

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、平成25年11月、平成26年7月、平成26年11月及び平成27年9月時点での放射性セシウムの土壌中深度分布と、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 of 解析のための基礎データや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土壌中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。

また、放射性セシウムの土壌中深度分布と土壌の性質との関連を調査するため、スクレーパー・プレート法による土壌採取箇所の約半数において別途採取した土壌試料に対し、平成27年度の調査に引き続き、粒径組成、交換性カリウム及び有機炭素量の分析を実施する。

2. 調査内容

(1) 土壌採取期間

平成28年8月23日～10月11日

(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27年度の土壌採取箇所（5 km×5 kmメッシュ内）の近く。）

(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

(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27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、015S055 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の採取を実施した。また、放射性セシウムの放射能の最大値が地中で見られ、除染が実施されたと考えられる採取箇所（040N050 及び 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の採取を実施した。

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。

採取した各層の土壌は、重量（小石等を含む）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及び（公財）日本分析センターに送付し、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（典型的な例は図-2参照）。このとき、各層の重量深度（湿潤）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。

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

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 $1/e$ （ $\approx 1/2.7$ ）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、38箇所（全85箇所中）で観測された。このような放射性セシウムの深度分布の形状の変化は、平成27年度の調査では31箇所（全85箇所中）で観測されており、全体に占める割合は大きく変わらなかった。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⁴（式-2）を用いて重量緩衝深度 β (g/cm²)を解析した。

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

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

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ため、土壌の深部での単位 β あたりの放射能濃度の減少割合は $1/e$ （ $\approx 1/2.7$ ）となる。

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 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).

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、in-situ 測定⁵ 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/cm^2) 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、指数関数的な深度分布を仮定した実用的な緩衝深度（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土壌中の放射性セシウムの深度分布と空間線量率の係数に係る解析上便利である。そのために、式-2 で解析した深度分布を持つ場合の沈着量と空間線量率の係数が指数関数的な深度分布を持つ場合の沈着量と空間線量率の係数と同じになるよう、斎藤らの地中に沈着したガンマ線源の強度に対する環境中における地上 1 m 高さでの空気カーマへの換算係数⁶ を用いて実効的な重量緩衝深度を算出した。

実際には、空間線量率が等しいとする条件の式-3 と沈着量が等しいとする条件の式-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。

$$\int_0^{\infty} A_{m,0,eff} \exp(-\zeta/\beta_{eff}) I_{\gamma} C(\zeta) d\zeta$$

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

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

ここで、 $A_{m,0,eff}$ は地表面における実効的な放射能濃度 (Bq/kg)、 I_{γ} は放射性核種が崩壊したときのガンマ線の放出率、 $C(\zeta)$ 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-4 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。

重量緩衝深度 β (g/cm^2) は土壌の深度に直接対応せず、放射性セシウムの地中への浸透の度合いを直感的に理解することに向かないため、式-1 及び式-2 の重量深度 ζ (g/cm^2) を実際の深度 z (cm) に、重量緩衝深度 β (g/cm^2) を緩衝深度 $1/\alpha$ (cm) に、放射能濃度が最大となる重量深度 ζ_0 (g/cm^2) を実際の放射能濃度が最大となる深度 z_0 (cm) に置き換え、横軸を放射能濃度 (Bq/kg)、縦軸を地表面からの深度 (cm) とする深度分布に対して算出した $1/\alpha$ 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 90%深度は、式-1 及び式-2 の積分範囲を変えることで算出でき、式-1 の場合は $(1/\alpha)/\log_{10} e$ 、式-2 の場合は $(1/\alpha) \sinh^{-1}(\tan((9\pi/2 + \tan^{-1}(\sinh(-z_0/(1/\alpha))))/10)) + z_0$ となる。これは、除染による土壌の剥ぎ取り深度の決定に有効な情報を提供する。

放射性セシウムの土壌中深度分布と土壌の性質との関連を調査するため、スクレーパー・プレート法による土壌採取箇所約半数にあたる 45 箇所において、ステンレス製の試

⁵ 本報告書（“平成 28 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）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。

⁶ 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).

料円筒（100 ml）を用いて地表面から深さ 5 cm までの土壌を採取した。（土壌試料の採取方法は参考資料⁷を参照のこと。ただし、土壌試料の採取は 1 箇所につき 1 点とし、その位置は、スクレーパー・プレート法による土壌の採取を実施した位置より 1 m 以内とした。）採取した土壌は十分に攪拌し、全量を 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に送付し、粒径組成、交換性カリウム及び有機炭素量の分析を実施した。粒径組成はピペット法⁸、交換性カリウムは酢酸アンモニウム抽出-フレイム原子吸光法⁸、有機炭素量はチューリン法⁸で分析した。土壌採取箇所（45 箇所）は、放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化の傾向を考慮して選定した。

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。

本調査で得られた全 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（式-1 を適用した深度分布は 38 箇所、式-2 を適用した深度分布は 38 箇所であった。）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当な場合（図-2 (c) 参照：この調査箇所 (020N030) は除染作業が実施されたため、昨年度の土壌採取箇所とは約 70 m 離れており、地表面から約 4 cm までのセシウム 137 の放射能濃度は、昨年度の調査結果と比べて極端に少なく、その境界の深度で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、9 箇所（015S055、020N030、030S055、035N010、035N035、035N045、035S045、045S055 及び 050N055）で観察された。（本年度の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の頻度分布（図-3 参照）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。

重量緩衝深度の幾何平均値、幾何標準偏差及び最小値・最大値は、

幾何平均値 2.22 g/cm² (n= 76)、幾何標準偏差 1.70、

最小値 0.65 g/cm²、最大値 7.57 g/cm²

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の幾何平均値及び幾何標準偏差は、

幾何平均値 3.13 g/cm² (n= 76)、幾何標準偏差 1.74、

最小値 0.65 g/cm²、最大値 13.4 g/cm²

であった。

実効的な重量緩衝深度の頻度分布を Appendix-2 に示す。

放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化として、福島第一原発事故からの経過日

⁷ 恩田 裕一, “試料採取法の確定,” *Radioisotopes*, 62, pp. 767-773 (2013).

⁸ 土壌標準分析・測定法, 土壌標準分析・測定委員会, 博友社, (2003).

数に対する実効的な重量緩衝深度の推移を図-4に示す。このとき、実効的な重量緩衝深度の誤差は幾何標準偏差とした。実効的な重量緩衝深度 β_{eff} の経時的な変化は、本調査を開始した平成23年12月から現在（平成28年9月）まで、およそ一次関数的な増加を示している。ただし、放射性セシウムの土壌中深度分布の変化の度合いは、年度や季節によりまちまちであると考えられるため、図中の緑の破線はあくまでも目安である。

(3) 90%深度 $L_{90\%}$

平成23年12月からの各調査実施期間における90%深度及びその幾何平均値(図-5参照)は、時間の経過とともに、わずかずつ増加(深さ方向に移動)してきていることがわかった。90%深度の幾何平均値は4.2 cm(平成28年9月)であり、5 cmを下回ることがわかった。ただし、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剥ぎ取り深度が5 cmを超える深度分布は、33箇所(76箇所中)で観測された。

(4) 土壌特性との関係

平成27年度の調査では、放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化に特徴が見られた5箇所((a) 045S010、(b) 065N040、(c) 005S035、(d) 055N035及び(e) 015S020)に着目し、深度分布の形成と土壌特性との関連の分類を試みた。平成23年12月、平成24年12月、平成25年11月、平成26年11月及び平成27年8月時点での放射性セシウムの土壌中深度分布(昨年度の成果報告書の図-3⁹)と土壌の性質を分析した結果(昨年度の成果報告書の図-6⁹)をAppendix-3に示す。この5箇所の放射性セシウムの土壌中深度分布は、経時的な変化があまり見られなかった(a)、(b)のグループ(以下、「Aグループ」という。)と(※(b)については、平成23年12月～平成25年11月の調査では経時的な変化があまり見られなかったものの、平成26年11月の調査からは経時的な変化が見られるようになってきているため、現在は「Bグループ」に分類している。)、顕著に見られた(c)～(e)のグループ(以下、「Bグループ」という。)に分類することができ、交換性カリウムの量は季節によって大きく変動することがあるものの、AグループよりBグループの方が大きな値を示すことがわかった。また、交換性カリウムの量との関係のように単純ではなかったものの((a) 045S010の4 cm以降の深度分布に着目すると、放射性セシウムの土壌中深度分布は急に傾きを変えているが、その重量深度以降で、有機炭素量及び粘土の割合も増える傾向が見られた。)、有機炭素量についてもAグループよりBグループの方が大きな値を示すことがわかった。すなわち、昨年度の調査結果は、交換性カリウムの量は、放射性セシウムの土壌への吸着(例えば、土壌有機物の官能基や粘土鉱物構造末端等の表面水酸基への吸着、粘土鉱物の構造由来電荷による可逆的な吸着、粘土鉱物のフレイド・エッジ・サイトへの不可逆的な吸着¹⁰)を阻害するものとして働くこと、また、有機炭素量も、放射性セシウムの土壌への浸透に影響を与える可能性があることを示していた。

