

## 農地に関わる放射性セシウムの移行調査

荒尾 知人、江口 定夫、吉川 省子、板橋 直、井倉 将人、山口 紀子、藤原 英司、  
 神山 和則、高田 裕介、小原 洋、楠本 良延、平舘 俊太郎、  
 徳岡 良則、池田 浩明（農業環境技術研究所）  
 波多野 隆介、Wang Chunying、小倉 加世子、倉持 寛太（北海道大学）  
 久保田 富次郎（農業・食品産業技術総合研究機構）  
 塚田 祥文（福島大学）  
 佐藤 睦人、大越 聡（福島県農業総合センター）

### 1. 調査目的

福島第一原発事故により放出された放射性セシウムは、福島県を中心とする広範囲の地域に降下後、表層の土壌粒子に強く吸着されたまま、土壌侵食などに伴う輸送と一時的な沈積を繰り返している。農地での放射性セシウム濃度分布の中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メカニスティックに表現する流域スケールのモデルが必要である。本課題では、米国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) を用いて、農地における放射性セシウム動態の将来予測を行う。福島県内の作付け流域および不作付け流域を対象として、SWATに必要なGIS(地理情報システム)情報を収集・整備するとともに、SWATを用いて、河川を通じた放射性セシウム流出量について中長期的な将来予測を行う。環境中での放射性セシウム動態に関わる各種パラメータを各地の実測データに基づき整備するとともに、複数年の河川流出モニタリングデータを用いて、モデルパラメータの校正とモデル予測結果の検証を行う。モデル化対象流域以外の農業用貯水池、農業用排水路などを対象としたモニタリングを実施し、放射性セシウム濃度の経年的な変化の実態を明らかにする。

### 2. 調査内容

#### (1) 農地及び農業流域のモニタリング

##### 1) 溶存態及び懸濁態放射性セシウムの分析

農地は、郡山市日和田（水田、畑、樹園地）、二本松市小浜（水田）、福島市大波（水田）、伊達市月舘（水田）、猪苗代町蚕養（草地）及び飯舘村比曾（不作付け水田）、農業流域は、樋渡川（図-1①、作付け流域）及び比曾川（図-1②、不作付け流域）を対象として、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（図-1）。これらの水試料は、増水時の自動採水、1~2ヶ月に1回の定期サンプリング及び代かき・田植え時や中干し時などのイベント時に、それぞれ、20L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0.5m<sup>2</sup>または1.0m<sup>2</sup>の水盤に沈着したもの（落葉、虫なども含む）を湿性・乾性降下物の合計量とみなし、1~2ヶ月に1回採取した。各水試料は、孔径0.025μmのメンブレンフィルター（吸引濾過）を用いて濾液と残渣に分離し、それぞれ、蒸発乾燥後、ウエル型のゲルマニウム半導体検出器（GCW2521S, Canberra Industries Inc., Meriden）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等を定量した。測定時間は、基本的に測定値が測定誤差の10倍以上となるまで（最大で50万秒）とした。

各地で実測した溶存態及び懸濁物質中の放射性セシウム濃度を用いて、次の式(1)により固液分配係数  $K_d$  を算出した。

$$K_d \text{ (L/kg)} = \frac{\text{懸濁物質中の放射性セシウム濃度 (Bq/kg)} \text{ / 溶存態放射性セシウム濃度 (Bq/L)}}{\text{式(1)}}$$

また、農地からの表面排水等に含まれる懸濁物質の放射性セシウム捕捉ポテンシャル(RIP)の測定値<sup>1</sup>を用いて、実測した  $K_d$  との関係を検討した。

## 2) 形態別放射性セシウムの分析

平成 26 年 7 月より、太田川から引き入れた水田灌漑水を高頻度(月 2 回)で 40 L 採取し、図-2 に示す処理を行い、灌漑水中放射性セシウムを存在形態別に分析した。試料水は、低速送液ポンプ(ヤマト科学)を用いて  $0.45 \mu\text{m}$  のメンブランフィルター(MERCK MILLIPORE、HVLPO9050)によりろ過した。フィルターに捕集した懸濁物質は  $70^\circ\text{C}$  で乾燥し重量を測定後、5 mm 角に切りポリスチレン製容器(U-8)に詰め、測定試料(懸濁態)としゲルマニウム半導体検出器で測定した。ろ液(溶存態)の一部に硝酸(関東科学、Ultrapur-100)を 1 mL/L 添加した後、10 L をガラスビーカーに分取し、ホットプレートで蒸発濃縮した。濃縮した試料は U-8 容器に入れ、ゲルマニウム半導体検出器で測定した。ろ液中に存在する無機イオン態放射性セシウム( $\text{Cs}^+$ )の存在割合を求めるため、硝酸を添加しないろ液 5 L をステンレススチール製加圧容器(3M)に入れ  $0.4 \text{ MPa}$  で Cs ラドディスク(3M)を通した。その後、Cs ラドディスクを  $70^\circ\text{C}$  で乾燥し、U-8 容器に入れゲルマニウム半導体検出器で測定した。相対効率 20~40% (Canberra、GC2020、GC3020、GC4020)の Ge 半導体検出器を用い、3,800~74,000 秒間測定した。効率曲線は、日本アイソトープ協会製の高さの異なる 5 種類のアルミナ標準線源を用いて作成した。溶存態及び懸濁物質中のセシウム  $^{137}\text{Cs}$  濃度を用いて、 $K_d$  を算出した。

また、前項 1) の濾過手順(孔径  $0.025 \mu\text{m}$  のメンブランフィルター使用)により、平成 25 年 10 月より月 1 回の頻度で、太田川用水中の溶存態及び懸濁態放射性セシウム濃度を測定し、図-2 の手順で得られた  $K_d$  の値と比較した。これは、 $0.45 \mu\text{m}$  の方が濾過速度が迅速であるため、図-2 のように比較的煩雑な形態別分析には向いているが、 $0.025 \mu\text{m}$  では捕捉されるような微細粒子が通過してしまう可能性があるため、その妥当性を検証するためである。

## (2) 農業流域からの放射性セシウム流出予測

### 1) 現地調査による土壌、植生及び流路についての詳細データ整備

SWAT によるモデル化対象流域である飯舘村比曾川(不作付け流域)(図-1②)において、現地踏査による土壌、植生及び流路等の調査を実施した。特に、モデル化対象流域面積が  $4.45 \text{ km}^2$  と小さい比曾川では、流路特性や土壌断面特性など、詳細に調査した。これは、SWAT はもともと大流域を対象に作成されたモデルであり、既存の GIS データから得られる情報では、小流域内の詳細な物質動態をシミュレートするには不十分なためである。現地調査の結果に基づき、必要に応じて既存の GIS データを修正し、実際の土壌図、植生図及び流路特性データ(支流の分布、流路幅、河床までの深さ、土水路かコンクリ

<sup>1</sup> 農林水産省農林水産技術会議事務局, “農林水産省農林水産技術会議事務局委託プロジェクト研究: 平成 26 年度「汚染地域の農地から放出される放射性セシウム動態予測技術の開発,” (平成 27 年度中に公表予定) .

ート水路か等)を作成した。それらを SWAT にモデルパラメータとして入力した。また、主要植生タイプについてのモデルパラメータ整備のため、土壌表層、植物体の地上部及び地下部に含まれる放射性セシウム濃度を測定し、次の式(2)により、放射性セシウムの移行係数を求めた。

移行係数 =

$$\text{植物体中の放射性セシウム濃度 (Bq/kg)} \div \text{土壌中の放射性セシウム濃度 (Bq/kg)} \quad \text{式(2)}$$

## 2) 河川水流量等の自動観測

対象流域における河川水流速、水位、濁度、降水量の自動観測データ、月 1 回程度の定期サンプリング及び自動採水装置による増水時サンプリングによる水試料の懸濁物質濃度、溶存態及び懸濁態放射性セシウム濃度を用いて、各流域からの河川水流出流量、懸濁物質流出量、放射性セシウム流出量を計算した。流量の計算には Manning 式（河川流路の粗度係数、流下方向の水面勾配、河川横断面の水面下の長さから流量を求める式）を用いた。

## 3) SWAT による河川水流出流量及び懸濁物質流出量のモデル化

SWAT に必要な入力データ（気象データ、地形情報、土地利用、土壌データ等）を設定し、地形や流路情報に基づきサブ流域に分割した。各サブ流域は、さらに土地利用、土壌タイプ、傾斜の組み合わせによって、水理学的反応単位（hydrologic response unit, HRU）に分けた。HRU は、SWAT 内での最小の空間分割単位である。SWAT 内の土壌水分、養分含量、地下水、流量等の初期化のため、5 年間（平成 20～平成 24 年）をウォーミングアップ期間とし、上記図-1②の比叡川において連続観測データの揃った平成 25 年 1 月～12 月までをモデルパラメータの校正期間、平成 26 年 1 月～11 月までをモデル予測精度の検証期間とした。なお、原発事故後の土地利用・管理の変化をモデルに反映させるため、平成 20 年から平成 22 年までは事故前の土地利用データ、平成 23 年以降は農地および水田の土地利用を自然草地（range grass）に変更して用いた。パラメータ値の校正は、手動校正と自動校正を組み合わせ実施した。自動校正については、SWAT のパラメータ感度解析、校正、不確実性分析等を実施するために開発されたプログラム SWAT-CUP<sup>2</sup> 用いた。SWAT による予測値と上記図-1②の実測値の比較は、決定係数 ( $R^2$ ) および次の式(3)で定義される Nash and Sutcliffe 効率係数 ( $E_{NS}$ )<sup>3</sup> により行った。

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

ここで、 $X_{oi}$  は  $i$  日の実測値、 $X_{si}$  は  $i$  日のシミュレーション値、 $\bar{X}_{oi}$  はシミュレーション期間中の平均実測値、 $n$  は実測値のデータ数を表す。 $R^2$  は、実測値とシミュレーション値間の直線的相関の強さを定量化する統計値である。一方  $E_{NS}$  は、実測値とシミュレーション値の 1:1 の相関の強さを表す。 $E_{NS}$  値（範囲： $-\infty \sim 1$ ）は、一般に、0.5 以上（最大で 1）でモデル予測精度が妥当と評価され、0 以下では、モデルの有効性はない。

<sup>2</sup> Abbaspour KC, "SWAT-CUP2012: SWAT Calibration and Uncertainty Programs," Eawag: Swiss Federal Institute of Aquatic Science and Technology, (2012).

<sup>3</sup> Nash JE, Sutcliffe JV, "River flow forecasting through conceptual models: Part I. A discussion of principles," Journal of Hydrology, 10(3), pp. 282-290, (1970).

### (3) 農業用水源に含まれる放射性セシウム濃度の経年変化

#### 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。調査地は、大柿ダム(浪江町)である(図-1⑤、図-3)。大柿ダムは、二級河川請戸川に1985年に完成したロックフィルダムで、総貯水量1,950万 $m^3$ 、有効貯水量1,730万 $m^3$ 、最大取水量9.085 $m^3/s$ 、受益面積2,946ha、流域面積110.2 $km^2$ 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。

大柿ダムの流入河川では、昼曽根地点(請戸川)および矢具野地点(小出谷川)において、また、ダム流出は、放流工地点において採水調査および水質調査を実施した。なお、本調査は、東北農政局との共同調査として実施した。

採水調査は、それぞれの地点に自動採水器(ISCO-6712)を2台設置し、1台は定時調査用として調査期間において毎日15:00に採水を行い、もう1台は増水時に2時間毎に採水を行った。採水した試水は、懸濁物質(SS)等の分析の他、Ge半導体検出器を用いてセシウム134およびセシウム137をそれぞれ1Bq/Lを検出下限として分析を行ったが、一部の試料については、検出下限値をそれぞれ0.1Bq/Lとして分析を行った。

また、それぞれの地点に濁度計(UIZ-TC型)を設置し、10分毎に濁度観測を行った。

3地点で実測した溶存態及びSS中のセシウム137濃度を用いて、前述の式(1)により固液分配係数 $K_d$ を算出した。

#### 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。調査は、福島県伊達市梁川地区の大関地点(図-1④、阿武隈川水系広瀬川、流域面積:約225 $km^2$ )および伊達市保原地区の農業用水路において実施した。

大関地点の調査では、冬期を除き不定期で月1~5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およびセシウム137の検出限界をそれぞれ0.01Bq/kgとし放射性セシウム濃度を測定した。併せて、懸濁物質濃度や濁度測定を行った。

また、伊達市保原地区の農業用水路では、用水路上流部(福島市三本木地区)に濁度計(UIZ TC型)と水位計(UIZ-WL)を設置し、濁度と流量の連続観測を行うとともに、不定期で採水調査を行い浮遊物質濃度と水中放射性セシウム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。

