

日本温泉科学会第 69 回大会

特別講演

福島第一原子力発電所事故後の大熊町夫沢地区の 自噴井戸・湧水における放射性セシウムの経年変化

小豆川勝見¹⁾*, 堀まゆみ²⁾

(平成 28 年 11 月 28 日受付, 平成 28 年 12 月 18 日受理)

Variation of the Radioactivities of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in Flowing-well Water and Sump Water, Okuma Town after the Fukushima Nuclear Accident

Katsumi Shozugawa^{1)*} and Mayumi $Hori^{2)}$

Abstract

The variation of the radioactivities of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs has been measured in flowing-well and sump water collected at Ottozawa district, Okuma town near Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station from April 2015 to September 2016. Although the severe contamination was not detected in water of flowing-well, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs were continuously observed in the range of 3.3–6.1 Bq/kg in sump water during study period. By taking into the consideration of their ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs activity ratios, the sources of contamination were estimated to be mainly due to the Units 2 and 3, not Unit 1. As of September 2016, flow rate of sump water had been decreased from 300 mL/min to 4.2 mL/min, however, no change in the radioactivity was confirmed. Surface facing and pump-up from the sub-drain were suggested to be effective for reducing the amount of leakage to the outside of the power station. However, it is suggested that the groundwater, which had contacted with the pollution source inside the power station, has been continued to flow out.

Key words : Radiocesium (134Cs, 137Cs), flowing-well, sump water, Fukushima nuclear accident

¹⁾東京大学大学院総合文化研究科 〒153-8902 東京都目黒区駒場 3-8-1. ¹⁾Graduate school of arts and sciences, The University of Tokyo, 3-8-1 Komaba, Meguro, 153-8902 Tokyo. *Corresponding author: E-mail cshozu@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp, TEL/FAX: 03-5454-6566

²⁾東京大学教養学部附属教養教育高度化機構 〒153-8902 東京都目黒区駒場 3-8-1. ²⁾Komaba Organization for Educational Excellence (KOMEX), The University of Tokyo, 3-8-1 Komaba, Meguro, 153-8902 Tokyo.

要 旨

2015年4月から2016年9月にかけて東京電力(株)福島第一原子力発電所近傍の大熊町夫 沢地区における自噴井戸および湧水に含まれる¹³⁴Csおよび¹³⁷Cs(放射性セシウム)を継続し て観測した結果,自噴井戸水は最大で0.11 Bq/kg(¹³⁷Cs),多くが¹³⁷Csの検出下限値(約0.05 Bq/kg)以下であり,明らかな汚染水の混入は確認されなかった.しかし,発電所南側の湧水 からは3.3-6.1 Bq/kgの放射性セシウム(¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)が継続して観測された.湧水中の¹³⁴Cs/ ¹³⁷Cs放射能比から判断すると,湧水の汚染源は2号機または3号機に由来し,1号機由来の可 能性は低い.また,2016年9月までの採水・分析結果において,湧水の吐出量は300 mL/min から4.2 mL/minに減少する傾向が確認されたが,放射性セシウムの濃度変化は確認されなかっ た.研究期間中に施工された汚染水対策のうち,発電所構外への漏洩量の低減には路面フェー シング,サブドレンからの地下水くみ上げが有効である事が示唆されるが,これらの対策を 行っても汚染源と接触した地下水が発電所構外に流出し続けていることが明らかになった.

