研究報告 ■第4回研究発表会特集

# 福島第一原子力発電所事故による放射能汚染水田 土壌の除染効果の評価

今泉 眞之1\*、 吉本 周平2、 石田 聡2、 奥島 修二2、 結城 洋一3、 平田 諒次3

1 応用地質株式会社サービス開発本部 (〒101-8486 東京都千代田区神田美土代町7番地)

2国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構、農村工学研究部門(〒305-0822茨城県つくば市観音台2-1-6)

3 応用地質株式会社東京支社技術部(〒331-8688 埼玉県さいたま市北区土呂町 2-61-5)

# Evaluation of Radioactive Decontamination Effect for Paddy Soil Contaminated by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

Masayuki IMAIZUMI<sup>1\*</sup>, Shuhei YOSHIMOTO<sup>2</sup>, Satoshi ISHIDA<sup>2</sup>, Shuji OKUSHIMA<sup>2</sup>, Youichi YUUKI<sup>3</sup>, and Ryoji HIRATA<sup>3</sup>

 <sup>1</sup> Business Promotion Headquqrters, OYO Corporation (7 Kanda-Mitoshiro-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8486, Japan)
 <sup>2</sup> National Institute for Rural Engineering, National Agriculture and Food Research Organization (2-1-6 Kannondai, Tsukuba, Ibaraki 305-8609, Japan)
 <sup>3</sup> Engineering Department, Tokyo Regional Office, OYO Corporation (2-61-5 Toro-machi, Kita-ku, Saitama 331-8688, Japan)

#### Summary

The National Institute for Rural Engineering performed decontamination of radioactivity at the experimental sites in litate Village where paddy fields were contaminated by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident in March 2011 by means of three methods as follows; (1) topsoil removal using soil hardener, (2) removal of soil after paddling with water draining suspended contaminated soil by pumping without manual assistance, and (3) removal of soil after paddling with water draining suspended contaminated soil by pumping with manual assistance. The three methods were evaluated using decontamination factors (DFs) that were determined by applying a variant of inverse analysis using the calculation system for the estimation of decontamination effects (CDE). Input data were provided by surveys using a low-level balloon and a radio-controlled helicopter. The DF values of the three methods were determined on the basis of the Euclidean distances between the simulated and measured dose rates after decontamination. The resulting DFs were > 60 for topsoil removal using soil hardener, 1.4 for slurry pumping, and 2.2 for manually assisted slurry pumping. The area decontaminated by the soil hardening method may have been fully decontaminated, because the distribution of measured dose rates was consistent with the distribution of dose rates calculated for a fully decontaminated area within 20 m in radius.

**Key Words:** Radioactive contamination, Paddy soil, Decontamination factor, Gamma ray spectrometry, CDE, Euclidean distances

# 1. はじめに

2011年3月の福島第一原子力発電所 (FDNP) 事故により 大量の放射性物質が環境に放出された。現在、主要な放射 性核種は、半減期2.06年の<sup>134</sup>Csと30.17年の<sup>137</sup>Csである。 FDNPの約39 km北西に位置する福島県飯舘村役場前では3 月15日18時20分に44.7 μSv/hの最大線量率が記録された<sup>1</sup>。 村の全域は、3.8 ~ 9.5 µSv/h (一部で 9.5 µSv/h 以上)、<sup>134</sup>Cs と<sup>137</sup>Csの合計(放射性セシウム)沈着量が100万~300万 Bq/ m<sup>2</sup>(一部で 300万 Bq/m<sup>2</sup>以上)(2011年 9月 18日補正)に汚染 された<sup>2)</sup>。そのため、村は 2011年 4月に計画的避難地区に指 定され、2012年 6月には年間積算放射線量を基準に避難指示 解除準備区域・居住制限区域・帰還困難区域に再区分された

\*Corresponding author: E-mail: imaizumi-masayuk@oyonet.oyo.co.jp

が、現在も全住民が避難している。

農林水産省 (MAFF) は、農地除染が始まる前に、いくつか の除染法の技術評価を行った3。農村工学研究所(2016年4月 に農村工学研究部門に改組)は、MAFFからの委託で2011年 8月に飯舘村草野地区の水田を実験サイトに選定し、①土壌硬 化剤を用いた表土削り取り法(以下、表土削り取り法)と②水に よる土壌攪拌・除去法の技術評価を行った。①の方法は、液 体状の硬化剤を土壌に散布し、表層約3cmまで浸透させ、硬 化後に、硬化層のみをバックホーで削り取り、バキュームで処 理する工法である。②の方法は、トラクタで代掻きを行い、土 壌細粒部分を泥水化させ、その泥水を水田から貯水池に排水 し、凝固剤により固液相分離を行い、細粒土を除去する方法 である。それぞれの実験サイトの面積は、30m×30mである。 水による土壌攪拌・除去法では、実験サイトを二分して、代掻 きをして浮遊させた細粒土壌をポンプのみで排出する方法(以 下、土壌攪拌・除去法)と、攪拌パイプを使い人力で浮遊土壌 をポンプまで追い込む方法 (以下、土壌攪拌・人力除去法)を 実施した。

除染効果は、外部被ばくを減少させる観点では、除染の前 後の地表面から1mの高さの空間線量率(以下、地上1m線 量率)の比(線量率減少因子)をパラメータとして評価する<sup>4</sup>。農 地除染の目的は、外部被ばくを低減させることと作物の放射 性物質摂取を阻止するために土壌の放射性物質濃度を引き下 げることである。そのため、MAFFは、除染前後のイネの根 圈(深さ15 cmまで)の土壌放射性セシウム濃度(Bq/kg)差も パラメータとして採用した。技術評価の観点では、除染係数 (Decontamination Factor: DF)が使われる。DF値は次式で 定義される<sup>5,0</sup>;

