

# 京都府内の海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度に粒子径分布が与える影響について

近藤 博文 藤江 康弘

Effects of Particle Size Distribution on <sup>137</sup>Cs Concentration in Marine Sediments in Kyoto Prefecture

Hirofumi KONDOH Yasuhiro FUJIE

海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度は、海底土の性状により異なる傾向があり、泥質の場合に高く、砂質の場合に低くなることが報告されている。また、海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度と粒子径との間に相関性が見られること、放射性Csが細粒分粒子に選択的に結合することが報告されている。京都府内の海域において、2020年2月に採取した海底土中から3.3Bq/kg乾土の<sup>137</sup>Cs放射能濃度が検出された。これは、過去10年間の変動幅である1.1–1.8Bq/kg乾土を超過する事例となった。本報では、同一地点で2019年8月に採取した試料を比較対照とし、粒子径分布等を比較することにより、高濃度となった要因について検討した。2020年2月に採取した試料には、細粒分粒子、特に粘土分粒子が多く含まれており、このことが高濃度の要因と考えられた。さらに、細粒分粒子の増加した原因として、波や風の影響を受け、海底付近において細粒分粒子を含む懸濁質が移動し、偏在が生じたことが一因と推定された。

キーワード：放射性セシウム、粒子径分布、細粒分粒子、粘土分粒子

Keywords : Radioactivecesium, Particle size distribution, Fine particles, Cray particles

## はじめに

過去に行われた大気圏内核爆発実験により、大量の放射性核種が地球規模に拡散された。現在でも比較的半減期の長い<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs、<sup>239+240</sup>Pu等は環境中に残存し、それらを対象として、様々な環境放射能モニタリングが実施されてきた。京都府においても、関西電力高浜原子力発電所（以下、高浜原発という）の周辺監視の一環として、土壌、海底土等について放射性核種について継続的な監視を行ってきたところである<sup>1,2)</sup>。

<sup>137</sup>Csは、陸上では、土壌中のイライトやパーミキュライト等の粘土鉱物に強く固定されることで、土壌粒子の移動にもなって環境中を移動すると考えられている<sup>3)</sup>。また、<sup>137</sup>Csは水に溶けやすい性質を持つため、海水中では溶存態として存在している。しかし、溶存態<sup>137</sup>Csは細粒分粒子にほぼ不可逆的に強く吸着するという化学的な性質を有していることから、堆積物や海水中に細粒分粒子が多く含まれている場合は、懸濁態中の<sup>137</sup>Csの放射能濃度が上昇する特性がある<sup>4)</sup>。なお、我が国周辺の海洋環境で見いだされる<sup>137</sup>Csは大気圏核爆発実験や原子力施設の事故などにより自然界に付加されたものであり、人為的な起源を持っていると考えられている<sup>5)</sup>。

2011年3月に発生した東京電力福島第一原発事故（以下、福島第一原発事故という）後、その周辺海域等で実施された調査において、海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度は、海底土の性状により異なる傾向があり、泥質の場合に高く、砂質の場合に低くなることが報告されている<sup>6)</sup>。また、海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度と粒子径との間に相関性が見られること、放射性的Csが細粒分粒子に選択的に結合することが報告されている<sup>7,8)</sup>。

京都府内の海域において、2020年2月に採取した海底土中

から3.3Bq/kg乾土の<sup>137</sup>Cs放射能濃度が検出された。これは、過去10年間の変動幅である1.1–1.8Bq/kg乾土を超過する事例となった。本報では、同一地点で2019年8月に採取した試料を比較対照として用い、両試料の粒子径分布等を比較することにより、2020年2月に<sup>137</sup>Cs放射能濃度が高濃度となった要因について検討したので報告する。