キーワード:放射性セシウム(¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs),自噴井戸, 湧水, 福島第一原子力発電所事故

1. はじめに

2011年3月11日から発生した東京電力(株)福島第一原子力発電所事故によって,推定で77万 TBq (770PBq)の放射性物質が大気中に飛散し,INES基準ではレベル7の事故と推定される未 曾有の大災害となった.廃止措置(廃炉)に向けた各方面の努力の結果,敷地内では空間線量率の 大幅な低減したエリアが拡大しつつあり,これに伴って作業環境も大きく改善した.2011年4月 に原子力発電所正門付近で約100µSv/hであった空間線量率(Shozugawa *et al.*,2012)は,2016年 10月には約1µSv/hにまで漸減した.同時に作業員の防護服および全面マスクの規制が大幅に緩 和された.しかし,その一方で,2016年10月現在の空間線量率は,1号機建屋周辺で0.45 mSv/h, 2号機周辺で0.13 mSv/h,3号機周辺で0.35 mSv/hである(東京電力,2016).建屋内には更に高 線量となる場所も存在し,作業可能な時間・人材ともに限られる.最大の課題である溶け落ちた燃 料デブリの取り出しには,その手法を検討している段階に過ぎない.このように,発電所構内では 一部には環境の改善傾向が見られるものの,依然として事故そのものの収束までには多くの困難が 残されている.

廃止措置の過程のひとつに汚染水対策が挙げられる.2016年10月現在,発電所西側からの地下 水が1日あたり約300tが建屋内に流れ込むことで新たな汚染水が発生している.汚染水を港湾か ら海洋へ流出させないために,あるいは,貯蔵タンクから汚染水が漏れ出すリスクを下げるために, 貯蔵タンク周辺の路面フェーシング(東京電力,2015)(研究対象地域周辺は2014年10月に施工), サブドレンからの地下水の汲み上げ(東京電力,2014)(2015年9月3日本格運用開始),海側遮 水壁(東京電力,2015)(2015年10月26日完成),陸側遮水壁(東京電力2016)(建屋周辺の凍土 壁,2016年3月31日凍結開始)など複数の対策がなされている.

原子力発電所構内および港湾内では,汚染水に対する監視体制が敷かれている(東京電力 2016) ものの,発電所構外においては,避難指示区域(主に帰還困難区域)に指定されていることから, 定期的な調査が難しい.

陸上における放射性物質の分布・減衰・易動性についてはこれまでの先行研究(Gale, et al., 1964),モニタリングポスト,および車両サーベイにより得られた空間線量率の推移から一定の傾向を推定することができる(Kinase, et al., 2014).しかし,その一方で,水圏への移行の情報は限られている。日本のCsの土壌一土壌溶液間の分配係数Kdは200から8000(n=17,平均2500)(井上, 1976)であり,水圏への移行は極めて低いことが知られている。そのため,環境水(井戸水等)に含まれる放射性セシウムの濃度は土壌に比較して極めて希薄となり,定量には一般的に1試料あ

第 66 巻 (2016) 福島第一原子力発電所事故後の大熊町夫沢地区の自噴井戸・湧水における放射性セシウムの経年変化

たり数日間のガンマ線測定時間を要するなど測定上の困難がある. さらに,発電所境界付近の経年 変化は,汚染水対策の効果を評価する上でも極めて重要な情報であるにもかかわらず,測定回数が 限られていることもあり,僅かな知見しか存在しない.

本研究では、発電所構外の大熊町夫沢地区(発電所境界から数百メートルの範囲内)で採水された2カ所の環境水(自噴井戸および湧水中)に含まれる¹³⁴Cs,¹³⁷Csに着目し、2015年より2016年にかけて採水・定量を行った。その放射性セシウムの経年変化から、地下水を経由して井戸等に到達するまでのルートおよび研究期間内に行われた汚染水対策(路面フェーシング・サブドレンからの水抜き・海側遮水壁・凍土壁)の効果について間接的な評価を行った。

2.1 採水地点

採水は福島県双葉郡大熊町 (Fig. 1) 夫沢地 区 (帰還困難区域内) における自噴井戸およ び湧水地点で行った. 自噴井戸は民家内にあ り,発電所境界からは直線で約 500 m の地点 にある. 東日本大震災 (2011 年) 以前は動力 で揚水していた家庭用井戸であるが, 震災後 に自噴するようになった. 井戸周辺の空間線 量率は 4-6 µSv/h (Hitachi Aloka TCS-172, 地上高1m)であった. 自噴水は既設の塩ビ管 から直接採水していることから, 採水時に水 が地表面に直接触れることはない (Fig. 2).

