

河川水系での放射性セシウムの移行状況調査

I. 表層土壌-河川系での放射性セシウムの移行状況調査

高橋 嘉夫、坂口 綾、田中 万也、近藤 宏壮、範橋輝（広島大学）

1. 調査目的

本調査研究では、阿武隈川水系における放射性セシウムの移行挙動を評価するとともに、溶存態の割合を推定するためのモデル作成を行った。

2. 調査方法

平成 25 年 5 月～11 月までの期間（なお、観測開始は平成 23 年 6 月）、阿武隈川支流の口太川の上流及び下流、阿武隈川伏黒地点での定点観測と、試料採取を行った。調査地点を図 I-1 に示す。河川水試料は、河川表層から数 10～約 300 L を採取した後、標準ふるい及びフィルターを用いたろ過により、極細粒砂サイズ ($> 63 \mu\text{m}$)、シルト画分 (3-63 μm)、粘土画分 (0.45-3 μm)、溶存態画分 ($< 0.45 \mu\text{m}$) に分画した。一部の溶存態試料は、さらに 100 kDa 及び 10 kDa (Da : 排除限界分子量) の限外ろ過フィルターにて逐次ろ過を行った。河川懸濁物質は、乾燥し秤量の後ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性セシウムの放射能濃度を求めた。ろ過水試料は、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) によりセシウムを濃縮して他成分を除いてから測定に供した (IV 項)。

福島県本宮市及び福島県伊達郡川俣町のため池にて水・懸濁粒子・堆積物を採取し、溶存態及び粒子態の放射性セシウム濃度の測定を行った。平成 25 年 6 月 27 日に阿武隈川(黒岩)の砂州にて、スクレーパープレートを用いて 2 cm 間隔で表層から 20 cm までの河床堆積物を採取した。採取した試料は、標準ふるいを用いて、細礫以上 ($> 2,000 \mu\text{m}$)、極粗粒砂 (850-2,000 μm)、粗粒砂 (500-850 μm)、中粒砂 (250-500 μm)、細粒砂 (125-250 μm)、極細粒砂 (63-125 μm)、シルト粒子以下 ($< 63 \mu\text{m}$) の 7 画分に分画した。その後、シルト粒子以下の画分を重力沈降法により 5 画分 (< 2 、2-10、10-20、20-40、40-63 μm) に分画した。なお、本調査結果における放射性セシウム濃度は、特に記述がない限り試料採取日において減衰補正を行った。

河川を移行する放射性セシウムの溶存態の割合を推定するために、既報の手法を実試料から得られた固相-液相の固液分配係数 K_d (= 固相と液相中の放射性セシウムの濃度比、単位 : mL/g) を適用することによりモデル化を試みた。ここでは、イライト(粘土鉱物の一種)へのセシウム吸着に適用された Generalized adsorption model¹に着目し、堆積物・懸濁物試料に適用した²。そのために必要となる堆積物に対するセシウムの等温吸着線を得る

¹ 粘土鉱物・雲母片が持つ 3 種類のイオン吸着サイトに注目し、セシウムイオンの粒子への吸脱着を表す数値モデル。

² Bradbury, M. H., Baeyens, B. (2000) A generalised sorption model for the concentration dependent uptake of caesium by argillaceous rocks. J. Contam. Hydrol. 42, 141-163.

と共に、モデルに必要なパラメータとして RIP (Radiocesium interception potential) 値をカルシウムマスク法^{3 4}で求めた。

3. 結果及び考察

(1) 河川及びため池における放射性セシウム濃度

平成 25 年 11 月までの定点観測による河川水中放射性セシウム濃度の全体的な傾向は、事故数ヶ月後の平成 23 年 6 月の観測直後の急激な濃度減少以降、降雨イベント時を除き、緩やかな減少傾向を示した (図 I-2)。

河川水中放射性セシウムの存在状態は、平成 23 年及び平成 24 年の調査結果と同様に粒子態で存在するセシウム 137 の割合が大きく (51-99%)、粒子態の中ではシルト画分 (3-63 μm) の占める割合が最も高かった。また、溶存態 (<0.45 μm) のセシウム 137 濃度は限外ろ過処理により変化しなかったため、有機物錯体などのコロイド態ではなく水和イオンとして存在していることが確認された (図 I-3)。

懸濁粒子 1 g 当たりのセシウム 137 濃度 (Bq/g) については、口太川上流及び下流において減少傾向がみられるが、阿武隈川中流 (伏黒) においては明確な変化はみられなかった (図 I-4)。

平成 25 年 8 月 20 日には、口太川上流において降雨イベント (二本松市で日降水量 15.5 mm) 前後のセシウム 137 濃度を観測した。その結果、平成 24 年 5 月の降雨イベント時と同様に、(1) 多量の土壌粒子の流れ込みによる水中セシウム 137 総濃度及び粒子態セシウム 137 濃度が顕著に増加、(2) 溶存態に比べて粒子態セシウム 137 の占める割合が増加、などの傾向がみられた。ただし、平常時及びイベント時に関わらず、シルト画分 (3-63 μm) が全体に占める割合が大きいことは変わらなかった。

一方、ため池では河川に比べ溶存態セシウム 137 の割合が大きい傾向がみられた (図 I-2)、特に本宮では春 (88%) と冬 (70%) の両方で非常に高い割合を示した。これは、水の滞留時間が長く土壌からの溶出時間が長いことや、有機物濃度が高いことなど、河川と異なるため池の環境が影響している可能性がある。

(2) 堆積物中のセシウム 137 の粒径分布

阿武隈川黒岩地点で採取した河床堆積物のセシウム 137 深度プロファイルを図 I-5 に示す。セシウム 137 濃度は表層から 16 cm までは 170~340 Bq/kg であったのが、最深部 (18-20 cm) では 3, 100 Bq/kg であった。これまで報告されている土壌マップのセシウム 137 濃度⁵から考えると、最深部での濃度上昇は原発事故からあまり時間経過していない時点での堆積物層と解釈できる。

河床堆積物の粒径別セシウム 137 濃度 (図 I-6) では、粒径が小さくなるほどセシウム 137 濃度が高いという結果が得られた。これは粒径が小さいほど比表面積が大きいことやセシウムを強く吸着する粘土鉱物の割合が高くなるためであると考えられる。4-6 cm、

³ Wauters, J., Elsen, A., Cremers, A., Konoplev, A. V., Bulgakov, A. A., Comans, R. N. J. (1996) Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocaesium in soils and sediments. Part one: a simplified procedure for the solid phase characterisation. Appl. Geochem. 11, 589-594.

⁴ Wauters, J., Vidal, M., Elsen, A., Cremers, A. (1996) Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocaesium in soils and sediments. Part two: a new procedure for solid phase speciation of radiocaesium. Appl. Geochem. 11, 595-599.

⁵ Yoshida, N., Takahashi, Y. (2012) Land-surface contamination by radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Elements 8, 201-206.

16-18 cm、18-20 cm 深の河床堆積物について比較すると粒径別のセシウム 137 濃度分布のパターンは類似しており、全粒径の濃度が深度とともに上昇していることがわかる。また、平成 24 年 9 月 16 日及び 11 月 26 日の調査において同地点で採取した堆積物試料(表層 5 cm)の分析結果⁶と比較しても、4-6 cm のデータと類似していることが分かる。以上の結果から、時間とともに堆積物全体のセシウム 137 濃度レベルは低下するものの、各粒子サイズ間での相対的な濃度はあまり変化していないことが分かる。

以上のことから、セシウム 137 濃度と粒子サイズの関係は、平成 23 年 8 月から 12 月にかけての調査⁷において、浮遊砂についても見られた傾向である(図 I-7)。

(3) 表層水中の溶存態及び粒子態セシウム 137 濃度のモデル化

(a) モデル化に向けた吸着-脱着反応の可逆性

福島河川環境におけるセシウム 137 濃度のモデル化のため、河床堆積物に対するセシウム吸着の固液分配係数 K_d^{\downarrow} を決定した。実験では、溶存セシウムが堆積物に吸着する際の K_d^{\downarrow} と、堆積物から河川水や海水に溶出する際の K_d^{\uparrow} を求めた。その結果、2 μm 以下の堆積物を除くと、大まかに粒径が小さいほど K_d^{\downarrow} は大きい。河川水の場合、吸着と脱着で得た K_d^{\downarrow} はほぼ等しく、放射性セシウムの吸着は基本的には可逆的な反応として扱えると考えられる。海水での脱着実験では、 K_d^{\uparrow} は 1/10~1/50 程度まで低下した(図 I-8)。

(b) Generalized adsorption model の適用

この Generalized adsorption model では、粒子のセシウム吸着サイトが①粘土鉱物・雲母等の RIP で表される Frayed edge site(FES)、②それ以外の粘土鉱物・雲母の層間サイト(Interlayer site)、③その他の外圏型錯体の吸着サイト(Planar site)の 3 つで仮定されている。実際に、EXAFS 分析から、(ii) で得た阿武隈水系の堆積物試料にはこれら 3 つの吸着サイトの存在が示唆されている(図 I-9)。口太川の河床堆積物にセシウムを吸着させた結果をこの 3 つのサイトでフィッティングして、モデル適応のために必要なそれぞれのパラメータを得た(図 I-10)。FES サイト濃度は別途 RIP 法で求めた。なお、図 I-10 において、環境中での実測値はほぼ原点付近にプロットされる。

(c) 自然環境への適用

これら 3 つの吸着サイトを用い、天然水中の Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 濃度を考慮した上で、河川(口太川下流)や河口(平成 24 年 巨理の結果)で得られた放射性セシウムの自然環境中での K_d との一致を調べた(図 I-11)。その結果、本モデルと河川・河口域系の K_d は比較的よく一致し、今回構築したモデルが放射性セシウムの溶存態と粒子態の比を予測できることが示された。河口域系では、河川系より約 1 桁低い K_d 値が再現され、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} の影響が的確に表現されていると考えられ、本モデルを用いて、様々な水質における放射性セシウムの K_d 値(溶存態と懸濁態の割合)が推定できることが分かった。

⁶ 岩谷北斗, 高橋嘉夫, 坂口綾, 範橋輝, 植賀晴香, 門倉彰伸, 田中万也, (2012) 第 3 次分布状況等調査の進捗状況(移行メカニズム調査関係)について-(1)河川の懸濁粒子及び堆積物中のセシウムの粒径依存性の評価結果について(非公開資料 2012 年 1 月 18 日)。

⁷ 高橋嘉夫, 坂口綾, [福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の第二次分布状況等に関する調査研究] 成果報告書, 第 2 編 放射線量等分布マップ関連調査研究, 放射性物質の包括的移行状況調査, pp2-326 - 2-341.

(d) K_d 値に与える因子の評価

(1) で得た河川やため池、別途調査したウクライナ・チェルノブイリ市の Pripyat 川における懸濁粒子と水間のセシウム 137 の分配係数 K_d と溶存有機炭素濃度 (DOC) の結果から、DOC が高くなると K_d が低くなるという結果が得られた (図 I-12)。これを模擬した室内実験から、腐植物質などの高分子有機酸の濃度が高くなると、これら有機物が粘土鉱物・雲母を覆うことで、層間へのセシウムの侵入が阻害されるために、セシウム 137 の K_d 値が大きく減少することが示唆された (図 I-13)⁸。この他、 K_d は場所によって変動することが示唆されており、有機物の影響の他、(3)-(b) で示した粒径効果や鉱物組成の影響についてもモデルに組み込む必要性が明らかになった (図 I-14)。このうち粒径効果については、本調査で示した放射性セシウム濃度と粒径の経験的な関係を利用できる (図 I-7 参照)。

(4) 環境水中の低濃度セシウムの測定と移行・流出モデルへの貢献

(3)-(a) 及び (b) で得られた溶存態及び懸濁態の放射性セシウム濃度、浮遊砂中放射性セシウムの粒径依存性などの結果は、「河川への放射性物質の移行の実態理解と分布物理型モデルによる解析」に示された移行モデルの構築と検証に利用されている。また、河口域での K_d の低下は、河口域にもたらされ沈降する粒子からの放射性セシウムの溶出を引き起こす。阿武隈川の平均流量を $113 \text{ m}^3/\text{s}$ ($= 3.6 \times 10^{12} \text{ L}/\text{年}$)、河口域での堆積物の蓄積量を $1.4 \times 10^5 \text{ m}^3/\text{年}^9$ ($= 3.6 \times 10^{11} \text{ g}/\text{年}$; 密度を $2.6 \text{ g}/\text{cm}^3$ と仮定) とする。セシウム 137 濃度は、亘理の堆積物で $0.87 \text{ Bq}/\text{g}$ であり、堆積物に対する水質を考慮した K_d は、阿武隈川非河口域で $81 \text{ L}/\text{g}$ 、河口域で $2.5 \text{ L}/\text{g}$ であることが本調査から分かっている。これらから、元々河口に蓄積する堆積物に含まれていたセシウム 137 の量は、 $0.87 \text{ Bq}/\text{g} \times 3.6 \times 10^{11} \text{ g}/\text{年} = 3.1 \times 10^{11} \text{ Bq}/\text{年}$ と推定される。ここからセシウム 137 が $K_d = 2.5 \text{ L}/\text{g}$ に達するまで水側に溶出した場合、その溶出量は $2.5 \times 10^{11} \text{ Bq}/\text{年}$ となり、堆積したセシウム 137 のうちの 81% が溶出することになる。この量は、「土壌侵食量及びセシウム流出量の計算」にある平成 24 年の流出量の推定値 $1.5 \times 10^{13} \text{ Bq}/\text{年}$ の 1.7% に当たる。一方、同じモデルで平成 25 年の流出量が $1 \times 10^{11} \text{ Bq}/\text{年}$ 以下と見積もられ、堆積物からの溶出量が流出量を上回ると推定された。

⁸ Fan, Q.H., Takahashi, Y., Iwatani, H., Tanaka, K., Sakaguchi, A. (2014) Effect of mineralogical composition and nature organic matter on cesium adsorption and mobility. *Geochim. Cosmochim. Acta*, in press.

⁹ 真野明・沢本正樹・河上伸生, (1994) 阿武隈川河口周辺の土砂移動量評価, 海岸工学論文集, 41, 451-455.

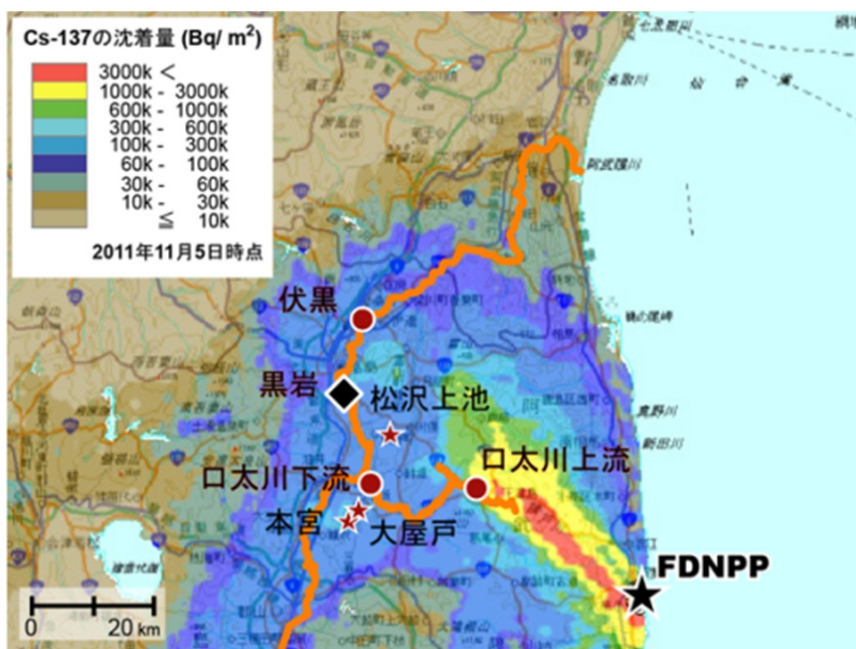


図 I-1 試料採取地点 (○ : 河川水、◇ : 砂州堆積物、☆ : ため池)

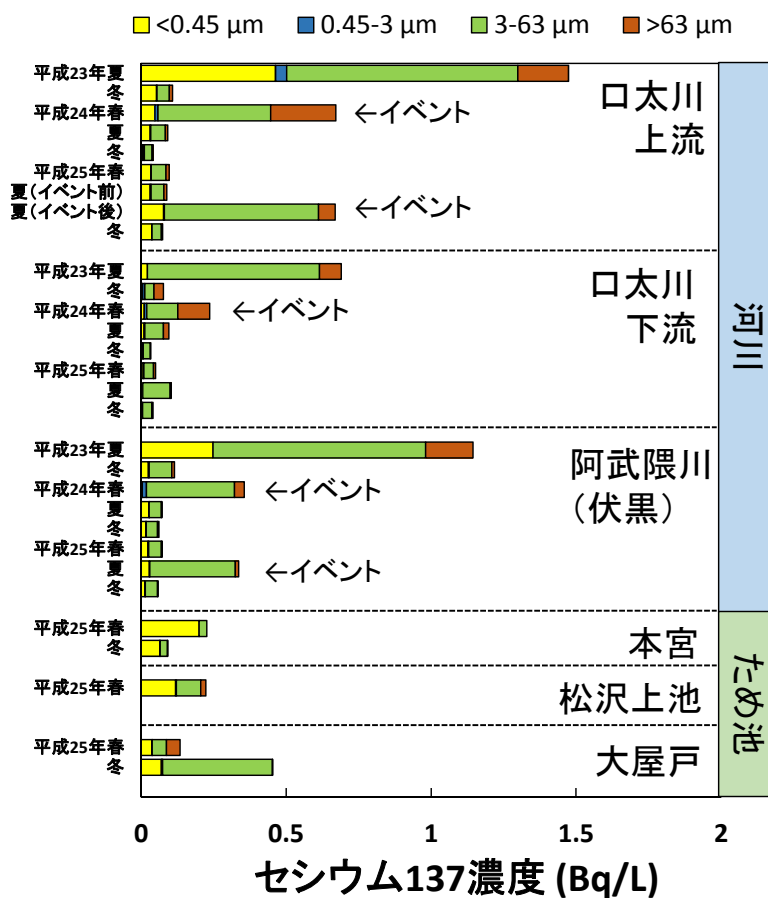


図 I-2 河川水及びため池に占める溶存及び粒子態セシウム 137 濃度の経時変化 (試料採取日に減衰補正)

