

土壤中のセシウム-137および自然放射性核種について

Cesium-137 and Natural Radionuclides in Soils

福田 一義

Kazuyoshi Fukuda

目 的

前報において、北海道内各地の牧草地から採取した土壤中のウラン含有量とその同位体比について報告した¹⁾。今回は、ゲルマニウム (Ge) ガンマ線分光分析装置を用いて、土壤中の¹³⁷Csや⁴⁰K等のガンマ線を放出する放射性核種の分析を行なうとともに、土壤中の¹³⁷Csの挙動について考察した。

方 法

1. 試料の採取および前処理

試料は、1979年から1984年までの5年間に、北海道内の54箇所の牧場において、牛乳および牧草を採取した際に同時に牧草地の表層土壌(深さ0~5 cm)を採取したものである。また、9箇所においては、深さ20 cmあるいは50 cmまでの土壌を分画して採取した。なお、1箇所だけではあるが、札幌において未耕土が得られた。

試料の採取方法および前処理法は、前報¹⁾および科学技術庁編「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」²⁾によった。採取した土壌は直射日光を避けて細かく砕きながら風乾し、径1 mmあるいは2 mmの円孔ふるいを用いて植物根や砂れき等を除去したもの、すなわち、風乾細土として保存した。さらに、風乾細土を500°Cに調節した電気炉に入れて有機物等を灰化し、得られた乾土を分析試料とした。なお、風乾細土率(新鮮土より植物根や砂れき等を除いた重量に対する風乾細土の重量の割合)および乾土率(風乾細土に対する乾土の重量の割合)を算出した。

試料の採取場所を図1に示す。

2. 分 析 法

試料の分析法は、科学技術庁編「Ge (Li) 半導体検出器を用いた機器分析法」³⁾に準拠した。乾土をU-8容器に詰めてGeガンマ線分光分析装置にかけて8万秒間計測し、ガンマ線を放出する放射性核種の定性定量分析を行なった。

当機器の概要や各種の食品等の灰化試料を対象にした場合における測定条件の設定等に関しては別報⁴⁾に詳細に述べた。ここでも、それらの測定条件を適用した。

結果および考察

Geガンマ線分光分析装置を用いて土壤中のガンマ線を放出する核種を分析したところ、人工放射性核種の¹³⁷Csおよび自然放射性核種の⁴⁰K、ウラン系列に属している²¹⁴Pb・²¹⁴Bi、トリウム系列に属している²²⁸Ac・²¹²Pb・²⁰⁸Tl等が主に検出された。ここで、¹³⁷Csおよび⁴⁰Kのエネルギーピークは単一であるが、その他の核種は複数のエネルギーピークを有しており、検出されたすべてのエネルギーピークに対して核種の同定および定量を行なった。そこで、トリウム系列については、その代表として²²⁸Acを選び、²²⁸Acの複数のエネルギーピークに対して得られた測定値の平均値を²²⁸Ac含有量として表わした。また、ウラン系列については、放射平衡の状態にある²¹⁴Pbと²¹⁴Biを選び、それらの測定値の平均値を²¹⁴Pb含有量として表わした。カリウム(K)含有量は、K 1 g中の⁴⁰Kが838 pCiに相当することから、⁴⁰Kの測定値より算出した。¹³⁷Csについては、その含有量に単位面積当りの乾土量を乗じた積の値、すなわち、¹³⁷Cs蓄積量をあわせて算出した。

1. 表層土壌中の¹³⁷Cs・⁴⁰K・²²⁸Ac・²¹⁴Pb含有量および¹³⁷Cs蓄積量

北海道内各地より採取した牧草地の表層土壌(深さ0~5 cm)について、その測定結果をまとめて表1に示す。ここで、風乾細土率および乾土率は、それぞれ、水分および有機物の量を知る目安になる。

今回の表層土壌試料中に最も含有量の多い核種は⁴⁰Kであり、3~18 pCi/g乾土の範囲にあった。この値をK含有量に換算すると、4~21 mg-K/g乾土に相当した。岩石中の⁴⁰K含有量に関しては、花崗岩>玄武岩>石灰岩の順に2~30 pCi/gの範囲で異なることが知られているので⁵⁾、土壌