一方で、湧水は夫沢地区内を流れる夫沢川 近くで採水され、発電所境界からは約40mで ある。湧水周辺の空間線量率は18-27 µSv/h (同)であった。湧水は地中に埋め込まれた 塩ビ管を通じて採水され、採水瓶に到達する までの間に表層土壌に触れることはない。研 究期間は2013年12月より2016年9月まで であり、この間の採水回数は10回である。(そ の内、2013年12月および2014年8月の採水・ 分析は大熊町による)。

自噴井戸, 湧水の両地点とも 0.3-4.0L を清 浄なポリ瓶に採水し, スクリーニング検査通 過後に研究室(東京)に持ち帰った.全量を 0.45 µm メンブランフィルターで濾過し, 溶 存態のみを測定対象とした. ガンマ線測定に は 2.0L を用いるため, 不足の場合には純水 で希釈し, 測定後に補正した.



Fig. 1 Location of Okuma town and Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station



Fig. 2 Collecting water from flowing-well in Ottozawa district, Okuma town, Fukushima.

2. 実 験

2.2¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs の定量方法

濾過後の水試料は公定法(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:文部 科学省,1992)によりガンマ線測定を行った.容量2Lのマリネリ容器に封入後,高純度Ge半導 体検出器(Canberra 社製GC2518)を用いたガンマ線測定によって、¹³⁴Cs,¹³⁷Csを定量した.¹³⁷Cs は0.662 MeVの光電ピークを放射能の算出に用いたが、¹³⁴Cs はサム効果の補正を考慮し、放出率 が大きい複数の光電ピーク(0.604 MeV, 0.795 MeV, 0.801 MeV)を用いて、放出率に応じた荷重平 均を用いて放射能を算出した.較正には、9 核種混合ガンマ体積線源(MX033MR,日本アイソトー プ協会)を用いた.試料自身による自己遮蔽はCanberra 社のデータベースを用いて補正し、土壌 認証標準物質(JSAC0471,0472,0473)の認証値と拡張不確かさの範囲で放射能が一致しているこ とを確認した.測定時間は試料の放射能に応じて 84,000 秒から 220,000 秒とし、Covell 法(Covell 1959)により検出下限は3σとした.また、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比は事故当時に補正した放射能から算出した ほかは、すべて採取時点に補正した.

3. 結果と考察

3.1 吐出量の経年変化と汚染水対策との関連性

Fig. 3に研究期間内の自噴井戸および湧水の1分あたりの吐出量と4種類の汚染水対策(路面フェーシング・サブドレンからの水抜き・海側遮水壁・凍土壁)の施工時期および本格運用開始時期を示した. 自噴井戸の吐出量は研究期間を通じて約36L/minであり,常に一定であった. その一方で,湧水の吐出量は2015年8月までは300 mL/minを維持していたが,2015年10月には120 mL/minに減少した. さらに2016年3月には1.1 mL/minにまで減少した¹. その後,吐出量は2016年5月には18.7 mL/minに増加したものの,9月には4.2 mL/minに減少した.

湧水の吐出量は建屋周辺のサブドレンからの汲み上げ直後から減少した.大熊町の採水・分析に よれば、2014年10月に採水した湧水中には³Hが20Bq/kg確認されている一方で、自噴井戸水に 含まれる³Hは検出限界(約1Bq/kg)以下であった.湧水中の³Hは地下水としてのレベルを明ら かに超えている(馬原ほか、1996)ことから、湧水には原子力発電所内の汚染水が混入している. 湧水の吐出量の大幅な減少はサンプリング前に施工された路面フェーシングおよびサブドレンから の汲み上げが原因である可能性が高い.