ここで、 $A_{Before} \ge A_{After}$ は除染前後の放射性セシウム沈着密度 ( $Bq/m^2$ ) である。

MAFFのプロジェクトでは、地表面から5 cm高さの空間線 量率と放射性セシウム濃度で技術が評価された<sup>3)</sup>。表土削り 取り法では、9地点の平均放射性セシウム濃度が9,090 Bq/ kgから1,670 Bq/kgに減少した。同地点の平均地上5 cm線 量率は、7.8  $\mu$ Sv/hから3.6  $\mu$ Sv/hに低下した。土壌硬化剤に よって形成された厚さ約3.0 cmの硬化層が削除され、処理土 の体積は約30 m<sup>3</sup>/1,000 m<sup>2</sup>であった<sup>3)</sup>。土壌攪拌・除去法で は、18地点の平均放射性セシウム濃度は、15,300 Bq/kgから 9,690 Bq/kgに減少した。同地点の平均地上5 cm線量率は、7.6  $\mu$ Sv/hから6.5  $\mu$ Sv/hに低下した。処理土の体積は、約1.2 ~ 5 m<sup>3</sup>/1,000 m<sup>2</sup>であった<sup>3)</sup>。しかし、MAFF<sup>3</sup>は、土壌攪拌・ 除去法と土壌攪拌・除去+人力法の効果を分離していない。 また、DF値について議論していない。

<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csのγ線の空気中での平均自由行程は約100 m

なので<sup>7</sup>、高度に汚染された農地の狭いエリアだけを除染し たとき予期していない場所からのγ線の影響を受けることがあ る。除染域内の測定で除染による線量率の減少と、隣接した 領域からの線量率の影響を区別することは困難である。 この ような場合、除染エリアとその周囲 100 m以上の線量率分布を 測定し、コンピュータ・シミュレーションで評価しなければなら ない<sup>6</sup>。

岩本ほか<sup>8</sup>は、除染面積と除染による線量低減効果の関係 を明らかにするために、粒子・重イオン輸送計算コードPHITS を用いてシミュレーションを行い、任意の除染率、除染半径に 対する中心位置での線量率低減比を評価する簡易式を提案し た。日本原子力研究開発機構は、除染法の効果的な計画を支 援するために、除染効果を予測する計算システム(CDE)を開発 した<sup>9</sup>。CDEによる予測は、PHISTによる計算結果と野外調 査データとの比較から検証されている<sup>9</sup>。

この研究の目的は、CDEモデルを作成するためにNIREの 実験サイトおよびその周辺の線量率分布を気球と無線繰縦ヘリ コプターを使ったガンマ線測定システムによって測定し、3つの 除染法のDF値をCDEで評価することである。

# 2. 方法

# (1) 実験サイト

飯舘村 (面積:230 km<sup>2</sup>) は標高 400 ~ 500 mの北阿武隈山 に位置し、基盤地質は白亜紀の花崗岩と変成岩である。基盤 を新第三紀と第四紀の堆積物が覆っている<sup>10</sup>。飯舘村の自然の 放射線は、0.0543 ~ 0.0725  $\mu$ Sv/h<sup>11</sup>、 宇宙線線量は、0.0426  $\mu$ Sv/hである<sup>12</sup>。 したがって、自然放射線バックグラウンドは、 約 0.06 + 0.04 = 0.1  $\mu$ Sv/hと見積もられる。

草野地区は新田川に向かって緩く傾斜している河岸段丘上に あり(Fig.1)、表層土壌は細粒灰色低地土である<sup>10)</sup>。実験サイト の土壌は、粘土画分(<0.002 mm) 13.84%、シルト画分(0.002 ~ 0.02 mm) 28.3%、細砂画分 (0.02 ~ 0.2 mm) 32.1%、粗 砂画分(> 2 mm) 25.8%で構成される。乾燥土壌密度は、1,030 kg/m<sup>3</sup> である。約 95%の放射性セシウムは、未耕作の農地土 壌の上部 2.5 cmに存在し、主に粘土とシルトサイズの土粒子に 固着していた<sup>13)</sup>。著者らが行ったスウェーデン式サウンディング 試験によると(未公開資料)、土壌層の厚さは8 m以上である。 水田圃場の大部分は、100 m×30 mの標準区画である。

地表面状態は、放射性降下物の沈着量に影響を及ぼす。 Google Earthの過去の衛星画像によると、草野地区の土地利 用は、圃場10と11を除いて水田である。2006年と2010年 の画像によると、圃場10と11は草地として利用されていた。 2011年4月10日の画像によると、放射性物資が降下した時、 水田と草地は裸地状態であった。画像から地表の荒さを4タイ プに分類できる(Fig.1);タイプA:トラクタで耕起された非常に 荒い地面(圃場10と11)、タイプB:稲藁の切れ端と稲株が残っ た荒い地面(圃場1,3、15~24)、タイプC:枯れ草で覆われ



Fig.1 飯舘村草野地区と実験サイトの位置、土地利用、表層の粗さ区分

た未耕作地(圃場14と26)、タイプD: 耕耘機で砕土された平 坦な地面(圃場2、4~9、13、25)。調査地域は、2011年6月 初旬には雑草が部分的に覆っていたが、8月から9月には、実 験サイトの圃場17~19以外の所は雑草が密に茂っていた。

