除染後斜面における放射性セシウムの経時的・空間 的輸送

メタデータ	言語: jpn
	出版者:明治大学農学部
	公開日: 2021-05-28
	キーワード (Ja):
	キーワード (En):
	作成者: 砂川, 優樹, 伊東, 雄樹, 高木, 悠輝, 本多, 隆太,
	西村, 拓, 溝口, 勝, 登尾, 浩助
	メールアドレス:
	所属:
URL	http://hdl.handle.net/10291/21757

〔研究論文〕

除染後斜面における放射性セシウムの経時的・空間的輸送

砂川 優樹¹・伊東 雄樹²・高木 悠輝¹・本多 隆太³
西村 拓⁴・溝口 勝⁴・登尾 浩助^{3*}
(2019年12月16日受理)

Temporal and Spatial Transport of Radiocesium on a Slope after Scraping Surface Soil Off

Yuki SUNAKAWA¹, Yuki ITO², Yuki TAKAGI¹, Ryuta HONDA³, Taku NISHIMURA⁴, Masaru MIZOGUCHI⁴, and Kosuke NOBORIO^{3*}

Abstract

In March 2011, radioactive materials, including radiocesium (Cs), were leaked into the surrounding environment, including forests, farmlands, and houses, during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. To reduce external gamma-ray exposure, Cs deposited on houses and the surrounding area within a 20 m radius from the houses was removed. However, areas beyond the 20 m distance, at a higher elevation on the backyard hill slope, remained uncleaned. We were concerned that surface runoff might move the remaining Cs at the higher elevation on the backyard mountain slope down on the slope surface to the lower elevation, where Cs had been removed. The objective of this study was to investigate how Cs was transported on the slope after its removal. On the south-facing slope located in the north of the houses in the Iitate Village, Fukushima Prefecture, topsoil with a litter was collected several times a year, between April 2015 and February 2019. The concentrations of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs were measured using a *γ*-ray spectrometer equipped with a Ge semiconductor detector. The topsoil sampling locations were chosen at Cs-remained, upper Cs-removed, middle Cs-removed, and lower Cs-removed areas along the backyard hill slope, and the lowest Cs-removed area was added in April 2016. Sampling locations were triplicated at a similar elevation to one another. Since the temporal gradients of cumulative rainfall and Cs concentrations at all the locations tended to correspond, Cs might have been transported along the slope with surface runoff. When the half-life of ¹³⁷Cs (approximately 30 years) was taken into account, the concentrations of ¹³⁷Cs at the lower and the lowest Cs-removed areas were often lower than estimates accounting for natural decay. Since the accumulating rates of ¹³⁷Cs concentration after 2017 become

4 東京大学大学院農学生命科学研究科 〒113-0032 東京都文京区弥生1丁目1-1

Email: noboriok@meiji.ac.jp TEL: 044–934–7156; FAX: 044–934–7156

¹ 明治大学大学院農学研究科 〒214-8571 神奈川県川崎市多摩区東三田 1-1-1

Graduate School of Agriculture, Meiji University, 1–1–1 Higashi-mita, Tama-ku, Kawasaki, Kanagawa, 214–8571 Japan ² Gilat Research Center, Soil and Water, Agricultural Research Organization, Negev 2, 85280, Israel

Gilat Research Center, Agricultural Research Organization, Israel

³ 明治大学農学部 〒214-8571 神奈川県川崎市多摩区東三田 1-1-1

School of Agriculture, Meiji University, 1-1-1 Higashi-mita, Tama-ku, Kawasaki, Kanagawa, 214-8571 Japan

Graduate School of Agriculture and Life Sciences, The University of Tokyo, 1–1–1 Yayoi, Bunkyo-ku, Tokyo 113–8657 Japan * Corresponding Author: Kosuke NOBORIO

smaller than previous years in the same areas, Cs might have moved vertically in the soil while flowing down the slope surface.