## 3. 結果と考察

### (1) 農地及び農業流域のモニタリング

福島県内の異なる農地及び農業流域における溶存態セシウム137濃度は、0.0007~5Bq/Lの範囲内にあり(図-4)、全体的には、溶存態濃度が高いほど懸濁物質に含まれるセシウム137濃度も高い傾向が見られた。このデータに基づき固液分配係数 $K_d$ を求め、サンプル採取地点、地目及び種類を考慮して整理した(表-1)。 $K_d$ 値(L/kg)は、同じ場所でも地目・種類によって大きく異なり、例えば、日和田では、果樹以外の幾何平均は $10^5$ ~ $10^6$ の桁にあったが、果樹の表面排水は $10^4$ 、果樹の浸透水は $10^3$ の桁と低かった。このほか、比叡の不作付け水田の表面排水及び猪苗代草地の表面排水でも他よりも低い値( $3.8 \times 10^4$ ~ $1.5 \times 10^5$ )を示したことから、これら土壌表層を耕起しない土地利用条件下では、地表にリター層が形成されることなどのため、その上を流れる表面排水中に含まれる溶存態の放射性セシウムは鉱質土層中の粘土粒子に吸着されることなく流出しやすいと考えられた。

同じ場所・地目・種類であっても、 $K_d$ 値はサンプリング時期により1~2桁以上の範囲

内で変動した（表-1）。Kd 値は、水試料中のカリウム濃度（図-5：放射性カリウム 40 の濃度）や溶存有機態炭素（DOC）濃度（図-6）の増加と共に低下する傾向があった。これは、粗大有機物の分解に伴って無機陽イオン（カリウムなど）が水中に放出され、セシウムを特異的に強く吸着するサイト（フレイドエッジサイト）におけるカリウムとの競合吸着の結果、液相中に分配される放射性セシウムの割合が高まるため、と考えられる。また、懸濁物質の RIP を測定したところ、時期による変動はほとんどなく、ほぼ一定だった<sup>1</sup>。すなわち、RIP 値は、Kd 値のサンプリング時期による変動とはほとんど関係がなく、Kd 値の時期変動は主として水質変化によってもたらされていると考えられた。一方、水試料の種類・地目・場所別に Kd 値と RIP 値を比較すると、Kd 値の高いものは、RIP 値も高い傾向が見られた<sup>1</sup>。したがって、RIP 値を参考にして、水質データを用いることにより、水試料の種類・地目・場所別の Kd 値を設定できる可能性が示された。

南相馬市の太田川灌漑水（表-2）については、濾過孔径の異なる測定に基づく Kd 値を比較したところ、ほぼ同様の値が得られ、採取時期による変動も小さかった。したがって、少なくともこの期間（いずれも平水時のサンプル）については、濾過孔径の違い（0.025～0.45 μm の範囲内）による影響は小さく、Kd 値に大きな変動はなかったといえる。なお、平成 25 年に調査した伊達市小国川流域の灌漑水でも、増水時も含めて Kd 値は  $1.3 \times 10^6 \pm 7.7 \times 10^5$  L/kg と狭い範囲内にあった。さらに、太田川灌漑水の Kd 値は、小国川灌漑水の Kd 値に比べ約 1 桁低く、地域により大きく異なっていた。表-2 に併記した IAEA (2010)<sup>4</sup> の報告値は、異なる手法で測定された様々な地域の結果をまとめたものであり、陸水の懸濁物質に限っても 3 オーダーもの広い範囲にある。したがって、地域別に放射性セシウムの動態を予測するためには、地域別に得られた固有の Kd 値を用いて解析することが必要と考えられる。太田川灌漑水の平成 26 年 7 月～12 月の調査（図-7）では、溶存態セシウム 137 濃度はイネ栽培期間を通してほぼ一様な濃度であり、低濃度であった。また、図-2 のフローに従って分析した結果、溶存態セシウム 137 のうち Cs<sup>+</sup> として存在する割合は  $94 \pm 8$ （算術平均±標準偏差）（最小値 85、最大値 107）%と計算され、溶存態として存在する放射性 Cs の一部には無機イオン態以外の形態も存在している可能性が示唆された。また、河川水中の懸濁物質の濃度と懸濁態セシウム 137 濃度は高い正の相関を示し（図-8）、セシウム 137 濃度に対するセシウム 134 濃度比は  $0.35 \pm 0.08$  と一様な値であった。懸濁物質の乾物重量に対するセシウム 137 濃度は  $22 \pm 7.2$  Bq/g であり、採取時期によらず比較的一様な値を示した。

## (2) 農業流域からの放射性セシウム流出予測

### 1) 現地調査による土壌、植生及び流路についての詳細データ整備

比曾川及び樋渡川における植生調査の結果、人為的な影響（管理状況や休耕年数）と水分条件（乾・湿）の違いにより、成立する植生タイプが整理できた（図-9 左）。平成 26 年の調査で確認された主要植生タイプは、平成 24 年の調査結果と同様であったが、この 2 年間の顕著な変化として、休耕田へのヤナギ類の侵入が多数確認され、木本群落（ヤナギ林）に移行しつつあった。今後、木本への遷移がさらに進行すると予測されることから、将来の復田コストに影響を及ぼすと考えられる（図-9 右）。調査に基づく現存植生図は GIS 化を行い、ベクトルデータとして構築した。また、SWAT への入力パラメータとして、各流域内の主要植生タイプの放射性セシウムの移行係数を求めた（表-3）。土壌から植物へのセシウムの移行係数は低かったことから、これらの自然植生による放射性セ

<sup>4</sup> IAEA (2010) Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series, No. 472, Vienna (2010).

シウムの吸収が、流域からの放射性セシウムの流出に及ぼす影響は小さいと考えられた。

比曾川流域における土壌断面調査及び流路等の詳細調査の結果、支流や本流の流路の幅や深さのデータが得られたほか、GIS データでは褐色森林土とされていた土壌が実際には黒ボク土であること、基盤整備された下流域水田地帯の流路の大半は土水路であること、一方、上流部は主にコンクリート壁面が多いこと等が明らかとなった。これらの調査結果を SWAT に入力し、サブ流域の分割 (図-10)、土壌図 (図-11 左、表-4) 及び土地利用図 (図-11 右、表-4) を作成した。

## 2) 河川水流量等の自動観測

各河川では、平水時及び増水時の水試料中の懸濁物質 (SS) 濃度と濁度の関係式を作成し (図-12: 比曾川の例)、この関係式を用いて、河川水中の SS 濃度を算出した。また、SS 濃度と懸濁態セシウム 137 濃度および溶存態セシウム 137 濃度の関係に基づく回帰式 (図-13) を用いて、観測期間中の懸濁態及び溶存態セシウム 137 濃度の時間変動を求めた。これらの濃度と前出のマニング式で算出した流量を乗じることにより、懸濁態及び溶存態セシウム 137 の流出量を求めた。その結果、比曾川流域では平成 24 年 12 月～平成 26 年 11 月の約 2 年間の平均値として、 $1.79 \text{ kBq/m}^2/\text{yr}$  のセシウム 137 が流出したと計算された (図-13)。この観測期間中に当流域内で実測した深さ 25 cm までの土壌中セシウム 137 インベントリーは、 $1148 \pm 579$  (平均±標準偏差)  $\text{kBq/m}^2$  (地点数 15) であり、年当たり、全存在量の約 0.15% が流出していたことになる。

## 3) SWAT による河川水流出流量及び懸濁物質流出量のモデル化

比曾川を対象として、観測に基づく流量及び SS 流出量の結果と、SWAT による予測値との比較を行った。なお、SWAT 内の各種パラメータのうち、比曾川の流量、積雪・融雪及び SS 流出量に感度の高いパラメータとしては、それぞれ、15、5 及び 7 のパラメータが選ばれ (表-5)、これらについてパラメータ値の校正を行った。表-5 の上の行のパラメータほど、感度が高い (予測値に与える影響が大きい)。例えば、河川流量に対しては、カーブナンバー値 (各土地利用における降水量と表面流出水量の関係を示すパラメータ) や河川流路内の粗度係数 (水の流れにくさ) などの感度が最も高かった。

流量 (図-14) については、校正期間の  $R^2$  値及び  $E_{NS}$  値は、それぞれ、0.67 及び 0.65 と高い値が得られ、検証期間は、0.52 及び 0.41 であった。モデル予測精度はおおよそ妥当なレベルにあるが、検証期間の  $E_{NS}$  値は 0.5 をわずかに下回った。降雪期～融雪期には、実測値を過小評価する傾向が見られた。図-15 は、流量推定値の内訳を示したものである。地下水流量はほぼ一定であり、側方流出と表面流出がイベントに応じて大きなピークを形成していることがわかる。

懸濁物 (SS) 流出量 (図-16) については、校正期間の  $R^2$  値及び  $E_{NS}$  値は、それぞれ、0.37 及び 0.25 と低い値であり、検証期間についても、それぞれ、0.20 及び -3.6 と低い値が得られた。このことから、SS 流出についてのモデル予測精度は低く、SS 流出量をモデル予測するためには、モデルの計算条件やパラメータのさらなる検討に加えて、長期観測データの蓄積が必要である。これは、校正期間をより長く設定できれば、ある年だけに特異的に生じたイベントにモデルパラメータ校正が大きな影響を受ける割合が減り、より一般的なイベントへの適合性が高まるためである。

SS 流出の予測精度が改善されれば、予測した SS 濃度と  $K_d$  値 (表-1 より、比曾川の幾何平均値は  $2.6 \times 10^5 \text{ L/kg}$ ) を用いることにより、懸濁態及び溶存態の放射性セシウム濃度が計算される。

図-17 にセシウム 137 流出量の実測値と現状の SWAT によるモデル推定値の比較を示す。

校正期間は、 $R^2$ が0.06、 $E_{NS}$ が-0.15、検証期間は、 $R^2$ が0.12、 $E_{NS}$ が0.06といずれも低い値であった。この結果は、懸濁物のシミュレーション結果と類似しており、平成25(2013)年のみのデータを用いたキャリブレーションで得たパラメータ値を将来予測に適用することはできないことを示している。

### (3) 農業用水源に含まれる放射性セシウム濃度の経年変化

#### 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

##### (a) セシウム 137 の経年変化

農業用貯水池への流入河川2ヶ所および貯水池流出工における平成24年度から平成26年度の3年間の観測データを用いて経年比較を試みた。図-18~21はセシウム137濃度とSS濃度の関係を年別に $y = ax + b$ または、 $y = ax$ 型の直線回帰した結果である。

まず、流入河川の屋曾根地点(図-18)をみると、回帰直線の傾き、すなわちSSの単位重量当たりのセシウム137は、平成24年に0.198、平成25年に0.163、平成26年に0.104へと大きな減少がみられた。もし、平成24年度に流出したSSに含まれるセシウム137が、放射壊変による物理減衰の影響のみを受けて、平成25年以降にも流出したことを想定すると、回帰直線の傾きは、平成25年に0.194、平成26年に0.189とほとんど変わらないはずである。ところが、実際には、放射壊変による物理減衰を大きく超える減少がみられた。また、グラフのy切片は0.97(平成24年)、0.34(平成25年)、0.49(平成26年)と変化し、SS濃度が0mg/Lのときのセシウム137濃度すなわち溶存態セシウム137濃度が減少傾向にあることが示唆される。同様に、屋曾根地点における3ヶ年の $y = ax$ 型の回帰直線の傾きは、それぞれ0.226、0.165、0.104であり、平成25年に0.221、平成26年に0.216と推定される自然減衰の影響を大きく超えた低下が確認された(図-19)。

矢具野地点では、他の地点よりバラツキが大きく、回帰直線の決定係数は屋曾根地点と比べるとやや低かった。平成24年のデータではデータ数が少ない上にバラツキが大きく回帰直線を引くことができず、特に $y = ax + b$ 型の回帰直線ではうまく表せなかったため、 $y = ax$ 型の回帰直線を用いて経年変化をみる(図-20)。平成24年を除く2ヶ年の回帰直線の傾きは、平成25年に0.305、平成26年に0.170と変化し、矢具野地点でも自然減衰を大きく超える減少が確認された。

放流工地点では、SSおよびセシウム137ともに検出下限値未満のデータが過半であった。限られたデータを用いて、流入河川と同様に検討する。なお、平成24年は、矢具野地点と同様に有効なデータ数が限定的であったので、平成24年は検討から外した。放流工地点において、 $y = ax + b$ 型の回帰直線の傾きは、平成25年に0.195、平成26年に0.119と、流入地点と同様に大きく低下している。また、y切片は、平成25年に0.66、平成26年に0.48であった(図-21)。

以上のように、大柿ダム流域では、流入2地点、流出1地点において、いずれもSSの単位重量当たりのセシウム137が物理減衰を超えて大きく低下していることがわかった。このことは、森林を主体とする大柿ダムの集水域において、相対的に流出しやすい場所にある放射性セシウムは、流出が進み、流出しにくい場所にある放射性セシウムが集水域に残されているという状況を示している可能性がある。

##### (b) 大柿ダムにおける放射性セシウムの収支

大柿ダムの流入地点および流出地点における流量およびセシウム137濃度の観測値から、セシウム137フラックスの推定を行い、ダムにおけるセシウム137の収支の検討を行った。なお、平水時において、水中の放射性セシウム137濃度が検出下限値未満のものが過半を占めたため、実測データの不足から今回は平水時の収支検討は行わない。従

