研究論文

不攪乱土壌中の過剰の ^{210}Pb 移動速度の簡易推定法 II^{*1}

京都市市街地土壌への適用

颯田尚哉^{*2}, 織田大祐^{*3}, 西牧研壮^{*2}(1994年3月8日受理)
(1994年5月23日再受理)Simple Methods for Estimating the Migration Rate of Excess ^{210}Pb
in Undisturbed Soil II^{*1}

An Application to Urban Soils of Kyoto City

Naoya SATTA,^{*2} Daisuke ODA^{*3} and Kenzo NISHIMAKI^{*2}

A new alternative method to calculate the migration rate of excess ^{210}Pb from undisturbed soil profiles was developed on the basis of the same advection equation used in the previous work. In this method, no assumptions are made to evaluate migration rate and travel time. The authors have already described two different methods with some assumptions. The method can numerically calculate the migration rate of excess ^{210}Pb at every horizon of interest, and estimate their changes through the ground. The numerical approximation method was considered to be the most appropriate one of the three, which were outlined and illustrated. Undisturbed soil samples were collected from three sites in Kyoto City, Japan and the contents of ^{210}Pb and ^{226}Ra were analyzed with a γ -ray spectrometry to obtain excess ^{210}Pb profiles in the ground surface. Each method was applied to these observed profiles and the results were compared. Irrespective of the estimating methods, the average migration rates were almost the same for each site, and were found to be within a range of about 1–2 mm/y. The average deposition rate of ^{210}Pb for three sites was also estimated to about 140 MBq/km²·y.

KEY WORDS : fallout ^{210}Pb , atmospheric deposition, undisturbed soil profile, excess ^{210}Pb , migration rate, travel time, deposition rate, Kyoto City

I はじめに

天然の放射性核種である ^{210}Pb の大気からの年間降水量は、火山活動のような地球規模の環境変動が影響する

^{*1} 前報：颯田尚哉他；保健物理, 28, 23 (1993)。

^{*2} 京都大学原子炉実験所；大阪府泉南郡熊取町（〒590-04）
Research Reactor Institute, Kyoto University;
Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-04, Japan.

^{*3} 京都大学工学部；京都市左京区吉田本町（〒606）
The Faculty of Engineering of Kyoto University;
Yoshida-honmachi, Sakyou-ku, Kyoto-shi, Kyoto
606, Japan.

場合を除いてほぼ一定と考えられ、それを支持する観測結果¹⁾ が得られている。大気から降下した ^{210}Pb (^{226}Ra と放射平衡にある ^{210}Pb に対する過剰の ^{210}Pb として評価される) は、湖沼の底質などの堆積層において、堆積速度の評価や環境変動の履歴の推定に利用されてきた。

表層土壌についても、過剰の ^{210}Pb の蓄積が報告²⁾ されているが、移動が非常に遅いため、移動挙動については考慮されることが少なく、土壌中の ^{210}Pb の移動速度の評価に関する研究は遅れている。表層土壌において、 ^{210}Pb の移動速度を評価できれば、土壌中の ^{210}Pb の挙

動の地域的な差異や深さ方向の差異を定量的に比較可能となるばかりでなく、金属鉛のトレーサーとして利用することで、堆積層と同様に鉛汚染履歴の推定が可能となると考えられる。そこで著者らは、土壌中における単純な物質移動モデルを基にして、過剰の ^{210}Pb 移動速度の体系化された評価方法の確立を試みた。前報³⁾では、いくつかの仮定を用いて定常1次元の移流方程式を主として解析的に取扱い、過剰の ^{210}Pb の移動速度や移動時間を、実測した ^{210}Pb の分布より評価する2つの方法を示した。

本研究では、前報³⁾と同じ基礎式を数値的に取り扱うことにより、土壌層中における過剰の ^{210}Pb の移動速度及び移動時間を評価する方法を新たに検討した。土壌構造や土質の違いにより、移動速度が土壌中で変動する場合にも、本研究で提示する速度評価法は適用可能である。

また、前報³⁾では現実の土壌への1つの適用例しか示せず、移動速度評価法の適用可能性の検討が充分とはいえなかった。そこで、新たに京都市内で採取した不攪乱土壌(3地点)に本研究の各方法を実際に適用し、過剰の ^{210}Pb の移動速度の評価と結果の比較を行った。これにより、本研究に示す評価法が現実の土壌中の過剰 ^{210}Pb 分布に適用可能であることを確認した。

II 理 論

1. 土壌中での過剰 ^{210}Pb の移動を記述する方程式

大気から地表面への ^{210}Pb の年間降下量が一定であり、土壌表面の堆積作用や侵食作用を無視すると、十分に時間が経過した時点での土壌中の過剰の ^{210}Pb の濃度分布は、定常状態にあると考えてよい。

