3 土壌中における放射性物質の深度分布の確認

代表研究者:斎藤公明、青木和弘(原子力機構)、谷畑勇夫(大阪大学)

福島第一原発の事故により環境中に放出され土壌に沈着した放射性物質は、長期的に環境中にと どまり、周辺に居住する者の被ばく線量に影響を与えることが予想される。この地表面に沈着した 放射性物質は、地表面への降下直後は地表面付近の平面線源として近似できるが、時間と共に地中 に浸透し、多くの場合、深さ方向の指数分布を示すことがチェルノブイリ事故での調査等で明らか になっている。また、土壌中における放射性物質の深度分布は、①土壌中の放射性物質の移行解析、 ②地下水への放射性物質の移行、③外部被ばく線量評価、④土壌に蓄積した放射性物質の除染等の 観点から重要な情報である。

このような観点から、第1次分布状況等調査においては、鉄パイプ、スクレーパープレート、ジ オスライサー等を用いて土壌試料を採取し放射性物質の深度分布について多面的に調査した。その 結果、第1次分布状況等調査を実施した平成23年6月期では、多くの調査箇所で土壌表層から5cm 程度の深さに放射性セシウムがほぼ全量含まれており、深度方向に指数関数に近い分布を示すこと が確認された。他方で、前述したように、福島第一原発の事故以前の調査結果から、時間と共に放 射性セシウムは土中に浸透していくことが確認されている。

そこで、第2次分布状況等調査においても、第1次分布状況等調査に引き続き、深度別の土壌試料を採取し、放射性セシウムの深度分布の状況について確認するともに、第1次分布状況等調査を 実施した平成23年6月期からの放射性セシウムの浸透状況の評価、放射性セシウムの深度分布の違いに影響を与える土壌特性等の評価を実施した。

3.1 スクレーパープレート及び鉄パイプを用いた土壌中における放射性セシウムの深度分 布の確認

3.1.1 調査概要

福島第一原発から 80km 圏内を中心に網羅的に放射性セシウムの深度分布の状況を確認するため、 スクレーパープレート及び鉄パイプを用いて深度別の土壌試料を採取し、放射性セシウムの深度分 布を調査した。なお、土壌試料の採取にあたっては、作業者の被ばく低減の観点から、福島第一原 発から 20km 圏内を中心に土壌採取時の作業時間が短い鉄パイプを用いて土壌コア試料を採取し、福 島第一原発から 20km~80km 圏内を中心に IAEA が標準的手法として放射性物質の深度分布測定に用 いられているスクレーパープレートを用いて深度別の土壌試料を採取した。

3.1.2 調査箇所及び調査期間

- 福島第一原発から 20km 圏内:
 鉄パイプを用いた土壌コア試料の採取(27箇所)(平成24年4月3~5日に採取)、スクレーパ
 ープレートを用いた深度別の土壌試料の採取(3箇所)(平成24年4月17~19日に採取)
- 福島第一原発から 20km~80km 圏内:
 鉄パイプを用いた土壌コア試料の採取(24 箇所)、スクレーパープレートを用いた深度別の土 壌試料の採取(81 箇所)(平成 23 年 12 月 12 日~22 日に採取)
 土壌採取箇所について、図 3.1.2-1 と Appendix 3.1-1 に示す。



図 3.1.2-1 放射性セシウムの土壌深度分布測定における土壌試料採取箇所 (20km 圏外は平成 23 年 12 月に 20km 圏内は平成 24 年 4 月に試料を採取)

3.1.3 調査内容

(1) 土壤採取

土壌試料の採取には、スクレーパープレート及び鉄パイプを用いた。

土壌採取は、地表面から0~0.5、0.5~1.0、1.0~1.5、1.5~2.0、2.0~3.0、3.0~4.0、4.0~ 5.0、5.0~8.0cmの8層に分けて実施し、各層から採取した土壌をU-8容器に封入した。なお、ス クレーパープレートは、土壌を表面から少しずつ剥ぎ取りながら採取することで、深さ方向に任意 の幅を持った層別の試料を得ることができる手法である。採取した土壌をU-8容器に詰め込み放射 性核種の分析を行い、土壌深度分布を調べることができる。採取時にクロスコンタミネーションが 少なく精密な土壌採取が行なえるため、IAEAにおいても標準的な深度方向の土壌試料採取法として 認められている。第1次分布状況等調査では放射性物質の包括的移行状況調査において用いられた スクレーパープレートによる土壌採取法であるが、クロスコンタミネーションが僅かで放射性物質 の土壌中深度分布を正確に測定できることが確認されたことから、第2次分布状況等調査において は福島第一原発から 80km 圏内を中心に網羅的にスクレーパープレートを用い、土壌中における放射 性物質の深度分布調査を実施することとした。ただし、スクレーパープレートを用いての土壌採取 は他の土壌採取法に比べて時間がかかることから、土壌を採取する作業員の被ばく低減を考慮する ことが重要である。

そのため今回の調査においては、比較的空間線量率の高い警戒区域を除いた区域で放射性物質の 沈着量が多く、今後、影響評価や事故対策の主な対象となることが予想される福島第一原発より 20km~80km 圏内を中心に、スクレーパープレートを用いた土壌中放射性物質の深度分布調査を実施 した。

また、鉄パイプを用いた土壌コア試料の採取は、長さ300mm、外形60mm、内径56mmの鉄パイプ(円 筒管)をハンマーにより地面に打ち込み、周辺の土壌を一部除去しながら引き抜くことで、土壌採 取時に土壌試料が崩れないように土壌コア試料を採取した。その後、発泡スチロール及びプラスチ ックキャップを取り付け、採取した土壌が輸送中に鉄パイプ内で移動しない状態で分析機関に輸送 した。第1次分布状況等調査では簡易に土壌コア試料を採取できる手法として活用しており、今回 の調査でも、放射線量が高い福島第一原発から20km 圏内を中心に使用した。

(2) 土壌の放射能分析

スクレーパープレートで採取した深度別の土壌試料については、ゲルマニウム半導体検出器を用 いたガンマ線スペクトル解析によりセシウム 134 とセシウム 137 の定量を行なった。ゲルマニウム 半導体検出器を用いた土壌試料の分析は、東京大学、大阪大学、環境科学技術研究所、日本分析セ ンターの4機関で分担し実施した。その際、同じ条件で測定することで系統誤差を少なく抑えるた めに、必ず同一機関で測定することとした。土壌深度の単位として g/cm² 及び cm の2種類を考え、 それぞれの深さにおける放射性セシウム濃度 (Bq/kg)の深度方向分布を求めた。

また、鉄パイプで採取した土壌コア試料については、図 3.1.3-1 に示すように鉄パイプを鉛によるコリメータ(幅 5mm)を用いて鉄パイプを移動させ、位置を変えながらゲルマニウム半導体検出器で測定を行った。その際、円周方向によるガンマ線強度の変化がないことを確認した。ガンマ線スペクトルから、セシウム 134 及びセシウム 137 のガンマ線ピークを同定しそれらの強度を鉄パイプの位置の関数として計数、グラフ表示を行った。土壌深度の単位としては cm のみを考え、深さ方向の相対的な放射性セシウム濃度を求めた。



図 3.1.3-1 30cm 鉄パイプ土壌コア試料のガンマ線測定方法

(3) 土壌の粒径測定

放射性セシウムの深度分布特性の違いに関する要因を確認するため、スクレーパープレートで採 取した深度別の土壌試料のうち、表面土壌のみ粒径測定を行った。粒径測定はふるい分析法とレー ザー回折式粒度分布測定装置を用いて、筑波大学で測定した。粒径が425μm以上の土壌粒子につい てはふるい分析法で、それ以下の粒径についてはレーザー回折式粒度分布測定器を用いて粒径ごと の重量百分率を測定した。

3.1.4 調査結果

(1) 個々の調査箇所の放射性セシウムの深度分布の状況

スクレーパープレートを用いた放射性セシウムの深度分布状況の調査の結果について土壌深さの 単位を cm と g/cm²それぞれで表現する解析を行ったが、ほとんどの調査箇所では図 3.1.4-1 の左の 図に示すように、浅い部分ではこの図上で直線的に減少(指数関数的に放射能濃度が減少)してい ることが確認された。一部の調査箇所で、図 3.1.4-1 の右の図に示すように、土壌が攪乱されたこ とで深い部分までほぼ同一濃度となる分布が確認された。これはチェルノブイリ等においても時々 観察された形で、土壌の性質等の条件によるものと考えられる。ただ、全体としては指数関数分布 に近い形をしており、次項で述べる緩衝深度の解析は他の観測データと同じように行なった。

土壌試料の採取箇所として撹乱のない箇所を選択するよう心がけたが、測定結果から明らかに何 らかの撹乱があったと判断される箇所が4箇所存在した。撹乱があったと考えられる場所に関して は次に述べる緩衝深度の解析は実施しなかった。スクレーパープレートによる土壌試料分析により 測定された深度分布データ全体を Appendix 3.1-2 に示す。

