

論文

福島第一原発事故に起因する 放射性セシウムの表土における粒度別濃度

稲垣昌代¹、山西弘城¹、若林源一郎¹、芳原新也¹、伊藤哲夫¹、古川道郎²

Radioactive cesium concentration in topsoil for each grain size due to the accident of Fukushima Daiichi nuclear power plant

Masayo INAGAKI¹, Hirokuni YAMANISHI¹, Genichiro WAKABAYASHI¹,
Sin-ya HOHARA¹, Tetsuo ITOH¹ and Michio FURUKAWA²

福島第一原子力発電所より北西約40kmに位置する福島県川俣町で、小学校の校庭、畑、砂場における土壌を深度ごとに採取し、それぞれ粒径により分級後、放射性セシウム濃度をゲルマニウム半導体検出器で測定した。また同試料を水で洗浄後に再分級し、粒度別の濃度変化を確認した。その結果、¹³⁷Cs濃度は、土壌の粒径が小さいほど高いこと、大粒径に付着している小粒子は水洗いにより分離可能であること、この小粒子を回収して除染効果を高められることがわかった。

Large amount of radioactive materials had released by the nuclear power plant accident at Fukushima Daiichi site. The level of radiation dose rate has been raised by the radioactive material on the ground. We collected soil samples from play ground, dry field and sand pool of the elementary school in Kawamata-town, Fukushima-Pref., Japan, which is located about 40 km from the power plant in north-west direction. The soil samples were sieved and measured radioactive cesium concentration by means of high pure germanium detector. The result shows that ¹³⁷Cs concentration increase with decreasing the average grain diameter of soil. It means that the amount of radioactive cesium in soil depends on the surface area of soil grain.

KEY WORDS: Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, environmental radiation, cesium-137, soil, grain size, sieve, wet processing, decontamination

¹ 近畿大学原子力研究所；東大阪市小若江3-4-1（〒577-8502）

E-mail : masayo.inagaki@itp.kindai.ac.jp

Atomic Energy Research Institute, Kinki Univ.; 3-4-1 Kowakae, Higashi-osaka, Osaka, 577-8502, Japan.

² 福島県伊達郡川俣町長；福島県伊達郡川俣町字五百田30（〒960-1492）

Mayor of Kawamata-town; 30 Gohyakuda, Kawamata-town, Fukushima, 960-1492, Japan.

1. 緒 論

福島県伊達郡川俣町は東京電力福島第一原子力発電所から北西に30kmを越えた場所に位置している。町の南に位置する山木屋地区が、2011年4月22日に年間線量20mSvを上回るとして計画的避難区域に指定された。近畿大学原子力研究所は、この川俣町と共同で、環境放射線の調査を行い、実態の把握と対策の提言に資するデータの収集を行っている。これまでの調査を通じて、降下した放射性セシウムは地表面近くに存在していることが明らかになっている^{1~5)}。

放射性セシウムのほとんどは土壤に保持されている⁶⁾。放射性セシウムが土壤に吸着している場合、土壤粒子の単位体積あたりの表面積の大小によって土壤粒子表面への吸着量が異なると推定できる。すなわち、土壤の粒径の小さなものの方が多くの放射性セシウムを保持していると考えられる⁶⁾。著者らは、前報の一部において、計画的避難区域にある山木屋小学校の校庭で2011年5月に採取した土壤を6段階に分級し、粒度ごとの放射性セシウム濃度を測定することによって、表土における放射性セシウムの吸着状況を明らかにした²⁾。

本研究では、採取時期、土質、深さ、場所が異な

る試料として、山木屋小学校と計画的避難区域ではない飯坂小学校において、2011年5月、7月、10月に採取した土壤を粒度別に分級して、放射性セシウムの濃度を測定した。測定データに基づいて、それぞれ採取条件や土壤の状態による差異について検討し、これによって放射性セシウムの土壤への吸着状況とその時間的な変化を明らかにする。土壤中での放射性セシウムの保持についての知見が得られれば、効率的な除染の方法、除染廃棄物の取扱い、除染廃棄物の分類管理に役立つと期待できる。

2. 方 法

2.1 試料採取

土壤採取場所、土質、採取深さ、採取時期をTable 1に示す。また、Fig. 1に山木屋小学校と飯坂小学校の位置を示す。採取場所の山木屋小学校とそれに隣接する体験農園の畑は計画的避難区域にある。土質としては、校庭（運動場）、砂場、畑地と3種類である。飯坂小学校の砂場は、校庭のすみにある。校庭での採取はほぼ中央で行った。校庭の中央付近における線量率分布の均一性を測定によって確認済みである^{1,8)}。どの採取地点も水はけがよく、周囲からの水が流れ込むような位置にはない。

Table 1 Sampling place, soil type, depth, date in Kawamata-town

Name	Place	Soil type	Depth	Date
Y/PG/(0-5)/May	Yamakiya elementary school	play ground	0-5mm	May 1, 2011
Y/PG/(5-10)/May	Yamakiya elementary school	play ground	5-10mm	May 1, 2011
Y/PG/(0-7)/Oct	Yamakiya elementary school	play ground	0-7mm	October 9, 2011
Y/PG/(7-13)/Oct	Yamakiya elementary school	play ground	7-13mm	October 9, 2011
Y/F/(0-5)/May	Yamakiya elementary school	dry field	0-5mm	May 1, 2011
Y/F/(5-10)/May	Yamakiya elementary school	dry field	5-10mm	May 1, 2011
Y/F/(0-7)/Oct	Yamakiya elementary school	dry field	0-7mm	October 9, 2011
Y/F/(7-26)/Oct	Yamakiya elementary school	dry field	7-26mm	October 9, 2011
I/PG/(0-7)/Jul	Iizaka elementary school	play ground	0-7mm	July 17, 2011
I/PG/(7-16)/Jul	Iizaka elementary school	play ground	7-16mm	July 17, 2011
I/S/(0-22)/Jul	Iizaka elementary school	sand pool	0-22mm	July 17, 2011
I/S/(22-45)/Jul	Iizaka elementary school	sand pool	22-45mm	July 17, 2011
I/PG/(0-7)/Oct	Iizaka elementary school	play ground	0-6mm	October 9, 2011