Key words: cumulative concentration, decontamination, radioactive, surface runoff

要 旨 2011年3月に発生した福島第一原子力発電所の事故により放射性セシウム(Cs)などの放射性物質が放出 され、環境を汚染した。空間線量低減のため、汚染された地域では宅地から水平方向に半径20mを目安とした除染 が行われた。しかし、除染対象範囲に裏山が含まれる箇所では、宅地から半径20m以遠の斜面上部に未除染地が残 存している場合がある。地表面に降下した Cs の大部分は土壌表層に存在し、放射性物質の大部分は表面流出水によ り斜面上部から下部へと移動すると考えられる。したがって、斜面上部の未除染地から斜面下部の除染が実施され た区域にかけて Cs が表面流出水とともに移動し、再汚染を引き起こすことが懸念される。そこで本研究では、除染 後の斜面における Cs 輸送を明らかにすることを目的とした。福島県相馬郡飯舘村北部の除染が実施された宅地の北 側の南向き斜面において、2015年4月から2019年2月にかけて、年間数回リター層を含む表土(黒ボク土)を採取 し、Ge半導体 y 線検出装置により ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs 濃度を測定した。採取地点は、斜面上部より未除染部、上部、中 部,および下部,2016年4月より最下部を設定し,各高度について水平方向に3地点を設定した。積算降水量と積 算 Cs 濃度のグラフの傾きが連動する傾向にあることから、Cs は斜面上を表面流出水と共に流下したと推察され た。未除染部と上部では Cs 濃度の急激な増加が見られたことから、未除染部よりさらに上方の未除染斜面が Cs の 供給源であると考えられた。¹³⁴Csと¹³⁷Csの半減期(それぞれ約2年と約30年)を考慮した濃度変化をみると、 ¹³⁴Cs 濃度は放射性崩壊で予測される値に収束しつつあった。一方で、¹³⁷Cs 濃度は中部以下の高度において放射性 崩壊で予測される値を下回ることが多かった。また、下部および最下部では2017年以降の積算¹³⁷Cs 濃度のグラフ の傾きが著しく小さいことから、Cs は斜面表面を下方へと流下しつつ、土壌中を鉛直下方向にも移動した可能性が ある。

キーワード:積算濃度,除染,放射能,表面流出

1. はじめに

2011年3月に発生した福島第一原子力発電所の事 故により放射性物質が放出され、広範囲で土壌が汚染 された。放出された主要な放射性物質は放射性ヨウ素 と放射性セシウム(Cs)であり、特にCsの半減期は ¹³⁴Csが約2年、¹³⁷Csが約30年と長い(芝田ら 2012)。そのため、環境中でのCsの移動メカニズム を理解し、Csによる汚染の広がりをモニタリングす ることが求められている。生活空間における空間線量 低減のため、汚染された宅地や農地において除染が行 われ、宅地における除染対象範囲は宅地から水平方向 に20mが目安とされた(環境省 2017)。除染対象範 囲が裏山となっている箇所では下草刈りや落葉等の堆 積有機物の除去(林床処理)が行われたが、宅地から 半径 20m以遠の斜面上部には未除染地が残存してい る。

Csはアルカリ金属であるため土壌中で一価の陽イ

オンとして存在し,負に荷電した土粒子や有機物に吸 着される。一方で,Csは水和力が小さいので,脱水 和しやすい。さらに脱水和したCsは,2:1型粘土鉱 物の面(Plane)の部分にあるケイ素四面体シートの ケイ素四面体6個で構成される六員環に入り込むこ とができる。バーミキュライトやイライトはCsを六 員環に入れたまま層間を閉じることができるので,閉 じた層間にあるCsは容易に溶脱されなくなる(山口 ら 2012)。これらの理由により,土壌中で二価の陽 イオンとなる放射性ストロンチウム(Sr)と比較し てCsは土壌に固定されやすく,Csの土壌中におけ る鉛直下方向の移動はSrと比較して大変遅いことが 報告されている(津村ら 1984; Mahara 1993)。

また,林床処理を行った森林土壌中には,¹³⁷Csの 大部分が移動しにくい形態として存在しており(斎藤 ら 2015),地表面に降下した Csの大部分は土壌表層 に存在することが報告されている(林野庁 2017)。 放射性物質は表面流出水により斜面上部から下部へと 移動し(錦織ら 2015),特に¹³⁷Csはその半減期の長 さから土壌侵食の研究に利用されている(Ritchie and McHenry 1990; Walling 1998)。山本ら(2014) は林床処理を行った斜面から土砂流出に伴って¹³⁷Cs が流出したことを報告している。

