

Title	多摩川の土壌放射能の経年比較
Sub Title	Change over time of soil radioactivity of the Tama River
Author	小野寺, 潤一(Onodera, Junichi) 井上, 浩義(Inoue, Hiroyoshi)
Publisher	慶應義塾大学日吉紀要刊行委員会
Publication year	2018
Jtitle	慶應義塾大学日吉紀要. 自然科学 (The Hiyoshi review of natural science). No.63 (2018. 3) ,p.7- 13
JaLC DOI	
Abstract	In Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident occurred in March 2011, radioactive contamination to the environment occurred on a global scale. Although the influence on the living area is decreasing because it is more than six years since the accident, when space radioactivity measured is used as an index, the influence still remains. In this study, radioactive cesium and radioactive iodine, which are main radionuclides sprayed, were measured in soil collected at the Tama River riverbed, and compared with the data already published four years ago in our laboratory. Radioactive iodine was not detected in this measurement, but radioactive cesium (Cs-134, Cs-137) was detected. On the other hand, when comparing this research result with that in 2013, it became clear that its abundance was smaller than the decrease based on the physical half-life.
Notes	原著論文
Genre	Departmental Bulletin Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=AN10079809-20180331-0007

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.

多摩川の土壌放射能の経年比較

小野寺潤一*・井上浩義*

Change over time of soil radioactivity of the Tama River

Junichi ONODERA, Hiroyoshi INOUE

Summary—In Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident occurred in March 2011, radioactive contamination to the environment occurred on a global scale. Although the influence on the living area is decreasing because it is more than six years since the accident, when space radioactivity measured is used as an index, the influence still remains. In this study, radioactive cesium and radioactive iodine, which are main radionuclides sprayed, were measured in soil collected at the Tama River riverbed, and compared with the data already published four years ago in our laboratory. Radioactive iodine was not detected in this measurement, but radioactive cesium (Cs-134, Cs-137) was detected. On the other hand, when comparing this research result with that in 2013, it became clear that its abundance was smaller than the decrease based on the physical half-life.

Key Words: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, soil radioactivity, radioactive cesium, Tama River

1. 研究方法

1-1 サンプルング

2017年4月28日に、東急東横線多摩川駅付近の多摩川河川敷において、4カ所から土壌を採取した。天候は晴れていた。

土壌サンプルの採取は、日本工業規格 JISA 1201 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

* 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: hiroyin@keio.jp [Received Dec. 6, 2017]

コップ、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。

1-2 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に、2 mm の金属ふるいにかけて透過物のみを採取し、それ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。なお、100 g に満たない土壌サンプルについても同様の乾燥を実施し、測定においてその重量を考慮した。

1-3 ガンマ線測定

NaI シンチレーション γ カウンター (Ospray; キャンベラ社) を用いてガンマ線を測定し、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、その面積で放射能を測定した。

ガンマ線測定においては、すべてのサンプルの放射能測定結果は、以下の減衰式を用いて、2017 年 4 月 28 日 0 時の時点での放射能として補正を行なった。

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (N: \text{時間 } t \text{ における原子数}, \lambda: \text{壊変定数})$$

1-4 ベータ線測定

土壌中のベータ線放出核種については、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。簡単には以下の方法を用いた。100 g に満たない土壌サンプルは、全体の使用量を減少させて測定した。

(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 mg Sr/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. 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、さらに水を加えて液量を 2.5 L とした。

(5) カルニウム担体溶液 (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あとにシュウ酸 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あとに、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、乾燥したあとに 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あとに塩酸 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あとに、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、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 (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°C 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. 結果と考察

採取した 4 カ所について、位置、それぞれでの放射能、重量を表 1 に示す。

ガンマ線の測定に関しては、図 1 のようなチャートとして取得できた。この結果を、すでに測定していたバックグラウンドの値と比較し、土壤中の核種の放射能濃度を決定した。

表 2 に、今回の γ 線放出核種の測定結果を示す。なお、今回の測定においては、 β 線放出核種は確認されなかった。

本測定と同一ポイントでの土壤放射能測定の結果を表 3 に示す。これは 2013 年 10 月 8 日に多摩川河川敷のほぼ同じポイントの土壤にて測定されたものである。具体的には、表 3 の土壤サンプル A ~ F を採取したポイントは、表 2 の A ~ D を採取したポイントから半径 500 m 以内である。なお、採取ポイントについては GPS で緯度・経度を測定して確認している。

