

森林の土壌性状が放射性セシウムの地下浸透に及ぼす影響に関する分析

森 芳友^{1*}、米田 稔¹、島田 洋子¹、福谷 哲²、池上 麻衣子²、下村 遼平¹

¹ 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻 (〒615-8540 京都府京都市西京区京都大学桂 C クラスター)

² 京都大学原子炉実験所 (〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目)

Analysis on the Influence of Forest Soil Characteristics on Radioactive Cs Infiltration

Yoshitomo MORI^{1*}, Minoru YONEDA¹, Yoko SHIMADA¹, Satoshi FUKUTANI²,
Maiko IKEGAMI², and Ryohei SHIMOMURA¹

¹Graduate School of Urban and Environment Engineering, Kyoto University
(Kyoto-daigaku-katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8540, Japan)

²Kyoto University Research Reactor Institute
(2, Asashiro-Nishi, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan)

Summary

Soil core (0-5 cm and 5-10 cm) was collected in 5 points with different vegetation in Fukushima Prefecture in order to explore the permeability, field capacity and voidage. Depth profiles of radioactive Cs, ignition loss and CEC (Cation Exchange Capacity) in the 5 forest soils were also investigated, using scraper plate (at 0.5 cm intervals for 0-5 cm and at 1.0 cm intervals for 5-10 cm). Depth profiles in soil layers were totally different between forests and did not show explicit correlation with field capacity, voidage or ignition loss. On the other hand, CEC correlated weakly and permeability did strongly with infiltration of radioactive Cs. Compartment modeling was conducted, so as to reproduce the monitored depth profile, taking ignition loss as a parameter, based on the experiment result that ignition loss had positive correlation with CEC, which might influence the adsorption process on radioactive Cs in soil layer. However, the ignition loss alone failed to fully reproduce the depth profile. Considering the present results as well as the fact that permeability might have explicit relation with infiltration of radioactive Cs, factors related with precipitation or water flow in early stage after the accident could influence the depth profile, before adsorbed with negative charge in soil particles.

Key Words: Infiltration of radioactive Cs, Characteristics of soil layer in forests, Compartment model

1. はじめに

福島第一原子力発電所の事故に伴って放出された放射性物質については、森林を含め、様々な対象物について、除染関係ガイドライン(平成 25 年 5 月(第 2 版))等に基づき除染が行われている。このうち、広大な面積を占める森林については、主に林縁から 20 m の範囲内で、落葉等の堆積有機物の除去等が行われてきており、里山再生モデル事業等を通じて、森林全体における放射性物質対策は長期的な視点に立って引き続き進められていくものと考えられる¹⁾。

環境中に沈着した放射性セシウムは、時間の経過とともに土壌中の負電荷によって強く吸着される形態へと変化し、土壌中で粘土鉱物に強固に捕捉された形態で存在している割合が多いことは広く知られているが^{2,3)}、既に報告した研究⁴⁾において見られた、森林土壌中においても、樹種が異なる場所によってその浸透の程度に差が生じるという現象の理由や放射性セシウムの浸透に関する詳細なメカニズムについては明確になっていない。本研究ではまずは卓越する樹種が異なる森林の土壌の様々な性状を調査し、放射性セシウムの浸透との関係を分析す

*Corresponding author: E-mail: mori@risk.env.kyoto-u.ac.jp

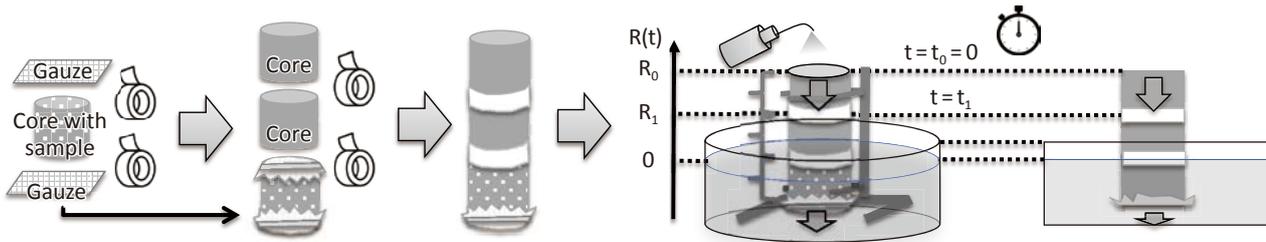


Fig.1 Outline of permeability experiment

るとともに、土壌層中に含まれる有機物量を示す指標である強熱減量をパラメータとして、コンパートメントモデルにより放射性セシウムの濃度分布を再現する試みを行った。これにより、放射性セシウムの動態に及ぼす要因の一端が明らかになれば、樹種や土壌の性質が異なる森林ごとに、より効率的な除染を含めた、効果的な放射性物質対策を検討するために有益な情報が提供されることが期待される。