本年度(平成28年度)の調査では、昨年度の結果を踏まえて放射性セシウムの土壌中深度分布と土壌の性質との関連を調査するため、放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化に係る理論モデルにより算出される下方移行速度 V 及び拡散係数 D を用いて土壌の性質との関係を調査した。

チェルノブイリ原発事故後のHeとWallingの研究において、下方移行速度 V ($\text{kg}/\text{m}^2/\text{y}$)

⁹ 平成27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)事業 成果報告書「土壌中の放射性セシウムの深度分布調査」

¹⁰ 山口 紀子, “土壌への放射性Csの「吸着メカニズム」,” J. Jpn. Soc. Soil Phys. 土壌の物理性, 126, pp.11-21 (2014).

及び拡散係数 D ($\text{kg}^2/\text{m}^4/\text{y}$) により特徴づけられる時間依存の一次元移流・拡散方程式¹¹ (式-5) と、その解¹² (式-6) は、以下のように表される。

$$\frac{\partial A_m(\zeta, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 A_m(\zeta, t)}{\partial \zeta^2} - V \frac{\partial A_m(\zeta, t)}{\partial \zeta} - \lambda A_m(\zeta, t) \quad (\text{式-5})$$

$$A_m(\zeta, t) = A_{inv.} \times e^{-\lambda t} \times \frac{1}{2} (\pi D t)^{1/2} \times e^{-(10 \times \zeta - V t)^2 / 4 D t} \quad (\text{式-6})$$

ここで、 ζ は重量深度 (g/cm^2)、 t は福島第一原発事故からの経過時間 (年)、 $A_m(\zeta, t)$ は重量深度及び経過時間に対する放射性セシウムの放射能濃度 (Bq/kg)、 $A_{inv.}$ は初期沈着時の放射性セシウムの表面放射能濃度 (Bq/m^2)、 λ は放射性セシウムの崩壊定数である。拡散係数 D 及び下方移行速度 V は、以下の式を用いることで簡易的に得ることができる¹³。

$$V \approx 10 \times \zeta_0 / t \quad (\text{式-7})$$

$$D \approx (10 \times \beta - 10 \times \zeta_0)^2 / 2t \quad (\text{式-8})$$

ここで、 β は重量緩衝深度 (g/cm^2)、 ζ_0 は放射能濃度が最大となる重量深度 (g/cm^2) である。

実際の下方移行速度 V 及び拡散係数 D は、式-7 及び 8 を用いて算出した。このとき、下方移行速度 V の算出には、基本的に本年度の調査で得られた放射能濃度が最大となる重量深度 ζ_0 を使用した。ただし、本年度の調査で重量緩衝深度 β の解析を行わなかった調査箇所については、昨年度の調査 (平成 27 年 9 月) で得られた ζ_0 を使用した。指数関数的な深度分布の場合、放射能濃度が最大となる重量深度は地表面となるため、下方移行速度 V はゼロとなる。そのため、 V の数値は、ある深さに放射能濃度のピークを持つ深度分布であった 21 箇所 (45 箇所中) でしか得られなかった。拡散係数 D の算出には、基本的に本年度の調査で得られた重量緩衝深度 β と放射能濃度が最大となる重量深度 ζ_0 を、これに対する初期の放射性セシウムの土壌中深度分布として、基本的に平成 23 年 12 月の β 及び ζ_0 を使用し、その差分より求めた。ただし、本年度の調査で重量緩衝深度 β の解析を行わなかった調査箇所については昨年度の調査 (平成 27 年 9 月) で得られた β 及び ζ_0 を、本年度の調査箇所と平成 23 年 12 月の調査箇所が 100 m 以上離れている場合は、平成 24 年 8 月又は平成 24 年 12 月の調査で得られた β 及び ζ_0 を初期の放射性セシウムの土壌中深度分布として使用した。指数関数的な深度分布の ζ_0 の値はゼロとした。

本年度 (平成 28 年度) の調査で得られた 45 箇所分の粒径組成、交換性カリウムの量、有機炭素量の分析結果を表-1 に示す。

交換性カリウムの量及び有機炭素量と下方移行速度 V の関係を図-6 に示す。平成 27 年度に調査を実施した 5 箇所のうち、(c) 005S035 及び (d) 055N035 の 2 箇所では V の値が得られていない ((e) 015S020 については放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化が特に大きく、平成 27 年度から指数関数的な深度分布として解析している。) ため、下

¹¹ He Q., and Walling D. E., "The distribution of fallout 137Cs and 210Po in undisturbed and cultivated soils," Applied Radiation and Isotopes, 48, pp. 677-690 (1997).

¹² Szerbin P., Koblinger-Bokori E., Vegvari I. and Ugron A., "Caesium-137 migration in Hungarian soils," Science of the Total Environment, 227, pp. 215-227 (1999).

¹³ Zapata F. (ed.), "Handbook for the assessment of soil erosion and sedimentation using environmental radionuclides," Kluwer academic publishers, Dordrecht/Boston/London, (2010).

方移行速度との関係では基準とする特徴を把握することができなかった（相関係数は0.01より小さかった。）。また、図-6からも、さしたる特徴を見つけることができなかった。下方移行速度 V の値は、0.9～6.2 kg/m²/y の範囲で分布していた。

交換性カリウムの量及び有機炭素量と拡散係数 D の関係を図-7 及び 8 にそれぞれ示す。平成 27 年度に調査を実施した 5 箇所を図中に示す。昨年度の調査結果のうち、平成 23 年 12 月～平成 25 年 11 月の調査では経時的な変化があまり見られなかったものの、平成 26 年 11 月の調査から経時的な変化が見られるようになってきた (b) 065N040 を除くと、交換性カリウムの量及び有機炭素量と拡散係数の間には、図中に緑で塗りつぶしたような正の相関があるように見える。また、この相関が正しいと仮定すると、これとは別に、図中に青で塗りつぶしたような正の相関があるように見える。緑で塗りつぶした範囲の拡散係数 D の値は、～60 kg²/m⁴/y 程度で分布していた。一方の青で塗りつぶした範囲では、拡散係数 D の値が 60 kg²/m⁴/y を大きく超えるもの、つまり、放射性セシウムの土壤中深度分布の経時的な変化の早いものが見られている。青で塗りつぶした範囲のみに該当する調査箇所は、交換性カリウムの量と拡散係数の関係では、015S045 (379 kg²/m⁴/y)、065N040 (125 kg²/m⁴/y)、045N010 (93 kg²/m⁴/y)、060S040 (81 kg²/m⁴/y)、065S020 (69 kg²/m⁴/y) 及び 040S075 (58 kg²/m⁴/y) の 6 箇所（この 6 箇所を除いたときの相関係数は 0.17 となった。）、有機炭素量と拡散係数の関係では、015S045、065N040、045N010、060S040 及び 070S060 (43 kg²/m⁴/y) の 5 箇所（この 5 箇所を除いたときの相関係数は 0.07 となった。）であった。これらの調査箇所は、図-4「平成 23 年 12 月からの実効的な重量緩衝深度 β_{eff} の経時的な変化」に示した幾何標準偏差（図中の誤差棒）の経時的な増大に寄与しているものと考えられ、図-3「重量緩衝深度 β を対数値としたときの頻度分布」の形状の右方向への歪みからもそのことが確認できる。

