

# 樹園地土壌の放射性物質の経時的推移

福島県農業総合センター 果樹研究所 佐藤 守

## 1. はじめに

福島第1原子力発電所の事故で放出された放射性物質は福島県果樹地帯の中心である福島市および伊達市をはじめ、中通りから浜通り地方のほぼ全域に広がり、全ての果樹が汚染された。これらの地帯の汚染は主として3/15の降雨によるフォールアウト（放射性沈降物）によるものであり、ウメを除く落葉果樹は発芽前であった。このため果樹においては、土壌から果実への移行に関心がおかれた。今回のフォールアウトで飛散した放射性核種は $^{132}\text{Te}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{133}\text{Xe}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$  および  $^{134}\text{Cs}$  等であり<sup>2)</sup> ( $^{90}\text{Sr}$ の飛散も確認されているが現在のところ詳細な情報が不足している)、果樹への移行が心配されたのはCsであった。CsはSrと比較して論じられることが多く、Csは葉からの吸収と他器官への転流は速やかであるが、土壌からの吸収率は葉からの20分の1とするブドウでの報告がある<sup>1)</sup>。また、土壌での動態についてはSrが下部へ移行しやすくCsの5倍程度であり、Csはほとんどが表層下6cm以内に分布しているとされる<sup>1)</sup>ことから、果樹では、現場対応として不耕起の徹底が図られた。その上で、放射性核種による土壌汚染実態と葉および果実への移行状況の経時的検証に加え、樹園地内環境の果実汚染に対する影響の解明を目的として樹園地土壌および果実等の放射性物質汚染モニタリング調査を4/11より開始した。調査対象ほ場として現地樹園地9か所（後にユズ園を追加）と所内ほ場8か所を選定した。調査地の選定にあたっては樹種、空間線量、土性を考慮した。ここでは、樹園地での土壌汚染に焦点をあて、垂直分布および水平分布とその経時的推移、ならびに表層植生の影響について述べる。

## 2. 樹園地の土壌中放射性核種濃度の垂直分布の経時的推移

4/15～5/25（フォールアウト後31～71日）から10/25（同225日）の期間の土壌中放射性核種の表層下30cmまでの厚さ3～5cmごとの放射性核種濃度の垂直分布とその経時的推移を検証した。調査地点は、所内リンゴ‘紅玉’（採取日：4/15、5/25、10/25、以下同）、‘三島ふじ’、モモ‘あかつき’、ナシ‘幸水’（4/26、10/25）ほ場、土性は、‘三島ふじ’は花崗岩系砂質土、他は褐色森林土・埴壤土である。現地は桑折町モモ園（5/11、10/26、砂質埴壤土）および福島市リンゴ園（5/11、10/26、重埴土）である。また、10/25は信夫山ユズ園（凝灰岩系シルト質埴土）を加えた。

土壌の採取は、4/15の所内‘紅玉’ほ場については、縦穴を掘り、深さ0-30cmまでの土壌を8区分して採取した。4/26は‘三島ふじ’ほ場、‘あかつき’ほ場および‘幸水’ほ場の深さ30cmまでの土壌を内径70mmの塩ビ製円筒形土壌採取器（東北大学電子光理学研究センター作成、以下同）で3cmごとに分取した。5/11は桑折町および福島市の樹園地の土壌を深さ30cmまでの土壌を内径80mmのステンレス製円筒形土壌採取器で5cmごとに分取した。5/15および10/25（または10/26）については、各地点ともに深さ30cmまでの土壌を内径80mmのステンレス製円筒形土壌採取器で3cmごとに分取した。試料の採取点数は調査ほ場につき1か所である。

