

| | |
|------------------|---|
| Title | 荒川における環境放射能測定 |
| Sub Title | Environmental radioactive analysis in the Arakawa river |
| Author | 加々美, 博光(Kagami, Hiromitsu) 沼崎, 理咲(Numazaki, Risa) 井上, 浩義(Inoue, Hiroyoshi) |
| Publisher | 慶應義塾大学日吉紀要刊行委員会 |
| Publication year | 2016 |
| Jtitle | 慶應義塾大学日吉紀要. 自然科学 (The Hiyoshi review of natural science). No.59 (2016. 3) ,p.7- 14 |
| JaLC DOI | |
| Abstract | The accident at the Fukushima Daiichi nuclear power plant occurred by the Tohoku Pacific Ocean earthquake on March 11, 2011 has become the contamination with radioactive materials into the environment. Immediately after the accident, the contamination has spread to air, soil, sea water etc. More than four years has elapsed, the influence of radiation into the living area has decreased steadily. But the environmental pollution is remained. We have measured the radioactive activities of soils such as in Fukushima, Fukushima offshore seabed, Tokyo Bay seabed, Tama River. In this study, the radionuclides in soil of Arakawa River has been measured and been compared to the results of the soil in Tama River. Cs-134, 2.06-year half-life, and Cs-137, 30.17-year half-life, have been detected in the soils of Arakawa River like those of Tama River. These are the traces of the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. However, I-131 which has observed in Tama River is not detected. |
| Notes | 原著論文 |
| Genre | Departmental Bulletin Paper |
| URL | https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=AN10079809-20160331-0007 |

慶應義塾大学学術情報リポジトリ(KOARA)に掲載されているコンテンツの著作権は、それぞれの著作者、学会または出版社/発行者に帰属し、その権利は著作権法によって保護されています。引用にあたっては、著作権法を遵守してご利用ください。

The copyrights of content available on the KeiO Associated Repository of Academic resources (KOARA) belong to the respective authors, academic societies, or publishers/issuers, and these rights are protected by the Japanese Copyright Act. When quoting the content, please follow the Japanese copyright act.

荒川における環境放射能測定

加々美博光^{*1}・沼崎理咲^{*2}・井上浩義^{*1, #}

Environmental radioactive analysis in the Arakawa river

Hiromitsu KAGAMI, Risa NUMAZAKI and Hiroyoshi INOUE

Summary—The accident at the Fukushima Daiichi nuclear power plant occurred by the Tohoku Pacific Ocean earthquake on March 11, 2011 has become the contamination with radioactive materials into the environment. Immediately after the accident, the contamination has spread to air, soil, sea water etc. More than four years has elapsed, the influence of radiation into the living area has decreased steadily. But the environmental pollution is remained. We have measured the radioactive activities of soils such as in Fukushima, Fukushima offshore seabed, Tokyo Bay seabed, Tama River. In this study, the radionuclides in soil of Arakawa River has been measured and been compared to the results of the soil in Tama River. Cs-134, 2.06-year half-life, and Cs-137, 30.17-year half-life, have been detected in the soils of Arakawa River like those of Tama River. These are the traces of the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. However, I-131 which has observed in Tama River is not detected.

Key Word : Arakawa river, natural radiation, radioactive cesium, Fukushima daiichi nuclear power plant

^{*1} 慶應義塾大学医学部化学教室（〒 223-8521 神奈川県横浜市港北区日吉 4-1-1）：Department of Chemistry, Keio University School of Medicine, 4-1-1, Hiyoshi, Kohoku, Yokohama 223-8521, Japan. E-mail: hiroin@keio.jp

^{*2} 湘南白百合学園高等学校（〒 251-0034 神奈川県藤沢市片瀬目白山 4-1）：Shonan Shirayuri Gakuen High School, 4-1, Mejiroyama, Katase, Fujisawa-city, Kanagawa 251-0034, Japan. [Received Jan. 12, 2016]

[#] 慶應義塾大学医学部（信濃町キャンパス）放射線取扱主任者（〒 160-8582 東京都新宿区信濃町 35）：Radiation Safety Office, 35 Shinanomachi, Shinjuku-ku, Tokyo 160-8582, Japan.

