

# 福島第一原発周辺のため池における $^{137}\text{Cs}$ の挙動に関する研究

Study on behavior of  $^{137}\text{Cs}$  in ponds in the vicinity of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant.

代表者 環境放射能研究所 講師 脇山 義史

## ○成果の概要

### 1. はじめに

原発事故により放射性物質が多量に沈着した福島には、農業用水の供給源としてのため池が多数存在する。放射性物質のうち、 $^{137}\text{Cs}$  は沈着量が多く、半減期が長いこと、その長期的な挙動の把握は、住民の帰還に向けた重要な課題である。農林水産省農村振興局・福島県農林水産部 (2015) は、福島県内の全域のため池における水や底泥の放射性セシウム濃度などを調査し、その汚染状況を報告している。しかし、単一のため池を対象とした複数年の観測はいまだ少なく、時間変化傾向については不明な点が多い。チェルノブイリ原発事故による影響を受けた地域では、長期的な観測によってため池などの閉鎖性水域において水の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が夏季に高くなる季節変化を繰り返しながら、数年をかけて低下することが示されている (Zibold and Klemm, 2005)。こうした知見は福島における  $^{137}\text{Cs}$  の挙動を予測する上で重要な示唆を与えるが、気象や地質などの条件の違いを踏まえた上で福島にも適用できるかどうか検討が必要である。

本研究では、福島におけるため池の汚染状況および  $^{137}\text{Cs}$  挙動の把握を目的として、福島第一原発事故により  $^{137}\text{Cs}$  が沈着した地域にあるため池を対象として、2015 年から 2016 年にかけて調査を行った。

### 2. 調査方法

研究対象は福島県双葉郡大熊町内にある 4 つのため池 (鈴内、鮎沢、隠居坂、頭森) である。これらのため池は福島第一原発から 10km 圏内にあり、2014 年 3 月時点の各ため池周辺の 1m 高さの空間線量率は、鈴内で  $24 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 、鮎沢で  $6.0 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 、隠居坂で  $11 \mu\text{Sv h}^{-1}$ 、頭森で  $3.3 \mu\text{Sv h}^{-1}$  であった。

これらのため池において、周辺の土壌と底泥の柱状試料を、それぞれ 7~9 点と 3~4 点採取した。持ち帰った柱状試料は 2~5 cm 間隔に切

り分け、各試料を乾燥・粉砕後にゲルマニウム半導体検出器を用いて  $^{137}\text{Cs}$  濃度の測定を行った。各層の  $^{137}\text{Cs}$  濃度と試料重量から  $^{137}\text{Cs}$  インベントリー ( $\text{Bq m}^{-2}$ ) を算出した。

水試料は 2015 年 4 月に採取を開始し、2016 年 8 月までに各ため池で 13 回の採取を行った。採取した水試料は実験室において、 $0.45 \mu\text{m}$  メッシュメンブレンフィルターを用いて吸引ろ過を行った。得られたろ液と懸濁物をゲルマニウム半導体  $\gamma$  線検出器で測定を行い、それぞれ溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度 ( $\text{Bq L}^{-1}$ ) と懸濁物の  $^{137}\text{Cs}$  濃度 ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ) を求めた。また、懸濁物の乾燥重量から懸濁物濃度 ( $\text{kg L}^{-1}$ ) を求め、懸濁物の  $^{137}\text{Cs}$  濃度を乗じることで、懸濁態  $^{137}\text{Cs}$  濃度 ( $\text{Bq L}^{-1}$ ) を算出した。溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度と懸濁態  $^{137}\text{Cs}$  濃度を合計し、全  $^{137}\text{Cs}$  濃度 ( $\text{Bq L}^{-1}$ ) とした。さらに、懸濁物の  $^{137}\text{Cs}$  濃度を溶存態  $^{137}\text{Cs}$  濃度で除して分配係数  $K_d$  ( $\text{L kg}^{-1}$ ) を算出した。また、 $^{137}\text{Cs}$  濃度の変動要因の把握のため、別途採取した水試料を用いて、溶存陽イオン ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ) 濃度 ( $\text{meq L}^{-1}$ ) および溶存有機態炭素濃度 ( $\text{mg L}^{-1}$ ) を、それぞれイオンクロマトグラフィーおよび TOC アナライザーにより測定した。