交換性カリウムの量及び有機炭素量と拡散係数の関係（図-7 及び 8）は、多くの調査箇所において、土壤中の交換性カリウム量及び有機炭素量が放射性セシウムの土壤中深度分布の経時的な変化（拡散係数）との間に正の相関がある可能性を示していたものの、正確にはその関係性を確認することはできなかった。ただし、交換性カリウムの量又は有機炭素量に対して拡散係数 D の値が急減に増加する調査箇所を特定することができ、交換性カリウム量や有機炭素量の他にも放射性セシウムの土壤中深度分布の経時的な変化に大きく影響を与える要因が存在する可能性を示すことができた。その他の要因として、土壤水の pH（有機炭素による陽イオンの吸着は pH に依存すると言われている¹⁰。）や、土壤の間隙率や降水量（粘土鉱物（フレイド・エッジ・サイト）に固定された放射性セシウムの物理的な移行に影響し得る。）も関連があると考えられる。

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壤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壤採取及び深度別土壤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 測定の実施、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。また、放射性セシウムの土壌中深度分布と土壌の性質との関連を調査するため、(4) 粒径組成、交換性カリウム及び有機炭素量の分析を実施し、放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化と土壌の性質との関係を調査した。その結果、放射性セシウムの土壌中深度分布の経時的な変化（拡散係数）と交換性カリウムの量及び有機炭素量との間に正の相関がある可能性を示すことができた。また、交換性カリウムの量又は有機炭素量に対して拡散係数 D の値が急減に増加する調査箇所を特定することができた。これの調査箇所は、重量緩衝深度を対数値としたときの頻度分布の形状を歪める原因となっていることから、土壌の性質との関連においても、注意深く観察していく必要がある。

表-1 粒径組成、交換性カリウム及び有機炭素量の分析結果

試料名	粒径組成 %				交換性カリウム mg/kg*	有機炭素 C g/kg*
	粗砂	細砂	シルト	粘土		
	2.0-0.2 mm	0.2- 0.02 mm	0.02- 0.002 mm	0.002 mm以下		
000N000	59.9	25.4	8.7	6.1	133	2.3
000N030	45.1	36.3	12.7	5.9	164	7.0
000N040	39.4	24.9	18.3	17.4	78	13.0
005N060	47.1	23.7	11.0	18.2	137	15.7
(c) 005S035	15.4	23.5	28.8	32.3	940	31.8
005S040	44.6	27.4	17.4	10.6	828	51.5
010N005	23.7	61.3	7.6	7.4	214	7.3
010S050	43.4	34.4	13.9	8.3	82	0.9
015N035	51.1	30.4	13.1	5.4	91	5.7
015N040	34.2	27.8	18.5	19.5	557	58.2
015N060	45.2	27.5	18.0	9.3	126	65.3
(e) 015S020	36.4	32.3	17.3	14.0	835	42.7
015S045	45.5	28.5	15.6	10.4	231	11.4
020N030	47.9	27.8	16.3	8.0	222	8.7
020N075	33.7	36.9	20.5	8.9	88	45.2
025N000	74.7	17.3	4.3	3.7	79	1.4
025S015	37.4	28.8	17.1	16.7	371	30.6
025S025	53.2	32.0	10.8	4.0	70	18.8
025S065	24.2	27.4	24.7	23.7	850	18.9
035N000	60.1	11.0	6.0	22.9	134	1.5
035N055	53.5	26.2	15.1	5.2	51	6.7
035S045	44.6	27.8	16.5	11.1	239	21.6
035S050	19.1	30.7	31.8	18.4	480	45.1
040N005	47.6	25.4	13.3	13.7	116	17.4
040S025	33.6	28.1	23.0	15.3	384	52.6
040S065	34.7	21.8	21.9	21.6	369	108
040S075	9.8	33.2	33.6	23.4	89	64.7
045N010	61.7	23.5	8.0	6.8	183	8.8
045N045	55.7	27.2	12.5	4.6	92	4.8
(a) 045S010	49.8	23.4	12.6	14.2	137	16.7
045S035	27.7	44.6	14.5	13.2	598	18.0
055N010	28.9	34.2	17.6	19.3	393	14.4
055N020	59.0	24.7	13.5	2.8	48	1.2
(d) 055N035	8.9	34.7	27.7	28.7	1100	16.4
055S020	50.4	28.9	10.0	10.7	128	17.3
055S050	15.4	35.9	29.3	19.4	577	36.9
060N035	43.7	37.4	12.5	6.4	86	1.7
060S040	59.2	20.8	11.9	8.1	193	10.5
065N020	53.0	32.1	10.8	4.1	72	6.7
(b) 065N040	49.4	37.1	6.0	7.5	109	4.4
065S020	10.7	23.4	29.9	36.0	135	36.5
070N040	59.2	23.7	13.1	4.0	181	5.7
070S060	75.3	12.6	7.3	4.8	137	5.5
075N025	40.1	27.2	20.7	12.0	162	6.0
075S025	47.0	34.5	12.7	5.8	124	8.8

※乾土の重量

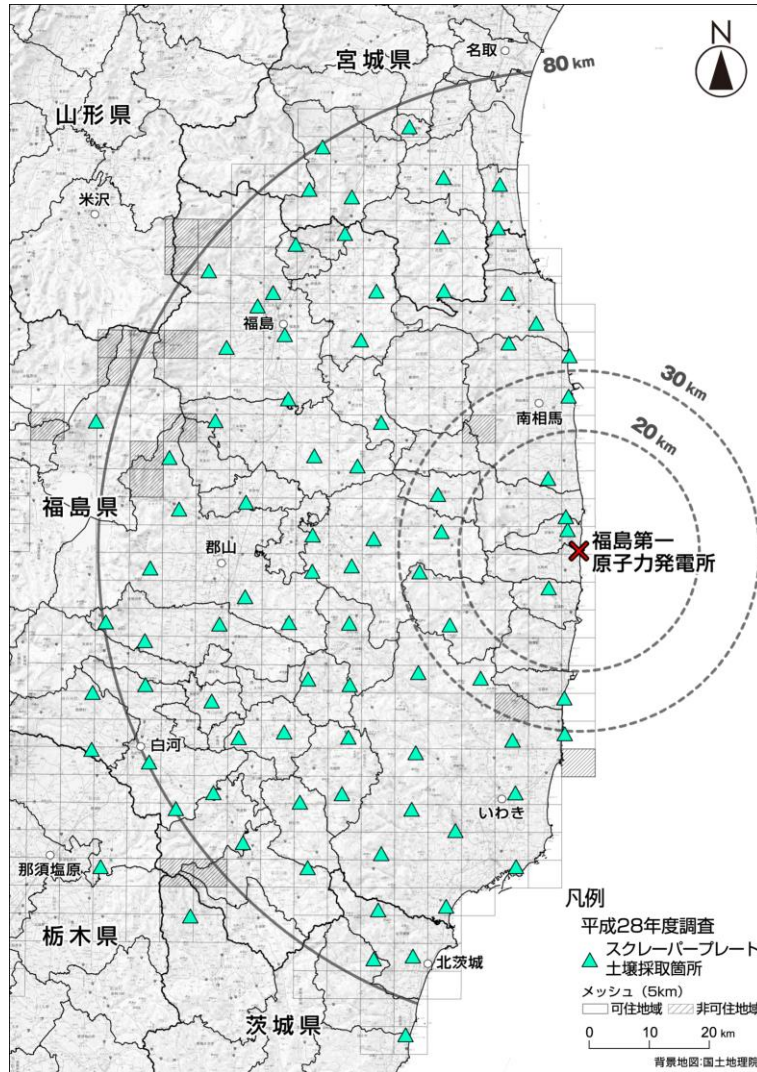


図-1 土壌採取箇所

(土壌採取法：スクレーパー・プレート法、採取期間：平成28年8月23日～10月11日)

