

多摩川集水域における底質中の放射性セシウムの
30年後を見据えた挙動解析

2017年

小池 裕也
明治大学 理工学部 専任講師

共同研究者 萩原健太

福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウム(^{137}Cs (半減期:30 年))のモニタリングは、「環境中における放射性物質の中長期的な変動追跡の重要性」「より低濃度な汚染状況の把握の必要性」という観点から重要である。本研究では、多摩川集水域の本流と支流、合計 50 地点で河川底質を採取し、低線量域での放射性セシウムの挙動解析を行った。予備濃縮技術と逐次抽出技術を組み合わせた分析手法を提案することで、底質中放射性セシウムの高精度なモニタリングを実施した。多摩川の上流から下流までモニタリングした結果、上～中流域の本流に比べて支流と下流域で底質中放射性セシウム濃度が高い傾向にあることが確認できたため、河口域への移行が推測される。宿河原での定点観測からは、降雨による増水時に底質中放射性セシウム濃度が、平水時の 2～3 倍程度高くなることがわかった。これらの結果は、降雨により中流域から本流への放射性セシウムの流入が起こっていることを示唆している。

1. 緒言

東京電力株式会社福島第一原子力発電所(FDNPP)事故後、水環境中の放射性セシウムのモニタリングとして、各機関で分布の把握と中長期的な変動の調査が行われてきた。事故により原子炉内から環境中に放出された放射性核種の中でも、 ^{137}Cs は放出量が多く、かつ半減期が約 30 年と長いため中長期的なモニタリングの対象となっている。文部科学省により測定された 2011 年 3 月 12 日から 3 年間の放射性セシウムの積算沈降量は、神奈川県(茅ヶ崎)で約 4000 Bq m^{-2} 、東京(新宿)で約 9000 Bq m^{-2} であると発表されている¹⁾。FDNPP から南西に約 250 km 離れた都市圏にも事故に由来する放射性核種が輸送され、土壌に吸着された不溶性の形態や雨水・河川水などに溶存した溶存態として存在している。特に河川水は、湖や海洋に流入するので、河川水中の溶存態として存在する放射性セシウムは環境中に分散していくと考えている。及川ら²⁾ は、日本周辺の海水、海水土に含まれる ^{137}Cs について、長期的な海洋環境放射能モニタリング結果を報告している。河川集水域などの水環境に降下した放射性セシウムは、放射線防護の観点からその挙動が注視されている。

河川集水域における放射性セシウムの輸送や再分配の状況を定量的に把握することは、除染や事故発生時の迅速な対応に繋がるため非常に重要であると考えられる。河川集水域における放射性セシウムの挙動に関する研究は、主に FDNPP 近傍の高線量地域を中心に行われてきた³⁾。低線量地域である関東甲信越では、河川集水域における放射性セシウムの挙動に関する報告例が少ない^{4,5)}。神奈川県川崎市で行われた大気粉塵中放射性核種のモニタリング結果^{6,7)} や土壌中^{8,9)}及び河川水中⁴⁾の放射性セシウムの観測結果より、FDNPP から南西に約 250 km 離れている多摩川集水域の周辺にも事故に由来する放射性核種が輸送されていることが確認された。多摩川集水域における放射性核種の観測や調査も行われている。吉田ら¹⁰⁾ は、「多摩川流域における放射性物質による河川水と土壌などの汚染状況調査と放射線・水環境を学ぶ市民教室の構築」において、多摩川の流域における放射性物質による汚染状況を調査し、河川水中の土壌及び付近の河岸の土壌からは放射性セシウムが検出されている。本研究では、多摩川集水域をターゲットに河川水及び底質中の放射性セシウムの高精度なモニタリングを行い、河川集水域での放射性セシウムの挙動解析を進めることを目的とした。

現在の放射性セシウムのモニタリングは、「環境中における放射性物質の中長期的な変動追跡の重要性」と「より低濃度な汚染状況の把握の必要性」に重きをおいて実施されている。放射性セシウムの多摩川集水域への降下量を考慮すると、底質中放射性セシウム濃度は、現在の検出下限を下回ることが予想される。そのため、本調査・試験研究のコンセプトを「 ^{137}Cs の半減期である 30 年後まで正確な底質中の ^{137}Cs 濃度を定量することを目標に、現在の放射能濃度の 1/100 の濃度まで分析できる手法を提案して、継続した底質のモニタリングを実施する」こととした。多摩川集水域全域で底質中放射性セシウムをモニタリングし、その挙動の中長期的な評価を行った。また、予備濃縮技術と逐次抽出技術を組み合わせた分析手法を提案することで検出下限の低減を試みた。簡便な分析法を提案することで、底質中の放射性セシウムを 30 年後までモニタリングし、多摩川集水域での放射性セシウムの挙動を追っていくことが最終目標である。

2. 実験

2.1. 底質試料の採取と γ 線スペクトロメトリー

底質試料は、多摩川集水域全域を対象とし、上流から下流までの計 50 地点で、2012 年 6 月 7 日～2017 年 2 月 13 日の期間で採取した。底質試料の採取地点の概略を 図 1 に示す。

