

土壌中の放射性セシウムの深度分布調査

松田 規宏、斎藤 公明（原子力機構）

1. 調査目的

福島第一原発事故に起因して自然環境中に放出された放射性セシウムの土壌中の深度分布を把握するため、スクレーパープレート法¹による土壌採取及び深度別土壌試料の放射能分析を実施した。これまで、本調査は福島県、宮城県南部及び茨城県北部の 85 箇所において実施してきており、平成 23 年 12 月、平成 24 年 8 月及び平成 24 年 12 月時点での放射性セシウムの土壌深度分布と、時間の経過に伴う土壌の深さ方向への移行状況を確認した。本調査は、①可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定の解析のための基礎データ、②外部被ばく線量の評価における重要な情報を与えるとともに、継続的な調査により③土壌深度分布の経時的な変化、すなわち放射性セシウムの地中への浸透の傾向を明らかにするものである。なお、平成 25 年度は、これまでの 85 箇所に加え、海岸地域の 6 箇所でも海浜砂中の放射性セシウムの深度分布調査を実施した。

2. 調査内容

(1) 土壌採取期間

平成 25 年 6 月 3 日～27 日（以下「前期調査」という。）

平成 25 年 10 月 28 日～11 月 29 日（以下「後期調査」という。）

(2) 土壌採取箇所

福島県、宮城県南部及び茨城県北部の 91 箇所（詳細は図-1 参照）。

ただし、後期調査では護岸工事中の 1 箇所で土壌採取を中止したため 90 箇所。

(3) 調査内容の詳細

土壌の採取は、地表面（0 cm）～0.5、0.5～1.0、1.0～1.5、1.5～2.0、2.0～3.0、3.0～4.0、4.0～5.0、5.0～7.0、7.0～10.0 cm の計 9 層で実施した。ただし、前期調査で深度分布の全体像が把握できなかった採取箇所（015S020、045N030、005S000、010S000、025S000、055S005）は、後期調査において層分割を適宜変更して土壌採取を実施した。

採取した各層の土壌は、重量を測定した後、十分に攪拌し、既定量を U-8 容器に封入した。U-8 容器に封入した土壌（以下「土壌試料」という。）は、（公財）環境科学技術研究所、（公財）日本分析センター、東京大学及び原子力機構に送付し、ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトル解析でセシウム 134 とセシウム 137 の定量を行った。

調査によって得られた各土壌採取箇所の測定結果は、図-2 に示すように横軸を単位重量あたりの土壌試料に含まれる放射性セシウムの放射能 $A_m(\xi)$ (Bq/kg)、縦軸を重量深度 z (g/cm^2) にとった深度分布としてまとめた。深度分布は、地表面からの重量深度に対して指

¹ 一定間隔で土壌を削り取って採取する装置（スクレーパープレート）を用いた土壌採取手法。採取時のクロス・コンタミネーション（層外からの混入）が僅かで、層中の正確な放射能濃度が測定できるため、IAEA においても標準的な採取法として認められている。

数関数的に減少する²ことが知られており、下に示す指数関数³式(1)で近似した。

$$A_m(\xi) = A_{m,0} \exp(-\xi/\beta) \quad (1)$$

ここで、 $A_{m,0}$ は地表面における放射能濃度(Bq/kg)である。重量緩衝深度 β (g/cm²)は、放射能濃度が地表面の $1/e$ ($\approx 1/2.7$)となる土壤の重量深度であり⁴、放射性セシウムの地中(深さ方向)への移行状況を表す指標となる。 $A_{m,0}$ 及び β は、調査によって得られた深度分布を基に、最小二乗法により算出した。また、式(1)の ξ を深度 z (cm)に置き換えることで、式(1)の β に相当する緩衝深度 α (cm)を算出できる。除染による土壤の剥ぎ取り深度の決定等に際して、 α 及び β を用いた深度分布の表現は直感的でないため、 α を基に90%深度(土壤に沈着した放射性セシウムの全量に対し90%が含まれる地表面からの深度) $L_{90\%}$ (cm)($=\alpha \log 10$)を評価した。

