

Title	多摩川における放射性同位元素の堆積
Sub Title	Radioactive analysis of soil in the Tama river.
Author	島村, 安俊(Shimamura, Yasutoshi) 母里, 彩子(Mori, Ayako) 坂井, 慈実(Sakai, Megumi) 井上, 浩義(Inoue, Hiroyoshi)
Publisher	慶應義塾大学日吉紀要刊行委員会
Publication year	2015
Jtitle	慶應義塾大学日吉紀要. 自然科学 (The Hiyoshi review of natural science). No.57 (2015. 3) ,p.1- 9
JaLC DOI	
Abstract	The accident at the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011 has resulted in the release of many radioactive isotopes. This has added significantly to the level of radiation in the environment and studies show this to inversely correlate with the distance from the site. The concern over artificial radiation caused by isotopes including Caesium-137 that have a long half-life is heightened by its ability to easily move and spread in nature. This raises the question of to what extent are people living further away from the site at risk to radiation exposure. Therefore to address this we sought to monitor radiation levels in soil samples at sites not in the immediate vicinity of the accident. These include those close to major population areas along the Tama River flowing through Kanagawa prefecture near to the Tokyo Metropolis and into the Tokyo Bay. Here we report our methodology and results thus far obtained.
Notes	原著論文
Genre	Departmental Bulletin Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=AN10079809-20150331-0001

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.

多摩川における放射性同位元素の堆積

島村安俊^{*1}・母里彩子^{*2}・坂井慈実^{*3}・井上浩義^{*1, #}

Radioactive Analysis of soil in the Tama River.

Yasutoshi SHIMAMURA, Ayako MORI, Itsukushimi SAKAI and Hiroyoshi INOUE

Summary—The accident at the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011 has resulted in the release of many radioactive isotopes. This has added significantly to the level of radiation in the environment and studies show this to inversely correlate with the distance from the site. The concern over artificial radiation caused by isotopes including Caesium-137 that have a long half-life is heightened by its ability to easily move and spread in nature. This raises the question of to what extent are people living further away from the site at risk to radiation exposure. Therefore to address this we sought to monitor radiation levels in soil samples at sites not in the immediate vicinity of the accident. These include those close to major population areas along the Tama River flowing through Kanagawa prefecture near to the Tokyo Metropolis and into the Tokyo Bay. Here we report our methodology and results thus far obtained.

Key Word: natural radiation, Fukushima daiichi nuclear power plant, Tama river, cesium-137

^{*1} 慶應義塾大学医学部化学教室（〒223-8521 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@z5.keio.jp

^{*2} 慶應義塾大学医学部薬理学教室（〒160-8582 東京都新宿区信濃町35番地）：Department of Pharmacology, Keio University School of Medicine, 35, Shinanomachi, Shijuku, Tokyo 160-8582, Japan. E-mail: ayamori@a5.keio.jp

^{*3} 久留米大学医学部内科学講座（消化器内科部門）（〒830-0011 福岡県久留米市旭町67番地）：Department of Internal Medicine, Kurume University School of Medicine, 67, Asahi-machi, Kurume 830-0011, Japan. [Received Nov. 7, 2014]

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

1. 諸言

約 46 億年前の地球誕生以来、地球にはつねに放射線が飛び交っていた。これは、宇宙線、土地殻からの放射線、気体状の放射性同位元素からの放射線、いわゆる自然放射線である。一方で、われわれ人類は、1895 年のレントゲン博士による放射線発見まで、身近な放射線を認識することはなかった。1942 年にフェルミ博士によって初めて原子炉がつくられ、その後開発された数々の核反応によって、現在では新たな放射性同位元素が地球上に存在するようになった。環境中の放射能を測定することは、地誌学的な意義はもちろん、人類の原子力利用をモニタリングする意味でも重要である。本研究では、公益財団法人とうきゅう環境財団の支援を得て、多摩川およびそれが流れ込む東京湾の河岸、川底、および海底の表面土壌を採取し、環境放射能測定を行なった。本論文では、まず多摩川下流の 1 地点の土壌について測定を行なったので、測定方法および結果の概要、そしてこの結果に基づく今後の方針に関して記述する。