このとき、鉛直1次元の下方移動は、前報³⁾と同様に土壌中の過剰の ^{210}Pb の単位体積当たりの含有量を C (Bq/cm^3)、土壌中での移動速度を r (cm/y)、 ^{210}Pb の崩壊定数を k ($1/\text{y}$) とすると、次式で表せる。

$$\frac{dC}{dt} = 0 = -\frac{d}{dx}(r \cdot C) - k \cdot C \quad (1)$$

式(1)を不攪乱土壌中の過剰の ^{210}Pb の挙動を記述する基礎式とする。

2. 従来の過剰 ^{210}Pb 移動速度評価法

前報³⁾では、式(1)を適当な仮定条件下で解析的に解くことにより、過剰の ^{210}Pb の移動速度を評価する方法を2通り示した。各方法の誘導の詳細は前報³⁾に譲るが、概要を以下に再記する。

a. 一定移動速度法(評価法1)

土壌中の過剰 ^{210}Pb の移動速度 r を一定と考え、土壌表面濃度 C_0 を用いて、式(1)を解くと式(2)が得られ

る。

$$C = C_0 \cdot \exp\{-(k/r) \cdot x\} \quad (2)$$

式(2)より、土壌中の過剰 ^{210}Pb の単位体積濃度 C と深さ x を片対数紙にプロットすると、直線関係を示すことがわかる。直線の傾きと切片より、移動速度 r や表面濃度 C_0 を計算できる。ここで、土壌表面より深さ x まで移行するのに要した時間を t_1 とすると

$$t_1 = x/r \quad (3)$$

式(3)より、過剰 ^{210}Pb の土壌中での移動時間を計算することが可能である。

b. 蓄積量比較法(評価法2)

土壌構造や土壌の性質等の変化により、過剰 ^{210}Pb の移動速度は土壌中において変動すると考える方がより現実的である。

深さ x より下方の単位面積当りの過剰の ^{210}Pb 蓄積量 $A_F(x)$ (Bq/cm^2) は次式で定義される。

$$A_F(x) = \int_x^\infty C dx \quad (4)$$

式(1)を深さ x から無限の深さまで辺々積分し、深さ x における物質フラックスを $q_F(x)$ ($\text{Bq}/\text{cm}^2 \cdot \text{y}$)、無限深さの物質フラックスを0とし、式(4)を用いて整理する。

$$0 = r(x)C(x) - k \cdot A_F(x) \quad (5-1)$$

$$= q_F(x) - k \cdot A_F(x) \quad (5-2)$$

式(5-2)は式(6)になる。

$$A_F(x) = \frac{q_F(x)}{k} \quad (6)$$

土壌表面の過剰 ^{210}Pb のフラックス E_0 は、 ^{210}Pb の地表面降下率と等しくかつ一定であり、土壌中の横方向の流入・流出もないとすれば、深さ x におけるフラックス $q_F(x)$ は、地表面から深さ x に到達するまでに要した時間 t_2 だけ、放射能壊変によって減衰していると考えられ、次式で表せる。

$$q_F(x) = E_0 \exp(-k \cdot t_2) \quad (7)$$

式(6)へ式(7)を代入する。

$$A_F(x) = \frac{E_0}{k} \exp(-k \cdot t_2) \quad (8)$$

式(8)を t_2 について変形する。

$$t_2 = -\frac{1}{k} \ln \frac{k \cdot A_F(x)}{E_0} \quad (9)$$

土壌中の単位面積当たりの過剰の ^{210}Pb の全蓄積量 A_F は、 $x=0$ の場合であり、式(8)に $t_2=0$ を代入する。

$$A_F = E_0/k \quad (10)$$

式(10)より, 式(9)は式(11)となる。

$$t_2 = -\frac{1}{k} \ln \frac{A_F(x)}{A_F} \quad (11)$$

式(11)に示すように深さ x より下方の過剰 ^{210}Pb の蓄積量 ($A_F(x)$) を全蓄積量 (A_F) と比較することにより, 大気より降下した ^{210}Pb が地表面より深さ x に到達するまでの時間を計算できる。深さ x_u, x_1 の間のみかけの移動速度 r は, 地表面からそれぞれの深さに到達するまでの時間 t_{2u}, t_{21} により, $r = (x_1 - x_u) / (t_{21} - t_{2u})$ として土壌層毎に算定される。

3. 数値近似法 (評価法3)

蓄積量比較法 (評価法2) は, 過剰 ^{210}Pb の下方移動速度が土壌内で変動する場合にも適用可能な移動速度評価法の1つであるが, 土壌中の過剰の ^{210}Pb フラックスが放射能壊変によってのみ減衰するという式(7)の仮定が適切かどうか疑問である。実データへ適用する場合にも, 蓄積量の比を計算するという手法上の制限のため, 過剰の ^{210}Pb が存在する最下層の下端までの移動時間を評価できない短所もある。

そこで, 本研究では式(1)を変形し, 数值的に解くことにより, ある深さから次の深さまで過剰の ^{210}Pb が移動する速度及び移動に要する時間を求める数値近似法を第3の移動速度評価法として考案した。

