

平成 29 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

発電所隣接サイト外領域における放射性核種
の環境動態特性に基づくサイト内放射性核種
インベントリ評価に関する研究

成果報告書

平成 30 年 3 月

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が実施した平成 27-29 年度「発電所隣接サイト外領域における放射性核種の環境動態特性に基づくサイト内放射性核種インベントリ評価に関する研究」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vi
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.2 平成 29 年度の成果の目標および業務の実施方法	2. 2-1
3. 平成 29 年度の実施内容および成果	3. 1-1
3.1 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価	3. 1-1
3.1.1 地衣類および表土中の放射性核種の分布状況調査	3. 1-1
3.1.2 地衣類種の同定と核種保持状態評価（再委託先：国立科学博物館）	3. 1-4
3.1.3 核種含有粒子の化学形態の評価	3. 1-10
3.2 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価	3. 2-1
3.2.1 表土深部・樹木内部における放射性核種の分布状況調査	3. 2-1
3.2.2 熱力学データ等に基づく表土深部方向の核種移行挙動の解明（再委託先：京都大学）	3. 2-12
3.2.3 表土深部・樹木内部における放射性核種分布特性評価と物質循環挙動に基づく移行挙動の解明（再委託先：福島大学）	3. 2-21
3.3 サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価	3. 3-1
3.3.1 得られた分析データに基づく知見	3. 3-1
3.3.2 核種の汚染ふるまいに係る情報の調査	3. 3-5
3.3.3 検討のアプローチ	3. 3-6
3.3.4 汚染モデルの検討	3. 3-7
3.4 研究推進	3. 4-1
4. 結言	4-1

表一覧

表 2.1-1	本研究の年度別全体計画	2.1-1
表 2.2-1	本研究に係る平成 29 年度月別計画	2.2-1
表 3.1-1	平成 27 年度に採取された地衣類と TLC もしくは MCT によって検出された含有成分	3.1-5
表 3.1-2	平成 28 年度に採取された地衣類と TLC もしくは MCT によって検出された含有成分	3.1-5
表 3.1-3	採取された地衣類と TLC もしくは MCT によって検出された含有成分	3.1-6
表 3.1-4	地衣類の生育方位と表面線量率	3.1-8
表 3.1-5	プルーム軌跡別の粒子中の主な含有元素（重元素）	3.1-11
表 3.2-1	樹高や胸高直径などの樹木生育状況の一覧	3.2-3
表 3.2-2	樹木試料の Cs-137 濃度および土壌 Cs-137 インベントリ	3.2-4
表 3.2-3	スギの樹木各部および圧搾した樹液の放射性セシウム濃度	3.2-4
表 3.2-4	表土中（0～1 cm）放射性セシウム濃度、Cs-134/137 比と Cs-137 沈着量	3.2-6
表 3.2-5	表土中の放射性核種濃度（Bq/kg、上）および Cs-137 に対する輸送比（下）	3.2-6
表 3.2-6	表土中の放射性核種濃度（Bq/kg、上）および Cs-137 に対する輸送比（中・下）	3.2-7
表 3.2-7	樹木試料中の放射性核種濃度（Bq/kg-ash、上）および Cs-137 に対する輸送比（下）	3.2-7
表 3.2-8	土壌の酸溶解液中の Cs-137 に対する Co-60 の放射能濃度比	3.2-8
表 3.2-9	沈着量ベースの放射性核種の輸送比	3.2-10
表 3.2-10	樹木材中の放射性核種濃度（Bq/kg、上）および Cs-137 に対する輸送比（下）	3.2-10
表 3.2-11	1次元移流拡散モデル解析で用いたパラメータ	3.2-19
表 3.2-12	1F 南側敷地境界における Cs-137 インベントリ（2016 年 8 月 23 日）	3.2-22
表 3.2-13	ミミズ、消化管内容物、排泄物および腐植中 Cs-137 濃度	3.2-25
表 3.3-1	ソースタームと土壌の U-235/238 放射能比	3.3-2
表 3.3-2	各プルームのフィッティングで得られたパラメータと安定度	3.3-8

図一覽

図 3.1-1	走行サーベイと無人ヘリで得られた線量率分布の指向性の比較	3.1-1
図 3.1-2	調査地点	3.1-2
図 3.1-3	地衣類調査地点における地衣類中の Cs-134/Cs-137 濃度比	3.1-3
図 3.1-4	主要 2 種の地衣類の主な分布状況の例	3.1-4
図 3.1-5	地衣類種の化学成分分析による同定	3.1-6
図 3.1-6	地衣類試料の標本例	3.1-7
図 3.1-7	試料收藏の様子	3.1-7
図 3.1-8	IP を用いた地衣類試料のオートラジオグラフィ像の例 (S-W の地点)	3.1-9
図 3.1-9	IP を用いた地衣類試料のオートラジオグラフィ像の例 (S-E1 の地点)	3.1-9
図 3.1-10	樹木に着生した地衣類の表面線量率の計測値比較結果	3.1-9
図 3.1-11	IP を用いた地衣類試料のオートラジオグラフィ像の例	3.1-10
図 3.1-12	地衣類試料中の重元素を含む粒子状物質	3.1-11
図 3.1-13	EPMA を用いた元素組成分析による地衣類試料から単離後の Cs 含有粒子の特定	3.1-13
図 3.1-14	地衣類から単離した Cs を含む粒子状物質の EPMA 観察像	3.1-13
図 3.1-15	EPMA のエネルギー分散型スペクトロメーター (EDS) 分析の結果	3.1-14
図 3.1-16	Cs 含有粒子と地衣類個体中の Cs-134/Cs-137 濃度比と放出源	3.1-14
図 3.2-1	調査位置図	3.2-5
図 3.2-2	樹木各部の Cs-137 面移行係数とプルームおよび採取年との関係	3.2-5
図 3.2-3	スギ樹皮および枝葉のオートラジオグラフィ像	3.2-5
図 3.2-4	Sr 分析と組み合わせた土壌試料からの放射性セシウム除去フロー	3.2-8
図 3.2-5	Cs を除去した土壌試料の γ スペクトル	3.2-9
図 3.2-6	表土試料 (北①-4-1) の γ スペクトル測定結果	3.2-11
図 3.2-7	表土中の放射性核種の濃度プロファイル	3.2-11
図 3.2-8	土壌試料を採取した 2 地点 (矢印はプルームの方向を表す)	3.2-13
図 3.2-9	Sr-90 定量に用いた ICP 質量分析システム	3.2-13
図 3.2-10	減重率、Cs-137 および Sr-90 濃度の深度プロファイルの結果の例	3.2-14
図 3.2-11	収着分配係数 K_d の pH および土壌深度依存性	3.2-15
図 3.2-12	事故で沈着した Cs-137 の脱離実験による K_d の pH 依存性 (写真: 試験の様子)	3.2-15
図 3.2-13	Sr-90 および Cs-137 の土壌深度プロファイル結果	3.2-17
図 3.2-14	Sr-90 および Cs-137 土壌深度プロファイルのモデル解釈 (その 1)	3.2-17
図 3.2-15	Sr-90 土壌深度プロファイルのモデル解釈 (その 2)	3.2-18
図 3.2-16	Sr-90 土壌深度プロファイルのモデル解釈 (その 3)	3.2-18
図 3.2-17	Sr-90 の Cs-137 に対する輸送比	3.2-20
図 3.2-18	1F 敷地境界試料採取地点	3.2-22

図 3.2-19	ヒノキ林（左）とスギ林（右）	3.2-23
図 3.2-20	土壌中 Cs-137 濃度の鉛直分布	3.2-25
図 3.2-21	深度別存在形態別 Cs-137 の存在割合（2017 年 3 月採取試料）	3.2-26
図 3.2-22	深度別存在形態別 Cs-137 の存在割合（2017 年 9 月採取試料）	3.2-26
図 3.2-23	スギ林土壌中の Cs-137 濃度の分布	3.2-27
図 3.2-24	改良型ハンドサンプラによる森林土壌の採集	3.2-27
図 3.2-25	スギ林土壌中の Cs-137 深度方向累積分布	3.2-27
図 3.2-26	スギの部位別 Cs-137 濃度（左）と ヒノキの部位別 Cs-137 濃度 （右）	3.2-28
図 3.3-1	表土の採取地点と線量率分布の指向性ライン	3.3-1
図 3.3-2	サイト内で採取された土壌の放射能濃度	3.3-2
図 3.3-3	東京電力が定期的に土壌を採取・分析してきた 3 定点と指向性ライン	3.3-3
図 3.3-4	サイト内土壌の Cs-137 濃度の経時変化	3.3-3
図 3.3-5	サイト内土壌の輸送比の経時変化	3.3-4
図 3.3-6	サイト内と周辺で得られた土壌の輸送比の比較	3.3-4
図 3.3-7	原子炉建屋で採取されたがれき類の放射能濃度	3.3-5
図 3.3-8	原子炉建屋周辺の土壌と植物の汚染を表現するモデル	3.3-6
図 3.3-9	フィッティングに用いた無人ヘリモニタリング結果	3.3-8
図 3.3-10	1F サイト内の Cs-137 沈着量分布推測結果	3.3-9
図 3.3-11	1F サイト内の Sr-90（左）および Pu-238（右）沈着量分布推測結果	3.3-9
図 3.3-12	Sr-90 輸送比の経時変化（南②-1）	3.3-10

略語一覧

EPMA (Electron Probe Micro Analyzer) : 電子線マイクロアナライザ

SEM (Scanning Electron Microscope) : 走査型電子顕微鏡

EDS (Energy Dispersive X-ray Spectrometer) : エネルギー分散型スペクトロメーター

WDS (Wave Length Dispersive X-ray Spectrometer) : 波長分散型スペクトロメーター

TOF-SIMS (Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometer) : 飛行時間型二次イオン
質量分析装置

MCT (Microcrystal Test) : 顕微結晶法

TLC (Thin-Layer Chromatography) : 薄層クロマトグラフィ

IP (Imaging Plate) : イメージングプレート

PTFE (Polytetrafluoroethylene) : ポリテトラフルオロエチレン

AMP (Ammonium Molybdophosphate) : モリブドリン酸アンモニウム

FCV (free column volume) : フリーカラム体積

ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer) : 誘導結合プラズマ質量分析
装置

TOC (Total Organic Carbon) : 全有機炭素

概略

● 研究の背景

福島第一原子力発電所（1F）の廃炉作業を進める際に、サイト内で発生する多種多様な固体廃棄物（土壌、樹木等）中の放射性核種のインベントリ評価に向け、様々な核種について、廃棄物ごとに最も定量しやすい Cs-137 との濃度比（輸送比）を評価する試みが進められている。輸送比を用いれば、発生した固体廃棄物中の Cs-137 濃度から他の放射性核種濃度を推定することができる。

● 解決すべき課題

しかし、これまでの調査結果から、1F サイト内の場所によって、同じ固体廃棄物でも輸送比が 1 桁以上異なること、Sr は時間とともに輸送比が小さくなっている可能性があることが示唆されており、インベントリ評価にあたってはこの輸送比のばらつきの原因を解明し、定量性を向上させた評価手法を確立する必要がある。

● 本研究の目的

本研究では、1F サイト外領域における核種の濃度、表土中・樹木中の分布状況、飛散物の化学形態等の距離依存性、方位依存性および時間依存性を系統的に評価し、その依存性に基づくサイト内各地点における核種インベントリを評価する手法の確立を目指す。これにより、サイト内の各地点において、廃炉に向けた過去の作業で発生した、あるいは、将来の作業で発生する様々な固体廃棄物中の核種インベントリを定量的に評価でき、実際の固体廃棄物管理の現場で抜き取り検査等により行われるインベントリ確認を大幅に効率化できると考えられる。

● 本研究の実施内容

本研究では、以下の 3 つの項目を実施する。

(1) 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価

核種を取り込み保持しやすいという地衣類の特性を活かし、地衣類中の核種濃度を評価するとともに、核種含有粒子のうち、炉内起源である可能性が高い重元素含有粒子にターゲットを絞り、電子線や X 線を用いた分析手法により元素組成、元素結合状態等を明らかにし、化学形態を推定、同様な粒子のプルーム軌跡上の分布の距離依存性を評価する。

(2) 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価

処理処分時の影響評価上重要だが測定が困難な Sr やアクチノイド核種等の核種の測定手法を確立しつつ、表土中深さ方向や樹木中各部位の核種濃度分布を測定する。さらに一部定期的な調査を行い、濃度分布の時間変化を評価するとともに、室内実験等で得られた核種の溶解度や吸着分配係数等の特性値を用いた移行モデル解析により、表土中・樹木中の移行現象を理解、各時点における核種濃度分布の推定をサポートする。

(3) サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価

各プルームの核種の濃度や化学形態の距離依存性に基づき、サイト内およびサイト近傍における初期の汚染分布を推定する。また、表土や植物に係る核種の移行を考慮して、核種濃度分布の時間変化を評価する手法を検討するとともに、別途実施されているサイト内採取試

料の測定結果等を用いて手法の適用性を評価する。

● **本研究の成果（特に世界初、国内初等アピールすべき成果）**

オフサイトの Cs-137 沈着量分布に基づき、主たる汚染を引き起こしている 6 本の放射性プルームの軌跡（北北西 (NNW)、西－北 (W-N)、西－南 (W-S)、南西 (SW)、南－西 (S-W)、南－東 (S-E)) を明確化した。各プルームの数地点において地衣類および表土を採取し、地衣類種の同定を行うとともに、Cs-134 および 137 濃度を測定してプルーム間で Cs-134/137 比を比較、汚染源の同定に活用した。地衣類表面に存在する粒子の元素組成を EPMA や SEM/EDS で分析したところ、天然起源とは考えにくい粒子を複数確認した。さらに TOF-SIMS を用いてこれらの粒子の Cs 同位体比を評価することで、炉起源かどうかを判断した。

土壌中および樹木中の放射性核種濃度を測定する手法を整備して、Sr-90、Pu-238、Pu-239+240、Am-241、Cm-244 等の輸送比を、プルームごとに評価した。特に、Cs-137 および Sr-90 については、土壌中の深さ方向濃度分布の経時変化を調べ、放射性核種の土壌への吸着特性の深さ方向依存性に基づき、放射性核種の複数成分を考慮した移流拡散モデルを提案した。これにより、Cs-137 および Sr-90 の深さ方向移行挙動を表現できた。

無人ヘリで得られたオフサイトの Cs-137 沈着量分布を、ガウス型の大気拡散モデル（プルーム式）でフィッティングすることにより、オンサイトの Cs-137 沈着量分布を推定することができた。得られた分布状況は、限られた場所ではあるものの、オンサイトの土壌中濃度の傾向とよく一致した。

これらの大気拡散モデル、移流拡散モデル、プルームごとの放射性核種の輸送比を用いることにより、オンサイト各地点における放射性核種インベントリ、土壌中 Sr-90 輸送比の経時変化、樹木中の Cs-137 および Sr-90 濃度を算出することができるようになった。特に、事故初期の 1F サイト内の放射性核種分布状況をマップ化したこと、土壌中 Sr-90 輸送比の経時変化を Cs-137 および Sr-90 の移流拡散モデルにより定量的に説明できたことは、世界初である。

このように、1F サイト外領域における放射性核種の表土中・樹木中の分布状況、飛散物の化学形態等を系統的に評価し、その依存性に基づき、サイト内各地点における放射性核種インベントリやその経時変化を評価する手法を確立でき、所期の目的を達成した。

1. はじめに

福島第一原子力発電所（以下、1F）事故においては、放射性セシウム、放射性ヨウ素をはじめとする様々な放射性核種が環境中に放出され、沈着した。1F サイト内のがれき、表土、樹木等には高濃度の放射性核種が沈着しており、サイト内高線量率の線源となっている。今後、廃炉作業を進める上で、作業員の被ばくを低減するため、がれき撤去、表土除去、伐採等による線量率低減対策は必須で、多種多様な固体廃棄物が発生する。廃止措置等に向けた中長期ロードマップにおいても、廃棄物対策として、固体廃棄物の性状把握、難測定核種の分析、インベントリ評価技術の開発等を進めることとしている。

このうち、固体廃棄物中の放射性核種のインベントリ評価に向け、様々な放射性核種について、固体廃棄物の種類ごとに最も定量しやすい Cs-137 との濃度比（輸送比）を評価する試みが進められている。輸送比を用いれば、今後固体廃棄物が発生した場合、廃棄物中の Cs-137 濃度から他の放射性核種濃度を推定することができる。しかし、これまでの調査結果から、1F サイト内の場所によって、同じ固体廃棄物でも輸送比が 1 桁以上異なること、Sr は時間とともに輸送比が小さくなっている可能性があることが示唆されており [1]、インベントリ評価にあたってはこの輸送比のばらつきの原因を解明し、定量性を向上させた評価手法を確立する必要がある。

輸送比の場所によるばらつきの原因としては、それぞれの場所に沈着している放射性核種の発生源である原子炉の相違に起因する核燃料中核種組成の違いや、原子炉からの放出過程の相違に起因する飛散物の核種組成・化学形態の違いが考えられる。無人ヘリによる 1F 隣接地域の空間線量率測定結果のマップを見ると、1F から北北西、西（2 本）、南西、南の方向に、線上に線量率が高い場所が分布しており、それぞれ異なる時間に原子炉から放出された放射性核種を含む空気（放射性プルーム）が風によって運ばれて沈着した軌跡を示している [2]。この 5 本のプルームの軌跡のうち、北北西は 3/12 の 1 号機水素爆発（乾性沈着）、南西は 3/15 午前中の 2 号機からの放出（乾性沈着）、西（2 本）および南は 3/15 夜から深夜にかけての 2・3 号機からの放出（湿性沈着）と推測されているが、放出号機や沈着形態が異なるため、プルームによって Cs-134/137 濃度比や、I-131/Cs-137 濃度比が異なることが明らかになっている [3]。しかし、他の核種との濃度比や飛散物の化学形態、特に、固体廃棄物の評価上重要な Sr やアクチニド核種に関する知見は得られていない。

輸送比の時間変化の原因としては、廃棄物内部や深さ方向への放射性核種の移行が考えられる。放射性セシウムは土壌中の粘土鉱物に強く吸着されるため、未だ表土に沈着した全放射性セシウムの約 90%が土壌表面から 5 cm 以内に存在するのに対し、一般に Sr に対する粘土鉱物の吸着力は弱いことから、Sr は水に溶け出しやすく、表土の深部や樹木の内部に移行しやすい。また、インベントリ全体を評価する上でも、表土深部や樹木内部への移行分を考慮しなければならない。しかし、1F 事故の影響を受けた地域では、放射性セシウム以外の核種の移行挙動（環境動態）はほとんど未調査である。

これらの課題を効果的かつ効率的に解決するために、本研究では「1F に隣接するサイト外領域において、各放射性プルーム軌跡上の環境中における放射性核種の分布状況、環境動態特性、飛散物の化学形態等を系統的に評価し、サイト内の領域に外挿することにより、サイト内各地点における核種インベントリの定量的な評価を行うこと」を目指している。1F サイト外の調査では、①サイト内に比べて放射性核種沈着の原因となった主たる放射性プルームの軌跡の重畳が少

なく、各プルームの核種濃度、飛散物の化学形態等の特性を把握しやすい、②プルーム軌跡上において核種・飛散物の種類・濃度の発生源からの距離依存性を調べる事が可能、③定期的な調査や採取試料を用いた室内実験・分析を機動的に実施可能、といったメリットがある。そこで、サイト外領域の主たるプルーム軌跡上の 1F からの距離が異なる複数地点で、表土や樹木中の核種・飛散物の種類・濃度を調査し、距離依存性を明らかにすることにより、核種は発生源から直線的に飛散し、少なくとも一部はサイト外に沈着した、という仮定の下で、各プルームに起因するサイト内での核種の飛散・沈着挙動を推定する。また、一部の地点での定期的な調査を実施し、表土や樹木中の核種分布状況の時間変化を調べるとともに、採取した試料を用いた室内実験・分析で分配係数等の移行パラメータを評価、表土中移流分散モデルや樹木中移行モデルを用いて核種分布状況を解析することにより、過去から将来までの各時点での表土深部・樹木内部の核種分布を考慮した核種インベントリ評価を可能にする。これらの手法を確立することにより、サイト内の各地点において廃炉に向けた過去の作業で発生した、あるいは、将来の作業で発生する様々な固体廃棄物中の核種インベントリを定量的に評価でき、実際の固体廃棄物管理の現場で抜き取り検査等により行われるインベントリ確認を大幅に効率化できると考えられる。

研究項目としては、(1) 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価、(2) 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価、(3) サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価、を実施する。具体的には、(1)については、核種を取り込み保持しやすいという地衣類の特性を活かし、地衣類中の核種濃度を評価するとともに、核種含有粒子のうち、炉内起源である可能性が高い重元素含有粒子にターゲットを絞り、電子線やX線を用いた分析手法により元素組成、元素結合状態等を明らかにし、化学形態を推定、同様な粒子のプルーム軌跡上の分布の距離依存性を評価する。(2)については、処理処分時の影響評価上重要だが測定が困難な Sr やアクチニド核種等の核種の測定手法を確立しつつ、表土中深さ方向や樹木中各部位の核種濃度分布を測定する。さらに一部定期的な調査を行い、濃度分布の時間変化を評価するとともに、室内実験等で得られた核種の溶解度や吸着分配係数等の特性値を用いた移行モデル解析により、表土中・樹木中の移行現象を理解、各時点における核種濃度分布の推定をサポートする。(3)については、各プルームの核種の濃度や化学形態の距離依存性に基づき、サイト内およびサイト近傍における初期の汚染分布を推定する。また、表土や植物に係る核種の移行を考慮して、核種濃度分布の時間変化を評価する手法を検討し、別途実施されているサイト内採取試料の測定結果等を用いて手法の適用性を評価する。

参考文献

- [1] Y. Koma, et al., “Radioactive contamination of several materials following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident”, Nuclear Materials and Energy, 10, 35-41 (2017).
- [2] Y. Sanada and T. Torii, “Aerial radiation monitoring around the Fukushima Daiichi nuclear power plant using an unmanned helicopter”, Journal of Environmental Radioactivity, 139, 294-299 (2015).
- [3] G. Katata, et al., “Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations

of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model” , Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 1029-1070 (2015).

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究の全体計画を表 2.1-1 に示す。

表 2.1-1 本研究の年度別全体計画

項目	年度	平成 27 年度	平成 28 年度	平成 29 年度
(1) 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価	①地衣類および表土中の放射性核種の分布状況調査（原子力機構）	予備調査、西・南調査	北北西・南西調査	適用性確認データ取得
		西・南調査、種同定、核種保持状態評価	北北西・南西調査、種同定、核種保持状態評価	種同定、核種保持状態評価
		核種含有粒子同定・依存性検討	核種含有粒子分取・元素結合状態等分析	核種含有粒子分取・元素結合状態等分析
	②地衣類種の同定と核種保持状態評価（国立科学博物館）			
	③核種含有粒子の化学形態の評価（原子力機構）			
	(2) 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価	①表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況調査（原子力機構）	予備調査、西・南調査、測定手法検討	北北西・南西調査、経時変化データ取得
西・南調査、収着実験準備・開始			北北西・南西調査、収着分配係数評価、収着形態検討	土壤中移行挙動モデル化
西・南調査、測定手法検討			北北西・南西調査、経時変化データ取得	適用性確認データ取得、モデル化
②熱力学データ等に基づく表土深部方向の核種移行挙動の解明（京都大学）				
③表土深部・樹木内部における放射性核種分布特性評価と物質循環挙動に基づく移行挙動の解明（福島大学）				
(3) サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価（原子力機構）				
	調査データの連結方法検討	汚染分布状況評価モデルの検討	経時変化の考慮と適用性評価	
(4) 研究推進	キックオフ会議 ▽ まとめ・評価	計画検討会 ▽ まとめ・評価	成果報告会 ▽ まとめ・評価	

2.2 平成 29 年度の成果の目標および業務の実施方法

本研究の平成 29 年度の計画を表 2.2-1 に示す。

表 2.2-1 本研究に係る平成 29 年度月別計画

業務項目	実 施 日 程											
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
(1) 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価												
①地衣類および表土中の放射性核種の分布状況調査	← 適用性確認用試料採取・分析・データ取得 →											
②地衣類種の同定と核種保持状態評価（国立科学博物館）	← 適用性確認用試料採取・分析・データ取得 →											
	← 種の同定・標本作成・保持状態評価 →											
③核種含有粒子の化学形態の評価	← 核種含有粒子分取・元素結合状態等分析 →											
(2) 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価												
①表土深部・樹木内部における放射性核種の分布状況調査	← 適用性確認用試料採取・分析・データ取得 →											
②熱力学データ等に基づく表土深部方向の核種移行挙動の解明（京都大学）	← 収着試験実施・分析・土壤中移行挙動モデル化 →											
③表土深部・樹木内部における放射性核種分布特性評価と物質循環挙動に基づく移行挙動の解明（福島大学）	← 適用性確認用試料採取・分析・データ取得・モデル化 →											
(3) サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価	← データ解析・経時変化モデル検討・適用性評価 →											
(4) 研究推進	← 進捗状況確認・研究計画調整 →											
	← まとめ・評価 →											

(1) 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価

①地衣類および表土中の放射性核種の分布状況調査

(a) 地衣類・表土調査

全プルームの軌跡上の数地点において、分布する複数種の地衣類の生育条件（着生基物・生育高さ・方位等）データを計測後、地衣類を採取する。また、周囲の線量率・地表の表面汚染密度等の測定後、採土器を用いて0-5 cmまでの表土を採取する。採取した地衣類については、オートラジオグラフィにより核種含有粒子の地衣類上の位置を特定し、その部分を切り出す。また、乾

燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定する。表土については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定する。

②地衣類種の同定と核種保持状態評価（再委託先：国立科学博物館）

(a) 地衣類の現地生態調査

全ブルームの軌跡上の数地点において、主な地衣類種の分布傾向、着生基物の傾向を調査し、これまでの生態調査結果との整合性を確認する。

(b) 種の同定

調査地点で採取した地衣類について、形態観察、化学成分分析（呈色反応法、薄層クロマトグラフィー法、顕微化学的手法）を行い、種を同定する。

(c) 地衣類標本の作製

同定が完了した地衣類試料の標本を作製し、証拠標本として博物館試料保管庫に収蔵する。

(d) 地衣類中の放射性核種分布状態の検討

原子力機構と連携して、IPによる放射性核種の分布測定結果、地衣類中の放射性核種濃度測定結果、地衣類の生育条件データを用いて、地衣類中の放射性核種の分布傾向と、種の形態的特徴や生育条件との関連性について、これまでの調査結果との整合性を確認する。