って、ここでは増水時（平成 26 年 8 月 8 日～8 月 15 日、総雨量 101.5 mm）におけるセシウム 137 の収支について検討する。

算定の手順は、河川水位観測値から、水位－流量曲線を用いて流量を求め、一方で、濁度観測値から実測値に基づいて浮遊物質濃度(SS 濃度)を算定し、さらに、図-18 と図-21 の SS-セシウム 137 の関係を用いて、セシウム 137 濃度の 1 時間毎の連続値を求める。そして、得られたセシウム 137 濃度と流量を乗算することで、セシウム 137 のフラックスを算定した。

なお、算定に当たって、①流入地点の流量推定には、実測の水位－流量関係を用いているが、高流量部は、実測値が得られなかったため、関係式の外挿を行うこと、②流出地点の流量データが得られなかったため、流出地点の流量は、流入地点（屋曽根）の流量に流域面積比（ $=$ [流出地点の流域面積]/[屋曽根地点の流域面積]）を乗じて補正できることを仮定した。

図-22(a)に、屋曽根地点における河川流量とセシウム 137 の実測濃度、および濁度から推定したセシウム 137 濃度、およびセシウム 137 フラックスを示す。セシウム 137 濃度の推定には、平成 26 年に得られた全観測データを用いた SS 濃度-セシウム 137 濃度の関係式を用いているが、対象期間について算定されたセシウム 137 濃度は、概ね実測値と整合的である。

図-22(b)に、流入地点と流出地点におけるセシウム 137 フラックスの比較を示す。流入河川は、請戸川（屋曽根地点）だけでなく、小出谷川（矢具野地点）もあり、ダムへのセシウム 137 の実流入は、ここに示す屋曽根地点のフラックスよりも 1～2 割程度は大きいはずである。しかし、ダム放流に伴うセシウム 137 の流出は限定的である。例えば、8 月 8 日 15:00 から 8 月 12 日 12:00 までのセシウム 137 のフラックスは、屋曽根地点では 19.1 GBq、放流工地点では 5.6 GBq と、約 30%に過ぎない。すなわち、ダムに流入したセシウム 137 の過半は、ダム湖内に留まっていることがわかる。

### (c) 大柿ダム流域観測点における固液分配係数(Kd)

次に、大柿ダム流域の観測点における固液分配係数(Kd)を示す。Kd 値を算出した観測値は、平成 26 年 7 月から平成 26 年 11 月にかけて測定された大柿ダム流入河川および流出水における懸濁態および溶存態のセシウム 137 と懸濁物質(SS)濃度である。その結果、Kd 値は、流入河川では、 $6.7 \times 10^5 \pm 1.7 \times 10^5$  L/kg（屋曽根地点、n= 5）、 $9.9 \times 10^5 \pm 5.1 \times 10^5$  L/kg（矢具野地点、n= 5）、流出水では、 $1.0 \times 10^6 \pm 5.6 \times 10^5$  L/kg（放流工、n= 22）であった。

図-23 に SS 濃度と固液分配係数の関係を示す。ダム流出水についてデータがバラツキ、傾向はわからないが、流入 2 地点では、限られたデータであるが、SS 濃度が高いほど Kd 値は低下する傾向にある。

## 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

図-24 に、伊達市保原地区に流入する農業用水路における年度別の濁度と放射性セシウム(セシウム 134+セシウム 137)の関係を表す。平成 25 年のかんがい期には、 $y=0.040x^{0.80}$ 、平成 26 年には、 $y=0.010x^{1.06}$ 、と異なる関係式が得られ、特に 20NTU 以下の低濁度の領域で平成 25 年より平成 26 年の方が同じ濁度値における放射性セシウム濃度が低い結果が得られた。これは、放射性物質の物理減衰の影響を大きく超えるものである。

この関係式と、流量観測値から、保原地区に流入する農業用水の放射性セシウムの流入負荷量を算定した結果を図-25 に示す。

平成 25 年と平成 26 年のかんがい期に流入した放射性セシウムの総量は、それぞれ 4.9



GBq/year、3.2 GBq/year と試算された。本地区において、損失水量（施設管理用水）を考慮し、取水量の 8 割が受益農地に流入するものと考え、単位面積当たりの農地への放射性セシウムの流入量を推定すると、約 540 Bq/m<sup>2</sup>/year（平成 25 年）となった。この値は福島第一原発から 60 km 圏内の放射性セシウムの沈着量(60-100 kBq/m<sup>2</sup>)と比較すると非常に小さい。

#### 4. まとめ

福島県内の異なる農地圃場（水田、畑、樹園地、草地、不作付け水田）及び農業流域（作付け及び不作付け流域）を対象に、平水時及び増水時の用水、排水、河川水等を採水して、溶存態及び懸濁態放射性セシウム濃度を測定し、固液分配係数 Kd を求めた。その結果、Kd は、1~2 桁もの大きな範囲内で変動すること、他の無機陽イオン濃度や溶存有機態炭素濃度の増加と共に低下する傾向があること、懸濁物質の Kd の時期変動と RIP とはほとんど関係がないこと等を見出した。また、Kd は地域により異なる値をとることが示され、地域固有の Kd 値をモデルに適用すべきこと、また、RIP 値と水質データを参考にして、地域別の Kd 値を設定できる可能性が示された。農業流域については、土壌、植生及び流路の現地調査を実施した。特に流域面積の小さい比叢川については、詳細な情報を得ることにより、流域モデル SWAT に入力する土壌図や流路特性パラメータ等の再設定を行うと共に、実測値を用いたパラメータ校正とモデル予測精度の検証を実施した。比叢川における河川流量のモデル予測精度はおよそ妥当なレベルにあったが、懸濁物質及び放射性セシウム流出量については、モデル予測精度が不十分であった。精度向上のためには、モデル計算条件やモデルパラメータのさらなる検討、モデルパラメータの校正及び観測データの長期的な蓄積などが有効と考えられる。

集水域の主体が森林である大柿ダムを対象とした放射性セシウムの流入・流出のモニタリングにより、大柿ダムに流入した放射性セシウムの過半は、ダム湖内に留まっていることがわかった。

表-1 異なる農地及び農業流域におけるセシウム 137 の固液分配係数  
Kd (L/kg) (試料採取期間：平成 23 年 4 月～平成 26 年 10 月)

種類	場所	分析数	算術平均	幾何平均	最小	最大
降下物	日和田	9	9.0E+5	5.8E+5	5.9E+4	2.2E+6
	小浜	6	5.5E+5	4.7E+5	2.4E+5	1.0E+6
	大波	6	2.5E+5	1.5E+5	3.7E+4	8.0E+5
	月舘	6	4.5E+5	3.5E+5	8.7E+4	8.7E+5
	猪苗代	2	4.9E+5	6.4E+4	4.2E+3	9.8E+5
	比叢	19	7.0E+5	2.8E+5	4.1E+3	4.9E+6
	樋渡	15	5.1E+5	2.5E+5	2.6E+4	1.5E+6
灌漑水(湧水、沢水等含む)	日和田・水田	8	6.5E+5	6.4E+5	4.2E+5	8.8E+5
	小浜・水田	4	1.1E+6	7.7E+5	1.4E+5	2.2E+6
	大波・水田	5	4.8E+5	3.9E+5	1.2E+5	8.1E+5
	月舘・水田	7	5.8E+5	5.4E+5	3.2E+5	9.0E+5
表面排水	日和田・水田慣行	21	1.2E+6	6.3E+5	6.6E+4	3.2E+6
	日和田・水田節水	11	5.4E+5	3.7E+5	1.0E+5	1.8E+6
	日和田・畑	3	5.3E+5	2.7E+5	4.4E+4	1.2E+6
	日和田・果樹	10	6.1E+4	4.6E+4	2.0E+4	2.1E+5
	小浜・水田	2	4.3E+6	4.3E+6	4.2E+6	4.4E+6
	大波・水田	5	1.6E+6	1.4E+6	5.5E+5	2.7E+6
	月舘・水田	5	3.1E+5	2.8E+5	1.3E+5	5.7E+5
	猪苗代・草地	2	1.6E+5	1.5E+5	1.1E+5	2.2E+5
	比叢・水田不作付け	8	8.1E+4	3.8E+4	3.5E+3	1.8E+5
暗渠排水, 湧水, 浸透水	日和田・水田	2	1.5E+6	1.5E+6	1.2E+6	1.8E+6
	小浜・水田	1	4.4E+6	4.4E+6	4.4E+6	4.4E+6
	大波・水田	4	3.1E+5	1.9E+5	6.7E+4	8.2E+5
	月舘・水田	5	4.3E+4	2.0E+4	2.1E+3	1.0E+5
	日和田・果樹	3	8.1E+3	4.4E+3	7.0E+2	1.6E+4
河川水	樋渡川・作付け流域	12	3.7E+5	3.2E+5	1.4E+5	6.5E+5
	比叢川・不作付け流域	14	5.5E+5	2.6E+5	2.7E+4	4.1E+6
全体		198	6.4E+5	2.7E+5	7.0E+2	4.9E+6

表-2 南相馬市の太田川灌漑水に含まれるセシウム 137 の  
固液分配係数 Kd (L/kg) と IAEA (2010) 報告書の Kd 値

種類		分析数	算術平均	幾何平均	最小	最大
太田川灌漑水 *1	0.45 μm濾過 (図1)	10	1.2E+5	1.2E+5	9.1E+4	2.3E+5
太田川灌漑水 *2	0.025 μm濾過	3	1.3E+5	1.1E+5	4.6E+4	1.8E+5
懸濁物質(陸水) *3	吸着実験	569		9.5E+3	3.7E+2	1.9E+5
	脱着実験	119		2.9E+4	6.9E+3	1.2E+5
	野外条件	219		2.9E+4	1.6E+3	5.2E+5
土壌 *3		469	1.2E+3		4.3E+0	3.8E+5

\*1 採取期間：平成26年7月～12月

\*2 採取期間：平成25年10月～平成26年1月

\*3 International Atomic Energy Agency (2010) Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Reports Series No. 472, Vienna

表-3 主要植生タイプにおける放射性セシウム（セシウム 134+セシウム 137）の移行係数

地域	植生タイプ	サンプル数	移行係数(地上部)		放射性Cs吸収割合(%、地上部) <sup>a)</sup>	
			平均	標準偏差	平均	標準偏差
飯館村比曽地区	セイタカアワダチソウS1	3	0.054	0.030	0.058	0.019
	セイタカアワダチソウS2	3	0.059	0.012	0.081	0.047
	セイタカアワダチソウS3	3	0.202	0.161	0.561	0.516
	ヒメムカシヨモギ群落S1	3	0.027	0.010	0.019	0.004
	ヒメムカシヨモギ群落S2	3	0.017	0.005	0.032	0.013
	カモガヤ群落S1	3	0.206	0.100	0.099	0.039
	カモガヤ群落S2	3	0.148	0.012	0.031	0.013
	クズ群落S1	3	0.007	0.002	0.002	0.001
	クズ群落S2	3	0.072	0.022	0.018	0.005
	三春町樋渡地区	セイタカアワダチソウS1	3	0.043	0.037	0.014
セイタカアワダチソウS2		3	0.026	0.023	0.041	0.045
クズ群落S1		3	0.026	0.004	0.030	0.008
クズ群落S2		3	0.094	0.019	0.099	0.054
クズ群落S3		3	0.023	0.007	0.018	0.008
クズ群落S4		3	0.106	0.080	0.019	0.007

注：土壤中放射性Csは表層から深さ15cmまでを対象に算出した。

a: 土壤に含まれる放射性Csが地上部植物体中に吸収される割合を単位面積当たりの%で示した(=100×地上部インベントリ/土壤中インベントリ)

表-4 比曽川流域の土地利用（原発事故前と事故後）、  
土壤タイプおよび地形特性の内訳

	事故前	事故後	
		(%)	
土地利用	農地(AGRL)	24.51	不作付け 自然草地(RNGE)
	落葉樹林(FRSD)	23.77	
	混合樹林(FRST)	29.94	
	水田(RICE)	15.18	不作付け 自然草地(RNGE)
	自然草地(RNGE)	5.28	不作付け 自然草地(RNGE)
	牧草地(PAST)	0.74	不作付け 自然草地(RNGE)
	居住地(URBN)	0.57	
土壤タイプ	褐色森林土(BFSOIL)	53.97	
	黒ボク土 (ORDANDOSOL)	24.05	
	細粒グライ土 (FNGLSOIL)	10.74	
	乾燥褐色森林土(DRYBFSOIL)	10.31	
	灰色低地土(GRLOWSOIL)	0.92	
傾斜	0-10	22.32	
	10-20	22.21	
	20-30	21.82	
	30-40	15.90	
	>40	17.75	

