

放射性セシウムの洪水時の粒径別輸送特性

TRANSPORT OF RADIOCAESIUM DEPENDING ON THE PARTICLE SIZE OF SUSPENDED SEDIMENT DURING FLOOD DISCHARGE

橋本達範¹・横山勝英²・河野益近³・大野敦生⁴

Tatsunori HASHIMOTO, Katsuhide YOKOYAMA, Masuchika KOHNO and Atsuo OHNO

¹学生会員 首都大学東京大学院都市基盤環境学域 (〒192-0397 東京都八王子市南大沢1-1)

²正会員 博(工) 首都大学東京准教授 都市基盤環境コース (〒192-0397 東京都八王子市南大沢1-1)

³非会員 工修 京都大学大学院教務職員 原子核工学専攻 (〒615-8530 京都市西京区京都大学桂)

⁴非会員 いであ株式会社 国土環境研究所 (〒224-0025 神奈川県横浜市都筑区早渕2-2-2)

Transport of suspended sediment (SS) and radiocaesium was investigated for every particle size in the Okawa River system. Turbid water was sampled during flood at five stations, and particle-size distribution was measured. SS was collected using three classes of filter: pore size 0.3 μm , 20 μm , and 40 μm , and the concentrations of SS, ^{137}Cs , and ^{134}Cs were analyzed. The weight of SS caught by each class of filter and the weight of the same classes calculated by the size distribution did not coincide. Gaussian distribution was applied to the clogged particles below the pore size for the filtered sample. Total Cs concentration had a negative correlation with the calculated center diameter (d50); total Cs was approximately 2,000 (Bq/kg) when d50 was 5 μm and it decreased to 1,500 (Bq/kg) when d50 was 50 μm . Furthermore, total Cs was highest at the start of the storm discharge and it decreased toward the peak of flood. It was found that the transport of Cs was affected by both the size of the suspended particles and the phase of the flood discharge.

Key Words : Radiocaesium, SS, particle size, phase of flood discharge, specific load of Cs,

1. はじめに

シルトや粘土といった細粒土砂は比表面積が大きいいため、粒子表面に栄養塩などの物質が吸着させる。流域で生産された細粒土砂は、河川をウォッシュロードとして流下し、その一部は高水敷に堆積しつつ、大部分は湖沼・貯水池や河口・沿岸に堆積する。そのため、懸濁土砂(SS)の流域における生産と停滞水域への輸送過程を把握することは、水圏の水質や生態系を管理する上で重要な課題である。また、2011年3月に福島第一原子力発電所の事故があり、放射性セシウム(Cs)が大気中に放出されて広域に拡散した。Csもまた粘土鉱物に吸着しやすいことが知られており¹⁾、放射能が生態系におよぼす影響を考える上では、その場への大気降水量だけでなく、SSによる時空間的な輸送メカニズムを把握する必要がある。

これまで、河川のSSに関する研究は数多く行われてきた。例えば、横山ら²⁾は、筑後川の13地点で濁度モニタリングを行い、各地点のSS輸送量を求めた。さらに、SS輸送量と流量を流域面積で除して比SS輸送量と比流

量の関係を整理し、そのL-Q関係から地形が急峻で降雨量の多い上流域においてSS生産が卓越していることを明らかにした。また田中ら³⁾は、東京湾流入河川において同様に整理を行い、流域の山林率が50%以上の河川では比SS輸送量が大きくなることを示した。また、加藤ら⁴⁾は流域の表土と河床堆積物の放射性核種(PbとCs)を分析することで、水垣ら⁵⁾は流域表土と洪水時SSの放射性核種を分析することで、細粒土砂の生産源を推定できるとしている。