3. 結果及び考察

全土壤採取箇所でのセシウム 137 の深度分布を調査した。また、セシウム 134 とセシウム 137 は化学的性質が同じで深度分布も良く似ているため、物理半減期の長いセシウム 137 に注目した。

前期調査で得られた土壤中のセシウム 137 の深度分布の例(000N040、005S040 及び 015S035)を図-2に示す。a) 000N040 ($\beta=0.71$ g/cm²)より b) 005S040 ($\beta=2.7$ g/cm²)の方が β の値は大きい。a) 000N040 及び b) 005S040 のように指数関数的に減少する深度分布は、前期調査では61箇所、後期調査では50箇所(土壤全85箇所中)で確認できた。図-2のc) 015S035のようなある深さにピークを持つ深度分布は、平成23年12月~平成24年6月)から確認されており、前期調査では21箇所、後期調査では33箇所(土壤全85箇所中)で観察され、経時的に徐々に増えてきている。このような深度分布を指数関数式(1)で近似して重量緩衝深度 β を解析した場合、 β の数値を過大に評価してしまうため、下に示す双曲線正割関数に基づく近似式式(2)の適用を試みた。

$$A_m(\xi) = (A_{m,0}/2) \cosh(\xi/\beta) \operatorname{sech}\{-(\xi-\xi_0)/\beta\} \quad (2)$$

ただし、 $\operatorname{sech}(x) = 1 / \cosh(x)$ 、 $\cosh(x) = \{ \exp(x) + \exp(-x) \} / 2$

ここで、 $A_{m,0}$ (Bq/kg)は地表面における放射能濃度、 ξ_0 (g/cm²)は土壤中の放射性セシウムの放射能濃度が最大となる重量深度である。式(2)の β は、土壤中の深部において指数関数:式(1)と同じ関数形となる。双曲線正割関数による近似曲線は測定による深度分布をよく再現しており、図-2のc) 015S035においては、その重量緩衝深度 β は0.89 g/cm²であった。

深度分布の全体像が把握できていない、近似曲線が深度分布と一致しない、解析した β の数値がマイナスになるといった理由により、式(1)の指数関数及び式(2)の双曲線正割関

² Chernobyl forum expert group ' environment' , " Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: twenty years of experience" , Report of the Chernobyl forum expert group ' environment' , International Atomic Energy Agency (IAEA), Radiological assessment reports series, (2006).

³ Gamma-ray spectrometry in the environment, International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU) report: 53, (1994).

⁴ eは自然対数の底として用いられる定数であり、その値は約2.72である。

数で近似することが不適当な深度分布が得られた土壌採取箇所は、前期調査では3箇所、後期調査では2箇所であった。この例として、前期調査の3箇所で得られた土壌中のセシウム137の深度分布を図-3に示す。このような深度分布に対して β は算出しなかった。

前期調査で得られた海浜砂中のセシウム137の深度分布の例を図-4に示す。海浜砂中のセシウム137の深度分布調査は、c) 015N000を除き、海岸に近い場所で採取を実施しており、地表面から10 cmまでほぼ同濃度となる結果が得られた。後期調査では層分割を適宜変更しており、地表面から約30 cmまでほぼ同濃度となる結果が得られた。なお、c) 015N000については、海岸線に設けられた堤防の内側に土壌採取箇所があるため、波浪による攪乱は考えられない。

式(1)または式(2)を用いて解析した土壌中の重量緩衝深度 β は、前期調査の平均値は、 $1.69 \pm 0.86 \text{ g/cm}^2$ ($n=82$)であり、 β の範囲は $0.45 \sim 5.13 \text{ g/cm}^2$ であった。後期調査の平均値は、 $2.03 \pm 1.53 \text{ g/cm}^2$ ($n=83$)であり、 β の範囲は $0.47 \sim 9.36 \text{ g/cm}^2$ であった。

β の数値は大きくばらつくため、 β の相対頻度分布を図-5に、平成23年12月からの重量緩衝深度 β の経時変化を図-6に示す。

放射性核種の土壌中深度分布を表現するのに重量緩衝深度は直感的でないため、前期調査時点における90%深度 $L_{90\%}$ (cm)を評価した。地表面から5 cm以内に90%以上の放射能(事故由来の放射性セシウム)が含まれている地域が、前期調査時点で85箇所中73箇所あった。