図1 試料採取場所

- | | | | | |
|-------------|-----------|-----------|-----------|---------|
| 1. 札 文 | 2. 利 尻 | 3. 稚 内 | 4. 浜 頓 別 | 5. 幌 延 |
| 6. 雄 信 内 | 7. 遠 別 | 8. 苫 前 | 9. 名 寄 | 10. 旭 川 |
| 11. 富 良 野 | 12. 深 川 | 13. 三 笠 | 14. 長 沼 | 15. 厚 田 |
| 16. 札 幌 | 17. 千 歳 | 18. 積 丹 | 19. 俱 知 安 | 20. 今 金 |
| 21. 瀬 棚 | 22. 江 差 | 23. 函 館 | 24. 砂 原 | 25. 森 |
| 26. 八 雲 | 27. 伊 達 | 28. 遠 浅 | 29. 日 高 | 30. 平 取 |
| 31. 浦 河 | 32. 大 樹 | 33. 新 得 | 34. 清 水 | 35. 音 更 |
| 36. 本 別 | 37. 足 寄 | 38. 興 部 | 39. 別 海 | 40. 遠 軽 |
| 41. 網 走 | 42. 北 見 | 43. 釧 路 | 44. 茶 臼 | 45. 磯 分 |
| 46. 西 養 老 牛 | 47. 計 根 別 | 48. 中 標 津 | 49. 別 海 | 50. 根 室 |
| 51. 羅 臼 | | | | |

試料中の⁴⁰K含有量の差は採取した牧草地の土質の差によるものと考えられる。

トリウム系列の²²⁸Acおよびウラン系列の²¹⁴Pbの含有量は、その最大値が、それぞれ、1.5、1.3 pCi/g 乾土であった。²²⁸Acと²¹⁴Pb含有量の間には正の相関が認められ、その相関係数は0.83であった。また、²²⁸Acおよび²¹⁴Pb含有量は⁴⁰K含有量との間にも正の相関が認められ、その相関係数は、それぞれ、0.79、0.66であった。従って、²²⁸Acおよび²¹⁴Pb含有量の差は、⁴⁰Kと同様に土質の差によるものと考え

られる。

表層土壌試料中の¹³⁷Cs含有量は、0.1~2.3 pCi/g 乾土の範囲にあって、利尻・稚内・江差・別海・羅臼の5試料の値は他の試料に比べてやや高く約2 pCi/g 乾土であった。また、その¹³⁷Cs蓄積量は、0.2~5.2 pCi/cm² (2~52 mCi/km²に相当)の範囲にあって、利尻・稚内・幌延・積丹・俱知安・今金・江差・八雲・浦河・新得・別海・羅臼において高い値を示した。このような傾向は、土壌と共に採取した牛乳および牧草の¹³⁷Cs含有量の測定結果と良く一