1. 諸 言

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震による福島第一原発事故以来、大気、海水、土壌といった環境や作物の放射性物質による汚染がたびたび問題となってきた。事故発生から4年以上経過した現在、その生活圏への影響は減少しつつあるが、本研究室で以前行なわれた研究において、多摩川流域の土壌中から半減期が8.04日と短いはずのI-131が比較的高濃度に検出された。これは当初、甲状腺の診断や治療に用いられるI-131が患者から排泄され、それが下水を介して川に流れ込んだためではないかと考えられていたが、その後、ヒトの居住や下水処理施設が上流にない多摩川流域の土壌中からも比較的高濃度のI-131が検出されたことで、この仮説は否定された。そこで、本研究においては、同じく関東の一級河川である荒川流域の土壌中における放射性核種の測定・検出を行ない、多摩川流域の土壌中においての結果と比較・考察することを目的とした。荒川流域の土壌中からは、半減期がそれぞれ2.06年、30.17年と長いCs-134、Cs-137が少量検出され、福島第一原発事故の影響の痕跡が見られたが、I-131は検出されなかった。この結果を含め、多摩川流域の土壌中から検出されたI-131の由来については、さらに多くの地域の土壌サンプルとの比較・考察が必要であろう。

2. 研究方法

2-1. サンプルング

荒川流域のうち、戸田公園周辺および葛西臨海公園周辺の河川敷において土壌サンプルングを行なった。戸田公園周辺の河川敷ではT1～T4の4ヵ所、葛西臨海公園周辺の河川敷ではK1～K5の5ヵ所とサンプルング地点を変更しながら土壌を採取した。サンプルング地点の位置情報は、携帯式GPS装置eTrex20（Garmin社）を用いて測定した。また、サンプルング地点の計数率はGMサーベイメータ（日立アロカ社）、空間線量率は空間線量率計（日立アロカ社）を用いて、地上1mにおける計数率および空間線量率を測定した。測定日の天候および気温は表1のとおりであった。

土壌サンプルの採取は日本工業規格JISA1201に従った。まず、サンプル地点の表層の草や枯葉などを取り除き、この除去によって現われた面を地表面とし、簡易ハンドオーガー、スコ

表1. サンプルング地点の情報

| 地名 | 採取日 | 天候 | 気温 | |
|--------|------------|----|-------|-------|
| | | | 最高 | 最低 |
| 戸田公園 | 2015年5月31日 | 晴れ | 31.0℃ | 20.3℃ |
| 葛西臨海公園 | 2015年5月31日 | 晴れ | 31.2℃ | 21.1℃ |

ップ、試料採取管、ポータブルドリルなどを用いて、この地表面からさらに 10 cm の土壌を採取した。採取した試料はジッパー付ビニール袋に入れて保存した。

2-2. 土壌乾燥

採取した土壌サンプルは、乾燥装置を用いて 30 °C で 24 時間乾燥させたのち、2 mm の金属ふるいにかけて透過物のみを本研究のサンプルとした。この土壌サンプルを秤量し、金属製のバットに移して 140 °C で恒量になるまで乾燥させた。得られた土壌サンプルを約 100 g 秤量し、後述する NaI シンチレーション γ カウンターの校正に用いたものと同じサンプル瓶に入れて密閉した。また、別途 100 g を秤量し、 β 線測定用サンプルとした。

2-3. γ 線測定

土壌サンプル中の γ 線放出核種の測定は、 γ 線測定装置である NaI シンチレーション γ カウンター (Ospray, キャンベラ社) を用いて、7 時間、 γ 線を累積測定し、マルチチャンネルアナライザー (Model 802, キャンベラ社) でチャート化して、その面積から放射能を測定した。

2-4. β 線測定

土壌サンプル中の β 線放出核種の測定は、福島第一原発事故によって放出された、体内からの排泄が悪い向骨元素であるストロンチウム 90 (Sr-90) について、平成 15 年 7 月に改訂された文部科学省科学技術・学術政策局・原子力安全課防災環境対策室の「放射性ストロンチウム分析法」に従い、以下のように行った。