## 材料と方法

### 1. 試料採取及び前処理

試料は、北緯35度3分4秒、東経135度29分43秒の地点において、船上からスミスマッキンタイヤー採泥器を用いて採取した。また、採取時に水深(m)及び透明度(m)を測定した。採取した海底土を乾燥後、2mmメッシュのふるいで2mm以上の粒径の粒子を取り除いたものを試料とした。2020年2月3日に採取した試料をS1とし、2019年8月8日に同一地点で採取した試料をS2とした。乾燥減量(%)は、乾燥前重量と乾燥後重量の差を求め、乾燥前重量で除して求めた。

### 2. ゲルマニウム半導体検出器による測定

<sup>137</sup>Csの放射能濃度は、放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(平成4年文部科学省)に準じて行った。すなわち、試料の一部をポリプロピレン製容器(5cmφ×5cm高:U-8容器)に充填し、高純度ゲルマニウム半導体検出器(セイコー・イージー・アンド・ジー株式会社製GEM30-70)を用いて80000秒測定を行い、採取日からの半減期補正を行い、採取時の海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度(Bq/kg乾土)を求めた。

### 3. 粒子径分布の測定

1. で得られた試料を500μmメッシュのふるいで500μm

(令和4年1月5日受理)

以上の粒径の粒子を取り除いた後、75 $\mu$ mメッシュのふるいでふるい分けを行い、砂質分粒子と細粒分粒子（シルト分粒子+粘土分粒子）に分画した。さらに、シルト分粒子と粘土分粒子を分画するため、細粒分粒子を500mgとり、1Lの超純水に溶解し、よく攪拌した後、1時間放置し、その上澄みを取り粘土分溶液（500mg/L相当溶液：粒径5 $\mu$ m以下の粒径の粒子を含む溶液）とした。粘土分溶液（500mg/L相当溶液）を超純水で100倍希釈した粘土分溶液（5 mg/L相当溶液）について、高感度濁度計・微粒子カウンター（日本電色工業株式会社製NP500T）を用いてカオリン換算濁度及び粒子数分布を求めた。粒子数は、溶液50mL中の粒子数を3回カウントし、その平均値として求めた。粘土分粒子（5 $\mu$ m以下の粒子）の重量は、カオリン換算濁度を濃度（mg/L）として算出した。また、シルト分粒子（5-75 $\mu$ mの粒子）の重量は、細粒分粒子と粘土分粒子の差を求め算出した。さらに、粘土分溶液（5 mg/L相当溶液）について、粒子径分布測定装置（島津製作所株式会社製SALD-2300）を用いて相対粒子量（体積比）、モード径（ $\mu$ m）、メジアン径（ $\mu$ m）及び平均径（ $\mu$ m）を測定した。

## 結果と考察

### 1. 試料採取時及び前処理の状況について

表1に試料S1及びS2の諸元を示す。S1採取時の透明度は6mとS2採取時の13mと比べて半分以下となっており、濁度が高い状況にあったと推察された。また、S1の乾燥減量がS2に比べて1.5倍程度大きくなったことから、S1には水分が

表1. 試料S1及びS2の採取時の透明度並びに試料の乾燥減量及び<sup>137</sup>Cs放射能濃度の比較

	S1	S2
採取日	2020年2月3日	2019年8月8日
透明度 (m)	6	13
乾燥減量 (%)	55	37
<sup>137</sup> Cs放射能濃度 (Bq/kg・乾土)	3.3	1.1