また、鉄パイプを用いた測定からも、図 3.1.4-2 に示すように指数関数分布に近い深度分布が確認された。



図 3.1.4-1 土壌中におけるセシウム 137 の深度分布測定結果の事例(左:土壌中における セシウム 137 が典型的な指数関数分布の例、右:深いところまでほぼ同一濃度に分布の例)



図 3.1.4-2 鉄パイプによる放射性セシウムの深度分布測定結果の例 (L_{1/10}は放射性核種濃度が地表面に比べて 1/10 になる深度)

(2) 放射性セシウムの深度分布特性の評価

ほとんどの調査箇所で土壌中の深度分布が指数関数に近い形をしていることが確認できたので、 指数関数分布を仮定して、各調査箇所の放射性セシウムの深度分布特性(緩衝深度β (g/cm²):放 射性セシウムの地中への移行の程度を表すパラメータ)について解析を実施した。緩衝深度の算出 にあたっては、以下のように算出した。

① 深さtにおける放射能濃度A(t)は以下の式で表現される。

$A(t) = A0 \cdot exp(-t/\beta)$

ここで A0 は地表面における放射能濃度、緩衝深度は放射能濃度が地表面の 1/e ($\Rightarrow 1/2.7$) になる深度 (cm または g/cm²)。

② 観測された土壌深度分布データを基に、各層の放射能濃度で重み付けをした最小自乗法により緩衝深度を算出。

撹乱があった土壌については、指数分布を仮定するのは適切でないことから、指数関数分布を用いた解析からは除外した。スクレーパープレートの結果から評価した緩衝深度の分布を図 3.1.4-3 及び図 3.1.4-4 に、また、調査箇所毎の緩衝深度の値を Appendix 3.1-1 に示す。 g/cm²単位で表した緩衝深度の平均値は 1.17 であり、可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定で用いた β =1 という仮定は、適切であったことが確認された。 g/cm²で表した緩衝深度の全データの80%は 0.5 から 2.0 の間に含まれており、β=1 を用いることによる in-situ 測定の不確かさは、ほとんどの場合 20%以内であると評価される。

鉄パイプ試料の結果から評価した緩衝深度の分布を図 3.1.4-5 に、また、調査箇所毎の緩衝深度 の値を Appendix 3.1-1 に示す。鉄パイプ試料の解析は cm で表した緩衝深度のみを評価した。鉄パ イプ試料から評価した緩衝深度 (cm)の平均値は 1.89 であり、スクレーパープレートの平均値 0.98 と比べて 2 倍弱大きい。採取箇所の違いに起因する差である可能性も考えられたが、同じ採取箇所 で得られた結果に限って比べてみても、同様な差が観察された。従って、鉄パイプ試料を用いた深 度分布測定はスクレーパープレートを用いた測定に比べて、系統的に緩衝深度の値がが過大になる 傾向があると思われる。この原因として、鉄パイプを用いた方法では、対象とする深さの範囲外の 土に含まれるガンマ線を測定してしまうこと及び鉄パイプ押し込み時の外側引き摺りにより、深度 分布が実際よりも緩やかになることが考えられる。

緩衝深度 (cm) と緩衝深度 (g/cm²)の比率: β (g/cm²) / β (cm) から評価した実効土壌密度の分布図 を図 3.1.4-6 に示す。ここで実効土壌密度は土壌中の放射性核種濃度で重み付けした平均的な土壌 密度として解釈され、一般に表層部分の土壌密度に近い値となる。実効土壌密度は 0.5 から 2 まで 全体にブロードに分布しているが、1 から 1.5 程度の範囲の密度が最も多く、地表面の平均的な土 壌密度に近い密度が得られている。

さらに、緩衝深度の地域特性を明らかにするため、緩衝深度(g/cm²)の結果を地図上にプロット した。その結果、図 3.1.4-7 に見られるように、同じ程度の緩衝深度値の調査箇所が地域的に集ま っている傾向がうかがえる。緩衝深度値の地域的な傾向や土壌の性質との関係に関しては、今後の 調査の結果も含めて引き続き解析が必要である。



図 3.1.4-3 g/cm²で表した緩衝深度(β:放射能濃度が地表面の 1/e になる深度)の頻度分布 (緩衝深度の平均値 1.17)



図 3.1.4-4 cm で表した緩衝深度(β:放射能濃度が地表面の 1/e になる深度)の頻度分布 (緩衝深度の平均値 0.98)



図 3.1.4-5 cm で表した緩衝深度(β:放射能濃度が地表面からの 1/e になる深度)の頻度分布 (緩衝深度の平均値 1.89)



図 3. 1. 4−6 セシウム 137 のデータから評価した実効土壌密度(土壌中の放射性核種濃度で 重み付した平均的な土壌密度)の分布



図 3.1.4-7 福島第一原子力発電所から 80km 圏内の放射性セシウム(セシウム 134 及び セシウム 137 の平均値)の緩衝深度(β:放射能濃度が地表面の 1/e になる深度)の分布状況 (スクレーパープレートで採取した深度別の土壌試料を分析した結果: 20km 圏外は平成 23 年 12 月に、20km 圏内は平成 24 年 4 月に試料を採取)

(3) 福島第一原発から 80km 圏内の放射性セシウムの 90% 深度の分布

スクレーパープレート及び鉄パイプを用いて採取した土壌試料の解析結果を基に、福島第一原発 から 80km 圏内の放射性セシウムの深度分布の 90%深度を評価し、図 3.1.4-8 及び図 3.1.4-9 に示 した。90%深度は地表面に比べて放射性核種濃度が 10%になる深度で定義される。この深さまでに、 放射性セシウムの 90%が存在することになる。今後の除染においては、各サイトの状況を把握した 適切な厚さの土壌の剥ぎ取りを行なうことが、廃棄土壌を減らすために重要であると考えられる。 今回得られたデータによれば、3 cm の剥ぎ取りで放射能濃度が 10%になる地域が相当あることがわ かった。



図 3.1.4-8 福島第一原子力発電所から 80km 圏内の放射性セシウム(セシウム 134 及びセシウム 137 の平均値)の 90%深度(地表面に比べて放射性核種濃度が 10%になる深度)の分布状況 (スクレーパープレートで採取した深度別の土壌試料を分析した結果: 20km 圏外は平成 23 年 12 月に、20km 圏内は平成 24 年 4 月に試料を採取)

図 3.1.4-9 福島第一原子力発電所から 80km 圏内の放射性セシウム(セシウム 134 及びセシウム 137 の平均値)の 90%深度(地表面に比べて放射性核種濃度が 10%になる深度)の分布状況 (鉄パイプ土壌コア試料の分析結果(スクレーパープレートによる測定に比べて系統的に深度分布 を過大に評価している可能性あり): 20km 圏外は平成 23 年 12 月に 20km 圏内は平成 24 年 4 月に試 料を採取)

(4) 緩衝深度と表面土壌の粒径分布との関係の確認

第1次分布状況等調査では、0~0.5cm 層への放射性セシウムの残留率と粘土の量との間に正の相 関関係があることが確認された。そこで、今回の調査でも、福島第一原発から80km 圏内といった広 範な地域においても同様の傾向であるか確認するため、緩衝深度値と表面土壌の粒径分布との関係 について調べた。土壌試料の粒径は、粒径分布測定結果をもとに、粘土(<~5 μ m),シルト(~5 μ m< ~74 μ m),砂礫(~74 μ mく)に分類した(図3.1.4-10)。その結果、今回調査した土壌にはシルトが 多く含まれていることが確認された。これらの土壌成分と緩衝深度値の関係を調べた結果、表層土 壌中の粘土の含有率が増えるに従って緩衝深度値が増加する傾向が見られた。特に、シルトの量が 同程度の土壌については、粘土含有率と緩衝深度値との明らかな相関が見られた(図3.1.4-11)。 一般的に放射性セシウムは粘土に吸着しやすいことが知られており、ここで得た知見は一見理解し にくい印象を受けるが、放射性セシウムの移行が土壌の粒径や存在状態とどのような関係にあるの か、空隙率、土壌密度等のパラメータを考慮しながら解析を進めることが必要である。

土壌最表層中の土壌中における粘土含有率(%)

図 3.1.4-11 土壌最表層中(地表面から 0~0.5cm)の粘土含有率と緩衝深度(β:放射能濃度が 地表面の 1/e になる深度)の相関図

(5) スクレーパープレート及び鉄パイプを用いた土壌中の放射性セシウムの深度分布の確認結果 のまとめ

スクレーパープレートと鉄パイプを用いて深さ方向の土壌試料を採取し、土壌中の放射性セシウムの深度分布の測定と解析を行なった。スクレーパープレートに関しては土壌試料を採取した 84 箇所全箇所の試料について分析を実施した。一方、鉄パイプの土壌濃度については、放射性セシウムの濃度が高い試料のみ測定が可能であるため、採取した 51 試料のうち測定結果が得られたのは 39 試料であった。