3.2 放射性セシウムの経年変化

Fig. 4 に自噴井戸および湧水における¹³⁴Cs および¹³⁷Cs の経年変化を示した. 2013 年 12 月およ び 2014 年 9 月の測定は大熊町による測定である. 自噴井戸では、¹³⁴Cs はすべての試料で検出下限 値(約 0.05 Bq/kg)以下,かつ、¹³⁷Cs は最大でも 0.11±0.02 Bq/kg であり多くが検出下限値(約 0.05 Bq/kg)以下であった. 期間中の汚染水対策の施工・運用による濃度変化は確認できない. しかし、 湧水では、すべての試料で¹³⁴Cs,¹³⁷Cs が検出され、両者の合計である放射性セシウムとして 3.3-6.1 Bq/kg が継続して検出され、研究期間内において、明らかな濃度変化は確認されなかった.

福島県の調査では、福島県浜通(ただし、浪江町、双葉町、大熊町、富岡町は未公開)における飲 用井戸水から放射性セシウムが検出限界(1Bq/kg)を超えて検出されたことはない(福島県, 2016). しかし、大熊町における町内の井戸水の調査では、発電所周辺の井戸から検出下限(約1Bq/kg)以 下から 5.0 Bq/kg を観測し(大熊町, 2014)、湧水とほぼ同じレベルといえる、湧水の吐出量は、路

¹許可される調査時間は1日あたり最大7時間であり,2016年3月の湧水の全採水量は約300mLであった.



Fig. 3 Discharge rate of sump water (○, mL/min) and flowing-well water (●, L/min).



Fig. 4 Variation of ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs radioactivity (Bq/kg) in sump water (○) and flowing-well water (■), and beginning date of several projects inside the nuclear station.



Fig. 5 ¹³⁷Cs radioactivity in water collected inside the Fukushima nuclear power station
(•), and flowing-well (■, outside of the power station) and sump (○, outside of the
power station).

面フェーシング施工およびサブドレン汲み上げ開始時期後から 300 mL から 4.2 mL と 1.4% まで減 少したが,放射性セシウム濃度の変動幅は小さくほぼ一定(4.2±0.83 Bq/kg)であった.したがっ て,発電所構外に漏洩している放射性セシウムの絶対量は期間中に大幅に低減したものの,汚染源 に接触した地下水が継続して発電所構外に漏洩し続けている事が示唆された.

環境中の放射性セシウムは液一固相間では固相(土壌)に大きく平衡が偏る(井上ら,1976)に もかかわらず,経年的に井戸水から観測されるということは、1)汚染源が高濃度である、2)汚染 源は低濃度であるが、地下水の流路内が既に平衡に達している、という2つの状態が考えられる. Fig. 5は2015年4月から2016年1月の間に福島第一原子力発電所構内で採水された地下水(地下 水観測孔・ドレン汲み上げ水など)に含まれる¹³⁷Cs(Bq/kg)の測定値(n=422)(東京電力2016) と、湧水および自噴井戸の測定値を示した.構内で採水された水試料に含まれる放射性セシウムの 放射能は、構外(湧水・自噴井戸)で観測された値の10¹-10⁵倍の分布であった.放射性セシウムの 力集一土壌溶液間の分配係数(K_d)がおおむね10³オーダーである(井上ら,1976)ことから、 湧水の汚染源は10⁴Bq/kg以上の汚染水が可能性として挙げられるものの、一方で湧水が地表面に 到達するまでの土壌で既に土壌一土壌溶液間で放射性セシウムが平衡に達している可能性もある. そのため、構内から湧水までの漏洩ルートを明らかにするためには放射能以外の推定方法が必要と なる.

