Vol.7, No.2, pp.115 - 122, 2019 / 環境放射能除染学会誌

報　文

福島において採取された放射能汚染土壌の物理的化学的特性

森田 昌敏[1*]、 山岸 晧彦[1, 2]、 山下 浩[3]、 佐藤 久子[3]

[1] NPO 法人環境測定品質管理センター（〒 305-0061 茨城県つくば市稲荷前 24-10）
[2] 東邦大学（〒 143-8540 東京都大田区大森西 5-21-16）
[3] 愛媛大学大学院理工学研究科（〒 790-8577 愛媛県松山市文京町 2-5）

Physical and Chemical Characterization of Radioactively Contaminated Soil Collected in Fukushima

Masatoshi MORITA[1*], Akihiko YAMAGISHI[1, 2], Hiroshi YAMASHITA[3], and Hisako SATO[3]

[1]Center of Analytical Quality Control for the Environment
(24-10 Inarimae, Tsukuba, Ibaraki 305-0061, Japan)
[2]Toho University (5-21-16 Oomori-nishi, Ota-ku, Tokyo 143-8540, Japan)
[3]Ehime University (2-5 Bunkyo-chou, Matsuyama, Ehime 791-8577, Japan)

Summary

Physical and chemical characterization was made for soil samples collected in Fukushima area on the third year after radio-active contamination accident in 2011 in order to find out a good and practical method of decontamination. Major radio activity was due to cesium 134 and cesium 137. Dry sieving of soil samples revealed that a high radio-activity was present in the portion of fine particles including clay material. It was also found that high radio-activity was in the portion of botanical origin such as rotten leaf. Elemental analysis of soil was performed by using ICP-MS, X-ray fluorescence spectrometry and CHN recorder, but it was difficult to find any relation between specific elements and residue radio-activity.Thermal treatment was effective for reduction of volume of contaminated soil.

Key Words： Radiocesium, Soil, Physico-chemical characterization

1. はじめに

2011年の福島第一原発事故により環境に放出された放射性セシウムは、主として土壌圏に留まっている。上昇した地域の空間線量率はこの残留セシウムに起因すると考えられており、このため地区住民の被ばく線量低減を目的として、表層土壌を取り除く除染事業が 6 年にわたっておこなわれてきた[1)]。除去土壌は地域の仮置き場に、その後中間貯蔵施設に移され、将来的には福島県外に持ち出されること、また一部減容化処理ののち、高濃度放射能汚染物質は最終処分場にて保管されることとされている[1)]。

原子炉のメルトダウンに伴い、当初飛来した放射性セシウムの化学形態については不明な部分も多い。高温の燃料棒から酸化物として空中に放出され、乾性沈着および湿性沈着により地表に落下し、或いは植物葉に付着し、やがて雨とともに地表に落下し、汚染土壌を構成したと考えられる。また一部は球状のミクロのボール（セシウムボール）として落下した部分もある[2)]。

セシウムは、土壌中において雲母及びそれに由来する粘土鉱物と強く結合することは知られてきており、そのメカニズムとしてフレイドエッジ仮説が唱えられている[3-7)]。

一方で、土壌は粘土鉱物などの岩石組成ばかりではなく、植物体とその分解物、微生物などの複雑な構成成分から成り立っている。 このことから土壌の保管、減容化を考える上でその物理的化学的状況についての情報を整理しておく必要がある。本研究では福島の実際の汚染土壌について、その特性を明らかとするための試験を行ったので報告する。

*Corresponding author : TEL: 029-879-5516, FAX: 029-886-9228, E-mail: npo.caqc@forest.ocn.ne.jp

2. 試料と分析法

（1）採取土壌と粗篩

汚染土壌サンプルについては、2014年に福島に3回出向き、放射能レベルと土壌成分の異なる汚染土壌をできるだけ幅広く集めた。すなわち福島県の道路沿いの地点を中心に、表層土壌（深さ3 cm以下）をスコップで採取した。採取した土壌を風乾後、篩にかけ5 mm以上、1～5 mm、1 mm以下の3段階の粒径に分類した。採取期間は2014年8月～11月、採取地は合計11地点で、その空間線量は0.13 μSv/h～10 μSv/h以上に分布していた。これ以外に、別途採取した土壌（1 mm以下）も除染試験に使用した。これらについては、化学分析は行っていない。

