

寄稿

福島第一原発事故で発生した高放射線土「黒い土」と その高い放射線の原因

—スメクタイト内の放射性セシウム濃集の詳細—

鈴木 和博¹、千葉 茂樹^{2*}、諏訪 兼位³

【要約】 2011年3月の福島第一原発事故により、福島県には放射性物質が降り注いだ。その結果、アスファルトやコンクリートの人工物周辺の窪地には、高い放射線を出す土、いわゆる「黒い土」が出現した。その放射線源は、原発から放出された放射性セシウムである。本論では、黒い土をいくつかの手法で分析し、高い放射線を出す原因を調べた。まず、黒い土を粒度で区分し、構成物を腐植群と鉱物群に分け線量を比較した。その結果、鉱物群の線量が高く、「放射性セシウムは鉱物群に存在する」と推定した。次に、どの鉱物に放射性セシウムが存在するかをX線回折で分析した。その結果、X線回折のピーク(2 θ)が底面間隔1.4 nmと0.71 nmにあることから、「放射性セシウムが存在する鉱物はスメクタイトである」と特定した。次に、スメクタイトの層間の陽イオンの挙動を、イオン交換処理と γ 線スペクトル分析・蛍光X線分析で調べた。その結果、「スメクタイトの層間では、陽イオンの多くが移動(溶脱)するのに対し、セシウムイオンは移動(溶脱)しにくいこと」が分かった。この特異性のために、地表水などに溶けている放射性セシウムは、スメクタイトの層間に段階的(徐々に)に濃集すると推定した。これらの要因により、黒い土が高い放射線を出すようになったと結論した。

キーワード：黒い土、放射性セシウム、福島第一原発事故、スメクタイト、層間陽イオン



1. はじめに

2011年3月11日に東北地方太平洋沖地震が発生し、直後に福島第一原子力発電所事故(以下、原発事故)が発生した。このため、福島県を中心とする東日本は放射性物質に濃厚に汚染された(図1)¹⁾。

著者の千葉は、当時福島市渡利に居住し、同地域の環境変化や著者自身の身体的異変を感じた²⁾。

この異変を後世に残すべく、原発事故汚染の調査を開始した。調査の中で千葉は、空間線量率が高い場所の地面に、特徴的な黒い土があることに気が付いた²⁻¹¹⁾。その黒い土の線量の最高値は、¹³⁴Cs: 4.30 MBq/kg、¹³⁷Cs: 10.00 MBq/kg (2012年4月30日千葉採集、2013年7月10日小出裕章氏測定)であった^{11,12)}。このように高い放射線を出す土

2020年10月18日受付 2020年12月21日受理

*Corresponding author: E-mail: s.chiba@vesta.ocn.ne.jp

¹名古屋大学名誉教授(故人) (〒468-0008 愛知県名古屋市天白区一本松 1-903-101)

²福島自然環境研究室 (〒969-3141 福島県耶麻郡猪苗代町大字磐里字村東 4-3)

³名古屋大学名誉教授(故人) (〒465-0065 愛知県名古屋市名東区梅森坂 1-1020)

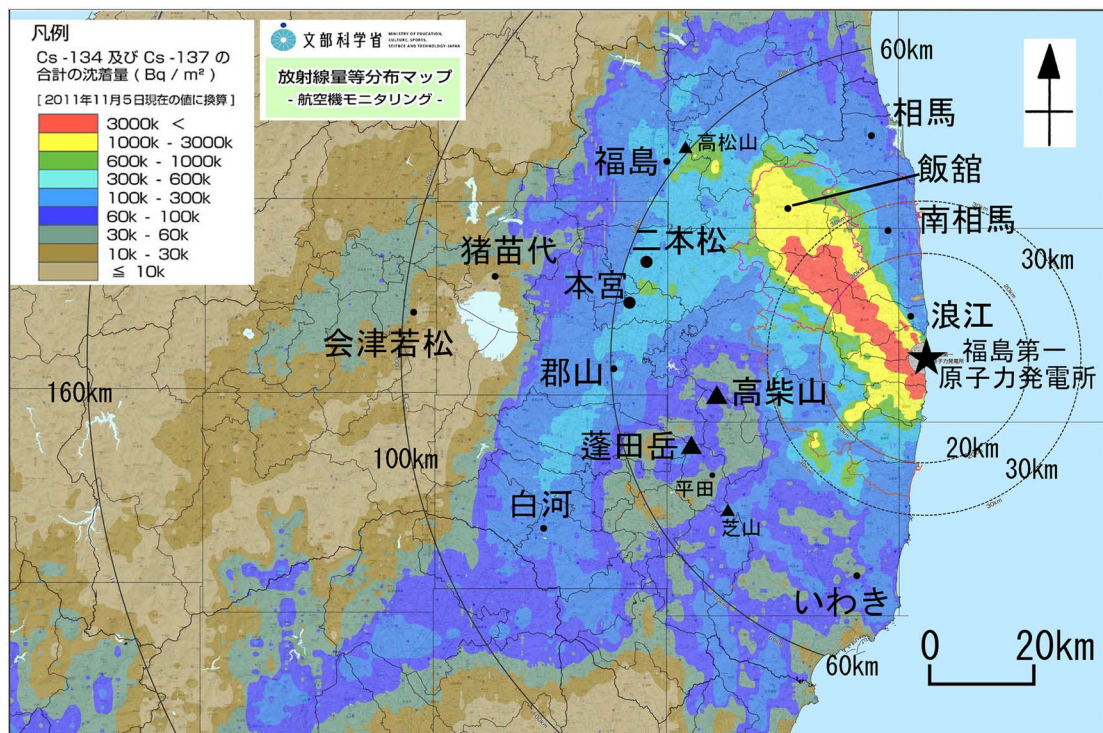


図1 2011年の福島第一原発事故による放射性物質の汚染地図¹⁾

出典：放射線量等分布マップ—航空機モニタリング— 文部科学省, <https://ramap.jmc.or.jp/map/mapdf/area2.html>

はインターネット上でも話題となり、「黒い土」や「路傍の土」と呼ばれた¹³⁻¹⁵⁾。しかし、学術的報告は少ない。諏訪¹⁶⁾はこの黒い土に着目し、著書「地球科学の開拓者たち」の中で「福島第一原発事故による放射性物質汚染—特に黒い物質について—」の項を設け、2014年までの千葉茂樹²⁻¹²⁾、赤井純治¹⁷⁾、田崎和江¹⁸⁾、鈴木和博ら¹⁹⁾の業績を5頁にわたって紹介した。

本論の先駆となる報告書¹⁹⁾では、福島県内の黒い土についてX線回折による分析・蛍光X線による分析を行い、「黒い土が高い放射線を出す原因は、黒い土に含まれるスメクタイトに放射性セシウムが選択的に吸着するため」と結論した。本論では、これを踏まえて、スメクタイト内での放射性セシウムの挙動(濃集)について論じる。

次に、本研究の経緯と著者らの分担を説明する。上記のように、福島県在住の千葉は2011年3月の原発事故直後から調査を行い、状況を報告した²⁻⁹⁾。この報告書を見た諏訪が千葉に連絡し、当時名古屋大学の招聘教員であった鈴木も含め3人で共同研究をすることとなった。三者の研究分担は以下の通りである。千葉は野外において黒い土の産状

の記載と試料を採集した。鈴木は名古屋大学の実験設備を用いて試料を分析した。諏訪は全体のプロデュースをした。

また、本論を査読付き論文ではなく、寄稿とした経緯は以下の通りである。鈴木は2012~2015年に実験を行い、その結果をまとめて論文の下書き原稿(本論の元となるもの)を作成した。ところが、2016年10月15日に鈴木が急死した。著者らは、本論の先駆となる報告書¹⁹⁾において、「黒い土が高い放射線を出す原因は、黒い土に含まれるスメクタイトに放射性セシウムが選択的に吸着するため」と結論した。しかし、この選択的に吸着するメカニズムの解明は残されたままであった。鈴木が残した下書き原稿は、その「選択的に吸着するメカニズムを解明したもの」であり、公表すべき内容であった。また千葉の手元には、鈴木から送られた「実験結果・考察の原稿」と「関連資料」があった。この経緯から、2020年に千葉が鈴木の下書き原稿を基に本論を作成した。本論の項目の2、5、6(3)は、鈴木が残した原稿に千葉が修正を加えた。項目の6(1)、6(2)は、千葉が鈴木から送られた資料を基に作成した。これ以外は千葉が新たに執筆した。

このようにして作成した本論であるが、鈴木逝去により追加の実験や再検証はできない。このような理由から本論を寄稿として発表することとした。

2. これまでの研究

まず、黒い土に含まれる放射線を出す物質について検討する。2011年3月の福島第一原発事故では、初期の放出物にヨウ素(^{131}I , ^{132}I , ^{133}I)、ランタン(^{140}La)、テルル(^{129}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$, ^{132}Te)、テクネチウム($^{99\text{m}}\text{Tc}$)など比較的半減期の短い物質の放射線が大量に含まれていた。しかし、2011年6月～7月には、放射線源の主体は ^{134}Cs と ^{137}Cs になっていた²⁰⁻²²⁾。この事実から、黒い土の高い放射線の線源は放射性セシウムと考えられる。

黒い土は植物起源の黒色微細片を比較的多く含んでいるため、放射性セシウムは「主として植物に濃集している」と考えられたこともあった。しかし、2012年の福島県の野草の線量は600～9,000 Bq/kg²³⁾であり、黒い土の線量^{11,12)}に及ばない。一方、地衣類やイシクラゲ^{18,24)}あるいはミミズ・珪藻などの微生物²⁵⁾・細菌¹⁷⁾が、放射性セシウムを選択的に吸収して高い線量になった可能性も指摘されている。また、放射性セシウムは土壌の粘土粒子^{17,26)}、特に風化黒雲母²⁷⁾あるいは鉄ス멕タイト²⁸⁾に濃集するとの報告もある。鈴木ら¹⁹⁾は、黒い土が高い放射線を出す原因として、「ス멕タイトに放射性セシウムが吸着しているため」と結論した。一方、千葉²⁹⁾は黒い土の産状から、「道路・駐車場・屋根などの広い範囲から放射性セシウムを含む物質が雨で洗い流されて、水溜まりに集積したために高い線量になった」と考えた。