- (1) 乾燥土壌 100 g を蒸発皿に入れ、500 °C で 5 時間加熱した。
- (2) 放冷後、2 L ビーカーに移し入れ、ストロンチウム担体溶液 (10 mgSr/mL) を正確に 5 mL 加え、よくかき混ぜた。
- (3) 塩酸 1 L を少しずつ加え、蓋をしてホットプレート上で沸騰する直前の状態で 3 時間加熱した。
- (4) ブフナー漏斗と濾紙 (No. 5C) の上にガラス繊維濾紙 (GA 200) を重ねて吸引濾過し、残留物は温水で洗浄した。濾液と洗液を合わせて、さらに水を加えて液量を 2.5 L とした。
- (5) カルシウム担体溶液 (50 mgCa/mL) を 5 mL 加えた。
- (6) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを少しずつ加えて pH 10 以上とした。
- (7) 炭酸ナトリウム 50 g を加え、攪拌して溶解したのち、加熱沸騰させて沈殿を熟成した。放冷後、沈殿が沈降するまで静置した。
- (8) 上澄み液はデカンテーションで除去し、残りは遠心分離してできるだけ液体を除去した。
- (9) 沈殿を塩酸に溶解し、2 L ビーカーに移して水を加えて約 1.5 L とした。沸騰するまで加熱したのち、シュウ酸 50 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ~ 4.2 の調整した (プロモクレゾールグリーン溶液で確認)。

- (10) 再度加熱して沈殿を熟成した。そして、放冷し沈殿が沈降するまで静置した。
- (11) デカンテーションで上澄み液をできるだけ3 L ビーカーに移した。沈殿は塩酸を用いて他のビーカーに移した。
- (12) 上澄み液にカルシウム担体溶液 (50 mg Ca/mL) を 5 mL 加えた。
- (13) 加熱し、かき混ぜながら塩酸を少しずつ加え、生成したシュウ酸カルシウムの白い沈殿を一度溶解した。そのまま沸騰するまで加熱したのちにシュウ酸 10 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ~ 4.2 に調整した (ブロモクレゾールグリーン溶液で確認)。再度加熱して沈殿を熟成した。放冷し沈殿が沈降するまで静置した。
- (14) デカンテーションで上澄み液をできるだけ捨てて、沈殿を含む残りは塩酸を用いて、上記 11 の他のビーカーに移した。
- (15) 加熱しながら塩酸を少しずつ加え、沈殿を完全に溶解し、水を加えて約 600 mL とした。
- (16) 沸騰するまで加熱したのち、シュウ酸 5 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ~ 4.2 に調整した (ブロモクレゾールグリーン溶液で確認)。再度加熱して沈殿を熟成した。放冷し沈殿が沈降するまで静置した。
- (17) 上澄み液の大部分をデカンテーションで除き、ブフナー漏斗と濾紙 (No. 5 C) を用いて沈殿を吸引濾過し、シュウ酸アンモニウム溶液 (0.2 重量 %) 50 mL を 3 回に分けて洗浄した。濾液ごと沈殿を蒸発皿に移し、乾燥したのちに 600 °C で 3 時間加熱した。
- (18) サンプルを塩酸で溶解し、1 L ビーカーに移した。ホットプレート上で蒸発乾固したのち、塩酸 200 mL を加えて溶解した。濾紙 (No. 5C) を用いて濾過し塩酸で洗浄した。濾液と洗液を合わせ、さらに塩酸を加えて約 500 mL とした。
- (19) サンプル溶液をイオン交換樹脂カラムに流速 5 mL/分 で通し、ストロンチウムを溶出した。
- (20) 溶解液 A (15.4 重量 % 酢酸アンモニウム溶液 : メタノール = 1 : 1) 1100 mL を流速 5 mL/分 で通し、流出液は廃棄した。
- (21) 溶解液 B (15.4 重量 % 酢酸アンモニウム溶液) 600 mL を流速 5 mL/分 で通し、ストロンチウムを溶出した。
- (22) 溶出液を加熱し、蒸発乾固した。水 10 mL および硝酸 10 mL を加えて乾固物を溶解したのち、再度蒸発乾固した。
- (23) 水 20 mL を用いて、乾固物を溶解して 100 mL ビーカーに移した。
- (24) 塩化鉄 (III) 溶液 (5 mg Fe/mL) 1 mL、塩化アンモニウム 1 g およびフェノールフタレイン溶液 0.5 mL を加えて加熱して二酸化炭素を追い出した。液が赤色を呈するまでアンモニア水を少しずつ加え、水酸化鉄 (III) を沈殿させた。さらにアンモニア水 1 mL を加えて沈殿を加熱熟成した。
- (25) 濾紙 (No. 5A) を用いて速やかに濾過し (この時間をスカベジング日時とした)、沈殿を温めたアンモニア水で洗浄した。濾液と洗液を 100 mL ビーカーに入れ、沈殿は廃棄した。
- (26) 飽和炭酸アンモニウム溶液 5 mL を加え、ホットプレート上で炭酸塩沈殿を加熱熟成した。