（2）放射能測定

放射能測定はキャンベラ社製のウエル型ゲルマニウムガンマ線検出器（セイコー・イージーアンドジー/GMX-20200/解析ソフト:ガンマスタジオ）を用いて、試料を100 mlのU8容器に入れて測定した。測定では放射能セシウム（Cs）を対象とし、^{137}Csは662 keVのガンマ線、^{134}Csは605 keVのガンマ線を用いて計測した。本文中に記載する放射能（Bq/kg）は両者の和である。

尚、空間線量率は堀場製作所の環境放射線モニターPA-1000を用いて行った。

（3）細粒の分級、化学分析および元素組成分析

1 mm以下の土壌サンプルについて、電動篩（日陶科学製ANF30）により、粒子サイズによる分級を行った。風乾土壌200 g程度を篩の上部に置き、約30分の振動篩により乾式での分級を行った。湿式での分級は同装置に湿式分級用アタッチメントをつけ、水に分散させた土壌（約30 g）を入れて、約30分間の振動篩処理を行った。これらは、風乾後ガラス容器に詰め保管した。

試料は風乾後篩わけし、瓶に保管したものから容器内でよく攪拌混合したものを用いた。水分量は110℃で2時間加熱乾燥して測定した。主元素である全炭素及び全窒素はCHNコーダーをもちいて測定した。試料10 mgを精秤しCHNコーダー（ジェイサイエンスラボ JM10）による全炭素量および全窒素量の計量を行った。金属成分（Na, Mg, Al, K, Cs, Ti, Mn, Fe, Ba, Cs）については、底質調査方法（環境省環水大水発120725002号）に従って行った。示されている湿式分解法に従って溶液化を行い、十分な希釈後、誘導結合プラズマ質量分析法（ICP/MS）によりおこなった。この湿式分解法では試料1 gを精秤しビーカーにいれ、王水（硝酸10 ml＋塩酸20 ml）を加えてホットプレート上におき、加熱分解させる。ついで硝酸20 ml＋過塩素酸5 mlを加えてさらに分解を進め、酸を揮発させた後に硝酸10 mlで加温溶解させ、最後に100 mlにメスアップし測定原液とした。本液を精製水（ミリポア水）を用いて100倍に希釈しICP/MS測定を行った。用いたICP/MSはアジレント7700で多成分同時分析として行った。

X線分析としては、鉱物相の同定を目的として島津XRD-6100を用いて、粉末X線回析を行い、X線回析パターンを得た。エネルギー分散型の蛍光X線分析装置（日本電子社製JSX3202EV）を用いて、土壌及び主要岩石成分の元素組成の半定量をおこなった。元素量の数値化は内蔵しているソフトウェア（Element Station）を用いて自動計算によった。

3. 結果と考察

（1）土壌の粗篩分けと放射能の分布

福島県11か所で採取した風乾土壌の放射能測定結果を表1に示す。

ここでは、1 mmの篩を通った細粒と、5 mmの篩に残る小石、植物体そしてその中間に分布する3クラスに分けている。土壌サンプルによって各分画の割合は大きく異なるが、調査した11種の土壌の平均としては1 mm以下が重量ベースで35％であった。土壌は一部粘土などを含んだ団塊を作っており、それをよく粉砕して篩にかければその割合は大きくなる。放射能ベースでみると、一般的には放射性セシウムは1 mmの篩を通過する細粒分に多く含まれる。11種の平均で、全放射能のうち51％が1 mm以下の画分に存在し、この画分の重量比率が35.5％であることから、他の画分に較べて50％程度の濃縮がみられている。