2. 方法

(1) 飽和透水係数、圃場含水量、空隙率の測定

福島県内の森林5地点(カラマツ林、アカマツ林、広葉樹林(混交林)、スギ林、ヒノキ林)において、堆積有機物層を除去した後、100 cc 試料円筒管(直径:5 cm、高さ:5 cm)を採土補助器にセットし、ハンマーで試料円筒管を土壌に打ち込むことにより、土壌試料を2層(0-5 cm及び5-10 cm)採取した。

実験室内において、採取した試料円筒管の上下にガーゼを貼付した後、当該試料円筒管の上に土壌が入っていない試料円筒管を2つ取り付けた。

採取土を水に1時間浸漬した後、カラムの一番上まで水を入れ、試料円筒管1つ分の長さ(L)を水面が下がる時間(t_1)を3回測定した(Fig.1)。その後、土壌が入っていない2つの試料円筒管を取り外し、土壌が入った試料円筒管の重量を測定した。その後、水が抜けにくならないように留意しながら24時間静置した後、再び重量を測定した。

次に、土壌を磁皿に移した後、磁皿を恒温槽に移し、絶対乾燥(105°C、24時間)させた後に重量を測定した。

以上の実験を踏まえて、飽和透水係数、圃場含水量、空隙率を式(1)、式(2)及び式(3)のとおり算定した。

飽和透水係数は式(1)で現され、土壌等の水の流速の大きさを示す指標で、流水による放射性セシウムの浸透性を評価するために分析を行った。

$$K_s = L/t_1 \ln(R_1/R_0) \dots \dots \dots (1)$$

ここで、

K_s : 飽和透水係数(cm s^{-1})

t_1 : 試料円筒管1つ分の長さを水面が下がる時間(s)
 L : 試料円筒管の長さ(cm) (= 5 cm)
 R : 水槽の水面からの高さ(cm) ($R_0 = 10 \text{ cm}$, $R_1 = 5 \text{ cm}$)
 である。

圃場含水量は式(2)で現され、土壌等の水分が飽和状態に達した後、重力水が排除され、含有される水の下降運動が極めて少なくなった際の水分量であり、当該土壌等が重力に反して保持できる水分量と放射性セシウムの浸透性との関係性を評価するために分析を行った。

$$K_w = (W_1 - W_2 - W_3) / (V_s + V_w) \dots \dots \dots (2)$$

ここで、

- W_1 : 水に浸漬後24時間静置した後の重量(g)
- W_2 : 試料円筒管、ガーゼ及びテープの重量(g)
- W_3 : 絶対乾燥後の試料重量(g)
- W_4 : 水に1時間浸漬した後の重量(g)
- V_s : 土の容積(cm^3) = W_3/D_s
- V_w : 水の容積(cm^3) = $(W_4 - W_2 - W_3)/D_w$
- D_s : 土の密度(g cm^{-3}) (= 2.6 g cm^{-3})
- D_w : 水の密度(g cm^{-3}) (= 1.0 g cm^{-3})

である。

なお、土の密度は土質によって異なるが、有機質土等を除くと、概ね2.5~2.7 g cm^{-3} となっており⁵⁾、本研究においてはおよそその中央値である2.6 g cm^{-3} を用いた。

空隙率は式(3)で現され、土壌等の単位体積当たりの空隙の割合を示したものであり、当該土壌等中の空隙の割合と放射性セシウムの浸透性との関係性を評価するために分析を行った。

$$K_v = V_w / (V_s + V_w) \dots \dots \dots (3)$$

(2) 各樹種が卓越する森林における放射性セシウムの浸透状況及び強熱減量等の測定

福島県内の森林5地点において、(1)において示した各樹種

の放射性セシウムの浸透の程度を調査した。具体的には、スクレーパープレートを用いて、堆積有機物層3層(L層、F層、H層)と、土壌層を15層(0-5 cmは0.5 cmごと、5-10 cmは1 cmごと)採取した。採取した土壌はU8容器に入れた後、ゲルマニウム半導体検出器(ORTEC GMX-30190)により放射能を測定した。なお、各層の放射能濃度は2015年10月1日時点で補正している。