2. 実験方法

2-1. サンプルリング

本報告では、多摩川の 6 カ所のサンプルリング場所（図 1）のうち、六郷土手付近の河川敷のサンプルリング土壌の測定結果を示す。この多摩川駅付近河川敷では、A～F の 6 カ所で土壌サンプルリングを行なった（図 2）。サンプル地点の位置情報は、携帯式 GPS 装置 eTrex 20 (Garmin 社) を用いて採取した。

- ・日時：2013 年 11 月 19 日
- ・天候：晴れ
- ・気温：最高 17.4 / 最低 8.2°C

サンプル地点の放射能および空間線量率は、サンプル位置の上 1 m における放射能および空間線量率を測定した。放射能は GM サーベイメータ（日立アロカ製）、また、空間線量率は空間線量率計（日立アロカ製）を用いた。測定は 3 回行ない、その測定を平均した値を測定値とした。

2-2. 土壌乾燥

採取した土壌は、120°C で 24 時間以上乾燥させ、恒質量となったところで、網目 3 mm の篩にかけた。その後、約 100 g（詳細な質量は別途測定した）を 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）の校正に用いたものと同じ容器に入れ、密閉した。

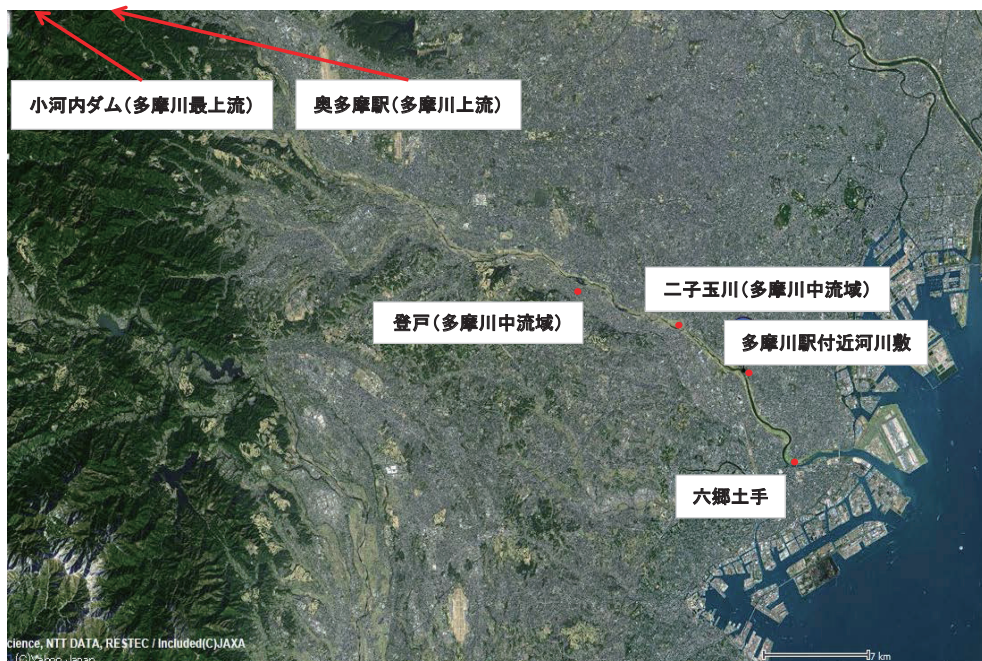


図 1. 多摩川流域の土壌サンプリング地点 (© Yahoo Japan)



図 2. 六郷土手周辺の土壌サンプリング地点 (© Yahoo Japan)