したがって,斜面上部の未除染地から斜面下部の除 染が実施された区域にかけて Cs が表面流出水ととも に移動し,再汚染を引き起こすことが懸念される。除 染後の斜面において,どれほどの量の Cs がどの範囲 まで移動するかは未解明であり,生活圏に近い裏山の 斜面上における Cs の輸送量を明らかにすることは被 災地の復興に重要である。そこで本研究では,除染後 の斜面における Cs の輸送を明らかにすることを目的 とした。

2. 材料と方法

福島県相馬郡飯舘村北部の除染が実施された宅地の 北側に位置する南向き斜面において調査を実施した。 対象とした斜面の調査範囲における傾斜角度の範囲は 30°から37.3°であり,標高は約415から430mであっ た。採取地点は,当初は格子状に12地点とし,斜面 上部より未除染部,上部,中部,および下部の4高 度,各高度について西列,中列,および東列の3地 点を設定した。下部よりさらに下方へとCsが移動し ているかどうかを調べるために,2016年4月に下部 の下方に最下部を設置し,採取地点を計15地点,5高 度とした。5高度の内,未除染を除く4高度では2014 年11月までに林床処理が完了し,その後除草を定期 的に行った。採取地点の位置関係を図1および図2 に示す。図1の建物の裏側に通路があり,最下部は 通路に隣接している。

2015年4月から2019年2月にかけて,1年に数回 リター(落葉および落枝)を含む表土(黒ボク土)を 採取した。採取地点に目印をつけ,目印から半径約 50 cmの範囲で移植ゴテを用いて表土をランダムに数 回薄くすくい取った。Csは土粒子による吸着や固定 を受けるので,Csの大部分は土壌表層に存在する (林野庁 2017)。そのため,一度表土を採取した後に 全く同一の地点で表土を採取すると,Cs濃度が大き く減少する恐れがある。そこで,目印を中心として表 土を採取する位置を測定日ごとに無作為に変更した。

土壌試料は105±5℃で24時間以上炉乾燥した後, 2 mm 篩を通過し,粗大な有機物を取り除いた試料を 内径 50 mm,容積 100 mLのポリスチレン製円筒容 器(アズワン株式会社製)に厚さ1 cm となるように 均一に充填し,Ge 半導体 y 線検出装置(Princeton Gamma-tech Instruments 社製,U.S.A.)を用いて ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs 濃度を測定した。測定時間は1 試料あ たり1,000から2,000秒とした。

また,各高度における測定開始期の Cs 濃度(X₀) に対する,放射性崩壊ではない Cs 濃度の変化割合か ら,Cs 濃度の変化率(ここでは非放射性崩壊変化率 と呼ぶ)を式(1)により算出した。

$$Y = \left\{ \left(\frac{X_t}{X_0} \right) - \left(\frac{X_0 \times 0.5 \frac{t}{t_0}}{X_0} \right) \right\} \times 100 \tag{1}$$

ここで,Yは非放射性崩壊変化率(%),X_tは測定日



図1 土壤試料採取地点(2015年4月26日撮影)



図2 最下部から各土壌試料採取地点までの相対距離と相対高度。■は西列,▲は中列,●は東列を表す。

における Cs 濃度, t は初回の測定日より経過した時 間(年), t_0 は半減期を表し, ¹³⁴Cs では2.06年, ¹³⁷Cs では30.17年とした。Y>0は Cs の流入を, Y<0は Cs の流出を表す。

降水量とCsの移動量の比較には,気象庁の飯舘ア メダス観測点(北緯37°39.9',東経140°43.6',標高 463 m)における観測降水量を使用した。飯舘アメダ ス観測点は調査対象地から南南東に直線距離で約5 km離れている。両地点間の標高差は約30~50 m で,両地点と周辺地域,および両地点の間は主に丘陵 地となっている。