ここで、L層は最表層に位置し、ほとんど未分解の落葉、落枝や草本などの遺体からなる層である。F層は土壌動物や土壌微生物によって破碎され、植物遺体の原形は失われ、質的にも変化しているが、肉眼で元の植物遺体の組織が認められる程度の分解段階にある層である。H層はさらに分解が進み、肉眼では元の組織が判別できないくらいになったもので、乾性型の土壌では粉状に、湿性型の土壌では脂肪状になって質的にも大きく変化している層である⁶⁾。

放射能を測定した土壌等のうち、堆積有機物層は約7 g程度(採取した量が約7 gに満たない場合は全量)を、土壌層は約12 g程度をデシケータ内で約72時間乾燥させた後に重量を測定して風乾重量とした。

その後、堆積有機物層のうち、L層及びF層以外の土壌等を孔径2 mmのふるいにかかけ、通過しなかった土壌等はすり鉢で粉碎した後に再度ふるいにかかけた。ふるいを通過した土壌等を105°Cで24時間絶対乾燥させた後に重量を測定し、重量の変化から含水率を求めた。また、絶対乾燥させた土壌等はプログラム温度調節器(ISUZU, VTDS-16R)により、700~800°Cで1時間燃焼させた後に重量を測定し、強熱減量を求めた。

強熱減量は単位土壌等中当たりの、有機物を中心とする揮発性物質の割合であり、当該土壌等中の有機物等の含有量と放射性セシウムの浸透性との関係を分析するために測定した。

横軸に放射性セシウムの放射能濃度($Bq\ kg^{-1}$)、縦軸に重量深度($g\ cm^{-2}$)にとった深度分布を作成した場合、地表面からの重量深度に対して指数関数的に減少することが知られていることから、放射性セシウムの浸透の程度を評価するため、式(4)に示す指数関数に基づき重量緩衝深度 $\beta(g\ cm^{-2})$ を求めた⁷⁾。ただし、放射性セシウムが浸透し、ある深さにピークを持つ深度分布を式(4)で評価した場合、重量緩衝深度を過大に評価してしまうため、堆積有機物層及び土壌層のデータを用いて放射能濃度と深度との関係を分析する場合には、式(5)に示す双曲線正割関数に基づく近似式⁸⁾を用いて重量緩衝深度を求めた。 β 値が大きいほど、放射性セシウムが鉛直方向に浸透していることを示している。

ここで、 $\zeta(g\ cm^{-2})$ は重量深度、 $A_m(\zeta)(Bq\ kg^{-1})$ は重量深度 $\zeta(g\ cm^{-2})$ における放射能濃度、 $A_{m,0}(Bq\ kg^{-1})$ は地表面における放射能濃度、 $\zeta_0(g\ cm^{-2})$ は放射能濃度が最大となる重量深度である。

$$A_m(\zeta) = A_{m,0} \exp(-\zeta/\beta) \dots\dots\dots (4)$$

$$A_m(\zeta) = (A_{m,0}/2) \cosh(\zeta_0/\beta) \operatorname{sech}(-(\zeta-\zeta_0)/\beta) \dots\dots\dots (5)$$

$A_{m,0}$ 、 ζ_0 、及び β は調査で得られた深度分布を基に、Microsoft Office Excel のソルバー機能を用いて、最小二乗法により算出した。

(3) 陽イオン交換容量の測定

陽イオン交換容量は、一般的に負電荷が卓越している堆積有機物や土壌中の腐植物質や粘土において、陰イオンと交換される陽イオンの量であり、単位質量(通常100 g)あたりのミリグラム当量数(meq)で現される。水に溶けると陽イオンとして存在している放射性セシウムの浸透にも影響を及ぼしている可能性があるため、放射性セシウムの深度分布との関係を分析するために、各土壌における陽イオン交換容量を測定した。

