表面線量率及び表面汚染密度の測定による 放射性セシウムの表面残存状況の評価

森 芳友1*、 米田 稔1、 島田 洋子1、 福谷 哲2、 池上 麻衣子2

¹ 京都大学大学院 工学研究科都市環境工学専攻 (〒 615-8540 京都府京都市西京区京都大学桂 C クラスター) ² 京都大学 原子炉実験所 (〒 590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目)

Evaluation of Residual Radioactive Cs at Surfaces by Monitoring Surface Dose Rate and Surface Contamination Concentration

Yoshitomo MORI^{1*}, Minoru YONEDA¹, Yoko SHIMADA¹, Satoshi FUKUTANI², and Maiko IKEGAMI²

¹Graduate School of Urban and Environment Engineering, Kyoto University (Kyoto-daigaku-katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8540, Japan) ²Kyoto University Research Reactor Institute (2 Asashiro-Nishi, Kumatori-cho, Sennan, Osaka 590-0494, Japan)

Summary

Scatter plots based on the monitoring data (Sep, 2012 - Dec, 2014) showed that at the surfaces of paved roads, surface contamination concentration indicated high values even in the low surface dose rate circumstances. On the other hand, at the surfaces of forests and unpaved roads, surface contamination concentration indicated low values even in the high surface dose rate circumstances. "SRI value", which was defined to represent the residual radioactive Cs at surface of objects, referred that in the forests and unpaved roads, it was assumed that radioactive Cs had already penetrated toward the underground, after 1.5 years passed since the nuclear power plant accident. On the paved roads, SRI value set up the possibility that radioactive Cs still remained on the surfaces, until the end of monitoring term. SRI values didn't have enough accuracy to evaluate the detailed depth profile of radioactive Cs in forest soils with different vegetation. However, they could be effective to grasp the rough residual condition of radioactive Cs during decontamination activities.

Key Words: Residual radioactive substances, Surface dose rate, Surface contamination concentration, Beta ray, Gamma ray

1. はじめに

福島第一原子力発電所の事故に伴って放出された放射性物質については、除染関係ガイドライン(平成25年5月(第2版))等に基づき除染が行われており、例えば、住宅の外壁や屋根における拭き取り、公園や学校における表土除去、森林における堆積有機物の除去など、土壌等の表面に沈着した放射性物質の除去等を中心に行われている。従って、より効果的な除染を行うためには、土壌等の表面における放射性物質の残存状況等を含めた放射性物質の動態を可能な限り詳細に知ることが

重要となる。例えば、土壌における放射性物質の深度分布については、スクレーパプレートやGe半導体検出器を用いることにより、正確な把握が可能となるが、試料の採取、運搬、計測には長い時間、分析費用等が必要となる。また、放射性物質の壊変に伴って放出される放射線のうち、アルファ線は薄い紙で、ベータ線はアルミニウム等の薄い金属板で、ガンマ線は鉛や厚い鉄の板で遮へいされる等の性質の違い¹⁾や、放射線の計測器のうち、シンチレーションサーベイメータはガンマ線のみを検出するのに対して、GMサーベイメータはガンマ線に

3

^{*}Corresponding author: E-mail: mori@risk.env.kyoto-u.ac.jp

対する計数効率は低く、基本的にベータ線を計測しているという性質²⁾の違いがある。こうした特性を利用し、バックグラウンドの影響が大きいと考えられる場合や、より正確な測定を行う場合の手法の一つとして、アクリル板等でベータ線を遮蔽し、正味のベータ線による表面汚染密度を算出する方法は既に知られており³⁾、除染実施箇所の一部において試行的に放射性セシウムの表面残存状況を確認している事例はあるが、全測定地点においてこうした取組を実施することは困難であり、また過去に既に測定済みの箇所のデータから放射性セシウムの表面残存状況を推測することはできない。

本研究では、こうした放射線の透過力や計測機器の性質の違いを利用しつつ、これまでの除染事業によって得られたデータや、森林における深度分布調査の結果等を基に、除染現場での適用が可能で、簡易かつ迅速に放射性セシウムの表面残存状況を把握する手法の可能性について検討した。

2. 方法

(1) 表面線量率と表面汚染密度による散布図の分析

陸域及び森林域の ¹³⁵Cs、 ⁹⁰Sr等の事故由来と想定される ベータ線放出核種の分布状況に関する研究例が少なく、現段 階では正確に評価できないため、本研究では ¹³⁴Cs及び ¹³⁷Cs 以外の放射性核種を考慮しないこととした。

放射性物質汚染対処特措法に基づく除染特別地域において 環境省が実施した事業の中で、森林、道路(舗装)及び道路 (未舗装)の、2012年9月~2014年12月における、各月の除 染実施前の表面線量率(周辺線量当量H*(10)、測定高さ:地 上1 cm)(測定機器:NaIシンチレーションサーベイメータ (例:TCS-172B(日立アロカメディカル(当時)))) と、表面汚染 密度(測定機器:GMサーベイメータ(例:TGS-146(日立アロ カメディカル(当時)))) のデータ(降雪時のデータを除く)を用 いて散布図を作成し、表面線量率と表面汚染密度との関係につ いて検討した。分析に当たり、表面線量率や表面汚染密度が 比較的高い地域のデータを用いたが、その中でも、低線量域 については、本研究で地表面での残存状況を推計しようとして いる放射性セシウムからの放射線に比べ、土壌粒子に含まれる 自然起源などによるバックグラウンドの影響が無視できなくなる ことから、散布図の作成にあたっては、表面線量率については 0.8(μSv/h) 以上のデータを、表面汚染密度については 350 (cpm) 以上のデータ(非汚染地域におけるバックグラウンドの おおよそ数倍~10倍程度以上)を使用した。なお、空間線量 率等の測定は、森林においては林縁部等において20~50(m) 程度につき1点、道路については10~30(m)程度につき1点 測定することとされている⁴⁾。

