

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：32621

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24654156

研究課題名(和文)人工放射性核種を水文学的トレーサーに用いる火口湖の物質循環に関する研究

研究課題名(英文)Study on water circulation system of crater lakes using radioactive cesium as a hydrological tracer

研究代表者

木川田 喜一 (Kikawada, Yoshikazu)

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号：30286760

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原子力発電所事故により沈着した放射性セシウムをトレーサーとして、草津白根山の活動的火山湖「湯釜」における水循環率を推察した。湯釜湖水の放射性セシウム濃度は一定の割合で減少しており、その減少率から湯釜湖水中でのセシウムの平均滞留時間を求めることができた。湯釜は閉塞湖であり、降水、湖面からの蒸発、湖底からの漏水、および湖底からの火山性流体の供給のバランスにより一定の水位を保っている。結果として、湖底から1日あたり湖水総量の約0.1%が漏水していると見積もられ、火山湖の湖底からの漏水量を初めて直接的に求めることができた。

研究成果の概要(英文)：The Kusatsu-Shirane volcano is one of the active volcanoes in Japan. In Yugama, one of its four crater lakes, a part of the lake water always flows out from the lake bed, and volcanic fluid always flows into the lake from the bottom. I considered radioactive isotopes of cesium derived from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident could be utilized as a hydrological tracer for the study on the lake water circulation system, and started measuring their concentrations in the lake water samples collected periodically. The time series data of the concentrations of radioactive cesium are a good indicator of the water circulation in the crater lakes of the Kusatsu-Shirane volcano. It was estimated that, in Yugama, 0.1% of the lake water leaks out per day, based on the decreasing rate of the dissolved radioactive cesium.

研究分野：火山化学・環境分析化学

キーワード：草津白根山 活火山 火山湖 物質収支 物質循環 水文学的トレーサー 放射性セシウム 福島第一原子力発電所事故

1. 研究開始当初の背景

群馬県北西部に位置する草津白根山は気象庁による常時観測火山である。その山頂火砕丘頂部には、北東から南西にかけて「水釜」、「湯釜」、「潤釜」と名付けられた3つの火口湖が並んでいる(図1)。その中で最大、最深の火口湖「湯釜」では常に湖底の噴気孔から火山ガスが供給されており、強酸性の湖水を湛える活動的火山湖として世界的に知られている。草津白根山では1982年から1983年にかけての湯釜での水蒸気爆発を最後にその後は噴火を生じていないが、2008年に湯釜火口内の北側湖岸および北側内壁で新たな噴気が確認されて以降、次々と火山活動の活発化を示唆する観測データが得られ¹⁾、湯釜もしくはその北側に隣接する水釜周辺での水蒸気爆発(水蒸気噴火)が懸念されるようになった。

一方、2011年3月11日に生じた東北地方太平洋沖地震に誘発された福島第一原子力発電所事故は、環境中に多量の放射性核種を放出し、大気中へと放出された放射性核種は関東地方を含む広い範囲に沈着した。草津白根山は福島第一原子力発電所の約240km西南西に位置するが、この原発事故由来の放射性セシウムが草津白根山の山頂域にも沈着しているのであれば、閉塞湖である草津白根山の山頂火口湖の水文学的トレーサーとして利用できる可能性があると考え、本研究に着手した。