3. 黒い土の野外の産状

(1) 放射線測定器

本論で使用した放射線計を以下に記載する。

- ・RPI社製Rad-Monitor GM1：アナログ対数メーターで表示は0～2000 cps。GM管プローブは開口6 cm²。2011.05.06 EHSS校正。
 - ・LUDLUM社製 MODEL3+プローブ44-9型：アナログメーター。パンケーキ型GM管プローブ。開口15 cm²。販売者校正。
- 両者の実測値(β線+γ線)の換算は、LUDLUM3+44-9の実測値(cpm) × 0.0076 = Rad-Monitor GM1の値(cps)¹¹⁾である。
- ・日立製TCS-172B(171)：NaIシンチレーション

式サーベイメーター。エネルギー保障回路内蔵。福島県の公的機関で空間線量率の測定に使用されているもの。

- ・НЕЙВА ИР-001：ロシア製デジタル式放射線測定器(GM管)。

(2) 野外の産状

著者の千葉は空間線量率の調査の中で、高い空間線量率を測定した地点の地表に、特徴的な黒い土があることに気が付いた^{2,10)}。その土は周囲とは明らかに違った黒色で、表面には皺模様や乾裂(クラック)が発達し、お菓子のマクロンや歌舞伎揚げのようであった。これらの面積は、最大でも数平方メートル程度で、厚さも3 cm程度であった。これらが存在する場所はアスファルトやコンクリートからできた平面の隅の部分であった。この他に高い空間線量率が検出されたのは、人工物の継ぎ目・裂け目、雨樋の下、水溜まりの跡(干上がったもの)であった。具体的には、駐車場の端や道路の端が多かった。

また、これらの黒い土は移動することがあった¹⁰⁾。一例を挙げると、2011年7月4日、福島市渡利字岩崎町の仏眼寺の駐車場に線量500 cps(地表1 cm、Rad-Monitor GM1、β線+γ線)の乾裂のある黒い土があった。同年8月18日、同じ場所には粗粒砂のみがあり、線量は40 cps(地表1 cm、Rad-Monitor GM1、β線+γ線)に下がった。2012年4月21日には再度、乾裂の発達した黒い土が確認され、線量は15,200 cpm(地表1 cm、LUDLUM3+44-9、β線+γ線、Rad-Monitor GM1の換算値116 cps)に上昇した。これらの原因は雨水による物質の移動と考えられる¹⁰⁾。2011年7月4日から8月18日までの間、福島市には大雨洪水警報が複数回発令された。この豪雨により、地表に多量の雨水が流れ、黒い土が移動したと考えられる。また、2012年1月9日に岩手県一関市花泉町永井の住宅の雨樋の下で見つかった黒い土の線量は10,000 cpm(地表1 cm、LUDLUM3+44-9、β線+γ線、Rad-Monitor GM1の換算値76 cps)であったが、これより半年前の2011年8月の時点では、雨樋の下に黒い土は無かった。これらの観察から、高線量の黒い土は、雨水で生じた地表水で運ばれ窪地に堆積することもあれば、逆に大雨の際には削り取られて下流に運ばれることもあると考えられる。

4. 試料

本稿の実験で使用した黒い土の線量率を表1に、野外で撮影した写真を図2に示す。

5. 肉眼および顕微鏡下での特徴

多くの場合、黒い土の表層部はシルト～粘土サイズの鉱物粒子・植物起源と考えられる不規則形の黒色細片からなる。下層部には粗粒シルト($\phi 1/16 \sim 1/32$ mm)や砂($\phi 2 \sim 1/16$ mm)サイズの鉱物粒子・岩石片や黒色の植物片が多く存在する。黒色細片には、アスファルト片やゴム片、植物起源と考えられる細長い物が含まれている。アスファルト片やゴム片は、試料採集の際に、千葉が肉眼でその存在を確認した。後述の実験の灰化の際に、試料0430ではアスファルト片やゴム片に由来すると推定される弱い異臭が検知された。

試料0430(表1)の表層部は、極めて細粒で、肉眼で植物片とわかるものは少ない。これを顕微鏡で観察すると、黒色細片の中に植物片を確認した(図3)。この植物片は、透過光で褐色～濃褐色のもの(A)、草の茎(B)、細胞膜を含む植物片(C)、イシクラゲ(D)である。これらを800°Cで灰化すると、黒色が消えて茶褐色となり、質量は55～70%に減少した。

6. 分析

鈴木ら¹⁹⁾は黒い土を粒度ごとに分け、鉱物と有機物の割合を測定した。粒度分けした試料を灰化後、ホウ酸リチウムを添加してガラスビードを作成し、線量を測定した。その結果、有機物が多い試料ほど線量が低いことが分かった。この事実から、「放射性セシウムは、鉱物に存在する可能性が高い」と考えた。さらに、X線回折による分析・蛍光X線による分析から、「放射性セシウムが粘土

鉱物のスメクタイトに選択的に濃集する」と結論した。本論では、これを踏まえ、「放射性セシウムがスメクタイトに濃集する要因」を検討する。

(1) 機材

鉱物の分析には、いくつかの方法があるが、今回は二つの方法で分析した。ひとつは「X線回折計を用いて結晶構造を調べる方法」、もうひとつは「蛍光X線分析装置を用いて化学組成を調べる方法」である。この二つの方法を用いて、結晶構造や化学組成から鉱物を特定し、放射性セシウムがスメクタイトに濃集した原因を調べた。

実験は、名古屋大学年代測定総合研究センター(現宇宙地球環境研究所)で行った。X線回折計は理学製MiniFlex X線回折計、蛍光X線分析装置は島津製XRF1800を使用した。試料の γ 線スペクトルはキャンベラ製InSpector1000にNaIプローブを装着して行った。さらに、試料の線量率(γ 線)測定は日立製TCS-171を用いた。

実験機器の設定は、MiniFlex X線回折計(加速電圧30 kV、電流15 mA、 $1^\circ/\text{min.}$)、島津製XRF1800(管球電圧40 kV、管球電流70 mA(微量成分は95 mA))である。

a) X線回折分析の原理(図4)

原子が規則的に並んだ結晶にX線を照射させると、回折によって特定の方向で強いX線が観察される。原子のつくる一群の面(面間隔d)に対して角度 θ で波長 λ のX線が入射するとき、最初の面と次の面で反射したX線には $2d \sin \theta$ の光路差が生じる(図4A)。この光路差がX線の波長の整数倍、即ち、 $2d \sin \theta = n\lambda$ (nは整数)であるとき、位相が一致して回折が起きる(ブラッグの法則)。したがって試料をX線回折装置(図4B)にかけると、含まれている結晶の面間隔(d)に応じた角度(θ)に

表1 「黒い土」の線量率

試料No	採取日	採取場所	空間線量率 (地上1 m)	地表線量
0430	2012.04.30	飯館村「ニュートラックいいたて」 アスファルト駐車場	3.24 $\mu\text{Sv/h}$ (HP-001)	80000 CPM (LUDLUM3+44-9)
0519	2012.05.19	飯館村長泥 ガソリンスタンド コンクリート敷地	8.01 $\mu\text{Sv/h}$ (TCS-172B)	90000 CPM (LUDLUM3+44-9)
1006A	2012.10.06	猪苗代町磐里 アスファルト借家敷地	0.12 $\mu\text{Sv/h}$ (HP-001)	
1006B	2012.10.06	猪苗代町磐里 アスファルト借家敷地	0.16 $\mu\text{Sv/h}$ (HP-001)	
1006C	2012.10.06	猪苗代町磐里 アスファルト借家敷地	0.11 $\mu\text{Sv/h}$ (HP-001)	

出典：千葉茂樹，諏訪兼位，鈴木和博：福島県の放射性汚染土壌－とくに黒い物質－の野外の産状について，名古屋大学加速器質量分析計業績報告書，XXIV，78-96(2013)



図2 黒い土の野外の産状

ピークをもつX線回折パターンが得られる。しばしば入射X線としてはCuK α 線(特性X線、図5A・B参照)が使われ、その波長は $\lambda = 0.15418 \text{ nm}$ である。鉱物によって原子配列や周期が異なるため、

回折ピーク位置(面間隔d)の組合せ及びその強度比から鉱物の種類を調べることができる。

b) 蛍光X線分析の原理(図5)

