

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

福島第一原発の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する。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、平成24年12月、平成25年6月及び平成25年11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 測定のための基礎データ、②外部被ばく線量の評価に際して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。

2. 調査内容

(1) 土壌採取期間

平成26年7月14日～24日（以下「前期調査」という。）

平成26年11月4日～11月13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85箇所（詳細は図-1参照）。

（原則的には、平成25年度の土壌採取箇所（5 km×5 kmメッシュ内）の近くの地点）

(3) 調査機関

原子力機構、（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

(4) 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、平成25年度の調査で土壌中への放射性セシウムの移行が著しいことがわかった採取箇所（015S020及び045N030）は、地表面（0 cm）～2.0、2.0～4.0、4.0～6.0、6.0～8.0、8.0～11.0、11.0～14.0、14.0～17.0、17.0～20.0、20.0～25.0 cmに層分割を変更して土壌採取を実施した。また、放射性セシウムの放射能の最大値が地中（覆土以前の土壌）で見られ、除染が実施されたと考えられる採取箇所（055N020）は、地表面（0 cm）～1.0、1.0～2.0、2.0～3.0、3.0～4.0、4.0～5.0、5.0～6.0、6.0～7.0、7.0～8.0、8.0～10.0 cmに層分割を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

¹ 土壌の表層から一定の間隔で土壌を削り取りながら採取できる装置（スクレーパー・プレート）を用いた土壌採取法。土壌採取時のクロス・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、国際原子力機関 IAEA においても標準的な土壌採取法として認められている。

所、(公財)日本分析センター、東京大学に送付し、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。

採取した各層の土壌の重量と土壌試料の定量分析で得られた放射性セシウムの単位重量あたりの放射能(以下「放射能濃度」という。)を土壌採取箇所ごとにまとめ、横軸を放射能濃度(Bq/kg)、縦軸を単位面積あたりの土壌の重量で表される地表面からの深度(以下「重量深度」という。)(g/cm²)とした深度分布の図を作成した(図-2 に典型的な例を示す)。このとき、各層の重量深度は、地表面(0 cm)から土壌を採取した層の中間までの深度として、地表面から直上層までの土壌の重量及び当該層の土壌の重量の半分の重量を用い、また、土壌を採取した面積には、スクレーパー・プレートによる土壌採取で使用した枠の大きさ 15(cm)×30(cm)=450(cm²)を用いて換算した。

放射性セシウムの深度分布は多くの場合、その放射能濃度が重量深度に対して指数関数的に減少すること²が知られているため(図-2 a参照)、重量深度を ζ (g/cm²)、重量深度における放射能濃度を $A_m(\zeta)$ (Bq/kg)とし、下に示す指数関数式³式(1)を用いて重量緩衝深度 β (g/cm²)を解析した。

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

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 は、放射能濃度が地表面の $1/e$ ($\approx 1/2.7$)⁴となる重量深度であり、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、調査で得られた深度分布を基に、最小二乗法で算出した。

指数関数的な放射性セシウムの深度分布からの経時的な変化として、ある深さに放射能濃度のピークを持つ深度分布(図-2 b参照)が、前期調査では 39 箇所、後期調査では 30 箇所(全 85 箇所中)で観測され、事故からの時間経過とともに徐々に増えてきている。このような深度分布に対しては、下に示す双曲線正割関数に基づく近似式⁵式(2)を用いて重量緩衝深度 β (g/cm²)を解析した。

$$A_m(\zeta) = A_{m,0} \cosh(\zeta_0/\beta) \operatorname{sech}\{-(\zeta - \zeta_0)/\beta\} \quad (2)$$

$$\text{※ } \operatorname{sech}(x) = 1/\cosh(x), \cosh(x) = \{\exp(x) + \exp(-x)\}/2$$

ここで、 ζ_0 は放射能濃度が最大となる重量深度(g/cm²)である。 $A_{m,0}$ 、 ζ_0 及び β は、調査で得られた深度分布を基に、反復法アルゴリズムを利用した最小二乗法により算出した。式(2)は、土壌の深部において式(1)と同じ関数形となる特徴を有している。

指数関数的な深度分布の場合は、式(1)が 2 パラメータ($A_{m,0}$ 及び β)で構成されており、そのうちの重量緩衝深度 β を与えることで深度分布の形状を特定することができるため、

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。

⁵ Norihiro Matsuda, Satoshi Mikami, Susumu Shimoura, Junko Takahashi, Masakazu Nakano, Kiyotaka Shimada, Kiichiro Uno, Shigetomo Hagiwara, Kimiaki Saito, "Depth profiles of radioactive cesium in soil using a scraper plate over a wide area surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan," Journal of Environmental Radioactivity, 139, pp. 427-434 (2015).

insitu 測定⁶ によって、土壌に沈着した放射性セシウムの単位面積あたりの放射能（以下「沈着量」という。）(Bq/cm²)を定量することができる。しかし、ある深さに放射能濃度のピークを持つ深度分布の場合には、式(2)が3パラメータ ($A_{m,0}$ 、 ζ_0 及び β)で構成されているため、 β を与えるだけでは深度分布の形状を特定することができない。したがって、このような深度分布については、指数関数相当の緩衝深度（以下「実効的な重量緩衝深度 β_{eff} 」という。）を評価しておくことが解析上便利である。そのために、式(2)で解析した深度分布の沈着量と空間線量率の関係が指数関数的な深度分布のそれと同等になるよう、斎藤らの換算係数⁷を用いて実効的な重量緩衝深度を算出した。実際には、

$$\int_0^{\infty} A_{m,0,\text{eff}} \exp(-\zeta/\beta_{\text{eff}}) C(\zeta) d\zeta \\ = \int_0^{\infty} A_{m,0} \cosh(\zeta_0/\beta) \operatorname{sech}\{-(\zeta - \zeta_0)/\beta\} C(\zeta) d\zeta \quad (3)$$

$$\beta_{\text{eff}} A_{m,0,\text{eff}} = \beta A_{m,\zeta_0} [(\pi/2) - \tan^{-1}\{\sinh(\zeta_0/\beta)\}] \quad (4)$$

空間線量率を算出するための式(3)と沈着量を算出するための式(4)を同時に満足する実効的な重量緩衝深度 β_{eff} を求めた。

ここで、 $A_{m,0,\text{eff}}$ は実効的な（仮の）地表面における放射能濃度(Bq/kg)、 $C(\zeta)$ は斎藤らの換算係数、 A_{m,ζ_0} は放射能濃度が最大となる重量深度における放射能濃度(Bq/kg)である。式(1)のように放射能濃度が重量深度に対して指数関数的に減少する深度分布の場合は、式(3)の右辺が左辺と同じ数式になるため、式(1)で得られた重量緩衝深度は、そのまま、実効的な重量緩衝深度となる。

式(1)及び式(2)の重量深度 ζ (g/cm²)を深度 z (cm)に置き換えることで、式(1)及び式(2)の重量緩衝深度 β (g/cm²)に相当する緩衝深度 α (/cm)を算出できる。除染による土壌の剥ぎ取り深度の決定等に際して、どの程度の土壌を剥ぎ取れば十分なのか α 及び β からは直接には判断できないため、 α 及び z_0 をもとに90%深度(放射性セシウムの沈着量の90%が含まれる地表面からの深度) $L_{90\%}$ (cm)を評価した。ちなみに、式(1)の場合、90%深度は $(1/\alpha)/\log_{10} e$ に、式(2)の場合は $(1/\alpha) \sinh^{-1}(\tan((9\pi/2 + \tan^{-1}(\sinh(-z_0/(1/\alpha))))/10)) + z_0$ に相当する。