(2) 森林における表面線量率及び表面汚染密度の測定及び放射性セシウムの深度分布調査

福島県内の同一市町村内の森林5地点において、地表面に

おける表面線量率及び表面汚染密度を測定した後(表面汚染密 度については、アクリル板を使用した場合と、使用しない場合 の両方を測定)、各樹種の放射性セシウムの浸透の程度を調査 した。具体的には、カラマツ、アカマツ、広葉樹(混交林)、 スギ、ヒノキが卓越する森林において、スクレーパプレートを 用いて、堆積有機物層3層(L層、F層、H層)と、土壌層を15 層(0-5(cm)は0.5(cm)ごと、5-10(cm)は1(cm)ごと)採取 した。ここで、L層は最表層に位置し、ほとんど未分解の落葉、 落枝や草本などの遺体からなる層である。F層は土壌動物や土 壌微生物によって破砕され、植物遺体の原形は失われ、質的 にも変化しているが、肉眼で元の植物遺体の組織が認められる 程度の分解段階にある層である。H層はさらに分解が進み、 肉眼では元の組織が判別できないくらいになったもので、乾性 型の土壌では粉状に、湿性型の土壌では脂肪状になって質的 にも大きく変化している層である50。採取した土壌はU8容器に 入れた後、ゲルマニウム半導体検出器(ORTEC GMX-30190) により放射能を測定した。なお、各層の放射能濃度は 2015年10月1日時点に補正している。

放射能濃度と深度との関係は、式 (1) に示す双曲線正割関数に基づく近似式により重量緩衝深度 $\beta(g/cm^2)$ を解析した 6 。 β 値が大きいほど、放射性セシウムが鉛直方向に浸透していることを示している。

ここで、 $\zeta(g/cm^2)$ は重量深度、 $A_{m,0}(Bq/kg)$ は地表面に おける放射能濃度、 $\zeta_0(g/cm^2)$ は放射能濃度が最大となる重量深度である。

$$A_{\rm m}(\zeta) = (A_{\rm m,0}/2)\cosh(\zeta_0/\beta)\operatorname{sech}(-(\zeta-\zeta_0)/\beta) \cdots (1)$$

 $A_{m,0}$ 、 ζ_0 、及び β は調査で得られた深度分布を基に、Microsoft Office Excelのソルバー機能を用いて、最小二乗法により 算出した。

3. 結果及び考察

(1) 表面線量率と表面汚染密度による散布図の分析

各月ごとのデータ数をTable 1 に、散布図をFig.1 に示す。Fig.1 で、横軸は表面線量率(µSv/h)、縦軸は表面汚染密度(cpm)である。なお、散布図については、横軸は0-10(µSv/h)、縦軸は0-10,000(cpm)の範囲内でプロットしているため、図に表示されていない点もある。森林、道路(舗装面)、道路(未舗装面)のいずれについても、表面線量率と表面汚染密度は正の相関を示す傾向にあったが、いずれの月についても、道路(舗装面)については、低い表面線量率であっても、表面汚染密度は高い値を示す傾向があった一方で、森林や道路(未舗装面)については、道路(舗装面)と比較すると、表面汚染密度は低い値を示した。

各月の散布図から、原点を通り、かつ、各データの概ねの下限となっている線(以下「直線a」という。)を引き、本研究では、

この直線aの傾きはほぼ全てのベータ線が遮蔽され、ガンマ線のみをGMサーベイメータで測定した際の表面線量率 (μ Sv/h) と表面汚染密度(cpm) の比とみなした。

また、各月のデータの概ねの上限となる線(直線b及び直線B)は、JAEAで開発されたCDE(Calculation system for Decontamination Effect)を用い、以下の手順で算出した。

① 場の設定

除染効果評価システムCDEの開発 7 p6-8を参考に、5 (m)×5(m)メッシュで 201行×201列(1005(m)×1005 (m))の領域を設定し、全てのメッシュに 10 (Bq/cm 2)の放射能セシウムが均質に広がっている場を設定。

② 場における空間線量率 (測定高さ: 地上 100 (cm)) の 計算

CDEにより、「除染前空間線量分布」を計算し、①の場における空間線量率(測定高さ:地上100(cm))を算出。なお、汚染密度測定日及び線量を評価する日は、各月の中間日(2月は15日、それ以外は16日)とした。

③ 空間線量率 (測定高さ: 地上100 (cm)) に相当する 表面線量率の計算

CDEにより、②で算出した空間線量率(測定高さ:地上100(cm))に小数点2桁で最も近くなるような、表面線量率の値を算出(以下「X」とする)。

④ 10 (Bq/m²) に相当するベータ線の計数値の計算

GMサーベイメータのベータ線測定効率として入射窓直下の線源に対する幾何効率を 0.5 とし、GMサーベイメータとしては、TGS-146B(日立アロカメディカル(当時)) の値を用いる場合、入射窓面積:19.6(cm²)、開口率:約85(%) であることから、10(Bq/cm²) は、

10(Bq/cm²)*0.5*19.6(cm²)*0.85*60(sec/min) = 5,000 (cpm) に相当する。

⑤ 概ねの上限となる線の決定

全ての放射性セシウムが測定対象となる表面に分布し、ベータ線及びガンマ線がいずれも遮蔽されない状態にある場合、表面線量率(μ Sv/h) がXの際の表面汚染密度(cpm)の理論値は、その際のGMサーベイメータによるガンマ線の計数値と、 $10(Bq/cm^2)$ の表面汚染によるベータ線の計数値 5,000(cpm) との和になると考えられる。よって、直線 aについて、x=Xの時の表面汚染密度(cpm) を算出(以下「Y」とする。)し、原点と(X, 5,000+Y) を通る直線を直線 bとする。

各月の直線bの傾きの平均値を求めたところ、5,900 となった ため、原点と(x,y)= $(1(\mu Sv/h),5,900(cpm))$ を通過する直 線を「直線B」と定義する。