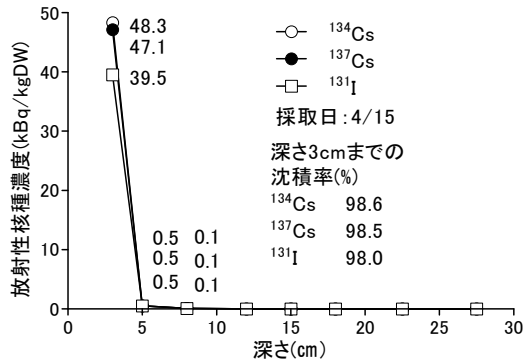


図1 4/15の土壤中放射性核種の垂直分布 (果樹研'紅玉'ほ場: 褐色森林土・埴壤土)

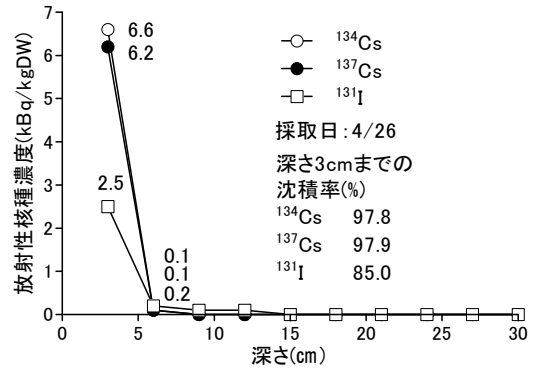


図2 4/26の土壤中放射性核種の垂直分布 (果樹研三島ふじほ場: 花崗岩系砂質土)

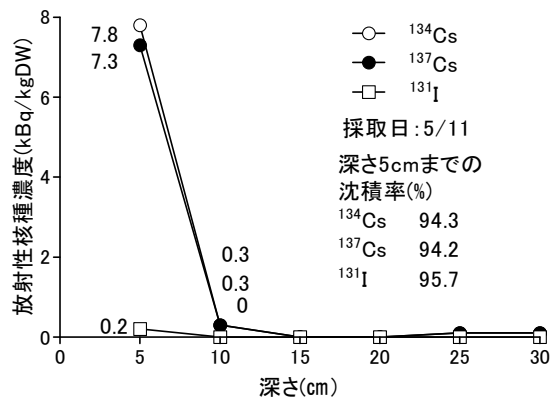


図3 5/11の土壤中放射性核種の垂直分布 (福島市渡利リンゴ園: 褐色森林土・重埴土)

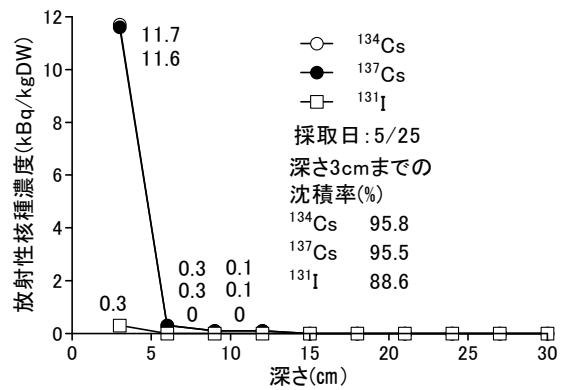


図4 5/25の土壤中放射性核種の垂直分布 (果樹研'紅玉'ほ場: 褐色森林土・埴壤土)