土壌の放射能の強さとの関連で表現すると次のようになる。

① 一般的に、空間線量率の高い地点で採取した土壌中の放射性セシウム濃度は高い。
② 砂質の土壌には、放射性セシウムはあまり残留していない。
③ 植物片（落葉及び根など）が多く含まれる表層腐葉土中の放射性セシウム濃度は高い。
④ 篩で分級した土壌は、1 mm以下の細かい粒子に放射能が高い傾向がある。
⑤ 5 mmの篩でふるったときの篩上に残った土は、石（礫）と根や葉などの植物体であるが、礫中の放射能は低い。

土壌によっては5 mm以上のサイズの土壌画分に放射性セシウムが多く含まれることがある（例えばB-3、C-5）。これは、これらの土壌に落葉が多く含まれる場合で、飛来した放射性セシウムが木の葉に捕捉され、表層の落葉等に残留しているケースである。一方で小石等は重量当たりの放射能が低いので、植物体と礫を分離する方法があれば減容化に有効である。今回の乾式の篩わけでは粘土質も団粒として大きな画分に分布している可能性があり、それを除くためには改質剤などの添加による分離性能の向上が必要である。

表 1　　土壌の篩分けと放射能分布

（風乾資料ベース）

試料番号	重量分布			放射能分布			土質	採取地空間線量率
	1 mm 以下 (%)	1 〜 5 mm (%)	5 mm 以上 (%)	1 mm 以下 (Bq/kg)	1 〜 5 mm (Bq/kg)	5 mm 以上 (Bq/kg)		(μSv/h)
A-1	18.9	38.3	42.8	17,400 (53.1%)	3,840 (23.8%)	3,340 (23.1%)	黒ぼく土	2.2
A-2	24.4	23.1	52.5	11,400 (54.5%)	4,800 (21.7%)	2,320 (23.8%)	黒ぼく土	0.7
A-3	34.9	25.1	39.9	1,850 (42.7%)	1,840 (30.7%)	820 (26.5%)	黒ぼく土	0.4
B-1	46.0	24.0	30.3	700,000 (81.6%)	272,000 (16.6%)	24,600 (1.9%)	黒ぼく土	7
B-2	43.4	48.9	7.7	23,800 (79.6%)	5,300 (20.0%)	710 (0.1%)	砂質	8
B-3	41.1	31.2	27.6	460,000 (45.2%)	344,000 (25.7%)	440,000 (29.0%)	腐葉土	>9.9
C-1	33.0	38.2	28.9	2,890 (46.8%)	1,540 (28.9%)	1,720 (24.4%)	黒ぼく土	0.13
C-2	43.9	39.7	16.4	7,700 (52.7%)	6,500 (24.1%)	3,280 (23.3%)	黒ぼく土	0.68
C-3	26.0	35.5	38.6	40,400 (37.8%)	26,200 (33.4%)	20,800 (28.8%)	腐葉土	2.3
C-4	51.0	32.2	16.3	362 (37.9%)	337 (39.9%)	203 (22.2%)	砂質	0.1
C-5	27.9	58.8	13.3	31,700 (26.1%)	12,200 (46.6%)	14,400 (27.3%)	黒ぼく土	2.4

石は重量あたりの表面積が少なく、その放射能濃度は植物体に比較して小さく、かつまた重量は大きい。従って、洗浄や風選などを用いて石をていねいに取り出すことは、除染を行う上で有効である。取り出した石の放射能濃度は低く、再生土として利用の可能性が高い。

尚、以後の表では、分画分に応じて枝番号をつけて各画分を表示している。例えばB1-1、B1-2、B1-3はB-1土壌のうちそれぞれ1 mm以下画分、1～5 mm画分、5 mm以上画分を示している。

(2) 1 mm 以下の土壌を乾式篩分け処理した後の粒子サイズ別放射能分布

いくつかの土壌について、1 mm以下の画分の更なる分級を行ない放射能を調べた。結果を表2に示す。

5つの土壌試料で、いずれも1 mmの篩を通った画分を用いて更に細かい乾式篩選別し、5グループに分けた。尚、D1-1は2013年に別途採取した試料、F1-1は試料B1-1をるつぼに入れ焼却した試料である。いずれも細かい粒子画分に、放射能が高い傾向が認められる。一般的に500 μm以上の画分に放射能は低い。しかし、それ以下のサイズの