各月の直線a及び直線bの傾きをTable 2とFig.2に示した。直線aについては、本研究における分析期間では、原点を通り、平均的な傾きが約300となる直線であったが、測定点が少ない月においては、直線aが真の下限値から乖離が大きい直線になり得る可能性がある一方で、例えば測定点が非常に多い2013年7月~10月では、およそ200であった。また、GMサーベイメータ(TGS-121、日立アロカメディカル(当時))には、正面の表示部や、取扱説明書中の、¹³⁷Csのガンマ線源により校正した結果を示すグラフにおいて、表面線量率と表面汚染密度との関係について表示や解説があり、いずれも、300(μSv/h)と1,000(cps)が対応する、すなわち1(μSv/h)に対しては200(cpm)が対応するとされている。GMサーベイメータ(TGS-121)の窓径はおよそ2(cm)であるが、除染作業においては、

Table 1 Number of data in each month

	Sep. 2012	Oct. 2012	Nov. 2012	Dec. 2012	Jan. 2013	Feb. 2013	Mar. 2013	Apr. 2013	May 2013	Jun. 2013
Forest	378	2,437	1,170	357	266	354	483	835	1,710	1,605
Paved road	319	1,263	285	218	111	168	28	239	45	145
Unpaved road	1	103	83	123	28	15	8	13	50	181

	Jul. 2013	Aug. 2013	Sep. 2013	Oct. 2013	Nov. 2013	Dec. 2013	Jan. 2014	Feb. 2014	Mar. 2014	Apr. 2014
Forest	1,304	1,897	1,908	2,256	1,839	1,115	1,716	149	281	965
Paved road	1,570	238	724	2,073	2,398	372	1,543	724	732	250
Unpaved road	553	346	203	539	468	322	682	191	454	256

	May 2014	Jun. 2014	Jul. 2014	Aug. 2014	Sep. 2014	Oct. 2014	Nov. 2014	Dec. 2014
Forest	820	631	418	317	768	576	523	313
Paved road	723	233	279	1,172	741	107	240	147
Unpaved road	213	110	190	145	314	48	49	6

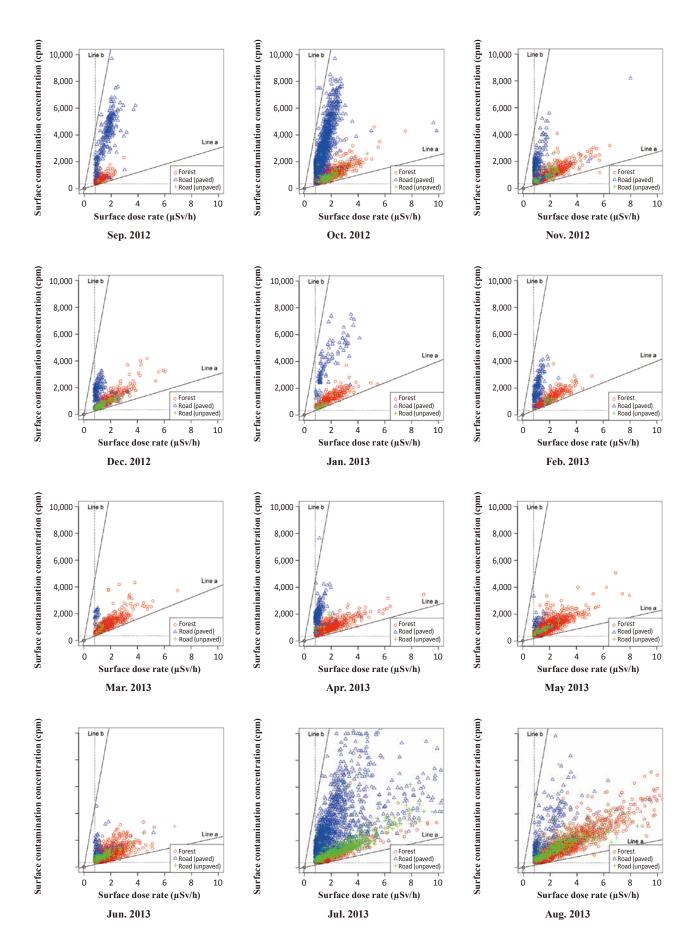


Fig.1 Time trend (Sep. 2012 – Dec. 2014) of scatter plots (Surface dose rate – Surface contamination concentration)

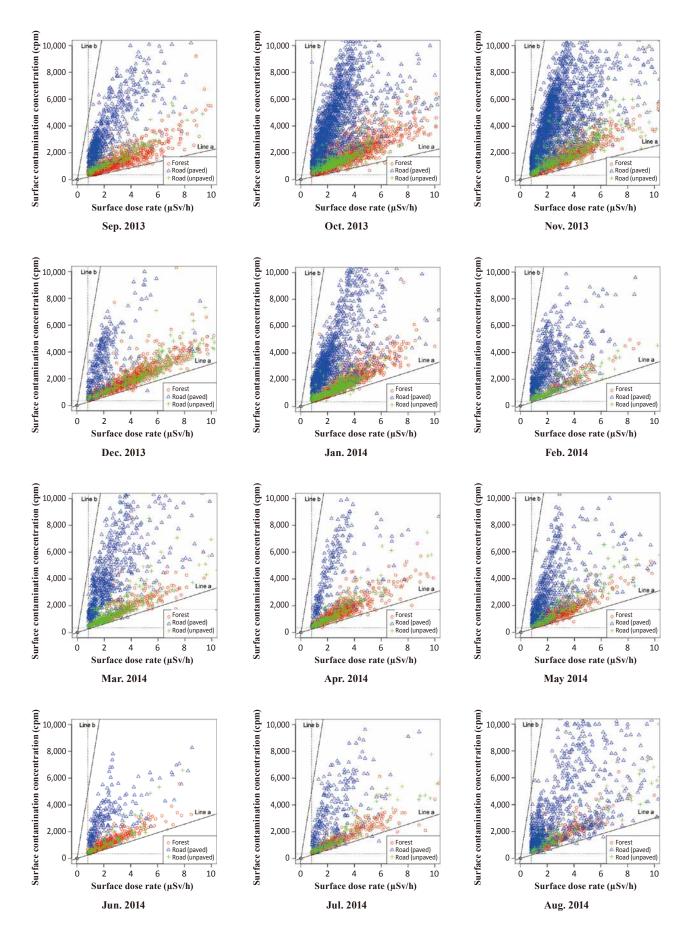
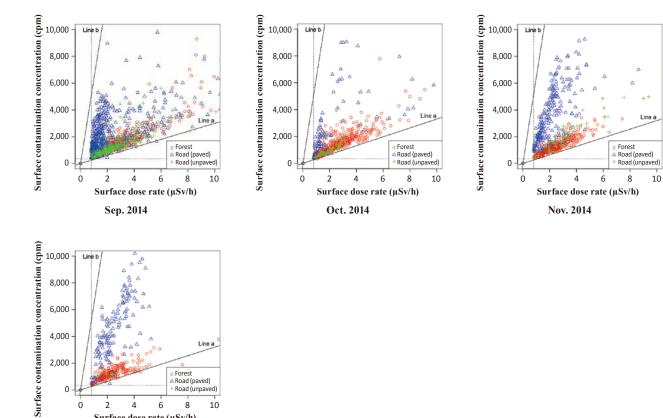