3. 結果と考察

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。

前期調査及び後期調査で得られた全85箇所のセシウム137の深度分布を、目視により指数関数的な深度分布又はある深さに放射能濃度のピークを持つ深度分布に分類し、それぞれの深度分布に対して式(1)又は式(2)を用いて、重量緩衝深度 β の解析を行った。ただし、深度分布の全体像を把握することができなかった場合、又は、除染等で人の手が加わり、深度分布が不連続若しくは不自然であり、式(1)の指数関数及び式(2)の双曲線正割関数で近似することが不適當な場合(図-2 c)参照。この調査箇所(030S055)は覆土されており、地

⁶ 本報告書(“平成26年度放射性物質測定調査委託費(東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約及び移行モデルの開発)事業”成果報告書)の「放射性セシウム沈着量の面的調査」を参照のこと。

⁷ 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).

表面から約 3 cm までの放射性セシウムの放射能濃度が極端に少なく、その境界の深度で不連続かつ不自然な深度分布になっていた。)には、重量緩衝深度 β の解析を行わなかった。このような深度分布は、前期調査では 11 箇所(000N030、025S035、030S055、035S035、040N050、045N030、045S055、055N020、055N045、065S030 及び 090S025)、後期調査では 7 箇所(025S040、035S035、040N050、045S055、050N055、065N010 及び 065S030)で観察された。(前期調査及び後期調査で得られたセシウム 137 の深度分布は Appendix-1 を参照。上記、重量緩衝深度 β の解析を行わなかった調査箇所については、放射性セシウムの土壌中深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性を赤字で付した。)

(1) 重量緩衝深度 β

式(1)又は式(2)で解析した重量緩衝深度は、

前期調査：平均値 2.02 g/cm² (n= 74)、最小値 0.59 g/cm²、最大値 6.66 g/cm²

後期調査：平均値 2.16 g/cm² (n= 78)、最小値 0.58 g/cm²、最大値 8.58 g/cm²

であった。

重量緩衝深度を対数値としたときの頻度分布を図-3 に示す。この図及び正規確率プロットから、重量緩衝深度の頻度分布は対数正規分布に近い分布をとることがわかったため、幾何平均値を算出した。その幾何平均値は、

前期調査：1.72 g/cm² (n= 74)

後期調査：1.89 g/cm² (n= 78)

であった。

(2) 実効的な重量緩衝深度 β_{eff}

実効的な重量緩衝深度は、

前期調査：平均値 2.76 g/cm² (n= 74)

後期調査：平均値 2.86 g/cm² (n= 78)

であった。

(3) 90%深度 $L_{90\%}$

平成 23 年 12 月からの 90%深度の経時的な変化を図-4 に示す。図中の調査実施期間ごとの 90%深度の幾何平均値は、時間の経過とともに、わずかずつではあるものの増加してきていることがわかった。この結果から、福島第一原発の事故に由来する放射性セシウムの 90%以上を除去するために必要な土壌の掘削深度が 5 cm を超える地域は、事故当初よりも年々増加してきているものと考えられるが、最新の情報を与える後期調査の調査箇所では、85 箇所のうち 18 箇所だけがこれに該当するものであり、平均的な 90%深度の値は、5 cm を十分に下回る 3.5 cm であった。

4. まとめ

福島第一原発の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。本調査では、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、及び②外部被ばく線量の評価のために、調査実施時における(1)重量緩衝深度 β 及び(2)実効的な重量緩衝深度 β_{eff} を評価した。現時点で既に、指数関数的な放射性セシウムの深度分布(図-2 a)参照)と、これからの経時的な変化である、ある深さに放射能濃度のピークを持った深度分布(図-2 b)参照)が観測されているが、従来からの式(1)に基づく重量緩衝深度を既知とした空間線量率に係る解析を行う場合には、実効的な重量緩

衝深度 β_{eff} を用いることができる。また、③土壤深度分布の経時的な変化の傾向を明らかにするために、(3) 90%深度 $L_{90\%}$ を評価し、その経時的な変化の傾向から、福島第一原発の事故に由来する放射性セシウムが、時間の経過とともに、徐々に地中へと浸透してきていることを明らかにした。

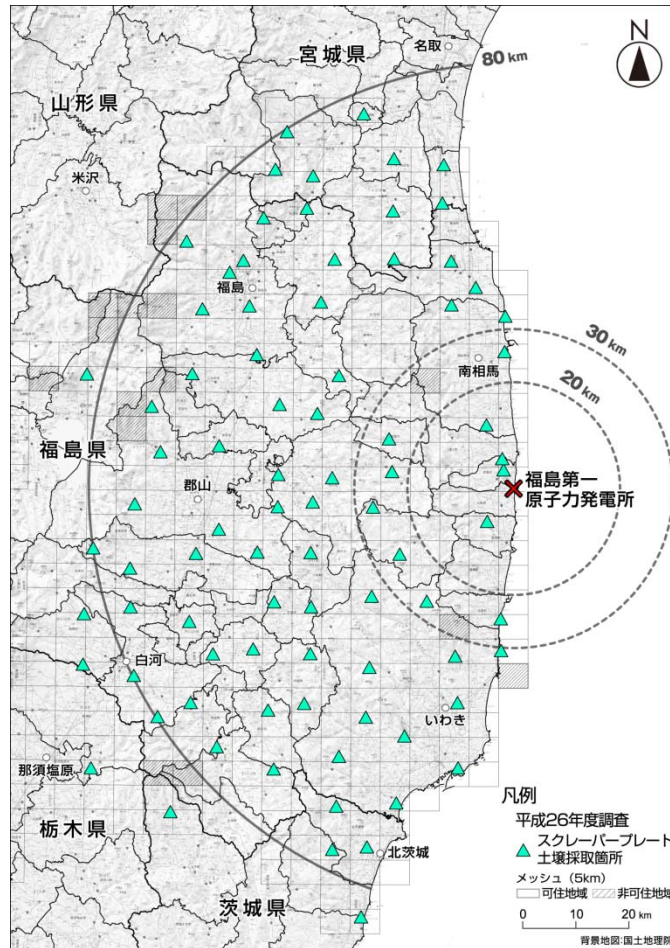


図-1 調査実施箇所

(土壌採取法：スクレーパー・プレート法。土壌採取期間：前期調査 平成 26 年 7 月 14 日～24 日、後期調査 平成 26 年 11 月 4 日～13 日)

