

低線量地域における水中放射性セシウム濃度の計測

中野 和典^{1*}・手塚 公裕²・長林 久夫²・亀田 豊³・玉田 将文⁴

東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により放射性物質が拡散し、年間の追加被曝線量が20 mSvを超える高線量地域の住民は避難を余儀なくされている。現在、人間活動が営まれている地域は、それ以外の低線量地域であり、そこで住民が安心して暮らせるように生活の安全を担保することが重要な課題となっている。事故から3年が経過している現在では、環境に放出された放射性物質の移動は、水を介する移動に依存しており、筆者が所属する日本大学工学部（キャンパスは福島県郡山市）では、主に低線量地域の水域における放射性物質の動態や移動の把握を目的とした研究プロジェクトを進めている。

低線量地域における水中放射性セシウム濃度の現状

福島県内の公共用水域における放射性物質濃度は環境省がモニタリングしており、その結果はホームページ¹⁾で公表されている。しかし、2014年1月に公表されていたデータによれば、福島県内の河川123地点の中で放射性セシウム濃度が定量化されているのはわずか3地点に過ぎない。他の120地点の放射性セシウム濃度は<1 (Bq/L)と表記され、具体的な濃度は不明である。つまり福島県内のほとんどの河川の水中放射性セシウム濃度は、すでに通常的手法では定量できないレベルにまで低下しており、公表データではその挙動が把握できない状況となっている。

一方、底質や水生生物中の放射性セシウム濃度は、十分に低下しているとは限らない。2014年1月の環境省ホームページ¹⁾で公表されていた河川の底質データでは、183地点中33地点で1000 Bq/kgを超える放射性セシウムが検出され、福島県のホームページ²⁾で公表されていたデータでは、出荷制限値である100 Bq/kgを超える水産物は180品中わずか7品であったが、そのうちの3品が河川上流に生息するヤマメである。底質や生物体で放射性セシウムが濃縮・蓄積されるメカニズムは異なるとしても、水中の放射性セシウムを起点として、その濃縮や蓄積が起きていることに変わりはなく、このような状況が存続するかぎり、たとえその水中濃度が1 Bq/L未満の定量限界レベルであっても、その濃度を定量し挙動を把握する必要がある。

浄水汚泥中の放射性セシウム濃度から推算した水中濃度

では、どのレベルまで定量限界濃度を下げれば、低線量地域における水中の放射性セシウム濃度を把握できるのであろうか。そのレベルの見当をつけるため、筆者らは福島県内の浄水汚泥（水道水を精製する過程で生じる凝集沈殿物）中の放射性セシウム濃度から、その当時の水道原水中の放射性セシウム濃度を推算することを試みた³⁾。粘土などの微粒子に吸着しやすいセシウムの特性より水道原水から浄水汚泥への放射性セシウムの移行率を100%とすれば、浄水汚泥中の放射性セシウム濃度と水道原水1 m³あたりの浄水汚泥発生量の積により、水道原水中の放射性セシウム濃度を求めることができる。浄水場で処理された水道原水量と発生した浄水汚泥量⁴⁾より求めた水道原水1 m³あたりの浄水汚泥発生量は1.40 × 10² kg/m³であり、これに2012年7月に公開された浄水汚泥中の放射性セシウム濃度⁵⁾の平均値13,000 Bq/kgをかけて求めた水道原水中の放射性セシウム濃度の平均値は0.18 Bq/Lとなった。公開データ⁵⁾の中で浄水汚泥中の放射性セシウム濃度がもっとも高かった浄水場における水道原水量と浄水汚泥量より推算した場合でも、水道原水中の放射性セシウム濃度は1.41 Bq/Lに過ぎず、事故直後4か月の水道原水でもその放射性セシウム濃度は1 Bq/Lに満たないレベルであったことが推定された。この推定により、少なくとも0.1 Bq/Lレベルの放射性セシウムが定量できる手法でないと低線量地域における水中放射性セシウムの挙動を明らかにすることは無理であることがわかった。