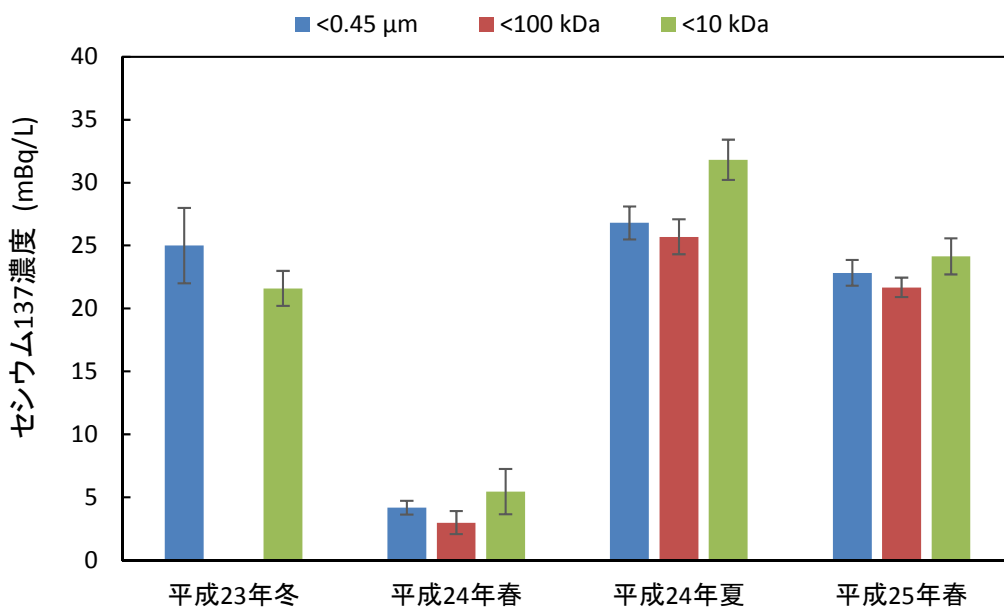


図 I-3 阿武隈川（伏黒）における河川水の限界ろ過を用いたセシウム 137 の分析結果

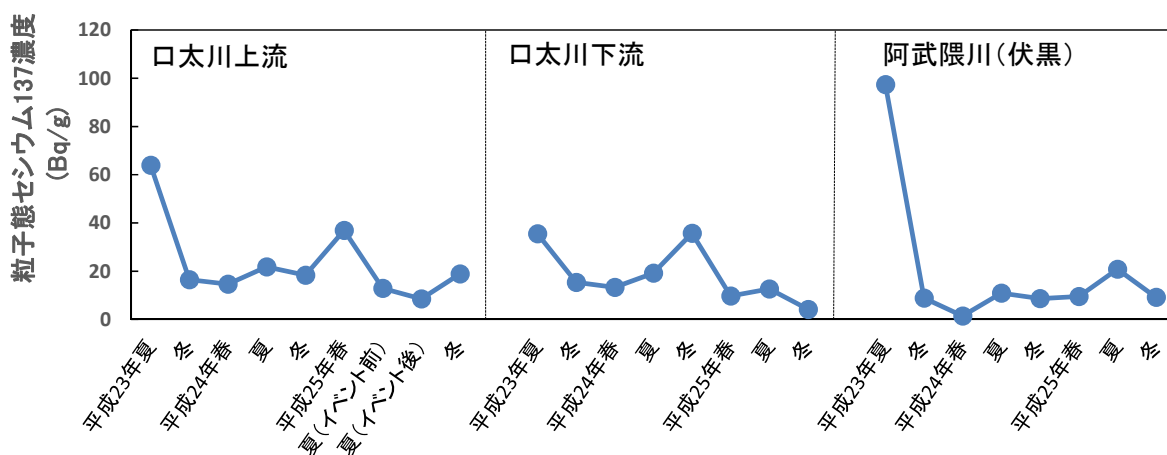


図 I-4 河川水中粒子態セシウム 137 濃度の経時変化

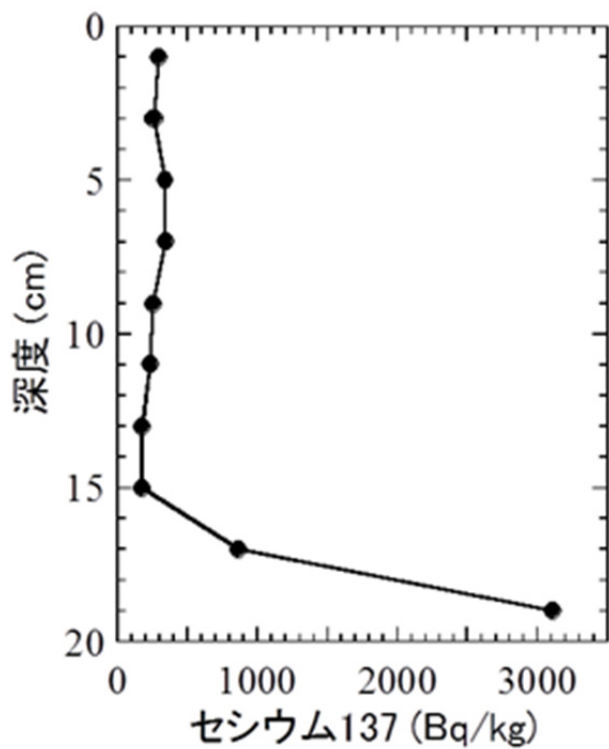


図 I-5 河床堆積物のセシウム 137 深度分布

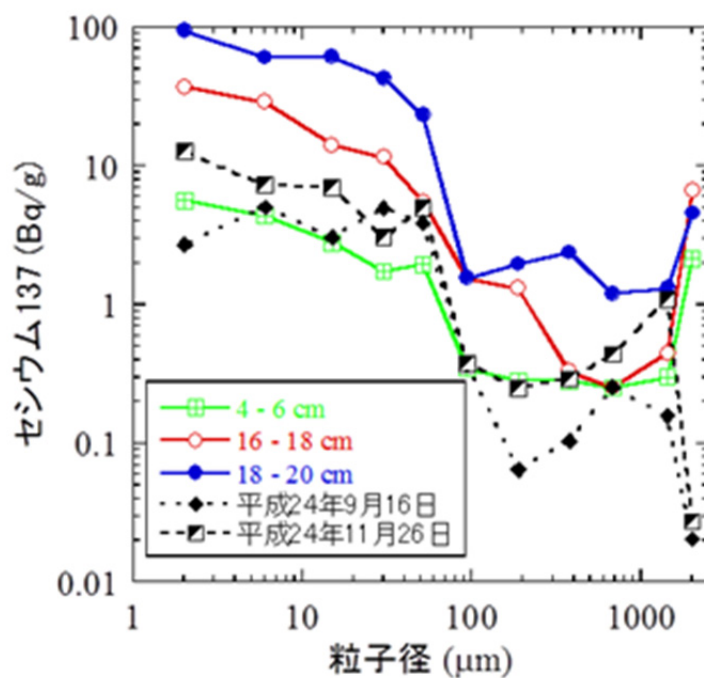


図 I-6 河床堆積物粒径別セシウム 137 濃度

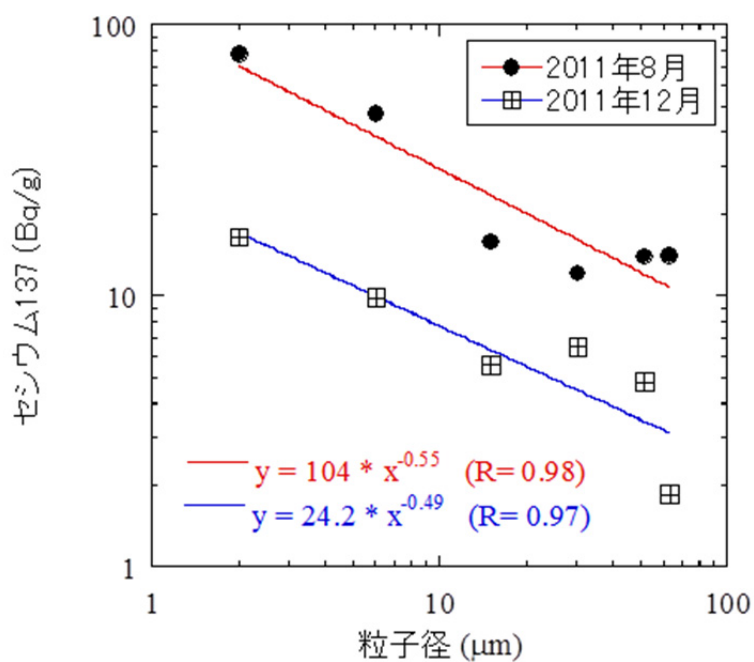


図 I-7 浮遊砂粒径別セシウム 137 濃度
(測定日において減衰補正)

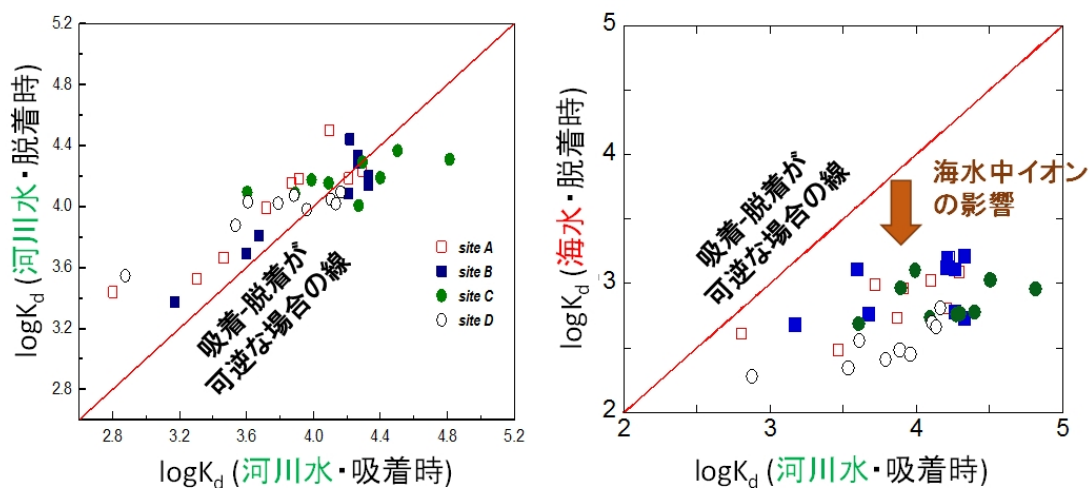


図 I-8 セシウム 137 トレーサーを用いて求められた異なる堆積物への吸着及び脱着によって得られた固液分配係数 K_d (mL/g) の相関
(左図：河川水での脱着、右図：海水での脱着)

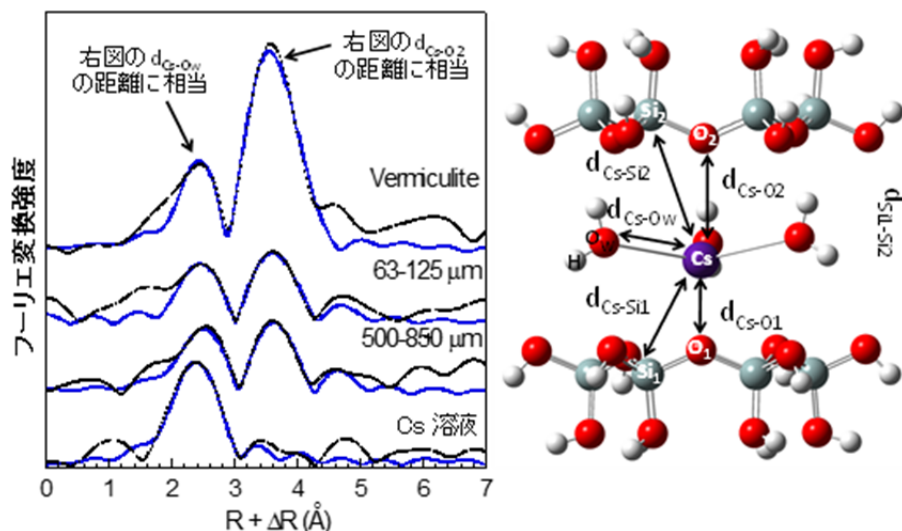
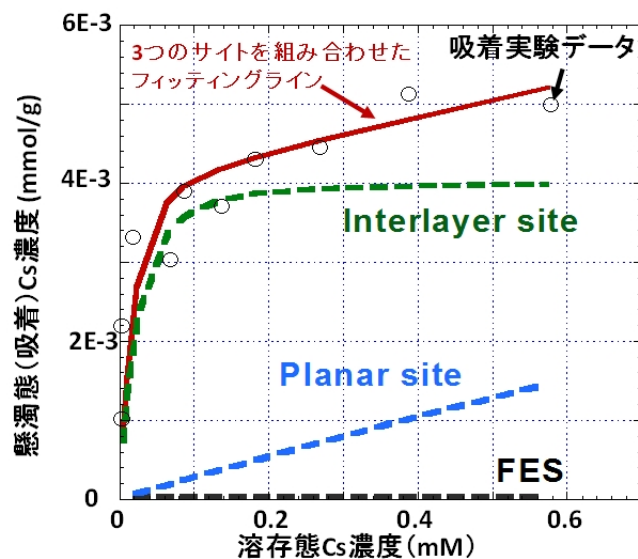


図 I-9 口太川堆積物（粒径：63-125 μm 及び 500-850 μm ）に吸着させたセシウムの L_{III} 吸収端 EXAFS から得た動径構造関数（RSF）と、該当する結合距離を示したバーミキュライトに対するセシウムの構造の分子軌道計算結果

（比較試料として、水溶液中のセシウムイオン及びバーミキュライトに吸着されたセシウムの RSF も示した）



サイトタイプ	サイト容量 (mmol/kg)	イオン交換平衡定数K		
		$\log \frac{Cs}{Na} K$	$\log \frac{Cs}{K} K$	$\log \frac{Cs}{Ca} K$
Frayed edge site	0.28×10^{-3}	7.0	4.6	-
Interlayer site	4.0×10^{-3}	3.8	1.7	4.0
Planar site	72×10^{-3}	1.6	0.5	-0.2

図 I-10 堆積物に対する放射性セシウムの等温吸着線及び General absorption model によるフィッティングと各吸着サイトの寄与

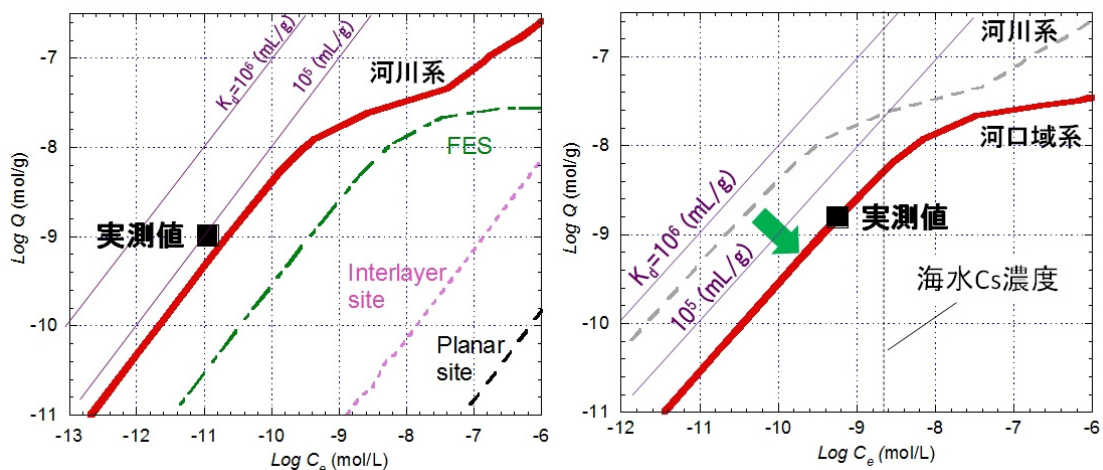


図 I-11 Generalized adsorption model (GAM) の河川系 (左図) 及び河口域 (右図) への適用結果と対応する K_d

(左図と右図のいずれでも、太い曲線が GAM で得られた結果であり、また■は、実際の天然試料セシウム 137 の測定から得られた結果を示す。左図では、表 2 に示した各サイトに吸着された放射性セシウムの寄与も示した。2 つの図で左側に示している斜めの直線は等 K_d 線であり、右下に行くほど K_d が低下することを示す。右図の矢印は、河川系に比べて河口域系で K_d が低下することを示している。)

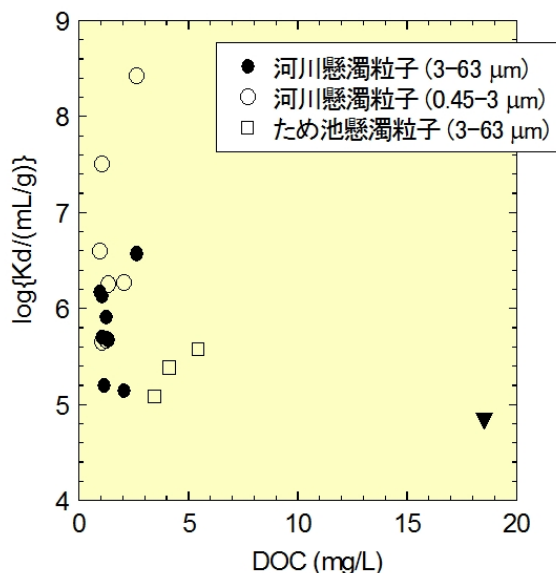


図 I-12 溶存有機物濃度 (DOC) と懸濁粒子へのセシウム 137 の K_d の関係

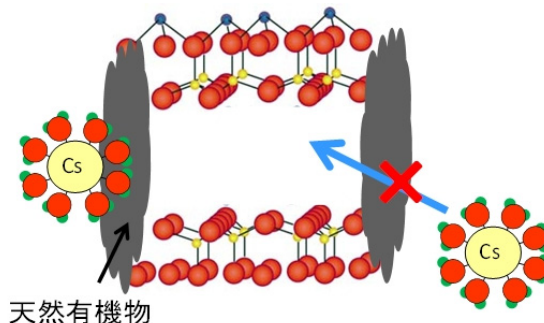
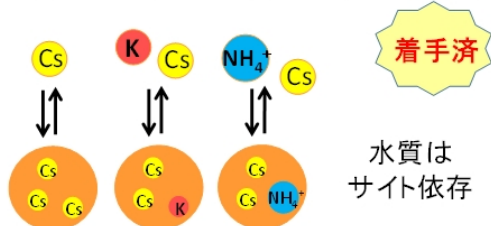
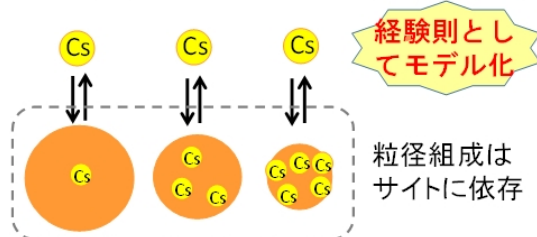


