

## 農地における核種移行の広域調査

### I. 作付け地域における放射性セシウム濃度の将来予測及び GIS 情報の収集・整備

谷山 一郎、江口 定夫、吉川 省子、三島 慎一郎、板橋 直、楠本 良延、  
徳岡 良則、池田 浩明、藤原 英司、井倉 将人、神山 和則、  
高田 裕介、小原 洋（農業環境技術研究所）

#### 1. 調査目的

農地での放射性セシウム濃度分布の長期的な将来予測を行うためには、表流水による土壌粒子の輸送過程などを数式によって表現する流域スケールのモデルが必要であり、そのモデルの各種パラメータの決定及びモデル有効性の検証のためには、現地における土壌侵食及び放射セシウム輸送量などのモニタリングデータが不可欠である。

本調査では、アメリカ農務省が開発した地表水、土壌粒子、栄養塩類などの動態を流域スケールで予測する総合的な数値モデル（SWAT : Soil and Water Assessment Tool）を用い、農地の土壌中の放射性セシウム濃度及び空間線量率の変動について長期的な将来予測を行うため、福島第一原発から 80 km 圏内の流域の農地を対象として、SWAT モデルに必要な地理情報（GIS）の収集・整備を行う。

#### 2. 調査内容

SWAT モデルの基礎データとするため、福島第一原発から 80 km 圏内のデジタル標高データ、水系網、土地利用、表層地質、土壌及び気象などの GIS 情報、農地管理情報及び検証用の流量データの GIS 情報を収集し、SWAT モデルで実行可能なデータ形式で整備した。また、土壌図の各土壌区分の特性値と構成する土壌層の数と厚さ、各土層の理化学性（容積重、有効水分量、飽和透水係数、粒径組成、電気伝導度、炭素、窒素及び各種栄養元素の含有率）を整備した。さらに、放射性セシウムの動態を推定するため、沈着量、土壌中の放射性セシウム濃度、交換性放射性セシウム濃度<sup>1</sup>、RIP（放射性セシウム捕捉ポテンシャル）の GIS データベースを整備した。

#### 3. 結果と考察

平成 24 年度において、福島第一原発 80 km 圏内の GIS 情報として、デジタル標高データ（ラスター形式<sup>2</sup>）、集水域区分（ベクター形式<sup>3</sup>）、水系網（ベクター形式）、土地利用情報（ラスター形式）、土壌図（ベクター形式）を整備した。また、数値情報として土壌特性、気象観測値情報のデータベースを整備した。これにより調査範囲内の SWAT モデルによる水、土砂流出の推定に必要なデータ群を完成させた。

平成 25 年度はこれらの情報に加えて、放射性セシウムの動態推定に必要な情報として放

<sup>1</sup> 土壌に吸着したセシウムのうち、水への溶解や有機物分解により、水層に移行するセシウムの濃度

<sup>2</sup> ピクセルの集合体で構成されるイメージデータのこと。代表的なものとして、衛星写真や航空写真、標高の陰影図等がある。

<sup>3</sup> 座標で位置を表すデータのこと。ポイント（点）、ライン（線）、ポリゴン（多角形）の 3 種類で構成される。

放射性セシウムの沈着量、農地の土壌中の放射性セシウム濃度、交換性放射性セシウム濃度、RIP マップの GIS データベース化を進めた。

放射性セシウム沈着量マップは平成 24 年 12 月 28 日における航空機モニタリングデータ<sup>4</sup>から対象地域を抜き出した。この地図は土壌に沈着していない放射性セシウム（植生にトラップされた放射性セシウム）を含んでいることから農地においては土壌中に含まれる放射性セシウムの濃度について、平成 24 年度放射能調査研究「農地土壌等の放射性物質の分布状況等の推移に関する調査」による放射性セシウム濃度マップ<sup>5</sup>（図 I-1）を用いて GIS データを作成した。この地図は現地調査に加え、前述の航空機モニタリングデータ、平成 23 年度に作成した放射性セシウム濃度マップ（平成 23 年 11 月 5 日における推定値）<sup>6</sup>等を利用して作成したものである。平成 25 年度においても継続してモニタリングを行っているため、3 年間のデータを用いることにより、SWAT モデルによる放射性セシウム動態の推定結果を検証するためのデータセットとして活用することも可能になる。評価の例として、平成 23 年と平成 24 年の放射性セシウムの関係について規制区域（事故当初の緊急時避難準備区域、計画的避難区域及び警戒区域）とそれ以外の区域（水田、畑に区分）に場合分けし、図 I-2 に示した。同一地点における平成 23 年放射性セシウム濃度に対する平成 24 年の濃度の比率（変化率）は 0.767 から 0.848 の範囲であった。

土壌に沈着した放射性セシウムは土壌中に存在するフレイドエッジサイト<sup>7</sup>（FES）に強く固定されることが知られている<sup>8</sup>。FES に固定された放射性セシウムは土壌中に長くとどまるが、一方で土壌粒子の流出にともない水系に流出していく。したがって、FES の量は土壌中の放射性セシウム動態把握に重要な特性である。RIP（放射性セシウム捕捉ポテンシャル）は FES 量の指標と考えられている。このため、対象地域の RIP の分布についても GIS データの整備を行った。RIP 分布データとして平成 24 年度科学技術戦略推進費「ほ場環境に応じた農作物への放射性物質移行低減対策確立のための緊急調査研究」<sup>9</sup>により得られた土壌グループ別の RIP の平均値（表 I-1）を用いて作成した（図 I-3）。この研究においては様々な性質の土壌について RIP を測定したが、RIP 量と土壌特性との関係は判然としなかった。このため、RIP の空間的な広がりを示す RIP 推定図は土壌分類に基づいた土壌グループ別に区分して計算した RIP の平均値を用いて作成した（表 I-1）。対象地域では福島県南部及び宮城県-福島県境西部で黒ボク土が広く分布し、RIP の実測値も 0~500 mmol/kg の範囲の地点が多い。また、福島県中通り地方の低地土グループで 1,000 mmol/kg 未満の地点が認められた。

阿武隈川における土砂流出の推定値を検証するために阿武隈川の主要支流における流量データ及び樋渡川下流の大滝根川における濁度データの収集整備を行った。濁度データは直接土砂流出量を示していないが、土砂流出量との関係を明らかにすることで土砂流出量の指標とすることが可能である。図 I-4 に大滝根川における平成 24 年度に観測された濁

<sup>4</sup> 原子力規制庁、放射線量等分布マップ拡大サイト (<http://ramap.jaea.go.jp/map>) .

<sup>5</sup> 農林水産省、「農地土壌の放射性物質濃度分布図」の作成について、<http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/130809.htm> .

<sup>6</sup> Takata Y. et al. Spatial prediction of radioactive Cs concentration in agricultural soil in East Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 60, 393-403 (2014).

<sup>7</sup> 雲母類の非膨潤層と風化によって生じる膨潤層の境界に位置する負電荷部分。セシウム選択性が極めて高く、一端保持したセシウムは容易に放出されない。

<sup>8</sup> Cremers, A., A. Elsen, P. Depreter, A. Maes. Quantitative-analysis of radiocesium retention in soils, *Nature*, 335, 247-249 (1988).

<sup>9</sup> 農林水産省. ほ場環境に応じた農作物への放射性物質移行低減対策確立のための緊急調査研究の成果について、<http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/130709.htm> .

度の推移と土砂流出量の推定値を示した。この図から推定された土砂流出量と濁度が概ね類似した傾向を示すことがわかる。

表 I-1 土壌グループごとの RIP 平均値

グループ名	データ数	平均 RIP mmol/kg	標準偏差
台地山地土	23	2,395	1,443
非腐植質_低地土	131	1,674	999
腐植質_低地土	32	1,362	793
非腐植質_黒ボク土	17	905	826
腐植質_黒ボク土	45	861	686
多腐植質_黒ボク土	48	426	415

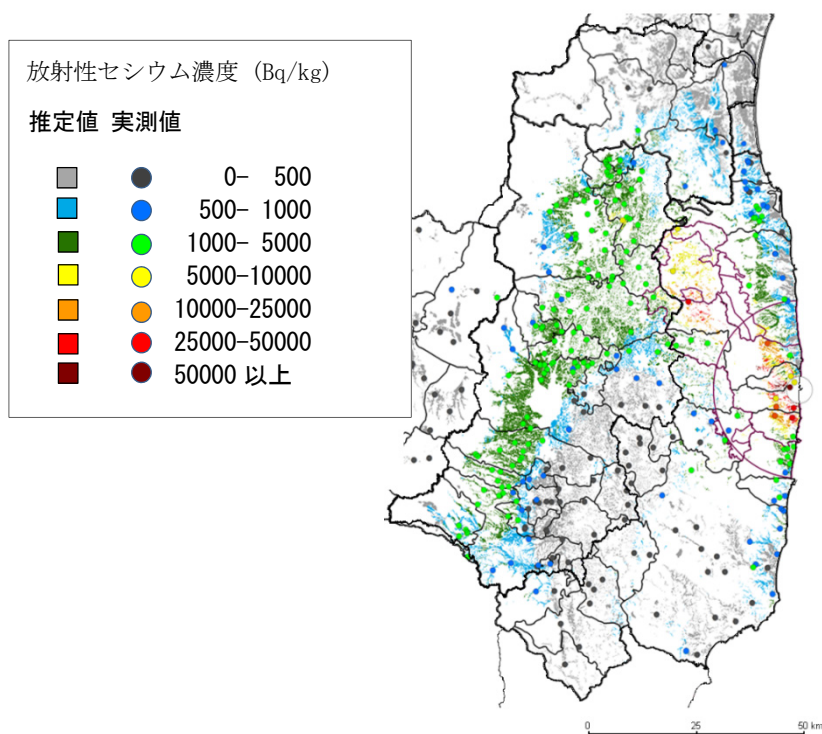


図 I-1 福島第一原子力発電所から 80 km 圏内の放射性セシウムの分布 (平成 24 年 12 月 28 日)