表 2　　乾式篩を用いた粒子サイズ別放射能分布

（単位: Bq/kg）

	B1-1 黒ぼく土		B2-1 砂質		B3-1 腐葉土		D1-1 黒ぼく土		F1-1 土壌の焼却物	
	重量比	比放射能	重量比	比放射能	重量比	比放射能	重量比	比放射能	重量比	比放射能
63 μm 以下	8.3%	398,000	40.4%	61,400	1.0%	237,000	14.4%	37,500	0.8%	471,000
63 〜 125 μm	24.1%	455,000	22.5%	45,000	11.2%	447,000	11.5%	33,500	11.1%	496,000
125 〜 250 μm	20.1%	440,000	14.7%	94,000	30.8%	545,000	14.9%	24,300	32.9%	315,000
250 〜 500 μm	23.4%	464,000	12.6%	32,500	26.5%	372,000	24.9%	19,500	27.1%	356,000
500 〜 1,000 μm	23.8%	347,000	9.8%	14,800	30.8%	434,000	34.4%	13,000	28.0%	219,000

表 3　湿式分級による細粒分級と放射能分布

(比放射能: Bq/kg)

土質	B1 黒ぼく	B2 砂	D1 黒ぼく	D3 腐葉土
25 µm ～ 1,000 µm	384,000 (重量比 95%)	65,900 (重量比 97.5%)	213,000 (重量比 94%)	1,080,000 (重量比 98%)
25 µm 以下	871,000 (重量比 5%)	68,000 (重量比 2.5%)	190,000 (重量比 5.9%)	1,100,000 (重量比 2.2%)

*D1 及び D3 は 2015 年に別途採取した土壌で篩後 1 mm 以下のものを使用

分級では、重量あたりの放射能比は 2 倍以上の差異が生じず、それほど著しい差はみいだされなかった。

土壌では、粘土などが相互に付着し団塊となっており、これが乾式篩による分級の限界を示しているのかも知れない。土壌を乾燥後、一度粉砕して団塊を崩して細かい篩にかける必要がある。

(3) 湿式分級による細粒の分画

分級を試みるにあたってのもう一つの手法は、湿式分級である。土壌の重金属汚染の浄化手法としてよく用いられる方法であり、土を水に分散させることにより粘土などを分級しやすくなる。土壌の鉛汚染などの場合、通常 70 µm 程度をカットオフサイズとして分級される。いくつかの報告のなかで、その有効性が示されている[8, 9]。本研究では、セシウムが細かい粘土に選択的に吸着している可能性を明らかにするため、25 µm をカットオフサイズとして、土の湿式分級を試みた。土試料 (1,000 µm 以下) を 50 倍量の水に分散し、撹拌する。これを湿式分級器に入れ 25 µm 以上および 25 µm 以下の土を集め、放射能測定を行った (表 3)。25 µm 以下の画分は、重量ベースで 5% 程度であり、収量はあまり多くなかった。また比放射能もそれほど高くはなかった。この点については、もう少し多くの土壌を用いて確認する必要がある。さらには、超音波洗浄や界面活性剤をもちいて、土壌表面から粘土粒子をはがすことが必要で、それにより土壌分級の効果を高めることができるかもしれない。

(4) 土壌の比重分離

放射性セシウム吸着と土壌に主として含まれている鉱物との関係を明らかにするため、その密度による分級を試み、3 クラスに分けた。用いた溶媒はクロロホルム (比重 1.49)、およびブロモホルム (比重 2.89) である。結果を 表 4 に示す。

比重 1.49 より軽いものとしては、木質や草木の片等、天然の有機物があると思われる。

比重 1.49 ～ 2.89 の画分に多くの量 (重量ベース) が含まれ、また放射能を多く含んでいた。花崗岩の粘土類の比重はこの領域にあり、また放射性セシウムと強く結合するモルデナイト (mordenite) やバーミキュライト (vermiculite) の密度も、それぞれ 2.1 g/cm^3、2.4-2.7 g/cm^3 とこの画分にある。一方で、比重 2.89 以上の岩石は、酸化鉄やルチル等が考えられるが、放射能はこの画分にも比較的多く分布しているのは興味深い。

