

6 研究活動報告

環境科学国際センターでは様々な調査研究活動を実施している。それらの成果については積極的に発表し、行政、県民、学会等での活用に供している。学術的な価値のあるものについては論文にまとめて学術誌へ投稿することにより発表しているが、それ以外にも比較的まとまった成果は多い。ここではこれらの調査研究成果のうち、論文や種々の報告書に掲載されていないものを紹介する。今号では、当センターで研究活動を実施しているもののうち、令和2年度に取りまとめた成果や情報について報告する。

6.1 研究報告

埼玉県内の水系における放射性セシウムの実態把握 野村篤朗、伊藤武夫、大塚宜寿、
養毛康太郎、堀井勇一、竹峰秀祐、渡辺洋一、茂木守、三宅定明、佐藤秀美、竹熊美貴子、長浜善行、加藤沙紀

6.2 資料

GISデータで見た埼玉県土の土地利用変遷と地域特性 嶋田知英
埼玉県加須市における湿性沈着の長期観測結果 松本利恵
エンジンオイル等の異同識別を目的とした1-ニトロピレンのLC/MS/MS分析 野尻喜好、柿本貴志

埼玉県内の水系における放射性セシウムの実態把握

野村篤朗 伊藤武夫 大塚宜寿 蓑毛康太郎 堀井勇一 竹峰秀祐 渡辺洋一 茂木守
三宅定明* 佐藤秀美* 竹熊美貴子* 長浜善行* 加藤沙紀*

要 旨

平成23年3月に発生した福島第一原子力発電所事故により放出された放射性セシウムは、大気、土壌、河川水等様々な媒体を通じて環境中を移動し、長期に渡って環境中に残留する。本研究では、埼玉県内河川及び埼玉県環境科学国際センター生態園の池を対象として、水質、底質及び水生生物に含まれるセシウム137の放射能濃度を調査した。その結果、県内河川と生態園では放射能濃度の変化に寄与する形態が異なることが確認された。また、生態園において、水生生物の放射能濃度は直近の水質の影響を受けること、溶存態のセシウム137の放射能濃度は、底質からの溶出と水生生物、懸濁物質及び底質への移行によって変化することが分かった。

キーワード: セシウム137、放射能濃度、水質、底質、水生生物

1 背景と目的

平成23年3月に発生した福島第一原子力発電所事故により、セシウム134、セシウム137といった人工の放射性物質が環境中に放出・拡散し、その一部は埼玉県まで到達した。放射性物質は、土壌、水、動植物等を介して環境中を移動し、長期にわたって環境中に残留すると考えられ、環境中の放射性物質の濃度を把握し、その動態を明らかにすることは県民の安心、安全の確保にとって重要となる。

埼玉県内における環境放射能の調査として、埼玉県環境科学国際センター生態園を対象とした放射能濃度調査が実施されている^{1,2)}。その結果から、生態園に降下した放射性セシウムは土壌表面や林地のリター層(落葉落枝及び生物由来の有機物などの堆積層)に蓄積していること、土壌と強固に結合しているため地下浸透は容易に進行しないことが明らかになった。また、園内池の底質や水生動植物では、土壌や陸生動植物と比較して放射能濃度が高いことから、陸域の放射性セシウムの一部は、降雨等により水域に流入し蓄積されると推察された。

他にも、埼玉県では県内河川の水質及び底質を対象とした放射能濃度調査を実施している³⁾。水質については、平成24年の調査開始以降全て検出限界未満となっているが、この調査では、検出限界の高い緊急時の調査手法⁴⁾を採用しており、水質の放射能濃度の正確な数値までは把握できていない。底質についても、年によって放射能濃度が増減する地点があり、増減する理由について確かなことは分かっていない。

そこで、本研究では、埼玉県内の水系における放射性物質の汚染状況をより詳しく把握することを目的として、県内河川及びセンター生態園を対象とした水質、底質及び水生生物の放射能濃度調査を実施した。事故から7年以上経過し、セシウム134(半減期:約2年)は検出されないことも多くなったため、この調査ではセシウム137(半減期:約30年)を対象とした。

2 調査方法

2.1 調査地点

県内河川は4河川を選定し、各1地点で水質及び底質を調査した。荒川は県を代表する河川として、元荒川はセンターに近い河川として選定した。白子川と元小山川は、先の2河川と異なる河川系で、埼玉県が実施する放射能濃度調査³⁾で底質の放射能濃度が比較的高い河川として選定した。荒川以外の3河川は、上記の県調査と同じ地点で調査した。

環境科学国際センター生態園は、昭和30年代の埼玉県東部の里山をモデルとしたビオトープであり、敷地内に複数の水路及び池から成る水域が整備されている。本研究では、循環用ポンプ及び余水吐が設置された下の池において、水質、底質及び水生生物等を調査した(図1)。この水域は園内に降った雨水のみを水源としており、ポンプによって水を循環させている。そして、過剰な雨水を排出する余水吐以外には外部へ接続されていない環境になっている。

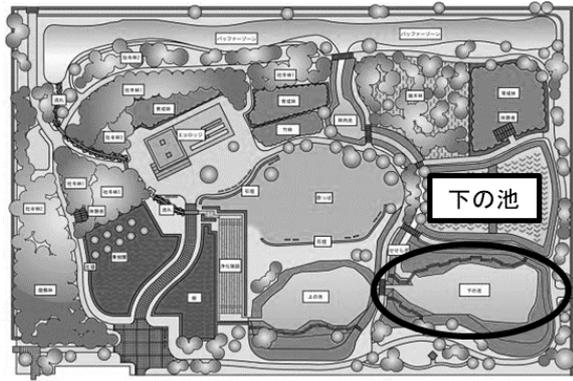


図1 生態園平面図

2. 2 水質の測定

水試料はバケツ又はひしゃくを用いて底質を巻き上げないよう表層で採水し、プラスチック製容器に塩酸を加えずに密封した。またその際、pH、EC及び強熱減量を測定するために1L程度を別のプラスチック製容器に採水した。次に行う前処理について、本研究ではプルシアンブルーフィルターカートリッジ法(以下、カートリッジ法と呼ぶ)を採用した⁵⁾。この方法は、溶存態のセシウム(セシウムイオン)と懸濁態のセシウム(懸濁物質に含まれるセシウム)を一度の前処理で別々のカートリッジに捕集し測定できる特徴がある。

まず、懸濁態セシウム吸着用カートリッジ(日本バイリン(株)製 RP13-011)及び溶存態セシウム吸着用カートリッジ(日本バイリン(株)製 CS-13ZN)をそれぞれハウジングに取り付け、懸濁態→溶存態の順に水が流れるようにハウジングをシリコンチューブで接続した。そこにペリスタルティックポンプを用いて、水試料を毎分500mLの速さで通水した。

通水後の各カートリッジを専用の容器に入れ、ゲルマニウム半導体検出器(GC2520、GC2018、GC3018、いずれもミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社)を用いて放射能濃度を測定した。減衰補正は試料採取日とした。 γ 線スペクトロメトリーから得られた結果に通水速度に応じた補正值^{6,7)}を乗じて、水1kg当たりの放射能濃度を求めた。なお、測定結果において、値が計数誤差の3倍未満の場合は不検出とした。

2. 3 底質の測定

底質はスコップ、ひしゃく等を用いて採取し、プラスチック製容器に入れて運搬した。その後、105°Cに設定した乾燥炉内で乾燥させ、目開き2mmのふるいを用いて夾雑物を除去し、粗砕して乾燥試料とした。乾燥試料はU-8容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器で放射能濃度を測定した。乾燥試料の一部は、目開き1000 μ m、250 μ m、及び63 μ mのふるいを使って粒径で分画し、それぞれの放射能濃度を測定した。

2. 4 水生生物等の測定

生態園内の水生生物として、ウシガエル、ミシシippアカミガメ(以下、カメ)、アメリカザリガニ(以下、ザリガニ)、ヒシ及び

マツモを採取した。また、放射能濃度を過去の状況と比較する際に、陸域の状況と比較できるように、生態園内でアブラゼミ、ユズ及びカキノキ(以下、カキ)をあわせて採取した。

ウシガエル、カメ、ザリガニ及びアブラゼミは虫捕り網や網カゴを用いて採取し、冷凍して一時保管した後、洗浄、乾燥及び灰化処理(450°C、24時間)を行った。ヒシ、マツモ、ユズ及びカキノキは、採取後に洗浄、乾燥及び灰化処理を行った。灰化した試料はU-8容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能濃度を測定した。水生生物等の洗浄から測定までは衛生研究所で実施した。

3 結果

3. 1 カートリッジ法と蒸発濃縮法の比較試験

本研究にてカートリッジ法を導入するにあたり、他の前処理方法との比較試験を行った。水試料を二分割してカートリッジ法及び蒸発濃縮法によりそれぞれ前処理し、測定したセシウム137の放射能濃度を比較した。蒸発濃縮法による前処理は衛生研究所で実施した。

比較試験の結果を表1に示す。カートリッジ法は溶存態と懸濁態の濃度を別々に定量するため、蒸発濃縮法との比較時には放射能濃度と計数誤差の和を求めてから比較した。同じ濃度を定量するのに、蒸発濃縮法よりもカートリッジ法のほうが長い測定時間を必要とし、また計数誤差もカートリッジ法が大きくなることが分かった。放射能濃度を比較すると、(カートリッジ法による放射能濃度) \pm (計数誤差の2倍)の範囲内に蒸発濃縮法による放射能濃度が入っていた。このことより、本研究においてはカートリッジ法による前処理で、蒸発濃縮法と同程度の正確度で放射能濃度を測定できることを確認した。

表1 前処理方法の比較試験結果

(a) カートリッジ法(溶存態+懸濁態)と蒸発濃縮法の放射能濃度					
地点	調査年月	カートリッジ法		蒸発濃縮法	
		放射能濃度 (mBq/kg)	計数誤差 (mBq/kg)	放射能濃度 (mBq/kg)	計数誤差 (mBq/kg)
生態園	H30.10	12.6	0.57	12.2	0.15
生態園	R1.9	5.1	0.53	4.1	0.15
元荒川	R2.1	2.0	0.29	2.3	0.19
生態園	R2.2	2.4	0.42	2.7	0.15
生態園	R2.9	14.0	0.46	13.4	0.24
白子川	R2.11	1.0	0.17	0.99	0.17

(b) カートリッジ法における、溶存態及び懸濁態の放射能濃度					
地点	調査年月	溶存態		懸濁態	
		放射能濃度 (mBq/kg)	計数誤差 (mBq/kg)	放射能濃度 (mBq/kg)	計数誤差 (mBq/kg)
生態園	H30.10	4.2	0.43	8.4	0.38
生態園	R1.9	5.1	0.53	不検出*	0.34
元荒川	R2.1	0.64	0.21	1.4	0.20
生態園	R2.2	1.9	0.40	0.46	0.12
生態園	R2.9	10.2	0.42	3.8	0.20
白子川	R2.11	1.0	0.17	不検出*	0.25

*不検出の場合、溶存態と懸濁態の和を求める時に値を使用していない

3.2 河川における調査結果

3.2.1 水質

河川水質の調査結果を表2に示す。溶存態セシウム137の放射能濃度は最大で1.8mBq/kg、懸濁態セシウム137の放射能濃度は最大で8.7mBq/kgであった。懸濁態は地点及び季節によって濃度が大きく増減した。一方で溶存態は、懸濁態ほど地点や季節の影響を受けておらず、いずれも2mBq/kg以下と低い数値にとどまった。

表2 河川水質の調査結果

地点	調査年月	溶存態	懸濁態	懸濁物質		
		放射能濃度 (mBq/kg)	放射能濃度 (mBq/kg)	濃度 (mg/kg)	放射能濃度 (Bq/kg)	強熱減量 (%)
荒川	H30.11	1.8	0.34	6	57	*
荒川	R1.8	1.4	2.7	10	260	18
荒川	R2.2	1.8	0.67	8	87	14
荒川	R2.5	0.58	3.3	11	300	19
元荒川	R1.7	0.51	1.5	14	110	18
元荒川	R1.9	不検出	5.7	41	270	17
元荒川	R1.12	0.61	不検出	6	-	*
元荒川	R2.1	0.65	1.4	16	85	*
元荒川	R2.3	0.64	0.79	13	63	24
元荒川	R2.5	0.66	不検出	10	-	*
元小山川	R1.12	1.3	8.7	43	410	12
白子川	R2.11	1.0	不検出	7	-	47

—: 懸濁態不検出のため計算不可 * : 測定未実施

懸濁態の状態をより詳しく把握するために、懸濁物質の濃度、放射能濃度及び強熱減量を調べた。懸濁物質の濃度は、懸濁態セシウム吸着用カートリッジの空重量と前処理後の重量から算出した。また放射能濃度は、次式により懸濁態の放射能濃度から懸濁物質1kg当たりの放射能濃度を計算した。

$$\left(\begin{array}{c} \text{懸濁物質の} \\ \text{放射能濃度} \\ \text{(Bq/kg)} \end{array} \right) = \frac{\left(\begin{array}{c} \text{懸濁態の放射能} \\ \text{濃度 (mBq/kg)} \end{array} \right) \times \left(\begin{array}{c} \text{水試料の} \\ \text{処理量 (kg)} \end{array} \right)}{\left(\begin{array}{c} \text{回収した懸濁物質の} \\ \text{重量 (mg)} \end{array} \right)} \times 10^3$$

その結果、懸濁態の放射能濃度が高い場合は懸濁物質そのものの放射能濃度も高くなる傾向がみられた。強熱減量については、懸濁態が不検出であった白子川では47%と高く、検出された3河川では12~24%と低かった。