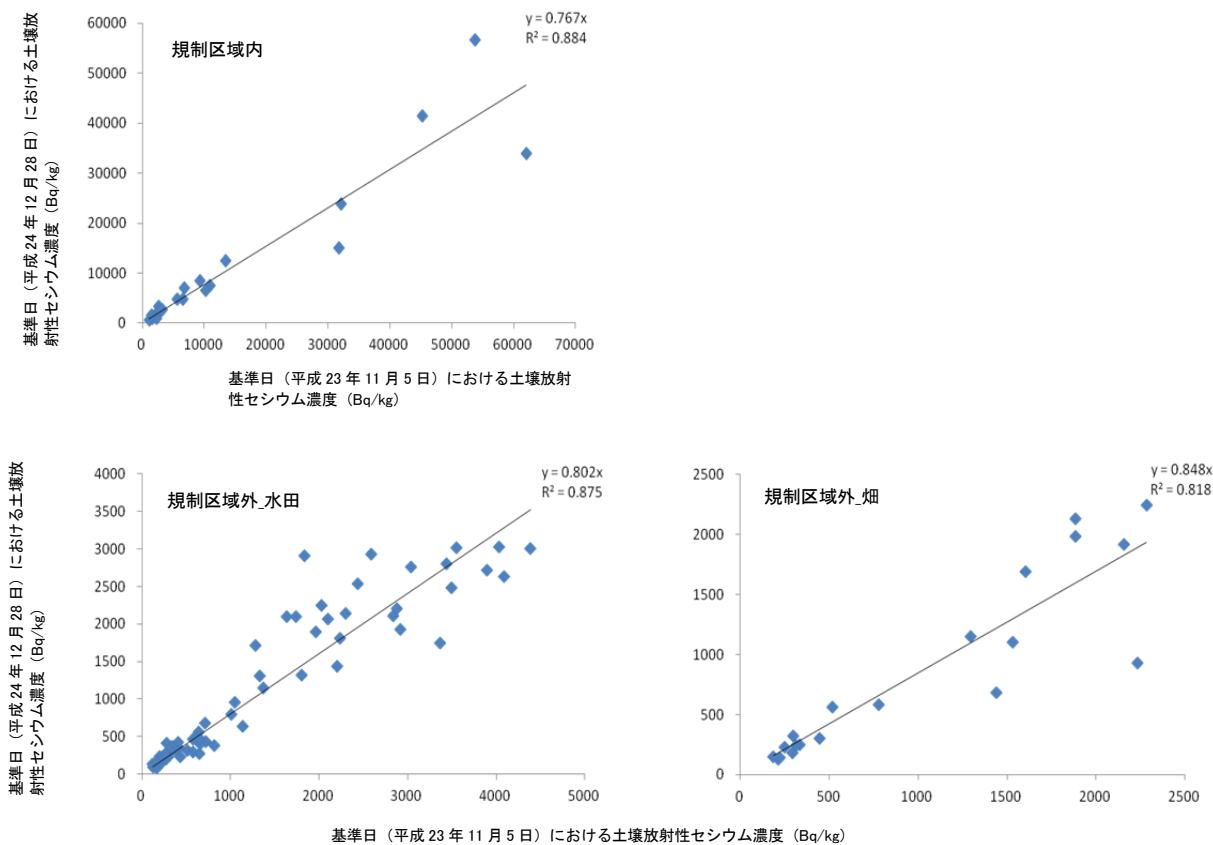


図 I-2 平成 23 年 11 月 5 日と平成 24 年 12 月 28 日の  
土壌放射性セシウム濃度の関係

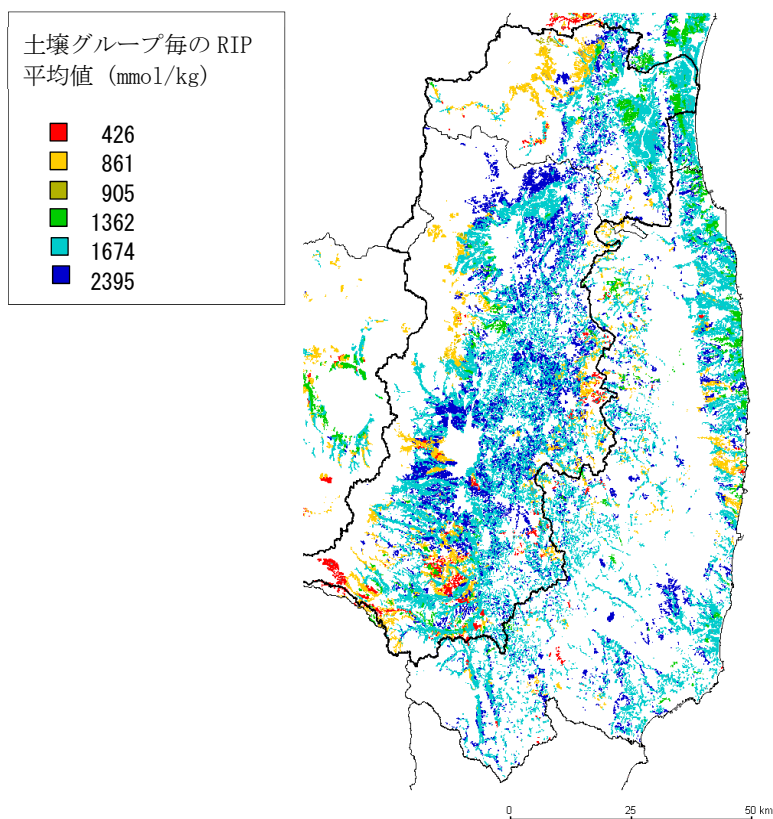


図 I-3 福島第一原子力発電所から 80 km 圏内の RIP の分布

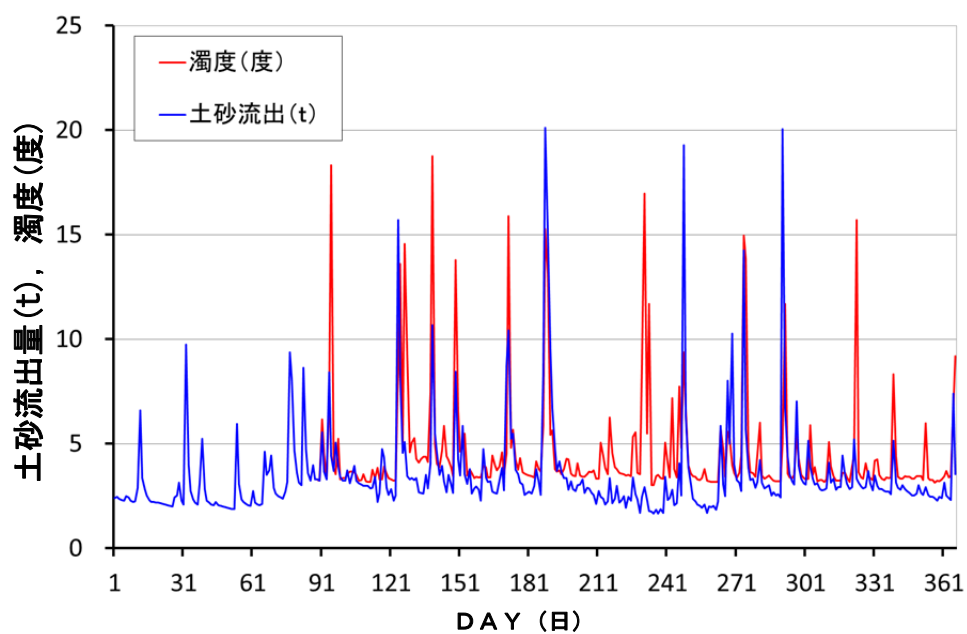


図 I-4 大滝根川における土砂流出量推定（平成 24 年）  
（縦軸に土砂流出量または濁度の値を示した。濁度は観測値、土砂流出量は SWAT による推定値）

## Ⅱ. 灌漑・排水路における放射性セシウム動態の予測技術の開発

久保田 富次郎（農業・食品産業技術総合研究機構）

### 1. 調査目的

福島第一原発事故に伴い東日本一帯に生じた放射性物質の拡散への対応が求められる中で、農村地域における放射性物質の動態を把握するためには、河川水の年間使用量のうち7割以上を占め<sup>10</sup>、水循環に一定の影響を与えている灌漑による影響を知る必要がある。そのため、本研究では、灌漑・排水路及び農業用貯水池などの農業水利施設を対象として、それらの施設における放射性セシウム動態の把握を行う。これにより SWAT モデルによる福島第一原発 80 km 圏内の放射性物質の動態予測に向けた検証データを得ることを研究目的とした。

平成 25 年度は、平成 24 年度より継続する農業用貯水池における放射性セシウムのモニタリングに加えて、農業用水路を対象とした放射性セシウムのモニタリングを新たに実施した。

### 2. 調査内容

#### (1) 調査期間

##### (a) 調査 1： 農業用貯水池における放射性セシウムのモニタリング

農業用貯水池を対象として放射性セシウムの流入・流出のモニタリングを実施した。

- ① 平成 24 年 9 月 21 日～11 月 30 日（平成 24 年度の分布状況等調査において実施）
- ② 平成 25 年 7 月下旬～平成 26 年 3 月

##### (b) 調査 2： 農業用水を対象とした放射性セシウムのモニタリング

農業用水源としての河川水及び農業用水路において放射性セシウムのモニタリングを実施した。

- ① 福島県伊達市梁川地区の阿武隈川水系広瀬川において、採水調査を実施：  
平成 24 年 4 月～（平成 24 年度の分布状況等調査において実施）
- ② 福島県伊達市保原地区の農業用水路において、放射性セシウムモニタリングを実施：  
平成 25 年 4 月 25 日～平成 25 年 9 月 25 日（平成 25 年度灌漑期）

#### (2) 調査地域

##### (a) 調査 1： 対象地を図Ⅱ-1 に示す。

灌漑・排水路等の農業水利施設における放射性セシウムの動態予測に資するため、放射性物質の影響が大きいと考えられる大柿ダム（福島県双葉郡浪江町）を対象とした。大柿ダムは、二級河川請戸川に昭和 60 年に完成したロックフィルダムで、総貯水量 1,950 万 m<sup>3</sup>、有効貯水量 1,730 万 m<sup>3</sup>、最大取水量 9.085 m<sup>3</sup>/s、受益面積 2,946 ha、流域面積 110.2 km<sup>2</sup> を有する農業用ダムである。大柿ダムには、本流である請戸川と小出谷川の 2 本の河川が流入する。このダムの利水地域の農地は現在、不作付けとなっている。

##### (b) 調査 2： 対象地は伊達市保原・梁川地区の用水源となる河川及び農業用水である。

<sup>10</sup> 国土交通省、日本の水資源（平成 25 年版），p. 64.

[http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/mizsei/mizukokudo\\_mizsei\\_fr2\\_000004.html](http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/mizsei/mizukokudo_mizsei_fr2_000004.html) .

調査は、阿武隈水系広瀬川（流域面積：約 225 km<sup>2</sup>）と阿武隈川を水源として伊達市保原及び梁川地区に灌漑される用水路で実施した。

### (3) 調査内容の詳細

(a) 調査 1 では、流入 2 地点（昼曾根、矢具野）、流出 1 地点（ダム放流工）の計 3 地点においてモニタリング調査を実施した。

モニタリング調査では、濁度と水位の観測とともに、各地点で自動採水器（1 日 1 回及び洪水時に 2 時間毎）により試料採取を行う。濁度計は 10 分毎に観測を行い、試水は、セシウム 134 及びセシウム 137 の検出限界をそれぞれ 1 Bq/L として水中放射性セシウム濃度を測定するとともに懸濁物質 (SS 濃度) を測定した。

(b) 調査 2 ①では、不定期で月 2～5 回程度及び洪水時の採水を行い、試水の一部は蒸発濃縮によりセシウム 134 及びセシウム 137 の検出限界をそれぞれ 0.01 Bq/L とし放射性セシウム濃度を測定した。併せて、SS 濃度や濁度測定を行った。

調査 2 ②では、農業用水路(2カ所)に据置型濁度計を設置し、濁度の連続観測を行うとともに、不定期で採水調査を行い濁度や SS 濃度と水中放射性セシウム濃度の関係を明らかにした。この関係を用いて、農業用水路を流下する放射性セシウムのフラックスの定量化を試みた。また、放射性セシウムの農業用水路底質への蓄積状況を調べた。

## 3. 調査結果と考察

### (1) 調査 1：農業用貯水池の放射性セシウムのモニタリング

大柿ダムの流入 2 地点とダムにおける平成 24 年 9 月 23 日(日雨量 67 mm)の前後における 3 地点の濁度の推移を図 II-2 に示す。また、図 II-3 に平成 24 年及び平成 25 年の流入河川（昼曾根地点）における濁度と放射性セシウム濃度の関係を、図 II-4 に濁度連続観測データを用いた増水時(平成 25 年 10 月 16 日)の放射性セシウム濃度の推定値の推移を示す。

図 II-2 における降雨に対する濁度の応答は、大柿ダムに流入する主要 2 河川のうち流域面積が 15.3 km<sup>2</sup> と狭い小出谷川流域（矢具野）が一番早く、次いで 83.6 km<sup>2</sup> の請戸川流域（昼曾根）、さらにはダム放流工地点が続いた。このときの水中放射性セシウム濃度は、自動採水器の 1 日 1 回の定時採水(15:00)によって得られており、2 時間採水でなく時間分解能が不足する可能性があるが、昼曾根で 22 Bq/L (9 月 23 日 15:00)、矢具野で 53 Bq/L (9 月 23 日 15:00)であった。ダム放流工では、濁度の上昇はみられたものの、放射性セシウムは検出下限値をわずかに上回る 2 Bq/L (9 月 25 日 15:00)が検出されたのみでその前後は不検出であった。図 II-3 に示すように水中の放射性セシウム濃度は、濁度の一次関数で表された。

図 II-4 は、濁度連続観測データと図 II-3 に示す濁度と放射性セシウムの関係性を用いて放射性セシウム濃度の連続値の推定を試みたものである。灰色の丸で示した実測値と推定値（実線及び点線）を比較すると、流出前半の水位（濁度）上昇期には、推定値と実測値はよく合っているが、後半の濁度減少期にはずれが生じている。実測値の方が推定値より放射性セシウム濃度が早く低減している。

### (2) 調査 2 ①：農業用水取水河川における放射性セシウムのモニタリング

農業用水の主要水源の一つである広瀬川の放射性セシウムの流下特性をみる。本観測地点で測定された濁度と水中放射性セシウム濃度の関係を図 II-5 に示す。

図 II-6 に、河川流量と放射性セシウムの負荷量の関係を示す。流量と放射性セシウム負荷量の関係を表す L-Q 式を検討すると SS 流出と同型のべき乗関数  $L=kQ^n$  型 ( $n>1$ : 増水時に

流出) に適合した。

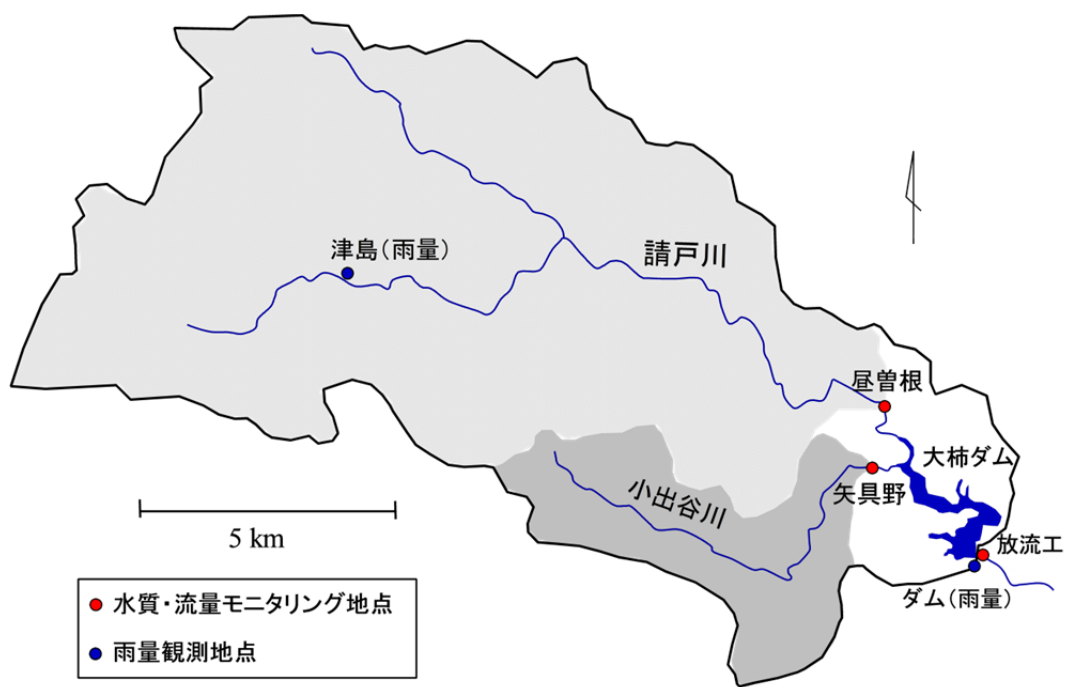
### (3) 調査 2 ② : 農業用水路における放射性セシウムのモニタリング

図Ⅱ-7に、幹線農業用水路における放射性セシウムの流入量の灌漑期を通じた推定値を示す。本農業用水路においても濁度と放射性セシウム濃度に線形関係が認められ、その関係を用いて濁度の連続観測値から放射性セシウム濃度の連続値を推定し、別途観測した流量と乗じることにより流入量の測定を行った。灌漑期を通じた対象の農業用水路における放射性セシウムの流入は、平均濃度 0.43 Bq/L で生じ、総流入量は 7.4 GBq であった。受益水田面積を 750 ha、減反面積を 4 割、管理用水を 2 割と仮定すると、受益地の水田に流入する平均的な放射性セシウム量は 1.3 kBq/m<sup>2</sup> となり、周辺への放射性セシウムの沈着量<sup>11</sup>と比べると 1/100 程度となった。