表1 表層土壌(深さ0~5cm)中の¹³⁷Cs, ⁴⁰K, ²²⁸Ac, ²¹⁴Pb含有量および¹³⁷Cs蓄積量

試料 番号	採取地	採取 年月	風乾細土率 %	乾土率 %	Cs-137	Ac-228	Pb-214	K-40	カリウム mg-K/ g乾土	Cs-137 蓄積量 pCi/cm ²
					pCi/g 乾土					
1	礼文町	'83.7	0.651	0.853	0.15±0.02	0.67	0.53	10.66±0.45	12.7	0.47
2	利尻町	'83.7	0.557	0.762	2.11±0.05	1.29	0.84	12.95±0.52	15.5	4.53
3	稚内市	'80.7	0.617	0.744	1.94±0.05	0.76	0.85	10.88±0.45	13.0	3.72
4	幌延町	'79.9	0.673	0.763	1.73±0.05	0.83	1.12	15.68±0.53	18.7	5.16
5	天塩町雄信内	'84.6	0.504	0.779	1.62±0.04	0.98	0.83	13.99±0.47	16.7	2.99
6	遠別町	'84.6	0.658	0.814	0.65±0.03	0.91	0.91	15.03±0.50	17.9	2.28
7	苫前町	'81.8	0.729	0.874	0.72±0.03	1.06	0.95	17.83±0.55	21.3	2.80
8	名寄市	'81.7	0.748	0.857	0.57±0.03	1.02	1.01	9.36±0.42	11.2	2.73
9	旭川市	'79.9	0.736	0.831	0.60±0.02	0.98	0.81	15.36±0.45	18.3	2.94
10	富良野市	'81.8	0.682	0.909	0.48±0.02	1.09	1.05	14.58±0.49	17.4	2.24
11	深川市	'80.9	0.775	0.939	0.43±0.02	0.83	0.56	12.47±0.43	14.9	2.44
12	三笠市	'82.8	0.779	0.834	0.35±0.02	0.83	0.90	17.66±0.56	21.1	1.59
13	厚田村	'82.8	0.968	0.883	0.48±0.02	0.96	0.82	11.23±0.45	13.4	2.12
14	札幌市	'79.9	0.762	0.835	0.52±0.03	0.54	0.51	12.68±0.46	15.1	1.71
15	札幌市	'80.9	0.747	0.843	0.50±0.02	0.53	0.54	11.50±0.40	13.7	1.80
16	千歳市長都	'84.6	0.636	0.871	0.70±0.03	0.24	0.39	5.69±0.30	6.8	1.40
17	積丹町	'80.8	0.886	0.826	1.02±0.04	1.30	1.28	13.48±0.48	16.1	4.35
18	倶知安町	'80.8	0.687	0.911	0.84±0.03	0.36	0.36	7.63±0.34	9.1	3.70
19	今金町	'82.8	0.717	0.855	1.03±0.03	0.89	0.74	10.93±0.40	13.0	3.58
20	瀬棚町	'82.8	0.758	0.842	0.47±0.02	1.12	0.91	13.51±0.44	16.1	1.75
21	江差町	'80.9	0.574	0.755	1.97±0.05	1.13	1.15	14.84±0.53	17.7	4.07
22	函館市	'81.8	0.505	0.695	1.07±0.04	1.45	1.30	14.59±0.54	17.4	2.14
23	砂原町ニッ山	'83.8	0.631	0.879	1.10±0.03	0.34	0.34	5.94±0.33	7.1	2.82
24	砂原町砂崎	'83.8	0.819	0.926	0.06±0.01	0.36	0.86	3.15±0.24	3.8	0.20
25	森町	'83.8	0.856	0.936	0.39±0.02	0.27	0.24	4.54±0.28	5.4	1.63
26	八雲町	'79.9	0.699	0.871	1.02±0.03	0.56	0.40	6.30±0.32	7.5	4.51
27	伊達市	'81.8	0.680	0.855	0.67±0.03	0.56	0.94	6.94±0.36	8.3	2.75
28	早来町遠浅	'79.9	0.818	0.944	0.23±0.01	0.40	0.41	7.85±0.30	9.4	1.27
29	日高町	'83.6	0.604	0.846	0.14±0.01	0.65	0.32	5.41±0.33	6.5	0.48
30	平取町	'83.6	0.736	0.934	0.47±0.02	0.26	0.50	4.08±0.26	4.9	1.82
31	浦河町向別	'80.10	0.744	0.899	0.69±0.03	1.17	0.88	17.77±0.53	21.2	3.32
32	大樹町	'80.9	0.676	0.853	0.76±0.03	0.42	0.56	9.49±0.39	11.3	2.77
33	新得町	'79.9	0.595	0.651	1.44±0.04	0.60	0.53	7.64±0.34	9.1	3.57
34	清水町	'81.6	0.658	0.811	0.51±0.03	0.52	0.65	7.31±0.36	8.7	1.26
35	音更町	'79.9	0.650	0.787	0.56±0.02	0.48	0.70	7.71±0.34	9.2	1.98
36	本別町	'83.6	0.601	0.836	0.30±0.02	0.86	0.82	10.40±0.45	12.4	0.88
37	足寄町	'83.6	0.534	0.803	1.09±0.04	0.53	0.65	9.10±0.43	10.9	2.35
38	興部町	'80.8	0.821	0.910	0.33±0.02	0.74	0.65	16.83±0.51	20.1	1.59
39	湧別町	'84.8	0.894	0.915	0.24±0.02	0.91	0.72	17.41±0.52	20.8	1.24
40	遠軽町	'84.8	0.862	0.899	0.29±0.02	0.80	0.77	17.55±0.52	21.0	1.18
41	網走市	'81.9	0.586	0.818	0.67±0.03	0.54	0.69	7.31±0.38	8.7	2.15
42	北見市	'81.9	0.762	0.879	0.17±0.02	0.73	0.60	7.57±0.36	9.0	0.92
43	釧路町	'80.8	0.746	0.758	0.71±0.03	0.57	0.58	10.34±0.45	12.3	2.05
44	浜中町茶内	'82.9	0.525	0.650	1.23±0.04	0.72	0.47	8.37±0.41	10.0	2.19
45	標茶町磯分内	'80.8	0.577	0.807	0.71±0.03	0.48	0.48	9.55±0.41	11.4	1.77
46	中標津町西養老牛	'82.9	0.629	0.825	0.83±0.03	0.15	0.26	6.02±0.34	7.2	2.92
47	〃 計根別	'79.9	0.537	0.846	0.17±0.02	N.D.	0.15	5.16±0.30	6.2	0.48
48	〃 開陽台	'79.9	0.566	0.752	1.05±0.04	0.32	0.40	6.58±0.35	7.9	2.34
49	〃 桜ヶ丘	'82.9	0.569	0.776	0.68±0.02	0.40	0.31	7.08±0.38	8.5	2.04
50	〃 東俣落	'82.9	0.547	0.752	0.68±0.02	0.17	0.54	6.90±0.35	8.2	1.59
51	別海町	'81.7	0.574	0.768	2.28±0.05	0.33	0.35	7.81±0.39	9.3	4.61
52	別海町上風蓮	'82.9	0.572	0.760	1.44±0.04	0.49	0.47	9.46±0.45	11.3	3.63
53	根室市瑤瑤瑁	'84.7	0.376	0.654	0.99±0.04	0.39	0.57	8.37±0.41	10.0	1.21
54	羅臼町	'82.8	0.538	0.690	2.20±0.05	0.34	0.54	6.95±0.39	8.3	3.89

