

## 放射性セシウムの土壌中の挙動と水系への流出

### Radiocesium Migration in Soil and Outflow into River System

塩 沢 昌<sup>†</sup>

(SHIOZAWA Sho)

セシウム (Cs) は陽イオンで水に溶けやすいが, 土粒子とくに粘土粒子に強く固定されやすいことが著しい特徴である。このため, 土壌中ではほとんど移動せずに地表面付近にとどまり, 土壌から河川や地下水に流出することはなく, 農地に大量に存在しても普通は作物にはほとんど吸収されない。しかし, 土壌への弱い固定から強い固定への移行は時間を要するプロセスで (図-1) その速度は土壌によって異なる。土壌被覆から水系への Cs 流出はないといつてよいが, 市街地のアスファルトなど土壌以外の被覆からの 2011 年の沈着直後の水系への流出は大きかった。また, ため池やダム湖には湖面に沈着した Cs が底質中に存在し, 河川敷や流路に沈着して土砂に固定された Cs が豪雨時に河川を移動していると考えられる。ここでは, 著者や公的機関が現場測定したデータをもとに, 放射性 Cs の環境中の移動現象の実態を示す。

#### I. 降雨浸透に伴う土壌中の Cs の移動

2011 年 3 月の東京電力福島第一原子力発電所事故で大気に放出され直後の降雨によって地表に沈着して土壌に侵入した放射性 Cs は, その後の降雨の浸透水とともに浸透するが, 土壌水とともに下方に移動するのは土壌水に溶解した Cs だけで, 土壌固相に固定された Cs は移動しない。水分子の平均移動速度に対する Cs の平均移動速度の比は土壌中の全 Cs に対する土壌水中に溶存する量の比である。水分子の平均速度 ( $v$ ) は, 水の浸透フラックス ( $q$ ) を体積含水率 ( $\theta$ ) で除して得られ ( $v=q/\theta$ ),  $q$  は「降水量-蒸発量」であり, 日本 (福島) の気象条件ではおよそ 1,000 mm/year で, 表層土壌の  $\theta$  の典型的な値を  $\theta=0.5$  とし, 水分子の速度 (固相への固定のない溶質の速度も同じ) は約 2,000 mm/year (2 m/year) である。Cs が固相に固定されずに土壌水中にのみ存在すれば Cs もこの速度で浸透するが, 土壌水中に 1/1,000 しか存在しなければ 2 mm/year の浸透速度となる。