表1 10/25の土壤中放射性Cs濃度の垂直分布および4/15~5/25との時系列比較

ほ場 土性 深さ (cm)	三島ふじ 花崗岩系砂質土				あかつき 褐色森林土・埴壤土				紅玉 褐色森林土・埴壤土				桑折・モモ園 沖積土・砂質壤土				渡利・リンゴ園 褐色森林土・重埴土			
	<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs		<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs		<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs		<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs		<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs	
	濃度 <sup>2</sup> (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)	濃度 (%)	比率 (%)
3	1.63	77.4	1.85	77.2	5.31	94.4	6.16	94.1	5.02	96.2	5.56	95.7	1.65	92.0	2.13	91.0	2.23	89.4	2.83	89.5
6	0.1	4.7	0.11	4.8	0.24	4.3	0.28	4.3	0.03	0.6	0.04	0.7	0.048	2.7	0.07	3.0	0.079	3.2	0.10	3.1
9	0.06	2.8	0.07	2.7	0.04	0.7	0.05	0.7	0.02	0.3	0.03	0.4	0.017	1.0	0.03	1.1	0.054	2.2	0.07	2.2
12	0.11	5.2	0.13	5.3	0.01	0.2	0.02	0.3	0.01	0.3	0.02	0.3	0.011	0.6	0.02	0.9	0.056	2.3	0.07	2.2
15	0.06	3	0.07	3	0	0.1	0.01	0.1	0.01	0.2	0.02	0.3	0.026	1.4	0.04	1.5	0.033	1.3	0.04	1.4
18	0.05	2.3	0.06	2.3	0.01	0.2	0.01	0.2	0.01	0.3	0.02	0.4	0.034	1.9	0.05	2.0	0.031	1.3	0.04	1.2
21	0.02	1.1	0.03	1.1	0	0	0	0.1	0.03	0.6	0.04	0.7	0.004	0.2	0.01	0.3	0.007	0.3	0.01	0.3
24	0.02	1.1	0.03	1.1	0	0.1	0.01	0.1	0.02	0.4	0.02	0.4	0.002	0.1	0.003	0.1	0.003	0.1	0.004	0.1
27	0.02	1.1	0.03	1.2	0	0	0	0.1	0.02	0.5	0.02	0.4	0.002	0.1	0.002	0.1	ND	-	ND	-
30	0.03	1.3	0.03	1.3	0	0	0.01	0.1	0.03	0.6	0.04	0.7	ND	ND	ND	-	ND	-	ND	-
合計	2.1	100	2.41	100	5.61	100	6.55	100.1	5.2	100	5.81	100	1.79	100	2.34	100	2.49	100	3.17	100

<sup>2</sup>濃度の単位はkBq/kgDW

所内'紅玉'ほ場では、表層0~3cmの放射性Csの存在割合は、4/15~5/25の39日の間に99%から96%に低下したが、0~6cmには99%以上保持されていた。<sup>131</sup>Iは4/15以降急速に低下し(図1~4)、30cmまでの合計で5/11の現地地で600Bq/kgDW以下、5/25の所内紅玉ほ場では400Bq/kgDW以下であった。しかし、4/15~5/25の期間では、Csの変動は明瞭ではなかった。

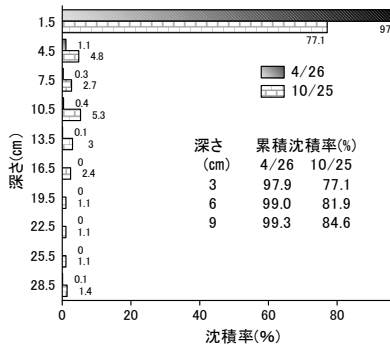


図5  $^{137}\text{Cs}$  の垂直分布  
(‘三島ふじ’ほ場・砂質土)

表2 花崗岩系砂質土と褐色森林土・埴壤土との

CECおよび交換性Kの比較			
土性	土壌管理法	CEC ( $\text{cmol}_c/\text{kg}$ )	交換性K ( $\text{cmol}_c/\text{kg}$ )
花崗岩系砂質土(A)	清耕部	8.4	0.35
	草生部	9.6	0.55
	平均	9.0	0.45
褐色森林土・埴壤土(B)	清耕部	18.9	1.08
	草生部	19.6	1.18
	平均	19.3	1.13
A/B(%)	清耕部	44.6	32.4
	草生部	48.9	46.4
	平均	46.8	39.7

注:0-10cm層1987、1991、1994年平均  
出典:福島県果樹試験場研究報告Vol/18(2000)

フォールアウト後 225 日

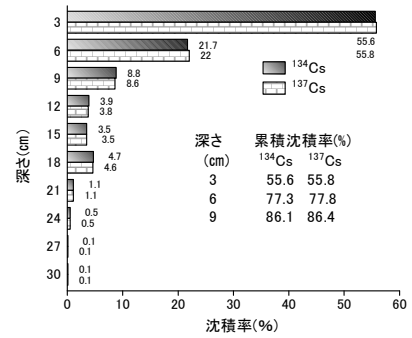


図6 放射性 Cs の垂直分布  
(信夫山:凝灰岩系シルト質壤土)