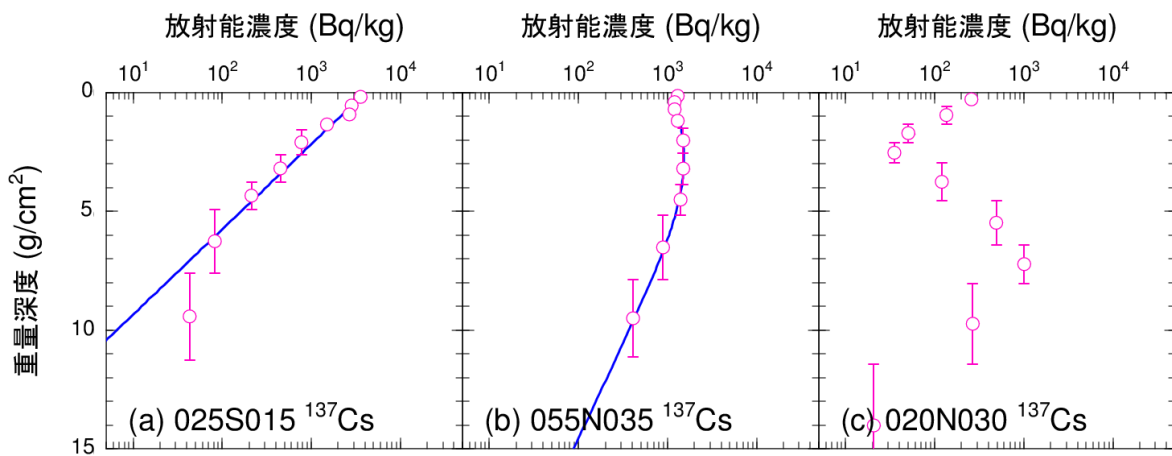


図-2 セシウム 137 の深度分布の典型的な例

((c) 020N030 の深度分布は、地表面から 6 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自然であった。)