- (27) あらかじめ質量を測ったガラスフィルター（IG4）を用いて沈殿を吸引濾過し、アンモニア水およびエタノールで洗浄した。110℃で1時間乾燥し、デシケーター中で放冷したのち、沈殿の質量を測定した。
- (28) 沈殿を2週間以上放置した。
- (29) 低バックグラウンドの液体シンチレーションカウンターで測定した。

2-5. 減衰補正

すべてのサンプルの放射能測定結果は、下記の半減期式を用いて、2015年6月1日時点での放射能として補正した。

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

ここで、 N は時間 t における原子数、 λ は壊変定数である。

3. 結果と考察

戸田公園周辺のT1～T4と葛西臨海公園周辺のK1～K5の各サンプリング地点の位置情報、および地上1mでの計数率と空間線量率は、それぞれ表2、表3のようになった。

表2. 戸田公園周辺の各サンプリング地点の位置情報、計数率、空間線量率

| 地点 | 位置 | | 計数率 (cpm) | 空間線量率 ($\mu\text{Sv/h}$) |
|----|-----------|------------|--------------|-------------------------------|
| | 緯度（北緯） | 経度（東経） | | |
| T1 | 35度48分00秒 | 139度40分49秒 | 60 | 0.04 |
| T2 | 35度47分58秒 | 139度40分44秒 | 40 | 0.04 |
| T3 | 35度47分58秒 | 139度40分34秒 | 40 | 0.04 |
| T4 | 35度48分02秒 | 139度40分59秒 | 30 | 0.04 |

表3. 葛西臨海公園周辺の各サンプリング地点の位置情報、計数率、空間線量率

| 地点 | 位置 | | 計数率 (cpm) | 空間線量率 ($\mu\text{Sv/h}$) |
|----|-----------|------------|--------------|-------------------------------|
| | 緯度（北緯） | 経度（東経） | | |
| K1 | 35度38分21秒 | 139度52分14秒 | 60 | 0.08 |
| K2 | 35度38分20秒 | 139度52分08秒 | 30 | 0.03 |
| K3 | 35度38分19秒 | 139度52分01秒 | 25 | 0.02 |
| K4 | 35度38分19秒 | 139度51分47秒 | 60 | 0.06 |
| K5 | 35度38分25秒 | 139度51分17秒 | 50 | 0.05 |

表 4. 戸田公園周辺の各サンプリング地点における γ 線放出核種の放射能濃度

| 核種名 | γ 線エネルギー (keV) | 放射能濃度 (Bq/g) | | | |
|--------|--------------------------|--------------|-------|--------|--------|
| | | T 1 | T 2 | T 3 | T 4 |
| I-131 | 364.48 | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 不検出 |
| Cs-137 | 661.65 | 0.698 | 0.467 | 0.156 | 0.0483 |
| Cs-134 | 795.85 | 0.178 | 0.114 | 0.0403 | 0.0168 |
| K-40 | 1460.81 | 不検出 | 0.470 | 0.394 | 0.424 |