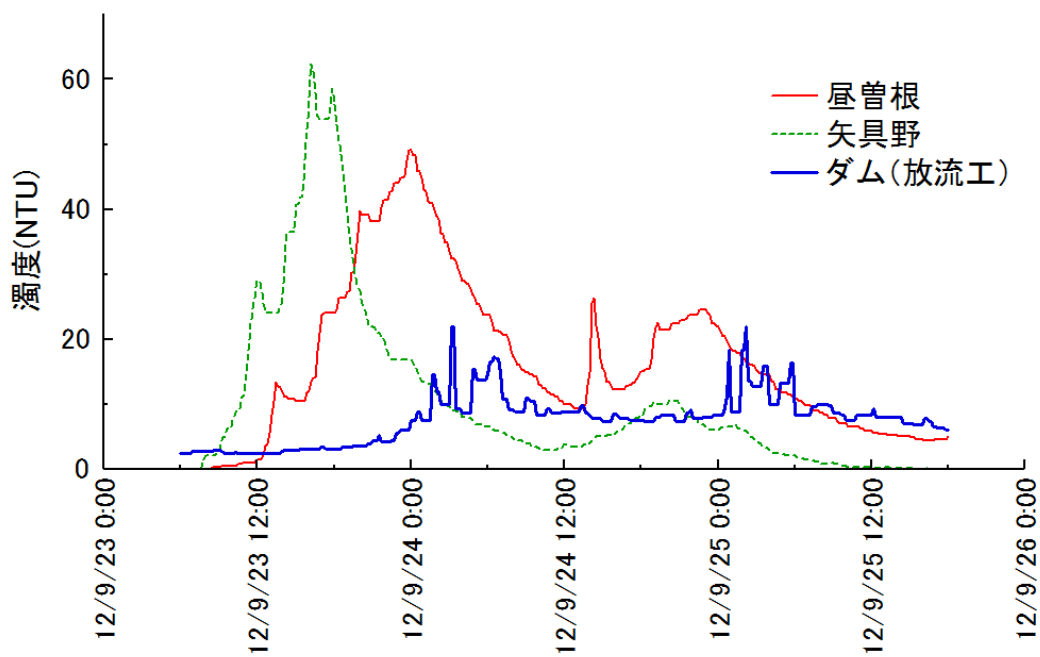
---

<sup>11</sup> 原子力規制庁, 放射線量等分布マップ拡大サイト (<http://ramap.jaea.go.jp/map>) .

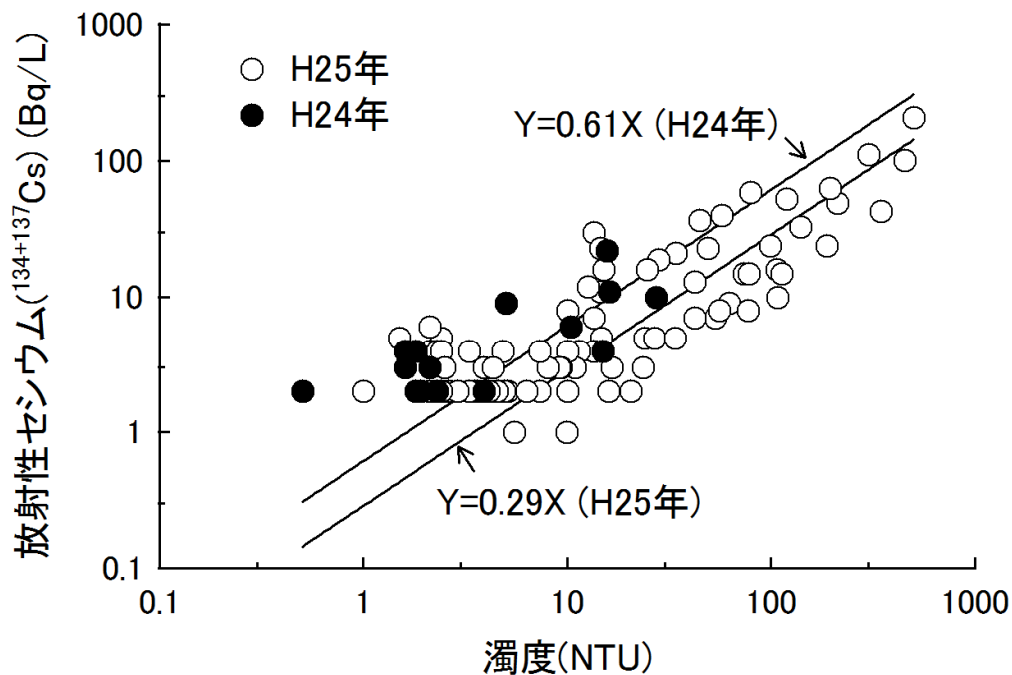




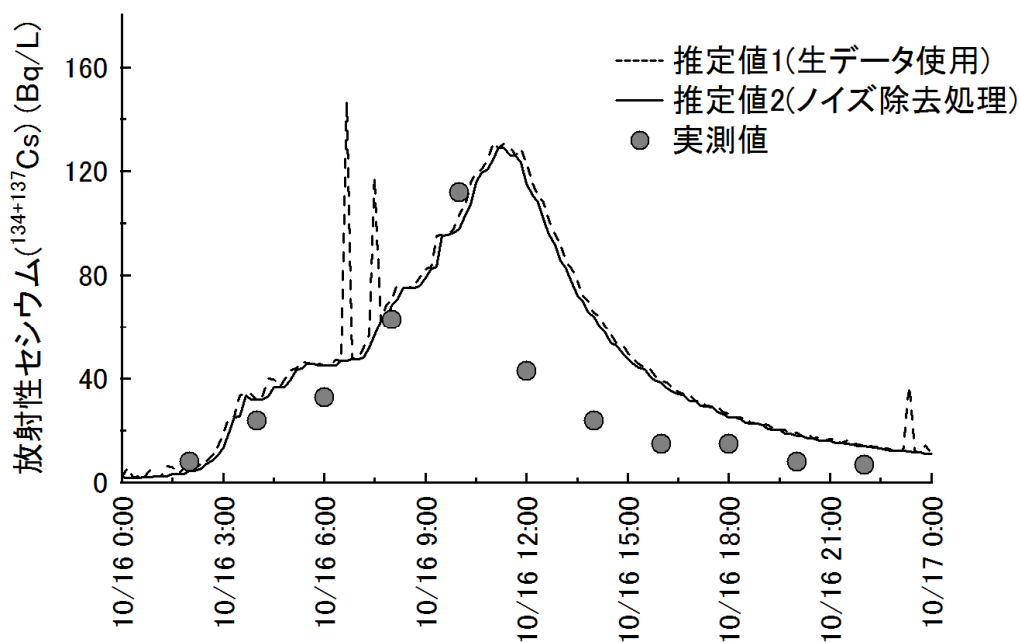
図Ⅱ-1 大柿ダムの観測地点と流域



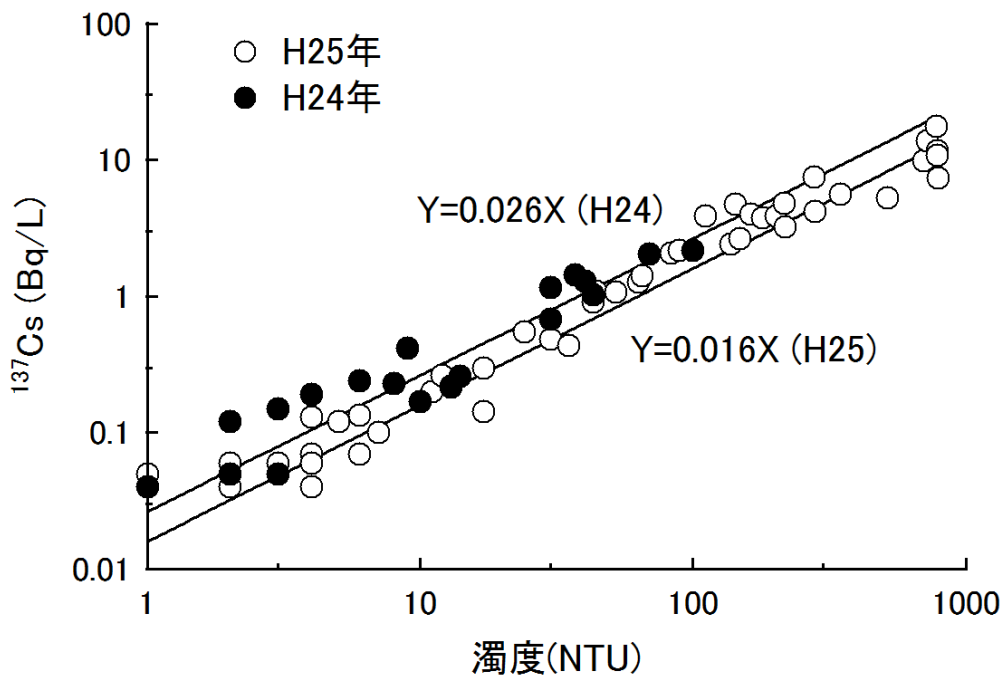
図Ⅱ-2 大柿ダム3地点における降雨に伴う濁度の変化



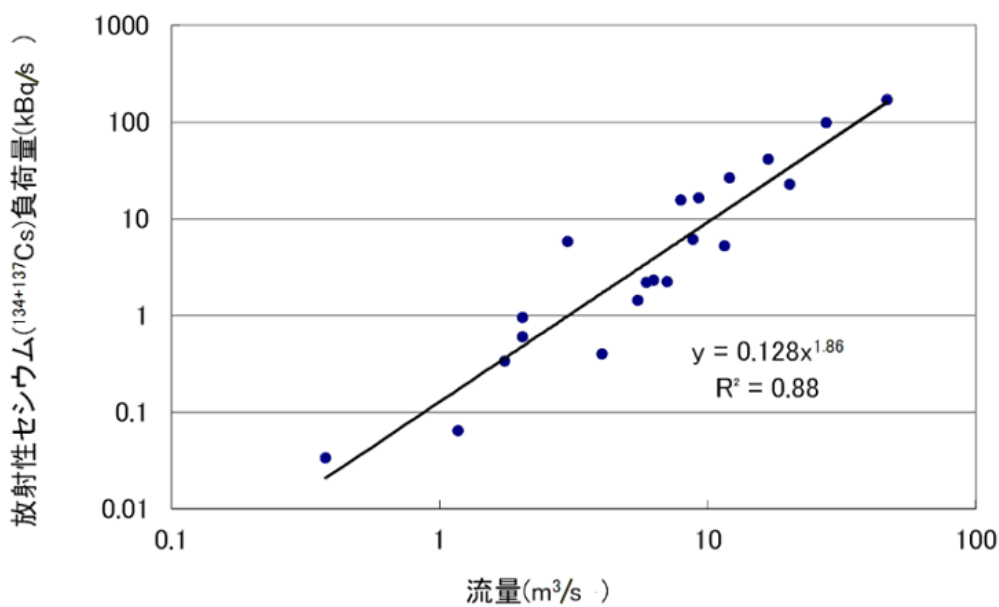
図Ⅱ-3 濁度と放射性セシウム濃度（セシウム 134+137）の関係（屋曽根）  
（放射性セシウムの検出限界は多くの試料で 2 Bq/L）



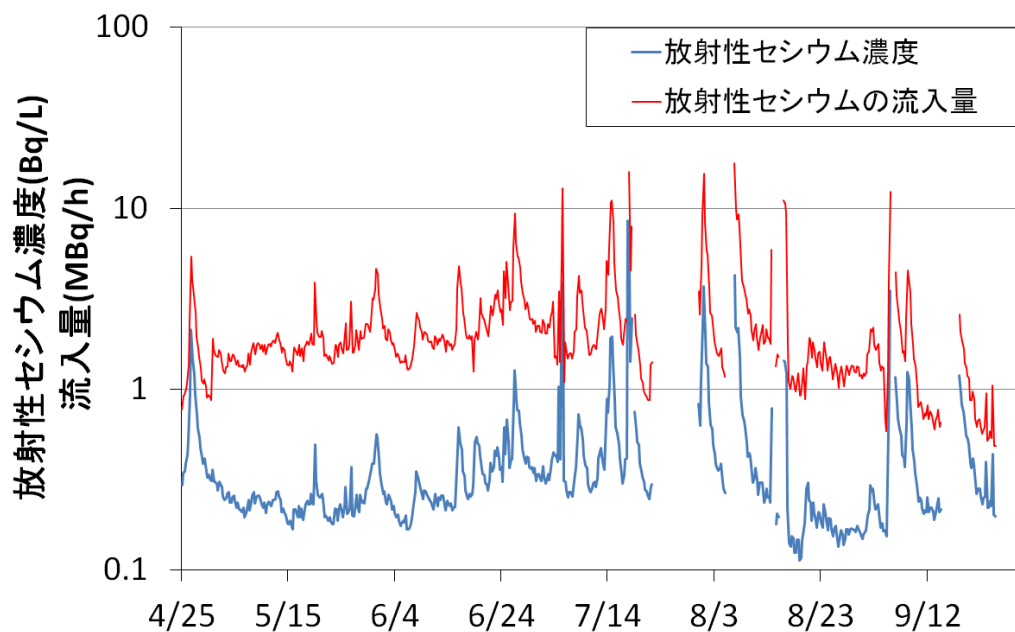
図Ⅱ-4 濁度連続観測データを用いた放射性セシウム濃度の推定（屋曽根）



図Ⅱ-5 広瀬川における年度毎の濁度とセシウム 137 の関係



図Ⅱ-6 広瀬川における流量と放射性セシウムの負荷の関係(L-Q式)



図Ⅱ-7 幹線農業用水路における放射性セシウム濃度と流入量の推定  
(平成 25 年、福島県伊達市)