河川におけるCsの輸送過程として、松永⁶⁾は久慈川下流部において1987年から1989年にかけて平水時と増水時のサンプリングを行い、核実験フォールアウト起源の ^{137}Cs を対象にして、懸濁態および溶存態のCs輸送量と流量のL-Q関係式を提案した。また、福島第一原発から放出されたCsを対象にした研究では、Tanakaら⁷⁾は時間積分SS採取器により得られたサンプルを分析し、粒径が小さいほど ^{137}Cs 濃度(Bq/g)が高くなることを示した。Sakaguchiら⁸⁾は阿武隈川水系において季節的にサンプリングを実施し、原発事故から3ヶ月までは粒径と ^{137}Cs 濃度(Bq/g)の間に良い相関が見られたが、それ以降は関係性がはっきりしなくなったと報告している。



図-1 大川流域の平面図

以上より、河川のSSやCs輸送を考える上では、洪水時の流出特性を流域ごとに検討する必要がある、さらに粒径依存性に着目して検討する必要があるが、これらをすべて満たす研究は大変少ない。

そこで本研究では、岩手県・宮城県の大川を対象として洪水時の観測を行い、フィルター濾過とレーザー粒度分析を組み合わせた手法により、粒径別のSSとCsの相関やL-Q関係を検討した。

2. 研究方法

(1) 研究対象地の概要

研究対象地は岩手県一関市と宮城県気仙沼市を貫流する大川である(図-1)。大川は流域面積が168 km²、幹川流路延長が29 kmの2級河川であり、主な支流は田茂木川、名木沢川、二十一川、八ッ瀬川、松川川、神山川などである。年平均降雨量は1344 mmである。流域の土地利用は山地等が92%、水田・畑地等の農地が3%、市街地が5%である。流域の放射線量として、¹³⁴Csと¹³⁷Csの地表面への沈着量は矢越山(標高520 m)において30~60 kBq/m²であり(2011年11月5日時点⁹⁾、大川上流部は岩手・宮城県内ではCs沈着量が比較的多い領域である。

(2) 現地観測の方法

大川上流部、大川下流部および3つの支川(田茂木川、二十一川、八ッ瀬川)の5地点において水文観測およびSSサンプリングを実施した。水文観測として流量観測と水位モニタリングを実施した。各地点で河床横断測量を行い、また洪水時と平時時に電磁流速計(KENEK VP1500)を用いて断面平均流速を計測し、これらよりH-Q曲線を作成した。さらに、水位計(HOBO U20 ウォーターレベルロガー)を各地点に設置して10分間隔で河川水位を記録し、H-Q曲線を用いて流量波形を作成した。

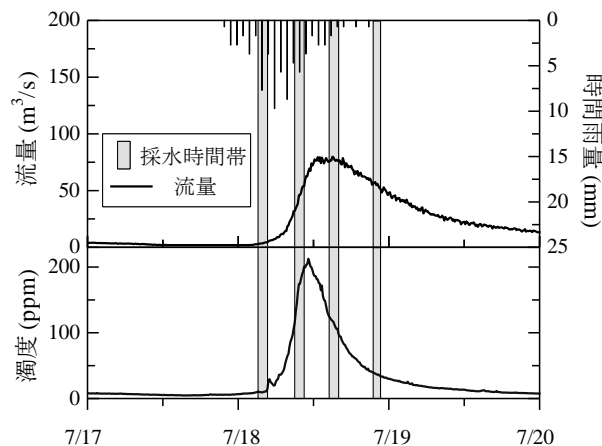


図-2 雨量・流量・濁度時系列(大川下流)

洪水時には、各地点の橋上からバケツにより表面水を18リットル採取し、実験室に輸送した。観測日は2013年7月17日および18日であり、洪水の開始期、上昇期、下降期、終了期の4回にわたって採水した。つまり、サンプル数は20であり、総水量は360リットルであった。

