

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24510076

研究課題名(和文) 高線量地域からの放射性セシウムの河川・湖沼への流出評価と湖底の放射能マップ作成

研究課題名(英文) Dynamics of radiocesium in the river and lake environment around high air dose rate areas and mapping of radiocesium in the lake bottom sediment

研究代表者

田中 敦(Tanaka, Atsushi)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号：80171734

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原発事故により局所的に高線量となった地域から、河川を通じて霞ヶ浦へ放射性物質が流入した。2012年12月、2013年9月、2014年10月の3回、湖面全域の77地点で底質試料を採取し、湖底の放射性セシウムのマッピングを行った。初回調査では、湖西部に放射性セシウムが高く、高線量地域の河口域での流入も認められた。2、3回目の調査では、濃集傾向は解消されつつあり、底質深部へ放射性セシウムが混合、移動していることがわかった。底質全体に含まれる放射性セシウムの総量に大きな変化はなかった。

研究成果の概要(英文)：After the accidents of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, radioactive material deposited and formed locally contaminated area even in the underwater sediments. Sediment samples were collected in Dec. 2012, Sep. 2013 and Oct. 2014 from 77 sites which covers whole lake surface. Maps of radiocesium in the bottom sediment were provided in this study.

In the first observation, the concentration of radiocesium in the sediment was relatively high in the western part of the lake, and deposition at the river mouths whose watershed showed high air dose rate was found. In the second and third observations, concentrated radiocesium was mixed and moved toward the deeper layer of the sediment. Cumulated amount of radiocesium in the lake bottom was almost constant throughout the observation period.

研究分野：環境化学

キーワード：霞ヶ浦 放射性セシウム 湖底堆積物

1. 研究開始当初の背景

放射性物質による広範な汚染をもたらした今回の福島第一原子力発電所の事故により、関東地方においても局所的に放射性セシウムの蓄積が高く、周辺に比べて高線量を示す地域が生じた。都市近郊地域(住宅地・農地混合域。本研究では霞ヶ浦周辺)からは、自然流出に加え、農業等の生産活動、通常の生活からも放射性セシウムが下水・河川へ流出するだけでなく、公的・自主的な除染活動からも流出が起こる可能性が想定された。湖底への沈降・蓄積に関する情報は、航空機モニタリング等の遠隔計測からでは得ることができず、2011年に示された沈着図では霞ヶ浦は広い空白域となっていた。しかし、飲用、農用、漁業など多目的に利用されている湖沼では、そこを放射性セシウムの沈降・蓄積の場とした取り扱いをすることには問題がある。そのため、放射性物質の蓄積と経時変化を含めた実測に基づく調査を行う必要があると考えた。

2. 研究の目的

研究対象とした霞ヶ浦(西浦)のうち、土浦入側の南岸が、航空機観測により放射性セシウムの沈着量が高く、高線量地区となっている(図1、網掛け)。それに隣接する湖面全体の沈着量については遠隔計測では得られないため、実測により湖底面全体の放射性セシウムの分布と、3年間にわたる経時変化を得ることを第一の目的とする。

また、この地区を流下する花室川、清明川を含め、主要河川を通じて霞ヶ浦へ流入する放射性セシウムの量についても把握することを第二の目的とする。放射性セシウムの動態を通じて、今後の水平分布や量的な予想につなげることを第三の目的とする。

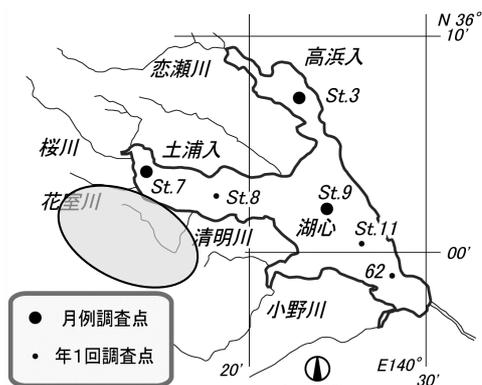


図1 霞ヶ浦と周辺河川の位置・名称と柱状湖底堆積物採取地点(高線量地区を網掛けで示す)