注：傾斜の単位は、%

表-5 比叢川流域においてモデルパラメータの校正を行った高感度パラメータ

## (a) 流量に関わる高感度パラメータ

感度	パラメータ	定義	方法	最小値	最大値	最適値
1	CN2	カーブナンバー値	3	-25%	25%	42 - 62
2	CH_N2	河川の粗度係数	1	0.01	0.1	0.058
3	ALPHA_BF	基底流 $\alpha$ 係数	1	0	1	0.005
4	CH_K2	河川の飽和透水係数 (mm h <sup>-1</sup> )	1	0	150	130
5	SOL_K	最表層土層の飽和透水係数 (mm h <sup>-1</sup> )	3	-25%	25%	4.2-65.7
6	GWQMN	地下水流の生じる浅層地下水量の閾値 (mm)	1	0	5000	1767
7	SLSUBBSN	斜面長 (m)	3	-25%	25%	8.9-119
8	ESCO	蒸発量補償係数	1	0.01	1	0.9
9	HRU_SLP	平均勾配 (m m <sup>-1</sup> )	3	-25%	25%	0.01-0.81
10	CANMX	樹冠貯水量最大値 (mm)	1	0	100	20
11	GW_REVAP	地下水の毛管上昇係数	1	0.02	0.2	0.1
12	SOL_AWC	最表層土層の有効水分量 (mm mm <sup>-1</sup> )	3	-25%	25%	0.09-0.20
13	GW_DELAY	地下水流の遅延日数(days)	1	0	250	0.55
14	SURLAG	表面流去遅延係数	1	0	24	1
15	REVAPMN	毛管上昇の生じる浅層地下水量の閾値 (mm)	1	0	500	284

## (b) 降雪・融雪関係の高感度パラメータ（流量に関係するパラメータ）

感度	パラメータ	定義	方法	最小値	最大値	最適値
1	SMFMN	冬至の融雪係数 (mm H <sub>2</sub> O °C <sup>-1</sup> day <sup>-1</sup> )	1	0	5	0.22
2	SMFMX	夏至の融雪係数 (mm H <sub>2</sub> O °C <sup>-1</sup> day <sup>-1</sup> )	1	0	5	0
3	TIMP	固雪温度遅延係数	1	0	1	0.47
4	SMTMP	融雪気温(°C)	1	-5	5	0.05
5	SFTMP	降雪気温(°C)	1	-5	5	3.84

## (c) 懸濁物質 (SS) 流出に関わる高感度パラメータ

感度	パラメータ	定義	方法	最小値	最大値	最適値
1	CH_COV	河川の被覆係数	1	-0.001	1	0.92
2	PRF	流速ピーク調整係数（本流）	1	0	2	0.81
3	CH_EROD	河川の浸食性係数	1	-0.05	0.6	0.55
4	USLE_P	USLE管理係数	1	0	1	0.8
5	SPCON	沈着した懸濁物質の再浮遊係数	1	0.0001	0.1	0.037
6	ADJ_PKR	流速ピーク調整係数（支流）	1	0.5	2	0.97
7	SPEXP	沈着した懸濁物質の再浮遊指数	1	1	2.5	1.49

注：方法の1は、パラメータの値を最小値と最大値の範囲内で変動させて最適値を求める方法。方法の3は、パラメータの値を、パラメータの初期値の±25%の範囲内で変動させて最適値を求める方法。

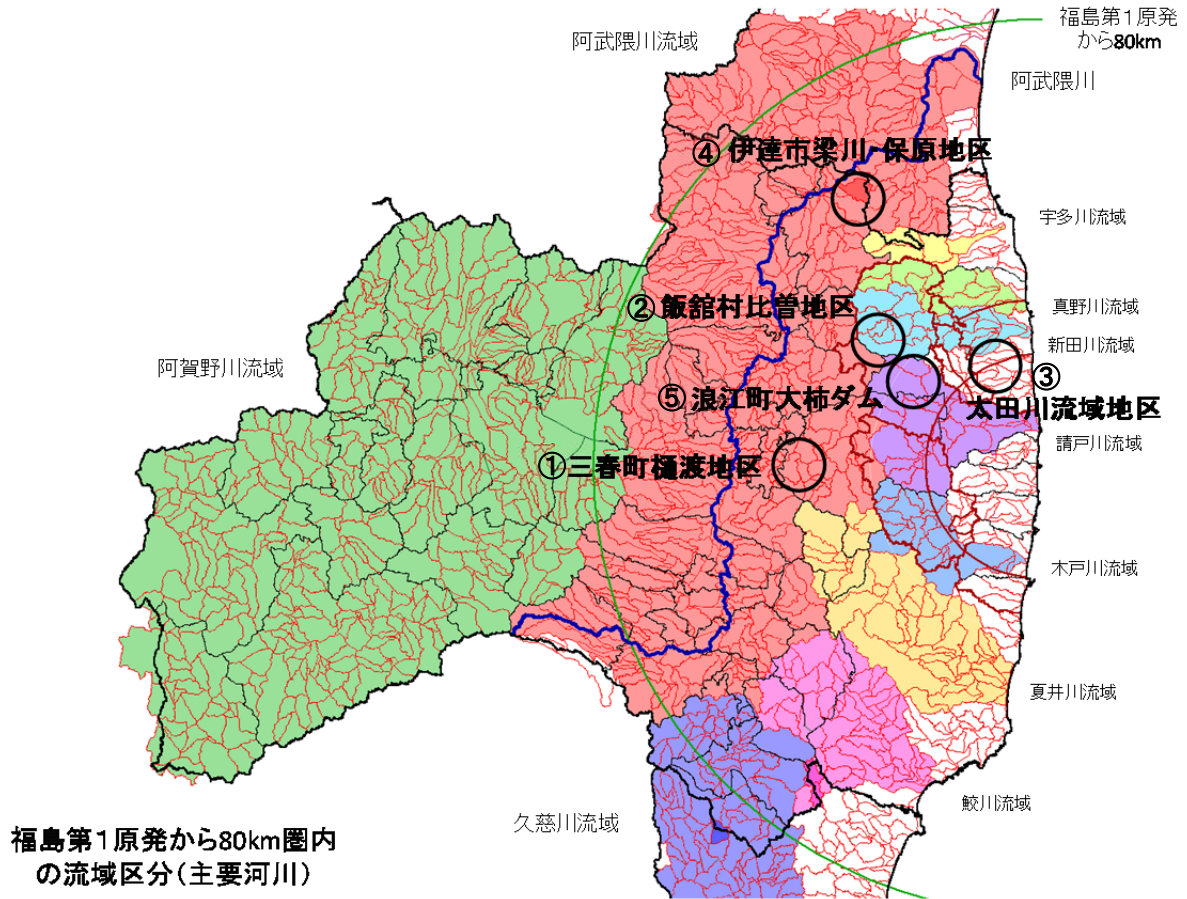


図-1 調査地点

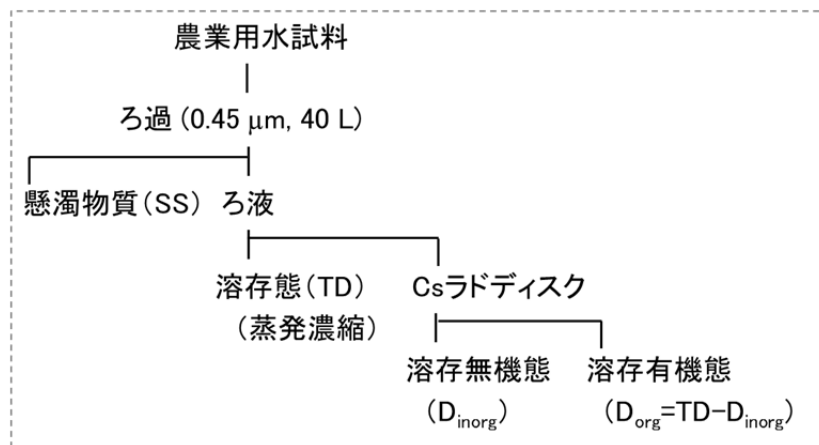


図-2 南相馬市太田川からの農業用水中セシウム 137 の形態分析フロー

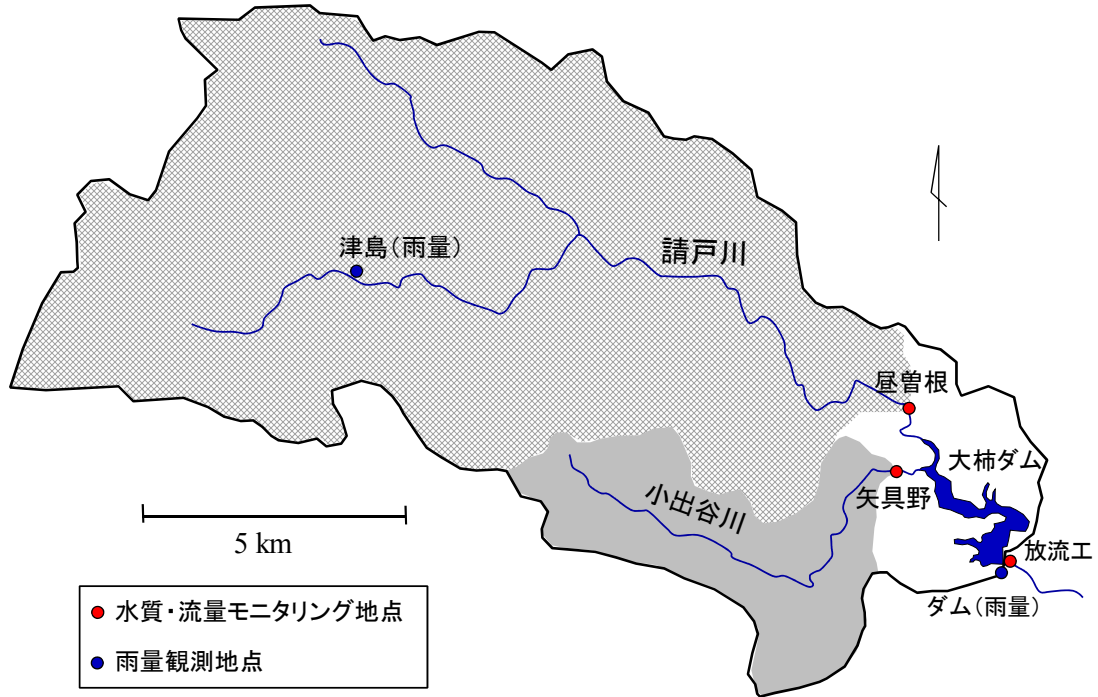


図-3 大柿ダムの流域と調査地点

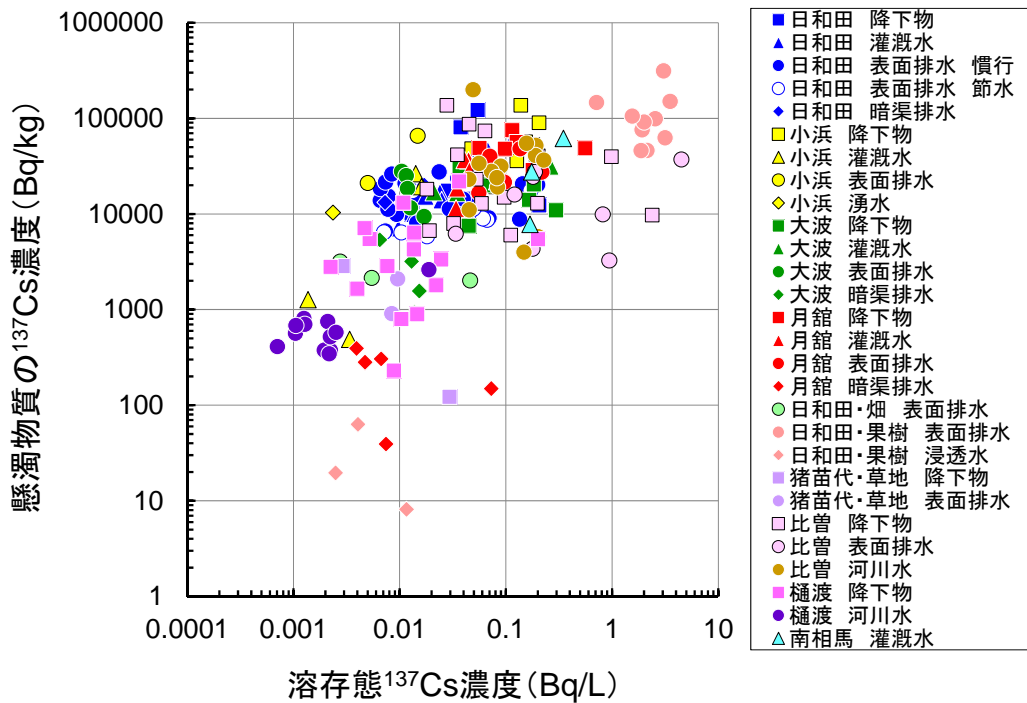


図-4 懸濁物質のセシウム 137 濃度と溶存態セシウム 137 濃度の関係  
(試料採取期間：平成 23 年 4 月～平成 26 年 10 月)