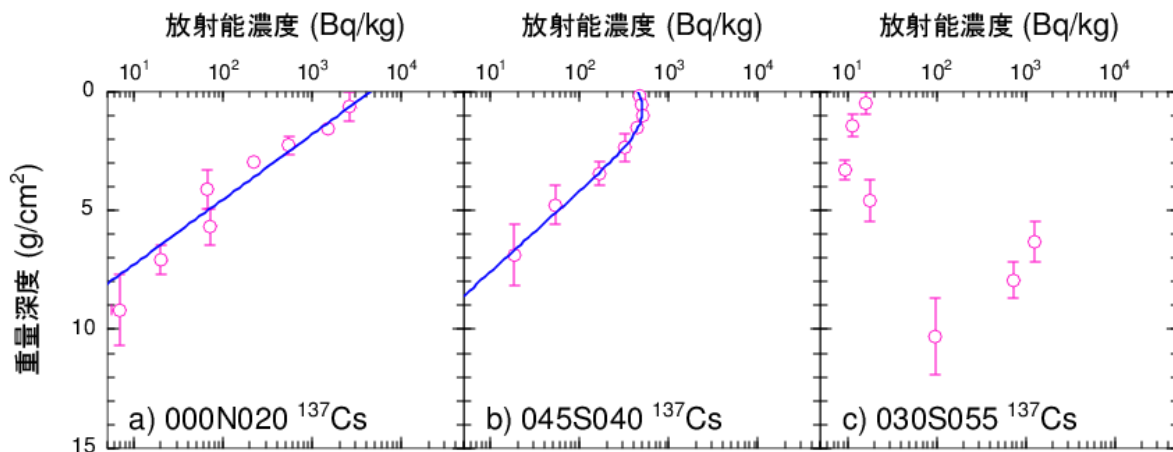


図-2 前期調査で得られたセシウム 137 の深度分布の典型的な例

(c) の深度分布は、覆土により地表面から 5 g/cm² 付近までのセシウム 137 の放射能濃度が極端に少なく、その境界の重量深度で不連続かつ不自然であったため、重量緩衝深度 β の解析は実施しなかった)

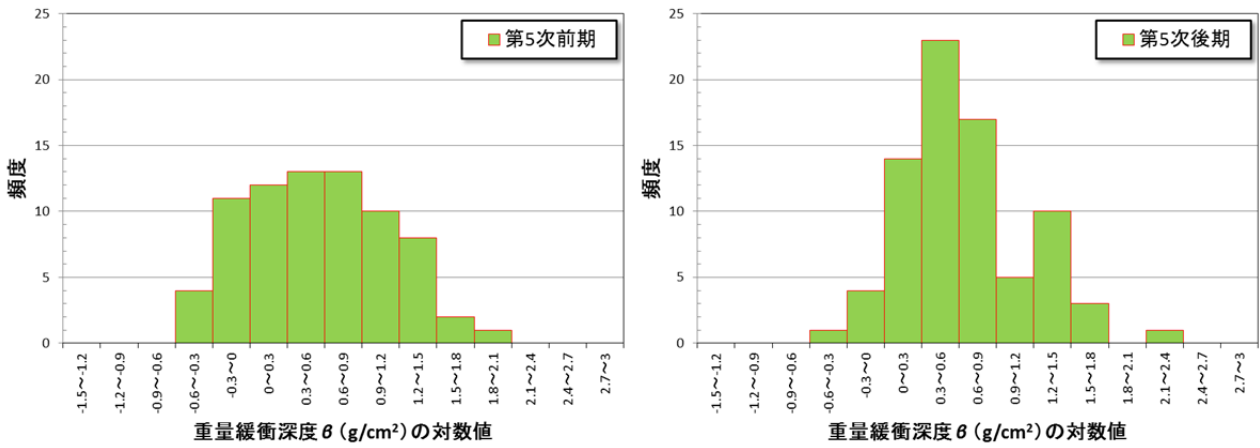


図-3 重量緩衝深度 β を対数値としたときの頻度分布
(左図：前期調査、右図：後期調査)

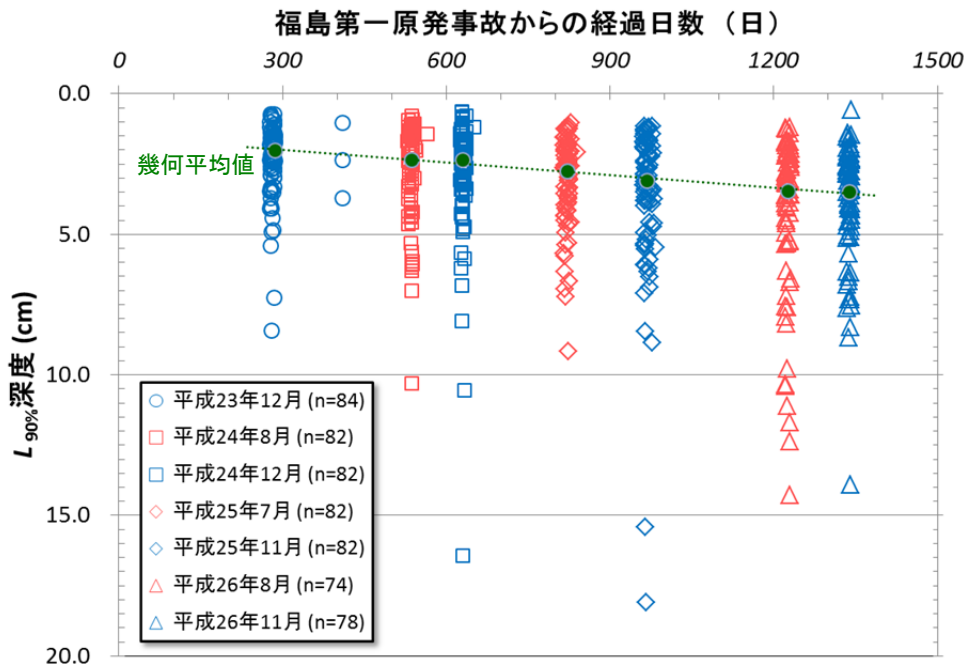
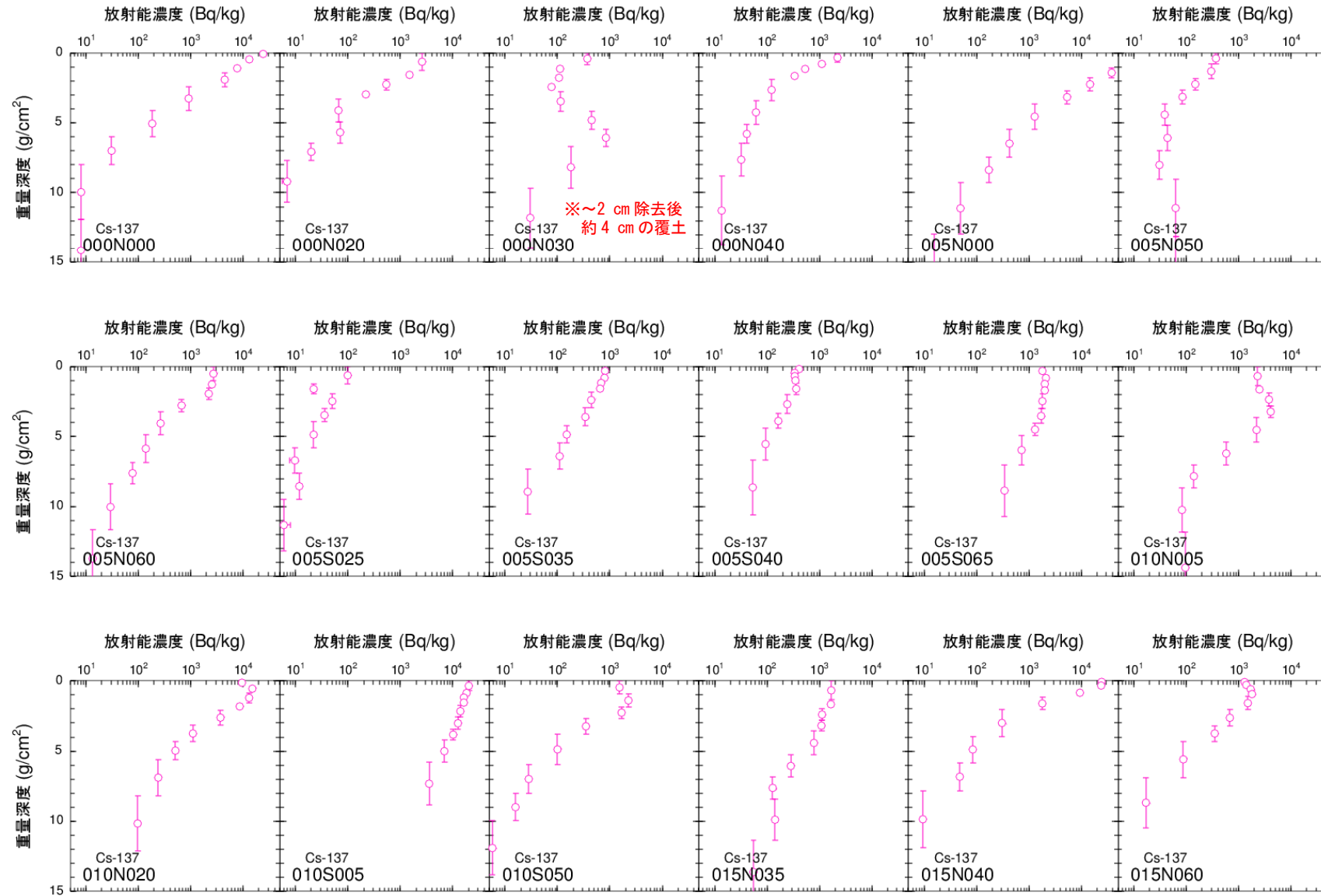