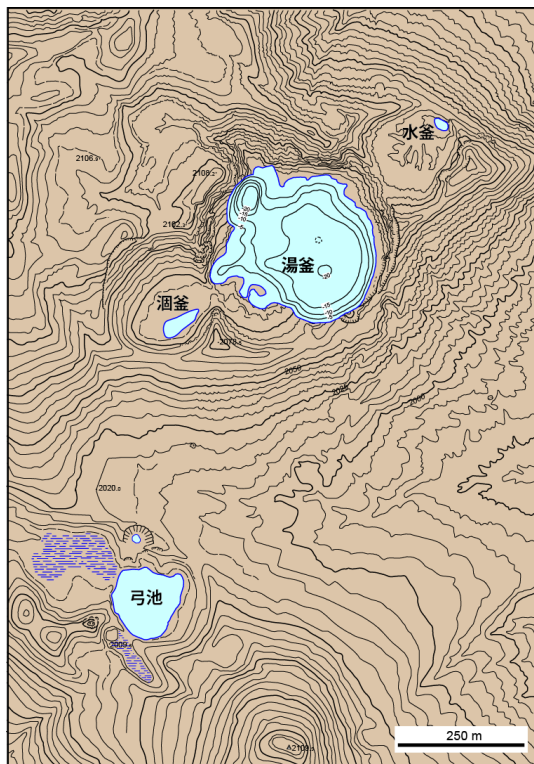


図1. 草津白根山の山頂火口湖

2. 研究の目的

草津白根山の有史以来の噴火は全て水蒸気爆発である。近年の活動中心である活動的火山湖「湯釜」は、水面下に火山ガス噴気孔を有し、湖底から継続的な熱水供給がある。これまでの観測により、湯釜の湖水は火山活動の盛衰に応じた組成変化を示すことが知られており、1982年の噴火の際には湯釜において顕著な水質変化と大きな水位低下が見られた²⁾。またその後も火山活動レベルの上昇に対応するように湯釜湖水中の塩化物イオン濃度やふっ化物イオン濃度の上昇が観測されている³⁾。すなわち草津白根山の火口湖は火口直下の火山熱水系を映す鏡であり、その湖水の水質形成機構と物質収支の理解は草津白根山の地下熱水系の理解に直結するものである。しかしながら火口湖の物質収支を定量的に取り扱うことはきわめて困難である。なぜなら、たとえば閉塞湖である湯釜の湖水は、降水による供給と湖面からの蒸発に加え、湖底からの熱水供給と内壁からの漏水とのバランスにより保持されていると考えられるが、湖底からの熱水供給量と内壁からの漏水量は共に直接的に測定することできないため、これまで湖底からの熱水供給量の見積もりには大きな曖昧さがあった。そこで本研究では、放射性セシウムをトレーサーとして、草津白根山の山頂火口湖の水収支を定量的に捉えることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の主体は、草津白根山の火口湖に共存する福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウム濃度の時間変化から湖水の滞留時間を求めることにある。そのため、2011年11月(本研究課題の採択前の予備調査)以降、2014年11月までの3年間、定期的に火口湖の採水調査を実施し、溶存放射性セシウム濃度を求め、その経時変化を明らかにした。また、山頂域の土壌ならびに火口湖底質の採取と放射性セシウム濃度の分析を行い、当該地域への放射性セシウム沈着量および、湖水と底質との間での放射性セシウムの分配について検討した。

(1) 火口湖水の分析

湖水試料の採取は、主に山頂火口湖の水釜、湯釜、潤釜および、山頂火砕丘の南側に位置する弓池において行った(図1)。溶存放射性セシウムの定量は次に行った。まず、孔径0.45 μmのメンブランフィルターで濾過した約10Lの試料水に対し、セシウムの安定核種(¹³³Cs)をキャリアとして添加し、3M Empore™ Cesium Rad Diskに通水することで試料水に溶存するセシウムをRad Diskに捕集した。この際、Rad Disk 通過前後での¹³³Cs濃度の変化からDisk回収率を算出した。セシウム捕集後のRad Diskは乾燥後、そのまま高純度ゲルマニウム半導体検出器と4096チャンネル波高分析器を用いたガンマ線スペ

クトロメトリに供した。得られた放射性セシウム (^{134}Cs , ^{137}Cs) 濃度に対し Disk 回収率の補正を加え、湖水中の濃度に換算した。なお、試料水の ^{133}Cs の定量は四重極型 ICP-MS により行った。その他、主要溶存成分組成は炎光度法、ICP-OES、イオンクロマトグラフィーにより求めた。

(2) 土壌および底質の分析

土壌試料は山頂火砕丘上で土壌試料を、また水釜、湯釜、溜釜において底質を採取した。採取はハンドショベルあるいはハンドコアラを用いて行った。放射性セシウムの定量は、風乾、解粒したのち U-8 容器に充填してガンマ線スペクトロメトリに供した。

4. 研究成果

(1) 放射性セシウムの土壌沈着量の見積

2012年8月26日に採取した溜釜火口内の土壌コア中の放射性 Cs の深度プロファイルを図2に示す。安定核種の ^{133}Cs 濃度は表層から下層にかけてそれほど大きな変化は認められないが、放射性セシウムは最表層における濃度が 2 cm 以深に比べてきわめて高かった。また ^{134}Cs については最表層のみに検出され、2 cm 以深では検出下限未満であった。 ^{134}Cs が草津白根山山頂域の土壌から検出されたことは、当該地域に福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの沈着があったことを意味する。また、その放射能濃度を福島第一原子力発電所事故のあった2011年3月12日に半減期補正した場合、表層土における $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比は 1.09 となり、事故直後の大気中の放射性 Cs の放射能比⁴⁾ とほぼ等しい。このため、草津白根山山頂域の表層に見出される放射性セシウムは、そのほぼ全てが福島第一原子力発電所事故由来である。

