

福島県内の環境水中における懸濁物質濃度と ^{137}Cs の分配係数の関係
 The relations of suspended solid concentrations and distribution coefficients of ^{137}Cs in
 environmental water of Fukushima Prefecture

○辻 英樹* 鈴木 弘行** 保高 徹生*

○Hideki TSUJI*, Hiroyuki SUZUKI**, and Tetsuo YASUTAKA*

1.はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故によって多くの放射性セシウム(Cs)が山林に沈着し、環境水中へと流入している。環境水中の放射性Csは懸濁物質付着態(SS 態)と溶存態に大別され、その挙動は移動速度や植物への吸収性の点で大きく異なることから、環境影響評価のために存在形態別の放射性Cs濃度を測定することが重要である。ここで、固相(SS)・液相(溶存態)の放射性Cs量は分配係数(k_d)によって決定され、この値は放射性Csの存在形態別濃度を数値モデルで予測する際に重要なパラメータとなる。一般的に k_d 値は一意には決まらず、土壌(SS)の組成・固相と液相の接触時間・pH・固液比・水温などが主な決定因子となる¹⁾。この中でも固液比、すなわち水中のSS濃度は降雨時の濁水流出や河床の攪乱によって容易に変動するため、SS濃度と環境水中の k_d 値の関係の実態を把握することが重要である。ただし、既往のバッチ試験により、 k_d 値は条件によって固液比に依存する場合²⁾と依存しない場合³⁾があることが報告されている。

そこで本研究では、福島県内の渓流水・河川水・ため池水を多地点で採水し、溶存態・SS態 ^{137}Cs 濃度から k_d の値を求めた。また、 k_d 値の分布に関して時間的・空間的な傾向を確認した。

2.調査方法

採水を行った地点は、中通り地区では 1. 阿武隈川, 2. 阿武隈川支流河川の阿武隈川との合流部付近, 3. 阿武隈高地内の河川, 4. 阿武隈高地内の針葉樹林流域の溪流出口とし(表 1), それぞれ複数回の採水を行った。ただし 3, 4 の採水地点数は採水時期によって異なる。

また、浜通り地区における 5. 河川, 6. ため池において、2013年5月の1時点で採水を行った。サンプル総数は93個である。7/27のサンプルでは採水前日の計 23 mm の降雨によって顕著な濁りが見られた。

環境水は、河川の場合は橋の上からロープ付きのバケツを下ろすか、もしくは地下水用のポンプ(Tempest DTW, Proactive Environmental Products)を垂らすことによって河川中央部の表面水を採取した。溪流出口とため池の水はペリスタルティックポンプ(Model-410, Solinst Co., Ltd.)によって汲み上げた。

採取したサンプルは、0.45 μm メンブレンフィルタを用いたろ過および蒸発濃縮法、または不織布カートリッジフィルタを用いた濃縮法⁴⁾⁵⁾によって処理を行った。濃縮検体はゲルマニウム(Ge)半導体検出器(SEG-EMS GEM20-70; Seiko EG&G Co., Ltd.)に供して ^{137}Cs 濃度を測定した。SSを捕捉したカートリッジフィルタおよび0.45 μm メンブレンフィルタについては分析後乾燥を行ない、ろ過処理前からの乾燥重量の増分からサンプル水内のSS重量[kg]を求めた。サンプルの分配係数 k_d [L/kg]は、SS単位重量当たりの ^{137}Cs 濃度[Bq/kg]を溶存態の ^{137}Cs 濃度[Bq/L]で除することによって求めた。