図 I-13 層状ケイ酸塩に対する鉱物の層間への放射性セシウム吸着に対して天然有機物のコーティングが与える阻害効果

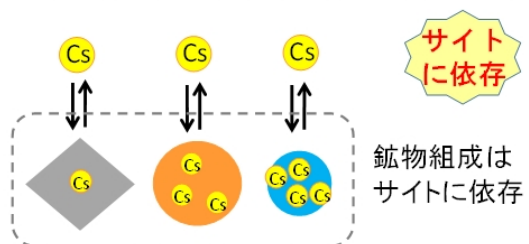
1. 水質の影響を含むモデル構築



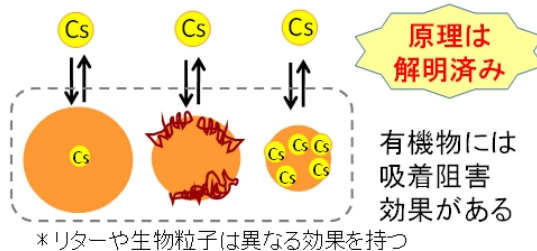
2. 粒径効果を反映したモデル化



3. 鉱物組成を反映したモデル化



4. 有機物の影響含むモデル構築

図 I-14 セシウム 137 の K_d に影響を与え得る科学的因子

II. 河川水の放射性物質分析

池内 嘉宏（日本分析センター）

1. 調査目的

河川水の放射性物質の濃度が時間の経過とともにどのように変化するかを把握するため、平成 23 年度の調査では平成 23 年 6 月に 50 箇所 of 河川水等を採取（以下「第 1 回調査」という。）、平成 23 年 8 月に第 1 回調査と同じ 50 箇所 of 河川水等を採取（以下「第 2 回調査」という。）、平成 23 年 12 月に第 1 回調査と同じ 50 箇所 of 河川水等を採取（以下「第 3 回調査」という。）、平成 24 年度の調査では平成 24 年 8 月に 57 箇所 of 河川水等を採取（以下「第 4 回調査」という。）、平成 24 年 11 月に第 4 回調査と同じ 57 箇所 of 河川水等を採取（以下「第 5 回調査」という。）し、それぞれ放射性セシウム等の分析を行った。なお、平成 24 年度の調査では、第 3 回調査と同じ 50 箇所を採取するとともに、今まで調査が行われなかった福島第一原発近辺の 7 箇所を追加し、57 箇所とした。

平成 25 年度の調査では、平成 25 年 6 月に第 5 回調査と同じ 57 箇所 with 採取（以下「第 6 回調査」という。）するとともに、新たに河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌を採取し放射性セシウムの分析を行った。

また、平成 25 年 11 月には、第 6 回調査と同様に第 7 回調査を行った。

2. 調査内容

(1) 試料の採取期間

第 6 回調査

河川水の採取期間：

平成 25 年 6 月 4 日～6 日

河底土及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌の採取期間：

平成 25 年 6 月 4 日～5 日

第 7 回調査

河川水の採取期間：

平成 25 年 11 月 12 日～14 日

河底土及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌の採取期間：

平成 25 年 11 月 12 日～13 日

(2) 調査項目

(a) 河川水

河川水中のガンマ線放出核種（放射性セシウム）及びベータ線放出核種（ストロンチウム 90）の放射能濃度の定量

(b) 河底土及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌

河底土中及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌のガンマ線放出核種（放射性セシウム）の定量

(3) 調査箇所

平成 24 年度の分布状況等調査で河川試料（河川水、河底土）を採取した箇所と同一箇所

(河川水試料：福島県内の 57 箇所、ストロンチウム 90 の分析対象：河川水試料採取箇所のうち 10 箇所、河底土及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌：河川水試料採取箇所のうち 10 箇所（ストロンチウム 90 の採取箇所と同一箇所）で採取した（図Ⅱ-1 及び表Ⅱ-1 参照）。

(4) 試料の採取方法

(a) 河川水

できる限り透明な河川水をひしゃく、またはバケツにロープをつけて採取し、キュービティナー（容量：20 L）に移した。放射性セシウムだけの調査箇所は、キュービティナー2 個分を、放射性セシウム及びストロンチウム 90 の調査箇所は、キュービティナー4 個分を採取した。

(b) 河底土及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌

河底土は、移植ごてにより、表面から約 1 cm を 200 g 程度採取した。河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌は、直径 5 cm、高さ 5 cm の円筒状の金属製の採取器で採取した。

(5) 試料の分析方法及び検出下限値

(a) 河川水におけるガンマ線放出核種の放射能濃度測定

平成 24 年度の分布状況等調査の結果、河川水中の放射性セシウムの放射能濃度が減少している傾向にあるため、検出下限値以下の結果が増えている。そこで本調査からは、2 L マリネリピーカーで 8 時間測定する方法から、河川水 40 L 程度からリンモリブデン酸アンモニウムを用いて放射性セシウムを吸着し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて 22 時間程度測定する方法に変更した。測定結果は、測定日の結果であり、減衰補正をしていない。

文部科学省の放射能測定法シリーズに準じて、より安全側に評価するため、試料は濾過せずに、河川水 40 L 程度にリンモリブデン酸アンモニウムを加えよくかき混ぜた。リンモリブデン酸アンモニウムをポリプロピレン製の U-8 容器に移し、セシウム 134、セシウム 137 のガンマ線放出核種の放射能濃度を測定した。検出下限値は、それぞれ 1.0×10^{-3} Bq/kg 程度である。

(b) 河川水におけるベータ線放出核種の放射能濃度測定

河川水 40 L から放射化学分析により放射性ストロンチウムを分離し、ストロンチウム 90 の壊変生成物であるイットリウム 90 と放射平衡になる 2 週間後に、ベータ線放出核種であるイットリウム 90 の放射能濃度を測定した。測定にあたっては、低バックグラウンドベータ線測定装置を用いて 60 分程度測定を行った。ストロンチウム 90 の検出下限値は、 6.0×10^{-4} Bq/kg 程度である。測定結果は、採取日に減衰補正をしている。

(c) 河底土、河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌の分析方法及び検出下限値

河底土は、傾斜法により試料から水分を除去し、ポリプロピレン製の U-8 容器に移し、ゲルマニウム半導体検出器により 1 時間、セシウム 134、セシウム 137 等のガンマ線放出核種の放射能濃度を測定した。河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌は、ポリプロピレン製の U-8 容器に移し、ゲルマニウム半導体検出器により 1 時間、セシウム 134、セシウム 137 等のガンマ線放出核種の放射能濃度を測定した。検出下限値は 5 Bq/kg 程度である。測定結果は、測定日の結果であり、減衰補正をしていない。

3. 結果と考察

河川水におけるセシウム 134、セシウム 137 のガンマ線放出核種の放射能濃度の測定結果は、以下の通りである。

(1) 放射性セシウムの放射能濃度の測定結果

第 6 回及び第 7 回調査の河川水において、セシウム 134 の放射能濃度は最大で 0.98 Bq/kg、セシウム 137 の放射能濃度は最大で 2.1 Bq/kg であった。

第 6 回及び第 7 回調査におけるセシウム 134、セシウム 137 の最大値は、平成 24 年度の分布状況等調査で、福島第一原発近辺の追加した 7 箇所うちの 1 箇所であった。

第 1 回調査から放射能濃度が検出下限値以上であった箇所と、本調査の放射能濃度の変化状況を確認した。その結果、図Ⅱ-2 及び図Ⅱ-3 に見られるように、ほとんどの調査箇所において、第 1 回調査から第 5 回調査の測定結果に比べて、第 6 回及び第 7 回調査では、大部分は減少か第 5 回調査と同程度であることが確認された。

(2) 河底土及び河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌における放射性セシウムの放射能濃度の測定結果

第 6 回及び第 7 回調査の河底土におけるセシウム 134 の放射能濃度は最大で 2,800 Bq/kg、セシウム 137 の放射能濃度は最大で 5,600 Bq/kg であった。

第 1 回調査から第 6 回調査までの放射能濃度の変化状況を確認した。その結果、図Ⅱ-4 及び図Ⅱ-5 に見られるように、第 1 回調査から第 5 回調査の測定結果に比べて、第 6 回及び第 7 回調査では、多くの調査箇所においては減少しているか同程度であることが確認された。なお、試料 No. 河 44 の真野及び試料 No. 河 40 の水無川北町では、第 6 回調査で増加している。

また、本調査から、河底土への放射性セシウムの影響を把握するため、河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌を採取し、放射性セシウムの放射能濃度を測定した（第 6 回調査の結果を表Ⅱ-2 に、第 7 回調査の結果を表Ⅱ-3 に示す）。

図Ⅱ-4 及び図Ⅱ-5 に見られるように、ほとんどの調査箇所において河底土と川岸の土壌の放射性セシウム濃度に大きな差が無い。なお、試料 No. 河 43 の小島田堰及び試料 No. 河 21 の御代田は、川岸の土壌の放射性セシウムが高く、試料 No. 河 11 の二本松及び試料 No. 河 40 の水無川北町は、放射性セシウムが低い。

(3) 河川水におけるストロンチウム 90 の放射能濃度測定の結果

第 6 回及び第 7 回調査の河川水において、ストロンチウム 90 の放射能濃度は最大で 2.8×10^{-3} Bq/kg であった。

第 1 回調査から放射能濃度が検出下限値以上であった箇所と、第 7 回調査の河川水中のストロンチウム 90 の放射能濃度の変化状況を確認した。その結果、図Ⅱ-6 に見られるように、ほとんどの調査箇所において河川水中のストロンチウム 90 の放射能濃度が同程度にあるものの、微量の増減があることが確認された。第 1 回調査、第 2 回調査でストロンチウム 89 が検出された箇所（図Ⅱ-7）は、今回の第 6 回調査でもストロンチウム 90 の放射能濃度がやや高い傾向にあり、これは福島第一原発事故の影響と考えられるが、放射能濃度は、環境放射能水準調査として実施されている、事故前の 47 都道府県で採取された上水（源水、蛇口水）の結果と同程度である。

(4) 河川水中の放射性セシウムの放射能濃度に関する考察

本調査で検出された河川水の放射性セシウムの放射能濃度の最大は、セシウム 134 が 0.98 Bq/kg、セシウム 137 が 2.1 Bq/kg であり、いずれも厚生労働省 告示第 370 号「食品、添加物等の規格基準」による基準値 10 Bq/kg よりも小さいことが確認された。

(5) 河川水中の放射性ストロンチウムの放射能濃度に関する考察

本調査において、それぞれ 10 箇所河川水試料から検出下限値以上のストロンチウム 90 が検出された。ストロンチウム 90 の放射能濃度の最大値は 2.8×10^{-3} Bq/kg であった。この値は、環境放射能水準調査として実施されている、事故前の 47 都道府県で採取された上水（源水、蛇口水）の結果と同程度である。

表Ⅱ-1 河川水中の放射性物質の放射能濃度の変化傾向の確認調査箇所

番号	採取地点	河川名	緯度	経度
河 1	水原川	木原川	37.663747	140.421203
河 2	荒川 土湯	荒川	37.718772	140.363844
河 3	黒岩 榎平	阿武隈川	37.726997	140.473219
河 4	渡利川岸町	阿武隈川	37.751694	140.480819
河 5	六ツ長	八反田川	37.799403	140.463136
河 6	瀬ノ上	摺上川	37.815811	140.477142
河 7	上中川原	摺上川	37.828136	140.454986
河 8	稲子沢茂庭	摺上川	37.904597	140.430358
河 9	百目木	移川	37.531608	140.613450
河 10	杉田	杉田川	37.561192	140.412553
河 11	二本松	阿武隈川	37.594483	140.461961
河 12	岳	杉田川	37.607267	140.354508
河 13	月館 (県)	広瀬川	37.733097	140.606261
河 14	月館 (国)	広瀬川	37.738275	140.611603
河 15	保原	東根川	37.812836	140.561158
河 16	大関	広瀬川	37.835156	140.617797
河 17	東土橋	伝樋川	37.849267	140.596450
河 18	佐久間川	佐久間川	37.864967	140.524278
河 19	滝川	滝川	37.871175	140.565842
河 20	川俣	広瀬川	37.679658	140.615142
河 21	御代田	阿武隈川	37.345786	140.373917
河 22	多田野	逢瀬川	37.392108	140.230697
河 23	大栗	初瀬川	37.240239	140.448547
河 24	西川	釈迦堂川	37.288856	140.354722
河 25	須賀川	阿武隈川	37.299267	140.390594
河 26	岩瀬(今泉橋)	滑川	37.324653	140.270767
河 27	牧野	牧野川	37.419486	140.604186
河 28	中島	大滝根川	37.441269	140.562697
河 29	石川	社川	37.146667	140.452850
河 30	滑津	阿武隈川	37.155606	140.385269
河 31	滝ノ沢	久慈川	36.868314	140.416717
河 32	会津若松	湯川	37.483939	139.933044
河 33	喜多方	田付川	37.661494	139.877853
河 34	飯沢	奥川	37.680644	139.652894
河 35	猪苗代	長瀬川	37.555233	140.124925
河 36	天明	宇多川	37.796336	140.923492
河 37	高池	小泉川	37.806428	140.912094
河 38	塚部 前田	地藏川	37.831386	140.919053

番号	採取地点	河川名	緯度	経度
河 39	水防助常	水無川	37.642436	140.948242
河 40	水無川 北町	水無川	37.644644	140.957397
河 41	原町	新田川	37.646508	140.968064
河 42	新田川 原町	新田川	37.650506	140.959031
河 43	小島田堰	真野川	37.711856	140.955367
河 44	真野	真野川	37.716075	140.839447
河 45	砂子田	砂子田川	37.872050	140.909728
河 46	飯館村	新田川	37.694756	140.747069
河 47	前乗	真野川	37.733281	140.743500
河 48	松原	鮫川	36.917711	140.778794
河 49	小名浜	藤原川	36.951033	140.876633
河 50	中神谷	夏井川	37.060044	140.927308
河 51	太田	太田川	37.603333	140.955000
河 52	小高	小高川	37.566111	140.983611
河 53	浅見	浅見川	37.205556	140.992500
河 54	津島	請戸川	37.560000	140.753333
河 55	請戸	請戸川	37.494722	141.010556
河 56	高瀬	高瀬川	37.485278	140.998056
河 57	昼曾根	請戸川	37.539860	140.865020

表Ⅱ-2 河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌の放射能測定（第6回調査）

測定結果（土壌）

単位：Bq/kg

No.	試料採取日	地点番号	測定日	γ線スペクトロメトリー					
				^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs	^{110m}Ag	^{136}Cs	^{129m}Te
1	25. 6. 5	1 真野	25. 6.21 11:55	<20 6.3 ± 6.5	2600 ± 20	5400 ± 30	<12 4.7 ± 3.6	—	<310 240 ± 99
2	25. 6. 5	5 小島田堰	25. 6.21 11:57	<10 2.3 ± 3.2	650 ± 12	1400 ± 10	<6.1 4.7 ± 1.9	—	<210 -67 ± 58
3	25. 6. 5	8 松原	25. 6.21 13:04	<5.6 0.20 ± 1.7	140 ± 5	290 ± 7	<5.5 -1.2 ± 1.4	—	<140 -36 ± 37
4	25. 6. 5	9 小名浜	25. 6.21 13:04	<6.5 1.4 ± 2.0	140 ± 6	280 ± 8	<7.8 -0.97 ± 2.0	—	<180 -46 ± 45
5	25. 6. 4	12 月舘（県）	25. 6.21 13:07	<5.1 0.86 ± 1.6	140 ± 5	300 ± 6	<3.8 1.3 ± 1.1	—	<130 -19 ± 33
6	25. 6. 4	14 二本松	25. 6.21 13:07	<8.7 -2.3 ± 2.6	300 ± 8	610 ± 10	<7.5 -3.5 ± 1.9	—	<180 -1.7 ± 51
7	25. 6. 4	15 御代田	25. 6.21 13:08	<16 -0.51 ± 4.8	1300 ± 20	2700 ± 20	<11 -1.5 ± 2.9	—	<300 -68 ± 87
8	25. 6. 4	17 西川	25. 6.21 13:08	<8.9 0.41 ± 2.8	340 ± 9	680 ± 12	<8.2 1.1 ± 2.3	—	<210 -23 ± 59
9	25. 6. 4	29 水無川 北町	25. 6.24 10:11	<11 -3.9 ± 3.2	610 ± 12	1200 ± 10	<6.7 0.49 ± 1.8	—	<210 -60 ± 57
10	25. 6. 4	36 川俣	25. 6.24 10:10	<6.3 -0.24 ± 1.9	170 ± 6	350 ± 7	<5.1 1.7 ± 1.4	—	<140 -58 ± 35

注) 1. ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{110m}Ag 及び ^{129m}Te の分析結果は有効数字2桁で表し、計数値がその計数誤差の3倍以下のものについては上段に検出下限値を示した。