Fig.1 Time trend (Sep. 2012 – Dec. 2014) of scatter plots (Surface dose rate – Surface contamination concentration)

Y. Mori et al.



Forest Road (paved) Road (unpaved)

6 Surface dose rate (µSv/h)

Dec. 2014

0

Fig.1 Time trend (Sep. 2012 – Dec. 2014) of scatter plots (Surface dose rate - Surface contamination concentration)

Table 2 Slope of Line a and Line b

Year	Month	Line a	Line b		Year	Month	Line a	Line b
2012	Sep.	300	5,300		2014	Jan.	320	6,002
	Oct.	250	5,301			Feb.	320	6,002
	Nov.	270	5,321			Mar.	320	6,067
	Dec.	390	5,492			Apr.	300	6,114
2013	Jan.	400	5,555			May	300	6,114
	Feb.	400	5,608			Jun.	320	6,202
	Mar.	400	5,608		Jul.	320	6,272	
	Apr.	270	5,533			Aug.	300	6,252
	May	220	5,539			Sep.	300	6,324
	Jun.	220	5,596			Oct.	330	6,354
	Jul.	220	5,596			Nov.	320	6,418
	Aug.	200	5,635			Dec.	320	6,418
	Sep.	220	5,715					
	Oct.	220	5,715					
	Nov.	250	5,806					
	Dec.	310	5,928					

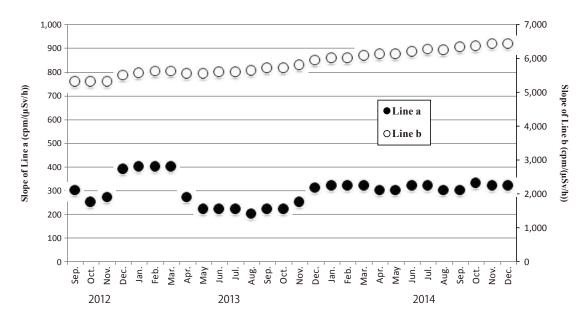


Fig.2 Time trend of the slope of Line a and Line b

GMサーベイメータ(TGS-146、日立アロカメディカル(当時)) のように、窓径がおよそ5(cm)の機器も多く使用されており、正確には両者の放射線の測定効率等が異なる可能性がある。更に、森林や道路(未舗装面)においても、まだベータ線の影響が残っている可能性を考慮すると、本研究の分析期間における、直線aの傾きの平均が約300であったことは概ね妥当と考えられる。

次に、直線bについて考察してみる。福島第一原子力発電所 の事故に伴って、¹³³Xe、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、⁸⁹Sr、⁹⁰Sr 等の様々な放 射性物質が放出された^{8,9)}が、陸域及び森林域の⁹⁰Sr等の事故 由来と想定されるベータ線放出核種の分布状況に関する研究 例が少なく、現段階では正確に評価できないため、本研究で は 134Cs 及び 137Cs 以外の放射性核種を考慮しないこととした。 ¹³⁴Csの主たるガンマ線のエネルギーは 0.605 (MeV) (放出率 97.6%)、0.796(MeV)(放出率85.5%)、0.569(MeV)(放 出率:15.4%)、0.802(MeV)(放出率:8.7%)、0.563(MeV) (放出率:8.4%)、1.365(MeV)(放出率:3.0%)であり、1 回のベータ線放出あたりのガンマ線光子数は約3.1となる。一 方、¹³⁷Csの主たるガンマ線のエネルギーは 0.662 (MeV)(放出 率:85.1%)、0.0321(MeV)(放出率:5.8%)、0.0365(MeV) (放出率:1.3%)であり、1回のベータ線放出あたりのガンマ線 光子数は約1.0となる(アイソトープ手帳11版、日本アイソトー プ協会、2011より。以下、本章の数値の出典は同様。)。

以上のことは、¹³⁴Csと ¹³⁷Csの半減期を考慮すると、時間の経過とともに全放射性セシウムに占める ¹³⁴Csの割合が減少するため、表面汚染密度の計数値(cpm)に占めるガンマ線の割合が減少し、ベータ線の割合が増大することを意味する。直線bの傾きが時間経過にともない増加する傾向(Table 2及び