今回の測定で検出されているのは、K-40, Cs-134, および Cs-137 であった。K-40 は天然放射性核種であるうえ、物理的半減期は 12.8 億年であり、土壤質および地形に変化がなけれ

表 1. 測定ポイント, および放射能, 空間線量率

地点	位置	放射能	線量率	サンプル番号	重量 (g)
A	緯度35° 35' 40", 経度139° 40' 09"	96 cpm	0.06 (μ Sv/h)	A-1	76.00
B	緯度35° 35' 18", 経度139° 40' 02"	88 cpm	0.04 (μ Sv/h)	B-1	99.56
				B-2	102.69
C	緯度35° 35' 26", 経度139° 39' 09"	16 cps	0.04 (μ Sv/h)	C-1	102.44
				C-2	51.31
D	緯度35° 35' 15", 経度139° 39' 08"	21 cps	0.04 (μ Sv/h)	D-1	26.04
				D-2	74.06

放射能は、途中で GM 計数管の不調に見舞われたため、空間線量計で測定した。

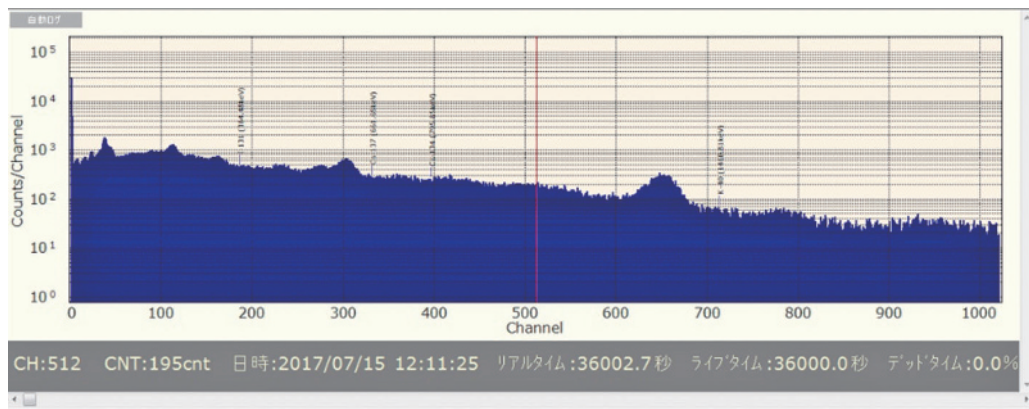


図1. NaI (Tl) シンチレーションカウンタによる測定チャート例

表2. 土壌サンプルにおける放射線量 (単位: Bq/kg 土壌)

サンプル番号	K-40	I-131	Cs-134	Cs-137
A-1	128.9	0.000	0.010	7.900
B-1	138.4	0.000	0.000	1.100
B-2	187.0	0.000	0.000	2.700
C-1	196.5	0.000	0.030	3.500
C-2	153.8	0.000	0.020	0.800
D-1	173.6	0.000	0.000	3.600
D-2	168.4	0.000	0.000	6.900
平均	163.8	0.000	0.009	3.786

表3. 2013年10月8日に採取された土壌サンプルの放射能 (単位: Bq/kg 土壌)

地点	K-40	I-131	Cs-134	Cs-137
A	142.5	0.000	0.000	4.700
B	162.9	0.000	0.040	10.80
C	168.8	0.000	0.070	14.60
D	137.4	0.000	0.000	2.800
E	173.6	0.000	0.000	4.100
F	181.0	0.000	0.070	13.40
平均	161.0	0.000	0.030	8.400

表 4. 2013 年の測定をもとに計算された放射能予測値

地点	Cs-134	Cs-137
A	0.000	4.323
B	0.012	9.935
C	0.021	13.43
D	0.000	2.576
E	0.000	3.771
F	0.021	12.33
平均	0.009	7.728

ば大きな変動は考えにくい。実際に、今回の測定においても、2013年時の161.0 Bq/kgと2017年時の163.8 Bq/kgに変化はなかった。このK-40はポジティブコントロールとなりうる。

