

大気中への再飛散等による放射性セシウムの移行状況調査

I. 地表面からの再飛散による大気中の放射能濃度のモニタリング及び再飛散量の推定

北 和之（茨城大学）
吉田 尚弘（東京工業大学）
恩田 裕一（筑波大学）

1. 調査目的

平成 24 年度の調査では、福島県伊達郡川俣町山木屋地区及び福島県双葉郡浪江町津島地区において大気中の放射性セシウムによる放射能濃度（以下「大気セシウム放射能濃度」という。）、放射性セシウム沈着フラックス及びエアロゾル濃度等の測定を実施し、その時間変動のデータを得た。それらの観測結果から、森林以外の地点では大気セシウム放射能濃度は地表に沈着している放射性セシウム量と比例すること、地表風速と相関があるが土壌粒子飛散の影響は明確ではなかった。他地域からの移流が無視できる場合、大気セシウム放射能濃度と沈着フラックスのバランスから大気への再飛散の割合を示す再飛散係数が推定でき、平地について求めることができた。

本調査においては、より詳細な再飛散メカニズムの解明と再飛散フラックスの高精度推定を目的として、大気セシウム放射能濃度と風向風速など気象要素、土壌水分、各種エアロゾル濃度との関係を調べた。また、平地以外でも再飛散係数を推定するために、微気象学的な手法（渦集積法）により再飛散フラックスを推定するための観測体制を構築する。また、大気セシウム放射能濃度及び沈着フラックスと空間線量率の関係について確認を行う。

2. 調査内容

川俣町山木屋地区及び浪江町津島地区の平地、傾斜地及び森林を調査対象地とし、大気中の放射性セシウムの調査を実施した。それぞれの調査地点において、大気セシウム放射能濃度と放射性セシウム沈着フラックスの測定及び摩擦速度¹や土壌水分（土壌体積含水率）の観測を実施した。なお、浪江町津島地区の浪江高校津島校のグラウンドでは、前述の観測項目に加えて、大気粒子密度や無機イオン濃度、黒色炭素エアロゾル濃度、有機成分の分析を行った。また、福島県郡山市の福島県農業総合センターにおいて、農作業が大気セシウム放射能濃度へ及ぼす影響についての調査を実施した。

3. 結果と考察

放射能濃度及び沈着フラックスの季節変化を調べるために、平成 24 年度の調査結果も含めて議論を行った。

¹ 摩擦速度とは、風が地表に加える応力を示し、風速とともに増加する。土壌粒子が風によって巻き上げられる量は、摩擦速度に正相関することが知られている。

(1) 大気セシウム放射能濃度及び沈着フラックスの時間変化とその要因

浪江高校津島校における、平成 25 年 1 月から 3 月、平成 25 年 5 月から 8 月の期間の大気セシウム放射能濃度（セシウム 137）の観測データを図 I-1 (a) 及び図 I-1 (b) に示す。大気セシウム放射能濃度は、原発事故から約 4 ヶ月後（平成 23 年 7 月時点）の測定値と比べると 1~2 桁低い値を示した。観測された大気セシウム放射能濃度（24 時間分解能）は、概ね 0.0001~0.003 Bq/m³ の範囲で変動していた。

図 I-2 に、季節毎の大気セシウム放射能濃度と摩擦速度との関係を示した。平成 24 年度の調査において、川俣町山木屋地区では、摩擦速度の増加に伴い大気セシウム放射能濃度が増加する関係があったが、浪江町津島地区での観測では摩擦速度との関係（風速に伴う大気セシウム放射能濃度の変動傾向）が季節によって異なっていた。

冬期（1-2 月）及び春期（3-5 月）には、しばしば日平均摩擦速度が小さいときにもやや高い大気セシウム放射能濃度が観測される日があることを除けば（図 I-2 に白抜きで示した）、データ点のばらつきが大きいものの、摩擦速度が大きいときに比較的高い大気セシウム放射能濃度が観察されたが、夏期にはむしろ逆の傾向が認められた。

図 I-3 に示すように、春期（3-5 月）及び夏期（6-8 月）では、土壤水分が 0.15 m³/m³ 程度と非常に土壤が乾燥している時に大気セシウム放射能濃度が増大する日が確認されたものの、土壤水分（土壤体積含水率）と大気セシウム放射能濃度には相関は見られなかった（相関係数は 3-5 月で 0.16、6-8 月で 0.11）。

大気セシウム放射能濃度が時折 0.005 Bq/m³ 以上と他の時期の変動範囲を超えて急増した日があるが、その期間では、必ずしも摩擦速度の増大は確認されなかった。

図 I-4 は、浪江高校津島校及び津島中学校のグラウンドで測定された大気セシウム放射能濃度と降水等によるセシウム 137 沈着フラックスの時間変化を示したものである。一日あたりのセシウム 137 沈着フラックスは、浪江町下津島における土壤における沈着量（第 3 次航空機モニタリング）の 10⁻³~10⁻⁵ %程度であった。この 2 地点間の距離は 700 m 程度と近いが、津島中学校は平成 24 年 1 月に校舎及びグラウンドが除染されているため、地表に存在する放射性セシウム量は浪江高校津島校に比べ有意に少なく、モニタリングポストで測定された空間線量率も平成 25 年 4 月から 10 月の平均値が 1.8 μSv/h と浪江高校津島校の 8.4 μSv/h の 1/5 程度である。冬期から春期（12 月~5 月）にかけては、津島中学校での大気セシウム放射能濃度測定値は、浪江高校津島校と比べ空間線量率と同様に大きな違いがあったが、6 月以降の夏期では両地点の差は小さくなっている。

図 I-5 (左) は両地点での大気セシウム放射能濃度の測定値を比較したものである。冬から春にかけての時期では、ばらつきがあるものの、両地点での濃度の違いは 3~5 倍程度と空間線量率の違いとほぼ一致した。これは平成 24 年度の調査における川俣町山木屋地区での大気セシウム放射能濃度が土壤の放射性セシウム濃度を反映しているとの結果と同様である。それに対し、6 月以降では両地点での違いが 1.5 倍程度と小さくなり、また比例していた（相関係数は 0.95）。

図 I-5 (右) に示すように、両地点でのセシウム 137 沈着フラックスは、冬期から春期（12 月~5 月）にかけてはばらつきが大きく、一方、6 月以降ではばらつきは小さくなった。

また、電子顕微鏡観察（図 I-6 及び図 I-7）により、冬から春の時期に飛散している粗大粒子の多くが土壤粒子であった。一方、6 月以降の夏期では、電子顕微鏡観察によると、鉬物以外の粒子が含まれており（図 I-8）、図 I-1 (b) に示すように PM10 が増加しており、粒径が 1-10 μm 程度の粒子が主に放射性セシウムの担体となっていた（図 I-9 及び図 I

-10)、。森林からの粒子の移流を評価するため、川俣町山木屋地区の(上)スギ若齢林及び(下)広葉樹混合林の樹冠部及び林床部における大気セシウム 137 放射能濃度の変動を図 I-11 に示す。6 月～10 月にかけては林床部における放射能濃度が樹冠部より系統的に大きくなっていた。

(2) 農作業に伴う放射性セシウム再飛散量測定

福島県農業総合センターの水田圃場及び畑圃場（土壌の放射性セシウム濃度は 1.2～1.6 kBq/kg）内において、さまざまな農作業が実施されていた平成 25 年 4 月から 10 月にかけて連続的に観測した大気セシウム放射能濃度の時間変化を図 I-12 に示す。畑地圃場において大気セシウム放射能濃度が増大する期間があるが、その他の期間では水田圃場と畑圃場での差は小さい。農地と市街地を比較するため、同じ郡山市にある日本大学郡山キャンパスでの測定値と比較すると、上記の畑地圃場で増大が観測された期間を除けば、大気セシウム放射能濃度の変動範囲及びその傾向は類似していた。

水田圃場及び畑地圃場での定点観測の他に、耕起、播種、田植、稲刈り、大豆の収穫などの作業時に、トラクターやコンバインなどの作業車から 3～5 m 離れた地点で大気エアロゾルを吸引捕集し、放射性セシウムを測定した。この時に採取したエアロゾル試料からは 0.01～0.005 Bq/m³と、図 I-12 に示す周囲の濃度に比べ有意に高い濃度の放射性セシウムが検出されており、農作業中に作業を行っている近傍においては放射性セシウムの再飛散が起こっていることが示された。また、農作業が行われている地点より数十 m から数百 m 程度離れた地点では大気セシウム放射能濃度への影響がほとんどなかった。

