

特集

土壌中の放射性 Cs の深度分布モニタリング: 次の 10 年へ向けて



高橋 純子 Takahashi Junko

1. 土壌中の Cs に関する研究の歴史

Cs は土壌に強く吸着する。だからこそ福島第一 原子力発電所事故後,表土剥ぎ取りという除染が効 果を発揮し,作物への吸収・移行が抑えられた。こ の性質は除染廃棄物の減容化を困難にしている面も あるが,土壌が沈着した放射性 Cs を強く保持した からこそ,他の生態系への汚染の拡大を最小限に食 い止められたことは確かであろう。

この Cs は土壌に強く吸着する,という知見は実 に 1930 年代には報告されている¹⁾。NH₄ イオンで 飽和させた土壌や粘土鉱物に種々の塩溶液を通過さ せ,溶出してくる NH₄ イオン量を見るという間接 的な実験ではあるが,Cs 塩溶液は他の塩溶液より NH₄ イオンを溶出させる効果が高い,つまりは他の イオンよりも強く吸着するということが示されてい る。

その後の原爆投下に続く核実験の始まりにより, 1950年代には¹³⁷Csの作物への移行に関心が集まっ ている。わが国でも,1957年から40年以上にわたり, 土壌及びいくつかの作物中の¹³⁷Cs 濃度のモニタリ ングが実施されてきた²⁰。1960年代には放射性 Cs を用いた添加実験が容易にできるようになったこと から,その特異な吸着メカニズムに迫る研究が盛ん に行われている。中でも,Sawhneyによる総説³⁰は この時代の優れた研究がまとめられており、今日で も通用する数多くの知見が登場していることに驚か される。例えば、粘土鉱物(特に雲母類)に強く吸 着する陽イオンの特徴は水和エネルギーが低いこ と、雲母鉱物の風化(層間からのKイオンの溶脱) は外縁部からはじまり内部へ向けて進行すること、 風化の進行と共にCsの吸着選択性は増加するもの の、層間のKが溶脱され尽くすとその選択性は減 少すること、等である。これらの結果から、Csは 雲母鉱物層間に入り込むと、脱水及び層間の収縮を 促し、他の陽イオンでは容易に交換されなくなるも のと考えられ、特にKが溶脱した膨潤層と非膨潤 層の境はフレイド・エッジ・サイト(FES)と呼ばれ、 Csの特異吸着メカニズムとして広く定着している。

実際には、FES はチオ尿素銀錯体や高濃度の Ca-K 存在下でも吸着される Cs があることから提唱 された概念に過ぎず⁴⁾,福島事故後に改めて行われ てきた数々の Cs 吸着メカニズムに関する報告の中 には、FES があると考えられる雲母鉱物周縁部を削 除しても放射能の減少は認められないこと、層間の 深部まで Cs が入り込めること等から、その存在を 疑問視する声もある⁵⁾。しかし、自然環境中で沈着 した Cs が実際に吸着選択性の高い粘土鉱物へ集中 して存在していることや、一度土壌に吸着するとほ とんど溶出されないことは事実として古くから観測 されている。

1970年代には γ線の半導体検出器が普及してき たことと重なり、広く土壌中の放射性 Cs 濃度が測 定されるようになった。わが国でも、1976年に当 時の厚生省の主導で広島・長崎の原爆による土壌中 の残留放射能の調査が 200 地点以上にわたり実施さ れ、グローバルフォールアウトとの差がないことが 確認された⁷⁰。また、この頃には放射性 Cs は、そ の存在量の収支や濃度の深度分布から土壌の侵食・ 堆積を追跡するためのトレーサとして注目され始 め、現在でも広く利用されている。

2. チェルノブイリ原子力発電所事故を経て

1986年に発生したチェルノブイリ原子力発電所事 故による環境影響に関する論文数はちょうど10年後 の1996年にピークとなり、その後ゆるやかに減少 しているものの、現在でも環境モニタリングが継続 され、追いきれないだけの研究が報告され続けてい る。その中で、特に土壌中の放射性Csの深度分布 と下方移行に関して、2つだけ重要かつ興味深い知 見を紹介したい。

1つ目は、事故後最初の雨の直後に深度別に土壌 サンプリングを実施した研究である⁸⁾。筆者が知る 限り、福島事故後最初に土壌中の放射性 Cs 濃度の 深度分布が調査されたのは4月29日でその間に計 5回約89mmの降雨があったため⁹⁾、最初の降雨に よる初期分布を調べたものはこれしかない。この中 では、事故により沈着した Cs は表層2cm 以内にほ ほそのすべてが分布している一方、20cm 深にも事 故由来の¹³⁴Cs がわずかながらに検出されたことが 示されている。