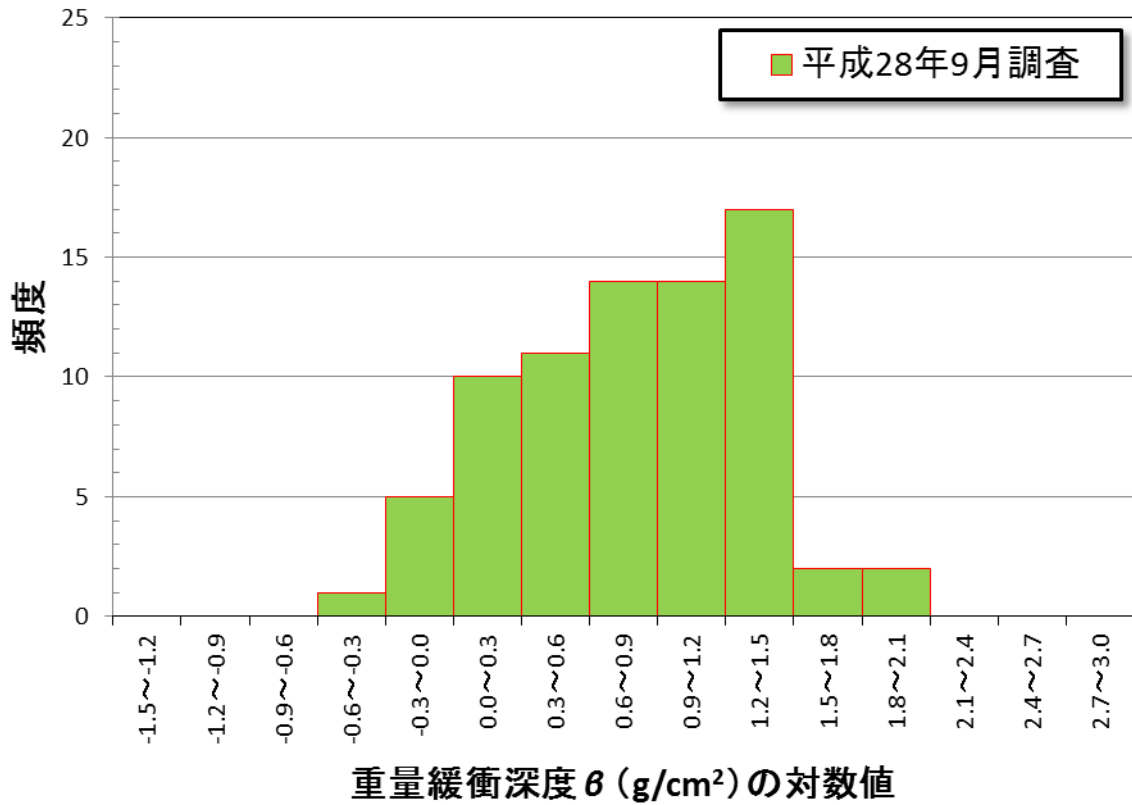


図-3 重量緩衝深度 β を対数値としたときの頻度分布

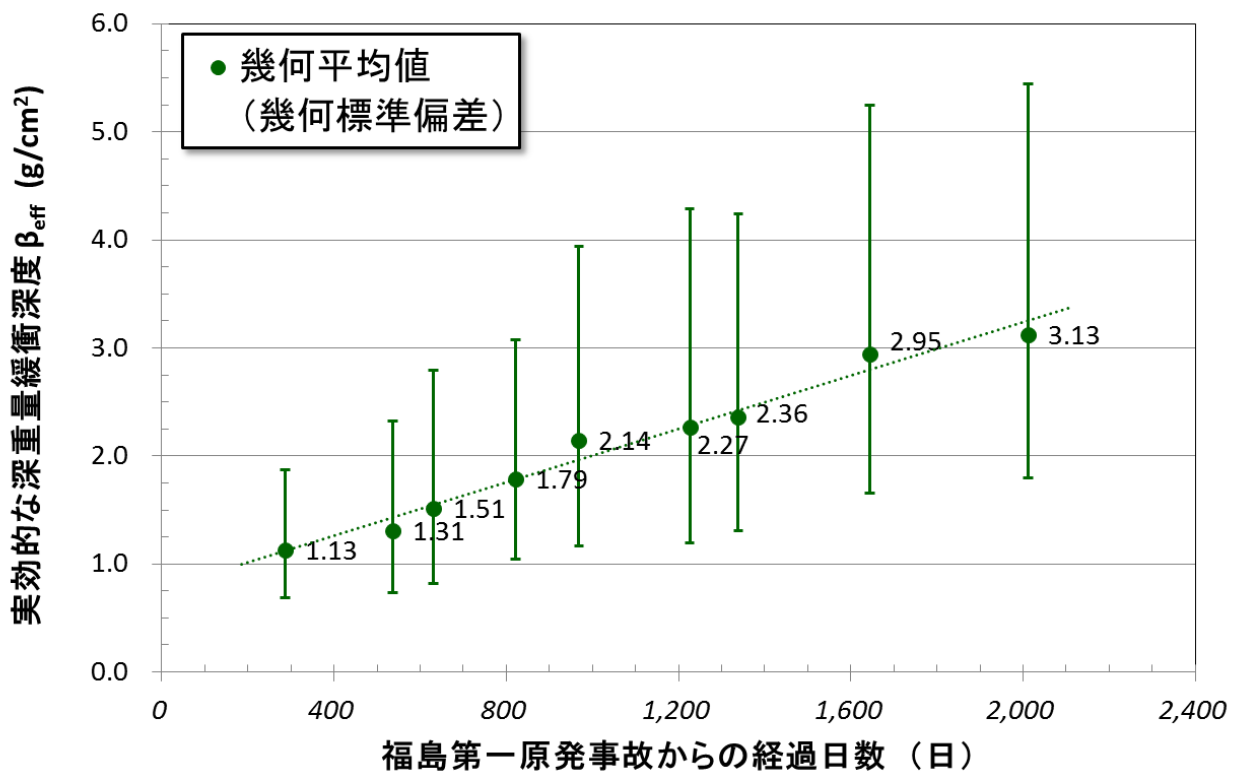


図-4 平成 23 年 12 月からの実効的な重量緩衝深度 β_{eff} の経時的な変化

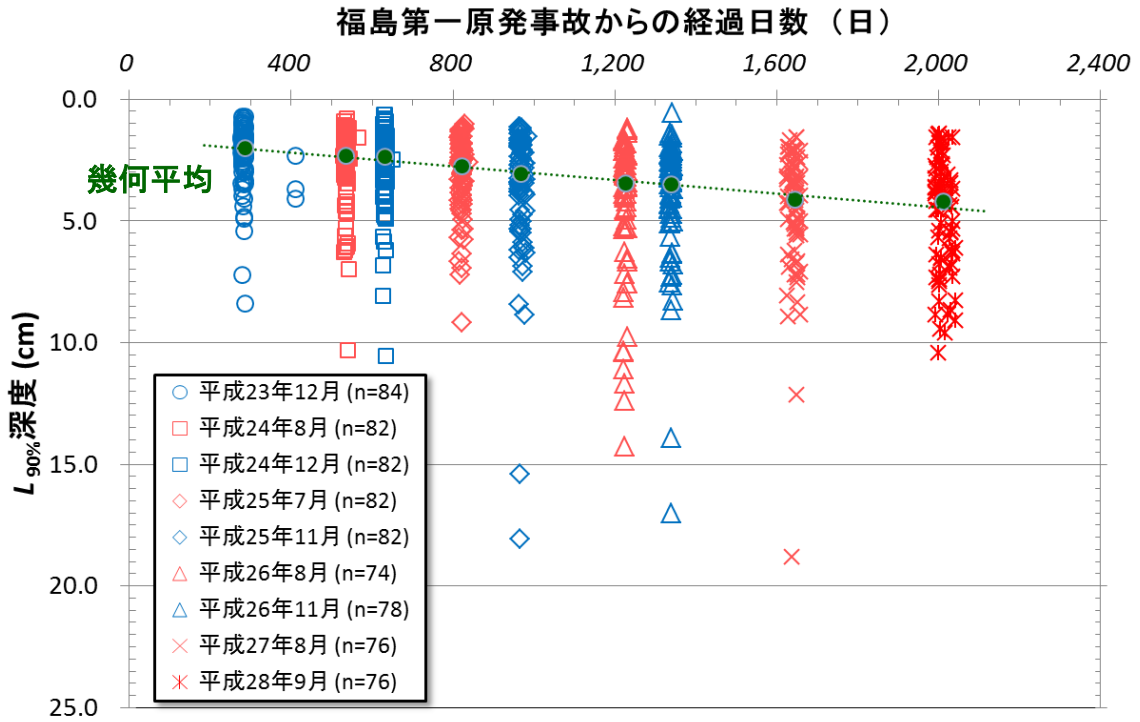


図-5 平成 23 年 12 月からの 90%深度 $L_{90\%}$ の経時的な変化

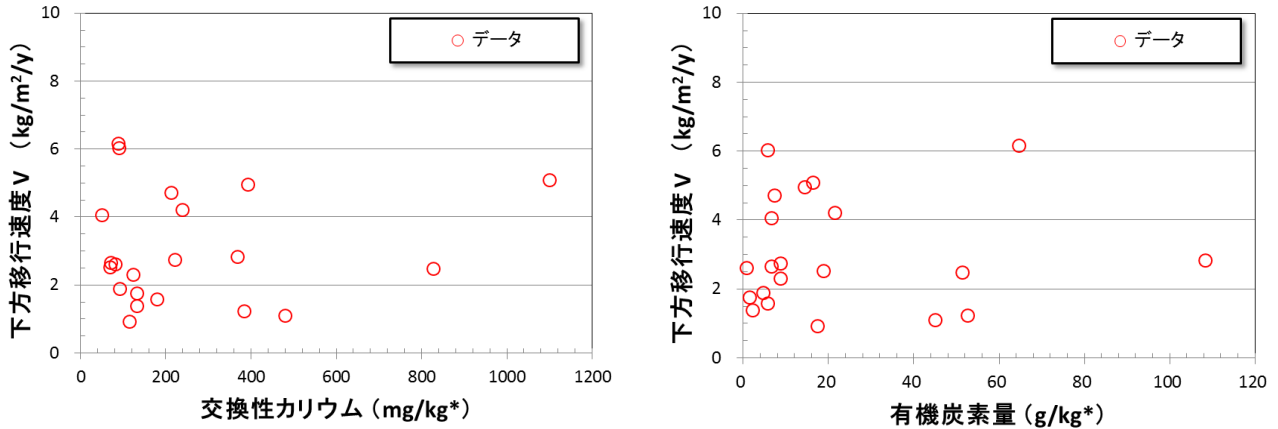