式(5-1)より,

$$r(x)C(x) = k \cdot A_F(x) \quad (12)$$

$$r(x) = k \frac{A_F(x)}{C(x)} \quad (13)$$

移動速度は定義より, 次式のように近似できる。

$$r = \frac{dx}{dt} \sim \frac{\Delta x}{\Delta t} \quad (14)$$

土壌を n 個の層に分割し, 最上層より i 番目の層に注目する。第 i 層の厚さを Δx_i , その距離を移動するのに要する時間を Δt_i , 第 i 層内の過剰 ^{210}Pb の平均濃度を C_i , 無限深さから第 i 層の中心までの過剰の ^{210}Pb の蓄積量を A_{Fi} とする。式(13), (14)より, 第 i 層の中心の移動速度 r_i は, その層内の平均的な移動速度に等しいと考えられ, 次式のように近似計算できる。

$$r_i \sim \frac{\Delta x_i}{\Delta t_i} = k \frac{A_{Fi}}{C_i} \quad (15)$$

第 i 層内の移動時間は次式で計算される。

$$\Delta t_i = \frac{C_i}{k \cdot A_{Fi}} \Delta x_i \quad (16)$$

従って, 土壌中の過剰の ^{210}Pb が, 土壌表面より第 i 番目の層の下端まで移動する時間 t_3 は次式から得られ

Fig. 1 Location map of sampling sites in Kyoto city.

る。

$$t_3 = \sum \Delta t$$

$$= \frac{1}{k} \sum_{n=1}^i \frac{C_n}{A_{Fn}} \Delta x_n \quad (17)$$

この方法では, 分割する土壌層の数を多くすることにより原理上移動速度の計算精度を上げることが可能であるが, 土壌層の分割が細くなるほど分割作業や ^{210}Pb の測定にともなう誤差が増大することに注意する必要がある。

III 調 査

土壌中における過剰 ^{210}Pb の移動速度を評価するため, 前報³⁾と同様に不攪乱土壌を採取した。土壌採取地点は, 土壌中の過剰 ^{210}Pb の分布が定常状態にあり, 少なくとも約 100 年間程度は, 耕作や盛り土等の人為的攪乱を受けていないことが必要である。

このような条件をほぼ満足する地点として, 京都市内の神社の境内を3箇所 (A, B, C) 選び, 土壌中の放射能の深度分布を測定した。A地点は草地 (芝生), B地点は桜の林の中, C地点は松林の中であった。なお, 前報³⁾の土壌は裸地より採取した。土壌採取地点を Fig. 1 に示す。不攪乱土壌の採取方法, 放射能測定法及びデータの処理法等は前報³⁾と同様であるが以下に概要を再記する。

1. 試料の採取

使用したサンプラーを Fig. 2 に示す。内径 6cm のステンレス製円筒容器であり, 上から長さ 4cm × 1 個,

Fig. 2 Schematic view of soil sampler.

1cm×4個，2cm×3個，3cm×3個の計11個のリングを重ね，固定板によりネジ止めしてある。このサンプラーを地表面から垂直に打ち込み不攪乱土壌試料を採取した。

実験室においてサンプラーを分解し，地表面から深さ方向に土壌を分割・採取した。烘乾法（100℃，約24時間）により土壌水分を測定した後，礫・小石を2mmの篩で分別し，篩通過成分を放射線の測定に供試した。

2. 放射線の測定

土壌中の放射線は，4,096チャンネル波高分析器（NAIG社製）付Ge半導体検出器（ORTEC，GMX30190）によりγ線を24時間程度測定し，²¹⁰Pb，²²⁶Ra，¹³⁷Csを定量した。試料は，Geヘッドの直径と同じ内径を持つ効率校正済のアクリル製円筒容器に水平に押し込

み，厚さ均一の線源を作って測定した。

IV 結 果

各地点の土壌の性質をまとめてTable 1 a～cに示す。土壌の乾燥重量，土壌層厚さ，地表面から各土壌層の中心までの深さ，乾燥重量当りの含水比，みかけの密度（仮比重）を示している。第1層の厚さは，雨滴による変形や土壌採取操作にともなう圧密を受けている可能性があるので，第1層のみかけ密度と第2層のみかけの密度は等しいと仮定し，乾燥土壌重量の比より土壌層厚を計算した。みかけの密度は，A地点では上層が小さく下層が相対的に大きいことがわかる。B，C地点のみかけ密度は1g/cm³前後を示しており，小石・礫等が多量に存在する層において大きな値（1.5g/cm³以上）を示している。水分は中下層部で20%前後の値を示しており，最上層ではどの地点もこれより大きい。

²¹⁰Pb，²²⁶Ra，¹³⁷Csの単位みかけ体積中濃度をFig. 3 a～cに示す。どの地点においても，表面の²¹⁰Pb濃度は²²⁶Ra濃度の数倍であり，従来の報告⁴⁾と同様の傾向を示している。²¹⁰Pbは地表面から深さ10cm前後にかけて²²⁶Raより多く，深さ10cmより深いところでは²²⁶Raとの差が小さくなっており，土壌表層付近には過剰の²¹⁰Pbが蓄積していることがわかる。²²⁶Raの深さ方向の変化は²¹⁰Pbに比べ小さく，A地点ではほぼ一定値を示している。

¹³⁷Csは上層に高濃度で分布しており，A地点では深さ約5cmでピーク値を示した後，深さ方向に指数的に減少する。¹³⁷Csの土壌中での移動は²¹⁰Pbと同様に遅く，地表への供給量の変動が土壌中の分布に表れている

Table 1 a Physical properties of soil sample at site A.

