

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601  
研究種目：若手研究(B)  
研究期間：2013～2015  
課題番号：25870158  
研究課題名(和文) 雨水による放射性物質の濃縮及び拡散に関する研究

研究課題名(英文) Dynamics of radiomaterials driven by rainwater

## 研究代表者

小豆川 勝見 (SHOZUGAWA, Katsumi)

東京大学・総合文化研究科・助教

研究者番号：00507923

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中に飛散した放射性物質が、沈着後にどのようにふるまうのか、特に放射性セシウムの易動性に着目した研究を行った。雨水によって濃縮・拡散を繰り返す放射性セシウムの易動性を、測定法を確立した上で、原子力発電所周辺から東京都内の公立学校のグラウンドなどで測定し動態を明らかにした。また食品中の放射性セシウムについても、既存のデータと実測値を比較し、将来の動態予測を行った。

研究成果の概要(英文)：We investigated that the mobility of radiocesium which released from the Fukushima Dai-ichi nuclear plant, TEPCO. After establishing the methods, we clarified the dynamics of radiocesium around Fukushima plant, and at the yard of public school in Tokyo. In addition, we reported the prediction of its mobility in the Japanese foodstuffs by compared with existing dataset and our results.

研究分野：環境分析化学

キーワード：放射性セシウム

### 1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所事故によって拡散した放射性物質が地表面に沈着した後にどのような挙動をとるのか、を明らかにするためには、シミュレーションと実測の2つのアプローチがある。放射性物質が局所的に濃縮する、いわゆる「ホットスポット」の形成過程や、食品中の放射性物質濃度は、地形の局所的環境や生物的ゆらぎに依存するため、実測によって明らかにせざるを得ない場合が多い。研究開始当時(2013年)、放射性物質の放出量や空間線量率については、ある程度の研究結果が得られてきたものの、将来予測に用いることができる情報は極めて限られた状況下にあった。

### 2. 研究の目的

(1)福島第一原子力発電所事故(2011年)により、大気を経由して東日本の陸域に沈着した放射性セシウムは、その多くが土壌粒子に吸着し、自然現象である風雨や除染といった人為的行為が放射性セシウムのキャリアとなることで、環境中の汚染物質として比較的易動性(mobility)が高い特徴がある。

しかし、雨風のような自然現象を事前に予測することは困難である以上、放射性セシウムの動態は連続的な観測以外に詳細を追う方法はない。本研究では、これまで「点」(あるいは「線」)として測定されてきた従来の空間線量率の測定から、より高効率で、より簡易な測定法を開発し、「面」として放射性セシウムを連続的に観測することで、放射性セシウムの易動性に基づく動態評価を試みた。(2)食品中への放射性セシウムの土壌からの移行も社会の大きな関心事であるが、基準値(放射性セシウムとして100 Bq/kg)の超過の有無だけでなく、低濃度(1 Bq/kg以下)の領域も正確に測定することによって、放射性セシウムの動態がより明確になる。本研究では「動態」という観点から、この点についても測定・考察を行った。

### 3. 研究の方法

(1)2インチ NaI(Tl)ガンマ線検出器(BNC社製 SAM-940)に、空間線量率およびガンマ線スペクトルに対してGPSより取得した位置情報を紐付けし、3次元データセットを取得した。幅広い空間線量率に対応するために、福島第一原子力発電所から1.5 km地点から、東京都内の公立学校のグラウンドまで測定対象を選択している。このデータセットを測定地点の地理的状況に合わせて最適化した空間分解能に変換し、3次元のマトリクスを作成した。この行列からマッピングを書き起こし、時間軸に対するマッピングの変化をトレースすることで、測定期間内の放射性セシウムの動態を明らかにする。

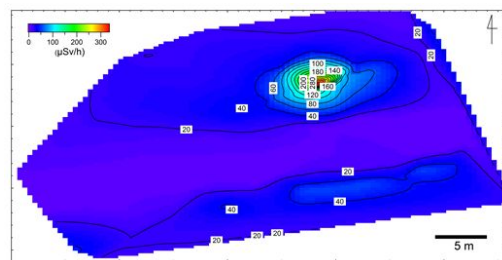
(2)食品試料は日本国内で流通している生鮮食品から加工品の食品群をマーケットバスケット方式によりスーパーマーケットや道