^{136}Cs の分析結果は計数値がその計数誤差の3倍を超えるものについて有効数字2桁で表し、それ以下のものについては「—」で示した。

2. 分析結果は、減衰補正していない。

表Ⅱ-3 河底土を採取した場所のすぐ近くの川岸の土壌の放射能測定（第7回調査）

測定結果（土壌）

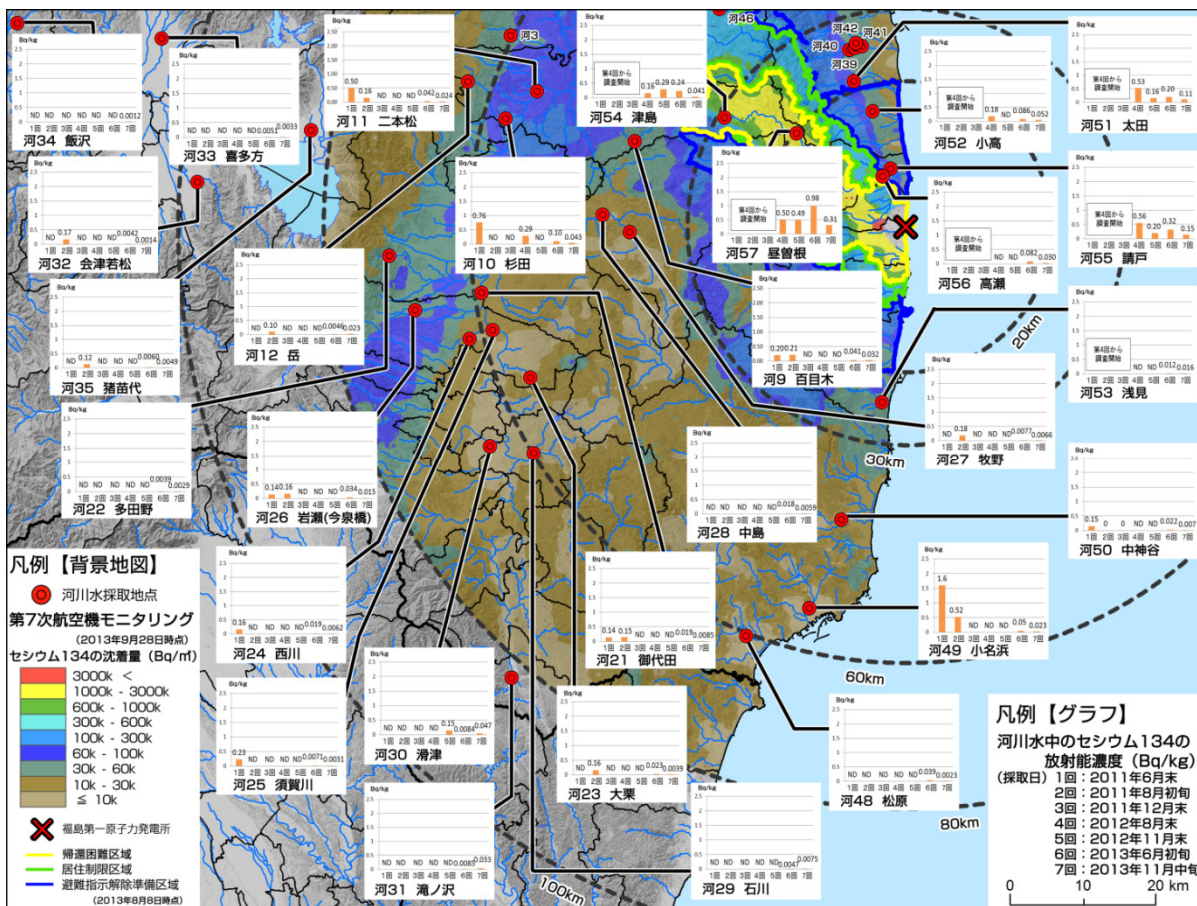
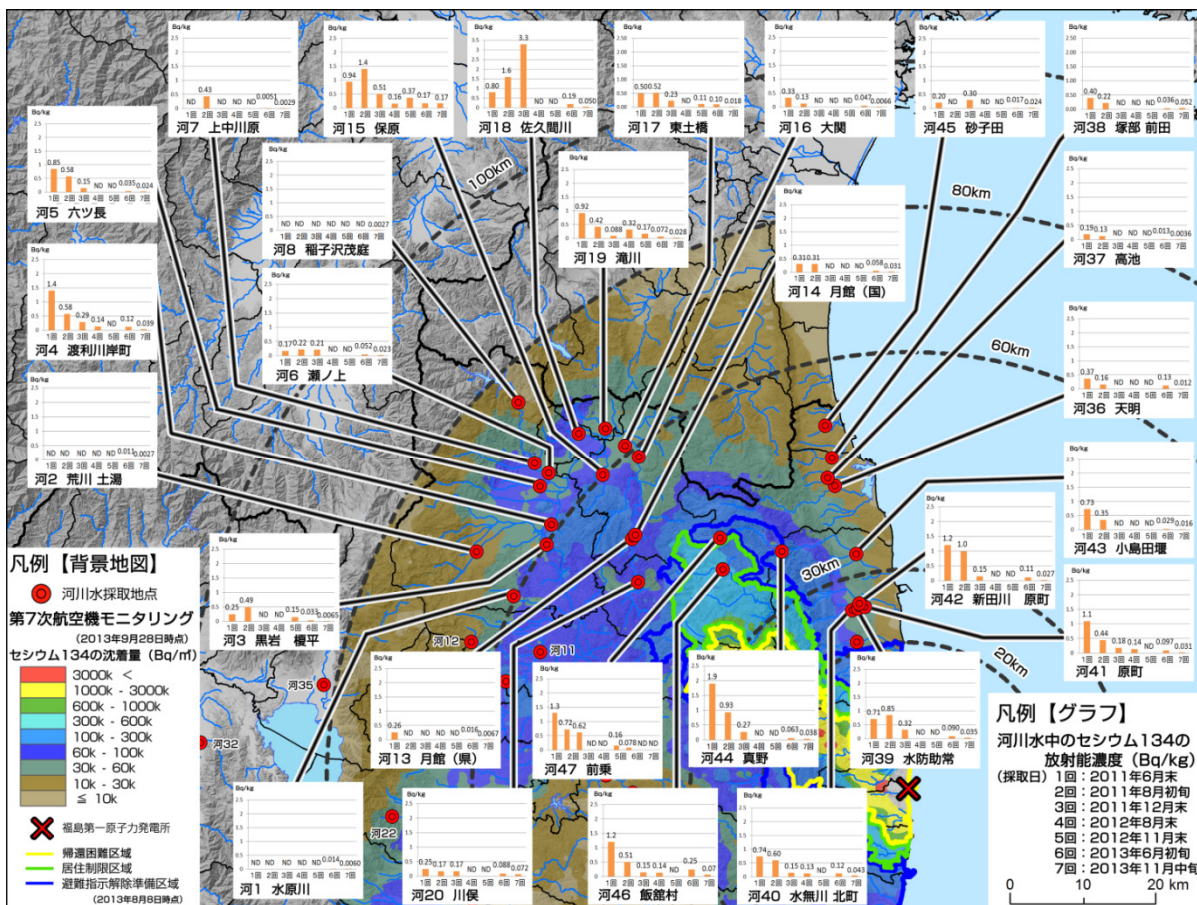
単位：Bq/kg

No.	試料採取日	地点番号	測定日	γ線スペクトロメトリー					
				^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs	^{110m}Ag	^{136}Cs	^{129m}Te
1	25.11.13	1 真野	25.12.10 10:20	<22 -1.7 ± 6.9	2000 ± 20	4900 ± 30	<12 1.3 ± 3.4	—	<330 9.9 ± 100
2	25.11.12	5 小島田堰	25.12.10 11:24	<14 -9.2 ± 4.3	880 ± 15	2100 ± 20	<7.1 3.9 ± 2.2	—	<240 -72 ± 66
3	25.11.13	8 松原	25.12.10 13:01	<6.0 -2.7 ± 1.7	120 ± 5	290 ± 7	<5.3 -0.22 ± 1.3	—	<140 21 ± 37
4	25.11.13	9 小名浜	25.12.10 14:05	<6.3 0.37 ± 1.9	120 ± 6	290 ± 8	<7.0 -1.6 ± 1.6	—	<160 -11 ± 40
5	25.11.12	12 月舘（県）	25.12.10 15:10	<7.9 -1.0 ± 2.4	230 ± 7	570 ± 10	<5.4 3.8 ± 1.7	—	<170 -69 ± 43
6	25.11.12	14 二本松	25.12.10 16:12	<26 12 ± 8.5	2700 ± 30	6200 ± 40	<16 -0.62 ± 4.4	—	<440 13 ± 130
7	25.11.12	15 御代田	25.12.10 17:16	<15 -8.9 ± 4.6	930 ± 16	2200 ± 20	<8.8 -1.9 ± 2.3	—	<250 14 ± 72
8	25.11.12	17 西川	25.12.10 18:18	<10 -2.2 ± 3.1	380 ± 10	920 ± 14	<7.0 -2.0 ± 1.7	—	<170 24 ± 45
9	25.11.12	29 水無川 北町	25.12.10 19:30	<9.0 1.9 ± 2.8	350 ± 9	890 ± 13	<6.8 -1.2 ± 1.7	—	<170 -30 ± 46
10	25.11.12	36 川俣	25.12.11 9:23	<7.0 -2.6 ± 2.1	150 ± 6	390 ± 9	<5.8 -1.0 ± 1.4	—	<160 31 ± 43

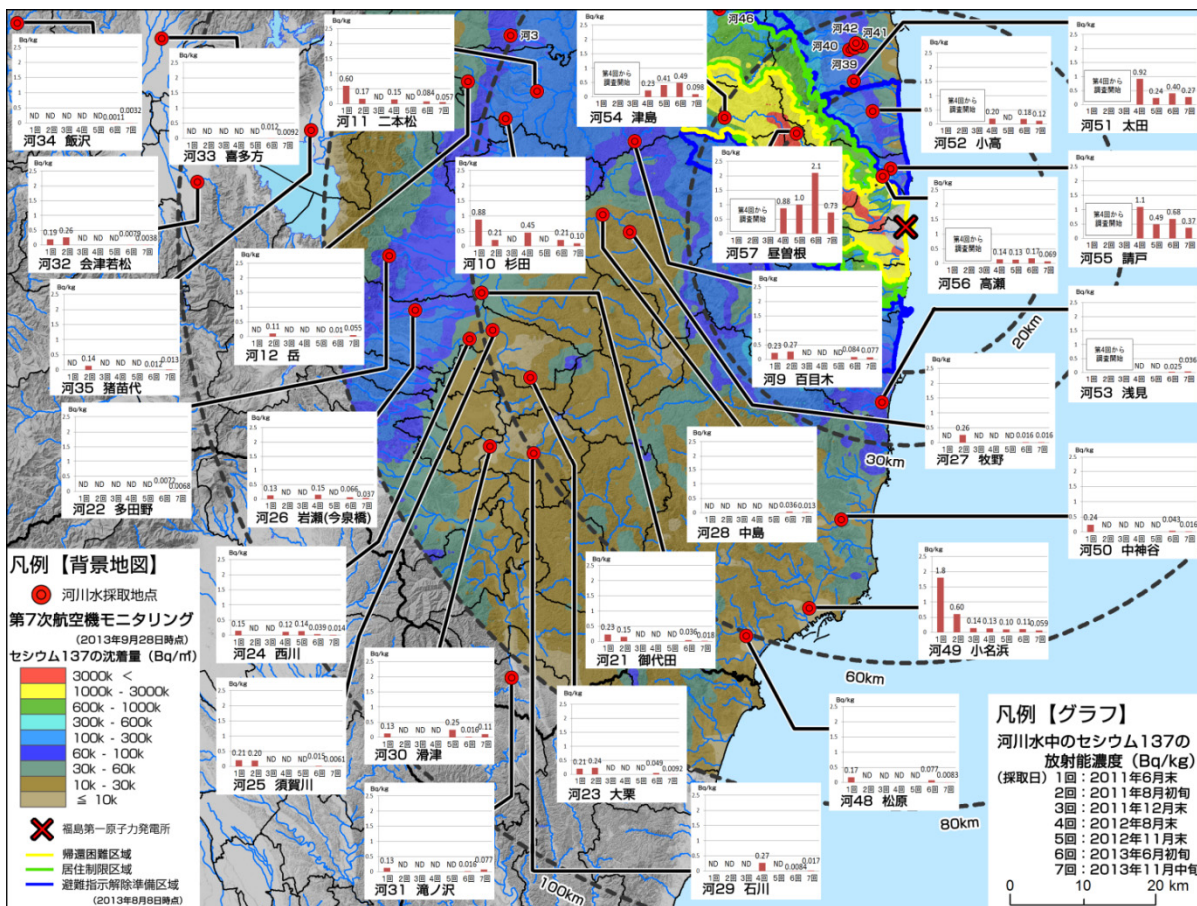
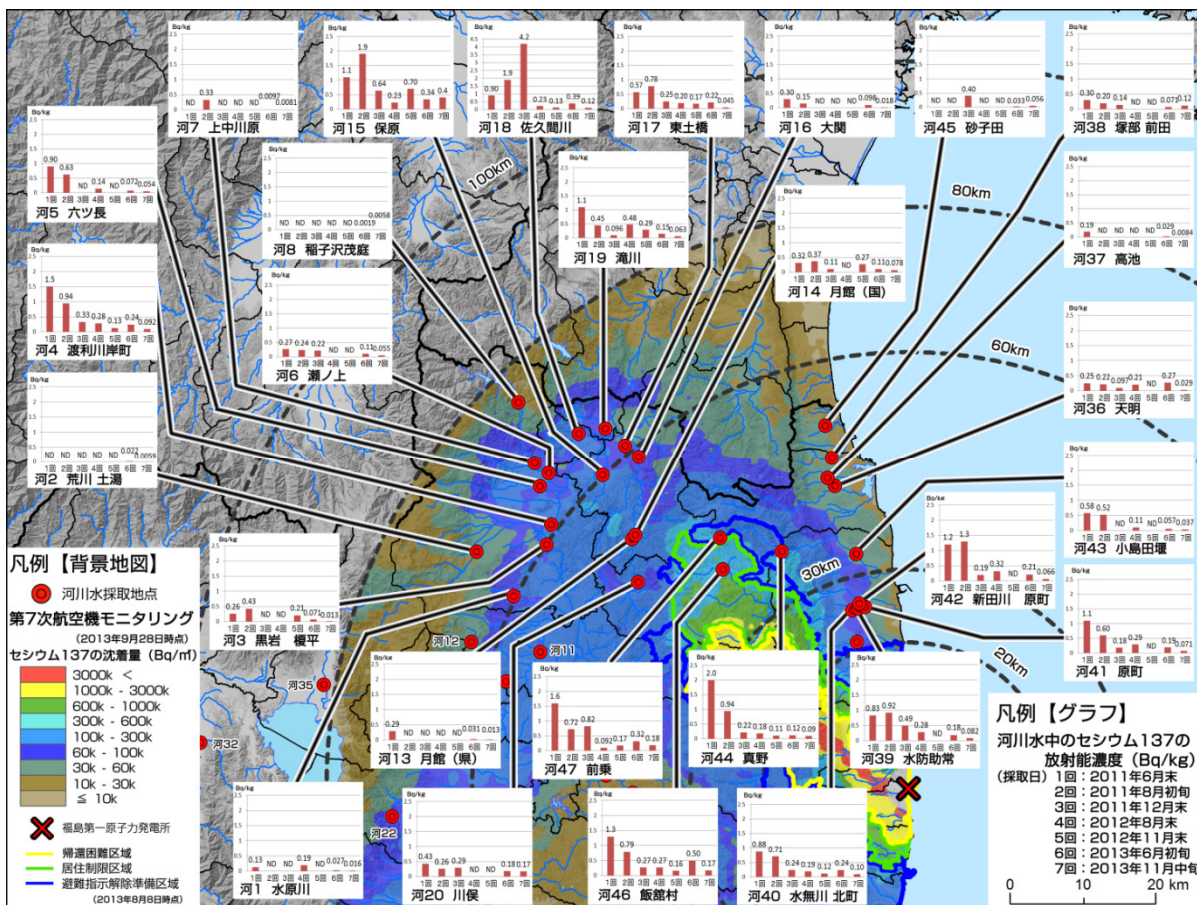
注) 1. ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{110m}Ag 及び ^{129m}Te の分析結果は有効数字2桁で表し、計数値がその計数誤差の3倍以下のものについては上段に検出下限値を示した。