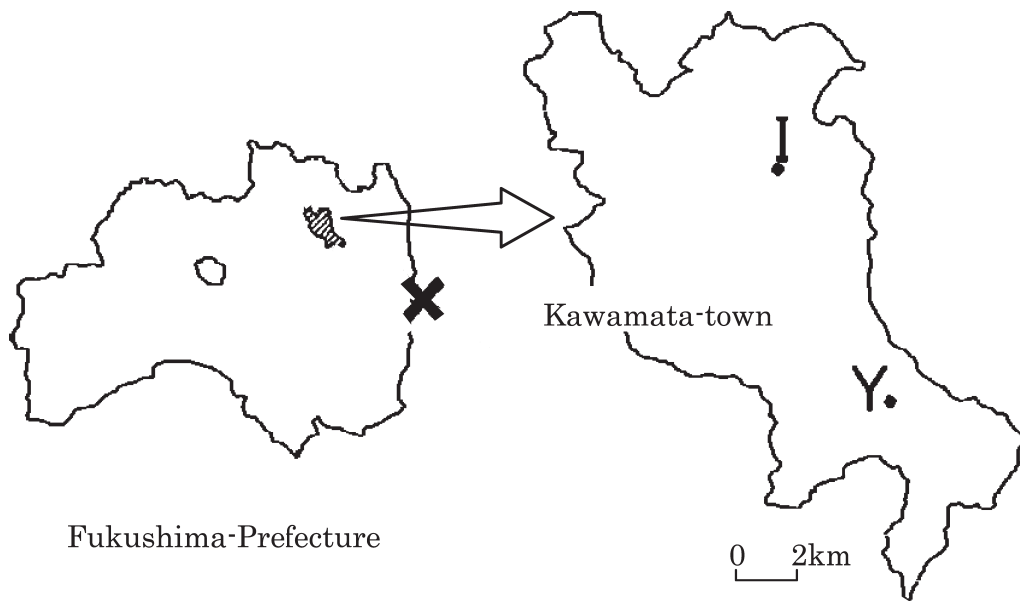


Fig. 1 Location of sampling points in Kawamata-town
 Y, I : sampling points (Yamakiya, Iizaka)
 X : Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

また、植物が生えていないところを選んで採取した。採取はスコップによって行い、一辺30cmの正方形の範囲の土壌をビニール袋に入れて持ち帰った。本研究で用いた土壌の採取深さは、校庭で15mmまで、砂場で50mmまで、畑で30mmまでとした。

2.2 処理

採取した土壌試料約100cm³ (80g ~ 180g) について、乾燥機にて105℃で乾燥後、ふるいによって、6段階に分級した。その粒径の分類は、乾式処理として①；0.125mm未満、②；0.125mm以上0.25mm未満、③；0.25mm以上0.5mm未満、④；0.5mm以上1.0mm未満、⑤；1.0mm以上2.0mm未満、⑥；2.0mm以上とした。分級時に乾燥によって土壌粒子自体がくっついて固まることもある。そのような場合は、さじで砕ける程度に砕き、分級した。分級した土壌は、それぞれU8容器に入れて測定用試料とした。

乾式処理をして測定を終えた試料を水洗いし、同様に6段階にふるいを用いて分級し、乾燥機で乾燥させた(湿式処理)。その際、洗いは捨てずに乾

燥させた。乾燥試料を再びふるいにかけて分級し、U8容器に入れて測定用試料とした。

2.3 測定

U8容器に封入した測定用試料は、高純度ゲルマニウム半導体検出器(HPGe)を用いてガンマ線測定を行い、その結果から含まれる放射性セシウムを定量した。測定に用いたHPGeは相対効率16.33%で、検出器を囲む鉛遮へいの厚みは5cmである。分析に用いたガンマ線分析プログラムは、SEIKO EG&G社製のガンマスタジオで、自己吸収補正とサムピーク補正を行っている。計数時間は600秒~3600秒として、正味計数が少ない場合は3600秒とした。測定値は採取時の濃度を示すように半減期補正したものを示す。

3. 結果と考察

本研究では、¹³⁷Csについて議論する。その理由は、(1) ¹³⁴Csは半減期2年と短いため採取時期による差異があること、そして、(2) ¹³⁴Csと¹³⁷Csの土壌への吸着の仕方は同様なので、¹³⁷Csの値から放射性Csの挙動を把握できると考えたためである。

Fig. 2～Fig. 4に乾式処理をおこなった粒度別の¹³⁷Cs濃度を採取場所ごとに示す。図より、粒度の小さな土の方が濃度が高い傾向を示すことがわかる。Fig. 2は、山木屋小学校の校庭の土壌についての測定結果で、採取月の経過、採取深さによって異なる様子が見られる。Fig. 3は、畑地での様子である。校庭と同様に細かい粒径の方が濃度が高い傾向にある。Fig. 4は、砂場と校庭の土との比較である。やはり、細かい粒径で濃度が高いけれども、粒径の大きなところでの濃度が異なる。乾式処理を施した試料の測定結果は、粒度が小さいほど放射性セシウムの濃度が高い。それは採取時期、土質、深さ、場所によらず同じ傾向であった。また採取時期が遅くなるほど¹³⁷Csの濃度が低くなり、その減少は粒度が小さいものほど大きかった。

水洗いの前後で、粒度別の重量比と濃度が変化する。その様子を採取場所、採取時期毎にFig. 5～Fig. 11に示す。図中に示す矩形は、左から粒径の

小さな分類である①～⑥の順に並べている。図の横軸は土壌重量1kgあたりに占める割合を表しており、縦軸は¹³⁷Cs濃度を表している。したがって、矩形の面積はその粒度の¹³⁷Cs放射能を表している。Fig. 5は、2011年5月1日に採取した山木屋小学校校庭の異なる深さの土壌である。左側の2つは水洗前、右側の2つは水洗後である。深さが異なっても粒度別の重量比は同じ傾向を示している。水洗前は粒度ごとにほぼ同等に分布していたが、水洗によって、大きな粒径の表面に付着していた微小粒径のものが脱離して、全体として小さな粒度の重量比が増加したことが図から読み取れる。それによって最も小さい粒径のものが占める¹³⁷Csの割合が、この試料の場合、18%から55%に増加した。このことから表土を除去する場合に、水による洗浄を行うことで粒径の大きな粒子の表面に着いた細かい粒子を脱着させて回収することが除染効果を高めることがわかる。