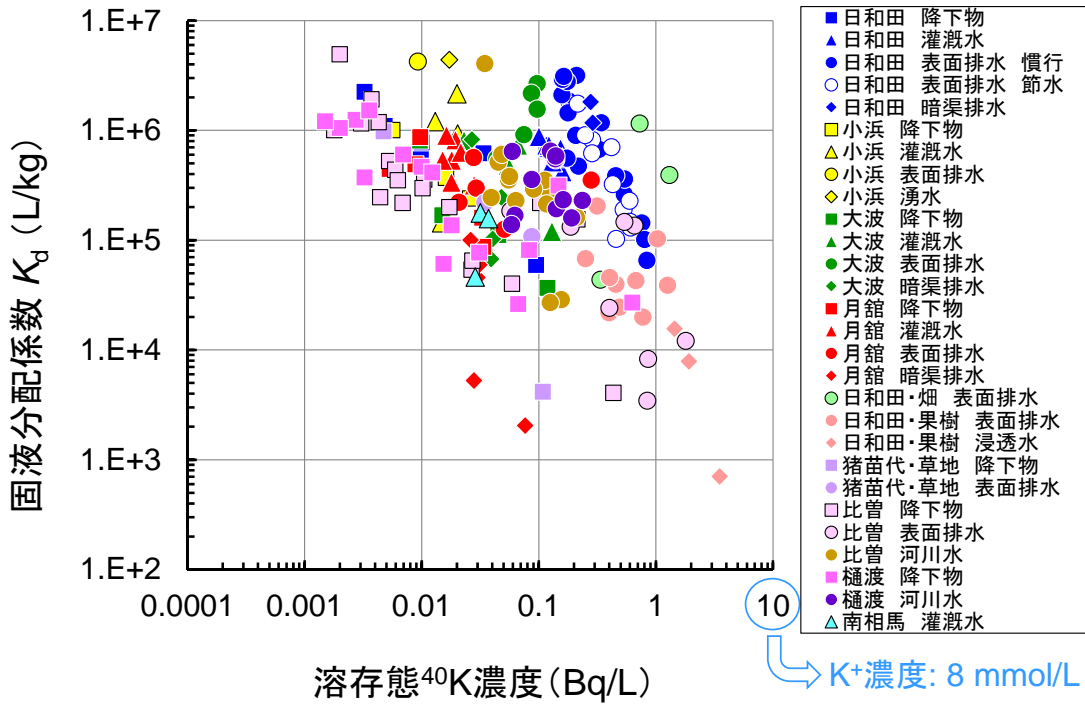


図-5 セシウム 137 の固液分配係数  $K_d$  と溶存態のカリウム 40 濃度の関係 (試料採取期間: 平成 23 年 4 月~平成 26 年 10 月)

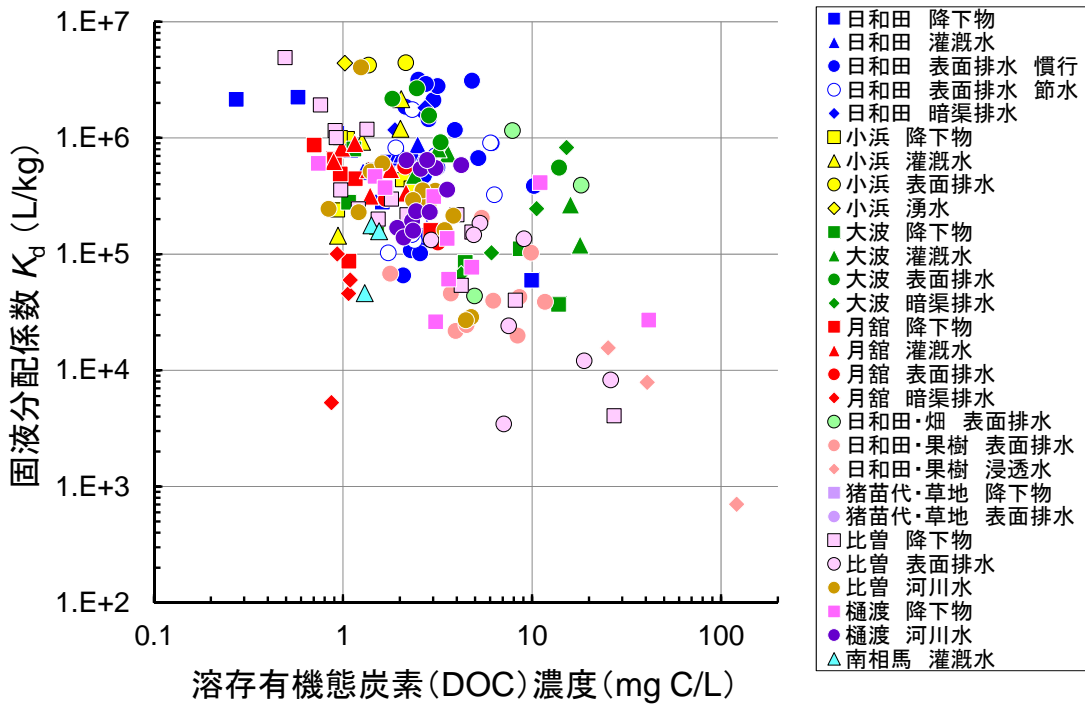


図-6 セシウム 137 の固液分配係数  $K_d$  と溶存有機態炭素 (DOC) 濃度の関係 (試料採取期間: 平成 23 年 4 月~平成 26 年 10 月)