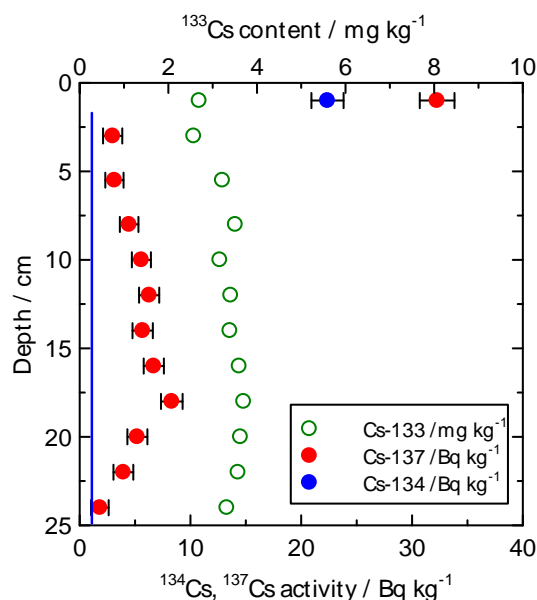


図2. 溜釜火口内土壌の放射性セシウム濃度の鉛直プロファイル

図2の表層 2 cm の放射性セシウム濃度から求めた ^{137}Cs の地表への沈着量は約 800 Bq/m^2 である。また、山頂域から採取した他の土壌試料からも同様に沈着量を見積もったところ、草津白根山の山頂域には福島第一原子力発電所事故によりそれぞれ 1 kBq/m^2 前後の ^{134}Cs および ^{137}Cs の沈着があったものと推察された。

(2) 湯釜の溶存放射性セシウム濃度

図3に湯釜湖水の放射性セシウム濃度の経時変化を示す。図からは ^{134}Cs , ^{137}Cs 共にそれぞれある一定の割合で漸減しているようである。そこで最小二乗法により実測の減衰曲線を引き、その見かけの半減期を求めると、 ^{134}Cs が約 330 日、 ^{137}Cs が約 570 日となった。これは両核種の放射性核種としての半減期よりも明らかに短い。また、得られた減衰曲線からは、2011年3月当時、湯釜湖水には 120 mBq/L 前後の ^{134}Cs および ^{137}Cs が溶存していたと見積もられる。すなわち、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 1 であり、現在の湯釜湖水に溶存する放射性セシウムの全てが福島第一原子力発電所事故由来と見なせる。さらに湯釜の湖水総量と表面積⁵⁾からすれば、福島第一原子力発電所事故由来の ^{134}Cs および ^{137}Cs の湯釜への沈着量は 1 kBq/m^2 前後と推定され、山頂域の土壌中の放射性セシウム濃度からの見積りと整合的である。

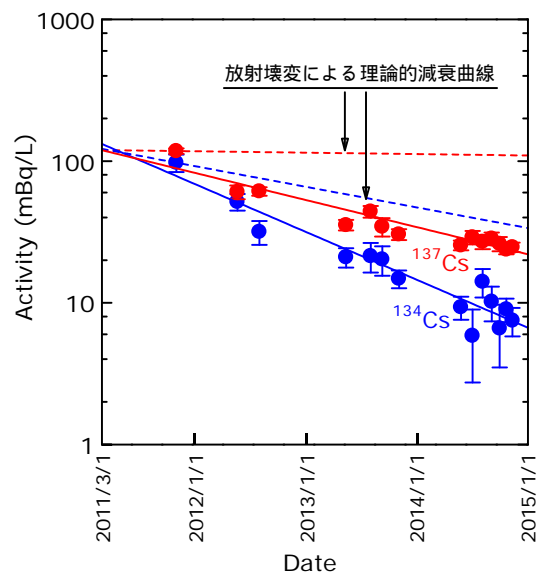


図3. 湯釜湖水の放射性セシウム濃度の経時変化

一方、福島第一原子力発電所からの放射性核種の大量放出が一応の収束を見たであろう2011年4月1日に湯釜湖水の放射性セシウム濃度を半減期補正して得られた経時変化では、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の減衰曲線は一致し、その半減期は約 600 日である。この値は放射性壊変とは独立の、火口内の物質循環を反映したものと言える。湯釜は閉塞湖であり、その湖水総量に大きな変動はないことからボ

ックモデルを適用すると、湯釜における放射性セシウムの平均滞留時間は約 850 日である。ここで 2011 年 4 月以降、新たな放射性セシウムの付加がなく、湯釜の湖岸底質では放射性セシウムが検出下限未満であったことから湖水から底質への放射性セシウムの吸着はほとんど無く、溶存する放射性セシウムは湖底からの湖水漏出によってのみ失われているとするならば、一日当たり湖水の 0.11~0.12% が漏出している計算になる。湯釜の湖水総量からすれば、一日当たりの漏出量は 800 m³ 前後と想定される。このように、放射性セシウムを水文学的トレーサーとして用い、活動的火山湖の水収支を初めて直接的に求めることができた。