蛍光X線分析は、試料にX線を照射したときに

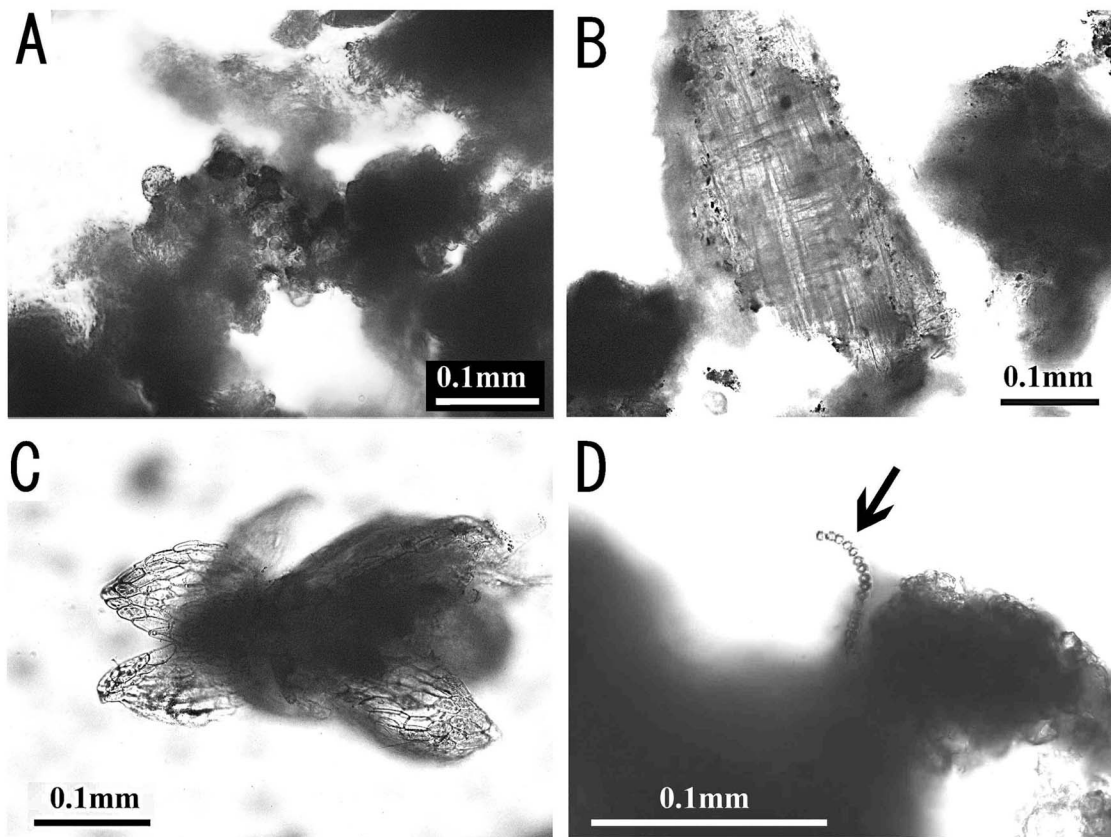


図3 試料0430の鏡下(透過光)の状態
 (A) 黒色細片の薄いものは褐～濃褐色であるが、内部組織は判然としない。 (B) 維管束の明瞭な植物片。
 (C) 細胞壁が見える植物細片。 (D) イシクラゲ(念珠藻、矢印)

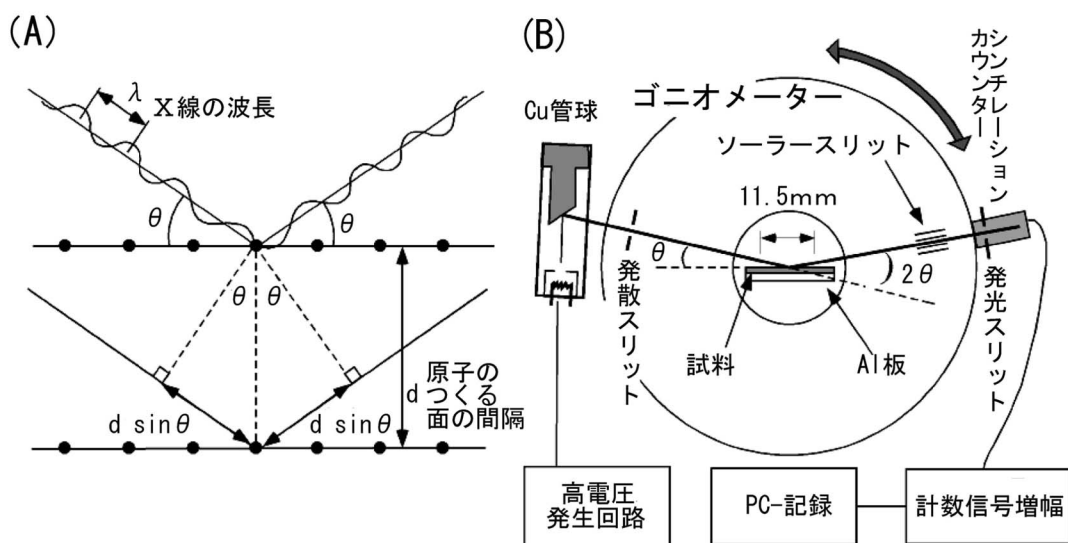


図4 X線回折の原理
 (A) 結晶におけるX線の回折 (B) X線回折計のゴニオメーター (角度計測器)

発生する特性X線の強度を測定することによって、化学組成を推定するものである。

物質に一定以上のエネルギーをもつX線が照射されると、その物質を構成する原子の内殻(K殻)電子が励起されて(弾き出されて)空孔が生じる(図5A)。この空孔に外殻(例えばL殻)の電子が遷移するときに特性X線が放射される(図5B)。これを検出して、物質の化学組成を推定する。特性X線の波長(エネルギー)は内殻と外殻のエネルギー差に対応し、その値は元素ごとに固有である。波長(エネルギー)を決める分光法には、ブラッグの法則を使って結晶により分光する方法(波長分散法)と高いエネルギー分析能力をもつ半導体検出器を使用する方法(エネルギー分散法)がある。

今回行った蛍光X線分析は、島津製XRF-1800を用いた。XRF-1800は波長分散法を採用している(図5C)。波長分散法では、試料から発生した蛍光X線のうち、ソーラスリット(薄板を0.1 mm くらいの間隔で平行に並べたもの)を通過した、ほぼ平行な成分を分光結晶に入射させる。分光結晶ではブラッグの条件を満たした波長のみが回折

して検出器に到達するので、 θ を変えることにより特性X線の波長(エネルギー)が決定できる。X線回折の場合には波長既知の入射X線を用いて結晶の面間隔 d を測定するのに対して、蛍光X線分析では面間隔 d が既知の分光結晶を用いて、蛍光X線の波長を測定する。 θ 範囲は有限であるので、複数の分光結晶を組合せて、波長の長い軽元素から波長の短い重元素までを分析する。

(2) スメクタイトとは(図6、図7)

鈴木ほか¹⁹⁾では、「黒い土が高い放射線を出す原因は、スメクタイトに放射性セシウムが吸着しているため」とした。ここでは、本論を深める前に、スメクタイトとはどのような鉱物かを説明する。

スメクタイトは層状珪酸塩鉱物である。まず、珪酸塩鉱物について説明し、続いて層状珪酸塩鉱物について説明する。なお、文中のA~Dは図6の記号A~Dに対応する。

珪酸塩鉱物の骨格は、珪素(Si)原子と酸素(O)原子がつくる SiO_4 四面体である。これは正四面体各頂点に酸素原子があり、このピラミッドの中心

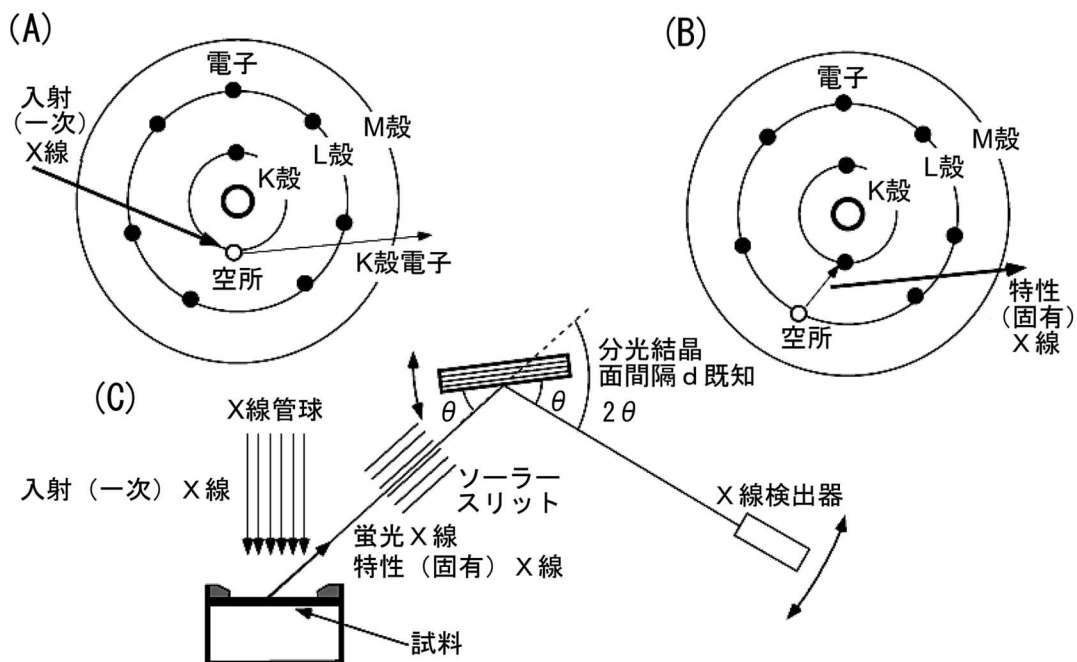


図5 蛍光X線分析の原理

(A) 入射X線によりK殻の電子が弾き出され、K殻に空所ができる。(B) その空所にL殻の電子が移動する。その際、両殻のエネルギーの差の電磁波(この場合X線)が放射される。(C) 蛍光X線分析装置の模式図。