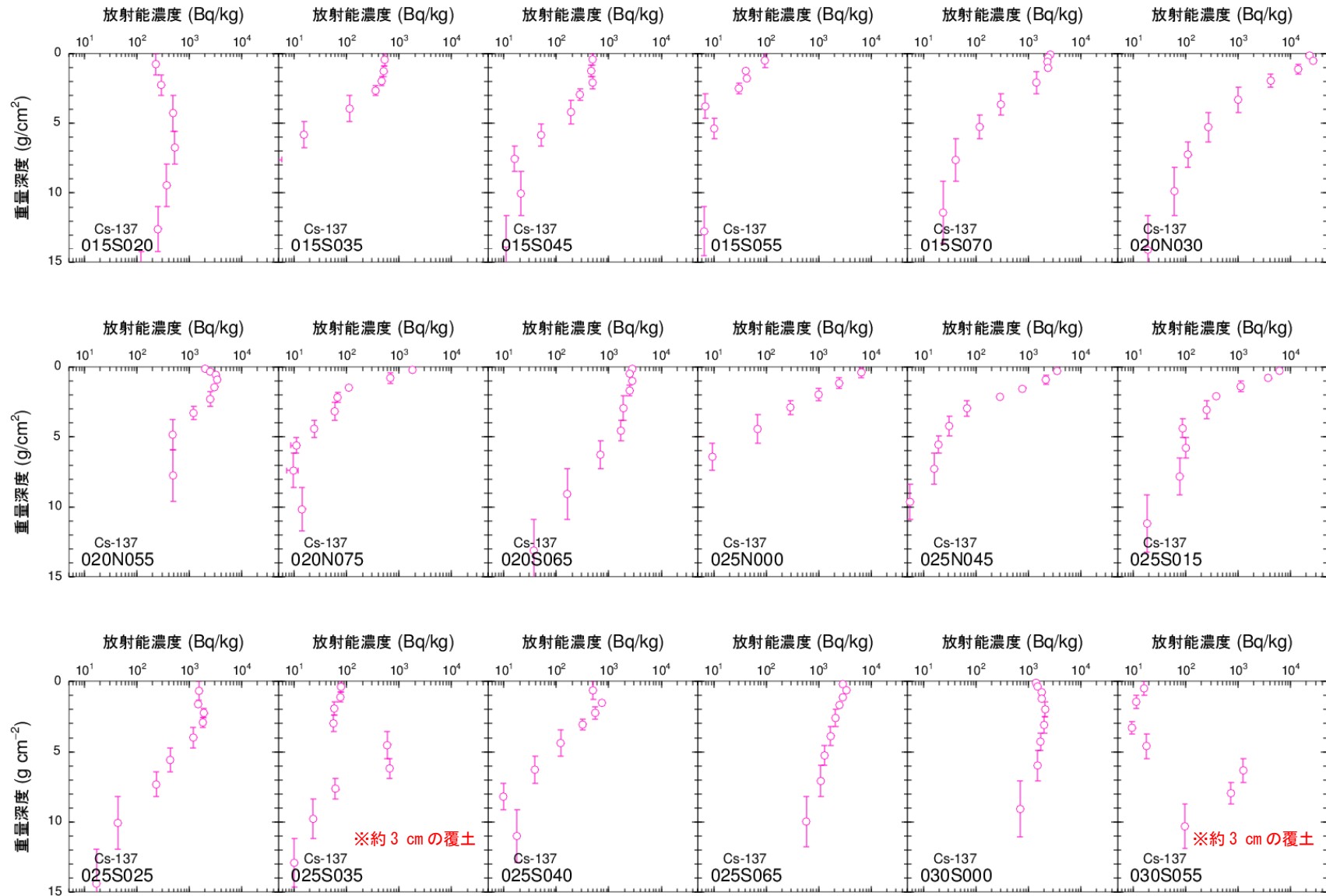
図-4 平成23年12月からの90%深度 $L_{90\%}$ の経時的な変化

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布 (平成 26 年度前期調査) 1/5



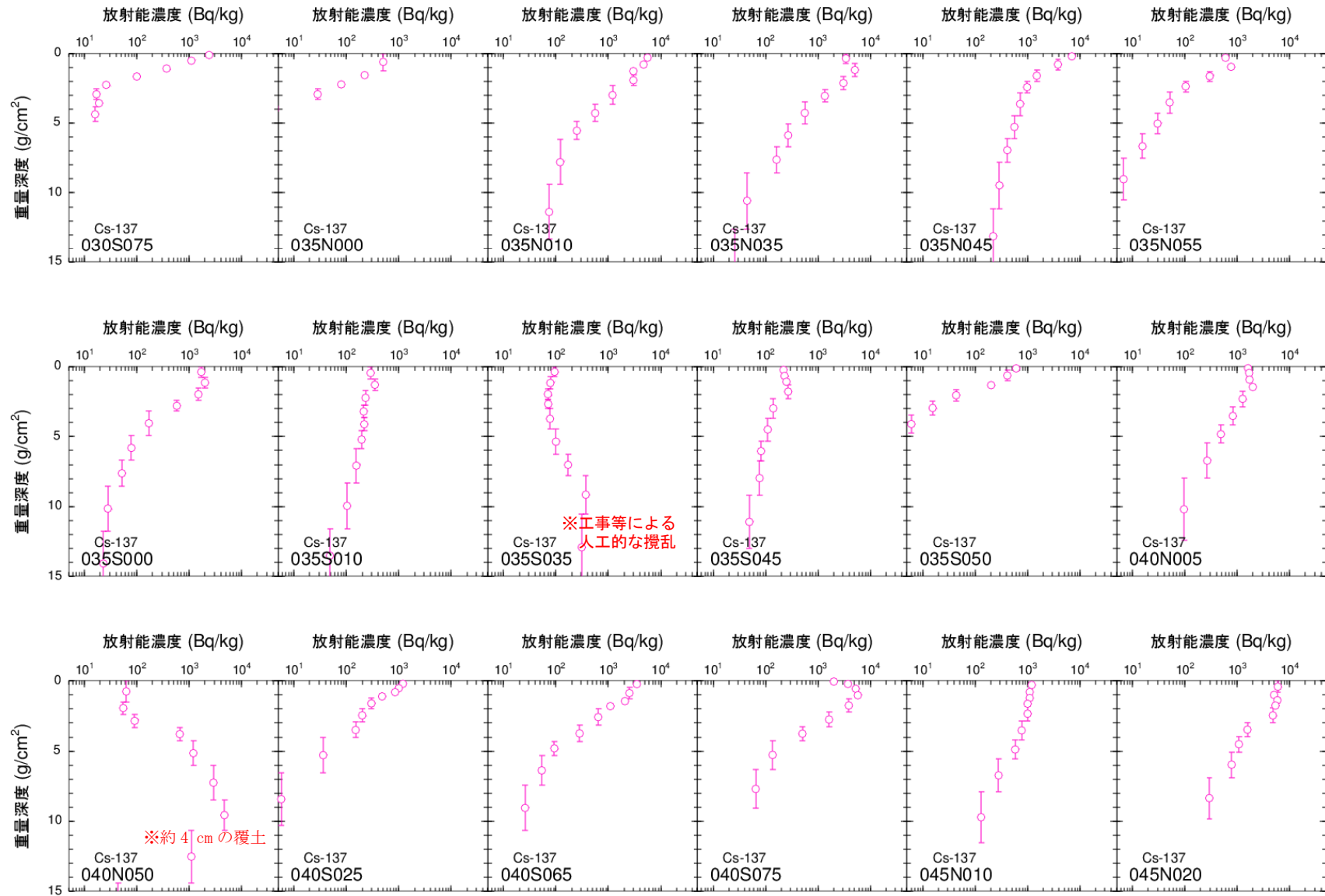