大川下流には濁度計(JFEアドバンテック Infinity-CLW)を設置して、10分間隔で濁度を計測した。

(3) 分析方法

得られた濁水サンプルに対して、最初にレーザー回折式粒度分析装置(島津製作所SALD-3100)により粒度分布を測定した。次に、3種類の目合いのフィルター(40 μm, 20 μm, 0.3 μm)を用いて、目合いの大きなフィルターから順にろ過を行い、通過水を次の目合いのフィルターにかけて分画した。ろ過する際には、目詰まりを防ぐために、一旦500 mlのメスシリンダーに濁水を取り分けて2分ほど静置し、最初に上澄み液をろ過装置に投入して細粒分を通過させ、次に沈殿した粗粒分を投入した。ろ過に要する時間は5~15秒であり、各サイズのフィルターを約40枚ずつ使用して18リットルの濁水を処理した。

その後、フィルターを110度で乾燥して秤量し、土砂量を求め、さらにゲルマニウム半導体検出器を用いて¹³⁴Csと¹³⁷Csを測定した。

3. 観測結果

観測時の降雨は最大雨量が10 mm/h、累積雨量が78 mmであった(図-2)。気仙沼における過去38年間の平均年最大雨量は110 mmであり、観測対象洪水は年に2~3回生起する規模であった。

水文・SS観測の結果を表-1に示す。7月18日~19日の一雨雨量に対する流出率を短期流出率、水位計を設置していた2013年6月8日~8月2日の約3ヶ月間の流出率を長期流出率とした。短期・長期流出率は約60%となり、独自に作成したH-Q曲線は妥当であったと考えられる。大

表-1 各観測地点での水文・SS観測結果

地点名	流域面積 km ²	短期流出率 %	長期流出率 %	d50 μm	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs
大川上流	18.0	30.2	54.8	17.75	0.42
田茂木川	12.5	63.0	63.4	20.25	0.42
二十一川	15.3	62.9	50.6	22.50	0.41
八ッ瀬川	29.2	64.6	56.4	11.50	0.43
大川下流	123.8	64.5	71.9	12.25	0.47

川上流地点では短期流出率が30%と低くなったが、この流域は真砂土地帯で雨水が地下に浸透しやすく、5月から6月にかけて小雨であったことが原因していると推測された。

採取されたSSの中央粒径d50は11~23 μmであり、最大粒径はどの地点でも約300 μmであったことから、シルト成分を中心として、粘土および細砂を含む濁水が流れていたと言える。SSに含まれるCsの由来を知るため、Cs比 (¹³⁴Cs/¹³⁷Cs) を計算したところ、約0.43となった。原発事故の影響だけを受けたと考えられる山林表土を分析したところ、Cs比は2011年3月時点で0.92であった。そこから¹³⁴Csと¹³⁷Csが指数関数的に減少してゆくと、放出から28ヶ月後(2013年7月18日)のCs比は理論上0.44となる。したがって、今回分析したSSサンプルには主に福島第一原発に由来するCsが吸着していると考えられる。

SSサンプルのd50とCs濃度 (¹³⁴Cs+¹³⁷Cs) をプロットすると(図-3)、両者には明確な関係性は認められなかった。Tanakaら⁷⁾は粒径が20 μmより細かい分画において¹³⁷Cs濃度(Bq/g)が上昇する傾向を示したが、図-3はむしろ逆の傾向にも見える。これは採取したSSが0.5~300 μmの広い粒径範囲を含むため、細粒分と粗粒分の混合割合によってCs濃度が変化し、明確な傾向が現れなかったものと推測される。

4. 粒径分画によるCsの検討

(1) 分画方法

本研究ではSSの粒度分布を測定した後に、40 μm、20 μm、0.3 μmの3種類のフィルターによりろ過したが、両者の質量には明確な違いが見られた(図-4a)。例えば図-4aでは、粒度分布から求まる40 μm上の累積質量は0.295gであるが、フィルター残留量は0.444gであり、フィルター上に1.5倍の土砂が捕捉されている。逆に、20 μm下の累積質量は0.458gであるが、0.3 μmのフィルター残留量は0.288gであり、63%しか捕捉されていない。今回のろ過時間はフィルター1枚あたり5~15秒と短く(40 μm、20 μm)、目詰まりしないように工夫したものの、結果的には目合いよりも細かい土砂が捕捉されたと考えられる。既往の研究ではフィルター分画により粒径効果