表 1 採水対象地点と採水日
 Sampling points and sampling days

| Sampling location | Rivers | | Sampling day |
|---|----------|--------|--|
| | /streams | Points | |
| 1. The Abukuma Riv. | 1 | 7 | 9/20 ⁶⁾ (2012), 1/28 ⁷⁾ , 6/28, 10/27 (2013) |
| 2. Branches of the Abukuma Riv. | 7 | 7 | 9/20 ⁶⁾ (2012), 1/28 (2013) |
| 3. Riv. in the Abukuma Mts. | 1 | 4-10 | 4/28, 6/3, 6/30, 7/27, 8/30, 10/6, 10/27, 12/1 (2013) |
| 4. Mountain streams in the Abukuma Mts. | 1-3 | 3 | 4/29, 6/2 ⁸⁾ , 7/28 ⁸⁾ , 8/30 ⁸⁾ , 10/27 ⁸⁾ , 12/1 (2013) |
| 5. Riv. in Hamadori area | 3 | 10 | 5/7 (2013) |
| 6. Reservoirs in Hamadori area | 7 | 7 | 5/7 (2013) |

[所属]*独立行政法人 産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門 National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, **千葉大学大学院薬学研究院 Grad. School of Pharmaceutical Sciences, Chiba Univ.

[キーワード]: 放射性セシウム, 環境水, 懸濁物質, 溶存態, 分配係数

3.測定結果と考察

表2にサンプル水の¹³⁷Cs濃度を示す。中通り地区の阿武隈川・阿武隈川支流・阿武隈高地内河川および溪流では、溶存態¹³⁷Cs濃度は0.001~0.01 Bq/Lのオーダーであり、SS単位重量あたりの¹³⁷Cs濃度は10³~10⁴ Bq/kgのオーダーであった。一方、浜通りの河川・ため池での溶存態¹³⁷Cs濃度・SS重量あたりの¹³⁷Cs濃度は中通りのサンプルに比べて10倍程度高かった。またSS濃度は計93サンプル中71個で10 mg/L未満であり、降雨後の阿武隈高地内で採水したサンプルにおいては10~100 mg/Lオーダーの濃度が観測された。

図1に全93サンプルのSS濃度とk_d値の関係を示す。k_d値の範囲は5.4×10⁴~3.7×10⁶ L/kgであり、¹³⁷Cs濃度レベルの異なる中通り地区と浜通り地区ではk_dの値に顕著な差異は見られなかった。また、この値は原発事故直後における近隣河川水の値(鮫川:4.3-5.5×10⁵ L/kg, 夏井川:4.1-5.0×10⁶ L/kg)⁹⁾とほぼ同じレベルであり、原発事故前のk_dの値(久慈川:0.04~1.6×10⁵ L/kg)¹⁰⁾や、原発事故直後のChernobylのk_d(0.6-4.5×10⁴ L/kg)¹¹⁾より大きな値であった。

またSS濃度との関係では、SS濃度10 mg/L未満のk_dの幾何平均値(7.2×10⁵ L/kg)はSS濃度10 mg/L以上(4.7×10⁵ L/kg)の時に比べて大きな値となった。特に、阿武隈川高地内の河川水においてはSS濃度の上昇に対するk_d値の減少の傾向が顕著に見られた。この結果は、Tanaka et al.(1994)²⁾の報告による、「液相の共存陽イオン濃度が一定でない条件下では、固液比が大きいほどk_d値が大きくなる」という結果と同じ傾向を示すものであった。一方、浜通りのため池においては傾向は見られなかったことから、SSの違いや水質の違いが影響した可能性がある。

次に採水地点による違いとして(図2)、2012年9月・2013年10月の2時点では阿武隈川支流は阿武隈川に比べてk_d値が大きく、SSの組成が異なっていた可能性が考えられるため、今後詳細な検討を行っていく必要がある。また、阿武隈川高地内の溪流ではk_d値は緩やかに変化したが、河川では月単位でk_d値に大きな変動が見られたため、阿武隈川とその支流においても月単位で同様の変動が生じていた可能性がある。また、季節変動等の影響については経時的な観測によって確認を行う必要がある。