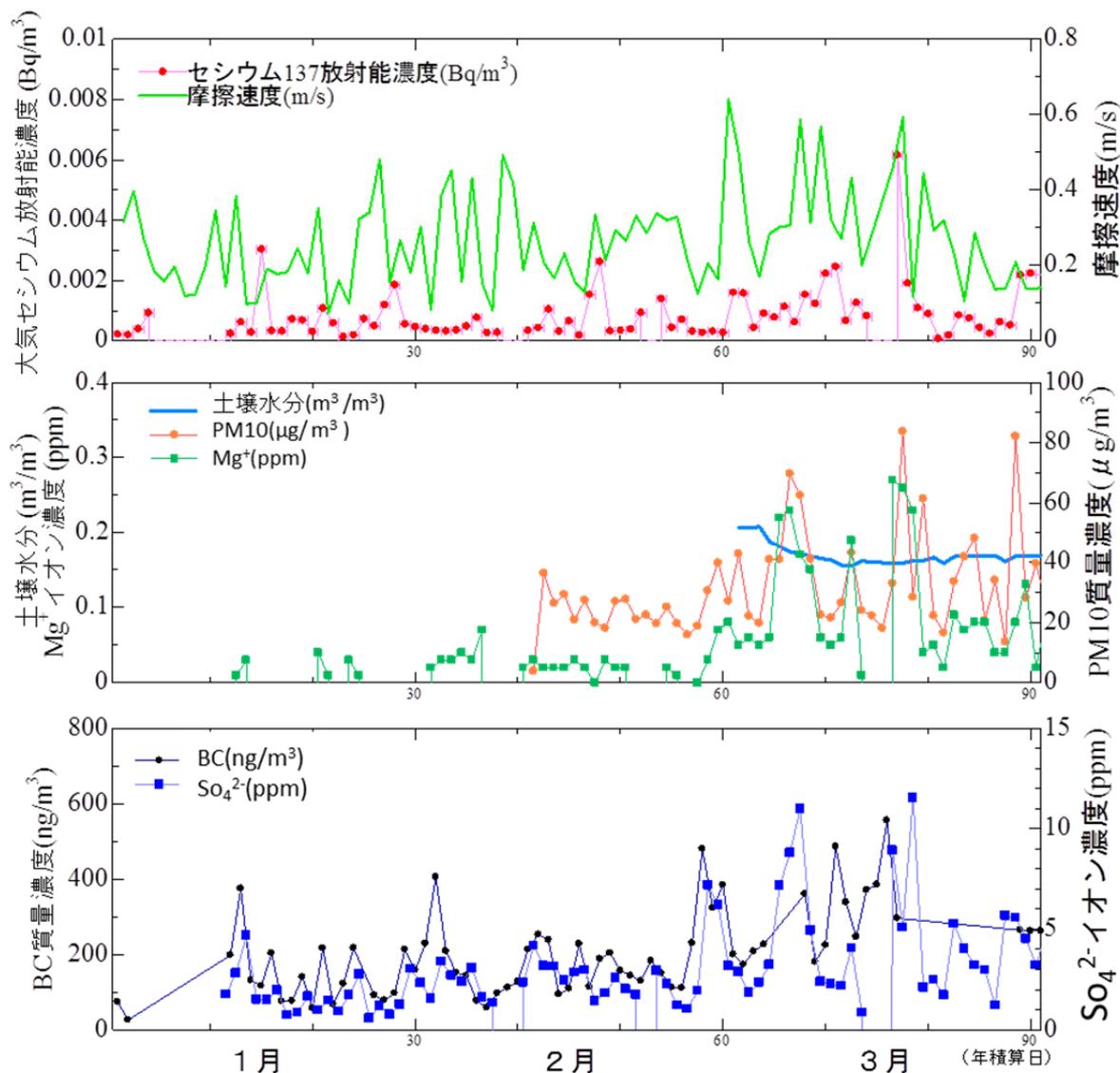


図 I-1(a) 平成 25 年 1 月～3 月に浪江町津島地区（浪江高校津島校）で観測された
 (上段)セシウム 137 による大気セシウム放射能濃度と摩擦速度
 (中段)土壌水分及び PM10 とエアロゾル Mg^+ 濃度
 (下段)黒色炭素エアロゾル(BC)濃度及び SO_4^{2-} イオン濃度
 の経時変化

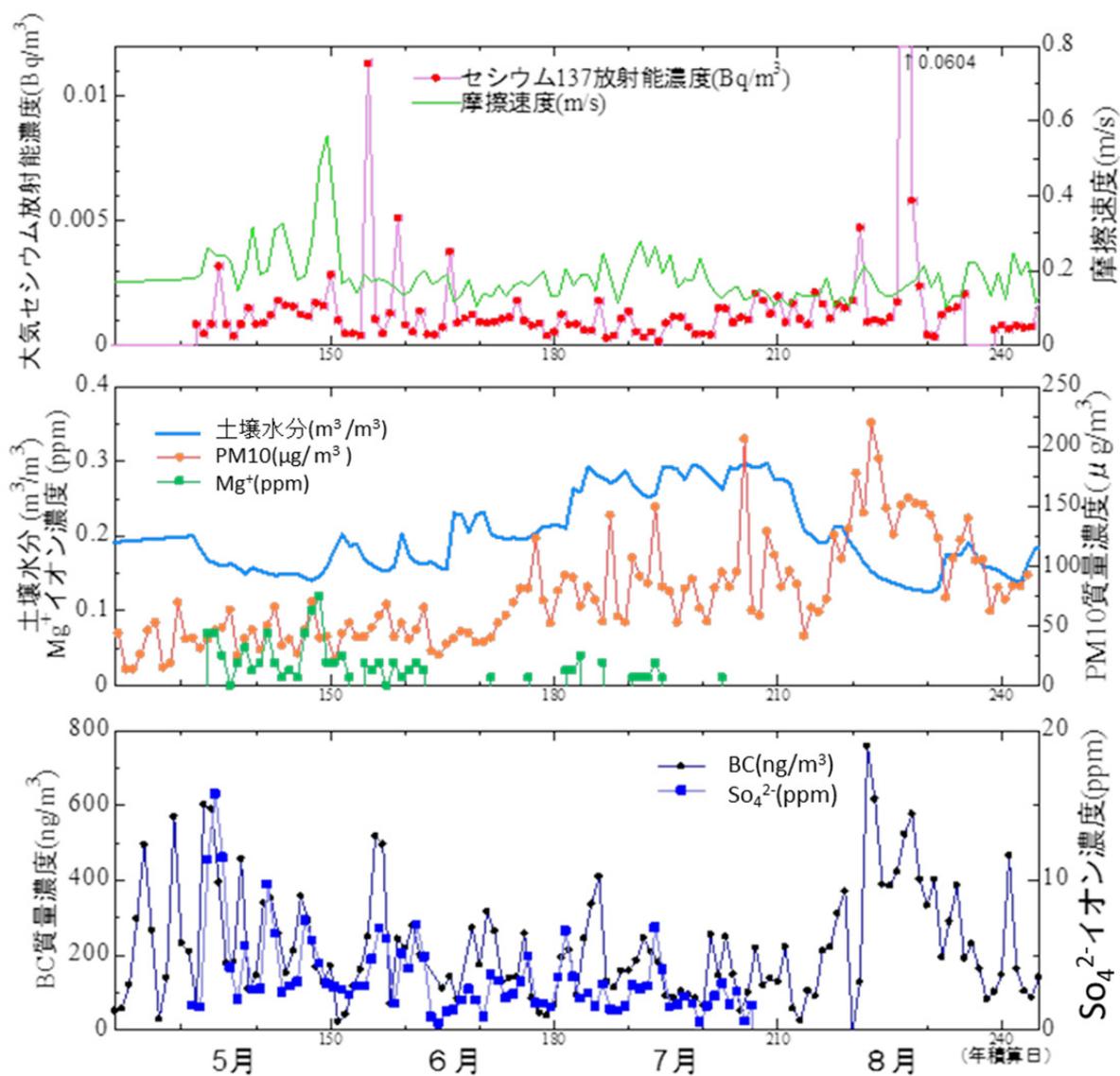


図 I-1 (b) 平成 25 年 5 月～8 月に浪江町津島地区(浪江高校津島校)で観測された
 (上段)セシウム 137 による大気セシウム放射能濃度と摩擦速度
 (中段)土壌水分及び PM10 とエアロゾル Mg⁺濃度
 (下段)黒色炭素エアロゾル(BC)濃度及び SO₄²⁻イオン濃度
 の経時変化