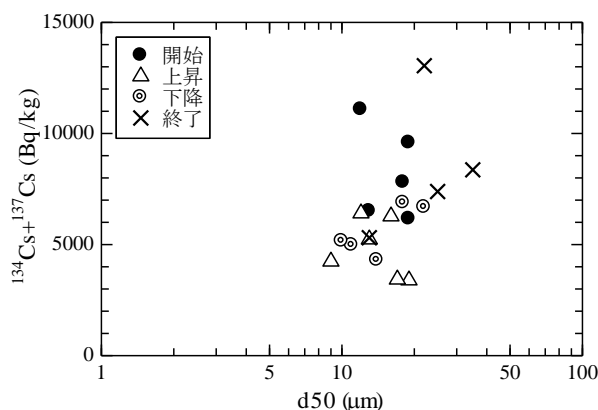


図-3 セシウム濃度と中央粒径の関係

を議論しているものもあるが、結果の解釈には注意を要すると言える。

そこで、本研究ではレーザー粒度分析とフィルターろ過を併用するために、目詰まりした粒径領域を対数正規分布で推定することとした。宇野ら¹⁰⁾や小林ら¹¹⁾は河口域の堆積土砂の粒度分布が対数正規分布の組み合わせで表現できるとしている。

$$f(D) = \frac{1}{\log \sigma_i \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{(\log D - \log D_i)^2}{2 \log^2 \sigma_i} \right\} \quad (1)$$

ここで、 f は粒度分布曲線、 D は粒径、 D_i は第*i*成分のモード径、 σ は幾何学標準偏差である。

作業手順は次の通りである。まず、40 μm上の残留土砂については粒度分布曲線をそのまま適用し、40 μm未満の粒度分布は対数正規分布の片側を当てはめる。このとき、粒度分布の累積質量がフィルター残留量に一致するように σ を調整する(図-4b)。次に、20 μm上については元の粒度分布から先に推定した対数正規分布を差し引き、フィルター残留量との不足分を先ほどと同様に20 μm未満の粒度分布として推定する(図-4c)。0.3 μm上の粒度分布は2つの分画の残りとなる(図-4d)。 σ は全サンプルを通じて3つに限定した。

なお、図-4b~dは3つの分画が比較的きれいに分離できた例であるが、サンプルの約半数は40 μm分画の質量が全体の約80%を占め、そのために20 μm分画の下側粒度分布が40 μm分画と重なった。つまり、40 μm分画が細粒分を多く含んでいることになるので、この場合は質量、粒度分布、セシウム濃度のいずれに対しても40 μm分画から20 μm分画を引いて、粗粒分に限定したデータを作成した。

最後に、得られた各分画の粒度分布からd50を求めた。

(2) 中央粒径とCs濃度の関係

d50とCs濃度の関係を流域別にプロットすると図-5が得られた。全体的には右肩下がりのようにも見えるが、全データを重ねると傾向は分かりにくい。個別に見ると、田茂木川、八ッ瀬川、大川下流では粒径