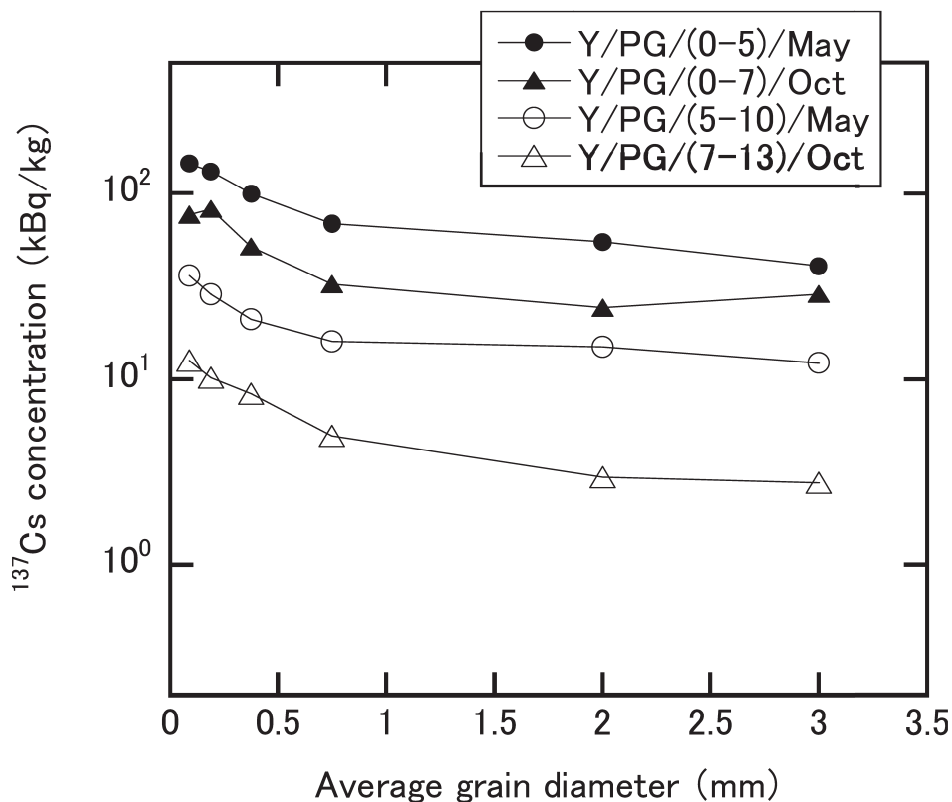


Fig. 2 Concentration of ¹³⁷Cs in each grain size before washing (play ground in Yamakiya elementary school)

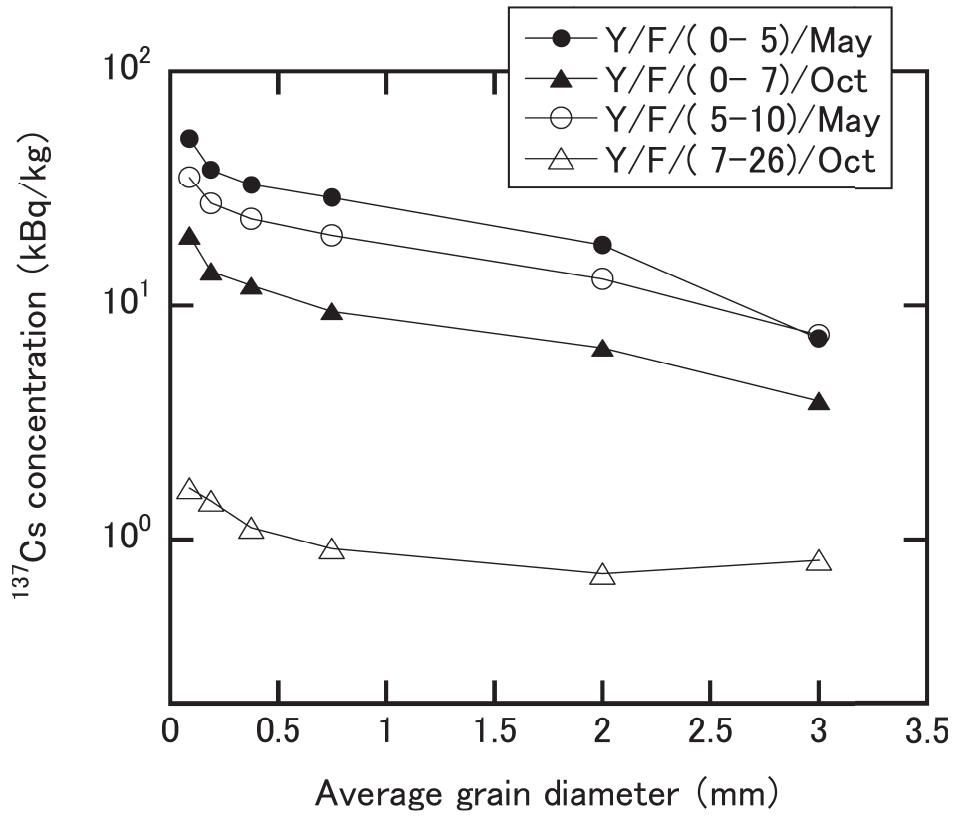


Fig. 3 Concentration of ^{137}Cs in each grain size before washing (dry field in Yamakiya elementary school)