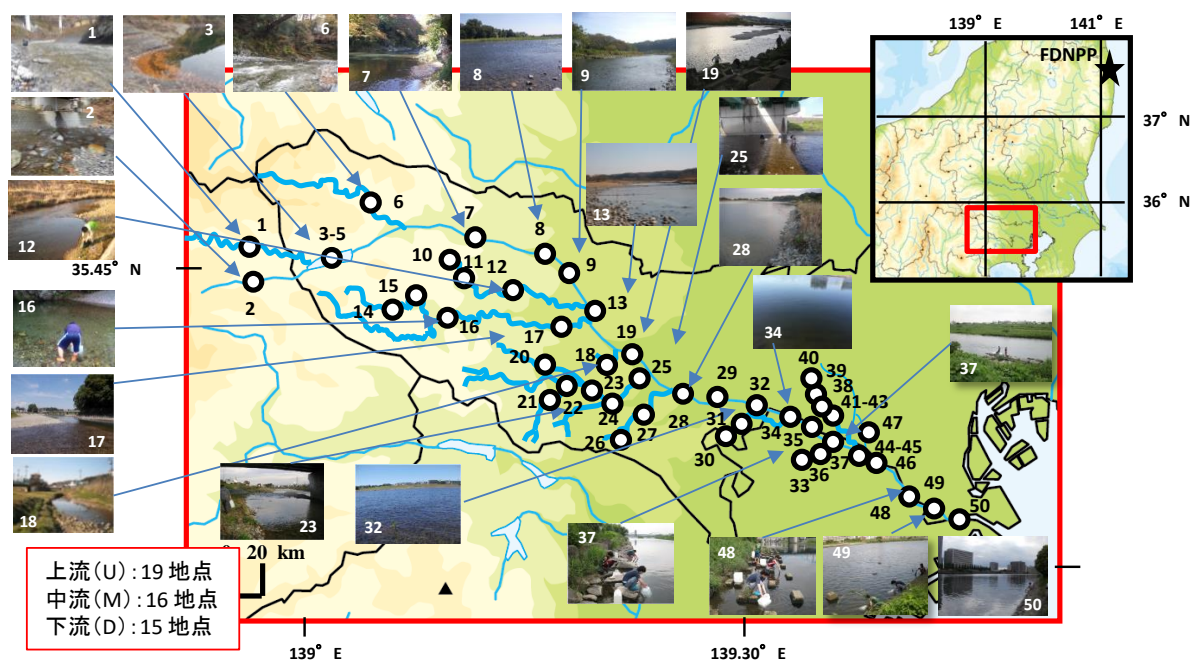


図 1 多摩川集水域における底質試料採取地点の概略とサンプリングの様子。

試料は、スコップにより直接採取できる水深 30～50 cm の表層 5 cm 未満を、1 kg 程度採取しビニール袋に保存した。採取した試料は、乾燥機により 105°C で 24 時間乾燥し、円錐四分法で縮分してからねじ口式ポリスチレン容器 U-8 (U-8 容器; 高さ: 68 mm, 内径: 56 mm, 関谷理化) に詰めて測定試料とした。測定試料は高純度ゲルマニウム半導体検出器 (HPGe detector; PGT, INC.) で 2 時間 γ 線測定を行った。 ^{134}Cs は 604.7 keV, ^{137}Cs は 661.7 keV の γ 線ピークから放射能濃度を算出した。検出効率は、 ^{152}Eu 密封小線源 (アイソトープ協会) と KCl 試薬を用いて算出した¹¹⁾。すべての試料でサンプリング日を基準に半減期補正を施した。

2.2. 逐次抽出法による底質中放射性セシウムの化学形態別分析

Tessierら¹²⁾が考案した逐次抽出法を宿河原の底質試料に適応した。この逐次抽出法は、

試料中の微量金属元素を、イオン交換態 (IE), 炭酸塩態 (CB), Fe, Mn 酸化物態 (OX), 有機物態 (OB), 残留物態 (RES) の五つの区分に分画する抽出試験である。IE は金属元素が水溶性化合物として存在する区分であり, この区分の金属元素は試料中から水中に容易に遊離する。また, CB は炭酸イオンと結合している金属化合物で弱酸に溶解する区分であり, 雨水などで環境中に放出する可能性がある。OX は Fe, Mn 酸化物に取り込まれる形で存在し, Fe, Mn 酸化物の構造が壊れる還元的雰囲気中で溶出する。OB は有機物などと結合している区分であり, 化学的に安定だが酸化雰囲気中で徐々に溶出する化合物である。RES は環境中に放出及び拡散される可能性が最も低い化学的に安定なものである。

逐次抽出法による放射性セシウムの化学形態モニタリングは, 土壌⁸⁾ や焼却飛灰¹³⁾ に適用されており, 底質試料に対しても検討を行った。乾燥した底質 5 g に 1 mol L⁻¹ MgCl₂ 水溶液 40 mL を加え, マグネチックスターラーで 1 時間室温で攪拌した (IE)。IE 抽出操作をした残渣に pH 5 に調整した 1 mol L⁻¹ CH₃COOH 緩衝液 40 mL を加え, マグネチックスターラーで 6 時間室温で攪拌した (CB)。その後, 残渣に 0.04 mol L⁻¹ HONH₃Cl 水溶液を 100 mL を加え, 96 °C で 6 時間加熱攪拌した (OX)。OX 抽出操作後の残渣に 0.02 mol L⁻¹ HNO₃ 15 mL と 30% H₂O₂ 水溶液 25 mL を加え, 85 °C で 3 時間加熱攪拌し, その後 3.2 mol L⁻¹ CH₃COONH₄ 水溶液 25 mL, H₂O 20 mL, 0.02 mol L⁻¹ HNO₃ 15 mL を加え常温で 3 時間攪拌した (OB)。最終的に残った残渣を RES 試料とし, 85 °C で 24 時間乾燥した。各抽出液は攪拌後, 溶出液と残渣を遠心分離機で 3000 rpm, 20 分で遠心分離した。水溶液及び固体試料は, それぞれ U-8 容器に充填し HPGe で 6 時間 γ 線測定を行った。

2.3. 固相抽出法による底質中の微量放射性セシウムの定量手法の検討

2015 年度の底質試料の γ 線は, 7200 秒間一律で測定しており, ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の検出下限はそれぞれ 0.06 Bq kg⁻¹ と 0.12 Bq kg⁻¹ であった。そこで, 2016 年度以降は濃縮・分離操作による, 両核種の検出下限の低減による高感度分析を試みた。固相抽出ディスク等による濃縮分離法を底質試料及び逐次抽出法で分画した試料に適用するために, 土壌標準物質を用いて酸分解による溶液化の条件検討を行った。並行して, プルシアンブルーフィルターカートリッジ^{14,15)} やラドディスクセシウム¹⁶⁾ による, 極微量な放射性セシウム

の分析法を検討した。環境試料を eichrom 社製 UTEVA レジン, Sr レジン及び DGA レジンに通液することで, トリウム同位体及びウラン同位体, 鉛同位体, アクチニウム同位体を分離する手法¹⁷⁾を応用し, バックグラウンドの低減も試みた。