の駅などの農産物直売所で購入した。試料の前処理は、公定法(放射能測定法シリーズ No.14)に則った。さらに、検出限界を下げたより高精度な測定を実現するために、前処理に濃縮工程を追加した。液体試料の場合、約80で数日間加熱し、2Lに濃縮した。固体試料では、フリーズドライや乾燥、灰化操作を経て試料の減容化による濃縮を行った。これらの濃縮操作には、約1週間必要とした。その後、粉碎した試料をあらかじめ検出効率が求められているU8容器または2Lマリネリ容器に充填し、ガンマ線測定試料とした。ガンマ線の測定にはHPGe半導体検出器(Canberra社製、検出効率25%)および16kチャンネルMCAを用いたデータ収集系を用いた。 $^{137}\text{Cs}$ は661 keVのピークから、 $^{134}\text{Cs}$ は放出率の高い複数の光電ピーク(605 keV, 796 keV)に対しsum補正を行い、荷重平均を求め、放射能濃度を算出した。 $^{40}\text{K}$ は1461 keVのピークから算出した。測定時間は、試料の放射能に応じて300秒から756000秒間(live time)にし、検出限界は $3\sigma$ 、Covell法を用いてピークを検出した。

### 4. 研究成果

#### (1)沈着後の放射性セシウムの易動性

**Fig. 1**に福島第一原子力発電所(福島県大熊町/双葉町)の正門から1.5 km西にある道路(県道252号線)脇で5 cm高で測定した空間線量率の分布を示した。測定日は2014年3月19日である。水はけのよい道路中央では10 - 20  $\mu\text{Sv/h}$ 程度であるが、歩道上の水たまり跡(半径2 m)では、周辺と比較して、相対的に高線量(最大値は340  $\mu\text{Sv/h}$ )まで上昇しており、事故当時は一様であった汚染も、時間の経過とともに雨水によって放射性物質が集積していることが視覚的に明らかになった。

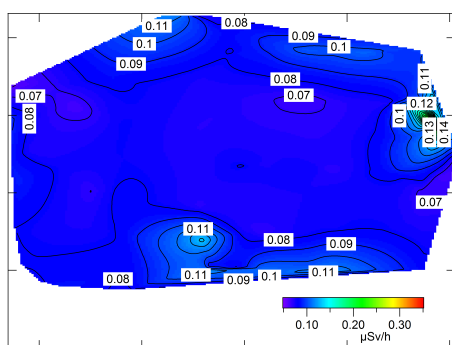


**Fig. 1** Two dimensional mapping with dose rate ( $\mu\text{Sv/h}$ ) on the roadside 1.5 km from Fukushima Dai-ichi nuclear power plant.

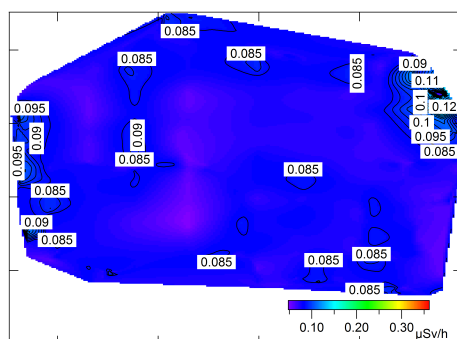
次に、東京都内の公立学校のグラウンド(人工芝、約2050  $\text{m}^2$ )における空間線量率の経年変化を**Fig. 2**に示した。**Fig. 2**上段(I)が2013年9月に、下段(II)が2014年10月に測定した空間線量率によるマッピングである。I, IIともにグラウンド右上に周辺と比較して線量が高いスポットが確認できるが、この場所には雨水管があり、ガンマ線スペクト

ルからも放射性セシウムが濃縮していることを確認した。濃縮が確認された地点の人工芝は張り替えを行ったが、張り替え直後は除染の基準とされる  $0.23 \mu\text{Sv/h}$  (対象校の場合、5 cm における測定値で除染の判断をしている) 以下に減少したものの、その後線量率は上昇し、雨水管の下流では継続して放射性セシウムの流入があることが示唆された。また両図を比較することで、 $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  のそれぞれの半減期にしたがって、時間の経過とともに空間線量率も相応分減少するが、それ以上に減少している地点、すなわち放射性セシウムそのものが移動している地点は、校庭の周辺部であることも明らかになった。

I



II



**Fig. 2** Distribution of dose rate in the public school yard in Tokyo. Map I and II were measured on Sep. 2013 and Oct. 2014, respectively.

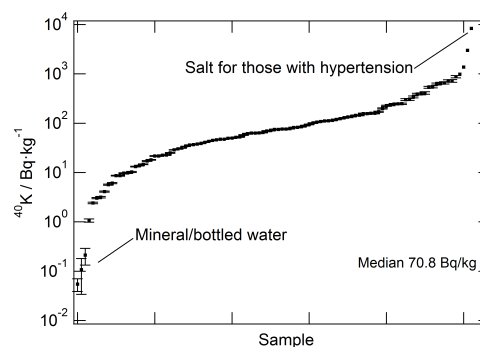
## (2) 食品中の放射性セシウム

約 100 試料の一般食材を対象とした測定では、含まれる  $^{40}\text{K}$  の中央値は  $70.8 \text{ Bq/kg}$  であった (**Fig. 3**)。つまり、福島第一原子力発電所事故とは一切関係なく、食材にはおおよそともと  $10 - 100 \text{ Bq/kg}$  程度の  $^{40}\text{K}$  が含まれていることになる。