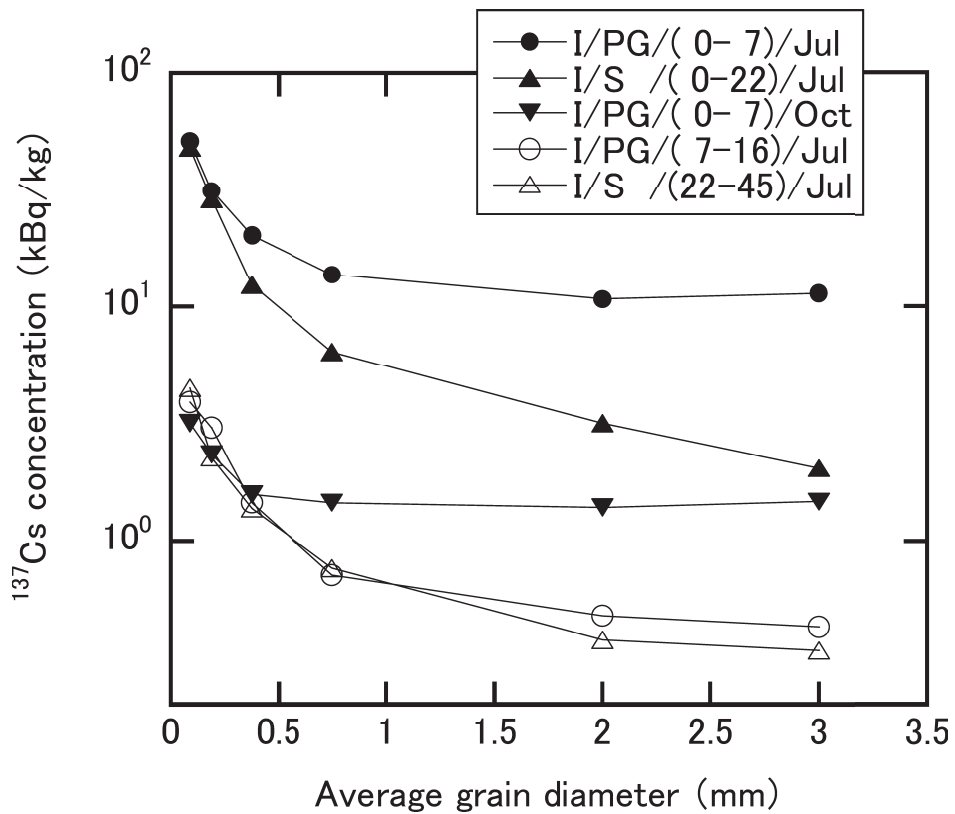


Fig. 4 Concentration of ^{137}Cs in each grain size before washing (play ground and sand pool in Iizaka elementary school)

福島第一原発事故に起因する放射性セシウムの表土における粒度別濃度

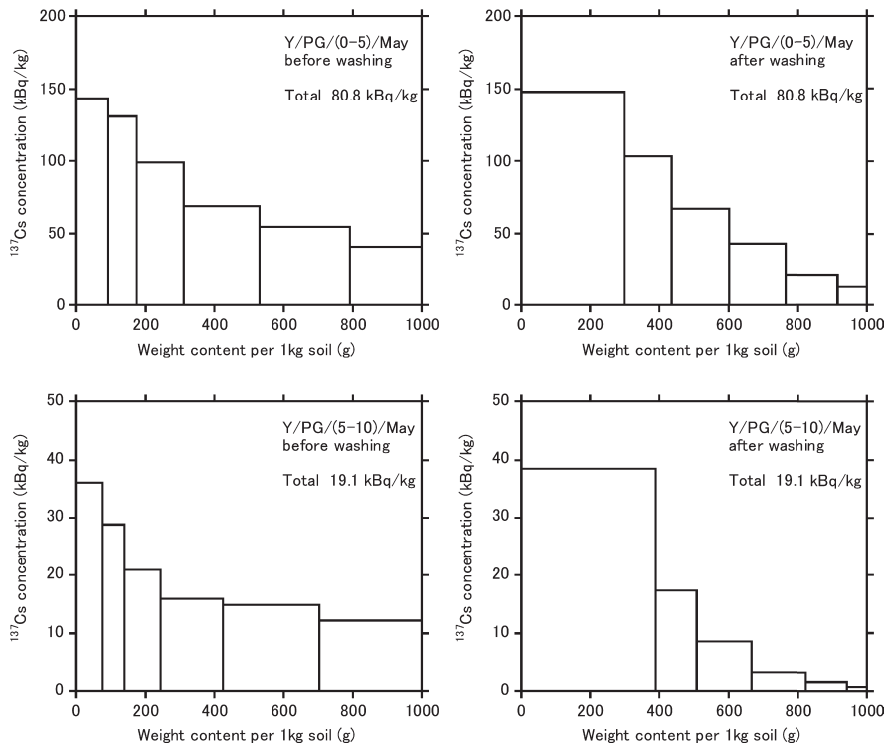


Fig. 5 Comparison of ¹³⁷Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (play ground in Yamakiya elementary school, May, 2011)

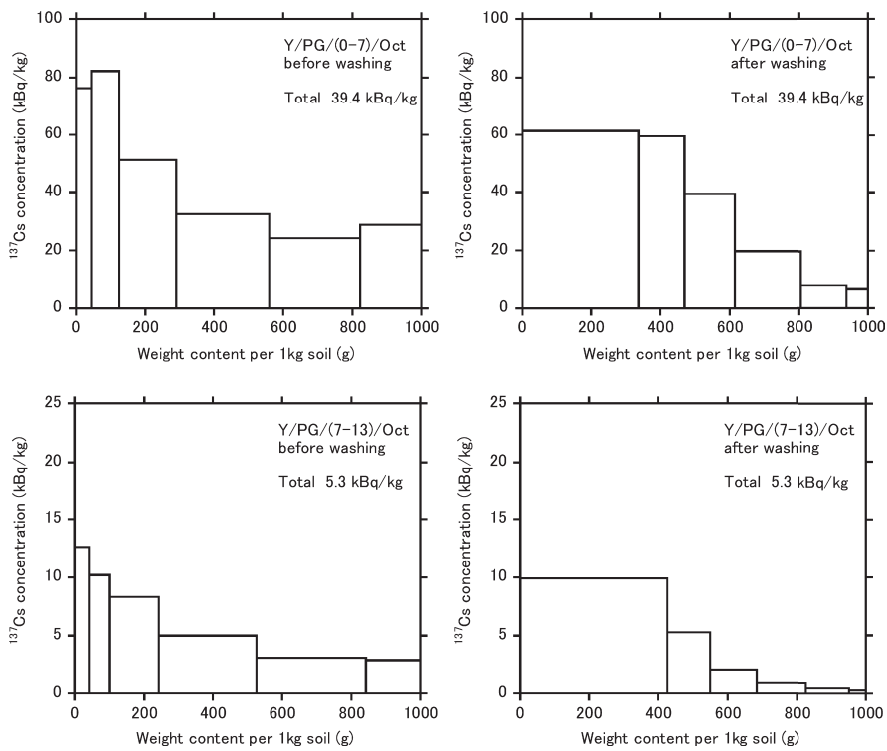


Fig. 6 Comparison of ¹³⁷Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (play ground in Yamakiya elementary school, Oct, 2011)