### (2) 地上調査と分析

除染効果の評価と $\gamma$ 線測定値を線量率に変換するために、 除染前後(2011年8月4日と9月4日)に、圃場17と18で土壌サン プリングと線量率測定を実施した。27地点で深さ15 cmの土 壌をサンプリングした。以下に示す<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの土壌中にお ける鉛直分布を表すパラメータβ値 (kg/m<sup>2</sup>)を求めるために、5 地点で深さ15 cmまでの土壌を、1~2 cm毎の深度別サンプ リングした。<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの放射能は、実験室のゲルマニウム (Ge)検出器で1,000秒間測定し、スペクトルを標準ガンマ線 源と分析ソフト:Gamma Studio (セイコー EG&G社)で分析 した。分析誤差は1%~2%である。地上1 m線量率は、各 サイトで5 m間隔で40点以上を携帯用サーベイメータ (Aloka TCS-161)で測定した。除染後の地上1 m線量率はCDEシミュ レーション結果の検証値として利用した。

この論文では、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの放射能を2011年9月1日に補 正した沈着密度(kBq/m<sup>2</sup>)で報告する。土壌の深さZのセシウ ム濃度A(Z)は、次式で表現できる<sup>14</sup>:

$$A(Z) = A_0 \cdot \exp\left(\frac{-Z}{\beta}\right) \qquad (2)$$

ここで、A (Z) は深さZにおける放射能濃度 (Bq/kg)、Z は深さ (kg/m<sup>2</sup>)、 $A_0$  は地表面における放射性セシウムの濃度 (Bq/kg) である。 $\beta$ は放射性物質の土壌中における鉛直分布 を表すパラメータ(kg/cm<sup>2</sup>) である。数値が大きい程深く浸透 していることを示す。

濃度から沈着密度: $A_a(kBq/m^2)$ へ換算は、次式による<sup>14)</sup>:

#### (3) γ線測定システムと測定方法

γ線測定システムは、NaI (Tl) シンチレーション検出器 (ク



Fig.2 気球を使った地上γ線調査(a)と無線操縦ヘリコプターによる空中γ線測定(b)の状況

リアパルス株式会社)、レーザ高度計、GPS受信機(Garmin-15xL-W)、ビデオカメラ(ビクタGZ-H)、データ記録コンピュー タ(パナソニックPC)から成り、総重量は約10 kgである。検 出器は、光電子増倍管に繋がれた3×3インチNaI結晶(347 mL)である。検出器の分解能は、662 keV FWHMで約7% である。周辺機材は、波高分析器、関連アンプ、データ読み 取り装置である。40 keVから1750 keVまでのスペクトルを、波 高分析器によって1024 データ・チャンネルに記録した。GPS による各測定位置とレーザ高度計による高度データは、スペ クトルデータとともに1つのファイルにコンパイルされて、コン ピュータのデータロガーに保存した。

#### a) 気球調査

実験サイト周辺の $\gamma$ 線測定は、測定システムを気球(日本気 球産業;直径 4.5 m)に吊して、地面に近接する状態で牽引しな がら連続測定で行った(以下、気球測定)(Fig.2 (a))。測定時 間は 10 秒、移動速度は約 3 km/h (0.83 m/s)である。調査エ リアは、圃場 16 ~ 19 (約 12,240 m<sup>2</sup>)である (Fig.1)。側線は、 各圃場毎に圃場短辺 30 m に設定し、側線間隔は 2.5 m である。 総調査距離は約 6 km である。地上に検出器を置いた場合の 測定エリアは、深さ約 25 cm で半径 1 m である<sup>15)</sup>。移動を考慮 した 10 秒間の測定エリアは、幅 2 m、長さ 8 ~ 9 m の楕円形 である。

測定前に、圃場長辺100mに沿って2.5m毎に目印のポー ルを設置した。測定者は、圃場短辺30mをポールに向かって 測定器を牽引した。測定は、除染の前後(2011年8月3日と31日) の無風曇りに実施した。1回の調査時間は、準備時間含めて7時間で、測定者の被ばくは約0.04mSvである。

#### b)無線操縦ヘリコプター調査

広域のγ線測定は、測定システムを無線繰縦へリコプターに 搭載して連続測定で行った(以下、無人へリ測定)(Fig.2 (b))。 無線繰縦ヘリコプターには、ヤマハ 株式会社のRMAX(全長 3.1 m、高さ1.2 m、幅 0.7 m、ペイロード 10 kg)を選定した。 測定時間は 10秒、飛行速度は約 5 km/h (1.40 m/s) である。 調査エリアは、圃場 1 ~ 26 (約 75,400 m<sup>2</sup>) である (Fig.1)。側 線は、圃場 1 ~ 19 は東西方向、圃場 24 ~ 26 は南北方向で、 側線間隔を約 5 mに設定した。総調査距離は約 10 kmである。 飛行高度を 5 mとし、高度計で記録した。空中探査では、 $\gamma$ 線 測定値の 66%は、高度の約 2 倍の直径エリアから来ている<sup>16</sup>。 移動を考慮した 10秒間の測定エリアは幅 10 m、長さ 14 mの 楕円形である。

無線操縦オペレータと監視人で測定を実施した。監視人は、 側線末端に位置し、RMAXが一定の高度で飛行して側線末端 に到達し、その後、次の測線に移動したことを確認し、作業状 況を無線でオペレータに連絡した。測定は、2011年9月14日 の無風快晴で行った。調査時間は、準備時間含めて8時間、 測定者の被ばくは約0.05 mSv である。