3. 研究の方法

霞ヶ浦底質中に堆積した放射性セシウムの水平分布を求めるために、湖面全体を緯度経度1分メッシュで区切り、主要河川流入口付近を含め、計76点で表層泥を採取した(図2)。

コアパイプ先端部を閉塞する機能を持つ内径11cmの重錘式コアサンプラーを用いて30cm程度の試料を採取した。砂質泥の場合には、エクマンバージ式採泥器によって表層泥をグラブサンプリングした。調査時期は、2012年12月、2013年9月及び2014年10月である。試料は船上で均質化処理した。コア試料は直上水を除いた後、上部15cmとその下部(原則10cm)をそれぞれ抜き出して、ステンレスパット内でステンレスヘラを用いて十分に均質化した。グラブサンプルは水抜きした試料全量をステンレスパット内で十分に均質化した。

湖底泥柱状試料は、3地点(St. 3、7、9)を高頻度(頻度は年度ごとに異なる)で採取し、3地点(St. 8、11及び表層泥62)は、年1回採取した(図1)。主として内径11cmの重錘式コアサンプラーを用いたが、過去には、内径4cmもしくは5cmのコアサンプラーを使用した。試料は深さごとに切断し、凍結乾燥・ビニル袋内手ほぐし等により、均質化及び水分含有量の算定を行った。異物は目視で取り除くほかは、ふるい分け等の操作は行っていない。

底質試料は、U-8容器(90mL容)に詰め、高純度ゲルマニウムガンマ線スペクトロメータによって放出ガンマ線を計数した。標準体積線源から求めた対エネルギー効率曲線を利用し、試料厚み・密度による効率補正を施した。湿泥試料の場合、水分含有量から求めた水分分量と残余の土壌成分量の2成分の均質な混合体を仮定してガンマ線吸収補正を行い、乾重あたりの放射能に換算した。

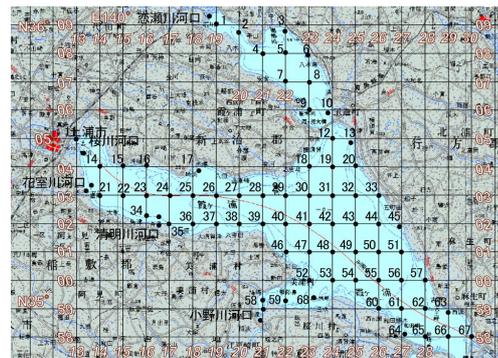


図2 霞ヶ浦表層泥の採取地点(格子は1分単位の緯線経線)

4. 研究成果

(1) 霞ヶ浦柱状試料の放射能の鉛直分布
湖心(St. 9)湖底泥中の放射性核種の鉛直分布を概観する。原発事故直前の2011年3月及び2007年のCs-137(半減期30年)の鉛直分布は似かよっており、約20 Bq/kg程度で深さ方向にほぼ一定の放射能が存在していた。半減期2年のCs-134は検出されない。Cs-137は、1960年代にもたらされた大気中核実験由来のフォールアウトが主な起源で、2007年コアの深い部分には、大気中核実験のピークである1963年を示す小さなピークが認められた。堆積した当時は鋭いピーク

クであったものも、上部へ新たな堆積物がたまと、混合により鋭いピークは平坦なものに変化して行き、表層部へ大きくすそを引いた形になっている。

原発事故によってもたらされた放射性セシウムにも同様のプロセスが生じている。原発事故後の1ヶ月後にはすでに放射性セシウムが霞ヶ浦湖心底質中に堆積しており、このときには、同時に放射性ヨウ素も検出された。霞ヶ浦の湖水の平均滞留時間は約6ヶ月であるため、河川から流入した放射性セシウムは湖心へ到達しておらず、湖面へ沈着した放射性物質の沈降によるものと考えられる。加えて、主に風波によるかく乱により、すでに最大4cm程度堆積物にもぐり込んでいた。2011年5月から2014年5月にかけて観測された湖心底質のCs-137の鉛直分布(図3)では、表層の放射性セシウムは1300 Bq/kgを超えていた。その後、Cs-137は次第に深い層にまで検出されるようになり、2012年春の観測で、明らかな表層の平坦部が見られるようになった。一方、最表層のCs-137濃度は時間とともに下がる傾向があり、新たなCs-137の負荷よりも、初期に最表層に堆積したCs-137が鉛直方向へ混ぜられる効果の方が大きいことを示す。