ほとんどの箇所において土壌深度分布は指数関数で近似できる分布を示した。観測した土壌中深 度分布を最小自乗法により指数関数にフィッティングし、放射性セシウムの地中への移行の指標と なる緩衝深度を求めた。スクレーパープレートにより採取した試料の解析結果によれば、g/cm²で表 現した緩衝深度の平均値は1.17であり、可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定の 解析で用いた β=1 g/cm² という値の妥当性が確認された。得られた緩衝深度を地図上にプロットし た結果からは同じ程度の緩衝深度値の地点が地域的に集まっている傾向がうかがえるものの、土壌 表層の特性との関係とは明確ではなかった。

得られた緩衝深度値から、地中の放射性セシウム濃度が地表面に比べて 1/10 になる深さ(90%深度)を評価した。90%深度はほとんどの箇所で 5cm よりも浅く、また 3 cm よりも浅い 90%深度の 箇所が 75%程度存在することが明らかになった。今後、除染における土の除去を効率よく行なうた めにはこの状況を十分に考慮して行なうことが必要であると考えられる。

緩衝深度値と表面土壌の粒径分布との関係について調べた結果、表層土壌中の粘土の含有率が増 えるに従って緩衝深度値が増加する傾向が見られた。特に、シルトの量が同程度の土壌については、 粘土含有率と緩衝深度値との明らかな相関が見られた。放射性セシウムの地中への移行のしやすさ と土壌の性状の関係について解明するためには、今後さらなる解析が必要である。 3.2 土壌中における放射性セシウムの深度分布状況の違いの確認及び土壌中における放射性 セシウムの移行要因の検討

3.2.1 調査概要

平成24年6月期に実施した第1次分布状況等調査においては、通常の地表面土壌と元農地と推定 された土壌中では放射性セシウムの深度分布、浸透深さに違いが見られた。また、3.1 でまとめた 福島第一原発から80km 圏内についてスクレーパープレート及び鉄パイプを用いて土壌中の放射性 セシウムの深度分布を確認した今回の調査の結果においても、調査箇所によって、放射性セシウム の深度分布に違いが生じている箇所が確認されている。

そこで、今回の調査では、3.1の調査と並行して、平成23年6月期に放射性セシウムの深度分布 状況を確認した調査箇所において、再度、大口径のサンプラーを用いて土壌コア試料を採取し、時 間の経過に伴う放射性セシウムの深度分布状況の違いについて確認した。現地調査は、平成24年2 月27日から3月6日に実施した。

また、土壌中における放射性セシウムの移行要因について、先の第1次分布状況等調査における 検討では、土壌に対する放射性セシウムの収着分配係数(K_d)にバリエーションが見られ、それら は土壌構成鉱物の種類やその含有率、有機物含有量等の多様性の影響によるものと考えられるが、 具体的な情報が不足していた。そこで、土壌中における放射性セシウムの移行要因について定量的 な解釈やそれに基づいた解析を行うため、今回の調査では、土壌の物性関係を主に調査し、放射性 物質の移行状況等を把握することを目的として調査を実施した。

3.2.2 調査箇所と試料採取地点

今回の調査は、時間の経過に伴う放射性セシウムの深度分布状況の違いを確認するため、調査箇 所(試料採取地点)は第1次分布状況等調査と同一箇所を基本とした。なお、層位や土壌構成、土 地利用状況等が同一である必要があるため、第1次分布状況等調査の試料採取地点の近傍数メート ルの範囲で試料を採取した。

第1次分布状況等調査を行った11調査箇所のうち、3箇所は積雪及び除染作業等により調査がで きなかった。従って、第2次分布状況等調査の調査箇所は、二本松市1箇所、川俣町2箇所及び浪 江町5箇所の合計8箇所である(図3.2.2-1及び図3.2.2-2)。このうちの2箇所においては、調 査箇所周囲の地形の影響を調べるため1箇所で複数の試料採取地点を設定した。浪江町下津島では 3地点、浪江町昼曽根では2地点で試料採取を行った。調査箇所、試料採取地点、調査項目の一覧 及び第1次分布状況等調査で対応する試料番号対比表を表3.2.2-1に示した。また、浪江町下津島 及び浪江町昼曽根における調査箇所の試料採取地点位置図を図3.2.2-3及び図3.2.2-4に示した。

図 3.2.2-1 第1次分布状況等調査及び第2次分布状況等調査における調査箇所位置図

(第2次分布状況等調査では、第1次分布状況等調査における調査箇所の内、①浪江町赤宇木-0、 ②浪江町下津島-2、③川俣町山木屋-1の3箇所では、それぞれ積雪、除染による剥土、地権者の了 解が取れない等の理由により、試料の採取ができなかった。) ※放射性セシウムの分布図は航空機モニタリング結果^[1]による。

図3.2.2-2 第2次分布状況等調査における調査箇所と試料採取地点の位置図と標高 (8箇所の調査箇所の内、浪江町下津島と浪江町昼曽根については、地形分布の影響についても検 討するため、傾斜方向を考慮して、それぞれ1地点で3箇所及び2箇所で土壌試料を採取した。)

表 3.2.2-1 調査箇所及び試料採取地点と調査項目との対比表

		WGS84座標	試料採取日時	調査項目						
調査箇所	試料採取地点			ポータブルドリル				試料採取	第1次分布状況 等調査での試料	
				による土壌抜き 取り	土壌記載	土質試験用	放射能濃 度測定用	- 土壌構成鉱物の含有率の測定用 - 土壌の鉱物組成の分析用(XRD分析) - 土壌の特徴データの測定用(CEC/AEC分析) - 収着・脱着試験用		
运良俱舟,凑敢川得町	川得町山太景-2	N37,36,22.6 E140,40,20.7	2012/2/27/12:30	PSP-01	0	0	0	砂質土壌(深度10-18cmより採取)	HGS-3	
個島気で進む川氏町	川庆町山不建-2		2012/2/27/12:50	PSP-02	0	×	×	×		
凉 皀 闾 ^一 太松市	一本松市会色	N37,35,02.5	2012/2/28/11:00	PSP-03	0	0	0	粘土質土壌(深度15-30cmより採取)	HGS-4	
		E140,25,53.1	2012/2/28/11:20	PSP-04	0	×	×	×		
凉皀圓舟湊郡川倶町	川俣町山大屋-0	N37,36,24.5	2012/2/29/10:17	PSP-05	0	0	0	×	HGS-1	
ᄩᇔᆓᆙᅸᄬᄳᅦᆬᅴ		E140,40,12.7	2012/2/29/10:40	PSP-06	0	×	×	×		
福島県双葉郡浪江町	浪江町 津自	N37,34,52.7 E140,43,18.7	2012/3/1/11:30	PSP-07	0	×	×	×		
	ルルー」 牛曲		2012/3/1/11:50	PSP-08	0	0	0	×	HGS-19	
福島県双葉郡浪江町	泊江町去空太-1	N37,34,06.8 E140,47,55.8	2012/3/2/9:54	PSP-09	0	0	0	×	HGS-22	
	派江町がナホー		2012/3/2/10:10	PSP-10	0	×	×	×		
	浪江町下津島−1A	N37,33,41.1 E140,45,53.8	2012/3/3/10:00	PSP-11	0	0	0	×	HGS-25	
短白眼动茶歌油汽叶			2012/3/3/10:20	PSP-12	0	×	×	×		
 	浪江町下津島-1B (下津島-1Aの北側約60m)	N37,33,43.0 E140,45,53.2	2012/3/6/10:15	PSP-17	0	0	0	有機質土壌(予備試料:深度4-25cmより採取)		
	浪江町下津島-1C (下津島-1Aの西側約30m)	N37,33,41.0 E140,45,53.0	2012/3/6/13:30	PSP-18	0	0	0	粘土質土壌(予備試料:深度30-35cmより採取)		
	浪江町昼曽根−1A	N37,32,54.8 E140,50,31.2	2012/3/4/10:10	PSP-13	0	0	0	×	HGS-12	
褔島県双葉郡浪江町			2012/3/4/10:30	PSP-14	0	0	0	有機質土壌(深度0-10cmより採取)		
			2012/3/4/10:50	PSP-14b	0			※PSP-14で採取した有機質土壌の不足分を同 一深度の同一岩相から採取		
	浪江町昼曽根-1B (昼曽根-Aの北側約20m)	N37,32,55.1 E140,50,32.1	2012/3/4/12:15	PSP-15	0	0	0	×		
福島県双葉郡浪江町	浪江町赤宇木−2	N37,33,37.8 E140,49,25.4	2012/3/5/10:30	PSP-16	0	0	0	×	HGS-16	

浪江町下津島

(谷底平野/山麓緩斜面、黒色(有機質)土壤/粘土質土壤、元農地)

図 3.2.2-3 試料採取地点図(浪江町下津島)

浪江町昼曽根

(河成段丘面、黒色(有機質)土壌/黒色土壌(粘土質)、広葉樹林地の端部)

