

未除染森林小流域から流出する放射性 Cs の分画

Fractionation of radioactive Cs discharged from an un-decontaminated forest in Fukushima

○西村 拓* 羽田野聡* 二瓶直登** 濱本昌一郎*

○Taku Nishimura*, Satoshi Hadano*, Naoto Nihei** and Shoichiro Hamamoto*,

1. 背景・目的

2011 年の東日本大震災時、東京電力福島第一原子力発電所事故により、多くの放射性核種が放出され、福島県を中心とする地域が放射能汚染された。事故から 10 年が経過した現在も、放出された核種の中で半減期が長い ^{137}Cs の環境動態の把握が重要である。

事故後、福島県では除染活動が進められたが、県全体の面積の 70%を占める森林は除染の対象外となった。森林地表面に沈着した ^{137}Cs は、表層土壌に吸着して下方移動が遅いとされる一方、降雨時に発生する地表面流出水によって河川へ流出すると考えられている。先行研究では、森林から河川への ^{137}Cs 流出量は年間で沈着量の 0.2%程度であり、主として懸濁粒子に付着した懸濁態 ^{137}Cs として流出することが報告されている(Osawa et al. 2019)

森林土壌や河川水中から様々な形態の放射性微粒子が単離され、 ^{137}Cs を吸着した風化黒雲母粒子や、福島第一原子力発電所から粒子態として直接放出されたと考えられているセシウムボール(Cesium micro particle: 以下 CsMP)が報告されている。CsMP は、 SiO_2 を主成分とするガラス状の粒子で、放射能濃度 (Bq g^{-1}) が風化黒雲母の 10^5 倍程度と推定されている。従来、一粒子あたりの放射能 0.1 Bq 以上の閾値が CsMP の判別に用いられてきた。しかし、放射能閾値のみに基づく放射性微粒子の判別や定量に不確かさが指摘されている(Okumura et al. 2019a)。

風化黒雲母は酸により構造が破壊し、吸着した ^{137}Cs を脱離することが報告されている(Mukai et al 2018)。他方、CsMP は SiO_2 ガラスを主成分とするため、酸による溶解性が低いと考えられる。加えて、CsMP は人工海水中で加熱することにより溶解することが報告されている(Okumura et al. 2019b)。これらを考慮すると、放射能値に加え、酸と人工海水を利用した選択溶解に基づく両者の判別・定量が可能性と考えられる。本研究では、森林から河川への ^{137}Cs の流出量を推定するとともに、酸処理と人工海水処理を利用して、流出水中の放射性微粒子の形態の判別と定量を行うことを目的とした。

2. 試料と方法

(1) 研究対象地および流出水の採水

福島第一原子力発電所から北西に約 30 km に位置する福島県、相馬郡飯館村東部の森林小流域約 55.7 ha を研究対象地とした。事故当時の研究対象地における ^{137}Cs の沈着量は 55.7 MBq m^{-2} と推定されている。調査流域末端に自動採水器、濁度計、水位計を設置し、降雨時等に河川の水位が一定値を超えた際に、河川水を 2 L 採水するシステムを導入した。

(2) 懸濁粒子の分画と ^{137}Cs の放射能測定

採水試料を孔径 $6 \mu\text{m}$ の定性濾紙と孔径 $0.45 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターに通水して、採水試料中の懸濁粒子の分画を行った。各濾過後の濾液を亜鉛置換体プルシアンブルー担持カートリッジに通水し、濾液中の溶存態 ^{137}Cs を吸着させた。濾過後の定性濾紙とメンブレンフィルターを乾燥炉で 105°C で 24 時間程度乾燥させた後、濾紙とフィルター上の懸濁物質の乾燥質量を測定した。濾過後の濾紙とメンブレンフィルター、カートリッジの ^{137}Cs 放射能をゲルマニウム半導体検出器で測定した。また、イメージングプレート(IP)に懸濁粒子の放射能線を 72 時間露光させた後、IP を波長 635 nm のレーザー光でスキャンし、IP 画像を撮影した。

(3) 懸濁粒子に対する ^{137}Cs の脱離処理

濾過後の濾紙を切り分け、懸濁粒子とメンブレンフィルターと共に 10 mM の塩酸 250 mL 中に浸漬させ、 90°C で 48 時間加熱する酸処理を行った。酸処理後、切り分けた濾紙、メンブレンフィルターを回収し、濾液をメンブレンフィルターに通水して固相を回収した。次に、懸濁粒子を人工海水 250 mL 中に浸漬させ、 90°C で 48 時間加熱する人工海水処理を行った。酸処理時と同様に、固相と濾液を回収し、酸処理後の

*東京大学大学院農学生命科学研究科 Graduate School Agricultural and life Sciences, The University of Tokyo

** 福島大学食農学類 Faculty of Food and Agricultural Sciences, Fukushima University.

キーワード セシウム, 水食, セシウムボール

濾液と人工海水処理後の固相と濾液の放射能をゲルマニウム半導体検出器で測定した。

(4) 森林土壌試料に対する ^{137}Cs 脱離処理

調査流域で 2018 年に採取された深度 5 cm の森林土壌試料 0.25 g から得た懸濁液に酸処理と人工海水処理を行い、放射能の変化を調べた。また、各処理前後で森林土壌試料の IP 画像を撮影した。