Soil layer	Dry soil weight (g)	Thickness (cm)	Mean depth from ground surface (cm)	Water content (%)	Bulk density (g/cm ³)
1	27.66	1.55*	0.78	43.0	0.63
2	17.80	1.00	2.05	41.7	0.63
3	18.98	1.00	3.05	44.2	0.67
4	24.63	1.00	4.05	40.6	0.87
5	28.85	1.00	5.05	37.9	1.02
6	67.41	2.00	6.55	31.8	1.19
7	74.10	2.00	8.55	25.1	1.31
8	75.40	2.00	10.55	25.9	1.33
9	108.45	3.00	13.05	25.1	1.28
10	109.00	3.00	16.05	23.7	1.29
11	133.15	3.00	19.05	21.9	1.57

Table 1 b Physical properties of soil sample at site B.

Soil layer	Dry soil weight (g)	Thickness (cm)	Mean depth from ground surface (cm)	Water content (%)	Bulk density (g/cm ³)
1	10.82	0.42*	0.21	55.3	0.86
2	24.24	1.00	0.92	28.5	0.86
3	32.88	1.00	1.92	17.4	1.16
4	26.25	1.00	2.92	14.7	0.93
5	49.66	1.00	3.92	8.1	1.76
6	66.06	2.00	5.42	20.0	1.17
7	54.34	2.00	7.42	22.7	0.96
8	58.16	2.00	9.42	18.0	1.03
9	95.90	3.00	11.92	24.4	1.13
10	97.61	3.00	14.92	20.7	1.15
11	71.72	3.00	17.92	21.9	0.85

Table 1 c Physical properties of soil sample at site C.

Soil layer	Dry soil weight (g)	Thickness (cm)	Mean depth from ground surface (cm)	Water content (%)	Bulk density (g/cm ³)
1	15.91	0.66*	0.78	39.2	0.86
2	24.22	1.00	2.05	31.3	0.86
3	19.30	1.00	3.05	26.7	0.68
4	46.70	1.00	4.05	20.5	1.65
5	25.77	1.00	5.05	29.8	0.91
6	64.18	2.00	6.55	25.6	1.14
7	54.70	2.00	8.55	31.9	0.97
8	63.21	2.00	10.55	25.9	1.12
9	98.30	3.00	13.05	15.5	1.16
10	81.87	3.00	16.05	16.2	0.97
11	89.63	3.00	19.05	21.1	1.06

* This value was estimated by assuming that bulk density of 1st layer is equal to that of 2nd layer.

ことから、これは核実験によるフォールアウトにより形成された深度分布であると考えられる。B、C地点ではA地点ほど顕著な傾向はみられず、A地点より中下層部での ^{137}Cs の濃度が大きく、これらの地点ではA地点よりも ^{137}Cs の移動速度が大きいことが相違をもたらす原因の1つとして考えられる。

さて、これらの土壌が盛土、切土、耕作等の何らかの人為的撓乱を受けていれば、 ^{210}Pb 、 ^{226}Ra 、 ^{137}Cs の分布は、極端に不連続な分布を示したり、深さ方向に一樣な分布を示すはずである。しかし、 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs の深度分布は、深さ方向に連続的な増加および減少がみられ、大気からの供給により形成されたと考えられる。これら3

地点の土壌が人為的撓乱を受けている可能性はほとんどないと考えられる。

V 考 察

IIで述べた方法により、土壌中の過剰 ^{210}Pb の移動速度の評価を行った。まず、Fig. 3 に示した ^{210}Pb の土壌中分布より、過剰の ^{210}Pb の分布を求める必要がある。本研究では、前報³⁾と同様に、各土壌層の ^{210}Pb 量より、その土壌層中の ^{226}Ra と放射平衡にあると考えられる ^{210}Pb 量を差し引いて過剰の ^{210}Pb 量を計算した。その結果を Fig. 4a~c に示す。B、C地点では多少の変動はあるが、過剰の ^{210}Pb 濃度は片対数紙上で直線的

Fig. 3a Observed depth profiles of ^{210}Pb , ^{226}Ra and ^{137}Cs at site A.

Fig. 3b Observed depth profiles of ^{210}Pb , ^{226}Ra and ^{137}Cs at site B.

Fig. 3c Observed depth profiles of ^{210}Pb , ^{226}Ra and ^{137}Cs at site C.

Fig. 4a Distribution of excess ^{210}Pb at site A. Solid line is obtained from a least-squares fit to the four data excepting upper three data.

Fig. 4b Distribution of excess ^{210}Pb at site B. Solid line is obtained from a least-squares fit to the data.

Fig. 4c Distribution of excess ^{210}Pb at site C. Solid line is obtained from a least-squares fit to the data.