^{136}Cs の分析結果は計数値がその計数誤差の3倍を超えるものについて有効数字2桁で表し、それ以下のものについては「—」で示した。

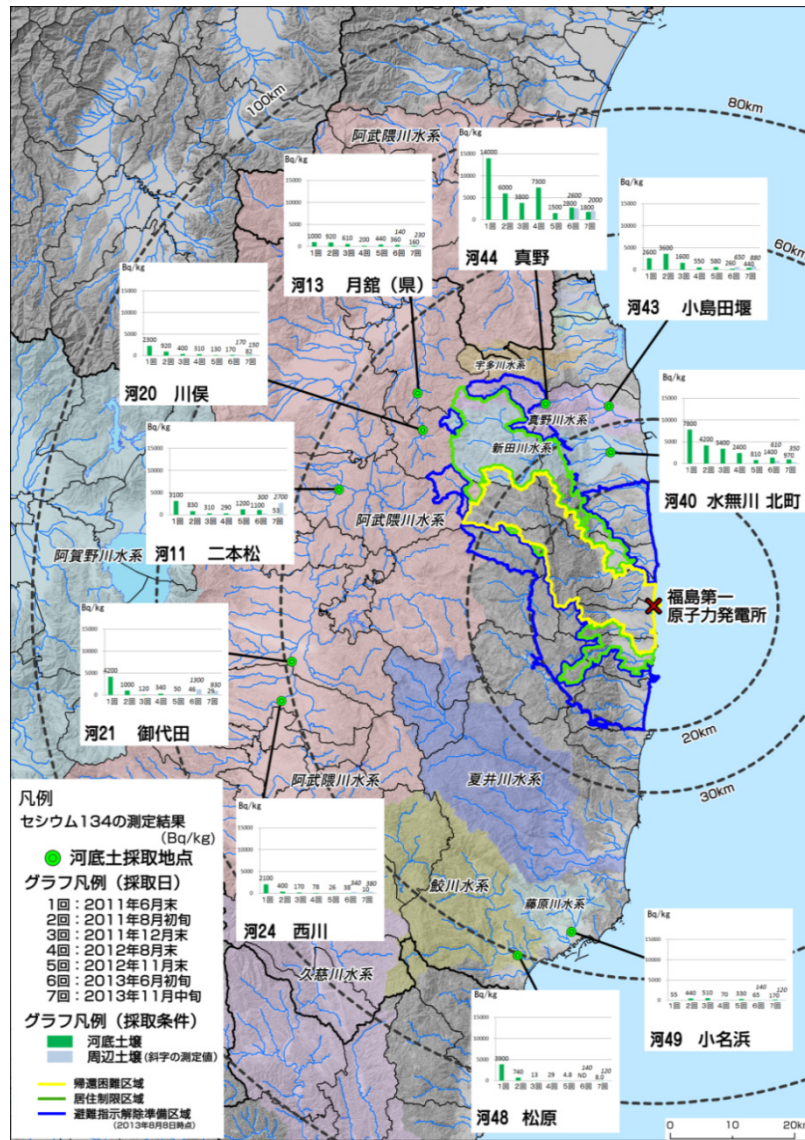
2. 分析結果は、減衰補正していない。



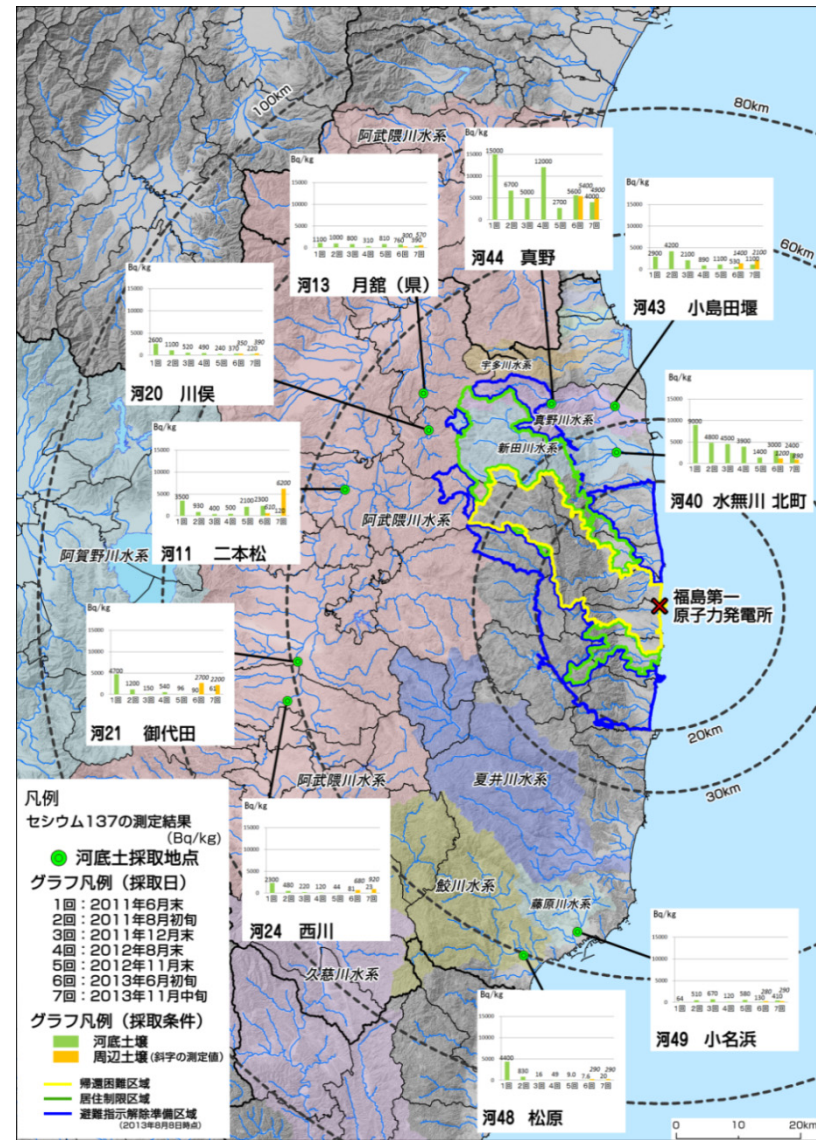
図Ⅱ-2 河川水中のセシウム134の放射能濃度 (上図が北側、下図が南側)



図Ⅱ-3 河川水中のセシウム137の放射能濃度 (上図が北側、下図が南側)



図Ⅱ-4 河底土中の放射性物質の放射能濃度 (セシウム 134)



図Ⅱ-5 河底土中の放射性物質の放射能濃度 (セシウム 137)

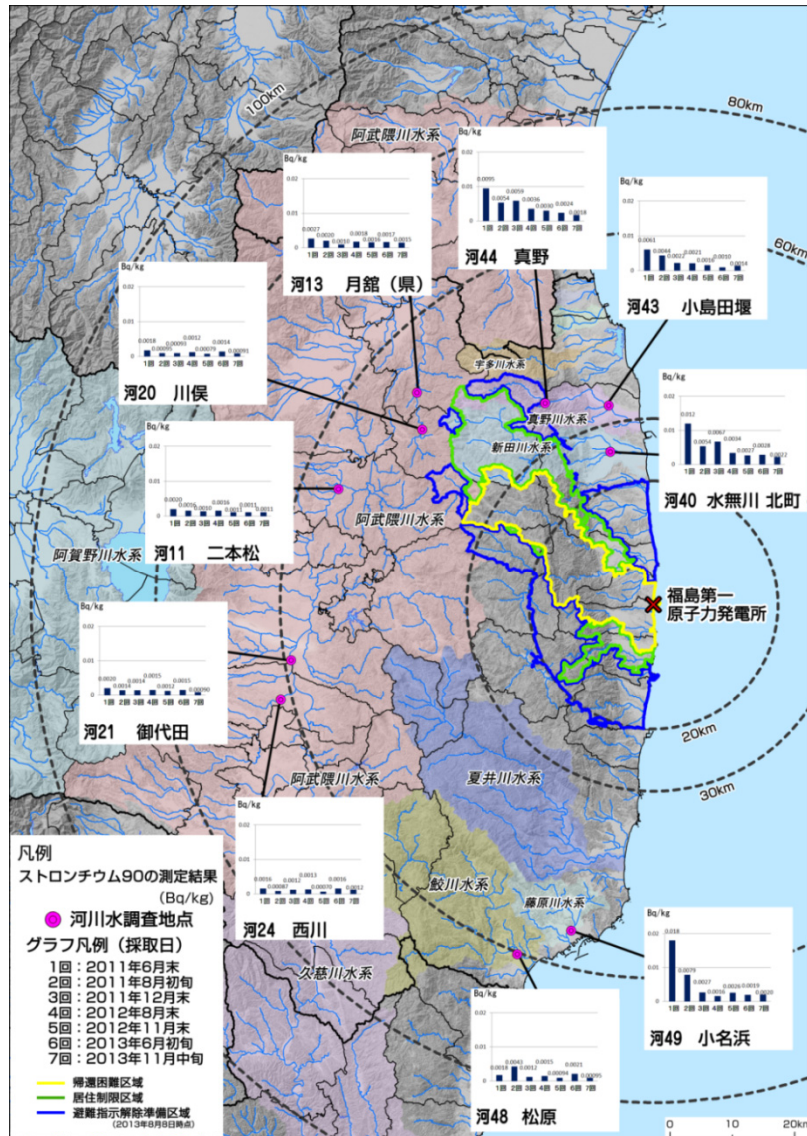


図 II-6 河川水中の放射性物質の放射能濃度 (ストロンチウム 90)

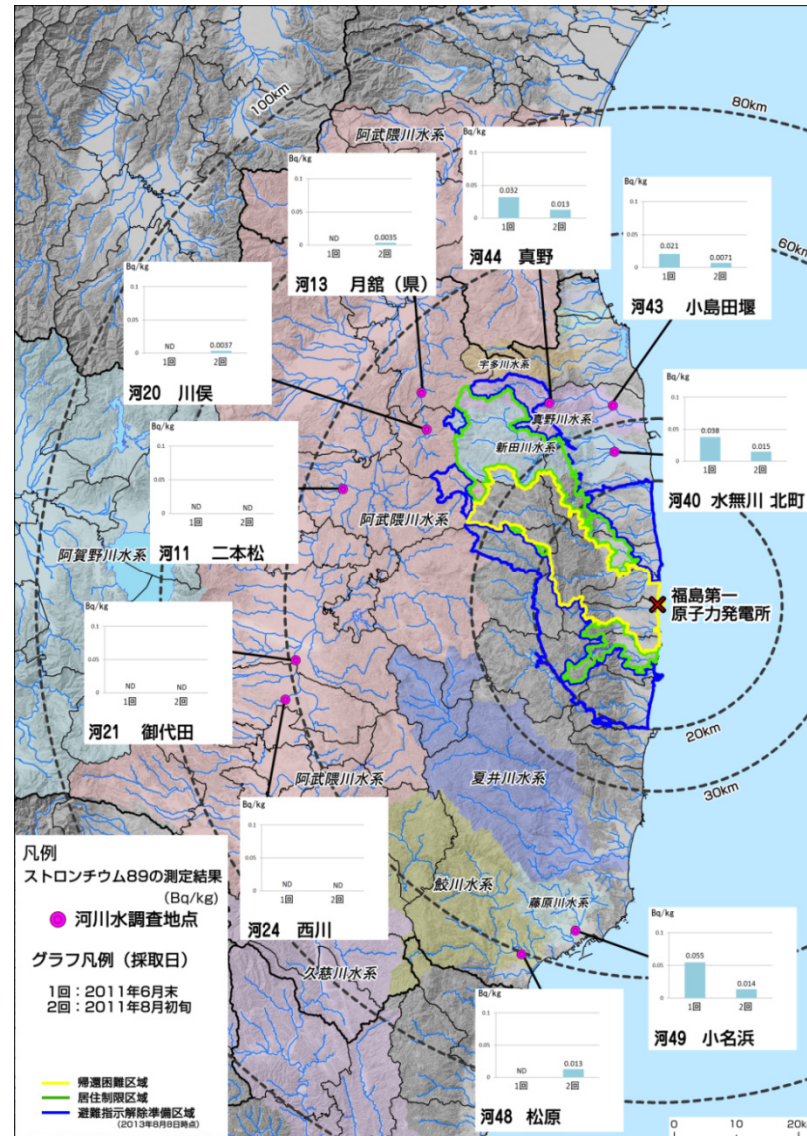


図 II-7 河川水中の放射性物質の放射能濃度 (ストロンチウム 89)

Ⅲ. 河川における土砂流出にともなう放射性セシウムの移行調査

恩田 裕一、吉村 和也、谷口 圭輔（筑波大学）

1. 調査目的

本調査では、継続した観測を通じて河川中の放射性セシウムの放射能濃度やフラックスの経時変化を定量化し、流域からの放射性セシウム流出量の将来予測に役立つ関係式を提示する。また、台風時のデータを集中的に解析し、出水イベントによる放射性セシウムの流出への寄与を示す。

2. 調査内容

調査地点は、平成 24 年度の調査までに設置された、福島・宮城両県下の 30 地点である（図Ⅲ-1 及び表Ⅲ-1）。そのうち 6 地点（No. 1~6）は平成 23 年 6-7 月より観測を開始した長期観測地点である。その後、平成 24 年 12 月-平成 25 年 1 月に、阿武隈水系及び浜通り側の河川の流域でさらに 24 の観測点が整備された。

各観測地点には、濁度計（Analite turbidity meter、MacVan 社製、3000-NTU）・水位計（一部国交省・福島県による水位データで代用）・浮遊砂サンプラーが設置されている（図Ⅲ-2）。濁度・水位データから、それぞれ浮遊砂濃度と流量を算出した。また、浮遊砂と河川水の放射性セシウム濃度測定を半月～ひと月毎に実施した。浮遊砂については、サンプラーより回収後、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能濃度を計測した。また、レーザー回折式粒度分析装置による粒度分析も実施した。河川水については、採集した 20 L の水試料を 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過し、広島大学にてろ液にリンモリブデン酸アンモニウム（AMP）による共沈濃縮処理を行ったうえで、金沢大学の極低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器により放射能濃度を測定した（Ⅳ項）。一部の観測点では、自動粒度分析装置（Sequoia 社製、LISST-StreadSide）を用いて一時間毎の粒度分布を計測した。これを用いて、平成 25 年 10 月の台風 26 号の出水時に浮遊砂の粒度分布の変化を調べた。また、浮遊砂の土砂供給源を推定するために、顕微鏡による浮遊砂試料の写真撮影と、携帯型成分分析計（Niton 社製、XL3t-950S）を用いた浮遊砂の元素分析を行った。

3. 結果及び考察

(1) 浮遊砂及び河川水の放射性セシウムの放射能濃度の経時変化

図Ⅲ-3(a)に、長期観測中の 6 地点の懸濁態セシウム 137 の濃度の経時変化を示す。事故直後の減少速度に比べ、事故後 1 年以降の放射能濃度変化はより緩やかな減少傾向へと変化したことが分かる。河川水中の溶存態セシウム 137 濃度についても、値のばらつきが大きいものの同様の傾向がみられる（図Ⅲ-3(b)）。

(2) 流域への平均放射性セシウム初期沈着量と放射性セシウム濃度との関係

平成 24 年度の調査結果と同様、流域の平均セシウム 137 初期沈着量（第 3 次航空機モニタリング）と浮遊砂中のセシウム 137 濃度の間には正の相関があり、流域の初期沈着量が多いほどセシウム 137 濃度が高くなった（図Ⅲ-4(a)）。得られた初期沈着量当たりのセシウム 137 濃度（図Ⅲ-4(a)の各近似直線の傾き）と、初期沈着量/セシウム 137 濃度間の関

係の強さを示す相関係数を表Ⅲ-2に示す。この分析では、平成24年12月に真野で採取された浮遊砂を基準に粒径補正をしたデータを用いている。

流域の初期沈着量あたりの放射性セシウム137濃度の経時変化を見ると、その減少速度が事故後約1年を境に小さくなっている(図Ⅲ-4(b))。2重指数関数を用いたフィッティングにより、 $A = 1.551 \exp(-5.265\text{yr}) + 0.069 \exp(-0.266\text{yr})$ という減少速度を表す式が得られた。この成果は、阿武隈川における放射性セシウム移行の一次元モデルへ組み込まれた。なお、この解析では、平成23年6月及び平成23年度の調査(平成24年2月以前)の粒度分布データが存在しない点を考慮し、粒径補正を行わなかった。また、同期間のセシウム137濃度は浮遊砂の湿重量に基づき算出されたため、乾燥重量に基づく平成24年度の調査以降のデータとは単純比較できない。そこで、平成25年9月25-27日に採取された全30地点の浮遊砂試料について含水率測定を実施し、81%という平均含水率を得た。この含水率が平成23年6月及び平成23年度の調査の浮遊砂試料にも当てはまると仮定して、懸濁態セシウム137濃度を補正している。

携帯型成分分析計を用いて浮遊砂の元素組成を分析した結果、火山岩の多い荒川流域・八木田地点と、深成岩の多い広瀬川・月舘地点の浮遊砂では元素組成に違いがあることが確認された(表Ⅲ-3)。このことから元素組成に基づく、各支川からの流入の影響を定量的に評価できる可能性が示唆された。

(3) 固液分配係数 K_d

懸濁態と溶存態のセシウム137濃度の間には有意な正の相関があり、30地点の河川水に関する平均的な K_d [$\text{Bq kg}^{-1}/\text{Bq L}^{-1}$]が算出できた(表Ⅲ-4)。ただし、感潮区間¹⁰に位置し他の観測点よりも K_d が明らかに低い小名浜は除外して分析した。平成24年12月から平成25年6月まで5度の測定を実施したが、 K_d はいずれも 10^5 程度の同一オーダーで推移しており、明確な経時変化は観測されなかった。

(4) 放射性セシウム137のフラックス

全30地点のうち、28地点について、平成25年11月までの月ごとの放射性セシウムフラックス(セシウム134と137の合計値)を、流量・浮遊砂濃度・浮遊砂のセシウム放射能濃度データを用いて推定した。なお、水位・濁度データには、観測器の埋没やごみの付着などによる異常値が含まれるため、流量・濁度データ編集ソフト(HEC-DSSVue(米国工兵隊製))¹¹を用いて、流量と濁度のピーク間の対応等をもとにデータの修正を行った。

長期観測6地点における月ごとの放射性セシウムフラックスは、平成23年9月をピークに平成25年春まではおおむね減少傾向にあったが、平成25年の梅雨から秋にかけては増加した。流域の沈着量に対する流出率の月ごとの変化も同じ傾向であった(図Ⅲ-5)。平成23年9月は台風15号による大規模出水、平成25年の夏は局地的な集中豪雨、9月は台風18号、10月は台風26号による出水に対応する。

平成23年7月-平成25年11月までの期間における、流域の沈着量に対する放射性セシウムの流出率は、長期観測6地点のうち、口太川(阿武隈川支流)沿いの4地点において0.3-1.2%で、下流ほど流出率が大きい。阿武隈川本川の2地点においては1.4-1.5%であった(図Ⅲ-6)(平成24年6-8月の欠測期間を含む)。

平成25年1月-11月の期間について算出された、河川ごとの放射性セシウムの流出量(表

¹⁰ 河川において、水位や流量など海の潮汐の影響を受ける区間。

¹¹ URL: <http://www.hec.usace.army.mil/software/hec-dssvue/> .