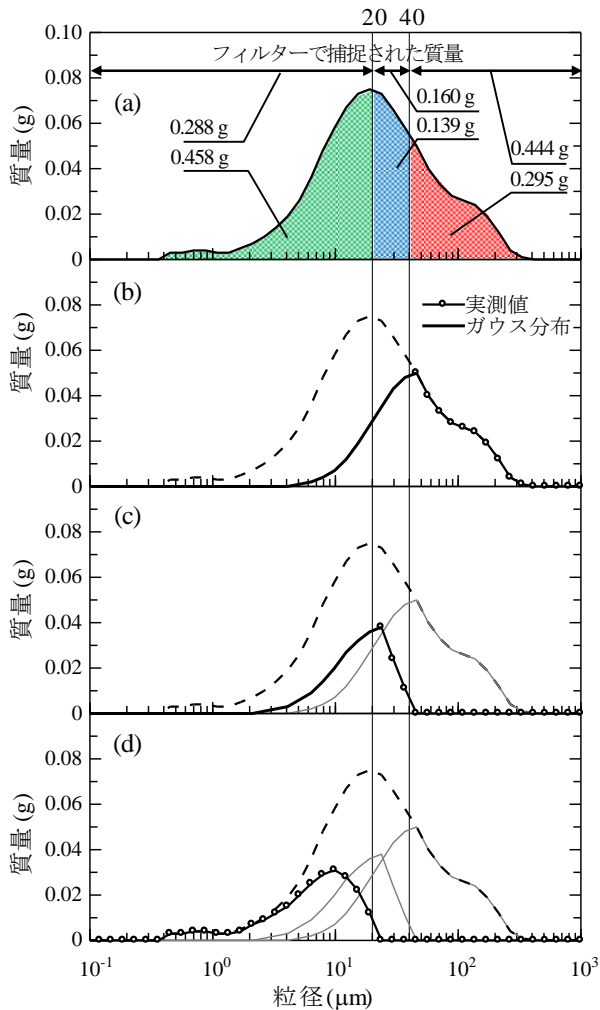


図-4 対数正規分布を利用した区分方法

が大きくなるほど Cs 濃度が低下する傾向が見て取れる。中央粒径が $5 \mu\text{m}$ のとき Cs 濃度は $1500 \sim 2500 \text{ (Bq/kg)}$ であり、 $50 \mu\text{m}$ のときは $1000 \sim 2000 \text{ (Bq/kg)}$ であり、粒径が 10 倍になると Cs が約 70% になった。また、大川上流や田茂木川といった上流域では下流域と比べて Cs 濃度が $500 \sim 1000 \text{ (Bq/kg)}$ ほど高く、矢越山を中心に Cs 濃度が高いという航空機モニタリングの結果⁹⁾と合致する

ただし、大川上流や二十一川ではばらつきが大きい。Cs 濃度が突出しているデータは洪水開始時や終了時のものであり、Cs 濃度には粒径だけではなく SS の流出過程も影響している可能性が考えられる。

そこで次に、同じグラフを洪水のフェーズで分けてプロットした(図-6)。洪水の開始時(立ち上がり期)には d_{50} と Cs 濃度の間に明確な負の関係性が見られ、上昇期には傾きが小さくなってわずかに負の関係性が見て取れる。下降期になると Cs 濃度は粒径にかかわらず一定の値を取った。上昇期はいわゆるファーストフラッシュが発生し、森林の表土や水路側溝、溪流河床などに堆積していた Cs を多く含む土