③核種含有粒子の化学形態の評価

これまでの調査で選定した粒子について、飛行時間二次イオン質量分析法（TOF-SIMS）等の固相分析手法を用いて、核種含有粒子中の構成同位体を同定、炉内起源である可能性の高い粒子を選定する。また、 $100\ \mu\text{m}$ オーダーの比較的粒径の大きい粒子については、マニピュレータ等での取出しを試みる。

(2) 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価

①表土深部・樹木内部における放射性核種の分布状況調査

(a) 表土深部・樹木内部調査

全ブルームの軌跡上の数地点において、1Fサイト内と同様の樹種（スギ、アカマツ、クロマツ等）を対象として、生育条件を記録しつつ、枝、葉、樹皮、木部等を採取する。木部は成長錐を用いるほか、可能であればチェーンソー等で一部を切り出す。また、土壌調査地点（各3地点程度）において、スクレイパープレートを用いて深さ20 cm程度までの土壌を1-5 cm刻みで採取する。採取試料は、核種濃度および物理・化学特性等評価上必要な基礎データを取得する。

(b) 試料中の放射能分析

採取した試料については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定する。 β 放出核種であるSr-90およびアクチニド元素等の α 放出核種については、京都大学と協力して簡便な濃度評価手法を用いて濃度を評価するとともに、数点の試料については、測定値の妥当性を確認するため、標準的な手法で濃度を評価する。

②熱力学データ等に基づく表土深部方向の核種移行挙動の解明（再委託先：京都大学）

長期間のバッチ吸着実験を継続する。核種としては、Sr、III価アクチニド核種あるいはそれらの模擬核種等を用いる。調製した試験溶液を振とうし、定期的に液相試料を採取、長期間の吸着量の時間変化から、固液分配挙動を評価する。また、Srおよびアクチニド核種の簡便な濃度評価手法を用いて、濃度を評価する。

③表土深部・樹木内部における放射性核種分布特性評価と物質循環挙動に基づく移行挙動の解明

(再委託先：福島大学)

(a) 土壌および樹木の採取および特性試験

樹木・土壌調査地点において、循環・蓄積挙動モデルの検証に必要となる樹木・土壌試料を採取し、各種データを取得するとともに、これまでに得られている移行パラメータ等のデータとの整合性を確認する。

(3) サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価

新たに得られるデータを用いて、サイト周辺の汚染に係るモデルを改良する。また、このモデルを用いて、サイト内の土壌と植物の汚染を評価する。

(4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進める。

3. 平成 29 年度の実施内容および成果

3.1 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価

3.1.1 地衣類および表土中の放射性核種の分布状況調査

(1) 地衣類・表土調査

【平成 28 年度までの成果】

1F 周辺における線量率の分布状況を詳細に調査し、北北西、西、南西、南の各放射性プルームの軌跡を明確にした。各プルームの軌跡上で、線量率分布の 1F からの距離依存性および地衣類の生育状況に基づき、地衣類・表土の調査地点各 5 地点程度を設定した。

線量率の分布状況は、大熊町および双葉町内の 1F 周辺道路上を走行することにより測定した。線量率の分布結果について、1F からの分布指向性を解析した結果、西および南プルームは、複数の放射性プルームが重畳している可能性が示された。これらの指向性は、無人ヘリによる線量率分布データから得られた指向性と概ねよい一致が得られた（図 3.1-1）。そこで、西および南プルームについては、さらに、西-北・西-南および南-西・南-東の 2 つのプルームの軌跡ラインに分けた上で、これらの指向性ライン上に近い場所で、調査候補地点を選定した。

各プルーム地点について、地衣類・表土調査の候補地点として選定した結果、最終的に北北西プルーム上に 6 地点、西-北プルーム上に 9 地点、西-南プルーム上に 6 地点、南西プルーム上に 3 地点、南-西プルーム上に 3 地点、南-東プルーム上に 6 地点の調査候補地点を設定、さらに試料採取の許可が得られた地点を調査地点とした（図 3.1-2）。

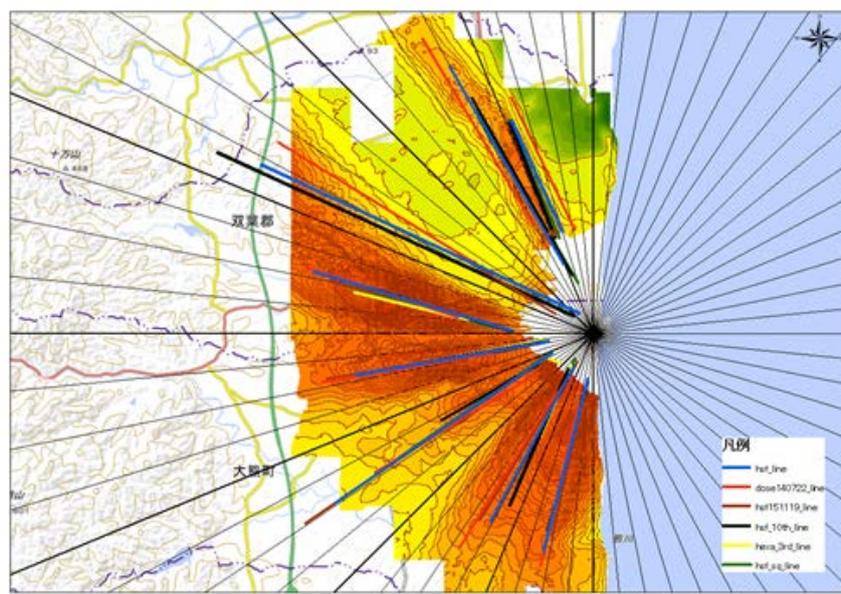


図 3.1-1 走行サーベイと無人ヘリで得られた線量率分布の指向性の比較.

赤い線は無人ヘリ、その他のラインは走行サーベイで得られた指向性ライン。
線量率等高線マップは、無人ヘリによる線量率測定データ（Sanada, private communication）に基づく。

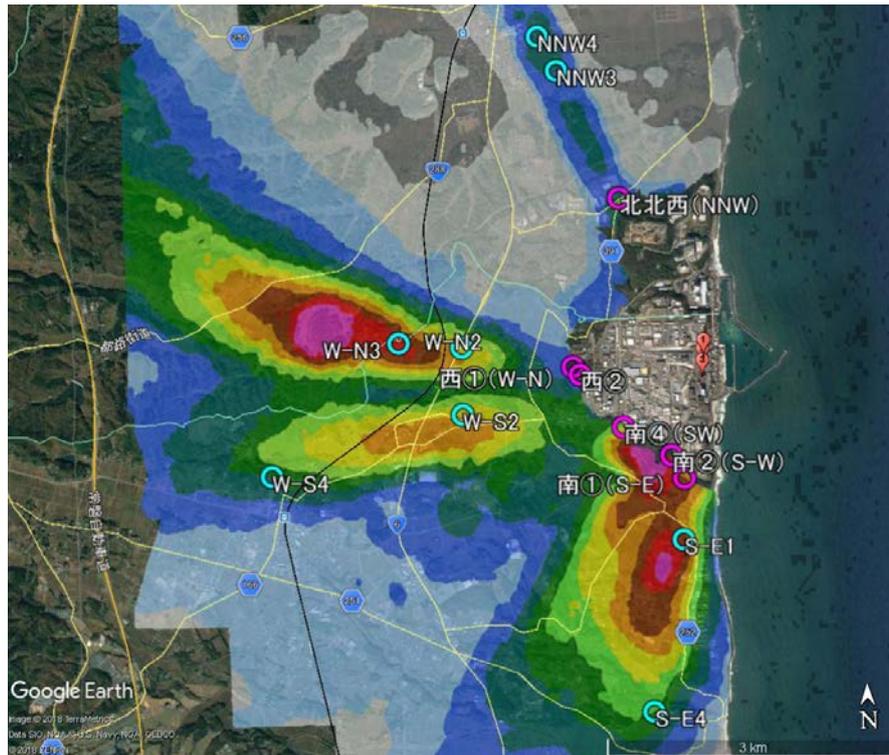


図 3.1-2 調査地点.

平成 27 年度は、西プルームの軌跡上の表土深部・樹木内部調査地点において樹木伐採が行われることから、西プルームにおける調査を優先することとし、それに合わせて地衣類・表土調査も西および南プルームの軌跡上において、調査を実施した。

西および南プルームの軌跡上の地衣類・表土の調査地点（合計 10 地点）において、分布する複数種の地衣類の生育条件（着生基物・生育高さ・方位等）データを計測後、地衣類を採取した。また、周囲の線量率・地表の表面汚染密度等の測定後、採土器を用いて 0-5 cm までの表土を採取した。採取した地衣類については、オートラジオグラフィにより核種含有粒子の地衣類上の位置を特定し、その部分を切り出した。また、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。表土については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。地衣類および表土試料中の γ 放出核種の組成・濃度測定には、ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器を使用した。

地衣類試料（樹皮付）・土壌試料のいずれも、Cs-134 および Cs-137 濃度の最低値は西側①、最高値は南側④の地点で採取されたものであった。表土は地衣類採取場所 1 か所あたり周辺 4 か所で採取したが、その 4 試料の測定データの平均値をその場所の濃度とした。採取日基準の Cs-134/Cs-137 濃度比を見ると、地衣類・表土とも、地点間で有意な差はないと考えられるが、南側④では他の地点に比べて Cs-134/Cs-137 濃度比がやや大きい傾向がある。

平成 28 年度は、平成 27 年度とは別のプルーム（北北西プルーム軌跡上のほか、西-北プルームおよび西-南プルーム）の軌跡上の地衣類・表土調査地点（各プルーム 5 地点程度）において、平成 27 年度と同様に、地衣類および表土の採取、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。

地衣類試料は前処理を施し形状保持のため含水させた状態で、Ge 半導体検出器を用いて γ

放出核種の組成・濃度測定を行った。その結果、Cs-134/Cs-137 濃度比（2011/3/11 時点濃度に補正）では、西-南および西-北プルームにおいて、もっとも発電所に近い地点に比べて発電所から遠い地点の方が、比率が大きいことを見出した。Cs-137 濃度の距離依存性を見ると、発電所に近い地点より、発電所から遠い地点のほうが高かった（図 3.1-3）。このように、発生源から離れた場所で濃度が最大になるのは、比較的高い高度から汚染が放出されたときの特徴である。Cs-134/Cs-137 濃度比が異なることから、同じ西-南および西-北プルーム上であっても、発電所に近い地点と遠い地点の汚染源が異なる可能性が考えられる。

一方、Cs-134/Cs-137 濃度比の方位依存性を見ると、北北西プルーム軌跡上の地点において、他の地点に比べて小さい値を示したことから、北北西プルームが他の炉よりも燃料中の Cs-134/Cs-137 濃度比が小さかった 1 号機の爆発に起因して放出された放射性物質によるものであることを示唆している。

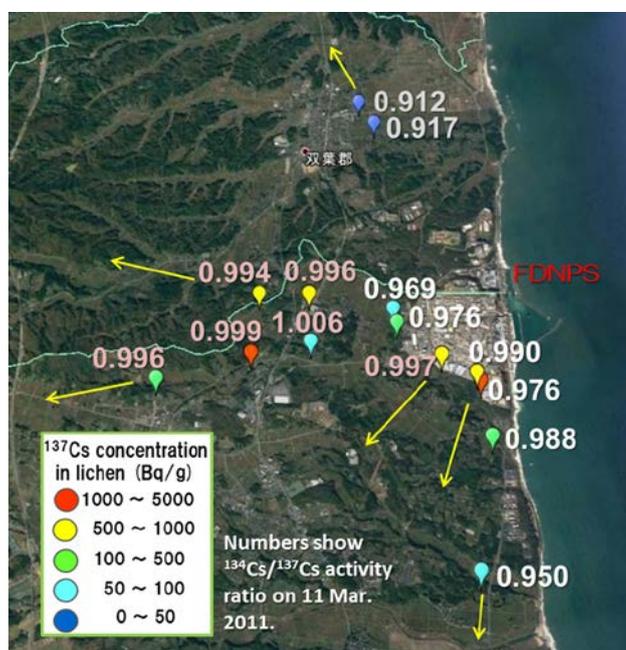


図 3.1-3 地衣類調査地点における地衣類中の Cs-134/Cs-137 濃度比。
(2011/3/11 時点濃度に補正)

【平成 29 年度の成果】

全プルームの軌跡上の数地点において、分布する複数種の地衣類の生育条件（着生基物・生育高さ・方位等）データを計測後、地衣類を採取した。また、周囲の線量率・地表の表面汚染密度等の測定後、採土器を用いて 0-5 cm までの表土を採取した。採取した地衣類については、オートラジオグラフィにより核種含有粒子の地衣類上の位置を特定し、その部分を切り出した。また、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。表土については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。

採取した地衣類試料については、オートラジオグラフィで 15 分間露光させ、核種含有粒子の地衣類上の位置を特定した。地衣類試料は前処理を施し、乾燥後に形状を整えた状態で、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。表土については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組

成・濃度を測定した。地衣類および表土試料中の γ 放出核種の組成濃度測定には、Ge 半導体検出器を使用した。

地衣類試料中の Cs-137 濃度の範囲は、 $3.07 \times 10^2 \text{ Bq g}^{-1}$ - $6.70 \times 10^3 \text{ Bq g}^{-1}$ であった（各個体の計数誤差は 2%未満。）。表土試料中の Cs-137 濃度の範囲は、 $1.56 \times 10^1 \text{ Bq g}^{-1}$ - $3.58 \times 10^2 \text{ Bq g}^{-1}$ （各個体の計数誤差は 1%未満）であった。地衣類試料および表土試料のいずれも採取日時点の放射能濃度を示す。

3.1.2 地衣類種の同定と核種保持状態評価（再委託先：国立科学博物館）

(1) 地衣類の現地生態調査

【平成 28 年度までの成果】

原子力機構と連携して、対象とするプルーム軌跡上で地衣類の生育状況から調査地点を選定し、その調査地点で主な地衣類種の分布傾向、着生基物の傾向を把握する生態調査を行った。

【平成 29 年度の成果】

全プルームの軌跡上の数地点において、主な地衣類種の分布傾向、着生基物の傾向を調査し、これまでの生態調査結果との整合性を確認した。

その結果、全てのプルーム軌跡上において、主な地衣類種としてウメノキゴケ類の中でも特に *Parmotrema tinctorum* と *P. clavuliferum* の 2 種の共通的な分布が認められた（図 3.1-4）。調査地点における着生基物の傾向としては、サクラやケヤキのような落葉広葉樹への着生が目立った。これらの地衣類種の分布傾向、着生基物の傾向は、これまでの生態調査結果と整合していることを確認した。

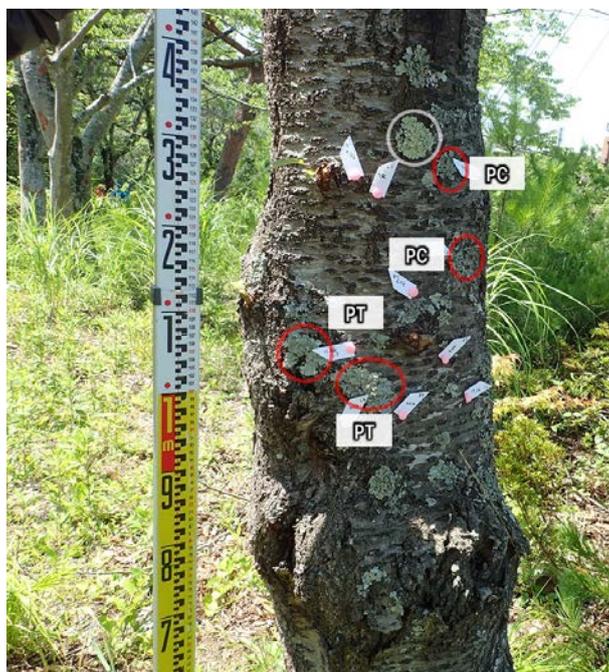


図 3.1-4 主要 2 種の地衣類の主な分布状況の例
(PC: *Parmotrema clavuliferum*, PT: *Parmotrema tinctorum*)

(2) 種の同定

【平成 28 年度までの成果】

調査地点で採取した地衣類について、形態観察、化学成分分析（呈色反応法、薄層クロマトグラフィ法、顕微化学的手法）を行い、種を同定した。

その結果、平成 27 年度は、10 種類の地衣類を同定した（表 3. 1-1）。

平成 28 年度は、9 種類の地衣類を同定した（表 3. 1-2）。

表 3. 1-1 平成 27 年度に採取された地衣類と TLC もしくは MCT によって検出された含有成分

種	皮層成分	髄層成分
<i>Canoparmelia aptata</i>	Atranorin	Perlatolic acid, Glomeliferic acid*
<i>Flavoparmelia caperata</i>	Usnic acid	Caperatic, Protocetraric acid
<i>Myelochroa entotheiochroa</i>	Atranorin	Zeorin, Leucotylin
<i>Myelochroa leucotyliza</i>	Atranorin	Zeorin, Leucotylin
<i>Parmelinopsis minarum</i>	Atranorin	Lecanoric acid, Gyrophoric acid, Umbilicaric acid
<i>Parmotrema austrosinense</i>	Atranorin	Lecanoric acid
<i>Parmotrema clavuliferum</i>	Atranorin	Salazinic acid
<i>Parmotrema tinctorum</i>	Atranorin	Lecanoric acid
<i>Punctelia borrieri</i>	Atranorin	Gyrophoric acid
<i>Punctelia rudecta</i>	Atranorin	Lecanoric acid

* MCT により検出された含有成分

表 3. 1-2 平成 28 年度に採取された地衣類と TLC もしくは MCT によって検出された含有成分

種	皮層成分	髄層成分
<i>Canoparmelia aptata</i>	Atranorin	Perlatolic acid, Glomelliferic acid*
<i>Flavoparmelia caperata</i>	Usnic acid	Caperatic, Protocetraric acid
<i>Myelochroa aurulenta</i>	Atranorin	Leucotylin
<i>Hypotrachyna osseoalba</i>	Atranorin	Lichexanthone
<i>Lepraria cupressicola</i>	Atranorin	Zeorin, Lecanoric acid
<i>Parmotrema austrosinense</i>	Atranorin	Lecanoric acid
<i>Parmotrema clavuliferum</i>	Atranorin	Salazinic acid
<i>Parmotrema tinctorum</i>	Atranorin	Lecanoric acid
<i>Punctelia borrieri</i>	Atranorin	Gyrophoric acid

* MCT により検出された含有成分

【平成 29 年度の成果】

調査地点で採取した地衣類について、形態観察、化学成分分析（呈色反応法、薄層クロマ

トグラフィ法、顕微化学的手法) を行い、種を同定した (図 3.1-5)。

その結果、以下の9種類の地衣類を同定した (表 3.1-3)。

Canoparmelia aptata (Kremp.) Elix & Hale (シラチャウメノキゴケ), *Flavoparmelia caperata* (L.) Hale (キウメノキゴケ), *Dirinaria applanata* (Fée) D.D.Awasthi (コフキメダルチイ), *Myelochroa leucotylica* (Nyl.) Elix & Hale (ヒカゲウチキウメノキゴケ), *Parmelinopsis minarum* (Vain.) Elix & Hale (トゲウメノキゴケ), *Parmotrema austrosinense* (Zahlbr.) Hale (ナミガタウメノキゴケ), *Parmotrema clavuliferum* (Räsänen) Streimann (マツゲゴケ), *Parmotrema tinctorum* (Despr. ex Nyl.) Hale (ウメノキゴケ), *Punctelia borreri* (Sm.) Krog (ハクテンゴケ)。

表 3.1-3 採取された地衣類と TLC もしくは MCT によって検出された含有成分

種	皮層成分	髄層成分
<i>Canoparmelia aptata</i>	Atranorin	Perlatolic acid, Glomelliferic acid*
<i>Flavoparmelia caperata</i>	Usnic acid	Caperatic, Protocetraric acid
<i>Dirinaria applanata</i>	Atranorin	Divaricatic acid, Terpenoids
<i>Myelochroa leucotylica</i>	Atranorin	Zeorin, Leucotylin
<i>Parmelinopsis minarum</i>	Atranorin	Lecanoric acid, Gyrophoric acid, Umbilicic acid
<i>Parmotrema austrosinense</i>	Atranorin	Lecanoric acid
<i>Parmotrema clavuliferum</i>	Atranorin	Salazinic acid
<i>Parmotrema tinctorum</i>	Atranorin	Lecanoric acid
<i>Punctelia borreri</i>	Atranorin	Gyrophoric acid

* MCT により検出された含有成分

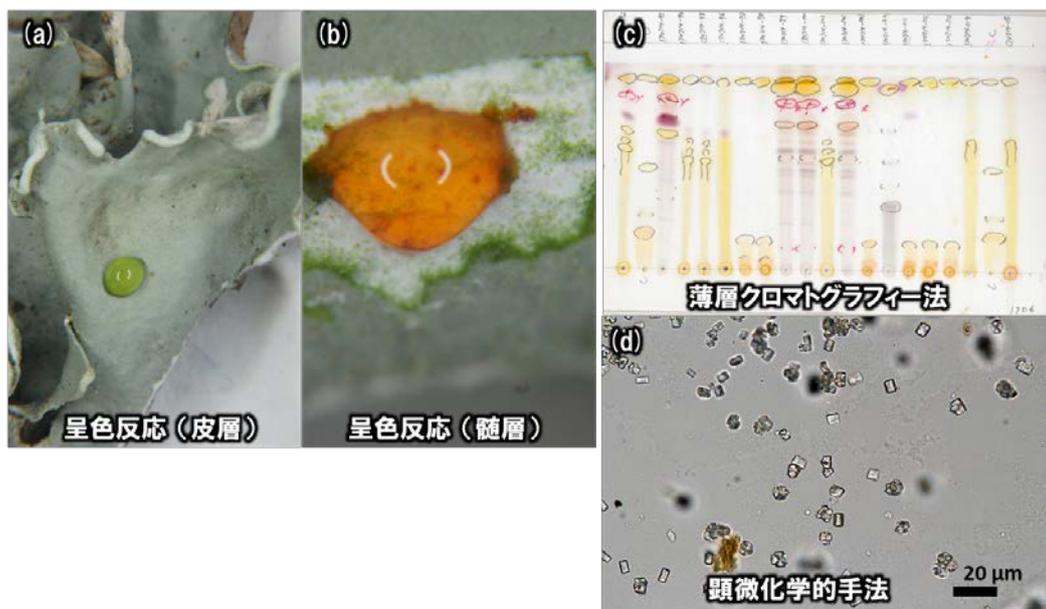


図 3.1-5 地衣類種の化学成分分析による同定

((a) (b) 呈色反応法、(c) 薄層クロマトグラフィ法、(d) 顕微化学的手法)

(3) 地衣類標本の作製

【平成 28 年度までの成果】

同定が完了した地衣類試料の標本を作製し（図 3.1-6）、証拠標本として博物館試料保管庫に収蔵した（図 3.1-7）。なお、証拠標本は他の博物館標本と区別して専用ケースに保管した。

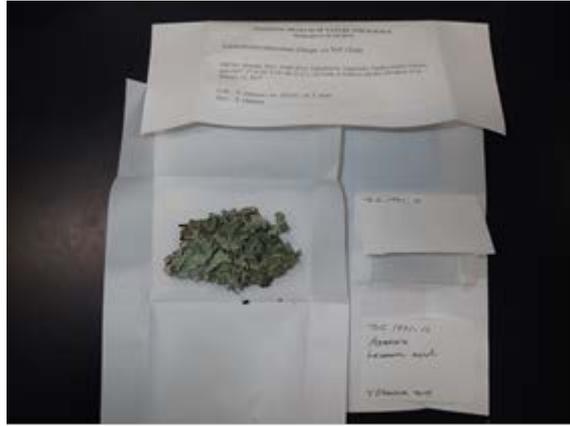


図 3.1-6 地衣類試料の標本例.



図 3.1-7 試料収蔵の様子.