Fig.2) は、この現象に調和的であると考えられる。

前述したように、GMサーベイメータはベータ線とガンマ線の両方を検出することから、シンチレーションサーベイメータによる測定値が同じ場合、つまり等しいガンマ線量に対して、GMサーベイメータの計測値が高いほど、ベータ線を多く検出していることになる。ベータ線の透過率がガンマ線と比較して低いこと、ガンマ線のエネルギーなどによってGMサーベイメータのガンマ線計数効率は変化すると考えられることなどを考慮すると、直線aはほぼガンマ線のみによるGMサーベイメータの計測値で、なおかつGMサーベイメータによるガンマ線の計数効率が最低である場合を意味し、直線aから上方に離れているほど、ベータ線の放射線源が表面近くに残存し、ベータ線が土壌等で遮へいされずにGMサーベイメータまで到達していることが示唆される。

ここで、直線aの傾きの平均値が約300となることから、原点と(x, y)=(1(μ Sv/h),300(cpm))を通る直線を「直線A」と定義する。前述のように、測定点の表面汚染密度と、表面線量率が測定値の時の直線A上の表面汚染密度との差分は、表面における放射性セシウムの残存状況を示すものと考えられる。以上のことを踏まえ、指標SRI(Surface Residue Index)を式(2)及び式(3)のように定義した。

$$SRI = (y_2 - y_1)/y_1$$
 (2)
 $y_1 = 300x_1$ (3)

ここで、 $x_1(\mu Sv/h)$ は測定点の表面線量率、 $y_2(cpm)$ は測定点の表面汚染密度であり、また、 $y_2-y_1<0$ のときはSRI=0 とした。

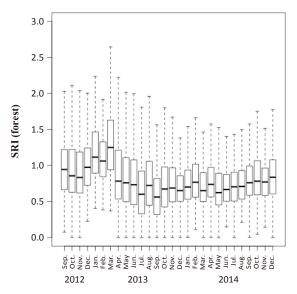


Fig.3-1 Time trend of SRI value in forest area

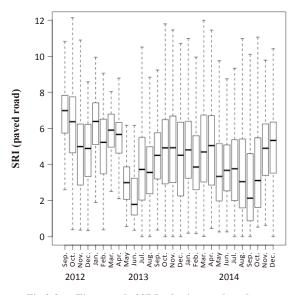


Fig.3-2 Time trend of SRI value in paved road area

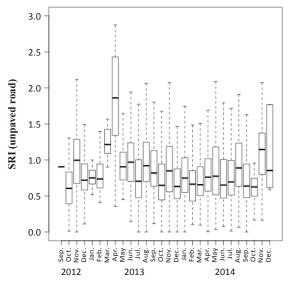


Fig.3-3 Time trend of SRI value in unpaved road area

その結果、各月における、表面における放射性セシウムの残存状況はFig.3-1-Fig.3-3のようになった。横軸は除染前の表面線量率及び表面汚染密度の測定時期、縦軸がSRI値であるが、図によって縦軸の範囲が異なっていることに留意が必要である。ここで、箱ひげ図については、箱の部分は上端が75パーセンタイル値、下端が25パーセンタイル値、その間に50パーセンタイル値(中央値)が示されている。また、ひげの部分は、上端は75パーセンタイル値に四分位範囲の1.5倍を加えた値(ただし、最大値がこの値よりも小さい場合は、当該最大値)で、下端は25パーセンタイル値から四分位範囲の1.5倍を引いた値(ただし、最小値がこの値よりも大きい場合は、当該最小値)となっている。

Fig.3-1に示す森林の各月のSRI値については、2013年の半ばまでは僅かに減少傾向を示したが、その後はほぼ 0.5~0.6程度の値(中央値)で安定している。また、Fig.3-3に示す道路(未舗装面)については、森林と比較してデータ数が少ないこともあり若干変動が大きいが、2012年9月~2015年2月までの全期間、SRI値は 0.6程度の値(中央値)を中心としてばらついている。なお、Fig.3-3で非常に高い値を示している 2013年4月はデータ数が少ない月であり、全体的な傾向からの差が特に大きくなったものと考えられる。森林土壌と道路(未舗装面)とのこのような傾向の違いは、放射性セシウムの土壌中への浸透速度や土壌密度の違いなどを反映しているものと考えられる。

また、Fig.3-2に示す道路(舗装面)については、森林と道路 (未舗装面)と比較して、SRI値が大きく、表面における放射性 物質の残存割合が大きいことを示している。なお、定期的な走 行サーベイによると、道路における空間線量率の減少率は放 射性セシウムの物理減衰による減少率よりも大きく、初期(2011 年6月)から第5次サーベイ(2012年12月)までは走行サーベ イに対する地表面から1 m 高さの空間線量率の比率が増大する が、第5次走行サーベイ以降は両者の空間線量率の減少率は 同程度となっており、比較的初期の段階において走行サーベイ 特有の早く減衰する成分が相対的に小さくなり、かく乱の少な い平坦地と同様の傾向で空間線量率が減少しているとされてい る¹⁰⁾ことから、本研究において解析を行っている期間内におい ては、道路舗装面における放射性セシウムの流出を大きく考 慮する必要はないと考えられる。長期的に見るとFig.3-2 にお いても2013年半ば頃まで若干の減少傾向も見られるが、森 林に比べデータ数が少ないためか、月ごとの変動は大きかっ た。なお、表面線量率等の各測定月について、Bartlett検定 を行った結果、等分散性は確認できなかったため(p<0.05)、 Kruskal-Wallisの検定を行ったところ、各測定月について、有 意な差が見られた(p<0.05)。

(2) 樹種ごとの放射性セシウムの浸透状況と SRI による評価

各樹種が卓越する森林における堆積有機物層及び土壌層に おける放射性物質の深度分布については、既に報告した研究¹¹⁾ では、様々な気象条件下で測定された除染の効果との相関を分析したため、単位乾燥重量当たりの放射性セシウムの濃度を用いた。一方、本報告では、以下にSRI値との相関を分析したが、SRI値はサンプリングを実施した現場において測定した表面線量率及び表面汚染密度の値を基に算出しているため、 β 値も単位湿重量当たりの放射性セシウム濃度の深度分布を基に算出した(Fig.4-1-Fig.4-5。単位乾燥重量当たりの放射性セシウム濃度の深度分布を基に算出した β 値との違いを明確にするため、以降 β _w」と標記する)。

