

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：82101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K16129

研究課題名(和文)ダム湖における放射性セシウム動態と収支に関する研究

研究課題名(英文)Studies on radiocesium dynamics and balance in dam lake

研究代表者

辻 英樹 (TSUJI, HIDEKI)

国立研究開発法人国立環境研究所・福島支部・研究員

研究者番号：50719599

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：福島県の3つのダムにおいて、溶存態・懸濁態Cs137の年間収支を算定した。その結果、流入水に比べて放流水の溶存態濃度の低下速度が鈍くなるような傾向が見られ、底質が溶存態Cs137のソースとして機能している可能性があることがわかった。次にダム底質を用いて、NH4濃度を調整した模擬湖水を加えて振盪溶出試験を行った。その結果、高温・高NH4濃度条件下でCs137溶出が多く、想定される環境条件下で、底質はCs137のソースとして十分機能することが確認された。以上より、今後のダム湖流域でのCs137挙動の予測にあたっては、放流水の継続的な観測と、実環境条件下での底質からのCs溶出挙動の評価が重要である。

研究成果の概要(英文)：For the three dam lakes in Fukushima prefecture, the annual balance of dissolved and particulate Cs137 was estimated. The decreasing rate of dissolved Cs137 concentration in the discharged water was smaller than the influent water. Therefore, the lake sediment may play a role of a source of dissolved Cs137. In the next, shaking desorption experiment was conducted using a dam lake sediment, by adding the simulated lake water whose NH4 concentration was adjusted to the observed water quality in the bottom lake water. More Cs137 was desorbed under conditions of high temperature and high NH4 concentration, and the desorption rate was sufficiently high for functioning as a source of Cs137 under the actual environmental conditions. Consequently, it is important to continuously monitor Cs137 in the discharged water and evaluate Cs desorption behavior from sediment under actual environmental conditions for predicting the dynamics of Cs137.

研究分野：水文学

キーワード：放射性セシウム 溶存態 底質

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所の事故後数年を経過した現在でも、依然として無視できない量の放射性セシウム(Cs)が、森林域から河川を通じて下流に運ばれている。特に福島県浜通り地方の北部を流れる河川では、原発事故由来の放射性Csが上流域に多く沈着したため、今後下流部への放射性Csの移動・蓄積や水生生物の放射能汚染の長期化が懸念される。ところで、この地域の上流部にはダムがいくつか設けられており、ダム湖が放射性Csを含む流入土砂を内部貯留することで、粒子(SS)態放射性Csの流出が大きく抑制されている。したがってダム湖が流域全体の放射性Cs動態に与える影響は大きいと思われるが、実際のダム湖の放射性Cs貯留効果、溶存態の放射性Csの挙動、および水生生物のCs移行に関する知見を実測に基づいて包括的に評価した研究はこれまでに見られない。今後のダム受益地における放射能環境の予測と評価へつなげていくためには、現地観測や室内実験を通じて、ダム湖における放射性Csの動きを解明する必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、ダム湖における放射性Cs動態を解明し、放射性Cs流出負荷を低減するための最適なダム管理について考察することを目標とした。具体的には、継続的な現場調査により(1)ダム湖の水・プランクトンの放射性Cs分布と季節変動の解明、(2)形態別放射性Csの年間収支の算定、および(3)ダム湖底質を用いた溶出試験により、現場環境下での湖底からの放射性Cs溶出の評価を行った。

3. 研究の方法

本研究では3つのダム湖における3年間の現地調査および室内試験によって、(1)水・プランクトン態の放射性Cs(主に¹³⁷Cs)の変動、(2)粒子態(SS態)・溶存態¹³⁷Cs収支、(3)ダム湖底質と模擬湖水を用いた¹³⁷Cs溶出試験による、現場環境下での¹³⁷Cs溶出特性について明らかにした。

(1) 水・プランクトンの¹³⁷Cs動態調査

福島県南相馬市の上流部にある横川ダムにおいて、2014年8月から約3ヶ月おきに計12回の現地調査を行った。ダムの流入部(上流)・湖心部(中流)・堤体付近(下流)の3地点に観測地点を設け、表層水および底層水を採取後速やかに¹カートリッジフィルタ装置に通過し、ろ過および溶存態Cs濃縮処理を行い、ゲルマニウム半導体検出器(GC2518, Canberra Japan)によって溶存態・SS態の¹³⁷Cs濃度を測定した。プランクトンについては、孔径40μmおよび200μmのナイロンネットを繰り返し鉛直曳きして植物・動物プランクトンを回収し、プランクトン単位湿重量あたりの¹³⁷Cs濃度(Bq/kg)を測定した。これをダム湖表層水の溶存態¹³⁷Cs濃度(Bq/L)」で除することで、