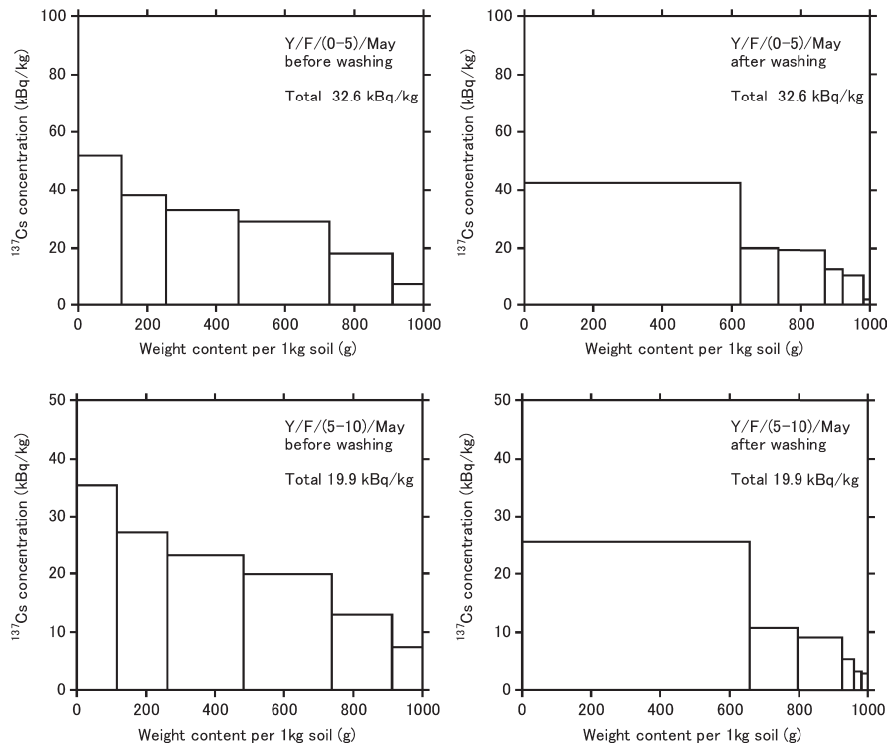


Fig. 7 Comparison of ^{137}Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (dry field in Yamakiya elementary school, May, 2011)

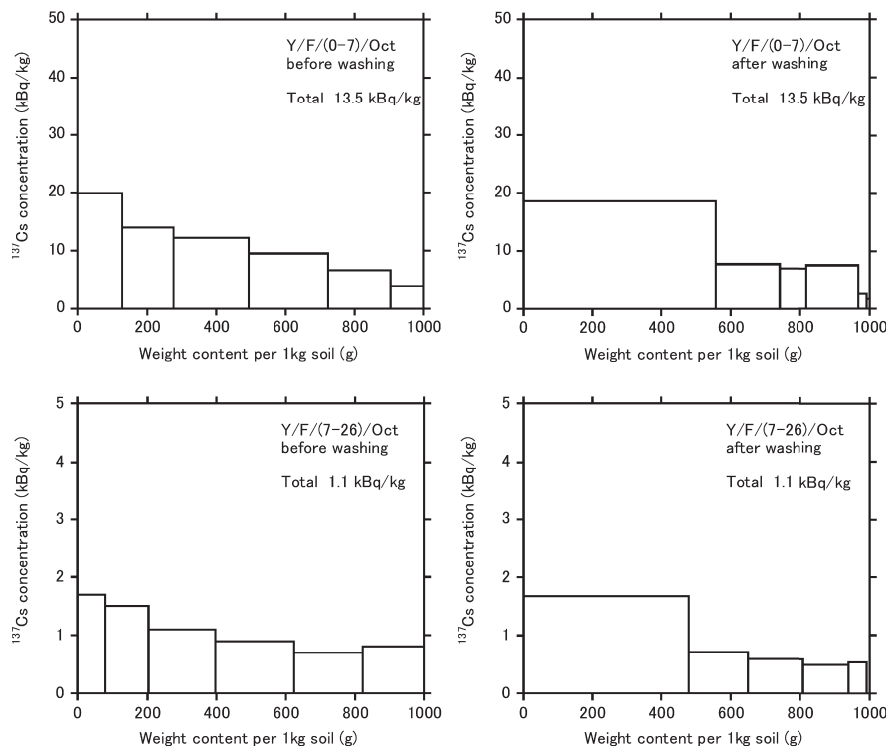


Fig. 8 Comparison of ^{137}Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (dry field in Yamakiya elementary school, Oct, 2011)

Fig. 6は、採取時期が2011年10月である。山木屋小学校では、2011年10月以前に校庭の表土除去は行っていない。5月の採取時から163日が経過しており、単位重量あたりの ^{137}Cs 量が2分の1程度に減少した。粒度毎の重量比は5月とほぼ同じであった。Fig. 7は2011年5月1日に採取した山木屋小学校の畑の土壌である。校庭の土壌とは異なる粒度別重量比であるが、深さが異なっても重量比はほぼ同じであった。水洗によって重量比が大きく変化し、

粒径の小さいものの割合が多い。また粒度の違いによる濃度の差異は校庭土壌よりも小さい。Fig. 8は同じく山木屋小学校畑で2011年10月に採取したものである。濃度の粒度毎分布の傾向は、地表面付近でも深いところでも差は大きくない。深いところの濃度は地表面付近の約10分の1であった。5月の深さ5mm～10mmの結果は、10月の深さ0mm～7mmの結果とよく似ている。水洗前後の粒度別重量比は5月の場合と変わりがなく、 ^{137}Cs 濃度の減少

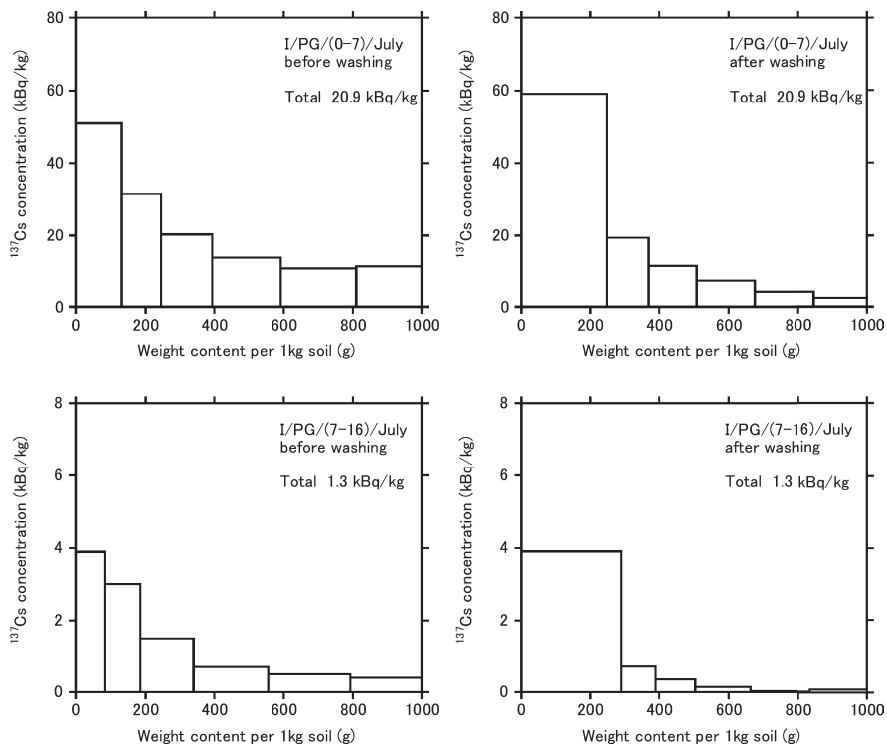


Fig. 9 Comparison of ^{137}Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (play ground in Iizaka elementary school, July, 2011)