式(1)に基づく近似曲線と実測値とのフィッティングについては、樹種ごとに大きな差が見られ、特にL層の放射能濃度が F層以深の層に比べて非常に小さかったアカマツ林や広葉樹林においては、実測値との乖離が大きくなった。また、アカマ

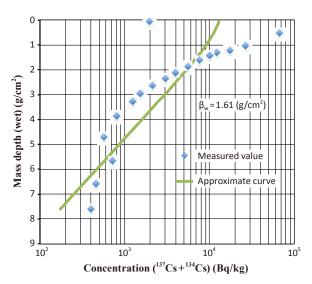


Fig.4-2 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (Pinus densiflora) (アカマツ林)

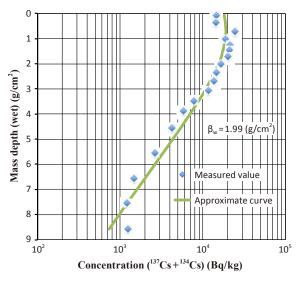


Fig.4-4 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (Cryptomeria japonica) (スギ林)

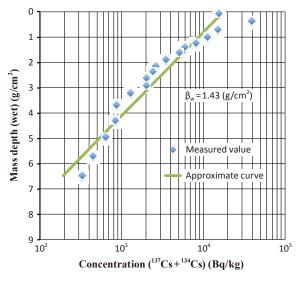


Fig.4-1 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (Larix kaempferi) (カラマツ林)

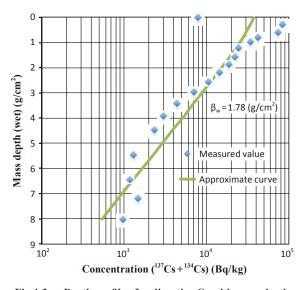


Fig.4-3 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (Deciduous broadleaf tree) (広葉樹林)

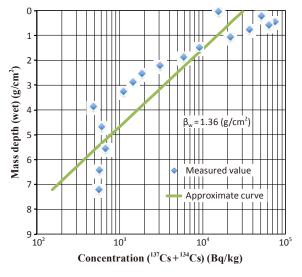


Fig.4-5 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (Chamaecyparis obtusa) (ヒノキ林)

ツ林、広葉樹林、ヒノキ林のように、土壌層深部(概ね5(cm)-10(cm))において濃度の大幅な低下が見られない場合は実測値との乖離が大きくなった。式(1)においては、土壌層深部では放射性セシウムの濃度が指数関数的に減少すると想定されているためであるが、場所によっては同式での想定よりも深部まで放射性セシウムが浸透していることが分かる。

β、値は、カラマツ林で1.43(g/cm²)、アカマツ林で1.61(g/cm²)、広葉樹林で1.78(g/cm²)、スギ林で1.99(g/cm²)、ヒノキ林で1.36(g/cm²)であった。β、が大きいほど、放射性セシウムが地中深部まで浸透していることを現しており、スギ林が最も深部まで浸透しており、ヒノキ林で最も表層に放射性セシウムが集積している可能性がある。ただし、放射性セシウムの浸透には、樹種そのものよりも、放射性セシウムが浸透する過程で、物理的接触等を直接行う堆積有機物や土壌が影響を及ぼしていると考えられることから、引き続き、放射性セシウムの浸透と当該堆積有機物や土壌の性質との関係を明らかにしていく必要がある。

次に、深度分布調査前に測定した表面線量率と表面汚染密 度との関係をFig.5に示した。各樹種の表面線量率と表面汚染 密度との関係は、直線 A(原点と(1(µSv/h),300(cpm))を通 る直線)に近い範囲に分布し、これまでの森林におけるデータ と同様の分布となった。今回の現地調査においても、放射性 セシウムの浸透により、森林の土壌からのベータ線の影響は比 較的少なくなっていることが考えられる。 その結果から算定し たSRI値との関係をFig.6に示した。しかし、β...値とSRI値と の関係を図示すると、放射性セシウムの浸透の程度を示すβ、 値が大きくなるほどSRI値が小さくなる傾向を示したが、さほど 強い相関は示さなかった。主たるベータ線の最大エネルギー (E) (MeV)は ¹³⁴Csでは 0.658 (MeV) (放出率: 70.2%)、 ¹³⁷Cs では 0.514 (MeV) (放出率: 94.4%)であり、これらベータ線の 飛程は0.407E1.38(mg/cm²)程度であるので、みかけ比重1 程度の土壌でも3(mm)程度の厚さで、ベータ線はほぼ完全 に遮へいされることになる。また、137Csから若干放出される最 大エネルギー1.176(MeV)(放出率:5.6%)のベータ線の場合 でも、飛程はおよそ 542E-133 (mg/cm²) 程度なので、みかけ 比重1の土壌5(mm)程度の厚さで、ほぼ完全に遮へいされ ることになる。ただし、土壌の場合は不均質に空隙が存在する ので、深さ5(mm)程度より深い部分にある放射性セシウムか ら放出されるベータ線でも、地表面で測定される場合もあり得 ると考えられるが、SRI値の算定により、放射性セシウムの浸 透の程度について詳細な深度分布との関係までを表現すること は難しいと考えられた。

そこで、表面汚染密度の測定の際にアクリル板(厚さ約2 (mm))を使用した場合と、使用していない場合とを比較し、アクリル板によるベータ線の遮蔽によるSRI値の差分とβ、値との関係をFig.7 に示した。なお、SRI値の差分については、式(4)の通りに示される。

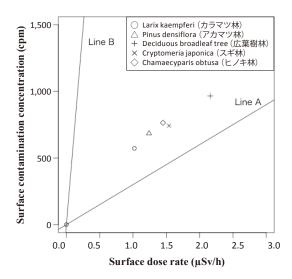


Fig.5 Scatter plots (Surface air dose rate - Surface contamination concentration) in each vegetation