【平成 29 年度の成果】

昨年度までと同様に、同定が完了した地衣類試料の標本を作製し、証拠標本として博物館試料保管庫に収蔵した。

(4) 地衣類中の放射性核種分布状態の検討

【平成 28 年度までの成果】

原子力機構と連携して、IP による放射性核種の分布測定結果、地衣類中の放射性核種濃度測定結果、地衣類の生育条件データを用いて、地衣類中の放射性核種の分布傾向と、種の形態的特徴や生育条件との関連性について検討した。

平成 27 年度は、複数の樹木が生育する調査地点南側②および③で採取した地衣類について、

生育基物に応じた放射性核種分布状況について検討した。調査地点南側②において、IP による地衣類中の放射性核種の分布測定の結果、基物（サクラ、コナラ、アカマツ）に関わらず、検討に用いた地衣類種 (*Parmotrema tinctorum*) 全ての個体 (11 個体) について、一様な分布の中にドット状の局所分布が確認できた (図 3.1-8)。これら 11 個体の Cs-137 の平均濃度は、 3.2×10^3 kBq kg⁻¹ であった。そのうち地衣類がサクラ (2 個体) およびコナラ (8 個体) を基物とする地衣類の Cs-137 濃度について、基物別の平均濃度を比較したところ、有意差はみられなかった (危険率 5%)。調査地点南側③においても、同種の地衣類を用いて、IP による地衣類中の放射性核種の分布測定を行った結果、基物 (サクラ、ケヤキ) によらず、主に一様な分布が確認できた。

3 種類以上の地衣類が生育する単一の樹木 (調査地点西側②、南側③) について、地衣類の種類に応じた放射性核種分布状況について検討した。IP による放射性核種の分布測定の結果、ケヤキに生育する地衣類種 (*Punctelia borreri*) は、他の種類と比較して分布の強度が高い傾向がみられた。

平成 28 年度は、これまでに採取した北北西、南、西、南西の各プルーム軌跡上の地衣類について、IP による放射性核種の分布測定を行った結果、いずれも一様な分布と局在分布がみられ、共通した分布の特徴を示した (図 3.1-9)。地衣類の生育条件と放射能濃度との関連性について検討するため、原子力発電所に面する方位とその反対方位に生育する地衣類 (各々 3 個体以上を対象) の表面線量率の計測値 (ただし発電所敷地内の試料を除く) を比較した結果、発電所に面する方の線量率がやや高い傾向が見られた (表 3.1-4、図 3.1-10)。

表 3.1-4 地衣類の生育方位と表面線量率

	W-N2 (サクラ)		W-S4 (サクラ)		NNW3 (ケヤキ)	
	東側方位面	西側方位面	東側方位面	西側方位面	北側方位面	南側方位面
個体数	10	5	6	6	3	6
平均値	29.0	32.4	8.7	10.6	2.3	3.6
標準偏差	6.7	14.5	2.9	2.8	0.4	0.6
中央値	30.2	26.5	7.6	10.0	2.4	3.9
Mann-Whitney 検定	判定保留		判定保留		有意差判定：北側<南側	

調査地点は、図 3.1-14 を参照。

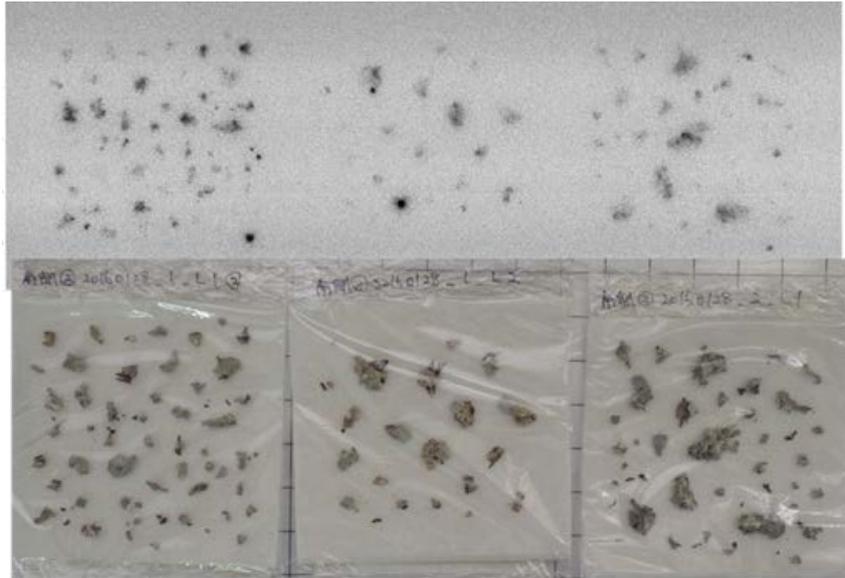


図 3.1-8 IP を用いた地衣類試料のオートラジオグラフィ像の例 (S-W の地点)。
 (左・中央の 2 試料はサクラ上、右の試料はコナラ上で採取したもの。)

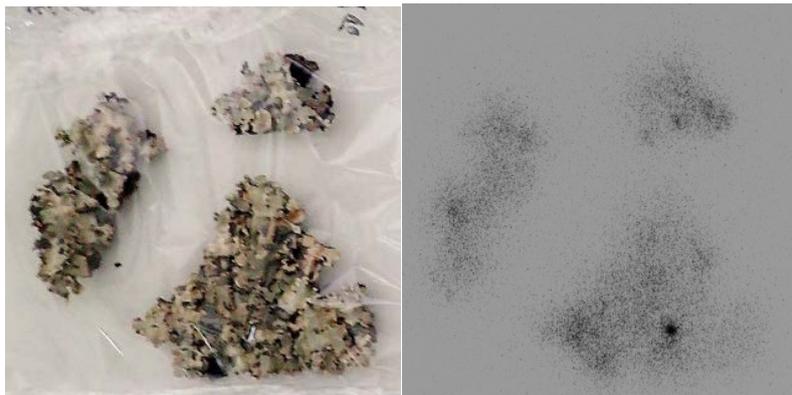


図 3.1-9 IP を用いた地衣類試料のオートラジオグラフィ像の例 (S-E1 の地点)。

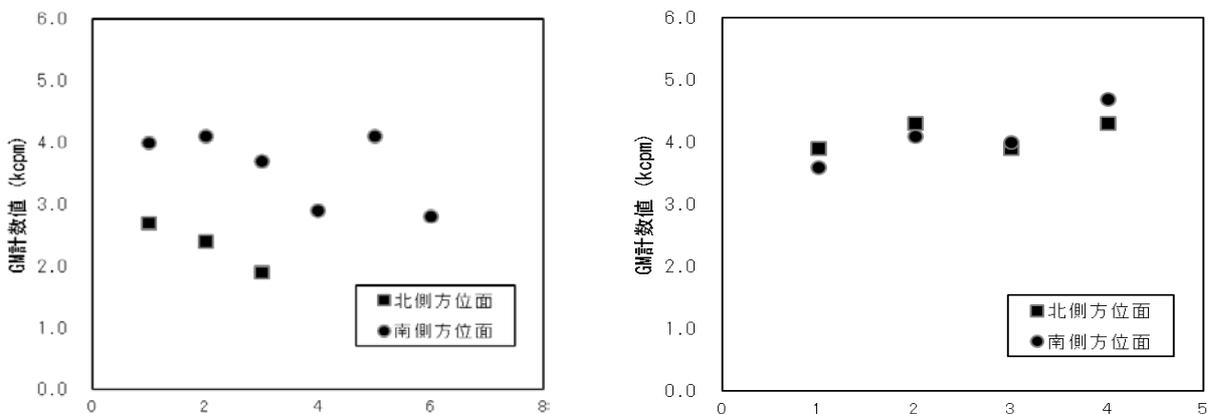


図 3.1-10 樹木に着生した地衣類の表面線量率の計測値比較結果
 (左 : NNW3 ケヤキ、右 : NNW3 ニッコウヒバ、横軸は地衣類試料番号)

【平成 29 年度の成果】

原子力機構と連携して、IP による放射性核種の分布測定結果、地衣類中の放射性核種濃度測定結果、地衣類の生育条件データを用いて、地衣類中の放射性核種の分布傾向と、種の形態的特徴や生育条件との関連性について、これまでの調査結果との整合性を確認した。

IP による放射性核種の分布測定を行った結果、生育基物（ケヤキ・サクラ）や地衣類種によらず、いずれも一様な分布と局在分布がみられ、これまでの調査結果と整合する同様の特徴を示した（図 3.1-11）。プルーム軌跡別に地衣類中の放射性核種の分布傾向を確認したところ、全体としても同様な傾向を示すことを確認した。

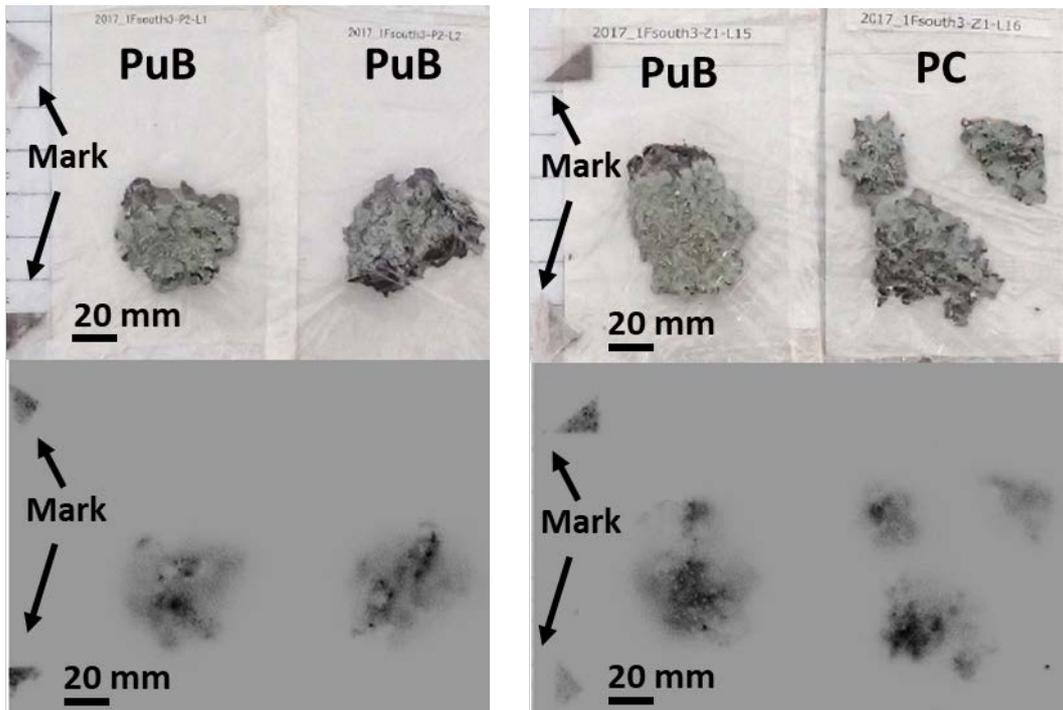


図 3.1-11 IP を用いた地衣類試料のオートラジオグラフィ像の例
(左 サクラの樹幹に着生した地衣類、右 ケヤキの樹幹に着生した地衣類)
(PuB: *Punctelia borrieri*, PC: *Parmotrema clavuliferum*)

3.1.3 核種含有粒子の化学形態の評価

【平成 28 年度までの成果】

走査型電子顕微鏡/エネルギー分散型スペクトロメーター (SEM/EDS)、電子線マイクロアナライザ (EPMA) 等の固相分析手法を用いて、核種含有粒子中の構成元素を同定、炉内起源である可能性の高い重元素含有粒子を選定し、元素組成を定量した。また、100 μm オーダーの比較的粒径の大きい粒子については、マニピュレータ等での取出しを試みた。

平成 27 年度は、SEM/EDS を用いて地衣類試料中の粒子状物質の分析を行った結果、反射電子像で示される径が概ね 5 μm 以下の輝度が高いものについて、Fe や他の重元素を含む粒子状物質がみられた（図 3.1-12）。西側および南側で採取された地衣類試料中の粒子状物質について、Fe と共存する重元素 (Cr, Ni, Cd, Ba, Zr, Ce, La, Mo 等) を含むものを確

認め、SEM/EDS による元素組成の定量を行った。これらの重元素を含む粒子状物質は人為起源の可能性が高く、今後、取り出しを試みることにした。La, Ce, Nd を含む粒子については、それらの元素から構成される天然鉱物のモナザイトやバストネサイトの可能性もあり、人為起源か天然起源か、今後判別する手法の検討が必要である。

平成 28 年度は、全てのプルーム軌跡（北北西、西-北、西-南、南-東）上で採取した地衣類試料中の粒子状物質の分析を行った。試料表面の凹凸が大きいものは、試料をすり潰して構造を破壊した後、SEM/EDS で分析した。試料表面が平坦なものについては EPMA で分析した。採取した試料間の比較を行い、含有元素の特徴を評価し、表 3.1-5 に示した。その結果、全てのプルーム軌跡において、Fe, Cr および Ni が Fe:Cr:Ni=10:2:1 前後の濃度比で共存する粒子を見出した。これは、ステンレス鋼の成分割合に類似している。さらに、北北西プルーム軌跡上の地点で採取した地衣類試料のうち Pb を含む粒子状物質（約 50 μm 径）を取り出し、飛行時間型二次イオン質量分析装置（TOF-SIMS）にて質量分析を行ったところ、EPMA では検出されなかった Cs (Cs-133, Cs-135, Cs-137) が含まれていることを示した。

表 3.1-5 プルーム軌跡別の粒子中の主な含有元素（重元素）

プルーム軌跡	採取地点	分析点数	主な検出重元素
南-東プルーム	1F南側②	97	Zr, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Th, U, Co, Sn, W
	南-東1	102	Zr, Pb, Sn, Co, Ce
	南-東4	103	Zr, Pd, Pt, Ba
西-南プルーム	西-南2	150	Zr, La, Ce, Ba, As
	西-南4	147	Pb
西-北プルーム	西-北2	137	Zr, Sn, Pb, Mo, Ba
	西-北3	52	Sn, Pb, W
北北西プルーム	北北西4	174	Zr, Sn, Pb, Mo, Ba, Co

調査地点は図 3.1-16 参照。1F 南側②：S-W、南-東 1：S-E1、南-東 4：S-E4、西-南 2：W-S2、西-南 4：W-S4、西-北 2：W-N2、西-北 3：W-N3、北北西 4：NNW4。

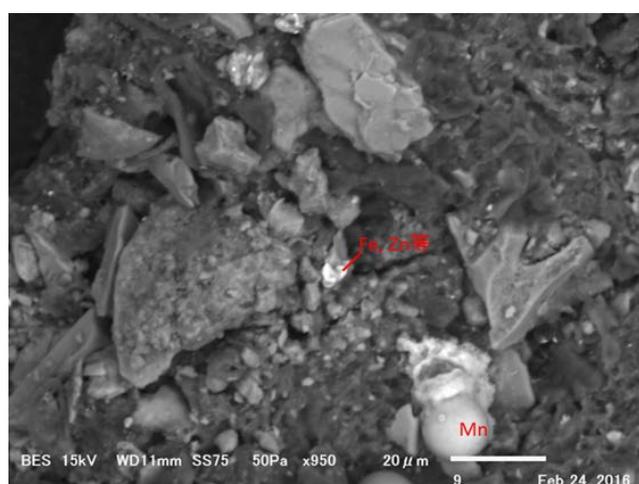


図 3.1-12 地衣類試料中の重元素を含む粒子状物質（輝度の高い部分に Fe 等の重元素が検出された）

【平成 29 年度の成果】

これまでの調査で選定した粒子について、飛行時間二次イオン質量分析法（TOF-SIMS）等の固相分析手法を用いて、核種含有粒子中の構成同位体を同定、炉内起源である可能性の高い粒子を選定した。また、100 μm オーダーの比較的粒径の大きい粒子については、マニピュレータ等での取出しを試みた。特筆すべき事項として、これらの粒子状物質の簡易的な取り出し方法の開発に成功した。

これまでの調査で選定した地衣類試料において、IP を用いたオートラジオグラフィで 15 分間露光させ、放射性核種含有粒子の地衣類上の位置を特定し、露光の強い部分を切り出して粉碎後、酸で溶解させた。溶解試料の残渣成分から、難溶性の放射性核種含有粒子を単離した。単離にあたっては、固相分析手法として、電子線プローブマイクロアナライザ（EPMA）で粒子状物質の元素組成分析を行い、Cs 含有粒子を特定した（図 3.1-13）。その後、集束イオンビーム加工装置（FIB）とマイクロマニピュレータを組み合わせ、3 つのプルーム軌跡（西-北プルーム、南-西プルーム、南-東プルーム）から粒子状物質の取出しを試みた。

単離した粒子状物質は、いずれも粒径 2 μm 径前後の粒径を示していたものの、西側（西-北プルーム）の粒子の方が、南側（南-西プルーム、南-東プルーム）の粒子に比べて球状に近い形状を示す傾向にあった（図 3.1-14）。また、EPMA のエネルギー分散型スペクトロメーター（EDS）分析の結果、Cs 以外の主な元素組成として、Si, O, Fe, Zn を含むことが示された。これらの含有元素組成は、東京電力（株）が公表した 2 号機 TIP 配管内および 3 号機原子炉建屋上部ダストの粒子状物質の元素組成と類似していたことから、放出源は 2 号機または 3 号機由来の可能性が示唆された（図 3.1-15）。

さらに、単離した粒子状物質のうち西-北プルーム（西側①）および南-西プルーム（南側②）から 1 個ずつ、Ge 半導体検出器で Cs-134/Cs-137 濃度比（2011 年 3 月 11 日時点）を求め、単離元の地衣類個体の Cs-134/Cs-137 濃度比との比較を行った。その結果、いずれの粒子状物質もそれらの単離元の地衣類個体も炉内起源の根拠となる 1.0 付近の数値を示したことから、炉内起源であることを特定した。また、西側①および南側②のどちらも、地衣類個体の Cs-134/Cs-137 濃度比の方が粒子状物質のよりも低い値を示す傾向が見られた。図 3.1-16 で示すとおり、どちらの地衣類個体も Cs-134/Cs-137 濃度比は 1 号炉と考えられる値を示したのに対して、粒子状物質では、西側①は 3 号炉、南側②は 2 号炉と考えられる値を示し、同一サンプル中でも地衣類個体とその地衣類個体が捕捉した粒子状物質で異なる Cs-134/Cs-137 濃度比を示すことが明らかになった。このことから、発電所に近い地点の地衣類個体としては Cs-134/Cs-137 濃度比の低い北北西側のプルームを含む複数のプルームからの汚染の影響を受け、粒子状物質は直接汚染源から飛散した情報をそのまま保持していることを示唆している。

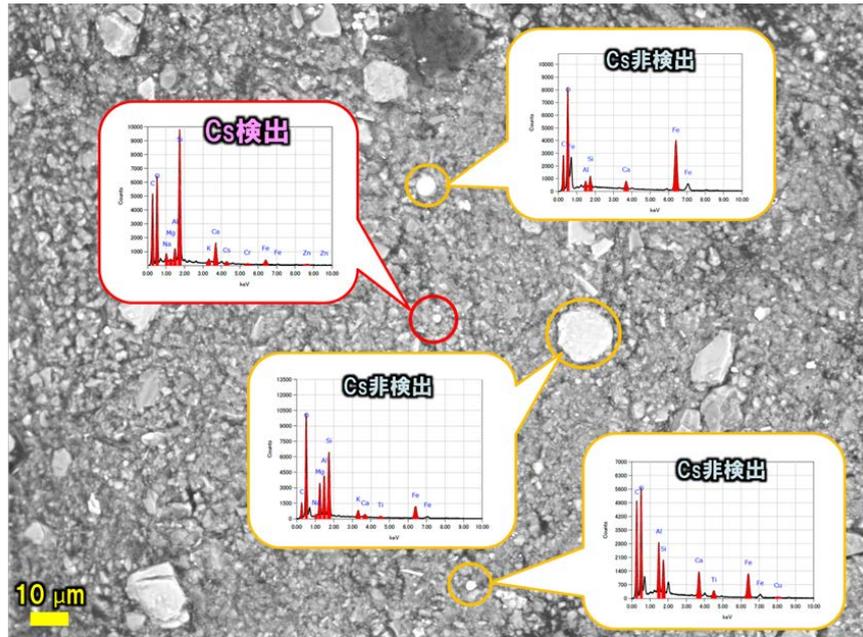


図 3.1-13 EPMA を用いた元素組成分析による地衣類試料から単離後の Cs 含有粒子の特定（輝度の高い部分に Fe 等の重元素を含む粒子）。

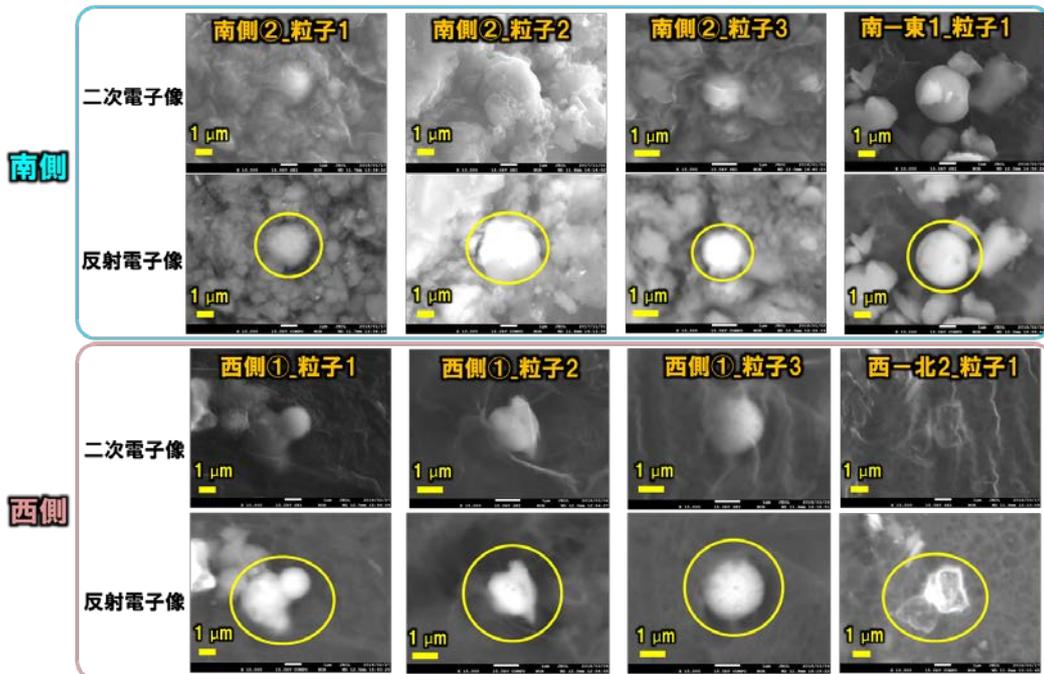
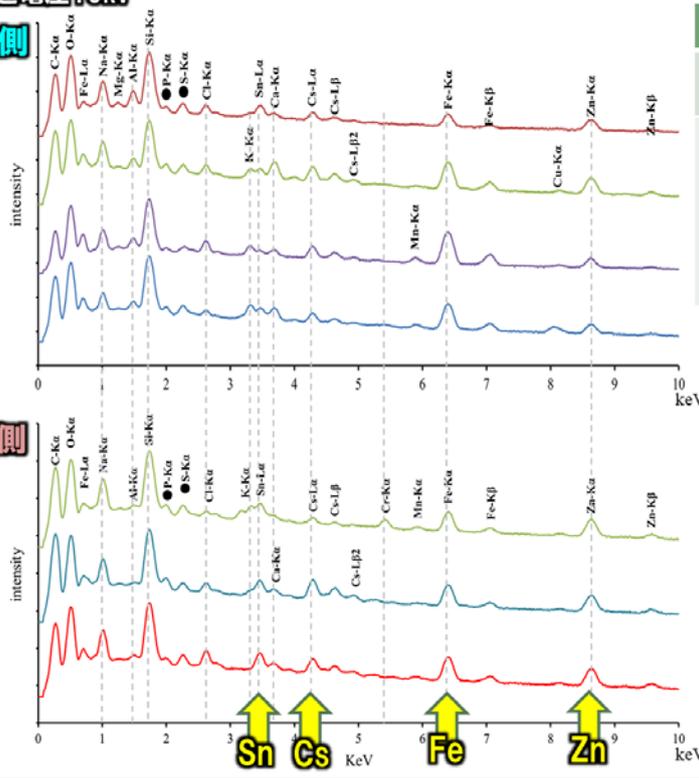


図 3.1-14 地衣類から単離した Cs を含む粒子状物質の EPMA 観察像（黄色枠内の輝度の高い部分が Cs 含有粒子。調査地点は図 3.1-16 参照。南側②：S-W、南-東 1：S-E1、西側①：W-N、西-北 2：W-N2）

加速電圧15kV

南側



西側

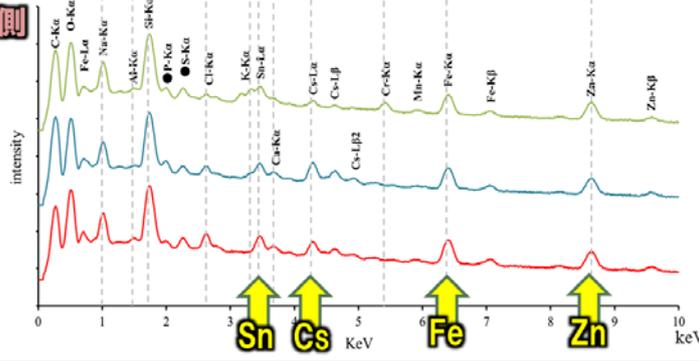


表 FDNPS内のCs含有粒子の主な共存元素 (EDS)

	Fe	Zn	Ni	Cr	Sn	Mn
2号機 TIP 配管内※1)	○	○	○	○	○	○
3号機原子 炉建屋上 部ダストA- D粒子 2) (加速電圧 不明)	○	○	-	-	△	-
	○	○	-	-	△	○
	○	○	-	-	△	-
	○	○	○	○	△	△

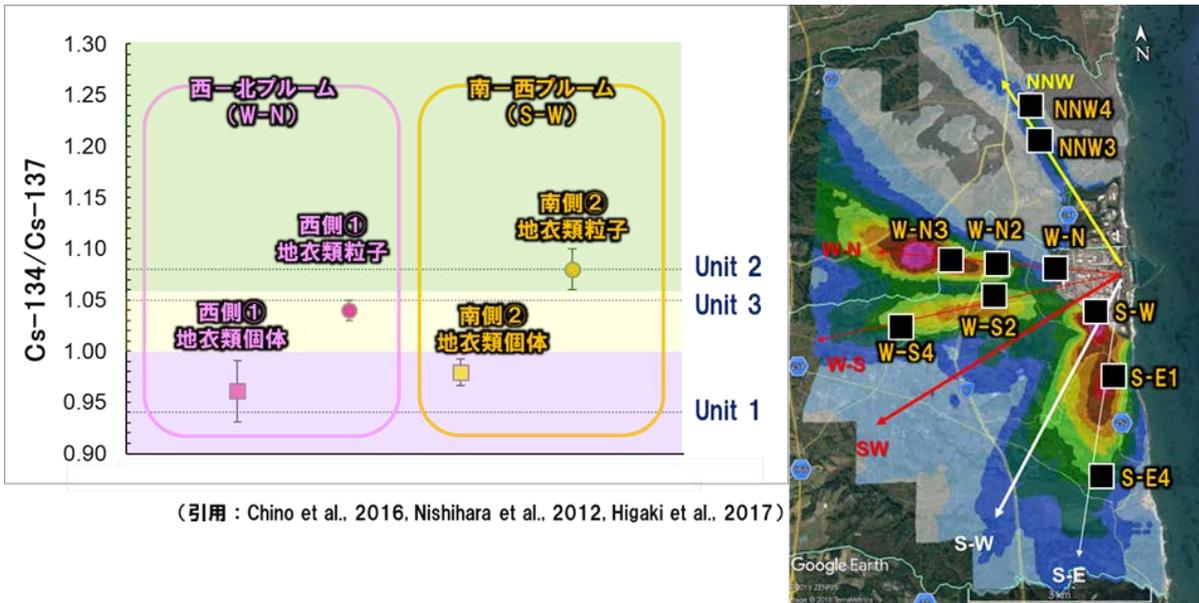
※ 分析範囲は約80 μm×60 μm (30kV)

