

汚染されたため池底質からの Cs 溶出と湖水濃度の関係

Elution of Radioactive Cs from Sediments to Pond Water in Contaminated Irrigation Pond

濱 田 康 治[†] 吉 永 育 生[†] 久 保 田 富 次 郎[†] 白 谷 栄 作[†]
 (HAMADA Koji) (YOSHINAGA Ikuo) (KUBOTA Tomijiro) (SHIRATANI Eisaku)

I. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故により、環境中に放射性セシウム (Cs) が放出された。放出された放射性 Cs が一部の環境に降り注ぎ、放射性 Cs 濃度の高い地域が見られるようになった。水環境においても、一部の河川、湖沼・水源地、沿岸などにおいて、汚染が確認されたとの報告がある¹⁾。

農業用ため池の底質に関しても、場所による差異があるものの、高濃度に放射性 Cs を含有する箇所があることが報告されている²⁾。底質中の放射性 Cs がリスクの要因となる可能性があるが、放射線による直接的な人体などへの影響に関しては、湖水の遮蔽効果によりごく僅かであると考えられる。しかしながら、底質から水中への放射性 Cs の回帰などにより用水とともに放射性 Cs がため池外に拡散することがあるならば、下流側での用水利用などに伴うリスクを高める危険性があるため十分な注意が必要である。

底質から水中への放射性 Cs 回帰の要因として、溶出や巻上げが考えられる。本報では溶出に着目し、放射性 Cs を含む底質の未攪乱コアを使用して、水中への溶出量を測定するとともに、ため池の回転率と溶出に起因する放射性 Cs 濃度の関係を考察する。

II. 試験方法

1. 対象ため池

調査対象は福島県中通りにある 2 カ所の農業用ため池とした。ため池 A は、貯水量 1,592 m³、集水域面積 0.07 km² のため池であり、農業用ため池であると同時に集水域に立地する工業団地からの排水を受け止める調整池の役割も果たしている。ため池 B は、貯水量 109,800 m³、集水域面積 0.3 km² で、ため池 A に比較して大きい農業用ため池である。各ため池の底質の放射性 Cs 濃度は、ため池 A で約 200 kBq/kg、ため池 B で約 15 kBq/kg であった。なお、底質表層の強熱減量はため池 A で 19%、ため池 B で 12% であり、

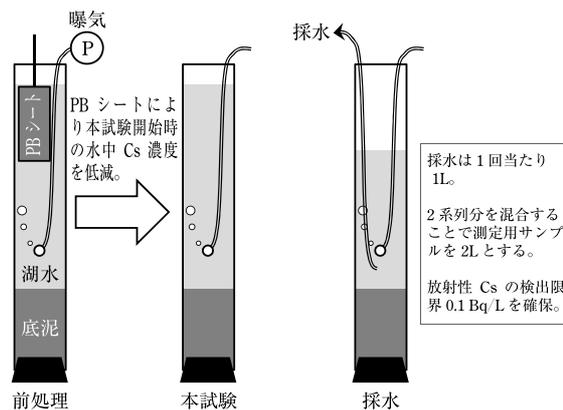


図-1 溶出試験の概要

ため池 A の有機物含量がため池 B に比較して高いと推察された。

2. コアサンプル

福島県にある 2 カ所の農業用ため池の最深部付近でダイバーが潜水して採取した。内径 100 mm、長さ 1,000 mm のアクリルパイプの下側 300~400 mm が底質となるようにして、上部は湖水で満たした状態で底質が乱されないように採取した。採取に当たっては「湖沼底質環境・調査手引き」³⁾を参考にした。採取後は速やかに実験室に輸送した。

3. 溶出試験

溶出試験では、現地での状況を可能なかぎり再現するために、コアパイプ内に充填されていた湖水をそのまま使用した。前処理、本試験ともに 20℃ 恒温、暗条件下において、各ため池に対して 2 系列で実施した (図-1)。

(1) 前処理 コア上部の水中の溶存態 Cs の除去を目的として、水中にプルシアンブルー (PB) シートを浸漬した。処理中は底質表面を乱さないように微量の曝気を施した。処理開始から約 1 週間経過後に PB シートを静かに除去した。

