

## 福島第一原発事故により 放出された放射性 Cs の 河川流域における移行挙動

長尾 誠也  
Nagao Seiya

### 1. 河川流域への放射性 Cs の沈着とモニタリングの現状

2011年3月11日の東日本大震災に伴い発生した津波等により、東京電力福島第一原子力発電所（以後、福島第一原発）の全電源喪失・原子炉冷却システム停止後のベント操作、水素爆発等が起こり放射性物質が環境中に放出された。原子力研究開発機構、国立環境研究所等の見積もりによると、6~20 PBqの<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csが大気中に放出され<sup>1)</sup>、陸域へは2.2 PBqが沈着したと推定されている<sup>2)</sup>。文部科学省の第4次航空機モニタリングの調査結果を基にした土壤表層への放射性Cs (<sup>134</sup>Cs + <sup>137</sup>Cs) の沈着量マップを図1<sup>3)</sup>に示す。福島第一原発から北西側に3,000 kBq/m<sup>2</sup>以上の高い存在量の地域が、幅約20 km、長さ約50~70 kmで広がっている。また、60~100 kBq/m<sup>2</sup>の地域が南西の栃木県・群馬県に向けて舌状に延びている。このような分布は、福島第一原発からの放出と大気の流動、降雨による放射性Csの湿性沈着・乾性沈着により形成された<sup>4)</sup>。

福島第一原発事故後の陸域における二次的な放射能汚染の拡大状況を把握することは、対象とする地域の生態系への影響、農水産物への影響評価とともに、除染対策計画の策定や居住環境の現状と将来予測に必要な基礎データの蓄積に繋が

る。そのため、原子力災害対策本部の下に設置されたモニタリング調整会議において総合モニタリング計画が策定された<sup>5)</sup>。環境省、農林水産省、厚生労働省等が放射線量と放射性物質の環境中での動態に関するモニタリングを実施し、原子力規制委員会が中心となり情報の集約が進められている。一方、科研費や民間財団による研究助成も実施され、関係する研究機関・研究者が放射性核種の環境動態に関するモニタリング調査研究を進めている<sup>6-9)</sup>。

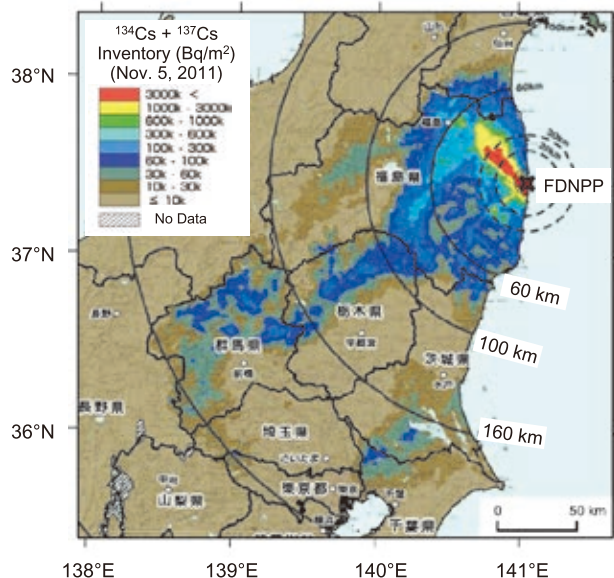


図1 第4次航空機サーベイデータより計算した土壤表層の<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの存在量  
図は文部科学省(2011)<sup>3)</sup>より引用

本稿では、福島第一原発事故の約3か月後から観測を開始した金沢大学環日本海域環境研究センター低レベル放射能実験施設の測定結果を中心に、現在までの福島県内の河川環境における放射性Csの移行動態について解説する。なお、放射性Csは被ばく評価上重要な物理半減期約30年の $^{137}\text{Cs}$ を対象とする。