ラドディスクパックを用いた放射性セシウムの固相抽出

定量限界濃度を少なくとも1桁以上低減する必要があることを踏まえ、本研究で最初に利用したのは、孔径の異なる3枚のディスク型フィルター（10 μm, 1 μm, 0.45 μm）とセシウムを選択的に吸着するコバルト修飾ヘキサシアノ鉄酸塩を配合した3M™エムポア™ラドディスクセシウム（以下ラドディスクと表記）がセットになっている住友スリーエム株式会社の3M™エムポア™ラドディスクパックCS47MMである（図1）。これら4枚のディスクからなるラドディスクパックをステンレス製のホル

*著者紹介 ¹日本大学工学部土木工学科（准教授） E-mail: knakano@civil.ce.nihon-u.ac.jp

²日本大学工学部、³千葉工業大学工学部、⁴秋田県生活環境部健康環境センター



図1. 3M™ エムポア™ ラドディスクパック CS47MM

ダーに装着し、サンプル水を手動ポンピングまたは圧縮ガスを用いて加圧ろ過することで、微粒子に吸着した水中のセシウムは孔径の異なる3枚のディスクによって捕捉され、溶存態のセシウムはラドディスクへの吸着により捕捉される。このようにして水中の低濃度の放射性セシウムをディスク上に濃縮することで、低濃度の放射性セシウムに対応することを試みた。

ゲルマニウム半導体検出器による測定時間の延長

ディスク上に捕捉した放射性セシウムの定量測定は、ゲルマニウム半導体検出器により行うが、この検出器による測定時間を長くすることで、定量限界濃度をさらに下げることが可能である。ゲルマニウム半導体検出器による測定時間と定量限界値の関係の一例を図2に示す⁶⁾。通常の測定時間は30分程度であるが、本研究ではゲルマニウム半導体検出器が使用されていない夜間を利用して12時間の測定を行うことで定量限界値を約5分の1に低下させた。

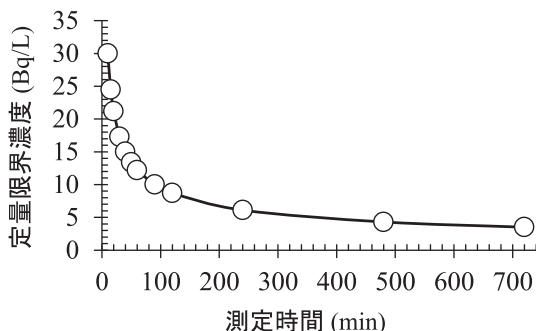


図2. ゲルマニウム半導体検出器による測定時間と放射性セシウムの定量限界濃度の関係

低線量地域の小河川の流下過程における放射性セシウムの挙動

ラドディスクパックを使用した固相抽出を利用して、低線量地域を流れる小河川の流下過程における水中放射性セシウム濃度の変化を調査した結果を紹介する⁷⁾。調査対象とした徳定川は、阿武隈川からの揚水と上流に位置する4つの池を水源とする全長5.8 kmの小河川であり、その一部区間は日本大学工学部キャンパス内を流れている。採水を行った4つの池と8つのポイントの位置関係を図3に示す。2012年9月および10月の晴天時の採水で得られた放射性セシウム濃度 (¹³⁴Csと¹³⁷Csの合計濃度)の平均値(図4)より、阿武隈川からの揚水場(St.1)では検出されなかった放射性セシウムが、上流