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度前期調査）2/5



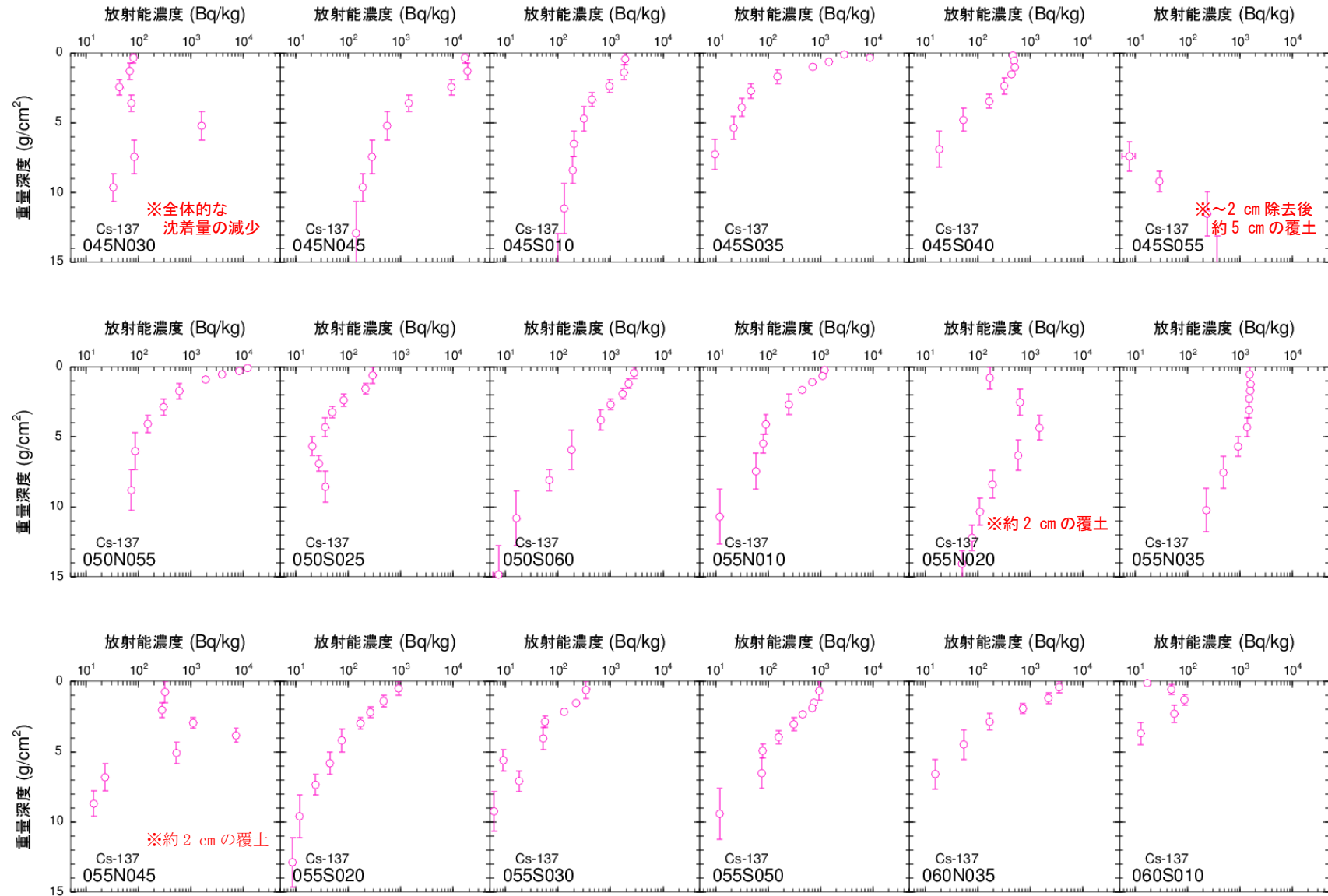
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度前期調査）3/5