## 2. 放射性Csの放射能濃度分布

放射性Csの流域ごとの移挙動を把握するためには、河川水の放射性Cs濃度の水平分布とその時系列の変動パターンを調べる必要がある。図2には2011年5月と12月、2012年8月の平水時の調査結果を示した<sup>10-12)</sup>。2011年5月の福島県内の観測では、上流に放射性Csの沈着量が高い飯館村を流れる新田川河川水が4.18 Bq/Lと最も高く、最小値は河川流域の沈着量が高い阿武隈川上流域の白河市において0.234 Bq/Lであった。 $^{137}\text{Cs}$ 全(溶存態+懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ )放射能濃度は異なるが、2011年12月と2012年8月も観測日における観測地点間の大小関係はほぼ同じ傾向にある。2012年8月には、更に久慈川、那珂川、利根川水系(利根川、烏川、渡良瀬川)でも観測し、0.004~

0.016 Bq/Lと低い放射能濃度であった。以上の観測結果より、河川水の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度は流域の放射性Cs沈着量に依存して変動する傾向が認められる。Tsuji *et al.*<sup>14)</sup>は、2012年9月の阿武隈川、2013年1月の阿武隈川とその支流の口太川、釈迦堂川、2012年5月の太田川での観測結果を基に、流域の放射性Cs沈着量と比較した。その結果、河川水中の放射性Cs濃度は流域の沈着量と正の相関性を示した。同様な結果は、日本原子力研究開発機構<sup>15)</sup>の広域観測結果でも報告されている。つまり、河川流域の放射性Csの沈着量は、平水時の河川水の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度を支配していると考えられる。

## 3. 放射性Csの放射能濃度時系列変動

図3には2011年5月~2013年1月までの阿武隈川中流域の梁川大橋における $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度<sup>10-12, 14)</sup>とともに、調査地点に近い大正橋での観測結果を示した<sup>16, 17)</sup>。阿武隈川は福島県の白河市から中通りを経て宮城県の岩沼・亘理地域を流れる一級河川である。異なる放射性Csの沈着量流域を流れる河川であるため、大気から陸域へ沈着した放射性Csの長期にわた

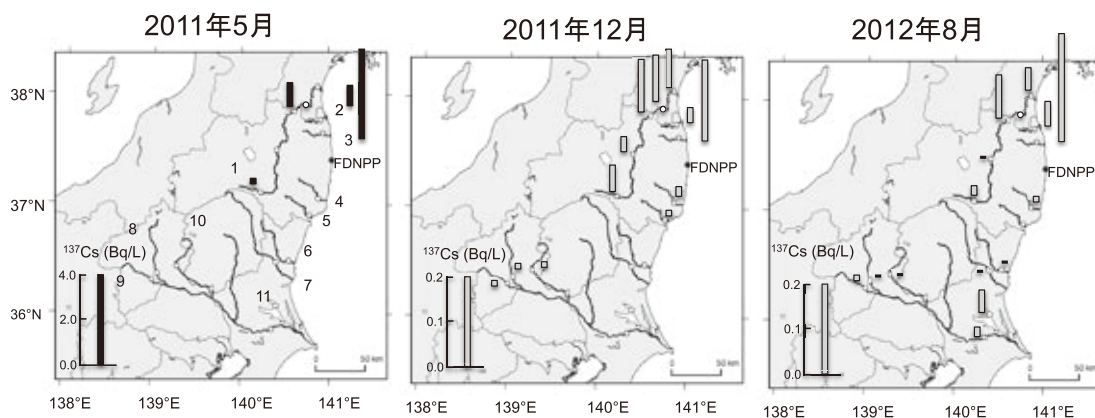


図2 河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度の水平分布

棒グラフは河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度、太い曲線は河川、○は観測点、FDNPPは東京電力福島第一原子力発電所、左図の数字は観測対象の河川を示す：1 阿武隈川(上流から白河、本宮、伊達、丸森、岩沼)；2 宇多川；3 新田川；4 夏井川；5 鮫川；6 久慈川；7 那珂川；8 利根川；9 烏川；10 渡良瀬川；11 霞ヶ浦。データは Nagao *et al.* (2014a, b)<sup>10, 11)</sup>、長尾 (2013)<sup>12)</sup> より引用。地図データは国土地理院の地図地球日本 Ver.2<sup>13)</sup> より作成