3.3 ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比からの汚染源推定

¹³⁴Cs に対する¹³⁷Cs 放射能比(¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比)は原子炉の汚染源を推定する上で極めて有効な指標 である(Komori, *et al.*, 2013). Fig. 6 には湧水中の¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比と発電所構内における各原子炉建 屋(1,2,3号機)の溜まり水に含まれる¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比を示した.なお、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比の算出に限って¹³⁴Csと¹³⁷Csの放射能は原子炉スクラムさせた時点(2011年3月11日14時46分)で補正した. 東京電力による2011年3月のサンプリング情報(東京電力本店原子力情報コーナーにおける情

報公開)から、各号機の¹³⁴Cs/¹³⁷Cs放射能比を求めたところ、1号機(n=4)が0.901±0.018、2号

1.6 1.4 Reactor 2 Ratio of ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs radioactivity Reactor 3 1.2 1.0 0.8 Reactor 1 0.6 0.4 2014/01 2014/07 2015/01 2015/07 2016/01 2016/07 Date (yyyy/mm)

Fig. 6 The ratio of ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs radioactivity in sump water as of the Fukushima accident (March 2011) from December 2013 to September 2016.

Table 1 Radioactivity in the water samples inside Fukushima Dai-ichi nuclear power station and the ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs ratio on March 2011 by TEPCO.

Reactor	Sampling point	¹³⁴ Cs (Bq/cm ³)	¹³⁷ Cs (Bq/cm ³)	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs ratio as of the accident
1	inside T/B	$1.59\mathrm{e5}~\pm~2.4\mathrm{e2}$	$1.82e5 \pm 2.0e3$	0.885 ± 0.0017
	sub-drain	5.17 ± 0.080	5.90 ± 0.089	0.890 ± 0.019
	trench	1.05 ± 0.024	1.14 ± 0.022	0.931 ± 0.027
	shaft	0.695 ± 0.031	0.785 ± 0.029	0.899 ± 0.052
2	pool	$3.08e6 \pm 1.8e4$	$3.03e6 \pm 1.6e4$	1.029 ± 0.0081
	inside T/B	$2.27e6 \pm 9.2e3$	$2.27e6 \pm 9.5e3$	1.011 ± 0.0059
	inside T/B	$2.24e6 \pm 9.0e3$	$2.24e6 \pm 8.4e3$	1.013 ± 0.0056
	shaft	$1.99\mathrm{e}6 \pm 4.6\mathrm{e}3$	$2.00\mathrm{e}6 \pm 4.9\mathrm{e}3$	1.010 ± 0.003
	sub-drain	0.700 ± 0.078	0.631 ± 0.077	1.129 ± 0.1867
3	inside T/B	$1.79\mathrm{e}5 \pm 6.2\mathrm{e}2$	$1.80\mathrm{e}5\pm6.6\mathrm{e}2$	1.005 ± 0.005
	inside T/B	$5.50e4 \pm 1.5e2$	$5.58e4 \pm 1.3e2$	0.998 ± 0.0035
	shaft	20.5 ± 0.19	$21.2~\pm~0.20$	0.985 ± 0.013
	sub-drain	10.2 ± 0.12	$10.4~\pm~0.11$	0.996 ± 0.016

機(n=5)が1.04±0.046,3 号機(n=4)が0.996±0.00075となった(Table 1).その一方で,湧水の¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比は採水時期によって揺らぎがあるものの,研究期間を通じた平均は0.99±0.083(1σ)であった.t検定を行ったところ,対象間の平均値に差がない確率p値が,湧水に対して2号機および3号機ではそれぞれp=0.27,0.98(等分散,両側検定)と有意差は認められなかったのに対して,湧水と1号機間ではp=0.026(等分散,両側検定)であることから有意差が認められた.

このことから, 湧水中の放射性セシウムが1号機由来ではなく2号機由来または3号機由来であることを強く示唆している. 湧水は発電所南側にあることから, 相対的な距離は近い順に3号機,2号機,1号機となることもこの推定を間接的に支持している. ただし, 湧水の滞留時間が明らかではないことや各号機から輸送させた後の水が構外に漏洩している可能性もあることから,¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比のみから湧水の直接の汚染源を示すことはできない.