(引用：1) 福島第一原子力発電所のサンプル分析について 2017年10月30日 東京電力 (株)
2) 福島第一原子力発電所3号機原子炉建屋上部のダストフィルタの調査結果について 2015年5月12日]

— 不検出 △ ピーク分離無し

図 3.1-15 EPMA のエネルギー分散型スペクトロメーター (EDS) 分析の結果

(左 地衣類から単離した Cs 含有粒子状物質の元素組成、右 東京電力 (株) が公表した 2号機および 3号機の粒子状物質の元素組成)



(引用：Chino et al., 2016, Nishihara et al., 2012, Higaki et al., 2017)

図 3.1-16 Cs 含有粒子と地衣類個体中の Cs-134/Cs-137 濃度比と放出源

(調査地点は、西側①：W-N、南側②：S-W)

3.2 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価

3.2.1 表土深部・樹木内部における放射性核種の分布状況調査

(1) 表土深部・樹木内部調査

【平成 28 年度までの成果】

平成 27 年度は、西および南プルームの軌跡上の樹木・土壌調査地点において、1F サイト内と同様の樹種（スギ、アカマツ、クロマツ等）を対象として、樹木と土壌試料を採取した。西プルームの軌跡上に設定した樹木・土壌調査地点および土壌採取地点では、伐採作業と並行して樹木・土壌調査を実施することにより、通常は入手が不可能である地上高 15 m 以上における樹冠部の枝、葉、樹皮、木部の試料を採取することができた。

1F サイト内で想定される樹種として、アカマツおよびコナラ、土種として褐色森林土が含まれることから、西プルームの軌跡上に設定した樹木・土壌調査地点では、アカマツ・褐色森林土およびコナラ・褐色森林土の組み合わせで試料を採取した。南プルームでは、線量率の詳細な調査の結果、複数のプルームに区分される可能性が見いだされ、それらプルームの軌跡上に分布する樹木の構成が異なっていた。そのため、南プルームの軌跡上では、樹木・土壌調査地点を大きく 4 地点設定した。設定した樹木・土壌調査地点では、スギ・褐色森林土、アカマツ・褐色森林土、クロマツ・褐色森林土およびコナラ・褐色森林土の組み合わせになるよう試料を採取した。

樹木・土壌調査地点において植生調査を実施し、樹種、樹高、直径、樹冠投影面積、立木密度、地形等の生育条件を記録した。樹木試料の採取に当たっては、可能な限り代表的な樹高と直径を持つ樹木を対象とするようにした。西プルームの軌跡上の樹木・土壌調査地点では、伐採木の年輪数を計測し、樹齢と放射性核種の濃度分布状況や移行挙動の關係に係る基礎データを得ることができた。土壌調査地点では、樹木との關係を記録するために植生調査を実施しつつ、スクレイパープレートにより 1-5 cm 刻みで概ね 20 cm 深度までの土壌試料を採取した。

平成 28 年度は、南西プルームの軌跡上の樹木・土壌調査地点を実施した。また、平成 27 年度における南および西プルームの調査において、土壌に対する樹木への移行係数は樹種が同一であっても地点による差異が著しく、プルームの当たり方や周囲の植生によって異なる可能性が示唆された。このため、平成 28 年度は、放射性核種の移行挙動評価に係る経年変化のデータを取得するため、南プルームについては、平成 27 年度とほぼ同一の調査地点を樹木・土壌調査地点および土壌調査地点に設定した。さらに、植生に関する情報として、地形に沿って草本類や木本類の配置や樹高等を示した群落断面図を作成した。これらの地点において、スギ、アカマツ、クロマツ、コナラを対象として、生育条件を記録しつつ、枝、葉、樹皮、木部等を採取した。木部は成長錐を用いるほか、樹体内の栄養分移動がほぼ生じない冬期において、チェーンソーおよび林業鋸により、スギ立木の一部を切り出した。また、対象とする樹木の根元 1 m 以内において、深度 5 cm までの土壌試料を採土リングにより採取した。土壌調査地点では、スクレイパープレートを用いて深さ 20 cm 程度までの土壌を 1 cm 刻みで採取した。これら調査により、表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況に関する経年変化データとともに、植生と放射性核種の移行挙動に係る基礎データを入手す

ることができた。

【平成 29 年度の成果】

北北西、南西および南プルームの軌跡上の樹木・土壌調査地点において、1F サイト内と同様の樹種（スギ、アカマツ、クロマツ）を対象として、樹高や胸高直径などの生育条件を記録しつつ、枝、葉、樹皮、木部等の樹木試料および樹液試料を採取した（図 3.2-1）。北北西プルームの軌跡上における土壌調査地点において、スクレイパープレートを用いて深さ 20 cm までの深度方向の土壌を 1 cm 刻みで採取した。採取試料は、核種濃度（(2) 試料中の放射能分析、参照）および灰化減重率（図 3.2-10）などの物理・化学特性等の評価上必要な基礎データを取得した。また、本事業において取得したデータを整理し、プルーム軌跡上における樹木汚染状況とその時間変化に関する移行挙動評価に必要なデータ（樹木の Cs-137 面移行係数）を取得することができた。

樹木試料は、外樹皮、内樹皮、辺材および心材に解体後、ミキサー等で粉碎し、90℃程度で重量一定となるまで乾燥させ、U-8 容器に封入し、Ge 半導体検出器にて放射性セシウム濃度を測定した。土壌試料は、粒径 2 mm を超える礫の除去後、105℃にて 24 時間乾燥させ、U-8 容器に封入し、Ge 半導体検出器にて放射性セシウム濃度を測定した。得られた放射性セシウム濃度は、樹液試料を除き、2016 年 1 月 30 日の値に減衰補正した。さらに、樹木各部の汚染状況については、試料採取地点により初期沈着量が異なるため、樹木各部の Cs-137 濃度 (Bq kg^{-1}) を採取地点の土壌 Cs-137 インベントリ (Bq m^{-2}) で除することで規格化した Cs-137 濃度（面移行係数 ($\text{m}^2 \text{kg}^{-1}$)）を算出した。

プルーム軌跡上の各地点にて調査対象とした樹木の樹高や胸高直径などの生育条件（表 3.2-1）は、樹冠長はスギで長く、樹冠投影面積はアカマツで大きい傾向にある。また、立木密度は南西と北北西プルームの軌跡上の調査地点で高いことが分かる。樹冠長や樹冠投影面積が大きいことは、初期沈着を受ける面積が大きい一方で、初期沈着後の雨水を受ける面積も大きいことを示す。また、立木密度が高い地点は、立木密度が低い地点と比較して、初期沈着が地表面よりも樹木の樹冠により多く沈着したであろう可能性を示す。さらに、初期沈着後の雨水が、地表面よりも樹冠に多くとらえられる可能性を示す。

プルームおよび樹種ごとに整理した樹木各部の Cs-137 濃度と土壌 Cs-137 インベントリ（表 3.2-2）を見ると、南西プルームにおいて、南-西や南-東プルームと比較し土壌 Cs-137 インベントリの高いことが分かる。また、木部の Cs-137 濃度について同一プルームで見ると、スギはアカマツと比較して心材濃度が高い特徴を持つ。そのため、辺材と外樹皮、心材と外樹皮の Cs-137 濃度比を取ると、スギはアカマツと比較して高い値となる。スギ心材における放射性セシウム濃度が高いことは、既往研究でも知られており、スギという樹種の特性と考えられる。樹皮や枝葉の Cs-137 濃度は土壌 Cs-137 インベントリと概ね正の相関を示すものの、明瞭とは言い難く、個々の樹木の特性（樹冠長や樹幹投影面積）と立地状況（林縁からの距離）が影響していると考えられる。

プルームおよび樹種ごとに整理した樹木各部の Cs-137 に関する面移行係数は（図 3.2-2）、アカマツでは樹皮および木部ともにプルームによる明瞭な差異が認められない。スギについては、樹皮と木部の面移行係数の差異を比較すると、南西プルームで小さく、南-西および南

-東プルームで差異が大きい傾向にある。また、スギ樹皮の面移行係数に着目すると、南西プルームでは明瞭な経年変化は認められないが、南-西および南-東では、低下する方向に経年変化していることが確認できる。アカマツにおいてプルームによる差異が見られないことは、放射性セシウムの分布状況がアカマツにおいて平衡状態にある可能性を示唆する。一方のスギについては、プルームによる差異が認められ、かつ明瞭な経年変化を示していることから、初期沈着時における放射性セシウムの分布状況から平衡状態に至る途中の状況を示しているものと考えられる。

スギ樹体内部における放射性セシウムの分布状況について、外樹皮、内樹皮および辺材のオートラジオグラフを見ると、初期沈着時に存在した外樹皮ではドット状の分布となっているが、樹木内部の内樹皮および辺材では均一に分布していた（図 3.2-3）。内樹皮は師部組織であり、葉で作られた光合成産物や樹体内部に貯蔵された有機物を樹木各部に運搬する機能をもつ。また、辺材では水分通導が行われており、主に根から吸収した水を樹木各部に運搬する。このことから、樹体内部では、いわゆる樹液を介した溶存態セシウムの移動により、内樹皮および辺材において均一な放射性セシウム分布が形作られたと推定される。

樹木内部の内樹皮および木部（辺材、心材）から樹液を圧搾し、樹液中の放射性セシウムについて調査した。圧搾で得られた樹液の放射性セシウム濃度は、内樹皮で最も高く、辺材において最も少なかった。また、内樹皮、辺材および心材の樹液中に含まれる放射性セシウム量は、樹木各部の放射性セシウム総量のそれぞれ 54.0%、33.2%および 33.0%であった（表 3.2-2）。これらのことは、スギにおける放射性セシウムの分布状況が、樹液を介した溶存態セシウムの移動プロセスにより、初期沈着時の状況から平衡状態へと変化することを示していると考えられる。

表 3.2-1 樹高や胸高直径などの樹木生育状況の一覧

プルーム	樹種	樹高(m)	樹冠長(m)	胸高直径(cm)	樹幹投影面積(m ²)	立木密度(本/ha)	林縁からの距離(m)
SW(南西)	スギ	19	18	41	37.7	1460	4
	アカマツ	20	16	54	48.4		6
S-W(南-西)	スギ	16	12	37	14.0	695	12
	アカマツ	21	8	44	39.6		11
	クロマツ	16	5	23	10.3		6
S-E(南-東)	スギ	15	12	41	16.2	748	9
W-N(西-北)	アカマツ	19	7	42	41.9	941	100
NNW(北北西)	アカマツ	6	4	13	—	1381	16

樹冠長；樹高から生枝下高（地表から生枝までの高さ）を差し引いた長さ
 胸高直径；地上 1.3 m 高さにおける樹木の幹の直径
 樹冠投影面積；樹木の枝張りの範囲の面積

表 3.2-2 樹木試料の Cs-137 濃度および土壌 Cs-137 インベントリ

ブルーム	樹種	調査日	樹木試料 ¹³⁷ Cs 濃度 (kBq kg ⁻¹) ※1								土壌 ¹³⁷ Cs インベントリ (kBq m ⁻²)		
			外樹皮	内樹皮	辺材※2	心材※2	枝	葉	辺材/ 外樹皮	心材/ 外樹皮			
SW (南西)	スギ	2016/1/26	310	—	56	150	324	204	0.181	0.484	14,000—49,628		
		2016/8/24	374	197	34	129	824	281	0.091	0.345			
		2017/9/13	270	248	18	148	170	202	0.067	0.548			
	アカマツ	2016/1/26	183	—	5	5	—	—	0.027	0.027			
		2016/8/24	190	—	3	3	—	—	0.016	0.016			
		2017/9/13	257	—	3	3	—	—	0.012	0.012			
S-W (南-西)	スギ	2016/1/27	382	—	8	30	59	111	0.021	0.079	13,777—17,634		
		2016/8/23	165	66	12	31	31	59	0.073	0.188			
		2017/9/13	81	61	3	33	26	21	0.037	0.407			
	アカマツ	2016/1/27	121	—	4	4	—	—	0.033	0.033			
		2016/8/23	67	72	3	3	—	—	0.045	0.045			
		2017/9/13	206	60	4	4	—	—	0.019	0.019			
	クロマツ	2016/1/27	259	—	2	2	—	—	0.008	0.008			
		2016/8/24	235	33	1	1	—	—	0.004	0.004			
		2017/9/13	68	16	0.9	0.9	—	—	0.013	0.013			
	S-E (南-東)	スギ	2016/1/27	184	—	15	28	402	367	0.082		0.152	27,178—28,264
			2016/8/23	73	84	94	3	205	189	1.288		0.041	
			2017/9/13	91	72	7	28	396	85	0.077		0.308	
NNW (北北西)	アカマツ	2018/1/22	56	5	0.8	0.8	1	2	0.014	0.014	3,636—3,645		
W-N (西-北)	アカマツ	2016/1/21	10	—	0.9	0.8	9	14	0.090	0.082	2,613—4,416		

※1 2016年1月30日の値に減衰補正

※2 心材と辺材が区別できないアカマツとクロマツは、木部の分析値を心材および辺材とした

表 3.2-3 スギの樹木各部および圧搾した樹液の放射性セシウム濃度

	植物体 (Bq kg ⁻¹ DW)		圧搾した樹液 (Bq L ⁻¹)		
	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	% ¹³⁷ Cs 樹液
外樹皮	(3.75±0.04)×10 ⁴	(2.91±0.01)×10 ⁵	—	—	—
内樹皮	^a (9.28±0.20)×10 ³ ^b 1.54×10 ⁴	^a (7.09±0.05)×10 ⁴ ^b 1.16×10 ⁵	(5.98±0.17)×10 ³	(4.38±0.04)×10 ⁴	54.0
辺材	^a (2.76±0.16)×10 ³ ^b 3.33×10 ³	^a (2.23±0.04)×10 ⁴ ^b 2.95×10 ⁴	(3.44±0.79)×10 ²	(4.37±0.17)×10 ³	33.2
心材	^a (1.09±0.02)×10 ⁴ ^b 1.43×10 ⁴	^a (8.15±0.06)×10 ⁴ ^b 1.08×10 ⁵	(2.06±0.09)×10 ³	(1.59±0.02)×10 ⁴	33.0

^a 樹液圧搾後の植物体の放射性セシウム濃度

^b 圧搾した樹液と圧搾後の植物体を合わせた放射性セシウム濃度

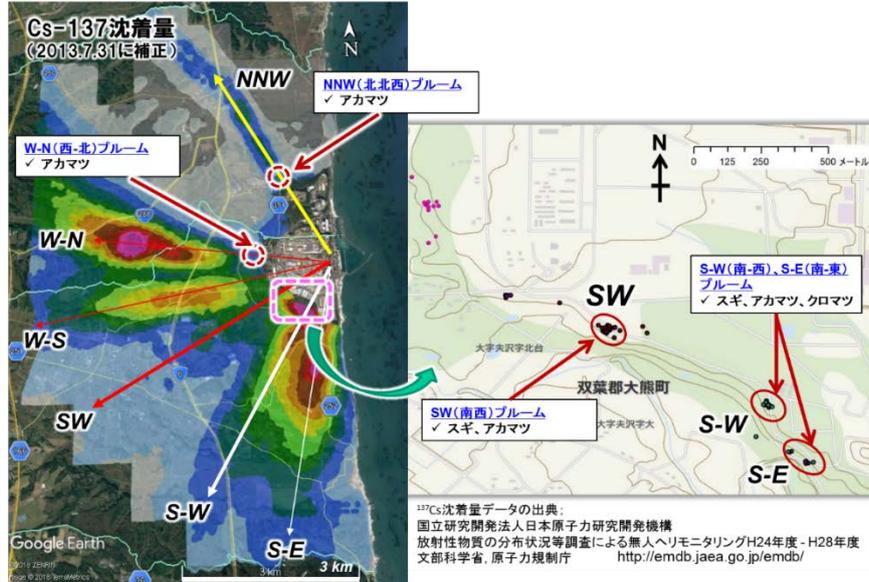


図 3.2-1 調査位置図

(NNW ; 北北西プルーム、W-N ; 西-北プルーム、W-S ; 西-南プルーム、SW ; 南西プルーム、S-W ; 南-西プルーム、S-E ; 南-東プルーム)

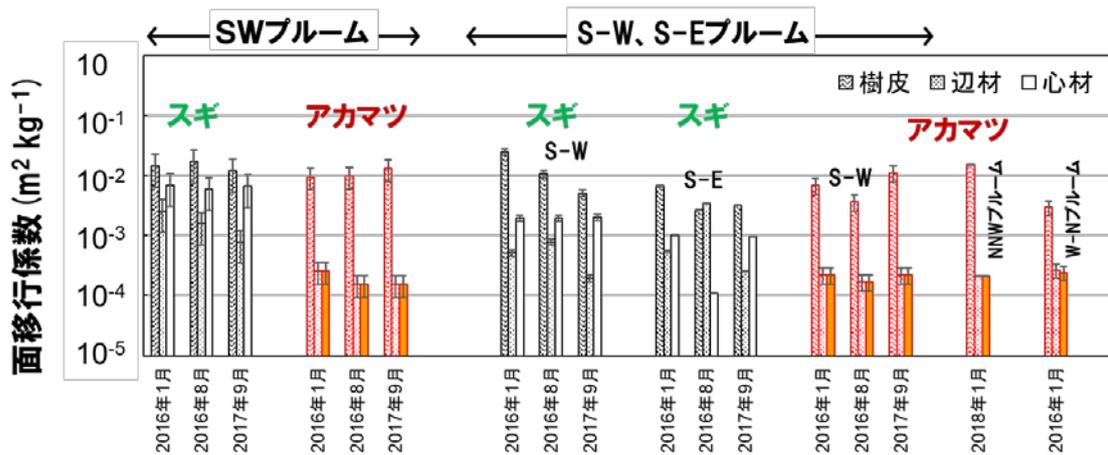


図 3.2-2 樹木各部のCs-137面移行係数とプルームおよび採取年との関係
(樹皮は外樹皮、エラーバーは最大/最小値を示す)

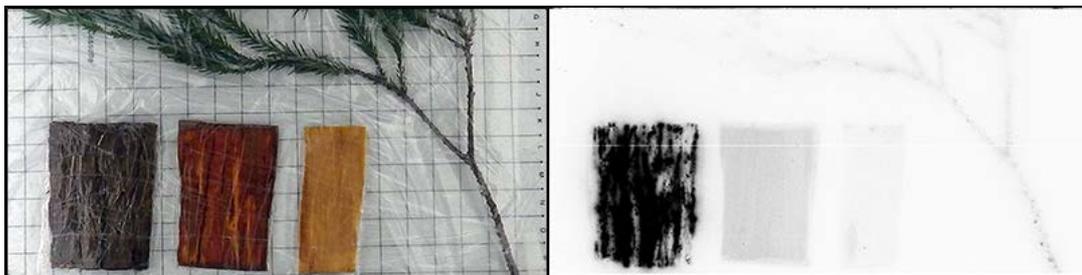


図 3.2-3 スギ樹皮および枝葉のオートラジオグラフィ像

(2) 試料中の放射能分析

【平成 28 年度までの成果】

採取した試料については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。

スクレイパープレートにより 1 cm 刻みで採取した土壌試料については、乾燥後、Ge 半導体検出器を用いて、 γ 放出核種の濃度を測定、深さ方向の濃度プロファイルを評価した。文部科学省の放射能測定法シリーズの「放射性ストロンチウム分析法」「プルトニウム分析法」「アメリシウム分析法」に準拠した標準的な手法を用いて、土壌中および樹木中の Sr-90、Pu-238、Pu-239+240、Am-241 および Cm-244 濃度を測定し、輸送比を算出した（表 3.2-4～表 3.2-7、輸送比については 3.3.1(2) 参照）。

試料中の放射性セシウム以外の γ 放出核種を検出するため、文献データおよび予備試験結果に基づき、土壌および樹木の灰化試料について、酸分解処理と抽出クロマトグラフィを組み合わせ、ICP-MS による Sr 測定および Cs 除去後の γ 核種測定を組み合わせた分析方法を考案した（図 3.2-4）。Cs 除去後の土壌試料の γ スペクトルを見ると、Cs-134 および 137 のピークは非常に小さくなっており、低エネルギー側の散乱線のカウント数も大幅に低減できたことから、これまでに確認できなかった多くのピークを確認することができた（図 3.2-5）。各試料に共通に認められるピークを同定した結果、Co-60 に起因するピーク（1,173 および 1,333 keV）を同定し、濃度を評価することができた（表 3.2-8）。

表 3.2-4 表土中（0～1 cm）放射性セシウム濃度、Cs-134/137 比と Cs-137 沈着量

試料	調査位置	Cs-134 濃度 (Bq/kg)	Cs-137 濃度 (Bq/kg)	Cs-134/137 比 (-)	Cs-137 沈着量 (Bq/m ²)
北①-4-1	NNW	2.40×10^6	2.78×10^6	0.862	4.9×10^6
西①-4-1	W-N	5.41×10^5	5.49×10^5	0.985	3.8×10^6
南④-SP-1	SW	1.84×10^7	1.89×10^7	0.970	2.2×10^8
南②-2-1	S-W	5.53×10^6	5.68×10^6	0.973	5.0×10^7
南①-2-1	S-E	3.84×10^6	4.02×10^6	0.955	2.2×10^7

いずれの値も 2011 年 3 月 11 日時点の値に減衰補正した。調査位置は図 3.2-1 参照。

表 3.2-5 表土中の放射性核種濃度（Bq/kg、上）および Cs-137 に対する輸送比（下）

試料 (調査位置)	Sr-90	Pu-238	Pu-239+240	Am-241	Cm-244
北①-4-1	183 ± 4	0.22 ± 0.03	0.62 ± 0.06	0.39 ± 0.04	0.076 ± 0.019
(NNW)	8.85×10^{-5}	3.4×10^{-6}	2.8×10^{-5}	5.1×10^{-5}	2.0×10^{-6}

1 号機起源とした。いずれの値も 2011 年 3 月 11 日時点の値に減衰補正した。

調査位置は図 3.2-1 参照。

表 3.2-6 表土中の放射性核種濃度 (Bq/kg、上) および Cs-137 に対する輸送比 (中・下)

試料 (調査位置)	Sr-90	Pu-238	Pu-239+240	Am-241	Cm-244
西①-4-1 (W-N)	390±8	0.18±0.04	0.19±0.04	< 0.12	< 0.13
	9.5×10 ⁻⁴	1.8×10 ⁻⁵	4.5×10 ⁻⁵		
	9.5×10 ⁻⁴	1.4×10 ⁻⁵	3.4×10 ⁻⁵		
南④-SP-1 (SW)	4300±30	1.3±0.1	0.62±0.09	0.72±0.09	0.96±0.12
	3.1×10 ⁻⁴	3.8×10 ⁻⁶	4.4×10 ⁻⁶	2.2×10 ⁻⁵	4.0×10 ⁻⁶
	3.1×10 ⁻⁴	3.0×10 ⁻⁶	3.3×10 ⁻⁶	1.6×10 ⁻⁵	4.5×10 ⁻⁶
南②-2-1 (S-W)	1600±20	0.57±0.07	0.60±0.07	0.33±0.05	0.35±0.06
	3.7×10 ⁻⁴	5.6×10 ⁻⁶	1.4×10 ⁻⁵	3.4×10 ⁻⁵	4.9×10 ⁻⁶
	3.7×10 ⁻⁴	4.4×10 ⁻⁶	1.1×10 ⁻⁵	2.5×10 ⁻⁵	5.5×10 ⁻⁶
南①-2-1 (S-E)	580±10	0.40±0.07	0.28±0.06	0.13±0.04	0.29±0.06
	1.9×10 ⁻⁴	5.5×10 ⁻⁶	9.1×10 ⁻⁶	1.9×10 ⁻⁵	5.8×10 ⁻⁶
	1.9×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻⁶	6.9×10 ⁻⁶	1.4×10 ⁻⁵	6.5×10 ⁻⁶

輸送比は 2 号機起源 (中段) および 3 号機起源 (下段) の値。調査位置は図 3.2-1 参照。<付きの濃度は検出限界未満で、数字は検出限界値。いずれの値も 2011 年 3 月 11 日時点で減衰補正。

表 3.2-7 樹木試料中の放射性核種濃度 (Bq/kg-ash、上) および Cs-137 に対する輸送比 (下)

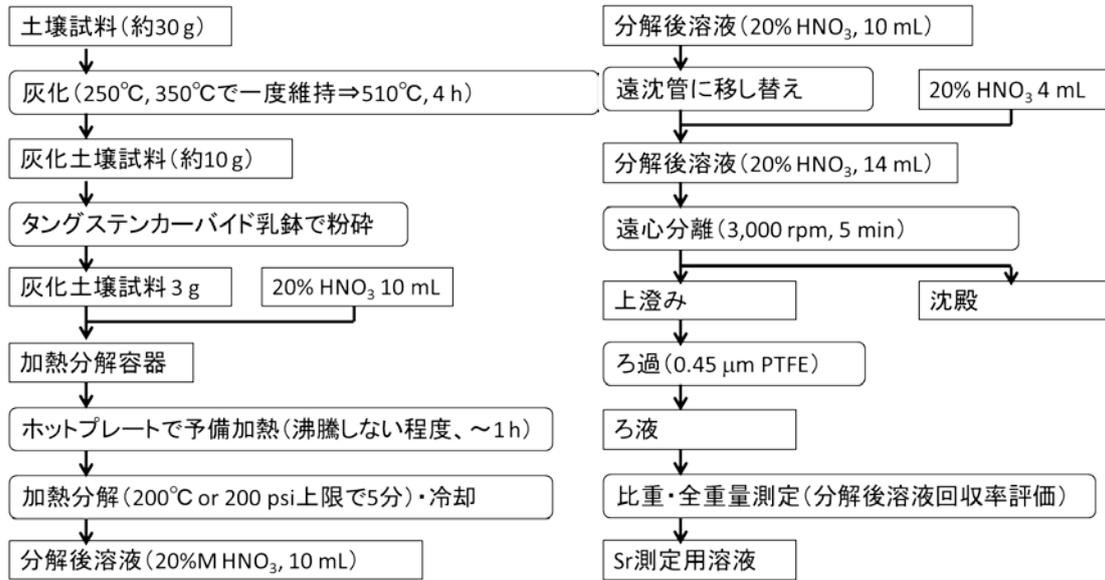
試料 (調査位置)	Sr-90	Pu-238	Pu-239+240	Am-241	Cm-244
南④アカマツ樹皮 (SW)	4100±130 3.1×10 ⁻⁴	< 3.3	< 3.0	< 2.9	< 2.9
南④スギ樹皮 (SW)	12000±330 7.7×10 ⁻⁴	< 5.4	< 5.4	< 6.6	< 5.6
南④スギ枝 (SW)	9300±110 4.5×10 ⁻⁴	< 1.7	< 1.4	< 1.1	< 1.1
南④コナラ枝 (SW)	3200±70	< 1.4	< 1.1	< 1.1	< 1.2
南②スギ樹皮 (S-W)	5200±150 2.4×10 ⁻⁴	< 2.4	< 2.4	< 2.8	< 2.8