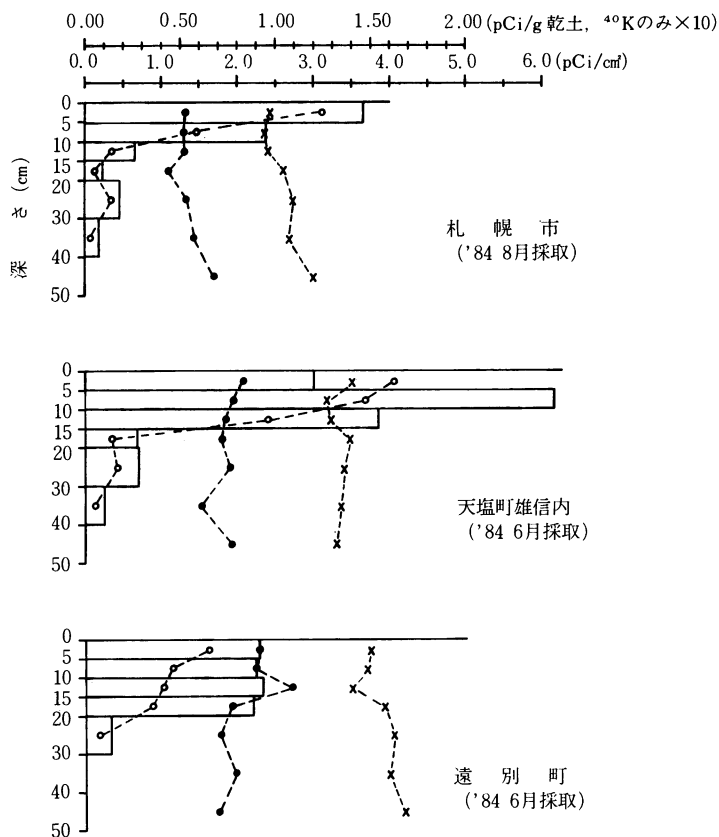


図2 土壤の ^{137}Cs , ^{40}K , ^{214}Pb 含有量および ^{137}Cs 蓄積量の深度分布
 (○→ ^{137}Cs 含有量, X→ ^{40}K 含有量, ●→ ^{214}Pb 含有量, □→ ^{137}Cs 蓄積量)