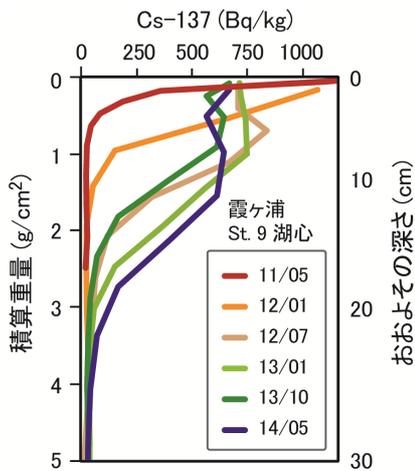


図3 霞ヶ浦湖心 (St.9) 底質のCs-137の鉛直分布とその経時変化

天然由来の放射性核種であり、一定フラックスで霞ヶ浦に流入・沈着していると考えられるPb-210の鉛直分布では、表層から15cm程度まで一定のPb-210放射能を示しており、それ以深で経過年代にしたがった減衰を示していた。十分な混合時間が経過し、平衡に達したと考えられる表層平坦部が約15cm程度であることから、放射性セシウムの平面分布を解析する際の層厚を15cmとした。湖心では、2012年7月以降、Cs-137の鉛直プロファイルに顕著な変化が見られなくなった。今後、初期沈着フラックスを下回る程度の河川からの負荷や周辺の低濃度地点層からの堆積物の水平移動が起きた場合、表層濃度は深層にくらべて減少し、逆に周辺の高濃度地点層からの堆積物の水平移動が起きた場合、

表層濃度は深層にくらべて高くなるプロファイルを形成すると予想される。最終的には、フォールアウトのピークのように底質深部になだらかなピークを残しながら、表層部側へすそを引くような非対称の形状をとると考えられる。

St.9を含む6地点の放射性セシウムの鉛直プロファイル、水平分布調査を行った3ヶ年とほぼ同じ時期で比較した。Cs-134は2年の半減期に応じて放射能を減じているため、総放射性セシウム濃度は物理減衰の効果のみでも減少する。高線量地区にあたるSt.8の放射能が高く、2013年にかけて最表層濃度が減少していることが特徴的であった。また、St.3は2013年に約30cmまで混合が進み、2014年にかけての変化がない。他の地点でも、2013年までに分布の形はほぼ決まり、2014年にかけての変化は少ない。放射能濃度と堆積物量との積を積分すると、各地点の現存量が求められる。St.7、9のように濃度が減少する地点や、No.62のように混合層が薄くなっている地点では、現存量の値は小さくなる。一方、St.3のように混合層が厚くなる地点では、現存量の値は大きくなる。観測される混合層の厚さは、堆積物の物理的移動に加え、最表層を逃さず試料採取できたか否かにも関係する。そのため、定量的な議論を行うためには、放射性セシウムのみでなく、一定フラックスで堆積するPb-210などの他の核種のプロファイルと比較するなど、慎重な解析が必要であることがわかった。

(2) 霞ヶ浦全域の放射性セシウム水平分布
年1回の定期的な水平分布の観測により、湖沼全体の放射性セシウムの現状・現存量を把握するだけでなく、その経時変化から水平方向への動態を調べた。