### Ⅲ. 不作付け地域における放射性セシウムの長期的影響把握手法の確立

波多野 隆介、Wang Chunying、倉持 寛太（北海道大学）

#### 1. 調査目的

セシウムは、土壌への吸着が強く、溶存態セシウムは植物に積極的に吸収され循環し、根群域からの拡散や溶脱はほとんど起こらず、粘土鉱物と土壌有機物に吸着されたセシウムは土壌侵食とともに流出する。セシウムは一価の陽イオンであり、土壌中での挙動はカリウムと類似するとともに、カリウムの挙動に強く影響を受ける。セシウムとカリウムの粘土との反応は、放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP、mol/kg)、 $RIP = Kd^{Cs} \times (\text{土壌溶液カリウム濃度 (mol/L)})$ によりリンクされる。ここで  $Kd^{Cs}$  はセシウムの固液分配係数(L/kg)である。土壌溶液カリウム濃度が高まると RIP が高まり、セシウムは粘土に強く吸着され、植物へ吸収されにくくなる<sup>12</sup>。

本項では、流域での物質動態を予測する SWAT モデルを改良して、放射性セシウムの河川流出と流域内のセシウム循環を評価するための SWAT-C モデルの構築を行った。ここでは、放射性セシウムと植物吸収や土壌の交換平衡において相互作用があり、放射性セシウム動態を予測する上で不可欠であるカリウムの循環モデルについて 6 年間のデータが整備されている標津川流域の結果を報告する。

#### 2. 調査内容

##### (1) SWAT-C の概要

セシウムなど陽イオンは粘土に強く吸着されるため、主に土砂流出により河川へ流出する。SWAT は土砂流出を良く再現することを平成 24 年度に検証した。ここでは、河川の流量や土砂流出に関する項目は省略し、カリウム循環に係わるものだけを説明する。SWAT-C では、カリウムの動きを以下のようにモデル化している。

降水、化学肥料や堆肥の施与により土壌に投入されたカリウムと鉱物の風化により溶出したカリウムが、土壌中で溶存態と吸着態に分配される。溶存態は植物へ吸収されるとともに、地表面流去水に溶存して直接河川へ流出したり、水の浸透に伴い土壌深部へ溶脱し、さらに地下水とともに河川へ流出したりする。吸着態は土壌侵食とともに移動し河川へ流出する(図Ⅲ-1)。また作物の収穫に伴い持ち出されたカリウムはこれらの過程から取り除かれる。一方、残渣は分解され、分解に伴い土壌中へ放出されたカリウムはこれらの過程に取り込まれ流域内を循環し流出する。

植物吸収のモデル化にあたっては、移行係数  $F_v$  の考え方を使った。カリウムについては植物体内のカリウム濃度と土壌カリウム濃度の比 (mg/kg 植物乾物重 / mg/kg 土壌乾物重) により移行係数を与えた。吸収量は次式で表される。

$$Pestup = F_v \times bioday \times solpst \quad (1)$$

ここで、 $Pestup$  は  $HRU^{13}$  (hydrologic response unit) における日吸収量 (kg/ha)、 $bioday$

<sup>12</sup> 山口紀子ら。土壌-植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因, 農環研報, 31, 75-129 (2012).

<sup>13</sup> 土地利用、土壌タイプ、地形特性による水理学的な反応を同一とする空間単位。

は HRU におけるバイオマス量 (kg/ha)、solpst は HRU における土壌表層のカリウム含量 (kg/kg 土壌乾物重) である。

根の密度は表層ほど高く、カリウム濃度は表層ほど高いので、カリウム吸収は表層ほど大きい土層内分布を持つと考えられる。このことを以下の分布関数を用いて表した。

$$K_{up,z} = \frac{K_{up}}{1 - \exp(-\beta_n)} \left\{ 1 - \exp\left(-\beta_n \frac{z}{Z_{root}}\right) \right\} \quad (2)$$

ここで、 $K_{up,z}$  は土壌表面から深さ  $Z$  (mm) までのカリウム吸収量 (kg/ha)、 $K_{up}$  は最大カリウム吸収 (kg/ha)、 $\beta_n$  はカリウム吸収分布係数、 $Z_{root}$  は根の発達深度 (mm) である。

なお、有機物からのカリウム溶出は素早く生じ、土壌中での反応の制限にならないとした。

表Ⅲ-1 に今回用いたカリウム循環を記述するためのサブルーチン<sup>14</sup>を示す。植物吸収に関するサブルーチン Pestup と、地下水から河川への流出に関するサブルーチン GW\_Pest は新たに加えたもので、それ以外のサブルーチン Apply、Operatn、Washp、Decay、Enrsb、Pesty、Pestlch、Rtpest は既存の SWAT モデルの農薬モジュールのものを利用した。農薬とカリウムの大きな違いは、農薬は揮散するが、カリウムは揮散しないことであり、モデルのソースコードの揮散の項目が不活性となるように書き換えた。

カリウムのシミュレーションではまず降下物や施肥による供給を Apply で記述し、植物吸収を新たに加えたサブルーチン Pestup で記述する。次に降雨の植物体表面からの洗脱による土壌表面への移動を Washp で、植物遺体からの土壌への供給を Operatn で記述する。ついで、それぞれの土層における水平流や地表面流去水による移動を Pestlch で、地下水を経て河川への移動を新たに加えたサブルーチン GW\_Pest で記述する。放射性同位元素の場合、この間の土壌や植物体での減衰を Decay で記述する。カリウムの表面流去中の土砂への富化の程度は Enrsb により、土砂吸着カリウムの移動を Pesty で記述する。河川水中にカリウムが入った後には、その経路を Rtpest により記述する。

なお、本モデルでは鉱物の風化由来のカリウムの供給にはとくにサブルーチンを構築せず、風化由来のカリウムの供給は一定に溶液のカリウム濃度を高めるものとして、これに森林流域の流出水の実測値の平均値を与えた。また、カリウムとセシウムの拮抗を表す RIP については、現在セシウムデータを整理しているため、モデルには反映していない。

## (2) 調査流域

北海道東部の標津川流域 (67, 200 ha) を対象流域とした。その土地利用は、森林 45.6%、農地 51.4%、市街地 1.4%、荒地 1.6% であり、農地の 95% 以上を牧草地が占める。年降水量は約 1,150 mm、年平均気温約 5° C である。土壌は、摩周岳火山灰由来の黒ボク土を主体とし、下流の低地帯には灰色低地土や一部に泥炭が分布する。

## (3) データ・セット

1991~2008 年の降水量、日平均気温、風速、相対湿度などの気象データ、流域末端河川の日平均水位 (H)、土砂やカリウム濃度を収集した。日平均流量 (Q) を H-Q 曲線から、日平均土砂量、カリウム量を L-Q 曲線から求めた。実測した黒ボク土のカリウム分配係数は、75.5~124 L/kg で、平均 102 L/kg であった。年間のカリウム投入量の平均値は、94.8 kg/ha、

<sup>14</sup> プログラム内で複数回使うことを想定して、一連の関数・命令をひとまとめにしたもの。

年間植物カリウム吸収量の平均値は 44.6 kg/ha であった。

#### (4) SWAT-C のキャリブレーション

水、土砂、カリウム流出の日変化を記述するためにキャリブレーション<sup>15</sup>を行った。一般に、キャリブレーション開始直後は、計算値がパラメータの初期値に強く依存し、平衡状態に達しないため、適合度が低くなる傾向がある。この計算値の適合が悪い期間の長さは、パラメータの初期値、キャリブレーションに供するパラメータの数、計算に用いる領域 (HRU) の数に依存する。このため適合度が低いキャリブレーション開始直後をウォームアップ期間としてキャリブレーション期間から切り捨てることにしている。ウォームアップ期間が足りない場合は、安定するまで同じ期間を繰り返し使用する。本報告でのウォームアップ期間は、水流出と土砂流出では 2 年間であったが、カリウム流出には 12 年を要した。これは、樹木の体内濃度の安定が原因であった。カリウム流出については 2003 年をキャリブレーション期間とし、2004 年の 1 年間を検証期間とした。

表Ⅲ-2 に SWAT-C におけるカリウム循環に関わるパラメータを示す。これらには、実測あるいは文献値を参照するものと、キャリブレーションにより与えるものがある。文献を参照するものは、土壌中での半減期 (HLIFE\_S)、植物体中の半減期 (HLIFE\_F)、溶解度 (WSOL) である。HLIFE\_S と HLIFE\_F は将来セシウムの予測を行うことを考えてモデルに含められておりカリウムについては考慮しない。実測により得るパラメータは、土壌表層 20 cm の有機態炭素含量 (SOL\_CBN)、化学肥料及び堆肥の施与量と大気降下物量の合計 (PST\_KG)、土壌のカリウム含量初期値 (SOLPST)、植物体のカリウム濃度の初期値 (PLTPST)、水中の減衰速度定数 (CHPST\_REA)、堆積物中の減衰速度定数 (SEDPST\_REA)、土壌-植物移行係数 (Fv) である。SOL\_CBN は土壌タイプごとに与え、SOLPST と Fv は土地利用や土壌タイプの平均値を与えた。PLTPST は樹木体内カリウム濃度の初期値の決定が難しかったためこれを 0 とし与え、樹木体内のカリウム濃度が安定するまで、12 年間モデルをウォームアップして得た。CHPST\_REA と SEDOST\_REA はカリウムについては考慮しないが、将来のセシウムの予測のためにパラメータとして含めた。キャリブレーションにより得るパラメータは、土壌の分配係数 (SKOC)、浸透係数とよぶ土壌中濃度から土壌溶液濃度への変換係数 (PERCOP)、富化比とよぶ土壌中濃度から吸着態濃度への変換係数 (PSTENR)、植物からの洗脱係数 (WOF)、施肥効率 (AP\_EF)、河川水中の水-堆積物の分配係数 (CHPST\_KOC)、堆積物への沈降速度 (CHPST\_STL)、堆積物から河川水への巻き上げ速度 (CHPST\_RSP)、活動堆積物層の厚さ (SEDPST\_ACT)、拡散速度 (CHPST\_MIX)、堆積速度 (SEDPST\_BRY)、植物吸収の土層分布関数の係数 ( $\beta_n$ ) である。なお、河川水中の懸濁物とカリウム濃度を維持するために、沈降速度はやや低めの、巻き上げ速度はやや高めの値を与えた。

なお、本モデルでは、鉱物風化に由来するカリウムの供給に関するパラメータは設定せず、鉱物風化由来カリウム供給による溶液濃度の上昇分として森林流域の流出水の実測値 1.6 mg/L を与えた。

#### (5) モデルの適合度の検定

モデルの適合性は、決定係数 ( $R^2$ ) と Nash and Sutcliffe の効率係数 ( $E_{NS}$ )、及び比誤差 (Re) で判定した。 $E_{NS}$  は次式で定義される。

<sup>15</sup> モデルのアウトプットを実測値に合わせるために、いくつかのパラメータを調整すること。

$$E_{NS} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (X_{oi} - X_{si})^2}{\sum_{i=1}^n (X_{oi} - \bar{X}_{oi})^2} \quad (3)$$

また、Re (%) は次式から得られる。

$$Re = \left| \frac{\sum_{i=1}^n X_{si} - \sum_{i=1}^n X_{oi}}{\sum_{i=1}^n X_{oi}} \right| * 100 \quad (4)$$

ここで、 $X_{oi}$  :  $i$  日の実測値、 $X_{si}$  :  $i$  日の推定値、 $\bar{X}_{oi}$  : 対象期間の実測値の平均値。

### 3. 結果と考察

#### (1) カリウム流出

カリウム流出量の実測値と予測値の変化パターンは類似しており、モデルの適合性は十分であった(図Ⅲ-2: キャリブレーション期間  $R^2=0.73$ 、 $E_{NS}=0.66$ 、 $Re=13\%$ ; 検証期間  $R^2=0.94$ 、 $E_{NS}=0.89$ 、 $Re=13\%$ )。なお、SWAT-Cによる河川流量の推定値と実測値は類似の傾向を示し、両者の一致度合は  $R^2=0.60$ 、 $E_{NS}=0.58$ 、 $Re=2.5\%$ であった。

SWAT-Cによる河川の土砂流出の推定値と実測値は類似した傾向を示し、両者の一致度合は、検証期間では  $R^2=0.70$ 、 $E_{NS}=0.49$ 、 $Re=20\%$ であった。また、モデルで予測した年間平均カリウム総流出量は4,080トンで、実測値4,230トンと良く一致した。土壌から地下水への年間溶脱量は8.8kg/ha、河川への年間カリウム流出量は14kg/haで、その内訳は、地表面流去により3.6kg/ha、地下水流出10.4kg/haと推定された。

#### (2) カリウム循環

SWAT-Cで予測した年間植物吸収量の推定値は44.4kg/haであり、実測値44.6kg/haとよく一致した。流域の土層には平均640kg/haのカリウムが持続的に保持されていると推定された。

#### (3) 交換性カリウムの流域内分布

2003年当初で、土壌中の交換性カリウムは0~192kg/haで存在し、平均88kg/haであった(図Ⅲ-3a)。一方2004年の終わりには、0~322kg/haであり、平均155kg/haに増加した(図Ⅲ-3b)。土壌中の交換性カリウムの差は0~72kg/haであり、平均33kg/haの増加が見られた。これらの増加は主に施肥によるものである。流域土壌からの持ち出しは収穫によるもので、流出の寄与は小さいことが認められた。