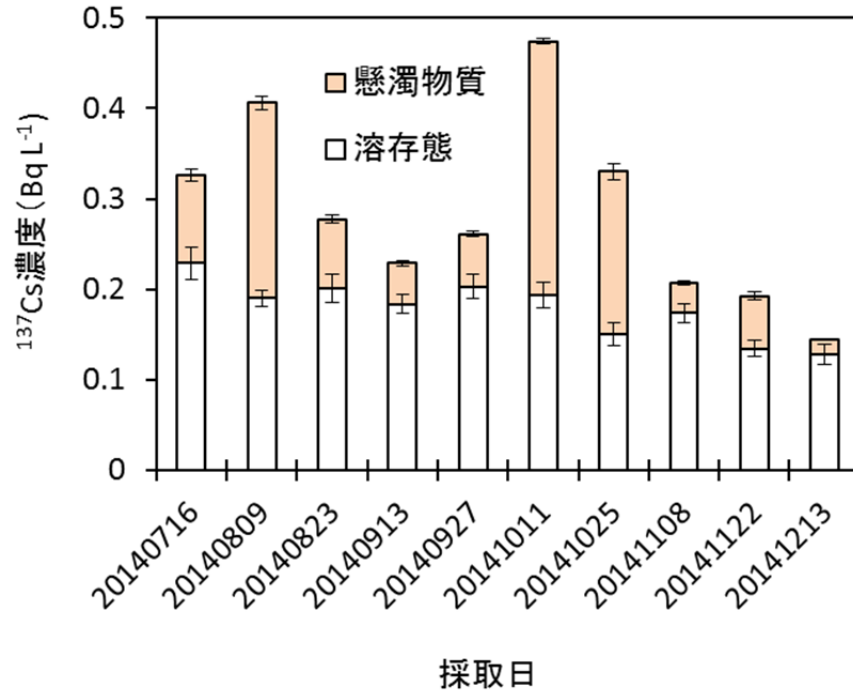


図-7 南相馬市太田川灌漑水に含まれる懸濁態及び溶存態セシウム 137 濃度の経時変化

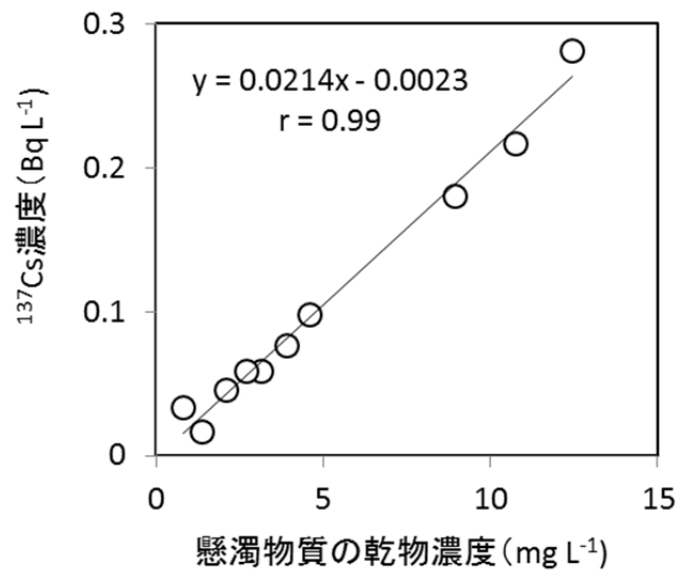


図-8 河川水中の懸濁物質の濃度と懸濁態セシウム 137 濃度の相関



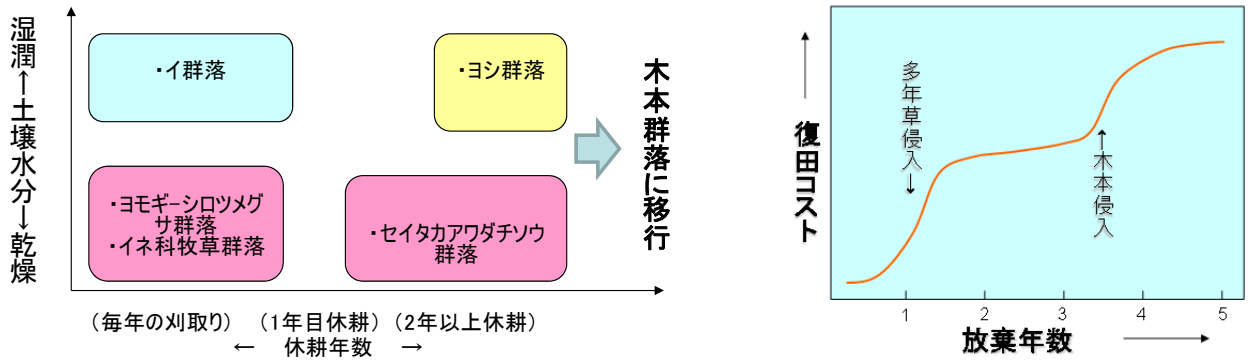


図-9 植生タイプの成立模式図（左）および復田コストと放棄年数の関係（右）

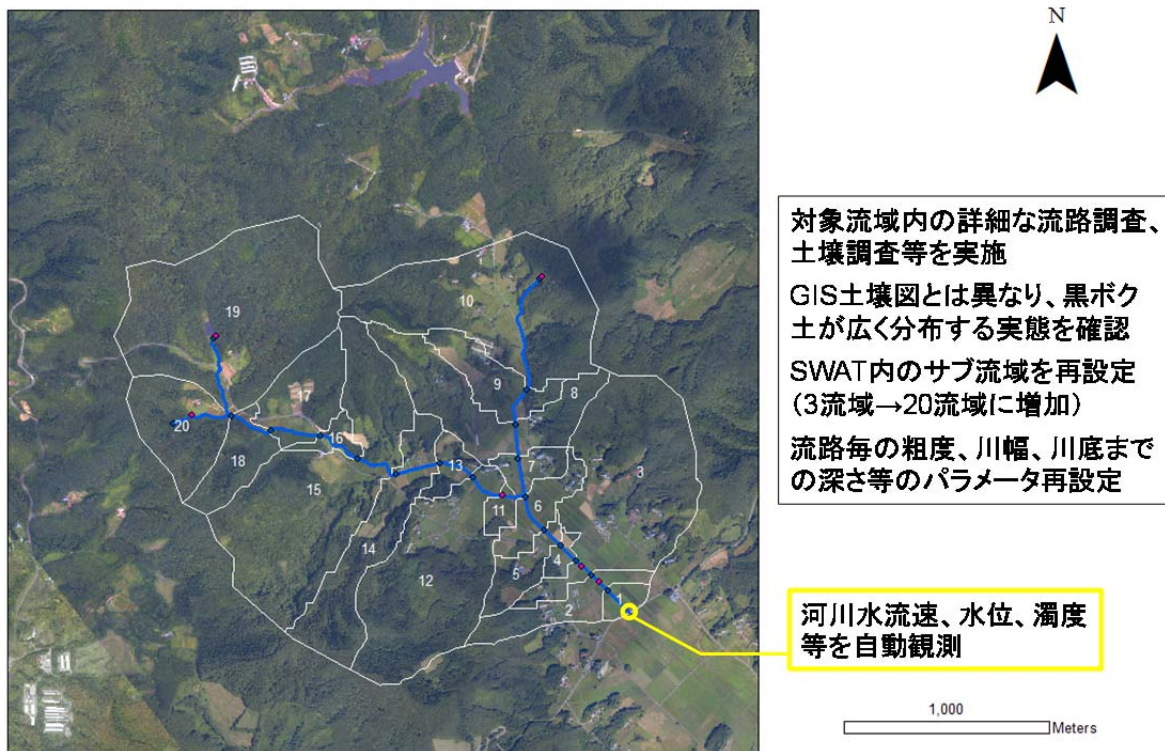


図-10 飯舘村比曾川流域（不作付け流域）の河川水モニタリング及び SWAT によるモデル化

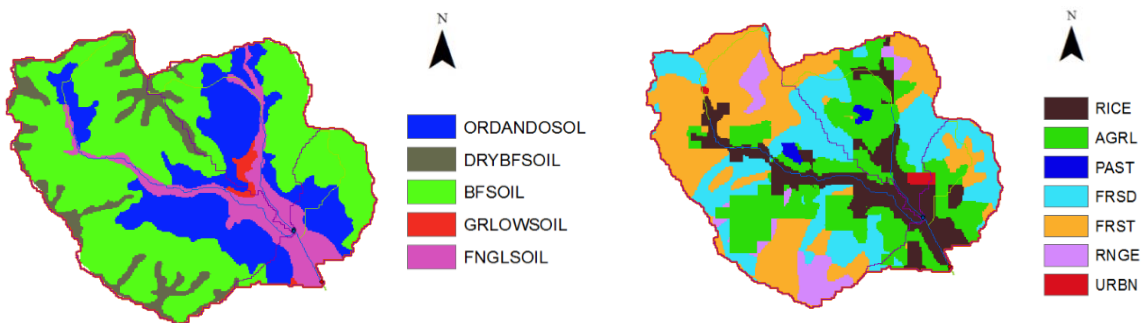


図-11 比曾川流域内の土壌図（左）と土地利用図（右）（凡例は表-4）

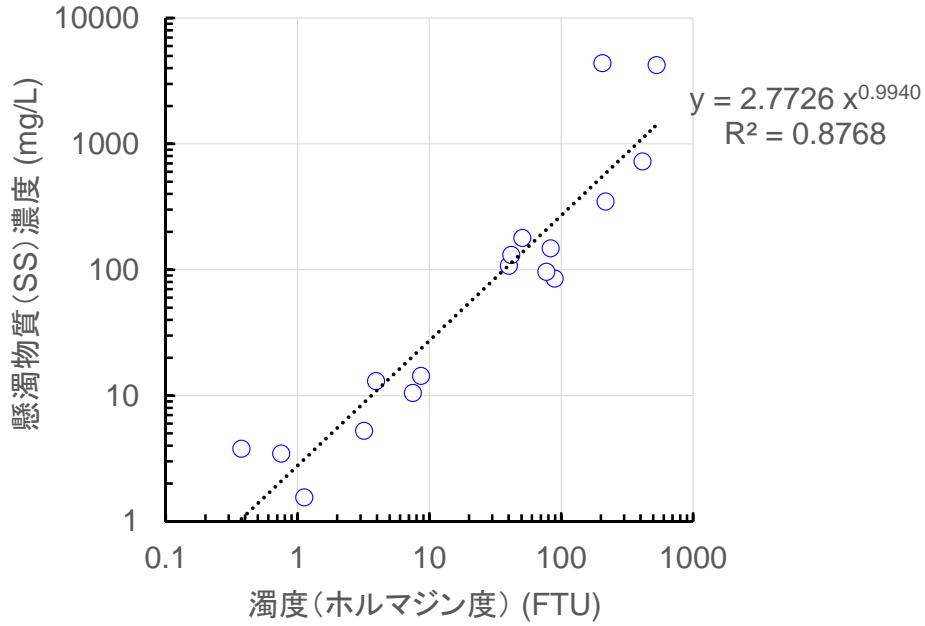


図-12 比曾川における懸濁物質 (SS) 濃度を濁度 (FTU : ホルマジン度) から推定するための回帰式 (平成 25 年 1 月～平成 26 年 11 月)