が経過した 10/25 の放射性 Cs の垂直分布は、砂質壤土～重埴土では表層 0～3 cm に 90% 以上が沈積していた。また、9cm までの沈積率では 4/26～5/25 と比較して 4% 以内の低下にとどまった(表 1)。しかし、花崗岩系砂質土壌では 15% 以上が 9cm 以下の下層に移行していた。9～18cm の層では 400Bq を超える放射性 Cs が検出された。このことから花崗岩系砂質土壌では放射性 Cs は下層に移行しやすいものと推察された。本土壌の深さ 10cm までの CEC、交換性 K は褐色森林土埴壤土と比較してともに 50% 以下であった(図 5、表 2)。また凝灰岩系シルト質壤土の信夫山の垂直分布は表層 3 cm の沈積率は 56% に留まり、40% 以上が深さ 3～18cm まで沈降していた(図 6)。このことから、放射性 Cs の下層への移動性は土性に依存するものと推察された。

## 2. 表層 5 cm の土壌中放射性核種濃度の水平分布

4/26、27 に所内および現地の各ほ場 5 カ所から塩ビ製円筒形土壌採取器により表層 0～5 の土壌を採取混合し、ステンレス製篩で粒度を調整した。また 10/25、26 において同一ほ場から同様の方法で土壌を採取した。6/16 に所内‘あかつき’ほ場(面積 6a)の 12 樹から、1 樹当たり 4 か所を採取混合した。また、9/30 に所内‘三島ふじ’ほ場(面積 3a)の 16 樹から 1 樹につき、2 か所を採取混合した。採取箇所は幹から同一の距離とした。

ほ場間の 4/26 と 10/25 放射性 Cs 濃度を比較すると、所内ほ場(5ha)でもほ場により 2 倍程度のバラツキが認められ、所内 7 か所の平均では 225 日の期間の減衰率は 96% に留まった。10/25 の放射性 Cs 濃度が高かったアウトウほ場を除いても 89% の減衰率であった。これに対し、現地ほ場の減衰率は 65% で所内と比較して大きな減衰率を示した(表 3)。所内と現地の減衰率が大きく異なった要因としては管理密度が推定されるが、今後、検証が必要である。なお、物理的半減期から試算した 10/25 までの放射性 Cs の減衰率

表3 土壌表層 5cm 放射性 Cs の時系列比較

調査ほ場	$^{134+137}\text{Cs}$ 濃度( $\text{kBq}/\text{kgDW}$ )		
	4月26日 (A)	10月25日 (B)	比 (B/A)
所内ブドウ	6.4	6.5	1.02
所内梨(幸水)	9.9	8.2	0.82
所内桜桃	7.8	10.5	1.36
所内桃(はつひめ)	6.4	7.2	1.13
所内桃(あかつき)	14.0	7.8	0.55
所内りんご(三島ふじ)	6.9	5.9	0.86
所内りんご(紅玉)	7.7	7.2	0.94
福島市湯野(桃:日川白鳳)	3.2	1.3	0.40
桑折町(桃:はつひめ)	10.2	4.3	0.42
伊達市柱沢(柿:蜂屋)	18.9	14.0	0.74
福島市宮代(りんご:ふじ)	9.1	6.4	0.70
福島市北沢又(桜桃:紅さやか)	20.9	11.1	0.53
福島市笹木野(梨:幸水)	2.7	3.3	1.21
福島市渡利(りんご:ふじ)	23.5	13.2	0.56
所内平均	8.4	7.6	0.96
現地平均	12.7	7.7	0.65
平均	10.5	7.6	0.80