式(2)で表される深度分布の場合には、この β を直接用いて空間線量率等の評価が行えないため、指数関数相当の緩衝深度 β を評価しておくことが解析上便利である。そのために、シミュレーションを用いた基礎データ⁵を参照して、式(2)で表される分布に対して、式(1)の指数関数に等価な実効的な重量緩衝深度 β_{eff} (g/cm^2)を評価した。評価した β_{eff} の平均値は、前期調査では、 $2.06 \pm 1.40 \text{ g/cm}^2$ ($n=82$)、後期調査では、 $2.62 \pm 1.99 \text{ g/cm}^2$ ($n=83$)であった。

⁵ Kimiaki SAITO and Peter JACOB, "Fundamental data on environmental gamma-ray fields in the air due to source in the ground," JAERI-Data/Code 98-001, (1998).

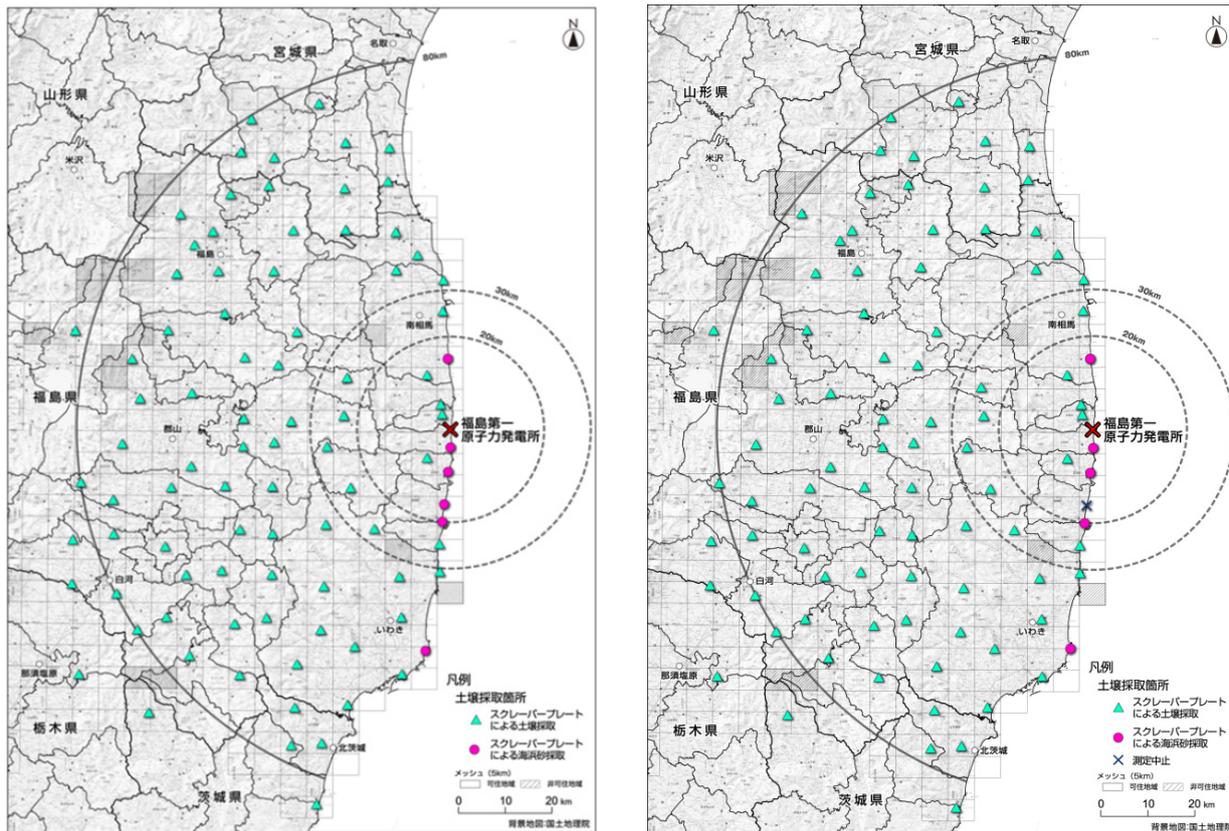


図-1 土壌採取箇所
 (左図：平成 25 年 6 月 3 日～27 日、右図：平成 25 年 10 月 28 日～11 月 29 日)