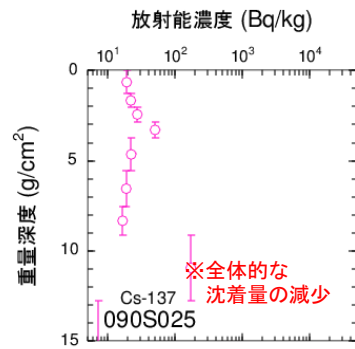
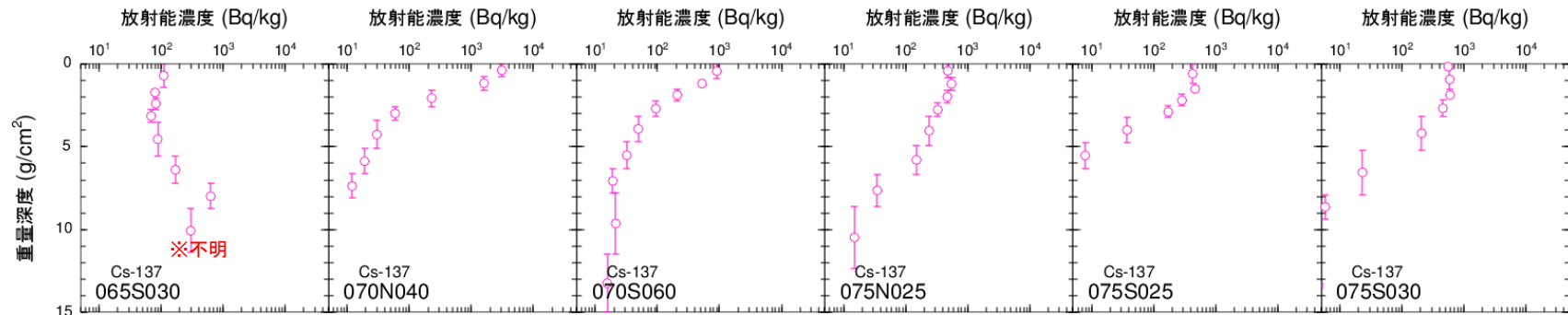
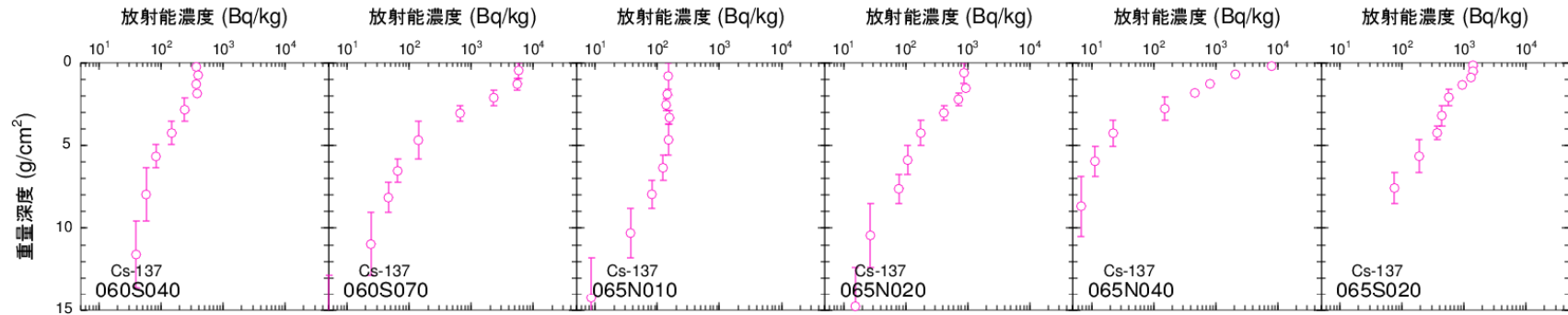
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度前期調査）4/5



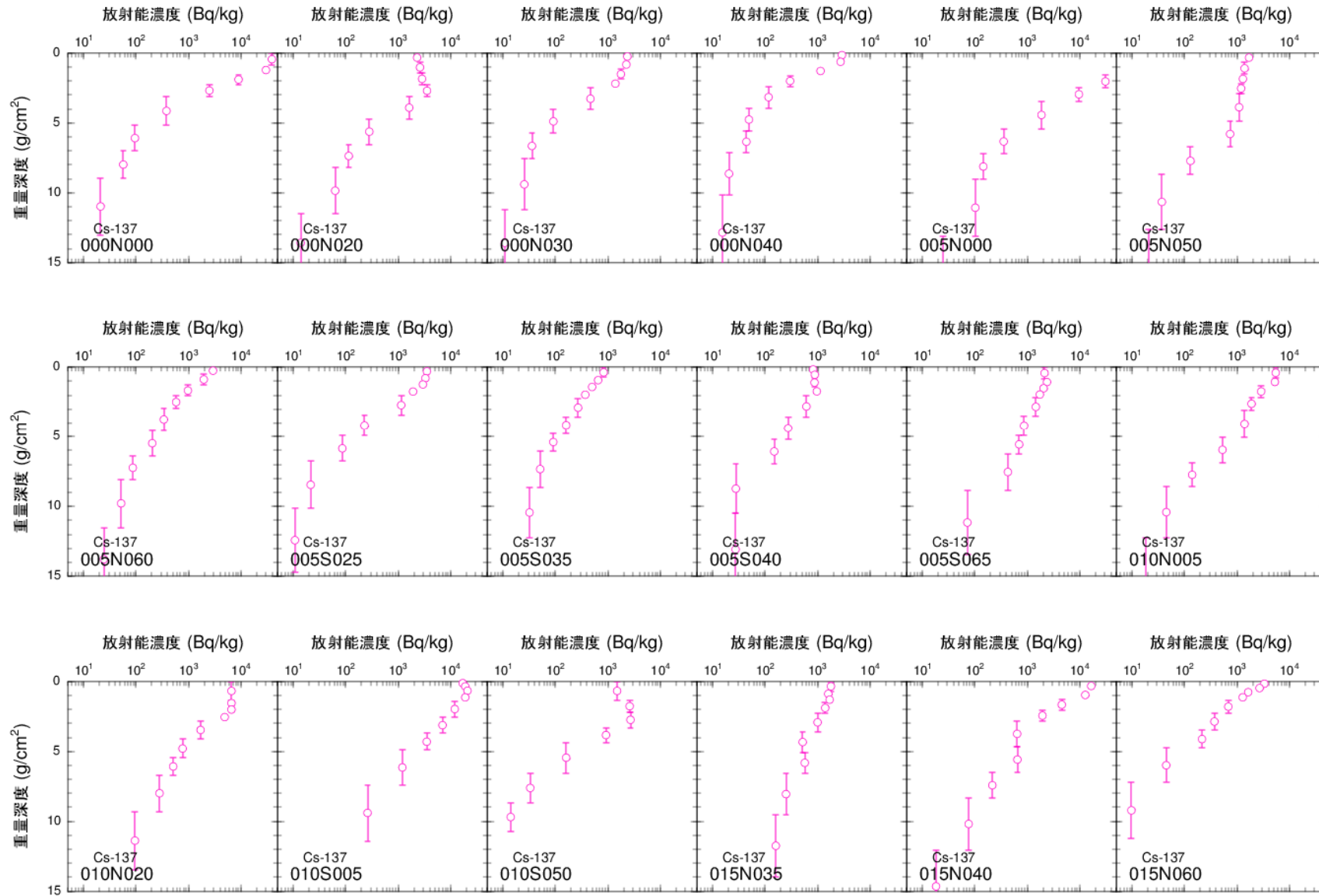
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布 (平成 26 年度前期調査) 5/5