著者は, 年間に数 mm のわずかな Cs 移動量をモニ

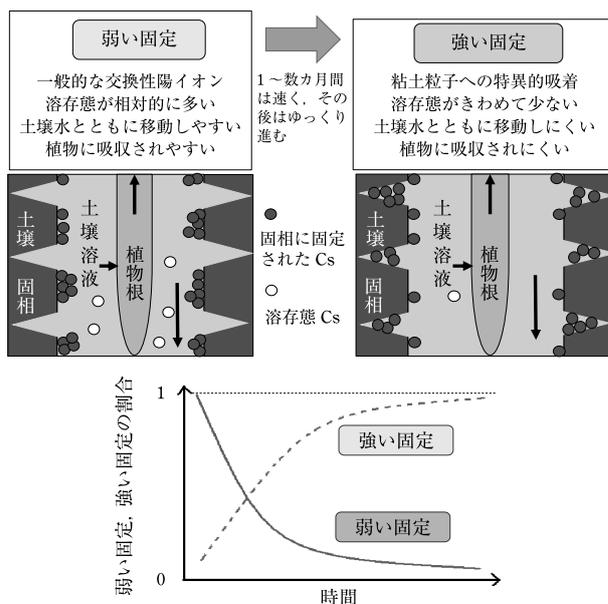


図-1 Cs の土壌への固定形態と経時変化

タリングするために, 鉛で側面窓以外を遮蔽したコリメータを装着したシンチレーションサーベータで, 土中に埋設した塩ビパイプ内で放射能の鉛直分布を求め, 濃度分布の重心位置の 2 時点の差から平均移動速度を求める方法を開発した (図-2)<sup>1)</sup>。図-3 は, このシステムで測定した Cs の地表面からの平均移動距離 (濃度分布の重心位置) の経時変化である。Cs 降下から 3 カ月程度 (2011 年 6 月または 7 月) までの Cs 移動量は降雨量 (およそ水分子平均移動量) の 1/10~1/20 であるが, それ以降は著しく遅くなり, 2 年目以降は水分子の浸透速度 (約 2 m/year) の 1/1,000 程度 (数 mm/year) に低下している。この Cs の土中移動のモニタリングの結果は, Cs の土壌への固定状態が弱い固定から強い固定に移行し, これに伴って土壌水に溶解した移動性の Cs の割合が減少し, 移動速度が遅くなっていることを示している。

#### II. 土壌への弱い固定から強い固定への移行

Cs の土壌固定には, 弱い固定と強い固定があり, 沈

<sup>†</sup> 東京大学大学院農学生命科学研究科生物・環境工学専攻



放射性セシウム, 降雨浸透, セシウムの土壌固定, ため池の汚染, 河川流出, 大杉ダム

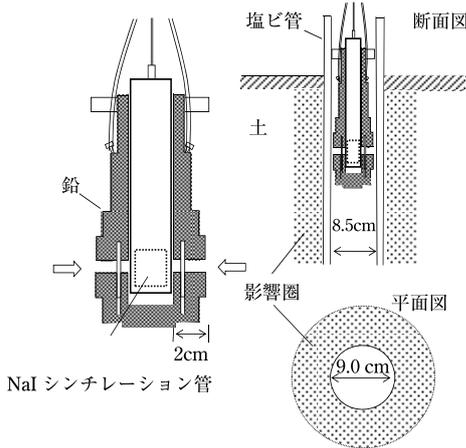


図-2 土中の放射性 Cs 移動量測定システム (土中に設置した塩ビ管内で、鉛コリメータの側面窓を開いた測定 (open) と鉛で塞ぐ測定 (closed) を行い、open から closed を差し引いて窓以外からの漏れを補正する。放射能の鉛直分布を測定してその重心を求め、2 時点の重心の移動量が Cs の平均移動量を表す。)

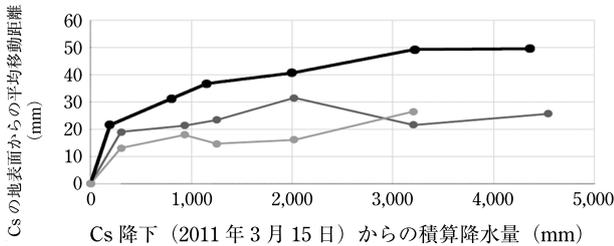
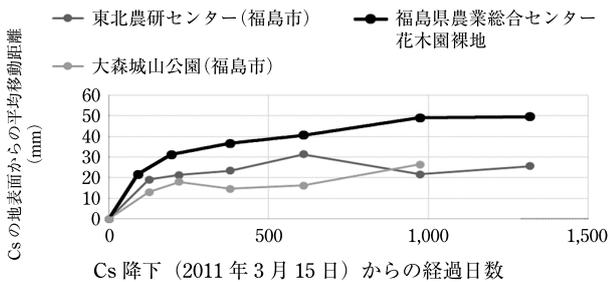


図-3 福島の土壌中の Cs の平均移動距離の経時変化および積算降水量との関係 (一回目の値は土壌サンプリングにより、以降は現場測定による。)