輸送比は 2 号機起源の値。調査位置は図 3.2-1 参照。濃度は灰化後の灰重量ベースの値。灰化減重率は 97%。<付きの濃度は検出限界未満で、数字は検出限界値。いずれの値も 2011 年 3 月 11 日時点で減衰補正。

表 3.2-8 土壌の酸溶解液中の Cs-137 に対する Co-60 の放射能濃度比

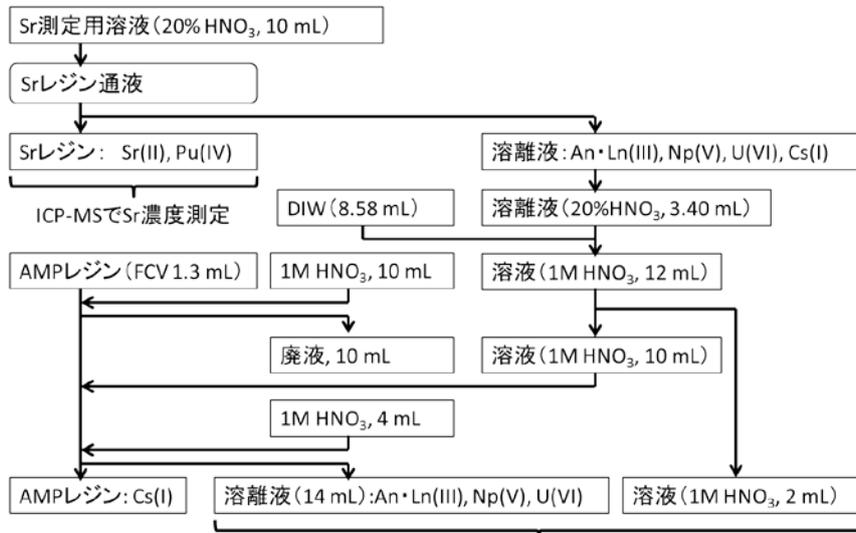
試料 (調査位置)	Co-60/Cs-137 放射能濃度比
西①-3-1 (W-N)	0.0173
南④-1-1 (SW)	0.0246
南②-1-1 (S-W)	0.0436
南②-2-1 (S-W)	0.0634
南①-2-1 (S-E)	0.0764

0-1 cm 深さの表土中濃度。



a) 酸分解フロー

b) 固液分離フロー



15 mL遠沈管内で蒸発乾固したのち、井戸型Geでγ核種測定

c) Sr・Cs 分離フロー

図 3.2-4 Sr 分析と組み合わせた土壌試料からの放射性セシウム除去フロー

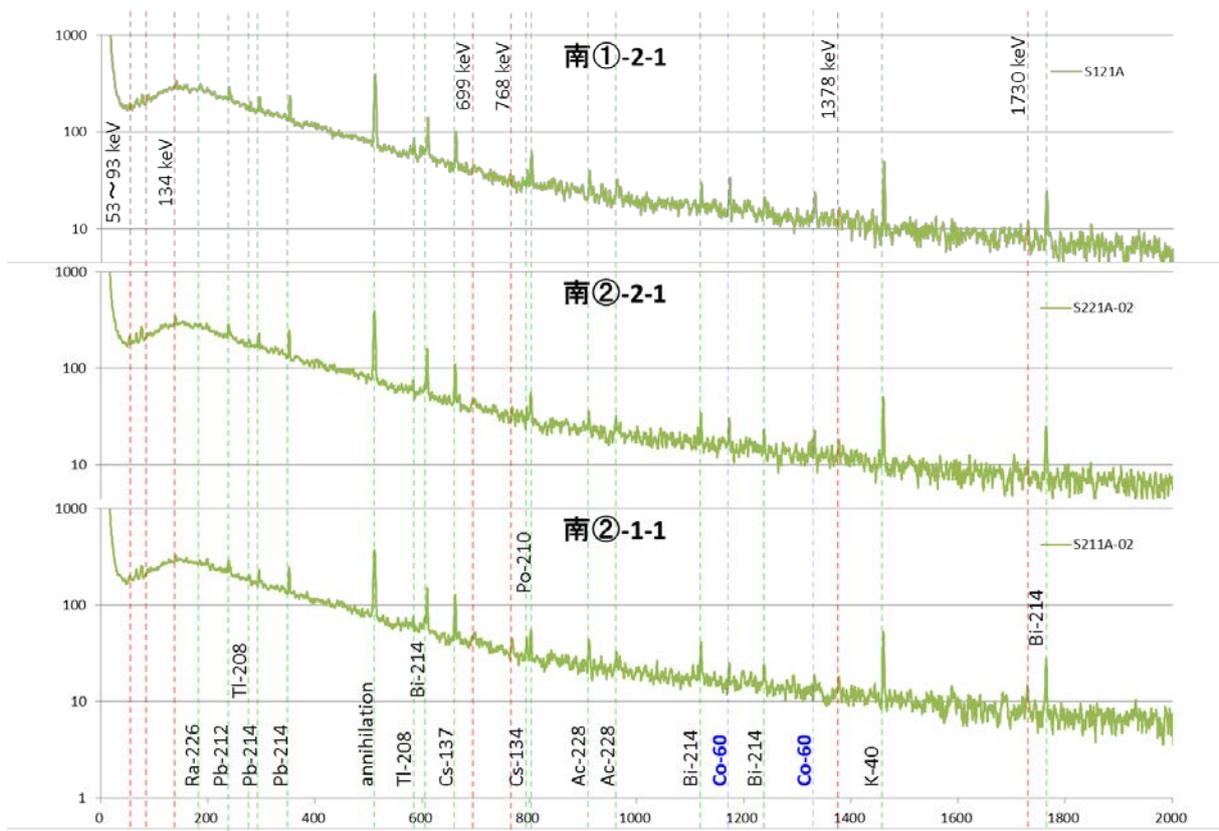


図 3.2-5 Cs を除去した土壌試料のγスペクトル

【平成 29 年度の成果】

採取した試料については、乾燥等の前処理後、 γ 放出核種の組成・濃度を測定した。 β 線放出核種である Sr-90 およびアクチニド元素等の α 放出核種については、京都大学と協力して既往の調査で使用している簡便な前処理・測定手法を用いて濃度を評価するとともに、数点の試料については、測定値の妥当性を確認するため、標準的な手法で濃度を評価した。その結果、Cs-134、Cs-137 のほか、Co-60、Sb-125 等の γ 放出核種の組成・濃度を評価した。また、特筆すべき事項として、Sr-90、Pu-238、Pu-239+240、Am-241 および Cm-244 について、土壌中の深さ方向の濃度プロファイルを取得することに成功した。

NNW プルーム沿いの北①-4 で採取された表土試料では、 γ スペクトルに基づき Cs-134、Cs-137 のほか、Co-60、Sb-125 濃度を評価した (図 3.2-6)。Cs-137 に対する輸送比 (2011 年 3 月 11 日に減衰補正) は、Co-60 で 5.9、Sb-125 で 2.1 となった。Co-60 については、炉心燃料組成に基づき算出したが、炉内構造物等その他の起源も考えられるため、1 より大きな値になったと推測される。

表土中の Cs 以外の放射性核種に関する深さ方向濃度プロファイルを図 3.2-7 に示す。プロファイルの傾きは放射性核種の移行性と相関があり、最も傾きが大きい Cs が最も移行しにくく、Sr が最も移行が速い。

Am-241 のプロファイルについては、Pu-239+240 と同様のプロファイルが得られている。これは、試料採取時は事故後 5 年経過しており、Am-241 は Pu-241 からの崩壊によるものの寄与

が大きいと推測される。一方で、Pu-238 および Cm-244 は Pu-239+240 とは異なるプロファイルを示し、5 cm 以深では両者に顕著な差が認められる。これは、グローバルフォールアウト（大気圏内核実験や原子力発電所事故により環境中に飛散した放射性核種が沈着すること）により沈着した Pu-239+240 の寄与があるためと推測される。グローバルフォールアウトに起因する Pu-238 と Pu-239+240 の放射能比は、0.0261 程度になることが知られている。今回のプロファイルを見ると、深さ 10 cm 以深では、両核種の放射能比はグローバルフォールアウトと同程度になると推測される。そこで、深さ 10 cm までの濃度分布を用いて、深さ方向の濃度分布から算出される沈着量ベースの輸送比を算出した（表 3.2-9）。表 3.2-6 の表層濃度ベースの値と比較すると、南②-2 地点の Pu-239+240 および Am-241 を除き、2~3 倍程度の範囲内に収まっていることが分かった。

樹木材中の放射性核種濃度、および、3.2.1(1) で得られた Cs 濃度に基づき算出した輸送比を表 3.2-10 に示す。Sr-90 の輸送比を表 3.2-7 の樹皮や枝の値と比較すると、スギについては樹皮や枝と同程度の値であったが、アカマツについては樹皮より大きい値を示した。これが、アカマツ中の Sr-90 の移行性によるものかどうか、さらなる調査が望まれる。

表 3.2-9 沈着量ベースの放射性核種の輸送比

試料	調査位置	Sr-90	Pu-238	Pu-239+240	Am-241	Cm-244
南④-SP	SW	1.2×10^{-4}	4.1×10^{-6}	2.0×10^{-5}	3.8×10^{-5}	3.0×10^{-6}
		1.2×10^{-4}	3.2×10^{-6}	1.5×10^{-5}	2.8×10^{-5}	3.4×10^{-6}
南②-2	S-W	9.4×10^{-4}	9.9×10^{-6}	2.0×10^{-4}	3.1×10^{-4}	8.3×10^{-6}
		9.4×10^{-4}	7.7×10^{-6}	1.5×10^{-4}	2.3×10^{-4}	9.3×10^{-6}

輸送比は 2 号機起源（中段）および 3 号機起源（下段）の値。調査位置は図 3.2-1 参照。いずれの値も 2011 年 3 月 11 日時点の値に減衰補正した。

表 3.2-10 樹木材中の放射性核種濃度 (Bq/kg、上) および Cs-137 に対する輸送比 (下)

試料 (調査日・位置)	Sr-90	Pu-238	Pu-239+240	Am-241	Cm-244
南④スギ (2017.2.20、SW)	48.1 4.7×10^{-4}	$< 6.1 \times 10^{-3}$	$< 6.1 \times 10^{-3}$	$< 4.1 \times 10^{-3}$	$< 4.1 \times 10^{-3}$
北①アカマツ (2018.1.22、NNW)	16.3 2.8×10^{-2}	$< 5.5 \times 10^{-3}$	$< 5.0 \times 10^{-3}$	$< 4.7 \times 10^{-3}$	$< 4.8 \times 10^{-3}$

濃度は調査日、輸送比は 2011 年 3 月 11 日時点の値に減衰補正した。

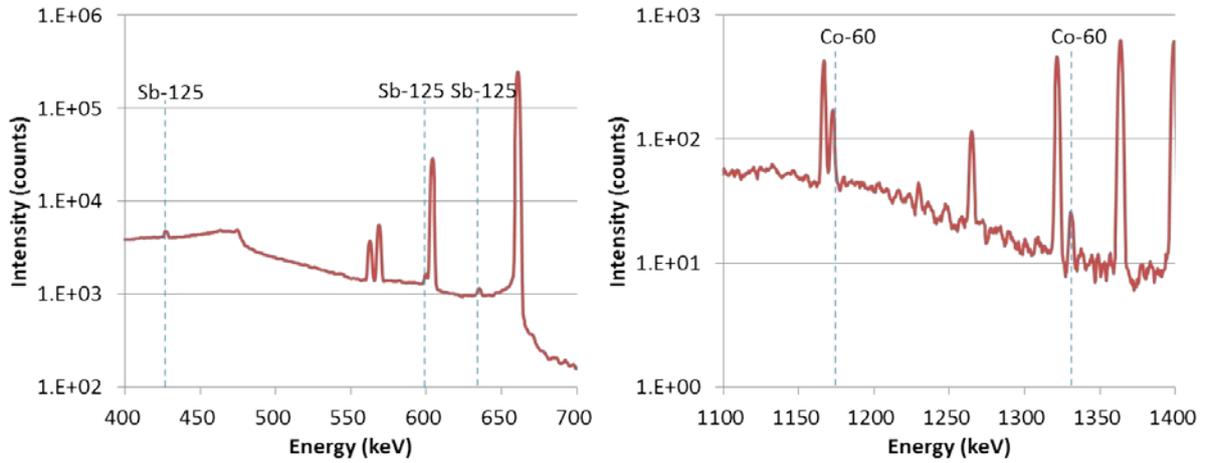


図 3.2-6 表土試料 (NNW、北①-4-1) のγスペクトル測定結果

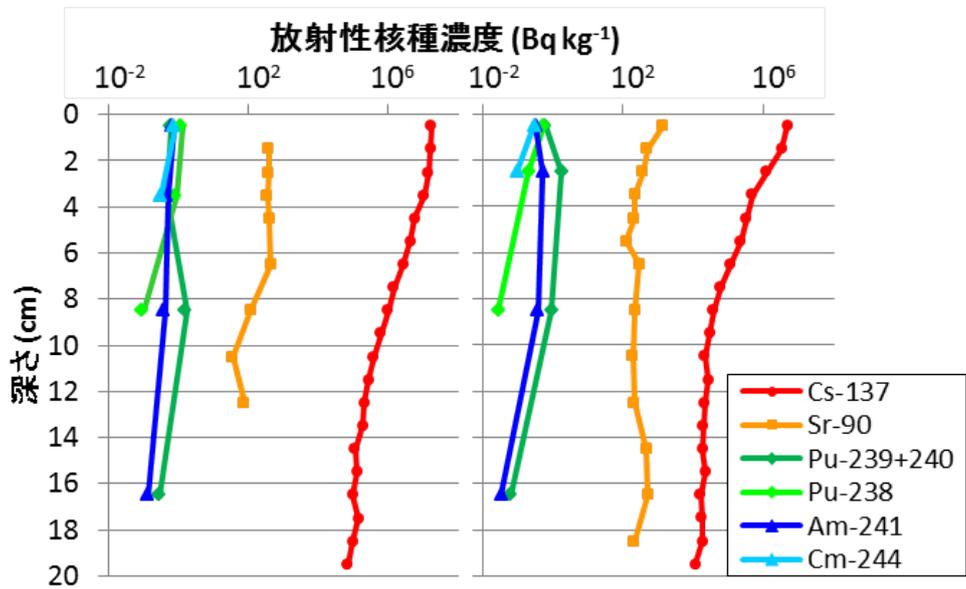


図 3.2-7 表土中の放射性核種の濃度プロファイル

左 : SW (2016年1月26日採取)、右 : S-W (2016年1月28日採取)

3.2.2 熱力学データ等に基づく表土深部方向の核種移行挙動の解明（再委託先：京都大学）

福島第一原子力発電所サイト外、いわゆるオフサイトの、特に空間線量率の高い敷地境界付近の山林において、事故発生当時の土壤に沈着した Cs およびそれ以外の核種の性状および動態を明らかにし、さらにそれを解釈するためのモデルを構築し、各号機から放出された核種インベントリと相関付けることを目的とした。本研究成果は、オンサイトで保管されている膨大な量の固体廃棄物や事故後に舗装や覆土等の処置がなされた敷地に沈着した核種の存在比や量の推定に役立つものであり、また、それらの地中移行予測や将来の廃炉工程時に生じうる燃料デブリ由来の核種移行評価の基礎的知見になると期待される。3 年間の研究成果は、4 つに分類される。(1) Sr-90 の土壤深度プロファイル測定、(2) Sr-90 等の土壤への収着分配係数評価、(3) 核種移行モデルの検討、(4) 輸送比に及ぼす深度プロファイルの影響、である。以下に成果の概要を示す。

(1) Sr-90 の土壤深度プロファイル測定

【平成 28 年度までの成果】

Cs-137 のようなガンマ線核種は測定が容易であるが、Sr-90 の分析工程は煩雑である。国の定める放射性ストロンチウム分析法（以下、公定法）ではベータ線核種である Sr-90 と Y-90 の放射平衡まで数週間かかるため、測定結果を得るまで 1 か月程度を要することもあり、分析データに乏しい。しかし、Sr-90 の環境動態のより詳細な理解には、深さ方向の濃度分布情報を含め、分析点を増やすことが重要である。そこで、 β 線測定による公定法に比べ作業工程が少なく、大幅な分析時間短縮が期待できる ICP-MS 法を採用した。

福島第一原子力発電所の南側ブルーム軌跡上の線量率が高い 2 地点（図 3.2-8）において、スクレイパープレートを用いて深さ 20 cm までの土壤を 1 cm 刻みで採取、乾燥させた。Cs-137 をはじめとするガンマ核種濃度は、U-8 容器を用いて Ge 半導体検出器により測定した。乾燥土壤をさらに 500°C で 4 時間灰化した後、20%熱硝酸により土壤粒子表面から Sr-90 を溶離し、酸溶離液中の Sr-90 濃度を ICP 質量分析装置（ICP-MS, ELAN DRC II, PerkinElmer）により定量した。装置の外観を図 3.2-9 に示す。なお、平成 28 年度には、溶離液に含まれるマトリクス元素や Sr-90 の同重体である Zr-90 および Y-90 は、Sr レジン(Eichrom)によるオンライン固相抽出装置 FIAS および ICP-MS 内での酸素リアクションセルにより除去した。また、超音波ネブライザにより噴霧効率を向上させ、Sr-90 の検出限界を改善するとともに、酸溶離液に In を内部標準として添加し、感度補正を行った。



図 3.2-8 土壌試料を採取した 2 地点（矢印はプルームの方向を表す）



図 3.2-9 Sr-90 定量に用いた ICP 質量分析システム

（左：本体、右中央：オンライン固相抽出装置 FIAS、右下：超音波ネブライザ）

【平成 29 年度の成果】

平成 29 年度も経時変化をみるため、同じ 2 地点において、スクレイパープレートを用いて深さ 20 cm までの土壌を 1 cm 刻みで採取した。両地点で採取した土壌は褐色森林土に分類される。XRD 分析によれば、主に石英、長石、粘土鉱物で構成される。これに腐植有機物が含まれており、深度とともに有機物含有比は 80%から 20%程度まで低下し、真密度も増加した。乾燥土壌を灰化した際の重量減少を表す減重率、Cs-137 および Sr-90 濃度の深度プロファイルの結果の例を、図 3.2-10 に示す。灰化減重率は木の根や落ち葉等の有機物が多く含まれる表層ほど高い。Cs-137 は表層付近での濃度が高く、強い収着が示唆された。Sr-90 の検出下限値は (0.35Bq/10mL_酸溶離液相当、乾土試料 3g 溶解で約 100Bq/kg) であった。Cs-137 と同様、表層ほど濃度が高いものの、Cs-137 よりも深部へ移行している割合がやや高い傾向にある。沈着から 5 年以上経過した現在において、表層 0-10cm 程度に大半の Cs-137 が留まっている一方で、それ以深に有意な Sr-90 を検出した。

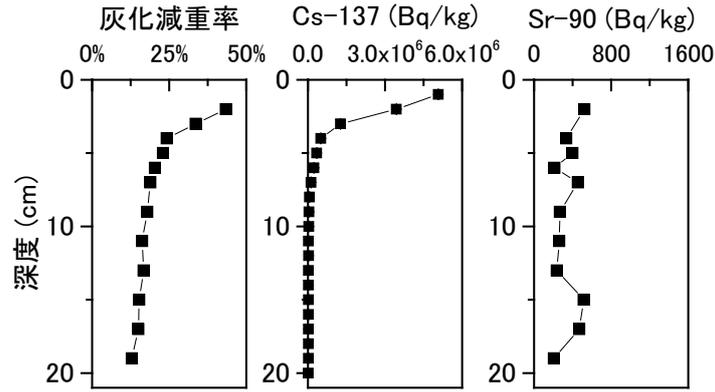


図 3.2-10 減重率、Cs-137 および Sr-90 濃度の深度プロファイルの結果の例

(2) Sr-90 等の土壌への吸着分配係数評価

【平成 28 年度までの成果】

Sr-90 と Cs-137 の土壌深度プロファイルを解釈するために構築するモデルにおいて、吸着分配係数 K_d は重要なパラメータである。本研究では、実験室においてバッチ吸着試験を行い、 K_d を取得した。なお、今後の土壌分析で Am(Cm) が検出される可能性もあること、異なる価数 (Cs^+ 、 Sr^{2+} 、 Am^{3+}) の相互比較が可能となることから、Am についても検討することとした。試験に先立ち、キャリアフリー γ 線核種である Sr-85、Cs-134、Am-241 (これらの核種の事故由来の寄与は、現時点で無視できるほど小さい) を、乾燥土壌と南②下で採取した湧水を入れたプラスチック製容器に添加して、ローラー型シェーカを用いて穏やかに振とうした。その後、上澄みを分取し、 $0.45 \mu m$ PTFE メンブレンフィルタで懸濁物をろ別したろ液 10 mL をポリプロピレン管に入れて pH を測定した。さらに酸を添加し、 $95^\circ C$ に加温したアルミブロックヒーターに入れて蒸発乾固させ、点線源様の γ 線測定用試料を調製した。測定 cps 値を検出効率(約 2.2%)等で補正して水相中の核種放射能を算出し、吸着反応による K_d 値が求まる。

$$K_d = \frac{\text{土壌放射能濃度 (Bq)} - \text{液相濃度 (Bq)} \cdot \frac{40 \text{ cm}^2}{0.8 \text{ g}}}{\text{液相濃度 (Bq)}} \quad (3.2-1)$$

なお現地で採取した湧水は、吸着試験直前に土壌平衡水処理を行った。その電気伝導度 (EC) は、平衡水調製前後で約 12 ms/m であり、大きく変化しなかったが、pH は中性からやや酸性側にシフトした。さらに振とうを継続したところ、1 か月以上の振とうでも K_d 値は変化せず、吸着平衡には数日以内で到達することを確認した。

図 3.2-11 に南④および南②の土壌における K_d 値の結果を示す、まず、南④表層土壌 (0-1cm) を用いて、pH 依存性を検討したところ、Sr は pH の低下とともに低下傾向が見られたことから、土壌構成鉱物表面のプロトンの解離に伴って起こる表面錯体反応型吸着反応であることが示唆された。Cs-134 においても、Sr よりは依存性が緩やかであるが pH 依存性が見られた。一般に Cs^+ イオンの粘土鉱物への吸着反応はイオン交換型であることが知られており、それとは異なる結果となった。なお、用いた土壌試料には、事故で沈着した Cs-137 が多く含まれている。そこで、試料を土壌平衡水に浸漬し、Cs-137 の脱離平衡を調査した。図 3.2-12 に示すように、脱離反応における Cs-137 の K_d 値は、Cs-134 の吸着の K_d 値よりも 2 桁高く、また pH 依存性は見られなかった。事故から 5 年以上経過しても表層土壌に残る Cs のイオン

交換型の非常に強い吸着力を示唆した結果といえる。一方、水和した Am^{3+} イオンの吸着反応は pH 依存性が見られず（図 3.2-11）、一見イオン交換型の吸着反応である。但し、水相としての土壌平衡水には有機物や擬似コロイド等、様々な物質が存在しており、表面電荷の高い Am イオンとの相互作用の影響も否定できない。さらに、鉱物への吸着機構として水和イオンの外圏型配位であるか、一部水分子の脱水和を伴う内圏型配位であるかを、今回の結果のみから検討することは難しく、今後の課題である。

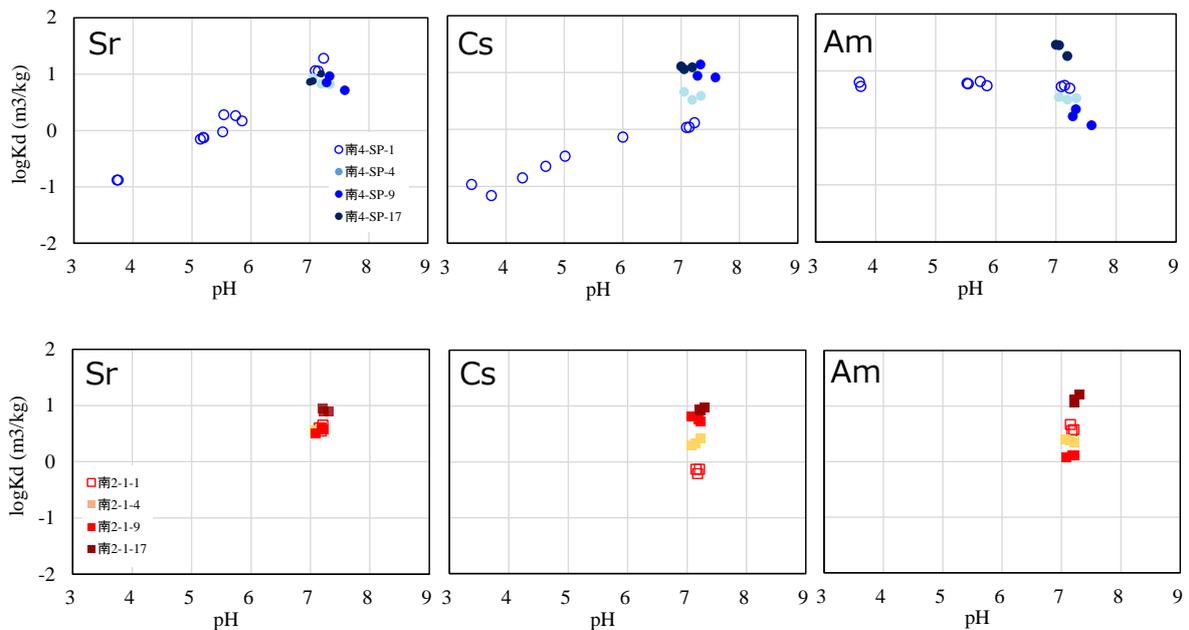


図 3.2-11 吸着分配係数 K_d の pH および土壌深度依存性
 (上段：南④、下段：南②、左：Sr-85、中：Cs-134、右：Am-241)