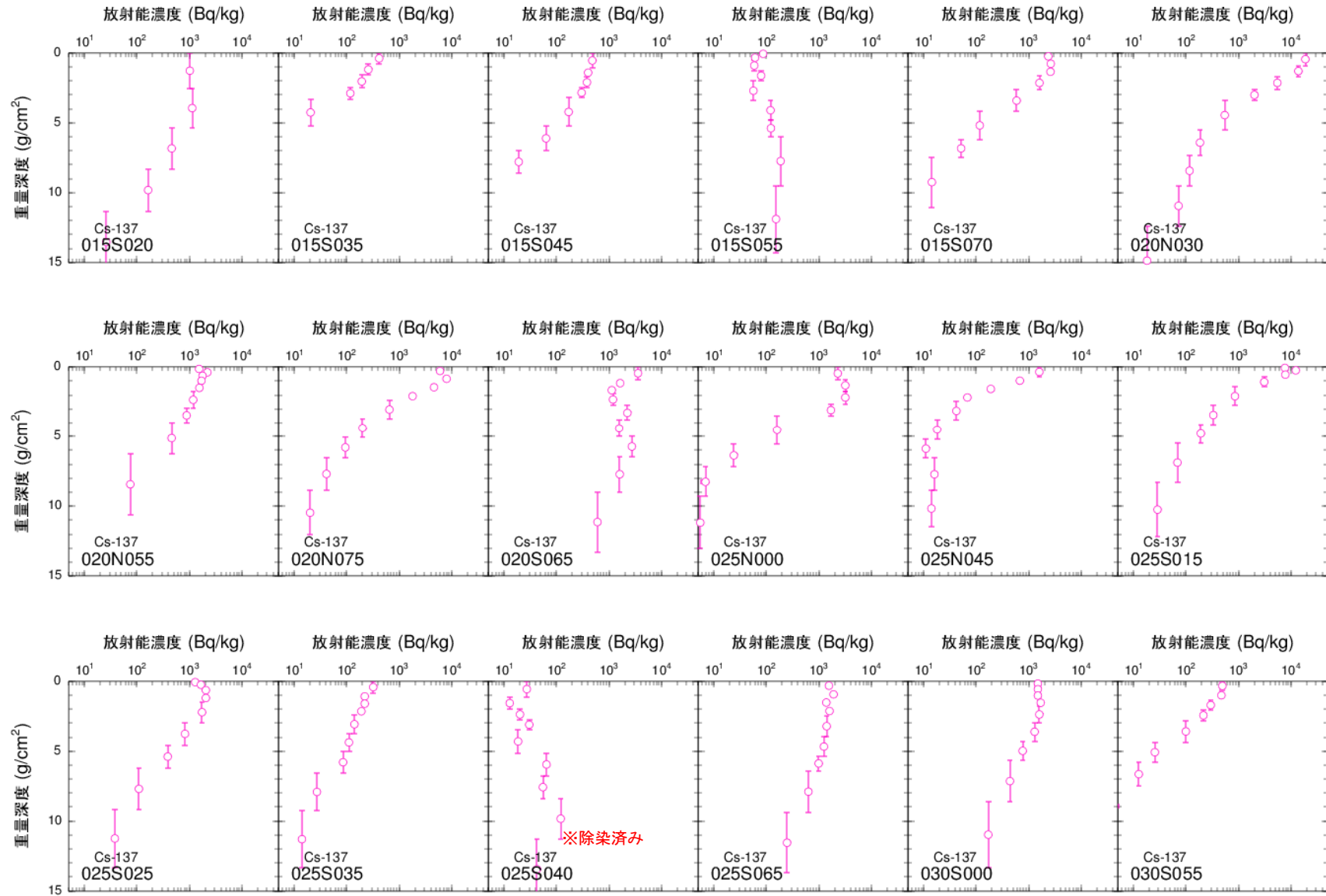
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度後期調査）1/5



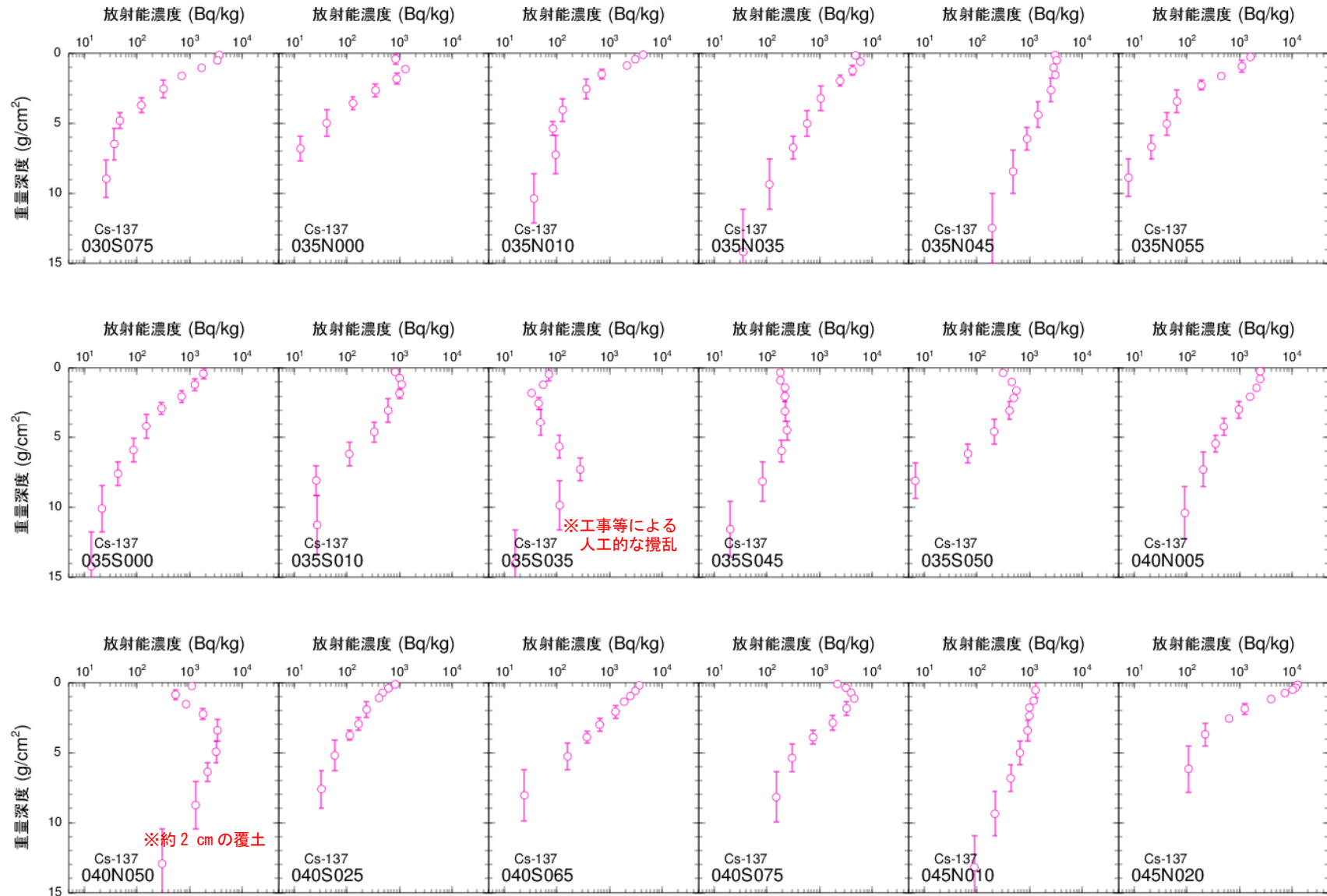
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度後期調査） 2/5