着直後の弱い固定から、時間経過によって強い固定に移行したことが現象を理解する上で重要である (図-1)。「弱い固定」と著者が呼ぶ固定形態は、負電荷をもつ固体 (土粒子、植物、アスファルトなど) の表面に、陽イオンの一つである Cs が電気力で引きつけられるものである。土壌中では土壌水中に他の陽イオンと容易に交換される形態 (交換態と呼ばれる) で、溶存態の Cs (イオン) の割合が多く、このため、土壌水とともに移動しやすく、植物にも吸収されやすい固定状態である。これに対して、「強い固定」と呼ぶのは、Cs に特有の特定のサイト (粘土の結晶構造の Cs イオ

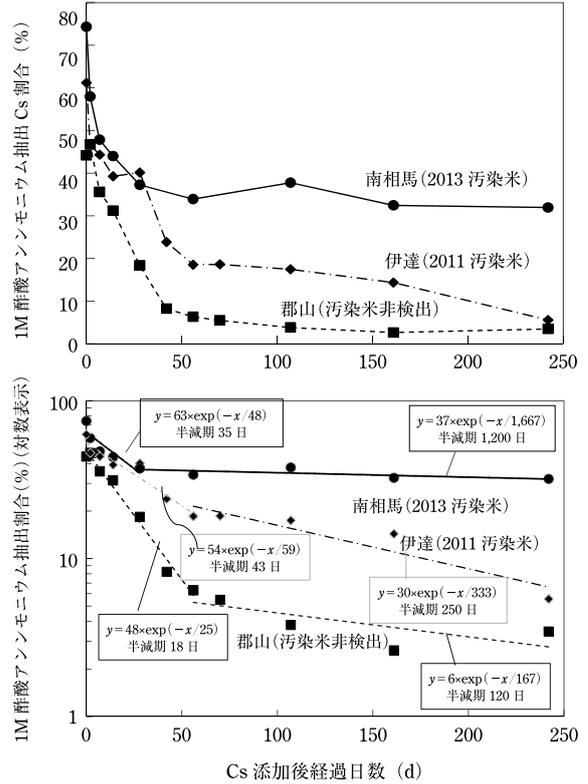


図-4 Cs-137 を添加した水田土壌の経過日数と交換態 Cs (1 M 酢酸アンモニウム抽出 Cs) 割合の経時変化 (実験で添加した Cs の量は土壌試料に含まれる原子力発電所事故由来の Cs の 10~20 倍である。試料は室内で蒸発が生じるようにし、2 週間ごとに蒸発分の水を散布した。)

ンがぴったりはまり込むサイズの「隙間」への吸着で、他の陽イオンと交換されて溶解する確率がきわめて低く、平衡する溶存態の割合が少なく、したがって土壌水とともに移動しにくく、植物にもほとんど吸収されない固定状態である。土壌への強い固定が進むことによって、図-3 のように Cs の浸透速度が低下するとともに、植物の根による Cs 吸収も同様に低下した。とくに、Cs 降下から 2~3 カ月は溶存態の Cs はまだ土壌中にかなり存在し植物にも吸収されやすかったと考えられる。実際、福島県による農作物のモニタリングによれば、野菜のような畑作物への土壌からの Cs 移行は、2011 年の夏にかけて著しく減少し、それ以降はほぼ検出限界以下 (ND) となった。

このように Cs の土壌への強い固定が Cs 降下から 2 カ月程度は速く進みその後はゆっくりと進むことを、著者の研究室において、土壌に薬品の Cs を添加した実験によって確かめた。3 つの水田土壌に放射性 Cs を添加して、その後の 1 M 酢酸アンモニウムで抽出される Cs の量を測定し、試料中の全 Cs に対する割合の経時変化を図-4 に示した。1 M 酢酸アンモニウムで抽出される Cs は、交換態と呼ばれ、植物に吸