プランクトンの¹³⁷Cs濃縮係数(L/kg)の計算を行った。また、分取したプランクトン試料に中性ホルマリンを加えて検鏡し、種組成の確認を行った。

(2) ダム湖の¹³⁷Cs収支

2014年4月より、宇多川上流部の松ヶ房ダム、真野川上流部の真野ダム、および太田川の横川ダムの流入河川水および放流水中のSS態・溶存態¹³⁷Cs濃度を月に1~2回の頻度で観測した。濃縮処理にはカートリッジフィルタ装置を用いた。放流地点には濁度計を設置し、5~10分間隔で濁度を連続観測し、濁度と実測SS濃度[kg/m³』との関係式からSS濃度の連続データを得た。

ダム湖の流入¹³⁷Cs量の計算方法として、SS態¹³⁷Csの流入量は、まずダム上流部の流域からのSS態¹³⁷Cs流出量[Bq]を「SS濃度[kg/m³』×総流出水量[m³』×SS中¹³⁷Cs濃度[Bq/kg]」から求め、この値と、該当流域に沈着した¹³⁷Cs量²⁾との比を「¹³⁷Cs流出率」として計算した。この¹³⁷Cs流出率に、ダム湖流域に沈着した総¹³⁷Cs量を乗じて、ダム湖へのSS態¹³⁷Csの流入量を求めた。SS態¹³⁷Csの流出量は、放流地点における「SS濃度[kg/m³』×総流出水量[m³』×SS中¹³⁷Cs濃度[Bq/kg]」から求めた。一方、溶存態¹³⁷Csの流入・流出量は流入河川の溶存態¹³⁷Cs濃度[Bq/m³』にダム湖への流入・流出水量[m³』を乗じて求めた。なお、ダム湖の流入・流出水量のデータはそれぞれのダム管理所より提供を受けた。

(3) 模擬湖水を用いた¹³⁷Cs溶出試験

横川ダム中流部の底質を用いて、¹³⁷Csの溶出試験を行った。2014年11月(試料-1)、および2017年8月(試料-2)に不攪乱円柱状底質試料採取し、底質¹³⁷Cs濃度の鉛直分布を確認後、原発事故後に堆積したと思われる表層15~25cmの底質を取り出し、よく混合して均質化した。

次に杉山ら³⁾の方法を用いて、横川ダム中流底層水の模擬湖水を調製した。まず現場水質での¹³⁷Cs溶出ポテンシャルを確認するために、模擬湖水を試料-1に固液比1:25となるように加え、4および25の恒温環境下で100rpmの振盪を48時間行った。その後9,000rpmで遠心分離を行い、上澄みをろ過して溶存態¹³⁷Cs濃度の測定を行った。次に水質・水温条件と¹³⁷Cs溶出ポテンシャルの関係を明らかにするために、模擬湖水に酢酸アンモニウムを加えて、抽出水のNH₄⁺濃度を0mmol/L, 0.1mmol/L, 1mmol/L(底質間隙水中のNH₄⁺濃度範囲内に設定)に調製した水を生成し、これを試料-2に固液比1:25で加えて、4, 10, 25の恒温条件下で150rpmで48時間振盪し、前試験と同様に溶存態¹³⁷Cs濃度を求めた。