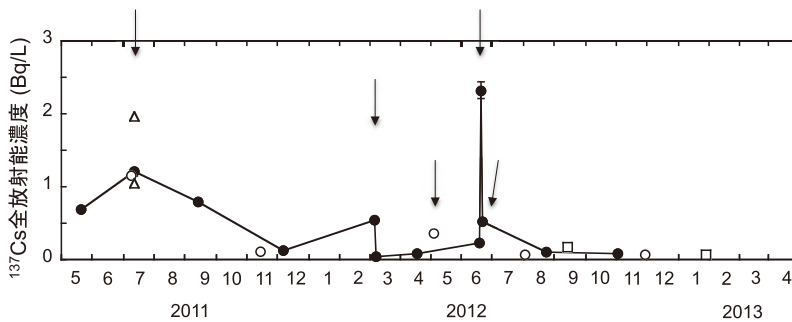


図3 阿武隈川河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度の時系列変動  
 ●は阿武隈川中流の伊達市の梁川大橋における観測データ<sup>12)</sup>。○は伏黒（大正橋：Sakaguchi et al.<sup>16)</sup>、□はTsuji et al.<sup>14)</sup>で報告されている梁川大橋のデータ。△は文部科学省による大正橋と阿久津橋のモニタリングデータ<sup>17)</sup>。矢印は降雨イベントを示す

る移行挙動を把握することが重要となる。阿武隈川河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度は2011年7月の1.2 Bq/Lから2012年4月の0.079 Bq/Lまで減少傾向にある。2012年4月以降の平水時の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度は0.066~0.17 Bq/Lの低い濃度範囲で変動している。この観測期間の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度の平均値は $0.09 \pm 0.04$  Bq/Lと水道水の基準値の約1/100以下だが、事故前の阿武隈川の測定結果<sup>18,19)</sup>に対しては1~3桁高い値である。

$^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度の大きな変動は、降雨時あるいは降雨後の観測結果で認められる(図3)。2012年6月20日未明に日本列島を縦断した台風4号は、福島県内で70~90 mmの降雨量<sup>20)</sup>を記録した。台風通過後の河川調査時に採取した河川水は6月20日に3.58 Bq/L、6月21日でも平水時に比べて高い0.59 Bq/Lの放射能濃度であった。また、2012年3月5日に福島県中通りで28.0~49.0 mm<sup>20)</sup>の降雨が観測された後の3月7日の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度は0.55 Bq/L、2012年5月3~4日に40.5~119.5 mm<sup>20)</sup>の降雨が発生した翌日の5月5日には0.36 Bq/Lの放射能濃度を計測し、2012年8月と11月の観測値に比べて約2~3倍高い値であった。さらに、2011年7月9日と11日に郡山市から福島市にかけての局所的な降雨(6.0~17.0 mm<sup>20)</sup>)の影響が残る2011年7月10日の大正橋、7月13

日の梁川大橋では1.14~1.20 Bq/Lと2011年5月に比べて約2倍高い。7月13日の梁川大橋近辺の大正橋(伊達市)における文部科学省のモニタリングデータ<sup>17)</sup>では1.04 Bq/L、上流の郡山市に位置する阿久津大橋では1.95 Bq/Lの放射能濃度が報告されている。しかし、降雨の影響がない2011年6月5日と8月3日では、阿久津橋の1.18 Bq/Lを除いて1 Bq/Lの検出限界以下であった<sup>17)</sup>。つまり、2011年7月10日と13日の観測結果は、降雨の影響を受けて高い値を示したと考えられる。

以上の結果より、降雨の強度や降雨の空間的な範囲が、対象とする観測地点の河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度の変動に影響を及ぼしていることが示唆される。

#### 4. 河川水中の放射性Csの存在形態と移行特性

河川水中の放射性Csの存在形態は、河川流域からの放射性Csの流入と河川内での移行特性を検討するために必要不可欠な情報である。図4には、2011年5月~2013年1月までの阿武隈川中流域の梁川大橋での観測結果とともに、調査地点に近い大正橋の結果を示した<sup>12,14,16)</sup>。図4を見て明らかのように、降雨時には $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度に対する懸濁態の存在割合は84%からほぼ100%近くまで増加してい