(2) 本試験 前処理終了後に、本試験へ移行した。試験中は底質より約 15 cm 上部に設置したバブルストーンからの曝気で好気条件を維持した。なお、曝気

[†] 農村工学研究所

放射性 Cs, 農業用ため池, 生分解性有機物, 溶出試験, 福島第一原子力発電所事故

に際しては、好気条件を維持しつつ、底質の巻上げが起きない曝気量に調節した。試験期間を生分解されやすい有機物がほぼ終了するのに要する28日間とした。28日間の根拠は、OECDの定める化学物質の安全性試験などに利用されているUltimate-BODが4週間以上の長期の試験による指標であり、自然界で生分解される物質が28日でほぼ分解されると考えた。採水は実験開始日(0日目)、開始後7日目、28日目の3回、底質より約10cm上部の位置から細いチューブを用いて実施した。

(3) **水質測定** $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の測定に際しては、溶出する $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 量が微量であっても0.1 Bq/Lの検出限界を確保するために、各系列からの採水量を1Lとした。2系列で採取したサンプルを混合して2Lとした後、Ge半導体検出器を用いて ^{134}Cs , ^{137}Cs の定量限界がそれぞれ0.1 Bq/L以下となるように測定した。その際、0.1 Bq/Lを下回ったサンプルは0.05 Bq/Lとした。また、全有機炭素(TOC)をTOC計で、 Cl^- , Na^+ , K^+ , NH_4^+ 濃度を孔径0.20 μm のメンブレンフィルタでろ過した後、イオンクロマトグラフで測定した。

(4) **溶出量の算出** 水中の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度変化とカラム内の水柱体積をもとに、試験開始時から28日間での $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 量の変化を評価し、さらに、変化量とコアの断面積から、見かけの $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 溶出速度を算出した。なお、採水以外の要因による試験中の水位変化は極微少であったため、試験期間中の蒸発による水柱体積の変化は無視した。

$$E = \frac{V_7(C_7 - C_0) + V_{28}(C_{28} - C_7)}{a} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 E =溶出速度、 $C_i=i$ 日目の水中濃度、 $V_i=i$ 日目の水柱体積、 a =試験コアの断面積である。

4. 溶出速度と湖水の濃度算定手法

溶出試験結果と対象ため池の諸元をもとに、底質からの溶出に起因する湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の平均上昇量を算出した。

算出の際に以下の仮定に従った。①ため池への流入水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度は0 Bq/Lとする。②底質からの $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の溶出は、底質間隙水や湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度に依存しない。③ため池内は常に完全混合であり、常に満水位である。④ため池の底質面積は満水面積に等しく、底質の性状が一様である。⑤ため池への流入水量、ため池からの取水量は常に一定である。⑥降雨に伴う流域からため池への流入は、土地利用に寄らず流出率0.6で均一である。

灌漑期間中のため池の回転率を、対象ため池の諸元、近隣のアメダスによる降水量をもとに算出した。

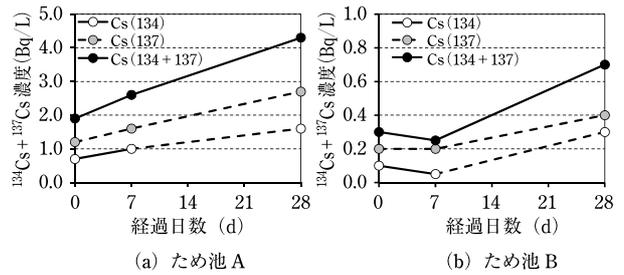


図-2 ^{134}Cs , ^{137}Cs 濃度の経時変化

$$\phi = \frac{rPW}{V} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 ϕ =回転率、 V =貯水量、 P =降水量、 W =集水域面積、 r =流出率である。さらに、溶出速度と回転率をもとに、4~9月(183日間)の、溶出に起因する湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の平均上昇量を算出した。

$$C = \frac{183AE}{V\phi} \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 C =溶出に起因する $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度平均上昇量、 A =満水面積である。