4. 研究成果

(1) ダム湖の水・プランクトンの¹³⁷Cs動態

横川ダム湖内の溶存態¹³⁷Cs濃度は、3地点ともに夏から秋に高く、冬から春で低い季節変動が観測された。表層と底層の溶存態¹³⁷Cs濃度を比較すると、特に8月に中流の底層で高い傾向が見られた(図1)。プランクトンの¹³⁷Cs濃度は、40 μm以上(主に植物プランクトン)で $10^1 \sim 10^3$ Bq/kg、200 μm以上(主に動物プランクトン)で $10^1 \sim 10^3$ Bq/kgで大きな違いは見られなかった。この¹³⁷Cs濃度は、環境省が行っている太田川下流部における淡水生物の¹³⁷Cs濃度⁴⁾と同レベルであった。また、濃縮係数は $10^1 \sim 10^4$ L/kgのオーダーであり(図2)、この値はおよびChernobyl事故後⁵⁾や福島第一原発事故後⁶⁾における報告値と同レベルであった。また、太田川流域近傍にある真野ダムで同時期に測定したプランクトンの¹³⁷Cs濃度は $10^1 \sim 10^2$ Bq/kgであり(未公表データ)、同様な濃縮係数の値($10^3 \sim 10^4$ L/kg)が観測されている。

種組成としては、植物プランクトンは全期間を通して渦鞭毛藻類の*Peridinium*属が卓越し、動物プランクトンは*Bosmina*・*Daphnia*属、*Calanoida*目等、様々な種が共存していた。しかし、顕著な季節変動は観測されず、プランクトン態の¹³⁷Cs濃度と種組成の間に顕著な関係は見られなかった。したがって、プランクトン態の¹³⁷Cs動態は流入水の水質や天候の影響による変動が大きいと思われ、¹³⁷Cs濃度の実測値をもとに生物濃縮の影響を評価することは困難であることがわかった。

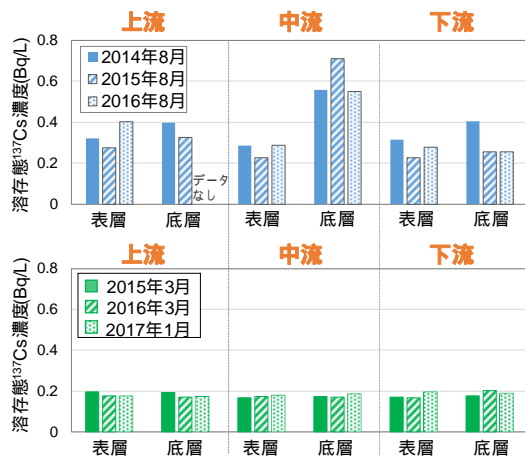


図1 横川ダム表層・底層水の溶存態¹³⁷Cs濃度

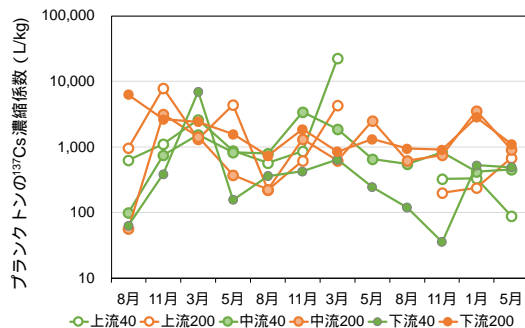


図2 横川ダムプランクトンの¹³⁷Cs濃縮係数

(2) ダム湖の形態別¹³⁷Cs年間収支

宇多川の松ヶ房ダム、太田川の横川ダムではSS態の¹³⁷Cs流入量が溶存態に比べて多かった(図3)。年間に流入するSS態¹³⁷Csの多くは、7月~10月の出水時に流入した。一方、流出水では2014・2016年で溶存態¹³⁷Csが卓越しており、流入土砂の多くが内部貯留したことを表している。一方、2015年は9月初旬に発生した「平成27年関東・東北豪雨」の際に、ある程度の土砂が放流した影響でSS態¹³⁷Csの流出量が溶存態に比べて多かった⁷⁾。

また、流入量と流出量を比較すると、流入したSS態¹³⁷Csのうち約9割が内部に貯留されることがわかった。一方、溶存態¹³⁷Csの流出量は、流入量からほとんど低下しないか、逆に増えている時期が見られた。これは溶存態¹³⁷Cs濃度の年平均値が放流水の方が高かったためであり、ダム湖の内部で底質からの溶出等の影響で、溶存態¹³⁷Csが発生している可能性がある。

