

放射性セシウムは森林のどこに溜まるか

鶴見 実、大和田 愛、今 温希、前田衣里奈

弘前大学大学院理工学研究科

青森県弘前市文京町 3

1 はじめに

環境中の放射性セシウム(^{137}Cs)は、福島原発事故(2011)とチェルノブイリ原発事故(1986)、そして大気圏内核実験(1945~1960)に起源を持つ人為起源 100%の大気由来汚染物質である。 ^{137}Cs の半減期は30年であり、人為起源の他の放射性元素に比べて長く環境中に存在している。 ^{137}Cs は放射性物質の濃縮先を知るという意味だけでなく、森林生態系における大気由来元素の行動を知るうえでも有用である。

いままで、大気汚染物質が森林に補足されることは知られていた。 ^{137}Cs はKと同族元素である為、植物に吸収され、森林生態系内を循環しているとも言われる。しかし、森林内での詳細な分布はまだ十分に知られていない。したがって ^{137}Cs の分布や行動を理解することは、大気汚染物質の移動や濃縮そしてその影響を評価する上で大きな意味を持つ。ここでは、福島原発事故により放出された放射性元素が、茨城県内住宅地にある林地土壌のどこに、どのように分布するのかを検討した。また、PIXE分析法などで測定された土壌中の各元素と ^{137}Cs との相関から、 ^{137}Cs と共に行動する元素についても議論する。

2 試料採取

2.1 採取地点

試料採取は、2011年5月から7月の間に茨城県ひたちなか市で行った。このたび放出された放射性物質は一般的な大気粉塵と同様に、傾斜地ではくぼ地の底部に溜まり易いことが知られているが、ここでは傾斜のない平地において、植生の違いによる土壌表層の放射性物質分布をみるため、住宅街のなかにある草地と林地が隣接した緑地で土壌表面線量の測定をガイガーカウンターを用いて行った。表層から深さ方向の土壌採取を行ったのは図1にある星印の2地点である。

2.2 採取方法

ひたちなか市住宅地に残された緑地の林内土壌は崩れやすかったため、塊状で採取した。これをビニール袋で密封したまま持ち帰り、実験室にて冷凍後、カッターナイフを用いて表層から深さ方向に1cmずつの層に分け、深さ方向別の試料とした。



図1 茨城県ひたちなか市の測定場所

オレンジの枠は土壌表面線量測定範囲、星印は土壌採取地点を表す。

3 測定方法

3.1 前処理

土壌試料は2週間実験室内で自然乾燥した後、65℃に設定した乾燥機で48時間乾燥させた。乾燥させた土壌試料から、大きな枝や木の根、コケなどを取り除いてから自動乳鉢を用いて粉末化した。取り除けなかった細かい根などは、土壌と一緒に粉末化した。

3.2 試料調製

土壌試料の化学成分の定量には内部標準法を用いた。この方法は、土壌などの粉末試料に適しているとされている。内部標準試料としてPd-Cを用いた。Pd-C (5%Pd) 10 mg と土壌試料 50 mg をよく混合（手動30分、自動乳鉢2時間）し、混合試料中のPd濃度が約10000 ppmとなるよう調製した。混合試料をピンセットで極微量つまみとり、シートの中央に置く。コロジオン2%溶液（エタノール：ジエチルエーテル＝1：1）を3 μl とり、試料の上に滴下し、直径7 mmほどの円状に広げる。

前処理を終えた試料のPIXE分析とデータ解析は、日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンターによる。

PIXE分析法により、得られた成分は、主成分SiO₂、Al₂O₃、Fe₂O₃、K₂O、TiO₂、MgO、Na₂O、CaO、MnO、P₂O₅、の10元素、微量成分Cl、S、Nb、Zr、Y、Sr、Rb、Pb、Pd、Zn、Cu、Hg、Te、As、Se、Ga、V、Cr、Br、Moの20元素である。

3.3 灼熱減量(LOI)

試料を灼熱処理することで減量する重量分を灼熱減量（Loss on Ignition、略称LOI）とした（式1）。LOIとして表されるのは、水素、炭素、窒素、硫黄などの有機物、塩素やリンなどの一部の無機物、風乾乾燥処理では除去することのできない結晶水である。

$$\text{LOI}(\%) = ((\text{灼熱処理前重量}(\text{g}) - \text{灼熱処理後重量}(\text{g})) / \text{灼熱処理前重量}(\text{g})) \times 100 \quad \cdots (1)$$