3. 実験結果 · 考察

各測定日の各高度における3地点の¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs の濃度を平均し,前回測定日より増加した場合 のみ積算し,これを測定期間中の降水量の積算と比較 した(図3)。また,各高度における非放射性崩壊変 化率を図4に示す。図3および図4のエラーバーは それぞれの±1標準偏差(n=3)を表す。非放射性崩 壊変化率のグラフ(図4)では¹³⁴Csと¹³⁷Csは同時 に増減する傾向にある。¹³⁴Csと¹³⁷Csは互いに同位



図3 積算降水量と(a)積算¹³⁴Cs 濃度および(b)積算¹³⁷Cs 濃度 の経時変化で。バーは±1標準偏差(n=3)を表す。

体であるので、その化学的特性に差がほとんどないと みなすことができ (Michener and Lajtha 2007;山 ロら 2012)、図4から¹³⁴Csと¹³⁷Csは対象の斜面を 同様に移動したと考えられる。図3(a)では中部の積 算¹³⁴Cs濃度が上部よりも高くなっているが、これは ¹³⁴Csの放射性崩壊を考慮していないためである。



図4 観測期間中の(a)未除染部,(b)上部,(c)中部,(d)下 部,(e)最下部における¹³⁴Csと¹³⁷Cs濃度の非放射性崩 壊変化率。バーは±1標準偏差(n=3)を表す。

図 3(b) では2018年に上部の積算¹³⁷Cs 濃度が中部よ り高くなり,高度が高いほど濃度も高くなるグラフと なった。

積算 Cs 濃度(図 3)と非放射性崩壊変化率(図 4) のグラフはどれも標準偏差が大きいことから,西列, 中列,および東列間における Cs 濃度の空間変動性が 非常に大きかったと考えられる。ここで,野生動物に よる撹乱について,イノシシによると見受けられる土 壌の掘り返しが,測定地点の至る所に確認された。撹 乱を受けた地点や撹乱の程度はランダムであったこと が,Csの移動量を変化させ,空間変動性の増大に寄 与した可能性がある。また,Cs が降下した際の空間 分布にばらつきが大きかった可能性も考えられる。

積算降水量のグラフの傾きが大きい時に積算 Cs 濃 度の増加幅が大きくなる傾向にある(図 3)ことから, Cs は斜面上を表面流出水と共に流下したと推察され る。また,斜面の上方ほど積算 Cs 濃度が高い傾向に ある(図 3)ことから,未除染部よりさらに上方の斜 面が Cs の供給源となっていると考えられる。このこ とは未除染部と上部における非放射性崩壊変化率のグ ラフ(図 4 a, b)に,大きな流入を示す時期が他の高 度のグラフよりも顕著に存在することからも裏付けら れる。

積算¹³⁴Cs(図3a)について,2015年から2017年 にかけて(最下部は2016年から2017年)のグラフの 傾きと比較すると、それ以降のグラフの傾きが小さく なっている。これは、¹³⁴Csは半減期が約2年であ り、測定期間(約3.8年)の間に半減期を経ており、 斜面上を移動可能な¹³⁴Csの絶対量は減少し続けてい るためであると考えられる。積算¹³⁷Cs濃度のグラフ (図3b)について、未除染部と上部に比べると、下 部および最下部では2017年以降グラフの傾きが著し く小さくなっている。これは、下部および最下部に流 入する¹³⁷Csの量が減少傾向にあることを示してい る。ただし、最下部では測定期間中に工事作業の実施 や花卉の植栽がなされる等、人的撹乱の影響が大きか った。

興味深いことに,測定開始以降¹³⁴Cs濃度のランダ ムな増減があったにも関わらず,各高度における ¹³⁴Cs 濃度は放射性崩壊で予測される値に収束しつつ あるように見える(図4)。中部以下の高度における ¹³⁴Cs の変化率は負の値となることが多いことから (図4c,d,e),本調査地では斜面上方から流下した ¹³⁴Cs が斜面下方へ到達するよりも早い速度で¹³⁴Cs が地表面から消失していると考えられる。¹³⁷Cs の非 放射性崩壊変化率は未除染部と上部で正の値が多く見 られる(図4a,b)。未除染部より上方の斜面および 未除染部が供給源となり,¹³⁷Csが消失するよりも速 くそれぞれの下方へと流出していると考えられる。一 方で中部,下部および最下部における非放射性崩壊変 化率は負の値が多く見られた(図4c,d,e)。このこ とは,表面流出水により流下した¹³⁷Csは下部および 最下部に堆積せずに,放射性崩壊以外の原因で斜面の 表面から消失したことを示している。