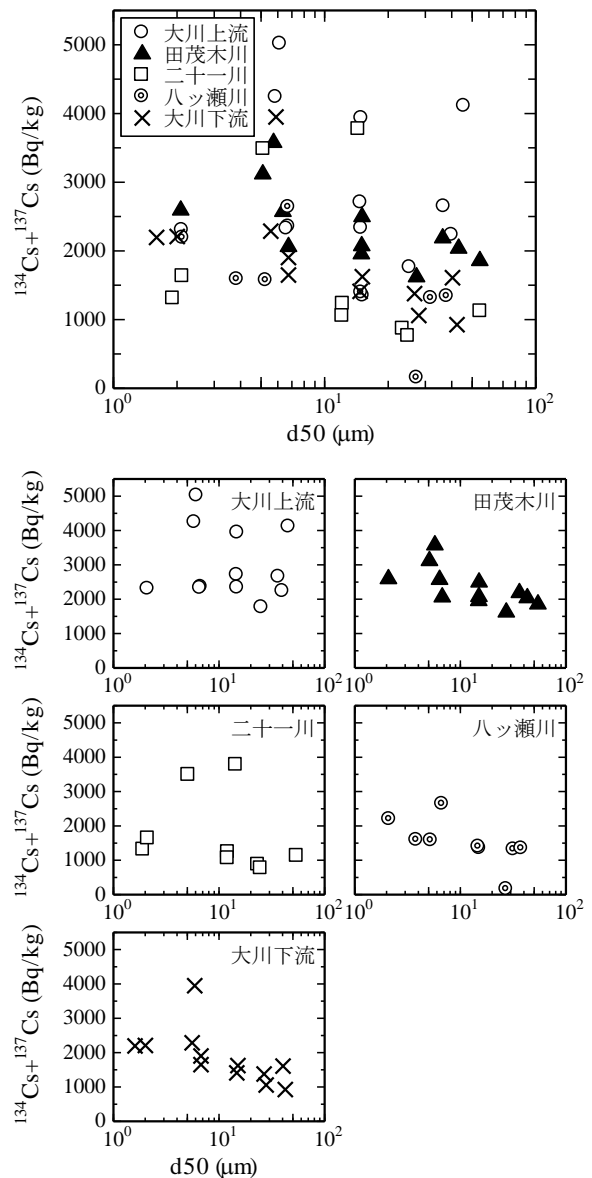


図-5 セシウム濃度と中央粒径の関係

砂が流出することで、高濃度でかつ粒径との関係性が明確になる可能性がある。洪水のピーク付近では強い浸食力で Cs をあまり含まない深層の土砂も流されるため、粒径に関わらず一定の濃度になったと考えられる。

終了期は再び Cs 濃度は高まるものの、データの分散が大きく粒径との対応は明確でない。

(3) セシウム輸送量に関する考察

SS濃度とCsの水中濃度の関係は図-7のようになった。Cs濃度 (Bq/kg)は単位土砂あたりの吸着量であるため、それにSS濃度を乗ずることでCsの水中濃度 (Bq/m³)とした。両者には正の相関がみられ、懸濁土砂とともにCsが移動する様子が明確に分かる。

ただし、粒径による違いはほとんど分からない。図-6

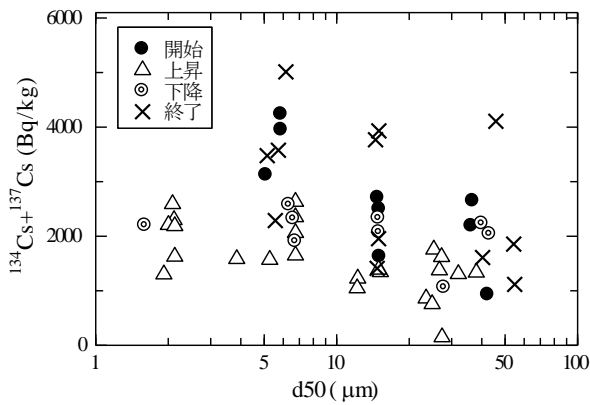


図-6 Cs濃度と中央粒径の関係

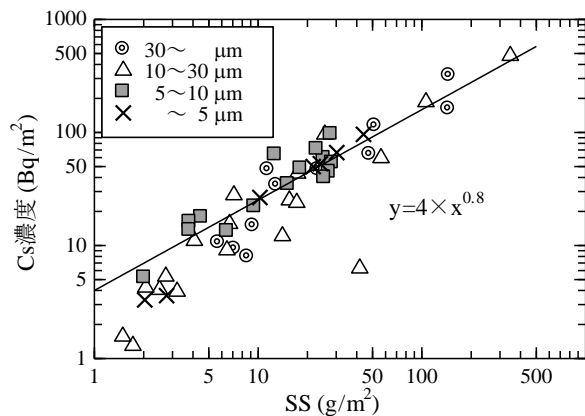


図-7 Cs濃度とSSの関係

で示したように粒径によるCs濃度の違いが1.5～2倍であるが、SS濃度は数百倍変動するので、Cs濃度にSS濃度を乗じてCs水中濃度とすると、粒径による差が見えなくなると考えられる。