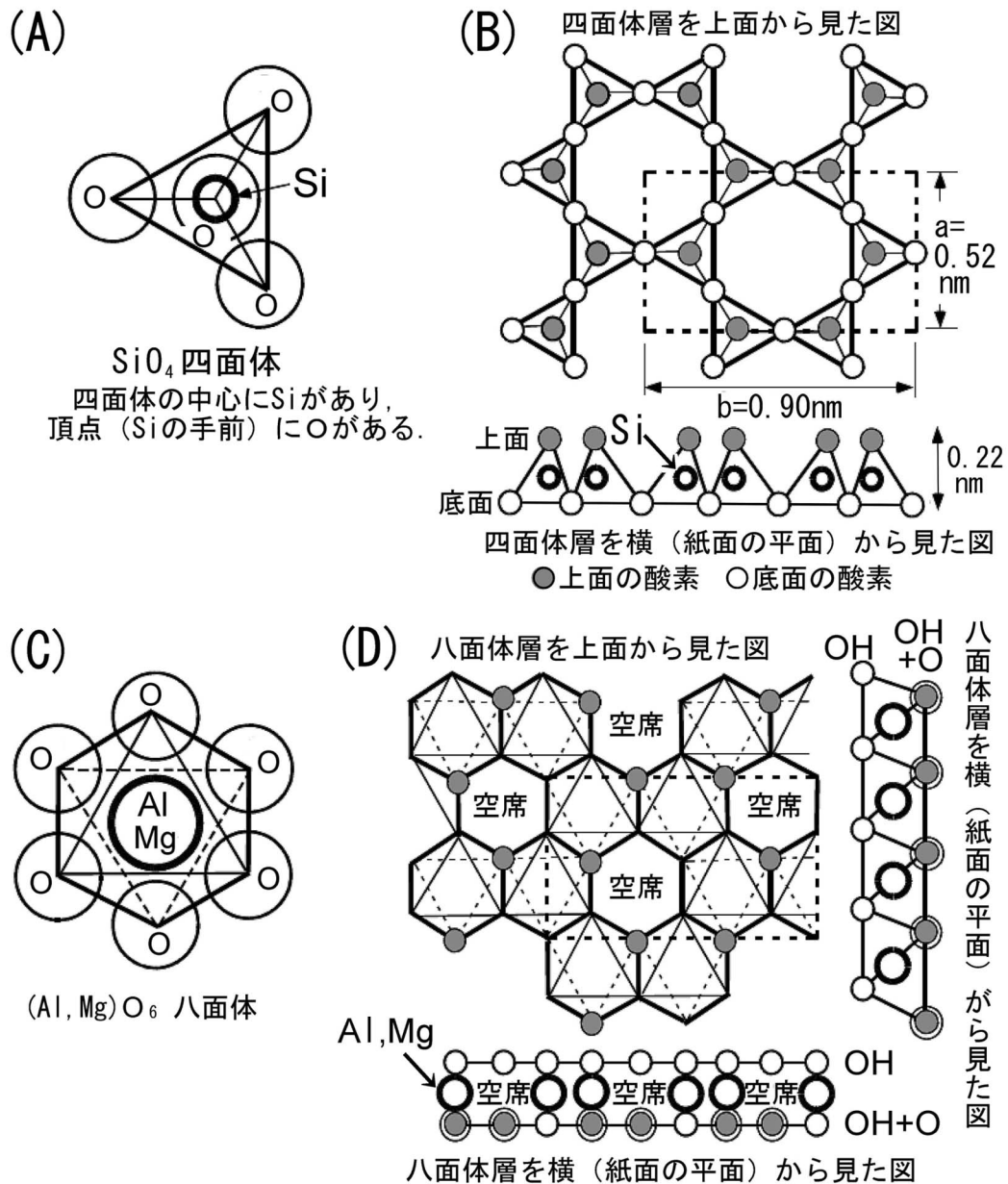


図6 層状珪酸塩鉱物の模式図1

に珪素原子がある (A)。

層状珪酸塩鉱物では SiO_4 四面体が B のように層状に連結して層格子 (四面体層) を構成している。それぞれの四面体は 4 つの頂点のうち、3 つの頂点は隣の四面体と連結しているが、ひとつの頂点だけは連結せずと同じ方向を向いている (B では紙面手前を向いている)。

一方、Si より大きな Al や Mg は 6 個の酸素原子がつくる空間に入る。6 個の酸素原子の中心を互

いに結ぶと正八面体になる (C)。C では、下側に 3 つの酸素原子 (破線で結んだ三角形) が、上側にも 3 つの酸素原子 (実線で結んだ正三角形) が配置している。このような正八面体を D のように層状に連結すると八面体層を形成する。

B と D をよく見ると、四面体層や八面体層は、ある単位 (破線で囲った部分) が周期的に繰り返すことによって平面的に広がる構造であることがわかる。四面体層の場合 (B)、この単位の中に、O

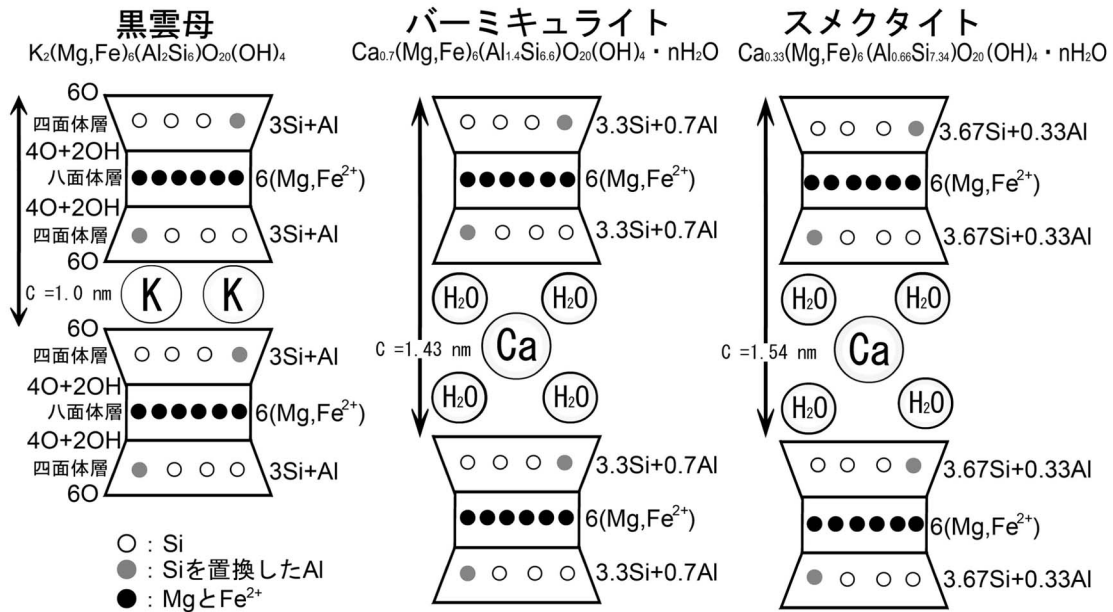


図7 層状珪酸塩鉱物の模式図2

は辺上に8個、内部に6個あるため、全体では実質的に10個 (= 1/2 × 8 + 1 × 6) がある。またこの中に四面体は辺上に4個、内部に2個あるので、全体では4個存在する。ひとつの四面体の中にひとつのSiが入っていることから、Siの数もやはり4個である。したがってSiとOの比は4:10である。

八面体層(D)で、同様に繰り返し単位内の原子を数えると、Oが12個、八面体が6個含まれることがわかる(D)。八面体層のみからなる鉱物では、酸素原子は水素と結合してOHとなる。酸素原子をOHに置き換えても、H原子の半径は大変小さいので、八面体層の構造は殆ど変化しない³⁰⁾。すべての酸素がOHになっている場合、OHは1価の陰イオンとなるので、この単位内でのOHの総電荷は-12である。八面体層のみからなる鉱物では、八面体の中の陽イオン(Al³⁺やMg²⁺)によって電荷のバランスがとられる(単位内で陽イオンの総電荷が+12になる必要がある)。Al³⁺の場合、6個の八面体のうち4個に入ると、+12(= +3 × 4)となるので、残りの2個の八面体内は空席になる。このように、2/3の八面体に陽イオンが入り1/3の八面体は空席となる八面体層を2八面体層(D)という。これに対して、Mg²⁺の場合では、6個の八面体の中にすべて入ると、+12(= +2 × 6)となって電荷のバランスがとれる。このように、全ての

八面体の中に陽イオンが入る八面体層を3八面体層という。2八面体層や3八面体層の2や3の意味は、八面体層の1/3単位内にAlやMgが入る数である。2八面体層が積み重なってできた鉱物がギブサイト(Al₄(OH)₁₂)、3八面体層が積み重なってできた鉱物がブルーサイト(Mg₆(OH)₁₂)である。ここにあげた化学式は、繰り返しの単位における原子の数を表している(以下も同様)。なお、ギブサイトやブルーサイトはSiO₄四面体層を含んでいないので、層状珪酸塩鉱物ではない。

層状珪酸塩鉱物は四面体層と八面体層の両方を含んでいる。四面体層と八面体層とでは周期の単位(太い点線の四角)がほぼ同じ大きさなので(図7)、八面体層の底面のOH(塗りつぶしたものの4個)を四面体層の頂点酸素で置き換えて共有して結合する。こうして四面体層2枚と八面体層1枚が結合すると、2:1の3層構造が形成される。この3層構造では、単位内に、Siが4+4個、Oを10+10個、OHを4(= 12-4-4)個含む。そして、四面体層のSi(+4価)を8個に2個の割合でAl(+3価)に置換すると、単位の3層構造に-2の負電荷が生じる。この負電荷を補完するために層間にKが単位内に2つ加えられた鉱物が雲母であり、三層構造が積み重なる周期(底面間隔)は1.0 nmである。2八面体型の雲母が白雲母(K₂Al₄(Al₂Si₆)O₂₀(OH)₄)

であり、三八面体型が金雲母 ($K_2Mg_6(Al_2Si_6)O_{20}(OH)_4$) である。金雲母中のMgをFeが置換してFeの割合が多くなると、黒雲母と呼ばれるようになる。

四面体層のSiを置換するAlは、8個に2個の割合より、大きいことも小さいこともある。単位の四面体層中の数が1.8~1.2個のものはパーミキュライト、1.2~0.4個のものはスメクタイトと呼ばれている。パーミキュライトやスメクタイトは層間にCa、Mg、Na、Kなどの陽イオンと水分子(層)が入る。この層間陽イオンは交換性である。パーミキュライトやスメクタイトの底面間隔は層間陽イオンが水和すると長くなる。その長さは、層間陽イオンの種類や三層構造の負電荷・水蒸気圧によって異なる。通常の湿度条件下では、スメクタイトの層間Kは水和しないので、底面間隔が1.0 nmに止まっている。Na-飽和型の底面間隔は1.25 nm(1水分子層)、Mg-飽和型とCa-飽和型は1.5 nm(2水分子層)であることが多い。スメクタイトは水に接すると層間の水分子層の数が無限大に増加(底面間隔が広がって)して膨潤する性質がある。三層構造の負電荷が大きいパーミキュライトの場合、通常の湿度条件下では層間イオンの水和が不十分で、Mg-飽和型やCa-飽和型の底面間隔が1.25 nmであったり、あるいは1.0 nmに止まっていたりすることがある。