3.2.3 調査内容

(1) 土壌中における放射性セシウムの深度分布状況の調査方法

第1次分布状況等調査では、活断層調査などで使用されるジオスライサーを用いた方法により、 地表面から最大1m程度の深さまでを対象として、深度方向に板状の試料を採取した。しかし、板状 の試料は、横幅10~12cm、厚さ2~3cmであり、特に厚さが薄いためジオスライサー押込み時の外 側引き摺りに伴うクロスコンタミネーション等が見られた試料もあった。このため、深部を含む濃 度分布全体を評価する場合においては不確実性が残り、定量的な濃度分布の評価は限定的であった。

そこで、今回の第2次分布状況等調査においては、試料採取時のサンプラー押込みによる壁面での土壌の引き摺りの影響を除去するため、試料径を大きくしてロッド壁面付近の土壌を剥ぎ取った後、円柱状サンプルの中心部のみから土壌を採取することとした。使用した器材は、(株) セロリ社製のポータブルドリル「アルファロング」(図 3.2.3-1(a))と内径 150mmの大口径の「ぱかっとサンプラー」(図 3.2.3-1(b))である。このサンプラーは、土壌試料の入るロッドの 1/3 が開口可能な(中心角 120°に相当するロッド部分が取り外せる)構造になっている(図 3.2.3-1(c))。

次に、ロッドからの試料採取では、クロスコンタミネーションをさけるため開口部分の土壌を廃 棄し、土壌表面を平滑化処理した後、土壌観察・土壌記載を行った。土壌観察・土壌記載の方法に ついては、第1次分布状況等調査の報告書^[2]に示すとおりである。なお、土壌観察の際、第1次 分布状況等調査時と同様に土地利用状況に基づく土壌区分(元農地(花壇を含む)と推定される土 壌とそれ以外の地表面土壌)も行った。

その後、ロッドの壁面から離れた壁面引き摺りの影響が無い中心部分の土壌のみをスクレーパー とスプーンにより U-8 容器に採取した(図 3.2.3-1(c))。ロッドを打ち込む際に生じる壁面での土 壌の引き摺りは、軟らかい土壌で壁面から 1cm 程度であることが掘削毎の観察結果から分かり、試 料採取ではそれらのことを考慮して実施した。

調査は、第1次分布状況等調査時と同じ11箇所の中から、二本松市(金色:1箇所1地点)、川 俣町(山木屋:2箇所2地点)、浪江町(津島:1箇所1地点、下津島:1箇所3地点、赤宇木:2 箇所2地点、昼曽根:1箇所2地点)の8箇所11地点で行い、最大深さ50cm程度の土壌コア試料 を予備も含めて19本採取した。8箇所の調査箇所の内、浪江町下津島と昼曽根については、地形分 布の影響についても検討するため、傾斜方向を考慮して、1箇所あたりそれぞれ3地点及び2地点 で土壌試料を採取した。採取した19本の試料の内、12本のコア試料について深度方向の濃度分布 を調査した(表3.2.2-1)。土壌試料は、地表面から深度20cmまでが2cm刻み、深度20~40cmの区 間は4cm刻み、深度40cm以深は5cm刻みで採取し、試料毎に重量を測定した後、ガンマ線放出核種 をゲルマニウム半導体検出器により60分間測定した。

(2) 土壌中における放射性セシウムの移行要因の検討に係る調査

土壌中における放射性セシウムの移行要因の検討を行うため、現場での土壌観察結果に基づいて、 砂質、有機質及び粘土質と判定された3種類の土壌試料(図3.2.3-2(a))に対し、放射性セシウム と吸着性能に影響を与える土壌粒度分布、鉱物組成の特徴、土壌基本特性の測定(CEC 測定)につ いて調査を行った。また、これらの土壌試料の吸着、脱離しやすさの違いを確認するため、収着試 験及び脱離試験を行った(図3.2.3-2(b))。さらに、土壌中の放射性物質の濃度分布(単位体積当 たりの放射能)の算出や、移行・遅延の解釈や解析等に使用するため、土質試験を行った。それぞ れの調査内容は以下のとおりである。

水簸分級による土壌構成成分の含有量の測定
 現場での土壌観察結果に基づいて、砂質、有機質及び粘土質と判定された3種類の土壌に対し水

簸分級を行った。具体的には、土壌懸濁液中における土壌粒子の粒径による沈降速度の違いを利用 し^[3]、粘土(2μm以下)、シルト(2~20μm)、砂(20μm以上)の3区分に分級した。作業手順を 図 3.2.3-3に示す。

② X線回折(XRD)による鉱物組成分析

福島第一原発の事故以前の調査結果から放射性セシウムはカオリナイトや雲母 (マイカ)、バーミ キュライト、スメクタイト等の粘土鉱物などと結合しやすいことが確認されている。そこで、砂質、 有機質及び粘土質と判定された3試料について、X線回折による鉱物組成の分析を行った。分析に あたっては、粉末法による無処理での鉱物判定に加えて、定方位法及びエチレングリコール処理、 並びに塩酸処理による粘土鉱物の判定も行った。作業手順を図3.2.3-4に示す。

③ 土壌基本特性の測定(陽イオン交換容量(CEC)の測定)

土壌構成成分の陽イオン交換容量(CEC)は、放射性セシウムと土壌の一時的な結びつき(吸着)の評価に使用され、CECが大きいほど、放射性セシウムが土壌と吸着しやすいことを示す。そこで、 砂質、有機質及び粘土質と判定された3試料について、CECを測定した。風乾した土壌試料に1MNH4C1 水溶液を加えて振とうさせ、遠心分離する操作を5回繰り返してイオン交換させた後、1M NaNO3 水 溶液により NH4⁺イオンを抽出・分析することで算出した。測定手順を図3.2.3-5に示す。

④ 収着試験及び脱離試験

収着試験で得られる放射性セシウムの収着分配係数は、土壌中の放射性セシウムの移行と密接に 関係があり、収着分配係数が大きいほど土中深部に放射性セシウムが移行しづらい。また、脱離試 験で得られる結果は、土壌中における放射性セシウムの長期的な移行を考える際に重要であり、土 壌粒子と放射性セシウムが脱離し易いほど、土壌深部に放射性セシウムが移行しやすい。

そこで、砂質、有機質及び粘土質と判定された3試料について、収着試験及び脱離試験を実施した。収着試験は、(社)日本原子力学会標準のバッチ法^[4]を参考にし、条件を最適化して実施した。 第1次分布状況等調査での収着試験から、放射性セシウムと土壌試料は極めて高い収着性が見込ま れたため、固液比を1:100(g/mL)とし、液相の定量性を向上させた。また、収着試験終了後の試料 を用いて脱離試験を行った。脱離溶液が0.33M KC1となるように3.3M KC1水溶液を添加し、再び分 配平衡にして脱離の程度を確認した。測定手順を図3.2.3-6に示す。

⑤ 土質試験

土質調査では、第1次調査と同様、土壌の含水比、湿潤密度、乾燥密度、間隙率、真密度(土壌 粒子密度)を測定した。測定方法についても同様の方法で行い、真密度(土壌粒子密度)について は、日本規格協会「土壌粒子密度試験方法(JIS A 1202)^[5]に従い、ピクノメータを用いて測定 した。その他のパラメータについても、U-8 容器で採取した塊状試料を用いて、試料の体積や乾燥 重量、湿潤重量、水飽和重量を測定する、水中飽和法^[6]により測定した。

なお、土壌に対するこれらのパラメータは、土壌中の放射性物質の濃度分布(単位体積当たりの 放射能)の算出や、移行・遅延の解釈や解析等に使用した。

(a)ポータブルドリルと大口径サンプラー(内径 150mm)による掘削作業(左写真:地中への押込み 状況)と(b)採取された土壌コアの例(右写真:開口した状態のロッド)

U-8容器

(c)ロッドからの土壌試料の採取(スクレーパーにより採取区間を仕切り、中心部分のみから採取)

(d)水頭差による簡易式透水試験(土壌の透水性の状況により30~40cmの水頭差にて実施)

図 3.2.3-1 大口径土壌サンプラーを用いた土壌中深さ方向の放射性物質の分布状況調査の状況 ((a) 掘削作業状況、(b) 採取された土壌コアの例、(c) 土壌試料の採取、(d) 透水試験)

図 3.2.3-2(a) 放射性セシウムの移行要因検討のために用いた3種類の土壌試料

[3] 日本土壤肥料学会監修 土壤環境分析法 博友社

図 3.2.3-2(b) 土壤特性評価

図 3.2.3-3 水簸分級(土壤懸濁液中における土壌粒子の粒径による沈降速度 の違いを利用した分級)の手順

図 3.2.3-4 X線回析による鉱物組成の分析作業手順

図 3.2.3-5 土壌構成成分の陽イオン交換容量(CEC)の測定手順

図 3.2.3-6 収着試験及び脱離試験の測定手順

3.2.4 調査結果

(1) 土壌中深さ方向における放射性物質の放射能濃度分布について

第2次分布状況等調査において検出された放射性核種は、セシウム134、セシウム137、銀110m であった。放射性セシウムの両核種は全ての試料採取地点で、銀110mは空間線量率が高い浪江町赤 宇木地区と昼曽根地区の試料採取地点で検出された。銀110m(半減期249.8d)は、前回の調査にお いても同様の地区で検出されているもののその量は僅かであり、今回の調査においては更に少なく、 最大でも250 Bq/kg程度と前回の調査時よりも全ての試料採取地点で半分以下に減少していた。