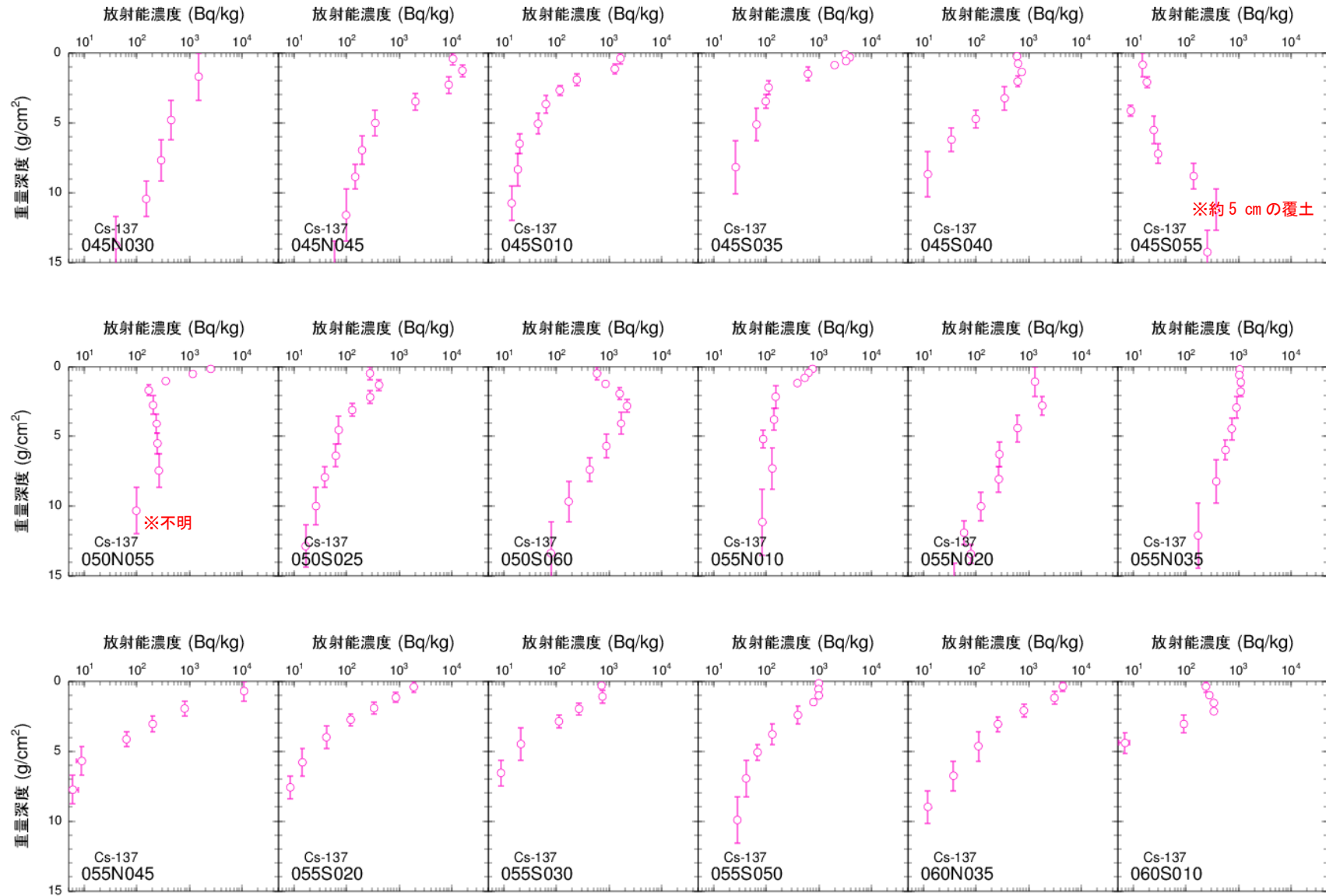
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布 (平成 26 年度後期調査) 3/5



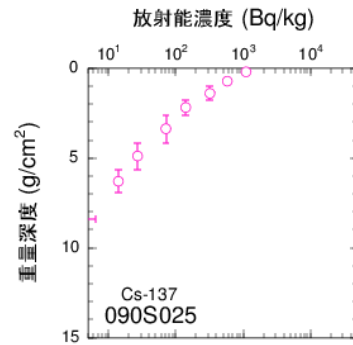
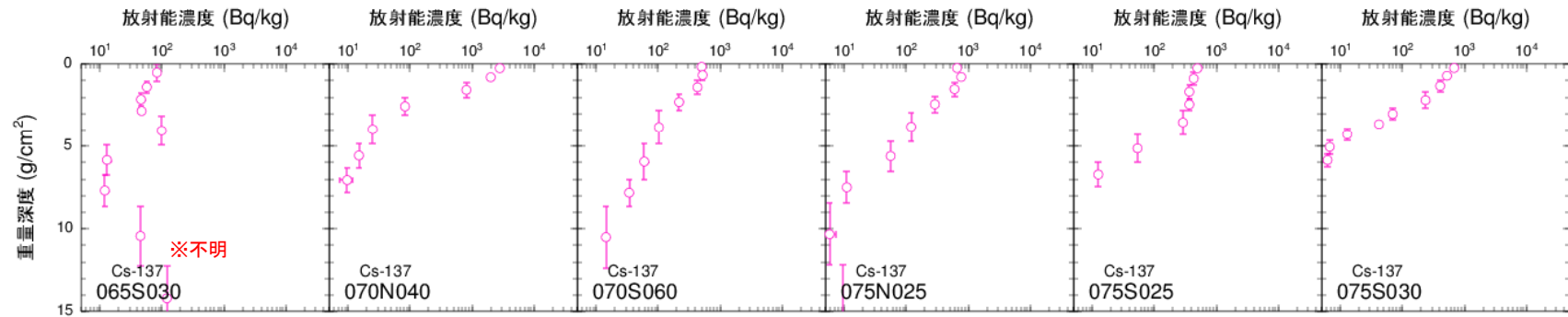
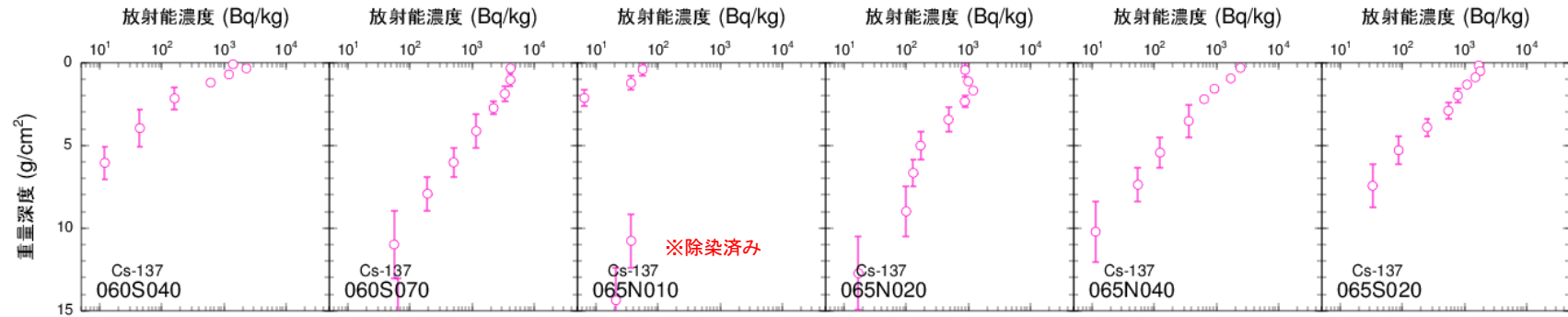
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度後期調査）4/5



※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 26 年度後期調査）5/5



※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性