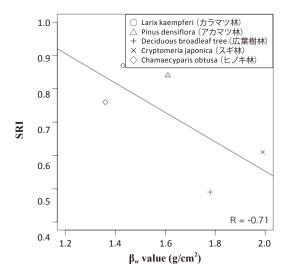


Fig.6 Scatter plots (β_w value - SRI) in each vegetation

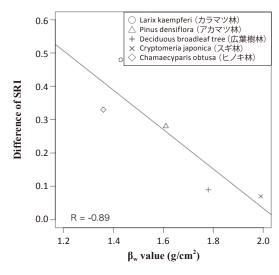


Fig. 7 Scatter plots (β_w value – Difference of SRI by using acryl board) in each vegetation

$$SRI - SRI_{acryl} = \frac{y_2 - y_1}{y_1} - \frac{y_3 - y_1}{y_1} = \frac{y_2 - y_3}{y_1} + \cdots$$
 (4)

ここで、 y_2 (cpm) はアクリル板を使用しない場合の表面汚染密度、 y_3 (cpm) はアクリル板を使用した場合の表面汚染密度、 x_1 (μ Sv/h) は測定点の表面線量率である。

その結果、アクリル板を使用して算出したSRI値の差分と β_w 値との間の相関は、アクリル板を使用しない場合のSRI値と β_w 値との相関より強いものとなった。なお、アクリル板は、寸法:180(mm)*120(mm)*2(mm)、重量:52(g)の物を使用したため、密度は $52(g)/(180*120*2)*1000=1.2(g/cm^3)$ となる。また、 ^{134}Cs の放出するベータ線の最大エネルギーが0.658(MeV)、 ^{137}Cs の放出するベータ線の最大エネルギーが0.514(MeV)であることから、質量飛程: $R(mg/cm^2)$ 、アクリル板の密度: $D(g/cm^3)$ 、飛程:L(cm)、ベータ線の最大エネルギー・ルギー:E(MeV)の関係は以下の式(5)の通りに示される。

アクリル板の厚みは2(mm)なので、ベータ線はアクリル板によってほぼ完全に遮蔽されると考えられる。

アクリル板によるベータ線の遮蔽によるSRI値は、各現場、各測定器において土壌表面近くに存在している放射性セシウムから放射されるベータ線や土壌の空隙から地表に届いていたベータ線の影響を除いた値となることから、アクリル板を使用せずに算出したSRI値と、アクリル板を使用して算出したSRI値との差分は、より正確に各現場、各測定器でのベータ線のみのカウント数と、ガンマ線強度との比を反映することとなり、放射性セシウムの表面残存状況をより正確に反映していることになる。このことから、浸透状況との相関がより強くなったと考えられる。ただし、放射性セシウムの浸透の程度を把握するために、アクリル板等は現時点でも使用されているが、あくまで除染実施前にごく一部の箇所において試験的に行われており、除染事業の中で、全測定点においてアクリル板等を使用することは現実的ではない。

なお、本章での議論では放射性セシウム以外の天然放射性 核種からの影響を考慮していない。そのため、放射性セシウム による汚染レベルが低く、放射性セシウムに起因する放射線 量と天然放射性核種に起因する放射線量とが同程度となる場 合には、天然放射性核種からの影響も考慮した議論が必要と なると考えられる。

4. 結論

本研究の対象とした放射性物質は、¹³⁴Cs及び ¹³⁷Csである。 ¹³⁴Cs及び ¹³⁷Csの主たるベータ線及びガンマ線のエネルギーは 第3章に示した通りであり、水、コンクリート、空気でのガンマ 線の全減衰係数が0.6(MeV)で $8 \sim 9 \times 10^{-2}$ (cm²/g)、0.8(MeV) で $7 \sim 8 \times 10^{-2} (cm^2/g)$ であることから、代表的な全 減衰係数として $8 \times 10^{-2} (cm^2/g)$ を採用し、土壌のみかけ密度 としては含水状態によって異なるが、仮に 1.5(g/cm³) 程度とす ると、ビルドアップ効果を無視した場合、5~6(cm)程度で ガンマ線はおよそ半減することになる。一方、ベータ線の飛程 は第3章で述べたように、5(mm)程度の土壌で、ベータ線は ほぼ完全に遮へいされることになるが、土壌の場合は不均質 に空隙が存在するので、深さ5(mm)程度より深い部分にあ る放射性セシウムから放出されるベータ線でも、地表面で測 定される場合もあり得ると考えられる。これらのことを考慮 すると、道路(舗装面)では、散布図において、比較的低線 量域でも高い表面汚染密度を示す場合があるのは、道路 (舗装面)では地表面近くに放射性セシウムが存在し、それ らから放出されるベータ線が検出されているためと考えられ る。一方で、森林や道路(未舗装面)においては、土壌等の 遮蔽によりベータ線が遮蔽され、ほとんどGMサーベイメータ で検出されていないと考えられる。

散布図において、各月の概ねの上限となる直線(直線B)を 理論的に求めたところ、ほとんどのデータが直線Bよりも下方に 分布したことからも、直線Aはほぼガンマ線のみによるGM サーベイメータの計測値で、なおかつGMサーベイメータによ るガンマ線の計数効率が最低である場合を意味し、直線Aから上方に離れているほど、ベータ線の放射線源が表面近く に残存し、ベータ線が土壌等で遮へいされずにGMサーベイメータまで到達していることを示していると考えられる(なお、直線Bの算定に当たっては、幾何効率のみを考慮しているため、より正確な上限を求めるには、更に測定窓におけるベータ線の吸収等を考慮する必要がある)。