に減少する傾向を明確に示している。A地点でも深さ約4cmより下方では、過剰 ^{210}Pb が直線的に減少しており、この部分の移動機構はB、C地点と同様と考えられる。

(1) 評価法1の結果

式(2)に示す直線関係を評価するために、最小自乗回帰分析を行いその結果を Fig. 4a~c に直線として示した。A地点では、深さと濃度が直線関係を示す約4cmより下方(下部4点のデータ)を解析対象とした。3地点の移動速度 r は、A地点の約4cmより下方において、0.76 mm/y、B地点では1.30 mm/y、C地点では2.02 mm/y が得られた。土壌表面の初期濃度 C_0 は、B地点において109 mBq/cm³、C地点について85.5 mBq/cm³ が得られた。各回帰分析の相関係数 R は0.9を越えており、過剰 ^{210}Pb 濃度と土壌深さは非常に直線関係にあることが分かる。地表面のフラックス $C_0 \cdot r$ は大気からの ^{210}Pb 降下率 E_0 に等しく、B地点で142 MBq/km²・y、C地点で173 MBq/km²・y が得られた。

(2) 評価法2の結果

式(4)で定義される深さ x より下方の過剰の ^{210}Pb 蓄積量 ($A_F(x)$) を Table 2a~c に示す。また、式(11)により、地表面フラックスがある深さに到達するまでの移動時間を計算し、Table 2a~c にあわせて示した。これによれば、各地点において、約100年間の移動時間を評価できることがわかる。また、A、B地点の過剰の ^{210}Pb の全蓄積量はほぼ等しく、C地点ではこれらに比べ大きい。

移動速度について、各土壌層厚を Table 2 より算出した各土壌層の通過に要する時間で除して、Table 3a~c に示した。A地点において、移動速度は上部で早く、下部にゆくにつれて遅くなっている。Table 1a に示すように、A地点ではみかけの密度が上部で小さく下部で大きくなっており、上部の方が間隙が多く移動に関わる経路が大きいことが移動速度の差を生じる一因と考えられる。過剰の ^{210}Pb 分布形状も深さ約4cm付近にピークを示しており、この付近で移動速度が大きく変化していることを示唆している。B地点の移動速度は、最下層で小さくなる以外は1 mm/y以上の早さを示しており、A地点より過剰 ^{210}Pb の移動は全体として早いと考えられる。表面より5層目において移動速度が大きくなっているのは、小石、礫等により、移動経路が狭くなっていることが一因と考えられる。C地点の移動速度は、評価可能な全ての層で0.9 mm/yを越える速度を示しており、B地点よりさらに過剰 ^{210}Pb の移動は早いと考えられる。表面より3~4層目において移動速度が大きくなっ

Table 2a Inventory of excess ^{210}Pb and travel time from surface to each depth after deposition at site A, estimated by the method 2.

Depth (cm)	Inventory (mBq/cm ²)	Travel time (year)
0.00	407±22	0.0
1.55	329±21	6.8±0.6
2.55	284±20	11.6±1.0
3.55	226±17	18.9±1.8
4.55	152±16	31.8±3.8
5.55	95±14	46.9±7.6
7.55	24±9	90.5±34.5

Table 2b Inventory of excess ^{210}Pb and travel time from surface to each depth after deposition at site B, estimated by the method 2.

Depth (cm)	Inventory (mBq/cm ²)	Travel time (year)
0.00	437±29	0.0
0.42	389±28	3.7±0.4
1.42	335±26	8.5±0.7
2.42	280±25	14.3±1.6
3.42	226±24	21.2±2.7
4.42	198±23	25.4±3.4
6.42	119±20	41.8±7.7
8.42	68±18	59.8±16.7
10.72	44±17	73.7±28.2
13.42	6±13	135.5±265

Table 2c Inventory of excess ^{210}Pb and travel time from surface to each depth after deposition at site C, estimated by the method 2.

Depth (cm)	Inventory (mBq/cm ²)	Travel time (year)
0.00	520±25	0.0
0.66	467±24	3.4±0.2
1.66	411±23	7.6±0.5
2.66	378±22	10.3±0.8
3.66	335±21	14.2±1.1
4.66	277±19	20.2±1.7
6.66	194±18	31.6±3.2
8.66	124±15	46.0±6.0
10.66	63±12	67.9±13.9
13.66	24±9	98.4±36.1

Table 3 a Migration rates of site A estimated by the method 2.

Depth (cm)	Travel distance (cm)	Travel time (year)	Migration rate (mm/y)
0.00~1.55	1.55	6.8±0.6	2.28±0.19
1.55~2.55	1.00	4.7±1.2	2.12±0.53
2.55~3.55	1.00	7.4±2.1	1.35±0.39
3.55~4.55	1.00	12.8±4.2	0.78±0.25
4.55~5.55	1.00	15.2±8.4	0.66±0.37
5.55~7.55	2.00	43.5±35.3	0.46±0.37
7.55~9.55	2.00	—	—

Table 3 b Migration rates of site B estimated by the method 2.

Depth (cm)	Travel distance (cm)	Travel time (year)	Migration rate (mm/y)
0.00~0.42	0.42	3.7±0.4	1.14±0.11
0.42~1.42	1.00	4.8±0.9	2.10±0.41
1.42~2.42	1.00	5.8±1.8	1.71±0.53
2.42~3.42	1.00	6.9±3.1	1.45±0.65
3.42~4.42	1.00	4.2±4.3	2.41±2.49
4.42~6.42	2.00	16.5±8.4	1.22±0.62
6.42~8.42	2.00	18.0±18.4	1.11±1.14
8.42~10.42	2.00	13.9±32.8	1.44±3.41
10.42~13.42	3.00	61.9±267	0.48±2.09
13.42~16.42	3.00	—	—

Table 3 c Migration rates of site C estimated by the method 2.