表Ⅲ-1 SWAT-C のカリウム動態に関わるサブルーチン

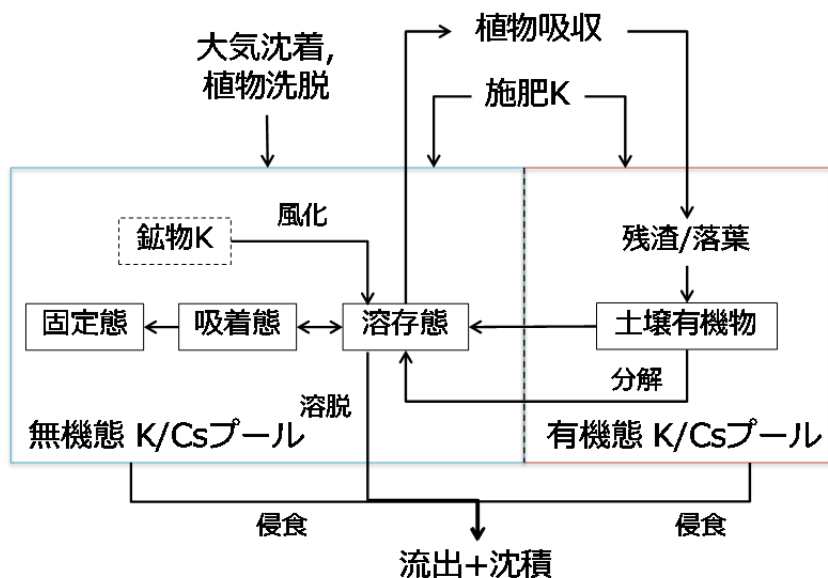
サブルーチン名	サブルーチンの機能
Apply	降下物や施肥による K 供給
Pestup	植物 K 吸収
Operatn	植物遺体による K の土壌還元
Washp	植物体洗脱による K の土壌表面への移動
Decay	土壌や植物における K 分解
Pestlch	K の土壌中の溶脱、土層内や土壌表面の水平方向の移動
Enrsb	流出に伴う K 富化比
Pesty	土砂吸着態 K の移動
GW_Pest	K の地下水への溶脱を経る河川への流出
Rtpest	河川水中の K 経路

表Ⅲ-2 SWAT-C に導入したカリウム循環に関するパラメータと標津川流域の最適値

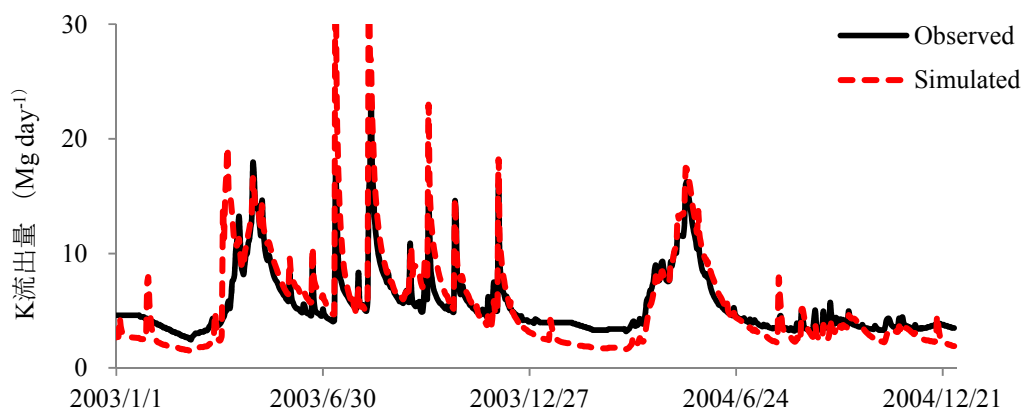
パラメータ	パラメータの内容 (単位)	種別 <sup>1)</sup>	最適値
土壌中の K 移動と溶脱に関するもの			
SOL_CBN	土層の有機態炭素含量 (%)	M	0.01~5
SKOC	有機態炭素含量で標準化した土壌の分配係数 (L/kg)	C	800
WSOL	溶解度 (mg/L)	R*	∞
PERCOP	浸透係数	C	0.9
PSTENR	富化比	C	5
元素特性に関するもの			
WOF	植物からの洗脱係数	C	NC <sup>2)</sup>
HLIFE_S	土壌中での半減期	R**	NC
HLIFE_F	植物体中の半減期	R**	NC
営農に関するもの			
AP_EF	施与効率 (%)	C	100
PST_KG	施与量 (大気降下物を含む) (kg/ha)	M	95
初期条件			
PLTPST	植物体の K 濃度の初期値 (mg/kg)	M	0
SOLPST	土壌中の K 濃度の初期値 (mg/kg)	M	500
河川水中の K 動態に関するもの			
CHPST_KOC	水-堆積物分配係数 (m <sup>3</sup> /g)	C	0.05
CHPST_REA	水中の減衰速度定数 (1/day)	M	NC
CHPST_STL	堆積物への沈降速度 (m/day)	C	0.01
SEDPST_REA	堆積物中の減衰速度定数 (1/day)	M	NC
CHPST_RSP	巻き上げ速度 (m/day)	C	1
SEDPST_ACT	反応性堆積物の厚さ (m)	C	1
CHPST_MIX	拡散・混合速度 (m/day)	C	0.1
SEDPST_BRY	堆積速度 (m/day)	C	0.01
土壌-植物移行に関するもの			
Fv	土壌-植物移行係数	M	12.8
植物吸収に関するもの			
βn	植物吸収の深さ分布	C	5

1) M: 実測、C: SWAT モデルの計算値、R: 文献等参照値 (R\*: Neitsch, S. L., J. G. Arnold, J. R. Kiniry, and J. R. Williams. 2005. Soil and Water Assessment Tool theoretical documentation. Version 2005. R\*\*: The National Institute of Standards and Technology (NIST). Radionuclide Half-Life Measurements. in <http://www.nist.gov/pml/data/half-life.html>. cfm.

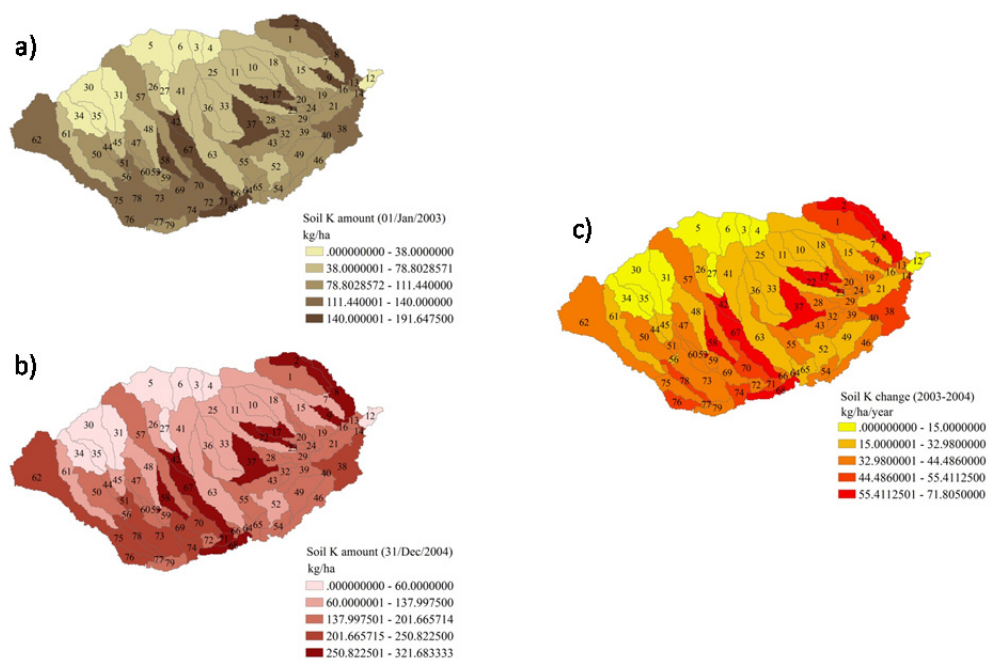
2) NC: 考慮せず



図Ⅲ-1 SWAT-Cモデルの基本構造



図Ⅲ-2 SWAT-Cモデルによる標津川のカリウム流出量の推定値と実測値の比較



図Ⅲ-3 SWAT-Cモデルによる標津川流域の交換性カリウム分布の予測値  
( a) 2003年1月1日、b) 2004年12月31日、c) a)とb)の差 )

## IV. 農地における放射性セシウム動態のモニタリング

吉岡 邦雄、佐藤 睦人、大越 聡（福島県農業総合センター）  
江口 定夫、吉川 省子、三島 慎一郎、板橋 直（農業環境技術研究所）

### 1. 調査目的

農業流域内での放射性セシウム濃度分布の長期的な将来予測を行うためには、表流水による土壌粒子の輸送過程などを数式によって表現する流域スケールのモデルが必要であり、そのモデルの各種パラメータの決定及びモデル有効性の検証のためには、現地における土壌侵食及び放射セシウム輸送量などのモニタリングデータが不可欠である。

本調査では、福島県内の異なる流域を対象として、放射性セシウム動態の実態を把握するとともに、モデル（SWAT）に必要なパラメータの抽出を行うため、モニタリングによって各地の実測データを蓄積した。また、モデルに必要な吸着パラメータ（固液分配係数  $K_d$ ）の抽出とモデル式の適用について検討を行った。

### 2. 調査内容

福島県内各地の農地（表IV-1）及び農業流域（表IV-2）を対象に、放射性セシウム（セシウム 134+137）動態のモニタリングを行った。各地の降水（転倒升式雨量計）、灌漑水（三角堰、パーシャルフリューム、水道メータ）、表面排水（三角堰）、暗渠排水（水道メータ）及び河川水（水位計+流速計）の水量または流量を 10 分間隔で、濁度（濁度計）を 30 分間隔で自動観測した。これらの水試料は、月 1 回の定期サンプリング、または、代かき・田植え期や中干し期などの落水イベント時などに、それぞれ、20 L 以上サンプリングした。

大気降下物は、蒸留水を張った面積 0.5 または 1.0  $m^2$  の水盤に沈着したもの（落葉、虫なども含む）を、湿性・乾性降下物の含量とみなして、月 1 回採取した。各水試料は、孔径 0.025  $\mu m$  のメンブレンフィルター（吸引濾過）を用いて濾液（溶存物）と残渣（懸濁物：SS）に分離し、それぞれ蒸発乾燥後、ゲルマニウム半導体検出器（ウエル型）を用いたガンマ線スペクトロメトリーにより、放射性セシウム濃度を定量した。

各農地圃場では、深さ 25 cm までの不攪乱コア（直径 80 mm）を 3 連で採取し、深さ別（深さ 2.5 または 5 cm 間隔の層別）の放射性セシウム濃度を測定した。

### 3. 結果と考察

#### (1) 溶存態及び懸濁態の放射性セシウム濃度

異なる農地における各水試料中の全放射性セシウム濃度（0.004 Bq/L $\sim$ 1 $\times$ 10<sup>3</sup> Bq/L）は、SS 濃度（1 mg/L $\sim$ 65 g/L）と共に増大し（図IV-1）、SS 濃度のべき乗関数として表すことが可能であった。このことは、圃場～流域スケールでの面的な放射性セシウム輸送が、大気環境中も含めて、主に懸濁態で生じる（SS 濃度の高低に強く依存する）ことを示している。図IV-1 のべき乗式を用いれば、少なくともこの観測期間中（平成 23 年年 5 月～平成 25 年年 11 月）については、これらの地点における水試料中の SS 濃度（または濁度）から全放射性セシウム濃度をおよそ推定することが可能である。この推定式から計算した福島市大波地区の水田排水路の放射性セシウム濃度は 5 月初旬の代かき期に約 30 Bq/L、7 月上旬の中干し期に 14 Bq/L と高い値を示し、降水量とは関係が認められなかった。また、地域全体で作付けを中止し、農地の放射性セシウム濃度の高い飯舘村比曾地区の比曾川の SS

濃度から推定した放射性セシウム濃度は最大で 94 Bq/L と高い値を示し、降水量に対応して濃度が高いことが多かった。

懸濁態の放射性セシウム濃度に比較して、溶存態放射性セシウム濃度は低く (0.002~0.91 Bq/L)、全濃度に対する溶存態濃度の割合は、大気降水物：1~25%、灌漑水：0.6~81%、表面排水：0.001~40%、暗渠排水：2~98%であり、SS 濃度とともに低下した。溶存態放射性セシウム濃度は、大気降水物（水盤中の水試料）で他の試料よりも高い傾向があり (0.02~0.91 Bq/L)、浅層地下水（暗渠排水、小浜灌漑水の一部）は低い傾向を示した (0.002~0.03 Bq/L)。また、電気伝導度 (EC : Electrical Conduction) が高い時ほど、各水試料中の溶存態放射性セシウム濃度は高まる傾向にあった。

## (2) Kd パラメータ

懸濁物 (SS) 中の放射性セシウム濃度 (67 Bq/kg~210 kBq/kg) と溶存態放射性セシウム濃度を用いて、次式に従い、固液分配係数 Kd を算出した。

$$\text{固液分配係数 } Kd \text{ (L/kg)} = \text{懸濁物中の放射性セシウム濃度 (Bq/kg)} \div \text{溶存態放射性セシウム濃度 (Bq/L)}$$

その結果、Kd は  $5 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6$  L/kg の範囲内で大きく変動することが明らかとなった (図IV-2)。また、日和田の水田圃場からの表面排水と大気降水物では、電気伝導度 (0.09~0.38 dS/m) と共に Kd 値が 1 桁以上低下することが示された (図IV-2)。さらに、全地点の大気降水物では、溶存有機態炭素 (DOC) 濃度 (0.3~14 mg C/L) と共に Kd 値が 1 桁近く低下した (図IV-3)。これらの結果は、SS に含まれる放射性セシウムの少なくとも一部は交換性陽イオンとして容易に吸脱着する状態にあること、また、生物遺体中の放射性セシウムが有機物分解に伴い溶存態の放射性セシウムとして液相中に放出されること (図IV-3 の大気降水物では、有機物分解によって DOC が上昇するとともに、液相中への放射性セシウム分配割合が増大している) を示唆している。

このように、固液分配係数 Kd が水質条件によって 1 桁以上も変動することが明らかとなったことから、線形吸着式<sup>16</sup>以外の適用性を検討した。固液分配係数 Kd を溶存態放射性セシウム濃度に対してプロットすると (図IV-4)、Kd は溶存態放射性セシウム濃度とともに低下する傾向が見られた。これは、Freundlich 型吸着式<sup>17</sup>が適用可能なことを示している。暗渠排水や林地地下水の影響を受けた小浜灌漑水などを除けば、図IV-4 に示した式で、これらの地点の Kd 値の変動をおよそ説明することも可能と考えられる。線形吸着モデルは、Freundlich 式によって改良可能と考えられる。また、今回得られた Kd 値と溶存態放射性セシウム濃度の関係は、既往の文献値<sup>18</sup>と比較して、溶存態放射性セシウム濃度に対する Kd の変化幅が大きかった (図IV-4)。また、IAEA<sup>19</sup>の淡水中におけるセシウムの Kd 値 ( $10^2 \sim 10^5$  L/kg) に比べると、1~2 桁大きい値の範囲にあった。

<sup>16</sup> 溶質濃度 C の増加に伴い、固相吸着濃度 Q が直線的に増加することを表す式 :  $Q = kC$ , k は定数。

<sup>17</sup> 溶質濃度 C の増加に伴い、固相吸着濃度 Q がべき乗則に従って増加することを表す式 :  $Q = aC^b$ , a と b は定数。

<sup>18</sup> United States Environmental Protection Agency. Understanding variation in partition coefficient, Kd, values. Volume II, EPA 402-R-99-004B, Washington DC(1999).