### (4) γ線スペクトルのデータ処理

# a) 無線操縦ヘリコプターで測定された NaI(Tl) 検出器の y線スペクトル

Fig.3 に実験サイトを無人へリ測定で 2,000 秒間積算したス ペクトルを示す。このスペクトルに含まれる核種をチェルノブイ リ原発事故の試料と鉱物試料のGe 検出器のスペクトル図例<sup>17)</sup> を基に考察する。550 ~ 700 keVの山と平坦部のある合成ピー ク(A1) がある。これは、<sup>134</sup>Cs (563、569、605 keV)、<sup>214</sup> Bi (609 keV)、<sup>137</sup>Cs (662 keV) の光電ピークから形成されている。放 出比率の観点から (Table 1)<sup>17, 18</sup>、低エネルギー側の山は<sup>134</sup>Cs の 605 keV、高エネルギー側の山は<sup>137</sup>Cs の 662 keVに対応す る。800 keV付近のピーク (A2) は、<sup>134</sup>Cs (796 keV、802 keV) の光電ピークから形成されているが、放出比率の観点から、山

Table 1





核種名	エネルギー	放出率
<sup>40</sup> K	1,461 keV	10.7%
<sup>134</sup> Cs	563 keV	8.4%
	569 keV	15.4%
	605 keV	97.6%
	796 keV	85.5%
	802 keV	8.7%
	*1,168 keV	1.8%
	1,365 keV	3.0%
<sup>137</sup> Cs	662 keV	85.0%
<sup>214</sup> Bi	609 keV	46.2%
	768 keV	4.9%
	1,120 keV	14.8%
	1,238 keV	5.8%
	1,730 keV	2.8%
	1,764 keV	15.2%
	2,204 keV	4.9%
		* 文部科学省 (1992) <sup>17)</sup>

40K、<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs、<sup>214</sup>Biのy線エネルギーと放出率<sup>17,21)</sup>

は796 keVの光電ピークに対応している。A1とA2ピークには、 <sup>134</sup>Cs と<sup>137</sup>Csから放出されるほとんどすべてのγ線を含んでいる。

1,100 ~ 1,200 keVのピークは、<sup>134</sup>Cs (1,167 keV)の光電ピー クと<sup>134</sup>Csのサム・ピークの複合ピークである。1,300 ~ 1,500 keVの低エネルギー側の山は<sup>134</sup>Cs (1,365 keV)の光電ピーク と<sup>134</sup>Csのサム・ピークの複合ピークで、<sup>40</sup>K (1,460 keV)の光電 ピークから低エネルギー側のスペクトルは<sup>134</sup>Csの複合ピークに 重なって見えなくなっている。1,730 keVには<sup>214</sup>Biの小さいピー クがある。 天然放射性核種の<sup>214</sup>BiはA1ピークに重なるエネルギーの γ線を放出するが、線量率の比較より、実験サイト (2~7 μSv/ h程度)では天然放射性核種からの寄与(約 0.06 μSv/h)が十 分小さい事が明白なので、以下の議論では<sup>214</sup>Biの影響を無視 する。

#### b) y線スペクトルのデータ処理

Fig.4に10秒間のy線スペクトルにデータ処理手順を示した。



Fig.4 10 秒間のγ線スペクトルのデータ処理手順



 Fig.7
 A1 と A2 のピークの合計ネット計数と

 サーベイメータ測定の地上1 m 線量率との関係

処理手順の詳細は、吉本他<sup>19)</sup>で説明されている。 ここでは、 吉本他と異なる点を述べる。

コベル法<sup>17,20)</sup>によるA1とA2ピークエリア計算では、A1

とA2のネット計数を以下の手順で求めた (Fig.5)。 関心領域 (ROI) ( $a \sim b$ ,  $b \sim c$ )のエネルギー位置はピークサーチの方 法で決定し、領域間のグロス計数 ( $T_{A1} \ge T_{A2}$ )を求める。次に  $a \cdot a' \cdot b' \cdot b \ge b \cdot b' \cdot c' \cdot c$ のコンプトン散乱の台形部分( $B_{A1} \ge B_{A2}$ )の 計数を求め、それぞれのグロス計数から差し引き、ネットの計 数( $N_{A1} \ge N_{A2}$ )を求めた。

地上5mで測定された無人へリ測定の計数と地上1mの計 数の間には指数関数の関係がある<sup>21)</sup>:

ここで、 $N_h$ はA1とA2ピークの合計ネット計数、 $N_0$ は地上 のA1とA2ピークの合計ネット計数、 $\mu$ は減弱係数 (m<sup>-1</sup>)、h は地表面からの高さ (m)である。高度減衰補正では、 $\mu$ = 0.03 m<sup>-1</sup>を、地表、地上から2~3 m、4~6 m、8~18 m でヘリコプターをホバリングさせて測定した計数と高度の相 関関係により決定した (Fig.6)。

計数値から線量率への変換は、A1とA2の合計ネット計数 と実測地上1m線量率との相関校正式で行った(Fig7)。気球 測定の校正式には、y切片1.41 μSv/hがある。 これは除染エ リアの周囲からのγ線の影響による。A1とA2の合計平均計 数値±誤差は、気球測定の除染前の636点で38,388±196、 除染後の704点で31,646±178、無人へリ測定の1,253点で 32,261±180ある。