取されやすいCsの指標として広く用いられている。1M酢酸アンモニウムで抽出されるCsの割合が土壌への弱い固定の割合と考えた。図-4から、弱い固定の減少は添加後の1~2カ月は速く進み(半減期18~43日)、その後はゆっくり進むことがわかる。また、2011年に500Bq/kgを超える汚染米を産出した伊達の水田土壌と2013年に100Bq/kgを超える汚染米を産出した南相馬の水田土壌では、福島県農業総合センター(郡山)の水田土壌よりも弱い固定の減少(強い固定の増加)速度が遅い。とくに南相馬の水田土壌は著しく遅く、Csの降下から2年以上も経過して基準超過米が産出された原因が土壌のCs固定の弱さにあることを強く示唆している。このような土壌に対してはゼオライトのようなCs固定剤の添加が有効と考えられるが、Cs固定剤へのCsの拡散も時間を要するプロセスで即効性はなく、添加後の年月が経過するほど固定効果を発揮するはずである。

### III. 高濃度放射性Csはどこから水系に流出したのか—ため池の蓄積量調査から—

福島県の一部のため池や市街地河川、阿武隈川や阿賀野川に放射性Cs濃度の高い底泥が堆積している地点がみられ、ホットスポットとなっている。河川流域の大半は山の森林であるから、山からのCsの流出が心配された。しかし、Csが土壌に強く固定されやすい特性からすれば、Csの流出源は土壌被覆のある山や農地ではなく、土壌被覆のない市街地(アスファルトや建物屋根)からの流出であると考えられる。この仮説を検証するために、ため池の底質には2011年3月以降に上流から流入したCsが、池に直接降下したCsとともにプランクトンや粘土粒子に固定されて沈降し底泥に蓄積していることに着目し、水底の底質の単位面積当たりのCs平均濃度( $F_{sed}$ ; Bq/m<sup>2</sup>)を測定し、2011年3月の湖面への沈着濃度( $F_{fall}$ ; Bq/m<sup>2</sup>)との比 $F_{sed}/F_{fall}$ を求め、上流域が森林であるため池と上流域の土地被覆の大半がアスファルトと建物であるため池についてこの比を比較することにした(図-5)<sup>2)</sup>。

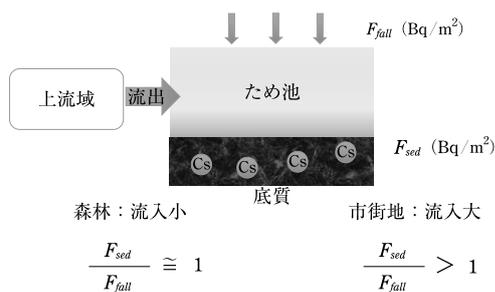


図-5 ため池の底質平均濃度  $F_{sed}$  と湖面沈着濃度  $F_{fall}$

調査したため池は、上流域が森林である二つのため池(本宮市のO池と南相馬市のY池)と、上流域の大半が市街地(工場)でアスファルト駐車場と道路および建物で覆われ降雨排水がU字溝を経て直接流入するため池(本宮市のH池)である。H池は農林水産省のため池調査で底泥のCs濃度が10万Bq/kgを超える高い値を示した池で、O池はこのH池と上流域が分水嶺で接した近接した池であるが、H池と違って上流が森林で市街地がない。

ため池の底質のサンプリングは容易でなく、さらに地上の土壌と違って、Csを固定したプランクトンなどが水中で沈降する過程で水平方向に移動して場所による著しいCs量のバラツキが生じているため、ため池全体の平均値  $F_{sed}$  の信頼できる値を得るには、一つのため池について格子状の多点測定が必要となる。NaIシンチレーションサーベーター(HPI社、5000型)のコネクタ部分を防水し、シンチレーション管と底質間の水を排除するためのアタッチメントを取り付けて底質のCs濃度を測定できるようにした(図-6)。現場測定においては、測量によって格子状の側線を決めて岸に杭を打ち、ロープを張ってゴムボートを格子点に固定して、プローブを湖底に下して測定した。一方、湖面の沈着濃度  $F_{fall}$  は地上堤体部の土壌の表面濃度から得られるが、 $F_{sed}$  の測定と同じ測定器で周囲に水のある同じ条件で測定するために、水を満たしたビニールプールを地表に置いてその中で  $F_{fall}$  を測定することで両者の比  $F_{sed}/F_{fall}$  が正確に得られるようにし、同時に測定値(cpm)をBq/m<sup>2</sup>に換算するキャリブレーション定数も得た。現場測定した底質のCsの濃度は図-7に示すように水深が深い地点ほど濃度が高い傾向があるが、測定地点によるバラツキが大きく、池全体のCs量と平均値を得るには、多点の測定が必要であることがわかる。