III. 結果および考察

1. 底質からの $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の溶出

図-2に溶出試験中の水中Cs濃度の変化を示す。なお、図-2(a)と図-2(b)では縦軸スケールが異なる。両試験結果ともに、28日後水中Cs濃度が0日目に比較して高く、底質から水中にCsが供給されている様子が確認された。

図-3に溶出試験中の水中TOC, Na^+ , Cl^- , NH_4^+ , K^+ 濃度の経時変化をそれぞれ示す。ため池Aでは、TOC濃度が非常に高く、試験期間中に分解が進行している様子が観察された(図-3(a))。なお、TOC濃度は開始時で約90%が、終了時ではほぼ100%が溶存態として存在していた。また、 Na^+ , Cl^- 濃度が上昇傾向にあった(図-3(c))。土壌に固定された交換性Csの抽出には NH_4^+ , K^+ が必要とされるが⁴⁾, NH_4^+ は試験初期~中期において、 K^+ は試験全般において存在していた(図-3(e))。

ため池Bでは、実験中のTOC濃度がほぼ一定であり(図-3(b))、ほぼ100%が溶存態として存在していた。 Na^+ , Cl^- 濃度の変化に有意な傾向を見いだすことができなかったが(図-3(d))、ため池Aに比較して小さい値で推移していた。また、 NH_4^+ , K^+ は、ため池Aに比較して低濃度であったが試験期間を通して存在していた(図-3(f))。

本試験で観察された ^{134}Cs , ^{137}Cs 濃度の上昇は純粋な溶出のみの結果ではなく、いったん水中に溶出した $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の底質への再移行を差し引いた結果と考

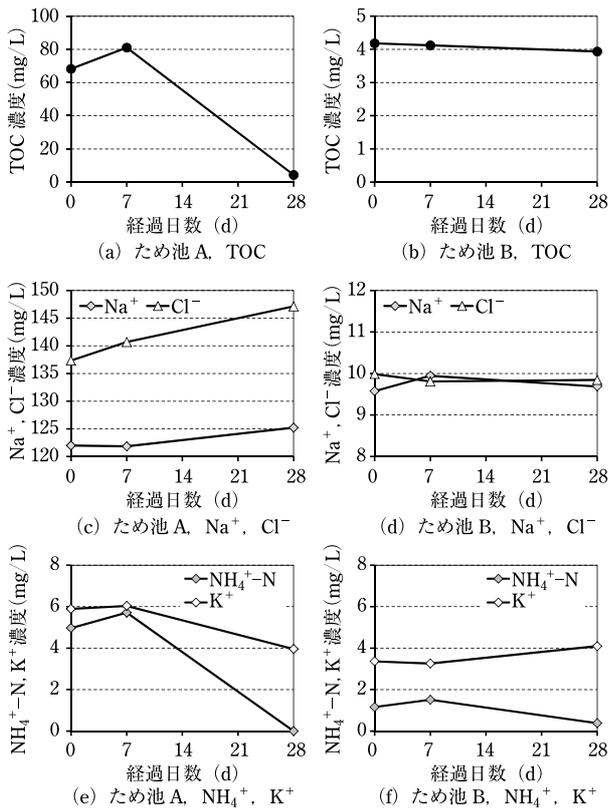


図-3 TOC, Na⁺, Cl⁻, NH₄⁺-N, K⁺濃度の変化

えられる。ここでは、それらを排除できないため、見かけの¹³⁴Cs+¹³⁷Cs溶出速度を溶出速度として算出した。

算出した¹³⁴Cs+¹³⁷Cs溶出速度は、ため池Aで33.1 Bq/(m²・d)、ため池Bで6.7 Bq/(m²・d)であった。ため池Aの底質の¹³⁴Cs+¹³⁷Cs含量ではため池Bの約13倍であるが、溶出速度では約5倍と、ため池AとBの底質の含量比に比較して溶出速度比が小さくなる結果が得られた。