3. 結果及び考察

3.1. 多摩川集水域における底質中放射性セシウム濃度の分布状況

多摩川集水域の上～下流域での底質中放射性セシウム濃度の一覧を表 1 に示す。多くの地点で底質中放射性セシウム濃度は、時間経過とともに減少する傾向にあった。しかし、浅川下流や多摩川原橋で採取した底質中放射性セシウム濃度はわずかに増大していた。図 2 に多摩川集水域全域を上流, 中流, 下流に別けてプロットした ^{137}Cs の濃度分布と上流から下流に向けた濃度変動を示す。得られた底質中放射性セシウムの分布状況から、下流域を中心とした蓄積と、本流と支流での濃度差が確認された。また、上～中流域の一部でも高濃度の観測地点があった。多摩川集水域において底質に吸着した放射性セシウムは、局所的な沈降を繰り返しながら時間をかけて下流域へと移行していると考えられる。また、中流域の支流で底質中放射性セシウム濃度の高い地点には、出水時に支流から本流への放射性セシウムの供給がなされていると考えられる。なお、中流域の支流は、草地や森林に囲まれていることから、河川にリターをはじめとする腐食物質が供給されやすい環境である。放射性セシウムを吸着している腐食物質が、底質に吸着、捕捉されることで、放射性セシウム濃度が高くなった可能性が示唆される