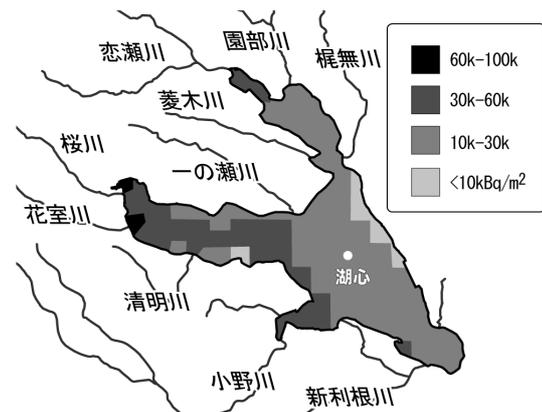


図4 2012年12月調査時の霞ヶ浦底質への放射性Csの沈着量(Bq/m²) (文科省航空機モニタリングと同一スケールで描画)

図4に2012年12月調査時の霞ヶ浦底質単位面積あたりの放射性セシウムの沈着量を示した。図のスケールは、文科省が行った航空機観測と同じものとした。全体的に放射性

セシウムの土壌沈着量の図との連続性が高いことがわかった。砂質の湖岸部の現存量が周辺土壌よりも小さいのは、主として底質中の放射性セシウム濃度が低いためである。土浦入の広い範囲と高瀬川、花室川、小野川の流入部の現存量が大きくなっている。土浦入の広範囲の高現存量については、陸上部と同様に水面下でも初期沈着が大きかったことを反映しており、河口部や湾部の高現存量は、河川からの供給を受けたことを反映していると考えられる。土浦港近くの高現存量は、桜川河口からは位置が外れており、極めて局地的なものと考えられる。

高浜入で特に混合が進んでおり、下層部への混合が顕著であった。2012年度は一律表層から15cmまでで分取したため、底質中存在量を計算する際にはある程度の過小評価となる。2013年の調査からは、15~25cmの採取・分析も行っている。

放射性セシウム濃度は、砂質泥を除くと湖の西部（土浦入）で比較的高い傾向があったが、2013年以降はこの傾向は顕著ではなくなった。また、小野川、花室川、桜川、恋瀬川の河口域の濃度がやや高い。河川底質中の放射性セシウムは小野川や清明川が高いものの、桜川や花室川では低い。その結果、2014年では、桜川と恋瀬川河口部では、下層底質の方が上層よりも濃度が高い逆転現象を示しており、河川から供給される堆積物で希釈されている効果が現れていた。清明川では底質中の放射性セシウム濃度は高いが、流量が小さいため、負荷量は小野川よりも小さくなった。

(3) 霞ヶ浦堆積物中の放射性セシウムの現存量とその経時変化

乾燥コア試料の場合、試料調製の段階で含水率とコア内径から深さと重量との関係が得られる。これを用いて、放射性セシウム現存量が求められる。一方、全域メッシュ調査の場合、湿泥のまま放射能分析したため、含水率を考慮して現存量を推定した。また、試料は0~15cmと15~25cmの2層を採取したが、地点によってはそれ以下の厚さしか採取できなかった。この場合、採取厚さまでの現存量を求めた。グラフ試料については、便宜的に5cmの厚さを与えて計算した。5cm以深に放射性セシウムが存在する場合、過小評価となる。

全域メッシュ調査における各観測点の現存量（Cs-137、15cmまでの1層）の計算結果を、2012年12月と2013年9月との差として示した（図5）。多くの地点で負値を示しているのは、放射性Csが深部に鉛直移動している効果が大きい。実際に、コアでの放射性Cs鉛直分布は時間経過とともに物理的・生物的混合により15cm以深への混合が進んでいた。また、図5では河口部への沈着、湖尻での増加が認められた。湖面全体のCs-137総沈着量は、2012年で2.9 TBq、2013年で3.2

TBqと、期間中でわずながら増加する結果が得られている。物理的な壊変を補う以上に河川等から負荷されたか、水平移動により昨年度計測されない部分から移動してきたと考えられる。