Depth (cm)	Travel distance (cm)	Travel time (year)	Migration rate (mm/y)
0.00~0.66	0.66	3.4±0.2	1.93±0.13
0.66~1.66	1.00	4.2±0.6	2.41±0.35
1.66~2.66	1.00	2.7±0.9	3.69±1.28
2.66~3.66	1.00	3.9±1.3	2.57±0.89
3.66~4.66	1.00	6.1±2.0	1.65±0.55
4.66~6.66	2.00	11.4±3.7	1.75±0.56
6.66~8.66	2.00	14.4±6.8	1.39±0.66
8.66~10.66	2.00	21.9±15.0	0.91±0.63
10.66~13.66	3.00	30.6±38.6	0.98±1.24
13.66~16.66	3.00	—	—

ているのは、やはり、小石、礫等により、移動経路が狭くなっていることが一因と考えられる。単位面積当りの全蓄積量（式(10)）によって、大気からの ^{210}Pb 降下率 E_0 を評価すると、A 地点で 126 MBq/km²・y、B 地点

で 136 MBq/km²・y、C 地点で 162 MBq/km²・y が得られた。B、C 地点の結果は、評価法 1 で評価した降下率と 10% 程度の誤差で一致している。

(3) 評価法 3 の結果

Table 4 a Migration rates and travel times estimated by the method 3 at site A.

Depth (cm)	Concentration (mBq/cm ³)	Cumulative content; A_{Fi} (mBq/cm ²)	Migration rate (mm/y)	Travel time (year)
0.00~1.55	50.0	368	2.29 ± 0.26	6.8 ± 0.8
1.55~2.55	45.1	307	2.12 ± 0.36	4.7 ± 0.8
2.55~3.55	58.5	255	1.36 ± 0.24	7.4 ± 1.3
3.55~4.55	74.4	189	0.79 ± 0.10	12.7 ± 1.7
4.55~5.55	57.0	123	0.67 ± 0.11	14.9 ± 2.5
5.55~7.55	35.1	60	0.53 ± 0.13	37.9 ± 9.0
7.55~9.55	12.2	12	0.31 ± 0.17	64.4 ± 34.3

Table 4 b Migration rates and travel times estimated by the method 3 at site B.

Depth (cm)	Concentration (mBq/cm ³)	Cumulative content; A_{Fi} (mBq/cm ²)	Migration rate (mm/y)	Travel time (year)
0.00~0.42	112.1	413	1.14 ± 0.19	3.7 ± 0.6
0.42~1.42	53.7	362	2.10 ± 0.35	4.8 ± 0.8
1.42~2.42	55.9	307	1.72 ± 0.28	5.8 ± 1.0
2.42~3.42	54.0	253	1.45 ± 0.24	6.9 ± 1.1
3.42~4.42	27.3	212	2.41 ± 0.70	4.2 ± 1.2
4.42~6.42	39.6	159	1.24 ± 0.23	16.1 ± 3.0
6.42~8.42	25.4	94	1.14 ± 0.30	17.5 ± 4.6
8.42~10.42	11.9	56	1.47 ± 0.67	13.7 ± 6.2
10.42~13.42	12.6	26	0.63 ± 0.38	47.9 ± 29.4
13.42~16.42	2.2	3	0.47 ± 1.29	64.4 ± 178

Table 4 c Migration rates and travel times estimated by the method 3 at site C.

Depth (cm)	Concentration (mBq/cm ³)	Cumulative content; A_{Fi} (mBq/cm ²)	Migration rate (mm/y)	Travel time (year)
0.00~0.66	79.2	494	1.93 ± 0.27	3.4 ± 0.5
0.66~1.66	56.6	439	2.41 ± 0.34	4.1 ± 0.6
1.66~2.66	33.2	394	3.69 ± 0.76	2.7 ± 0.6
2.66~3.66	42.9	356	2.58 ± 0.42	3.9 ± 0.6
3.66~4.66	57.4	306	1.65 ± 0.24	6.1 ± 0.9
4.66~6.66	41.4	236	1.77 ± 0.21	11.3 ± 1.3
6.66~8.66	35.0	159	1.42 ± 0.23	14.1 ± 2.3
8.66~10.66	30.7	94	0.95 ± 0.19	21.1 ± 4.1
10.66~13.66	12.9	44	1.05 ± 0.34	28.5 ± 9.1
13.66~16.66	8.1	12	0.47 ± 0.24	64.4 ± 33.0

最下層から第 i 層の中心までの蓄積量 (A_{Fi}) は、最下層から第 $i+1$ 層までの蓄積量の合計に第 i 層の蓄積量の $1/2$ を加えて計算した。この A_{Fi} とともに、式

(15) で定義される各土壌層の過剰 ^{210}Pb の移動速度を **Table 4 a~c** に示す。また、式(16)により、過剰 ^{210}Pb が各土壌層を通過する時間を計算し、**Table 4 a~c** にあ

Fig. 5 Comparison of travel times at site B.