ただし、不検出とは検出限界以下であったことを表わす。

表 5. 葛西臨海公園周辺の各サンプリング地点における γ 線放出核種の放射能濃度

| 核種名 | γ 線エネルギー (keV) | 放射能濃度 (Bq/g) | | | | |
|--------|--------------------------|--------------|-------|---------|--------|--------|
| | | K 1 | K 2 | K 3 | K 4 | K 5 |
| I-131 | 364.48 | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 不検出 |
| Cs-137 | 661.65 | 0.978 | 不検出 | 0.00478 | 0.0446 | 0.230 |
| Cs-134 | 795.85 | 0.242 | 不検出 | 不検出 | 0.0133 | 0.0546 |
| K-40 | 1460.81 | 0.556 | 0.419 | 0.397 | 0.366 | 0.376 |

ただし、不検出とは検出限界以下であったことを表わす。

計数率については、バックグラウンドは 40 ～ 50 cpm であるため、いずれのサンプリング地点においてもほぼ平均的な値であった。空間線量率についても、大地からの自然放射線量は 0.41 mSv/ 年 \approx 0.0468 μ Sv/h、宇宙線による自然放射線量は 0.36 mSv/ 年 \approx 0.0411 μ Sv/h、空気中のラドン壊変生成物による自然放射線量は 1.3 mSv/ 年 \approx 0.1484 μ Sv/h である¹⁾ ため、いずれのサンプリング地点においてもほぼ平常値であった。

次に、戸田公園周辺の T 1 ～ T 4 と葛西臨海公園周辺の K 1 ～ K 5 の各サンプリング地点における土壌中の γ 線放出核種の放射能濃度は、それぞれ表 4、表 5 のようになった。

土壌中の γ 線放出核種の放射能濃度については、K-40、Cs-134、Cs-137 はほとんどのサンプリング地点において検出されたが、I-131 はいずれのサンプリング地点においても検出限界以下であった。

K-40 は半減期が 1.28×10^9 年²⁾ と長く、大地に含まれる壊変系列をつくらない天然放射性核種であり、これが検出されたのは必然であるといえる。

Cs-134、Cs-137 はいずれも人工放射線核種であり、その半減期は Cs-134 が 2.06 年³⁾、Cs-137 が 30.17 年²⁾ であるため、これらが検出されたのは 2011 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震による福島第一原発事故の影響が残っているものであると考えられる。福島第一原発から北西 7.8 km に位置する浪江町で採取された土壌中の放射線核種濃度は、原子炉停止

日である 2011 年 3 月 11 日時点で Cs-134 が 1626 Bq/g, Cs-137 が 1859 Bq/g であり, 2011 年 5 月 19 日時点で Cs-134 が 1526 Bq/g, Cs-137 が 1851 Bq/g であった⁴⁾。本研究のサンプリング地点の土壌中においても, 事故直後, 同様に Cs-134 と Cs-137 がほぼ等しい濃度存在していたと考えると, 今回検出された Cs-134 と Cs-137 の放射能濃度の差は両者の半減期の差によるものであると考えられる。また, 事故直後の浪江町の土壌中と比較して, 本研究のサンプリング地点の土壌中では, 事故発生からの時間的あるいは事故現場からの距離的に, Cs-134 と Cs-137 の放射線濃度はほぼ検出されなくなっているといえる。

I-131 も人工放射線核種であるが, 半減期が 8.04 日²⁾ と短いため, これが検出されなかったのは, 事故発生から 4 年以上経過した現在において必然であるといえる。ところが, 本研究を行なう以前に所属する研究室で行なわれた別の研究において, 2014 年 5 月 17 日時点で多摩川流域の登戸周辺の土壌から比較的高濃度の I-131 が検出された。これは当初, I-131 およびその化合物は甲状腺の診断や治療に用いられる²⁾ ため, 医療用途の I-131 が患者から排泄され, それが下水を介して川に流れ込んだためではないかと考えられていた。しかしその後, ヒトの居住や下水処理施設が上流にない, 多摩川流域最上流の小河内ダム周辺でも比較的高濃度の I-131 が検出され, この仮説は否定された。本研究においては荒川流域の土壌からは I-131 が検出されなかったという結果も含め, 多摩川流域の土壌中から検出された I-131 の由来についての考察には, さらに多くの地域の土壌サンプルとの比較が必要であろう。