図-6 交換性カリウムの量及び有機炭素量と下方移行速度 V の関係
 左：交換性カリウムの量と下方移行速度の関係
 右：有機炭素量と下方移行速度の関係

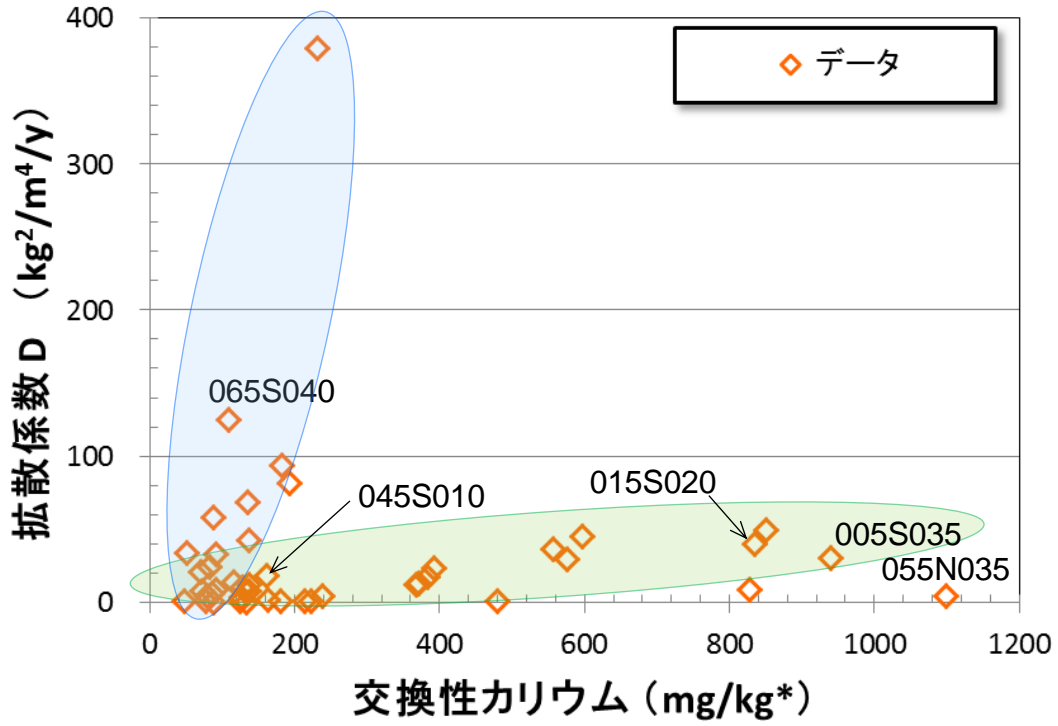


図-7 交換性カリウムの量と拡散係数 D の関係

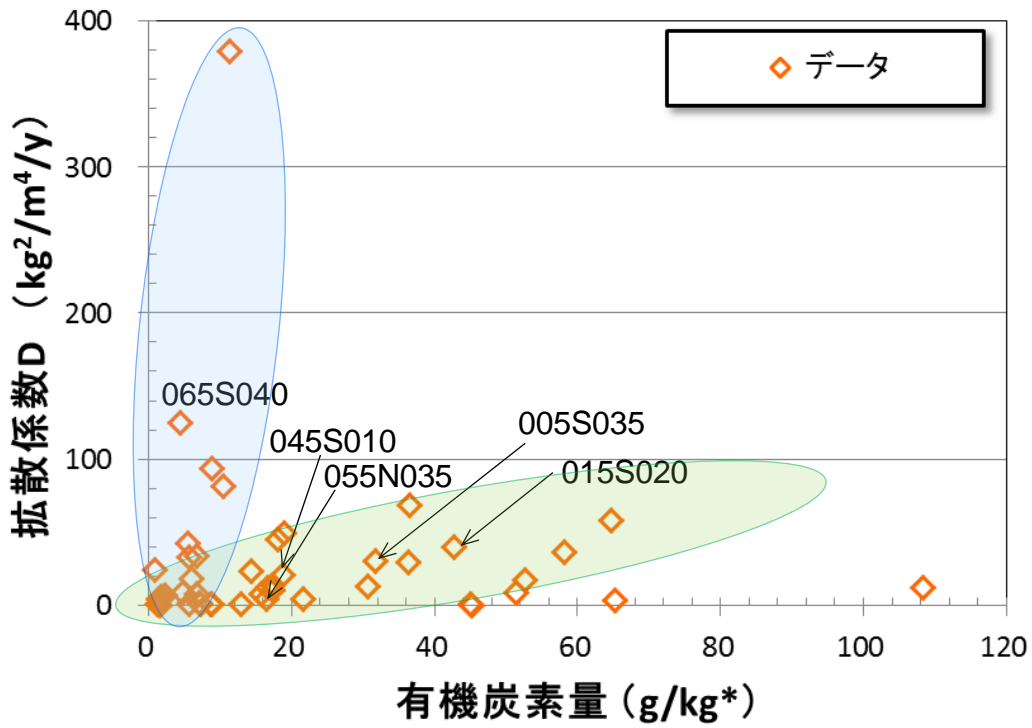
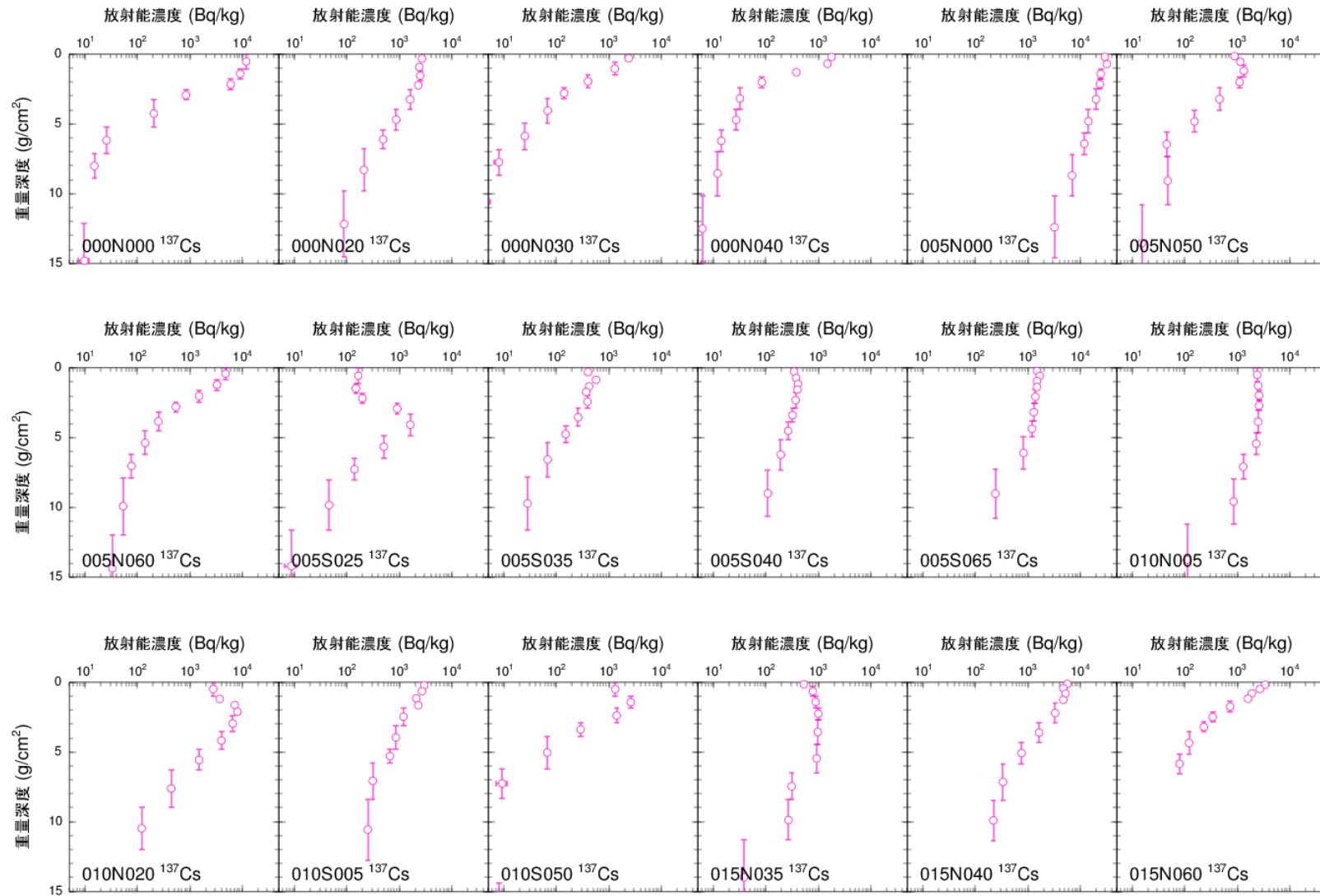
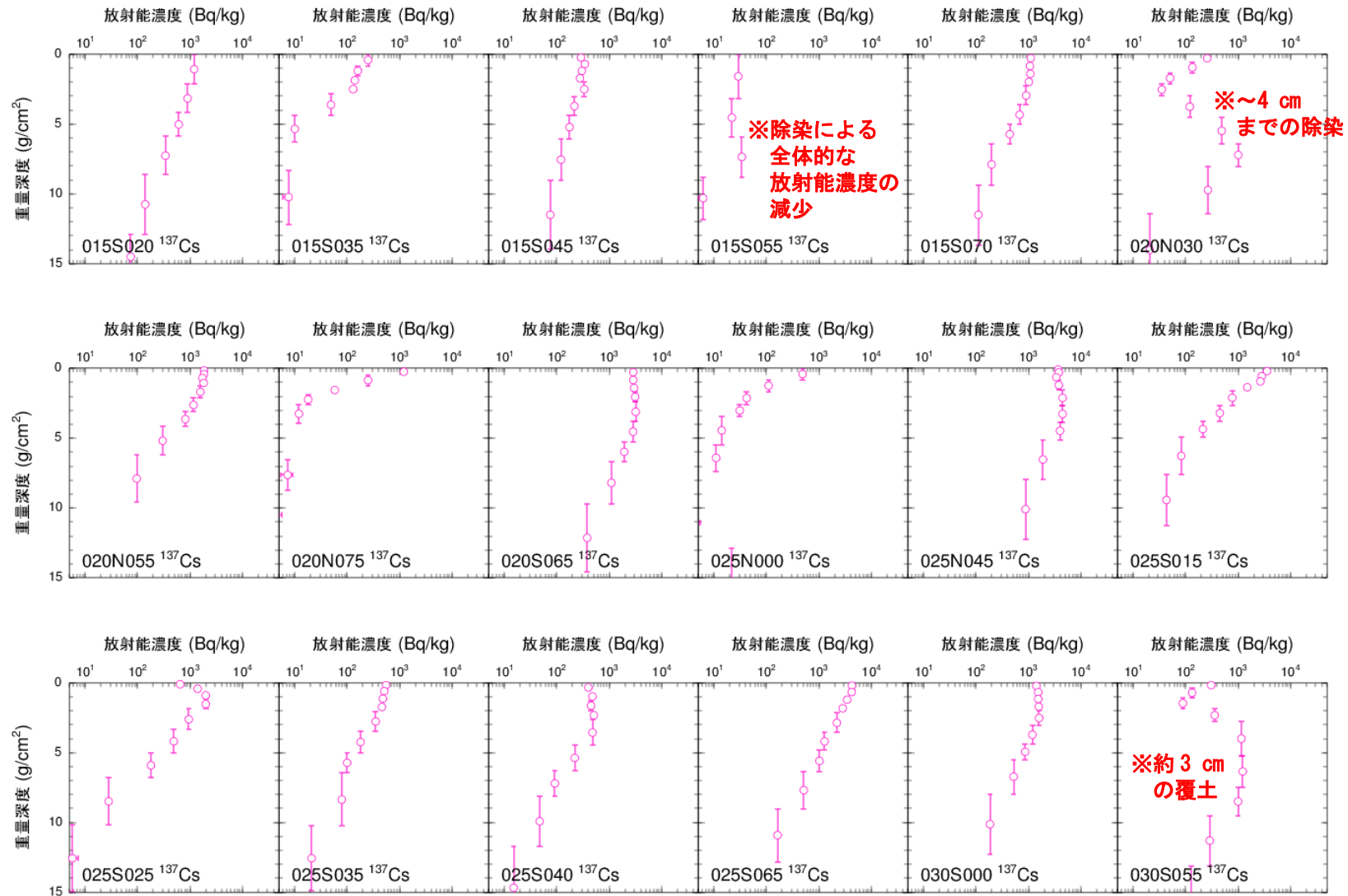