4 補正法

4.1 標準試料について

今回は外部標準試料として、「NIES 標準試料 Pond Sediment」を用いた。文献値を表 1.1-2 に示す。

Pond Sediment : 東京都文京区本郷 東京大学 三四郎池(池底質試料)、1980 年採取
保証値と参考値は岡本・不破(1981)による

表 1.1 NIES 標準試料 Pond Sediment の保証値

	Al ₂ O ₃ %	Fe ₂ O ₃ %	CaO %	K ₂ O %	Na ₂ O %
文献値	20.03	9.34	1.13	0.82	0.77
文献値誤差	±0.5	±0.35	±0.06	±0.06	±0.04

	Zn ppm	Cu ppm	Pb ppm	Cr ppm	Ni ppm	Co ppm	Cd ppm	As ppm
文献値	343	210	105	75	40	27	0.82	12
文献値誤差	±17	±12	±6	±5	±3	±3	±0.06	±2

表 1.2 NIES 標準試料 Pond Sediment の参考値

	SiO ₂ %	TiO ₂ %	P ₂ O ₅ %	Mn ppm	V ppm	Sr ppm
文献値	44.92	1.07	0.32	770	250	110
	Rb ppm	Sc ppm	La ppm	Br ppm	Sb ppm	Hg ppm
文献値	42	28	17	17	2	1.3

4.2 PIXE 分析値の補正について

表 2 に示す NIES 土壌標準試料 pond sediment の保証値に加え、蛍光エックス線(XRF)分析値と PIXE 分析値の比較から、PIXE 分析値を二つのグループに分け、得られた PIXE 分析値をそのまま用いる A グループと外部標準物質の分析値で補正する B グループとした。

4.2.1 Fe、Ca、K、Ti、P、Mn、微量元素 (A グループ)

主要元素である Fe、Ca、K、Ti、Mn、P と微量元素を A グループとする。A グループは PIXE 分析値をそのまま採用し、A グループの主要成分に対しては酸化物換算して表した。

4.2.2 Si、Al、Na、Mg、(Bグループ)

Aグループ以外の主要元素であるSi、Al、Na、MgをBグループとする。補正にはNIES標準試料 Pond SedimentのPIXE分析値から求めた標準土壌補正係数を用いる(式4-2)。さらにLOIを加えて全体が100%になるように補正係数(式4-3)をかけてBグループの補正值とした(式4-1)。

補正值=生データ×標準土壌補正係数*1×100%補正係数*2・・・(式4-1)

*1 標準土壌補正係数=(NIES標準試料 保証値 or XRF分析値)/PIXE分析値・・・(式4-2)

*2 100%補正係数= {(100-LOI)-(Aの和)(%)} / B酸化物の和(%)・・・(式4-3)

表2 NIES 土壌標準試料 pond sediment の保証値、蛍光エックス線(XRF)分析値そして2011年度PIXE分析値の比較

	混合時間	Al ₂ O ₃ (%)	Fe ₂ O ₃ (%)	CaO(%)	K ₂ O(%)	Na ₂ O(%)	MgO(%)		
保証値		20.03	9.34	1.13	0.82	0.77			
XRF(2009)		20.24	9.53	1.17	0.88	0.80	1.31		
2011.7	手動30分+自動120分	10.82	10.86	1.51	0.84	0.69	1.30		
2011.9	手動30分+自動120分	13.19	11.08	1.56	1.00	0.54	0.62		
2011.11	手動30分+自動120分	13.27	12.13	1.22	0.86	0.21	0.98		
2011.12	手動30分+自動120分	17.25	11.51	1.09	0.72	0.40	0.95		

	混合時間	Zn	Cu	Pb	Cr	Ni	Co	As	Cd
保証値		343	210	105	75	40	27	12	0.82
XRF(2009)		128	228	110		35			
2011.7	手動30分+自動120分	339	172	212	193	81		1.0	
2011.9	手動30分+自動120分	327	187	131	98	61			
2011.11	手動30分+自動120分	321	185	107	184			17.90	
2011.12	手動30分+自動120分	325	143	156	213			0.04	

	混合時間	SiO ₂ (%)	TiO ₂ (%)	P ₂ O ₅ (%)	MnO(%)
参考値		44.92	1.07	0.32	0.10
XRF(2009)		47.47	1.03	0.33	0.10
2011.7	手動30分+自動120分	30.00	1.03	0.25	0.10
2011.9	手動30分+自動120分	37.12	0.99	0.09	0.10
2011.11	手動30分+自動120分	28.42	1.16	0.78	0.11
2011.12	手動30分+自動120分	34.99	1.08	0.21	0.10