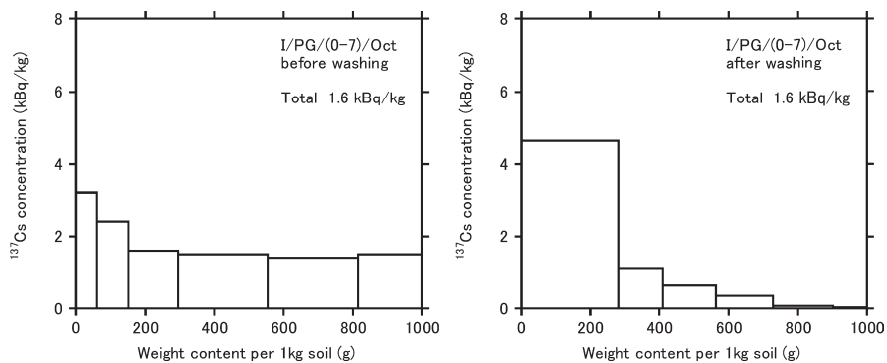


Fig.10 Comparison of ^{137}Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (play ground in Iizaka elementary school, Oct, 2011)

のみが見られた。Fig. 9は、2011年7月の飯坂小学校校庭の表土のもので、粒度別重量比と濃度分布の傾向は、山木屋小学校校庭のものと類似している。深さが異なると濃度は異なるけれども、粒度別の濃度分布の傾向は同じである。すなわち、Fig. 5と比較すると、降下した放射性セシウムの量の違いが粒度毎濃度分布に影響している様子がわかる。また山木屋小学校校庭の深さ5mm～10mmは、飯坂小学校の地表面の結果と似ている。Fig. 10は、飯坂小学校校庭で10月に採取した土壌に関するものである。飯坂小学校では2011年8月に校庭の表土を除去した。Fig. 9との比較によって、表土除去の前後の変化がわかる。除去後の地表面での濃度は、除去前の深さ7mm～16mmの濃度と同レベルであり、水洗後の粒度別濃度分布も7月の深さ7～16mmの結果とよく似ている。Fig. 11は、2011年7月における飯坂小学校の砂場の結果である。砂場の深さ22mm～45mmでは、表土の濃度の1/8～1/14である。砂場の砂は、畑や校庭の表土と異なる粒度別重量比

を示している。大きな粒度の存在割合が比較的高いが、それらの濃度は極低で、小さな粒度のものに放射性セシウムが集中している。

Fig. 5～Fig. 11を通して、次のことが言える。異なる土質（校庭・砂場・畑）でも、小粒径で ^{137}Cs 濃度が高い傾向は同じである。また、どの粒径でも表層の方が高い ^{137}Cs 濃度を示す。水洗によって、粒径の小さなものの割合が増す。また小粒径のものが分離したことで大粒径の割合は減り、濃度も減少する。同一の場所での採取では、採取時期が新しくなると濃度が減少するが、その一方で、粒度別重量比や粒度別の濃度分布の傾向に変化はなかった。

校庭、砂場、畑と土質の違いを比較してみたが、地表面においては、濃度の粒度毎分布の傾向は同様であった。地表面から深いところでは、地表面に降下した際の一様な吸着ではなく、地表面のものが浸透していったと考えられるので、濃度の粒度毎分布の傾向が異なると考えられる。本研究では地表面か

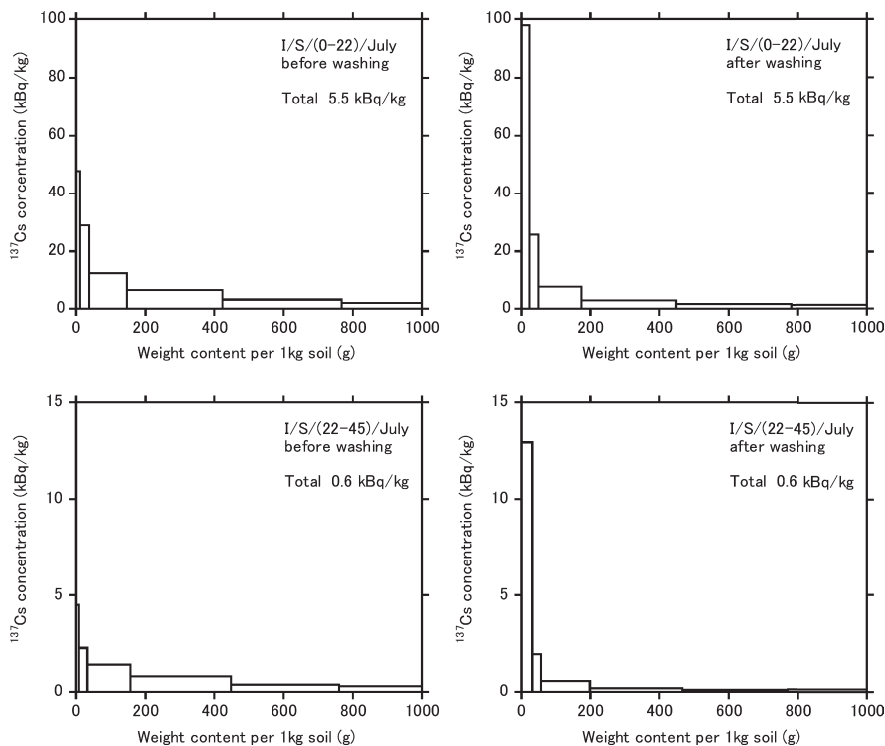


Fig.11 Comparison of ^{137}Cs concentration in soil with weight content, before and after washing (sand pool in Iizaka elementary school, July, 2011)