3.2.2 底質

河川底質の調査結果を表3に示す。放射能濃度は粒径が最も小さい63μm以下の画分が高くなった。一方重量割合はどの河川も1000-250μm及び250-63μmが多く、63μm以下は少なかった。そのため、底質全体の放射能濃度に対する63μm以下の画分が占める放射能濃度の割合は、最大でも16%程度であった(図2)。元荒川、元小山川及び白子川における底質の強熱減量は2.3~7.4%であり、懸濁態よりも低かった。

表3 河川底質の調査結果

地点	調査年月	画分	重量割合 (%)	放射能濃度 (Bq/kg)	全体に対する放射能濃度の割合 (%)
荒川	R1.8	1000μm以上	0.3	*	—
		1000-250μm	37.8	4.3	10.2
		250-63μm	56.4	21	75.8
		63μm以下	5.6	40	14.0
元荒川	R1.12	1000μm以上	23.1	37	42.0
		1000-250μm	74.4	14	51.7
		250-63μm	2.1	41	4.3
		63μm以下	0.3	120	2.1
元荒川	R2.11	1000μm以上	13.7	31	19.2
		1000-250μm	73.1	15	49.1
		250-63μm	11.5	45	23.4
		63μm以下	1.7	110	8.3
元小山川	R1.12	1000μm以上	20.1	28	5.3
		1000-250μm	50.4	84	40.0
		250-63μm	24.5	190	44.0
		63μm以下	5.0	220	10.7
元小山川	R2.11	1000μm以上	16.7	20	15.6
		1000-250μm	68.8	14	45.7
		250-63μm	12.8	48	29.3
		63μm以下	1.7	120	9.4
白子川	R1.11	1000μm以上	6.6	83	6.0
		1000-250μm	75.7	53	43.5
		250-63μm	15.7	200	34.7
		63μm以下	2.1	680	15.8
白子川	R2.11	1000μm以上	14.6	78	15.6
		1000-250μm	67.8	64	59.4
		250-63μm	14.3	98	19.3
		63μm以下	3.2	130	5.7

*: 収量不足により測定できず —: 未測定のため計算不可

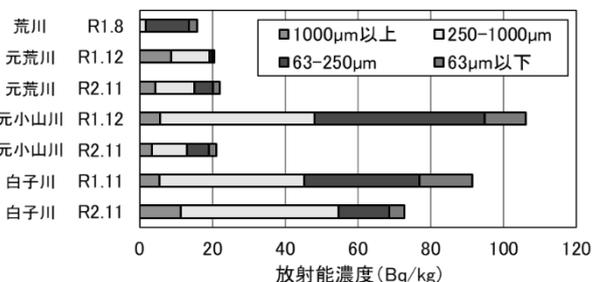


図2 河川底質の放射能濃度に占める各画分の放射能濃度の割合

表4 生態園下の池水質の調査結果

調査年月	溶存態	懸濁態	懸濁物質		強熱減量 (%)
	放射能濃度 (mBq/kg)	放射能濃度 (mBq/kg)	濃度 (mg/kg)	放射能濃度 (Bq/kg)	
H30.8	6.2	0.81	6	140	*
H30.10	4.2	8.4	29	290	*
R1.7	3.3	不検出	3	-	79
R1.8	4.2	2.9	17	170	53
R1.9	5.1	不検出	5	-	*
R1.10	3.1	1.0	4	250	48
R1.11	3.7	1.5	9	190	45
R1.12	3.6	不検出	9	-	*
R2.1	2.2	1.2	5	210	*
R2.2	1.9	0.46	5	87	74
R2.3	1.9	0.64	8	79	59
R2.4	2.1	1.1	11	100	67
R2.5	3.4	1.4	6	220	54
R2.6	3.0	0.52	9	61	72
R2.7	4.1	不検出	3	-	70
R2.8	3.1	0.78	5	160	52
R2.9	10	3.8	7	530	44
R2.10	5.5	1.8	8	220	59
R2.11	5.0	3.4	20	170	48
R2.12	3.9	1.7	22	86	69

—: 懸濁態不検出のため計算不可 *: 測定未実施

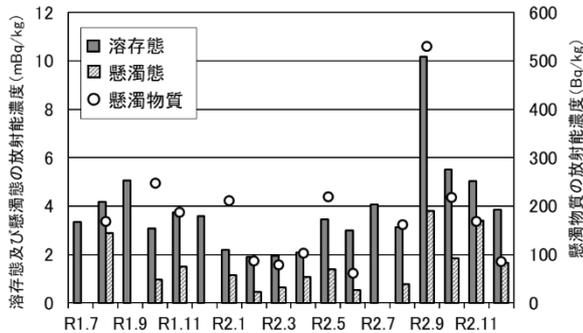


図3 生態園下の池水質におけるセシウム 137 の放射能濃度

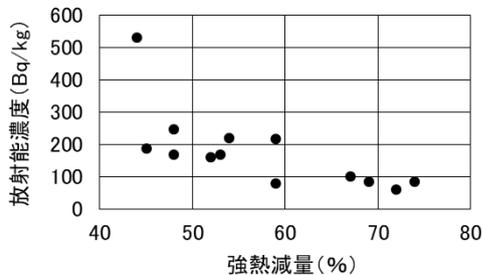


図4 生態園下の池水質中の懸濁物質における強熱減量とセシウム 137 の放射能濃度

3.3 生態園における調査結果

3.3.1 水質

生態園下の池の水質調査結果を表4に示す。季節変動を確認するために令和元年7月から令和2年12月まで毎月採水し測定したところ、溶存態では9月に濃度が高くなり、2、3月に濃度が低くなることを確認された。一方で、懸濁態は不検出の月があるなど、放射能濃度の変動に季節性があると断定するに至らなかった(図3)。

河川と同様に、懸濁物質の濃度、放射能濃度及び強熱減量を調べた結果、懸濁物質の濃度と放射能濃度はともに季節変動している様子は見られなかった。また、強熱減量については、強熱減量の低い懸濁物質は放射能濃度が高くなる傾向がみられた(図4)。

3.3.2 底質

底質の調査結果を表5に示す。下の池下流における底質の放射能濃度は、調査した3年間でほとんど変動していなかった。河川底質と同様に粒径別の放射能濃度を測定したが、すべての画分で同程度の濃度であった。また、放射能濃度を採取位置で比較すると、放射能濃度は中心<上流<下流の順に高くなっていった。底質の強熱減量を測定したところ、放射能濃度の高い下流では33%、中心や上流では19~21%となった。

表5 生態園下の池底質の調査結果

地点	調査年月	放射能濃度 (Bq/kg)	画分	放射能濃度 (Bq/kg)		
上流	H31.2	120	1000μm以上	120		
			1000-250μm	110		
			250-63μm	110		
			63μm以下	100		
中心	R2.9	110	1000μm以上	370		
			1000-250μm	360		
下流	H31.2	350	250-63μm	360		
			63μm以下	350		
			下流	R2.2	340	
			下流	R3.1	380	

底質が水質の放射能濃度変化に与える影響を調べるために、底質の溶出試験を実施した。令和3年1月に採取した下の池下流の底質500gを容量2Lのプラスチック製容器に入れ、そこに1500gの蒸留水を加えた。これを3つ作成し、35℃に保温しばっ気しながら27日間放置した。その後、容器から水を取り出し、カートリッジ法により溶存態のセシウム137の放射能濃度を測定した。その結果、110Bqの底質から156mBqのセシウム137が溶出した。容器の断面積から1m²当たりの溶出量を計算すると、4.6Bq/m²となった。

3.3.3 水生生物等

蒸発濃縮法により測定した下の池の水質及び水生生物等の放射能濃度調査結果を表6に示す。過去の結果²⁾と比較すると、令和2年8月までに調査した資料は減少もしくはほぼ横ばいであったが、令和2年9月に調査した水質とマツモのみ、過去の結果の2倍以上高い値となった。一方、対照として調査したアブラゼミ、ユズ及びカキは直近の結果から減少もしくはほぼ横ばいとなった。

表6 生態園水生生物等の調査結果

項目	調査年月	放射能濃度*	過去の結果(H29)*
水質	R1.9	4.1	5.6
	R2.9	13	5.6
マツモ	R1.9	0.083	0.14
	R2.9	0.37	0.14
ヒシ	R2.8	0.79	2.2
ウシガエル	R1.7	1.3 - 6.5	2.4 - 6.7
カメ	R1.7	1.9 - 3.0	0.68 - 3.4
ザリガニ	R1.7	5.5 - 5.6	7.4 - 8.5
	R2.7	6.7 - 9.3	7.4 - 8.5
アブラゼミ	R1.8	0.18	0.16
ユズ	R1.11	0.032 - 0.048	0.071 - 0.10
カキ(可食部)	R1.10	0.025 - 0.058	0.031 - 0.078

* 同じ時期に複数の試料を測定した場合、その最小値と最大値を記載
単位は水質のみmBq/kg、他の項目はBq/kg(生試料換算)

4 考察

4.1 水質の濃度に寄与する形態の傾向

水質におけるセシウム137の放射能濃度について、河川の調査結果(表2)では12試料中7試料で溶存態よりも懸濁態の放射能濃度が高かったが、生態園の調査結果(表4)では平成30年10月を除く全ての試料で懸濁態よりも溶存態の放射能濃度が高い結果となった。水質の放射能濃度への寄与が大きい形態が、河川では懸濁態、生態園では溶存態と異なる理由について、河川と生態園での流況の違いを基に考える。

まず、セシウム137の供給源についてである。河川では溶存態は山地から流入する落葉落枝、リター及び土壌が、懸濁態は周辺流域から流入する土壌が主な供給源となる^{8,9)}。その中でも懸濁態は、台風のような気象条件や流域の土地利用状況によって流入する土壌の量が変化し、結果として懸濁態の放射能濃度が大きく変化する。一方生態園では、懸濁物質の強熱減量がほとんどの試料で50%を超え、河川よりも高くなった。そのため、池の水質が周辺から流入する無機分(土壌)から受ける影響は河川よりも少ないと考えられる。

次に、水の滞留について、今回河川調査をした地点では水が滞留することはほとんどないが、生態園では大雨の時以外に園外へ水が出ることがなく、常に園内で水が滞留する状態になりやすい。滞留時間が長くなることで、底質からの溶出のように溶存態の供給が増え、放射能濃度における溶存態の寄与が大きくなったと考えられる。加えて、セシウムは土壌との相

互作用において、粘土鉱物には強く固定されるが、土壌有機物や腐植物質には固定されず吸着のみすることが知られており¹⁰⁾、強熱減量の結果から河川と比較して有機分を多く含んでいる生態園の底質は、よりセシウム137が溶出しやすい状態であることも、溶存態の供給に影響したと考えられる。

これらのことから、河川では主に周辺流域からの流出土壌等の懸濁態が放射能濃度に寄与しており、一方で生態園では、水の滞留時間が長いことと底質中の有機分が多いことにより溶存態の供給が起こりやすく、その結果溶存態が水質の放射能濃度の変動に影響していると推察される。

4.2 生態園における水質と水生生物の関係

生態園の水生生物等を調査した結果、令和2年9月に採取したマツモだけが平成29年度の調査結果を超える放射能濃度となった(表6)。これは、同月に採取した水質の放射能濃度が過去の結果よりも高い濃度であったことが原因と考えられる。マツモについて濃縮係数(水生生物の放射能濃度(Bq/kg)を水質の放射能濃度(Bq/kg)で除した値)を計算すると20~28となり、過去の調査結果²⁾の濃縮係数(9.3~37)の範囲内となった。

一方で、マツモの前月に採取したヒシの放射能濃度は過去の結果よりも低くなった。令和2年9月の水質の調査結果を基にした濃縮係数は59となり、過去の調査結果(210~520)よりも低い値となった。カートリッジ法による水質調査では、令和2年8月の放射能濃度は合計3.9mBq/kgであり、この数字を基にすると、濃縮係数は200と過去の調査結果と近い値になった。

以上から、水生植物の放射能濃度は水質の放射能濃度の影響を受けやすく、1か月程度の水質の濃度変動であっても水生植物の放射能濃度が変動する可能性があることが示された。

4.3 生態園下の池におけるセシウム137の移行

最後に、生態園下の池(面積575m²、平均水深1m)においてセシウム137がどのように分布・移行しているか、1m²当たりの放射能を計算し考察する。

まず、水質の調査結果(表4)から、溶存態として存在したセシウム137の放射能は下の池1m²当たりでは1.9~10Bq/m²となった。また、1か月の間に増減した溶存態セシウム137の放射能濃度は最大で6.9Bq/m³であり、下の池1m²当たりで増減した放射能に換算すると6.9Bq/m²となった。一方、底質の溶出試験結果から、下の池の下流側では、約1か月で1m²当たり最大4.6Bqのセシウム137が底質から溶存態として溶出しうることが分かった。1か月での下の池水質の放射能の増減量と、底質からの溶出量は同じ程度であったことから、底質からのセシウム137の溶出は下の池における溶存態のセシウム137の供給源の一つになっていると考えられる。

次に、懸濁態として存在したセシウム137の放射能は、下の池1m²当たりでは0.46~8.4Bq/m²となった(表4)。懸濁物質の強熱減量は底質の強熱減量よりも高いことと、放射能濃度は強熱減量が低い時に高くなる傾向にあることから、懸濁態の放

射能濃度の増減は、主に底質や周辺の土壌からの浮遊粒子によるものと考えられる。水質とセシウムを交換できる、水中のプランクトンや粒子に付着した有機分は懸濁物質の一部であること、生態園の水質の調査結果(表4)において、ほとんどが懸濁態の濃度より溶存態の濃度が高かったことから、水質の懸濁物質中の有機物が占める放射能の量は、懸濁物質の量が著しく増えない限り溶存態の放射能よりも少ないと推察される。