前回、川俣町山木屋地区より東側の試料採取地点で検出されたテルル 129m は、今回の調査では全ての試料採取地点で検出下限値以下であった。これは、テルル 129m の半減期が 32.6d と短いためであり、前回の調査結果を減衰補正して求めた結果とも整合している。

① 土中における放射性セシウムの分布状況の調査結果

今回の調査では、最大深さ 50cm 程度の土壌コア試料を予備も含めて 19 本採取し、放射性セシウムの深度分布状況について確認を行った(表 3.2.2-1 参照)。土壌観察結果と土地利用状況に基づく 土壌区分から、それぞれ地表面土壌と元農地(花壇を含む)と推定される土壌に分類した土壌に対す る深度方向の放射性セシウムの濃度分布を、土壌観察結果と共に図 3.2.4-1(a)~図 3.2.4-1(d)と図 3.2.4-2(a)~図 3.2.4-2(f)に示す。なお、平成 23 年 3 月 11 日時点で明らかに畑地や田んぼと思わ れる農地は、調査対象としていない。

放射性セシウムの深度分布の状況としては、土壌観察結果と土地利用状況に基づく土壌区分から 元農地(花壇を含む)と推定される土壌(PSP-5、8、11、16、17、18)とそれ以外の地表面土壌(PSP-1、 3、9、13、15)とに分類して考察した結果、図 3.2.4-1(a)~図 3.2.4-1(d)に示すように、地表面土 壌については、昼曽根地区の試料採取地点(PSP-13、15)を除き、表層 5cm 以内にインベントリの 95%以上が、表層 10cm 以内に 99%以上が存在していた。これは、第1次分布状況等調査の結果の 内、同じ調査地点においてクロスコンタミネーションが明らかに無いと判定された試料(WGS-1、 HGS-3)の結果^[2]と比較しても殆ど変化しておらず、放射性セシウムがほとんど移行していないこと を示しており、放射性セシウムの土壌への収着分配係数が極めて高いことと整合する。

他方で、元農地(花壇を含む)と推定される土壌については、図3.2.4-2(a)~図3.2.4-2(f)に示 すように、第1次分布状況等調査の結果と同様、地表面土壌よりも土中深部まで放射性セシウムの 分布が拡がる傾向であるものの、殆どの地点で表層16cm以内にインベントリの95%以上が、表層 20cm以内に99%以上が存在していた。第1次分布状況等調査においてクロスコンタミネーションが 明らかに無いと判定された試料(HGS-1、25)の採取地点について第1次分布状況等調査と第2次分 布状況等調査の結果を比較すると、第1次分布状況等調査では表層14cm以内にインベントリの99% 以上が存在していたのに対して、第2次分布状況等調査では表層20cm以内と僅かながら深部へ移行 している傾向が見られた。土壌深部に存在する放射性セシウムは、フォールアウトによる影響も考 えられたためAppendix 3.2にて考察した。

図 3.2.4-1(a) 地表面土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 1/4 (PSP-3:二本松市金色)

図 3.2.4-1(b) 地表面土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 2/4 (PSP-1:川俣町山木屋-2)

図 3.2.4-1(c) 地表面土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 3/4

(PSP-13: 浪江町昼曽根-1A)

0) 地表面:枯草あり

PSP-15

1) 暗赤褐色土壤

・マサ土と黒色土壌が混合した土壌で有機質 ・石英,長石,風化黒雲母の粗粒~極粗粒砂サイ ズの鉱物片に富む

・全般に草本類の細根が認められ、特に基底部に

2) 黒ボク土

第2次分布状況等調查 ・草本類の細根を含む (H24年3月4日採取) ・φ5mmの石礫を稀に含む ※基底部にビニールひもの埋立ゴミあり

3) 黒ボク土

・上位2)黒ボク土に同じ,但しゆ4mmの団粒状構 造が発達(上位との境界は不明瞭)

4)暗褐色砂屑

・粗粒~極粗粒砂サイズ ・4mm以下の礫を多く含む

5) 黒ボク土

・全体に細根を含み、下部に木本類の根あり

6) 黒ボク土

・上位5)黒ボク土に同じ,但し60.5~1cmの団粒 状構造が発達 ごく稀に石礫を含む(長径1~4cm)

第1次分布状況調査では上記PSP-15 の近傍で試料採取を行っていない。

図 3.2.4-1(d) 地表面土壤中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 4/4 (PSP-15: 浪江町昼曽根-1B)

図 3.2.4-2(a) 元農地と推定される土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 1/6 (PSP-5:川俣町山木屋-0)

図 3.2.4-2(b) 元農地と推定される土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 2/6 (PSP-8: 浪江町津島)

0)地表面:枯草あり、4cm程度まで凍結

1)黑色土壌

1)

2)

3)

-健

・黒ボク土のA層に相当する土壌
 ・やや褐色味を帯びる
 ・ゆ5mmの礫をごく稀に含む
 ・ごく稀に黒雲母(風化)、長石片を含む
 ・深度5cmまで草本類の細根多い

<u>2)赤色粘土</u>

・レンズ状の外形をなし、厚さ5mm

<u>3)黒色土壌</u>

・黒ボク土のA層に相当する土壌
 ・こく稀に黒雲母(風化)、長石片を含む
 ・粒状の土壌構造をもつ
 ・深度29cm以深は、やや乾燥

HGS -25 -490m 但便の首さの草木環 -490m 相便の首さの草木環 -線板の植物視が多く含まれる -準温潤状態 を注意子上作力 -線板をごく少量合む - 福納現を含む - 温潤状態 ※ 黒ポクナの ^A貫に相当する土塊

第1次分布状況等調査 (H23年6月16日採取)

PSP-11

第2次分布状況等調査

(H24年3月3日採取)

図 3.2.4-2(c) 元農地と推定される土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 3/6 (PSP-11: 浪江町下津島-1A)

Ξ

0) 地表面:草本類の枯草あり

PSP-17

<u>1)有機質層</u>

2) 黒色土壌

・ほぼ草本類の細根から構成される

^{限から備成される} 第2次分布状況等調査 (H24年3月6日採取)

・有機質、細根を多く含む

・ φ1mm程度の黒雲母(風化),長石片を多く含む
 ・ ごく稀こφ5mmの礫を含む

<u>3) 黄褐色斑紋</u>

・2)の黒色土壌と混在して分布 ・φ3~5mmの長石片を多く含む ・草本類の細根をまれに含む

<u>4) 黒色土壌</u>

・黒ボク土のA層に相当する土壌 ・深度43~45cmにかけて長石片が層状に分布 ・黒雲母と長石片を多く含む

<u>5) 黒色土壌</u>

- ・黒色土壌に黄褐色の斑紋が認められる(2)の黒色土壌と3) の黄褐色斑紋に類似) ・黒雲母と長石片を非常に多く含み、長石片は¢3~5mm程度の大きさ
- ・まれに草本類の細根を含む

図 3.2.4-2(d) 元農地と推定される土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 4/6 (PSP-17:浪江町下津島-1B)

PSP-18

0) 地表面: 枯草や草本類の細根なし

第2次分布状況等調査

1) 砂混沙粘土質褐色土壤 (H24年3月6日採取)

·深度5cm程度にφ5~1cmの礫を多く含む

・下位の2)粘土質赤色土壌に由来する礫を,下部に 含む

・ φ0.5~1cm程度の団粒状の土壌構造が発達

2)粘土質赤色土壤

・黒雲母(風化),長石片を多く含む

- ・褐色、黒色土の礫を上部に含む
- ·深度35cmにφ5~1cmの長石片の礫を層状
 に含む

・上位の1)褐色土壌との境界部は不明瞭であ

り,褐色土壤と赤色土壤が混在

・φ2~5cm程度の塊状の土壤構造が発達

第1次分布状況調査では上記PSP-18 の近傍で試料採取を行っていない。

図 3.2.4-2(e) 元農地と推定される土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 5/6 (PSP-18: 浪江町下津島-1C)

図 3.2.4-2(f) 元農地と推定される土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 6/6 (PSP-16: 浪江町赤宇木-2) ② 土中における放射性セシウムの分布状況の違いの考察

放射性セシウムの濃度分布と土壌構成との関係について考察した結果、褐色ないし黒色土壌を支 持層とした土壌(PSP-5、8、11、13、15、16、17、18)において深部まで分布し、特に有機質土壌 (PSP-8、11、13、15、17)において分布が拡がる傾向が見られた。これは、放射性セシウムが直接 土壌成分へ収着するよりも有機物と錯形成する方が収着分配係数に及ぼす効果が小さいため、相対 的に有機物が土壌への放射性セシウムの収着を阻害する方向に作用することに加えて、有機物と放 射性セシウムとの反応が可逆的であるためと考えられる。このことは、後述する有機質土壌に対す る放射性セシウムの収着分配係数が他の土壌よりも小さいことや CEC (23.6meq/100g)が粘土質土 壌(10.4meq/100g)や砂質土壌(5.5meq/100g)よりも大きくイオン交換反応による収着容量も大き いと見積もられるものの、収着の可逆性の割合も大きく移行しやすいことと整合する。