Ⅲ-5 及び図Ⅲ-7) は、概ね阿武隈川本川で高く、浜通りで低い傾向を示した。阿武隈川水系と浜通り側の河川とで流域の沈着量に対する放射性セシウムの流出率を比較したところ、浜通り側の河川の方が低い値を示した(図Ⅲ-8)。ただし、浜通りの一部観測点では1-3ヶ月の欠測期間がある。

平成25年秋に日本に接近・上陸したふたつの台風(9月の18号、10月の26号)について、放射性セシウム流出量への影響の大きさを評価するため、全放射性セシウム流出量に対するこの期間の流出量の寄与率を算出した(表Ⅲ-6)。長期観測6地点における寄与率は、台風18号では2.6-13%、台風26号では1.6-9.4%と推定された。この値は、平成23年台風15号の寄与率(17-48%)に比較して小さい。しかし、平成25年1月からの全放射性セシウム流出量への寄与率(台風18号で11.1-29.0%、26号で5.5-31.2%)からみて、平成25年のフラックスの中に占める割合は大きい。

(5) 台風26号の出水イベント時の粒度分布の応答

粒径分布は放射性セシウム濃度に影響することから、浜通りを流れる2級河川・新田川上の原町観測点で、台風26号の出水イベント中(平成25年10月15日18時-10月17日18時)の粒径分布の変化を観測した。イベントの始期には、平水時と同様のシルト以下の粒子のみからなる粒度分布が見られたが(図Ⅲ-9(a))、イベント中は、粗粒な成分(粒径30-200 μm 程度)を含む粒度分布がみられた。

図Ⅲ-9(b)に、台風イベント中における、浮遊砂フラックス(濁度から算出した浮遊砂濃度に流量を乗じたもの)と、その中に占めるシルト以下(64 μm)と12 μm 以下の粒子の比率の経時変化を示した。特徴的な現象として、浮遊砂フラックスのピークを過ぎた減水期に、12 μm 以下の粒子の比率が増える期間が数時間存在した。

表Ⅲ-1 30箇所の調査地点の情報

No.	地点名	河川名	水系	第3次航空機モニタリングによるCs-134の流域平均沈着量(Bq/m ²)	第3次航空機モニタリングによるCs-137の流域平均沈着量(Bq/m ²)
1	水境川	口太川	阿武隈川	400,000	420,000
2	口太川上流	口太川	阿武隈川	420,000	440,000
3	口太川中流	口太川	阿武隈川	320,000	340,000
4	口太川下流	口太川	阿武隈川	260,000	270,000
5	伏黒	阿武隈川	阿武隈川	110,000	120,000
6	岩沼	阿武隈川	阿武隈川	110,000	120,000
7	真野	真野川	真野川	460,000	490,000
8	小島田堰	真野川	真野川	370,000	390,000
9	松原	鮫川	鮫川	48,000	51,000
10	小名浜	藤原川	藤原川	46,000	48,000
11	月館	広瀬川	阿武隈川	260,000	270,000
12	二本松	阿武隈川	阿武隈川	91,000	95,000
13	御代田	阿武隈川	阿武隈川	77,000	81,000
14	西川	釈迦堂川	阿武隈川	150,000	160,000
15	北町	水無川	新田川	510,000	530,000
16	川俣	広瀬川	阿武隈川	220,000	230,000
17	丸森	阿武隈川	阿武隈川	120,000	130,000
18	船岡大橋	白石川	阿武隈川	44,000	46,000
19	瀬ノ上	摺上川	阿武隈川	110,000	120,000
20	八木田	荒川	阿武隈川	66,000	69,000
21	黒岩	阿武隈川	阿武隈川	110,000	120,000
22	富田橋	逢瀬川	阿武隈川	110,000	120,000
23	太田	太田川	太田川	1,600,000	1,600,000
24	小高	小高川	小高川	700,000	730,000
25	浅見橋	浅見川	浅見川	190,000	200,000
26	津島	請戸川	請戸川	880,000	930,000
27	請戸	請戸川	請戸川	2,400,000	2,500,000
28	高瀬	高瀬川	請戸川	650,000	680,000
29	原町	新田川	新田川	840,000	890,000
30	赤沼	大滝根川	阿武隈川	64,000	67,000

表Ⅲ-2 流域の初期沈着量あたりのセシウム 137 濃度の値
(平成 24 年 2 月を除き、流域の初期沈着量とセシウム 137 濃度の間にはよい正の相関がみられる)

採取日	経過 年数	流域の初期沈着量	標準誤差 [Bq kg ⁻¹ /Bq m ² ⁻¹]	相関係数 R
		あたりのセシウム 137 濃度 [Bq kg ⁻¹ /Bq m ² ⁻¹]		
平成 23 年 8 月 31 日-9 月 2 日	0.47	2.00E-01	2.59E-02	0.79
平成 23 年 9 月 26 日-27 日	0.54	1.38E-01	1.52E-02	0.90
平成 24 年 2 月 24 日-26 日	0.96	6.35E-02	1.83E-02	0.40
平成 24 年 12 月 5 日-8 日	1.74	4.61E-02	6.09E-03	0.90
平成 24 年 12 月 17 日-19 日	1.77	4.29E-02	5.99E-03	0.85
平成 25 年 1 月 9 日-11 日	1.83	3.22E-02	3.88E-03	0.85
平成 25 年 1 月 21 日-23 日	1.87	3.80E-02	4.48E-03	0.91
平成 25 年 2 月 25 日-27 日	1.96	3.72E-02	4.07E-03	0.88
平成 25 年 4 月 17 日-18 日	2.10	3.97E-02	4.59E-03	0.91
平成 25 年 5 月 20 日-21 日	2.19	3.41E-02	4.82E-03	0.86
平成 25 年 6 月 17 日-19 日	2.27	2.86E-02	6.18E-03	0.65
平成 25 年 7 月 25 日-26 日	2.37	4.87E-02	1.05E-02	0.77
平成 25 年 8 月 8 日-9 日	2.41	4.65E-02	7.50E-03	0.88
平成 25 年 8 月 22 日-23 日	2.45	3.80E-02	4.37E-03	0.93
平成 25 年 9 月 11 日-13 日	2.50	4.31E-02	7.06E-03	0.85
平成 25 年 9 月 25 日-27 日	2.54	3.31E-02	5.18E-03	0.91
平成 25 年 10 月 29 日-31 日	2.64	3.30E-02	5.65E-03	0.92
平成 25 年 11 月 19 日-21 日	2.69	4.03E-02	6.70E-03	0.92
平成 25 年 12 月 23 日-25 日	2.79	3.65E-02	4.58E-03	0.88

表Ⅲ-3 浮遊砂試料中の主要な元素の構成比（単位は%）

河川名	荒川		摺上川		広瀬川		
地点名	八木田		瀬ノ上		月館		
採取日	H25.1.9	H25.9.25	H25.9.25	H25.10.31	H25.1.11	H25.9.27	H25.10.31
元素名							
Si	5.319±0.036	5.958±0.036	8.275±0.044	8.413±0.045	6.647±0.042	5.619±0.035	5.886±0.037
Ti	0.101±0.007	0.328±0.009	0.215±0.007	0.22±0.007	0.6±0.014	0.533±0.012	0.47±0.011
Al	2.53±0.028	0.975±0.015	0.583±0.012	0.605±0.012	1.116±0.02	0.848±0.015	0.851±0.016
Fe	4.462±0.026	5.025±0.028	2.74±0.019	2.839±0.019	6.961±0.037	5.523±0.03	5.22±0.029
Mn	0.061±0.005	0.162±0.006	0.123±0.006	0.128±0.006	0.206±0.007	0.188±0.007	0.123±0.006
Mg	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出
Ca	0.431±0.027	1.129±0.041	1.18±0.037	1.18±0.037	1.799±0.061	1.852±0.053	1.953±0.052
K	0.295±0.02	0.94±0.028	1.519±0.03	1.591±0.031	1.588±0.042	1.366±0.034	1.461±0.034
P	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出
Cr	0.018±0.004	0.012±0.003	0.009±0.003	0.008±0.003	0.02±0.005	0.014±0.004	0.014±0.003
S	1.079±0.01	0.185±0.004	不検出	不検出	0.116±0.005	0.025±0.003	不検出

河川名	阿武隈川					
地点名	丸森			岩沼		
採取日	H25.1.9	H25.9.25	H25.11.19	H25.1.9	H25.9.25	H25.10.31
元素名						
Si	9.431±0.052	6.886±0.04	7.466±0.043	10.318±0.059	7.034±0.041	8.773±0.051
Ti	0.472±0.011	0.44±0.01	0.574±0.011	0.515±0.014	0.511±0.011	0.553±0.013
Al	0.909±0.018	0.895±0.015	0.862±0.016	1.134±0.022	0.971±0.017	1.147±0.02
Fe	5.359±0.03	4.65±0.026	4.535±0.026	6.747±0.037	5.44±0.029	6.233±0.034
Mn	0.17±0.007	0.137±0.006	0.127±0.006	0.4±0.01	0.168±0.006	0.206±0.007
Mg	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出
Ca	2.13±0.058	1.388±0.045	1.81±0.048	2.096±0.066	1.342±0.046	1.762±0.057
K	1.499±0.037	1.408±0.033	1.57±0.034	1.512±0.042	1.349±0.034	1.557±0.04
P	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出
Cr	0.017±0.004	0.012±0.003	0.009±0.003	0.024±0.005	0.018±0.004	0.022±0.004
S	0.143±0.005	0.007±0.003	不検出	0.13±0.005	0.024±0.003	0.044±0.004

表Ⅲ-4 固液分配係数 K_d と相関係数の推移

日付	K_d [Bq kg ⁻¹ /Bq L ⁻¹]	R	P 値
平成 24 年 12 月 17-19 日	1.9×10^5	0.81	< 0.001
平成 25 年 1 月 9-11 日	2.6×10^5	0.81	< 0.001
平成 25 年 2 月 26-27 日	1.9×10^5	0.51	< 0.01
平成 25 年 4 月 17-18 日	1.6×10^5	0.45	< 0.1
平成 25 年 5 月 20-21 日	1.2×10^5	0.33	< 0.1
平成 25 年 6 月 17-18 日	1.1×10^5	0.40	< 0.1

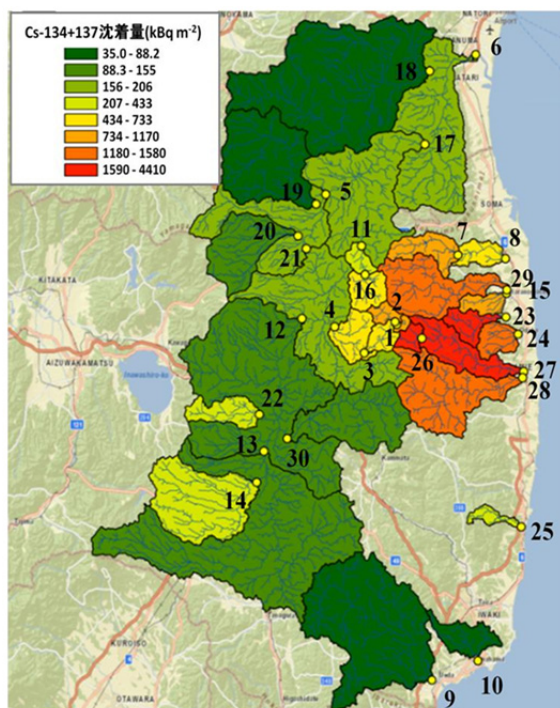
表Ⅲ-5 30の観測地点における放射性セシウムフラックス
(地点 No. は図Ⅲ-1 に対応する)

地点 No.	地点名	水系名	河川名	流域 面積 km ²	観測 日数 日	H25.01.01 から	観測日数と流域面積で規格
						の放射性セシウム流 出量 Bq	化した放射性 セシウムフラックス Bq/(day km ²)
6	岩沼			5172	322	2.84E+12	1.70E+06
17	丸森	阿	阿	3993	322	5.19E+12	4.03E+06
5	伏黒	武	武	3513	323	2.79E+12	2.46E+06
21	黒岩	隈	隈	2790	322	2.61E+12	2.91E+06
12	二本松	川	川	2249	- *	- *	- *
13	御代田			1144	323	4.01E+11	1.09E+06
18	船岡大橋		白石川	777	- *	- *	- *
11	月舘		広瀬川	83.7	324	2.46E+10	9.05E+05
16	川俣	阿	広瀬川	56.8	324	2.52E+10	1.37E+06
19	瀬ノ上		摺上川	315	322	4.36E+10	4.30E+05
20	八木田	武	荒川	173	322	4.26E+10	7.63E+05
4	口太川下流		口太川	135	323	1.91E+11	4.38E+06
3	口太川中流	隈	口太川	63	322	8.51E+10	4.20E+06
2	口太川上流		口太川	21.5	304	2.43E+10	3.72E+06
1	水境川	川	口太川	7.6	324	1.25E+10	5.07E+06
22	富田		逢瀬川	73.3	323	3.27E+11	1.38E+07
14	西川(県)		釈迦堂川	289	323	6.76E+10	7.24E+05
30	赤沼		大滝根川	243	323	4.93E+09	6.28E+04
7	真野	真野川	真野川	75.3	323	1.47E+10	6.06E+05
8	小嶋田堰	真野川	真野川	120	280	1.07E+09	3.19E+04
29	原町	新田川	新田川	199	234	2.26E+11	4.85E+06
15	北町	新田川	水無川	36.2	246	3.26E+10	3.66E+06
23	太田	太田川	太田川	49.1	323	1.23E+09	7.76E+04
24	小高	小高川	小高川	50.7	323	7.87E+09	4.80E+05
26	津島	請戸川	請戸川	24.6	170	9.24E+09	2.21E+06
27	請戸	請戸川	請戸川	147	271	1.03E+12	2.58E+07
28	高瀬	請戸川	高瀬川	256	225	3.02E+10	5.26E+05
25	浅見	浅見川	浅見川	24	322	5.08E+08	6.57E+04
10	小名浜	藤原川	藤原川	72.9	304	2.79E+09	1.26E+05
9	松原	鮫川	鮫川	573	304	1.36E+10	7.78E+04

- *台風の影響で浮遊砂濃度データに不具合がありフラックス計算ができなかった地点

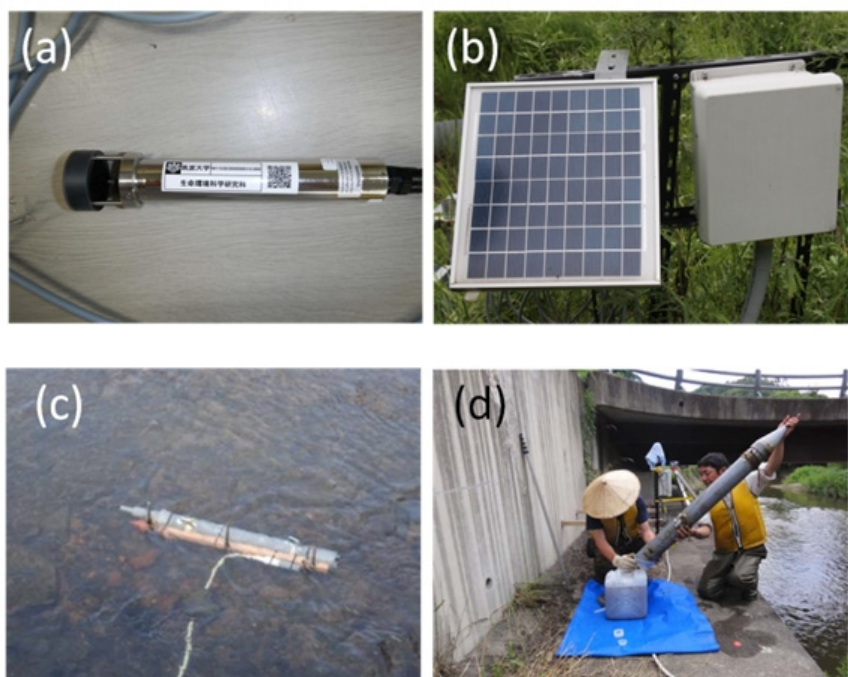
表Ⅲ-6 平成 25 年に福島に豪雨をもたらした 2 つの台風による
放射性セシウム流出量とその寄与率

観測地点	台風 18 号 (平成 25 年 9 月)			台風 26 号 (平成 25 年 10 月)		
	台風による 流出量 (MBq)	平成 23 年 7 月以降の 流出量へ の寄与率 (%)	平成 25 年 1 月以降 の流出量 への寄与 率 (%)	台風による 流出量 (MBq)	平成 23 年 7 月以降 の流出量 への寄与 率 (%)	平成 25 年 1 月以降 の流出量 への寄与 率 (%)
水境	3,600	13.0	29.0	2,200	7.8	17.3
口太川上流	4,200	4.6	15.2	3,400	3.8	12.4
口太川中流	9,700	3.4	11.3	27,000	9.4	31.2
口太川下流	25,000	3.4	12.7	16,000	2.2	8.1
伏黒 (阿武隈川)	520,000	5.3	18.2	160,000	1.6	5.5
岩沼 (阿武隈川)	330,000	2.6	11.1	220,000	1.8	7.4



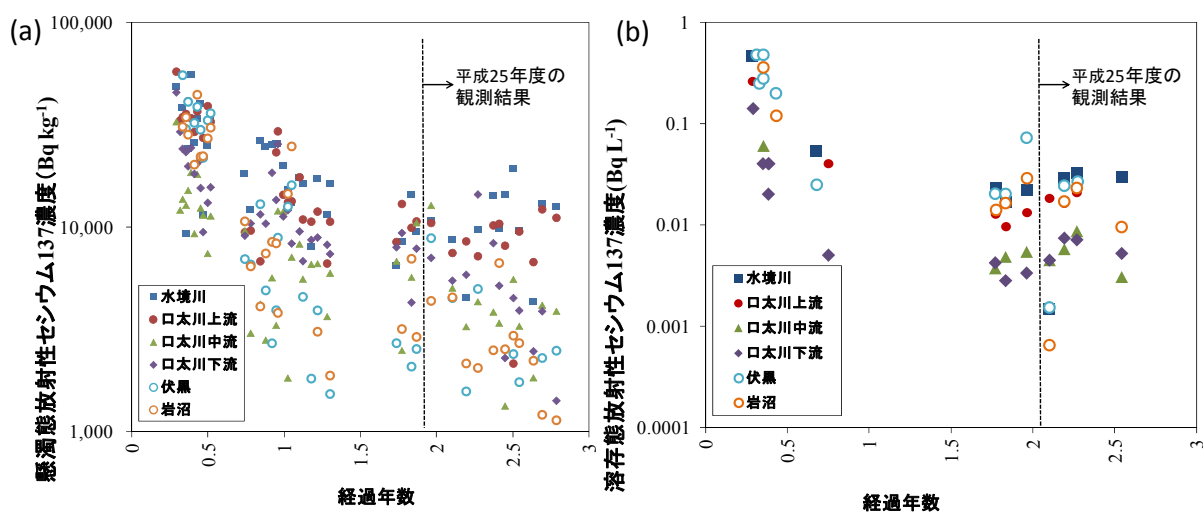
No.	地点名	No.	地点名	No.	地点名
1	水境川	11	月舘	21	黒岩
2	口太川上流	12	二本松	22	富田橋
3	口太川中流	13	御代田	23	太田
4	口太川下流	14	西川	24	小高
5	伏黒	15	北町	25	浅見橋
6	岩沼	16	川俣	26	津島
7	真野	17	丸森	27	請戸
8	小島田堰	18	船岡大橋	28	高瀬
9	松原	19	瀬ノ上	29	原町
10	小名浜	20	八木田	30	赤沼

図Ⅲ-1 福島・宮城県内に設置された 30 箇所の観測地点位置と第 3 次航空機
モニタリングから算出された流域の平均放射性セシウム初期沈着量
(図中の番号は右表の地点番号に対応)