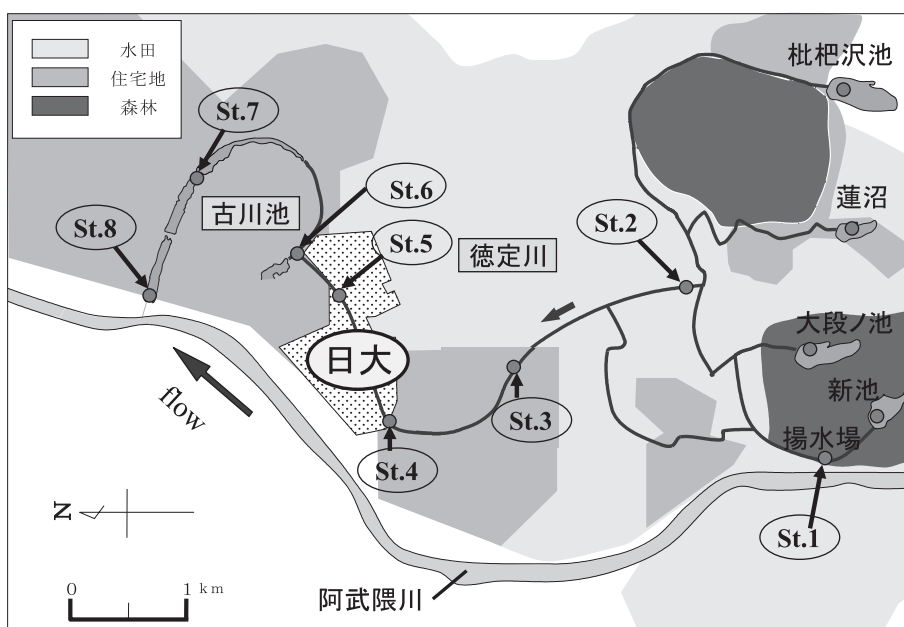


図3. 徳定川流域の概要と採水地点

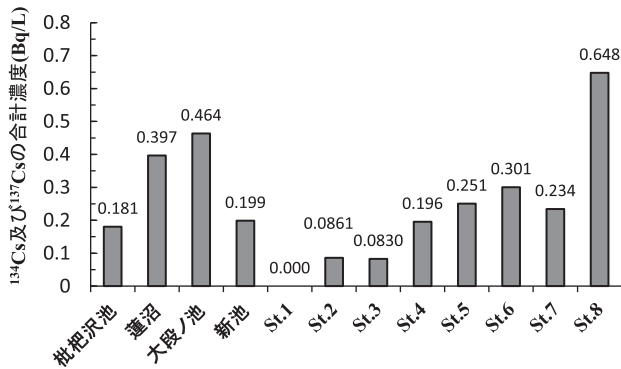


図4. 徳定川の流下過程における水中放射性セシウム濃度の変化

の池からの水と合流するSt.2では検出され、水田地帯を経て住宅街(St.3およびSt.4)や日本大学キャンパス(St.5)を流下するに従い放射性セシウム濃度が増加し、最下流部のSt.8において濃度が最大となる傾向が明らかとなった。これらのデータは、約1.2Lの河川水に含まれる放射性セシウムをラドディスクパックにより固相抽出し、ゲルマニウム半導体検出器による測定時間を12時間として得られたものである。本手法によって定量限界濃度を0.05 Bq/L前後まで低減したことで、このように2Lに満たない極少量のサンプル水量でも、低線量地域を流れる小河川の流下過程における放射性セシウムの挙動を明らかにすることができた。

低線量地域の湖沼における水中放射性セシウム濃度の鉛直分布

湖沼は水産物の産地や水道水源として利用されていることが多く、放射性セシウムの混入が社会に及ぼす影響は大きい。また、湖沼の閉鎖的な特性により、流入する河川によって運搬された放射性物質が湖底に蓄積することが懸念されている。本研究では、低線量地域の湖沼として、磐梯山の北部に位置し、ワカサギ釣りで有名な桧原湖を選定した。現在では出荷制限濃度である100 Bq/Lを十分に下回るレベルに魚体内の放射性セシウム濃度が低下しているが、2012年当時の魚体内濃度は出荷制限濃度を上回っており、桧原湖でのワカサギ釣りは禁止されていた。