(3) 黒い土が高い放射線を出す原因

a) X線回折による分析(図8)

試料0430と試料0519の主な鉱物は、肉眼および顕微鏡観察から石英・斜長石・カリ長石・角閃石で、この他にX線回折分析から1.4 nmと0.71 nmに回折を示す鉱物が存在する(A)。この1.4 nmと0.71 nmの回折は、他の黒い土でも普遍的に認められる。この2つの回折は800°Cで灰化すると見られなくなる。また、試料を湯煎上で6N-HClに2時間浸した後、洗浄してX線回折しても、1.4 nmと0.71 nmの回折が見られなくなる。従って、黒い土にカオリナイトが入っていたとしても、その量は僅かである。エチレングリコール(EG)蒸気で飽和处理すると、0.71 nmの低角側(0.74 nm付近)に明瞭なショルダーが現れる(B)ので、黒い土の中に膨潤性の2:1型珪酸塩鉱物が存在することが確実である。本稿では、膨潤性の2:1型鉱物を便宜的にスメクタイトと呼ぶことにする。EG飽

和处理で変化しない1.4 nmの回折は緑泥石の底面反射と考えられる。Bの1.0 nmのピークは雲母の底面反射である。厳密に見ると、試料0430の黒雲母のピークは、天然では1.0 nmより低角側にあり、EG-飽和型では1.0 nmに移動する。試料1006Aでは、1.0 nmのピークの低角側にショルダーがあり、1.4 nmピークの高角側にも巾の広いピークがある(B)。これらは雲母とスメクタイト(パーミキュライト)の不規則混合層の回折である。黒い土に共通して存在する細粒の粘土鉱物はスメクタイト・雲母・雲母-スメクタイト不規則混合層・緑泥石である。粘土鉱物粒子と有機物の黒色細片は強く絡み合っていて、超音波洗浄や水簸(比重による選別法)などの手段を使っても分離することが困難である。

b) 蛍光X線分析による化学組成(表2)

黒い土は有機物の量が多いため、灰化した試料で蛍光X線分析をした。試料0430と試料0519は、細粒のため粒度を分けずに、全試料を空気中で800°Cに保って灰化した。試料1006A・1006B・1006Cは、粗粒な鉱物粒子や植物片が混在するため、細粒(<75 nm)フラクションを篩で選別して灰化した。灰化によって、試料0430の質量はもとの約54%に、試料0519の質量は約66%に減少した。試料1006A・1006B・1006Cの細粒フラクションでは、灰化により、質量が70~80%に減少した。灰化試料はメノウ乳鉢で粉末にして蛍光X線分析を行った。なお、主成分の合計が96~97%にとどまるのは、灰化や脱水が不完全であったためと推定される。

試料0430と0519は主に石英・斜長石・カリ長石・角閃石からなる。 $Al_2O_3/(CaO + Na_2O + K_2O)$ モル比は、試料0430が1.026、試料0519が0.738である。これは、X線回折の結果の「試料0430は緑泥石・スメクタイト・黒雲母-スメクタイト不規則混合層に富み、試料0519は角閃石が多い」と調和する。試料1006A・1006B・1006Cの細粒フラクションの $Al_2O_3/(CaO + Na_2O + K_2O)$ モル比は1.34~1.20であり、同様の鉱物を含む試料0430より大きい。試料1006A・1006B・1006Cの方が過Alのスメクタイト・雲母・雲母-スメクタイト不規則混合層・緑泥石の相対的な割合が大きいと考えられる。ただし、試料採取場所が住宅に近接しているので、アルミニウム製品由来の微粉末が混入した可能性も考えられる。

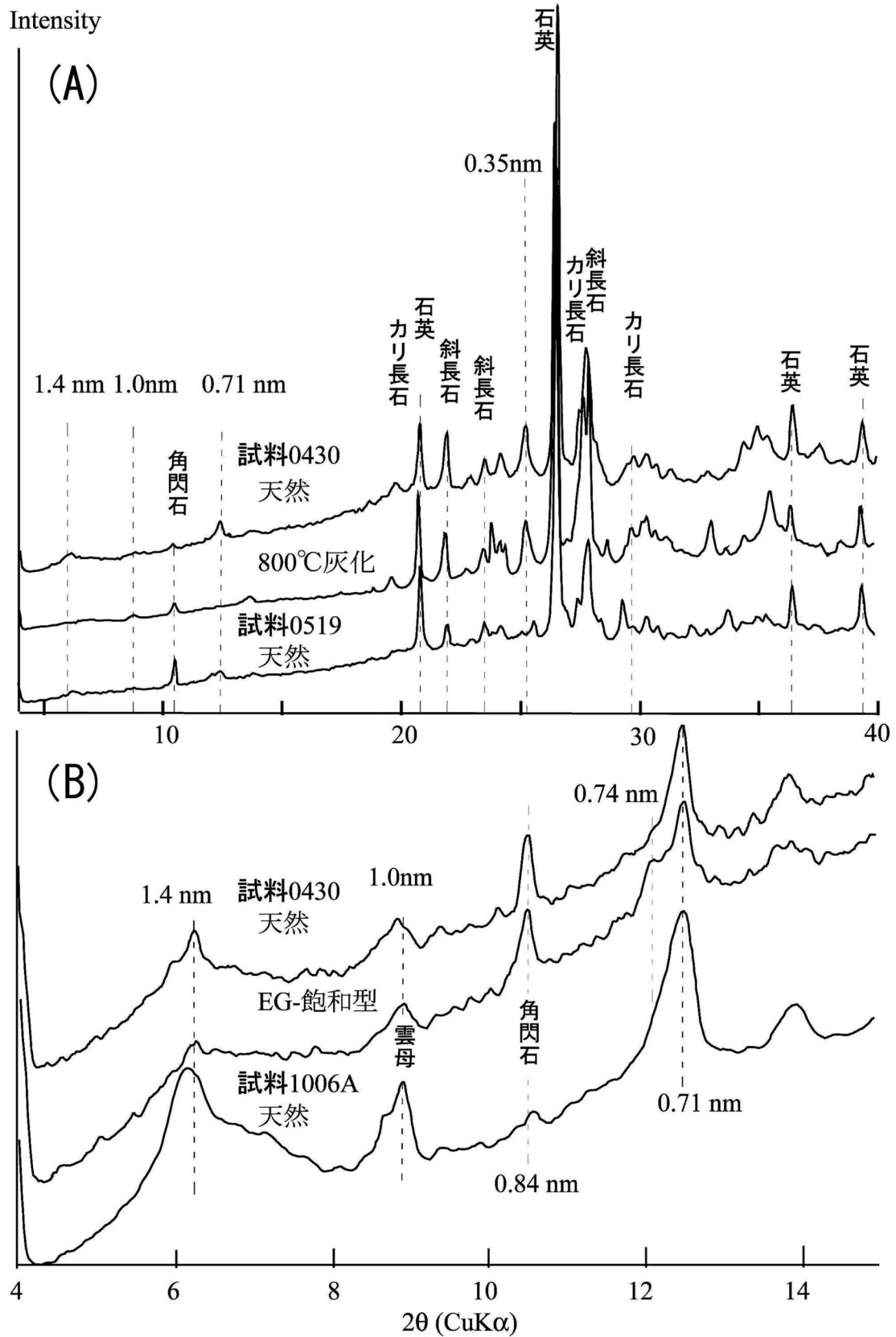


図8 試料のX線回折パターン
X線回折は理学製MiniFlex X線回折計を使用し、加速電圧30 kV、電流15 mA、1°/min.で行った。

表2 「黒い土」の蛍光X線分析結果

試料	0430	0519	1006A	1006B	1006C1
SiO ₂ (%)	55.53	58.54	61.29	61.16	64.83
TiO ₂	2.66	0.73	1.29	1.27	1.08
Al ₂ O ₃	15.79	15.76	13.71	13.87	13.96
FeO	7.89	6.05	10.49	10.30	7.34
MnO	0.22	0.18	0.73	0.68	0.27
MgO	3.82	2.50	1.73	1.73	1.76
CaO	5.80	9.10	3.14	3.82	3.31
Na ₂ O	1.69	1.45	1.86	1.61	2.16
K ₂ O	1.91	2.24	1.33	1.01	1.92
P ₂ O ₅	0.56	0.51	0.74	0.73	0.52
Total	95.87	97.06	96.31	96.18	97.15
V (ppm)	204	131	133	155	119
Cr	197	130	347	1020	540
Co	22	17	24	36	27
Ni	77	41	48	64	39
Cu	154	228	112	248	188
Zn	1010	1260	8020	16700	7880
Rb	126	142	103	100	68
Sr	257	319	166	160	221
Y	57	55	35	35	28
Zr	229	270	141	155	356
Nb	3	nd	14	17	14
Ba	476	764	454	366	729
Pb	188	148	179	270	181
Th	6	13	9	9	7

注：ガラスビード：主成分分析用は試料粉末0.7 gと無水ホウ酸リチウム6 g、微量成分分析用は試料粉末2 gと無水ホウ酸リチウム3 gを混合して作成した。分析は、島津XRF1800を用いて40 kv - 70 mA (微量成分は95 mA)の条件で、中崎らの方法³¹⁾で行った。

微量成分ではCr・Cu・Zn・Pbの含有量が多い。特に、ZnとPbの濃度は通常の土壌や地殻構成岩の範囲を逸脱している。これらは、放射能汚染とは別に、人為的に放出されたものと考えられる。試料1006A・1006B・1006Cの高Znは、近傍に異常に錆びたトタン屋根があることから、この屋根から供給されたと推定される。

c) 放射線を出すのは有機物片か鉱物粒子か

試料0430のγ線スペクトルを図9に示す。662 keVの¹³⁷Csと共に605 keVや796 keVなど¹³⁴Cs壊変に伴う強いγ線が出ている。これが黒い土の高い線量の原因である。半減期が2.0652年の¹³⁴Csが容易に検出できる(多く存在している)ことから、黒い土中の放射性セシウムが、1940~1960年代の核実験や1986年のチェルノブイリ原子力発電所事故で放出されたものではないことを示している。これらの事実から、「黒い土の放射性セシウムは2011年の福島第一原子力発電所事故で大気中に放出されたもの」とほぼ断定できる。