I-131は人工放射性核種であるが、今回の測定では検出されなかった。半減期が8.02日と短半減期核種であるので、今回の測定でも確認されなかった。

Cs-134およびCs-137は人工放射性核種である。Cs-134およびCs-137は物理的半減期がそれぞれ2.06年および30.17年であるため、表3をもとに減衰計算すると、2017年4月28日におけるCs-134およびCs-137は表4のように予測された。

これらの結果から、Cs-134は予測値と実測値がまったく一致したものの、Cs-137は予測値7.728 Bq/kgに対して、実測値は3.786 Bq/kgであった。実測値は予測値の49.0%であり、約半分の放射性物質が喪失されたことを示す。

土壌中に存在する放射性セシウムは、土壌中に均一に吸着しているのではなく、限られた鉱物に吸着していることが、イメージングプレートや電子顕微鏡(SEM)などを組み合わせた研究で明らかになっている。これらの研究によると、放射性セシウムは土壌中のとくに粘土質に吸着されることが明らかにされている。その中でもフィロケイ酸塩には放射性セシウムが吸着する。フィロケイ酸塩は層状のケイ酸化合物で、化学式は $[\text{Si}_{2n}\text{O}_{5n}]_{2n}$ で表わすことができる。

粘土質は周知のように、いったん削り取られると水中を混濁しながら下流へと流される。雨の日の川の混濁が粘土質によるものであることはよく知られている。今回の研究では、多摩川駅周辺が多摩川土壌をサンプリングして測定した。この地点は多摩川全体から考えると下流に位置し、すでに放射性セシウムが粘土質に取り込まれた粒子形で表面(表面から10 cmの土壌を採取)に存在していたと考えられる。このため、今回4年以上の年月に経過により、上流からの放射性セシウムの流れ込みよりも、下流への喪失が上まわったものと考えられる。

一方で、多摩川はその源流を奥多摩の小河内ダムに発し、上流には多くの樹木を有する。先の研究によれば、福島第一原発事故により降下した放射性セシウム(フォールアウト)は、事故前に成長した樹木の枝や葉に蓄積し、事故後に成長した樹木には移行していないことがわかっている。一方で、下草などにはまんべんなく大量の放射性セシウムが移行していることも報

告されている。なお、これらの研究結果は、チェルノブイリ事故時の研究報告と一致する。これらのことから、多摩川における放射性セシウムの流れ込みは有限ではあるものの、そのさらなる減少は相当な時間の経過を待つ必要があるだろう。

これらの結果、私たちの身近な地点において、人工放射性同位元素である放射性セシウムが観測される事態が今後とも継続する。これらにより、われわれは放射性セシウムによる外部被ばくと内部被ばくについて懸念を有することになる。一方で、これらに由来する外部および内部被ばくの量は限定的であり、公衆の被ばく限度である年間1 mSv に対する寄与は小さいといえるかもしれない。たとえば、欧州の石造りの家屋によるラドン被ばくで、年間7～13 mSv も被ばくする人々は約1,700万人いると推計されている。しかし、身近な河川であり、われわれの飲料水にも使用されている多摩川の放射能モニタリングは重要であり、今後も高い関心を寄せていきたいと思う。

謝辞

本研究は、医学部第4学年科目「自主学習」の一部として行ないました。また、本研究の一部は平成28～30年度JSPS 科研費基盤研究(C) (No. 16K 01032) の助成を受けました。ここに深謝申し上げます。

参考文献

- 1) 別冊化学, 検証! 福島第一原発事故 ―放射性物質の実際と科学者たちの活動の記録―, 化学同人編集部編, p. 40, 2012.
- 2) 鶴原壽ほか: 新規プルシアンブルー複合体によるCs 汚染水の処理方法. 日本原子力学会和文論文誌, 13 (4), 127, 2014.
- 3) 矢板毅ほか: 粘土鉱物へのセシウム吸着機構説明 (1) 原子・分子レベル構造解析から新しく何がみえるか. 日本原子力学会誌, 56 (6), 366, 2014.
- 4) 河田東海夫: 欧州諸国民の自然界からの年間被ばくの実態. 日本原子力学会誌, 57 (1), 32, 2015.
- 5) 坂本文徳ほか: オートラジオグラフィーを用いた福島第一原子力発電所起源の放射性セシウムの樹木中分布と移動解析. 日本原子力学会和文論文誌, 12 (4), 257, 2013.