放射性セシウムは、密度の高い部分や低い部分に付着して分布しており、比重から考えての濃縮の度合いは顕著でなく、比重分級により放射性セシウムを濃縮するのは難しいと考えられる。

(5) 熱処理による減容化

るつぼに約 20 g の土壌を入れ、ガスバーナーにかけて約 20 分間加熱赤熱し、重量減少及びかさ体積 (みかけ) の変化を観察した。結果を 表 5 に示す。(加熱処理後の重量及び容積をもとの重量及び容積との比で示す。)

熱処理で重量減少や容積減少の大きいのは、有機物の多い土壌で、砂質の土壌ではほとんど変化がない。8 試料の全平均では、重量は 22% 減少し、またみかけの体積は 36% の減少がみられたことになる。本実験で観察しているのは、水分のロスと有機物のロスである。

従って、落ち葉などの溜まって構成された腐葉土の重量の

表 4　比重分画と放射能分布

(単位: Bq/kg)

	土壌 B1-1		土壌 B3-1		土壌 2502*	
	重量比	放射能 (比率)	重量比	放射能 (比率)	重量比	放射能 (比率)
比重 1.49 より軽いもの	5%	763,000 (6.7%)	9%	899,000 (12.2%)	6.0%	200,000 (5.1%)
比重 1.49 ～ 2.89 にあるもの	57%	852,800 (57.6%)	58%	821,000 (71.7%)	62%	267,000 (70.0%)
比重 2.89 以上のもの	39%	481,000 (35.7%)	33%	325,000 (16.1%)	32%	183,600 (24.9%)

*2011 年に福島県内で採取された別途試料

表 5　土壌の熱処理による重量減少および容積減少

土壌試料	土質	重量減少（%）	容積減少（%）
A1	黒ぼく土	17	25
A2	黒ぼく土	13	30
B1	黒ぼく土	20	26
B2	砂	3	2
B3	腐葉土	42	58
C2	黒ぼく土	16	33
C3	腐葉土	48	68
C5	黒ぼく土	18	50
平均		22	36

減少と体積の減少が最も大きい。一方で砂質の土壌は変化があまりない。腐葉土は土壌として埋立てて貯蔵するよりも、焼却処理したほうが減容化の効果が高いと思われる。

（6）土壌の化学的特性

土壌の化学的特性を明らかとするために、X線分析及び酸灰化後の溶液の質量分析を行った。

a）蛍光X線分析

蛍光X線分析による元素組成（原子量がNaより重い元素について）とそれから推定される酸化物量の数値化を装置付属のソフトウェアで行った。表6に蛍光X線分析による組成分析の結果を示す。これは半定量値に相当する。主要な元素としてMg, Al, Si, P, K, Ca, Ti, Mn, Feが検出される。ケイ素の多いサンプルがC4-1にみられるが、多くのサンプルは、アルカリ金属・アルカリ土類金属を含み、ケイ酸塩鉱物やアルミノケイ酸塩鉱物としていろいろの岩石やその風化物を含んでいると思われる。X線回折線のピークから明確に認められるのは石英であり、それに加えて粘土由来と思われるブロードなピークがみられた。

蛍光X線での簡易計量法では、検出される元素の酸化物合計を100%として求めているため、軽元素である炭素や酸素の含有量が測定されていない。本法は鉱物分析に多用される方法であるが、有機物を多く含む場合は本組成計算は含有量を必ずしも正しくは反映していない。表に示されるように主成分はケイ酸塩であり、次いでアルミニウム及び鉄の酸化物が多い。