	混合時間	V	Sr	Rb	Sc	La	Br	Hg
参考値		250	110	42	28	17	17	1.3
XRF(2009)			114	44				
2011.7	手動30分+自動120分	56	124	33			35	
2011.9	手動30分+自動120分	278	116	60			22	
2011.11	手動30分+自動120分	102	112	40			12	
2011.12	手動30分+自動120分	26	111	20			12	

表3 分析値と保証値または参考値との比

	Al ₂ O ₃ (%)	Fe ₂ O ₃ (%)	CaO(%)	K ₂ O(%)	Na ₂ O(%)	MgO(%)	0.90 ≤ 値 ≤ 1.10	
XRF(2009)	1.01	1.02	1.04	1.07	1.04	分母	0.80 > 値, 値 > 1.20	
2011.7	0.54	1.16	1.33	1.02	0.90	0.99		
2011.9	0.66	1.19	1.38	1.22	0.70	0.48		
2011.11	0.66	1.30	1.08	1.05	0.27	0.75		
2011.12	0.86	1.23	0.96	0.88	0.52	0.73		
	Zn	Cu	Pb	Cr	Ni	Co	As	Cd
XRF(2009)	0.37	1.09	1.05		0.88			
2011.7	0.99	0.82	2.02	2.57	2.03		0.09	
2011.9	0.95	0.89	1.24	1.31	1.52			
2011.11	0.94	0.88	1.02	2.45			1.49	
2011.12	0.95	0.68	1.49	2.84			0.0033	
	SiO ₂ (%)	TiO ₂ (%)	P ₂ O ₅ (%)	MnO(%)				
XRF(2009)	1.06	0.96	1.03	1.00				
2011.7	0.67	0.96	0.77	1.05				
2011.9	0.83	0.92	0.29	1.05				
2011.11	0.63	1.08	2.44	1.10				
2011.12	0.78	1.01	0.66	1.00				
	V	Sr	Rb	Sc	La	Br	Hg	
XRF(2009)		1.04	1.05					
2011.7	0.22	1.13	0.79					
2011.9	1.11	1.06	1.42					
2011.11	0.41	1.02	0.95					
2011.12	0.10	1.01	0.48					

5 土壌分析の結果

図1のオレンジの枠で囲まれている領域の土壌表面線量は表4と5、6のようになった。図1を見てわかるように、線量の高い部分には木がある。特に針葉樹は葉の形状により葉の表面積が広く放射性物質を多く捉えることができると考えられ、広葉樹がある場所より線量が二倍高い。

8 cm ごとに分取した土壌断面の Cs-137 と Cs-134 の線量を図2に示す。当研究室による2005年に採取した青森県の土壌断面では、表層から深さ8 cmの土壌にCs-137の極大ピークが見られており、落ち葉の層にはピークが見られなかった。しかし図2からわかるように、ここでは一番線量が高かったのは、土壌の中では無機土壌最表面である深さ0 cmと、さらに乾燥減量を考慮してもなお高い、その上のO層の落ち葉の部分である。土壌表面からは急激に線量が減少していることから、この場所での福島原発事故由来のCsは、ほとんど落ち葉と最表層土に付着しており、深さ3 cmに小さなピークが見られるものの、7月の時点では大部分が無機土壌層の内部まで達していないことがわかる。深さ3 cmにある小さなピークのCs-137とCs-134の比率は約1:1である。そのため、このピークは福島原発事故由来のものであり、2005年に採取した土壌で

の8 cm 深のピークのように将来増加していくのかどうか注目される。

表7に示したのはひたちなか市土壌中各成分含有率の相関係数である。この組成は先に示した補正法を用いてPIXE分析の結果から得られたものである。表2では代表的な成分を抜粋している。LOIとは灼熱減量(Loss On Ignission)のことで、CやN、結晶水などにあたる。この一部を図に示したものが図3である。Si、Fe、Alなどの土壌主成分は負の相関を示している。これは土壌に吸着しているCsがあまりなかったことを示す。Pb、Asなどの有害重金属とは相関がみられず、Csと一緒に行動していないことがわかった。LOIとは正の相関を示しており、これはCsが落ち葉などの有機物に付着していたためと考えられる。

6 結論

茨城県ひたちなか市で福島原発事故から2~4か月後の土壌表面の放射線量を測定したところ、針葉樹である杉のはえている場所で線量が高い結果となった。植生により大気粉塵の捕集能力が異なることを示しており、草地より広葉樹が高く、広葉樹よりも針葉樹が高い線量であった。ここで測定されたCs-137とCs-134は福島原発事故由来のものであり、これらは表層の有機物に付着していると考えられる。