2つ目は、スウェーデンで行われた様々な土壌型 の草地における深度分布モニタリングである^{10,11}。 1987年から2005年にわたり数年に1度の調査が実 施されており、頻度・期間共に最もデータが充実し ている研究であろう。この中では、Csを吸着する 鉱物に乏しい有機質土壌(泥炭土)が最も深度分布 の変化、すなわち下方移行が大きいこと、その下方 移行速度は時間と共に減少すること等が明らかにさ れている。また、同時に草本中の¹³⁷Cs濃度も測定 しており、移行係数(草本/土壌の¹³⁷Cs濃度比) が年々小さくなることも示している。これは、土壌 のエージング効果としても知られており,福島第一 原発事故が発生した当初,限られた情報の中でもこ の知見に基づき「来年の農作物がもっと悪くなるこ とはない」と言えたことは非常に大きかった。

3. 山木屋地区におけるモニタリング調査

筆者らのグループは、文部科学省(H23~24), 原子力規制委員会(H24~25),日本原子力研究開 発機構(H26~R2)の委託を受け、事故直後から陸 域を中心とした放射性Csのモニタリングを実施し てきた。特に、旧計画的避難区域であった福島県川 侯町山木屋地区において、森林樹冠への沈着から林 内雨や樹幹流を通じた林床への移行、リター(落葉 落枝)層・鉱質土壌中での深度分布と下方移行、土 砂侵食及び渓流を通じた生態系外への流出までの一 連の放射性Cs動態を評価するためのシステムを構 築し、今日まで観測を継続している。

その中で,筆者が担当しているのが土壌中の深度 分布モニタリングであり,スクレーパープレート(図1) を用いて最小5mm間隔で15cm×30cmの枠内の 土壌を少しずつ剥ぎ取るサンプリングを年に1度 行っている。放射性Csがほぼ検出されなくなる 10cm程度までの土壌を採取することによって,深 度ごとの濃度(Bqkg⁻¹:単位重量あたりに含まれる 総量)と単位面積あたりの存在量(Bqm²)を正確 に評価することが可能である¹²⁾。当初は畑地や牧草 地,放棄水田等土地利用を異にする8地点について モニタリングを実施していたが,除染の推進もあり, 現在は帰宅困難区域である浪江町を加えた森林での



図1 スクレーパープレート(塚原製作所製)



図 2 スギ若齢林における¹³⁷Csの深度分布(上)及び各層 の存在割合(下)の時間変化¹³⁾

調査が中心となっている。

図2はその中のスギ若齢林の結果であるが、 深度 分布(上)が示すように、2011年時点ではまだ樹 冠や幹、リターに付着していた¹³⁷Cs が多く、それ が徐々に林床へと沈着したため,時間と共に林床(リ ター+鉱質土壌)の濃度及び存在量が顕著に増大し た。リター層中の¹³⁷Cs存在割合(下)は、2011年 時点では90%を超えていたが、2019年時点では約 3%と指数関数的に減少している。チェルノブイリ 事故の影響地域の森林では、これが直線的な減少で あり、10年が経過してもまだ50%以上がリター層 中に留まっていたという報告が多く、生物利用性の 高いこのリター層の¹³⁷Cs が森林生態系の循環の ソースとして重要であると言われていた¹⁴⁾。一方. 福島では他の調査地点や他の研究グループのモニタ リングでも同様に急速な減少が認められており¹⁵⁾ おそらくより高温多雨な環境下でリターの分解が速 やかに進むために、リターから鉱質土壌表層への ¹³⁷Csの移行はチェルノブイリよりも速いことが明 らかとなっている。また、調査した3地点の森林は いずれも2~3年のうちに、リター層中と最表層0 ~0.5 cm の ¹³⁷Cs 濃度の大小が逆転した。

更にその下, 鉱質土壌中での動態については, そ の濃度・存在割合共に徐々に増加しており, わずか ではあるが下方へ移行していることが示された。



図3 耕作放棄水田における¹³⁷Csの深度分布(上)及び平 均移動距離(左下),0~5cm中の存在割合(右下)の時間 変化¹⁶

10 cm 以下は 2011 年時点では検出できなかった のに対し、2018~2019 年時点では 0.2~0.3 Bg g⁻¹と 最表層 0~0.5 cm の 0.3%ほどの濃度が確認された。 しかし, 依然として表層 0~6 cm 以内に 90%以上 の¹³⁷Cs が分布している状況である。cm 単位の深度 分布は場所によるばらつきも大きく、チェルノブイ リと比較したとき、あるいは森林タイプの違いによ り、その移行速度に有意な差を見つけることは難し い¹⁵⁾。しかし、既に樹冠及びリターからの鉱質土壌 への供給が少なくなってきているにも関わらず、濃 度のピークが最表層から移動していない点は興味深 い。チェルノブイリ事故からある程度(7~21年) 経過した深度分布パターンとしては,表層5cm以 内に釣り鐘状の濃度ピークがあるものが最も多く報 告されていることを考えると ¹⁷⁾.移行メカニズムに 何らかの違いがあるのかもしれない。