は 85% である。

‘あかつき’ほ場（面積 6a）の 12 樹から 1 樹につき 4 か所の深さ 5 cm を採取混合して測定した放射性 Cs 濃度は 2.6~11.1 kBq/kg で 4 倍程度のバラツキが存在していた（図 7）。また、‘三島ふじ’ほ場（面積 3a）の 16 樹から 1 樹につき、2 か所の深さ 5 cm を採取混合して測定した放射性 Cs 濃度は 2.3~11.2 kBq/kg で 5 倍程度のバラツキが存在していた（図 8）。このことから、土壤中放射性物質濃度の水平分布は変動幅が大きく、樹園地の土壤中の放射性 Cs 濃度は 10a に満たないほ場でも樹間のバラツキが 4~5 倍程度あることが明らかとなった。従って限られたサンプリング点数での土壤中放射性物質濃度の分析値のみで樹園地の汚染実態を判定することは限界があるものと考えられた。

### 3. 樹園地内土壤表面放射線量の経時的推移

4 月 11 日から対象果樹の収穫時まで月 1, 2 回の間隔で、1 ほ場当たり 5 か所の地表から 1 cm 高の放射線量を測定した。放射線量は 1 回目は GM サーバーメーター（TGS136）のみ、2 回目以降は NaI サーバーメーター（TCS151）と併せて測定した。果樹研究所ほ場のデータについて 6 か所のデータを併せて平滑化スプライン法により減衰曲線を求めた。その結果、地表から 1 cm 高の放射線量は調査開始から 5 月 25 日までの 44 日間で約 30% 低下した。土壤表面 1 cm の放射線量と 5 月下旬までの土壤中表層 3 cm または 5 cm の  $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  濃度比の減衰消長との間で高度に有意な相関が認められ、放射線量と  $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  比の減衰消長は近似した推移を示し、この期間の放射線量の急激な減衰は  $^{131}\text{I}$  の低下（3 月 15 日の 512 分の 1）によることが検証された。このことから未耕起の樹園地では、土壤表面の放射線量の測定により土壤表層の放射性物質の動態が推定可能と考えられた。 $^{131}\text{I}$  が消失した 5 月 25 日以降の 200 日間では約 20% 低下した（図 9）。