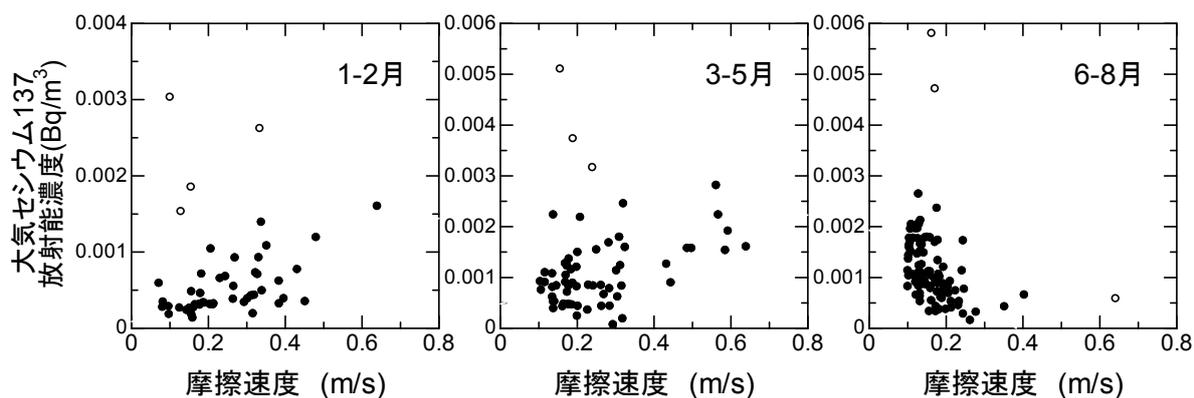


図 I-2 浪江町津島地区(浪江高校津島校)で観測されたセシウム 137 による
大気セシウム放射能濃度と摩擦速度との関係
((左)平成 25 年 1-2 月、(中)3-5 月、(右)6-8 月)

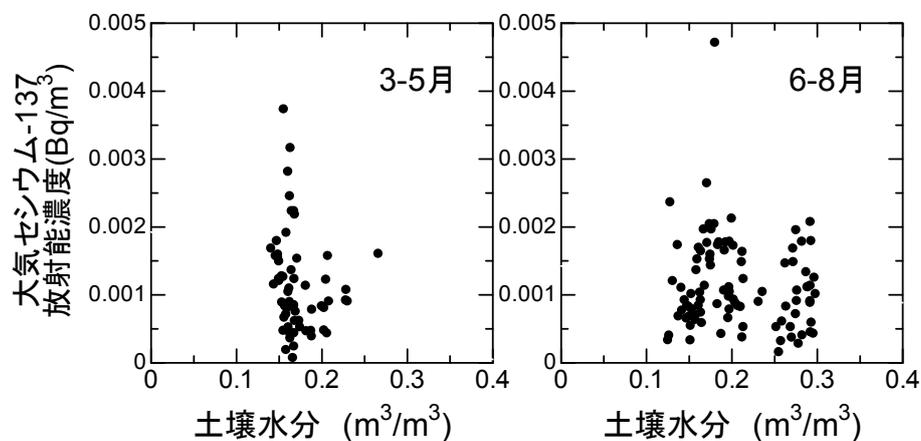


図 I-3 浪江町津島地区(学校グラウンド)で観測されたセシウム 137 による
大気セシウム放射能濃度と土壌水分(体積含水率)との関係
((左)平成 25 年 3-5 月及び(右)6-8 月)

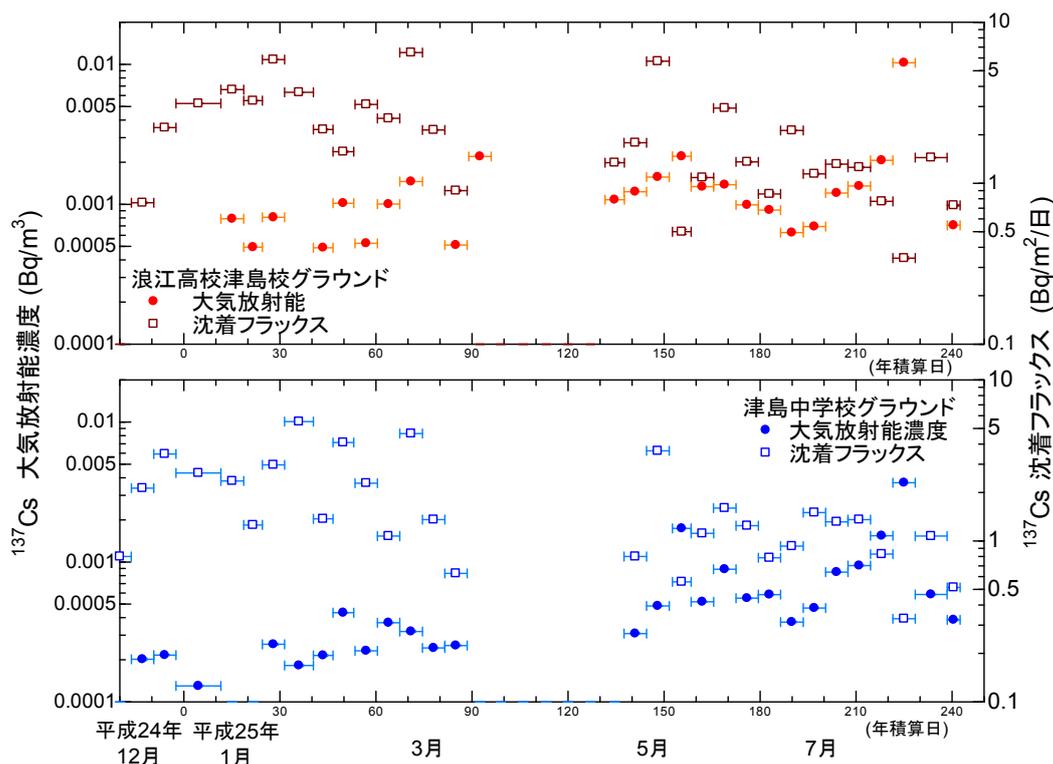


図 I-4 (上) 浪江高校津島校のグラウンド及び(下)津島中学校のグラウンドで観測された大気中の放射性セシウムによる1週間平均放射能濃度及び沈着フラックスの時間変化

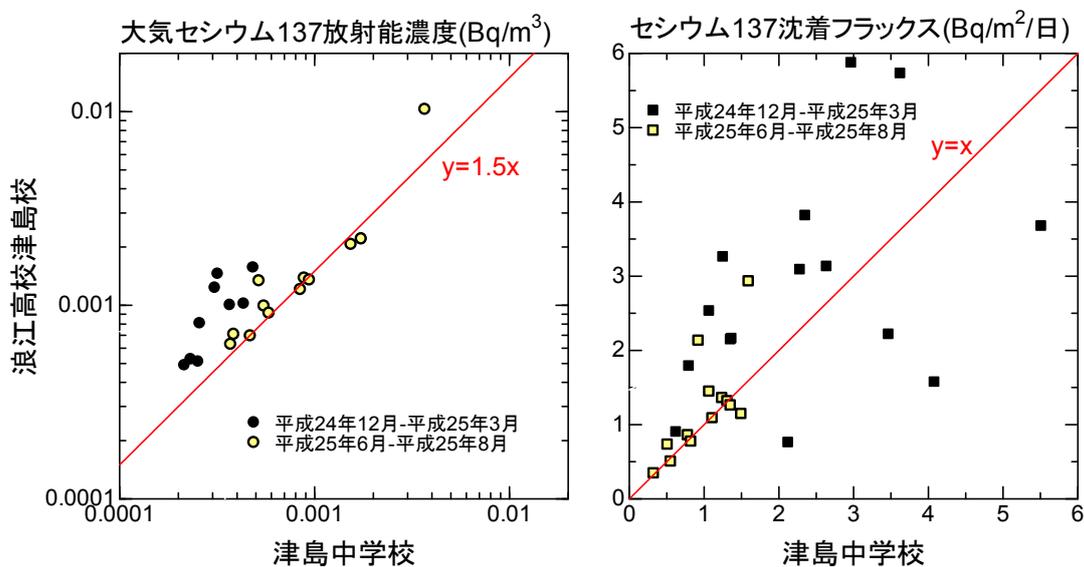


図 I-5 浪江高校津島校のグラウンドと津島中学校のグラウンドで観測された(左)セシウム 137 大気セシウム放射能濃度及び(右)セシウム 137 沈着フラックスの比較