表4 ひたちなか市の緑地林内2 mメッシュごとの土壌表面線量測定結果(in cps)

	AB	CD	EF	GH	IJ	KL	MN	OP	QR	ST	UV
1,2	150	180	170	160	155	160	160	170	145	140	140
3,4	245	300	260	210	200	250	250	150	145	150	140
5,6	210	285	245	180	230	230	250	150	140	150	130
7,8	235	255	210	170	200	230	230	140	150	140	130
9,10	250	280	220	220	190	210	160	145	140	130	130
11,12	270	265	230	180	150	140	140	135	120	120	130
13,14	300	290	240	200	140	130	120	130	120	120	120
15,16	330	290	200	160	125	160	130	130	130	130	130
17,18	240	280	170	140	140	120	125	130	125	120	130
19,20	175	140	140	130	145	130	120	120	110	120	125
21,22	140	130	130	120	120	130	120	120	100	120	120
23,24	130	130	130	130	110	110	110	120	110	120	130
25,26	130	125	120	120	130	120	110	110	100	130	140
27,28	120	130	120	120	120	100	100	100	110	140	130
29,30	110	120	110	100	85	90	100	150	120	120	130

赤: 300cps 以上

青: 200~290cps

表5 ひたちなか市の緑地林内2 mメッシュごとの土壌表面線量測定結果(in cps)(植生3区分に色分け)

	AB	CD	EF	GH	IJ	KL	MN	OP	QR	ST	UV
1 2	150	180	170	160	155	160	160	170	145	140	140
3 4	245	300	260	210	200	250	250	150	145	150	140
5 6	210	285	245	180	230	230	250	150	140	150	130
7 8	235	255	210	170	200	230	230	140	150	140	130
9 10	250	280	220	220	190	210	160	145	140	130	130
11 12	270	265	230	180	150	140	140	135	120	120	130
13 14	300	290	240	200	140	130	120	130	120	120	120
15 16	330	290	200	160	125	160	130	130	130	130	130
17 18	240	280	170	140	140	120	125	130	125	120	130
19 20	175	140	140	130	145	130	120	120	110	120	125
21 22	140	130	130	120	120	130	120	120	100	120	120
23 24	130	130	130	130	110	110	110	120	110	120	130
25 26	130	125	120	120	130	120	110	110	100	130	140
27 28	120	130	120	120	120	100	100	100	110	140	130
29 30	110	120	110	100	85	90	100	150	120	120	130

	cps 平均
針葉樹	246
広葉樹	136
草地	126

表6 ひたちちなかの市の緑地林内2 mメッシュごとの土壌表面線量測定結果(in cps)(植生6区分に色分け)

	AB	CD	EF	GH	IJ	KL	MN	OP	QR	ST	UV
1 2	150	180	170	160	155	160	160	170	145	140	140
3 4	245	300	260	210	200	250	250	150	145	150	140
5 6	210	285	245	180	230	230	250	150	140	150	130
7 8	235	255	210	170	200	230	230	140	150	140	130
9 10	250	280	220	220	190	210	160	145	140	130	130
11 12	270	265	230	180	150	140	140	135	120	120	130
13 14	300	290	240	200	140	130	120	130	120	120	120
15 16	330	290	200	160	125	160	130	130	130	130	130
17 18	240	280	170	140	140	120	125	130	125	120	130
19 20	175	140	140	130	145	130	120	120	110	120	125
21 22	140	130	130	120	120	130	120	120	100	120	120
23 24	130	130	130	130	110	110	110	120	110	120	130
25 26	130	125	120	120	130	120	110	110	100	130	140
27 28	120	130	120	120	120	100	100	100	110	140	130
29 30	110	120	110	100	85	90	100	150	120	120	130