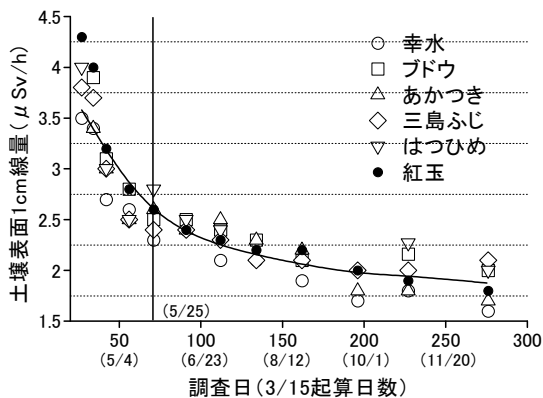


図 9 土壤表面（1cm）の空間線量の経時的推移

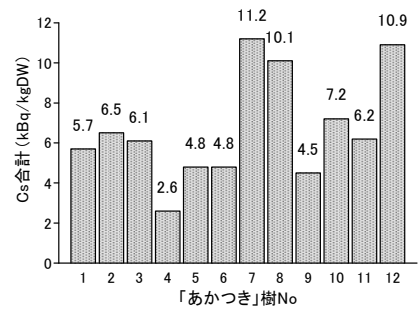


図 7 土壤中（5cm）放射性核種濃度の水平分布

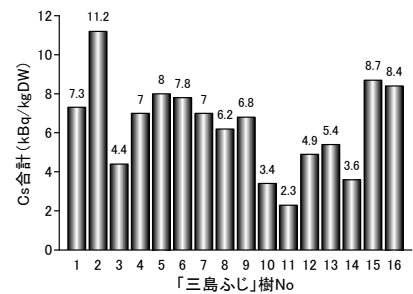


図 8 土壤中（5cm）放射性核種濃度の水平分布

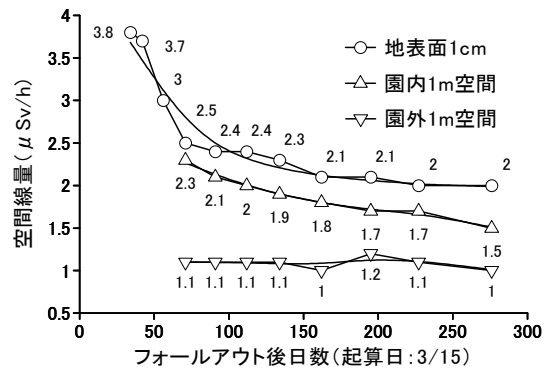


図 10 地表面および樹園地内外空間線量の推移（あかつき）

#### 4. 樹園地内外の空間線量と地表面線量の関係

樹園地の地表面1cm高と地上部1mの放射線空間線量および園外1mの空間線量の関係は、いずれのほ場でも土壌表面>園内(地上1m)>園外(地上1m)の順に高かった(図10)。また、樹園地内の地上部1mの放射線空間線量は地表面1cm高の放射線量と相関が高く、樹園地内空間放射線量は土壌表面放射線量の影響を強く受け、樹園地内1mの空間線量は地表面の約85%まで減衰することが検証された(図11)。

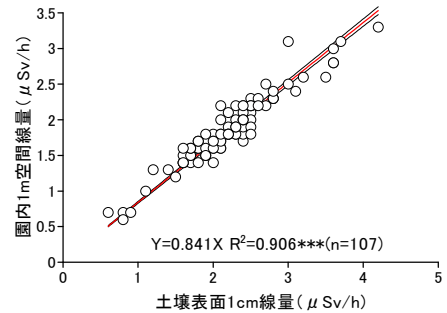


図11 表層と樹園地内空間線量の相関

#### 5. 樹園地の下草の放射性核種濃度および経時的推移

樹園地の土壌管理は草生栽培が一般的である。土壌中の放射性Csの垂直分布は表層3cm以内に90%が沈積している。この層は下草の根域と重層していると考えられることから、下草の地上部(茎葉部)と地下部の放射性Cs濃度を検証した。果樹研ほ場に植生するケンタッキーブルーグラス(KB)とシロクロローバーを6月(2番草)から9月まで毎月1回採取し(1番草は採取できず)、放射性Cs濃度を測定した。地上部(茎葉部)の放射性Cs濃度は経時的に減衰し、対数変換した葉中Cs濃度は、採取日との間で直線関係が認められた(図12)。

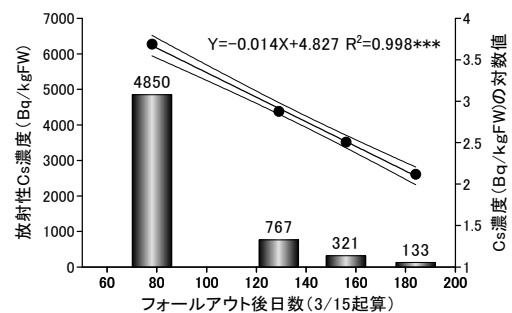


図12 ケンタッキーブルーグラスの葉中Cs濃度の経時的推移

1番草の刈取り日を5/1とした時の推定濃度はKBが14,757Bq/kgFW、シロクロローバー17,140Bq/kgFWと試算された。

10/28に所内モモほ場のケンタッキーブルーグラスルートマット層(以下RM層)およびシロクロローバー根群層とRM層を剥離した土壌の放射性Cs濃度を測定した。ケンタッキーブルーグラスRM層の放射性Cs濃度はRM層を剥離した直下土層5cmの12.8倍に相当した(図13)。このことから樹園地の放射性Csのほとんどは下草の根群層に沈積しているものと思料された。