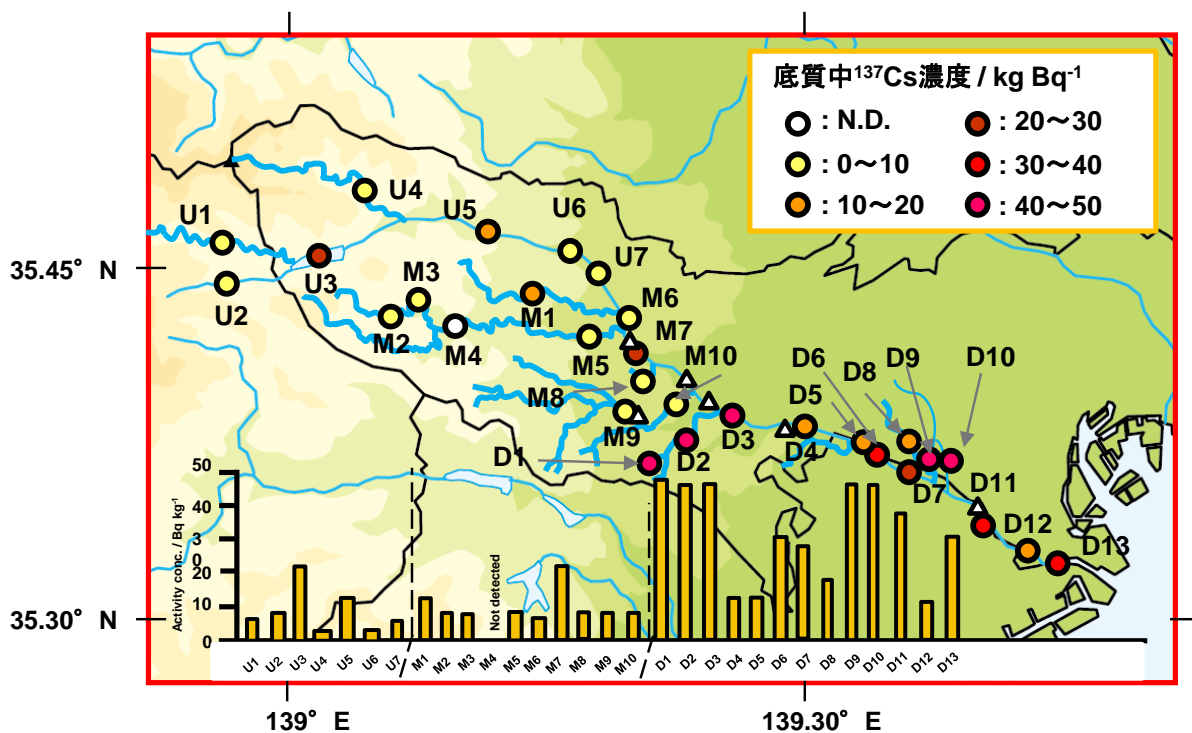


図 2 多摩川集水域における底質中の放射性セシウム (^{137}Cs) 濃度分布。

表 1 多摩川集水域の上～下流域での底質中放射性セシウム(¹³⁷Cs)濃度の一覧

No.	底質採取地点名	GPS データ		採取日	放射能濃度			
		緯度	経度		¹³⁷ Cs (± 1σ) / Bq kg ⁻¹			
1	丹波川	35°47'19.7"	138°55'29.4"	2013/6/11	7	± 1.3		
				2015/11/26	1.3	± 0.4		
				2016/10/27	測定中			
2	小菅川	35°45'70.8"	138°55'50.1"	2013/6/11	11.8	± 1.5		
				2015/11/26	5.9	± 0.9		
				2016/10/27	測定中			
3	奥多摩湖	35°46'36.2"	138°59'45.7"	2013/6/11	27.1	± 2.3		
				2015/11/26	16.6	± 1.6		
4	奥多摩湖	35°47'19.37"	138°55'50.30"	2016/10/27	12.0	± 0.5		
5				35°47'19.38"	138°55'50.31"	2016/10/27	10.0	± 1.2
6						日原川	35°48'27.1"	139°05'46.7"
7	青梅澤野	35°48'13.4"	139°11'39.7"	2015/11/26	2.9			
2013/11/14				17	± 1.4			
2015/3/12				7.6	± 1.1			
8	小作	35°77'97.5"	139°27'75.6"	2014/9/16	2.9	± 0.6		
9				友田町リバーサイドゴルフパーク付近	35°45'45.6"	139°17'48.6"	2013/11/14	4.0
2014/9/16	2.4	± 0.5						
10	平井川上流	35°45'42."	139°13'38."	2016/12/2	20.7	± 0.9		
11	平井川	35°44'36.8"	139°14'59.6"	2016/12/2	12.0	± 1.4		
12	平井川下流	35°44'17.8"	139°18'00.9"	2016/3/3	8	± 0.6		
13	平井川合流点	35°43'09.4"	139°19'44.8"	2016/3/3	5.3	± 0.8		
14	秋川	35°44'44.9"	139°07'22.6"	2016/3/3	7.2	± 1.1		
15	秋川	35°44'22.5"	139°08'38.7"	2016/3/3	7.9	± 1.1		
16	秋川	35°43'29.3"	139°10'43.0"	2013/6/11	N. d.※ (3.8)			
17	秋川	35°42'55.4"	138°19'02.5"	2014/9/16	8.5	± 0.5		
18	谷地川	35°41'11.4"	139°20'31.1"	2016/3/3	8.0	± 1.0		
19	昭島下水処理場付近(福島中学校)	35°41'40.4"	139°22'23.1"	2013/11/14	25.6	± 1.7		
				2015/11/26	17.8	± 1.8		
				2016/11/18	2.5	± 0.2		
20	北浅川、南浅川合流点	35°40'07."	139°18'42."	2016/12/2	5.7	± 0.3		
21	北浅川、南浅川合流点	35°40'07."	139°18'42."	2016/12/2	24.6	± 1.2		
22	北浅川、南浅川合流点	35°40'07."	139°18'42."	2016/12/2	6.7	± 0.5		
23	浅川萩原橋(上)	35°40'00.5"	139°19'21.6"	2013/11/14	8.4	± 0.9		
24	浅川萩原橋(下)	35°40'02.5"	139°25'12.1"	2014/9/16	6.6	± 0.9		
				2015/11/25	8.4	± 1.1		
25	府中四谷橋(浅川合流点)	35°45'47."	139°13'43."	2016/11/18	6.6	± 0.4		
26	御殿橋	35°36'58."	139°21'24."	2016/12/7	69.7	± 2		
27	霞が関橋	35°38'51."	139°26'48.33"	2016/12/7	28.8	± 1.3		
28	多摩市立多摩第一小前(関戸橋)	35°39'04.8"	139°27'29.9"	2013/11/14	6.5	± 0.6		
				2016/11/18	15.6	± 0.6		
				2014/9/16	11.3	± 1.1		
29	多摩河原橋	35°38'58.9"	138°31'13.2"	2015/6/10	10.6	± 0.4		
				2015/7/14	8.3	± 1.1		
				2015/11/26	19.5	± 1.5		
30	三沢川源流	35°36'38."	139°27'12."	2016/6/14	48.9	± 1.97		
31	三沢川(アメリア前稲城ショッピングセンター前)	35°38'11."	138°30'55."	2016/6/14	46.1	± 1.14		
32	三沢川合流	35°38'06."	138°32'46."	2016/6/14	43.0	± 0.98		
33	平4丁目公園(平瀬川)	35°35'58."	139°34'09."	2017/2/13	測定中			
34	五本松	35°37'44.2"	139°34'01.6"	2016/3/3	11.8	± 1.5		
35	宿河原	35°37'12.9"	139°34'46.5"	Average	59.7	± 2.6		
36	二子玉川ゲートボール場付近	35°36'48.3"	139°36'40.1"	2013/8/2	27.6	± 2		
37	北村橋(宿河原用水)	35°36'56.39"	139°34'36.49"					
38	弁天橋	35°41'51."	139°29'39."	2016/11/17	125	± 1.9		
39	泉橋(野川公園)	35°40'49."	139°31'47."	2016/11/17	81.6	± 1.4		
40	大沢橋(コス)	35°40'11.5"	139°32'14.9"	2016/6/14	44.9	± 0.85		
				2016/11/17	80.3	± 1.3		
41	谷戸橋	35°38'17."	139°35'29."	2016/11/17	10.5	± 0.5		
42	町田橋(野川始まり)	35°37'28."	139°36'24."	2016/6/14	18.9	± 0.79		
43	たかや橋	35°39'00."	139°34'39."	2017/2/13	測定中			
44	丸子橋ゴルフ場付近(ふきだまり)	35°36'40.7"	139°37'10.6"	2015/12/23	27.9	± 2.2		
45	丸子橋ゴルフ場付近			2013/8/2	60.7	± 3.0		
2015/12/23	16.8			± 1.7				
46	川崎リバーサイドゴルフ場付近	35°33'20.1"	139°41'47.2"	2013/8/2	10.0	± 1.9		
47	祖師谷公園	35°39'13.5"	139°35'58.8"	2016/6/14	46	± 1.01		
48	六郷	35°32'15.8"	139°42'11.5"	2015/3/12	32.7	± 2.3		
				2015/6/10	30.3	± 2.3		
				2015/11/25	27.9	± 2.2		
2016/11/17	26.8	± 0.8						
49	味の基川崎工場※	35°32'12.2"	139°42'53.2"	2013/11/14	267	± 6.3		
50	首都高高速下(東京湾)	35°32'28.1"	139°44'30.2"	2016/12/7	5.0	± 0.4		

※: N.d.: 検出下限以下, () : 検出下限

味の基川崎工場では底質の採取が困難であったため、周辺土壌を採取した

多摩川集水域で放射性セシウムのモニタリングを行うことで、低線量地域での汚染状況の把握と移行に関する情報を取得することができた。河川水系における放射性セシウムに関する研究では懸濁態セシウムに焦点をおいたものが多く報告されているが、そこに溶存態セシウムを絡めた報告は少ない。本研究で得られた多摩川集水域における底質の観測値に、懸濁態、さらに溶存態の二形態の放射性セシウムのモニタリング結果を加えた解析を行うことで、今後の除染や事故発生時の迅速な対応に繋がると考えている。