また、土壌の性質の違いに伴う放射性セシウムの深度分布の違いを確認するため、各調査箇所で 採取された土壌試料の土壌観察の結果を基に、主な土壌の構成が砂質土壌、粘土質土壌、有機質土 壌かで分類し、それぞれの土壌分類における放射性セシウムの深度分布の傾向を比較した。比較に あたっては、90%深度(土中の放射性セシウムの全存在量の90%が含まれる深さ)、及び99%深度 (土中の放射性セシウムの全存在量の99%が含まれる深さ)を指標とした。その結果、表 3.2.4-1 に示すように、調査箇所によるばらつきはあるものの、土壌攪乱の影響のない地表面土壌について 比べると、有機質土壌では、砂質土壌や粘土質土壌に比べて、90%深度、99%深度が大きくなる傾 向が確認され、有機質土壌、つまり有機質が多い土壌では放射性セシウムが深くまで浸透している 傾向にあることが確認された。

なお、土壌中における放射性セシウムの深度分布の状況は、地表面から深度方向への放射性セシ ウム濃度の減少率及び土壌中における放射性セシウム濃度ピークの位置に基づくと、4 種類に区分 され、今回の調査では、クラスAとBが大半を占め、クラスCとDは極一部に限られた(図 3.2.4-3)。

- a) クラス A は、地表面で最も放射性セシウムの放射能濃度が高く、深度 2cm 以内に放射性セシ ウムのインベントリの 90%以上が存在し、それ以深で濃度が急減する。
- b) クラスBも同じく地表面で最も放射性セシウムの放射能濃度が高いが、深度0~4cm までの放 射性セシウムの濃度に変化が認められず、深度4cm以深で濃度が急減する。
- c) クラスCは、地表面で最も放射性セシウムの濃度が高く、深度4cm以内に放射性セシウムの インベントリの60~70%が存在し、深度10cm付近に濃度ピークを有する。
- d) クラスDは、地表面から深度4cm付近での放射性セシウムの放射能濃度が最も高く、土壌中 に複数の濃度ピークを持つ。

		90%深度 (土中の放射性セシウム の全存在量の90%が含 まれる深さ)	99%深度 (土中の放射性セシウム の全存在量の99%が含 まれる深さ)	備考 (土壌分類ごとに該当する 調査箇所)					
砂質土壤	地表面土壤	2cm以下~4cm程度	2cm程度~10cm程度	PSP-1,PSP-3,PSP-9					
	元農地と推定される土壌	~8cm程度	~16cm程度	PSP-5					
粘土質土壤	地表面土壤	7cm程度	10cm程度~12cm程度	PSP-13					
	元農地と推定される土壌	7cm程度~14cm程度	10cm程度~40cm程度	PSP-11,PSP-16,PSP-18					
有機質土壤	地表面土壤	~13cm程度	~16cm程度	PSP-15					
	元農地と推定される土壌	4cm程度~9cm程度	18cm程度~20cm程度	PSP-8,PSP-17					

表 3.2.4-1 大口径土壌サンプラーを用いた土壌中の放射性セシウムの深度分布調査の結果 (土壌分類(砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌)ごとの評価)

クラス	深度分布のパターン		試料採取地点	土壤種	土地利用情況	試料採取地点/周囲の地形	
A	 地表面で最もCs 濃度が高く、深度 方向に向かい急 減する 深度2cm以内の Cs積算濃度(%) が90%以上であ る 	Ocm 低 Cs濃度 高 W W K G 小 衣 報 昇 50cm	 二本松市金色 ・	○深度2cmまで: 二本松金色)堆積有機買層と黒色土壌 下洋島-1A)黒色土壌(黒ボク土) 下洋島-1B)有機買層 赤丰木-1)堆積有機買層・砂礫層 山木屋-2)有機買層と粘土質細一中粒砂層 ○深度4cmまで: 二本松金色)黒色土壌(黒ボク土) 下洋島-1A)黒色土壌(黒ボク土) 下洋島-1A)黒色土壌(黒ボク土) 下洋島-1A)黒色土壌(黒ボク土) 下洋島-1B)有機買層 赤字木-1)砂質土壌 山木屋-2)粘土質細一中粒砂層	二本松金色) 駐車場わきの側溝 近傍 下津島-1A) 山間の元畑 下津島-1B) 山間の元畑 赤宇木-1) 山間の元畑 地間の元畑 山木屋-2) 尾根を切り上した駐 車場、マサの客土	二本松会色) 平坦面(試料採取地点は、駐車場 面から10-150m程度掘り込んだ側溝の近傍) 下津島-14) 山麓残料面の最大植斜方向に直 交して流れる小河川防方漁側端約(河川方向 に4度、河川直交方向に5-8度傾斜) 下津島-18) 山麓鉄料面の最大植斜方向に直 交して流れる小河川防上漁側端約(河川方向 に4度、河川直交方向に6-8度傾斜) 赤非木-1) 小河川沿いに発達する山地斜面基 部の麓町画、幅24mで河川に向かい7度傾斜。 後背地の山地斜面は傾斜15度以上。 山木屋-2) 山地斜面(傾斜8-15度)	
в	 深度0~2cmと深度2~4cmの全Cs 濃度が15日にであり、深度方向に向かい急減する 	Ocm 低 Cs濃度 画	• 浪江町下津島-1C • 浪江町昼曽根-1A	<u>○深度2cmまで:</u> 下津島-1C)砂震じり粘土貫土境 星首根-1A,手前)黒色土壌、やや粘土買 <u>○深度4cmまで:</u> 下津島-1C)砂湿じり粘土貫土線 星首根-1A,手前)黒色土壌、やや粘土質	下津島-10) 山間の元畑 昼曽根-1A、手前) 広葉樹林地の端部	 ○下津島-10)山麓倶斜面の末端部(河川方向 に4度、河川直交方向に5-8度傾斜) 昼曽根-14、手前)諸戸川沿いに発達する幅約 80mの河成段丘面の中央部、河川側。 	
с	 地表面で最もCs 濃度が高く、深度 方向に向かい急 減する 深度4cm以内の Cs積算濃度(%) が60-70%台であ る 深度15cm程度に 濃度ビークを持つ 	Ocm 他 K S S S C C R R H S S C C R R H S S C C R R H S C C R R R R R R R R R R R R R R R R R	 川俣町山木屋-0 浪江町赤丰木-2 浪江町昼曽根-18 	 ○深度2cmまで: 山木屋-00 有機買層と細性砂層 赤キホ-2) 褐色土線 監督根-16、奥)マサ土と黒色土壌の混合した有機買 土壌 ○深度4cmまで: 山木屋-00 細粒砂層 赤キホ-2) 褐色土線 監督根-16、奥)マサ土と黒色土壌の混合した有機買 土壌 ○ビーク深度: 山木屋-00 細粒砂層と粘土買碟 赤キホ-2) 褐色土線 医首根-16、奥)塊状黒ポク土と団粒状黒ポク土境界 部 	山木屋-0) 花壇、マサの客土 赤丰木-2) 花壇、マサの客土 が土壌化 昼曽根-18、奥) 広葉樹林地の端部	山木屋-0)請戸川の沖積面端部(後背地は山 地斜面で傾斜20-35度) 赤芋木-2)請戸川沿いの幅20mの河成股丘面。 河川に向かい2度傾斜(後背地は山地斜面で 傾斜22度) 昼曽根-18、奥)請戸川沿いに発達する幅約 80mの成股丘面の中央部、山地側。後背 地は山地斜面で傾斜20-35度。	
D	 地表面に比べて 深度数cmにおけ るCs濃度が高い 複数深度に濃度 ビークがある 	Ocm 他 Cs濃度 高 型 影 の い な 熊 昇 50cm	・浪江町津島	 ○深度2cmまで: 津島)細粒砂を含む有機買黑色土壌 ○深度4cmまで: 津島)細粒砂を含む有機買黑色土壌 ○ビーク深度: 津島)細粒砂を含む有機買黑色土壌 	津島)元田人ぼ	津島)小河川沿いに発達する幅250m程度の沖 積面。周囲を囲まれた盆地状の地形をなし集 水域。地下水位はほぼ地表面	

図 3.2.4-3 土壌中深度方向の放射性セシウムの分布状況に関するパターン分類 (クラス C 及び D における濃度ピークは、表面濃度に比べて数桁少ない濃度での変動である) ③ 土中における放射性セシウムの深度分布の特徴に関する考察