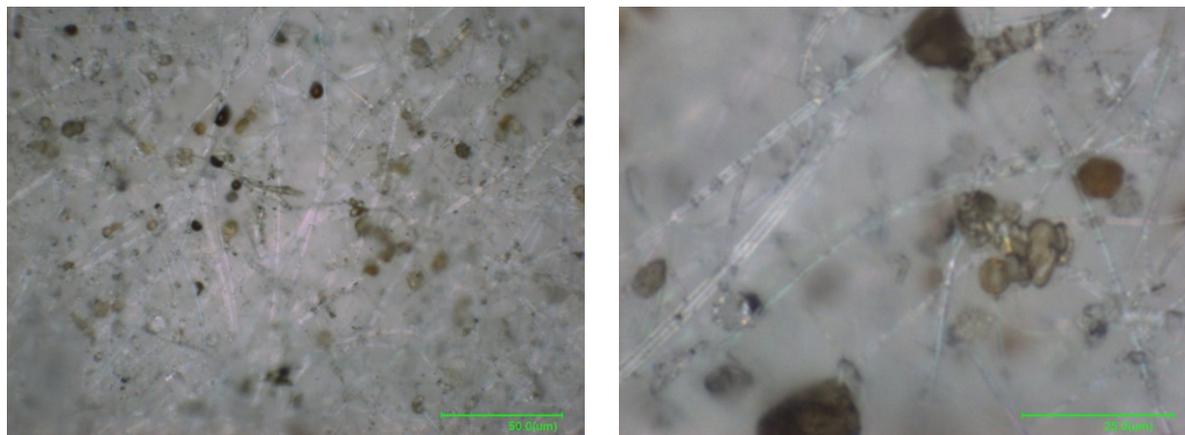


図 I-6 浪江高校津島校グラウンドにおいて平成 25 年 9 月 26 日～10 月 6 日に石英フィルタ上にサンプリングされた粒子の顕微鏡写真

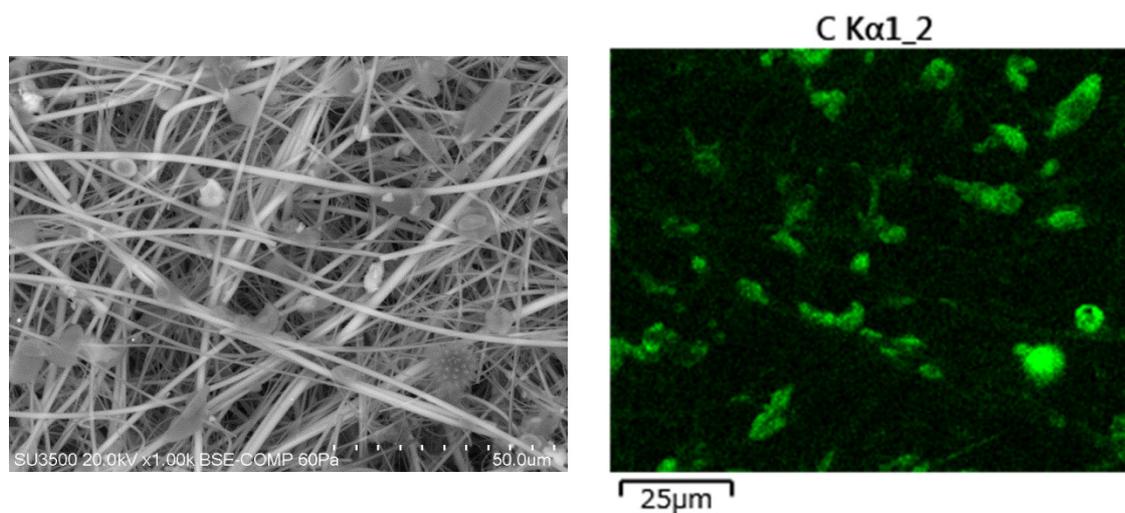


図 I-7 浪江高校津島校グラウンドにおいて平成 25 年 9 月 26 日～10 月 6 日に石英フィルタ上にサンプリングされた粒子の
(左) 電子顕微鏡写真及び(右) 特性 X 線分析による炭素原子分布画像

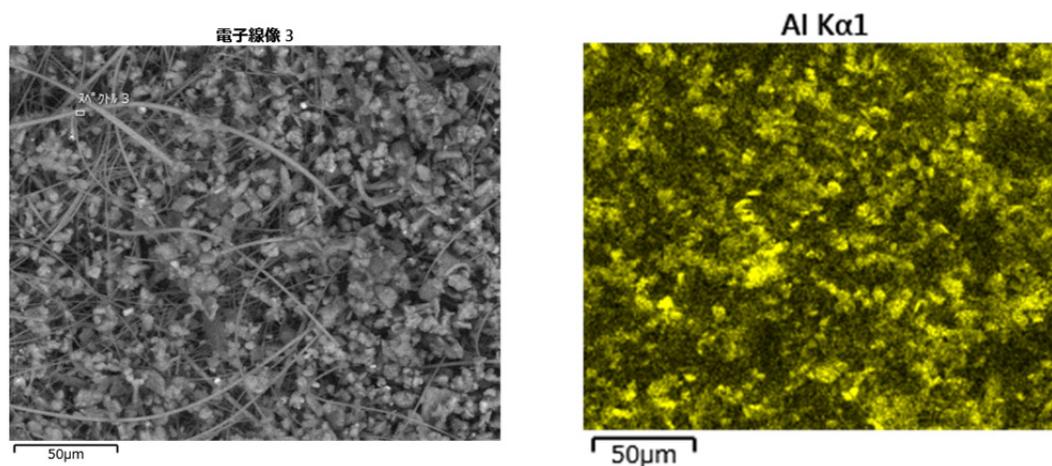


図 I-8 浪江高校津島校グラウンドにおいて平成 25 年 3 月 8 日～3 月 22 日に石英フィルタ上にサンプリングされた粒径 $4\sim 10\mu\text{m}$ の粒子の
(左) 電子顕微鏡写真及び(右) 特性 X 線分析による Al 原子分布画像

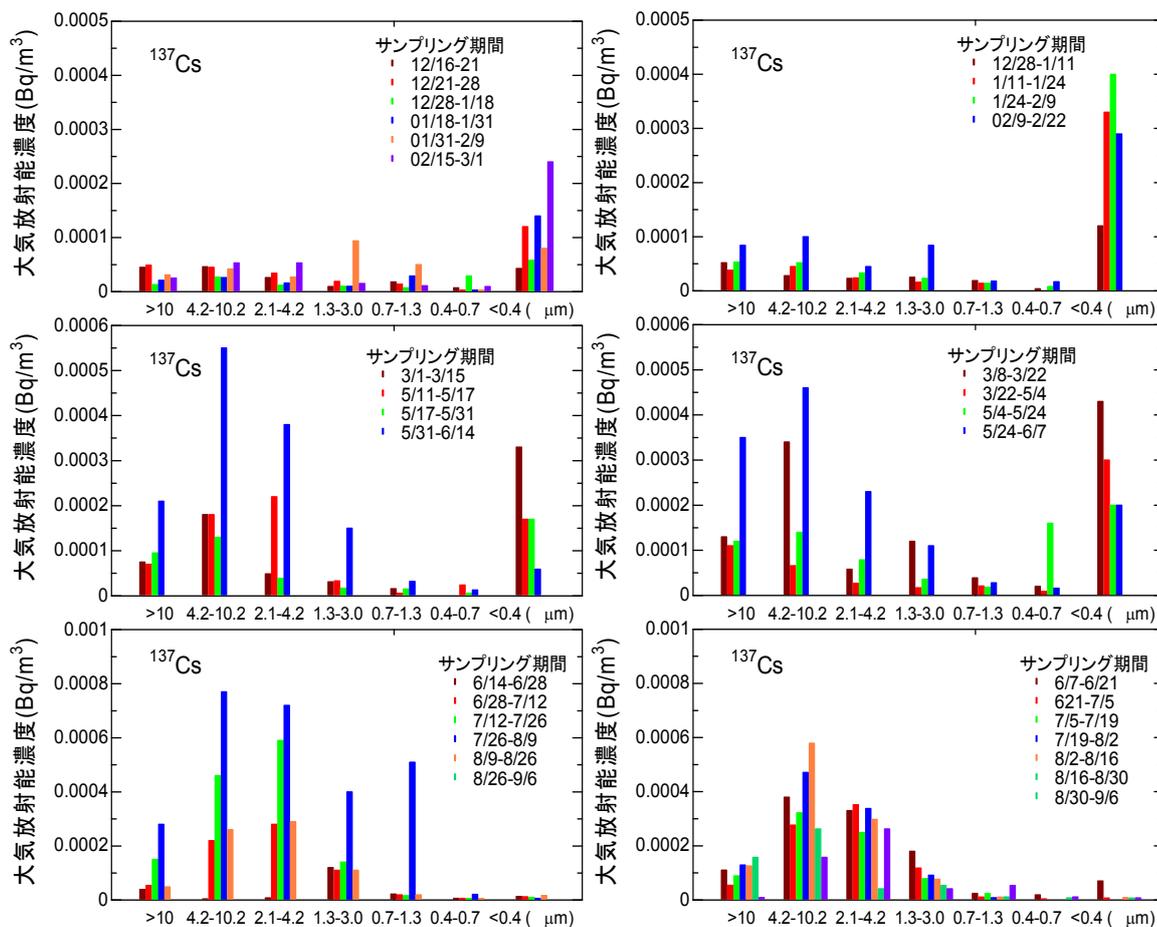


図 I-9 浪江高校津島校グラウンド中央におけるエアロゾル粒径別大気セシウム¹³⁷の放射能濃度。(上) 冬期(12~2月)、(中) 春期(3月~6月上旬) 及び (下) 夏季(6月後半~9月上旬)