2012 年から宿河原堰堤下流で定期的実施したサンプリングの採取日時と底質中の¹³⁴Cs 及び¹³⁷Cs 濃度の一覧を表 2 に、経時変化の様子を図 3 に示す。エラーバーは放射性セシウム濃度の計数誤差を示している。図 3 の観測値を累乗近似すると、 $A = (3.06 \times 10^5) \times t^{-1.294}$ (相関係数 $r = 0.730$) の近似曲線が得られた。2011 年 3 月 11 日を基準にし、2192 日後(2017 年 3 月 11 日)時点の¹³⁷Cs 濃度を算出すると、 14.5 Bq kg^{-1} であり、実際の観測値と同じ濃度レベルとなった。さらに、30 年後である 10958 日後の¹³⁷Cs 濃度を近似曲線より算出すると、 1.81 Bq kg^{-1} となる。これは、¹³⁷Cs の半減期による減衰計算 (14.5 Bq kg^{-1} より減衰計算を実施)で得られる 8.37 Bq kg^{-1} より低い値である。宿河原堰堤下流においては、2017 年時点の 1/10 程度に濃度が低下すると推測できる。¹³⁷Cs の半減期である 30 年後まで正確な底質中の¹³⁷Cs 濃度を定量することを目標にした場合、検出下限の低減は重要な課題である。定点観測の結果から、事故発生から時間が経過するにつれて、自身の半減期よりも早く底質中放射性セシウム濃度が減少する傾向が観測された。

降雨時(2015 年 8 月 26 日)に採取した底質中放射性セシウム濃度は、平水時に比べ約 2 倍高い値を示した。¹³⁴Cs 濃度も¹³⁷Cs 濃度と同様に経時的に減少傾向を示した。出水時に河川周辺からの土壌の流入などによって、底質中放射性セシウム濃度が一時的に高くなるのが推測された。濃度の増大は一時的であり、流水によって下流域へと徐々に移行していると考えられる。

表 2 宿河原堰堤下流で定期的に採取した底質試料中の放射性セシウム濃度

試料採取日	放射能濃度 ($\pm 1\sigma$) / Bq kg ⁻¹						¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs*		
	¹³⁴ Cs			¹³⁷ Cs					
2012.6.7	172	±	3.0	242	±	5.5	1.04	±	0.0
2012.6.29	25.1	±	1.3	39.4	±	2.3	0.95	±	0.1
2012.7.4	132	±	2.6	192	±	4.8	1.03	±	0.0
2012.7.26	50.8	±	1.8	77.3	±	3.2	1.00	±	0.1
2012.8.17	24.4	±	1.3	41.5	±	2.4	0.92	±	0.1
2012.8.29	36.0	±	1.5	54.6	±	2.8	1.04	±	0.1
2012.9.20	51.2	±	1.8	82.3	±	3.2	1.00	±	0.1
2012.10.10	71.6	±	2.4	97.6	±	3.6	1.20	±	0.1
2012.10.23	97.8	±	2.6	143	±	4.7	1.13	±	0.0
2012.11.13	44.7	±	1.8	72.4	±	3.3	1.04	±	0.1
2012.11.27	29.8	±	1.4	47.8	±	2.5	1.06	±	0.1
2012.12.18	22.8	±	1.3	42.3	±	2.3	0.94	±	0.1
2013.4.12	41.2	±	1.7	90.1	±	3.5	0.88	±	0.0
2013.5.14	138	±	2.9	264	±	5.8	1.03	±	0.0
2013.6.11	29.7	±	1.6	52.7	±	2.9	1.14	±	0.1
2013.7.11	43.6	±	2.0	77.9	±	3.5	1.16	±	0.1
2013.8.2	35.4	±	1.8	65.9	±	3.2	1.13	±	0.1
2013.9.27	43.0	±	2.4	108	±	3.8	0.88	±	0.1
2013.10.31	15.9	±	1.4	42.4	±	2.2	0.87	±	0.1
2013.11.7	17.4	±	1.5	38.2	±	2.3	1.04	±	0.1
2013.11.14	18.0	±	1.6	39.8	±	2.4	1.05	±	0.1
2013.11.21	14.0	±	1.2	38.2	±	2.1	0.85	±	0.1
2014.4.30	13.5	±	1.3	41.2	±	2.4	0.87	±	0.1
2014.5.30	13.6	±	1.3	38.9	±	2.3	0.95	±	0.1
2014.6.27	12.6	±	1.2	33.0	±	2.2	1.07	±	0.1
2014.7.29	11.0	±	1.1	34.4	±	2.1	0.92	±	0.1
2014.9.16	10.5	±	0.7	30.0	±	1.4	1.05	±	0.1
2014.11.28	5.3	±	0.6	21.2	±	1.2	0.80	±	0.1
2015.1.29	6.4	±	0.6	23.1	±	1.3	0.94	±	0.1
2015.3.12	6.8	±	0.8	21.3	±	1.6	1.12	±	0.2
2015.5.22	5.1	±	0.8	24.6	±	1.8	0.77	±	0.1
2015.6.10	5.9	±	0.8	18.6	±	1.6	1.18	±	0.2
2015.7.14	5.5	±	0.7	26.6	±	1.6	0.80	±	0.1
2015.8.26	10.7	±	1.2	46.6	±	2.8	0.92	±	0.1
2015.9.12	5.8	±	0.8	19.3	±	1.7	1.23	±	0.2
2015.10.22	1.7	±	0.5	5.8	±	1.0	1.22	±	0.4
2015.11.2	1.0	±	0.3	3.6	±	0.6	1.19	±	0.4
2015.11.25	4.3	±	0.7	15.1	±	1.4	1.24	±	0.2
2015.12.23	3.3	±	0.6	13.8	±	1.3	1.05	±	0.2
2016.1.26	4.6	±	0.7	22.4	±	1.6	0.94	±	0.2
2016.4.7	3.6	±	0.7	22.7	±	1.8	0.78	±	0.2
2016.5.31	6.7	±	0.9	29.6	±	2.1	1.15	±	0.2
2016.6.14	2.2	±	0.2	13.9	±	0.4	0.83	±	0.1
2016.8.23	1.7	±	0.1	10.3	±	0.3	0.89	±	0.1
2016.9.29	2.9	±	0.2	18.2	±	0.6	0.91	±	0.1
2016.10.27	2.8	±	0.2	16.3	±	0.6	0.99	±	0.1
2016.11.17	0.6	±	0.1	3.1	±	0.3	1.10	±	0.2

