

学 位 論 文 の 要 旨

渡良瀬川流域における重金属及び放射性セシウムの環境動態 (Environmental behaviors of heavy metals and radiocesium in Watarase river basin)

氏 名 齋藤陽一 印

渡良瀬川流域の重金属類の環境動態について、桐生市水道局が水質管理の一環として実施してきた 1970 年から 2010 年までの分析結果を基に評価した。平水時及び高濁度時の渡良瀬川原水の重金属濃度と濁度との関係を解析した結果、濁質の流入が高い重金属濃度を与える要因になっていること、草木ダムの貯水が重金属濃度の減少に大きく寄与していること、40 年間で銅及びヒ素濃度は 10 分の 1 以下に低下していること、単位濁質当たりの重金属濃度も低下傾向にあることが明らかとなった。また、東日本大震災によって発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性セシウムの渡良瀬川流域に及ぼす影響について評価した。浄水処理発生土及び河川堆積土壌の分析結果から、発生土の放射性セシウム濃度は震災発生直後に比べ減少傾向にあること、原水濁度と発生土中放射性セシウム濃度には正の相関があること、発生土の放射性セシウムは酸性雨でも溶出しにくい化学形態で存在していることが明らかとなった。以下に各検討項目と得られた結果の概要を記述する。

【1970 年から 2010 年の渡良瀬川河川水の銅及びヒ素濃度の推移】

渡良瀬川河川水の銅及びヒ素濃度の推移について、銅濃度と濁度及びヒ素濃度と濁度の 10 年間ごとの相関図から評価した。その結果、銅及びヒ素濃度は、1970 年と 1980 年の間で大きく減少すること、水中の濁度と正の相関が有ること、銅とヒ素では減少の時期が異なることが明らかとなった。減少の時期については、銅は 1976 年の草木ダムの貯水開始から減少するのに対し、ヒ素はこれ以前に減少していることが分かった。また 1990 年のように、台風の襲来があった 8 月あるいは 9 月に草木ダムの放流に伴い高い数値を示すことが認められたが、1980 年以降では、銅濃度、ヒ素濃度及び濁度は比較的低濃度で推移し、年間平均値はそれぞれ、0.014mg/L 以下、0.004mg/L 以下、17 度以下であった。さらに、銅濃度と濁度及びヒ素濃度と濁度のプロットの近似式の切片から、渡良瀬川の銅濃度とヒ素濃度のバックグランド値を求めたところ、その値はこの 40 年間で 10 分の 1 以下に低下していることが明らかとなった。

【1971年から2011年の渡良瀬川河川水の高濁度時における重金属濃度の推移】

台風や集中豪雨等により濁度が急激に上昇した際の渡良瀬川赤岩地点（桐生市浄水場取水口）における浮遊物質濃度と重金属濃度（銅，亜鉛，ヒ素，鉄）の変化について考察した。ここでは1971年から2011年の間で河川水濁度が100度を超えた28回について、2時間ごとに原水を採水し、SS濃度と重金属濃度の測定を行った。その結果、高濁度時の濁度とSS濃度の関係及び濁度と重金属濃度の関係は平水時に比べ強い正相関を示し、重金属の発生源が足尾鉍山廃棄物施設堆積場であることが示唆された。一方、重金属濃度と濁度をプロットした際の1次式の勾配は年代の経過と共に減少傾向にあり、鉍山廃棄物施設の整備と行政施策によって、濁質中の重金属濃度は減少していることが明らかとなった。

【逐次抽出法と溶出試験による浄水発生土中の放射性セシウムの安定性に関する評価】

福島第一原子力発電所事故により群馬県北部・西部の山間部に降下した放射性セシウムについて、これまで、湖沼の底質、河川底質、河川や湖沼周辺土壌を中心に調査が行われている。ここでは、桐生市浄水場の浄水処理過程で生じるスラッジ（浄水発生土）中の放射性セシウムについて、濃度と溶出挙動について評価した。その結果、浄水発生土の放射性セシウム濃度は、2011年から2013年にかけて徐々に低下するが、夏期に一旦上昇することが分かった。この要因として、上流に堆積している放射性セシウムを比較的高濃度に含む土壌微粒子の流入が示唆された。また、pH2から10に調整した水溶液を用いて溶出試験を行ったところ、酸性雨等の弱酸性条件では発生土からの放射性セシウムの溶出は無視できることが分かった。さらに、逐次抽出法によって、浄水発生土中の放射性セシウムの安定性を評価したところ、セシウムは主として酸化物あるいはケイ酸塩鉍物中に強く保持された状態で存在しており、極めて溶出しにくいことが明らかとなった。