#### (5) CDE モデル

CDEの計算では、除染前(8月3日)の放射能分布とDF値を 入力したCDEモデルを作成し、除染後(9月1日)を指定して線 量率分布を計算した。放射能分布として地上1mの線量率を 入力した。CDEの一つの応答行列は5m×5mサイズのメッ シュに対応し、最大201行×201列まで各メッシュ間の影響を 計算できる<sup>9</sup>。CDEモデルエリアとして、無線操縦へリコプター 測定の調査エリアを設定した(南北220m(44行×東西395m (79列))。実験サイト周辺を除くエリアには8月3日に補正した 無線操縦へリコプター測定の線量率を入力し、実験サイト周辺 には(南北方向130m(26行)×東西方向120m(24列))には 8月3日に気球測定した線量率を入力した。

#### 3. 結果

#### (1) 実験サイトの線量率と放射性セシウムの沈着密度

Table 2 に、除染前後の放射性セシウムの $\beta$ 値、沈着密度、 平均地上1m線量率を示す。除染前の $\beta$ 値は10~11 kg/m<sup>2</sup> で、既報(例えば、Kato (2012)<sup>22</sup>)と一致する。しかし、除 染による攪乱により、表土削り取り法と土壤攪拌・人力法サイト では、 $\beta$ 値は60 kg/m<sup>2</sup>以上になり、放射性セシウムは地表下 6 cm程度まで侵入していた。DF値は、表土削り取り法と土壤 攪拌・除去法、土壤攪拌・人力除去法では、26 倍の差があり、

除染法	除染前		除染後		除染効率
	放射性セシウム 沈着密度 (kBq/m <sup>2</sup> )	$\beta (kg/m^2)$	放射性セシウム 沈着密度 (kBq/m <sup>2</sup> )	$\beta$ $(kg/m^2)$	DF
硬化剤表土削り取り	1,810	11	70	64	25.9
土壌攪拌・除去	1,620	11	1,520	27	1.1
土壤攪拌・人力除去	1,400	10	1,380	69	1.0
	地上1m 線量率 (µSv/h)		地上1m 線量	雲 (µSv/h)	線量率減少因子
硬化剤表土削り取り	5.9		3.1		1.9
土壌攪拌・除去	5.3		4.8		1.1
土壤攪拌・人力除去	6.0		5.0		1.2

Table 2. 除染前後の放射性セシウムのβ値、沈着密度、DF 値、平均地上1m 線量率、線量率減少因子

2011/9/1 補正

除染法の違いが明瞭である。一方、線量率減少因子は、除染 法の違いは少ない。Fig.8 は、除染後の地上1mの線量率分 布図である。表土削り取り法と土壤攪拌・人力除去法サイトで は、中心で線量率に低い、同心円パターンを示す。

### (2) 気球測定

<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csによる線量率の時間変化は次式で表せる<sup>23)</sup>。

ここで、p(t)は基準時からのt年後の線量率、 $p_0$ は基準時 の線量率、 $T_{134} \ge T_{137}$ は<sup>134</sup>Cs  $\ge$ <sup>137</sup>Cs の半減期である。田崎<sup>23)</sup> は基準時として 2011年 4月1日あたりを示している。 しかし、 放射性物質降下後の短期間では、<sup>134</sup>Cs  $\ge$ <sup>137</sup>Cs は降雨等の影 響により流出するので、実際の線量率の時間変化は、(6)式の 時間変化より大きくなる。Fig.9 は、調査地近傍の伊丹沢観測 点の線量率変化<sup>24)</sup>を示す。実際の線量率変化は、伊丹沢観測 点で最初に線量が測定された 5月18日を基準時として (6)式か ら計算した線量率変化(p(t)の曲線)より低下している。 その ため、この研究では、線量率の時間補正を以下の指数関数近 似式で行うことにした。

$$p(x) = 6.82e^{-0.003x}$$
  $R^2 = 0.62\cdots (7)$ 

ここで、p(x)は基準時からx日後の線量率である。 $R^2$ は相関の決定係数である。



Fig.9 調査地近傍の伊丹沢観測地点の線量率変化

\*線量率データは飯舘村役場「広報いいたてお知らせ版」<sup>24)</sup>による



.8 除染後のサーベイメータ測定による 地上1mの線量率分布図



Fig.10 気球測定による実験サイト周辺の除染前後の地上1m線量率分布図(2011年9月1日補正)

実験サイト周辺の除染前後の地上1m線量率分布図をFig.10 に示す。除染後に、表土削り取り法サイトでは、線量率が2.5 µSv/h以下に低下し、土壌攪拌・除去+人力法サイトと泥水処 理、試験準備のために人が立ち入った部分で島状に線量率が 4.5µSv/hまで低下した。

### (3) 無人操縦ヘリコプター測定

除染後の広域地表1m線量率分布図をFig.11に示す。線量 率は、表土削り取り法サイトの3.0 µSv/hから、 圃場10と11 の8.0 µSv/hまでの広い範囲を示す。

# 4. 考察

#### (1) 乾性沈着

大気中物質の沈着は、①物質と沈着表面の相互作用(乾性 沈着)と②雨滴に取り込まれて降水としての降下(湿性沈着)で 起きる<sup>25)</sup>。Gonze et al.24)の<sup>137</sup>Cs湿性沈着堆積物比分布図に よると、草野地区汚染の20~40%は乾性沈着である。乾性 沈着は、湿性沈着より地面の特性に影響される<sup>26)</sup>。Fig.1と11 を比較すると、 $7.0 \sim 8.0 \,\mu$ Sv/h以上の最も高い線量率エリア は、タイプAのエリアに一致している。 $6.4 \sim 7.0 \,\mu$ Sv/hのエリ アは、実験サイトを除いてタイプBかCのエリアに重なる傾向



Fig.11 無人ヘリ測定による広域の地上除染後の1m線量率分布図(2011年9月1日補正)