図-8 有機炭素量と拡散係数 D の関係

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 28 年度調査）1/5

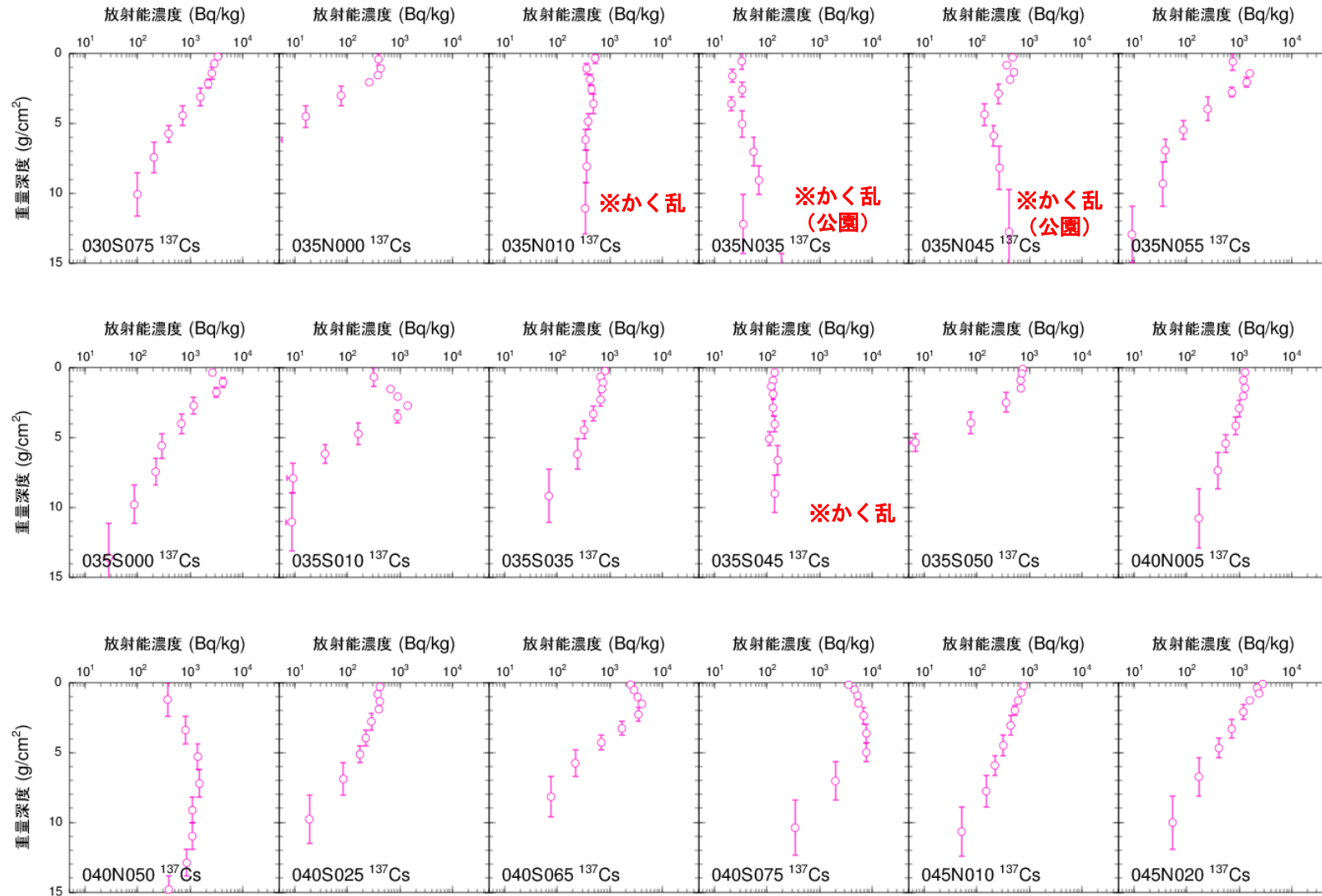


Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 28 年度調査） 2/5



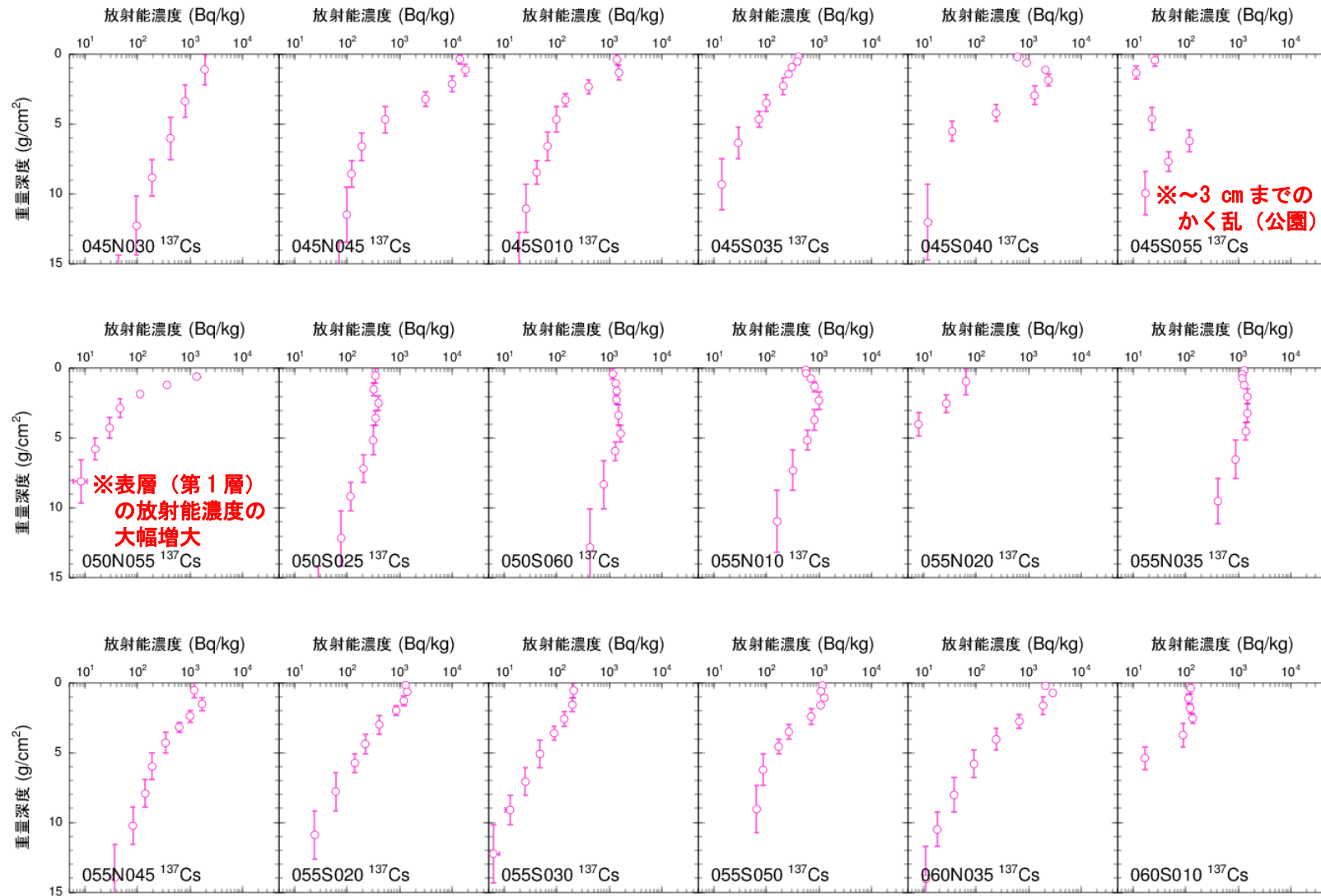
※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 28 年度調査） 3/5