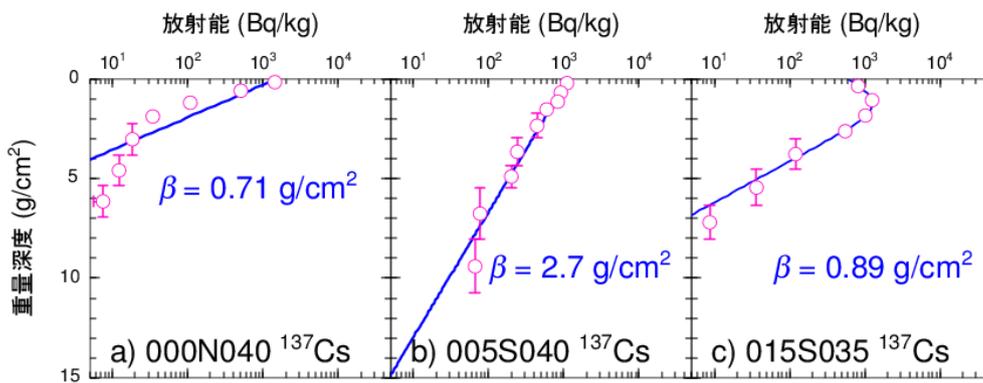


図-2 前期調査で得られたセシウム 137 の深度分布の例

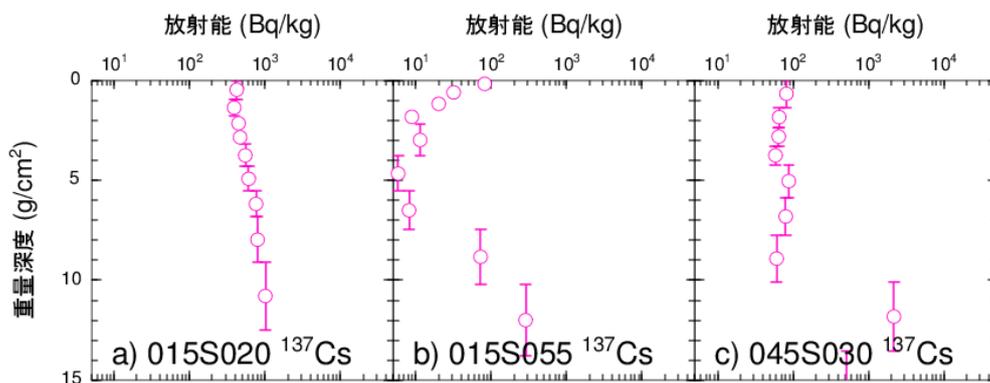


図-3 前期調査で得られたセシウム 137 の深度分布の例

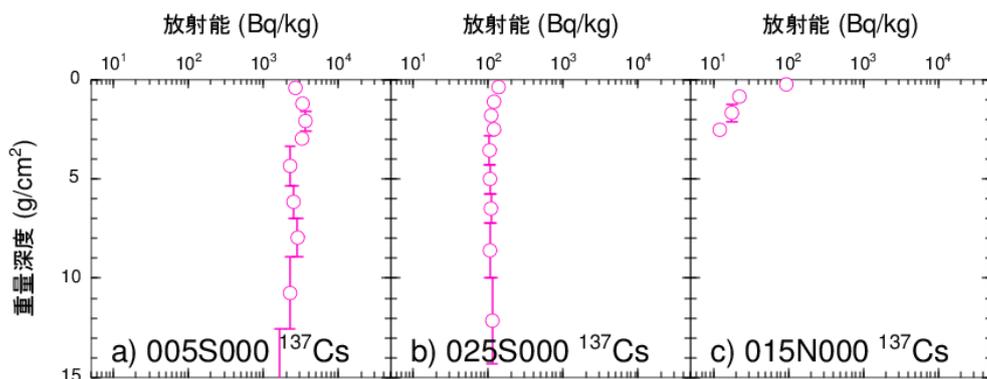