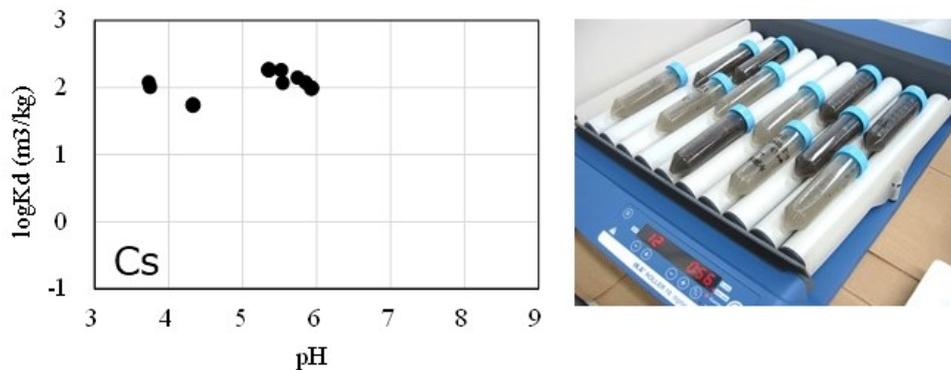


図 3.2-12 事故で沈着した Cs-137 の脱離実験による K_d の pH 依存性 (写真：試験の様子)

【平成 29 年度の成果】

平成 29 年度は K_d 値の土壌深度依存性について検討した。南側 2 地点の深さ 20cm の土壌から 4 深度 (1, 4, 9, 17cm) の試料を用いて得た K_d を図 3.2-11 に示す。実験手法は上述と同様であり、振とう期間は 1 週間、pH は中性で固定した。Sr-85 は 4 深度で K_d に大きな差異が見られなかった一方、Cs-134 は深いほど K_d 値が上昇傾向にある。Am-241 は深度 1cm から 9cm

では K_d は減少したが、逆に 17cm で最大値を示し、価数の異なる核種によって複雑な深度依存性を示した。

(3) 核種移行モデルの検討

【平成 29 年度の成果】

南側 2 地点で、平成 28 年 1 月・8 月および 29 年 6 月 (Sr のみ) に採取した土壌中の Sr-90 ならびに Cs-137 濃度を測定し、計 6 つの深度プロファイルを得た (図 3.2-13)。本研究では、一部の土壌深度において公定法により Sr-90 濃度を測定し、質量分析法で得た濃度と比較したところ、正負のバラツキは見られたものの、概ね一致するデータとなり、新たに導入した分析手法の妥当性が確認された。図 3.2-13 に示したように表土で kBq/kg オーダーの高い Sr-90 汚染が見られ、殆どの試料で深さと共に濃度は減少した。表土から数 cm までで濃度が高い傾向は Cs-137 のそれと同様であるが、Sr はより深部にわたり数百 Bq/kg の比較的高い濃度で存在していることが初めて明らかになった。

しかし、核種移行の時間依存性は有意に観測されなかった。同じ採取地点とはいえ、各試料を少なくとも数十 cm 異なる場所で採取していることから、土壌性状の不均質性が核種の深度分布に影響を及ぼしていると推察された。また、Am は一部の試料で公定法による分析を行ったが、Am-241 の濃度は Pu-241 からの崩壊で生成したものの影響も受けている可能性があり、Am 自体の沈着量および移行挙動を評価することは現状困難であった (図 3.2-7)。

Sr-90 および Cs-137 の深度分布を解釈するため、深部方向への簡単な移流拡散モデルを用いた検討を行った。検討にあたっては簡単のため、幾つかの移流拡散経路を仮定した。主経路は事故時に発電所から飛来した核種が表土に沈着した後、雨水等により深部へ移行する経路である。移行は拡散および上記実験で求めた K_d 値に従って進行する。その他、一部核種が森林表土の生態系において何らかの化学状態変化を受け、より低い K_d 、あるいは、土壌中一部のより速い移流によって、深部へ移行する経路である。

図 3.2-14 から図 3.2-16 に示すように、3 つのモデルを検討した。また、モデルで用いたパラメータを表 3.2-11 にまとめた。ここでは検討例として、平成 28 年 1 月に南④および南②で採取した土壌分析結果をもとに示す。図 3.2-14 のモデルにおいては、土壌表層に存在する高濃度 Sr からの一定濃度での供給を仮定した。深部への移流速度の異なる 2 種類の経路を考慮した単純なモデルである。図 3.2-15 のモデルでは、事故時に沈着した Sr がパルス入力となりゆっくり移行する経路と素早く深部へ移行する経路に加え、表層に強く吸着している Sr を固定濃度として与える 3 成分を考慮した。また、図 3.2-16 のモデルでは、幾つかの試料において観察された、土壌深部での Sr 濃度の増加についてモデルによる解釈を試みた。そのため、図 3.2-14 で考慮した 2 成分に加え、事故時に沈着した Sr の一部が高い濃度で、かつ、素早く移行する成分を考慮した。これらの簡単なモデルにより、実測した深度プロファイルは概ね解釈できたと考えられる。但し実際には、ICP-MS 分析により得た深部での局所的な濃度増加の原因として、表層における水平方向の移行や微生物等による擾乱なども否定できない。モデルの妥当性を評価する上で、土壌性状などについて今後の更なる詳細な検討が必要である。

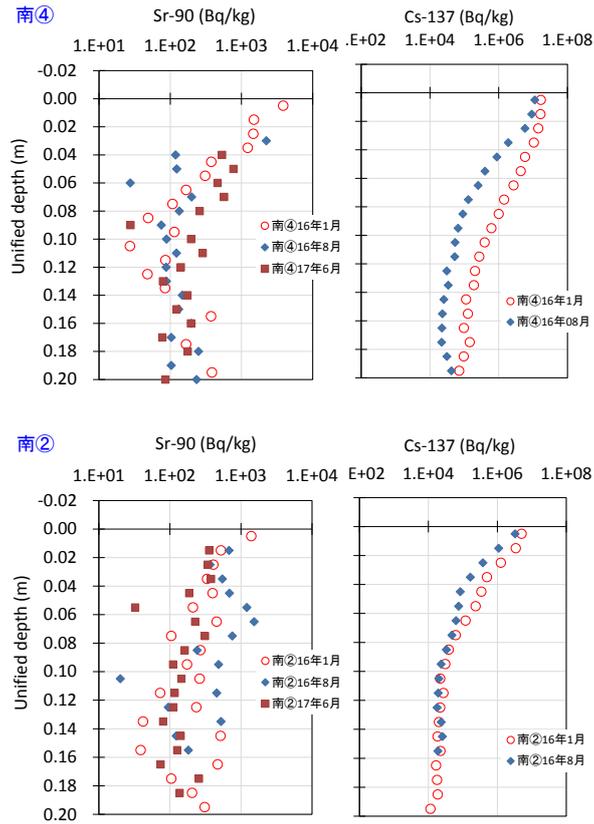


図 3.2-13 Sr-90 および Cs-137 の土壌深度プロファイル結果
(左：南④、右：南②)

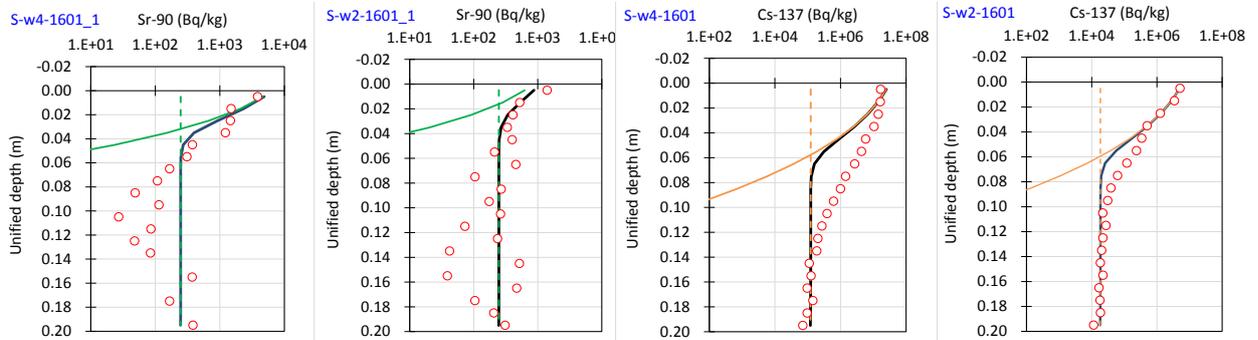


図 3.2-14 Sr-90 および Cs-137 土壌深度プロファイルのモデル解釈 (その1)
(2層目を定値境界とおいた場合)

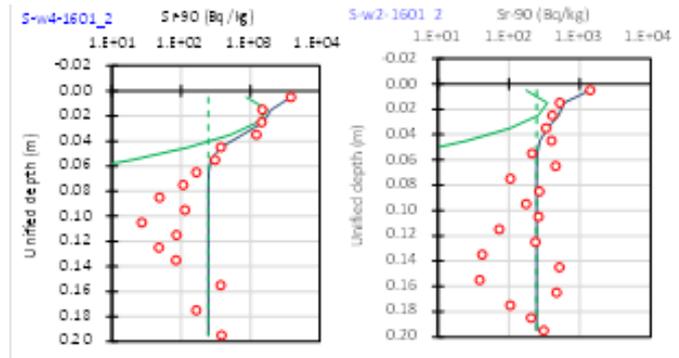


図 3.2-15 Sr-90 土壌深度プロファイルのモデル解釈（その 2）
 （1 層目濃度を一定とし、沈着時の成分をパルス入力した場合）

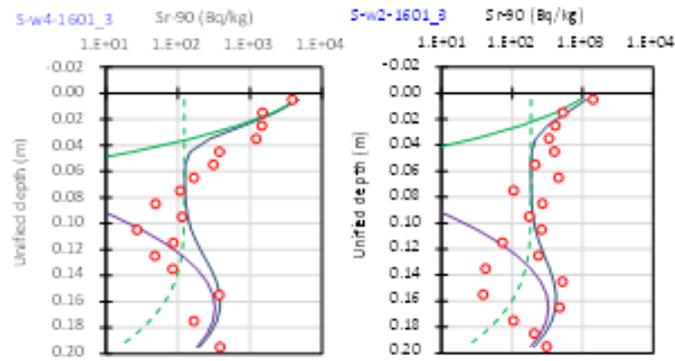


図 3.2-16 Sr-90 土壌深度プロファイルのモデル解釈（その 3）
 （深部のピークに相当する第 3 成分を加味した場合）

表 3.2-11 1次元移流拡散モデル解析で用いたパラメータ

・固定パラメータ

			Sr-90	Cs-137
ϵ	土壌空隙率	—	0.4	
ρ	土壌真密度	kg/m ³	2.7×10 ³	
T	年間降水時間	s/y	2.6×10 ⁶	
D_e	実効分散係数	m ² /s	3.0×10 ⁻⁸	5.0×10 ⁻⁸

パラメータ ϵ 、 D_e : Kurikami et al.(2017)、 ρ 、 T : 本研究。

・Sr-90に関するパラメータ

経路	その1_2成分モデル		その2_表層固定モデル		その3_深部再現モデル			
	南④	南②	南④	南②	南④	南②		
1	C_o	Bq/m ³	3.09×10 ³	4.17×10 ²	3.09×10 ⁶	1.54×10 ⁷	3.09×10 ³	6.17×10 ²
	V	m/s	5.00×10 ⁻⁸					
	K_d	m ³ /kg	2	2	2	2	2	2
2	C_o	Bq/m ³	4.11×10 ²	4.11×10 ²	4.11×10 ²	4.11×10 ²	1.03×10 ⁶	1.03×10 ⁶
	V	m/s	2.00×10 ⁻⁵	2.00×10 ⁻⁵	2.00×10 ⁻⁵	2.00×10 ⁻⁵	1.20×10 ⁻⁵	1.20×10 ⁻⁵
	K_d	m ³ /kg	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6
3	C_o	Bq/m ³					2.06×10 ²	3.09×10 ²
	V	m/s					1.20×10 ⁻⁵	1.20×10 ⁻⁵
	K_d	m ³ /kg					0.6	0.6
	b	s					3000	3000
	C_s	Bq/kg			1400	3850		

・Cs-137に関するパラメータ

経路	その1_2成分モデル			
	南④	南②		
1	C_o	Bq/m ³	1.54×10 ⁷	3.09×10 ⁶
	V	m/s	5.00×10 ⁻⁸	5.00×10 ⁻⁸
	K_d	m ³ /kg	2	2
2	C_o	Bq/m ³	2.06×10 ⁵	3.09×10 ⁴
	V	m/s	2.00×10 ⁻⁵	2.00×10 ⁻⁵
	K_d	m ³ /kg	0.6	0.6

パラメータ C_o : 表層水中濃度、 V : 浸透速度、 K_d : 吸着分配係数、 b : 入力時間、 C_s : 表層土壌濃度である。経路1の V は、Kurikami et al.(2017)のダルシー流速を元に計算した。

(4) 輸送比に及ぼす深度プロファイルの影響

【平成 29 年度の成果】

3.3.1 で述べるように、輸送比の評価はオンサイトにおける核種インベントリ評価において重要である。従来の輸送比評価には表土(0-1cm)の核種濃度比が用いられてきた。図 3.2-17 左図に既往研究で得られた表層 0-1cm のデータに基づく輸送比を示す。南および西側のプルームでは 10^{-3} から 10^{-4} の範囲にあり、北西側ではそれより一桁高い範囲にあることが報告されており、放出起源の相違によるものと解釈されている。平成 29 年度には、本研究で得た深度分布情報をもとに、Sr 輸送比の再評価を試みた。図 3.2-17 右図は 0-1cm、0-2cm…、0-20cm における土壤中の平均 Cs 濃度(Bq/kg)および平均 Sr 濃度(Bq/kg)の値をもとに算出した輸送比のプロットである。図に示す 3 例の通り、深部への核種移行を考慮しても、輸送比に大きな変動が無く、言い換えれば、Sr-90 の移行挙動は Cs-137 のそれと大きな相違が無いと結論付けられる。事故後 5 年以上経過しているが、表層土壌の Cs-137 濃度と本輸送比から、Sr-90 の含有量をある程度推定できると考えられる。しかし、価数が異なる Am などのアクチノイドの輸送比に及ぼす深度方向の移行の影響は不明であり、今後更なる検討が必要である。

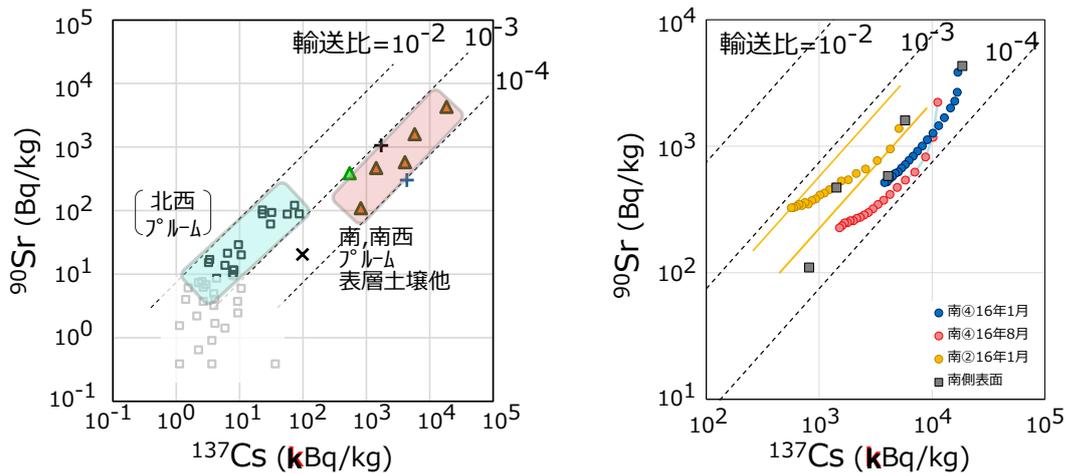


図 3.2-17 Sr-90 の Cs-137 に対する輸送比
(左：広域の表土分析濃度、右：0-n cm 深度平均濃度)

3.2.3 表土深部・樹木内部における放射性核種分布特性評価と物質循環挙動に基づく移行挙動の解明（再委託先：福島大学）

(1) 土壌および樹木の採取および特性試験

【平成 28 年度までの成果】

a) 土壌中の移行特性

1F 南側に位置する林内で試料採集を行なった（図 3.2-18）。Cs-137 インベントリは 13,000-27,900 kBq m⁻² の範囲にあった（表 3.2-12）。4 地点の土壌中 Cs-137 の鉛直分布から、南④地点を除き表層の腐植層と 0-5 cm に未だに約 80 %が存在した。さらに、5-10 cm の層を加えると 95 %以上（南④では 90 %）の Cs-137 が表層から 10 cm までに留まり、放射性セシウムの方下浸透性の遅いことがあらためて示された。

逐次抽出によって、放射性セシウムを交換態画分、有機結合態画分および強固結合態画分に分画して測定した。その結果、表層腐植層に含まれる Cs-137 の 30-54 %が有機結合態として高い割合で存在した一方、39-64 %が既に粘土鉱物等の粒子と強く結合する画分に移行していた。さらに、4 地点の表層腐植層とも交換態画分の割合は 10 %以下で低い値であり、腐植から溶脱した交換態画分の Cs-137 が速やかに強固結合態画分または下層へ移行していることが分かった。表層土壌 0-5 cm 層では、4 地点とも交換態+有機結合態画分の割合が層別間で最も低い 8-15 %にあり、速やかに強固結合態画分に吸着していることが分かった。

各層の交換態 Cs-137 の割合は、4 地点とも表層から下層に向かって増加する同様の傾向が見られた。表層土壌から下層に浸透している放射性セシウムは、10 cm 以深で沈着量の 5 %程度であるが、ごく表層（0-5 cm）の土壌とそれ以深では、存在形態別画分割合が異なり、ごく表層に比べそれ以深の土壌ではより移動しやすい交換態画分の割合が高い状態にあり、両層者間での Cs-137 の挙動の違いが推測された。存在形態画分割合に違いが示された要因の一つとして、ごく表層土壌では下層に比べ湿潤乾燥が繰り返されることにより、交換態画分から強固結合態画分への変化が加速されると考えられる。

表層腐植層およびごく表層土壌（0-5 cm）中交換態画分中 Cs-133 濃度（ $\mu\text{g kg}^{-1}$ ）に対する Cs-137 濃度（ Bq kg^{-1} ）で表される同位体比（Cs-137/Cs-133）は、それぞれ 2,630-5,570 および 240-7,091 Bq g^{-1} の値にあった。一方、植物体の同位体比は、南④地点を除き 1,200-2,380 Bq g^{-1} と表層腐植層およびごく表層土壌中同位体比に比べ低い値にあった。このことから、植物体 Cs-137 は、主に表層腐植やごく表層土壌中 Cs-137 から移行していると考えられるが、一部下層土壌中から移行した Cs-137 も含まれていると推測された。しかし、南④の植物中同位体比は、表層腐植層およびごく表層土壌よりも高い 14,700 Bq g^{-1} であり、直接沈着等他の要因の影響も考えられた。

b) 樹木中の移行挙動

1F 南側の森林において、樹木近傍に分布するリター層および土壌コア試料を採集し、放射性セシウムの分析を行った。

Cs-137 のインベントリは一平方メートルあたり概ね 20-50 MBq であり、コシアブラの近傍では低く、スギ林で最も高い値であった。土壌中の Cs-137 鉛直分布を見ると、スギでは 0-2

cm 層で最大の濃度であったが、混合林、コシアブラ、ヒノキでは有機物層で最高濃度が見られ、最高で 1-5 MBq kg⁻¹であった。土壌中の鉛直的な Cs-137 の存在比を異なる樹種で比較するとヒノキ以外は 0-2 cm に分布の極大があり、ヒノキは 2-5 cm に分布の極大があった。

針葉樹（2 地点でのスギ、モミ、ヒノキ）について、樹木の部位別の Cs-137 濃度を比較すると、心材および辺材の濃度はモミを除いて概ね 10,000 Bq kg⁻¹ であり、モミは 2,000-3,000 Bq kg⁻¹ であった。いずれの樹種でも外皮、枝、葉が高く、100,000 Bq kg⁻¹ を超えるものもあった。

広葉樹（カシ、サクラ、ウワミズザクラ）でも針葉樹とほぼ同様の傾向が見られた。カエデおよびコシアブラでは高濃度の外皮や枝と低濃度の心材部分との濃度の差は小さかった。コシアブラでは木材部分が 100,000 Bq kg⁻¹ を超えており、枝および樹皮も他の樹種と比べて比較的高い濃度であった。

表 3.2-12 1F 南側敷地境界における Cs-137 インベントリ (2016 年 8 月 23 日)

番号	北緯	東経	¹³⁷ Cs インベントリ (kBq m ⁻²)
南①東	37° 24' 43"08	141° 01' 48"78	13,000
南①西	37° 24' 44"94	141° 01' 46"86	27,900
南②	37° 24' 50"94	141° 01' 43"86	13,600
南④	37° 24' 51"78	141° 01' 43"14	14,000



図 3.2-18 1F 敷地境界試料採取地点

【平成 29 年度の成果】

a) 方法

2017 年 3 月 2 日と 9 月 28 日に 1F 隣接サイト南側に位置する地点において、ハンドサンプラー（HS-30、藤原）を用い土壌コア試料を、それぞれ 5 地点および 3 地点で採取した。また、9 月 29 日には土壌を採取した 3 地点からミミズもあわせて採取した（図 3.2-19）。

ミミズは、採取した地点ごとに純水を含ませたろ紙上で一晩放置し、消化管内容物を排泄させた。ミミズは凍結乾燥した後、消化管に残っていた内容物を取り出した。

コア試料は 1-5 cm の間隔で深度別に切断した。また、土壌中放射性セシウムの逐次抽出

による交換態、有機結合態および強固結合態への分画は平成 28 年度と同様に以下の方法で行なった。

① 交換態：土壌試料に 1 M 酢酸アンモニウム溶液を固液比 1:10 として加え、1 時間攪拌し、抽出液を分離した。さらに、同量の純水を加えリンスし、抽出液と合わせ Ge 半導体検出器で測定した。

② 有機結合態：交換態画分を分離した後の土壌試料に、硝酸酸性下で過酸化水素を用いて有機物を分解し、硝酸酸性の酢酸アンモニウムを加え抽出した。さらに、同量の純水を加えリンスし、抽出液と合わせ Ge 半導体検出器で測定した。

③ 強固結合態：土壌中 Cs-137 濃度から交換態画分および有機結合態画分中 Cs-137 濃度を差し引きし、残渣中 Cs-137 濃度を求めた。

樹木試料は、スギ林とヒノキ林対象とし（図 3.2-19）、それぞれ 3 本および 2 本から試料を採集した。地表から 150-160 cm の高さで、樹皮（OB）、内樹皮（IB）の試料採集を行なった後、10 mm の成長錐を用いて中心まで材を採集した。材は色調等で心材（HW）と辺材（SW）とに分け、辺材は内樹皮から 3 年分（SW1-3）とそれより内側（SW4+）とに分けた。樹木の葉および枝は高枝切り鋏や高枝用鋸を用いて大きな枝を採集し、若い葉（YL）、古い葉（OL）、細い枝（SB）と太い枝（BB）とに分けて採集した。これらを粉碎後、測定を行なった。樹木試料とあわせて林内の土壌試料を採集した。土壌試料採集にはハンドサンプラ（HS-30、藤原製作所）と 2018 年 3 月には改良型ハンドサンプラとを用いた。

土壌と抽出試料および植物試料は、プラスチック製容器（U-8）に入れ、一様な高さにして Ge 半導体検出器で測定した。この時、不感時間が測定結果に影響が及ばないように測定試料重量を調整した。ミミズおよび排泄物試料は、試料量が少ないため、直径 1 cm のプラスチック製試験管に入れ、井戸型 Ge 半導体検出器で測定した。



図 3.2-19 ヒノキ林（左）とスギ林（右）

b) 結果と考察

ア) 土壌中の物質循環と存在形態

採取地点の Cs-137 インベントリは 25,800-32,800 kBq m⁻² であり、表層のリター層と 0-5 cm に未だに 80 %以上が存在した。リター層と 0-10 cm までに 95 %以上が存在し、有機物が豊

富に含まれる土壌でも、これまでに得られている放射性セシウムの遅い下方浸透があらためて確認された（図 3.2-20）。

腐植層の Cs-137 は、交換態として存在する割合は 1.0-4.1 %であった。一方で、有機結合態として 25-38 %が存在し、圃場土壌等に比べて高い割合にあった。腐植層に含まれる Cs-137 の 60 %以上が粘土鉱物等との強固結合画分に存在した（図 3.2-21、図 3.2-22）。

表層 0-5 cm では、約 90 %以上が強固結合態として存在し、交換態は約 6 %であった。しかしながら、表層 0-5 cm に比べ 5 cm 以深で交換態 Cs-137 の割合が増加した（南③の地点を除く）。2017 年 3 月に採取した 0-5 cm 層の交換態 Cs-137 の割合は 4 %であったが、5-10 cm 層では 19 %の約 5 倍に増加した（南③を除く、図 3.2-21）。同様に、2017 年 9 月に採取した土壌でも、0-5 cm 層の交換態 Cs-137 の割合に比べ 5-10 cm 層で数倍に増加した（図 3.2-22）。表層から下方浸透した Cs-137 の割合は少ないが、5 cm 以深層では、表層 0-5 cm の存在形態より移動しやすい画分が高い割合で存在し、表層 0-5 cm 層と 5 cm 以深で存在形態割合が異なることが明らかになった。存在形態画分割合に違いが示された要因の一つとして、ごく表層土壌では下層に比べ湿潤乾燥が繰り返されることで、交換態画分から強固結合画分への変化が加速されると考えられる。