以下は、鈴木ほか¹⁹⁾の実験を再度検証した。黒い土の高い線量は、有機物の黒色細片か鉱物のどちらかが放射性セシウムを吸収(吸着)しているためである。有機物の黒色細片と鉱物粒の分離は困難であるので、有機物量と線量の関係から、放射性セシウムを吸収しているのが有機物片か鉱物粒子かを再度検討した。

有機物の黒色細片と鉱物粒子の分離は困難ではあるが、細粒のフラクションを沈降法で繰り返し分離すると、沈み易いもの(相対的に粗粒)と沈みにくいもの(相対的に細粒)で灰化減量(黒色細片と鉱物粒子の割合)が違ってくる。試料1006Aの細粒(<30 μm程度)フラクションを3つの粒度に分けた。各粒度の試料2 gを白金皿に取って灰化して質量減を測定後、ホウ酸リチウム5 gを加えて一定形状のガラスビードを作成し、線量を測定した(表3)。試料中の有機物量は、細粒が26.4%、中粒が32.8%、粗粒が37.7%である。線量の中央値は、細粒が0.25 μSv/h、中粒が0.18 μSv/h、粗粒

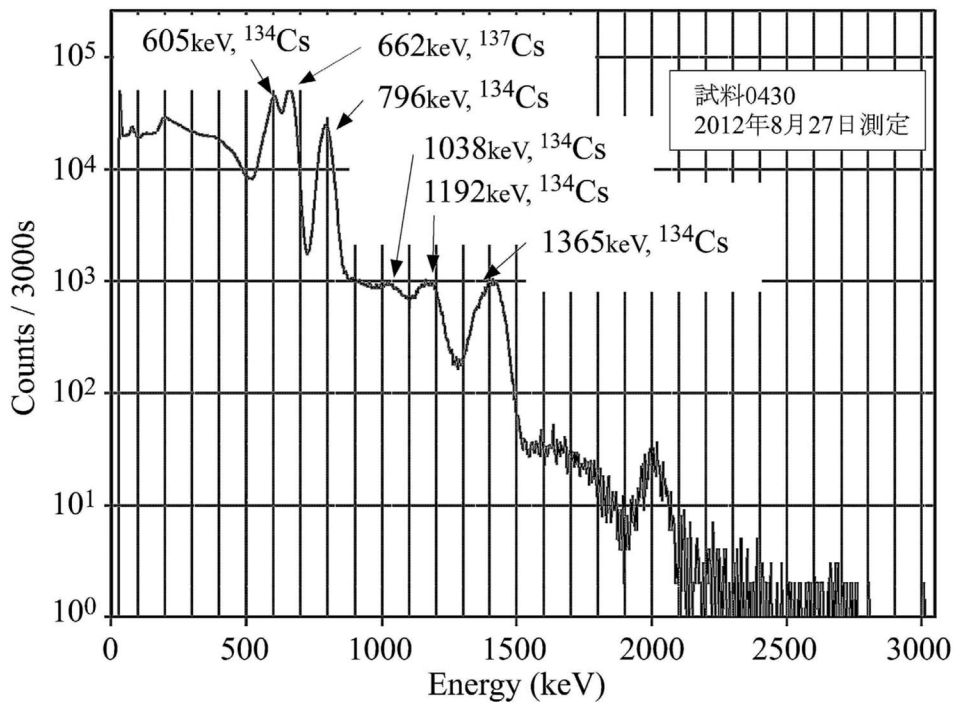


図9 試料430のγ線スペクトル

測定は、キャンベラ製Inspector 1000ポータブルスペクトロメーターに2×2インチNaIプローブを装着し、5～10回のスキャンを積算して回折パターンを得た。

(A) 試料0430と試料0519の全試料X線回折パターン。角閃石の回折を明瞭化する為、前処理で試料0430を800℃で灰化して有機物の量を減じた。

(B) 試料0430の天然とEG-飽和型、および試料1006Aの<75 μmフラクシジョンのX線回折パターン。試料0430は、前処理で粗粒の鉱物片や有機物片を取り除いた。

が0.14 μSv/hである。有機物が多いほど線量が低い。これは、Mukai *et al.*²⁶⁾の有機物溶脱実験の結果と調和し、「放射性セシウムが有機物の黒色細片ではなく鉱物に含まれていること」を示唆する。

Csが鉱物に入っている場合、それはスメクタイトの層間イオンとなっている可能性が高い。通常、スメクタイトの層間イオンは交換性なので、イオン交換することによって線量が下がることが期

待できる。試料1006Bの約30 nm以下のフラクシジョンの一部を2つに分けた。一方は1 M-MgCl₂溶液、他方は脱イオン水に浸して層間イオンを交換した。その後、同一形状のガラスビードを作成して、化学組成(X線強度)と線量を測定した(表4)。1 M-MgCl₂溶液処理した試料は、脱イオン水処理した試料に比べて、CaKα・SrKα・KKαの計数が減少し、MgKαの計数が増加した。NaKα・KKα・

表3 試料1006Aの<30 μmフラクシジョンを沈降法で分離した粒度別有機物含有量と線量

		粒径		
		細粒 (<5 μm)	中粒 (5～10 μm)	粗粒 (10～30 μm)
質量	試料	2.000 g	2.000 g	2.000 g
	灰化後	1.472 g	1.345 g	1.246 g
	有機物	0.538 g (26.4%)	0.655 g (32.8%)	0.754 g (37.7%)
線量率		0.25 μSv/h	0.18 μSv/h	0.14 μSv/h

注：有機物質量は、試料2 gを平底白金坩堝に入れ灰化し、灰化前後の質量差から算出した。線量は、ガラスビード(直径40 mm、灰化後の資料に無水ホウ酸リチウム5 gを加えて作成)を、日立TCS-171で測定した。表示は中央値である。

RbK α を含め他の元素の特性X線強度には殆ど変化が見られなかった。この特性X線強度の変化は、試料中のスメクタイトの層間陽イオン(主にCa)がMgに交換されたことを反映している。しかし、線量は脱イオン水処理済みのガラスビードが0.42 $\mu\text{Sv/h}$ 、Mg-飽和型のガラスビードが0.36 $\mu\text{Sv/h}$ なので、層間にある放射性セシウムが交換されたとは言いがたい。このMg-飽和处理実験から、「層間の放射性セシウムは、CaやKに比べて、交換されにくいこと」が示唆される。

d) スメクタイトの層間におけるセシウムの挙動

パーミキュライト層間にCsイオンが入ると、珪酸塩シートの6員環(hexagonal pocket)と内圏錯体(水を介さない結合)が形成されるため層間が崩壊(collapse)して、CsはKイオンと同様に非交換性になる^{32,33)}。パーミキュライトより層電荷が小さいスメクタイトでは、Kも交換性である。スメクタイトの層間に取り込まれたCsが、他のイオンより交換し難いのかどうかを検討した。

実験に使用したスメクタイトは新城市の三都端花崗岩中の断層ガウジ³⁴⁾(断層面に存在する破碎されて粘土状になった物質)から採取した。このス

メクタイトは、天然状態(層間陽イオンが主としてCa)で1.49 nmの底面反射を示す(図10)。この回折線の高角側($2\theta=8.6$ 付近)に明瞭なショルダーがあり、グリセロール飽和处理により約1.0 nmのブロードな回折が現れる。この試料には雲母もしくは雲母を主とする雲母-スメクタイト不規則混合層が混在しているが、ここではスメクタイトと見なすことにする。

スメクタイトのMg-飽和型の底面間隔は1.44 nm、Ca-飽和型が1.49 nmであり、共に層間のMgやCaが水和して水の2分子層が生じている、K-飽和型は底面間隔が1.04 nmであるので、Kイオンは内圏錯体を形成していると考えられる。Kより水和エネルギーの小さいCsでは、層間崩壊が起り易いので底面間隔が1.0 nmになることが予想される。しかし、Cs-飽和型で実際に観察される底面間隔は1.21 nm(1水分子層)である。この原因は、まだ解明できていない。

K-飽和型にCa-飽和处理を行なうと、底面間隔が1.04 nmから1.48 nmに広がる。従って、KとCaの交換は可逆的とみなすことができる。一方、Cs-飽和型にCa-飽和处理を行った場合は、ピー

表4 試料1006Bの<30 μm フラクシオンの天然とMg-飽和型の特性X線強度と線量

X線	天然	Mg-飽和型
AlK α	94.67 kecps	94.10 kecps
SiK α	322.66	321.34
PK α	7.51	7.58
TiK α	7.19	7.29
VK α	0.28	0.28
CrK α	0.51	0.52
FeK α	145.82	149.05
CoK α	1.19	1.20
NiK α	1.10	1.07
CuK α	2.33	2.28
Yk α	1.33	1.31
ZrK α	5.93	5.65
MgK α	4.66	7.50
CaK α	119.30	66.03
SrK α	6.71	5.29
NaK α	1.39	1.38
KK α	70.49	69.27
RbK α	2.78	2.77
線量率 ($\mu\text{Sv/h}$)	0.42 (0.38-0.47)	0.36 (0.32-0.41)

注：層間陽イオンは、ガラス製遠沈管の中で、試料粉末3 gを1M塩化物溶液50 mlで懸濁し、60分間攪拌後に遠心分離を4回繰り返して交換した。その後、脱イオン水で洗浄(塩素イオン非検出まで)して110 $^{\circ}\text{C}$ で24時間乾燥した後、試料2 gを灰化しホウ酸リチウム5 gを混合して、ガラスビード(直径40 mm、同一形状)を作成した。Mg-飽和型の特性X線強度は、島津XRF1800の40 kV - 95 mAにおける値(kecps)である。線量は、日立TCS-171の検出器をガラスビードに当てて測定(中央値と範囲)した。