次に、Csに関するL-Q関係を粒径別に整理した(図-8)。先ほどのCs水中濃度に流量を乗じて流域面積あたりに換算し、比Cs輸送量とした。こちらも比流量が増加すると比Cs輸送量が増大する傾向が見られるが、例えば5～10 μmの粒径について、比流量が0.5 m³/s/km²のときに比Cs輸送量は3～180 Bq/s/km²となり、60倍の開きがある。また、粒径別の違いは明確でない。

L-Q関係を既往の文献と比較すると図-9が得られた。松永⁹⁾が示したFig.2-7よりデータを引用し、1日あたり・単位面積あたりで再整理した。また、本研究のデータは3分画の合計量を使っている。その結果、1980年代後半の久慈川のL-Q関係と2013年の大川のL-Q関係は勾配(べき指数)が概ね等しく、絶対値が100倍異なることが分かった。久慈川流域の土地利用は山林が87%、農地が12%であり、大川と類似していることからCs輸送特性も類似したものになったと考えられる。絶対値が異なるのはCsのフォールアウト量の違いによる。

さて、以上の整理をふまえてCs輸送量の推定方法を考察する。粒径別に推定するのであれば、L-Q関係(図-8)

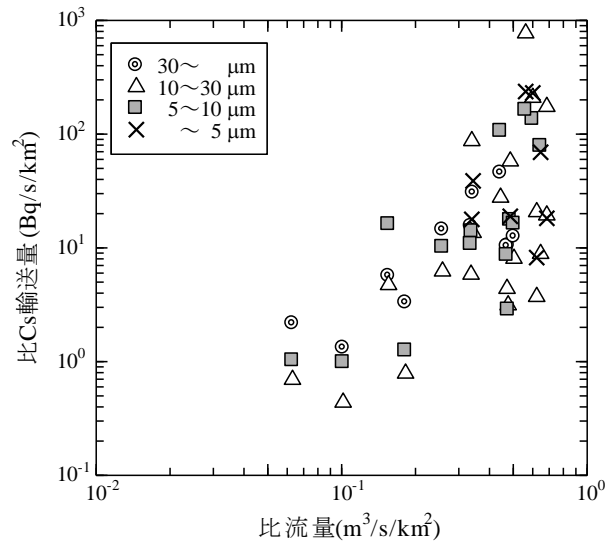


図-8 比流量と比Cs輸送量の関係

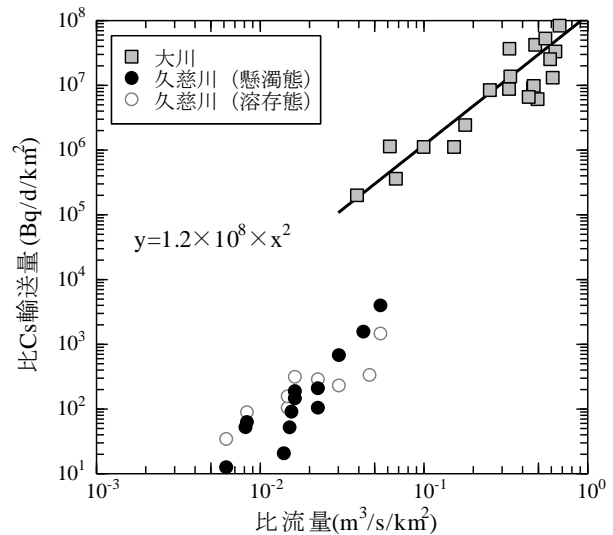


図-9 比Cs濃度と比流量の関係
(文献⁹⁾より引用・再作成)

を使うよりもSSとCsの関係(図-7)を使った方が精度が高くなる。すなわち、河川で濁度モニタリングを実施し、濁度からSSに換算し、さらに図-7からCs水中濃度を推定する。これに、流量を乗ずればCs輸送量時系列を計算できる。一方、粒径を無視してCsの全量を推定するのであれば、図-9に示したL-Q関係を使えば、流量データのみからCs輸送量時系列を推定できる。

5. 結論

本研究では流域から河川を通じた土砂・セシウム輸送特性を粒径別に明らかにするために、大川流域を対象にして洪水時の水文観測ならびに採水観測を実施した。採取したサンプルを粒度分析し、さらに3種類のフィルターを用いて分画し、SS濃度および¹³⁴Csと¹³⁷Csの濃度を分

