

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 11 日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2016

課題番号：24310014

研究課題名(和文) 東日本大震災による東京湾の放射能汚染とそれをトレーサーに用いた物質動態の解明

研究課題名(英文) Spatiotemporal analysis of radioactive contamination in Tokyo Bay due to the Fukushima accident and evaluation of the process of environmental pollution using its radioactive cesium as a tracer

研究代表者

山崎 秀夫 (YAMAZAKI, Hideo)

近畿大学・理工学部・教授

研究者番号：30140312

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,600,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原発事故で放出され首都圏に沈着した放射性セシウムは東京湾に流入、蓄積していた。東京湾堆積物中の放射性セシウムの分布を解析し、首都圏における放射性セシウム汚染の動態を解明した。本研究では、東京湾の堆積物と水の放射性セシウム濃度の時空間分布を2011年8月から2016年7月までモニタリング調査した。東京湾に流入した放射性セシウムの大部分は首都圏北東部の高濃度汚染地帯が起源であり、そこから流出して東京湾奥部の旧江戸川河口域に沈積していた。現状では、放射性セシウムは東京湾中央部まではほとんど拡散していない。東京湾奥部河口域における放射性セシウムのインベントリーは事故以来、増加し続けている。

研究成果の概要(英文)：Radiocesium discharged by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident was also deposited in the Tokyo metropolitan region, but finally flowed into and accumulated in Tokyo Bay. The distribution and fluctuation of radiocesium in Tokyo Bay sediment was analyzed in this study to clarify the movement of radiocesium in the Tokyo metropolitan region. A monitoring survey was conducted from August 2011 to July 2016 of the spatiotemporal distribution of radiocesium concentration in sediments and water in Tokyo Bay and in rivers flowing into it. Most of the radiocesium that flowed into Tokyo Bay originated in a high-concentration contamination zone in the north eastern part of the Tokyo region, then flowed into and was deposited in the estuary of the old Edogawa River. At present, almost no radiocesium has spread into the center of Tokyo Bay. Contrarily, the inventory of radiocesium in the old Edogawa estuary of the deep Tokyo Bay has increased.

研究分野：環境動態解析

キーワード：福島第一原発事故 放射能汚染 東京湾 堆積物 物質循環 放射性セシウム

1. 研究開始当初の背景

福島第一原発(FDNPP)事故の概要については、既に様々な報告書が公表されていた。しかし、その多くは事故のプロセスを解析したものであり、環境放射能汚染の時空間変動について調査した報告は欠落していた。特に、わが国の中枢である東京都など首都圏のFDNPP事故に伴う放射能汚染の実態については全く報告されていなかった。しかし、数少ない実測データや大気輸送モデルに基づくシミュレーションの結果によれば、首都圏には事故直後の2011年3月16日と3月22日に高濃度の放射性プルームが飛来し、放射性核種が地表に沈着したことが予測されていた。大都市圏における大規模、広範囲な放射能汚染は人類史上初めての経験であり、東京のような人口稠密な首都圏の環境放射能汚染の動態を解明することは、都市域住民の放射線被曝の問題にも関連して重要であると考えた。さらに、放射性核種の挙動は環境中の物質循環とリンクしているので、放射性核種が環境中の物質動態のトレーサーとして使用できると考えた。

2. 研究の目的

本研究では、FDNPP事故後に東京湾横断道路のアクアラインの北側海域とその流入河川で、堆積物と水試料の放射性セシウムの分布とその変動を継続して時系列解析した。その結果から、FDNPP事故で首都圏に沈着した放射性セシウムの陸域から東京湾への移動、蓄積機構を評価した。チェルノブイリ事故の場合と異なり、東京のような人口稠密な大都市圏が広範囲に放射能汚染したのは、史上、初めての経験である。都市環境における放射性セシウムの挙動についてはシミュレーションによる検討が、FDNPP事故が起きる以前から行われていたが、その時空間分布の変動を広範囲、長期間にわたってモニタリングして解析した例は見あたらない。従って、本研究によって、首都圏における放射性セシウム

汚染の動態とその輸送、蓄積機構に果たす東京湾及びその流入河川の重要性を解明した。

さらに、これらの成果に基づき、環境に負荷された放射性核種をトレーサーとして用いることで、様々な環境汚染物質の時空間動態解析を実施した。このような方法で、人為的に環境に負荷された放射性核種が環境汚染物質の環境動態解明のための有用なトレーサーとして使用できることを検証した。