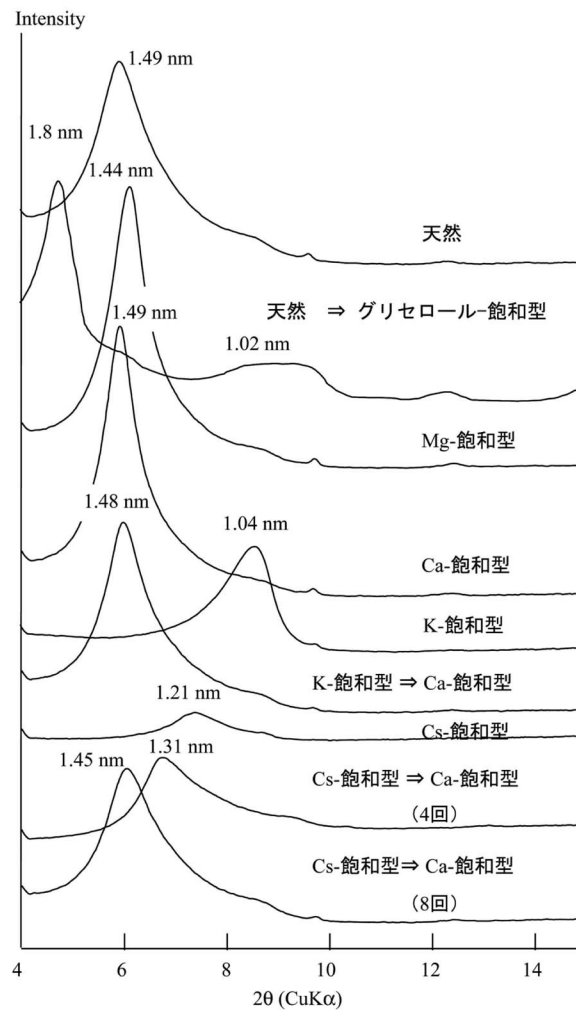


図10 スメクタイト試料のX線回折パターン
天然は、断層ガウジから分離したスメクタイト。そのほかは、層間を各種陽イオンで飽和したスメクタイト。

ク位置が1.31 nmに変化するが、Ca-飽和型の1.48 nmにはならない。Ca-飽和处理を2回(合計8回の1M-CaCl₂溶液とのイオン交換)行くと、底面間隔が1.45 nmになり、回折強度もCa-飽和型の60%程度に回復する。「層電荷の小さいスメクタイトでも、層間のCsは層間のKに比べて安定(溶液のCaと交換しにくい)」と結論できる。

スメクタイトの蛍光X線分析値を表5に掲げる。NH₄-飽和型は、天然のものに比べて、CaOが明らかに少ない。また、MgO・Na₂O・K₂OもNH₄-飽和型で少なくなっている。NH₄-飽和型で減少したCa・Mg・Na・Kを天然試料の層間イオンと仮定すると、その陽イオン交換容量は68.7 cmol(+)/kg(Caが48.67 cmol(+)/kg)である。なお、NH₄-

飽和型の試料には2.56%のK₂Oが残る。このK₂Oは雲母もしくは雲母を主とする不規則混合層に含まれている非交換性のものと考えられる。

K-飽和型では、CaO・MgO・Na₂O含有量がNH₄-飽和型のレベルに減少し、K₂Oが5.86%になっている。このK₂Oの増加分は70.1 cmol(+)/kgになる。Ca-飽和型にするとK₂OがNH₄-飽和型のレベルに減少して、CaOが2.26%になる。CaOの増加分(1.96%)は70.0 cmol(+)/kgに相当する。これらの値は、NH₄-飽和型と天然含有量の差から推定した陽イオン交換能(68.7 cmol(+)/kg)に一致する。このことから、スメクタイトの層間にあるCaイオンやKイオンは、1 M-塩化物溶液を使った飽和处理で、完全に交換されると見なせる。Cs-飽和

表5 断層ガウジから分離したスメクタイトと、そのNH₄-飽和型・K-飽和型・Ca-飽和型・Cs-飽和型、およびCs-飽和型をCaで飽和したCa-再飽和型の蛍光X線分析値

	天然	NH ₄ -飽和型	K-飽和型	Ca-飽和型	Cs-飽和型	Ca-再飽和型
SiO ₂ (%)	54.44	55.01	54.56	54.61	52.18	54.32
TiO ₂	0.62	0.65	0.63	0.62	0.57	0.61
Al ₂ O ₃	18.71	18.80	18.67	18.70	18.14	18.67
FeO	6.89	7.03	6.88	6.87	5.89	6.56
MnO	0.07	0.07	0.07	0.07	0.06	0.08
MgO	3.77	3.46	3.45	3.41	3.25	3.39
CaO	1.66	0.30	0.29	2.26	0.30	2.00
Na ₂ O	0.18	0.09	0.09	0.15	0.05	0.09
K ₂ O	2.65	2.56	5.86	2.60	2.27	2.40
Cs ₂ O	—	—	—	—	9.98	2.27
P ₂ O ₅	0.05	0.05	0.05	0.05	0.06	0.06
Total	89.04	88.02	90.55	89.34	92.75	90.45
層間陽イオン						
MgO	0.31	—	—	—	—	—
CaO	1.36	—	—	1.96	—	1.70
Na ₂ O	0.09	—	—	—	—	—
K ₂ O	0.09	—	3.30	—	—	—
Cs ₂ O	—	—	—	—	9.98	2.27
Mg (mol/kg)	0.077					
Ca	0.243			0.350		0.303
Na	0.029					
K	0.019		0.701			
Cs					0.708	0.161

注：層間イオンの量はNH₄-飽和型との差と仮定して計算した。

型のスメクタイトは9.98%のCs₂O (70.8 cmol (+)/kg) を含む。これにCa-飽和处理を施して、底面間隔が1.31 nmになったスメクタイトでは、CaOが1.7% (60.6 cmol (+)/kg) 増加するが、Cs₂Oも2.27% (16.1 cmol (+)/kg) 残っている。この結果は、「化学組成からも、スメクタイトの層間に入ったCsは安定(溶液のCaと交換しにくい)」と言える。

7. まとめ

実験から以下の①～⑤がわかった。

- ①黒い土の表層部は、鉱物粒子(シルト～粘土)と、不規則形の黒色細片(植物起源と思われる)からなる。下層部は、鉱物粒子・岩石片(粗粒シルト～砂)や黒色細片・植物片が多い。粘土サイズの鉱物(分析した試料に共通して存在)は、スメクタイト・雲母-スメクタイト不規則混合層・雲母・緑泥石である。粘土サイズの鉱物粒子と黒色細片は強く絡み合っていて、超音波洗浄などの手段を使っても分離することが困難である。
- ②黒い土の高い線量の原因は¹³⁷Csと¹³⁴Csである。黒い土の中では、黒色の強い土(一般に細粒)の方が、有機物が多く、線量が高い。

③黒い土(粒径30 μm以下のフラクション)を沈降法で粒度分離すると、細粒のものほど有機物が少なく、線量が高い。この原因は、放射性セシウムの濃集が、有機物ではなく、粘土粒子であることを示唆している。

④放射性セシウムは、スメクタイトの層間陽イオンとして存在すると推定される。この理由は、黒い土の粒径30 μm以下のフラクションに、Mg-飽和处理を施しても線量の低下が僅かである(放射性セシウムが溶脱しにくい)ことによる。

⑤スメクタイトの層間に入ったCsは、Kと異なって、1M-CaCl₂溶液でCa-飽和处理(層間陽イオンの交換)を施しても未交換分が残るほど安定である。

以上の①～⑤から、黒い土が高い放射線を出す理由を、以下のように推定する。スメクタイトは、風化作用で生成され、微粒子として土壤中に普遍的に存在する。その過程を考える。降雨で生じた水は地表水となり、岩石や土壌を溶解して無機成分(イオン)の濃度を上げていく。地表水の中では、Ca・Mg・Na・Kなどのイオン濃度が高くなる。これらは、スメクタイトに層間イオンとし

て入り込む。原発事故により、地表水には放射性Csが増加した。この放射性Csもスメクタイトに層間イオンとして取り込まれた。

次に放射性Csの濃縮を考える。降雨の初めは水成分が多く、スメクタイトの層間では、層間イオンが水の水素イオンと交換し溶脱する。雨が上ると相対的にH₂Oの割合が減り、Ca・Mg・Na・Kなどのイオン濃度が上がり、これらが水素イオンと交換になる。この一連のイオン交換では、Csは層間に留まる割合が大きく、溶脱は主にCs以外の層間イオンで行われる。このため、雨が降る度に、スメクタイトの層間に放射性Csが濃集したと考えられる。

また、スメクタイトなどの粘土粒子は細粒であるため、多くの場合は水に懸濁し水と共に流れて行く。従って、泥だけの水溜まりでは濃集の割合は僅かである。しかし、凝集の起点となる物質(例えば、腐植やアスファルトなど)があると、それに凝集して沈澱する。実際に、黒い土があるのは、住宅地・道路脇・駐車場などの窪地(水溜りの跡)である。水溜りが干上がって、堆積物が乾燥し亀裂が生じたものが「黒い土」である。

謝 辞

本研究を実施するに当たり、名古屋大学 中村俊夫名誉教授には、高線量の黒い土の取り扱いで遺漏がないように適切な御指導をいただき、さらに種々の措置をとっていただいた。名古屋大学の田中剛名誉教授には、実験試料の線量測定を教示していただいた。三星砒業の片岡達也氏にはご協力いただいた。ここに記して感謝する。

最後に、筆頭著者の鈴木和博氏が2016年10月15日に、著者の諏訪兼位氏が2020年3月15日に逝去された。2011年の福島原発事故後、千葉は独自に調査・研究をし、発表の場所を求めている。諏訪氏には、名古屋大学年代測定総合研究センター(現宇宙地球環境研究所)のシンポジウムでの発表の道を拓いていただいた。また、鈴木氏には、千葉が現地調査で採集し分析を欲していた高放射線土「黒い土」を、各種機器を用いて多角的に分析していただいた。千葉が、今まで原発事故の調査を続けられたのは、両氏のご厚意によるものである。両氏の生前のご厚意に感謝するとともにご冥福を祈る(千葉)。