それから、水生生物が含むセシウム137の放射能について調査結果(表6)から推計する。ヒシ及びマツモは、採取範囲(ヒシ:10m²、マツモ:1m²)から1m²当たりの放射能を計算すると、それぞれ0.035Bq/m²と0.035~0.26Bq/m²となった。ザリガニ等の動物は、正確な棲息数が分からないため、1m²当たり採取量(約500g)の50分の1から20分の1が棲息すると仮定した。その結果、3種の合計で0.074~0.27Bq/m²となった。両者を合計しても1Bq/m²以下であり、溶存態や懸濁態の放射能の最大値よりも低いと推測される。

以上より、生態園下の池の水中では溶存態>懸濁態>水生生物の順でセシウム137の放射能が多いと推察された。底質から溶出した溶存態が全て懸濁態や水生生物に移行し残存すると仮定すると、時間経過とともに懸濁態や水生生物の放射能濃度は高くなるはずだが、実際の放射能濃度は増減をしながら推移しているため、各媒体から底質へのセシウム137の再移行が同時に起きていると考えられる。その他にも、降雨による希釈や大雨時の余水吐からの排水のように、気象条件によって放射能濃度が増減する要因もある。そのため、底質から溶出した溶存態のセシウム137は、懸濁態や水生生物への移行だけでなく、余水吐からの排出や底質への再移行とのバランスによって増減しているものと考察される。ただし、気象条件による変化は安定しておらず、下の池の環境が変化した際に、セシウム137の溶出と移行のバランスが崩れ令和2年9月のように放射能濃度が大きく上昇することがあると予測される。

5 まとめ

環境科学国際センター生態園及び県内河川において水質、底質及び水生生物等に含まれるセシウム137の放射能濃度を調査した。

河川におけるセシウム137の放射能濃度の増減は、懸濁態の量及び含有する放射能濃度の季節変化や、底質採取時の試料の粒径分布の変化によるものであることが分かった。そのため、ある地点において前回よりも放射能濃度が高い結果と

なっても、数年間の期間で見れば放射能濃度は減少していくものと考えられる。

一方で、生態園下の池では、セシウム137の放射能濃度の増減は底質からの溶存態の溶出と、溶存態から懸濁態、水生生物への移行や系外への排出、そして底質への再移行のバランスによって変化することが分かった。今回の調査で放射能濃度が急激に高くなる月があったが、今後も溶存態の溶出と移行のバランスが崩れると同様の現象が起こると予想されるため、引き続き定期的なモニタリング調査をすることで放射能濃度の変動に注視していくことが望ましい。

文 献

- 1) 三宅定明, 吉田栄充, 長島典夫, 山崎俊樹, 嶋田知英, 石井里枝 (2018) *RADIOISOTOPES*, 67, 225-232.
- 2) 山崎俊樹, 伊藤武夫, 茂木守, 米持真一, 三輪誠, 梅沢夏実, 嶋田知英, 白石英孝, 高瀬冴子, 坂田脩, 長島典夫, 三宅定明 (2018) 埼玉県環境科学国際センター報, 18, 75-80.
- 3) 埼玉県 (2020) 河川の放射性物質調査結果について, <https://www.pref.saitama.lg.jp/a0505/housyasei-kasen.html> (令和3年3月15日アクセス).
- 4) 原子力規制庁監視情報課 (2019) 放射能測定法シリーズ No.24 緊急時におけるγ線スペクトロメリーのための試料前処理法, 30-34.
- 5) 水中の放射性セシウムのモニタリング手法に関する技術資料検討委員会 (2015) 技術資料 環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法, 39-45.
- 6) Tetsuo Yasutaka, Hideki Tsuji, Yoshihiko Kondo, Yasukazu Suzuki, Akira Takahashi and Tohru Kawamoto (2015) *Journal of Nuclear Science*, 52, 792-800.
- 7) Hideki Tsuji, Yoshihiko Kondo, Shoji Kawashima and Tetsuo Yasutaka (2015) *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 303, 1803-1810.
- 8) Hiroshi Kurikami, Kazuyuki Sakuma, Alex Malins, Yoshio Sasaki and Tadafumi Niizato (2019) *Journal of Environmental Radioactivity*, 208-209, 106005.
- 9) 鶴田忠彦, 新里忠史, 中西貴宏, 土肥輝美, 中間茂雄, 舟木泰智, 御園生敏治, 大山卓也, 操上広志, 林誠二, 齊藤宏, 北村哲浩, 飯島和毅 (2017) 福島における放射性セシウムの環境動態研究の現状—根拠となる科学的知見の明示をより意識した情報発信の一環として—, JAEA-Review 2017-018, 55-65.
- 10) 毛利光男, 馬場直紀, 土田充, 中嶋卓磨 (2015) 土木学会論文集 G(環境), 71, 26-38.

Occurrence of radioactive cesium in water environment from Saitama Prefecture

Atsuro NOMURA, Takeo ITO, Nobutoshi OHTSUKA, Kotaro MINOMO, Yuichi HORII,
Shusuke TAKEMINE, Yoichi WATANABE, Mamoru MOTEGI, Sadaaki MIYAKE, Hidemi SATO,
Mikiko TAKEKUMA, Yoshiyuki NAGAHAMA, Saki KATO

Abstract

Radioactive cesium caused by the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in March 2011 dispersed are distributed, transported, and accumulated into various environmental matrices, such as air, river water, soil and others over a long period of time. In this study, we investigated radioactivity concentrations of cesium-137 in water, sediment and aquatic organisms in rivers from Saitama Prefecture and an ecological garden located in our center. We found that the form of cesium-137 which contribute to changes in radioactivity concentrations can differ between the rivers and ecological garden. Our results indicate that, in the ecological garden, the radioactivity concentrations of aquatic organisms can be affected by the latest concentrations in surrounding water. In addition, that the radioactivity concentrations for dissolved cesium-137 can be changed by the balance of cesium-137 elution from sediment and transferring is to aquatic organisms, suspended solid and sediment.

Key words: cesium-137, radioactivity, water, sediment, aquatic organisms

[資料]

GISデータで見た埼玉県土の土地利用変遷と地域特性

嶋田知英

1 はじめに

埼玉県は、1960年代から人口が急増し、1960年に242万人だった人口が、1976年には486万人となり、わずか16年間で2倍に増加した¹⁾。その後も1990年代中頃までは年率1%を超える増加が続き、2021年の埼玉県の人口は、約734万人に達している²⁾。この様な、急激な人口増加に伴い、埼玉県は、東京のベットタウンとしての宅地造成や、工業用地の開発、道路等のインフラ整備、河川改修等が進み、埼玉県の土地利用も大きく変わってきた。

土地利用は、そこに暮らす人間だけではなく、野生生物や水環境、大気環境などにも影響を与える重要な環境構成要素であり、その変化を把握することは、地域の環境問題を考える上で不可欠である。

日本における本格的な土地利用図の整備は、戦後間もない1946年に、連合軍総司令部より日本政府宛に出された指令による80万分1土地利用図作成から始まった。その後、1951年から農林業関連の土地利用に重点が置かれた5万分1土地利用図が1972年まで作成され、さらに、1974年の国土利用計画法成立にともない土地利用区分などを大幅に見直した2万5千分1土地利用図が1975年から1993年の間、国土地理院により整備された³⁾。また、国土交通省では、デジタル土地利用図として、2万5千分1地形図やリモートセンシング衛星画像を基に、1辺約100mの国土数値情報「土地利用細分メッシュデータ」⁴⁾の整備を進め、1976年度から2016年度の間、8時期のデータ整備を行った。

この様に、戦後、土地利用図の整備は、継続的に行われてきたが、時期により分解能や土地利用区分、精度などもやや異なる。そこで、比較的長期間にわたり、ほぼ同一の土地利用区分と分解能によりデジタルデータとして整備され、年度による比較が可能な「土地利用細分メッシュデータ」を用い、野生生物の生息や温室効果ガスである二酸化炭素の吸収などに寄与する森林に注目し、埼玉県の土地利用変遷の把握と、その地域特性の解析を行った。

2 方法

2.1 用いたデータセットと解析ツール

国土交通省国土数値情報ダウンロードサイト⁵⁾より「国土数

値情報GML (JPGIS2.1)シェープファイル(土地利用細分メッシュデータ 第2.6版)」(国土交通省)(2021年2月3日取得)⁴⁾のうち、埼玉県土全てをカバーする4地域(1次メッシュコード5338、5339、5438、5439)の全ての年度(1976年度、1987年度、1991年度、1997年度、2006年度、2009年度、2014年度、2016年度)のデータをダウンロードし解析に用いた。なお、土地利用細分メッシュデータには、日本測地系のデータと世界測地系のデータがあるが、全ての年度のデータが整備されているのは、日本測地系データのためのため、解析には日本測地系データを用いた。

また、GISデータの解析には、オープンソースGISソフトであるQGIS3.16⁶⁾を用い、データの集計にはMS-Access等を用いた。

2.2 解析手順

ダウンロードした1次メッシュ単位4地域の土地利用細分メッシュデータシェープファイルを、年度ごとに1ファイルに結合(マージ)した。このデータを、国土交通省国土数値情報ダウンロードサイトからダウンロードした行政界(埼玉県境)と重ね合わせ、埼玉県境内の土地利用細分メッシュを抽出した。

ダウンロードした土地利用細分メッシュは、緯度経度で表現された地理座標系(Tokyo)であり、面積計算を行うことが出来ないため、平面直角座標系(IX系)に変換し、QGISのarea関数により各メッシュの面積を算出し各レコードに付与した。

得られた各メッシュの土地利用区分および面積データを、CSV形式のデータとしてエクスポートし、MS-Accessにインポート・データベース化したのち、土地利用面積や、メッシュ単位での土地利用の変化等について集計・解析を行った。

なお、土地利用区分については、データ作成年度により若干区分が異なるため、表1のとおり集約し、統合土地利用区分として集計した。

2.3 解析項目

下記の項目について、解析を行った。

- 県全体の土地利用変遷
- 3次メッシュ単位の森林率の変化と地域特性
- 100mメッシュ単位の土地利用変化と地域特性

表1 土地利用区分の統合対照表

統合土地利用区分	1976年度	1987年度	1991～2006年度	2009～2016年度
田	田	田	田	田
畑等	畑、果樹園、その他の樹林畑	畑、果樹園、その他の樹林畑	その他の農用地	その他の農用地
森林	森林	森林	森林	森林
建物用地	建物用地A、建物用地B	建物用地	建物用地	建物用地
河川湖沼	湖沼、河川地A、河川地B	内水地	河川地及び湖沼	河川地及び湖沼
その他	荒地、幹線交通用地、その他の用地	荒地、幹線交通用地、その他の用地	荒地、ゴルフ場、幹線交通用地、その他の用地	荒地、ゴルフ場、道路、鉄道、その他の用地

3 結果

3.1 県全体の土地利用変遷

土地利用細分メッシュデータから作成した各年度の土地利用図を図1～図8に、土地利用区分別の土地利用率の経年変化を図9～図14に、1976年度と2016年度の土地利用区分別面積の構成比を図15、図16に、1976年度に対する2016年度の土地利用区分別増減面積を図17に、増減率を図18に示した。

1976年度から2016年度の間、面積が最も大きく変化した土地利用区分は建物用地で、520km²、82.4%増加した。これは、さいたま市の面積(217km²)を大きく超え、県土全体の面積の6.2%に相当する。一方、最も面積が減少した土地利用区分は、田であり、236km²減少し、次いで、畑等も172km²減少した。なお、それぞれの1976年度に対する減少率は、田29.5%、畑等31.7%であった。森林もその間95km²減少したが、減少率は6.9%に留まり、田や畑等に比べ減少面積・減少率ともに低かった。

この様に、1976年度から2016年度の40年間に、埼玉県では、都市化、宅地化、工業用地化がさらに進み、県全土で見ると、建物用地が大きく増加した。そして、増加した建物用地の多くは、農地(田、畑等)からの転換であったと考えられた。

なお、2009年度の土地利用率は、建物用地と河川湖沼、その他で、前後の調査年度と比較的大きなギャップが生じている。このギャップの原因は明らかではないが、土地利用細分メッシュ 第2.6版の解説では、「作成年により、土地利用の判別方法が異なることがある」としており、判別方法の違いが影響を与えた可能性もある。また、1991年度以降、土地利用図は衛星画像を原典資料として作成されているが、2009年度以外は、Landsat、SPOT、Aster、RapidEyeの衛星画像を単独あるいは組み合わせて作成しているのに対し、2009年度のみ主にALOSの画像から作成されていることもギャップに影響を与えている可能性があると思われる。

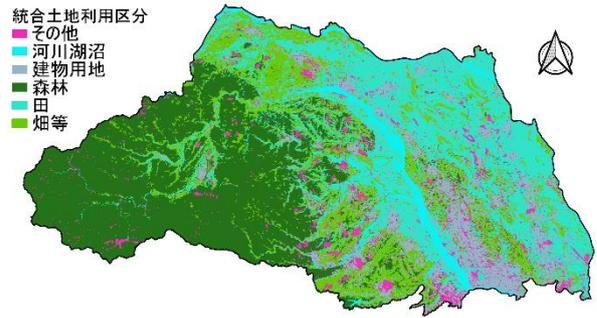


図1 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ1976年度)

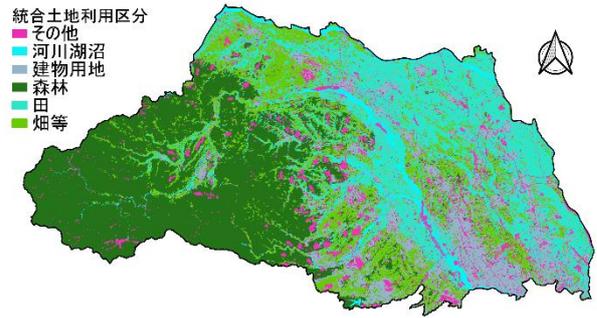


図2 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ1987年度)