3. 研究の方法

(1) 試料採取及び前処理 東京湾のアクアラインより奥部及び河川の約100地点で堆積物と水を2011年8月20日から2016年7月12日の間に採取した。この期間中に同一地点でのサンプリングも実施した。堆積物コア試料は内径10cm、長さ100cmのアクリルパイプを用い、潜水ダイバーが海底を目視しながら堆積物に挿入し、採取した。長さ20~80cmのコア試料が採取できた。表層試料は船上からエクマン・バージ採泥器を用いて採取し、表層から深さ5cmまでのサブコアを分取した。コア試料は深さ方向に1または2cmの厚さにスライスし、60℃で恒量になるまで乾燥して堆積物の含水率を求めた。乾燥試料はメノウ製乳鉢で粉碎、夾雑物を除去して放射能測定試料とした。表層試料も均一に混合した後、同様に測定試料を調製した。水試料は、表層水は船上からバケツ採取、底層水は潜水ダイバーにより海底から1m上層の海水を採取した。水試料約20Lに対してAMP法を適用して放射性セシウムを濃縮し、そのAMP沈殿の放射能測定を行った。

(2) 堆積物の重金属と粒径の測定 堆積物中の重金属(Zn, Hg, Pb)はNIST SRM1646 (Estuarine Sediment)を標準試料として用いるXRF法(RIGAKU ZSX Primus)で測定した。堆積物の粒径分布はレーザー回折法(SHIMADZU SALD-3000)によって測定した。得られた粒径分布は体積基準の平均粒径で表示した。

(3) 放射能濃度の測定 試料の放射能濃度は厚さ 10 cm の鉛で遮蔽した低エネルギー測定用 HPGe 半導体検出器(ORTEC LO-AX/30P)を用いた。内径 5.5 cm, 深さ 2.0 cm のプラスチック容器に試料を封入し, 線スペクトロメトリーで ^{134}Cs (605keV), ^{137}Cs (662keV)を定量した。Ge 検出器の計数効率を米国 NIST の環境放射能標準試料 SRM 4350B(River Sediment) と SRM 4354(Freshwater Lake Sediment)を用いて校正した。計測時間は計数誤差が $\pm 5\%$ 未満になるように設定した。 ^{134}Cs 計測時のサムピーク効果は濃度既知の ^{134}Cs 溶液を用いて校正した。

4. 研究成果

(1) 東京湾堆積物中の放射性セシウムの時空間分布 東京湾水系の堆積物の ^{134}Cs , ^{137}Cs 濃度を測定した。試料採取日が異なるので, 放射能濃度は 2011 年 3 月 16 日に規格化して示した。計数誤差が 5%以内の 96 個の堆積物の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は 1.003 ± 0.005 (荷重平均) であり, 福島第一原発事故で放出された放射性セシウムの比と一致した。堆積物表層の 0 ~ 5 cm 層の放射性セシウム濃度(^{134}Cs と ^{137}Cs の合計)で最も高値を示したのは, 2012 年 11 月 1 日に旧江戸川河口の採取した $1340 \pm 10 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ であった。東京湾表層堆積物の放射性セシウム濃度の分布は, 湾奥部旧江戸川河口 $432 \pm 2 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (78 ~ $1340 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, $n=55$), その沖で 131 ± 1 (40 ~ 371, $n=27$), 湾中央部 17 ± 0.4 (1 ~ 162, $n=50$), 多摩川河口 58 ± 1 (5 ~ 234, $n=7$), 隅田川河口 102 ± 2 (32 ~ 374, $n=16$) であった。全調査期間を通して, 表層堆積物中の放射性セシウム濃度は湾奥部が最も高濃度を示し, 湾中央部に向かって著しく低下した。多摩川や隅田川の河口では旧江戸川河口よりも明瞭に低濃度を示し, 隅田川や多摩川は, 東京湾への放射性セシウム供給源としては重要でないことが示唆された。また, 江戸川の中流で合流する坂川では $2260 \pm 20 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=8$), 坂川との合流点より上流

の江戸川で 171 ± 2 ($n=20$), 下流で 505 ± 3 ($n=15$) となり, 東京湾の流入する放射性セシウムの起源は, 首都圏北東部の高濃度汚染地帯を流れる坂川から江戸川を經由して東京湾に流入していると推察された。また, 旧江戸川河口に隣接する荒川は東京湾に流入する主要河川であるが, 航空機モニタリングや土壌の放射性セシウム濃度の実測結果から, 放射性セシウム源としては重要でない。利根川と分岐する江戸川上流では堆積物, 水のいずれについても放射性セシウム濃度は低値を示し, 群馬県北部森林地帯に沈着した放射性セシウムは土壌や樹木, リターに強く吸着し, 現状では森林地帯から下流域への顕著な移動は起きていないと考えられた。