	cps 平均	cps 平均
針葉樹中の針葉樹	262	140
その他針葉樹	232	133
広葉樹中の広葉樹	132	105

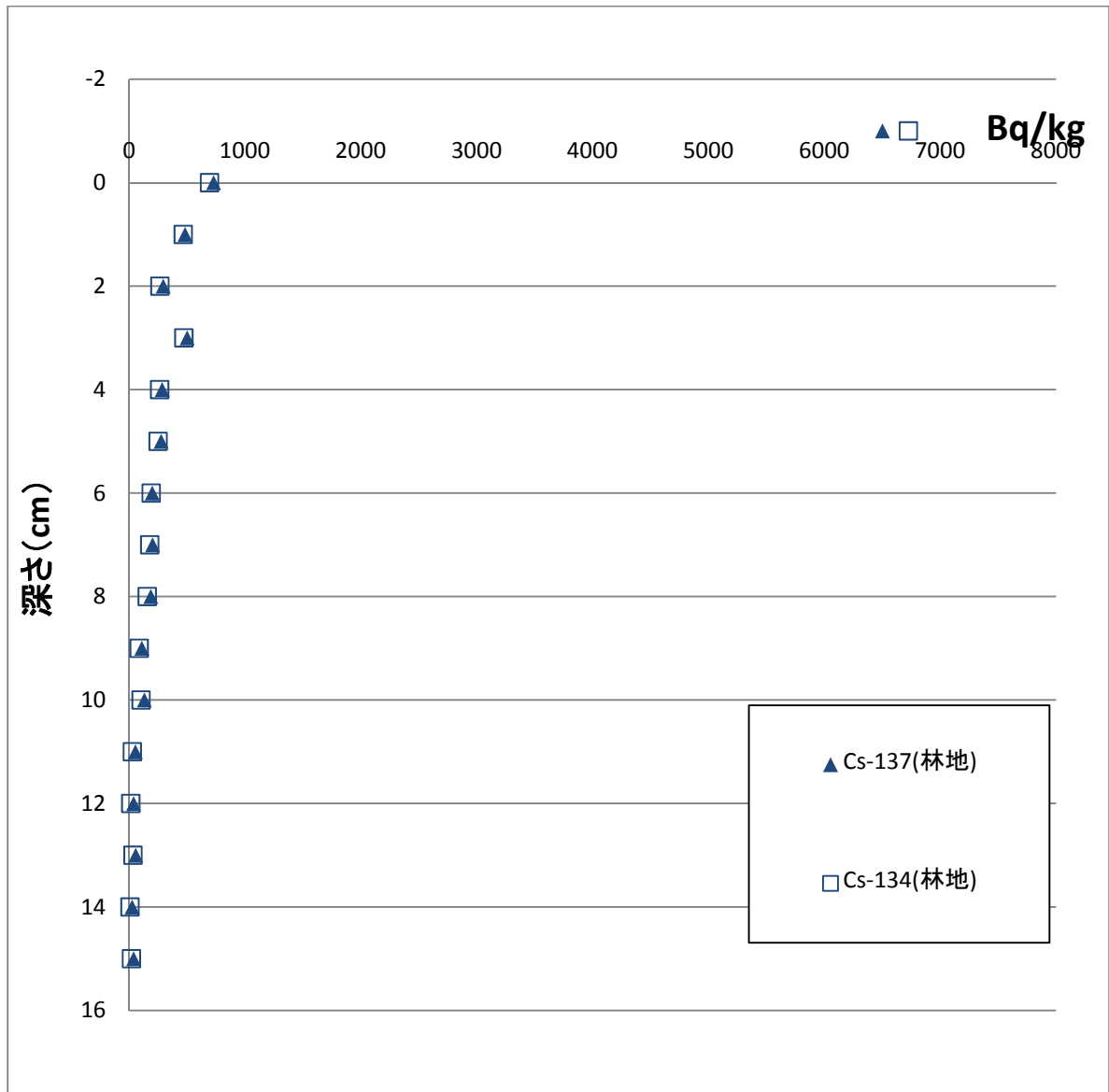


図2 ひたちなか市土壌断面中のCs-134とCs-137分布

表7 ひたちなか市土壌中成分とCsとの相関係数

	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	Pb	As	Cl	S	LOI
Cs-137	-0.9	-0.8	-0.5	-0.09	-0.4	-0.01	0.4	0.8
Cs-134	-0.9	-0.8	-0.5	-0.09	-0.4	-0.01	0.4	0.8