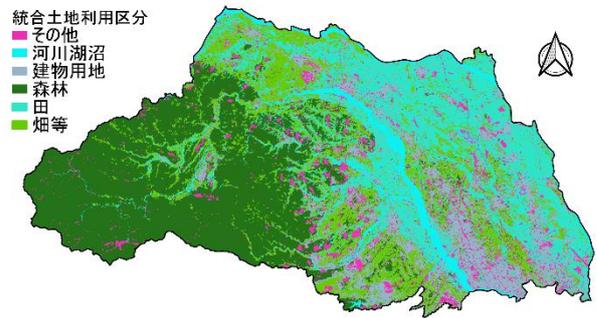


図3 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ1991年度)

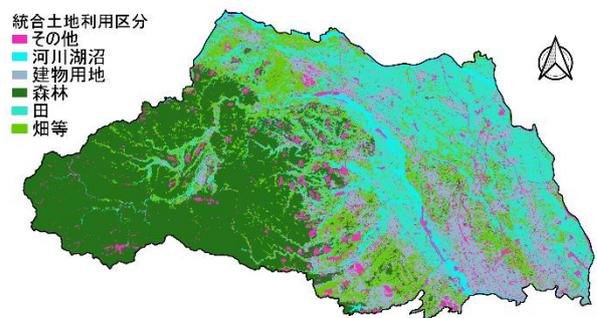


図4 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ1997年度)

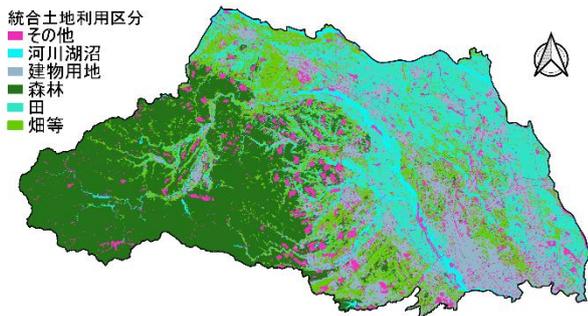


図5 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ2006年度)

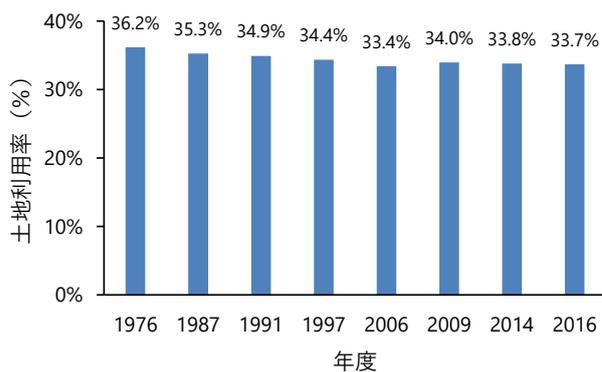


図9 埼玉県の土地利用率の経年変化(森林)

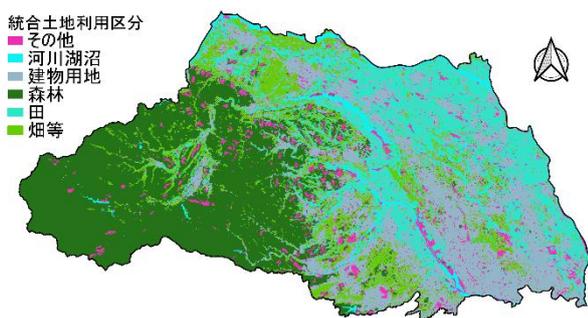


図6 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ2009年度)

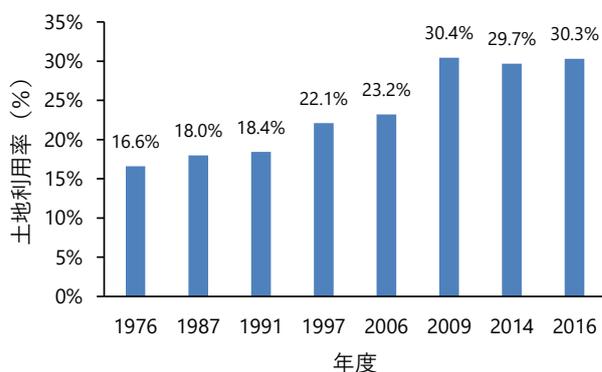


図10 埼玉県の土地利用率の経年変化(建物用地)

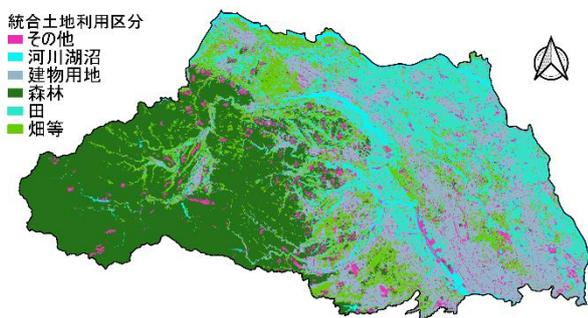


図7 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ2014年度)

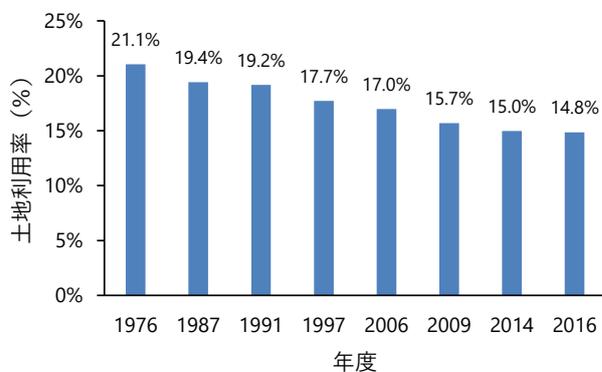


図11 埼玉県の土地利用率の経年変化(田)

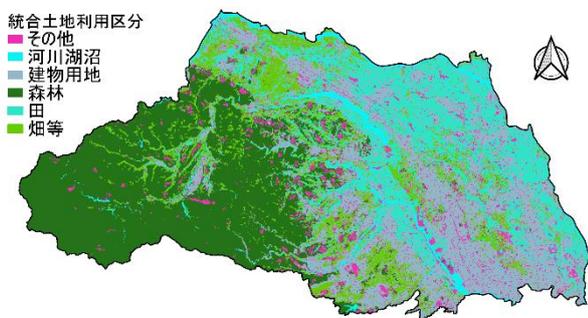


図8 土地利用図(土地利用細分メッシュデータ2016年度)

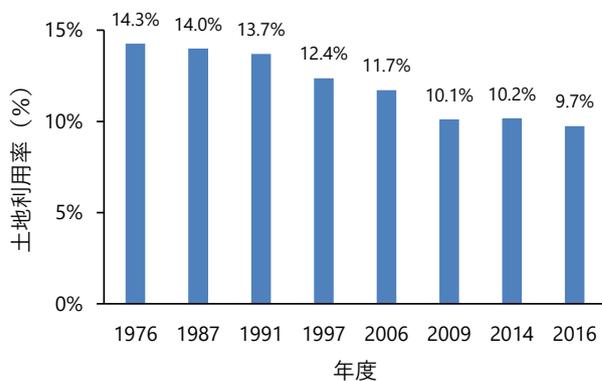


図12 埼玉県の土地利用率の経年変化(畑等)

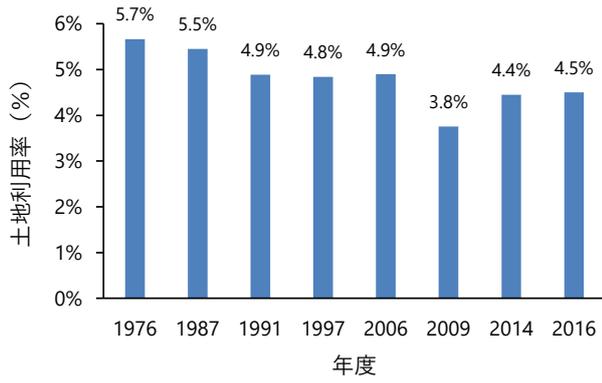


図13 埼玉県の土地利用率の経年変化(河川湖沼)

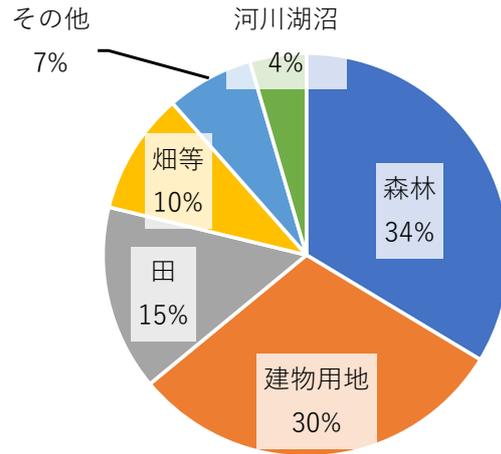


図16 埼玉県における2016年度の土地利用区分別面積構成比

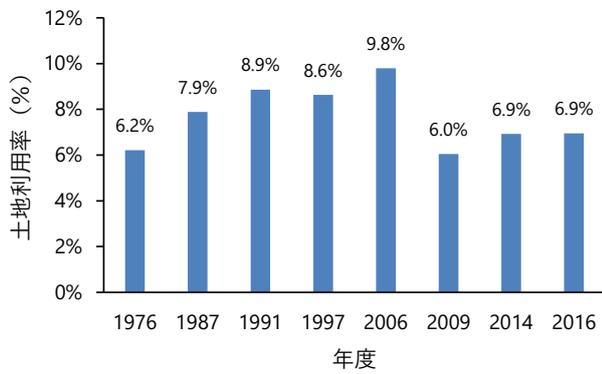


図14 埼玉県の土地利用率の経年変化(その他)

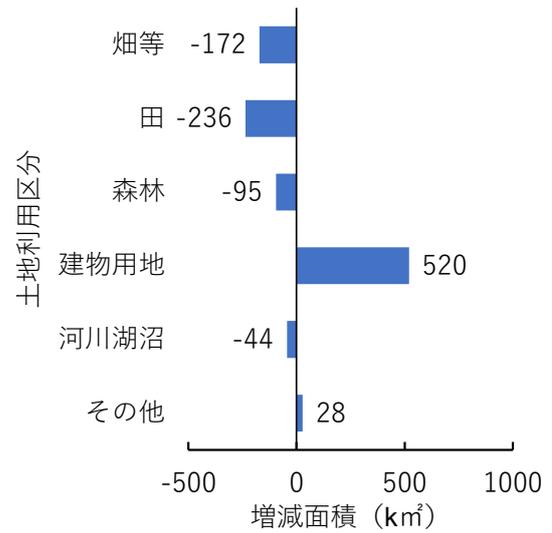


図17 埼玉県における1976年度に対する2016年度の土地利用区分別増減面積(km²)

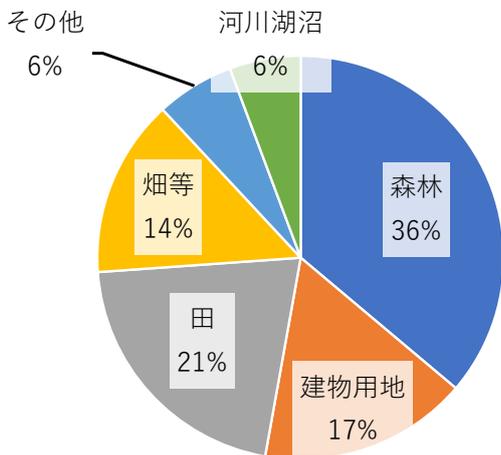


図15 埼玉県における1976年度の土地利用区分別面積構成比

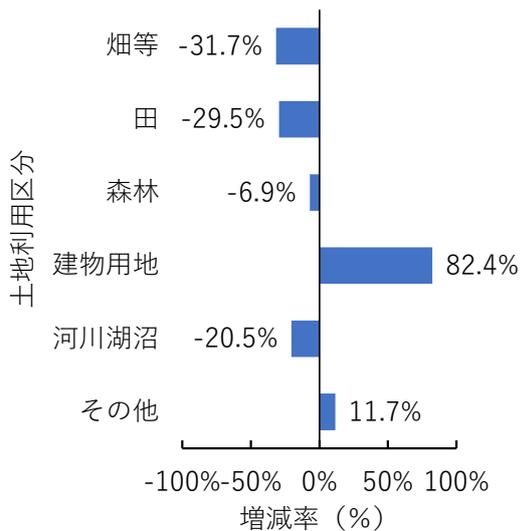


図18 埼玉県における1976年度に対する2016年度の土地利用区分別面積増減率

3.2 3次メッシュ単位の森林率の変化と地域特性

1辺約100mの細分土地利用メッシュデータを、1辺約1kmである標準地域メッシュ3次メッシュ(以下、「3次メッシュ」とする)単位で集計し、3次メッシュ単位の森林率を算出した。算出した年度ごとの森林率を地図化し図19～図26に、1997年度から2016年度の間には森林率が減少した3次メッシュの分布図を図27に、増加した3次メッシュの分布図を図28に、1997年度から2016年度の間には森林率が変化した3次メッシュ数を図29に、同一期間に森林率が減少あるいは増加したメッシュの標高区分別度数分布を図30、図31に示した。また、埼玉県の地形区分を図32に示した。

前述の通り、埼玉県の森林率は1976年度から2016年度の間には6.9%減少したが、県全域が均一に減少したわけではなく、図29に示す通り、森林率が減少したメッシュは1544メッシュで全体の約45%を占めたが、一方で増加したメッシュも642メッシュあり約19%を占め、森林率の増加もかなりの地域で起きていたことが分かる。図27を見ると、減少率が大きいメッシュは、県中央部の武蔵野台地、入間台地、北武蔵台地や、その東に位置する大宮台地に多い。一方、図28のとおり、森林率が増加したメッシュは、西部の秩父山地や中部の中山間地域に多いが、さいたま市や朝霞市、志木市、狭山市など、中南部の都市域にも森林率が増加したメッシュが見られた。

