation of radiocesium migration from land to waterbody using radiocesium distribution and soil to sediment ratio: A case of the steep slope catchment area of Ogi reservoir, Kawauchi Village, Fukushima, *Radiation Safety Management*, 19, 23-34 (2020). DOI 10.12950/rsm.190924
5. M. A. Habib, T. Basuki, S. Miyashita, **W. C. Bekelesi**, S. Nakashima, K. Techato, R. Khan, A. B.K. Majlis, K. Phoungthong, Assessment of natural radioactivity in coals and coal combustion residues from a coal-based thermoelectric plant in Bangladesh: Implications for radiological health hazards, *Environmental Monitoring and Assessment*, 191: 27 (2019). DOI10.1007/s10661-018-7160-y
6. M. A. Habib, T. Basuki, S. Miyashita, **W. C. Bekelesi**, S. Nakashima, K. Phoungthong, R. Khan, M. B. Rashid, A. R. M. T. Islam, K. Techato, Distribution of naturally occurring radionuclides in soil around a coal-based power plant and their potential radiological risk assessment, *Radiochimica Acta* (2018). DOI 10.1515/ract-2018-3044