ここで、Cs は降雨と共に表面を流れるだけでな く、土壌中へと鉛直下方向にも移動する。対象の斜面 は裏山に位置し、有機物が豊富な土壌である。有機質 土壌では Cs の鉛直下方向への移動が速いことが報告 されている(西村 2014)。これは粘土鉱物に結合し た有機物が、Cs の粘土鉱物内の固定サイトへのアク セスを制限する(Rigolら 2002)ことが理由として 考えられる。一方で、飯舘村周辺の土壌は花崗岩起源 であるので、花崗岩から生成されたイライトやバーミ キュライトといった Cs を固定可能な粘土鉱物が飯舘 村の土壌中に存在することが確認されている(勝田ら 2016)。したがって、対象の斜面では Cs の鉛直下方 向への移動が制限あるいは促進される両方の要因が存 在している。

また,植生は降雨のエネルギーを吸収することでク ラストの形成を抑制し,浸透能の低下を防ぐことがで き,茎や落葉は地表流の流速を減衰させるので,土壌 侵食が抑制される(北原 1998)。対象の斜面は冬期 を除き地表が下草に覆われているため,よほどの降雨 強度でない限り卓越した表面流は生じないと考えられ る。ここで,下部および最下部における2017年以降 の積算¹³⁷Cs濃度のグラフの傾きは著しく小さく(図 3b),非放射性崩壊変化率は負の値が多く見られた (図4d,e)ことを鑑みると,雨水が土壌中に浸透し Cs を鉛直下方向に輸送した可能性も十分に考えられる。本研究では、対象とした斜面において、除染の効果を打ち消すほどの量の Cs は下部や最下部まで移動していないことが明らかにされた。

各土壤採取日の間隔が長いため,降雨強度と非放射 性崩壊変化率の変化との明確な関係は観察されなかっ た。対象地域は冬期に表層土壤が凍結し,それに続く 春先の土壤融解による表面侵食が発生していると考え られる。しかし,本研究では地温および流出した土砂 の量を測定していないので,凍結融解による表面侵食 がCsの輸送量に与える影響は未だ不明である。今後 も調査を継続し,凍結融解による表面侵食,鉛直下方 向のCs濃度分布と存在形態についても調査し,Cs の斜面水平方向の移動と合わせた包括的な議論が必要 である。

4. まとめ

本研究では、福島県飯舘村において除染が実施され た斜面上のCs移動を2015年4月から2019年2月にか けて調査した。降水量が多い時に各調査地点における 積算Cs濃度が増大する傾向にあることから、Csは 対象の斜面を雨水と共に流下したと考えられる。特に 未除染部と上部では多量のCsが流入し続けているこ とが観測でき、その供給源は未除染部よりもさらに上 方の斜面であると考えられる。

積算¹³⁴Cs 濃度のグラフの傾きは,極端な増加が散 見されるが,概して時間の経過と共に小さくなった。 放射性崩壊を考慮した各調査地点における¹³⁴Cs 濃度 の変化率を見ると,¹³⁴Cs 濃度は放射性崩壊で予測さ れる値に収束しつつあるように思われる。これらのこ とから,本調査地では斜面上方から流下した¹³⁴Cs が 斜面下方へ到達するよりも早い速度で¹³⁴Cs が地表面 から消失していると考えられる。