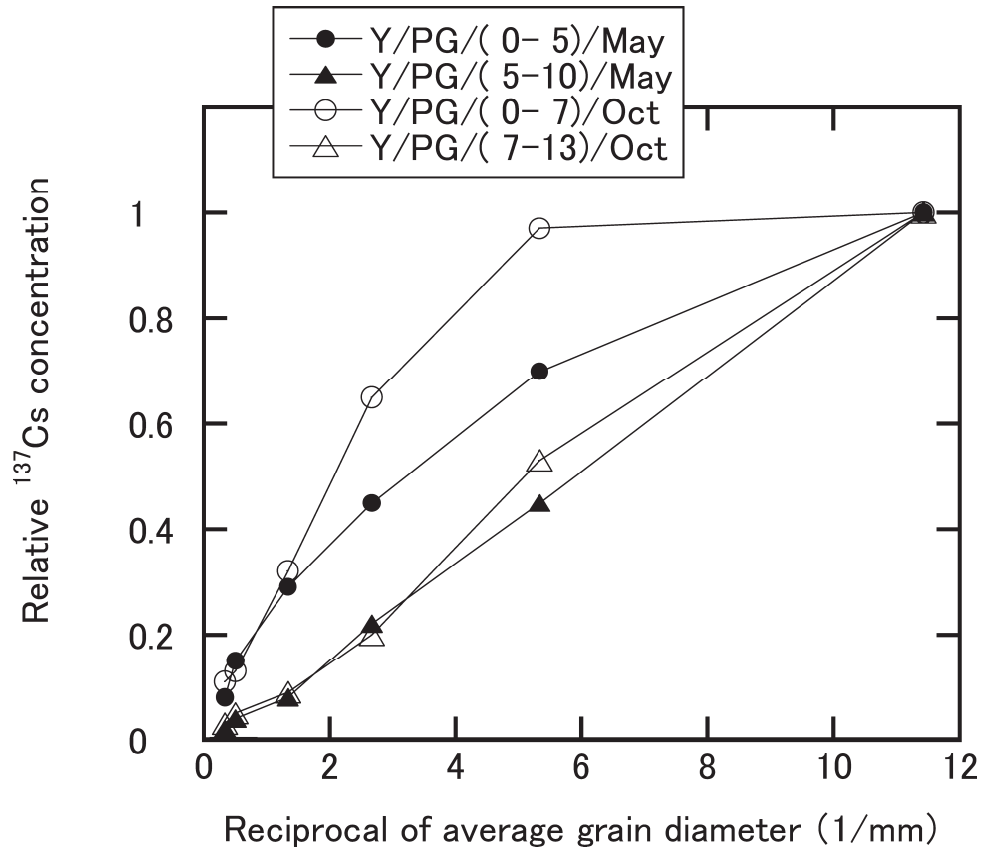


Fig.12 Relationship between reciprocal of average grain diameter and ^{137}Cs concentration (play ground in Yamakiya elementary school)

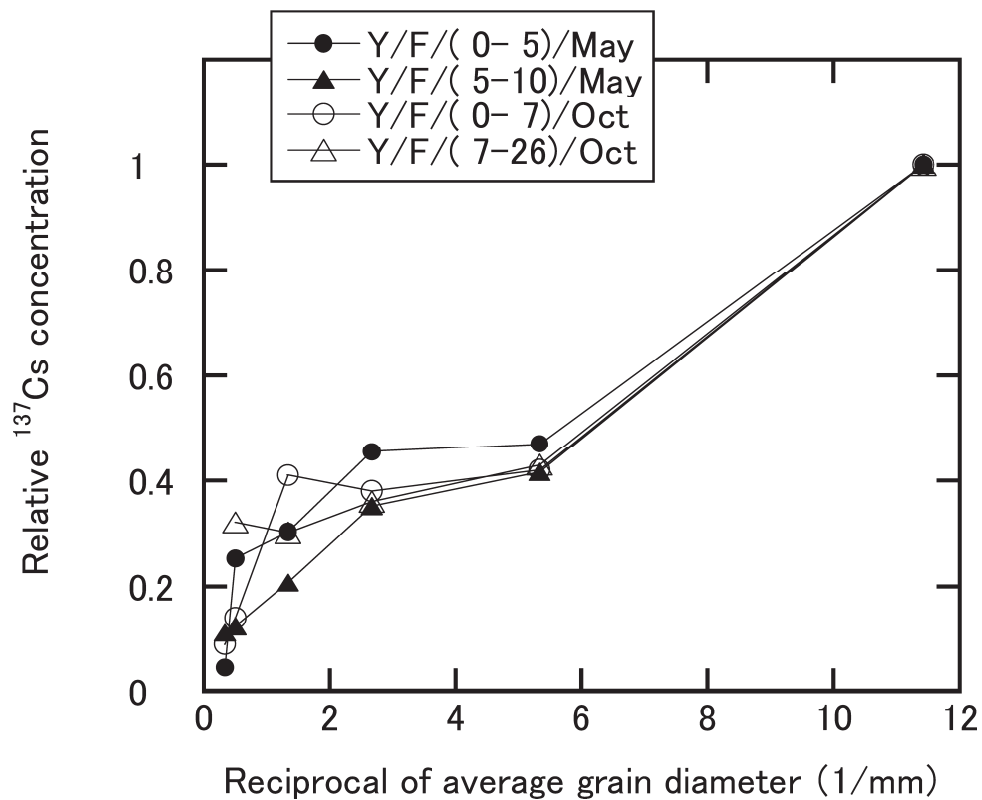


Fig.13 Relationship between reciprocal of average grain diameter and ^{137}Cs concentration (dry field in Yamakiya elementary school)

ら50mm以上の深いところは扱っていないので、今後の課題である。

水洗後のデータを用いて、¹³⁷Cs濃度と平均粒径との関係を考察する。土壌の粒を球と仮定すると単位体積（もしくは単位重量）あたりの表面積は粒径の逆数に比例する。平均粒径の逆数と濃度との関係をFig. 12～ Fig. 14に示す。面積あたりの吸着量が同じであると考え、球に近い条件であれば、¹³⁷Cs濃度と平均粒径の逆数は直線関係になる。Fig. 12に示すように、山木屋小学校の深さ 5-10mmの値は直線に近かった。畑以外は最小粒径を除いて直線に近い形をとっている。今回、最小粒径の¹³⁷Cs濃度を基準として規格化したか、最小粒径をさらに細かく分類すれば結果が異なると考えられる。また放射性セシウムの吸着は土壌中の粘土鉱物の種類によって異なる⁶⁾。土壌が異なればそこに含まれる鉱物の種類も異なるため、放射性セシウムの保持量に

ついて詳細に把握するには、さらに粘土鉱物ごとの考察が必要となり、今後検討したい。

4. 結論

2011年5月、7月、10月に採取した土壌を粒度別に6段階に分級して、放射性セシウムの濃度を測定し、採取時期、土質、深さ、場所による差異について検討した。その結果、以下のことがわかった。(1) 粒径が小さいほど¹³⁷Cs濃度が高かった。(2) 大粒子に付着している小粒子は水洗によって分離できた。(3) 異なる土質（校庭・砂場・畑）でも、粒径が小さいほど¹³⁷Cs濃度が高く、同じ傾向を示す。(4) ¹³⁷Cs濃度は、平均粒径の逆数に対して単調増加の傾向にあるため、土壌粒子面積あたりの吸着量が同じであると考えられる。