(2) 東京湾堆積物に対する放射性セシウムの蓄積量の変遷 旧江戸川河口の若洲海浜公園沖でモニタリング調査した。堆積物の表層及び全汚染層ともに, 事故から約 2 年後の 2012 年末に放射性セシウム濃度は最大値を示したが, それ以降は濃度が低下した。陸域の高濃度汚染土壌が流出したことで ^{134}Cs の物理的減衰の効果が表れているためである。2013 年以降の濃度低下は ^{134}Cs の減衰と整合している。堆積物への放射性セシウムの蓄積量は, 事故初期に $20 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$ であったが, 5 年後の 2016 年には $100 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$ に上昇した。 ^{134}Cs の物理的減衰があるにもかかわらず, 蓄積量のこのような増大は, 現在でも東京湾へ放射性セシウムが定常的に流入し続けていることを示唆している。

(3) 以上の結果を基に, 江戸川水系と東京湾奥部海域における放射性セシウムの収支を推定した。航空機モニタリングの結果から推定した江戸川, 旧江戸川集水域の放射性セシウム沈着量は 6.2 TBq , 一方, 旧江戸川河口域の放射性セシウム平均蓄積量は $131 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$ ($n=10$), 蓄積量は 1.31 TBq と推定された。その沖では平均蓄積量 $5.52 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$ ($n=11$), 蓄積量は 0.33 TBq であった。即ち, 事故か

ら5年間で、陸上の集水域に沈着した放射性セシウムの約27%が東京湾へ移動したことになる。2016年7月現在の平均フラックスが $0.035 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ と推定されるので、この海域には今でも1年間に0.12 TBqの放射性セシウムの流入が続いている。

(4) 東京湾堆積物に対する放射性セシウムの蓄積機構の推定 放射性セシウムの陸域から水圏への移動プロセスについては、実測やそれに基づくシミュレーションが行われている。しかし、環境条件は場所によって大きく異なるので首都圏にそのまま適用することは難しい。本研究では、首都圏北東部に沈着した放射性セシウムが河川を通して東京湾奥部河口域に蓄積し、湾中央部までは拡散していないことを示した。一般に、セシウムは粘土鉱物に強くイオン吸着することが知られているので、その視点から首都圏に沈着した放射性セシウムが東京湾河口域まで運ばれ、堆積物に移行するプロセスについて検討した。東京湾堆積物中の放射性セシウムの蓄積挙動はZn, Hg, Pbなどの重金属元素とは異なる。これら重金属元素は粒子サイズ効果によって平均粒径が小さい微細粒子に高濃度に存在するが、放射性セシウムは比較的大口径粒子に吸着して旧江戸川河口域に蓄積していることが明らかになった。このことは、重金属元素は水中の懸濁粒子表面に吸着して海水中を移行し、湾中央部で堆積していることを示しているのに対して、放射性セシウムの場合には供給源である集水域の陸上で比較的大口径の土壌粒子に吸着され、それが坂川、江戸川を經由して旧江戸川河口域で沈降していることを示している。河川流で運ばれない高濃度汚染大口径粒子が江戸川堆積物中で見いだされることも、それを示唆している。

2016年7月の時点では、理論的減衰によって ^{134}Cs 濃度は事故初期の19%まで低下したが、 ^{137}Cs は89%が残存している。今後もこの ^{137}Cs

が流入し続けるので、東京湾の放射能汚染は当分の間、継続すると考えられる。

(5) 以上のFDNPP事故に由来する東京湾の放射能汚染と放射性セシウムの挙動から、これら放射性核種（放射性及び安定同位元素）をトレーサーとして用いる環境中の物質動態の解明について以下のような項目について研究を進めた。即ち、現在までに得られている成果は下記のように示すことができる。

(a) 東アジア地域の大陸からわが国に越境して飛来する、いわゆる長距離越境汚染について、湖沼や沿岸海域の堆積物中に記録されたその歴史的変遷を解明した。

(b) 同様に、水圏堆積物中に分布する化石燃料由来の球状炭化粒子の起源と動態を時系列解析し、大陸からの越境汚染の可能性や国内の産業構造の時代的変遷に関連付けて評価した。