Table 3 代表的土壌除染方法の DF 値<sup>9,28,29)</sup>

対 象	除染法	DF	備考	文 献	
庭	表層土除去と土壌の入替	5-10		- EURANOS (2009) <sup>28</sup> 、原子力 - 学会クリーンアップ分科会 <sup>29)</sup>	
	表土と芝生の削取り	10-30	高 DF を得るためには、削取り深さ を最適化する必要がある。		
畑地	耕起 深耕 表土の反転 (天地返し)	1	これらの除染法では、汚染土壌を 除去していない。		
菜園 _	表土の削取り	10			
	庭の表土の削取りと汚染されていな い表土の被覆	15			
	芝生の削取り	3			
	芝とその下の土壌の削取り	10			
- 畑地 -	耕運機による耕起	2	これとの陸海社では、汚地上榜さ、		
	鍬の耕起による表層土と底土 (地表 直下の土層)の反転 (天地返し)	5	- これらの床架伝では、汚架工場を 除去していない。	$CDE \mathcal{T} = \mathcal{Y} \leftarrow \mathcal{X}^{\prime\prime}$	
	表土の削取り	4		-	
水田 -	表土の削取り	4		-	
	耕運機による耕起と代掻き	2	これらの除染法では、汚染土壌を	-	
	耕運機による耕起	2	- 除去していない。		

がある。 $6.0 \mu Sv/h 以下のエリアは、タイプ Dのエリアに重な$ る傾向がある。しかしながら、タイプ Bの圃場 23 ~ 26 では、 $<math>6.0 \mu Sv/h 以下であった。乾性沈着は、沈着表面の特性以外に、$ 周辺の建物や物理的、化学的、生物学的な様々なファクタも影響するので<sup>27)</sup>、乾性沈着の不規則性を地面の凹凸のみで決定できない。

#### (2) 除染法の効率

Table 3 に除染方法のDF値をまとめた<sup>9,28,29</sup>。土壌の削り取 り法のDF値は、適用対象によって4~30 の広い範囲を示す。 土壌攪拌・除去法のDF値は報告されていない。表のDF値を 参考に、最初に表土削り取り法のDFを10、土壌攪拌・除去 法と土壌攪拌・人力法のDF値を2.5とし、CDEによって除



 Fig.12
 実験サイト周辺の CDE モデル計算による除染後(2011年9月1日)線量率分布

 除染前の線量率と表土削り取り法 DF = 10、土壌攪拌・除去法と土壌攪拌・人力法 DF = 2.5 を入力した計算結果



Fig.13 DF 値を変化させた4 ケースの除染エリア周辺の線量分布図

染後の線量率分布を計算した結果をFig12 に示す。Fig13 は、 DF値を様々に変化させた計算結果のうちの4ケースの除染エ リア周辺の線量分布図を示す。 これらの等線量分布図と実測 の地上1m線量率分布図 (Fig.8) が最も一致するときのDF値 がその除染法のDF値である。

ここでは、一致度をn次元ユークリッド距離で評価した。ユー クリッド距離は、一致度が高いほど距離が短くなる。携帯用 サーベイメータの測定点 P  $(p_1, p_2, \dots, p_n)$  とCDEで計算さ れた同地点Q  $(q_1, q_2, \dots, q_n)$ の間のユークリッド距離dは、 次式で定義される。

$$d(p,q) = \sqrt{(q_1 - p_1)^2 + (q_2 - p_2)^2 + \dots + (q_n - p_n)^2} \quad \dots \quad (8)$$

ここで、nは線量率分布図を構成するデータの地点数で、 硬化剤を使った土壌削り取り法サイトで49地点、土壌攪 拌・除去法と土壌攪拌・人力除去法のサイトで、それぞれ、 24地点である。

Fig.14にDF値とユークリッド距離の関係を示す。DF値と ユークリッド距離の関係は、図中に示す3次式で近似できる。 表土削り取り法は、DF値が高いほどユークリッド距離は短くな



Fig.14 DF 値とユークリッド距離の関係

(a) 硬化剤を用いた表土削り取り法、(b) 水による土壌攪拌・除去法、(c) 同土壌攪拌・人力除去法。 計算線量率の地点は、5m×5mメッシュの中心点とした。 表土削り取りエリア49地点、攪拌・除去と人力除去は、それぞれ24地点のユークリッド距離を計算



Fig.15 気球測定による除染後の表土削り取り法サイトの線量率断面に沿ったサーベイメータ測定線量率、 半径 20 m を完全除染した場合の線量率変化、DF=40 の CDE 線量率変化

るが、DF=60でも最小値に達していない。一方、土壌攪拌・ 除去法はDF=1.4、土壌攪拌・人力除去法はDF=2.2で、 ユークリッド距離が最短になる。そのため、これらの値が除染 法のDF値であると考えられる。

Fig.15 は、気球測定による除染後の表土削り取り法サイト の線量率断面線(断面位置はFig.10 を参照)に沿ったサーベイ メータ測定線量率、半径 20 mを完全除染した場合の線量率 変化、DF=40 のCDE線量率変化を示している。完全除染 の線量率変化は、除染前の線量率を断面西側で 6.5  $\mu$ Sv/h、 東側で 7  $\mu$ Sv/hと仮定して、岩本ほか<sup>70</sup>の線量率低減比変化図 から計算で求めた。岩本ほか<sup>70</sup>によると半径 20 mを完全除染 しても(DF= $\infty$ )、除染エリア中心の線量率は約 40%しか低 下せず、除染境界付近では、線量率が急激に上昇する。気球 測定による線量率変化は、この急激な線量率上昇傾向を良く再 現している。 この図からCDEの計算でDF値を変化させても DF値が安定しなかった理由は、ほぼ完全な除染(DF= $\infty$ )が 行われたためであると考えられる。