標高との関係を見ると、図30、31のとおり、森林率が減少したメッシュは比較的低標高地域で標高100m以下に集中し、平均標高も160mであったが、森林率が増加したメッシュは、様々な標高で見られ、平均標高は484mとなり、全体としては減少したメッシュに比べ高標高であった。

森林率減少や上昇の原因を、土地利用細分メッシュデータのみから明らかにすることは出来ないが、森林率の減少要因としては、戦後、開発が容易で東京に隣接する県東部低標高地域では、宅地造成や工業用地の開発が急速に進み、森林が

ら他の用地へ変化したのではないかと考えられる。一方、森林率の増加要因としては、県西部の比較的標高の高い中山間地域では、1960年代以降、人口減少や高齢化が進み、耕作放棄地が増加しており、他の用地から森林へ変化したのではないかと考えられる。また、都市部で森林率が増加したメッシュについては、自衛隊基地用地の森林化や、河川堤外の森林化などの可能性が考えられる。

県全体として1976年度から2016年度の間には、埼玉県の森林率が減少したことは間違いないが、この様に、その動態は一様では無く、標高などの地域特性により違いがあることが分かる。

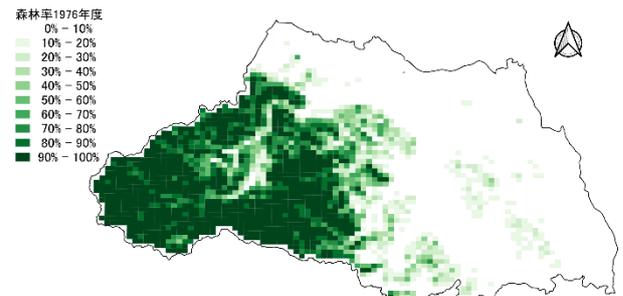


図19 3次メッシュ森林率(1976年度)

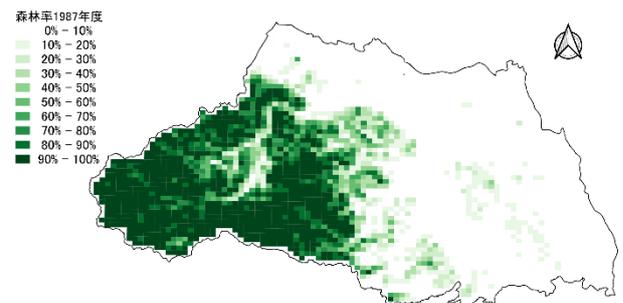


図20 3次メッシュ森林率(1987年度)

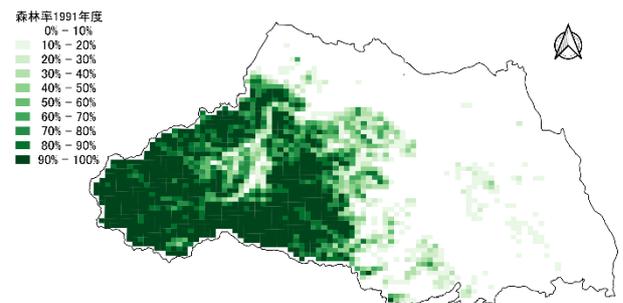


図21 3次メッシュ森林率(1991年度)

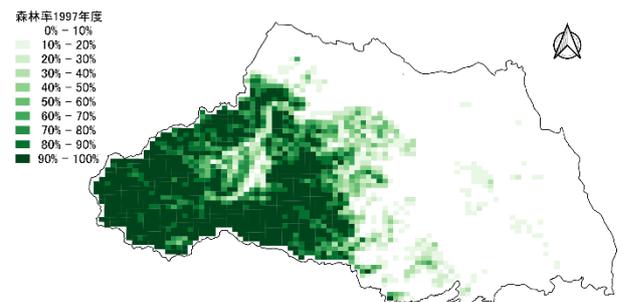


図22 3次メッシュ森林率(1997年度)

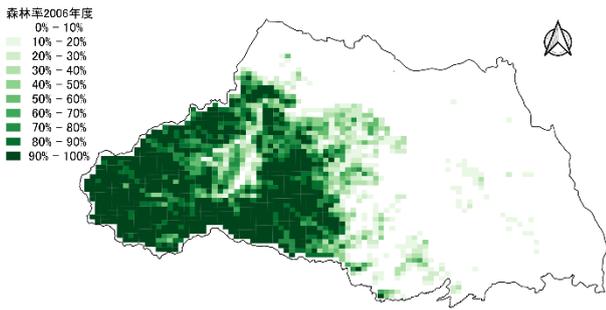


図23 3次メッシュ森林率(2006年度)

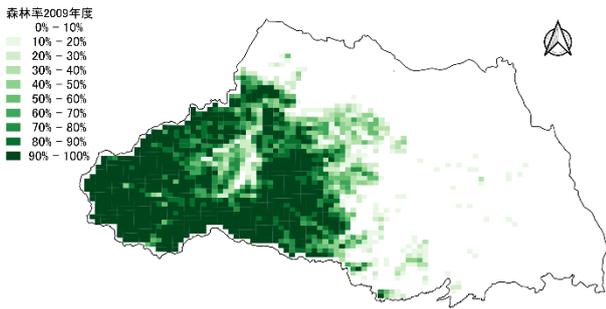


図24 3次メッシュ森林率(2009年度)

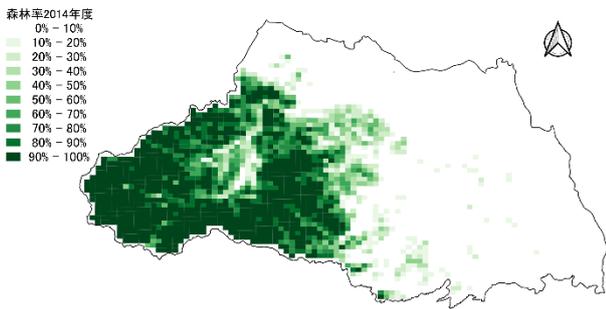


図25 3次メッシュ森林率(2014年度)

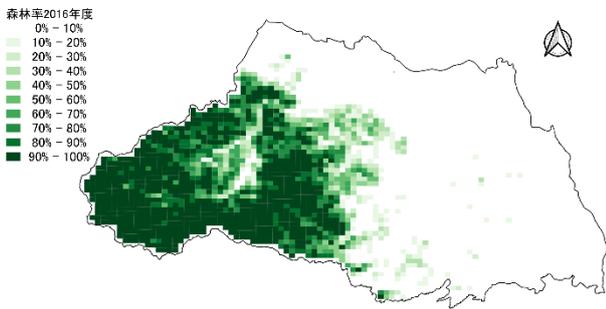


図26 3次メッシュ森林率(2016年度)

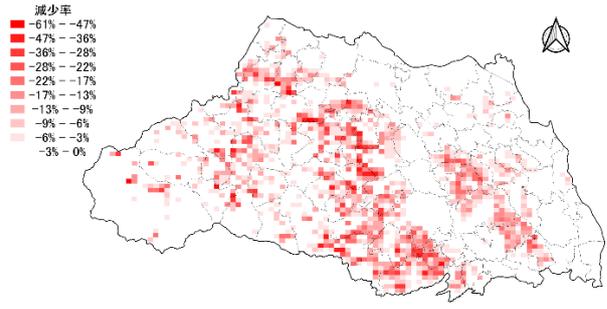


図27 1997年度から2016年度の間に森林率が減少した3次メッシュの分布図

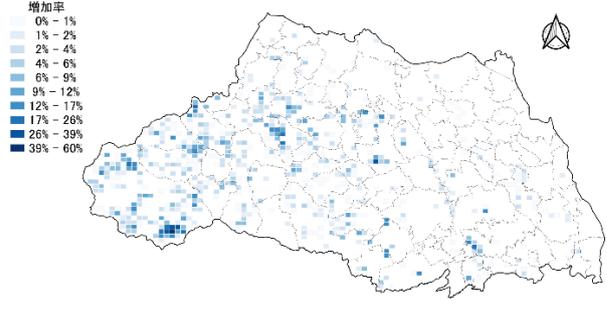


図28 1997年度から2016年度の間に森林率が増加した3次メッシュの分布図

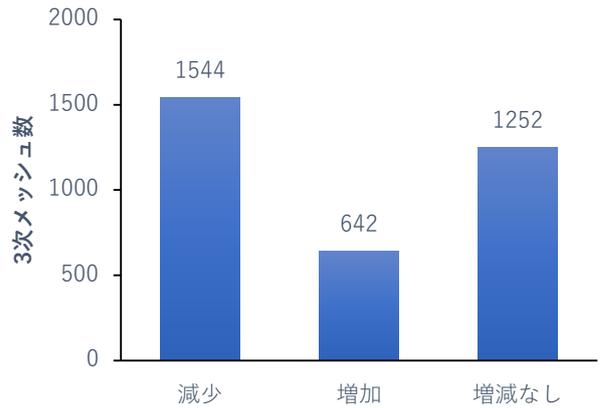


図29 1997年度から2016年度の間に森林率が変化した3次メッシュ数

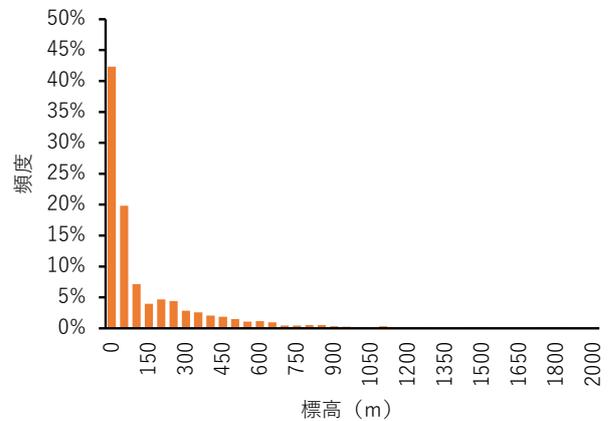


図30 1997年度から2016年度の間に森林率が減少した3次メッシュの標高別度数分布(50m 標高区分)

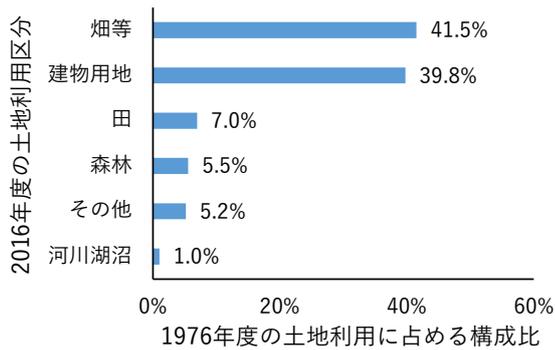


図36 1976年度の土地利用区分に占める2016年度の土地利用の構成比(1976年度:畑等)

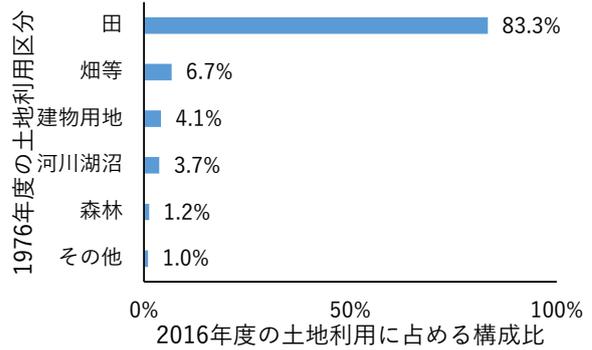


図40 2016年度の土地利用区分に占める1976年度の土地利用の構成比(2016年度:田)

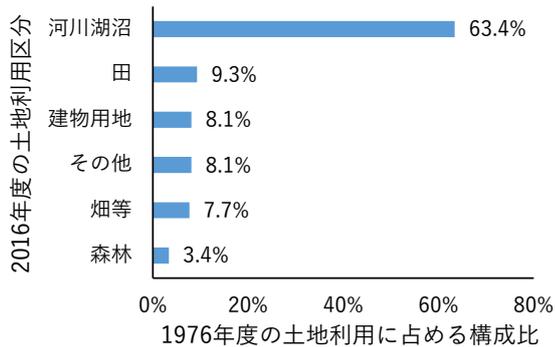


図37 1976年度の土地利用区分に占める2016年度の土地利用の構成比(1976年度:河川湖沼)

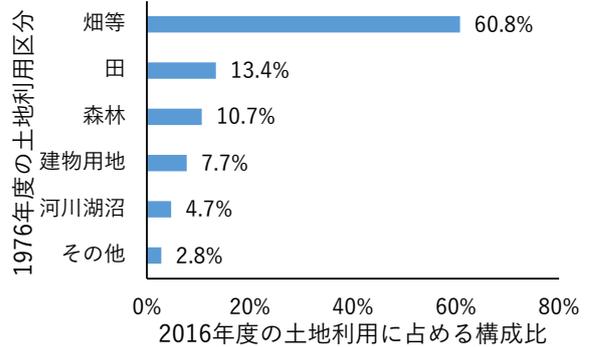


図41 2016年度の土地利用区分に占める1976年度の土地利用の構成比(2016年度:畑等)

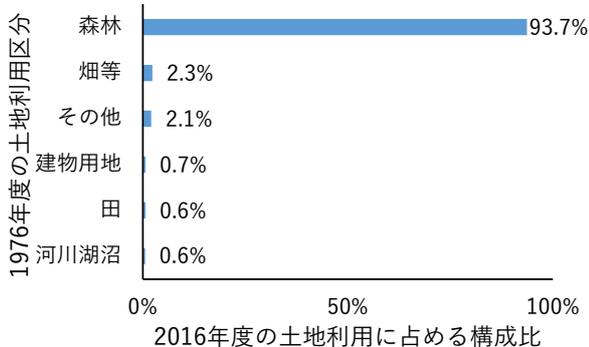


図38 2016年度の土地利用区分に占める1976年度の土地利用の構成比(2016年度:森林)