(c) 環境汚染物質の革新的な新規分析法を開発し、人為的環境汚染の歴史的変遷の評価と解析に適用した。

(d) 明治維新以降のわが国の鉛汚染の起源と変遷を年代測定と組み合わせた鉛安定同位体の精密分析によって、その歴史トレンドを評価し、人間活動と鉛汚染の関係を明らかにした。

(e) 水圏における生態環境系の時空間変動について、堆積物中に保存されている珪藻類化石のスペシエーションを時系列に沿って解析し、様々な水圏環境の時系列変動について解明した。

(f) 沿岸域の砂浜形成機構について、信濃川水系の大河津分水河口域堆積物中から検出されるFDNPP事故に由来する放射性セシウムの分布と時系列変動をケーススタディとして地球化学的に解析、解明した。

以上のように、FDNPP事故に伴う環境放射能汚染の動態について東京湾を主たるフィールドにして解析し、環境中に負荷された放射性セシウムの動態を明らかにした。さらに、

その結果に基づいて、放射性セシウムを環境動態トレーサーとして用いた環境汚染物質の環境循環とその歴史の変遷を評価した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 37 件)

- (1) 関口秀雄, 山崎秀夫, 石田真展, 東良慶, 原口強, 細山田得三, 漂砂と堆積作用の繋がり - 野積海岸の底質環境変遷に着目して -, 土木学会論文集 B2(海岸工学), 72, 787-792 (2016).
- (2) H. Moriwaki, R. Masuda, Y. Yamazaki, K. Horiuchi, M. Miyashita, J. Kasahara, T. Tanada, H. Yamamoto, Application of freeze-dried powders of genetically engineered microbial strains as adsorbents for rare earth metal ions, ACS Applied Material & Interface, 8, 26524-26531 (2016).
- (3) 廣瀬孝太郎, 山崎秀夫, 長橋良隆, ²¹⁰Pb, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs 分析を用いた猪苗代湖の湖底堆積物コア(INW2012)上部 2m の年代モデル, 地質学雑誌, 121, 565-571 (2016).
- (4) K. Maegakiuchi, M. Hyodo, I. Kitaba, K. Hirose, S. Katoh, H. Sato, Brief sea-level fall event and centennial to millennial sea-level variations during Marine Isotope Stage 19 in Okaka Bay, Japan, J. Quaternary Science, 31, 809-822 (2016).
- (5) 西尾孝之, 北野雅昭, 酒井護, 高倉晃人, 加田平賢史, 西谷隆司, 大阪市における東京電力福島第一原子力発電所事故による放射性セシウム汚染 雨の廃棄物回収系による放射性物質の集積と環境浄化機能の評価, RADIOISOTOPES, 64, 229-244 (2015).
- (6) 山崎秀夫, 東京電力福島第一原子力発電所事故で放出された放射性物質の移行と蓄積, RADIOISOTOPES, 63, 299-316 (2014).
- (7) N. Tsunemasa, H. Yamazaki, Concentration of antifouling biocides and metals in sediment core samples in the northern part of Hiroshima Bay, Inter. J. Molecular Science, 15, 9991-10004 (2014).
- (8) T. Nakagawa, K. Kokubu, H. Moriwaki, Application of fullerenes-extracted soot modified with ethylenediamine as a novel adsorbent of hexavalent chromium in water, J. Environ. Chem. Eng., 2, 1191-1198 (2014).
- (9) J. Inoue, A. Momose, T. Okudaira, K. A. Murakami, H. Yamazaki, S. Yoshikawa, Chemical characteristics of Northeast

Asia fly ash particles: Implications for their long-range transportation, Atom. Environ., 95, 375-382 (2014).

- (10) S. Murai, R. Sato, M. Hashimoto, K. A. Murakami, H. Yamazaki, S. Yoshikawa, J. Y. Kim, K. Kamura, Temporal changes of the transboundary air pollutions in bottom sediments of lakes in East Asia, J. Environ. Sci. Eng., 2, 629-639 (2013).
- (11) 佐藤亮介, 村井振太郎, 北瀬晶子, 山崎秀夫, 吉川周作, J. Y. Kim, 香村一夫, 湖沼の底質及び残雪に含まれる球状炭化粒子分析からみた東アジア地域の越境汚染史, 地質学雑誌, 119, 655-664 (2013).
- (12) J. Inoue, T. Tomozawa, T. Okudaira, The use of size distributions of spheroidal carbonaceous particles in swimming pool deposits for evaluating atmospheric particle behavior, Water, Air & Soil Pollution, 224, 1580 (2013).
- (13) K. Katahira, H. Moriwaki, M. Ishitake, Y. S. Kokubu, H. Yamazaki, S. Yoshikawa, Nishiyama reservoir: Lead sources, inventory, and the influence of the Nagasaki atomic bomb, Soil Sed. Contam. Intern. J., 22, 1003-1012 (2013).