析した。

その結果、フィルター分画だけでは正確な粒径が分からないことが判明し、粒度分析結果に対数正規分布をあてはめて3つのフィルターに対する粒度分布を推定した。得られた粒度分布から中央粒径を求め、Cs濃度との関係を求めることができた。

Cs濃度は粒径の増大と共に減少するが、かならずしも単一の関係性ではなく、洪水の初期には濃度が高い傾向にあることが分かり、洪水流出過程の影響を受けていると推測された。Cs濃度とSS濃度には良い相関が見られた。比流量と比Cs輸送量は粒径別には関係性がばらついていたが、全粒径でみれば1つのL-Q式で表されることを示した。

謝辞：本研究は科学研究費基盤A（代表者：横山勝英），三井物産環境基金・2011年度東日本大震災興助成および、みなと総合研究財団・平成25年度未来のみなとづくり助成の援助をうけて実施された。現地調査では気仙沼舞根湾調査グループの皆様ならびに水山養殖場の皆様、室根町第12区自治会の皆様からご協力頂いた。ここに感謝の意を評す。

参考文献

- 1) BENJAMIN, C. BOSTICK, MURTHY, A. VAIRAVAMURTHY, K. G. KARTHIKEYAN, AND JON CHOROVER: Cesium Adsorption on Clay Minerals: An EXAFS Spectroscopic Investigation, *Environ. Sci. Technol.*, 36, 2670-2676, 2002.
- 2) 横山勝英, 藤塚慎太郎, 中沢哲弘, 高島創太郎: 多点濁度観測による筑後水系のSS流出・輸送特性に関する研究, *水工学論文集*, 第52巻, pp553-558, 2008.
- 3) 田中健太郎, 二瓶康雄: SSモニタリングネットワークに基づく東京湾への浮遊土砂供給特性の把握, *水工学論文集*, 第55巻, 2011.
- 4) 加藤弘亮, 恩田裕一, 平松晋也, 柏木章子, 宮本邦明: 吉野川上流長沢ダム流域における放射性同位体を用いた微細土砂供給源の推定, *砂防学会誌*, vol.58, No.2, p.5-14, 2005.
- 5) 水垣 滋, 大塚純一, 丸山政浩, 矢部浩規, 浜本 聡: 鶴川海岸の土砂生産と粒径の季節変化, *土木学会論文集 B2 (海岸工学)*, vol.69, No.2, I_671-I_675, 2013.
- 6) 松永武: 河川における放射性核種の移行と存在形態に関する研究, *日本原子力研究所*, 2001-018, 2001年6月.
- 7) Kazuya Tanaka, Hokuto Iwatani, Aya Sakaguchi, Qiaohui Fan, Yoshio Takahashi: Size-dependent distribution of radiocesium in riverbed sediments and its relevance to the migration of radiocesium in river systems after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *J Radioanal Nucl Chem*, 301, 607-613, 2014.
- 8) Aya Sakaguchi, Kazuya Tanaka, Hokuto Iwatani, Haruka Chiga, Qiaohui Fan, Yuichi Onda, Yoshio Takahashi: Size distribution studies of ¹³⁷Cs in river water in the Abukuma Riverine system following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *Journal of Environmental Radioactivity*, 1-11, 2014.
- 9) 文部科学省公式 HP: 放射線量等分布マップ拡大サイト, <http://ramap.jmc.or.jp/map/map.html>.
- 10) 宇野宏司, 中野 晋, 亘 隆司: 四国周辺の干潟における稀少種「シオマネキ」の生息地適性評価, *海洋開発論文集*, 第18巻, 2002.
- 11) 小林 侑, 佐々木努, 石川忠晴, 箕浦靖久: 利根川感潮域における底質特性の季節変動について, *水工学論文集*, 第54巻, 2010.

(2014. 9. 30受付)