表 6　土壌中鉱物成分の蛍光X線による組成測定

（乾重量ベース）

No	試料名	MgO %	Al_2O_3 %	SiO_2 %	P_2O_5 %	K_2O %	CaO %	TiO_2 %	MnO %	Fe_2O_3 %
1	A-1-1	1.07	19	57.1	0.03	3.06	4.29	1.41	0.31	13.4
2	A-2-1	1.85	19.6	49.1	0.53	2.76	6.27	2.24	0.3	17.2
3	A-3-1	1.45	18.5	55.9	0.59	4.38	5.05	1.46	0.32	12.2
4	B-1-1	0.82	14.5	64.5		3.21	6.16	0.89	0.15	9.24
5	B-2-1		14	65		4.6	3.75	1.11	0.24	11.2
6	B-3-1		14.3	62.4		3.46	5.71	1.38	0.19	12.1
7	C-1-1	1.49	19.8	51.6	0.49	4.72	6.79	1.45	0.35	13.1
8	C-2-1		24.1	52.1		3.91	2.56	1.6	0.34	15.1
9	C-3-1	0.98	21.6	43.3	1.84	3.17	9.89	1.67	0.46	16.2
10	C-4-1		16.6	73.2		2.08	3.21	0.42	0.07	4.23
11	C-5-1	0.87	20.6	58.9	0.46	2.08	2.29	1.44	0.28	12.9
12	0062（FR19）*	1.42	18.8	58.9		3.5	4.67	1.22	0.28	11.2
13	2525（FR26）*	1.45	16.2	56.7	0.11	3.49	6.14	1.41	0.33	14
14	5761（FR22）*	1.15	13.5	66.5		3.73	3.99	0.84	0.16	9.97
15	5763（FL8）*	1.05	19	50	2.49	2.98	7.22	1.37	0.37	14.4
16	モルデナイト		13	77.7		2.57	2.8	0.37	0.04	3.46
17	バーミュキュライト	17.7	7.5	40.5	1.37	7.96	5.19	1.66	0.08	17.7
18	ポルサイト		13.5	42.1	0.46	0.54				0.7
19	白雲母	0.62	28.1	46.8		14.4		0.93		8.98
20	黒雲母	10.7	12.8	39.4		9.73	2.79	1.33	0.16	22.7

* 福島県内河川敷で別途サンプリングされた土壌（黒ぼく土）で、1 mm 以下の画分

表7　CHN 及び ICP/MS による主要成分測定結果　（乾重量ベース）

No	試料名	T-C mg/g	T-N mg/g	Na mg/kg	Mg mg/kg	Al mg/kg	K mg/kg	Ca mg/kg	Ti mg/kg	Mn mg/kg	Fe mg/kg	Ba mg/kg	Cs mg/kg
1	A-1-1	19	1.6	19,000	9,400	79,000	19,000	16,000	3,600	1,000	38,000	360	5
2	A-2-1	39	2.9	14,000	17,000	78,000	14,000	25,000	5,100	890	42,000	340	<5
3	A-3-1	30	2.2	20,000	8,500	78,000	19,000	19,000	3,200	940	34,000	410	<5
4	B-1-1	48	3.5	16,000	7,000	62,000	14,000	19,000	2,600	580	26,000	330	<5
5	B-2-1	1.7	0.1	25,000	6,000	79,000	23,000	16,000	2,900	880	36,000	600	<5
6	B-3-1	42	3.4	17,000	7,500	63,000	14,000	20,000	3,000	560	27,000	340	<5
7	C-1-1	41	3.3	18,000	13,000	77,000	19,000	26,000	3,200	910	35,000	420	<5
8	C-2-1	72	5.1	11,000	5,300	69,000	20,000	9,700	2,500	770	29,000	380	<5
9	C-3-1	110	7.8	8,800	8,300	62,000	14,000	17,000	2,700	850	33,000	290	<5
10	C-4-1	0.5	0.1	18,000	3,500	64,000	13,000	18,000	2,000	420	19,000	310	<5
11	C-5-1	40	2.8	10,000	9,200	79,000	11,000	11,000	3,900	1,000	41,000	340	7
12	0062（FR19）	27	2.3	16,000	10,000	78,000	20,000	16,000	3,800	920	38,000	350	22
13	2525（FR26）	19	1.7	17,000	10,000	67,000	17,000	20,000	3,100	770	32,000	350	8
14	5761（FR22）	17	2	19,000	6,100	63,000	16,000	15,000	2,800	480	22,000	380	60
15	5763（FL8）	210*	8.8	13,000	3,100	35,000	10,000	11,000	1,600	520	18,000	160	5
16	モルデナイト	0.6	<0.1	19,000	2,800	55,000	11,000	11,000	1,200	230	11,000	380	31
17	バーミュキュライト	2.9	0.1	450	130,000	43,000	40,000	25,000	5,200	440	52,000	390	16
18	ポルサイト	0.5	<0.1	20,000	66	23,000	2,100	750	13	30	280	<5	270,000
19	白雲母	0.8	<0.1	5,900	4,300	100,000	72,000	530	3,400	100	26,000	670	10
20	黒雲母	<0.1	<0.1	7,000	81,000	74,000	48,000	24,000	5,300	1,500	89,000	450	21