[学会発表](計 117 件)

- (1) H. Yamazaki, M. Ishida, W. Ishii, K. Takashimizu, K. Honda, Radioactive contamination of the Tokyo metropolitan area by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident, Pacificchem 2015, Dec. 15 - 20, 2015 (Honolulu).
- (2) K. Kamura, S. Murai, M. Hashimoto, R. Sato, H. Yamazaki, S. Yoshikawa, K. Y. Murakami, J. Y. Kim, Spatial and temporal distributions of spheroidal carbonaceous fly ash particles in East Asian lake sediments, XIX INQUA Congress, Jul.26-Aug.2,2015 (Nagoya).
- (3) K. Hirose, M. Yasuhara, T. Gotoh, K. Yoshioka, M. Mitamura, T. Izurugki, H. Yamazaki, Diatom assemblages as an indicator of human-induced environmental changes: Temporal distribution in coastal areas of the Seto Inland Sea, southwestern Japan, XIX INQUA Congress, Jul. 26 - Aug. 2, 2015 (Nagoya).
- (4) 加田平賢史, 湖沼底質における鉛同位体比のサイト間比較, 第 41 回環境保全・公害防止研究発表会, 2014 年 12 月 10 日 ~ 11 日 (神戸市).
- (5) M. Ishida, R. Hinokio, Y. Yamashiki, R. Azuma, H. Yamazaki, Environmental dynamics in the aqueous sediment of

radiocesium released from the Fukushima Daichi Nuclear Power Station Accident, Japan, ICAEC 2014, Nov. 22 - 26, 2014 (Bangkok).

- (6) 井上淳, 百瀬あずさ, 奥平敬元, 北瀬(村上) 晶子, 山崎秀夫, 吉川周作, 日本地球惑星連合大会, 2013年4月28日~5月2日(千葉).
- (7) H. Moriwaki, T. Nakagawa, Electrospray mass spectrometric observation of the interaction between environmental pollutants and biologic compounds, 19th International Mass Spectrometry Conference, Sep. 15 - 21, 2012 (Kyoto).

〔図書〕(計 2 件)

- (1) 香村一夫, 災害後の環境汚染とその対策, 早稲田大学・震災復興研究論集研修委員会編「震災後に考える」, pp79-88, 2013 (早稲田大学出版部).
- (2) 香村一夫(共著), 東日本大震災と環境汚染 - アースドクターの診断 -, 105p., 2012 (早稲田大学出版部).

〔産業財産権〕

出願状況(計 2 件)

名称: 放射性物質吸着材
発明者: 山崎秀夫・小丸博美
権利者: 近畿大学・(株)みらい
種類: 特許
番号: 特許願 2013-258097
出願年月日: 平成 25 年 12 月 13 日
国内外の別: 国際 G21F 9/30

名称: 希土類金属の吸着回収材及び希土類金属の回収方法
発明者: 塚田益裕・森脇洋・中川貴裕・小島美樹
権利者: 信州大学
種類: 特許
番号: 特許願 2013-008866
出願年月日: 平成 25 年 1 月 22 日
国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者
山崎 秀夫 (YAMAZAHI, Hideo)
近畿大学・理工学部・教授
研究者番号: 3 0 1 4 0 3 1 2

(2) 研究分担者
香村 一夫 (KAMURA, Kazuo)
早稲田大学・理工学術院・教授
研究者番号: 1 0 4 3 4 3 8 3

森脇 洋 (MORIWAKI, Hiroshi)
信州大学・繊維学部・教授
研究者番号: 3 0 3 2 1 9 3 8

井上 淳 (INOUE, Jun)
大阪市立大学・理学研究科・准教授
研究者番号: 9 0 5 1 4 4 5 6

加田平 賢史 (KATAHIRA, Kenshi)
大阪市立環境科学研究所・研究員
研究者番号: 5 0 3 4 2 9 8 6

廣瀬 孝太郎 (HIROSE, Kotarou)
神戸大学・内海域環境教育センター・助教
研究者番号: 6 0 5 9 6 4 2 7

(3) 連携研究者
()

研究者番号:

(4) 研究協力者
()