本試験において、底質表層の¹³⁴Cs+¹³⁷Cs含量比と¹³⁴Cs+¹³⁷Cs溶出速度比が一致しない理由は、底質中での¹³⁴Cs+¹³⁷Cs存在形態の違いが主要因であると考えられる。ここで、底質中でのCsの存在形態として、土に強く固定されたもの、土に弱く固定されたもの、有機物に固定されたものがあるが⁵⁾、土粒子に強く固定されているものはほとんど放出されておらず、最も放出されたのは有機物の分解に伴う有機物に固定されているものであったと考えられる。また、水中にNH₄⁺-N, K⁺が存在していたことから、今回の試験では、生分解されやすい有機物に固定されていたCsと、土壌に弱く固定されていた交換態Csの一部も放出されたと考えられる。また、Csの土粒子への吸着反応には、接触時間以外にもCs濃度、pH、イオン強度、土粒子組成が影響を与えるとの報告があり⁶⁾、これらの因子が土粒子との脱着にも影響を与えていたと推察

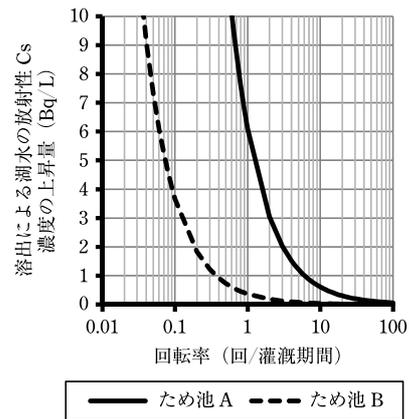


図-4 回転率と溶出による放射性Cs濃度上昇量 (対象年：平成24年度)

される。Cornell⁶⁾は、土粒子の種類によらず、分配係数(K_d)が塩水中で高く、蒸留水中で低くなると報告しており、ため池Aの塩分濃度が高く分配係数が高めであったことも、底質中の含量に比較して溶出速度が小さかったことの原因とも考えられる。

2. 底質からの溶出が湖水濃度に与える影響

図-4にため池の灌漑期間中の回転率と湖水中の¹³⁴Cs+¹³⁷Cs濃度の関係を示す。回転率が高まることで溶出に起因する濃度上昇が抑えられる傾向にあった。平成24年度における対象ため池の灌漑期間中の回転率は、ため池Aで18回転、ため池Bで1.2回転であった。図-4に従い回転率で算出した溶出に起因する¹³⁴Cs+¹³⁷Cs濃度の平均上昇量はため池Aで0.34 Bq/L、ため池Bで0.31 Bq/Lと算出された。

農業用水としての放射性Cs濃度の基準がないが、測定の際の検出限界として定めている場合が多い1 Bq/Lとの比較で考察すると、図-4が示すように、ため池Bでは、灌漑水の¹³⁴Cs+¹³⁷Cs濃度が1 Bq/Lを上回るのは、回転率が約0.4回以下の場合であった。ため池Bの回転率は1.2回転であったが、1 Bq/Lを超過する回転率0.4回転と比較しても約3倍の回転率であった。ため池Aでは、灌漑水の¹³⁴Cs+¹³⁷Cs濃度が1 Bq/Lを上回るのは回転率が約6.0回以下の場合であった。ため池Aの回転率は18.0回転であったが、1 Bq/Lを超過する回転率6.0回転と比較しても約3倍の回転率であった。

上述のとおり、溶出に起因する¹³⁴Cs+¹³⁷Cs濃度の平均上昇量はため池Aで0.34 Bq/L、ため池Bで0.31 Bq/Lであり、底質からの溶出に起因する¹³⁴Cs+¹³⁷Cs濃度の顕著な上昇はみられないものと推察される。しかしながら、実際のため池での流入・流出は定常状態にはなく、瞬間的な水理学的滞留時間(回転率の逆数)は常に変動している。平成24年度にため池Bにおいて測定したため池の流出量をもとに、

ため池内の滞留時間の変動を計算し、溶出に起因する $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の上昇量を推定したが、滞留時間の変動を考慮した場合でも最大値が平均値の2倍を超えることはなく、滞留時間の変動による影響を考慮したとしても、溶出が湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度に極端に大きな影響を与えることはほとんどないと推察される。