図 I-10 浪江高校津島校林縁における粒径別エアロゾル中のセシウム¹³⁷濃度。(上) 冬期(12~2月)、(中) 春期(3月~6月上旬) 及び (下) 夏季(6月後半~9月上旬)

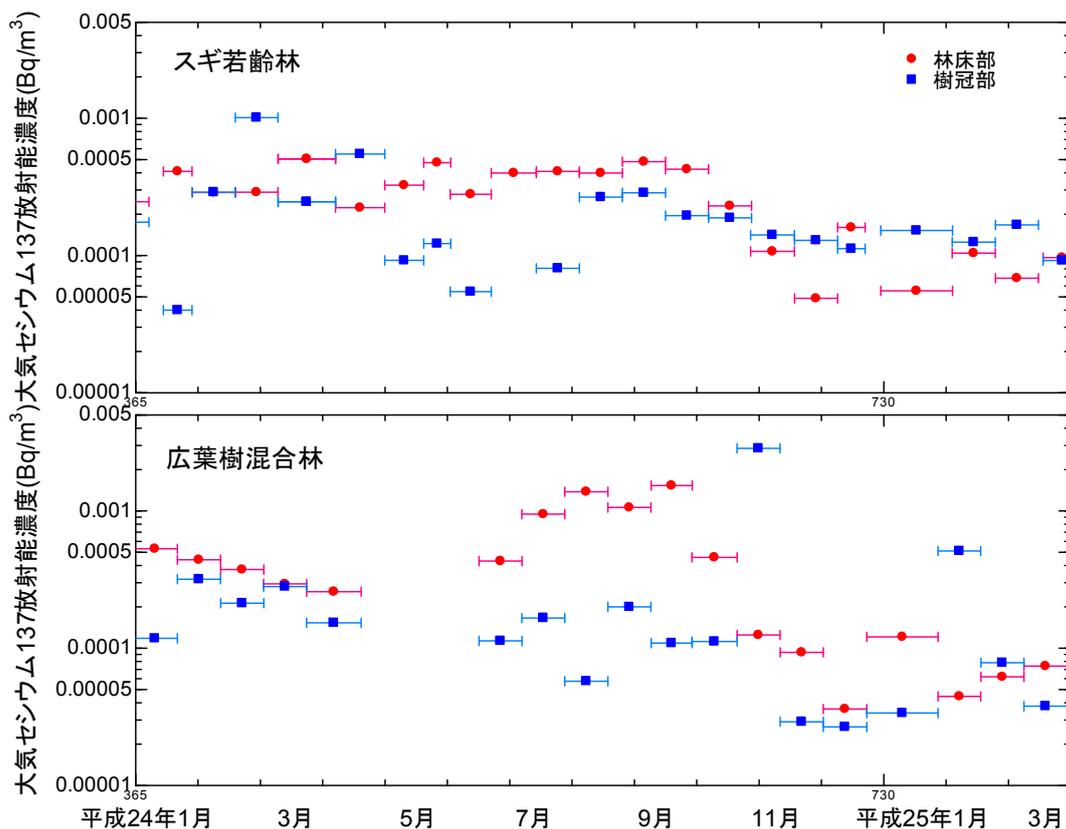


図 I-11 川俣町山木屋地区の(上)スギ若齢林及び(下)広葉樹混合林の樹冠部及び林床部におけるセシウム 137 による大気セシウム放射能濃度

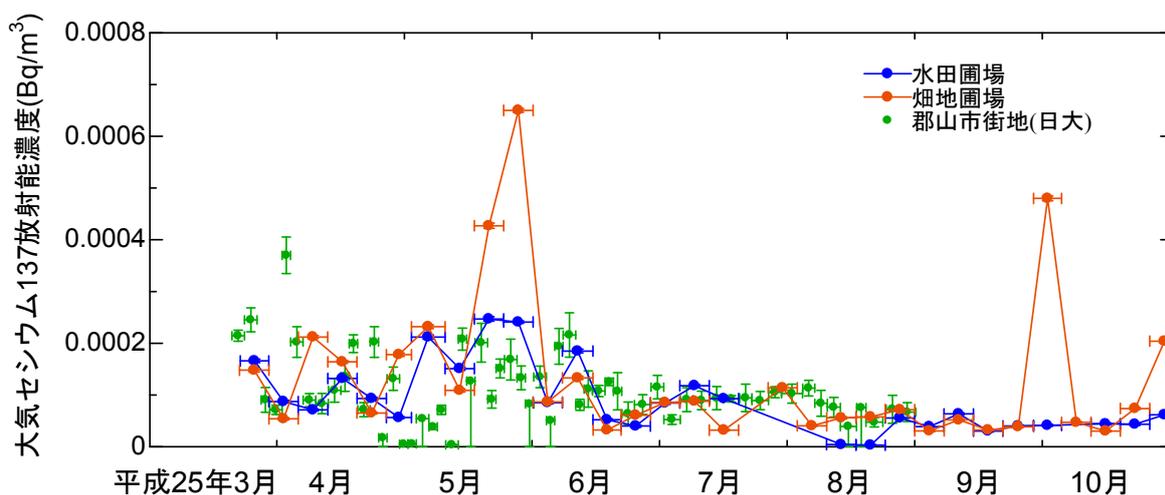


図 I-12 福島県農業総合センターの水田及び畑地圃場におけるセシウム 137 による大気セシウム放射能濃度の経時変化 (郡山市街地(日本大学郡山キャンパス)で観測された値と比較してある)

Ⅱ. 大気中の放射性核種存在形態の解析と地表及び植生からの再飛散プロセスの調査

吉田 尚弘（東京工業大学）

北 和之（茨城大学）

恩田 裕一（筑波大学）

1. 調査目的

福島第一原発事故により放出され、大気を通じて自然環境中に拡散した放射性セシウムは、陸域では土壌や森林に沈着した。この沈着した放射性セシウムの大気を通じた移行を評価するためには、気象など種々の条件変化に伴う変動も含めた再飛散/沈着フラックスの定量化が必要である。そのためにはまず飛散プロセスや担体となる大気粒子の理解を行うことが重要である。

そこで、再飛散過程の理解に役立てることを目的として、福島県伊達郡川俣町山木屋地区及び福島県双葉郡浪江町津島地区において、大気セシウム放射能濃度（単位体積あたりの放射能）の詳細調査を実施した。

放射性セシウムを大気中で輸送する担体となるエアロゾルを明確にするため、粒径別エアロゾル試料について、含まれる放射性セシウムの経時変化とその特徴を調べるとともに、試料中の海塩や大気汚染起源の無機成分及び植物表面由来のワックス成分など有機成分の定量分析を行うことで、森林など植生からの再飛散プロセスとその寄与について検討する。

2. 調査内容

本調査では、川俣町山木屋地区のスギ若齢林と広葉樹混合林、浪江町津島地区の浪江高校津島校グラウンドと広葉樹林林縁において、大気中の放射性セシウムの存在形態と再飛散プロセスの調査を行った。