2012年9月に採取した湖水の約1.5Lをラドディスクパックにより固相抽出処理し、ゲルマニウム半導体検出器の測定時間を12時間として得られた桧原湖の放射性¹³⁷Csの濃度の一例を図5に示す。表層(水深0m)と下層(水深7m)では放射性¹³⁷Csを定量測定できたのに対し、中層(水深3.5m)では本手法でも定量限界

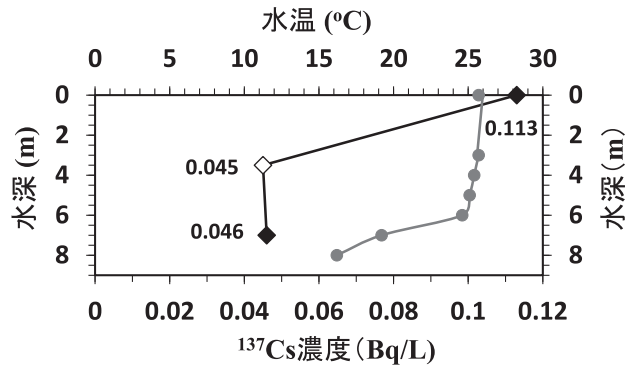


図5. 2012年9月の桧原湖の異なる水深における放射性セシウム濃度の比較。◆, セシウム定量測定値; ◇, セシウム定量限界値; ●, 水温。

(0.045 Bq/L)未満であった。このように湖の同じ地点であっても、水深によって放射性セシウム濃度が異なることが本調査により明らかとなった⁸⁾。

このように同地点であっても水深によって濃度が異なる現象は、上下の湖水が混ざらない成層ができていて説明が可能である。成層は、水温が高く密度が小さい湖水が上層に存在するときに起こる現象である。図5には水中の放射性¹³⁷Csの濃度とともに、鉛直方向の水温分布を示した。上層ほど水温が高く、5m付近より急激に水温が低下している。つまり成層ができる条件であったことがわかる。成層ができていて湖沼に河川水が流入するとき、河川水が湖水と混ざる水深は温度条件で決まる。湖沼に流入した河川水は密度が同じとなる温度層にまで潜り込み(または上昇し)、その層で湖水との混合が起こるためである。図5に示されるように、表層(0m)で放射性セシウムが定量可能な濃度で存在していたのに対し、中層(3.5m)で定量限界未満であったことから、放射性セシウムを含む河川水の水温が湖水よりも高く、河川水との混合が主に表層で起きていたことが示唆された。一方、成層によって表層(0m)や中層(3.5m)から隔離された状態の下層(7m)で中層よりも高い放射性セシウムが検出されたことから、対流混合が起こりにくい下層において放射性セシウムが希釈されずに滞留している可能性が考えられた。

低線量地域の湖沼における水中放射性セシウム濃度の経年変化

桧原湖の同じ地点で2013年6月に採水し、水中の放射性¹³⁷Csの濃度を測定した結果を図6に示す⁹⁾。表層(0m)と下層(8m)では放射性¹³⁷Csが定量限界(0.023 Bq/L)未満であったのに対し、底層(15m)では、2012年9月の表層(0m)と同様な濃度で放射性¹³⁷Cs