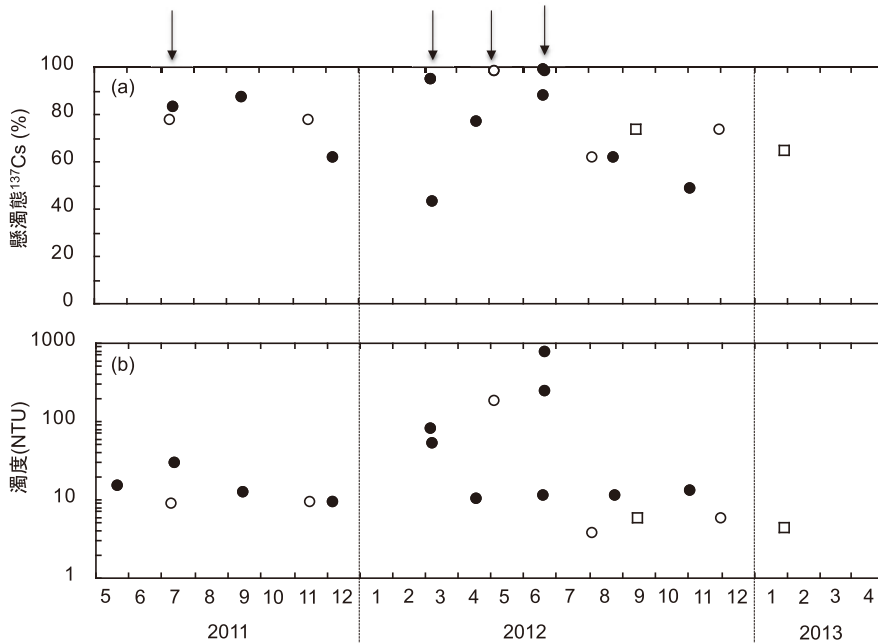


図4 阿武隈川河川水中の $^{137}\text{Cs}$ の存在形態 (a) と濁度 (b)  
 ●は阿武隈川中流の伊達市の梁川大橋での観測データ<sup>12)</sup>に新しいデータを追加。○は伏黒(大正橋)<sup>16)</sup>、□は梁川大橋で観測した Tsuji *et al.*<sup>14)</sup>のデータ。なお、Sakaguchi *et al.*<sup>16)</sup>と Tsuji *et al.*<sup>14)</sup>の濁度データは懸濁粒子濃度 (mg/L) をプロット。矢印は降雨イベントを示す

る。平水時の濁度は9.6~15.6 NTU (平均値 $12.1 \pm 2.0$  NTU) だが、降雨時または降雨後に調査した観測日の濁度は52.9~800 NTUと高い。これらの変動は、降雨時に河川流域からの流入、あるいは河床土の巻き上がり等により懸濁粒子の濃度が増加し、懸濁粒子態 $^{137}\text{Cs}$ 放射能濃度の割合が増加したことが考えられる。なお、2011年7月13日の濁度は29.9 NTUと平水時に比べると若干高く、2011年7月11日の局所的な降雨の影響が反映した可能性を支持している。

図3の2011年12月以降の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度と濁度には正の相関性(相関係数0.98)が存在することから、河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度の変動には懸濁粒子濃度が支配要因として作用していることが考えられる。ただし、この相関性は福島第一原発事故後の7か月間では認められない。同様な傾向は福島県内の新田川でも報

告<sup>8)</sup>されている。また、2012年8月以降の平水時における河川水中の $^{137}\text{Cs}$ 全放射能濃度は0.066~0.17 Bq/L、懸濁態 $^{137}\text{Cs}$ の存在割合は49~74%、平均すると $64 \pm 9\%$ である。この値は2011年5月~2012年4月までの平水時の平均値( $77 \pm 4\%$ )に比べると若干低い。以上の結果は、放射性Csの流出挙動が福島第一原発事故後の時間経過に伴って変化している可能性が考えられる。