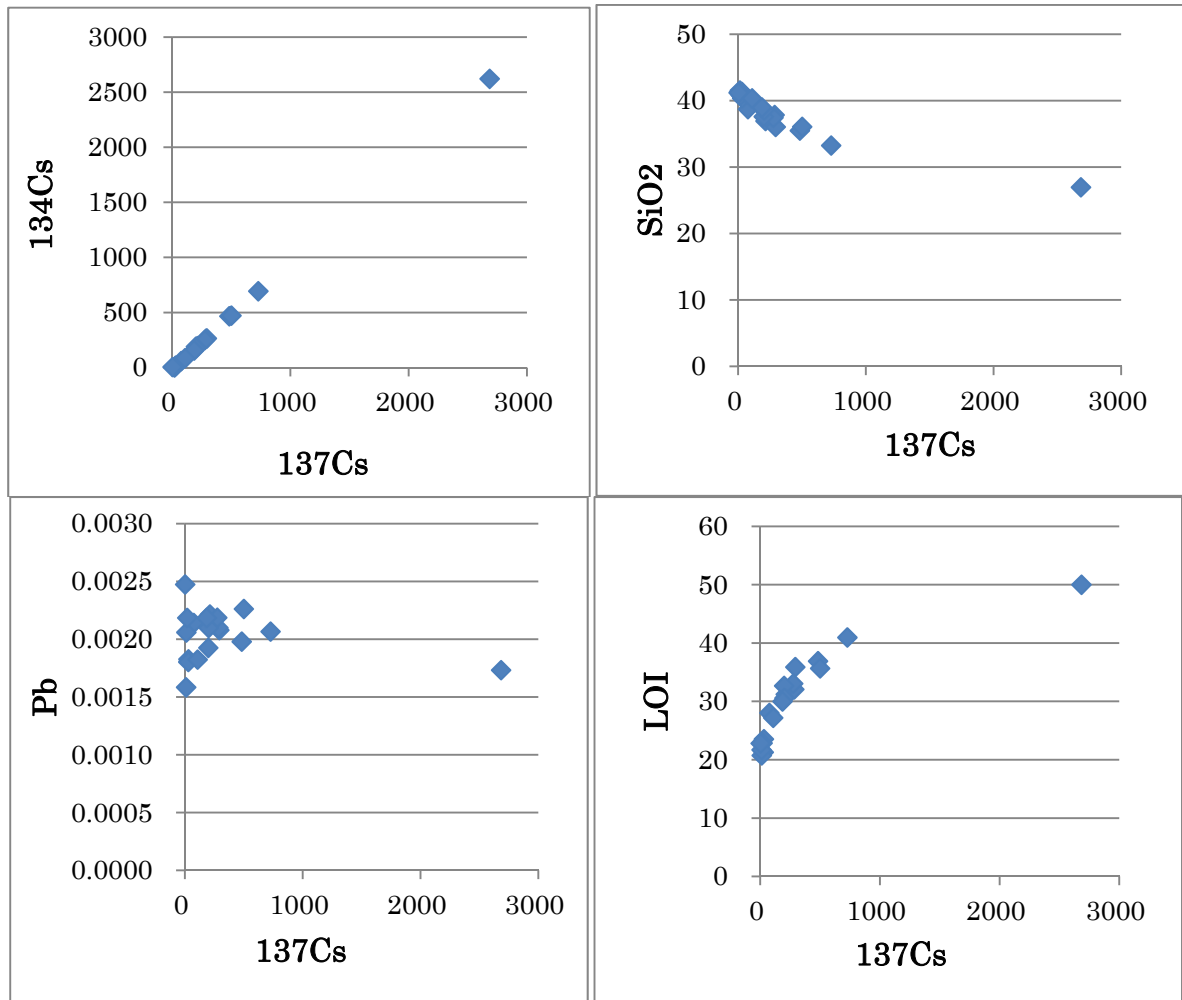


図3 ひたちなか市土壤中成分の相関

Where are the radioactive materials concentrated?

Makoto Tsurumi, Ai Oowada, Atuki Kon and Erina Maeda

Graduate School of Science and Technology, Hirosaki University
3 Bunkyocho, Hirosaki, Aomori 036-8561, Japan

Abstract

Surface soils were sampled in green zone of residential area in Ibaragi prefecture on July, 2011. The samples were analyzed for SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 , K_2O , TiO_2 , MgO , Na_2O , CaO , MnO , P_2O_5 , Cl , S , Nb , Zr , Y , Sr , Rb , Pb , Pd , Zn , Cu , Hg , Te , As , Se , Ga , V , Cr , Br and Mo with X-Ray fluorescence method and PIXE method and for Loss On Ignition with muffle furnace. Radioactive ^{137}Cs and ^{134}Cs were measured by germanium detector with multi-channel analyzer. Relationships between these elements were discussed. Radioactive Cs was concentrated in top surface on the ground. Surface soil survey with a GM counter found that the radioactive materials were enriched twofold under conifer trees than hardwoods, and the least amounts were found in green grass, suggesting the differences of the airborne particle trapping efficiency of vegetation.