表2 水中の溶存態¹³⁷Cs濃度・SS単位重量あたりの¹³⁷Cs濃度・SS濃度
¹³⁷Cs concentrations in dissolved form, per unit weight of SS, and SS concentrations in water

| | Dissolved ¹³⁷ Cs concentration (Bq/L) | ¹³⁷ Cs concentration per unit weight of SS (× 10 ³ Bq/kg) | SS concentration (mg/L) |
|---|--|---|-------------------------|
| 1. The Abukuma Riv. | 0.004-0.044 | 1.4-21 | 0.3-26 |
| 2. Branches of the Abukuma Riv. | 0.004-0.083 | 1.0-36 | 1.8-15 |
| 3. Riv. in the Abukuma Mts. | 0.008-0.055 | 8.8-66 | 1.8-234 |
| 4. Mountain streams in the Abukuma Mts. | 0.009-0.046 | 2.0-28 | 4.6-20.1 |
| 5. Riv. in Hamadori area | 0.063-0.250 | 29-140 | 1.4-6.6 |
| 6. Reservoirs in Hamadori area | 0.027-0.107 | 11-44 | 1.4-35 |

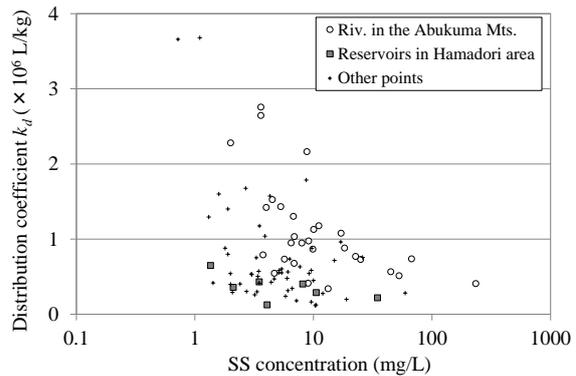


図1 水中SS濃度と¹³⁷Csの分配係数k_dの関係
 Relations of SS concentrations and distribution coefficients of ¹³⁷Cs.

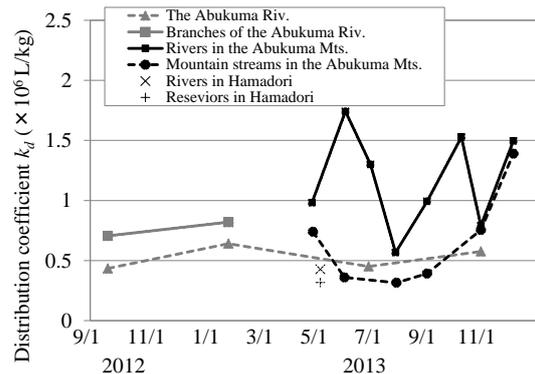


図2 河川・溪流・ため池の¹³⁷Csの分配係数k_dの時間推移。各プロットは幾何平均値を表す。
 The distribution coefficients of ¹³⁷Cs in environmental water. Each plot represents the geometrical average.

[引用文献]

- 1)高橋知之ら(1997), 分配係数の相互比較実験.
- 2)T. Tanaka and T. Ohnuki(1994), *Geochem J.* 28, 39-376.
- 3)B. Torstenfelt et al.(1982), *Chem Geol.* 36, 123-137.
- 4)H. Tsuji et al. (2014), *J Radioanal Nucl Chem.* 299, 139-147.
- 5)保高徹生ら(2013), 分析化学 62, 499-506.
- 6) T. Yasutaka et al. (2012), http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/zenzen_kiban/outcome/Proceedings_for_Web/Topics_2-17.pdf.
- 7)辻英樹ら(2014), 日本水環境学会講演要旨集, 46.
- 8)保高徹生ら(2014), 日本水環境学会講演要旨集, 379.
- 9)S. Nagao et al. (2013), *Biogeosci.* 10, 6215-6223.
- 10)T. Matsunaga et al. (1991), *Appl Geochem* 6, 159-167.
- 11)T. Matsunaga et al. (1998), *J Contam Hydrol* 35, 101-113.