3.1で土壌深度特性をまとめた際と同様に、土壌深度別の放射性セシウムの放射能濃度が深度が 大きくなるにつれ、指数関数的に減少しているか調べた。その結果、今回の調査箇所においても、 全体的に土中深度に対する対数表示の放射性セシウムの濃度分布は指数関数的に減少する形状のも のが多いことが確認された。これは、土中における放射性セシウムの移行状況は、単純な拡散ない し移流分散などによる移行方程式では表現できず、可逆と不可逆な収脱着反応が混在すると見られ る。このことは、後述する土壌構成鉱物の分析結果において、イオン交換を主体とする可逆的な収 着反応(収着後、はがれる)を示すバーミキュライトや不可逆な収着反応(収着後、はがれない) を示すマイカなどの粘土鉱物が同定されたことと整合する。

(2) 水簸分級による土壌構成成分の含有量測定、XRD による鉱物組成分析、土壌基本特性(CEC)の 測定結果による砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌への放射性セシウムの収着特性の評価について

前記 3.2.4 (1) ②の「土中における放射性セシウムの分布状況の違いの考察」において示したよ うに、砂質、粘土質、有機質土壌で、放射性セシウムの深度分布が異なる傾向を示すことが確認さ れた。そこで、採取した土壌試料から3種類の土壌(砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌)を選択 的に抽出し、放射性セシウムと吸着性能に影響を与える土壌粒度分布(図 3.2.4-4)、鉱物組成の特 徴、土壌基本特性の測定(CEC 測定)について調査を行った(図 3.2.4-5)。表 3.2.4-2 に、3種類 の土壌(砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌)に対して水簸分級により得られた土壌構成成分(粘 土、シルト、砂・礫)の含有率(重量%)及びそれら土壌構成成分のCEC(陽イオン交換容量)の 測定結果を示す。また、表 3.2.4-3 に XRD による鉱物組成分析結果を示す。

これらの結果から以下のことが確認された。

- 放射性セシウムは陽イオンとして、土壌を構成する粘土鉱物に吸着すると言われている。この 土壌試料との収着しやすさを表す指標として、土壌試料の陽イオン交換容量(CEC)があり、 CEC が大きいほど、放射性セシウムは収着しやすくなる。この CEC について砂質、粘土質、有 機質土壌について調査したところ、有機質土壌は、砂質、粘土質土壌に比べて全体的に CEC が 高い値を示し、特に、粘土成分(83.4meq/100g)とシルト成分(58.2meq/100g)でベントナイ ト並みの高い値を示した。
- また、放射性セシウムは粘土鉱物と収着しやすいものの、粘土鉱物の種類の違いによって、可逆的(収着しやすく、脱離しやすい)、不可逆的(収着した後、脱離しづらい)な反応を示す。
 そこで、砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌の陽イオン交換容量の違いについて、土壌の鉱物 組成の面から影響を確認したところ、
 - a) 砂質土壌は、マイカとカオリナイトの含有量が多く,相対的に CEC は低い。マイカの含有 量が多いことから,粘土鉱物への収着に対する不可逆性の割合が高く、放射性セシウムが 移動しづらいことが確認された。
 - b) 粘土質土壌は、バーミキュライトの含有量が多い。粘土鉱物への収着に対する可逆性の割 合が高く、砂質土壌に比べて放射性セシウムはやや移行しやすいことが確認された。
 - c) 有機質土壌は、CEC が最も高く、可逆性も大きいと考えられることから、放射性セシウムが 移行しやすいことが確認された。

○ これらのことから、有機質土壌は、バーミキュライトの含有率が粘土、シルト成分共に多くないことを考えると、CECの多くは有機物のイオン交換体(例えば、カルボキシル基)によるものと考えられる。なお、粘土質土壌では、粘土成分及びシルト成分共にバーミキュライトを多く含むにも関わらず、CECは砂質土壌における粘土成分やシルト成分の方が高い。この要因としては、イオン交換の際に用いた NH₄C1 水溶液中の NH₄⁺イオンがバーミキュライトに固定された可能性^[3]が考えられる。

なお、粘土成分(粒径 2µm以下)の含有率はいずれも 1~2wt%程度であった。一方、シルト成 分の含有率は、粘土質土壌で 43.9wt%と最も高く、次いで有機質土壌の 14.7wt%、砂質土壌の 3.9wt%の順であった。特に、粘土質土壌はシルト以下の粒子が 44.7wt%と全成分の半分近くを占 めており、現場観察における目視や接触による性状の違いは主にシルト含有率に起因すると考えら れる。

拉取符码	**	武公	业 社 汉文	水簸	CEC		
环収固別	111八	成力	↑⊻1主	乾燥重量(g)	含有量(%)	(meq/100g)	
			無処理			5.5	
山伊町山大屋	砂質	粘土	$< 2 \mu m$	10.8	1.2	21.4	
川侯町山不座		シルト	2∼20µm	33.6	3.9	21.7	
		砂、礫	>20 µ m	820.3	94.9	2.4	
浪江町下津島	粘土質		無処理			10.4	
		粘土	$< 2 \mu m$	3.5	0.8	12.6	
		シルト	2 ~ 20µm	190.4	43.9	17.6	
		砂、礫	$>$ 20 μ m	239.8	55.3	8.8	
			無処理			23.6	
浪江町昼曽根	有機質	粘土 <2µm		5.2	2	83.4	
		シルト	$2 \sim 20 \mu \mathrm{m}$	38.8	14.7	58.2	
		砂、礫	$>$ 20 μ m	220.1	83.3	7.3	

表 3.2.4-2 水簸分級(土壤懸濁液中における土壌粒子の粒径による沈降速度の違いを利用した分級)により得られた土壌構成成分の含有率及び CEC の測定結果

同定され	いた鉱物												
鉱物名	Mineral	川俣町山木屋					浪江町下津島				浪江町昼曽根		
	name	砂質土壌	粘土	シルト	砂分	粘土質土壌	粘土	シルト	砂分	有機質土壌	粘土	シルト	砂分
スメクタイト	Smectite	tr	+	tr	tr							—	
バーミキュライト	Vermiculite	tr	tr	+	tr	+	+	++	+	tr	+	+	tr
雲母鉱物	Mica mineral	tr	++	++	+	tr	+	+	tr	tr	+	+	tr
滑石	Talc				—			—			tr	+	
沸石族	Zeolite group			+	—			—				—	
角閃石族	Amphibole group	+	+	++	+	+	+	+	tr	tr		+	tr
カオリン鉱物	Kaolin mineral	tr	+++	++	tr	+	+	+	+	+	++	+	tr
ギブサイト	Gibbsite					tr	+	+	tr	tr	++	+	tr
クリストバライト	Cristobalite				—			—		_	++	—	
石英	Quartz	++	+++	+++	++	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+++
長石族	Feldspar group	+++	+++	+++	+++	++		+	+	+++	++	++	++
輝石族	Pyroxene group	+	+	+	tr	tr	+	+	tr	+	+	+	+
	凡例 +++:9量 ++:少量 tr:微量 -:不検!												

表 3. 2. 4-3 X 線回析(XRD)による鉱物組成分析結果

・粘土(2µm以下)は約1%、約1kgの採取土壌に対し、数グラム程度

・粘土・シルト成分の含有率:下津島(約45wt%)>昼曽根(約17wt%)>山木屋(約5wt%)

図 3.2.4-4 水簸分級(土壤懸濁液中における土壌粒子の粒径による沈降速度 の違いを利用した分級)により得られた土壌構成成分の含有率

図 3.2.4-5 各土壌試料の陽イオン交換容量(土壌試料と放射性セシウムの 収着しやすさを表す指標)測定結果

(それぞれの土壌構成成分(砂質、粘土質、有機質土壌)についての評価)

(3) 収着試験及び脱離試験結果による放射性セシウムの砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌への収 着、脱離しやすさの評価について

続いて、収着試験及び脱離試験結果を通じた放射性セシウムの砂質土壌、粘土質土壌、有機質土 壌への収着、脱離しやすさを評価した。図 3.2.4-6 にバッチ法により得られた土壌及び土壌構成成 分(粘土、シルト、砂・礫)に対する放射性セシウムの収着分配係数の測定結果を示す。なお、収 着分配係数はこの係数が高いほど、放射性セシウムが土中で移行しづらいことを示す指標である。 これらの結果から以下のことが確認された。

- 有機質土壌への放射性セシウムの収着分配係数は、砂質土壌や粘土質土壌に比べて、土壌粒子の粒径によらず、低い傾向を示した。これは、放射性セシウムが土壌構成成分と収着することを有機物が阻害していること、放射性セシウムが土壌構成成分へ収着するよりも有機物と錯形成する方が収着分配係数へ及ぼす効果が小さいためと考えられる。
 この有機質土壌への放射性セシウムの収着分配係数が他の土壌よりも小さいことと、CEC が大きいことは、有機質土壌において放射性セシウムの分布が深部に拡がる傾向を示していることと整合する。
- なお、土壌構成成分への収着性について、シルト成分(2~20µmの土壌粒子)への放射性セシ ウムの収着分配係数が高い傾向を示した。これは、XRD による鉱物分析から明らかなように、 シルト成分に放射性セシウムと収着しやすい粘土鉱物(バーミキュライト、マイカ、カオリナ イト)が多いためと考えられる。