以上の結果から、表土を除去する場合、「水による洗浄を行い、細かい粒子を回収する」ことが除染

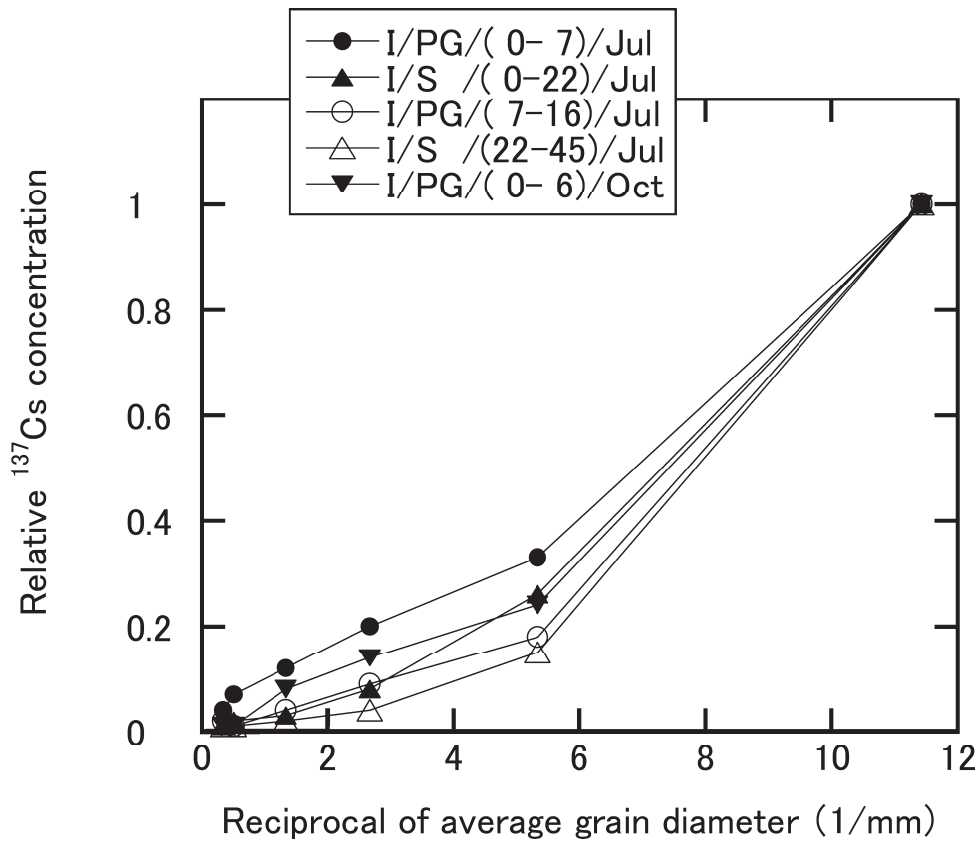


Fig.14 Relationship between reciprocal of average grain diameter and ¹³⁷Cs concentration (in lizaka elementary school)

効果を高めると言える。微小粒径成分は、水中での沈降速度が小さいので、水洗後の上澄みを分離することで回収できる。

復興に向けて、生活場所での線量率の低減化が重要課題である。線源である放射性セシウムが表土に存在していることから、線量率低減には表土除去が有効である。表土除去や土壌改良を行うにあたって、放射性セシウムの土壌・植物への吸着・結合状況を把握することは、今後の土壌への吸脱着や再浮遊、地下水への移行を予測するのに必要な情報である。また、脱着方法を検討し、廃棄土壌の減容・固定化に向けた基礎データを取得していきたいと考えている。

謝 辞

本調査にご理解とご協力をいただきました川俣町の神田紀教育長、仲江泰宏氏をはじめ、川俣町役場の皆様方に心より感謝申し上げます。

文 献

- 1) 伊藤哲夫, 古川道郎, 杉浦紳之, 山西弘城, 堀口哲男, 芳原新也, 若林源一郎, 稲垣昌代, 小島清, 野間宏 福島県川俣町における環境放射線調査, 近畿大学原子力研究所年報, 48, 3-9 (2011)
- 2) 山西弘城, 芳原新也, 若林源一郎, 稲垣昌代, 堀口哲男, 小島清, 野間宏, 杉浦紳之, 古川道郎, 伊藤哲夫 福島県川俣町における環境放射線調査—土壌中放射性セシウム濃度—, *RADIOISOTOPES*, 62, 259-268 (2013)
- 3) 山口紀子, 高田裕介, 林健太郎, 石川覚, 倉俣正人, 江口定夫, 吉川省子, 坂口敦, 朝田景, 和穎朗太, 牧野知之, 赤羽幾子, 平館俊太郎 土壌—植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因, 農業環境技術研究所報告, 31, 75-129 (2012)
- 4) 大下誠一, 安永円理子, 高田大輔, 田野井慶太郎, 川越義則, 白井宏明, 中西友子, 佐々木治人, 牧野義雄 福島第一原子力発電所事故に起因した土壌及び野菜の放射性核種濃度の測定—東京都及び福島県の低濃度汚染地域における事例—, *RADIOISOTOPES*, 62, 149-157 (2013)
- 5) 内田滋夫, 田上恵子, 石井伸昌 環境における放射性核種の分布と動態, 1.土壌における放射性核種の挙動特性, 日本原子力学会誌, 53, 623-627 (2011)
- 6) 塚田祥文, 鳥山和伸, 山口紀子, 武田 晃, 中尾 淳, 原田久富美, 高橋知之, 山上 睦, 小林大輔, 吉田 聡, 杉山英男, 柴田 尚 土壌—作物系における放射性核種の挙動, 日本土壌肥科学雑誌, 82 (5), 408-418 (2011)
- 7) 芳原新也, 稲垣昌代, 小島清, 山西弘城, 若林源一郎, 杉山亘, 伊藤哲夫 福島第一原発事故に起因する放射性物質による生活環境における土壌汚染に関する調査, 日本原子力学会和文論文誌, 10 (3), 145-148 (2011)
- 8) 芳原新也, 伊藤 真 可搬型GPS機能搭載環境放射線測定システムの構築とその応用, 近畿大学原子力研究所年報, 45, 1-10 (2008)