下部および最下部では2017年以降の積算¹³⁷Cs濃度 のグラフの傾きが著しく小さいことから,同地点に流 入する¹³⁷Csの量は減少傾向にあり,¹³⁷Csの非放射 性崩壊変化率は下部および最下部で負の値を多くなっ た。これらより,流下した¹³⁷Csは下部や最下部に堆 積していないことが示された。対象とした斜面では, 除染の効果を打ち消すほどの量の Cs は下部や最下部 まで移動していないことが示された一方で, Cs は斜 面表面を下方へと流下しつつ,土壌中を鉛直下方向に も移動した可能性がある。

謝辞

本研究の一部は,科研費(課題番号:15H02467; 研究代表:西村拓),2016,2017年度明治大学教育研 究振興基金事業(研究事業),および2017,2018年度 明治大学大学院教育振興費の助成により実施した。認 定 NPO 法人ふくしま再生の会の菅野宗夫氏と会員の 皆様には斜面の管理と試料採取にご尽力いただいた。 深謝いたします。

引用文献

- 勝田洋平・木村叡人・市田和子・森也寸志・登尾浩助 (2016), 福島県飯舘村における水田土壌の物理性.土壌の物理性, 133: 29-36
- 環境省 (2017),森林の除染等について.http://josen.env.go.jp/ about/efforts/forest.html (アクセス日2020年2月17日)
- 北原 曜 (1998),森林が表面侵食を防ぐ.森林科学,22:16-22
- 斎藤 翔・小林達明・高橋輝晶・山本理恵・平野堯将(2015), 林床処理を行った二次林と畑地の放射性セシウムの土壌吸着 様式.日本緑化工学会誌,41(1):3-8
- 芝田隼次・古屋仲茂樹・村山憲弘・伊与木茂樹(2012),福島 原子力発電所から排出される放射性物質を含む汚染水の処理 技術の開発.京都大学防災研究所年報,55:23U-11
- 津村昭人・駒村美佐子・小林宏信(1984),土壌及び土壌一植 物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関す る研究.農業技術研究所報告 B, 36:57-113
- 錦織達啓・伊藤祥子・辻 英樹・保高徹生・林 誠二 (2015), 林床被覆の違いが土壌侵食に伴う放射性セシウムの移動に及 ぼす影響.日本森林学会誌,97:63-69
- Mahara Y. (1993), Storage and migration of fallout strontium-90 and cesium-137 for over 40 years in the surface soil of Nagasaki. Journal of Environmental Quality, 22: 722–730.
- Michener R and Lajtha K. Stable isotopes in ecology and environmental science. second edition. pp. 6. Blackwell Publishing Ltd., Massachusetts, U.S.A. 2007.
- 西村 拓 (2014), 土壌中の放射性 Cs の移動, 土壌の物理性, 126: 37-43.
- Ritchie JC and McHenry JR. (1990), Application of radioactive fallout cesium-137 for measuring soil erosion and sediment accumulation rates and patterns: a review. Journal of Environmental Quality, 19: 215–233
- Rigol A, Vidal M and Rauret G. (2002), An overview of the effect of organic matter on soil-radiocaesium interaction: implications in root uptake. Journal of Environmental Radioactivity, 58: 191–216.
- 林野庁(2017),平成28年度森林内の放射性物質の分布状況調

査結果について. http://www.rinya.maff.go.jp/j/kaihatu/ jyosen/H28_jittaihaaku_kekka.html (アクセス日2020年2月 17日)

Walling DE. (1998), Use of ¹³⁷Cs and other fallout radionuclide in soil erosion investigations: progress, problems and prospects. International Atomic Energy Agency, 29(38): 39– 62

山口紀子・高田裕介・林健太郎・石川 覚・倉俣正人・江口定

夫・吉川省子・坂口 敦・朝田 景・和穎朗太・牧野知之・ 赤羽幾子・平舘俊太郎(2012),土壌一植物系における放射 性セシウムの挙動とその変動要因.農環研報,31:75-129

山本理恵・小林達明・江幡知紗・篠崎敬太・小嶋大地・太田祥 子・宮本ウルルマ・高橋輝昌・鈴木弘行・関崎益夫・星澤保 弘・小竹守敏彦・保高徹生・辻 英樹(2014),原発事故被 災地の丘陵地広葉樹林斜面林における林床放射能低減試験と その後の水土流出、日本緑化工学会誌,40(1):130-135