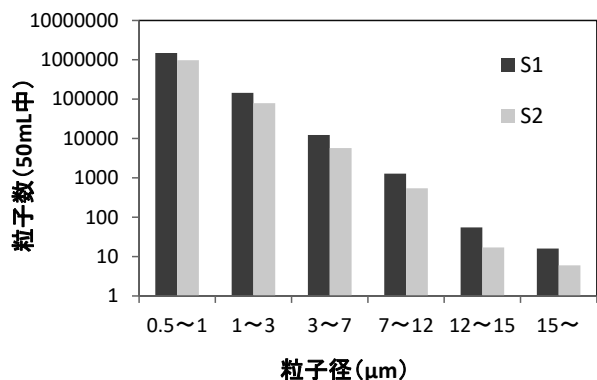


図1. 試料S1及びS2の粘土分溶液（5 mg/L相当溶液）50mL中の粒子径ごとの粒子数

多く含まれていたと考えられ、細粒分粒子が多く含まれていたことを示すものと考えられた。

### 2. 粒子径分布の測定結果

表2にS1及びS2の粒子径別の重量比率（%）を示す。なお、粘土分溶液（5 mg/L相当溶液）のカオリン換算濁度はS1で0.5717mg/L、S2で0.2881mg/Lとなり、S1がS2の約2倍となった。細粒分粒子の割合は、S2が約46%であるのに対しS1は約58%となり、S1は細粒分粒子を多く含んでいた。特に、粘土分粒子の割合がS1はS2の2倍以上となった。海底土中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度は、粒子径分布や有機物濃度に依存することが報告されており<sup>7,8)</sup>、今回の結果はそれを支持するものと考えられた。また、S1の乾燥減量が大きくなったのは、細粒分粒子、特に粘土分粒子の割合が増えたことが要因であると確認できた。

図1に粘土分溶液中の粒子径分布（粒子数）の測定結果を示す。S1とS2で粒子数に約2倍の差が見られたものの、分布のパターンは類似しておりS1とS2の粘土分粒子は同一の由来を持つものと推測された。

図2及び表3に粘土分溶液中の粒子径分布（体積比）の測定結果を示す。S1はS2に比べて小さい粒子がやや多い傾向が見られるものの、粒子径分布（体積比）の傾向には、大きな差異は見られなかった。また、モード径は同一であり、メジアン径及び平均径とも大きな差異が認められなかった。このことから、S1の粘土分粒子については、S2と異なる由来をもつ可能性は低く、同一の由来を持つものである可能性が高いと考えられた。

以上のことから、粘土分粒子については、重量比、粒子

表2. 試料S1及びS2の粒子径別の重量比率（%）

粒子径範囲（ $\mu$ m）	成分	S1	S2
75-500	砂質	42.5	53.8
5-75	シルト分	51.2	43.5
<5	粘土分	6.3	2.7

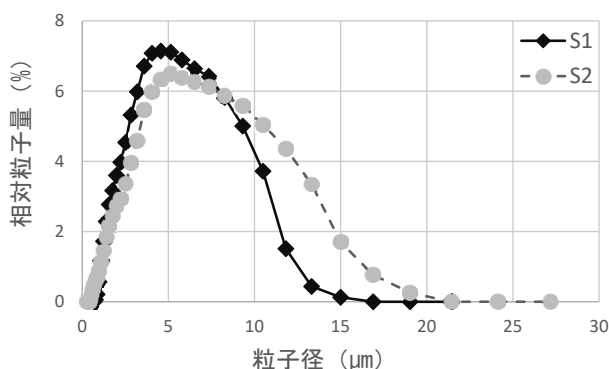


図2. 試料S1及びS2の粘土分溶液（5 mg/L相当溶液）中の粒子径ごとの相対粒子量（体積比）

表3. 試料S1及びS2における粘土分溶液 (5 mg/L 相当溶液) のモード径、メジアン径及び平均径

粒子径分布 (μm)	S1	S2
モード径	4.562	4.562
メジアン径	4.106	4.748
平均径	3.908	4.390

数及び体積比のいずれも、S1はS2の2倍以上となっており、このことがS1の<sup>137</sup>Cs放射能濃度が高くなった要因と考えられた。また、粘土分粒子の粒子径分布は、粒子数及び体積比とも類似性が認められることから、S1とS2の粘土分粒子については同一の由来を持つものと考えられた。