<sup>19</sup> IAEA. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series, No. 472, Vienna(2010).

### (3) 低地水田における放射性セシウム収支：計算と検証

ここでは、一例として、日和田・水田圃場（節水区）における平成 23 年 4 月からの放射性セシウム動態モニタリング結果の概要を示す。調査地の年降水量は 1,000 mm 前後であり、日降水量は多いときで 100 mm 前後に達した。平成 23 年 4 月 28 日から一年間の降水量は 1,028 mm、灌漑水量は 435 mm、表面排水量は 476 mm と計算された（表Ⅳ-3）。水収支の残差 986 mm は、蒸発散と下方浸透に相当する値として妥当であり、水収支計算結果は妥当と考えられる。なお、年暗渠排水量はわずか数 mm 程度以下であり、ここでは、無視できるとみなした。

濁度計による SS 濃度（カオリナイト懸濁液を用いてキャリブレーションした時の SS 濃度）は、実測 SS 濃度との関係（ $y = 0.0369x^{1.22}$ ）から、表面排水中 SS 濃度に換算した。灌漑水中の放射性セシウム濃度は一定（実測値の平均：SS 濃度 36.5 mg/L、全放射性セシウム濃度 1.66 Bq/L）とみなした。表面排水中の SS 濃度と全放射性セシウム濃度の関係をべき乗式で近似し（図Ⅳ-1）、水田への放射性セシウム流入量及び流出量を日単位で計算した。

水盤により採集した放射性セシウムの日平均降下量（図Ⅳ-5）は、平成 23 年 4 月には 6 Bq/m<sup>2</sup> d であったものが、一年後には半減し、平成 24 年後半からは 1 Bq/m<sup>2</sup> d 以下で推移した。平成 23 年は、節水区の水管理が徹底しており、そのため、灌漑水による放射性セシウム流入も表面排水による流出も、それ以降の年に比較して、低く推移した。平成 24 年 9 月中旬の非灌漑期には大雨があり、約 10 kBq/m<sup>2</sup> d の放射性セシウム流出が見られた。平成 25 年 8 月のお盆休み中には、灌漑水の止め忘れにより、20 kBq/m<sup>2</sup> d 以上の流出が見られた。放射性セシウムの収支を求めると（表Ⅳ-3）、大気降下物として 1.50 kBq/m<sup>2</sup>、灌漑水から 0.72 kBq/m<sup>2</sup> が入り、表面排水によって 19.62 kBq/m<sup>2</sup> が流出したと計算された。

この値の妥当性を検証するため、深さ 15 cm までの作土に含まれる放射性セシウム存在量の年次変化を調べた（表Ⅳ-3 の注）。平成 23 年 4 月には、節水区には 588.8 kBq/m<sup>2</sup> の放射性セシウムが含まれていたが、翌年 4 月には 474.4 kBq/m<sup>2</sup> まで低下していた。この間、物理的壊変によって放射性セシウム存在量は 498.0 kBq/m<sup>2</sup> まで自然減衰するが（初期値としてセシウム 134：セシウム 137=1:1 を仮定）、両者の差 23.6 kBq/m<sup>2</sup> は、水田系外への流出量と考えられる。この値は、表Ⅳ-3 の値 17.4 kBq/m<sup>2</sup>（作土中放射性セシウム存在量の -3.4%）と比較的近かった。

### (4) 異なる谷津田環境における放射性セシウム収支

同様の手法により、福島県内の異なる谷津田<sup>20</sup> 3 地点（大波、小浜、月舘）を対象に、平成 24 年 5 月 23 日から平成 25 年 5 月 27 日までの約 1 年間について、放射性セシウム収支を概算した（表Ⅳ-4）。この期間の降水量は、大波、小浜、月舘で、それぞれ、789、875、953 mm、灌漑水による流入量はそれぞれ、約 300、1,330、3,300 mm（隣接水田から表面水が侵入したため高い値）、表面流出水量は約 610、980、7,700 mm となった。小浜、月舘では、山側の斜面から水が常に浸み出る状況であった。また、月舘では、作付け期間中に数回程度、漏水計により田面水の浸透速度を測定したところ、正味として土壌中から地下水が湧出している状況が明らかとなった。このように谷津田では水収支の把握が困難であったが、水の出入りが低地水田の 10 倍ほどにも及ぶことが明らかとなった。

放射性セシウムの灌漑水による流入、大気降下物による沈着及び表面排水による流出は、大波では、それぞれ、約 215、171 及び 2,300 Bq/m<sup>2</sup>、小浜では、750、175 及び 1,600 Bq/m<sup>2</sup>、月舘では、1,900、320 及び 8,300 Bq/m<sup>2</sup> であった。放射性セシウム収支は、大波、小浜及

<sup>20</sup> 台地が開析されてできた谷間の低地（谷地）に分布する水田。

び月館で、水田作土 15 cm までの放射性セシウム存在量に対して-0.22%、-0.16%及び-0.67%で、わずかに流出となった。このように、森林からの放射性セシウムの流入はあっても、代かきや中干しに伴う流出によって収支としてはわずかに流出すると推定された。

表IV-1 福島県内の農地における放射性セシウム動態モニタリング

農地（圃場スケール）						
地目	場所	作目	作物、主な植物	肥培管理など	観測期間	
水田	郡山市日和田	水稲	イネ	節水区（No.82圃場）	2011年4月～現在	
水田	郡山市日和田	水稲	イネ	慣行区（No.83圃場）	2011年4月～現在	
水田	郡山市日和田	不作付け	あら起し後、裸地	代かき濁水試験区（No.36,37,38圃場）	2011年8月～2012年3月	
水田	二本松市小浜	水稲	イネ	慣行栽培	2012年3月～現在	
水田	福島市大波	水稲	イネ	慣行栽培	2012年4月～現在	
水田	伊達市月舘	水稲	イネ	慣行栽培	2012年4月～現在	
水田	飯舘村比曾	不作付け	イ（イグサ）	不作付け、草刈り有り	2012年11月～現在	
畑	郡山市日和田	野菜	キュウリなど	園芸&ビニールマルチ	2012年12月～現在	
樹園地	郡山市日和田	果樹	ニホンナシ	慣行区、傾斜ライシメータ	2012年12月～現在	
草地	猪苗代町蚕養	採草地	チモシーなど	慣行栽培、年2回刈り取り	2012年11月～現在	

表IV-2 流域スケールでの放射性セシウム動態モニタリング

農業地域（流域スケール）				
河川名	場所	主な作物、植物	肥培管理など	観測期間
樋渡川	三春町樋渡	水稲、大豆、タバコなど	作付け流域、水田転換畑	2012年12月～現在
比曾川	飯舘村比曾	セイタカアワダチソウ、ヨシ、イ、ヨモギなど	不作付け流域、草刈りの有無	2012年12月～現在

表IV-3 日和田（節水区）の低地水田における水収支と放射性セシウム収支（平成23年4月28日～平成24年4月28日）

	収入		支出		収支
	大気降下物	灌漑水	表面排水	蒸発散＋浸透	
水 (mm)	1028	435	476	986	0
放射性Cs (kBq/m <sup>2</sup> )	1.50	0.72	19.62	0	-17.40

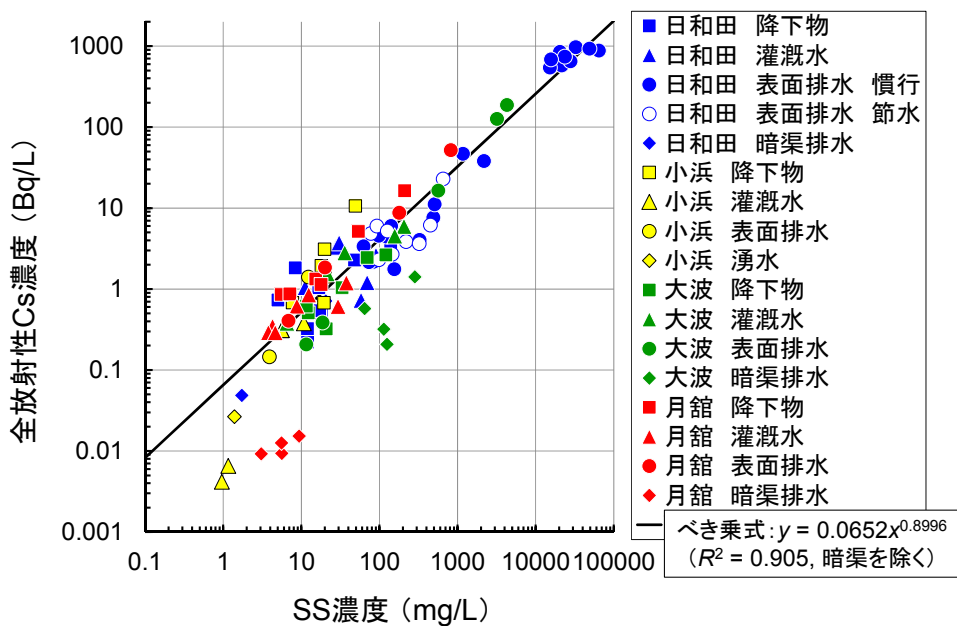
注) 深さ15 cmまでの土壌中の放射性Cs存在量は、平成23年4月は588.8 kBq/m<sup>2</sup>、平成24年4月は474.4 kBq/m<sup>2</sup>だった。

表IV-4 森林からの灌漑水を利用した水田の水と放射性セシウム動態（平成24年5月23日～平成25年5月27日）

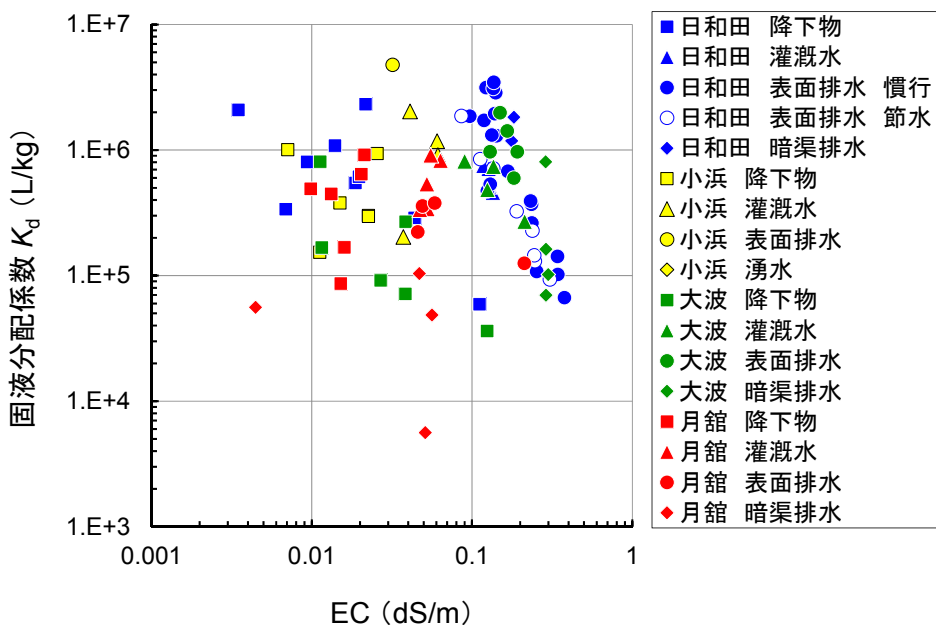
	降水量 (mm)	流入水量 (mm)	流出水量 (mm)	地表水による 放射性セシウム流入量 (Bq/m <sup>2</sup> )	大気からの 放射性セシウム流入量 (Bq/m <sup>2</sup> )	地表水による 放射性セシウム流出量 (Bq/m <sup>2</sup> )	土壌中放射性セシウム濃度 (2012年3～4月 測定) (Bq/m <sup>2</sup> )	農地放射性セシウム存在量に対する 出入り
①大波	789	301	611	215	171	2,328	8.7 × 10 <sup>5</sup>	0.22%の流出
②小浜	875	1,332	976	753	175	1,568	4.0 × 10 <sup>5</sup>	0.16%の流出
③月舘	953	3,301	7,718	1,875	321	8,269	9.1 × 10 <sup>5</sup>	0.67%の流出