Fig. 6 Comparison of travel times at site C.

わせて示した。各土壌層の移動速度の評価結果は、下から2層目(評価法2では評価可能な最下層)の評価結果が、評価法2に比べやや大きな値を示していることを除いて、評価法2の結果(Table 3)とほぼ等しい値を示している。特別な仮定を含まない評価法3の結果と評価法2の結果が良く一致することから、式(7)の仮定は妥当なものであることがわかる。

また、各地点の過剰 ^{210}Pb が存在する最下層の移動速度及び移動時間は、評価法2において評価不可能であったが、評価法3では過剰 ^{210}Pb が存在する全土壌層の移動速度や移動に要する時間を評価することが可能である。ところが、各地点の最下層(Table 4a~cの最下行)の移動時間を比較すると、3つの地点とも64.4年という等しい評価値を示している。各地点の過剰 ^{210}Pb が存在する最下層の位置を m とし、その中心より下層の過剰 ^{210}Pb 蓄積量 A_{Fm} は、次式となる。

$$A_{Fm} = C_m \cdot \Delta x_m / 2 \quad (18)$$

式(18)を式(16)に代入すると

$$\begin{aligned} \Delta t_m &= \frac{C_m}{k \cdot A_{Fm}} \Delta x_m \\ &= \frac{2}{k} = 64.4 \end{aligned} \quad (19)$$

となり、最下層の ^{210}Pb の移動時間は土壌採取地点に無関係に一定値となる。評価法3では過剰の ^{210}Pb が存在する最下層の移動速度、移動時間を計算することは、原理上可能であるが、残念ながら算定値は意味のあるものとは考えられない。評価法3においても、過剰 ^{210}Pb が存在する最下層の移動速度、移動時間を評価できないという評価法2の欠点を、本質的に解消することはできなかった。しかし、評価法3において、移動速度を評価する上で特別な仮定はなく、また移動速度を算定するまでの

Table 5 Migration rates and arithmetic mean of migration rates.

Site	Method 1 (mm/y)	Method 2 average (mm/y)	Method 3 average (mm/y)
A	—	1.28 ± 0.36	1.15 ± 0.21
B	1.30 ± 0.15	1.45 ± 1.66	1.38 ± 0.56
C	2.02 ± 0.29	1.92 ± 0.78	1.79 ± 0.36

計算回数も評価法2よりも少ないため、伝播する誤差が小さくなる利点もあり、数値近似法はより適切な評価法であると考えられる。

(4) 各評価法の比較

本研究で示す3種類の移動速度評価法が適用できたB, C地点について、地表面に沈着した過剰 ^{210}Pb がある深さに到達するまでの時間と深さをFig. 5, 6に示した。どの評価方法を適用しても上中層部ではその推定値に大きな差はみられなかった。前述したように、評価法2, 3の結果がほぼ一致していることがこれらの図からもわかる。中下層部では、評価法1に比べ評価法2, 3は移動時間を大きく評価する傾向がある。既報⁵⁾では、C地点の中下層部における評価法3の結果が、評価法1と評価法2の中間の値を示したが、これは A_{Fi} に無限深さから第 i 層の上部までの蓄積量を採用したためであり、異なる計算手法を使用したためである。第 i 層の平均濃度 C_i は、第 i 層の中心位置の代表値と考えられ、本研究で示したように A_{Fi} には第 i 層の中心より下方の蓄積量を採用することが適当と考えられる。

各地点の過剰 ^{210}Pb の平均的な移動速度をTable 5に示す。評価法1の結果及び評価法2, 3については各深さに対する値の相加平均である。これによれば、各方法で評価した移動速度は地点ともに10%程度の差で一致

していることが分かる。また、過剰の ^{210}Pb の移動は A, B, C 地点の順に早いことが分かる。これらの値はおおよそ $1\sim 2\text{mm/y}$ であり、前報³⁾ の評価結果 (0.7mm/y) よりも大きな値を示した。従来、過剰の ^{210}Pb の蓄積深さから土壌中移動の速さを推定し比較していたが、移動速度を数値として評価することで深さ方向や地域ごとの移動挙動の定量的な比較が可能となる。今後は、さらにデータを収集しこのような移動速度の差を生じる原因についても検討する必要がある。

堺市における 1978~1990 年の大気からの ^{210}Pb 降下率は、相加平均で $153(126\sim 208)\text{MBq/km}^2\cdot\text{y}$ であることが報告¹⁾ されている。京都市と堺市の単純な比較はできないが、土壌蓄積量より評価した京都市内の 3 地点の平均降下率は、 $141(126\sim 162)\text{MBq/km}^2\cdot\text{y}$ であり、堺市とかなり近い値が得られた。このことから、本研究で推定した京都市の ^{210}Pb 降下率の信頼性はかなり高いと考えられる。