以上の調査結果をまとめた表-1より、森林集水域

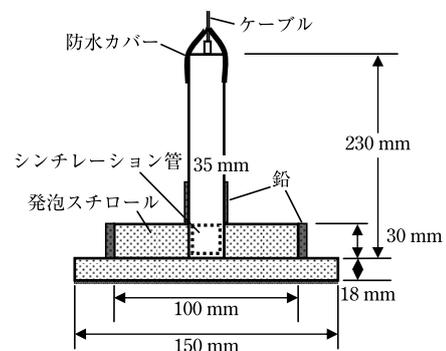


図-6 シンチレーションプローブと水底Cs測定用アタッチメント(発泡スチロールで水を排除して感度を上げるとともに、水底で直立させる。鉛は浮力に対する重りである。)

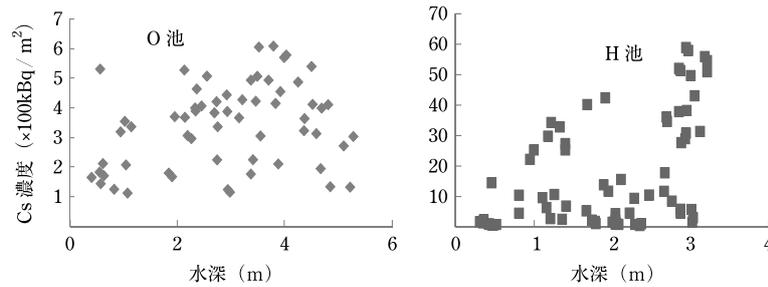


図-7 ため池底質のCs表面濃度と測点水深との関係(2012年12月現場測定。測定点を、O池では10m、H池では5m間隔の格子点とし、サーベーター(図-6)をボートから下して測定した。)

表-1 ため池底質Cs濃度( $F_{sed}$ )、湖面沈着濃度( $F_{fall}$ )とその比( $F_{fall}$ はため池周囲の土壌表面濃度を現場測定した。)

	森林ため池		市街地ため池
	O池	Y池	H池
平均水深(m)	3.00	1.27	2.00
池面積(m <sup>2</sup> )	5,850	7,580	1,770
流域面積(m <sup>2</sup> ×100)	1,700	(1,600)	650
流域面積/池面積	29		37
底質の平均Cs濃度 $F_{sed}$ (kBq/m <sup>2</sup> )	343	505	<u>1,680</u>
池に降下したCs濃度 $F_{fall}$ (kBq/m <sup>2</sup> )	399	603	350
$F_{sed}/F_{fall}$	0.86	0.84	<u>4.81</u>
水のCs濃度(Bq/ℓ)			
懸濁態+溶存態	0.34	0.45	1.59
溶存態濃度	0.12	0.20	0.93

ため池の底泥に蓄積しているCs量( $F_{sed}$ )は、池に降下した濃度とみなされる堤体周辺土壌( $F_{fall}$ )より約15%少なく、上流から池に流入したCsより池から流出した量が多いことがわかる。フォールアウトの直後に、水中のCsがプランクトンなどに付着して底泥に沈降するまでの間に池から流出したと考えられる。一方、上流域の大半がアスファルトと建物であるH池では、 $F_{sed}$ が $F_{fall}$ の約5倍であり、フォールアウト直後の池からの流出を考えれば、池に直接のフォールアウトしたCsの少なくとも4倍のCsが上流域から流出して池に流入したことを示している。池の水のCs濃度を比較すると、 $F_{sed}$ にほぼ比例している。