*サンプリングに伴う異常値

b）元素分析

同じ試料についてCHNコーダを用いて炭素量・窒素含量を測定し、また酸灰化後、ICP質量分析（ICP/MS）による金属の測定を行った。結果を表7に示す。

今回用いた土壌試料は、表1に示されるように黒ぼく土が多いが、一部に有機質の多い腐葉土（B-3-1、C3-1）や砂主体（B-2-1、C-4-1）の土もある。これらの性状は炭素含有量に反映されている。

元素分析に用いた土壌試料は、1 mmの篩を通過した細粒であるが、完全に均一な物ではなく、測定値は分析時採取した土壌の結果であることに留意する必要がある。

測定試料の平均で見ると、全炭素で3.6%、全窒素で2.8%であり、これらの有機物由来の元素は砂質サンプル（B2-1、C4-1）では極めて少ない。

炭素含有量は主体が有機物であるが、一部に無機型の炭素が含まれている。その一部は炭酸塩と思われる。実際、酸を加えるとCO_2の発生がみられる土壌がある。ここで含まれる炭酸カルシウムは、中間貯蔵において特段問題とはならないが、有機物含有量の多い土壌の貯蔵には注意が必要である。埋立て保管中にメタンや硫化水素の発生する危険性を考えておく必要がある。また有機物が多い場合は、埋立てよりもその前に焼却処理を選択することも必要なことかもしれない。このため、埋立てに際し土壌の一部を用いて、炭素含有量を測るか、強熱減量を求めておくことが勧められる。

岩石類の主要元素はケイ素であり、このことは蛍光X線分析には反映されているが、化学分析（湿式分解法）では測定されない。これは酸処理（王水）において、ケイ素はケイ酸（不溶分）として残渣中にあり、溶液分析では測定されないためである。尚、元素含有量については、用いた分析法によって分析値が異なることに留意する必要がある。

その他の主要元素はNa（1.7%）、Mg（0.82%）、Al（6.9%）、K（1.6%）、Ca（1.8%）、Fe（3.1%）であり、これらの含有量はクラーク数に類似した含有量を示している。

15種の土壌試料で測定された元素含有量は土壌の平均的なものに近いため、元素分析から土壌がどのような岩石に由来しているかを決定することは難しそうであった。

本研究において、セシウムと強く結合すると考えられる鉱物についても、併せて分析している。モルデナイトは福島県

内で産出するゼオライトの一種で、セシウムの吸着力が強い物質である。また、セシウムは雲母類に強く吸着することから、白雲母と黒雲母および黒雲母の風化物であるバーミキュライトについても元素組成を求めている。尚、ポルサイトはゼオライトの一種であり、セシウム集積鉱物であることから、比較のため元素組成を示している。

分析に供したいずれの土壌試料も主体はケイ酸塩鉱物であり、元素組成は類似しており、放射性セシウムの結合先を、元素分析から関連付けるのは困難である。

尚、ICP質量分析により、一部のサンプルにおいて非放射性のセシウム133が検出されている。多くは検出下限（5 mg/kg）以下であったが、自然由来のセシウムが最大60 ppm検出されている。自然由来のセシウムの多い土壌に、放射性セシウムが蓄積しやすかったかどうかという関連性は明確ではない。