硬化剤を使った表土削り取り法のDFは、土壌分析値に基づ くと26、シミュレーションで∞であった。DF=26は、削り取 りの深さを最適化した場合の表土と芝の削り取り法のDF=30 にほぼ等しい(Table 3)。硬化剤を使った表土削り取り法は、 削り取り深さを硬化剤の浸透厚さで厳格に制御しているので、 DF=26は妥当な値である。今回の実験では小面積を徹底的 に除染し、削り取り土をバキュームで処理しているので、完全 除染(DF=∞)になることも可能である。DF=26は除染後に 3.4%の放射性セシウムが除染されずに残っている状態であり<sup>8</sup>、 ∞と実質的な違いはないと考えられる。土壌攪拌・除去法の DF値は、土壌分析値で1.0~1.2、シミュレーションで1.4~ 2.2であった。これらの値は、汚染土壌を除去していない畑地・ 水田の耕起、深耕、反転法と同程度の値である。

#### 5. 結論

FDNP事故により放出された放射性セシウムで汚染された 飯舘村の水田で、NIREが行った硬化剤を用いた表土削り取り 法、水による土壌攪拌・除去法、同土壌攪拌・人力除去法の 除染効果をDF値で評価した。実験サイトのCDEモデルを作 るために、実験サイトおよびその周辺の線量率分布を気球測定 と無線操縦ヘリコプター測定で連続測定した。γ線スペクトル を解析し、<sup>134</sup>Csの563、569、605 keVと<sup>137</sup>Csの662 keVのピー クにより形成されたA1ピークと<sup>134</sup>Csの796 keV と802 keVの ピークから形成されたA2ピークの合計ネットカウントとサーベ イメータで測定した地上1 m線量率の相関関係から校正式を 決定し、線量率分布図を作成した。 これらの結果を入力した CDEモデルで、各除染法のDF値を様々に変化させて除染後 の線量率分布を求めた。実測の地上1m線量率分布図に最も 一致する線量率分布図を示すDF値が求める除染法のDF値 になる。実測値と計算値の間の一致度は、ユークリッド距離で 評価した。 その結果、土削り取り法はDF値が高いほどユー クリッド距離は短くなるが、DF=60 でも最低値に達しなかっ た。一方、土壌攪拌・除去法は、DF=1.4 で、土壌攪拌・人 力除去法は、DF=2.2 でユークリッド距離が最も短くなった。 気球による除染後の土壌削り取り法の実験サイトの線量率分布 図は、岩本ほか(2011)が計算した半径 20mを完全除染した 場合の線量率変化を良く再現していた。土削り取り法のDF値 がDF=60でも最低値に達していない理由は、ほぼ完全な除染 (DF=∞)が行われたためと考えられる。

硬化剤を使った表土削り取り法のDF=∞は、過剰な除染 である。本法を実際に現地で適用する場合には、人員配置、 設備配置等を簡素化した経済的除染法に改良する必要があ る。土壤攪拌・除去法がDF=1.4と土壤攪拌・人力除去が DF=2.2と小さかったのは、処理土の体積が小さいためであり、 DF値を上げるためには、汚染土壌の排土量を増やす工夫が必 要である。

# 謝 辞

本研究は、平成23年度科学技術戦略推進費「放射性物質 による環境影響への対策基盤の確立」の一部として実施され た。本研究は、飯舘村役場、福島県農業総合センター、農村 工学研究所農村技術支援チームならびに関係各位の協力によ り実施された。ここに記して謝意を表します。

# 参考文献

- 今中 哲二,遠藤 暁,菅井 益郎,小澤 祥司:福島原 発事故にともなう飯舘村の放射能汚染調査報告.科学, 81,6,594-600. (2011).
- 2) 文部科学省:放射線量等分布マップ拡大サイト, (http://ramap.jaea.go.jp/map/), 2015年12月閲覧.
- 農林水産省 (MAFF): 農地土壌の放射性物質除去技術 (除染技術) 作業の手引き 第1版, 全75p. (http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/pdf/120302-01.pdf), 2015 年 12 月閲覧.
- IAEA: Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: Twenty Years of Experience, 全 166p. (2006).
- J. Roed, K.G. Andersson, A.N. Barkovsky, C.L. Fogh, A.S. Mishine, S.K. Olsen, A.V. Ponamarjov, H. Prip, V.P. Ramzaev, B.F. Vorobiev: Mechanical decontamination tests in areas affected by the Chernobyl accident, Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark, 45-51 (1998).
- D. Satoh, K. Kojima, A. Oizumi, A. Matsuda, H. Iwamoto, T. Kugo, Y. Sakamoto, A. Endo, S. Okajima: Development of a calculation system for the estimation of decontamination effects. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, 656-670 (2014).
- 7) 日本アイソトープ協会:アイソトープ手帳,(2011).
- 岩元 洋介, 佐藤 大樹, 遠藤 章, 坂本 幸夫, 呉田 昌 俊, 久語 輝彦: 汚染土壌の除染領域と線量低減効果 の検討, JAEA-Technology, 2011-026, 全 18p. (2011).