文 献

- 1) 放射線量等分布マップ－航空機モニタリング－. 文部科学省, <https://ramap.jmc.or.jp/map/mapdf/area2.html>, (参照2021-06-11).
- 2) 千葉茂樹: 放射性物質に汚染された福島市の状況. そくほう(地学団体研究会機関誌), No.670, 4-5 (2011). http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 3) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染II (その1). そくほう(地学団体研究会機関誌), No.677, 5 (2012). http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 4) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染II (その2)－飯館村でα線を感じ－. そくほう(地学団体研究会機関誌), No.678, 5 (2012), http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 5) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染II (その3)－飯館村に「真黒」な高放射線土8万cpm－. そくほう(地学団体研究会機関誌), No.679, 6 (2012), http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 6) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染II (その4)－原発事故直後に黒い降灰－. そくほう(地学団体研究会機関誌), No.681, 5 (2012), http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 7) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染III－その1 福島県中通りには住めるのか－. そくほう(地学団体研究会機関誌), No.683, 5 (2012), http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 8) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染III－その2 福島の空間線量5 μSv/h超－. そくほう(地学団体研究会機関誌), No.685, 5 (2013), http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照2021-06-11).
- 9) 千葉茂樹: 福島原発事故の汚染III－その3 中通

- りの白菜から放射線を感じー。そくほう(地学団体研究会機関誌), No.687, 6(2013). http://www.wattandedison.com/Chiba_sokuho_670.677.678.679.681.683.685.687.713.pdf, (参照 2021-06-11).
- 10) 千葉茂樹, 諏訪兼位, 鈴木和博: 福島県の放射性汚染土壌ーとくに黒い物質ーの野外の産状について。名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXIV, 78-96(2013). http://www.nendai.nagoya-u.ac.jp/tande_report/2012/chiba2012.pdf, (参照 2021-06-11).
 - 11) 千葉茂樹: 福島原発大事故に伴う福島県の放射性物質汚染ー汚染地域の住民から見た汚染の実態ー。日本地質学会News, **16**, 7-8(2013). <http://www.geosociety.jp/faq/content0463.html>, (参照 2021-06-11).
 - 12) 千葉茂樹, 諏訪兼位, 鈴木和博: 福島第一原発事故に伴う放射性物質による汚染ー2013年の福島県の状況ー。名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXV, 188-205(2014). <http://www.wattandedison.com/chiba2013.pdf>, (参照 2021-06-11).
 - 13) 原発被災地の真実HP: 南相馬「109万Bq/kgの黒い粉」分析データ公開(2012). <http://blade1024.blog.fc2.com/blog-entry-1.html>, (参照 2020-10-11).
 - 14) 小出裕章: 「黒い物質」の測定に関する覚書。2012年、https://hiroakikoide.wordpress.com/2012/07/12/kuroibussitu_2012jun29/, (参照 2021-06-11).
 - 15) 触媒生活HP: 土壌分析等の独自調査を実施しました(2020). <http://sugar5030.blog98.fc2.com/blog-entry-350.html>, (参照 2021-06-11).
 - 16) 諏訪兼位: 「地球科学の開拓者たち 幕末から東日本大震災まで」, 岩波書店(2015), 264 p.
 - 17) J. Akai, N. Nomura, S. Matsushita, H. Kudo, H. Fukuhara, S. Matsuoka, J. Matsumoto: Mineralogical and geomicrobial examination of soil contamination by radioactive Cs due to 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Phys. Chem. Earth Pt A/B/C*, **58-60**, 57-67(2013).
 - 18) 田崎和江: 「福島原発事故から3年 私たちは何を学んだか?」, 高桑美術印刷(2014), 107 p.
 - 19) 鈴木和博・千葉茂樹・片岡達也・諏訪兼位: 福島県の放射性汚染土壌ーとくに黒い物質ーの鉱物組成と放射性Csの存在状態。名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXV, 248-267(2014). https://www.nendai.nagoya-u.ac.jp/tande_report/2013/suzuki2013.pdf, (参照 2021-06-11).
 - 20) 高エネルギー加速器研究機構HP: 福島第一原発事故直後の福島県中を通りにおける放射性物質の飛散状況はどのようなものだったかー事故直後に行われた高エネルギー加速器研究機構と理化学研究所の合同チームによる調査結果ー(2011). <http://rcwww.kek.jp/hmatsu/fukushima/>, (参照 2021-06-11).
 - 21) 松村 宏, 斎藤 究, 石岡 純, 上菟義朋(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, **10**(3), 152-162(2011), https://www.jstage.jst.go.jp/article/taesj/10/3/10_J11.004/_pdf, (参照 2021-06-11).
 - 22) 日本国際問題研究所/軍縮・不拡散促進センターHP: 高崎に設置されたCTBT放射性核種探知観測所における放射性核種探知状況(2011), http://www.cpdnp.jp/pdf/110427Takasaki_report_Apr23.pdf, (参照 2020-10-11).
 - 23) ふくしま再生の会 活動報告: ふくしま再生の会HP(2015). <http://www.fukushima-saisei.jp/app-def/S-102/madei/wp-content/uploads/2016/01/20150410report-201511.pdf>, (参照 2021-06-11).
 - 24) 福島民報: “高割合でセシウム吸収, 微細藻類「イシクラゲ」”. (2012年6月26日), https://www.minpo.jp/pub/topics/jishin2011/2012/06/post_4327.html, (参照 2020-10-11).
 - 25) 田崎和江, 竹原照明, 石垣靖人, 中川秀昭, 根本直樹, 横山明彦, 木村 元: 放射能汚染環境における生物の元素濃度分布。河北潟総合研究, **16**, 7-24(2013), http://kahokugata.sakura.ne.jp/pdf/sougouken/sl6_2.pdf, (参照 2021-06-11).
 - 26) H. Mukai, T. Hatta, H. Kitazawa, H. Yamada, T. Yaita, T. Kogure: Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environ. Sci. Technol.*, **48**(22), 13053-13059(2014), <https://pubs.acs.org/doi/10.1021/>

- es502849e, (参照 2021-06-11).
- 27) 木暮敏博, 向井広樹, 甕 聡子: 福島で放射性セシウムを吸着・固定している鉱物は何か. 地球化学, **49**, 195-201 (2015), <https://ci.nii.ac.jp/naid/130005118187>, (参照 2021-06-11).
- 28) E. Fujii, K. Tamura, T. Hatta, H. Yamada, T. Taita, T. Kogure: Cesium sorption to paddy soil in Fukushima. *Clay Sci.*, **19** (1), 17-22. (2015).
- 29) 千葉茂樹: 福島第一原発事故、除染の効果とその問題点. 名古屋大学年代測定研究, **I**, 30-35 (2017), <http://www.wattandedison.com/chiba2016.pdf>, (参照 2021-06-11).
- 30) 須藤俊男: 「粘土鉱物 増補版」. 岩波全書178. 岩波書店 (1972), 230 p.
- 31) 中崎峰子, 壺井基裕, 金川和世, 加藤丈典, 鈴木和博: X線分析装置 XRF-1800による岩石の定量分析. 名古屋大学博物館報告, **20**, 79-91 (2004), http://www.num.nagoya-u.ac.jp/outline/report/pdf/020_07.pdf, (参照 2021-06-11).
- 32) T. Kogure, K. Morimoto, K. Tamura, H. Sato, A. Yamagishi: XRD and HRTEM evidence for fixation of cesium ions in vermiculite clay. *Chem. Lett.*, **41**, 380-382. (2012). <https://www.journal.csj.jp/doi/abs/10.1246/cl.2012.380>, (参照 2021-06-11).
- 33) R. Kikuchi, H. Mukai, C. Kuramata, T. Kogure: Cs-sorption in weathered biotite from Fukushima granitic soil. *J. Miner. Petrol. Sci.*, **110** (3), 126-134. (2015). https://www.jstage.jst.go.jp/article/jmps/110/3/110_141218/_article/-char/ja, (参照 2021-06-11).
- 34) 鈴木和博・森下泰成: 新城市守義 - 設楽町三都橋の昔の地震断層, 「新城市の自然誌 - 地学編」, 鳳来寺山自然科学博物館. (2015).

寄稿は正規の査読を受けていない報告であり、内容については著者の責任で発表されるものである。

On-site Report

High Radiation Soil “Black Soil” Generated in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident and the Cause of the High Radiation: Details of Radioactive Cesium Concentration in Smectite

SUZUKI Kazuhiro, CHIBA Shigeki* and SUWA Kanenori

● **Summary** ● Dark dirt along with extraordinarily high radiation, referred often as “Black Soil”, occurs as patches in hollows on roads, parking lots, residential quarters, and lawn and grass lands in Fukushima. The patches appear suddenly after rain and often disappear in few weeks. The surface is very fine-grained with the silk luster and characterized by the development of hexagonal sun cracks. The dirt consists of clay minerals including smectite and organic matter as well as grains of quartz, feldspars, amphibole and biotite, and contains radiocesium ^{137}Cs and ^{134}Cs . Studies were undertaken to examine the influence of smectite on the uptake of radiocesium. X-ray diffraction and XRF analysis of smectite indicated that Cs, unlike K, in the interlayer space was hardly removed even by the conventional ion-exchange experiment with 1M- CaCl_2 solution. This suggests that Cs taken once into clays by ion exchange with rainwater is not removed on the next ion-exchange with rainwater. The high affinity of Cs toward smectite caused selective and gradual uptake of Cs from environment. Micrometer-sized clay minerals are normally blown away by wind and/or washed away by rainwater. They, however, can aggregate with organic matter and deposit in a pool ball on ground. Such pool balls became the patches of dark dirt by drying-up.

Key Words: soil contaminated with radioactive materials, radioactive cesium, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, smectite, interlayer cation

Received October 18, 2020; Accepted December 21, 2020

*Correspondence author: Address : Fukushima Natural Environment Laboratory, 4-3 Murahigasi, Iwasato, Inawashiro-machi, Yama-gun, Fukushima 969-3141, Japan
E-mail: s.chiba@vesta.ocn.ne.jp