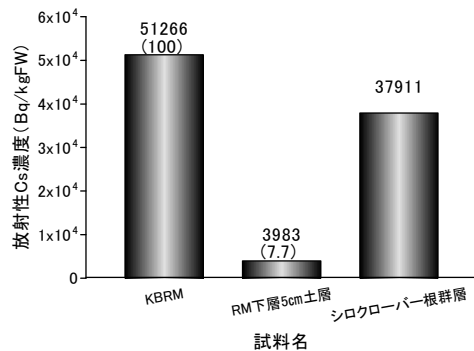


図13 RM層とRM層下5cmのCs濃度比較

次に、RM層に沈積している放射性Csの土壌とRMの沈積割合を検証するため、12/21に伊達市柱沢カキ園に生育するイネ科多年草(ペレニアルライグラス系)のRMを6か所から1か所につき3点を採取した。採取したサンプルはRMの根域が露出するまで土壌を落とし、1Lポリビーカーに蒸留水を800~850mL満たし、RMの切株または根域の一端を摘んでRM層の土壌をすすぎ落とした。洗浄水の放射性Cs濃度と重量からRMから離脱したCs量を算

出した。RM 層の洗浄により RM 層の 95%の放射性 Cs が離脱し、RM 中の放射性 Cs は RM 層の 5%にとどまった (図 14)。

イネ科多年草の植生する樹園地ではほとんどの放射性 Cs が厚さ 2cm 程度の RM 層に存在しており (図 15、16)、RM に吸収されている放射性 Cs 量は限定的で RM 層の放射性 Cs のほとんどが土壤中に存在していた。このことからイネ科多年草の地上部の放射性 Cs 濃度の経時的減衰の原因は土壤中の放射性 Cs が時間の経過とともに不可吸態化したためと推察された。

## 6. おわりに

果実の汚染については、調査が進むにつれて、土壌からの吸収移行は極めて疑わしいことが解明されつつあり、現在は樹皮に沈着した放射性セシウムの転流によるものが主と考えられている。福島県果樹地帯の中心である福島市および伊達市では行政、農業団体が一体となった樹皮の除染作業が進められている。今後は土壤中に沈積する放射性 Cs の除染が主要課題となる。不耕起の徹底によりほとんどの樹園地では未攪乱土壌状態にある。これは今後の土壌中放射性 Cs の除染技術を開発する上で、有利な条件と思料される。今回明らかになった土壌中放射性 Cs の垂直分布と水平分布の特徴を理解した上で、対費用効果の高い除染技術を開発していかなければならない。

## 7. 謝辞

福島県農業総合センター果樹研究所での放射能汚染対策試験の実施にあたって、放射性核種濃度の分析は東北大学電子光理学研究センター、学習院大学および福島大学に依頼した。また、放射線量測定サーベーターは福島大学および東北大学電子光理学研究センターから借用した。今回の成果は各大学のご支援によるものであることを報告するとともに、各大学の関係者に心より感謝いたします。

## 9. 文献

- 1) F. Carini, E. Lombi (1997) Foliar and soil uptake of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{85}\text{Sr}$  by grape vines. *The Science of the Total Environment*207: 157–164.
- 2) 松村 宏, 斎藤 究, 石岡 純, 上菘義朋(2011)高速道路上のガンマ線測定により得られた福島第一原子力発電所から飛散した放射性物質の拡散状況, 日本原子力学会和文論文誌, 第 10 巻, 第 3 号:152–162.

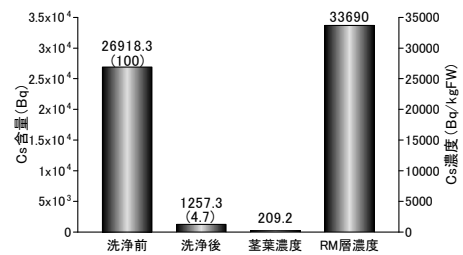


図 14 イネ科多年草 RM 層の洗浄による放射性 Cs の剥離



図 15 洗浄前の RM 層の厚さ



図 16 洗浄後の RM 根群層