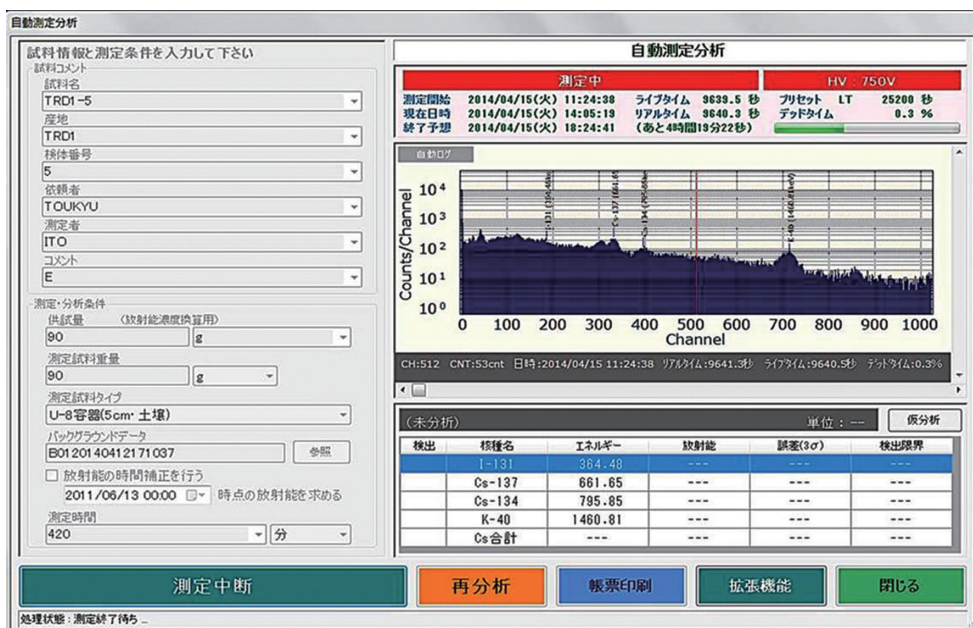


図3. 土壌サンプルのNaI (TI) シンチレーションカウンタ測定結果 (計測中の画面)
画面左側に測定条件を入れる。画面右には測定 γ 線のエネルギーごとのカウントがチャートとして記録される。本解析ソフトでは、このチャートから、目的とする放射性同位元素の放射能を、減衰補正を行なったうえで数値化できる (右下表)。

2-3. γ 線測定

上記NaIシンチレーション γ カウンターを用いて、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 (図3), その面積で放射能を計数した。

2-4. β 線測定

土壌中の β 線放出核種、とくに福島第一原発事故によって放出され、かつ向骨元素であるために体内からの排泄が悪いことから注目されているストロンチウム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」に従って行なった。以下に簡単にまとめる。

- (1) 乾燥土壌100gを蒸発皿に入れ、500°Cで5時間、加熱した。
- (2) 放冷後、2L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1L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.5 C) 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 mg Ca/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あとで、シュウ酸 50 g を加え、アンモニア水で pH 4.0 ～ 4.2 に調整した (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 (プ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 (プ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 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.5 C) 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、次に水 30 mL を通した。
- (20) 溶離液 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) 溶離液 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 を加えてから加熱し、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.5 A) 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 (1 G 4) 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°C で 1 時間乾燥し、デシケーター中で法令したのち、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で測定した。
- NaI (TI) シンチレーションカウンタによる測定を 2 回行ない、その平均を、土壌の単位重量 (1 g) あたりの放射能で表わした。なお、放射能はすべて平成 26 年 4 月 1 日に測定したように、下記の半減期の式を用いて補正した。

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

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・考察

それぞれ A ~ F の土壌サンプル採取地点の放射能および空間線量率は、表 1 のようになった。放射能のバックグラウンドは 40 ~ 50 cpm であるため、すべての地点は平均的な値を示した。一方で、空間線量率は、横浜市、川崎市などで測定されている平常値と同じであった。土壌の単位重量あたりの γ 線放射能を表 2 に示す。 β 線については、すべての測定土壌において検出限界以下であった。なお、全 β 線測定を行なうと、有為な値を得た。 γ 線放出核種については、今回の六郷土手周辺の多摩川土壌では、天然放射性核種である K-40 は必然的に見つかったものの、その他にも、人工放射性核種の Cs-134, Cs-137, そして I-133 が見いだされた。2011 年 3 月の福島第一原発事故以降、これら人工放射性核種は、ロシア・日本海¹⁾、ヨーロッパ全土²⁾、オーストリア³⁾、ポーランド⁴⁾、そして、当然のことながらわが国の生活圏⁵⁾ や環境放射能の定点観測を長年続けている筑波⁶⁾ でも見いだされている。さらには生物への移行も確認さ

表 1. 六郷土手周辺サンプリング地点と放射能・空間線量率

地点	位置		放射能	空間線量率
	緯度 (北緯)	経度 (東経)	(cpm)	(μ Sv/h)
A	35 度 32 分 28.2 秒	139 度 42 分 62 秒	50	0.05
B	35 度 32 分 18 秒	139 度 42 分 42.8 秒	50	0.06
C	35 度 32 分 24.8 秒	139 度 42 分 52.2 秒	60	0.05
D	35 度 32 分 16.2 秒	139 度 42 分 32.2 秒	60	0.06
E	35 度 32 分 23.2 秒	139 度 42 分 29.9 秒	55	0.06
F	35 度 32 分 23.9 秒	139 度 42 分 36 秒	65	0.07