致した⁹⁾

^{137}Cs は土壤に捕捉され易く、一般的には表層土壤に多く含まれる⁵⁾。土壤中の ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量が隣接する他の採取場所のものと比較して著しく低い試料は、掘り返し等によって深層の土壤が表層に移されたものか、全く別の場所の土壤が運び込まれたものと考えられる。また、国外では、土壤の浸食によって土壤中の ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量の分布が変化することが報告されている⁷⁾。

2. 土壤中の ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量の深度分布

表層土壤の ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量については、地域による変動の傾向が牛乳や牧草の ^{137}Cs 含有量の場合と同様であったが、隣接する地域であってもその値が著しく異なることもあった。牧草地は数年おきに掘り起こされるので、土壤中の ^{137}Cs の挙動を議論する上でその深度分布を考慮する必要があるものとする。そこで、3箇所において、深さ20 cmまでは5 cm刻み、さらに50 cmまでは10 cm刻みに分画して土壤を採取した。また、7箇所において、0~5

cm, 5~20 cmの二層において土壤を採取した。深さ50 cmまでの土壤中の ^{137}Cs , ^{40}K , ^{214}Pb 含有量および ^{137}Cs 蓄積量の深度分布を図2, 二層(0~5 cm, 5~20 cm)の土壤中の ^{137}Cs 含有量および蓄積量を表2に示す。

図2および表2に示した札幌の土壤試料は、唯一の未耕土であって、表1に示した採取場所とは異なった。この場合、 ^{40}K および ^{214}Pb 含有量は深さによって大きく変化していないが、 ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量は表層において最も高く、10 cm以深では激減し、さらに40 cm以深では検出されなかった。従って、 ^{137}Cs は土壤の表層付近に捕捉されていることが確認された。

一方、牧草地の土壤については、 ^{40}K および ^{214}Pb 含有量は未耕土の場合と同様に深さによって大きく変化していないが、 ^{137}Cs の分布は採取場所によって異なった。遠別の試料については、 ^{137}Cs 含有量は表層において特に高い値ではないが、深さ20 cmまではわずかに減少する程度であって、30 cm以深では検出されなかった。 ^{137}Cs 蓄積量は深さ20 cm

表 2 土壌(深さ 0～5 cm および 5～20 cm)の ^{137}Cs 含有量および蓄積量

採取場所	採取年月	深さ cm	風乾細土率 %	乾土率 %	カリウム mg-K/g 乾土	Cs-137	
						pCi/g 乾土	pCi/cm ²
札幌市	'84. 8	0～5	0.770	0.836	12.4	1.25±0.04	4.35
		5～20	0.751	0.880	13.2	0.23±0.02	3.76
		小計					8.11
浜中町 茶内	'82. 9	0～5	0.525	0.650	10.0	1.23±0.04	2.19
		5～20	0.546	0.708	9.8	0.95±0.03	8.89
		小計					11.08
中標津町 西養老牛	'82. 9	0～5	0.629	0.825	7.2	0.83±0.03	2.92
		5～20	0.776	0.957	5.1	0.11±0.01	2.84
		小計					5.76
中標津町 桜ヶ丘	'82. 9	0～5	0.569	0.776	8.5	0.68±0.03	2.04
		5～20	0.565	0.787	8.1	0.78±0.03	6.58
		小計					8.62
中標津町 東俣落	'82. 9	0～5	0.547	0.752	8.2	0.68±0.03	1.59
		5～20	0.481	0.745	7.5	0.80±0.03	5.53
		小計					7.12
別海町 上風蓮	'82. 9	0～5	0.572	0.760	11.3	1.44±0.04	3.63
		5～20	0.584	0.797	10.2	0.55±0.03	6.65
		小計					10.28
根室市	'84. 7	0～5	0.376	0.654	10.0	0.99±0.04	1.21
		5～20	0.529	0.725	9.1	1.38±0.04	13.93
		小計					15.14