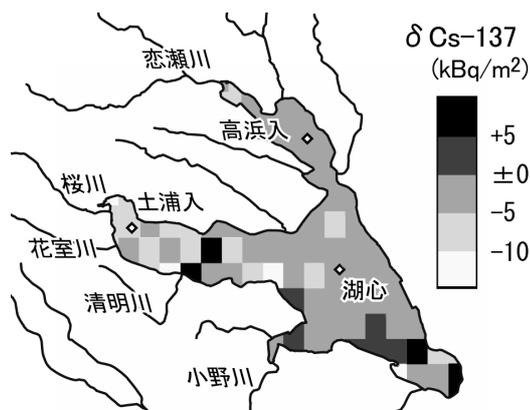


図5 2012年と2013年の調査間での霞ヶ浦底質へのCs-137の沈着量の変化 (kBq/m²)

コア試料を継続的に採取した湖内6ヶ所（図1）の放射性セシウム現存量の経時変化を計算した。Cs-134が検出されない深さのCs-137をもって、原発事故前の放射性セシウムのベースライン値とすると、St.9では約25、St.3ではほぼ0、St.7でも25 Bq/kg程度であるが、ベースライン値、核実験由来のピークは次第に明確でなくなっている。事故前のベースライン値は無視できるほどの量であり、存在量を沈着量（インベントリ）と読み替えて差し支えなからう。

不かく乱度の高い11cmコアは2012年1月から断続的に使用しはじめており、2012年7月から定例化した。2011年度に示した5cmコアでは、採取時の表層部のロスの可能性があり、過小評価の可能性が高い。しかし、2011年の事故直後の観測値と11cmコアの結果を合わせて見ると、各地点とも2012年10月から12月にかけて最大値を示し、それ以後の現存量は、Cs-134の減衰を考慮しても一定量もしくは減少傾向にあると言える。最大沈着量は、霞ヶ浦北西部に位置する土浦入 St.7で見られたが、湖面メッシュ調査マップでの変化と同様に土浦入では減少傾向があり、現在では高浜入（St.3）と同程度の沈着量となっている。一方、2012年の極大後に、湖尻側の St.11や No.62では微増が認められる。湖外への移動、排出についてのデータは持っていない。湖全体での増減はほとんどなかったことから、底質内の垂直移動、湖内の水平移動が各地点の分布や存在量の差になったものと推測される。

(4) まとめ

2012年から2014年にかけて、ほぼ1年間隔で霞ヶ浦湖面全体の放射性セシウムの水辺分布を求めた。最初の調査では、航空機観測で得られた陸域の放射性セシウムとの連

続性が高い湖底での水平分布が得られた。湖西部での沈着が大きく、土浦入河口部での流入が目立っていた。事故直後に湖面に沈着した放射性セシウムの湖底への沈降が主たる原因であり、高線量域の河川を含む、主な河川の河口域でも局所的な濃集が見られた。その後、土浦入での高沈着は解消する一方、高浜入側での増加、小野川河口部での局所的な沈着といった減少が認められた。

放射性セシウムの鉛直方向の及び水平方向への移動の結果、局所的な濃集傾向は、年を追うごとに明瞭でなくなった。2013年ごろまでは、主として流入による放射性セシウムの量的増加や鉛直混合が認められたが、その後は底質中の放射性セシウムの分布は固定化してきている。湖面全体での沈着量が大きく変化していないことは、汚染の固定化が進んだともいえる。ただし、表層濃度は減少傾向にあり、数十年スケールで見れば、核実験由来の放射性物質の分布と同様に、底質の深部に事故由来の放射性セシウムのピークは次第に埋まってゆく傾向を見せると考えた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔学会発表〕(計2件)

田中敦、林誠二、高津文人、小松一弘、今井章雄、苅部甚一、霞ヶ浦における底質中放射性セシウムの挙動と蓄積、日本陸水学会第79大会、2014年9月11日～13日、筑波大学(茨城県・つくば市)

田中敦、苅部甚一、高津文人、今井章雄、林誠二、霞ヶ浦底質中の放射性セシウムの水平・鉛直分布と経時変動、日本地球化学会第60回年会、2013年9月11日～13日、筑波大学(茨城県・つくば市)

〔その他〕

ホームページ等

環境回復研究プログラム(PG1)の成果

<http://www.nies.go.jp/shinsai/radioactive.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

田中 敦 (TANAKA, Atsushi)

独立行政法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号：80171734