また、本報では、ため池内での溶出により例として0.3 Bq/L程度の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の上昇が見込まれるとの試算結果を得た。塩沢ら⁷⁾は、あるダムを対象とした調査結果から、上流河川に比較して下流側では溶存態 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度が0.3~0.4 Bq/L上昇していたと報告している。この結果から、本報で示した溶出による影響が現地調査で得られている結果と比較してオーダー的にも合致しており、評価値が実際の影響と大きくかい離していないと考えている。

溶出による濃度上昇量をどう捉えるかについて、比較に意味を持たないかもしれないが、直接人体に影響するため厳しい基準が定められているであろう飲料水基準が10 Bq/Lであることを考慮しても、両ため池において算出された溶出に起因する $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の平均上昇量は小さい。また、東北農政局と福島県が共同で測定している福島県内の農業用水中の放射性Cs濃度が、ほぼすべての対象ため池で ^{134}Cs 、 ^{137}Cs ともに1 Bq/L未満であったと報告されていることから²⁾、溶出が起きているとしても農業用水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度に与える影響は小さく、仮に影響があるとしても濃度的にも期間的にも限定的であろう。

IV. 結論

底質の放射性Cs汚染が確認された2カ所の農業用ため池で採取した未攪乱底質コアサンプルを用いて、底質から水中への $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ の溶出速度を評価するとともに、ため池の回転率と湖水中の溶出に起因する $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の上昇量を試算した。

比較して高い $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 溶出速度が得られたため池であっても、溶出に起因する $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度の上昇が1.0 Bq/L(水試料を測定対象とした場合に適用している一般的な検出限界)を超える結果ではなかった。

また、ため池内の滞留時間(回転率の逆数)は湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度に影響しており、回転率が小さい場合には湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度が高くなる危険性があることが示された。本報で得られた結果や既存の調査結果を参照すると、底質からの溶出による湖水への $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 回帰量は少ないと考えられるが、さらに溶出による濃度の上昇を抑制するためには、底質からの溶出速度の評価だけではなく、ため池の回転率を調査

し、湖水の $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度に与える影響を総合的に評価してため池を管理する必要がある。

引用文献

- 1) 環境省：平成23年度公共用水域放射性物質モニタリング調査結果(まとめ)(2012)
- 2) 東北農政局：福島県内のため池(3回目)及び農業用水路における放射性物質の測定結果について(2012)
- 3) 東北地方整備局：湖沼底質環境・調査手引き(案)~小川原湖の底質調査結果から言えること~, pp.41~49(2009)
- 4) 山口紀子ほか：土壌-植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因, 農業環境技術研究所報告31, pp.75~129(2012)
- 5) 塩沢 昌：水田の放射能汚染と稲への移行, 水土の知80(7), pp.15~18(2012)
- 6) Cornell, R. M.: Adsorption of cesium on minerals: a review, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 171, pp.483~500(1993)
- 7) 塩沢 昌ほか：土壌中の放射性セシウムの挙動, 放射能の農畜水産物等への影響についての研究報告会(2011), <http://www.a.u-tokyo.ac.jp/rpjt/event/20111119.html>

[2013.6.26.受稿]

濱田 康治 (正会員)



1975年 鹿児島県に生まれる
1998年 九州大学工学部卒業
2004年 九州大学大学院工学府単位取得退学
九州大学大学院工学研究院, (独) 農業工学研究所を経て(独) 農業・食品産業技術総合研究機構農村工学研究所
現在に至る

略歴

吉永 育生 (正会員)



1972年 熊本県に生まれる
1995年 京都大学農学部卒業
農林水産省農業工学研究所, (独) 農業・食品産業技術総合研究機構九州沖縄農業研究センターを経て, 同機構農村工学研究所
現在に至る

久保田富次郎 (正会員)



1964年 神奈川県に生まれる
1991年 東京農工大学大学院修了
農林水産省九州農業試験場, 農業工学研究所, (独) 農業・食品産業技術総合研究機構九州沖縄農業研究センターを経て, 同機構農村工学研究所
現在に至る

白谷 栄作 (正会員)



1960年 福岡県に生まれる
1983年 九州大学農学部卒業
1984年 農林水産省九州農業試験場, 九州農政局, 農業工学研究所, 農村振興局を経て, (独) 農業・食品産業技術総合研究機構農村工学研究所
現在に至る