図-4 前期調査で得られた海浜砂中のセシウム 137 の深度分布の例

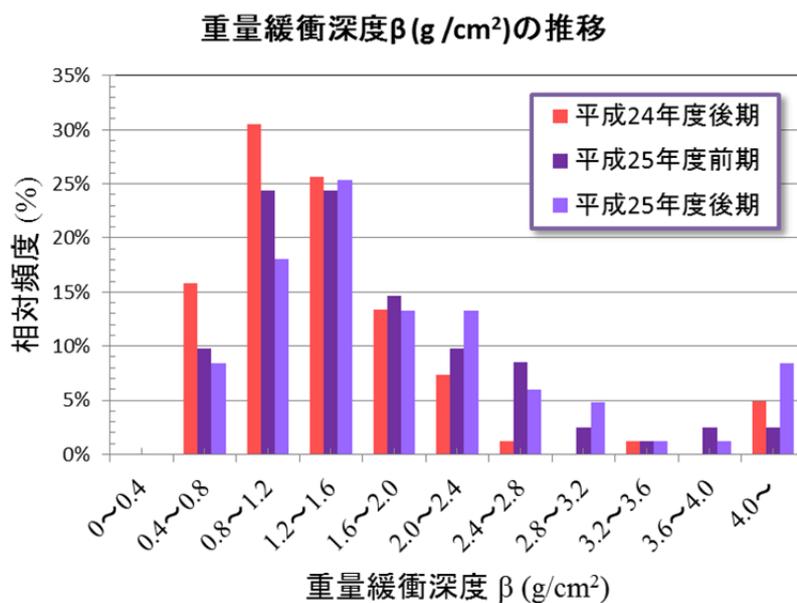


図-5 土壌中におけるセシウム 137 の重量緩衝深度 β の頻度分布

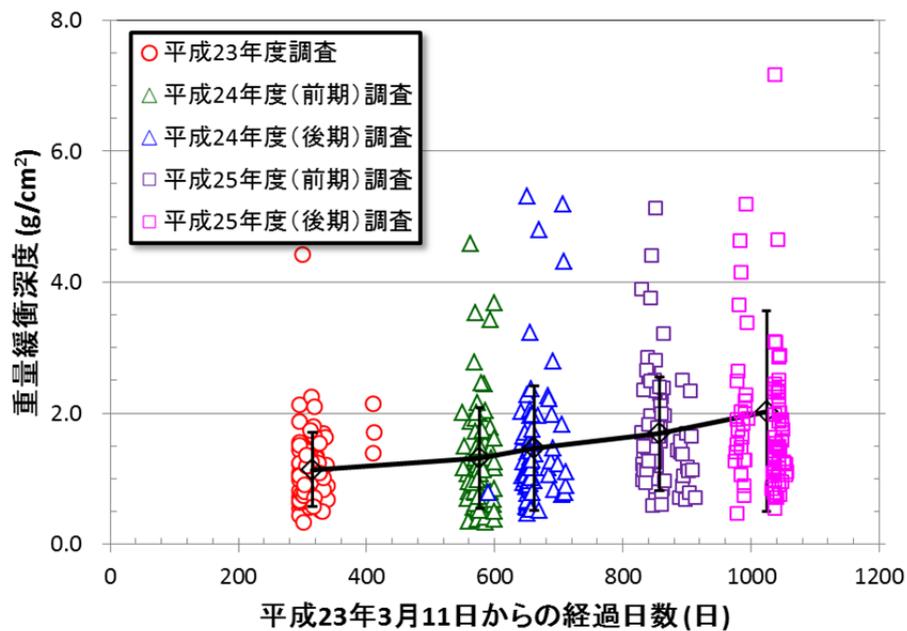


図-6 平成23年12月からの重量緩衝深度 β の経時変化