森林の他,初期に実施していた畑地,草地でもチェ ルノブイリと大きく異なるような傾向は得られな かったが,耕作放棄水田だけは顕著な下方移行が認 められた。1地点のみの結果ではあるが,2011年時点 では深さに伴い指数関数的に減少していた¹³⁷Cs濃 度が2014年時点でほぼ均一になっていた(図3上)。 その存在量の半分が分布している深さを平均移動距 離とみなすと,年間約1.3 cmの速さで移動した計 算となる(図3左下)。これは,これまでに報告さ れてきた鉱質土壌における移動速度よりも有意に大 きく,2015年に実施された表土5cm剥ぎ取りとい う除染の後の再調査では、100kBqm²以上が残存 しており、表土剥ぎ取りにより50~70%程度しか除 去されていないことが明らかとなった。図3右下は 0~5cm中の¹³⁷Csの存在割合の時間変化であるが、 これを除染により除去され得る量と読みかえると、 除染が1年遅れるごとに15%除去効率が下がる計 算になる。この放棄水田は砂質だが透水性の悪い硬 盤層が作土層の下にあり水はけが悪く、それがこの 顕著な下方移行の原因ではないかと考えているが、 詳しい移行メカニズムを明らかにすることはできな かった。

4. 今後の課題と展望

このように、事故から 10 年が経過し、チェルノ ブイリ事故では得られなかったような詳細な深度分 布の時間変化データが蓄積されている。空間線量率 の変化や下方浸透モデルの改良に足るだけのデータ が揃ってきたと自負しているが、肝心の移行メカニ ズムに関しては未解明な点が多い。これまで、移行 メカニズムとしては降雨に伴う浸透、土壌水分を通 じた拡散、土壌動物の撹乱や土壌の凍結溶解等によ る機械的な混和等が考えられてきたが、モデルを用 いた評価が主流で、それぞれの寄与を実測した例は ほとんどない。そこで、現在、降雨中の土壌浸透水 や植物根中の¹³⁷Cs 濃度の測定を行っており、下方 移行に与える寄与率の推定を試みている。

また、リターや土壌を通過し、渓流・河川へ流出 する¹³⁷Csは溶存態・懸濁態(粒子態)共にチェル ノブイリよりも1~2桁明確に低いことが明らかと なっている¹⁸⁾。その差は、森林樹冠や土壌中での移 行で認められる差よりもはるかに大きい。都市部を 通過する下流の懸濁態に関しては、除染や耕作等に より生活圏の表層土壌中の¹³⁷Cs濃度が著しく減少 したことが大きな要因であるが、ほぼ森林しかない 源頭部の渓流水中の懸濁態でも同様にチェルノブイ リより低い傾向にあるという。この理由はまだ未解 明であり、森林における土壌侵食のソースを考える 上で非常に興味深い。

また、最大の課題はこの10年間で得られた成果 を次の10年に繋げることだと感じている。もし次 の事故が起きてしまったときに、これらのデータが 活かされるような備えや議論が十分にされていると は現状言い難いだろう。そして、やはり福島第一原 発事故の記憶が人々から徐々に薄れつつあることも 実感している。これに対して、本センターでは、現 在データやサンプルのアーカイブ化を進めており, 研究ネットワークの維持拡大に努めている。また, 文部科学省の支援を受け、2016年からは大学院生 を対象に原子力緊急時の環境影響評価に資する人材 育成プログラムを実施している。モニタリングを継 続することの最大の意義は、データの蓄積と共に、 有事の際にすぐに使えるようその技術と人材を繋い でいくことであろう。次の10年はもしかしたらほ ぼ変わることのない深度分布図が増えていくだけか もしれない。それでも、2度と有事が起こらないこ とを祈りつつ、モニタリングを継続していきたい。

参考文献

- 1) Jenny. H., J Phys Chem, 36, 2217-2258 (1932)
- 2) 駒村美佐子,他,農環研報告,1-21 (2006)
- 3) Sawhney. B., Clays Clay Miner, 20, 93-100 (1972)
- 4) Wauters. J., et al., Appl Geochemistry, 11, 589-594 (1996)
- 5) 木暮敏博, Isotope News, 735, 29-33 (2015)
- 6) Francis. CW., et al., Nature, 260, 511-513 (1976)
- 7) (財)日本公衆衛生協会, pp65 (1976)
- 8) Schimmack. W., et al., Geoderma, 44, 211-218 (1989)
- 9) Kato. H., et al., J Environ Radioact, 111, 59-64 (2012)
- 10) Rosén, K., et al., J Environ Radioact, 46, 45-66 (1999)
- 11) Persson. H., SLU, pp. 42 (2008)
- 12) IAEA, Tech Reports Ser., **486** (2019)
- 13) Takahashi. J., et al., J Environ Radioact, 192, 172-180 (2018)
- 14) Shcheglov. AI., et al., Moscow NAUKA, pp.235 (2001)
- 15) Imamura. N., et al., J Environ Radioact, 225, 106422 (2020)
- 16) Takahashi. J., et al., J Environ Radioact, 182, 157-164 (2018)
- 17) Jagercikova. M., et al., J Soils Sediments, 15, 81-95 (2014)
- 18) Onda. Y., et al., Nat Rev Earth Environ (2020)

(筑波大学アイソトープ環境動態研究センター)