### 3. 原因及び起源の推定

今回、S1において<sup>137</sup>Cs放射能濃度が高くなった要因として細粒分粒子、特に粘土分粒子の割合が増えたことが要因と考えられたが、細粒分粒子が増加した原因として、<sup>137</sup>Csは懸濁質と結合して海底土を移動することが報告されていること<sup>4)</sup>、採取地点が50mと浅海域であり、採取時の透明度が低かったことから、波や風の影響を受け、海底付近において細粒分粒子を含む懸濁質が移動し、偏在が生じたことが一因と推定された。しかしながら、海底土は目視による採取ができないことから、窪地等の細粒分粒子が蓄積しやすい箇所では採取した可能性や海底土の表層部分を多く採取した可能性も否定できない。原因を特定するためには、今後も継続的に調査を行うことが必要と考えられる。

<sup>137</sup>Csの起源については、同時に採取した海水や、周辺地点で採取した海底土の<sup>137</sup>Csの放射能濃度は例年と同程度しか検出されなかったことから、原発施設からの影響はなかったものと考えられた。また、福島第一原発事故の影響については、石川県内の<sup>137</sup>Csの福島第一原発事故の影響が約0.9%と報告されていることから<sup>9)</sup>、その影響は限定的と考えられた。さらに、高浜原発周辺の海域においては過去の大気圏内核爆発実験の影響が大きいとの報告があることから<sup>5,6)</sup>、京都府内の海底土中の<sup>137</sup>Csの起源についても、過去の大気圏内核爆発実験の影響が大きいものと考えられた。

継続的な環境放射能モニタリングは、異常値を検知した際に、その原因や起源推定等に有益であると考えられており、様々な環境放射能モニタリングが実施されているところである。今回の事例から、環境放射能モニタリングを実施する際には、放射能濃度の測定に加え、その他の性状を測定することにより、より正確な原因や起源の推定が可能になると考えられた。

## 謝辞

高感度濁度計・微粒子カウンター及び粒子径分布測定装置を使用させていただきました京都府営水道事務所水質管理センター及び京都府中小企業技術センターの関係者の皆様に感謝いたします。

## 引用文献

- 1) 近藤博文, 吉田ひとみ, 藤江康弘. 2020. 京都府における土壌及び海底堆積物中のプルトニウムについて. 京都府保健環境研究所年報, 65, 17-20.
- 2) 吉田ひとみ, 近藤博文, 藤江康弘. 2020. 京都府内環境試料中のストロンチウム-90濃度の経年変化について. 京都府保健環境研究所年報, 65, 27-30.
- 3) 田上恵子, 内田滋夫. 2013. 我が国の沿岸域における放射性核種の堆積物-海水分配係数. 分析化学, 62(6), 527-533.
- 4) 内山雄介. 2017. マルチクラス懸濁質輸送モデルを用いた福島沿岸域における河川由来懸濁質および懸濁体放射性核種の海洋分散について. 沿岸海洋研究, 54(2), 159-172.
- 5) 工藤なつみ, 及川真司, 日下部正志. 2020. 日本沿岸域における海底土の<sup>137</sup>Cs放射能濃度と化学的及び物理的要素との相関分析. 分析化学, 69(10), 599-606.
- 6) 及川真司, 渡部輝久, 高田兵衛, 鈴木千吉, 中原元和, 御園生淳. 2013. 日本周辺の海水、海底土、海産生物に含まれる<sup>90</sup>Sr及び<sup>137</sup>Cs濃度の長期的推移. 分析化学, 62(6), 455-474.
- 7) Ambe H, Kaeriyama H, Shigenobu Y, Fujimoto K, Ono T, Sawada H, Saito H, Miki S, Setou T, Morita T. 2014. Five-minute resolved spatial distribution of radiocesium in sea sediment derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. Journal of Environmental Radioactivity, 138, 264-275.
- 8) Otosaka S, Kobayashi T. 2013. Sedimentation and remobilization of radiocesium in the coastal area of Ibaraki, 70km south of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. Environ. Monit. Assess., 185, 5419-5433.
- 9) 内田賢吾. 2020. 石川県内の福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質の影響割合. 石川県保健環境センター研究報告書, 57, 19-22.