また、土壌等の表面における、放射性セシウムの残存状況について、放射性セシウムが地表面に存在することを示す指標(SRI)を定義して経時変化を確認したところ、森林や道路(未舗装面)では、特に森林において若干の減少傾向は見られるものの、2012年9月以降では大きくは変化せず、道路(舗装面)に比べ低い値を示していることから、放射性セシウムの沈着後1年半程度が経過した段階では、既に土壌等の表面にはほとんど存在せず、地下方向にある程度浸透していたことを示唆している。これは、福島第一原子力発電所の事故から1年の間に、森林における放射性セシウムの分布が大きく変化し、土壌に含まれる放射性セシウムの割合が大幅に増加し、その後の変動は比較的少ないというこれまでのモニタリング結果と合致していると考えられる¹²⁾。一方で、道路(舗装面)については、若干の減少傾向は見られるが、変動が大きいことから、依然として物質の表面に残存している可能性がある。

なお、前述したように、時間の経過とともに半減期が短い ¹³⁴Csの割合が減少し、¹³⁷Csの割合が増加すると、GMサーベ

イメータで測定したとき、同じ表面汚染密度の計数値に対しベータ線の計数値の占める割合が増加してくる。このため、時間経過に伴ってSRI値は増加する傾向にあるはずだが、実際にはやや減少傾向にあることから、SRI値の変化は、 134 Cs と 137 Cs の物理的減衰に伴う存在割合の変化に起因するものではなく、 134 Cs 及び 137 Cs の浸透により、土壌粒子等により遮蔽されるベータ線が増加している可能性を示唆している。

これらの結果より、除染の現場等において通常測定されている、表面線量率と表面汚染密度の値を活用することにより、放射性セシウムの表面の残存状況を簡易に把握できる可能性が示唆されたが、同じ森林土壌での、放射性セシウムの浸透の程度の違いまでを詳細に分析できるほどの精度は現段階ではないことから、今後は、様々な除染対象における放射性セシウムの具体的な浸透の程度と、シンチレーションサーベイメータ及びGMサーベイメータによる計測値の変化を詳細に把握し、本研究の成果をより現場で実践的に活用できる評価方法としていく必要がある。

謝辞

本研究は、科研費 15H04068 (研究代表者: 島田 洋子) により実施したものです。厚く御礼申し上げます。

環境省福島環境再生事務所 加藤 聖氏には、除染事業に関するデータをご提供いただき、また、進捗状況等についてもご教示いただきました。

現地調査に当たっては、日本原子力研究機構福島技術本部福島環境安全センター 川瀬 啓一氏、渡邊 雅範氏、寺川 友 斗氏、東京電力除染推進室 満尾 晃一氏には、技術的助言等をいただくとともに、所属研究室の近藤 均氏、米谷 達成氏、Mr.Hendra Adhi Pratama、Mr.Yongqiang Cui、Mr.Adriraga Pratama には現地調査にご協力頂きました(所属は当時のもの)。関係各位に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 環境省:放射線による健康影響等に関する統一的な基礎 資料 平成 25年度版 ver.2013001(2014).
- 2) 環境省:「除染関係ガイドライン第2版(平成25年5月)」, 第1編汚染状況重点調査地域内における環境の汚染状 況の調査測定方法に係るガイドライン, pp.1-16 - 1-17, 環 境省, 東京(2013).

- 3) 環境省:「除染関係ガイドライン 第2版(平成25年5月)」, 第1編汚染状況重点調査地域内における環境の汚染状 況の調査測定方法に係るガイドライン, pp.1-36 - 1-37, 環 境省, 東京(2013).
- 4) 環境省:「除染関係ガイドライン第2版(平成25年5月)」, 第2編除染等の措置に係るガイドライン, pp.2-107, pp.2-56, 環境省, 東京(2013).
- 5) 日本林業技術協会:「森林・林業百科事典」, pp.628, 丸 善株式会社, 東京(2001).
- 6) N. Matsuda, S. Mikami, S. Shimoura, J. Takahashi, M. Nakano, K. Shimada, K. Uno, S. Hagiwara, K. 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. *J. Environ.* Radioactiv., **139**, 427-434 (2015).
- 7) 日本原子力研究開発機構:「除染効果評価システムCDE の開発」, pp.6-8, 日本原子力研究開発機構(http://nsed.jaea.go.jp/josen/), 東京(2012).
- 8) 原子力安全・保安院:「東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る1号機.2号機及び3号機の炉心の状態に関する評価について」,原子力安全・保安院,東京(2011).
- 9) 原子力安全・保安院:「放射性物質放出量データの一部 誤りについて」,原子力安全・保安院,東京(2011).
- 10) 日本原子力研究開発機構:「平成 27年度東京電力株式 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」, Part1. 放射性物質の分 布状況の調査, 走行サーベイによる道路及びその近傍に おける空間線量率の測定, 日本原子力研究開発機構, 東京 (2016).
- 11) 森 芳友、米田 稔、島田 洋子、福谷 哲、池上 麻衣子:統計的手法及び深度分布調査による森林除染の効果に影響を及ぼす要因に関する分析.環境放射能除染学会誌,4(4),313-324(2016).

2016年 8月 29日受付 2016年 11月 22日受理

Vol.5, No.1, 2017 / 環境放射能除染学会誌

和文要約

これまでの除染事業によって得られた、表面線量率及び表面汚染密度のデータ(測定期間:2012年9月~2014年12月)を基に散布図を作成した結果、いずれの月についても、道路(舗装面)については、低い表面線量率であっても、表面汚染密度は高い値を示す傾向があった一方で、森林や道路(未舗装面)の表面汚染密度は低い値を示した。 また、当該散布図を基に、表面における放射性セシウムの残存状況を示す指標(SRI)を定義し、経時変化を確認したところ、森林や道路(未舗装面)では、放射性セシウムの沈着後1年半程度が経過した段階では、既に土壌等の表面にはほとんど存在せず、地下方向にある程度浸透していた一方で、道路(舗装面)については、依然として物質の表面に残存している可能性を示唆していた。異なる樹種の森林5箇所での深度分布調査の結果、SRI値ではその違いまでを精度よく評価することは困難であったが、除染作業の際に使用する機器を用いて、表面における放射性セシウムの残存状況を簡易に評価できる可能性が示唆された。