本報告では、有機成分分析と林床の粒径別放射能濃度の測定結果を示す。

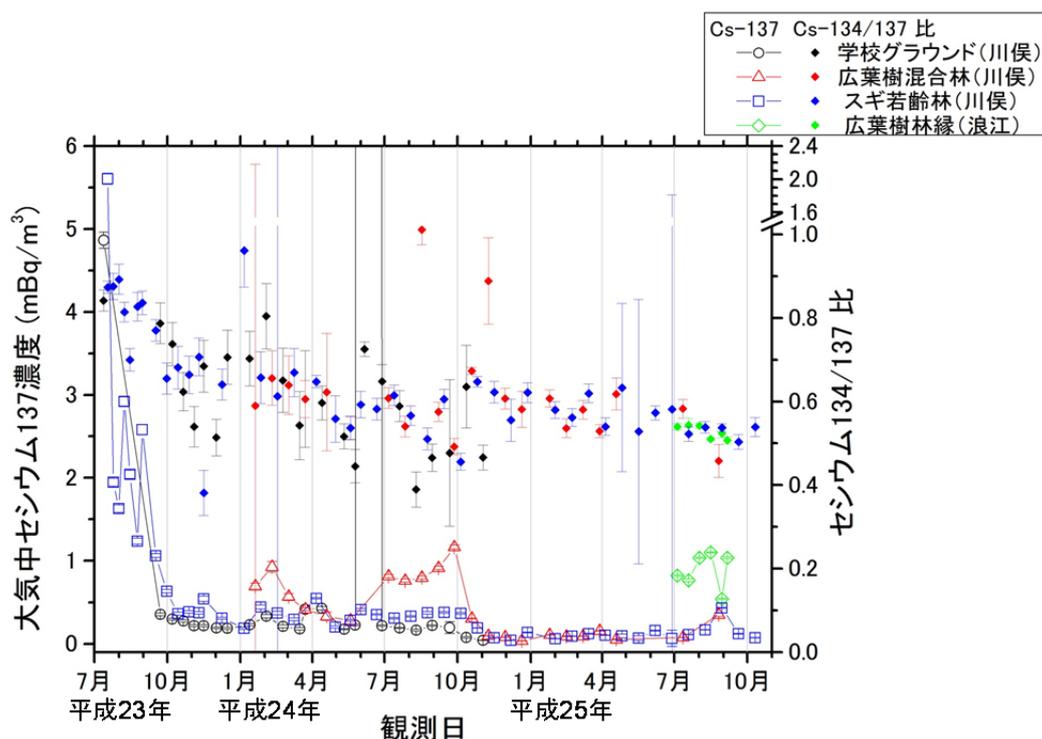
3. 結果と考察

図Ⅱ-1に川俣町山木屋地区のスギ若齢林と広葉樹混合林、浪江町津島地区の広葉樹林林縁における大気中セシウム 137 濃度及びセシウム 134 とセシウム 137 の比の経時変化を示す。比較のため、平成 24 年度末まで行った川俣町山木屋地区の学校グラウンドにおける結果も示してある。平成 25 年度の調査では、9 月に川俣町山木屋地区の調査地点で若干高い濃度が見られた期間があったが、それ以外は約 0.1 mBq/m^3 の低いレベルで推移した。

図Ⅱ-2 及び図Ⅱ-3 には、それぞれ川俣町山木屋地区のスギ若齢林及び広葉樹林における大気中セシウム 137 濃度の粒径分布を観測日毎に示した。いずれの調査地点においても、 $4.2 \sim 10.2 \mu\text{m}$ の粒径におけるセシウム 137 濃度が相対的に大きい傾向がみられた。季節別に見ると、12～5 月に粒径 $0.39 \mu\text{m}$ 以下の微小粒子、7～8 月に $2.1 \sim 4.2 \mu\text{m}$ の粒子で放射能濃度が高い傾向がみられた。

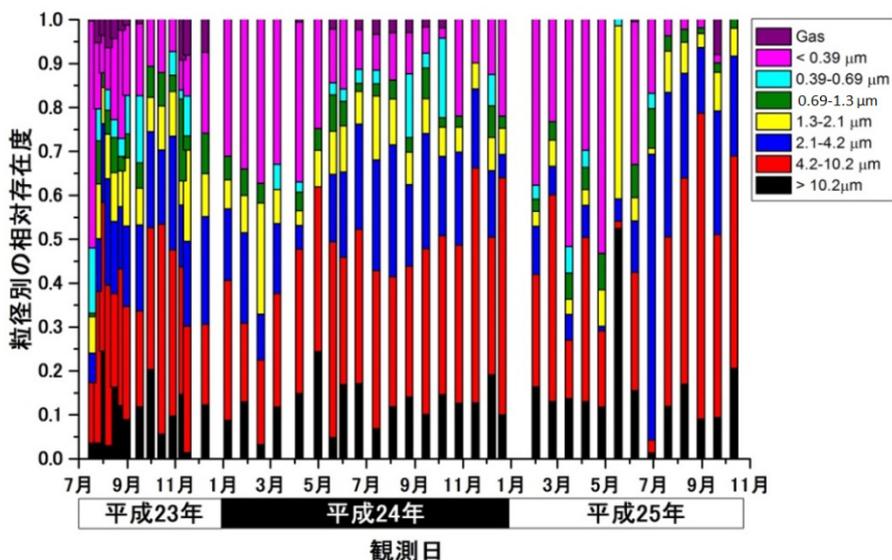
図Ⅱ-4 は、浪江高校津島校グラウンドで平成 25 年 3 月及び 8 月に採取されたエアロゾル試料中の炭化水素を測定したクロマトグラムである。石油燃焼由来と考えられる炭素数 26 を頂点とする炭素数 22 から炭素数 34 の炭化水素及び植物ワックス由来と考えられる炭素数 29 を頂点とする炭素数 21 から炭素数 34 の炭化水素の存在が確認できた。8 月の試料では、3 月の試料に比べて植物ワックス由来の有機物の割合が相対的に多かったが、大気

中放射性セシウム濃度とこれら炭化水素濃度との間に明確な相関関係は認められなかった。



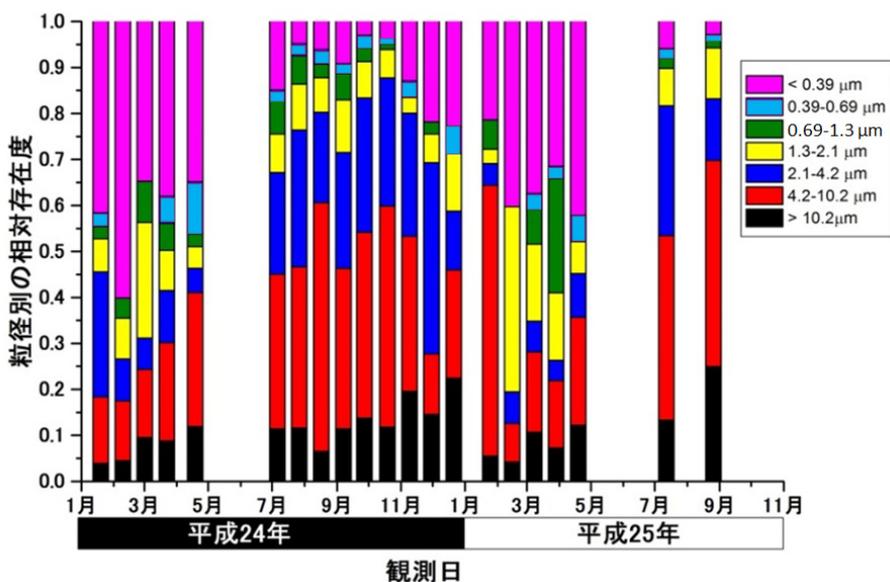
図Ⅱ-1 川俣町山木屋地区（学校グラウンド、広葉樹混合林、スギ若齢林）と浪江町津島地区（広葉樹林縁）における大気中セシウム 137 濃度及びセシウム 134 とセシウム 137 の比の経時変化

（試料は以下の図に示すように粒径別に採取したが、各粒径における濃度の総和について示した。なお、川俣町山木屋地区の学校グラウンドについては平成 24 年度の分布状況等調査までの調査結果を示してある。）