今回報告した河川環境における放射性Csの移行動態に関する成果は、福島第一原発事故後の約3年間の観測結果を基にしている。長期にわたる河川流域における生態系への影響を評価するためには、河川のモニタリング調査の継続は必要である。現状では、河川水における放射性Csの放射能濃度は低減化しているが、降雨時には放射性Csの放射能濃度が今後も増加することが予想される。そのため、福島県内の主

要な河川水系である阿武隈川，あるいは流域の放射性 Cs の存在量が高い河川水系における観測の継続が望まれる。

#### 参考文献

- 1) UNSCEAR, Effects and Risks of Ionizing Radiation, UNSCEAR 2013 Report to the General Assembly with Scientific Annexes Volume I Scientific Annexes A, United Nations, New York (2014)
- 2) Morino, Y., *et al.*, Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in March 2011, *Geophysical Research Letters*, **38**, L00G11, <http://dx.doi.org/10.1029/2011GL048689> (2011)
- 3) 文部科学省, 文部科学省による第4次航空機モニタリングの測定結果について (2011), [http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4901/24/1910\\_1216.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4901/24/1910_1216.pdf)
- 4) 中島映至, 他, 原発事故環境汚染: 福島第一原発事故の地球科学的側面, 東京大学出版 (2014)
- 5) 原子力規制庁, 総合モニタリング計画 (2014), [http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/10000/9072/24/204\\_2\\_20140401.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/10000/9072/24/204_2_20140401.pdf)
- 6) Nagao, S., *et al.*, Export of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011, *Biogeosciences*, **10**, 6215–6223 (2013)
- 7) Ueda, H., *et al.*, Fluvial discharges of radiocesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan, *Journal of Environmental Radioactivity*, **118**, 96–104 (2013)
- 8) Nagao, S., *et al.*, Migration behavior of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the Niida River water in Fukushima Prefecture, Japan during 2011–2012, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, **303**, 1617–1621 (2015)
- 9) Yamashiki, Y., *et al.*, Initial flux of sediment-associated radiocesium to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Scientific Report*, **4**, doi:10.1038/srep03714 (2014)
- 10) Nagao, S., *et al.*, Dispersion of Cs-134 and Cs-137 in river waters from Fukushima and Gunma prefectures at nine months after the Fukushima Daiichi NPP accident, *Progress in Nuclear Science and Technology*, **4**, 9–13 (2014a)
- 11) Nagao, S., *et al.*, Cesium-134 and Cesium-137 radioactivity in river waters in Fukushima, Miyagi, Ibaraki and Gunma prefectures in August 2012 after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident (2014b), <https://intranet.pacifico-meetings.com/amsysweb/publicacionOnline>
- 12) 長尾誠也, 河川環境への影響と課題, 水環境学会誌, **36**, 91–94 (2013)
- 13) 国土地理院, 地球地図日本 (2011), [http://www.gsi.go.jp/kankypchiri/gm\\_jpn.html#gm\\_jpn](http://www.gsi.go.jp/kankypchiri/gm_jpn.html#gm_jpn)
- 14) Tsuji, H., *et al.*, Distribution of dissolved and particulate radiocesium concentrations along rivers and the relations between radiocesium concentration and deposition after the nuclear power plant accident in Fukushima, *Water Research*, **60**, 15–27 (2014)
- 15) 日本原子力研究開発機構, 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の報告書の概略版について (2012), <http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat01/pdf05/02-04.pdf>
- 16) Sakaguchi, A., *et al.*, Size distribution studies of  $^{137}\text{Cs}$  in river water in the Abukuma Riverine system following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *Journal of Environmental Radioactivity*, **139**, 379–389 (2015)
- 17) 文部科学省, 放射線モニタリング情報 (2011), <http://radioactivity.mext.go.jp/ja/>
- 18) Hirose, K., *et al.*, Plutonium and cesium isotopes in river waters in Japan, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry, Articles*, **141**, 191–202 (1990)
- 19) Matsunaga, T., *et al.*, Discharge of dissolved and particulate  $^{137}\text{Cs}$  in the Kuji River Japan, *Applied Geochemistry*, **6**, 159–167 (1991)
- 20) 国土交通省気象庁, 過去の気象データ検索 (2012), <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>  
(金沢大学 環日本海域環境研究センター)