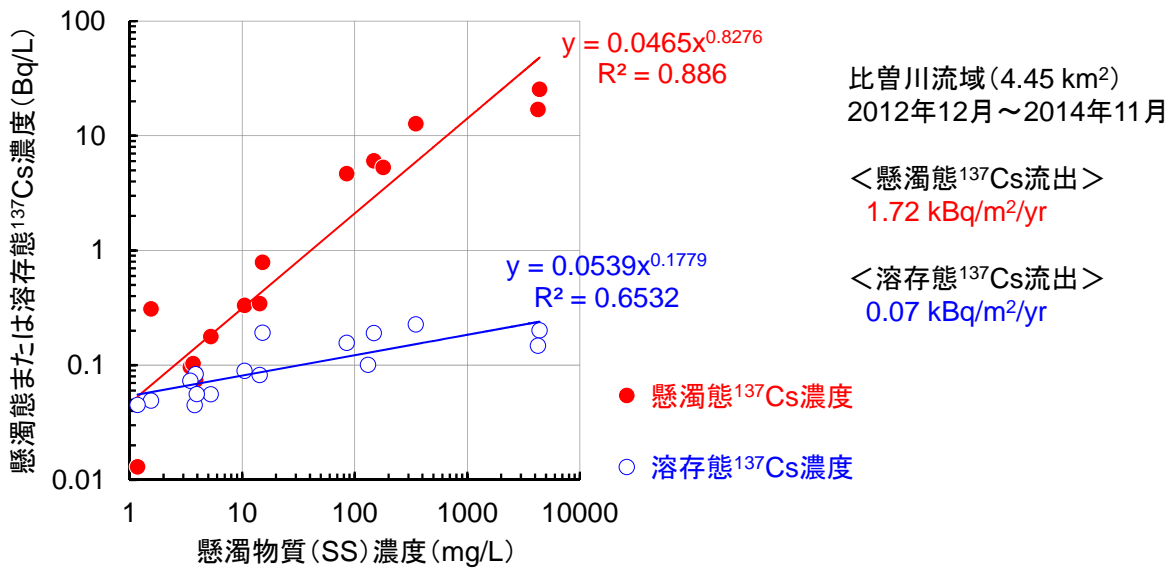


図-13 懸濁物質 (SS) 濃度から懸濁態及び溶存態セシウム 137 濃度を求めるための回帰式

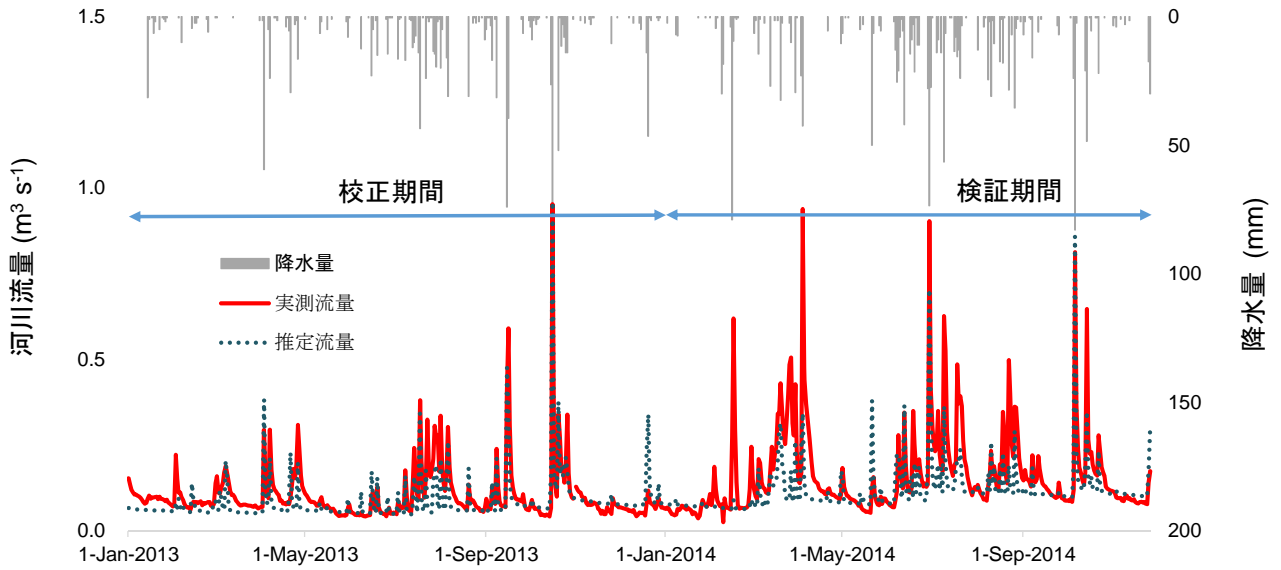


図-14 比曾川流域からの河川水流出流量（日平均流量）の実測値と推定値の比較

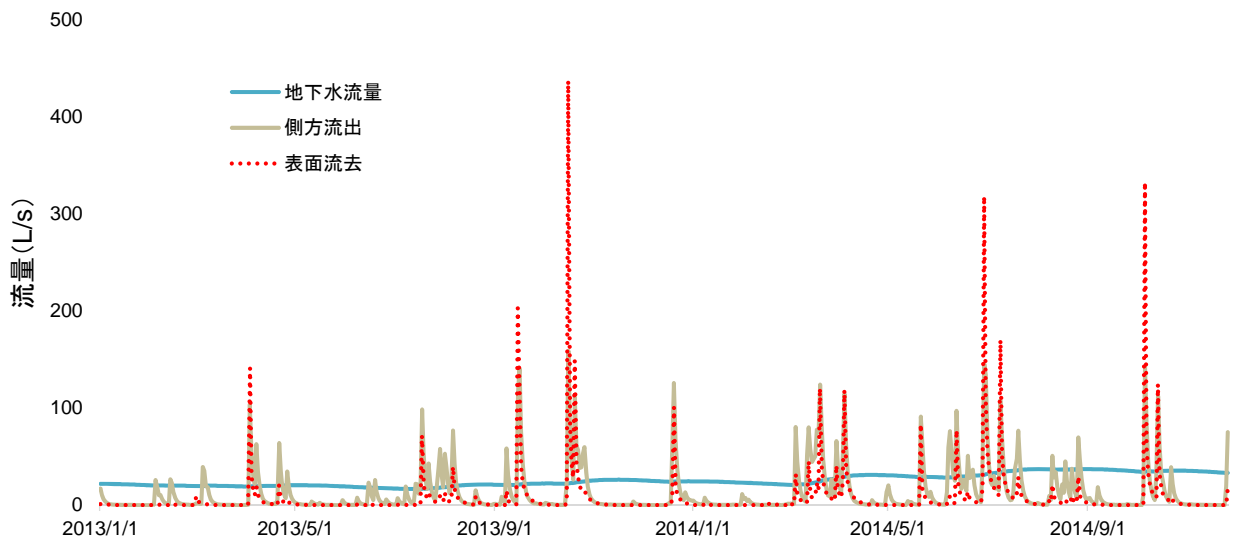


図-15 河川水流量推定値の内訳

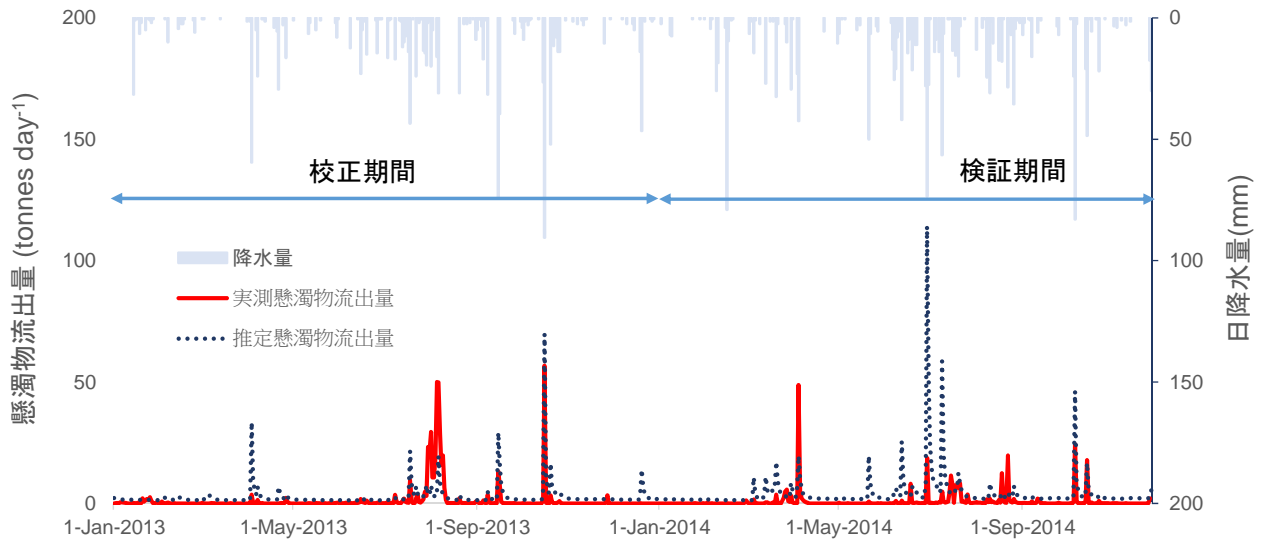


図-16 比曽川流域からの懸濁物質（土砂）流出量の実測値と推定値の比較

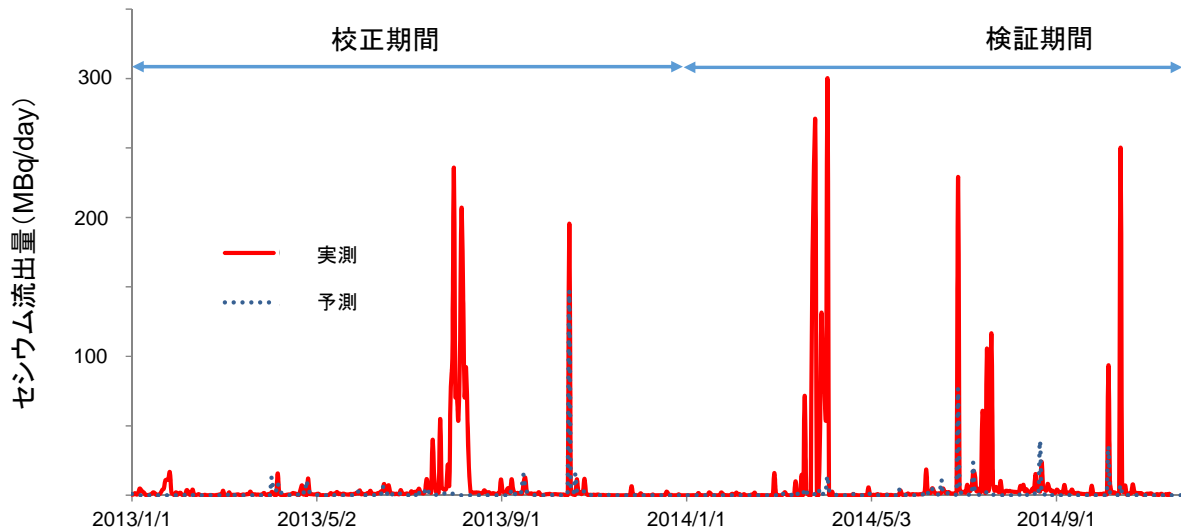


図-17 比曽川流域からのセシウム 137 流出量の実測値と推定値の比較

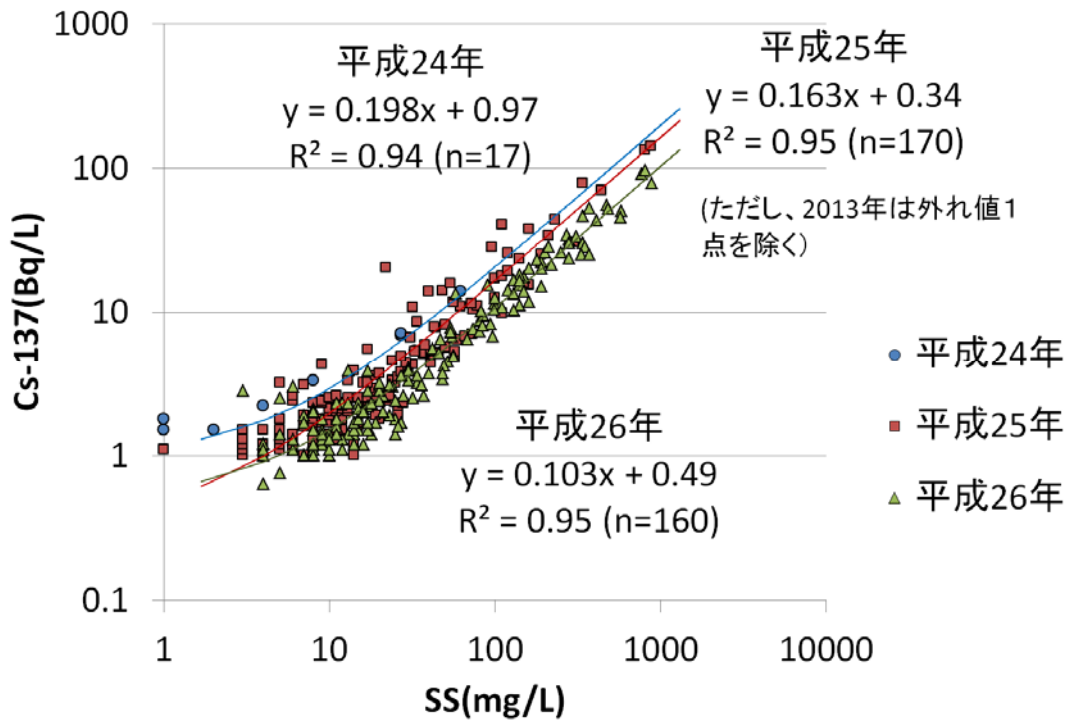


図-18 屋曽根地点におけるセシウム 137 濃度と懸濁物質 (SS) 濃度の関係 ( $y = ax + b$  型) の経年変化

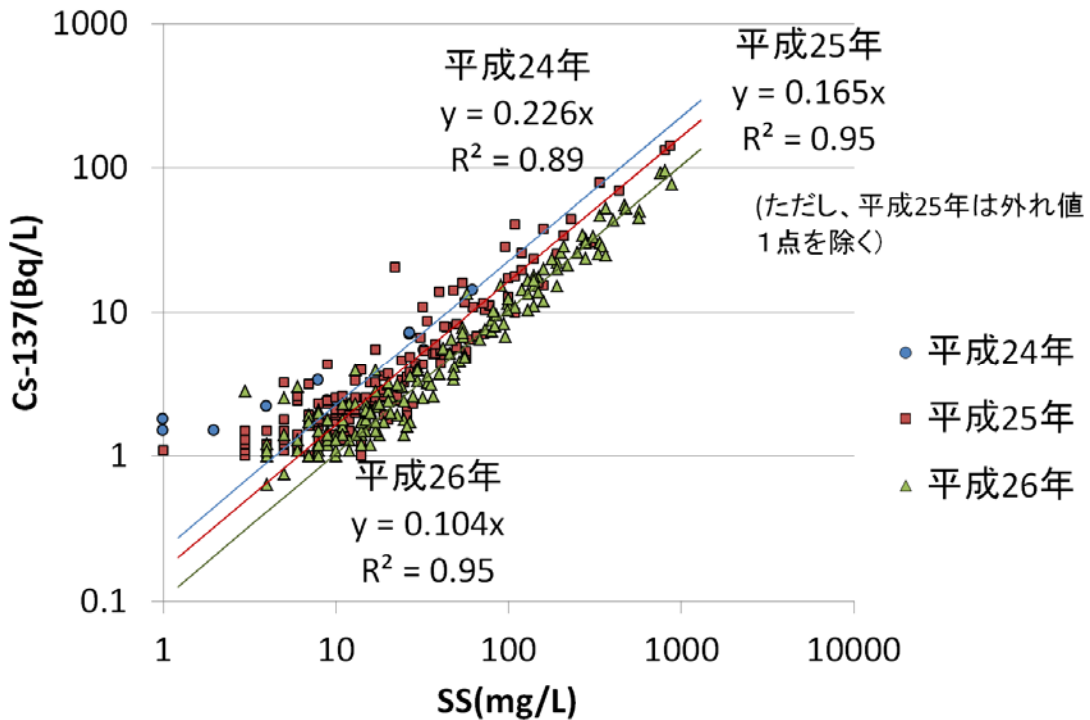


図-19 屋曽根地点における SS-セシウム 137 関係 ( $y = ax$  型) の経年変化

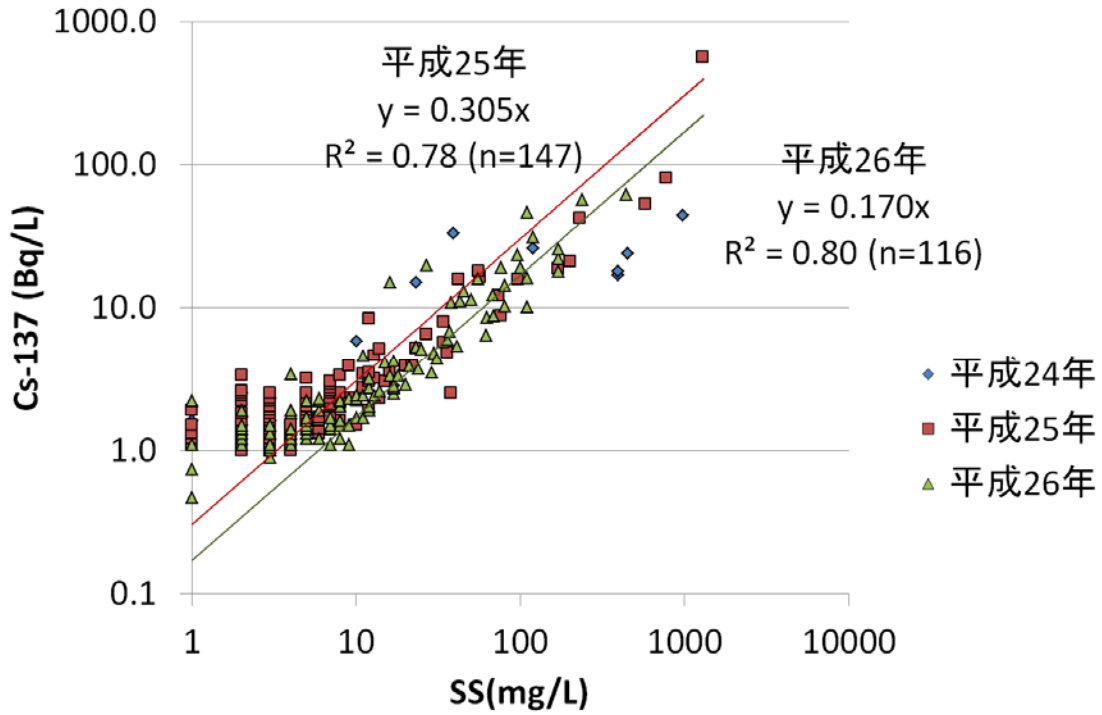


図-20 矢具野地点における SS-セシウム 137 関係 ( $y = ax$  型) の経年変化

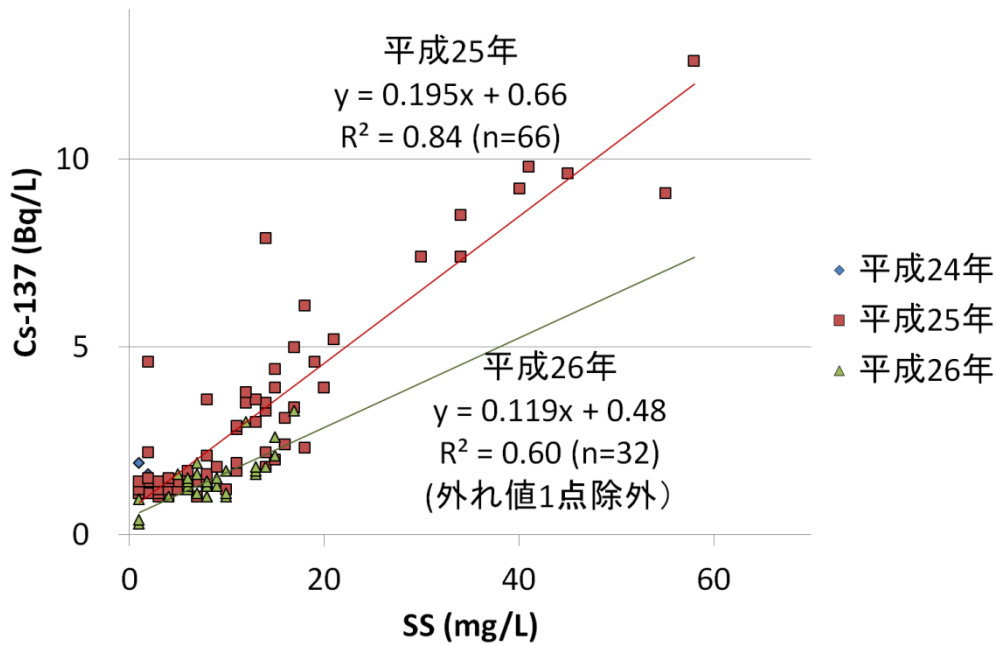
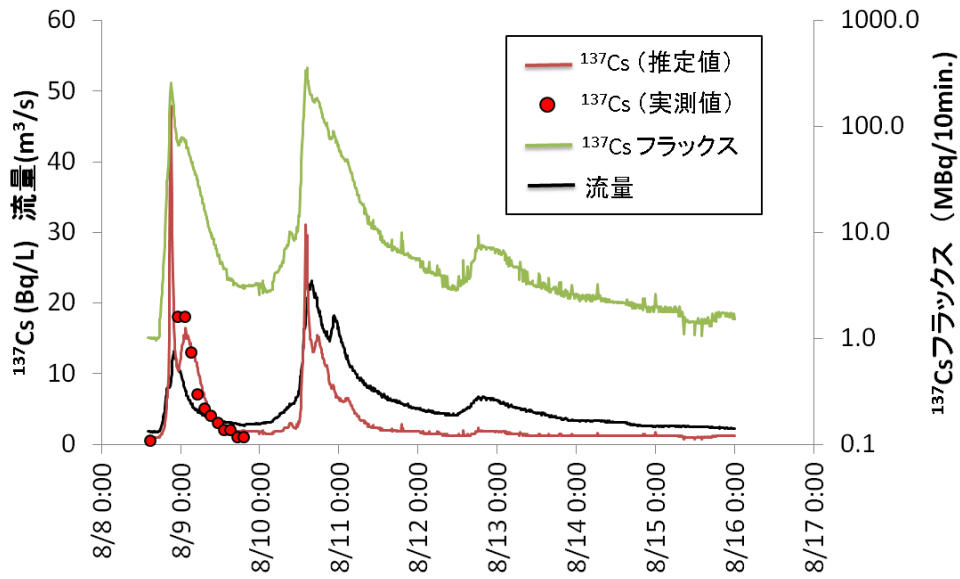