調査した15種の土壌サンプルのなかに、環境規制を受けるレベルの特別有害な元素（Pb, Cd, Hg, As, Se）を多く含むものはなかった。

4. おわりに

2011年福島第一原発事故に伴う放射能汚染に対応して、住民の被ばく線量低減を目的として表層土壌除去を中心とした除染事業が行われた。現地に保管された土壌は、中間貯蔵、減容化を経て最終処分に向かうことが検討されている。中間貯蔵施設における分級処理、熱的減容化処理および埋立ての環境影響評価のため、土壌の性質についての理解が欠かせない。本研究では、福島県内で採取した土壌について、その物理的化学的性状を明らかとして、放射性セシウムの除去に向けての基礎的知見を提供することを目的として試験を行ってきた。

環境中に放出された放射性セシウムは、土壌に吸着しているが、土壌圏内で少しずつ移行していると思われ、現状における残留状態の断面を捉えたものである。本研究の成果が今後の処理技術の改良と発展に向けての一助となることを期待したい。

謝　辞

本研究にあたり、環境研究総合推進費をいただき、研究を進めることができました。感謝致します。また分析にあたっては、いであ株式会社の鈴木幹夫氏、石丸圭氏にお世話になりました。感謝致します。

参　考　文　献

1) 環境省：東京電力福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質汚染の除染事業誌（2018）. https://www.env.go.jp/press/files/jp/108735.pdf（2018年7月閲覧）.

2) K. Adachi, M. Kajino, Y. Zaizen and Y. Igarashi: Emission of spherical cesium bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.*, **3**, e2554 (2013), DOI:10.1038/srep02554.

3) B. L. Sawhney: Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: A review. *Clay Clay Miner.*, **20**, 93-100（1972）.

4) S. Almgren. M. Isaksson: Vertical migration studies of Cs-137 from nuclear weapons fallout and the Cherunobyl accident. *J. Environ. Radioact.*, **91**, 90-102（2006）.

5) L. M. Kagan, V. B. Kadatsky: Depth Migration of Chernobyl originated Cs-137 and Sr-90 in soils of Belarus. *J.Envion.Radioact.*, **33**, 27-39（1996）.

6) N. Yamaguchi, M. Mitome, A.-H. Kotone, M. Asano, K. Adachi, T. Kogure: Internal Structure of Cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant. *Sci. Rep.*, **6**, e20548（2016）., www.nature.com/articles/srep20548, DOI:10.1038/srep20548.

7) H. Mukai, T. Hatta, H. Kitazawa, H. Yamada, T. Yaita, T. Kogure: Speciation of Radioactive soil Particles in the Fukushima Contaminated Area by IP Autoradiography and Microanalyses. *Environ. Sci. Technol.*, **48**, 13053-13059（2014）.

8) C. W. Francis, F. S. Brinkley: Preferential adsorption of Cs-137 to micaceous minerals in contaminated fresh sediment. *Nature*, **260**, 511-513（1976）.

9) 毛利 光男，土田 充，馬場 直紀，中嶋 卓磨：土壌洗浄法による放射性物質汚染土壌の浄化・減容化および濃縮残渣処理の自動化．環境放射能除染学会誌, **1**, 213-220（2013）.

10) 押野 嘉雄，除染・廃棄物技術協議会浄化土壌ワーキンググループ：分級による減容化 ～湿式分級とその課題～．環境放射能除染学会誌, **4**, 61-70（2016）.

2018年9月 3日受付
2019年3月25日受理

和 文 要 約

福島第一原子力発電所の事故により発生した放射能汚染土壌を福島県内で採取し、その物理的、化学的特性の記述を試みた。土壌はケイ酸塩鉱物やアルミノケイ酸塩鉱物を主成分としているが、サンプリング地点によりその有機物組成等は多様に異なっていた。また放射性セシウムは、すでに報告されているように細粒分に多く含まれるが、いっぽうで腐葉土など比較的大きな粒度分に高濃度に含まれるケースもあった。化学的及びＸ線分析的には多くの土壌は類似しており、特定の岩石（元素）と放射性セシウムの関連を実際の土壌で見いだすことは困難であった。土壌の長期貯蔵や減容化に向けての分級処理や、高温での熱減量など減容化に向けて各種の物性情報が重要である。本稿では得られた情報について記載を試みている。