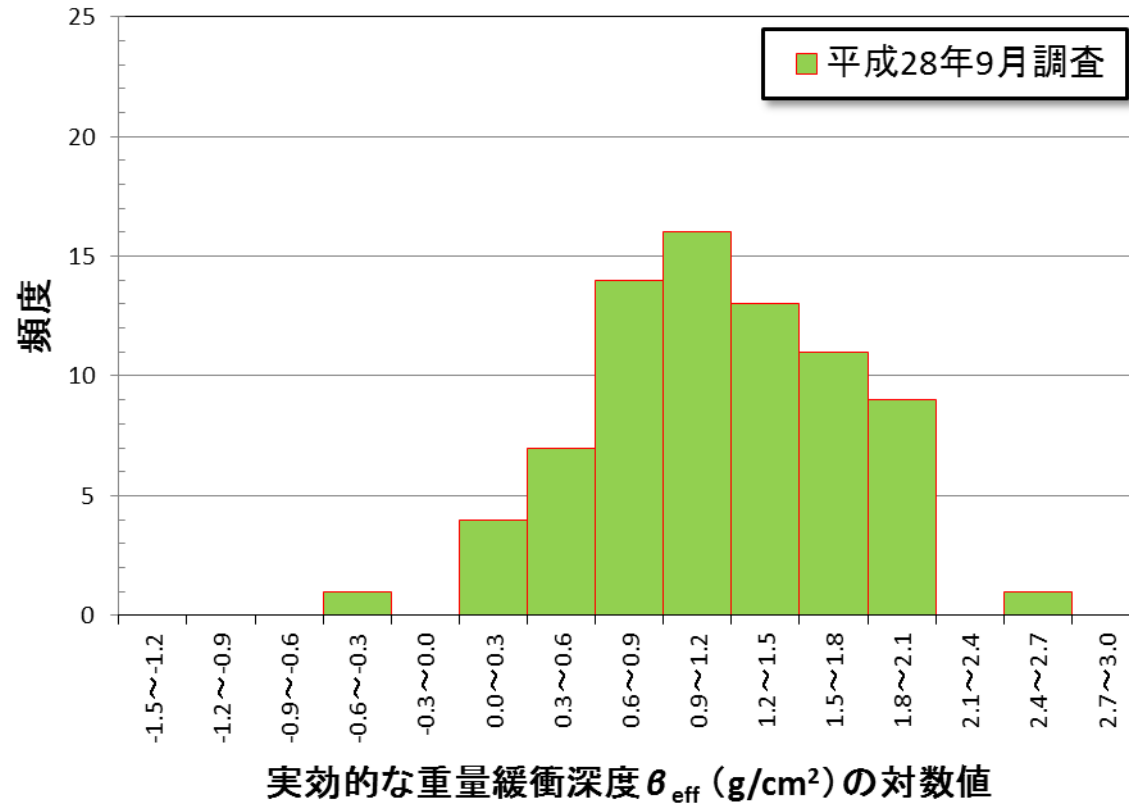


※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-1 セシウム 137 の深度分布（平成 28 年度調査）4/5



※深度分布の変遷から読み取れる除染等の可能性

Appendix-2 実効的な重量緩衝深度 β_{eff} を対数値としたときの頻度分布

Appendix-3 放射性セシウムの土壌中深度分布と土壌の性質を分析した結果
 (昨年度の成果報告書「土壌中の放射性セシウムの深度分布調査」より) 1/2

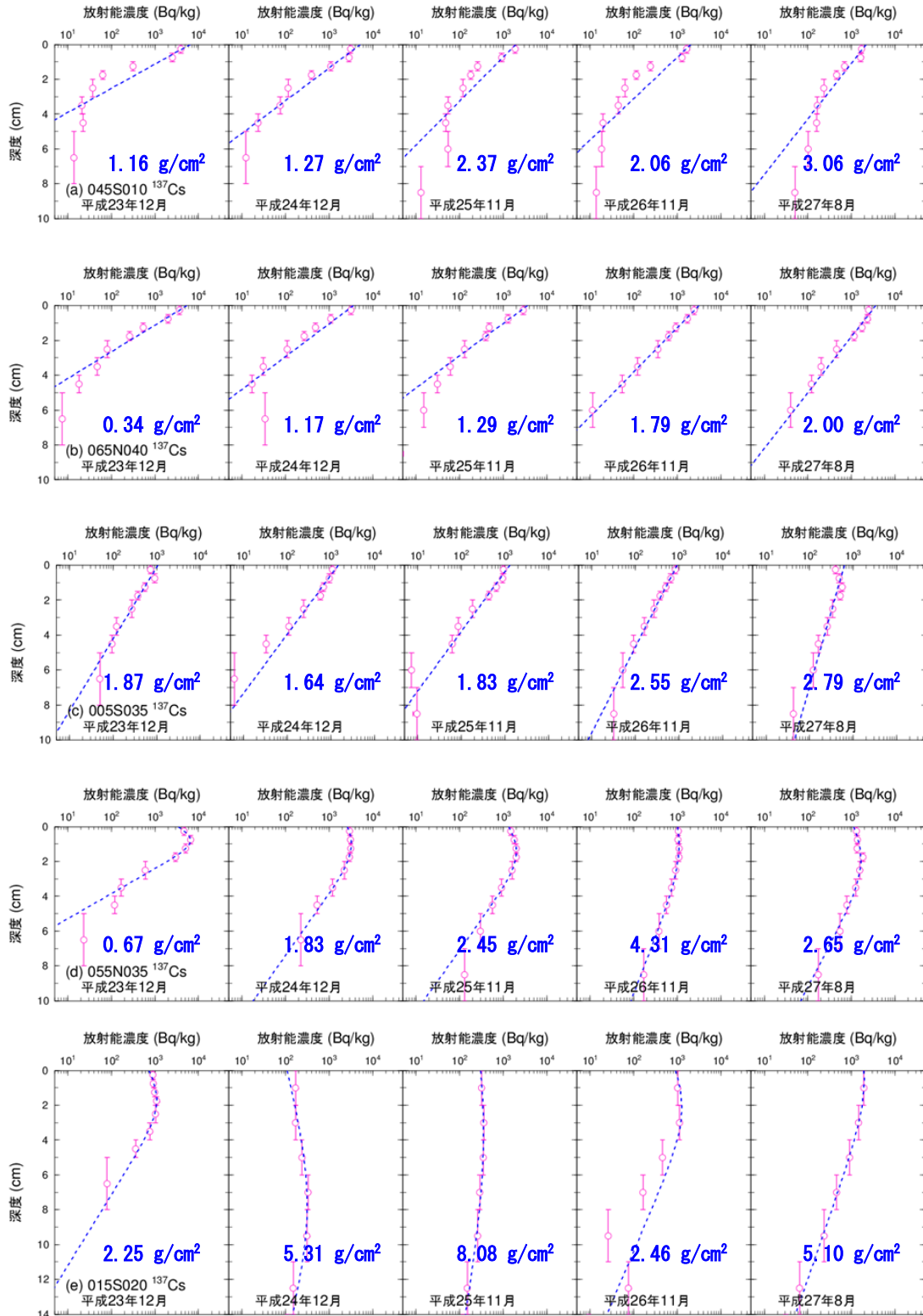


図-3* 粒径組成、交換性カリウム、有機炭素量の分析を実施した土壌採取箇所のセシウム 137 の土壌中深度分布の経時的な変化

((a) 045S010、(b) 065N040、(c) 005S035、(d) 055N035、(e) 015S020)

* 平成 27 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）事業 成果報告書「土壌中の放射性セシウムの深度分布調査」

Appendix-3 放射性セシウムの土壌中深度分布と土壌の性質を分析した結果
 (昨年度の成果報告書「土壌中の放射性セシウムの深度分布調査」より) 2/2

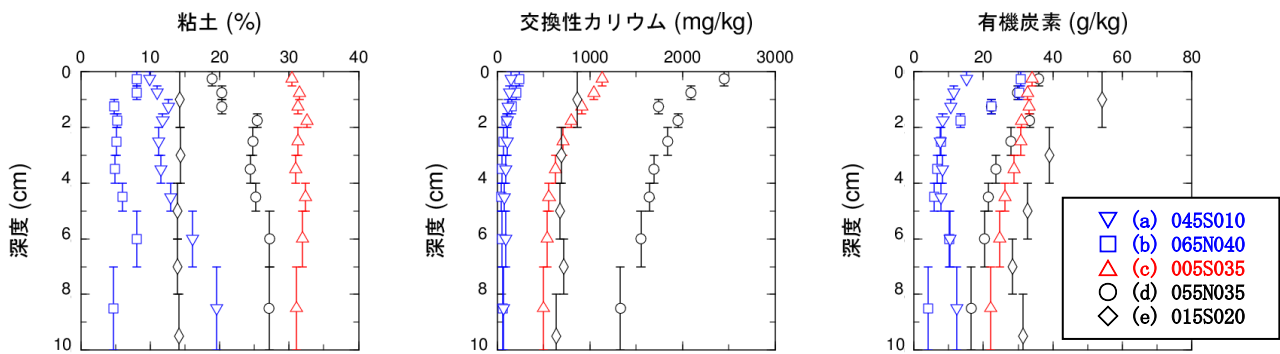


図-6* 粒径組成（このうち、粘土の割合）（左）、交換性カリウム（中）及び有機炭素量（右）の分析結果

* 平成 27 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）事業 成果報告書「土壌中の放射性セシウムの深度分布調査」