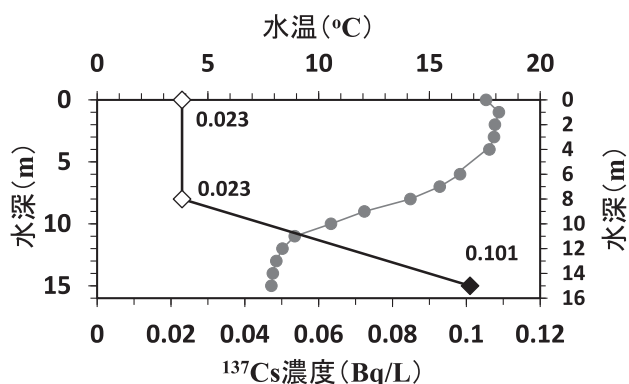


図6. 2013年6月の桜原湖の異なる水深における放射性セシウム濃度の比較。◆, セシウム定量測定値; ◇, セシウム定量限界値; ●, 水温。

が滞留していたことが明らかとなった。底層（15 m）で定量測定が可能なレベルの放射性セシウム濃度が残留していたのは、成層により上層から孤立して湖底に蓄積した放射性セシウムの影響が出やすい環境となっているためと考えられた。一方、この地点に近い流入河川の放射性セシウム濃度が定量限界未満に低下していたことから、表層から下層において放射性セシウム濃度が定量限界未満へと減少したのは、河川からの放射性セシウムの流入負荷が減少したためと考えられた。

この結果は、2 L程度のサンプル水の濃縮では本手法でも定量限界になってしまうレベルにまで、桜原湖やその流入河川の放射性セシウムが低下してきていることを示している。桜原湖やその流入河川の放射性セシウムの挙動を把握するためには、さらに1桁低い定量限界で測定できなければならない、そのためには10 Lを超えるようなサンプル水の濃縮を行う必要がある。しかし、10 Lを超えるサンプル水を多数の調査地点から集める作業は容易ではなく、学生主体で実施する調査研究として現実的ではない。このようにして、低線量地域の湖沼における水中放射性セシウムの挙動を今後も把握していくためには、さらに低レベルの放射性セシウムに対応可能な新たな手法に取り組む必要が生じた。

パッシブサンプラーを用いた *in-situ* 濃縮による 水中放射性セシウム濃度の計測

0.02 Bq/L 未満の極低濃度の放射性セシウムに対応するために次に取り組んだ手法は、パッシブサンプラーを用いた *in-situ* 濃縮である。セシウムを選択的に吸着するラドディスクをパッシブサンプラーに固定して水中に放置し、自然な濃度拡散により環境中 (*in-situ*) で直接的に水中の溶存態放射性セシウムをラドディスクに濃縮



図7. ラドディスクを固定したパッシブサンプラーとパッシブサンプラーを設置するための専用ケージ

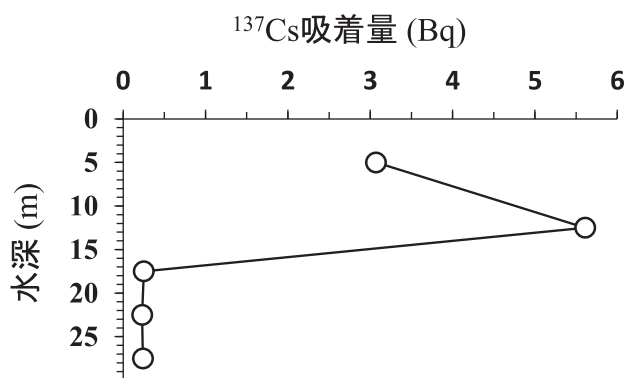


図8. 2013年10月に桜原湖の異なる水深に仕掛けたラドディスクへの放射性セシウム吸着量の比較

してしまおうという手法である¹⁰⁾。パッシブサンプラー (Chemcatcher[®], 住友スリーエム株式会社) に固定したラドディスクと現場にパッシブサンプラーを設置するための専用ケージの様子を図7に示す。

本手法の有効性を試すために、2013年10月はじめに桜原湖の最深地点の異なる5つの水深にラドディスクを固定したパッシブサンプラーを仕掛け、約1か月後にこれを回収し、ラドディスクに吸着していた放射性¹³⁷Csの量を比較した結果を図8に示す。水深5 mおよび12.5 mに設置したラドディスクと17.5 m以深に設置したラドディスクでは、放射性¹³⁷Csの吸着量が明らかに異なり、吸着量が最大であった水深12.5 mと最小であった水深22.5 mでは、吸着量に24倍の差が生じていた。ラドディスクへの吸着量の差異は、水中の放射性セシウム濃度の違いを反映したものであり、成層時に水深によって水中の放射性セシウム濃度が異なるという現象を再現する結果となった。ラドディスクへの吸着量とラドディスクを現場に放置した時間より簡易に推定した水中