- 原子力基礎工学研究センター, CDE: 除染効果評価シ ステム (http://nsec.jaea.go.jp/josen/). 2015 年 12 月 閲覧.
- 福島県,5万分の1都道府県土地利用分類基本調査(保 原),表層地質図および説明書,国土交通省国土情報課, 全47p. (1987).
- 今井 登:日本の自然放射線量.日本地質学会ホームページ(http://www.geosociety.jp/hazard/content0058. html). 2015 年12 月閲覧.
- 12) 藤元 憲三: 我が国における宇宙線からの線量マッ ピング. 放射線医学総合研究所, NIRS-M-170, 全124p. (2004).
- 13) 奥島 修二, 野隆 弘, 石田 聡, 吉本 周平, 白谷 栄作, 濵田 康治, 人見 忠良, 樽屋 啓之, 今泉 眞之, 中 達 雄:浅代かき強制排水による水田土壌中の放射性物 質除染法の有効性に関する事前検討.土壌の物理性, 121, 43-48 (2012).
- 14) 文部科学省 (MEXT): 放射能測定法シリーズ No.33, ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法.日本分析センター,全 98p. (2008).
- 15) IAEA: Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data. IAEA-TECDOC-1363 (2003).
- 16) D.L.Nielson, C.Linpei, S.H.Ward: Gamma-ray spectrometry and radon emanometry in environmental geophysics. In: Geotechnical and Environmental Geophysics, Vol.1, Soc. Explor. Geophys., Tulsa, S.H.Ward (ed.), 219-251 (1990).
- 17) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ No.7, ゲルマニウ ム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー. 全 362p. (1992).
- 18) IAEA: X-ray and Gamma-ray Decay Data (https://www-nds.iaea.org/xgamma\_standards/), 2015年12月 閲覧.
- 19) 吉本 周平,今泉 眞之,石田 聡,小倉 力,奥島 修二: 農地を対象とした NaI (Tl) シンチレーション検出器 による放射性セシウムの定量解析法.農工研技報 214, 175-196 (2013).
- D. F. Covell: Determination of gamma-ray abundance directly from the total absorption peak. *Anal. Chem.* 31, 1785-1790 (1959).
- 21) IAEA: Airborne Gamma Ray Spectrometer Surveying. Technical Reports Series No.323 (1991).
- 22) H. Kato, Y. Onda, M. Teramage: Depth distribution of 137Cs, 134Cs, and 1311 in soil profile after FDNPPA. J. Environ. Radioactiv., **111**, 59-64 (2012).
- 23) 田崎 晴明: セシウム 137 とセシウム 134 (http://

www.gakushuin.ac.jp/~881791/housha/details/ Cs137vs134.html). 2015 年 12 月閲覧.

- 24) 広報いいたてお知らせ版(携帯版), 飯舘村役場(http:// www.vill.iitate.fukushima.jp/saigai/?p=656). 2016 年 1月閲覧.
- 25) K. G. Andersson: Airborne Radioactive Contamination in Inhabited Areas, ELSEVIER SCIENCE & TECHNOLOGY, 全 348p. (2009).
- 26) M. Gonze, P. Renaud, I. Korsakissok, H. Kato, T. G. Hinton, C. Mourlon, M, Simon-Cornu: Assessment of dry and wet atmospheric deposits of radioactive aerosols: application to Fukushima radiocaesium fallout. *Environ Sci Technol.*, **48**, 11268-11276 (2014).
- 27) M. Takeyasu, S. Sumiya: Estimation of dry deposition velocities of radionuclides released by the accident at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power

Plant. Prog. Nucl. Sci. Technol., 4, 64-67 (2014).

- 28) EURANOS (European approach to nuclear and radiological emergency management and rehabilitation strategies): "Generic handbook for assisting in the management of contaminated food production systems in Europe following a radiological emergency, Version 2" (http://www. euranos.fzk.de/Products/Handbook\_for\_Food\_ Production\_Systems\_version2.pdf). 2015 年 12 月閲覧.
- 29) 原子力学会クリーンアップ分科会:「EURANOS 除染技術 データシート」(http://www.aesj.or.jp/information/ fnpp201103/chousacom/cu/euranos\_datasheets\_ v1.pdf). 2015 年 12 月閲覧.

2015年12月18日受付 2016年2月16日受理

# 和文要約

東京電力福島第一原子力発電所事故に起因する放射性セシウムで汚染された飯舘村水田で、農業・食品産業技術総合研究機構農 村工学研究所が行った硬化剤を用いた表土削り取り法、水による土壌攪拌・除去法、同土壌攪拌・人力除去法の除染効果をDF値で 評価した。実験サイトとその周辺の線量率分布を気球と無線操縦ヘリコプターを使ったy線システムで測定し、線量率分布図を作成し た。これを入力したCDEモデルで、DF値を様々に変化させて除染後の線量率分布を求め、実測地上1m線量率分布図と計算結 果の一致度をユークリッド距離で評価した。その結果、土削り取り法はDF値が高いほどユークリッド距離は短くなるが、DF=60で も最小値に達しない。一方、土壌攪拌・除去法は、DF=1.4で、土壌攪拌・人力除去法は、DF=2.2でユークリッド距離が最も短 くなった。気球による除染後の土壌削り取り法の実験サイトの線量率分布図は、岩本ほか(2011)が計算した半径 20mを完全除染し た場合の線量率変化を良く再現していた。土削り取り法のDF値がDF=60でも最低値一定値に達していない理由は、ほぼ完全な除 染(DF=∞)が行われたためと考えられる。

**└**┛┛┽*║*┽╻┸┛┛┽*║*┽╻┸┛┛┽*║*┽╻┸┙┛┛┽*║*┽╻┸┙┛┽*║*┽╻┦