(3) 湯釜の放射性セシウム濃度

図 4 に、湯釜の隣接する涸釜の湖水の放射性セシウムの経時変化を示す。図から明らかなように、涸釜湖水における放射性セシウム濃度およびその経時変化は、湯釜とは全く異なったものとなっている。涸釜の放射性セシウム濃度は 2011 年 11 月の段階で湯釜の 10 分の 1 ほどしかなく、また、それ以降、明瞭な減少傾向は見られない。一方で 2011 年 11 月時点での ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs の放射能比は約 1 であり、涸釜湖水に溶存する放射性セシウムが福島第一原子力発電所事故由来であることは間違いない。なお、涸釜の湖水中の放射性セシウム濃度から求めた湖面への放射性セシウム沈着量は 10 Bq/m² にも満たず、涸釜底質の放射性セシウム濃度は涸釜火口内土壌の 10 分の 1 程度であった。

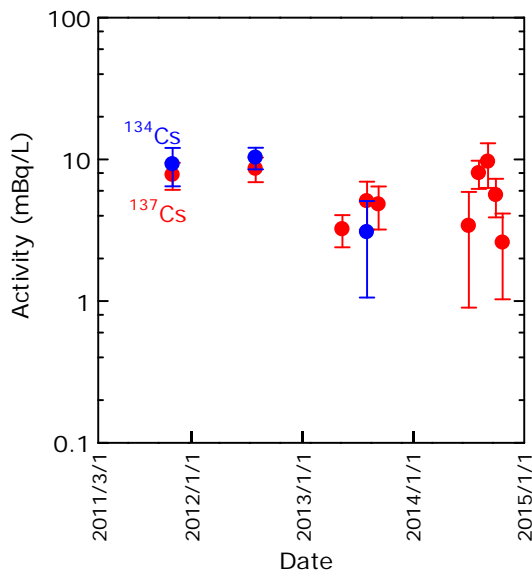


図 4. 涸釜湖水の放射性セシウム濃度の経時変化

涸釜の湖水から見積もられる放射性セシウム沈着量の低さは、福島第一原子力発電所事故当時、涸釜は完全結氷した上に厚い積雪があり、放射性セシウムが湖面へ直接的に沈着しなかったことに起因している可能性が

ある。また、涸釜湖水の放射性セシウム濃度の経時変化に減少傾向が見られないのは、涸釜には湖底からの湖水の漏出がほとんど無いことに加え、pH 3~4 と湯釜より酸性度が低い涸釜では、湖水に溶解した放射性セシウムは速やかに底質へと移行し、短い期間で吸着平衡に達するためと考えられる。このように火口湖ごとに湖水中および底質中の放射性セシウムの挙動は異なり、その違いは火口湖の水循環システムの違いを反映するものと考えられる。

<引用文献>

- 気象庁地震火山部，草津白根山の火山活動解説資料(平成 23 年 7 月)，2011。
 小坂文予ほか，群馬県草津白根山火口湖“湯釜”の水質変化と火山活動，地球化学，31 巻，1997，119-128。
 東京工業大学，草津白根山第 129 回火山噴火予知連絡会資料(その 4)草津白根山，2014，15-18。
 原子力規制委員会，環境放射能水準調査結果(月間降下物)(H23 年 3 月分) 2011。
 Ohba T. et al., Water, heat and chloride budgets of the crater lake, Yugama at Kusatsu-Shirane volcano, Japan, *Geochemical Journal*, Vol. 28, 1994, 217-231.

5. 主な発表論文等

[学会発表](計 4 件)

- Hirayama, Y., Kikawada, Y., Okawa, A., Nakamachi, K., Oi, T., Hirose, K. (2014) Water circulation system of crater lakes of Kusatsu-Shirane volcano studied by FDNPP-derived radioactive cesium as hydrological tracer, *Cities on Volcanoes 8 (COV8)*, 2014 年 9 月 10 日，「Yogyakarta (Indonesia)」
 木川田喜一，大川綾，平山愉子，廣瀬勝己 (2014) 放射性セシウムは火山熱水系の水文学トレーサーとして使えるか？第 67 回日本温泉科学会大会，2014 年 9 月 5 日，「プランナールみささ(鳥取県・三朝町)」
 Kikawada, Y., Okawa, A., Nakamachi, K., Honda, T., Oi, T., Hirose, K. (2013) Can radioactive cesium be used as a hydrological tracer for crater lake study?, 23rd Annual V.M. Goldschmidt Conference, 2013 年 8 月 26 日，「Florence (Italy)」
 Kikawada, Y., Nishimoto, A., Okawa, A., Nakamachi, K., Honda, T., Oi, T., Hirose, K. (2013) Water flow and circulation in crater lakes of Kusatsu-Shirane volcano, Japan, as studied by using radioactive cesium as

a hydrological tracer, IAVCEI 2013
Scientific Assembly, 2013年7月24日,
「かごしま県民交流センター（鹿児島
県・鹿児島市）」

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木川田 喜一 (KIKAWADA Yoshikazu)

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号：30286760