※: 放射能比の計算は、2011年3月15日を基準に補正した値を用いた。

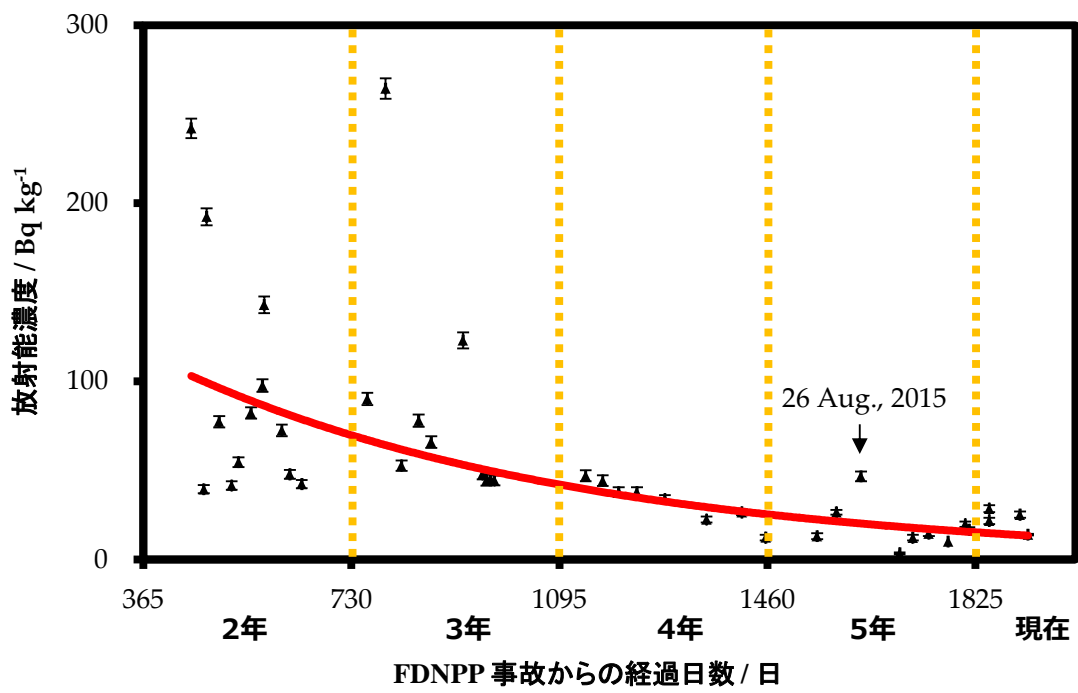


図 3 多摩川(宿河原堰堤下流)における底質中の ^{137}Cs 濃度推移.

3.2. 底質中放射性セシウムの化学形態別分析

逐次抽出の結果、2013年6月11日に宿河原堰堤下流で採取した底質中の ^{137}Cs は、25%がOX、3%がOB、73%がRESとして存在していた(図4)。その他の試料も同様に、OX: 0~25%、OB: 0~20%、RES: 73~100%の存在割合となった。IE及びCBが検出されなかったことから、水溶性形態である放射性セシウムは、河川集水域に降下する前もしくは降下した段階で底質以外の他の媒体に吸着したと考えられる。一方、OX及びRESで存在している放射性セシウムは、環境中で安定に存在していることから、出水などの流水による激しい物理的作用を除き、底質から脱離しないで保持され続けることが予想される。なお、川崎市で採取した土壌中放射性セシウムの化学形態別分析の結果⁸⁾では、OXが約30%、RESが約70%であった。よって、土壌に吸着した放射性セシウムは出水により河川水に触れる環境に移ると、その存在割合がわずかに変化する可能性が示唆された。放射性セシウムの化学形態を特定することは、多摩川集水域での除染対応にとどまらず、事故が発生した県(高線量地域)での除染対応にもつながると考えており、得られる成果は、今後放射性セシウムが拡散した際の貴重な情報になると考えている。

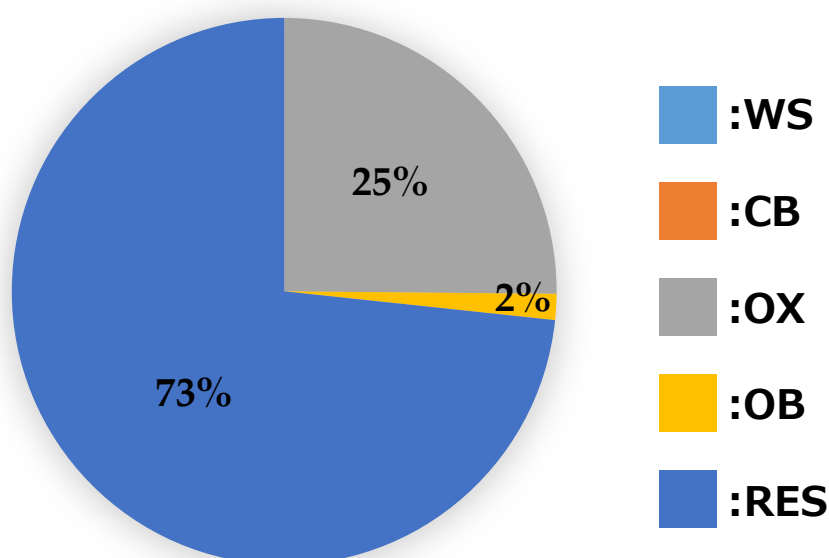


図4 多摩川(宿河原堰堤下流)における底質中の ^{137}Cs の化学形態別存在割合

3.3. 底質中放射性セシウムの検出下限低減のための検討

検出下限の低減実験は、溶液化による破壊分析となるため、条件検討は土壤認証標準物質により行った。土壤認証標準物質(JSO-1) 0.1 g を秤量し、PFA 容器 (49.5 mmH, 50.5 mmφ) に入れた。次に HNO₃ 0.5 mL, HClO₄ 3 mL, HF 4 mL を加え密封し、ホットプレート上で 200 °C で加熱した。試料が透明になるまで酸分解を行った後、容器のふたを開け蒸発乾固をした。蒸発乾固後、HClO₄ 3 mL を加え密封しホットプレート上で 200°C で加熱した。容器に付着した成分がなくなるまで酸分解を行った後、容器のふたを開け蒸発乾固をした。酸化物を分解するために 6 mol L⁻¹ HCl 6 mL を加え密封し、ホットプレート上で 200°C で加熱した。その後、容器のふたを開け試料溶液を濃縮した。濃縮した試料溶液は 8 mol L⁻¹ HNO₃ 20 mL を加えることで硝酸系試料溶液として、前処理に供することが可能である。検討した固体試料の溶液化手法は、スケールアップすることで 100 g の試料まで適用可能であった。