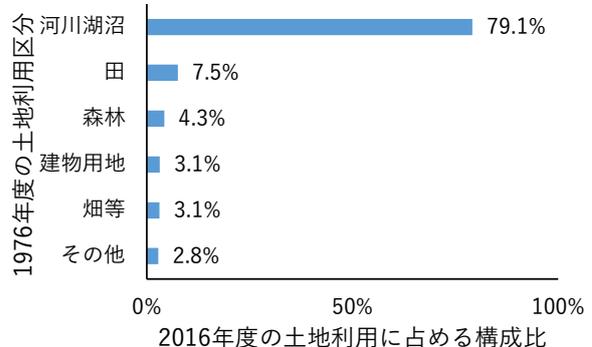


図42 2016年度の土地利用区分に占める1976年度の土地利用の構成比(2016年度:河川湖沼)

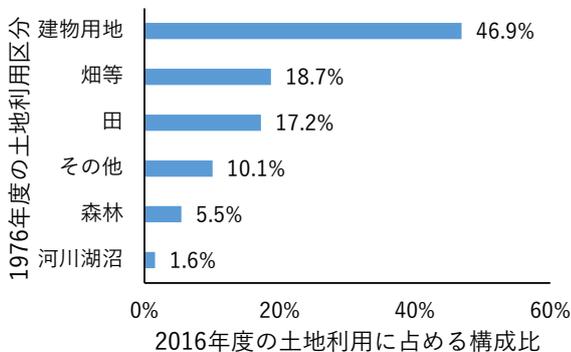


図39 2016年度の土地利用区分に占める1976年度の土地利用の構成比(2016年度:建物用地)

1976年度から2016年度の間、土地利用区分が変化したメッシュの空間的な特性を可視化するため、他の土地利用区分に変化したメッシュを抽出し、各メッシュの重心を基に、カーネル密度分布図を作成した(図43～図47)。

森林に変化したメッシュのカーネル密度分布(図43)を見ると、中西部地域が高く、比企丘陵や秩父山地などに森林に変化したメッシュの多いホットスポットが見られた。また、都市化が進んだ県南部や大宮台地にも若干密度が高い場所が見られた。建物用地に変化したメッシュのカーネル密度分布(図44)を見ると、県中部や北部、東部に加え、秩父盆地も高く、特に、県南部や武蔵野台地、入間台地にホットスポットが見られた。田に変化したメッシュのカーネル密度分布(図45)を見ると、県

中部、東部、北部に高い地域が見られ、特に荒川河川沿いにホットスポットが見られた。畑等に変化したメッシュのカーネル密度分布(図46)を見ると、県中部の台地や、大宮台地、北武蔵野台地、秩父盆地で高く、荒川河川沿いや大宮台地南端にホットスポットが見られた。河川池沼に変化したメッシュのカーネル密度分布(図47)を見ると、一定の傾向は見られないが、調整池やダム建設に伴う人造湖形成によると思われるホットスポットが数か所見られた。

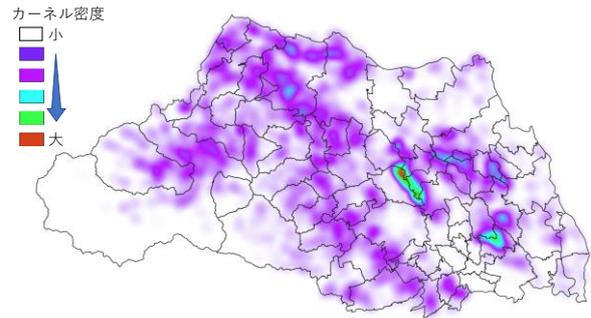


図46 1976年度から2016年度の間に土地利用区分が畑等に変化したメッシュのカーネル密度分布

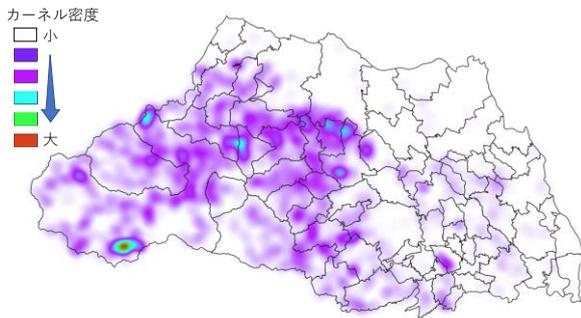


図43 1976年度から2016年度の間に土地利用区分が森林に変化したメッシュのカーネル密度分布

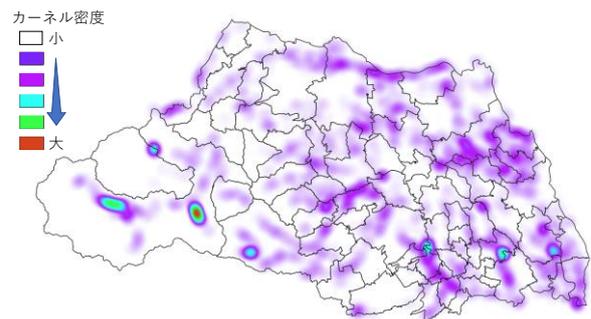


図47 1976年度から2016年度の間に土地利用区分が河川・湖沼に変化したメッシュのカーネル密度分布

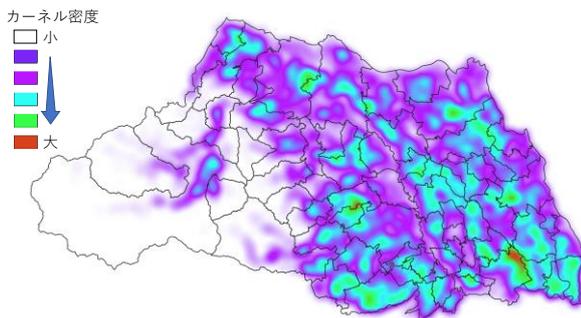


図44 1976年度から2016年度の間に土地利用区分が建物用地に変化したメッシュのカーネル密度分布

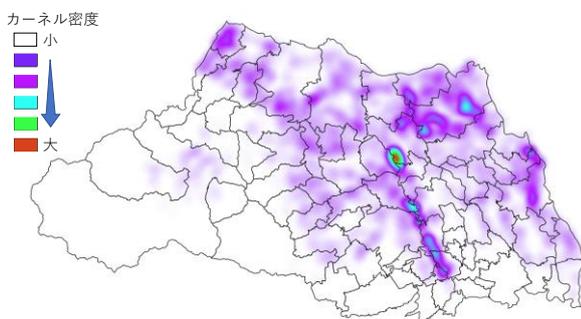


図45 1976年度から2016年度の間に土地利用区分が田に変化したメッシュのカーネル密度分布

4 まとめ

埼玉県は戦後急速に人口が増加し、それに伴い土地利用も大きく変化した。土地利用の変化を定量的に把握するため、1976年から2016年の間、8時期にわたり国土交通省により整備された1辺約100mの土地利用図である国土数値情報「土地利用細分メッシュデータ」を用い、「県全体の土地利用変遷」「3次メッシュ単位の森林率の変化と地域特性」「100mメッシュ単位の土地利用変化と地域特性解析」を行った。その結果、以下のことが分かった。

- 1) 県全体の土地利用変遷を見ると、1976年度から2016年度の40年間に、建物用地が520km²、82.4%増加し、一方、田は、236km²、29.5%、畑等も172km²、31.7%減少した。なお、森林もその間95km²減少したが、減少率は6.9%に留まっていた。
- 2) 3次メッシュ単位の森林率の変化は、県全域で同じ様に減少したわけではなく、武蔵野台地、入間台地、北武蔵台地、大宮台地で特に森林率が減少したメッシュが多かった。一方、森林率が増加したメッシュも見られ、約19%、642メッシュで森林率が増加した。なお、増加したメッシュは、西部、中部中山間地域に加え、さいたま市や朝霞市、志木市、狭山市など、都市化が進んだ地域でも見られた。また、森林率が減少したメッシュは標高100m以下の低標高地域に集中していたが、増加したメッシュは、高標高地域でも見られた。

- 3) 100mメッシュ単位の土地利用変化では、1976年度に森林や建物用地であったメッシュのうち、85%以上は2016年度の間に変化がなく固定的であったが、畑等、田は大きく変化し、それぞれ、40%、25%が、この間、建物用地に変わった。2016年度に田、森林であったメッシュのうち、1976年度も田、森林であったメッシュの比率は80%超え、他の土地利用からの変化は少なかった。しかし、2016年度に建物用地であったメッシュでは、1976年度に建物用地であったメッシュは47%に過ぎず、畑等や田からの変化が17%を超えていた。なお、1976年度から2016年度の間に、他の土地利用から森林に変化したメッシュは中西部地域で多く、比企丘陵や秩父山地などにホットスポットが見られた。また、都市化が進んだ県南部や大宮台地にも、森林へ変化したメッシュの密度が高い場所が散見された。建物用地に変化したメッシュは、県中部や北部、東部に加え、秩父盆地で多く、特に、県南部や武蔵野台地、入間台地にホットスポットが見られた。田に変化したメッシュは、県中部、東部、北部で多く、特に荒川河川沿いにホットスポットが見られた。畑等に変化したメッシュは、県中部の台地や、大宮台地、北武蔵野台地、秩父盆地で多く、荒川河川沿いや大宮台地南端にホットスポットが見られた。河川池沼に変化したメッシュは、県内に散在していたが、調整池やダム建設に伴う人造湖形成によると思われるホットスポットが数カ所見られた。

文献

- 1) 埼玉県総務部統計課、埼玉県の人口のうつりかわり、
https://www.pref.saitama.lg.jp/a0206/kodomo/data02_jinkou.html
(2021.3.1 アクセス)
- 2) 埼玉県総務部統計課、埼玉県推計人口、
<https://www.pref.saitama.lg.jp/a0206/03suikei/index.html>
(2021.3.1 アクセス)
- 3) 国土地理院、土地利用調査について、
<https://www.gsi.go.jp/kankyochiri/lum-index.html>
(2021.3.1 アクセス)
- 4) 国土交通省、国土数値情報(土地利用細分メッシュデータ第 2.6 版)、2021.2.、<https://nlftp.mlit.go.jp/ksj/gml/datalist/KsjTmplt-L03-b.html> (2021.3.1 アクセス)
- 5) 国土交通省、国土交通省国土数値情報ダウンロードサイト、
<https://nlftp.mlit.go.jp/index.html> (2021.3.1 アクセス)
- 6) TeamDevelopmentQGIS、QGIS フリーでオープンソースの地理情報システム、<https://qgis.org/ja/site/> (2021.3.1 アクセス)
- 7) 埼玉県土地水政策課、令和2年度 埼玉の土地、
<https://www.pref.saitama.lg.jp/a0108/saitama-tochi.html>
(2021.3.1 アクセス)

[資料]

埼玉県加須市における湿性沈着の長期観測結果

松本利恵

1 はじめに

工場や自動車などから大気中に排出された硫黄酸化物(SO_x)や窒素酸化物(NO_x)などの汚染物質は、大気中で硫酸や硝酸などに変化し、地上に沈着する。このとき、大気中で生成した硫酸や硝酸などが、雲を作っている水滴や雨などに溶け込んで地上に沈着する経路(湿性沈着)と、ガスや粒子の形で地上に沈着する経路(乾性沈着)があり、近年では、湿性沈着と乾性沈着をあわせて酸性雨と定義されている。

埼玉県では酸性雨の実態を把握するために、様々な調査を実施してきた^{1,2)}。本報告は、環境科学国際センター展示館屋上で実施した20年間の湿性沈着の観測結果について、大気汚染物質濃度の観測結果を含めて検討を行ったものである。

2 方法

2.1 調査地点

湿性沈着の調査は、埼玉県環境科学国際センター(埼玉県加須市)の展示館屋上(地上11m)で実施した。周囲は農業地域で田畑に囲まれている。北西300mに県道加須鴻巣線が、北東2.2kmに国道122号線がある。また、北東1.8kmに藤の台工業団地がある。

2.2 調査実施期間

調査期間は2000年4月から2020年3月までの20年間であり、その間の主な関連する事象は表1のとおりである。

2.3 測定項目及び調査方法

調査は、環境省の湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)³⁾に準じて実施した。主な測定機器等は、表2のとおりである。

湿性沈着物は自動雨水採取装置により採取した。採取装置は感雨器の作動により、自動的に蓋が開閉するようになっており、降水時の沈着物のみを採取できる。試料採取は、原則として2000-2007年度が降水イベント毎(降水の区切りは、降水終了後、3時間が経過したとき。)、2008-2018年度が1週間毎、2019年度が1か月毎とした。2008年度以降は、採取した試料を、回収まで採取装置付属の冷蔵庫内(約5℃)で保存した。

測定項目は、pH、電気伝導度(EC)、硫酸イオン(SO₄²⁻)、硝酸イオン(NO₃⁻)、塩化物イオン(Cl⁻)、アンモニウムイオン

表1 調査期間の主な事象

年	主な事象
1999	ダイオキシン対策法成立
2000	三宅島噴火(多量のSO ₂ 放出)
2001	自動車NO _x 法の一部改正(自動車NO _x ・PM法)
2004	揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制対策
2005	三宅島の避難指示を解除 軽油中の硫黄分が50ppm以下に
2007	軽油中の硫黄分が10ppm以下に
2008	北京オリンピック・パラリンピック リーマン・ショック
2009	微小粒子状物質(PM _{2.5})の環境基準設定
2011	東日本大震災(東北地方太平洋沖地震)
2013	中国起源の「PM _{2.5} 」が社会問題化
2018	埼玉 熊谷で観測史上 国内最高気温の41.1度
2020	新型コロナウイルス感染症(COVID-19)の流行