ミミズ中 Cs-137 濃度は、12-130 Bq g⁻¹ FW（新鮮重量：水を含んだ状態での重量）の範囲にあった。消化管内容物と排泄物中 Cs-137 濃度は、それぞれ 950-2,000 および 2,000-3,300 Bq g⁻¹ DW（乾燥重量：乾燥させて水を除いた状態での重量）と腐植中 Cs-137 濃度（650-2,300 Bq g⁻¹ DW）と同様であった（表 3.2-13）。ミミズ中 Cs-137 濃度は、腐植中濃度の約百分の一の濃度であった。土壌からミミズへの移行係数を示す Tag は、0.0014 ± 0.0017 m² kg⁻¹（n=9）であり、川俣町山木屋地区で得られたデータ（0.0022 m² kg⁻¹）と整合的な値を示し、Cs-137 沈着量による差は見られなかった。

1) 森林生態系での物質循環

森林土壌中の濃度は最高で 2017 年 9 月が 1.7 MBq kg⁻¹、2018 年 3 月で 1.1 MBq kg⁻¹ であった（図 3.2-23）。この違いは、2018 年 3 月採集時に現地で深度ごとに切断できる改良型ハンドサンプラを用いたが（図 3.2-24）、作業の迅速性から 0-5 cm を一括して扱ったことによる。

スギ林の土壌中の Cs-137 の分布は 2018 年 3 月ではリター層を含めた 8 cm までにインベントリの 86 %が存在していたが、2017 年 9 月ではインベントリの 86 %が分布するのは 6 cm 以浅であった（図 3.2-25）。2018 年 3 月により深い方向に移動したようにも見える。これはリター層内の存在量が関係している可能性がある。2017 年 9 月にはインベントリに対して、リター層には 1.6 %が存在していた。しかし、3 月 23 日にはこの割合は 0.3 %という低い値になっていた。これはリターそのものが移動する等の季節的な変化の可能性も考えられる。一方、いずれの観測日にも 10 cm を超える深度に数 % - 10 %程度存在していた。10 cm を超える深度でも Cs-134 を伴っており、福島第一原子力発電所事故で放出された放射性セシウムである。

樹木の放射性セシウム分布を濃度で見ると、2017 年 9 月はスギ、ヒノキとも細い枝（SB）および内樹皮（IB）の濃度が 2017 年 3 月（平成 28 年度）に比べると高くなっていた（図 3.2-26）。また、両樹種とも外樹皮（OB）の濃度は低下していた。沈着時には外樹皮が高いと考えられる

一方、植物体内ではCsがKと同様の挙動をすることから、若い成長組織にCs-137も高い濃度が現れることが知られている。これらのことから、観察された3月と9月の分布の違いは、季節的な違いもあるかもしれないが、沈着直後の樹木中の分布状態からやや長期的な循環状態に入る過程にあることと整合的である。

バイオマスで大きな割合を占める辺材および心材では、スギの心材（HW）が19,000-29,000 Bq kg⁻¹ DW であり、8,700-24,000 Bq kg⁻¹ の辺材（SW1-3、SW4+）より高い傾向が見られた(図 3.2-26)。ヒノキでは心材(HW)が 17,000-21,000 Bq kg⁻¹ DW であり、辺材(SW1-3、SW4+)で29,000 Bq kg⁻¹ DWであった(図 3.2-26)。心材と辺材の濃度とを比較すると、スギでは心材の方が高い傾向がある一方、ヒノキでは辺材の濃度の方が低い。この傾向は他所でも見られるデータと整合しており、樹種による生理的機能の違いに由来するものと考えられる。

表 3.2-13 ミミズ、消化管内容物、排泄物および腐植中 Cs-137 濃度

採取地点	ミミズ (Bq g ⁻¹ FW)	消化管内容物 (Bq g ⁻¹ DW)	排泄物 (Bq g ⁻¹ DW)	腐植 (Bq g ⁻¹ DW)
南①東	12.1	952	2181	1671
	11.9			
	13.4			
南①西	12.1	1033	2034	654
	20.2			
	131.5			
南②	22.5	2038	3270	2252
	49.7			
	39.0			

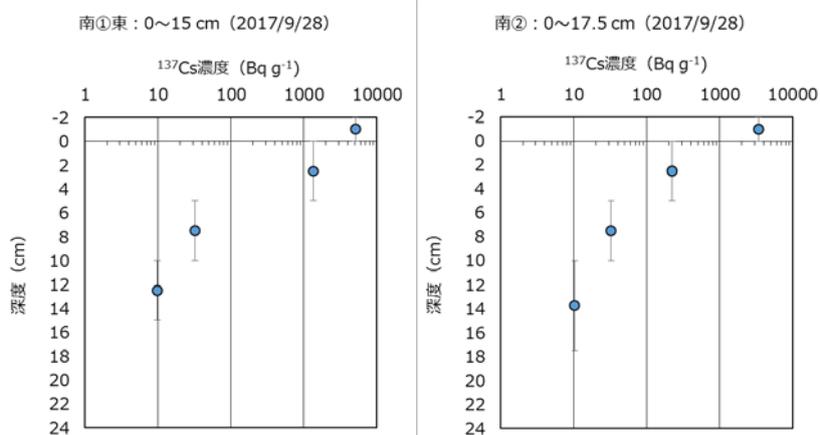


図 3.2-20 土壤中 Cs-137 濃度の鉛直分布

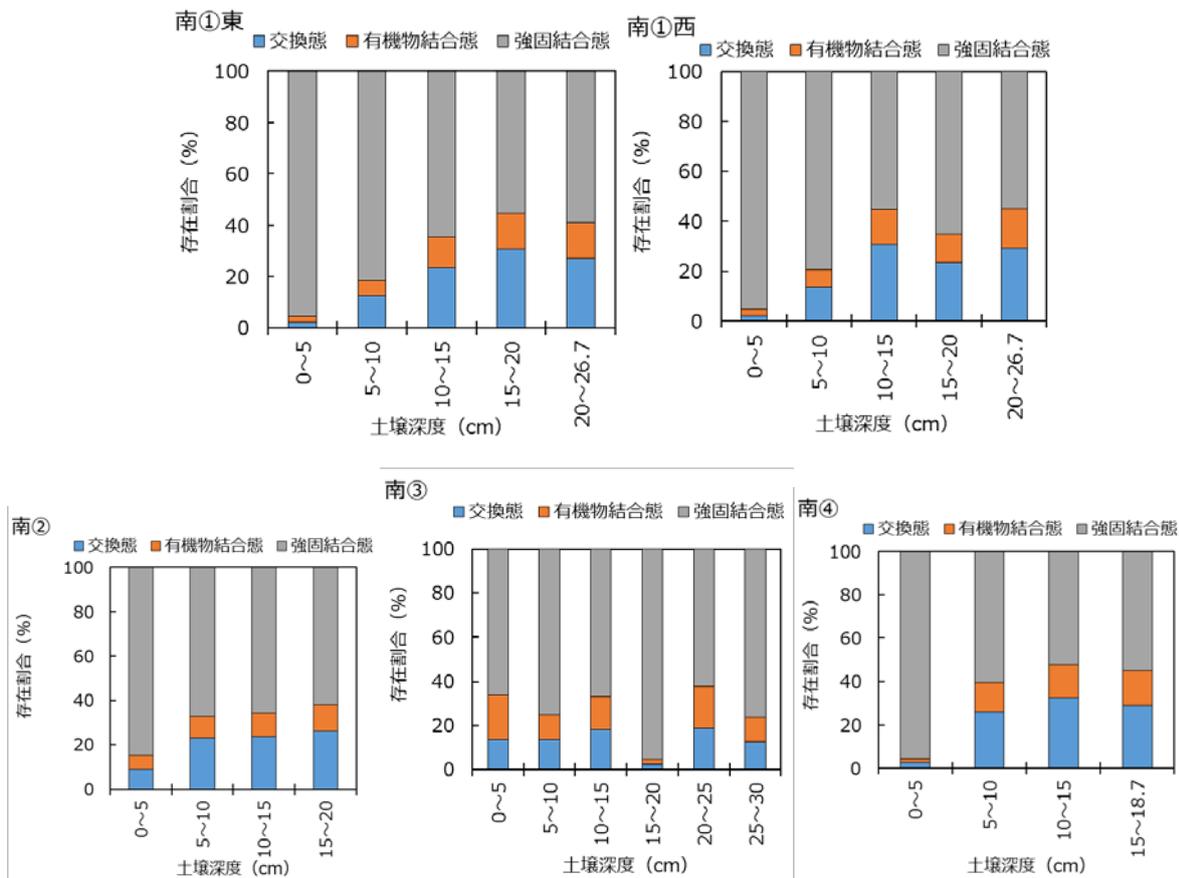


図 3.2-21 深度別存在形態別 Cs-137 の存在割合 (2017年3月採取試料)

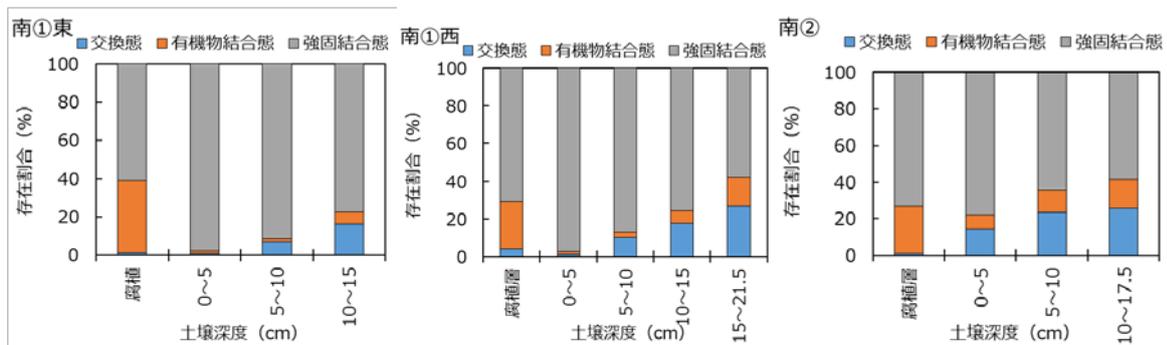


図 3.2-22 深度別存在形態別 Cs-137 の存在割合 (2017年9月採取試料)

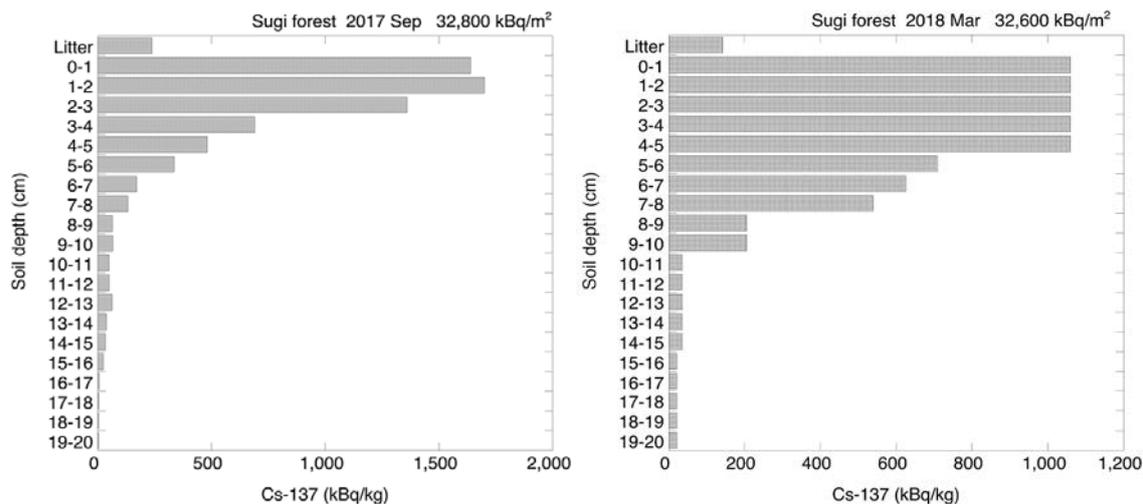


図 3.2-23 スギ林土壤中の Cs-137 濃度の分布
左:2017年9月、右:2018年3月



図 3.2-24 改良型ハンドサンプラによる森林土壌の採集

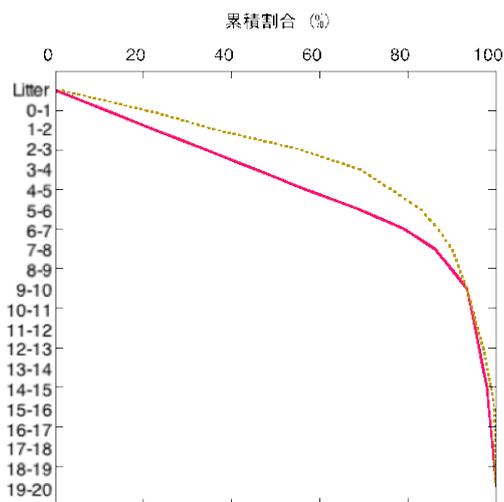


図 3.2-25 スギ林土壤中の Cs-137 深度方向累積分布
黄色点線:2017年9月、赤色実線:2018年3月

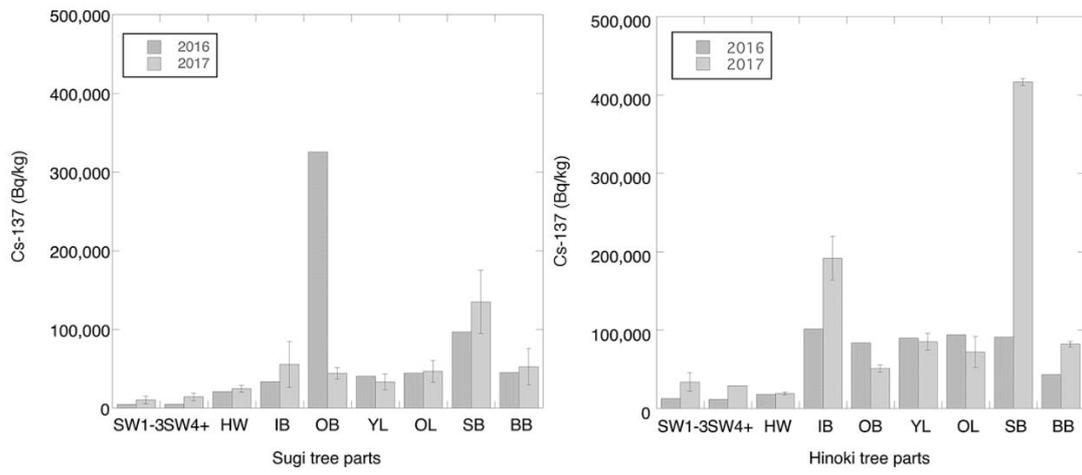


図 3.2-26 スギの部位別 Cs-137 濃度（左）と ヒノキの部位別 Cs-137 濃度（右）

3.3 サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価

昨年度、福島第一原子力発電所内外の汚染を表現する概念的なモデルを検討するとともに、土壤のアクチノイド核種による汚染に関して分析データを基に比較した。これらのそれぞれの検討を継続して進めた。

3.3.1 得られた分析データに基づく知見

(1) 2015年のサイト内土壤

【平成28年度までの成果】

2015年3月～5月にサイト内で採取された表土の放射能濃度が元素組成やTOC濃度（全有機炭素）とともに公開された[1]。図3.3-1に示す6箇所から深さ5cmまでの土壤が採取されており、地点P-1やI-2が指向性ライン上にある。

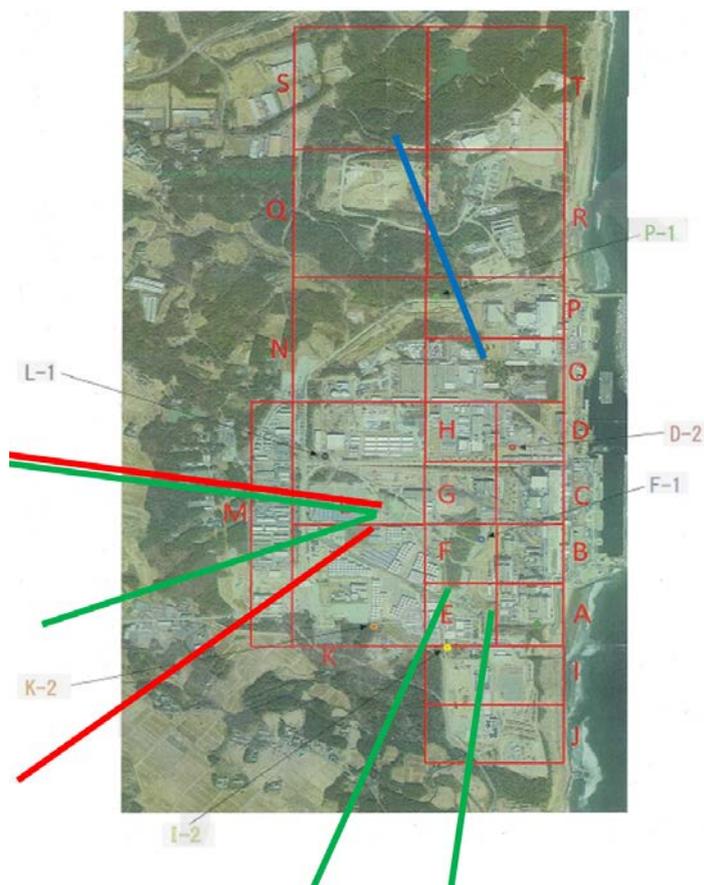


図 3.3-1 表土の採取地点と線量率分布の指向性ライン

図 3.3-2 に全ての土壤試料で定量された放射性核種の濃度を示す。Cs-137 と Sr-90 は採取地点により放射能濃度に差があったが、U-235 と U-238 は採取地点による放射能濃度の差は小さい。U-235/238 比は表 3.3-1 に示す通り、U が天然に由来するものであり、核燃料による影響は小さいことが分かる。Cs-137 は原子炉周辺の D-2 および F-1 と指向性ライン上の P-1 および I-2 で

高い値となった。放射性物質による汚染は Cs-137 が主であること、原子炉周辺と指向性ライン上で高い値であることが示された。

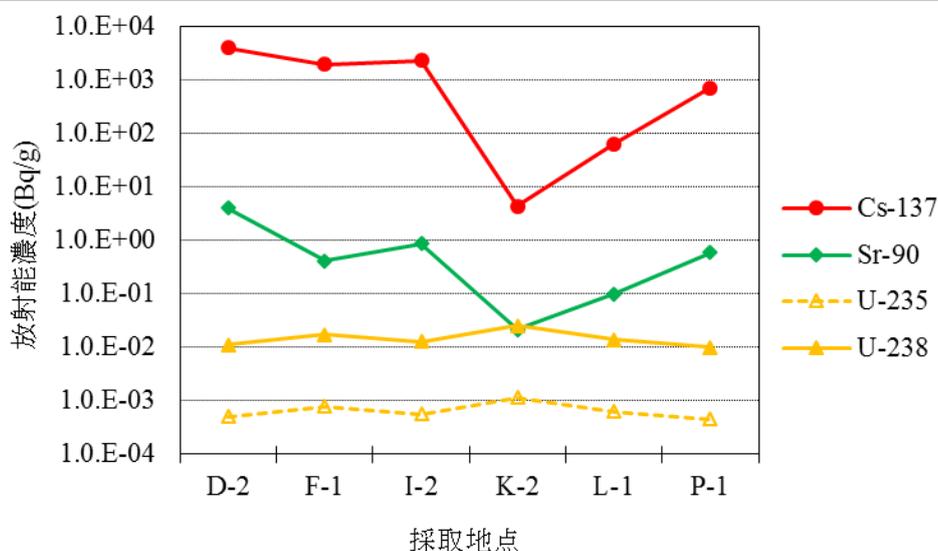


図 3.3-2 サイト内で採取された土壌の放射能濃度

表 3.3-1 ソースタームと土壌の U-235/238 放射能比

分類	対象	U-235/238 (放射能比)
ソースターム	天然ウラン	0.047
	1号機燃料	0.109
	2号機燃料	0.123
	3号機燃料	0.122
	1-3号機燃料平均	0.119
土壌	D-2	0.046
	F-1	0.045
	I-2	0.045
	K-2	0.045
	L-1	0.045
	P-1	0.045

(2) サイト内外の比較

【平成 28 年度までの成果】

東京電力は図 3.3-3 に示す定点において継続的に土壌を採取し、放射能濃度を測定してきた。図 3.3-4 に定点における 2011 年から 2012 年までの Cs-137 濃度の経時変化を示す。定点 1、3 に比べて、定点 2 の Cs-137 濃度は低く、濃度の幅が広がった。

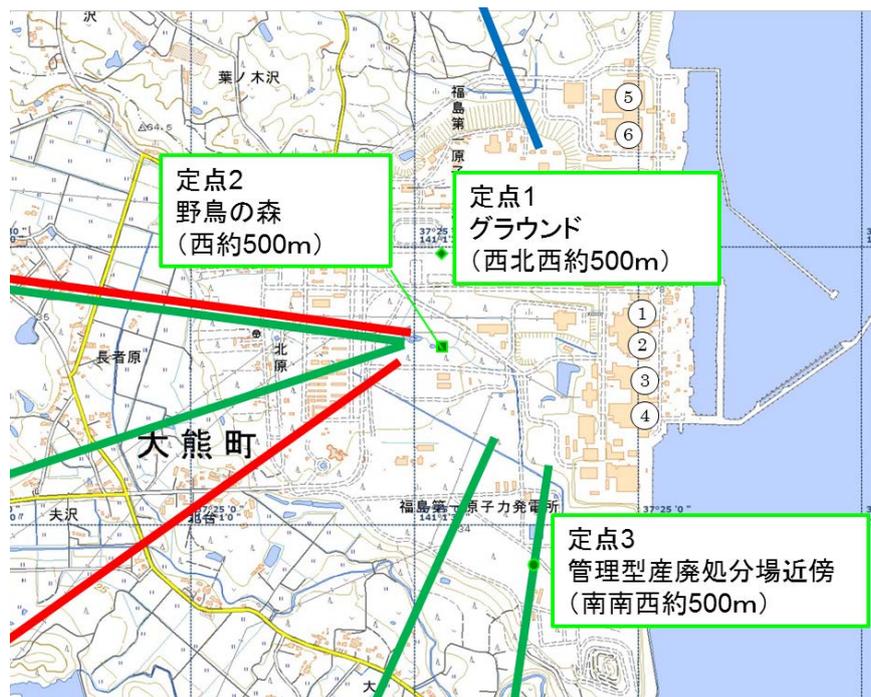


図 3.3-3 東京電力が定期的に土壌を採取・分析してきた3定点と指向性ライン

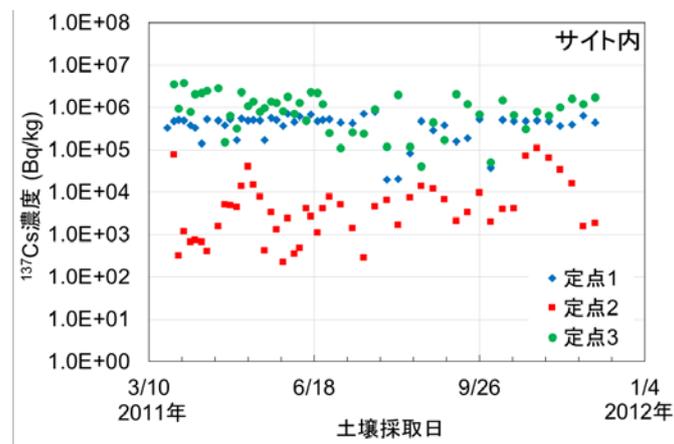


図 3.3-4 サイト内土壌のCs-137濃度の経時変化

サイト内の汚染状況の考察には式(3.3-1)で算出した輸送比を用いた。

$$T_X = \frac{N_{X,\text{sample}}/N_{X,\text{fuel}}}{N_{\text{std},\text{sample}}/N_{\text{std},\text{fuel}}} = \frac{c_{X,\text{sample}}/A_{X,\text{fuel}}}{c_{\text{std},\text{sample}}/A_{\text{std},\text{fuel}}} \quad (3.3-1)$$

ここで、 N は原子数、 A は放射能(Bq)、 c は放射能濃度(Bq/g, Bq/cm³)、添字の X は対象とする核種、stdは標準の核種、sampleは試料(汚染物)、fuelはソースタームの一つである損傷した核燃料をそれぞれ示す。基準とする核種は、分析の容易さと分布が広範囲にわたることか

ら、Cs-137 を選択した。図 3.3-5 にサイト内土壌の輸送比の経時変化を示す。Sr-90、Pu-238 は定点 1 が定点 3 に比べて高い傾向があった。定点 2 は輸送比のばらつきが大きかった。ばらつきは、濃度が低いことによる誤差と採取区域における汚染の不均一さによる影響があるものと考えられる。図 3.3-6 にはサイト内と周辺で得られた土壌の輸送比を比較した。サイトの周辺の西側①等は昨年度の報告値である。定点 1 と西側①、定点 3 と南側②の Sr-90、Pu の輸送比は同程度の値であった。定点 1 と西側①、定点 3 と南側②は原子炉から同じような方角にあり、サイト内と周辺の表土の汚染は指向性ライン上で連続性が見られることが明らかとなった。