(英文要旨)

Environmental behaviors of heavy metals and radiocesium in Watarase river basin, which is a major river in the northern Kanto region of Japan, were evaluated. The river gave the environmental disaster that occurred as a result of the Ashio mining operations in the late 19th and early 20th centuries. The pollution of the river has been largely reduced by the removal of the facility and purification of the surrounding environments by implementing administrative policies after 1970. However, the investigations to clear the reasons how the changes in the heavy metal concentrations were related to those in turbidity and suspended solids in the river water were not conducted though there are many data of the water quality. This thesis made an attempt to elucidate relationship between suspended solids and heavy metals concentration in the upstream basin of the Watarase River. In addition, it was attempted to clarify the impact of radiocesium in sludge of water purification plant in the Waterworks Bureau damaged from Fukushima Daiichi nuclear power plant accident.

Relationship between Copper and Arsenic Concentrations and Turbidity in the Surface Water of Watarase River from 1970 to 2010

The aim of this study is to determine the relationship of the variation in the concentrations of copper (Cu) and arsenic (As) to the turbidity in water samples collected from 1970 to 2010 at Akaiwa along Watarase River, including data from 1967 to 1969 for As. The relationships were evaluated by the correlation coefficients obtained from the approximations of the metal concentrations to the degrees of turbidity. The variations in the concentrations of Cu and As in the river water samples for 40 years were related to the turbidity. However, the reductions of the concentrations were somewhat different between Cu and As. Cu had significantly reduced since Kusaki dam began storing water in 1976. In contrast, As had reduced before this event. From 1980 to 2010, the average Cu and As concentrations have been stable at values < 0.014 mg/L and < 0.004 mg/L, respectively, and the turbidity has been lower than 17. However, the events of high turbidities and the high concentrations have occurred irregularly in several years, especially in 1990. These affected the discharge of water from Kusaki-dam after the typhoons in August and/or September in the corresponding years.

Changes of Turbidity, Suspended Solids and Heavy Metals During High-Turbidity Phenomena in Watarase River From 1971 to 2011

This study was conducted to elucidate the changes of turbidity and concentrations of suspended solids (SSs) and heavy metals (Cu, Zn, As, and Pb) in Watarase River at Akaiwa during the rapid elevation in turbidity from 1971 to 2011, which was the result of typhoons and local heavy

rainfalls. In this study, high-turbidity phenomena correspond to turbidity of over 100 in river water. In the Watarase River, high-turbidity phenomena observed 28 times from 1971 to 2011. The Kiryu City Waterworks Bureau of Waterworks measured the turbidity, and the concentrations of SSs and heavy metals in raw water samples collected every 2 h. The relationships between turbidity and SS concentration and between turbidity and heavy metal concentration during the high-turbidity phenomena were considerably stronger correlations than those at normal turbidity, although the slopes of the approximations decreased with the passage of time. Furthermore, the source of heavy metals were expected to mainly be waste materials from the Ashio mine sediment-disposal facility, because the concentrations of the heavy metals, as well as the turbidities and SSs, reduced after the cleanup of the facility and upgrading of the surrounding environments by implementing administrative policies.

Assessment on Stability of Radiocesium in Sludge from Water Purification Plant by Leachate Test and Sequential Extraction Method

Radiocesium released by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident had fallen in mountainous areas located in northern and western of Gunma Prefecture. Therefore, several research groups have measured the radiocesium in sediments in lakes and rivers, and soils around rivers, lakes and mountains. In this study, we have investigated not only concentration of radiocesium contained in the wasted-sludge sample from water purification plant but also the leachate behaviors from the sludge to water. The concentrations of radiocesium in wasted-sludge samples collected from water purification plant at Kiryu Bureau of Waterworks on 2013 were obviously lower than that on 2011. Additionally, the degrees of radiocesium concentrations were related on those of turbidities in raw water of water supply. Through leachate test of radiocesium using aqueous solutions adjusted from pH 2 to pH 10, the risk leaching from the wasted-sludge to water were considered to be low without regarding to pH values of the solutions. Furthermore, the chemical forms of radiocesium in the sludge by sequential extraction method were expected to mainly exist as residue and oxide forms, which are classified as fractions hardly eluted in nature.