土壌中の放射性セシウムの深度分布調査

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。

2. 調査内容

(1)土壤採取期間

平成 29 年 8 月 23 日~9 月 13 日

(2)土壤採取箇所

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28年度の土壌採取箇所(5km×5km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

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28年度の調査 で土壌深部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) 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 (005S025、020N030、040N050及び065N010)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。

採取した各層の土壌は、重量(小石等を含む)を測定した後、十分に撹拌し、既定量を U-8 容器に封入した。

土壌に含まれる放射性セシウムの定量分析

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。

放射性セシウムの土壌中深度分布の作成

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

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。

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、地表面から当該層の中間までの土壌の重量及び土壌を採取した面積(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は、15(cm)×30(cm)=450(cm²))を用いて換 算した。

重量緩衝深度βの解析

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 的に減少することが知られている²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 (ζ)(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。

$$A_{\rm m}(\zeta) = A_{\rm m,0} \exp(-\zeta/\beta) \qquad (\vec{\rm t-1})$$

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 (\Rightarrow 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)は、52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28年度の調査では38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増加した。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。

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

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

ここで、 ξ_0 は放射能濃度が最大となる重量深度(g/cm²)である。 $A_{m,0}$ 、 ξ_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 (= 1/2.7) となる。

なお、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、地表面から約5 cm 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。

² Chernobyl forum expert group 'environment', "Environmental consequences of the Chernobyl accedent 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).

<u>実効的な重量緩衝深度β</u> (の評価)

指数関数的な深度分布の場合は、式-1 が 2 パラメータ(A_m₀ 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/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_m₀、 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関係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関係が指数関数的な深度分布を持つ場合の沈着量と空間 調量率の関係と同じになるよう、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 β_{eff} の詳細な算出方法は、昨年度(平成 28 年度)の報告書⁷ を参照のこと。)。

90%深度 L_{90%}の評価

重量緩衝深度 β (g/cm²)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、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。

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 26 箇所、式-2 を適用した深度分 布は 52 箇所であった。)重量緩衝深度 β の解析を行った。深度分布の全体像を把握すること ができなかった、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っ たため、重量緩衝深度 β の解析を行わなかった調査箇所は、7 箇所(005S025、010N020、010S050、 015S020、020N030、035S045 及び 040S075)であった。(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。

⁵ 本報告書("平成 29 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).

⁷ "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「土壌中の放射性セシウムの深度分布調査」

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、

幾何平均值 2.39 g/cm² (n= 78)、幾何標準偏差 1.62、

最小值 0.75 g/cm²、最大值 6.93 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頻度分布(図-4参照)についても、対数正規分布に近い分布になることがわかったため、幾何平均値を算出した。

実効的な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 3.52 g/cm² (n= 78)、幾何標準偏差 1.73、

最小值 1.08 g/cm²、最大值 10.18 g/cm²

であった。

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数 に対する各調査実施期間における実効的な重量緩衝深度の幾何平均値と幾何標準偏差を図-5 に示す。本調査を開始した平成 23 年 12 月から現在(平成 29 年 9 月)までの実効的な重 量緩衝深度β_{eff}の幾何平均値の経時的な変化は、おおよそ一次関数的な増加を示している (図中の緑の点線)。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降雨量等 による影響を受けるため、β_{eff}の増加傾向には年度や季節といった任意の時間間隔で見た場 合に偏りが存在する。一方で、土壌特性による影響を受けるため、放射性セシウムの土壌中 深度分布の変化の度合いは調査箇所により異なっている。実効的な重量緩衝深度の幾何標準 偏差は、この調査箇所による違いを反映したものである。

(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-6参照) 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。 現在(平成29年9月)の90%深度L90%の幾何平均値は、4.6 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、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、及び外部被ばく線量の評価のために、現在(平成 29 年 9 月)の(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。指数関数的な放射性セシウムの深度分布 (図-2(a)参照)と、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 観測されており、後者の割合の増加に大きな変動があったものの、年々増加する傾向が示さ れている。また、土壌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 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 29 年 8 月 23 日~9 月 13 日)



図-2 セシウム 137 の深度分布の典型的な例(平成 29 年 9 月) ((c) 020N030 の深度分布は、地表面から 8 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を自然対数値としたときの頻度分布



図-4 実効的な重量緩衝深度β_{eff}を自然対数値としたときの頻度分布



図-5 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 (各調査実施期間における実効的な重量緩衝深度の幾何平均値を●、 幾何標準偏差を誤差棒で示す。)



図-6 平成 23 年 12 月からの 90%深度 L_{90%}の経時的な変化及びその幾何平均値



Appendix-1 セシウム 137 の深度分布(平成 29 年度調査) 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 29 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 29 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

75



Appendix-1 セシウム 137 の深度分布(平成 29 年度調査) 4/5

Part2



Appendix-1 セシウム 137 の深度分布(平成 29 年度調査) 5/5