表2 調査に用いた主な測定機器等

使用期間	測定機器等
	[自動雨水採水装置]
2000-2007	小笠原計器製作所 US-400
2008-2019	小笠原計器製作所 US-330D
	[pH測定器]
2000-2011	堀場製作所 F-23
2012-2019	東亜ディーケーケー MM-60R
	[EC測定器]
2000-2007	堀場製作所 DS-14
2008-2019	東亜ディーケーケー CM-30R
	[イオンクロマトグラフ/分析カラム]
2000-2013	Dionex IC20/AS-12A, CS-12A
2014-2019	Dionex ICS-2100/AS11-HC, CS-12A

(NH₄⁺)、カルシウムイオン(Ca²⁺)、マグネシウムイオン(Mg²⁺)、カリウムイオン(K⁺)、ナトリウムイオン(Na⁺)である。

分析方法は、pH、ECが電極法、イオン成分がイオンクロマトグラフ法である。

イオン成分のうち、SO₄²⁻、Cl⁻、Ca²⁺、Mg²⁺についてはNa⁺を100%海塩由来として、非海塩由来(nss-)濃度を求めた。

測定結果は、月間値として解析に用いた。

降水量は、降水の採取量を採取ポート開口部の面積

(314cm²)で除することで算出した。台風時など強雨で貯水容器からオーバーフローした場合や採取装置が停止し採取できなかった場合は、敷地内に設置した雨量計の測定値を代替降水量として用いた。

大気汚染物質濃度は、敷地内の大気汚染常時監視一般測定局(環境科学国際C局)の測定結果⁴⁾を用いた。

3 結果と考察

3.1 調査結果の概況

湿性沈着物の各項目の濃度及び年間沈着量(濃度に降水量をかけて求めた単位面積当たりの降下量)の平均値を表3に示す。調査期間を10年ごとに分け、前半を期間1(2000-2009年度)、後半を期間2(2010-2019年度)とし、各期間の平均値もあわせて表3に示した。主な項目については、経年推移を図1に示す。

表3の沈着量を比較すると、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻、nss-Cl⁻、NH₄⁺、H⁺は、期間2は期間1の42-72%に減少した。また、図1で各項目をY、年度をXとして回帰分析を実施したところ、降水量は、20年間で明らかな増減の傾向は確認できなかったが(5%有意水準)、pHは上昇、ECは減少、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻、nss-Cl⁻、NH₄⁺、H⁺は濃度、沈着量ともに減少し(1%有意水準で有意)、nss-Ca²⁺、nss-Mg²⁺、K⁺、Na⁺は濃度、沈着量ともに

表3 調査結果(各期間の平均値)

調査期間	(年度)	全期間	期間1	期間2
		2000-2019	2000-2009	2010-2019
年間降水量	(mm)	1321	1360	1282
pH		4.69	4.56	4.90
EC	(μS/cm)	17.2	21.1	13.1
イオン成分				
平均濃度 (μmol/L)				
	nss-SO ₄ ²⁻	14.9	18.5	11.0
	NO ₃ ⁻	27.9	31.2	24.5
	nss-Cl ⁻	2.7	3.2	2.2
	NH ₄ ⁺	28.6	32.9	24.1
	Na ⁺	12.6	12.4	12.8
	K ⁺	1.0	1.0	1.0
	nss-Ca ²⁺	5.7	5.7	5.6
	nss-Mg ²⁺	0.8	0.8	0.8
	H ⁺	20.3	27.7	12.5
年間沈着量 (mmol/m ²)				
	nss-SO ₄ ²⁻	19.6	25.1	14.1
	NO ₃ ⁻	36.9	42.4	31.4
	nss-Cl ⁻	3.6	4.3	2.9
	NH ₄ ⁺	37.8	44.8	30.9
	Na ⁺	16.6	16.8	16.4
	K ⁺	1.3	1.4	1.3
	nss-Ca ²⁺	7.5	7.8	7.2
	nss-Mg ²⁺	1.0	1.1	1.0
	H ⁺	26.8	37.7	16.0

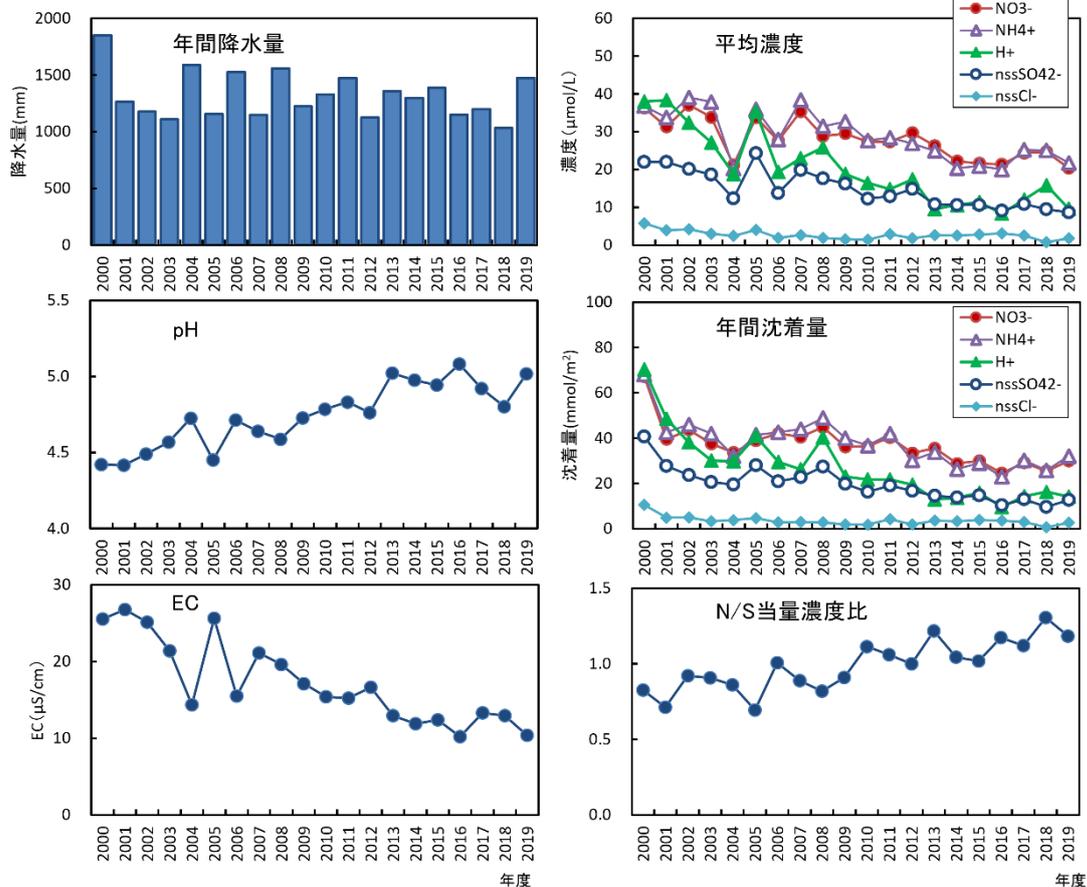


図1 降水量、湿性沈着濃度、湿性沈着量等の経年推移

明らかな増減の傾向は確認できなかった(5%有意水準)。

N/S比($\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 当量比(Eq/Eq))は上昇傾向にあり、湿性沈着物への寄与は、 SO_x よりも NO_x の方が相対的に大きくなっている。これは後述の、大気中の二酸化硫黄(SO_2)、 NO_x 濃度の低減率の違いに加え、本調査期間前半の2000年から2005年ごろまで三宅島噴火により大量に放出された SO_2 も原因と考えられる。

3.2 大気汚染物質の推移

湿性沈着物の酸性化に寄与すると考えられる大気汚染物質濃度の経年推移を図2に示す。 SO_2 、 NO_x (一酸化窒素(NO)+二酸化窒素(NO_2))、浮遊粒子状物質(SPM)は年平均濃度を、光化学オキシダント(Ox)は、年平均濃度と新指標値(日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の3年移動平均値)⁵⁾をそれぞれ示した。

各項目をY、年度をXとして回帰分析を実施したところ、この20年間で、 SO_2 、 NO_x 、SPMは濃度が減少した(1%有意水準で有意)。 Ox は、年平均濃度が増加、新指標値が減少した(1%有意水準で有意)。図1と比較すると、 SO_2 、 NO_x 、SPMなど国内外の大気汚染物質の排出量が減少することにより大気濃度が減少し、湿性沈着物の nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度や沈着量の減少やpHの上昇が生じたと考えられる。

湿性沈着物のN/S比の上昇は、国内外における SO_2 と NO_x 排出への対策効果の違いにより、 SO_2 の減少率が NO_x より大きかったことが影響していると考えられる。

3.3 経月変化

湿性沈着の降水量、pH、 nss-SO_4^{2-} 沈着量、 NO_3^- 沈着量、および大気汚染物質の観測結果について、調査の全期間、期間1、期間2で各月の平均値を算出し、図3に示した。 Ox は、1時間値の月最高値についても各期間で平均値を算出し、併せて示した。

降水量は、6月から10月に多く、9月に最大となった。12月から2月は少なかった。期間1と期間2で大きな差はみられなかった。

pHは、6月から8月に低く、10月から2月に高くなった。期間2は期間1と比べて、5月に差が小さくなったものの、おおむね全ての月で上昇した。

nss-SO_4^{2-} 沈着量は、夏期の6月から9月に大きく、冬期の12-1月に小さかった。期間2は期間1と比べて、夏期の減少量が大きかった。

NO_3^- 沈着量は、夏期に大きく、冬期に小さくなり、7月に最大となった。期間2は期間1と比べて、夏期の6月から8月の減少量が大きく、その他の月は大きな差はみられなかった。

SO_2 濃度は、全期間の平均で5月に最大、10月に最小となった。期間2は期間1と比べて、全ての月で減少した。

SPM濃度は、6月、7月に大きくなり、1月に最小となった。期間2は期間1と比べて、おおむね全ての月で減少した。

NO_2 濃度は、冬期に大きく12月に最大、夏期に小さく8月に

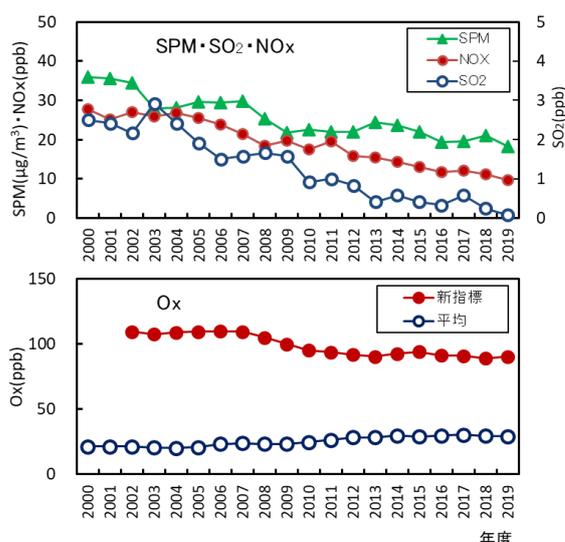


図2 大気汚染物質の経年推移

最小となった。期間2は期間1と比べて、全ての月で減少した。

NO 濃度は、冬期に大きく12月に最大、5月、6月に小さくなった。期間2は期間1と比べて、冬期に減少幅が大きくなった。

Ox (平均)濃度は、5月に最大となり、12月に最小となった。期間2は期間1と比べて、夏期の6月から8月は大きな差がみられなかったが、冬期を中心に増加していた。

Ox 最高濃度は、7月に最大となり、 Ox (平均)濃度とは異なっていた。また、12月に最小となった。期間2は期間1と比べて、夏期の6月、8月、9月に減少し、冬期は差がみられなかった。期間1に比べて、期間2は冬期を中心に Ox の平均濃度が増加し、夏期の高濃度出現が減少したため、この20年間は、図2の Ox 年平均値は増加、新指標値は減少傾向を示したと考えられる。

2018年度の酸性雨全国調査結果²⁾では、湿性沈着の年間データが有効となった60調査地点の中で、加須の nss-SO_4^{2-} の年平均濃度は $9.4 \mu\text{mol/L}$ であり、全国平均 $9.9 \mu\text{mol/L}$ とほぼ同程度であるが、 NO_3^- 年平均濃度は、 $24.7 \mu\text{mol/L}$ で最高値である(全国平均 $14.0 \mu\text{mol/L}$)。このように加須は、国内で湿性沈着の NO_3^- 濃度が高い地点である。県内の調査地点であるさいたまも、 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 年平均濃度がそれぞれ、 9.7 、 $23.4 \mu\text{mol/L}$ と同様の傾向である。また、同調査で加須はフィルターパック法で測定した大気中の全硝酸(HNO_3 ガス+ NO_3^- 粒子)濃度が 68.0mmol/m^3 で年間データが有効となった25調査地点の中で最高値となった(全国平均 38.6mmol/m^3)。

湿性沈着や大気中の全硝酸濃度が、日本海側など大陸に近い地点より高濃度になるのは、越境大気汚染の影響に加えて、首都圏近郊にあり都市大気汚染による二次生成の影響の大きい地域にあるためと考えられる。埼玉県は夏期に Ox が高濃度になる傾向があり、光化学スモッグ注意報の発令日数は全国でも上位である。 NO_x は、気中の光化学反応の過程で NO_3^- に酸化される(二次生成)。したがって、 Ox 濃度が高くなるときほど、 NO_3^- の生成量が多くなると考えられる。 NO_3^- 沈着