また、図 3.2.4-7 に収着試験終了後の土壌試料(砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌)を用いて 放射性セシウムの脱離試験を実施した結果を示す。脱離試験は土壌試料に 0.33M KCL 水溶液を流し、 土壌(固相)への放射性セシウムの残存割合を評価した。なお、脱離試験の結果、土壌(固相)へ残 存する割合が低いほど、土壌粒子に収着した放射性セシウムの脱離のし易さを示す。

これらの結果から以下のことが確認された。

○ いずれの試料においても、土壌試料に 0.33M KCL 水溶液を 5 回以降流すことで一定割合に漸 近しており、土壌構成成分との不可逆的に収着していることが確認された。不可逆的に固相に 収着した放射性セシウムの割合は、2μm以下(粘土区分)においては、添加した放射性セシウ ム全量に対し、

砂質土壌(約60%)>粘土質土壌(約20%)> 有機質土壌(約10%)

の順であり、この順に放射性セシウムが剥がれ難い状況であることが確認された。

- また、それぞれの土壌試料における脱離傾向の違いとしては以下のとおりである。
 - a) 砂質土壌

砂質土壌では、土壌粒子の粒径が小さくなるにつれ、不可逆的な収着の割合が大きくなり (一旦収着した放射性セシウムがはがれにくくなる)と言う傾向が確認された。これは、 XRD で確認されたように、雲母(マイカ)等の放射性セシウムと強く吸着する粘土鉱物の影 響が大きくなるためと考えられる。 b) 粘土質土壤

粘土質土壌では、不可逆的に土壌固相に収着した割合が砂質土壌と有機質土壌の中間的な 傾向を示した。これは、XRD で確認されたように、粘土鉱物への収着に対して可逆性を示 すバーミキュライトの寄与によると考えられる。

c) 有機質土壤

有機質土壌では、砂質土壌、粘土質土壌に比べて、最も脱離しやすい傾向が確認された。 有機質土壌は、XRD で確認されたように、各粘土鉱物(バーミキュライト、マイカ、カオ リナイト)が同程度含まれており、土壌への放射性セシウムの収着にあたって、可逆性、 不逆性双方の性質を有することが確認されているが、土壌固相に収着した放射性セシウム の9割が脱離し、可逆的な収着の割合が大きい(放射性セシウムがはがれやすい)ことが 確認された。また、土壌粒子の粒径依存性は砂質土壌とは逆で、粒径が小さな土壌粒子ほ ど、放射性セシウムがはがれ易い状況が確認された。このことは、有機質土壌には放射性 セシウムを吸着する要因として土壌粒子(特に粘土鉱物)及び有機物が考えられるが、土 壌粒子(特に粘土鉱物)は放射性セシウムを吸着し易く、脱離しづらい。一方、有機物は 放射性セシウムを(粘土鉱物と比べて)比較的吸着しづらく、脱離し易い。

今回の調査では有機物の定量を行っていないため、定量的な議論は今後の課題である。 一般的には有機質土壌の分布は地表浅部に限られることが多く、今回の調査でも有機質土 壌は、数 cm から数十 cm 程度の深さまでしか分布していない。

図 3.2.4-6 土壌及び土壌構成成分(粘土質、有機質、砂質)に対する放射性セシウムの 収着分配係数(K_a)(土壌への放射性セシウムの収着しやすさ)の測定結果

(なお、昼曽根(有機質)の水簸前の K_d値については、風乾に時間を要するため、今回は調査結果 が得られていない。)

図 3.2.4-7 土壌及び土壌構成成分(粘土質、有機質土壌、砂質)に対する放射性セシウムの脱離 試験結果(0.33MKC1 溶液による脱離試験の結果、固相に放射性セシウムが残る割合(固相割合)が 小さいほど土壌から放射性セシウムが脱離しやすいことを示す)

- (4) 土壌中における放射性セシウムの移行要因の検討に係る調査の結果のまとめ
- ① 放射性セシウムの深度分布について、地表面土壌では、一部の調査箇所を除き、概ね表層 5cm 以内にインベントリの 95%以上、表層 10cm 以内に 99%以上が存在していた。これは、地表面 土壌では、放射性セシウムがほとんど移行していないことを示しており、放射性セシウムの土 壌への収着分配係数が極めて高いことと整合する。

他方で、元農地(花壇を含む)と推定される土壌では、第1次分布状況等調査の結果と同様 に、この土壌においては地表面土壌よりも深部まで分布が拡がる傾向であるものの、ほとんど の調査箇所で表層 16cm 以内にインベントリの 95%以上が、表層 20cm 以内に 99%以上が存在 していた。

- ② 放射性セシウムの深度分布と土壌構成との関係について考察した結果、褐色ないし黒色土壌を 支持層とした土壌層において深部まで分布し、特に有機質土壌において量はわずかであるもの の、放射性セシウムが有機質土壌の分布する深度まで浸透(移行)する傾向が見られた。これは、 有機質土壌に対する放射性セシウムの収着分配係数が他の土壌よりも小さいことや、陽イオン 交換容量(CEC)が大きくイオン交換反応による収着容量も大きいと見積もられるものの、収 着の可逆性の割合も大きく移行しやすいことと整合する。しかし、有機質土壌の分布は一般に 地表浅部に限られることが多い。
- ③ 土壌中における放射性セシウムの深度分布の形状について、深度に対する対数表示の濃度分布 は、全体的に指数関数的に減少する形状のものが多く、単純な拡散ないし移流分散などによる 移行方程式では表現できない。これは、XRD による鉱物組成分析結果からも明らかなように、 可逆と不可逆な収脱着反応を示す鉱物が混在すると考えられる。

3.3 全体のまとめ

土壌中の放射性セシウムの深度分布の調査を2つの観点から実施した。一番目は、多数の地点で スクレーパープレート及び鉄パイプを用いて土壌試料を採取し、放射性セシウムの深度分布の測定 結果を統計的に解析するための調査である。二番目は、調査箇所を限定し大口径サンプラーを用い て深部までの土壌を採取して放射性セシウムの深度分布を詳細に調べるとともに、放射性セシウム の吸脱着試験の実施を含む、移行要因の詳細な解析を行なうための調査である。

両方の調査で共通して、一般の土壌においては土壌表面から5cm以内にほとんどの放射性セシウムがまだ存在しており、放射性セシウムの地中への移行は全般に遅いことが確認された。一方、元 農地(花壇を含む)と推定される箇所においては、より深いところまで放射性セシウムが入り込ん でいることが分かった。土壌深さ方向の放射性セシウムの分布はほとんどの場合、指数関数で近似 できる分布となっていた。

土壌成分に注目すると、砂質土壌、粘土質土壌、有機質土壌の順番に土壌固層に不可逆的に放射 性セシウムが収着する割合が多く、セシウムの浸透の程度がこの順に小さいことを示唆する結果が 得られた。実際に土壌試料の深度分布観察結果によれば、有機質土壌においては放射性セシウムが 移動し易く、量はわずかであるが深くまで放射性セシウムが浸透している例が見られた。一方、ス クレーパープレートによる測定値の統計解析からは、表層土壌の粘土成分と緩衝深度の間に相関が あることが確認されており、放射性セシウムの地中移行のしやすさと土質との間に関係があること は明らかである。スクレーパープレートにより得られた緩衝深度を土壌図上にプロットした結果か らは、土壌の種類と深度分布には明確な関係は見られなかったことから、より局所的な土壌の質に 関する情報を得て解析を行なうことが必要であると考えられる。

スクレーパープレートによる深度分布の測定を今後も定期的に実施し、深度分布の経時変化を明 らかにする予定である。今回得られた知見を参考にして経時変化の結果を解析することにより、将 来の深度分布を予測するモデルを作成することが次の目標である。

参考文献

- [1] 文部科学省: 文部科学省及び米国エネルギー省航空機による航空機モニタリングの測定結果に ついて、平成23年5月6日.
- [2] 文部科学省 原子力災害対策支援本部: 放射線量等分布マップ関連研究に関する報告書(第 2 編)、pp. 2-25~2-61、平成 24 年 3 月.
- [3] 日本土壤肥料学会監修 土壤環境分析法 博友社 (1997)
- [4] (社日本原子力学会:(社)日本原子力学会標準 収着分配係数の測定方法―浅地中処分のバリア材 を対象としたバッチ法の基本手順:2002, AESJ-SCF003:2002 (2002).
- [5] 日本規格協会: JIS A 1202: 1999 土壌粒子の密度試験方法(1999).
- [6] 例えば、佐藤治夫: 堆積岩系岩石マトリクス中の拡散移行過程に関する研究: 砂岩微細間隙構 中での Cs 及び I の拡散移行挙動と固液界面モデル、核燃料サイクル開発機構技術報告書 JNC TN1400 2002-022 (2003).