そのため、更なる汚染源の解明には、継続的な流量変化の観測の他に、湧水の滞留時間の測定や ¹²⁹I/¹²⁷I 比、³H などの分析が有効であると思われる。

4. まとめ

大熊町夫沢地区における自噴井戸および湧水に含まれる¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比から, 湧水には主に 2号機または3号機に由来する汚染水が継続的に混入していることが明らかになった. 湧水の吐出 量が減少した原因は貯蔵タンク周辺の路面フェーシングおよびサブドレンからの地下水汲み上げに よる効果の可能性があるが, 依然として構内の高濃度の汚染水が構外に漏洩し続けている事が分 かった. 今後は自噴井戸の年代, 湧水の滞留時間および他核種の定量値などから更に汚染ルートの 解明が進むことが期待される.

謝 辞

本研究の遂行にあたり大熊町役場の皆様には多大なご協力を頂きました. 深く御礼申し上げます. 本論文の一部の内容は,日本温泉科学会第69回大会(2016年9月8日)における特別講演で発表 の機会を頂きました.本研究は,温鉱泉と直接関係がありませんが,今後これらのデータをベース に温鉱泉水に絡む地下水に関しても研究を継続していきたいと考えています.大会関係者の皆様に 御礼申し上げます.

引用文献

- Covell, D.F. (1959) : Determination of Gamma-Ray Abundance Directly from Total Absorption Peak, Analytical Chemistry 31 (11), 1785–1790.
- 福島県 (2016): 飲用井戸水等のモニタリング検査結果 (浜通り地方), http://www.pref.fukushima. lg.jp/site/portal/ps-drinking-idowater-monitoring-hama.html.
- Gale, H., D. Humphreys and E. Fisher (1964) : Weathering of caesium-137 in soil, Nature 201 (AERE-R-4241).
- 井上 頼, 森澤 眞 (1976). 放射性核種の土壌と水との間の分配係数値, 日本原子力学会誌 18 (8), 524-534.
- Kinase, S., T. Takahashi, S. Sato, R. Sakamoto and K. Saito (2014) : Development of prediction models for radioactive caesium distribution within the 80-km radius of the Fukushima Daiichi nuclear power plant, Radiation protection dosimetry 160 (4), 318–321.

Komori, M., K. Shozugawa, N. Nogawa and M. Matsuo (2013) : Evaluation of Radioactive

Contamination Caused by Each Plant of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Using ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs Activity Ratio as an Index, Bunseki Kagaku **62** (6), 475–483.

文部科学省(1992):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.

大熊町(2014):平成26年度井戸水放射性物質濃度測定.

Shozugawa, K., N. Nogawa and M. Matsuo (2012) : Deposition of fission and activation products after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident, Environmental Pollution 163, 243-247.

- 東京電力(2014):福島第一原子力発電所サブドレン他水処理施設の浄化性能確認試験の開始について.
- 東京電力(2015):海側遮水壁閉合作業について,http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/ handouts/2015/images/handouts_150909_09-j.pdf.
- 東京電力(2015):発電所敷地内のフェーシング等進捗状況について,第23回廃炉・汚染水対策現 地調整会議資料,http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/ osensuitaisakuteam/2015/pdf/0730_3_6h.pdf.
- 東京電力(2016):福島第一サーベイマップ(平成28年10月分), http://www.tepco.co.jp/ decommision/news/data/sm/images/f1-sv-20161018-j.pdf.

東京電力(2016):福島第一原子力発電所 陸側遮水壁の凍結運転開始について, http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2016/images1/handouts_160331_03-j.pdf.

- 東京電力(2016):福島第一原子力発電所における日々の放射性物質の分析結果 X. 地下水, http://www.tepco.co.jp/decommision/planaction/monitoring2/groundwater/index-j.html.
- 東京電力(2016):福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の分析結果, http://www.tepco.co.jp/ decommision/planaction/monitoring/index-j.html.
- 馬原 保 (1996):環境放射能測定による地下水年代の推定—トリチウムと溶存へリウムの活用例—, RADIOISOTOPES 45 (7), 435-445.