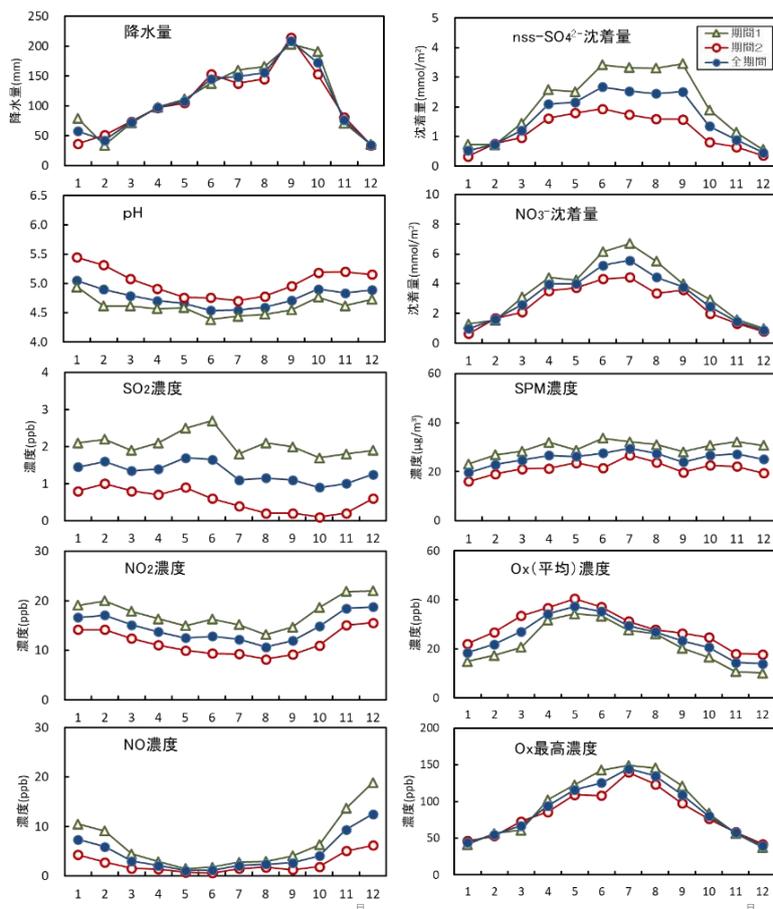


図3 湿性沈着物、大気汚染物質の経月推移

量は夏期を中心に減少している。これは、原因物質であるNO_x排出量の減少によって、都市大気汚染由来の夏期の二次生成量が減少したことに起因すると考えられる。

4 まとめ

環境科学国際センター展示館屋上で湿性沈着の観測を20年間実施した結果、以下のことが分かった。

- (1) 調査を実施した2000年度から2019年度の20年間で、降水量は明らかな増減は確認できなかったが、pHは上昇、ECは減少、nss-SO₄²⁻、NO₃⁻、nss-Cl⁻、NH₄⁺、H⁺は濃度、沈着量ともに減少した。
- (2) 10年ごとに前半を期間1(2000-2009年度)、後半を期間2(2010-2019年度)として月ごとに比較した結果、pHはおおむね全ての月で上昇、nss-SO₄²⁻沈着量、NO₃⁻沈着量は、夏期を中心に減少した。
- (3) nss-SO₄²⁻沈着量、NO₃⁻沈着量の減少は、原因物質であるSO₂、NO_xの国内外の排出量の減少によるものと考えられる。

文献

- 1) 例えば、埼玉県環境部大気環境課(2019)平成29年度大気環境調査事業報告書、55-66.
<https://www.pref.saitama.lg.jp/a0504/taikihoukokusyo.html> (2020. 3. 5アクセス)
- 2) 例えば、全国環境研協議会 酸性雨広域大気汚染調査研究部会(2020)第6次酸性雨全国調査報告書 2018(平成30)年度、全国環境研会誌、Vol.45、No.3、2-38.
https://tenbou.nies.go.jp/science/institute/region/journal/01JELA_4503000_2020.pdf (2020. 3. 5アクセス)
- 3) 環境省:湿性沈着モニタリング手引き書(第2版)
http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html (2021. 3. 1.アクセス)
- 4) 埼玉県環境部大気環境課:現在の大気状況
<http://www.taiki-kansi.pref.saitama.lg.jp/> (2021. 1.12.アクセス)
- 5) 環境省水・大気環境局大気環境課長(2016):光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示すための指標に係る測定値の取り扱いについて
https://www.env.go.jp/air/osen/oxidant/h27oxidant_trend.pdf (2021. 3. 1.アクセス)

[資料]

エンジンオイル等の異同識別を目的とした 1-ニトロピレンのLC/MS/MS分析

野尻喜好 柿本貴志

1 はじめに

埼玉県内では河川や用排水路等での油流出事故が毎年発生している。原因者を把握し、再発防止措置をとることは重要な課題である。油膜などを目視で追跡する調査法では発生源まで辿れないこともあり、これを補完する調査法の開発が求められている。

当センターでは、目視の調査により発生源の絞り込みが数施設までできた事例において、現場で採取した流出油と絞り込まれた施設で使用している油の異同識別分析を実施することで、原因施設を更に絞り込むことを試みている。原因の疑いがある施設から提供された油は、使用履歴などが河川へ流出した油とは異なっている場合があり、異同識別分析をする際には、考慮に入れる必要がある。

自動車エンジン内の燃焼で発生した排ガスには、多環芳香族炭化水素やニトロ化した多環芳香族炭化水素(以後、NPAH)が含まれている。未使用エンジンオイルには、原油由来、使用済エンジンオイルには原油由来と排ガス由来の多環芳香族炭化水素が含まれる¹⁾。NPAHは燃焼に伴う非意図的生成物であるため、未使用の自動車エンジンオイルには含まれていないと想定される。そのため、エンジンオイル中のNPAHの存在が未使用油、使用済油の指標になると考えられる。本調査では、油流出時の異同識別手法として、自動車排ガス中に含まれ一次生成NPAHである²⁾、1-ニトロピレン(1-nitropyrene)を測定対象とし、LC/MS/MSにより油試料の分析を試みた結果を報告する。

2 方法

2.1 試料

測定対象試料はディーゼルエンジンオイル、ガソリンエンジンオイル、油圧作動油、軽油とした。

- ① ディーゼルエンジンオイル(未使用油、廃油):各1検体
製品名:テクノパワー DL1 5W-30(エンパイヤ自動車)
- ② ガソリンエンジンオイル(未使用油、廃油):各1検体
製品名:バーンFormula eco 0W-20(キグナス石油)
- ③ 油圧作動油(未使用、廃油):各1検体

製品名:ダフニススーパーハイドロ(出光興産)

- ④ 軽油(未使用油):1検体 製品名:不明

2.2 精製

LC/MS/MS測定に供するための試料の精製フローを図1に示した。各試料はヘキサンまたはジクロロメタンで1000mg/Lに希釈し、その10mLを分析に用いた。窒素気流下で約1mLのヘキサン溶液となるよう濃縮後、市販シリカゲルカートリッジカラム(Sep-Pak Plus SILICA, Waters製)に充填し、0.5%アセトン含有ヘキサン9mLで洗浄した。その後、10%アセトン含有ヘキサンを流し、溶出液8mLを濃縮管に得た。溶出液を窒素気流下で少量のメタノールを加えながら濃縮し、200 μ Lに定容した。

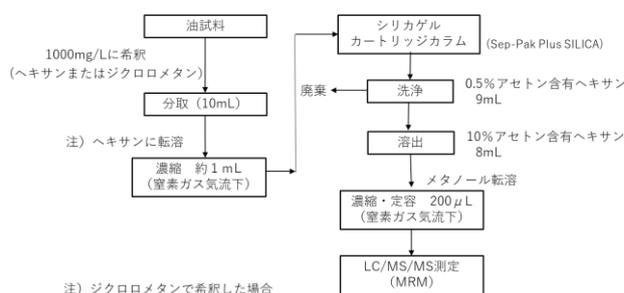


図1 精製操作のフロー

表1 LC/MS/MS の測定条件

装置	Acquity UPLC H-Class / Xevo TQD (Waters)		
LC条件	Waters CORTECS C18+		
カラム	3.0mmID 長さ50mm 粒径1.6 μ m		
移動相	A 10mM 酢酸アンモニウム	B 水	C メタノール
	0 → 0.5分	A/B/C = 5/35/60	
	8分	A/B/C = 5/0/95	
カラム流量	0.4 mL/分	注入量	10 μ L
MS条件	キャピラリー電位 : 2.0 kV		
	ソース温度 : 140 $^{\circ}$ C	デゾルベーション温度 :	500 $^{\circ}$ C
	デゾルベーションガス : 800L/時間(窒素)	コーンガス :	50L/時間(窒素)
	イオン化法 : ESI(+)	測定モード :	MRM
	モニターイオン : (m/z)	(コーン電位 ,	コリジョンエネルギー)
	1-nitropyrene : 248>201	(32V ,	36eV)

2.3 LC/MS/MSでの分析

LC/MS/MSでの測定条件は表1に示した。イオン化法をAPCI(-)とすると1-ニトロピレン以外のNPAHも検出できるが³⁾

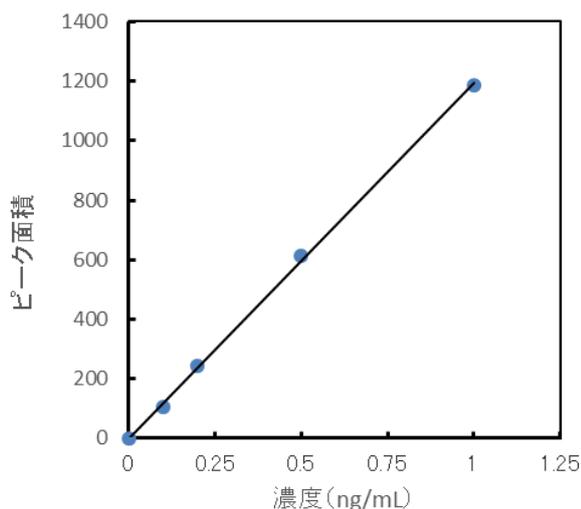


図2 1-ニトロピレン濃度とピーク面積

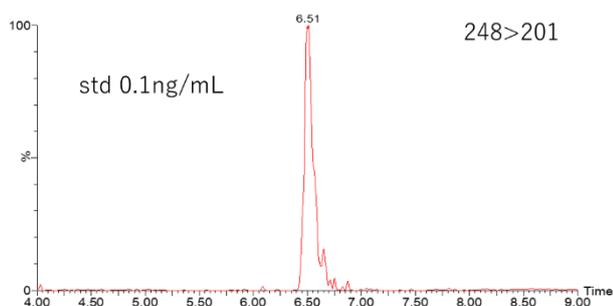


図3 標準溶液 (0.1ng/mL) のクロマトグラム

本調査では検出感度の面からイオン化法をESI(+)として1-ニトロピレンを測定した。適切な内部標準物質を入手できなかったことから、定量は絶対検量線法で行い、0.1から1ng/mLの範囲で良好な直線性が認められた(図2)。図3に0.1ng/mL標準溶液のクロマトグラムを示した。装置の検出下限(0.09pg)から算出した測定方法の検出下限は0.2ng/gであった。ヘキサンで希釈した油圧作動油(未使用)10mLに1-ニトロピレン標準物質5ngを添加したときの回収率(n=1)は71%であった。

3 結果と考察

表2に油試料中に含まれる1-ニトロピレンの濃度を示した。1-ニトロピレンの含有が予想されたディーゼルエンジンオイル(廃油)が3.3ng/g、ガソリンエンジンオイル(廃油)が0.9ng/gと検出できた。それぞれの製品の未使用油は、不検出(<0.2ng/g)であることが確認できた。ディーゼルエンジンの燃料である軽油に1-ニトロピレンが含まれていると使用済みエン

表2 油試料中の1-ニトロピレン濃度

試料名	状態	濃度 ng/g
ディーゼルエンジンオイル	未使用	<0.2
ディーゼルエンジンオイル	廃油	3.3
ガソリンエンジンオイル	未使用	<0.2
ガソリンエンジンオイル	廃油	0.9
油圧作動油	未使用	<0.2
油圧作動油	廃油	<0.2
軽油		<0.2

ジンオイルへ移行することが想定されるが、軽油は不検出であることが確認できた。油圧作動油では廃油においても1-ニトロピレンは不検出であり、使用過程で生成していないことが確認できた。

本調査では廃エンジンオイルなどの油試料に含まれる1-ニトロピレンをLC/MS/MSを用いて測定する方法の開発を行った。その結果、自動車エンジンの燃焼により生じる1-ニトロピレンのエンジンオイル中での存在状況をモニターできることが可能となった。

4 まとめ

エンジンオイル中のNPAHの存在が未使用油、使用済油の識別に活用できると考え、エンジンオイル中の1-ニトロピレンのLC/MS/MSによる分析を行った。その結果、未使用エンジンオイルからは1-ニトロピレンが検出されなかったが、使用済みエンジンオイルからは1-ニトロピレンが検出でき、未使用/使用済みの判別に使える可能性があると考えられた。ただし、検証した試料数が少なく確実性の問題が残るため、さらに測定例を増やすことが重要である。

文献

- 1) Zhendi Wang, Merv Fingas, Y.Y.Shu, Lise Sigouin, Michael Landriault, Pat Lanbert, Rod Turpin, Phil Campagna, Joseph Mullin (1999) Quantitative characterization of PAHs in burn residue and soot samples and differentiation of pyrogenic PAHs from petrogenic PAHs - The 1994 mobile burn study, *Environmental Science & Technology*, 33, 3100-3109.
- 2) 早川和一、鳥羽陽、亀田貴之、唐寧(2007) 有害性ニトロ多環芳香族炭化水素類を対象とする分析法の開発と環境動態解析、*分析化学*, 56(11)、905-920.
- 3) 環境省環境保健部環境安全課(2017) 化学物質分析法開発調査報告書(平成28年度)修正追記版、406-430.