図-21 放流工地点における SS-セシウム 137 関係 ( $y = ax+b$  型) の経年変化

(a) 昼曽根地点における降雨時河川における河川流量と濁度の連続観測値から推定したセシウム 137 濃度



(b) 流入地点（昼曽根）と流出地点（放流工）の比較

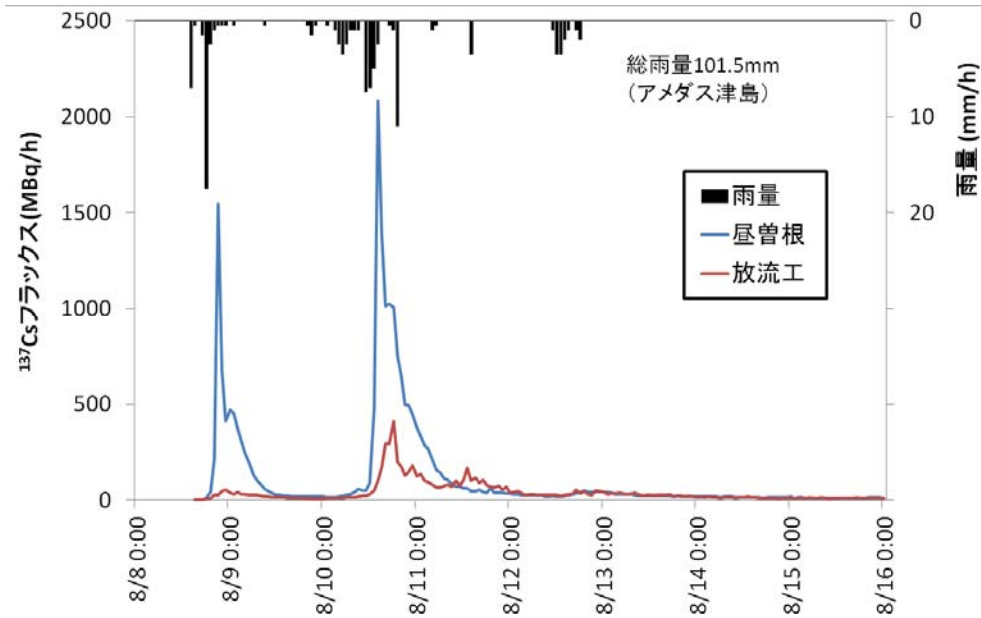


図-22 大柿ダム流入地点（昼曽根）と流出地点（放流工）におけるセシウム 137 のフラックスの推移（平成 26 年 8 月 8 日～15 日）

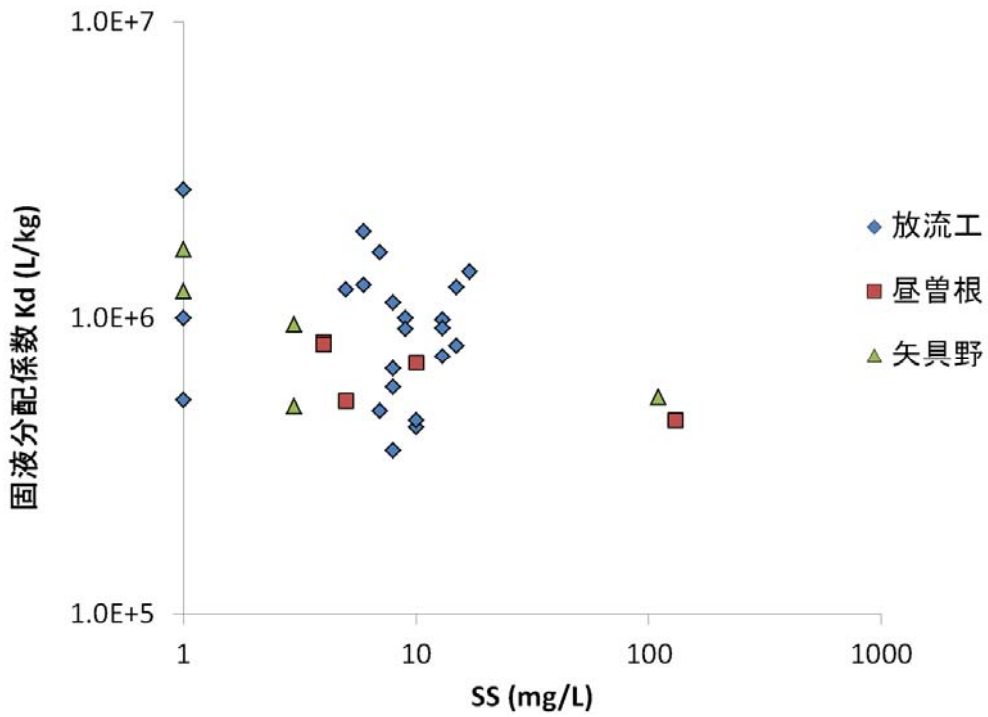


図-23 SS 濃度と固液分配係数 (Kd) の関係

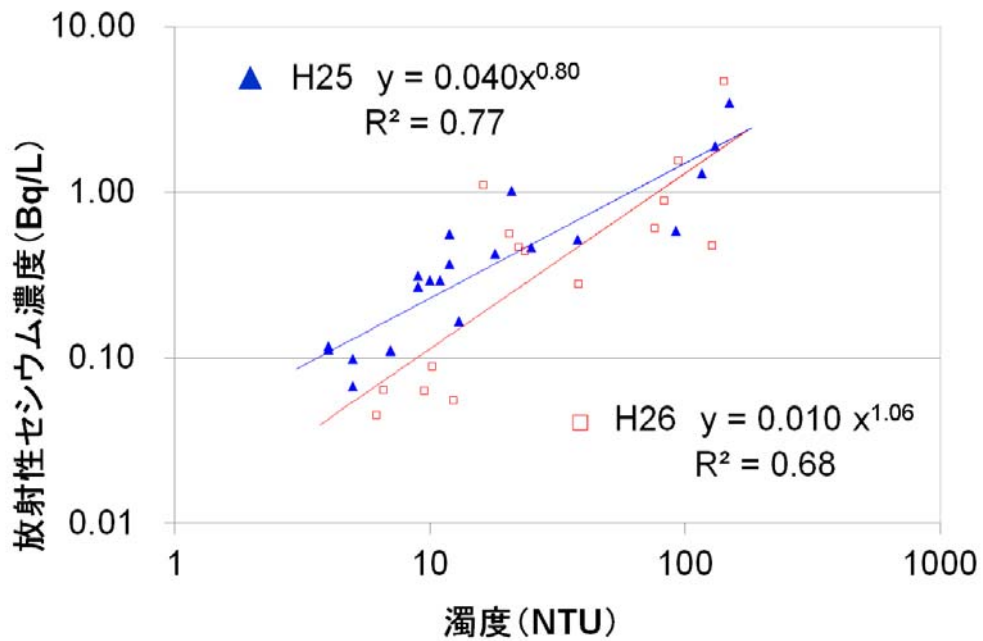


図-24 保原地区の農業用水における濁度と放射性セシウム濃度の関係



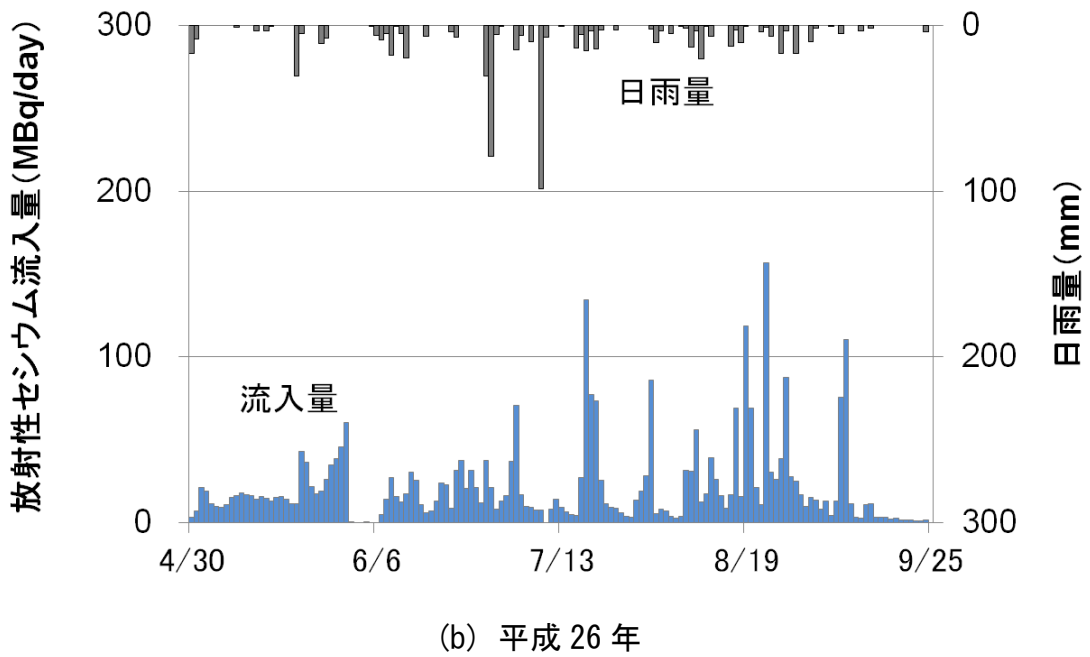
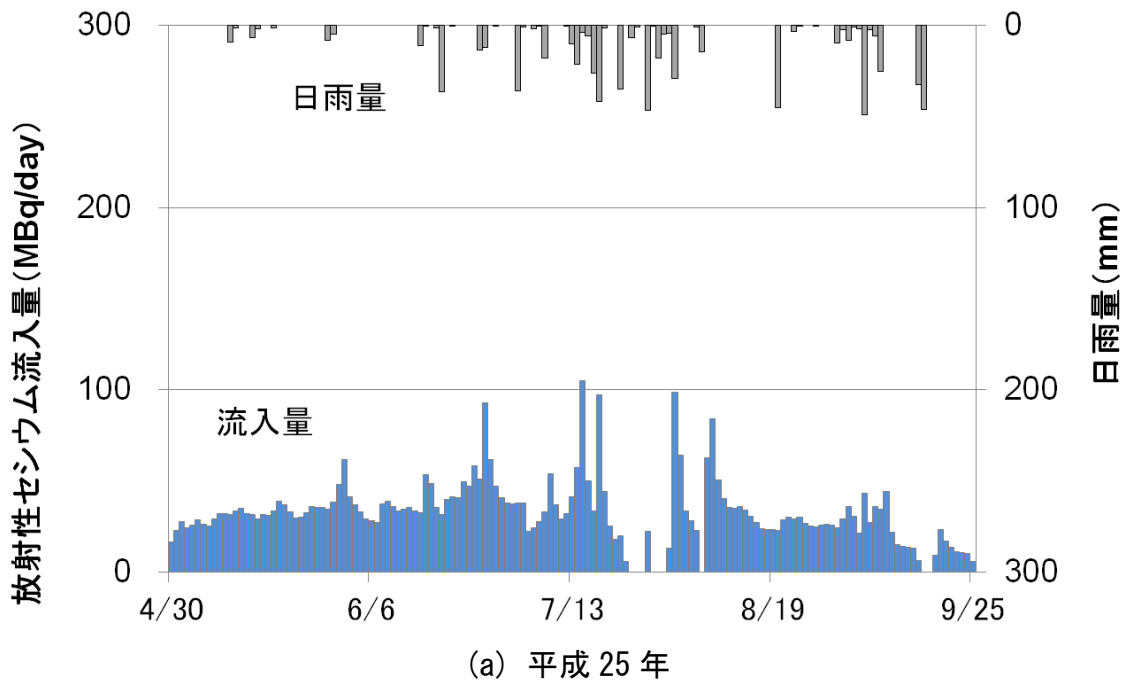


図-25 農業用水を通じて保原・梁川地区に流入する放射性セシウム