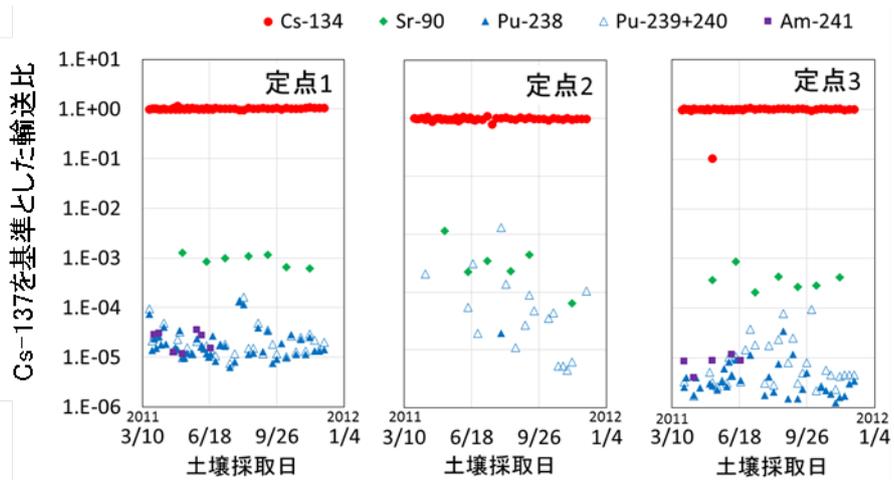


図 3.3-5 サイト内土壌の輸送比の経時変化

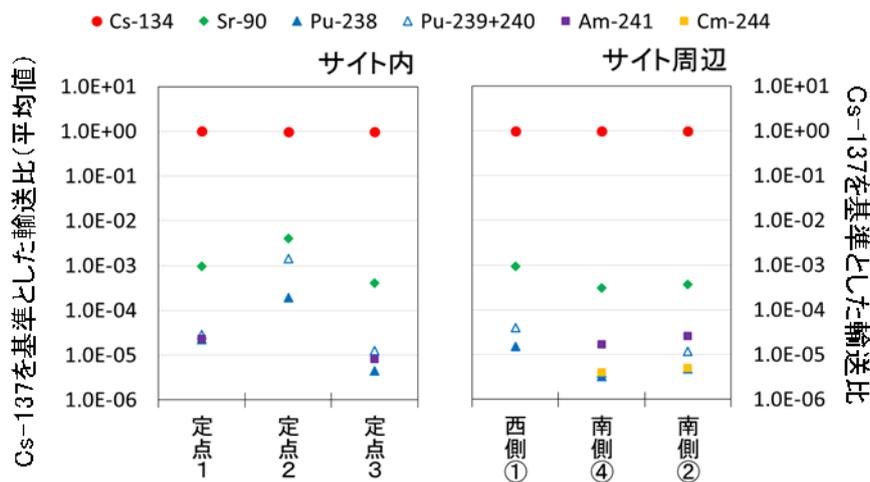


図 3.3-6 サイト内と周辺で得られた土壌の輸送比の比較

3.3.2 核種の汚染ふるまいに係る情報の調査

【平成 28 年度までの成果】

福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策において、廃棄物の分析が行われ、データが公開されている。原子炉建屋のがれき類についてのデータは主たるソースタームである損傷燃料の寄与を議論する上で重要である。1号機天井の分析データを引用して図 3.3-7 に示すように[2]、天井の内側（塗膜）、中間および外側（コンクリート）のデータは、後者の濃度が低いものの、Cs-137 と Sr-90 あるいは Pu-238 の放射能濃度の比は他のデータ（灰色の印）と同様である。これは、原子炉建屋の内部で核種の組成がおおよそ一定であることを示唆する。ただし、Pu-238 のプロットには、2号機で特異的に高いデータがあり、格納容器境界の近傍で不揮発性化学種の濃度が相対的に高い場合がある。

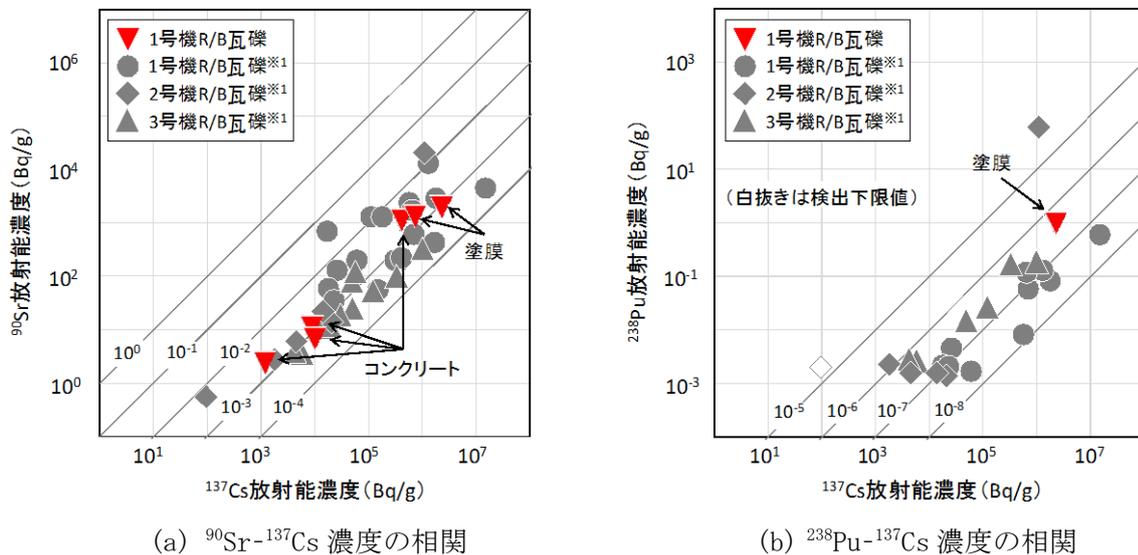


図 3.3-7 原子炉建屋で採取されたがれき類の放射能濃度

3.3.3 検討のアプローチ

(1) 汚染モデルを構成する主要な過程

【平成 28 年度までの成果】

放射性核種の汚染を検討する対象の物質として土壌と植物を想定して汚染のモデルを検討する。原子炉建屋周辺の土壌と植物の汚染を表現するモデルは、次の主要な過程からなるものと考えた（図 3.3-8）。

- ・ ユニットごとに独立したソースタームの形成と環境への放出
- ・ 放射性核種の空気中の移行
- ・ 放射性核種と土壌、植物との相互作用

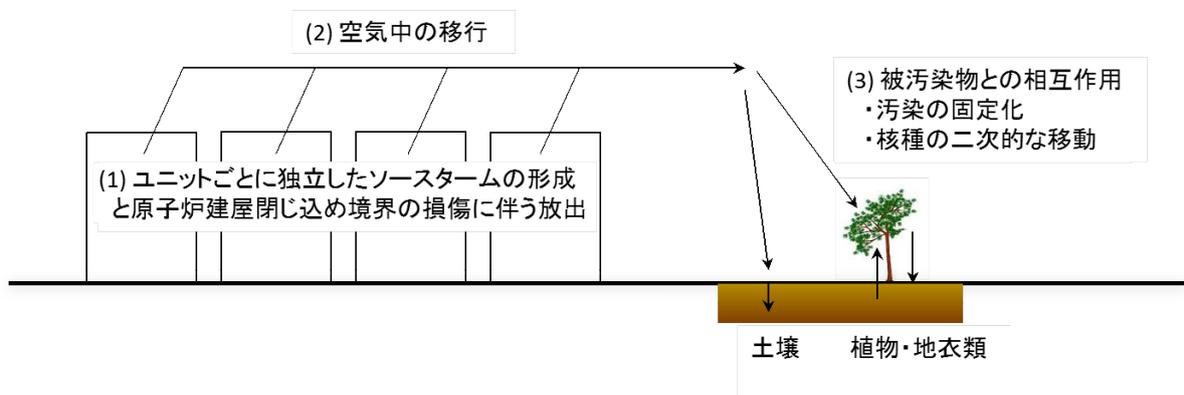


図 3.3-8 原子炉建屋周辺の土壌と植物の汚染を表現するモデル

3.3.4 汚染モデルの検討

汚染モデルを構成する 3 つの要素についてそれぞれ考察した。

(1) プルームの形成と放射性核種の降下

【平成 29 年度の成果】

放射性核種の空気中移行モデルについては、無人ヘリモニタリングで得られた Cs-137 沈着量分布[3]を、一般的な以下のガウス型の大気拡散モデル（プルーム式）でフィッティングして、作成した。

$$C = \frac{rQ}{\pi\sigma_y\sigma_zU} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \exp\left(-\frac{H_e^2}{2\sigma_z^2}\right) \quad (3.3-2)$$

ここで、

C: 計算点の Cs-137 沈着量 (Bq/m²)

r: 沈着割合 (m)

x: 風下距離 (m)

y: 風下軸と直角方向の距離 (m)

Q: 汚染源における発生強度 (Bq/s)

U: 汚染源における風速 (m/s)

H_e: 有効汚染源高 (m)

σ_y: 水平方向拡散幅 (m)

σ_z: 鉛直方向拡散幅 (m)

である。拡散幅については、安定度に応じて Pasquille-Gifford 線図によって与えた。なお、汚染源から 3 km 程度の距離におけるフィッティングであり、あまり大きな起伏がないことから、標高分布については考慮せず、全ての点で z=0 とした。Q、U および r については分離せず一つの定数とし、フィッティングパラメータとした。

無人ヘリのモニタリング結果は、2013 年 6~7 月の測定結果を用い、明瞭に確認できる 6 本のプルームを対象とした (図 3.3-9)。フィッティングで得られたパラメータを表 3.3-2 に、得られた Cs-137 の沈着量分布図を図 3.3-10 に示す。プルームのうち、NNW については、汚染源から最初のデータポイントまでの距離が遠く、濃度ピークが存在せず一様減少するトレンドであること、広い舗装面を有する工業団地や病院 (図 3.3-9 中黄丸) があり、濃度分布に大きなゆがみがあることから、サイト内にピークがあり、サイト外では一様に減少するケース 1 と、サイト外の濃度地点をピーク位置とするケース 2 の双方で、比較的よくフィッティングできた。SW プルームについても、濃度ピークが存在せず一様減少するトレンドであること、2011 年に除染モデル実証事業で除染されたエリア (図 3.3-9 中赤丸) があり、濃度分布に大きなゆがみがあることから、同様にサイト外の濃度地点をピーク位置とするケース 2 の双方で、比較的よくフィッティングできた。

3.3.1(1) で示したサイト内土壤中の Cs-137 濃度を見てみると、比較的原子炉に近い D-2、F-1、I-2 で Cs-137 濃度が高く、ケース 1 の結果の特徴とよく一致している。また、サイト西側の L-1 や南西側の K-2 で Cs-137 濃度が低い傾向があるが、これらの地点は W-N プルームの

比較的濃度が低いエリアや、SW プルームと S-W プルームの間にあるエリアに該当し、フィッティング結果とも整合的と言える。また、この Cs-137 沈着量マップと各放射性核種の輸送比を用いて、各放射性核種の沈着量分布状況を推測することができた。一例として、図 3.3-11 に Sr-90 および Pu-238 の沈着量分布を示す。

このように、不確実性は存在するものの、サイト外の放射性セシウム沈着量分布に基づき、初期のサイト内の放射性核種沈着量分布を推測することが可能になった。

表 3.3-2 各プルームのフィッティングで得られたパラメータと安定度

	NNW	W-N	W-S	SW	S-W	S-E
汚染源	U1	U2	U2	U2	U2	U3
ケース 1						
rQ/U	1.2×10^{11}	4.0×10^{12}	2.3×10^{12}	5.0×10^{11}	7.0×10^{11}	3.5×10^{12}
He	20	270	210	20	80	240
安定度	D	C	C	B	C	B
ケース 2						
rQ/U	5.0×11	4.0×10^{12}	2.3×10^{12}	5.0×10^{11}	7.0×10^{11}	3.5×10^{12}
He	120	270	210	80	80	240
安定度	C-D	C	C	C	C	B

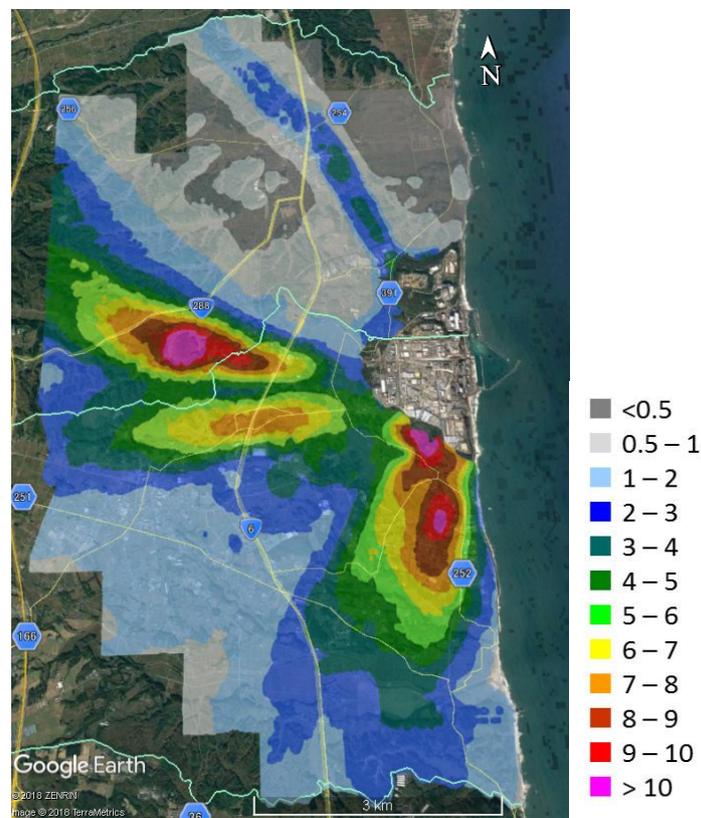


図 3.3-9 フィッティングに用いた無人ヘリモニタリング結果
2013年7月31日現在に減衰補正。凡例の単位： 10^6 Bq/m²。

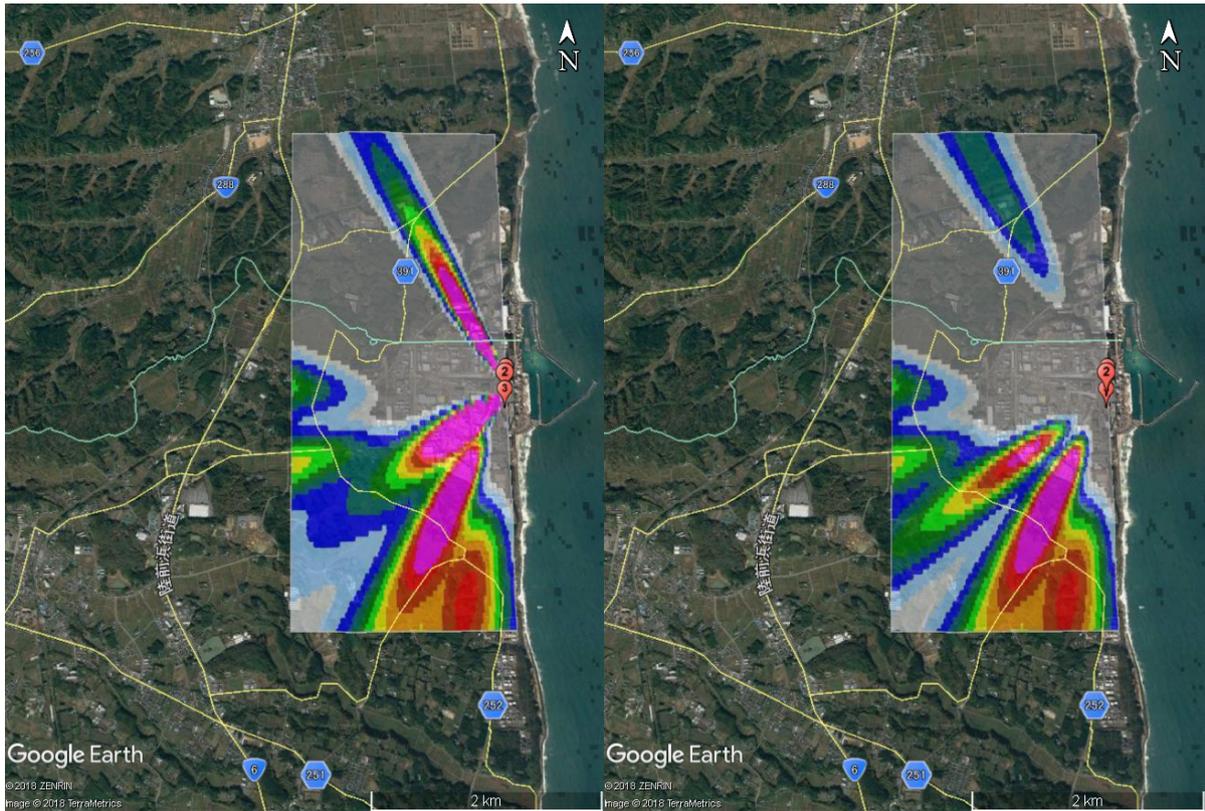


図 3.3-10 1F サイト内の Cs-137 沈着量分布推測結果
 左：ケース 1、右：ケース 2、凡例は図 3.3-9 と同じ（単位： 10^6 Bq/m²）

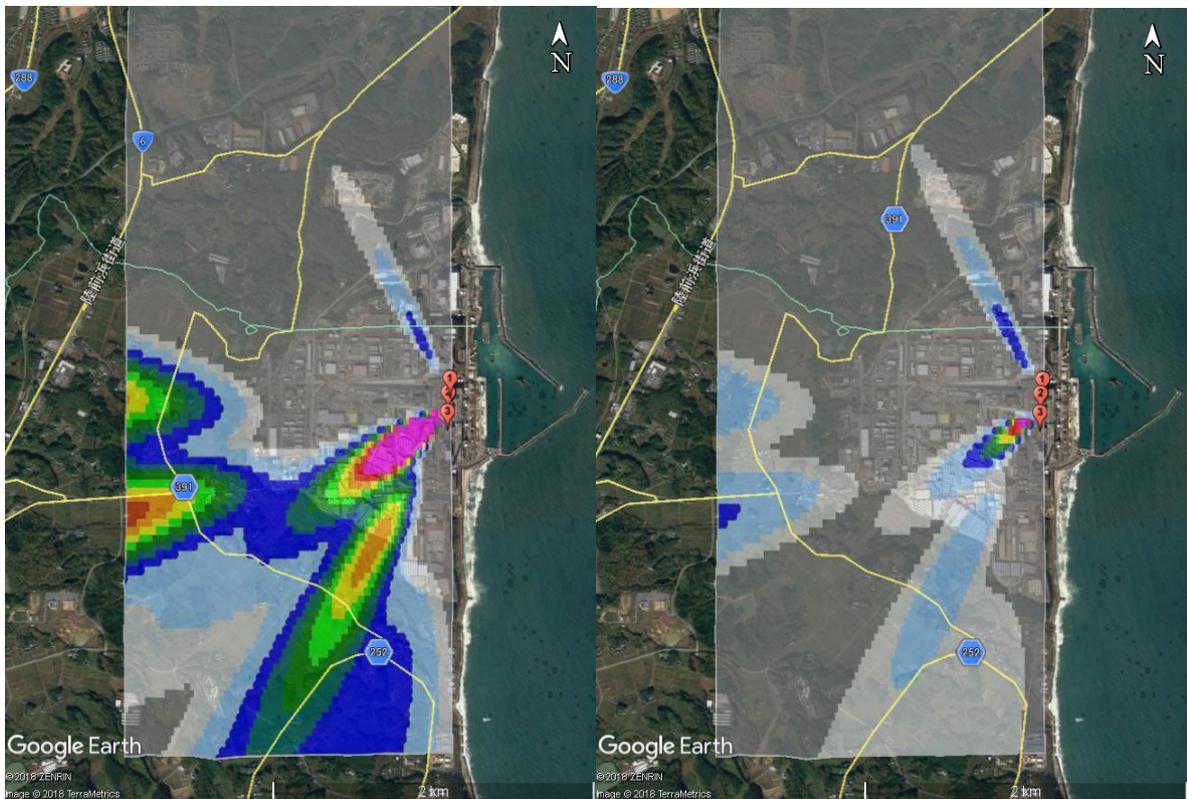


図 3.3-11 1F サイト内の Sr-90（左）および Pu-238（右）沈着量分布推測結果
 凡例は図 3.3-9 と同じ（単位 Sr: 10^3 Bq/m², Pu:Bq/m²）

(2) 放射性核種と土壌、植物との相互作用

【平成 29 年度の成果】

3.2.2(3)で検討した土壌中核種移行モデルのうち、Sr-90 の深度ピークを考慮したモデルを用いて、Sr-90 輸送比の経時変化を検討した(図 3.3-12)。表層から 5 cm までに含まれる Sr-90 濃度が時間とともに減少するのに伴い、Sr-90 輸送比も時間とともに低下する。低下の程度は徐々に緩やかになり、事故後 4 年で 1×10^{-4} 程度で一定に近づく。この減少傾向やオーダーは、図 3.3-5 に示されている事故後初期のオンサイト試料における減少傾向や、表 3.2-6 に示されている 5 年経過後の表土中の輸送比と同様で、本モデルにより輸送比の経時変化を推測することが可能と考えられる。

また、樹木中の輸送比についても、3.2.1(2)でスギとアカマツについて求められており、オンサイトの任意の地点における Cs-137 沈着量を用いて、樹木中の Sr-90 濃度を推測することが可能である。

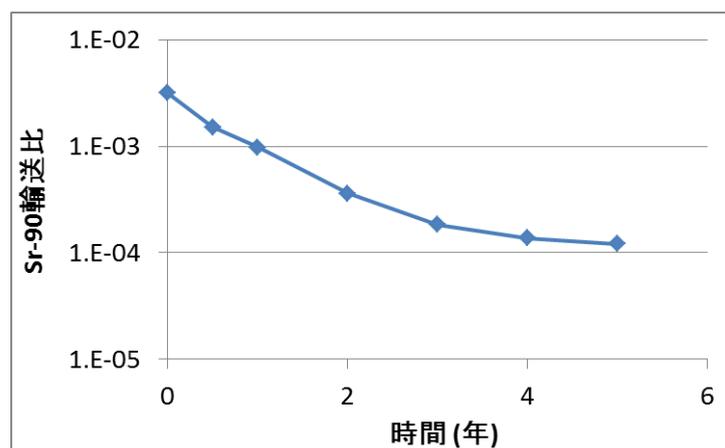


図 3.3-12 Sr-90 輸送比の経時変化 (南②-1)

参考文献

- [1] 国際廃炉研究開発機構, 日本原子力研究開発機構, “廃棄物試料の分析結果(土壌、焼却灰、並びに水処理設備(セシウム吸着装置、多核種除去設備)出入口水),” 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議(第40回), 平成29年3月30日(2017).
- [2] Yoshikazu Koma et al. “Radioactive contamination of several materials following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident,” Nuclear Materials and Energy, 10, 35-41 (2017).
- [3] Y. Sanada and T. Torii, “Aerial radiation monitoring around the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant using an unmanned helicopter,” Journal of Environmental Radioactivity, 139, 294-299 (2015).

3.4 研究推進

【平成 28 年度までの成果】

各研究項目ごとに、適宜打合せを実施して研究計画を適切に実施するとともに、研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めた。

【平成 29 年度の成果】

今年度においても、各研究項目ごとに、適宜打合せを実施して研究計画を適切に実施するとともに、研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めた。

4. 結言

3年間の調査研究から、以下のような成果が得られた。

- ① オフサイトの Cs-137 沈着量分布に基づく、主たる汚染を引き起こしている放射性プルームは、北方向から反時計回りに、北北西 (NNW)、西-北 (W-N)、西-南 (W-S)、南西 (SW)、南-西 (S-W)、南-東 (S-E) の6本に大別することができた。
- ② 各プルームの数地点において地衣類および表土を採取し、地衣類種の同定を行うとともに、Cs-134 および 137 濃度を測定した。プルーム間で Cs-134/137 比を比較したところ、有意ではないものの差が認められた。ORIGEN による炉心内核種組成の計算結果と比較すると、NNW は 1 号機、W-N および W-S の近距離、SW 並びに S-W は 2 号機、W-N および W-S の近距離並びに S-E は 3 号機が起源と推測され、汚染源同定に活用できた。
- ③ 地衣類表面に存在する粒子の元素組成を EPMA や SEM/EDS で分析したところ、天然起源とは考えにくい粒子を複数確認できた。TOF-SIMS を用いてこれらの粒子の Cs 同位体比を評価することで、炉起源かどうかを判断できる可能性が示された。
- ④ 土壌中の深さ方向の Cs-137 および Sr-90 の濃度分布の経時変化を調べた。また、放射性核種の土壌への吸着特性の深さ方向依存性に基づき、放射性核種の複数成分を考慮した移流拡散モデルにより、Cs-137 および Sr-90 の深さ方向移行挙動を表現できた。
- ⑤ 土壌中および樹木中の放射性核種濃度を測定する手法を整備した。この手法を適用して放射性核種濃度を測定し、Sr-90 の他、Pu-238、Pu-239+240、Am-241、Cm-244 の輸送比を、プルームごとに評価した。このうち、Pu-239+240 および Am-241 は、オフサイトでは福島事故起源のものに比べて、グローバルフォールアウト起源のものが支配的と考えられた。
- ⑥ 無人ヘリで得られたオフサイトの Cs-137 沈着量分布を、ガウス型の大気拡散モデル (プルーム式) でフィッティングすることにより、オンサイトの Cs-137 沈着量分布を推定した。得られた分布状況は、3 か所で採取されていたオンサイトの土壌中濃度の傾向とよく一致した。
- ⑦ ⑤で求めた各放射性核種の輸送比と⑥で求めた Cs-137 沈着量分布により、オンサイト各地点における放射性核種インベントリを算出した。
- ⑧ ④の土壌中移流拡散モデルにより、オンサイト各地点における土壌中 Sr-90 輸送比の経時変化を評価した。得られた経時変化は、オンサイトの土壌中 Sr-90 輸送比の減少傾向とよく一致した。
- ⑨ ⑤の樹木中輸送比と⑦で求めた放射性核種インベントリにより、オンサイト各地点における樹木中の Cs-137 および Sr-90 濃度を算出した。

このように、1F サイト外領域における放射性核種の表土中・樹木中の分布状況、飛散物の化学形態等を系統的に評価し、その依存性に基づき、サイト内各地点における放射性核種インベントリやその経時変化を評価する手法を確立でき、所期の目的を達成した。