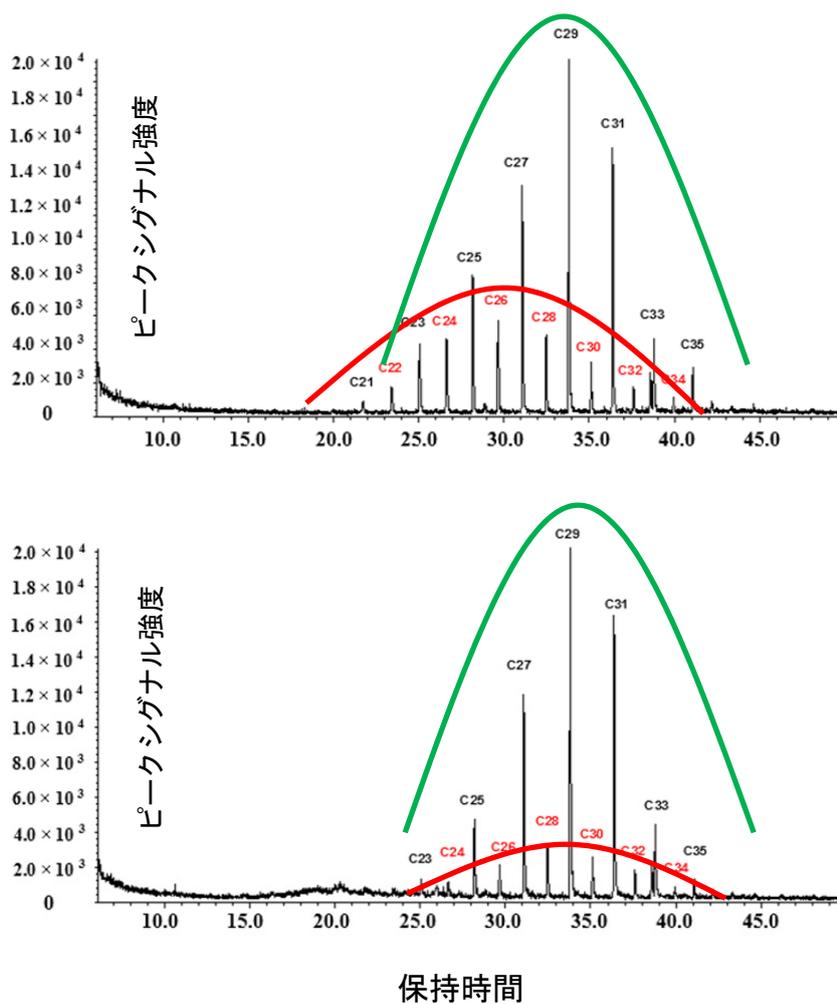


図Ⅱ-2 川俣町山木屋地区のスギ若齢林における大気中セシウム 137 濃度の
粒径分布の経日変化

(凡例に示した各粒径 (単位は μm) ごとに測定された濃度を、総濃度 (図Ⅱ-1) で除した
値を示してある)



図Ⅱ-3 川俣町山木屋地区の広葉樹林における大気中セシウム 137 濃度の
粒径分布の経日変化



図Ⅱ-4 浪江高校津島校グラウンドにおいてサンプリングされたエアロゾル試料中の炭化水素を測定したGC-MSクロマトグラムの一例

(上図は3月の試料、下図は8月の試料。石油燃焼由来と考えられる炭化水素の炭素数範囲を赤で、植物ワックス由来と考えられる炭化水素の炭素数範囲を緑で示した。)

Ⅲ. スギ樹体内での放射性セシウムの移行

竹中 千里（名古屋大学）

1. 背景と調査目的

平成 24 年度の調査から、森林内に沈着した放射性セシウムの一部は、スギの新葉や雄花、花粉に移行し、平成 24 年度におけるスギ雄花の放射性セシウム濃度は平成 23 年度と比較して減少しており、福島第一原発事故直後に取り込まれた放射性セシウムの雄花への輸送量は減少しつつあった。また、平成 24 年度におけるスギ雄花と花粉における放射性セシウム濃度に大きな違いが無いことも明らかになった。

本調査では、スギ樹体内での放射性セシウムの転流を評価するために、福島県における平成 25 年度に生産されたスギ雄花及び花粉に含まれる放射性セシウム濃度を継続調査し、平成 24 年度の結果と比較した。

2. 調査内容

福島県内におけるスギ雄花及び花粉の採取方法は以下の通りである。

(1) 採取地

平成 25 年 12 月上旬から中旬に福島県内 70 地点にてスギ葉を採取した（図Ⅲ-1）。採取地点は平成 24 年 12 月に採取した地点（80 地点）とできる限り同じ場所を選んだが、平成 25 年度には雄花が生産されていない地点、積雪または区域再編のため通行規制され、採取地点に到達できない地点があったため、平成 24 年度と 25 年度の比較は 66 地点について行った。また、新規採取地を 4 つ設けた。

(2) 採取方法

各採取地点にてスギ生立木 3 個体を選び、1 個体につき雄花が十分に生産されている葉付きの枝 1 本をサンプルとして採取した。採取時にはサンプルに土壌が付着しないよう留意し、腐植が比較的早い枯れた部分を取り除いた後、ビニール袋に封入した。

(3) スギ雄花及び花粉の処理方法及び測定方法

- ① 室内にて葉と雄花を分離し、水道水にて付着物を洗い流した後、蒸留水ですすぎ、80°Cで 48 時間乾燥させた。その後、重量を測定し、高純度ゲルマニウム半導体検出器（SEIKO EG&G CO., LTD.）を用いたガンマ線スペクトロメトリーにてセシウム 137 を測定し、その濃度（Bq/kg；乾燥重量）を算出した。測定は、セシウム 137 の測定誤差が 5%以下になるまで行った。
- ② 雄花のセシウム 137 濃度を測定後、雄花から花粉を採取し、花粉に含まれるセシウム 137 濃度（Bq/kg）を①と同様に測定した。花粉の採集方法は以下の通りである。まず、花粉が室内に飛散しないように、グローブボックス内にてスギ雄花を切断して葯を採集した。その葯を粉碎すると花粉が解放されるため、目合 79 μm のポリエステルネットを漏斗に固定し、粉碎した葯ごと花粉を入れ、花粉を抽出した。

3. 結果と考察

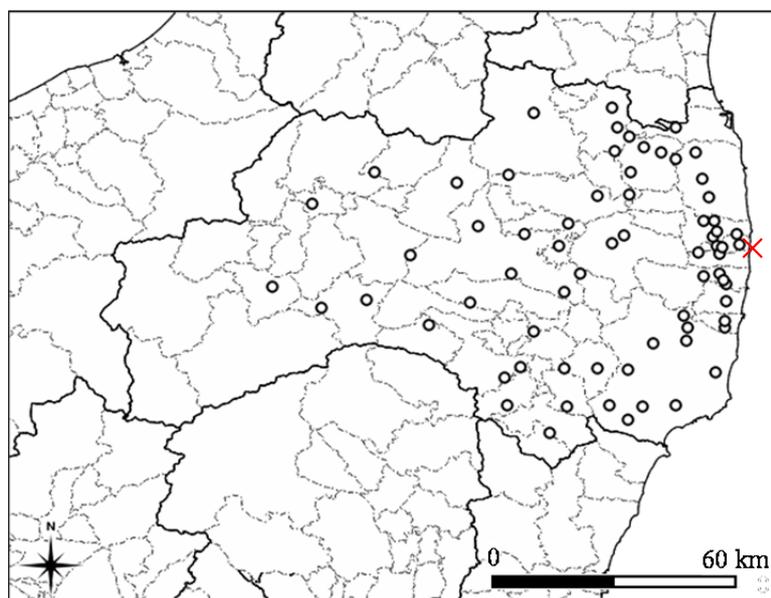
濃度が検出限界値未満の地点を除き、雄花 34 地点、花粉 21 地点について平成 24 年度の結果と比較した。

平成 25 年度のスギ雄花に含まれるセシウム 137 濃度は、福島第一原発から北西方向に比較的高濃度な地点が集中したが、平成 24 年度と比較して大きく減少する傾向を示した（図Ⅲ-2）。平成 24 年度の調査では 5 地点で 10 Bq/g 以上の高濃度を示したが、平成 25 年度では、そのすべてにおいて 9 Bq/g 未満、最も低い地点では 0.066 Bq/g まで減少した。新規に設けた採取地点の中では、20 Bq/g を越える地点が 1 つ存在した。