\* 地下浸透水量、地下からの湧き出し量、および水稲による持ち出し量は考慮していない。

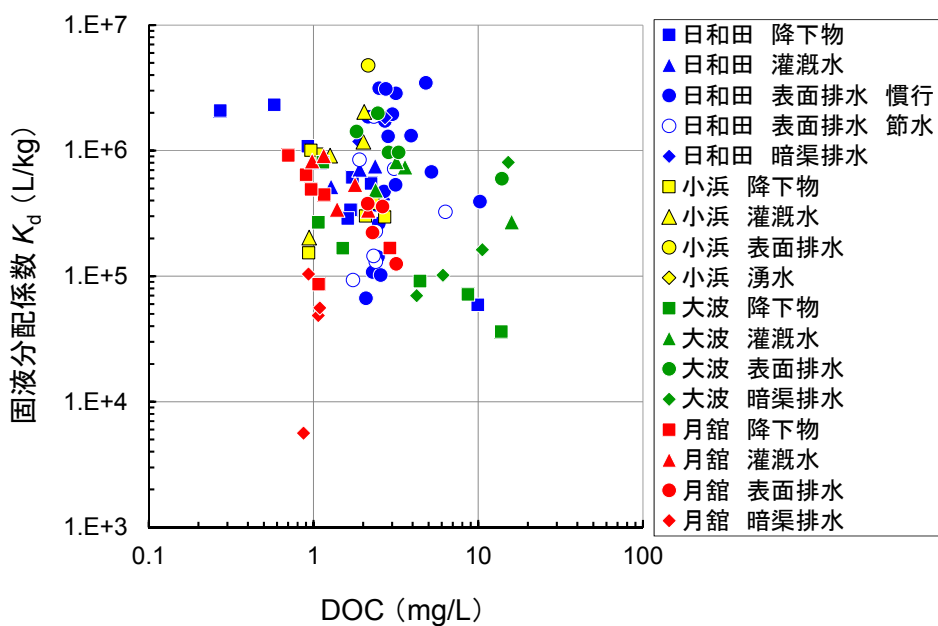




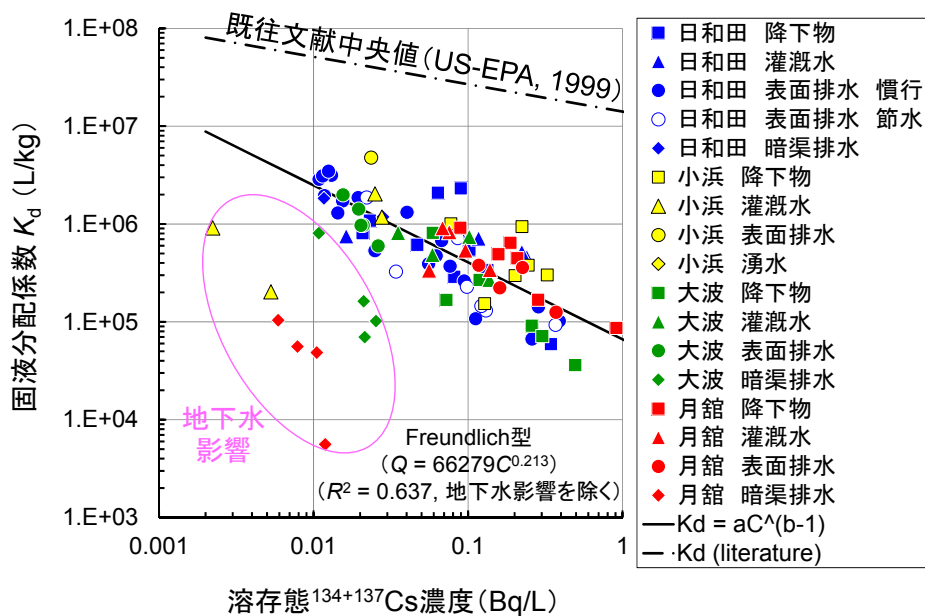
図IV-1 水試料中の全放射性セシウム濃度と懸濁物質 (SS) 濃度の関係 (平成 23 年 5 月～平成 25 年 11 月にサンプリング)



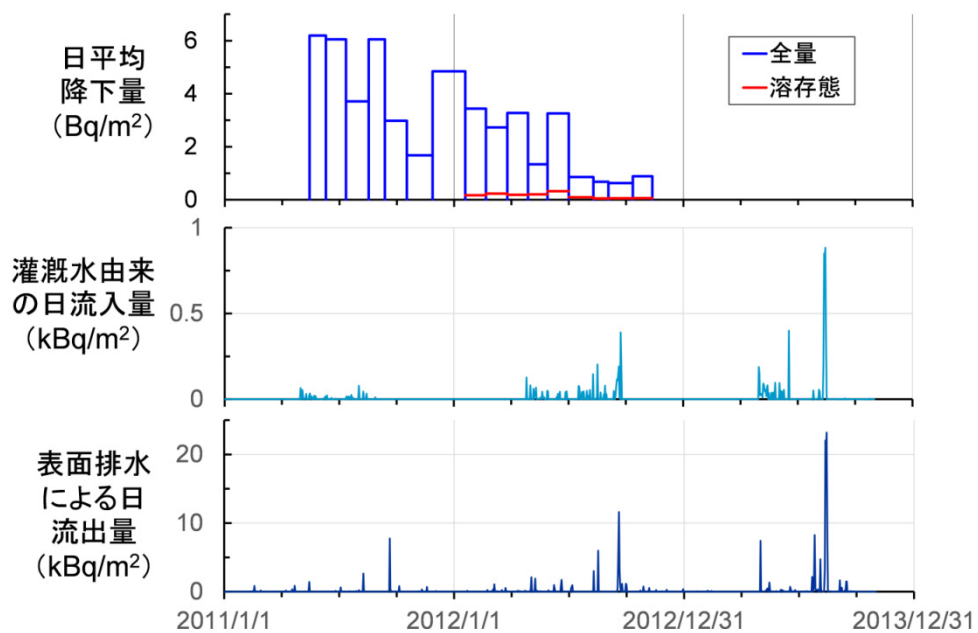
図IV-2 固液分配係数 Kd と電気伝導度 (EC) の関係 (平成 23 年 5 月～平成 25 年 11 月にサンプリング)



図IV-3 固液分配係数  $K_d$  と溶存有機態炭素 (DOC) 濃度の関係  
(平成 23 年 5 月～平成 25 年 11 月にサンプリング)



図IV-4 固液分配係数  $K_d$  と溶存態放射性セシウム濃度の関係  
(平成 23 年 5 月～平成 25 年 11 月にサンプリング)



図IV-5 日和田・水田（節水区）における放射性セシウム動態モニタリング

## V. 土壌タイプによる放射性セシウムの分配係数の変動把握とマップ化

大瀬 健嗣、塚田 祥文（福島大学）

山口 紀子、高田 裕介、神山 和則（農業環境技術研究所）

### 1. 調査目的

福島第一原発から 80 km 圏内の農村地域における放射性セシウムの動態を数理モデルによって推定し、現場でのモニタリングデータで検証することによってモデルの修正を行い、将来の土壌や作物中放射性セシウム濃度をモデルにより予測を行う。

土壌に沈着した放射性セシウムは、1 価の陽イオンであるため土壌表面に存在する有機物や粘土鉱物等の負電荷に留まる。有機物や粒子表面に由来する負電荷に保持されたセシウムイオンは、他の陽イオンによって容易に置き換えられる（イオン交換反応）。一方、土壌粘土の末端が風化等によってほつれた部位などに存在する負電荷のフレイド・エッジ・サイト（FES）に強く捕捉される。土壌中の FES の量と放射性セシウムの選択性をあらわす指標として、放射性セシウム捕捉ポテンシャル（RIP）が有効である。RIP 値は、土壌の種類によっても異なり、RIP 値の小さな土壌では放射性セシウムの保持力が強くないため、土壌から作物への移行率の高いことが知られている。そのため、土壌の RIP 値は、土壌からの放射性セシウムの溶出、土壌から植物への移行等を予測するうえで重要なパラメータの一つである。また、侵食などによって土壌が移動した場合、移動した土壌と元来存在した土壌の保持力（RIP 値）が異なると予測されることから、あらかじめ移動前の RIP マップを把握し、その後モデルによって土壌の移動を解析することで、土壌の移動に伴う RIP の再分布について予測することが可能になる。RIP を土壌溶液中の K 濃度で除した値が FES における放射性セシウムの分配係数に相当する。RIP マップをもとに、農耕地土壌のように施肥により K 濃度変動する環境下での分配係数を計算し、モデルパラメータとして活用できる。

本調査では、福島県内の農耕地土壌の放射性セシウムの植物移行や溶出の指標となる RIP データを収集し、土壌図と対比できるようマップ化することを目的とした。

### 2. 調査内容

RIP の測定には熟練した技術を要するため、平成 24 年度には、121 地点の分析試料数に留まっており、将来の放射性セシウムの動態を予測するためのマッピングに十分なデータ数とは言えなかった。平成 25 年度は、RIP 分析試料数の充実を計りマップの精度を向上させると同時に、関係する要因を検討した。さらに、各地で侵食によるホットスポットも報告されていることから、80 km 圏外の土壌についても調査を実施し、RIP マップ範囲を広げるとともに、データの充実を行った。

#### (1) 土壌試料

平成 23、24 年度に福島県内の農耕地作土から採取した土壌を、60°C で乾燥後、2 mm のふるいを通し分析試料とした。平成 25 年度は、274 地点の農耕地土壌について RIP 測定を実施した。

#### (2) RIP の考え方と測定

土壌中に存在する FES 量は、土壌中での放射性セシウムの動きやすさを知る上で重要な情報であるが、土壌分類や一般理化学性から予測することは難しい。この容量をあらわすには、Cremers ら<sup>21</sup>が提案した RIP という値を指標とする。RIP は、FES への K に対して放射性セシウムがどの程度吸着されやすいかを、目安となる選択係数 ( $KcFES(Cs-K)$ ) と FES の容量 ( $[FES]$ ) の積として定義している。直接測定することが難しい  $KcFES(Cs-K)$  及び  $[FES]$  を、特定の土壌-溶液系で実測された放射性セシウムの分配係数  $\{[土壌に吸着したセシウム 137 \text{ 濃度 (Bq/kg)}] / [溶液中のセシウム 137 \text{ 濃度 (Bq/L)}] ; Kd(Cs) (L/kg)\}$  と溶液中の K 濃度 ( $mK, \text{mol/L}$ ) の積によって近似的に得ることにある。その関係は次式のように表すことができる。

$$RIP \equiv KcFES(Cs-K) \cdot [FES] = Kd(Cs) \cdot mK \quad (\text{mol/kg}) \quad (1)$$

RIP は、平成 24 年度と同様に Wauters ら<sup>22</sup>によって改良された簡易法を用いて分析した。

### (3) 交換性セシウム 137 の測定

1M 酢酸アンモニウム溶液によって抽出されるセシウム 137 (交換性セシウム 137) は、平成 24 年度と同様に土壌 20 g を用いて固液比 1:10 で分析した。

## 3. 結果と考察

### (1) 放射性セシウム捕捉ポテンシャル分析値のクロスチェック

福島大学、農環研、京都府立大学、九州環境管理協会と日本分析化学会から販売されている標準土壌試料 (JSAC 0411) を用いて RIP の比較測定を行った。その結果、機関間の値は繰り返し誤差 (1SD) 内で一致した。

### (2) 放射性セシウム捕捉ポテンシャルと土壌分類の関係

福島県内の農耕地から採取した土壌の RIP は、 $1,900 \pm 1,600$  (74~13,000、 $n=539$ )  $\text{mmol/kg}$  であった。農耕地土壌を 3 つのグループに分類し、土壌図上に RIP をプロットした (図 V-1)。3 グループの内訳は、1) 低地土壌グループ (グライ低地土、低地水田土、未熟低地土、灰色低地土、褐色低地土、黒泥土、泥炭土)、2) 黒ボク土壌グループ (多湿黒ボク土、黒ボク土)、3) 台地・丘陵地・山地土壌グループ (グライ台地土、灰色台地土、褐色森林土、赤色土、黄色土、陸成未熟土) とした。低地土壌グループ、黒ボク土壌グループ、台地・丘陵地・山地土壌グループにおける RIP はそれぞれ  $1,900 \pm 1,500$  (170~13,000、幾何平均値 1,500、 $n=358$ )、 $1,600 \pm 1,600$  (150~8,400、幾何平均値 1,000、 $n=102$ )、 $2,800 \pm 2,300$  (140~9,600、幾何平均値 2,100、 $n=48$ )  $\text{mmol/kg}$  であり、同じ土壌グループ内でも変動幅が大きかった (図 V-2、図 V-3)。RIP が 500  $\text{mmol/kg}$  以下の土壌は、黒ボク土に多いことがわかった (図 V-2、図 V-3)。RIP の低い黒ボク土は、中通り地方に多かった (図 V-1)。黒ボク土のうち、セシウム固定力の弱いアロフェン、イモゴライトが主要鉱物であるアロフェン質黒ボク土が分布しているためだと考えられた。一方、浜通りに分布する黒ボク土には RIP 値が高いものもあった。これらの黒ボク土は雲母類が混入した非アロフェ

<sup>21</sup> Cremers, A., A. Elsen, P. Depreter, A. Maes. Quantitative-analysis of radiocesium retention in soils, Nature, 335, 247-249 (1988).

<sup>22</sup> Wauters, J., M. Vidal, A. Elsen, A. Cremers, Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocaesium in soils and sediments. 2. A new procedure for solid phase speciation of radiocaesium, Appl. Geochem. 11, 595-599 (1996).