上述のように、本研究の方法により土壌中の過剰の ^{210}Pb の移動速度を評価することが可能である。評価法 1 は、深さ方向に過剰の ^{210}Pb が指数的に減少する分布の場合にのみ適用可能であり、評価方法 2, 3 には適用する分布形状に制限はない。また、評価法 1 は推定できる移動時間 (深さ) に制限はないが、評価法 2, 3 では過剰の ^{210}Pb が検出できる深さまでしか適用できず、100 年前後と短い、 ^{210}Pb の年間降下量の推定も可能である。

VI 結 論

不攪乱土壌中の過剰 ^{210}Pb の移動を記述する移流方程式 (定常、一次元) を数値的に解くことにより、土壌中の移動速度を評価する方法 (数値近似法) を新たに提示した。

一定移動速度法は、過剰の ^{210}Pb が深さ方向に指数関数的に減少する分布にしか適用できないが、回帰式により平均的な移動速度を求めることができる。蓄積量比較法および今回検討した数値近似法は複雑な過剰の ^{210}Pb の分布にも適用でき、土壌層内での移動速度の変動を評価することが可能である。さらに数値近似法には、特別な仮定が含まれておらず、3 つの移動速度評価法のなかでは最良の方法であると考えられる。

京都市内において採取した 3 地点の不攪乱土壌中の ^{210}Pb を測定し、3 つの方法によって土壌中移動速度を評価し、結果を比較した。各方法で評価された土壌中の過剰の ^{210}Pb の平均的な移動速度はほぼ等しく、おおよそ $1\sim 2\text{mm/y}$ であった。京都市市街地土壌の過剰 ^{210}Pb の

土壌中移動速度は、高々数 mm/y であり、その移動は非常に遅いものである。また、京都市内の平均的な ^{210}Pb 降下率は、おおよそ $140\text{MBq/km}^2\cdot\text{y}$ と推定された。本研究で示した方法により、土壌中の ^{210}Pb 測定値から過剰の移動速度及び年間降下量を評価することが可能である。

土壌中の放射能の測定及びデータ整理に多くのご協力とご助言を頂いた京都大学原子炉実験所の今中哲二、小出裕章の両氏に厚くお礼を申し上げます。また、農業研究センター (農林水産省) の前田守弘氏には貴重なご助言を戴いた。ここに記して感謝いたします。

記 号 表

- A_F : 単位面積当りの過剰の ^{210}Pb の全蓄積量 (Bq/cm^2)
- A_{Fi} : 第 i 層の中心より下方の単位面積当りの過剰の ^{210}Pb 蓄積量 (Bq/cm^2)
- A_{Fm} : 第 m 層の中心より下方の単位面積当りの過剰の ^{210}Pb 蓄積量 (Bq/cm^2)
- $A_F(x)$: 深さ x より下方の単位面積当りの過剰の ^{210}Pb 蓄積量 (Bq/cm^2)
- C : 土壌中の過剰の ^{210}Pb の単位体積濃度 (Bq/cm^3)
- C_0 : 地表面における過剰の ^{210}Pb 単位体積濃度 (Bq/cm^3)
- E_0 : ^{210}Pb の地表面降下率 ($\text{Bq/cm}^2\cdot\text{y}$) = ^{210}Pb の地表面フラックス ($\text{Bq/cm}^2\cdot\text{y}$)
- e : 自然対数の底
- i : 分割した土壌層の番号 ($1\sim n$)
- k : ^{210}Pb の崩壊定数 ($1/\text{y}$)
- m : 過剰の ^{210}Pb が存在する土壌層の最下層の位置
- $q_F(x)$: 深さ x における過剰 ^{210}Pb のフラックス ($\text{Bq/cm}^2\cdot\text{y}$)
- r : 過剰 ^{210}Pb の土壌中移動速度 (cm/y)
- t : 時間
- t_1 : 評価法 1 で算出した土壌表面の ^{210}Pb が深さ x まで進むのに要した時間 (y)
- t_2 : 評価法 2 で算出した土壌表面の ^{210}Pb のフラックスが深さ x まで達するのに要した時間 (y)
- t_3 : 評価法 3 で算出した土壌表面の ^{210}Pb が深さ x まで進むのに要した時間 (y)
- x : 深さ (cm)

参 考 文 献

- 1) 松並忠男, 恵 和子: 南大阪における ^{210}Pb および ^7Be 降下量, 環境ラドン, pp.195-206 (1992), 電子科学研究所.
- 2) I.M. FISENNE; Distribution of ^{210}Pb and ^{226}Ra in soil, UCRL-18140, pp.145-158 (1968).
- 3) 颯田尚哉, 尾藤俊文, 西牧研壮; 不攪乱土壌中の過剰の ^{210}Pb の簡易推定法, 保健物理, **28**, 23 (1993).
- 4) H.E. MOORE and S.E. POET; ^{210}Pb fluxes determined from ^{210}Pb and ^{226}Ra soil profiles, *J. Geophys. Res.*, **81**, 1056 (1976).
- 5) 織田大祐, 颯田尚哉, 西牧研壮; 表層土壌における過剰の Pb-210 及び安定鉛の分布とその挙動に関する研究, 環境衛生工学研究, **7**, 171 (1993).