なお真野ダムの¹³⁷Cs収支については現在取りまとめ中であり、計算結果の一部は「第3回環境放射能研究所 研究活動懇談会」などで発表を行っている。

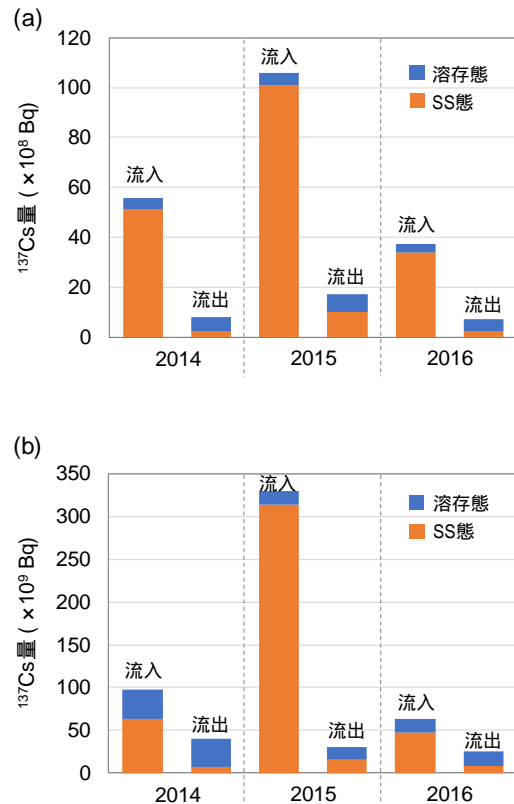


図3 (a)松ヶ房ダム、(b)横川ダムの¹³⁷Cs年間収支

(3) 模擬湖水を用いた ^{137}Cs 溶出試験

試料-1を用いた抽出試験の結果、25 での溶存態 ^{137}Cs 濃度は 1.47 ± 0.06 Bq/L (N = 3)であり、現場で観測された中流底層水の溶存態 ^{137}Cs 濃度(0.1–0.5 Bq/L; 図 1)に比べて十分高いことから、底質が ^{137}Cs のソースとして機能することがわかった。一方、4 で抽出された溶存態 ^{137}Cs 濃度は 0.35 ± 0.11 Bq/L で、現場で観測された濃度と同レベルであった。横川ダム中流底層における水温の実測値は 4 ~ 20 であったことから、夏季にある程度の ^{137}Cs が底質から溶出していると考えられる。したがって、表層水より底層水で溶存態 ^{137}Cs 濃度が高い(図 1)、あるいは流入水より流出水で溶存態 ^{137}Cs 濃度が高い(図 3)という観測結果は、底質からの溶出が原因の一つであると言える。

次に NH_4^+ 添加系での溶出試験の結果(図 4)、4 と 10 では ^{137}Cs 濃度に顕著な差はなく、25 で ^{137}Cs 濃度が高かった。これは、4 と 10 では底質の分解に寄与する微生物活性に大きな差がないことを示唆しており、現場で底質からの溶出が起こりやすいのは、底層の水温が 25 付近まで上昇する夏季に集中していることを表している。また、抽出水中の NH_4^+ 濃度が高いほど ^{137}Cs 濃度が高くなるという結果が得られた。これは NH_4^+ 濃度が高いほど、底質に吸着している ^{137}Cs との交換によって溶出しやすくなることを表しているか、もしくは底質中の有機物分解によって可溶化した ^{137}Cs が、 NH_4^+ によって底質中の鉱物粒子への再吸着を阻害されたことが原因と思われる。詳細なメカニズムを明らかにするためには、さらなる実験を行う必要がある。

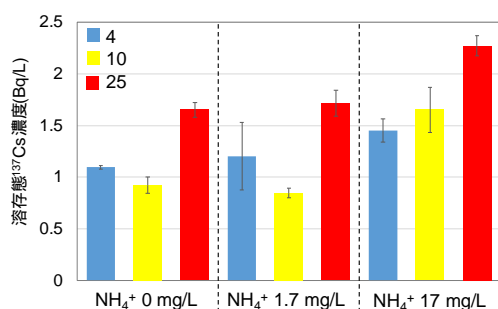


図 4 抽出水の NH_4^+ 濃度と溶出 ^{137}Cs 濃度

以上 3 つの現地調査・室内試験の結果より、ダム湖は粒子態 ^{137}Cs のほとんどを内部貯留し流出負荷を抑える一方で、僅かではあるが溶存態 ^{137}Cs のソースとなっている可能性が明らかになった。溶存態 ^{137}Cs の濃度低下の鈍化は水生生物等の出荷規制の長期化につながる可能性があり、湖内の溶存態 ^{137}Cs 発生に関するより詳細なメカニズムを明らかにした上で、実際の水質・水温環境条件下での最大溶出ポテンシャルの評価を行っていく必要がある。