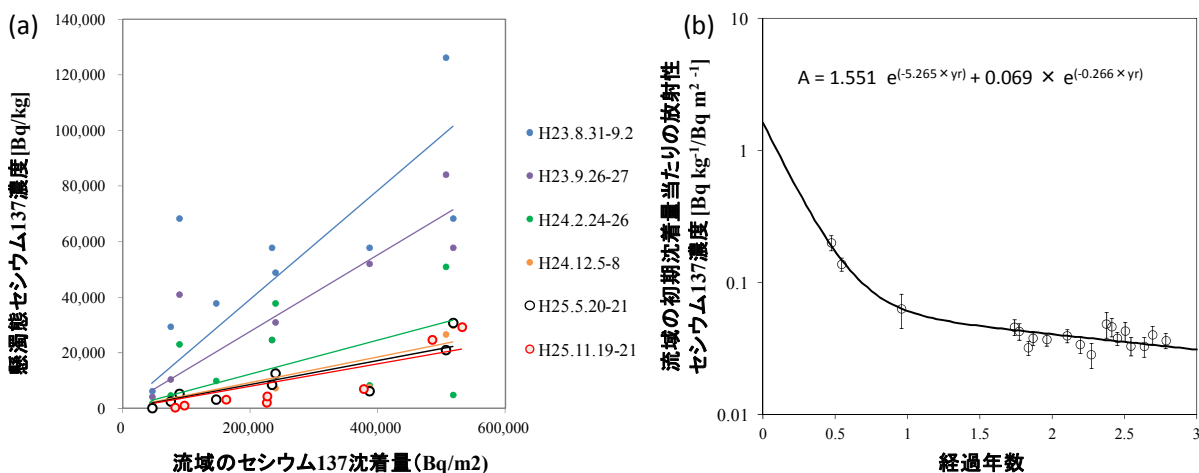


図Ⅲ-2 観測機器と浮遊砂の採取

(a) 濁度計センサー。(b) ソーラーパネルとロガーボックス。(c) 浮遊砂サンプラーと濁度計の設置状況。流向は左奥から右手前方向。(d) 浮遊砂試料の回収作業。サンプラーの一端を開き、内部に溜まった水とともに浮遊砂試料を回収する。)

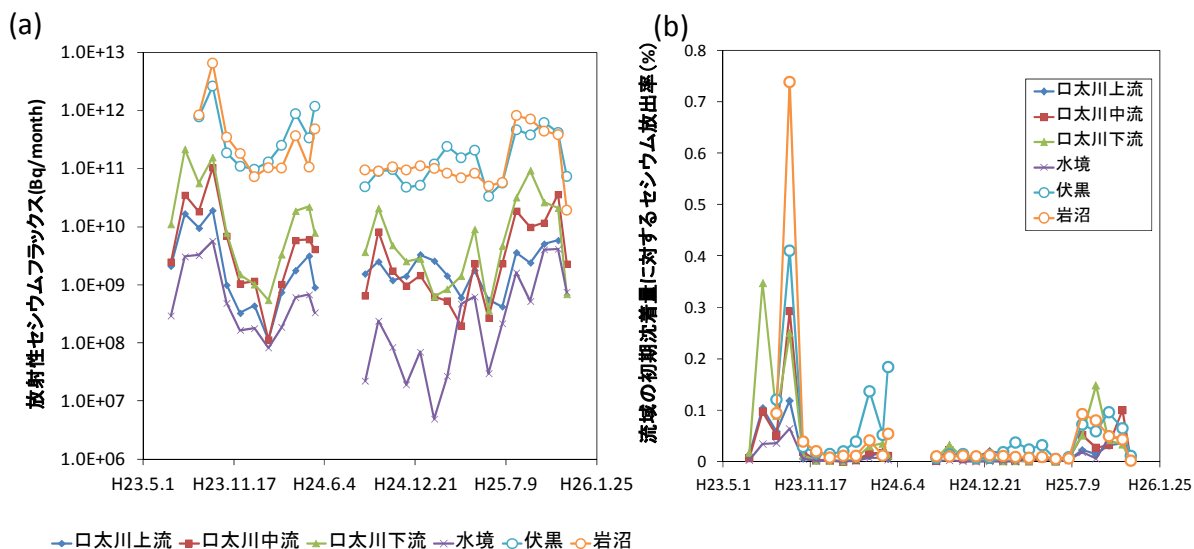


図Ⅲ-3 長期観測 6 地点における、放射性セシウム 137 の放射能濃度の経時変化
(a) 懸濁態、(b) 溶存態)



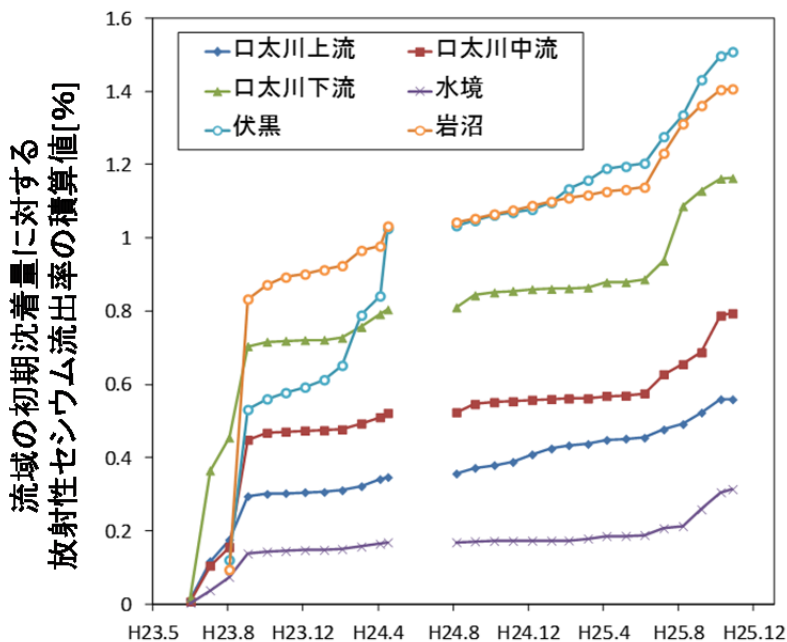
図Ⅲ-4 流域の初期沈着量当たりの懸濁態放射性セシウム 137 濃度

(a) 流域の放射性セシウムの初期沈着量と懸濁態セシウム 137 濃度の関係(一部データを抜粋して示す)、(b) 流域の初期沈着量当たりの放射性セシウム濃度の時間変化とその近似曲線。誤差棒は標準誤差の値による。)



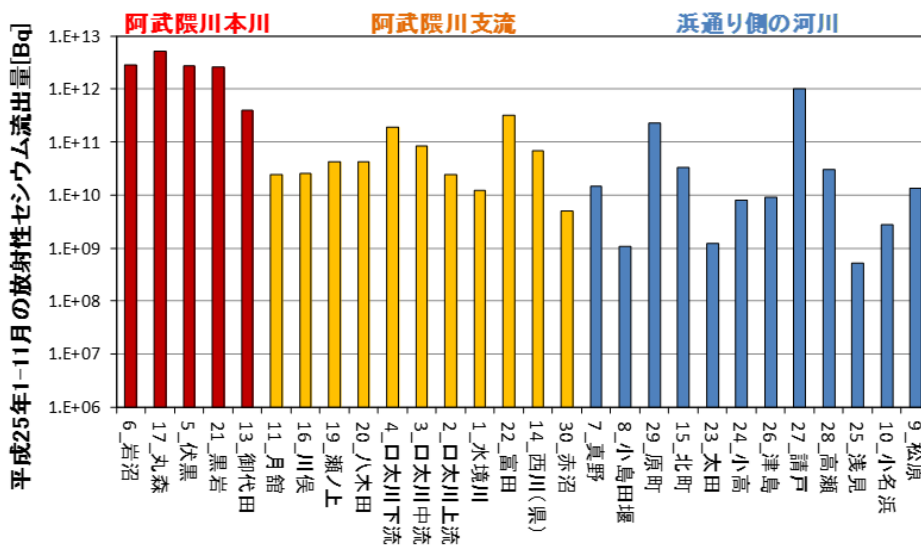
図Ⅲ-5 長期観測 6 地点の (a) 放射性セシウムのフラックスの経時変化と (b) 流域の初期沈着量に対するセシウム流出率

(平成 23 年 9 月のピークは台風 15 号の影響とみられる。平成 25 年夏から秋にかけてのフラックスの上昇は、集中豪雨や台風の襲来などで降水量が多くなったことによるものである。)

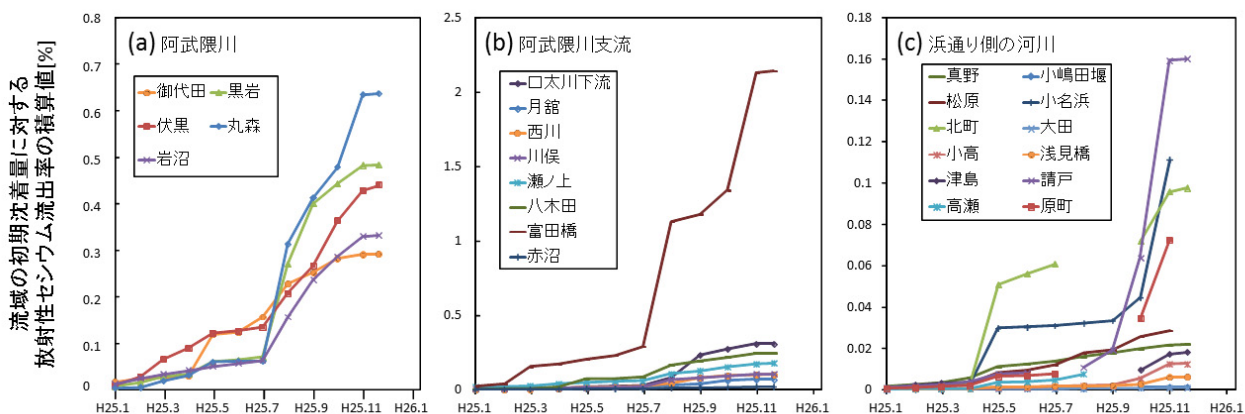


図Ⅲ-6 流域の初期沈着量に対する放射性セシウムの流出率

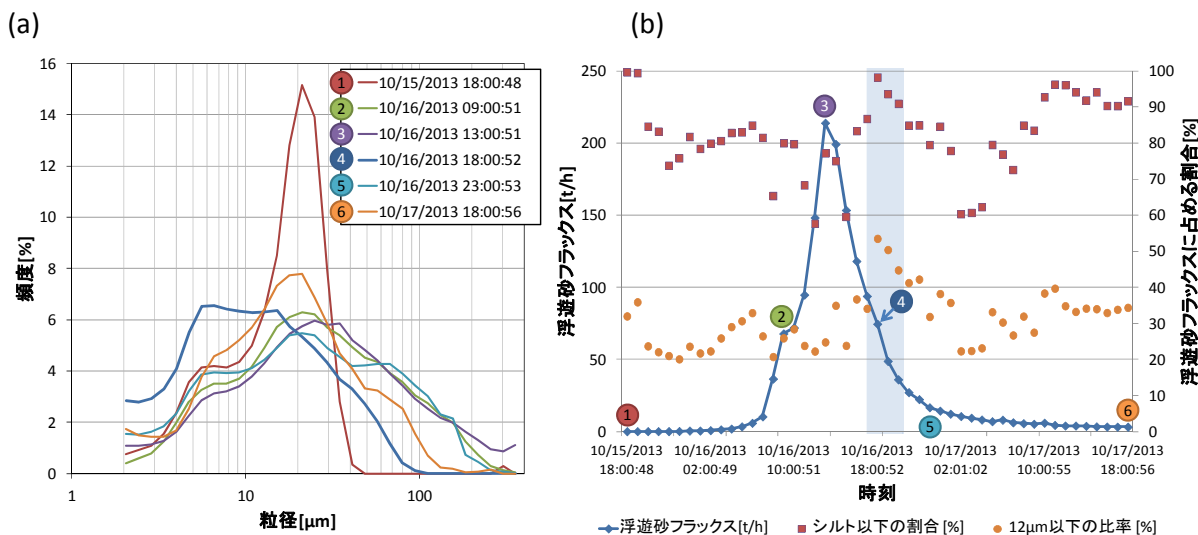
（長期観測 6 地点における流域の初期沈着量に対する放射性セシウムの流出率の積算値。白抜きで示した 2 地点は阿武隈川本川上の観測点。平成 24 年 5 月に伏黒地点のみ高い流出率を示すが、これは 5 月 3-5 日にかけての豪雨の影響である。平成 25 年の夏から秋にかけての流出率の増加は、夏の集中豪雨及び 2 つの台風襲来が影響している。）



図Ⅲ-7 河川ごとに算出された浮遊砂中（懸濁態）の放射性セシウムの流出量



図Ⅲ-8 平成 25 年 1 月以降の流域の初期沈着量に対する放射性セシウム流出率の積算値
 ((a) 阿武隈川本川、(b) 阿武隈川支流、(c) 浜通り側の河川)



図Ⅲ-9 台風イベント中の浮遊砂フラックスと粒子の比率

((a) 原町観測点における台風 26 号の出水時の粒度分布の経時変化。10 月 16 日 13 時が流量のピークにあたる。(b) 台風 26 号の出水時の浮遊砂フラックスと、各時刻におけるシルトサイズ(64 μm)以下の成分と 12 μm 以下の成分の比率の経時変化。網掛け部分は、出水イベント中にも関わらず細粒成分の比率が増加している期間。)

IV. 水試料の高精度放射性核種測定

山本 政儀、横山 明彦（金沢大学）
高橋 嘉夫、坂口 綾（広島大学）

1. 調査目的

放射性物質の移行モデルにおいて、水試料中の溶存態及び懸濁態の放射性物質濃度（本調査では主にセシウム 137 濃度）を評価し、固液分配係数の時間変化を評価することが不可欠である。しかしながら、河川水などに含まれる溶存態セシウム 137 濃度は時間とともに減少傾向を示し、原発事故から 2 年以上が経過した現在では通常のゲルマニウムガンマ線検出器ではセシウム 137 濃度の定量が困難な場合が多い。

本項では、筑波大学が福島県伊達郡川俣町山木屋地区で採取した渓流水、湧水及び地下水中、さらに阿武隈川本川及び支川で採取した河川水ろ液について、リンモリブデン酸アンモニウム（AMP）を用いたセシウム濃縮法と低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器を用いた、セシウム 134 及びセシウム 137 の精密測定結果について報告する。

2. 調査内容

平成 25 年度は、筑波大学から送られた試料について、広島大学がセシウム濃縮処理をした後、金沢大学で主にセシウム 134 及びセシウム 137 のガンマ線スペクトロメトリーを実施した。

現在、放射性セシウムの濃度は非常に低くなっており、非破壊での直接測定は非常に困難な状況にある。それ故、20 L 程度の水試料（渓流水・湧水・地下水・河川水ろ液）を用い、AMP への吸着によりセシウムを濃集した。

AMP を用いてセシウムを濃縮する分析法を以下及びスキーム（図IV-1）に示す。

- ① 試料水に化学収率測定用として、一定量の安定セシウム 133 を加え、濃硝酸で pH 1 前後に調整後、しばらく攪拌する。
- ② 市販の AMP (4.0 g) を試料水に入れ約 1 時間攪拌後、約 12 時間静置する。
- ③ 市販の AMP 及びキャリアーとして用いる塩化セシウム試薬が放射性セシウムで汚染されている可能性があるため、使用の際には前もって汚染の有無を確認しておく。
- ④ サイホンで上澄み液を除き、残りの試料を 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過する。
- ⑤ 回収した AMP をフィルターごと、12 時間 90°C で乾燥する。
- ⑥ 秤量後、一部は回収率測定用に採取（約 100 mg）し、残りを測定容器に入れてゲルマニウム半導体検出器で放射性セシウム測定を行う。
- ⑦ 分取した AMP を 1.25% 水酸化テトラメチルアンモニウム溶液に溶解し、希釈後 ICP-MS で安定セシウム 133 を定量する。内部標準には Re（レニウム）を用いる。

なお、セシウム 134 測定に関しては、定量に用いる 604 keV のガンマ線に対するカスケード補正が必須であるが、ここでは、セシウム 134 を含む放射能標準試料を用いて比較測定を行った。測定時間は通常 8 時間、検出困難な場合には 1-2 日間測定を実施した。

測定には、以下の2施設のゲルマニウム半導体検出器を使用した。特に放射性セシウムの濃度が低い試料については、バックグラウンドの低い低レベル放射能実験施設で重点的に測定した。

- 測定施設

1. 金沢大学・低レベル放射能実験施設

- ① Canberra GC4019, 相対効率 40%, 直径 66.5 mm×高さ 45.5 mm
- ② Princeton Gamma Tech, 相対効率 40%

2. 金沢大学・理工研究域

- ① ORTEC GEM-70215, 相対効率 70%, 直径 76.6 mm×高さ 67.8 mm
- ② ORTEC GEM-100220-P, 相対効率 100%, 直径 76.5 mm×高さ 108.7 mm

- 放射能標準試料（効率決定用）

- ① 金沢大学・低レベル放射能実験施設での測定：
日本分析化学会が調整した標準土壌試料（JSAC 0471）を AMP 試料と同じ型の容器に詰め、高さを合わせて測定。（セシウム 137 に関しては、それ以外に New Brunswick Laboratory (NBL) 標準物質 No. 42-1 (4.04% uranium)、特級 KCl、セシウム 137 を含む JAIA (Japan Radioisotope Association) 標準物質で相互比較を実施した)。
- ② 金沢大学・理工研究域での測定
IAEA-444 を AMP 試料と同じ型の容器に詰め、高さを合わせて測定。（なお、セシウム 134 測定に関しては、定量に用いる 604 keV のガンマ線に対するカスケード補正が必須であるが、ここでは、セシウム 134 を含む放射能標準試料を用いて比較測定を行った。測定時間は通常 8 時間、検出困難場合には 1-2 日間測定を実施した。）

3. 結果と考察

94 試料の測定を行った。十数個の試料で検出限界以下であった。セシウム 134 を測定する場合、レベルが高い場合 (> 数 mBq/L) には問題が無いが、低くなる (数 mBq/L ~ 10^{-1} mBq/L) と定量に用いるセシウム 134 の 604 keV のすぐ高エネルギー側にバックグラウンド (BG) としての天然ウラン系列のビスマス 214 のピーク (609 keV) が妨害となってくる。本測定では、遮蔽を十分にすることにより、バックグラウンドを低減させた条件下で定量分析を実施した。放射性セシウムのレベルが高い場合と低い場合のガンマ線スペクトル例を図 IV-2 に示す。

V. 浮遊有機物及び藻類試料中のガンマ線放出核種の測定、分析

難波 謙二（福島大学）

1. 調査目的

阿武隈川の微細藻類は早春と夏期に水中のバイオマスが上昇すること、及び冬期と夏期とでは優占する藻類のグループが異なることが分かっている¹²。微細藻類によって生産される河川内起源の有機物は粒子も懸濁有機物に寄与しており、微細藻類バイオマス変化が有機態の放射性セシウムの濃度変化に影響を与えている可能性がある。また、微細藻類の増殖や活性により水中の無機栄養濃度や pH が変化する。このような藻類による水質変化が放射性セシウムの形態に影響している可能性がある。本調査では藻類とその影響による水質に着目し、放射性セシウムの測定を毎週継続した。

2. 調査内容

本調査では平成 25 年 4 月より毎週福島市黒岩で観測を行った（1 項の図 I-1 参照）。連続遠心の時間はいずれの日も午前 10 時から開始、概ね午後 4 時までとした。水質分析用の採水は午前 10 時から 11 時の間に行った。河川水位の値は黒岩で行われている国土交通省による毎時の水位観測値を利用した。

(1) 河川水中放射性セシウムの形態別分析

- ① 河川水約 4 トンから連続遠心（MAB103B-24, Alfa Laval）により河川水懸濁物を採集した。
- ② 連続遠心で発生する上澄み 40 L に 40 g のゼオライト（SC-ZP01, 東京シンコール）を添加し、よく攪拌した後、PAC（ポリ塩化アルミニウム）を加え凝集沈殿したゼオライトを回収した。また、これとは別に同じ遠心の上澄みを産総研が開発したプルシアンブルーカートリッジ（PB）フィルターに通し、溶存態のセシウムを捕捉し、これをゲルマニウム半導体検出器で測定した。
- ③ 河川水懸濁物、ゼオライトとも 50°C で乾燥した後、ゲルマニウム半導体検出器で放射性セシウムを定量した。
- ④ 河川水懸濁物のうち 2 g を計り取り、過酸化水素、及び加熱硝酸-酢酸アンモニウムで有機物分解を行い、得られた上澄み中の放射性セシウムをゲルマニウム半導体検出器で定量した。
- ⑤ 河川水懸濁物について、レーザー回折式粒子径分布測定装置（SALD-3000, 島津）で粒度分布を測定し、密度 2,650 kg/m³ を仮定して比表面積を求めた。

(2) 水質の分析

- ① 水温、pH は現場でポータブル水質計を用いて測定した。採水試料は、実験室で 800 nm の側方散乱による濁度（NTU）を蛍光光度計（Trilogy, Turner Design）で測定した。

¹² 難波謙二・岸波晃代, 2011, 藻類と水質, in “阿武隈川流域の環境学”, 柴崎直明・塘忠顕ほか編, pp105-120.