次に溶液化した試料を濃縮するために、固相抽出ディスクを用いた分析用試料作成の検討を行った。固相抽出ディスクは雨水中の放射性核種の定量¹⁸⁾にも用いられており、濃縮手法として非常に有用である。所属する施設には管理区域がないため、放射性同位元素の使用が不可能である。そこで、福島県の一般廃棄物焼却施設で採取された焼却飛灰 (¹³⁷Cs: 3635 ± 32 Bq kg⁻¹, ¹³⁴Cs: 717 ± 13 Bq kg⁻¹) の溶出液を試験試料として調製した。溶出液中の放射性セシウムの濃縮には 3MTM 社製ラドディスクセシウム (0.5 mmH, 47 mmφ), ADVANTEC 社製活性炭ろ紙 (2.5 mmH, 55 mmφ), プルシアンブルー不織布 (5 mmH, 38 mmφ) の三種類の固相抽出ディスクを使用した。ラドディスクセシウムはフロー法のみで、活性炭ろ紙とプルシアンブルー不織布はフロー法とバッチ法の二種類の方法で使用した。フロー法では 20 mL の純水によるコンディショニング後、試験試料を固相抽出剤に 2 mL min⁻¹ で通液して ¹³⁷Cs の回収を行った。バッチ法では溶出液に固相抽出剤を入れ 60 時間静置した後、ろ過した。回収後の溶出液は U8 容器に充填して HPGe で 6 時間 γ 線測定した。各固相抽出剤での ¹³⁷Cs の回収率を表 3 に示す。ラドディスクセシウムに通液後の溶液から ¹³⁷Cs が検出されなかったことから、溶出液中の ¹³⁷Cs を全てディスクに回収できた。

表 3 フロー法(FM)とバッチ法(BM)による固相抽出ディスクによる ^{137}Cs の回収率

		放射能 / Bq				回収率 / %	
		回収前		回収後			
活性炭ろ紙	FM	11.79 ± 0.23	11.07 ± 0.29	6.1 ± 3.1			
	BM	11.67 ± 0.24	10.38 ± 0.27	11.1 ± 3.1			
プルシアンブルー不織布	FM	11.29 ± 0.27	10.26 ± 0.28	9.10 ± 3.48			
	BM	10.74 ± 0.28	6.42 ± 0.21	40.2 ± 3.4			
ラドディスク	FM	11.69 ± 0.29	N.d.	—			

図 5 に U-8 容器に ^{137}Cs 濃度既知の試験試料を高さ別に充填して算出した ^{137}Cs の検出効率を示す。通常の底質試料で使用する 5 cm で充填した際の検出効率が 0.364% であるのに対し、ディスク厚である 0.2 cm の検出効率は 0.859% であった。溶液試料のディスク化は検出効率の向上にもつながる。また、固体試料である底質を溶液化しディスク状に濃縮することで、容積を 0.4% に減少できるため 25 倍濃縮となる。この結果より、ラドディスクセシウムは放射性セシウムを含む溶出液の処理方法として有効であると考えられる。現在の 1/100 までは低減できなかったが、最高の条件で検出下限の 1/60 程度まで定量可能であると考えている。底質試料を熱分解による溶解後、 ^{40}K を除去するには至らずバックグラウンドの低減は研究機関内でかなわなかったが、検出下限のさらなる低減は可能であると考えている。

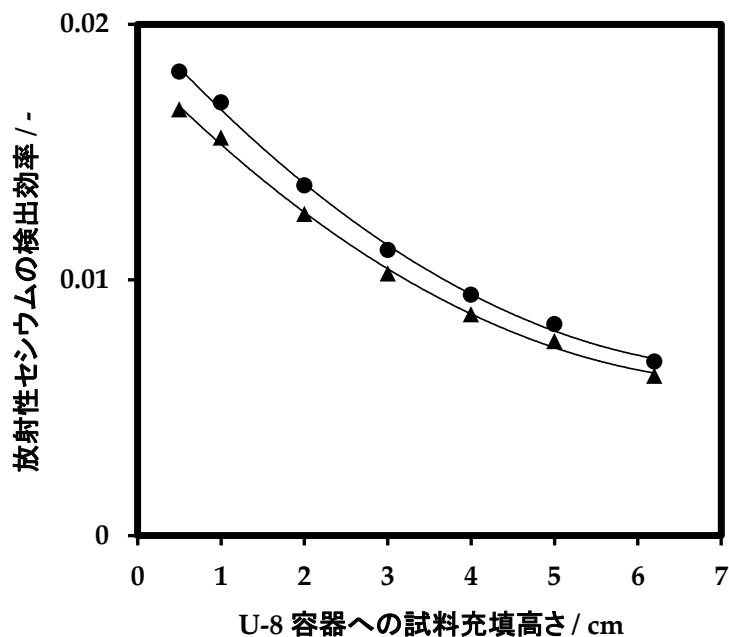


図 5 試料充填高さ と放射性セシウム (^{134}Cs : ●, ^{137}Cs : ▲) の検出効率の関係。

東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故から約 6 年が経過しようとしている現在も、多くの自治体で長期的に環境中に残留する可能性がある放射性セシウム (^{134}Cs 及び ^{137}Cs) のモニタリングが行われている。京浜河川事務所の公開データ¹⁹⁾ では、川崎市内の多くの観測地点で「不検出」となっているが、高感度分析技術を駆使することで多摩川集水域の底質中放射性セシウムを可能な限り定量したいと考える。