A～F は図 2 の地図中の点と対応する。

表 2. 六郷土手周辺サンプリング地点に存在する放射性核種と放射能

核種名	γ 線エネルギー (keV)	放射能濃度 (Bq/g)					
		A 地点	B 地点	C 地点	D 地点	E 地点	F 地点
I-131	364.48	0.016683	0.032967	0.012333	0.01092	—	0.013304
Cs-137	661.65	0.040364	0.077165	0.098961	0.118161	0.092884	0.020173
Cs-134	795.85	0.01391	0.026256	0.035895	0.041469	0.029048	0.007658
K-40	1460.81	0.656292	1.022977	1.032569	0.570535	0.827037	0.597362

A～F は図 2 の地図中の点と対応する。

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⁷⁾。

これらの結果から、以下のことが示唆された。

- (1) 自然放射性核種である K-40 の濃度が、サンプリング場所により異なることが明らかとなった。これは、カリウム自体の堆積のちがいによることが考えられる。今後、国土地理院が発行する地質図を参考に、土質（とくにカリウムを多く含む花崗岩）と K-40 濃度との関係を明確にしていきたい。
- (2) 福島第一原発事故により放出された Cs-134 と Cs-137 が、多摩川の土壌から見いだされた。この両者は事故直後には同量が存在していたので、現在のこの数値は Cs-134 と Cs-137 の半減期の差によるものと思われる。今後、定点測定を実施し、物理的半減期による減衰以外の因子がどのように作用するかを検討を行なっていく。
- (3) 福島第一原発事故直後には観測されていた I-131 が、いまだに観測された。半減期が 8 日間と非常に短いために、事故後 3 年半以上経過している現在、新たなベントがない状態ではこの I-131 が見いだされることはない。これまでにいくつかの湖沼や河川で医療用 I-131 が見いだされている^{8,9)}。本研究では、われわれの生活圏の外側にある、多

摩川最上流の小河内ダムでのサンプリングを行なっている。この測定結果によって、新たな考察が可能となりうる。

4. 今後の展開

今後、すべての土壌サンプルの測定を終え、東京湾の海底土壌の結果とも合わせて考察を行なっていきたい。

5. 謝辞

本研究の一部は、公益財団法人とうきゅう環境財団の平成 25 および 26 年度研究助成を得て行なっています。ここに深謝申し上げます。

6. 参考文献

- 1) 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 2001. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 2014 Apr; **21** (8): 5669–77.
- 2) 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.
- 3) Steinhäuser G, Merz S, Hainz D, Sterba JH.: Artificial radioactivity in environmental media (air, rain water, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 2013 Apr; **20** (4): 2527–34.
- 4) Dlugosz-Lisiecka M, Bem H.: Aerosol residence times and changes in radioiodine-131 I and radiocaesium-137 Cs activity over Central Poland after the Fukushima-Daiichi Nuclear reactor accident. *J. Environ. Monit.* 2012 May; **14** (5): 1483–9.
- 5) Nagataki S, Takamura N, Kamiya K, Akashi M.: Measurements of individual radiation doses in residents living around the Fukushima Nuclear Power Plant. *Radiat. Res.* 2013 Nov; **180** (5): 439–47.
- 6) Doi T, Masumoto K, Toyoda A, Tanaka A, Shibata Y, Hirose K.: Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: characteristics of the radionuclides derived from Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 2013 Aug; **122** : 55–62.

-
- 7) Wada T, Nemoto Y, Shimamura S, Fujita T, Mizuno T, Sohtome T, Kamiyama K, Morita T, Igarashi S.: Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 2013 Oct; **124** : 246-54.
 - 8) Howe JR, Lloyd MK.: Radio-iodine in thyroid glands of swans, farm animals and humans, also in algae and river water from the Thames Valley, *England. Sci. Total Environ.* 1986 Jan; **48** (1-2): 13-31.
 - 9) Ravichandran R, Binukumar JP, Sreeram R, Arunkumar LS.: An overview of radioactive waste disposal procedures of a nuclear medicine department. *J. Med. Phys.* 2011 Apr; **36** (2): 95-9.