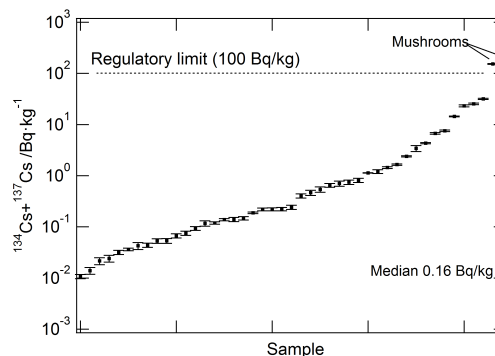
その一方で、放射性セシウムの中央値は  $0.16 \text{ Bq/kg}$  であった (**Fig. 4**)。この値は一般食品の基準値 ( $100 \text{ Bq/kg}$ ) の  $1/500$  以下であり、調査期間 (2014-2015 年) においては、多くの食材に含まれる放射性セシウムの値は十分に低く維持されていたことが明らかになった。

しかし、その一方で、道の駅などの直販方式で販売されていた食材は一般的なスーパーマーケットで取り扱う食材と比較で高い放射能セシウムを含むケースがあった。

一例として、道の駅で販売していた茨城県産のワカサギの佃煮では、放射性セシウムとして約  $32 \text{ Bq/kg}$  であった。基準値の約  $1/3$  であるので、流通そのものには問題はない。さらに道の駅で販売していた群馬県産のキノコからは  $185 \text{ Bq/kg}$  を検出し、基準値を超過して販売していた例もあった。このようなケースの報告を行い、関係者間と対応を協議することによって、基準値を超えた食材が流通することがないように連絡体制も確立してきた。



**Fig. 3** Radioactivity of  $^{40}\text{K}$  in various foodstuffs ( $n=95$ ).  $^{40}\text{K}$  was detected in 95 among 96 samples. Uncertainties are less than 10% of each activity.



**Fig. 4** Radioactivity of sum  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in foodstuffs ( $n=45$ ). Uncertainties are less than 10% of each activity.

## 5. 主な発表論文等

(雑誌論文) (計 13 件)

K. Shozugawa, T. Saito, M. Hori, M. Matsuo, High Sensitive Analysis of Radioactive Cesium in Japanese Foodstuffs: Three Years after the Fukushima Accident, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 査読有, 307(3), 2117-2122, 2016.

K. Shozugawa, B. Riebe, C. Walther, A. Brandl, G. Steinhauser, Fukushima-derived radionuclides in sediments of the Japanese Pacific Ocean coast and various Japanese water samples (seawater, tap water, and coolant water of Fukushima Daiichi reactor unit 5), Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 査読有, 307(3), 1787-1793, 2016.

S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser, Effective and ecological half-lives of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  observed in wheat and rice in Japan, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 査読有, 307(3), 1807-1810, 2016.

G. Steinhauser, T. Niisoe, K. H. Harada, K. Shozugawa, S. Schneider, H. A. Synal, C. Walther, M. Christl, K. Nanba, H. Ishikawa, A. Koizumi, Post-accident sporadic releases of airborne radionuclides from the Fukushima Daiichi nuclear power plant site, Environmental Science & Technology, 査読有, 49(24), 14028-14035, 2015.

山本光夫, 加藤孝義, 多部田茂, 北澤大輔, 藤野正俊, 小豆川勝見, 松尾基之, 田中潔, 道田豊, 東日本大震災後の釜石湾における海域環境変化, 日本水産学会誌(Nippon Suisan Gakkaishi), 査読有, 81(2), 243-255, 2015.

B. Rosenberg, K. Shozugawa, G. Steinhauser, Detection of Fuel Release in a Nuclear Accident: A Method for Preconcentration and Isolation of Reactor-Borne  $^{239}\text{Np}$  Using Ion-Specific Extraction Chromatography, Analytical Chemistry, 査読有, 87(17), 8651-8656, 2015.

S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser, Analysis of Japanese Radionuclide Monitoring Data of Food Before and After the Fukushima Nuclear Accident, Environmental Science & Technology, 査読有, 49(5), 2875-2885, 2015.

M. Yamamoto, D. Kitazawa, T. Kato, S. Komatsuda, M. Matsuo, K. Shozugawa, S. Tabeta, Evaluation of the Great East Japan Earthquake on the Coastal Environment in Kamaishi Bay, Proceedings of the 4th Asia-Pacific

Young Water Professionals Conference(APYWP2012), 査読有, 65-68, 2013.