2011 年 3 月の福島第一原発事故以降に, 今回測定した人工放射性核種は, ロシア・日本海⁵⁾, ヨーロッパ全土⁶⁾, オーストリア⁷⁾, ポーランド⁸⁾, そして, 当然のことながらわが国の生活圏でも見いだされてきた。さらには, 生物への移行も確認されており, 植物だけでなく, 水産物にも蓄積が見られている。今後も, 生活圏への放射線影響の源として, あるいは生物全般への放射性物質の移行源として, 土壌中の放射性同位元素測定を継続するつもりである。

表 6. 戸田公園周辺の各サンプリング地点における β 線放出核種の放射能濃度

| 核種名 | 放射能濃度 (Bq/g) | | | |
|-------|--------------|-----|-----|-----|
| | T 1 | T 2 | T 3 | T 4 |
| Sr-90 | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 不検出 |

ただし, 不検出とは検出限界以下であったことを表わす。

表 7. 葛西臨海公園周辺の各サンプリング地点における β 線放出核種の放射能濃度

| 核種名 | 放射能濃度 (Bq/g) | | | | |
|-------|--------------|-----|-----|-----|-----|
| | K 1 | K 2 | K 3 | K 4 | K 5 |
| Sr-90 | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 不検出 | 不検出 |

ただし, 不検出とは検出限界以下であったことを表わす。

最後に、戸田公園周辺の T1～T4 と葛西臨海公園周辺の K1～K5 の各サンプリング地点における土壌中の β 線放出核種の放射能濃度は、それぞれ表 6、表 7 のようになった。

土壌中の β 線放出核種については、いずれのサンプリング地点においても検出限界以下であった。

4. 謝 辞

本研究の一部は、平成 26～29 年度グローバルサイエンスキャンパス事業（独立行政法人科学技術振興機構）ならびに平成 25～27 年度 JSPS 科研費基盤研究（C）（No. 25350264）の助成を受けました。ここに深謝申し上げます。

5. 参考文献

- 1) 尾内能夫, 坂本澄彦: 放射線基礎医学. 日本出版サービス, 241, 2007
- 2) 飯田博美: 放射線概論. 通商産業研究社, 508-517, 2006
- 3) ラルフ・グロイブ, アーネスト・スターングラス: 人間と環境への低レベル放射能の脅威—福島原発放射能汚染を考えるために—. あけび書房, 54-55, 2011
- 4) 小島貞男: 新たに検出された放射性核種—福島第一原子力発電所周辺土壌の放射化学分離分析—. 別冊化学 検証! 福島第一原発事故: 84-87, 2012
- 5) Neroda AS, Mishukov VF, Goryachev VA, Simonenkov DV, Goncharova AA.: Radioactive isotopes in atmospheric aerosols over Russia and the Sea of Japan following nuclear accident at Fukushima Nr. 1 Daiichi Nuclear Power Station in March 2011. *Environ Sci Pollut Res Int.* 2014 Apr; **21** (8): 5669-77.
- 6) Masson O, Ringer W, Mala H, Rulik P, Dlugosz-Lisiecka M, Eleftheriadis K, Meisenberg O, DeVismes-Ott A, Gensdarmes F: Size distributions of airborne radionuclides from the Fukushima nuclear accident at several places in Europe. *Environ Sci Technol.* 2013 Oct 1; **47** (19): 10995-1003.
- 7) Steinhauser G, Merz S, Hainz D, Sterba JH.: Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. *Environ Sci Pollut Res Int.* 2013 Apr; **20** (4): 2527-34.
- 8) Dlugosz-Lisiecka M, Bem H.: Aerosol residence times and changes in radioiodine-131 I and radiocaesium-137Cs activity over Central Poland after the Fukushima-Daiichi Nuclear reactor accident. *J Environ Monit.* 2012 May; **14** (5): 1483-9.