4. 結言

多摩川集水域における底質中放射性セシウムモニタリングの結果、上～中流域の本流に比べ、支流と本流の下流域で底質中放射性セシウム濃度が高い傾向にあることがわかった。そして、宿河原での定点観測から、降雨による増水時に底質中放射性セシウム濃度は、平水時の2～3倍程度高くなった。これらの結果は、降雨により中流域から本流への放射性セシウムの流入が起こっていることを示唆している。多摩川集水域における底質中放射性セシウム濃度の分布より、底質に吸着した放射性セシウムは、上流から降雨などのイベントにより、局所的な沈降を繰り返しながら下流に向けて徐々に移行している。一方で、上～中流域でも一部濃度が高い地点を確認した。流量の小さい支流での蓄積、下水の流入により急激な濃度上昇、底質の沈降しやすい環境(ダム湖)等が要因として考えられるが、河川水中の放射性セシウムの分析とあわせた議論が必要であると考えられる。多摩川集水域について、放射性セシウムを継続してモニタリングすることは、汚染状況の把握と移行に関するパラメータの取得につながる。得られる成果は、今後の除染や事故発生時の迅速な対応に繋がるため重要であると考えている。

化学形態別分析の結果、底質中放射性セシウムが環境中で溶出しにくい不溶性の形態で存在していることがわかった。このように、放射性セシウムが底質に強固に吸着した形態で存在していることから、降雨時の流水作用による底質の移行・拡散に応じて放射性セシウムの移行も生じていると考えられる。なお、下流域への放射性セシウムの移行・蓄積が起こっていることから、今後も化学形態別分析を含めた中長期にモニタリングが必要である。

低濃度試料の分析技術を検討した結果、検出下限の1/60程度まで定量手法を提案できた。将来30年後のモニタリングを見据えた高精度分析技術の検討は、多摩川及びその流域における今後の放射性セシウムの長期的な情報共有につながると思っている。

5. 謝辞

本研究に助成を頂いた公益財団法人とうきゅう環境財団に深く感謝いたします。また本研究の実施にあたり、現地臨時備役者及び室内臨時備役者として研究活動に参加した明治大学大学院理工学研究科の越智康太郎氏(現 JAEA), 奥村真吾氏, 福田大輔氏, 藤井健悟氏, そして明治大学放射化学研究室の皆様のご協力に対して心からの謝意を表します。

6. 参考文献

- 1) 原子力規制委員会「放射線モニタリング情報」:
<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/index.html> (閲覧日: 2017年4月24日).
- 2) 及川真司, 渡部輝久, 高田兵衛, 鈴木千吉, 中原元和, 御園生淳: 分析化学 (*BUNSEKI KAGAKU*), **62**, 455 (2017).
- 3) H. Tsuji, T. Yasutaka, Y. Kawabe, T. Onishi and T. Komai: *Water Res.*, **60**, 15 (2014).
- 4) 越智康太郎, 栗原雄一, 青林諒, 萩原健太, 野川憲夫, 中村利廣, 小池裕也: *Proceedings of the 17th Workshop on Environmental Radioactivity*, 33 (2016).
- 5) 田林雄, 山室真澄: 陸水学雑誌, **74**, 183 (2013).
- 6) 鈴木亮一郎, 志村卓也, 松田渉, 岩鼻雄基, 栗原雄一, 中村利廣, 小池裕也: *Proceedings of the 15th Workshop on Environmental Radioactivity*, 74 (2014).
- 7) 中町鴻, 廣瀬正明, 木川田喜一, 廣瀬勝己, 岡田往子, 鈴木章悟, 本多照幸: 分析化学 (*BUNSEKI KAGAKU*), **8**, 89 (2015).
- 8) 越智康太郎, 藤井健悟, 萩原健太, 大渕敦司, 小池裕也: 分析化学 (*BUNSEKI KAGAKU*), **66**, 175 (2017).
- 9) 越智康太郎, 萩原健太, 磯野成美, 奥村真吾, 中潮結花, 塩原良建, 中村利廣, 小池裕也: *Proceedings of the 17th Workshop on Environmental Radioactivity*, 139 (2016).
- 10) 吉田政高, 石井正人, 喜多和子, 伊藤晴夫, 佟曉波, 董玫, とうきゅう環境財団研究成果報告書(学術研究 No. 309) (2014).

- 11) 小池裕也, 鈴木亮一郎, 越智康太郎, 萩原健太, 中村利廣: 分析化学 (*BUNSEKI KAGAKU*), **66**, 263 (2017).
- 12) A. Tessier, P. G. C. Campbell and M. Bisson: *Anal. Chem.*, **51**, 844 (1979).
- 13) 藤井健悟, 越智康太郎, 萩原健太, 大淵敦司, 野村貴美, 中村利廣, 小池裕也, 放射化学, **34**, 1 (2016)
- 14) T. Yasutaka, H. Tsuji, Y. Kondo, Y. Suzuki, A. Takahashi and T. Kawamoto: *J. Nucl. Sci. Tech.*, **50**, 792 (2015)
- 15) H. Tsuji, Y. Kondo, Y. Suzuki and T. Yasutaka: *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **299**, 139 (2014)
- 16) 藤村恵人, 山口裕顕, 梅原孝之, 武藤景子: *Radioisotopes*, **62**, 841 (2013).
- 17) 福田大輔, 栗原雄一, 塩原良建, 小松原健太, 萩原健太, 中村利廣, 小池裕也: 固相抽出法による鉍物試料中天然放射性核種の分離定量, 日本分析化学会第 64 年会要旨集, 30 (2015).
- 18) 小池裕也, 炭山裕彰, 小田切裕輔, 乾哲朗, 岩鼻雄基, 栗原雄一, 中村利廣, 固相ディスク捕集/ガンマ線スペクトロメトリーによる雨水中の短寿命放射性核種分析, 分析化学 (*BUNSEKI KAGAKU*), **62**, 507 (2013).
- 19) 川崎市「河川水・海水・地下水及び土壌の測定結果」:
<http://www.city.kawasaki.jp/300/page/0000040709.html> (閲覧日: 2017 年 4 月 24 日)

多摩川集水域における底質中の放射性セシウムの30年後を
見据えた挙動解析

(研究助成・学術研究VOL. 46—NO. 326)

著者 小池 裕也

発行日 2017年11月

発行者 公益財団法人とうきゅう環境財団

〒150-0002

東京都渋谷区渋谷1-16-14 (渋谷地下鉄ビル内)

TEL (03) 3400-9142

FAX (03) 3400-9141

<http://www.tokyuenvironment.or.jp/>