またダム管理の観点からは、湖底水温の上昇に伴い ^{137}Cs が溶出しやすくなることから、溶存態 ^{137}Cs の流出負荷を抑えるためには夏季の水位コントロールに注意を払う必要がある。ただし、水深が深いと湖底の水温上昇が抑えられる一方で、プランクトンの繁殖等により湖底の酸素濃度が低下し、 NH_4^+ 濃度が上昇しやすいため、プランクトンの生息環境次第で ^{137}Cs 溶出を抑制するための最適な水位が異なると予想される。したがって、複雑な環境要因下での湖底の水質・水温予測を踏まえた上で、最適な水位コントロールのあり方を論じる必要がある。

以上に示したデータの一部は、日本原子力研究開発機構との共同研究事業として実施した内容を含む。また関連する試験結果として、科研費 基盤 A 『バックキャスト法による放射性物質汚染に対するモニタリング・対策の戦略研究』(課題番号:16H01791、平成 28 ~ 30 年度)の成果もご参照されたい。

〔引用文献〕

- 1) Tsuji H., Kondo Y., Suzuki Y., Yasutaka T. (2014) Development of a method for rapid and simultaneous monitoring of particulate and dissolved radiocesium in water with nonwoven fabric cartridge filters. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 299(1), 139-147.
- 2) 文部科学省による第 3 次航空機モニタリングの測定結果について、
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4858/24/1305819_0708.pdf.
- 3) 杉山雅人, 呉詩勤, 望月陽人, 細田耕, 堀智孝, 人工湖水・河川水調整法の創案とその特性評価, 日本陸水学会第 79 回大会講演要旨集, 60.
- 4) 環境省 平成 27 年度水生生物放射性物質モニタリング調査結果,
http://www.env.go.jp/jishin/monitoring/result_a0160404-part.html.
- 5) Knapinska-Skiba D., Bojanowski, R., Piekoś, R., Activity concentration of caesium-137 in seawater and plankton of the Pomeranian Bay (the Southern Baltic Sea) before and after flood in 1997, *Marine Pollution Bulletin*, 2003, 46(12), 1558–1562.
- 6) Matsuda K., Takagi K., Tomiya A., Enomoto M., Tsuboi J., Kaeriyama H., Ambe D., Fujimoto K., Ono T., Uchida K., Morita T., Yamamoto S., Comparison of radioactive cesium contamination of lake water, bottom sediment, plankton, and freshwater fish among lakes of Fukushima Prefecture, Japan after the Fukushima fallout, *Fisheries Science*, 2015, 81(4), 737–747.
- 7) 林誠二, 辻英樹, 伊藤祥子, 錦織達啓, 保高徹生, 平成 27 年関東・東北豪雨時における河川流域スケールでの放射性 Cs の流出実態, 土木学会論文集 G (環境), 2016,

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6件)

辻英樹、林誠二、舟木泰智、飯島和毅、福島県横川ダムの底質を用いた ^{137}Cs 溶出試験、2018、第4回 福島大学環境放射能研究所成果報告会

辻英樹、舟木泰智、飯島和毅、林誠二、福島県横川ダムの不攪乱底質を用いた放射性セシウムの静置溶出試験、2018、第52回 日本水環境学会年会

Tsuji H., Hayashi S., Funaki H., Iijima K. Behavior of bioavailable radiocesium in dam reservoir after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, 2017, 4th International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity

辻英樹、伊藤祥子、舟木泰智、飯島和毅、林誠二、福島県横川ダムにおける水・プランクトン態の放射性セシウム動態と季節変動、2017、第51回 日本水環境学会年会

辻英樹、伊藤祥子、林誠二、福島県松ヶ房ダム湖底質における放射性セシウム動態、2016、日本陸水学会第81回大会

辻英樹、越川昌美、伊藤祥子、保高徹生、舟木泰智、飯島和毅、林誠二、福島県横川ダム底質の放射性セシウム溶出特性、2016、第50回 日本水環境学会年会

6. 研究組織

(1)研究代表者

辻 英樹 (TSUJI, Hideki)

国立環境研究所 福島支部・研究員

研究者番号：50719599