3. 結果と考察

採水試料中の懸濁粒子ならびに森林土壌試料に対して、酸処理と人工海水処理を行った。これにより、減量する放射性 Cs が粘土鉱物吸着分と CsMP 分と考えられる。具体的な数字は、Table 1 に掲載した。CsMP の形の放射性 Cs は、森林土壌の含む放射性 Cs の 12.3% を占めていた。流出水中の CsMP 状の放射性 Cs の割合も 12.7% と同程度であった。10 年間同じような割合で流出していたと考え、事故当時のこの集水域へ沈着した放射性 Cs 量 ($5.57 \times 10^5 \text{ MBq}$) のうち、 $6.8 \times 10^4 \text{ MBq}$ が CsMP であったと推察できる。

CsMP は、質量当たりの放射能が大きい (Satou et al. 2018)、平均的には流出した放射性物質の 12% 程度を占めるが、水試料の懸濁物濃度が低くなるとその寄与が顕著になる (Fig. 3)

採水試料の懸濁粒子濃度と濁度 (NTU) の関係式と懸濁粒子濃度と懸濁態 ^{137}Cs 濃度 (いずれも経験式で本稿未掲載) を用いて、連続モニタリングによる濁度記録値から一年間の ^{137}Cs の流出量 (Bq) を推定した。その結果、 ^{137}Cs の総流出量は $1.53 \times 10^3 \text{ MBq}$ (懸濁態が $1.45 \times 10^3 \text{ MBq}$ 、溶存態が 82.6 MBq、CsMP が 210 MBq) で、研究対象地における沈着量の 0.275% に相当した。CsMP の流出は沈着量の 0.035% ともう一桁小さいものであった。

2016 年度における推定値に対し、本研究ではその 44% となった。研究対象地において、河川へ流出する土砂の発生源は限定的であると報告されており (Yamasaki et al. 2018)、自然崩壊に加えて ^{137}Cs を吸着した表層土壌の流出が年々で減少していると考えられる。

4. まとめ

セシウムボールは質量が極微小であるが質量当たりの放射能は高く、流出懸濁粒子に占める放射能割合は少なくない。しかし、沈着した CsMP の流出率は低く、大部分は依然として森林内に存在していると考えられる。

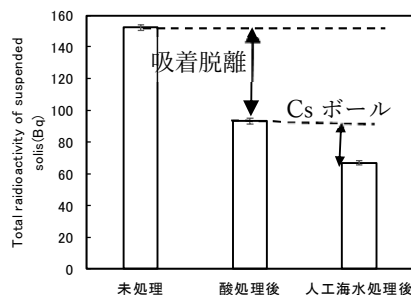


Fig.1 採水試料中の放射性懸濁物質の酸、海水による選択溶解 Selective dissolution of radioactive compounds in suspended solids in water samples.

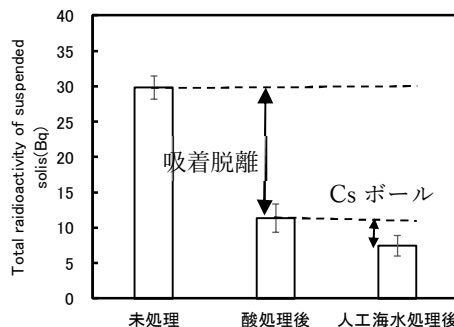


Fig.2 集水域の土壌試料中の放射性物質の酸、海水による選択溶解 Selective dissolution of radioactive compounds in soil from watershed.

Table 1 吸着した Cs と Cs ボール Percentage of adsorbed and sphered form radioactive Cs

	全懸濁物	粘土鉱物吸着分	Csボール分	溶存態
水試料の放射能に占める割合 (%)	94.6	82.6	12	5.4
放射能 (Bq)	152	133	19.3	8.7
質量 (g)	5.81	5.81	2.32×10^{-4}	
初期沈着量に対する年間流出率 (%)	0.275	0.24	0.035	0.016
水試料中の割合 (%)	100	87.3	12.7	
森林土壌の放射能に占める割合 (%)	—	87.7	12.3	

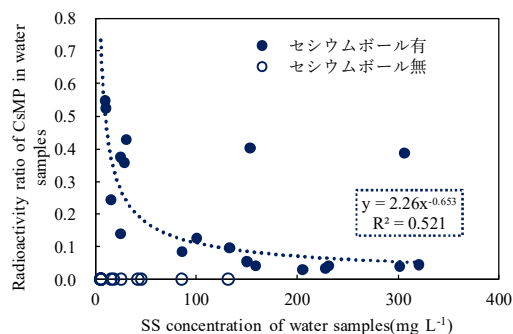


Fig.3 試料水中の放射能に占める Cs ボールの放射能 Radioactivity ratio of CsMP in water samples

謝辞 この研究は科研費 (15H02467) の助成を受けて行った。また、分析法について、東京大学理学系研究科の小暮俊博教授、奥村大河助教にアドバイスいただいた。ここに記して感謝する。

参考文献 Mukai et al., 2018, J. Environ. Radioact, 190-191:81-88. Okumura et al., 2019a, Chem. Lett, 48:1336-1338. Okumura et al., 2019b, Sci. Rep, 9. Osawa et al., 2018, Anthropocene, 22:40-50. Satou et al., 2018, Geochem. J, 52:137-143. Yamasaki et al., 2018, 農業農村工学会 2018 年度大会講演要旨, 348-349.