まで均一であって、それ以上では激減した。従って、掘り返しによって深さ 20 cm 位までの土壌が十分に混合されたことが示唆される。次に、雄信内の試料については、 ^{137}Cs 含有量は表層において最も高く、5～10 cm 層では表層とほぼ同程度、15 cm 以深では激減し、さらに 40 cm 以深では検出されなかった。 ^{137}Cs 蓄積量は表層と 10～15 cm 層において同程度、5～10 cm 層では最も高く表層の値の約 2 倍、さらに 15 cm 以深では激減した。また、表 2 において、二層にわけて採取した土壌について、5～20 cm 層の ^{137}Cs 含有量が表層よりも高いか同程度であって、また、5～20 cm 層の ^{137}Cs 蓄積量が表層をはるかに上回る場所のあることが認められた。牧草地の土壌の ^{137}Cs 蓄積量の深度分布に関して、表層よりもその下層における値が高いことは、人為的な掘り返し等によって混合されて、その混合の度合も場所によって異なることが主な要因であると考えられる。また、表層土壌の風乾細土率および乾土率が小さいために単位面積当りの乾土量が少ないことも一つの要因と考える。

札幌、雄信内、遠別における土壌の ^{137}Cs の深度分布より、その総蓄積量は、それぞれ、7.83、15.55、9.51 pCi/cm² であった。3 箇所とも、深さ 20 cm までの層に全体の約 90%

を占めた。従って、土壌については、少なくとも深さ 20 cm 位までの ^{137}Cs 等の深度分布を把握しておくことが重要であると考えられる。なお、図 2 および表 2 に示した 9 箇所の土壌について、深さ 20 cm までの ^{137}Cs の総蓄積量は、6～15 pCi/cm² の範囲であって、採取場所によって異なった。このような地域差が生ずる原因に関して、現時点で明確に説明することは困難であり、今後の課題としたい。

要 約

北海道における環境放射能調査の一環として、今回は、ゲルマニウムガンマ線分光分析装置を用いて土壌中のガンマ線を放出する放射性核種を分析し、以下の結果を得た。

1. 土壌試料において、人工放射性核種の ^{137}Cs および自然放射性核種の ^{40}K 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{228}Ac 、 ^{212}Pb 、 ^{208}Tl 等が主に検出された。
2. 道内 54 箇所の牧草地の表層土壌(深さ 0～5 cm)についてそれらの核種を分析したところ、測定値に地域による差が認められた。 ^{40}K 等の自然放射性核種の含有量は土質によって異なること、 ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量は土壌と共に採取した牛乳や牧草の ^{137}Cs 含有量の地域的な変動傾向と一

致することが判った。

3. 9箇所の土壌における深度分布については、 ^{40}K 等の自然放射性核種の含有量は未耕土か否かにかかわらず深さによって大きく変化しなかったが、 ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量は深層になるにつれて激減して40 cm以深では検出されなかった。なお、未耕土中の ^{137}Cs はその大部分が表層付近に捕捉されていたのに対して、牧草地の土壌中の ^{137}Cs は20 cm位の深さにまで及んでいた。

4. 土壌の ^{137}Cs 含有量あるいは蓄積量が表層よりもその下層において高い場所のあることがその深度分布より確認されたので、 ^{137}Cs の定量的な検討を行う上で、表層土壌の測定値だけでは不十分であって、少くとも深さ20 cm位までの深度分布を把握しておくことが重要と考える。

文 献

- 1) 福田一義：道衛研所報，33，103（1983）
- 2) 科学技術庁編：ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法，日本分析センター，千葉（1982）
- 3) 科学技術庁編：Ge (Li) 半導体検出器を用いた機器分析法，日本分析センター，千葉（1977）
- 4) 福田一義：道衛研所報，35，117（1985）
- 5) 山県登：放射線衛生，光生館，東京（1967）
- 6) 福田一義他：日本地球化学会年会講演要旨集，310，静岡（1981）
- 7) McCallan, M. E. et al.: Aust. J. Soil Res., 18, 119 (1980)