### 3. 結果および考察

周辺の土壌における  $^{137}\text{Cs}$  インベントリーの平均値は、鈴内で  $6.4 \text{ MBq m}^{-2}$ 、鮎沢で  $2.9 \text{ MBq m}^{-2}$ 、隠居坂で  $2.1 \text{ MBq m}^{-2}$ 、頭森  $0.90 \text{ MBq m}^{-2}$  であった。底泥における  $^{137}\text{Cs}$  インベントリーの平均値は鈴内で  $13 \text{ MBq m}^{-2}$ 、鮎沢で  $8.9 \text{ MBq m}^{-2}$ 、隠居坂で  $1.6 \text{ MBq m}^{-2}$ 、頭森  $1.1 \text{ MBq m}^{-2}$  であった。鮎沢では周辺土壌より底泥において、 $^{137}\text{Cs}$  インベントリーが有意に高く、 $^{137}\text{Cs}$  が二次的に流入・蓄積したことが示唆された。

全  $^{137}\text{Cs}$  濃度の平均値は、鈴内で  $41 \text{ Bq L}^{-1}$ 、鮎沢で  $13 \text{ Bq L}^{-1}$ 、隠居坂で  $9.5 \text{ Bq L}^{-1}$ 、頭森で  $1.4 \text{ Bq L}^{-1}$  であった。全  $^{137}\text{Cs}$  のうち、平均して 71~90% が懸濁態  $^{137}\text{Cs}$  であった。分配係数  $K_d$  の平均値は、鈴内で  $1.3 \times 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ 、鮎沢で  $2.1 \times 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ 、隠居坂で  $1.7 \times 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ 、頭

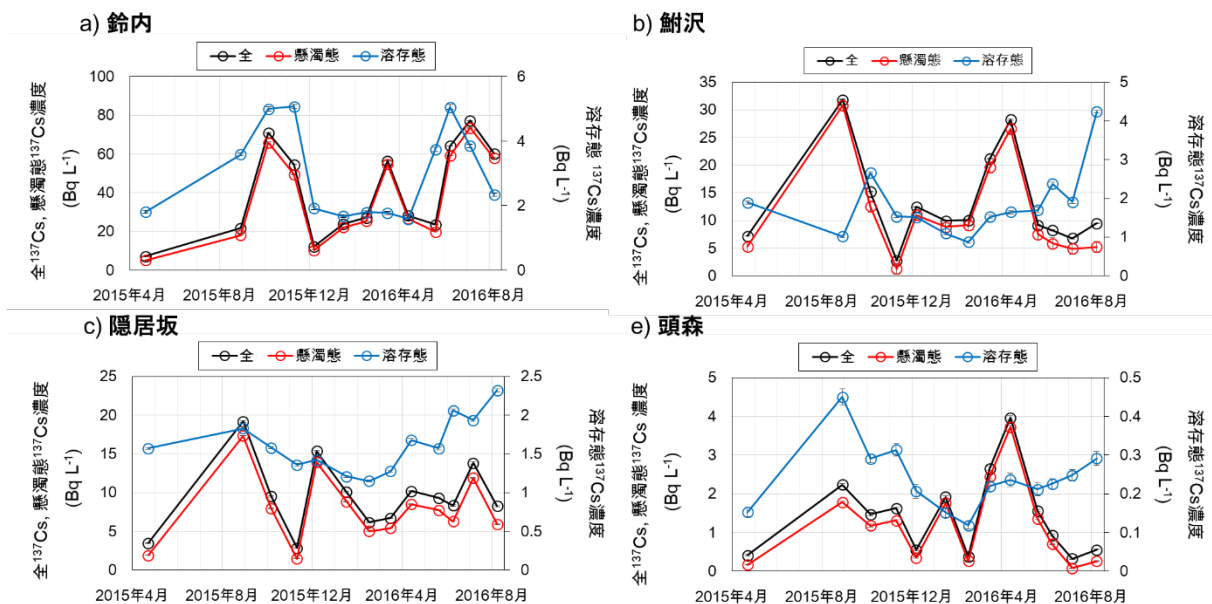


図1. 各ため池における全<sup>137</sup>Cs濃度、懸濁態<sup>137</sup>Cs濃度、溶存態<sup>137</sup>Cs濃度の時間変化(Wakiyama et al., in pressを基に修正).