- ② 持ち帰った河川水を直ちに GF/F フィルターで濾過し、DMF (ジメチルホルムアミド) 抽出でクロロフィル濃度を求めた。
- ③ 持ち帰った河川水を直ちに 0.2 μm メンブレンフィルターで濾過し、ろ液についてアンモニア態窒素を定量した。

3. 結果と考察

水質等と放射能測定結果とについて、項目毎に昨年度の値との比較を行うために、平成 23 年 6 月～平成 24 年度の調査で行われてきた観測、及び、独自に行なった観測も含め平成 24 年 3 月から平成 25 年 2 月までを H24 として、平成 25 年 3 月以降を H25 として一緒にプロットした (図 V-1)。放射能測定結果は、寿命が比較的長いセシウム 137 のみを試料採集日の値で表すこととした。

平成 25 年 3 月から 8 月までの間では、7 月初めから 8 月上旬、及び 9 月中旬にかけて水位が高い状態が続き、平成 24 年の同月と比較してきわめて高い水位が続いていた (図 V-1 a)。この間の 4 回の観測と試料採集が、2 m を超える水位のときに行われた。これらのうちで、7 月の 4 回目及び 8 月の観測ではきわめて高い濁度であり、水温は例年よりも低めであった。

濁度及び水中の細胞粒子によるクロロフィル蛍光の測定において、連続遠心によって河川水 (原水) から分離した上澄み液の測定値を、原水を測定して得られた値で除すと、遠心分離で回収できなかった残りの濁度成分及びクロロフィルの割合が得られる。1 からこの値を引いた値が回収率である。クロロフィルの回収率は一年を通じて概ね 70% を超えている。濁度成分の回収率は、平成 24 年 6-10 月は 70-90% ほどの比較的高い回収率であるが、11 月以降翌年 5 月まで低下した (図 V-1 b)。平成 25 年も平成 24 年と同様の傾向である。この原因は主要な濁り成分の季節変化や冬期の水の粘性上昇の影響が考えられる。具体的には、水中の粒度分布の観測から、冬期には比較的細かい 10 μm をピークとする粒子の濁度への寄与が大きいことが分かっており、そのために回収率が低下した可能性が考えられる。なお、PB カートリッジで測定される放射性セシウム濃度とゼオライト回収で測定される放射性セシウム濃度とは濁度が極めて高い増水時を除いてよく一致しており、冬期の濁度成分回収率低下によって、放射性セシウム回収率が低下してはいないことを示している。

平成 25 年の懸濁物中の放射性セシウムの濃度は、2,700-5,400 Bq/kg の比較的低い値が 7 月下旬の第 2 週と 8 月最初の連続した第 3 週、及び 10 月の第 3 週でみられた (図 V-1 c)。これらは、水位が高く、濁度も比較的高い日であった。河川水の濁度と懸濁態セシウム 137 との関係を見ると正の相関が見られるが (図 V-2 a)、平成 25 年度の高濁度時は、懸濁態のセシウム 137 濃度は低くなっていた (図 V-2 a)。

有機態の放射性セシウム濃度はほぼ 0.1-4 mBq/L で、懸濁態放射性セシウムのうちの概ね 1% から数% の範囲であった (図 V-1 d)、7 月下旬の 2 週と 8 月最初の 1 週、これらの連続した 3 週は有機態のセシウム 137 濃度は比較的低い値であったが、懸濁物中セシウム 137 も低下しており (図 V-1 c)、結果的に有機態率は 7 月の最後の週で高い値になっていた (図 V-1 d)。有機態放射性セシウム濃度及び溶存態放射性セシウム濃度と魚類の濃度とは関係がみられなかった (図 V-1 d に例として県のモニタリングによるアユの値をプロットした)。

平成 25 年の溶存態のセシウム 137 濃度は、概ね 0.01-0.02 Bq/L であり、河川水中のセシウム 137 濃度に対する溶存態のセシウム 137 濃度は概ね 20% 前後であるが、平成 25 年 10 月及び 11 月には 40% を超える値が観測された (図 V-1 f)。河川水に含まれる全セシウ

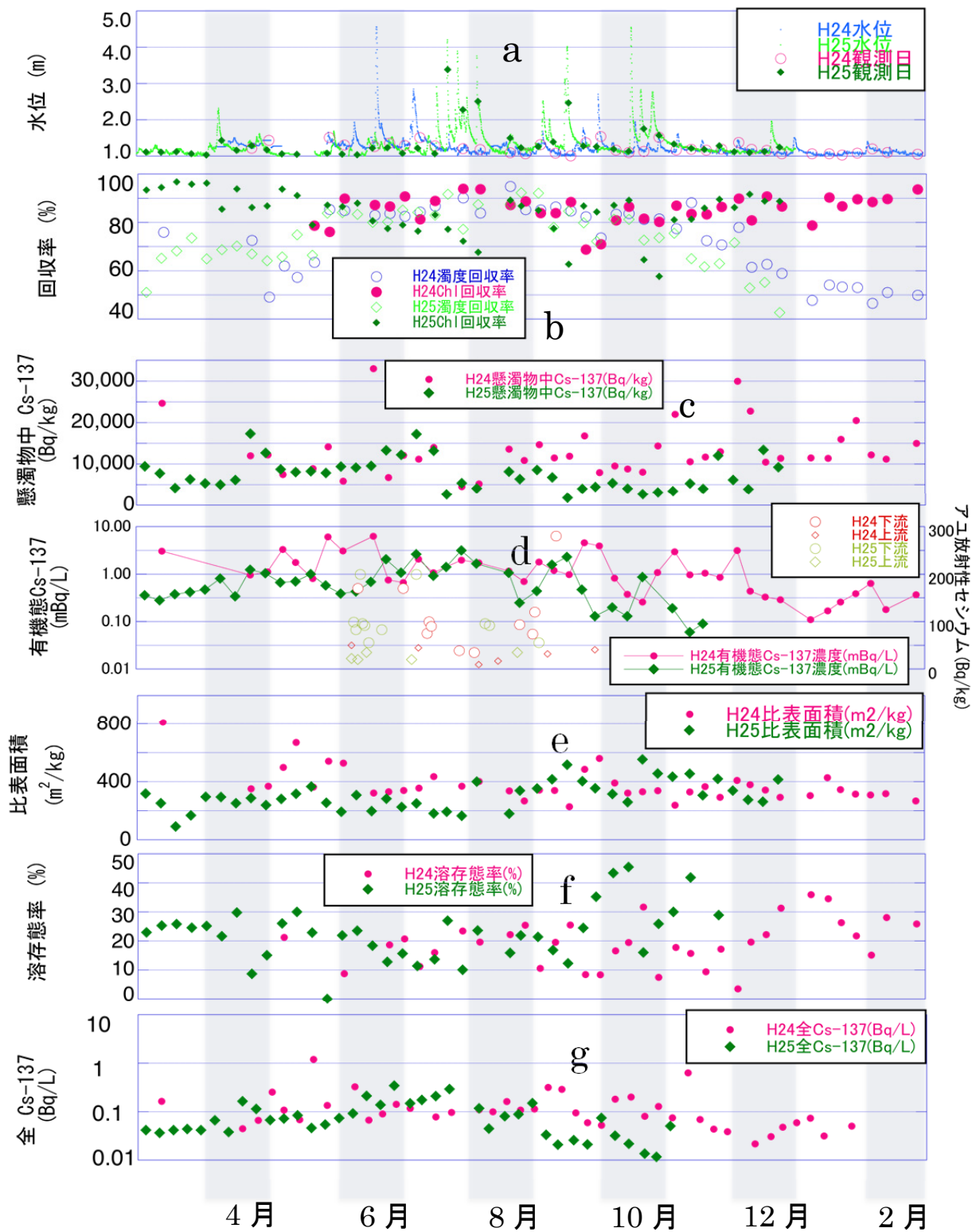
ム 137 は、平成 25 年度 10 月までの観測値では 0.4 Bq/L 以下である（図 V-1 g）。

黒岩では、梅雨から 9 月にかけての高水位・高水温期と 12 月から翌年 4 月頃までの比較的安定した低水位と低水温の期間（図 V-1 a, b）とで流水中に出現する微細藻類の群集が異なり、低水温期は付着性の種が、高水温期は浮遊性の種が優占する。平成 25 年の観測では 3 月に高いクロロフィル濃度が観測されており、付着性の藻類が剥がれて流水に出現したものと考えられる。平成 25 年には夏期とくに 7 月に降雨で高い水位が続いたために高いクロロフィル濃度は見られていないが、この時期には浮遊性のものが多い。平成 25 年 3 月と 7 月で河川水全セシウム 137 濃度を比較すると、3 月は低濃度であり、7 月は平成 25 年の中では比較的高い値となっていた（図 V-1 g）。濁度と懸濁態セシウム 137 との間には正の相関がある一方、クロロフィル濃度と河川水の懸濁態セシウム 137 との間には明瞭な関係はなく（図 V-2 a, b）、濁り成分には放射性セシウムが伴っている一方、クロロフィルをもつ粒子すなわち微細藻類には放射性セシウムが伴っているとはいえず、セシウム 137 濃度の変化は藻類群集の変化を原因とするものではないと考えられる。

阿武隈川では微細藻類の窒素安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$) は高く、陸起源有機物ではこの値は低いことが分かっている。有機懸濁態のセシウム 137 と $\delta^{15}\text{N}$ との関係からは、 $\delta^{15}\text{N}$ が中程度のときに有機懸濁セシウム 137 が高い値になることがある（図 V-2 c）。これは、陸起源有機物の分解過程と関係していることが示唆される。また、懸濁有機物中の C/N 比（炭素/窒素の比）は、陸起源有機物が多いときに高い値になる。平成 24 年度では、C/N 比と懸濁物中セシウム 137 濃度との間に正の相関が見られたが、H25 では高い C/N 比で低いセシウム 137 濃度が 4 回観測された（図 V-2 d）。これらは高水位時のものであり、汚染の程度が低い陸起源有機物が河川に供給されたと推定される。懸濁物中の無機物に対して相対的に有機物が多いとき、懸濁物中炭素含量が高くなるが、これは水位が低い時期にみられる。このとき、有機懸濁セシウム 137 濃度は低下していた（図 V-2 e）。セシウム 137 濃度が低い有機物が相対的に多くなることを示している。これは、水位が低いときに微細藻類の有機物寄与が大きくなり、有機懸濁セシウム 137 濃度が低下していると考えられる。

アンモニア態の窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) は、鉱物等に吸着した放射性セシウムと交換/脱着させる可能性がある。しかし、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度と固液分配係数 K_d との間に関連は認められず（図 V-2 f）、河川内のマクロな視点では、このメカニズムによる溶存放射性セシウムの発生は起きていたとは言えない。

阿武隈川の黒岩地点における、週に 1 度の頻度で得た懸濁態放射性セシウム濃度は、長期的に緩やかに減少する傾向が示された（図 V-3）。



図V-1 阿武隈川黒岩における水位と各形態の放射性セシウム濃度の時系列変化

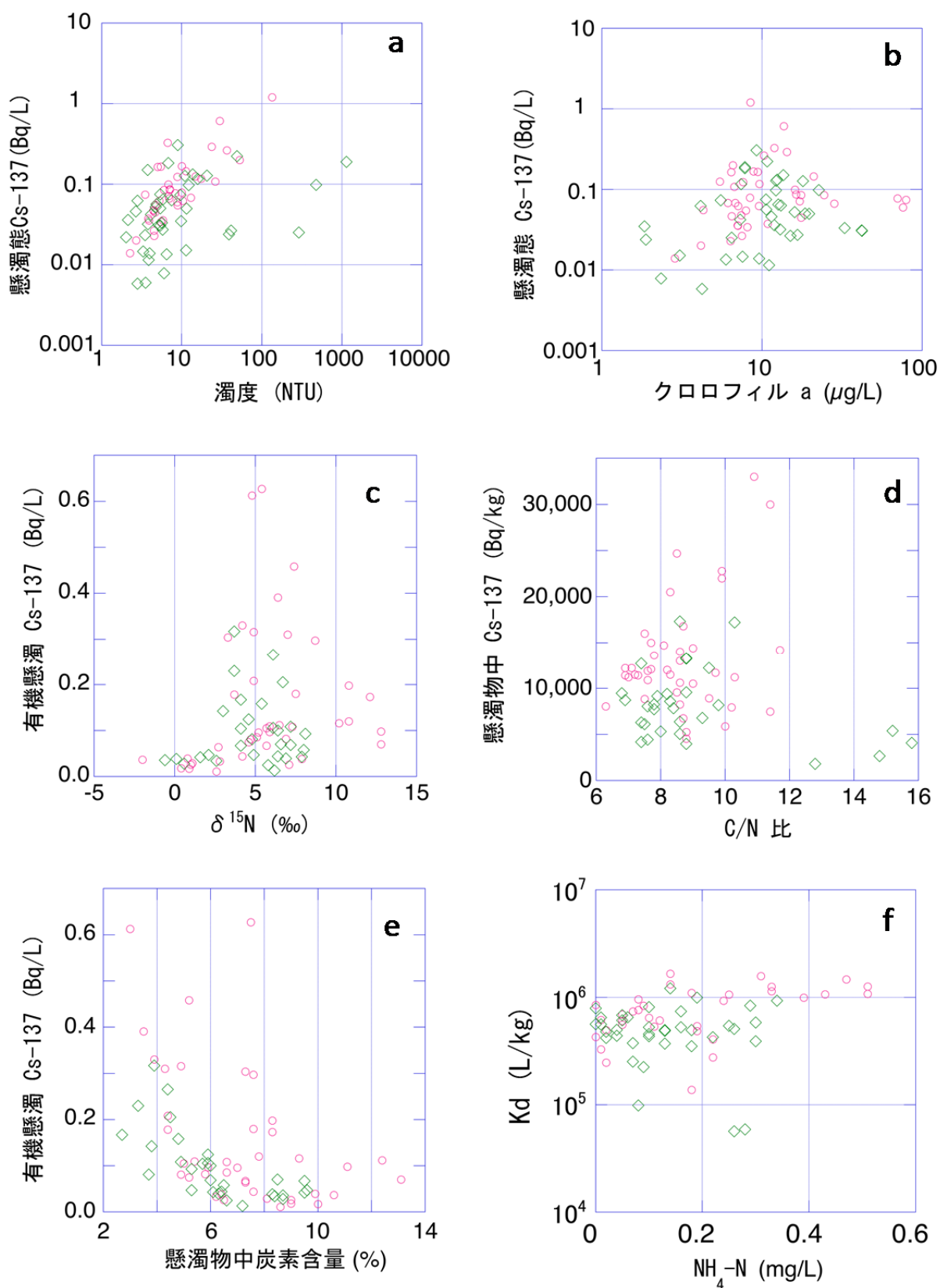


図 V-2 阿武隈川黒岩における水及び懸濁物のさまざまな成分濃度と各形態の放射性セシウム濃度
(赤丸は平成 24 年、緑菱形は平成 25 年の観測値)

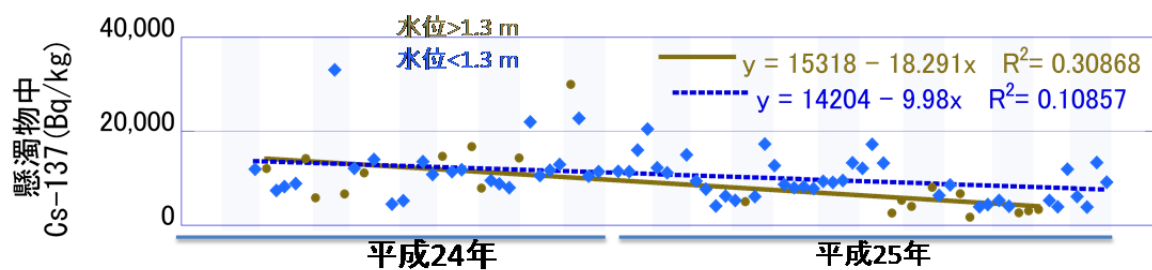


図 V-3 黒岩地点における浮遊砂中（懸濁態）のセシウム 137 濃度の経時変化