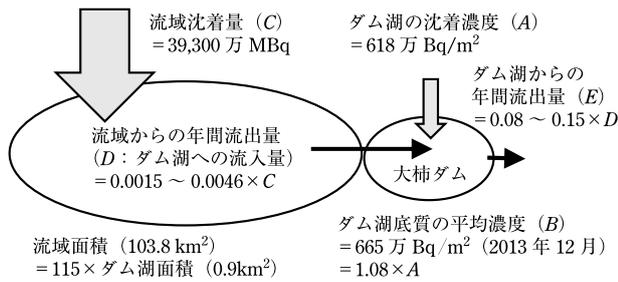
本調査により、放射性Csの水系への大きな流出は、福島県の河川流域の大半を占める森林(山)から生じたのではなく、アスファルトや建物で被覆された市街地から生じたことが示された。アスファルトやコンクリートや建物屋根は土壌と違ってCsを固定しにくく流出しやすいのである。著者が各地で測定したアスファルト表面濃度は隣接の土壌表面濃度より約50%低く、沈着直後(2011年夏まで)の降雨で洗い流されたと考えられる。周辺の沈着濃度に比べて高濃度にCsを蓄積して問題になっているため池はいずれも、周囲がアスファルト道路やコンクリートでその雨水が流入する市街地の中のため池である。また、福島県な

らびに周辺都市の下水汚泥のCs濃度が高いことが問題となっているが、これもアスファルトなどの土壌でない人工物に沈着して洗い流されたものである。農業用水路内のCsも、大部分は河川から流入したのではなく、用水路内に沈着したCsと用水路に沿うアスファルト道路から流出して水路に流入したCsが水路内の土砂に固定されたものと思われる。

なお、ため池やダム湖の底質のような野外における環境中のCs濃度は、Bq/m<sup>2</sup>によって表すことで汚染や蓄積の大小を比較できる。これを、サンプリング深さと底質密度によって著しく値が異なるBq/kgで表示することは適切ではない(放射性廃棄物はBq/kgで表す必要がある。また作土が混合されて作物生産が行われる農地では、深さを15cmに指定して乾土の単位質量当たりの平均Cs濃度をBq/kgで表示することに意味がある)。

#### IV. 森林流域(大柿ダム流域)におけるCsの挙動

大柿ダム(浪江町)周辺の上流側は、原子力発電所の外としては最も高濃度にCsが沈着した汚染地域であり、ダム湖の底質のCs濃度が高く問題となっている。農林水産省がダム湖に流入する河川と流出する水のCs濃度と流量を連続して測定しており<sup>3)</sup>、流域におけるCsの動態を定量的に知ることができる(図-8)。ダム湖の底質に存在するCs量も多点の底質サンプリングを行って総量と平均濃度(Bq/m<sup>2</sup>)が正確に測定されている。これによれば、ダム湖の底質に存在するCsはダム湖に沈着したCs(航空機モニタリングから推定)の1.08倍であり、上流からの流入による増加があるものの、大半が2011年3月にダムの湖面に沈着したCsであり、周辺土壌のCs濃度と大差がない。年間に流域から流出する(ダム湖に流入する)Cs量は、流域全体の沈着量の1/700~1/200で大きくないが、流域面積がダム湖面積の115倍なので、ダム湖底質の濃度増加への寄与は小さくない。流入水ならびに



流域沈着量：C=393,000,000 (MBq)

年	流入量：D (MBq/year)	流出量：E (MBq/year)	年間流域流出率： D/C(%/year)	ダム湖流出率： E/D(%)
2013	784,000	74,300	0.20	9.5
2014	573,000	47,300	0.15	8.3
2015	1,793,000	267,000	0.46	14.9

図-8 大柿ダムの流域とダム湖のCs-137の動態（農林水産省調査資料より作成。2015年は、9月の記録的豪雨時に過去2カ年の年間値のDは2~3倍、Eは1.4~1.7倍であった。）