森で  $6.2 \times 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ であった。これらの  $K_d$ は福島における河川で得られた値と同等であり、チェルノブイリ原発周辺の水環境における値より、10~100倍ほど高い値であった(Konoplev et al., 2016)。このことは、福島ではチェルノブイリに比べて<sup>137</sup>Csが懸濁物に吸着されやすいことを示している。

図1に、各ため池における全<sup>137</sup>Cs濃度、懸濁態<sup>137</sup>Cs濃度、溶存態<sup>137</sup>Cs濃度の時間変化を示す。全<sup>137</sup>Cs濃度と懸濁態<sup>137</sup>Cs濃度の変動はほぼ一致していた。溶存態<sup>137</sup>Cs濃度は暖候期に高く、寒候期に低い傾向を示した。溶存態<sup>137</sup>Cs濃度の変動要因を検討するため、溶存有機態炭素および溶存陽イオン濃度との相関を調べたところ、4つのため池に共通して溶存有機態炭素濃度および $K^+$ 濃度との間に正の相関係数が得られた。既往研究では、 $K^+$ は<sup>137</sup>Csの競合イオンとして知られており(Cremers et al., 1988)、イオン交換反応により懸濁物中の土粒子から<sup>137</sup>Csを脱着させたと考えられる。同じく $NH_4^+$ も主要な競合イオンであるが、今回の調査ではその濃度が検出限界値以下となるものが多く、溶存態<sup>137</sup>Cs濃度との関係は明らかにならなかった。溶存有機態炭素との関係から、暖候期に温度上昇により有機物の分解が活発となり、<sup>137</sup>Csの水中への溶出が促進されたことが考えられる。

#### 4. まとめ

各ため池の周辺土壌と底泥における<sup>137</sup>Csインベントリーの比較から、二次的に<sup>137</sup>Csが流入・蓄積したため池があることがわかった。水

中では、<sup>137</sup>Csはその大部分が懸濁態として存在しており、福島においては懸濁物の移動にともなう<sup>137</sup>Csの二次的な移動を把握することが重要であることがわかった。溶存態<sup>137</sup>Cs濃度は、4つのため池に共通して、夏季に高く、冬季に低いという傾向を示した。溶存態<sup>137</sup>Cs濃度は、 $K^+$ 濃度に加えて有機態炭素濃度と連動することが示唆されたことから、今後の課題として溶存態<sup>137</sup>Csの挙動に対する生物活動の影響の解明が挙げられる。

最後に、本研究は公益財団法人クリタ水・環境科学振興財団助成金(助成番号15B098)により行われた。一連の研究により、国際学会での発表1件、国内学会での発表1件、国際学術誌での論文掲載1件(Wakiyama et al., in press)を行うことが出来た。ここに記して謝意を表す。

#### 引用文献:

農林水産省農村振興局・福島県農林水産部 (2015) [http://www.maff.go.jp/j/kanbo/joho/saigai/pdf/tameike\\_tyousa26.pdf](http://www.maff.go.jp/j/kanbo/joho/saigai/pdf/tameike_tyousa26.pdf).

Cremers et al. (1988) *Nature*, **335**: 247-249. DOI:10.1038/335247a0

Konoplev et al. (2016). *Journal of Environmental Radioactivity*. **151**: 568-578. DOI:10.1016/j.jenvrad.2015.06.019

Wakiyama et al. (in press). *Journal of Environmental Radioactivity*. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.07.017

Zibold and Klemm (2005). *Radioprotection*. **40**:S497-S502. DOI:10.1051/radiopro:2005s1-073