ン質黒ボク土であることも一因であると考えられた。雲母を含む花崗岩類が分布する阿武隈山地ではRIPが高い傾向があった。

### (3) RIPと交換性セシウム137の関係

土壌中の交換性セシウム137濃度は0.5以下～7,900 Bq/kgの範囲にあった。土壌中セシウム137の最大30%が抽出されたが、分析サンプル中49%の土壌において抽出割合は5%以下と低かった(図V-4)。土壌中放射性セシウムのうち比較的動きやすい画分はごく一部であることが示された。RIPと交換性セシウム137率には有意な相関はなかった。また、土壌中セシウム137濃度の高い20 km圏内の土壌では、RIP値が同等であっても交換性セシウム137率が高い傾向があった(図V-4)。20 km圏外の土壌は、作付けされた農地土壌であったのに対し、20 km圏内で採取した土壌は不作付けであった。また、室内実験による600～1,200日間に及ぶセシウムの添加実験では、添加後おおよそ200日まで交換性セシウム137率は急激に減少し、その後緩やかに減少することが報告されている<sup>23</sup>。加えて、土壌にキャリアフリーセシウム137を添加し、536日後までの水抽出率及び交換性セシウム137率を調査した結果、水抽出率は10日後に0.1%まで急激に減少しその後徐々に減少し、交換性セシウム137率については10日後から320日後の間に26%から10%に減少し、320日後の交換性セシウム137率は大気圏核実験由来の交換性セシウム137率と良い一致を示したことが報告されている<sup>24</sup>。

### (4) 土壌特性との関係

RIPは、全炭素含量と負の相関があった(図V-5)。福島県以外の土壌を含めた場合も同様の傾向であった<sup>25</sup>。放射性セシウム固定力のある粘土鉱物の層間が有機物によって被覆されると、放射性セシウムの捕捉能が低下する<sup>26</sup>。このため、有機物含量の多い土壌ほどRIPが低い傾向にあったと考えられる。また、有機物含量が高い土壌ほど放射性セシウム固定能の低い非晶質鉱物が多い傾向にあることから<sup>27</sup>、有機物含量は、非晶質鉱物含量を反映し、RIPに影響している可能性もある。RIPの高い土壌では、パーミキュライト、イライトが検出されたが、これらの雲母由来鉱物を含まない土壌にもRIPの高いものがあった。一方、結晶性粘土鉱物の検出されない土壌ではRIPは一貫して低かった。

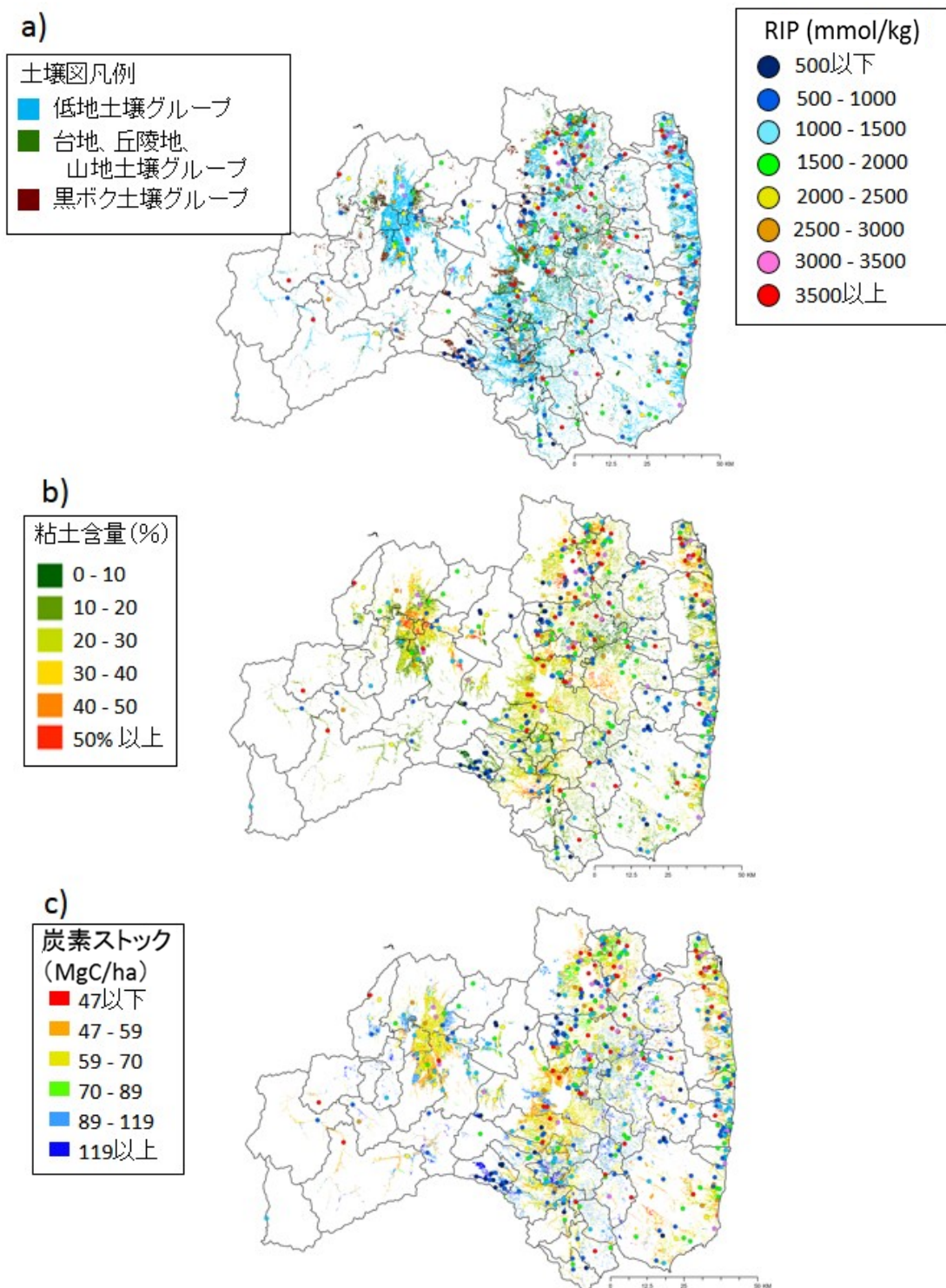
<sup>23</sup> Takeda, A., H. Tsukada, A. Nakao, Y. Takaku, S. Hisamatsu. Time-dependent changes of phytoavailability of Cs added to allophanic Andosols in laboratory cultivations and extraction tests, *J Environ Radioactiv.* 122, 29–36 (2013).

<sup>24</sup> 塚田祥文, 武田晃, 中尾淳, 久松俊一. 土壌に添加した<sup>137</sup>Csとフォールアウト<sup>137</sup>Csの経時的な抽出率の変化, 日本原子力学会春の年会(2010).

<sup>25</sup> 農林水産省. ほ場環境に応じた農作物への放射性物質移行低減対策確立のための緊急調査研究の成果について, <http://www.s.affrc.go.jp/docs/press/130709.htm>.

<sup>26</sup> Dumat, C., H. Quiquampoix, S. Staunton. Adsorption of cesium by synthetic clay-organic matter complexes: Effect of the nature of organic polymers. *Environ. Sci. & Technol.* 34, 2985–2989 (2000).

<sup>27</sup> Imaya, A., S. Yoshinaga, Y. Inagaki, N. Tanaka, S. Ohta. Volcanic ash additions control soil carbon accumulation in brown forest soils in Japan. *Soil Sci. Plant Nutr.* 56, 734–744 (2010).



低地土壤グループ；グライ低地土、低地水田土、未熟低地土、灰色低地土、褐色低地土、黒泥土、泥炭土  
 台地、丘陵地、山地土壤グループ；グライ台地土、灰色台地土、褐色森林土、赤色土、黄色土、陸成未熟土  
 黒ボク土壤グループ；多湿黒ボク土、黒ボク土

図V-1 福島県におけるRIPの分布  
 (a) 土壤分類との関係、b) 粘土含量との関係、c) 炭素ストックとの関係

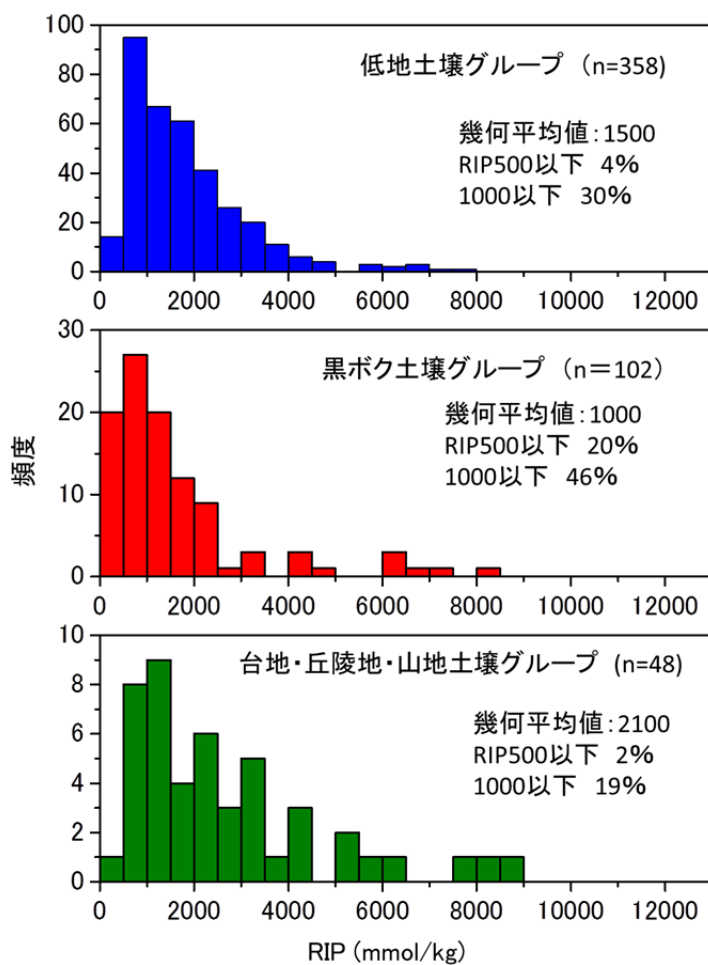


図 V-2 福島県土壌における土壌群別 RIP 値の分布割合

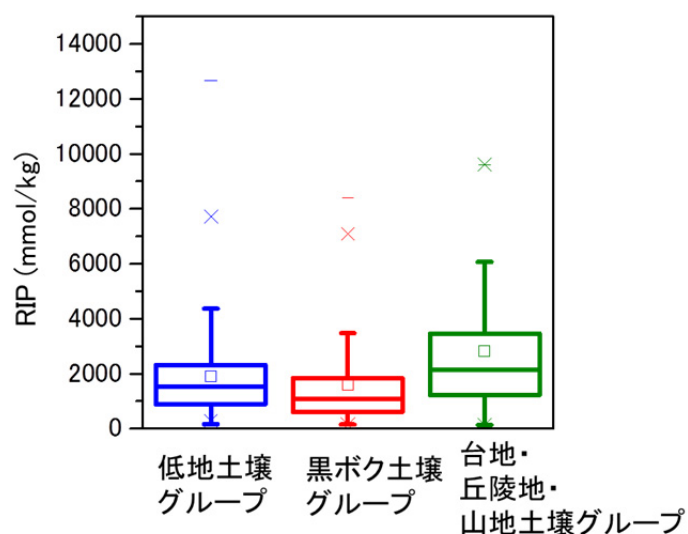
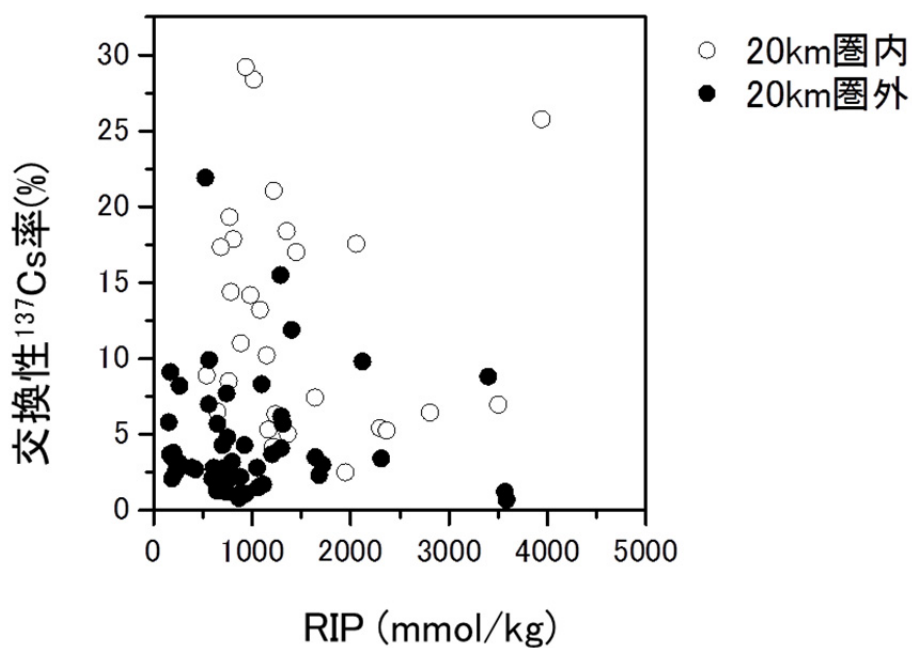
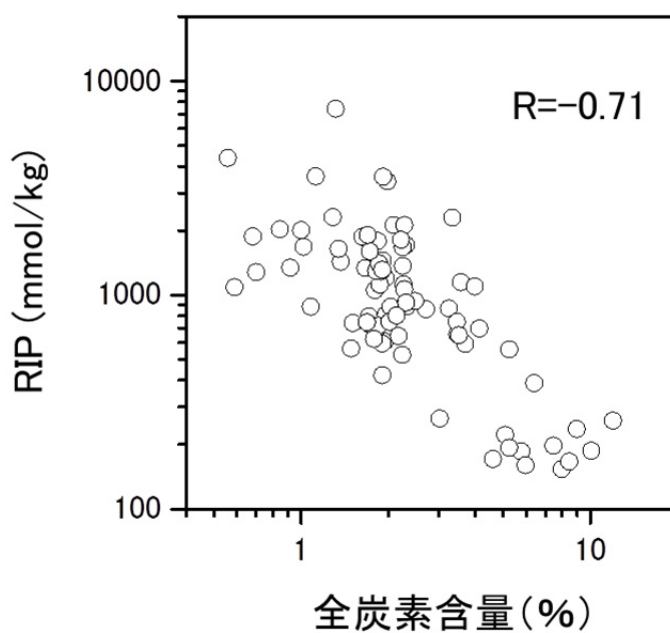


図 V-3 福島県土壌における土壌グループ別 RIP 値の箱ヒゲ図





図V-4 RIPと交換性セシウム137率の関係



図V-5 RIPと全炭素量との関係