の放射性¹³⁷Cs濃度は、水深12.5 mでは0.089 Bq/Lとなり、水深22.5 mでは0.004 Bq/Lとなった。

この結果により、パッシブサンプラーを用いた*in-situ*濃縮が0.02 Bq/L未満の極低濃度の放射性セシウムに対しても有効であり、学生が実施できる簡易な手法で、そのような極低レベルの放射性セシウムのモニタリングを行える見通しをつけることができた。ラドディスクへの放射性セシウムの吸着は、特に設置地点の流速の影響を受けると考えられるため¹⁰⁾、環境水中の放射性セシウム濃度とラドディスクへの吸着量の関係に及ぼす流速の把握とその影響の補正については、若干検討する余地が残されているが、今後さらに水中の放射性セシウム濃度が低下したとしても、ラドディスクを放置する時間を延長したり、設置するラドディスクの枚数を増やすことで定量限界濃度を低下させることが可能であり、本手法は、極低レベルの放射性セシウムの環境変動を数十年レベルの長期にわたり定期観測するのに非常に適した手法として期待できる。

放射性セシウムに関わる研究を大学で行う難しさ

筆者は、福島第一原子力発電所の事故から1年後の2012年4月に日本大学工学部に赴任した。福島県にある大学に異動するからには、自分の専門とは別に何か放射性物質の除去技術に貢献する現場対応型の研究テーマを立ち上げようと考えていた。しかし、いざ高線量の放射性セシウムで汚染されている現場に向き合うことになってはじめて気づかされたことがある。放射線が専門ではない研究室で放射性物質を扱う難しさである。特に学生の被曝リスクを考慮すると高線量の放射性物質を対象とした除染などの実証実験のハードルは高い。これが、

本稿で紹介した低線量の放射性セシウムの調査研究へと矛先を変えた一番の理由である。線量が低いことでその定量測定は難しくなるが、実際に現場に出掛けて調査活動を行う学生の安全は担保できるため、学生主体で実施する研究テーマとして適しているといえる。今後も環境中の放射性セシウムは減少を続け、その挙動の把握は難しくなる一方であるが、地域の学生が、地域の問題を対象として、地域に貢献する知見を生み出せる研究テーマとして、低線量地域における水環境の放射性セシウムのモニタリングを継続していくつもりである。

本稿で紹介した低線量地域の水環境における放射性セシウムの調査研究は、日本大学学術研究助成金（総合研究）「河川・湖沼における放射性物質による魚類・飲料水に関する環境リスク評価」により行ったものである。また、本稿の執筆に際して住友スリーエム株式会社より資料の提供を受けた。ここに記して謝意を表します。

文 献

- 1) <http://www.env.go.jp/jishin/rmp.html#monitoring>
- 2) <http://www.cms.pref.fukushima.jp/>
- 3) 渡邊隆宏：日本大学工学部卒業論文（2013）。
- 4) <http://www.pref.aichi.jp/0000028449.html>
- 5) <http://www.pref.fukushima.jp/j/monitarimg.gesuidou.0708.pdf>
- 6) <http://www.fukukankyo.jp/download/kensyutsu.pdf>
- 7) 深谷拓磨ら：土木学会東北支部技術研究発表会講演概要集CD-ROM（2013）。
- 8) 渡邊隆宏ら：土木学会東北支部技術研究発表会講演概要集CD-ROM（2013）。
- 9) 阿部慎也ら：土木学会東北支部技術研究発表会講演概要集CD-ROM（2014）。
- 10) 亀田 豊：公益社団法人 河川財団 助成成果報告（2013）。