ダム湖の溶存態のCs濃度はほぼ1Bq/l以下で低い。流入するCsの形態は、ほとんどが浮遊する土粒子に固定された懸濁態であり、さらに大部分が豪雨時に流入する。2015年9月の記録的豪雨では、著しく増加した流量で過去2年分に相当する懸濁態Csが流入した。ダム湖から流出するCs量（これもほとんど懸濁態）は流入量の8~15%（2013年9月豪雨時を除けば10%以下）でほぼ90%はダムでトラップされており、下流へのCs拡散を防ぐダムの効果は大きい。

では、量的に多くはないが、流域から河川流出しているCsは、どこから来たのであろうか。流域の大半を占める森林から流出していると考えるのが普通であろう。しかし、Csが土壌表層5cm程度の限られた層に固定されてほとんど移動せず、林地内での土壌侵食はまれであることを考えれば、著者は、林地内部からの流出は事実上ゼロで、主要な流出源は、通常は水の流がなく豪雨時にのみ水流に没する河川敷や森林内の流路で、2011年3月に河川敷や流路内に沈着して土砂に固定されたCsが豪雨時に河道内を移動しているのではないかと考える。さらに、河川に沿って走る道路のアスファルト表面から2011年の沈着直後に側溝を通して河川に流出したCsも加わっているはずである。この仮説を検証するために、著者らは河川敷内の横断方向のCs表面濃度分布を調べ、河川敷に沈着

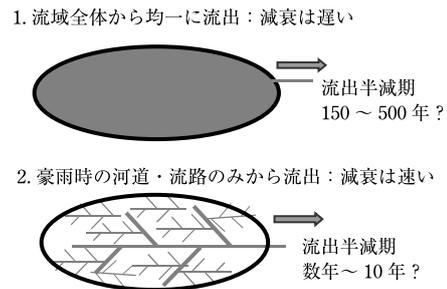


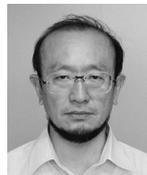
図-9 森林流域からのCsの流出形態と減衰速度（著者は下図(2)だと考える。いずれにしても、流域に沈着したCsはほとんど流出せず自然崩壊する。）

したCsが豪雨時に移動・堆積しながら下流に移動していることを示す濃度分布を得ている。もし、河川に流出しているCsが流域全体から確率的に均一に流出しているとするれば、年間流出量が存在量に比例するとして、存在量の1/200~1/700の年間流出であるから、流出半減期は150~500年である（図-9）。しかし、豪雨時に流路となる限られた面積に沈着したCsのみが流出していると仮定すれば流出量の減衰ははるかに速く、仮にこの流出面積を流域の1/50とすれば、流出半減期は数年~10年である。著者の予測は後者である。

引用文献

- 1) Shiozawa, S. : Vertical migration of radiocesium fallout in soil in Fukushima, in "Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident, ed. Nakanishi, T. and Tanoi, K.", Springer, pp.49~60 (2013)
- 2) 塩沢 昌：放射性セシウムの土壤中の挙動、水稲への移行、水系への流出 放射能除染の土壌科学—森・田・畑から家庭菜園まで—, 日本学術協財団, pp.64~94 (2013)
- 3) 東北農政局：大柿ダムにおける放射性セシウム調査結果について, [http://www.maff.go.jp/tohoku/osirase/higai\\_taisaku/hukkou/151030\\_torimatome\\_oo.html](http://www.maff.go.jp/tohoku/osirase/higai_taisaku/hukkou/151030_torimatome_oo.html) [2016.5.10.受理]

塩沢 昌 (正会員)



略 歴

1979年 東京大学大学院修士課程修了  
 1980年 山形大学農学部助手  
 1986年 東京大学農学部助手  
 1995年 筑波大学農林工学系助教授  
 2001年 東京大学大学院農学生命科学研究科助教授  
 2004年 同教授  
 現在に至る