S. Schneider, C. Walther, S. Bister, V. Schauer, M. Christl, H. A. Synal, K. Shozugawa, G. Steinhauser, Plutonium release from Fukushima Daiichi fosters the need for more detailed investigations, Scientific Reports, 査読有, 3, 2988, 2013.

添盛晃久, 小豆川勝見, 野川憲夫, 桧垣正吾, 松尾基之, 東京湾底質における福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの濃度変化, 分析化学, 査読有, 62(12), 1079, 2013.

小豆川勝見, 野川憲夫, 松尾基之, もみ殻等を用いる環境水中の放射性セシウムの除染法の検討, 分析化学, 査読有, 62(6), 547, 2013.

小森昌史, 小豆川勝見, 野川憲夫, 松尾基之,  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  放射能比を指標とした福島第一原子力発電所事故に由来する放射性核種の放出原子炉別汚染評価, 分析化学, 査読有, 62(6), 475, 2013.

G. Steinhauser, V. Schauer, K. Shozugawa, Strontium-90 contaminations at selected hot spots in Japan, PloS ONE, 査読有, 8(3), e57760, 2013.

[学会発表](計13件)

小豆川勝見, 堀まゆみ, 松尾基之, 可視化された放射性セシウムの易動性, 第24回環境化学討論会, 札幌コンベンションセンター(北海道札幌市), 2015.

小豆川勝見, 日本水環境学会 第24回市民セミナー「放射性物質はどこへ行ったのか? -東日本大震災による原発事故のその後-」地球環境カレッジホール(東京都世田谷区), 2015. (招待講演)

L. Hamann, S. Dubchak, K. Shozugawa, C. Walther, SPATIALLY RESOLVED ULTRA-TRACE ANALYSIS OF URANIUM AND PLUTONIUM, the 10th International Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, ハワイ(アメリカ), 2015.

S. Schneider, M. Christl, G. Steinhauser, K. Shozugawa, C. Walther, DETERMINATION OF PLUTONIUM AND URANIUM IN ENVIRONMENTAL SAMPLES FROM FUKUSHIMA, the 10th International Methods and Applications of

Radioanalytical Chemistry, ハワイ (アメリカ), 2015.

G. Steinhauser, K. Shozugawa, B. Riebe, RADIONUCLIDE ANALYSIS OF VARIOUS TYPES OF WATERS AND SEA SEDIMENTS FROM FUKUSHIMA, the 10th International Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, ハワイ (アメリカ), 2015.

G. Steinhauser, K. Shozugawa, S. Merz, COMPARISON OF THE NUCLEAR ACCIDENTS OF CHERNOBYL AND FUKUSHIMA: THE ENVIRONMENTAL PERSPECTIVE, the 10th International Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, ハワイ (アメリカ), 2015.

B. Rosenberg, K. Shozugawa, G. Steinhauser, RAPID ISOLATION OF NEPTUNIUM FROM SOLUTION AND SOIL, the 10th International Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, ハワイ (アメリカ), 2015.

G. Steinhauser, K. Shozugawa, S. Merz, ANALYSIS OF FOOD MONITORING DATA BEFORE AND AFTER THE FUKUSHIMA NUCLEAR ACCIDENT, the 10th International Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, ハワイ (アメリカ), 2015.

K. Shozugawa, T. Saito, M. Hori, M. Matsuo, HIGH SENSITIVE ANALYSIS OF RADIOACTIVE CESIUM IN JAPANESE FOODSTUFFS: THREE YEARS AFTER THE FUKUSHIMA ACCIDENT, the 10th International Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, ハワイ (アメリカ), 2015.

滝沢勉, 小豆川勝見, 福島原子力発電所付近の空間線量について, 平成26年度北海道大学 総合技術研究会, 北海道大学(北海道札幌市), 2014.

渡邊利奈, 小豆川勝見, 松尾基之, ガンマ線測定による地表面上に降下した放射性物質の動態研究, 日本地球化学会第61回年会, 富山大学(富山県富山市), 2014.

K. Shozugawa, International colloquium 2013, コロラド州立大学(アメリカ), 2013(招待講演)

添盛晃久, 小豆川勝見, 野川憲夫, 桧垣正吾, 松尾基之, 東京湾底質における福島第一原子力発電所由来の放射性セシウムの濃度変化, 日本地球化学会年会, 筑波大学(茨城県つくば市), 2013.

小豆川 勝見, 岩波科学ライブラリ, みんなの放射線測定入門, 2014, 126

〔その他〕  
ホームページ等

<http://user.ecc.u-tokyo.ac.jp/users/user-10609/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小豆川 勝見 (SHOZUGAWA, Katsumi)  
東京大学・大学院総合文化研究科・助教  
研究者番号: 00507923