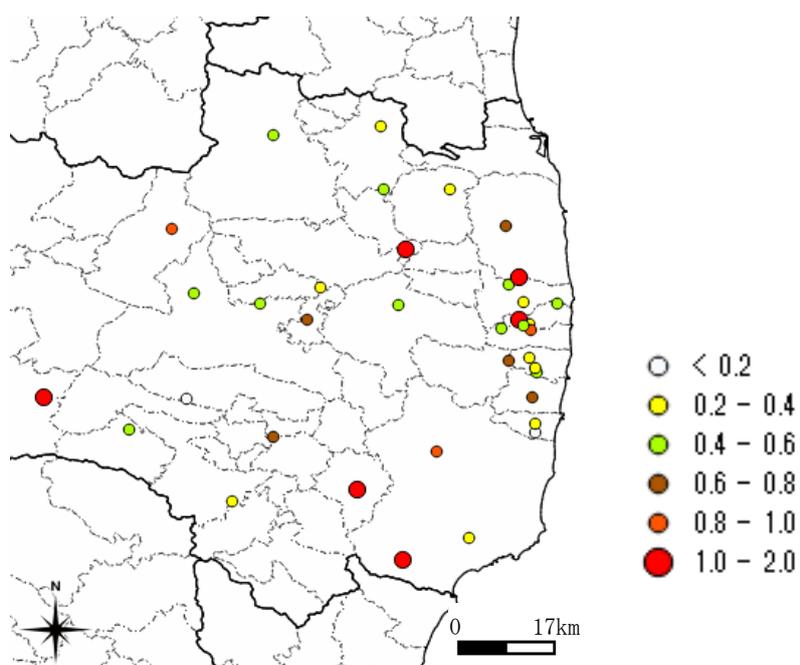
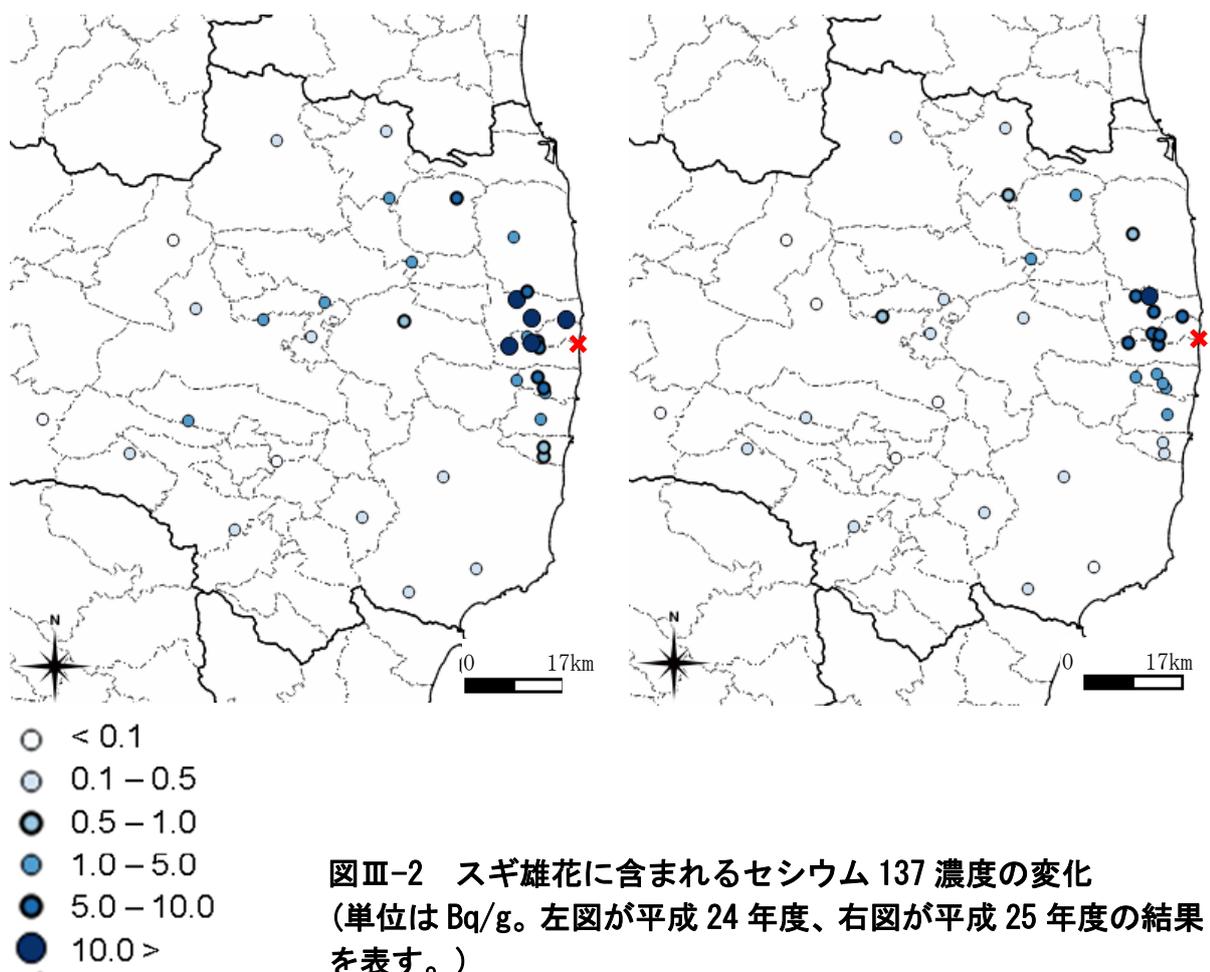
平成 24 年度におけるスギ雄花のセシウム 137 濃度が 10 Bq/g 未満の地点でも、平成 25 年度では、ほとんどの採取地点で濃度の減少が見られた。平成 24 年度のスギ雄花のセシウム 137 濃度に対する平成 25 年度の濃度比を図Ⅲ-3 に示す。多くの地点において、前年比で 6 割以下の濃度に減少し、福島第一原発近くでも前年比 4 割以下の濃度まで減少している地点が確認された。

次に、各地点における平成 25 年度に生産されたスギ花粉のセシウム 137 濃度をを比較のため、平成 24 年度の結果とあわせて図Ⅲ-4 に示す。花粉のセシウム 137 濃度は、図Ⅲ-2 の雄花の濃度と比較して大きな違いは認められなかった。また、平成 24 年度の花粉に含まれるセシウム 137 濃度と比較した結果、雄花における変化とほぼ同じであり、平成 25 年度で全体的に大きく減少した。

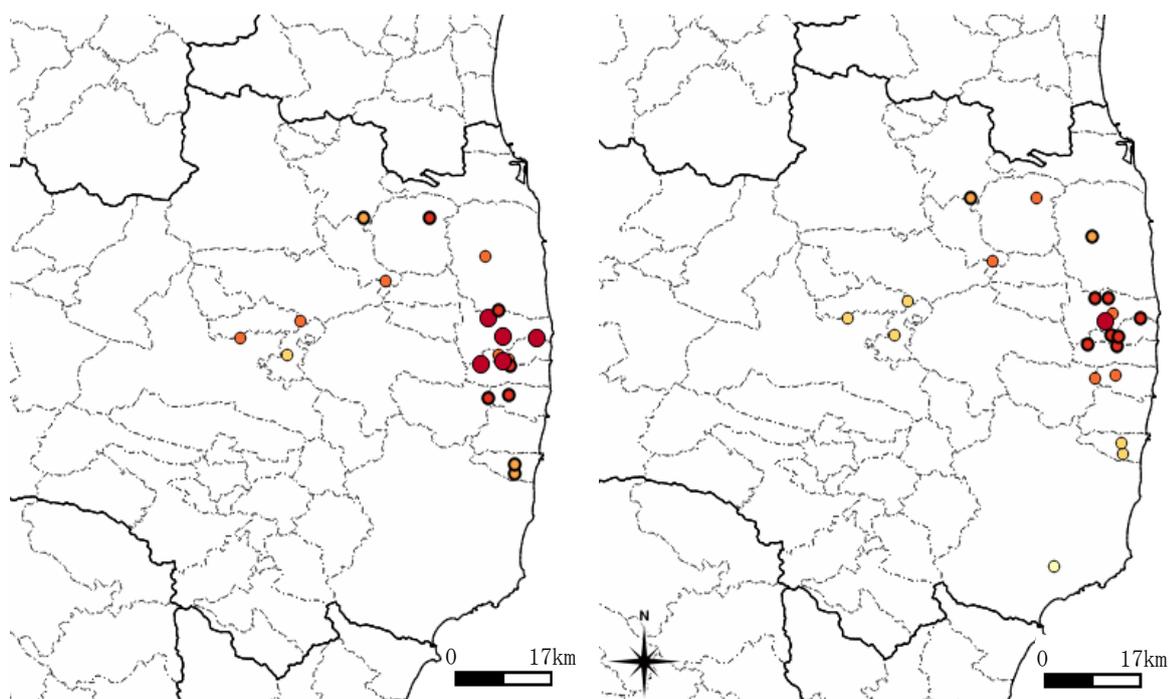
雄花、花粉とも、平成 24 年より濃度が 1.2~1.6 倍高くなった地点が 4 地点あったが、隣接する地点では大きく濃度が減少していることから、個体差等のばらつきによるものと考えられる。



図Ⅲ-1 平成 25 年度のスギ採取地点
(図中の×は福島第一原子力発電所を指す。)



図Ⅲ-3 平成 24 年度に対する平成 25 年度のスギ雄花に含まれるセシウム 137 濃度比



- < 0.1
- 0.1 - 0.5
- 0.5 - 1.0
- 1.0 - 5.0
- 5.0 - 10.0
- 10.0 >

図Ⅲ-4 スギ花粉に含まれるセシウム 137 濃度の変化
 (単位は Bq/g。左図が平成 24 年度、右図が平成 25 年度
 の結果を表す。)