(1)において示した各樹種の土壌層0-5 cm及び5-10 cmの陽イオン交換容量を、村本ら⁹⁾によって提案された迅速分析法を用いて測定した。具体的には、15層の土壌を約1週間デシケータ内で乾燥させた後に、孔径2 mmのふるいにかかけた。ふるいを通過した土壌を、0-5 cmの10層に関してはそれぞれ1 gずつ、5-10 cmの5層に関してはそれぞれ2 gずつ採り、0-5 cmと5-10 cmの2種類の混合土壌をそれぞれ10 g作成した。作成した混合土壌のうち2 gを試料として、50 ml遠沈管に移した。

そして、遠沈管内の土壌にpH 7、1M酢酸アンモニウムを30 ml加え、振とう器で15分間振とうした。振とう後、遠心分離にかかけ、上澄み液を捨てた。2回目以降の振とう方法を手による30秒の強振に変えて、この操作を計3回行った。

次に、遠沈管に80%メタノール溶液を20 ml加え、手で30秒間強振した後に、遠心分離にかけて、上澄み液を捨てた。この操作をさらに2回繰り返した。

そして、土壌に吸着されたアンモニウムイオンを浸出するために、遠沈管に10%塩化カリウムを30 ml加え、振とう器によって15分間振とうし、遠心分離後に上澄み液を0.45 μm フィルター濾紙によって濾過した。この操作をさらに2回行った。ただし、2回目以降の振とう方法として、手による30秒の強振を行った。そして、濾液をメスシリンダーに集め、10%KClで100 mlにメスアップした。この溶液のアンモニア性窒素濃度を、アンモニア性窒素メーター(セントラル科学株式会社、AT-2000)によって測定し、陽イオン交換容量を算出した。

(4) コンパートメントモデルによる土壌中の放射性物質濃度分布の再現

一般的に、放射性セシウムを含む物質の鉛直方向への浸透については、移流拡散方程式や遅延係数により現されるが、放射性セシウムの堆積有機物層内と土壌層内における浸透の

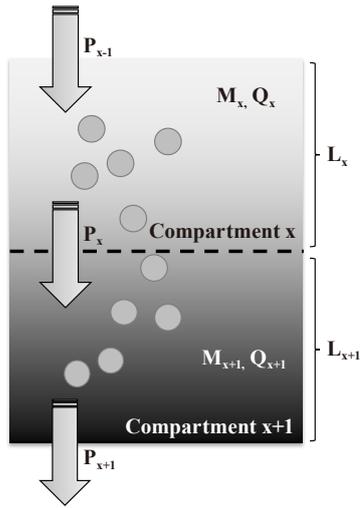


Fig.2 Concept of compartment model

挙動は異なっており、また浸透量等に影響を及ぼす因子については詳細には明らかになっていない。このため、堆積有機物層中の各層(L層、F層、H層)及び土壌層中の各層(0-5 cmは0.5 cmごと、5-10 cmは1 cmごと)をコンパートメントとして捉え、各層中の放射能(\$M_x\$)は、式(6)に基づき、上層の放射性セシウム濃度と移行係数の積としての流入と、当該層の濃度と移行係数の積としての流出で変化すると仮定した(Fig.2)。この際、2. (2)及び(3)の実験により、強熱減量と陽イオン交換容量との間に正の相関関係が示唆されたことから、各樹種の各層(堆積有機物層を含む)の放射能の、重量深度別の深度分布について、移行係数(P)と強熱減量(Q)との間に式(7)及び式(8)のような負の相関があると仮定した。

$$M_x(t+1) = M_x(t) + M_{x-1}(t) * P_{x-1} / L_{x-1} - M_x(t) * P_x / L_x \dots (6)$$

$$P = aQ^{-1} + b \dots (7)$$

$$P = aQ^{-b} \dots (8)$$

ここで、\$M_x\$、\$P_x\$、\$L_x\$はそれぞれ層xにおける放射能(Bq)、移行係数、層の厚さ(cm)である。これらの式を基に各層の放射能を算定し、実測値の対数値と、計算値の対数値との誤差の和が最小になるよう、Microsoft Office ExcelのVBAを活用して、式(7)及び式(8)中のa及びbを算出した。

なお、事故前から土壌等中に存在した放射性セシウムの放射能濃度については、環境放射線データベース¹⁰⁾を活用し、2010年6月に採取した草地土壌(福島市)の放射能濃度である22 Bq kg⁻¹を用いた。

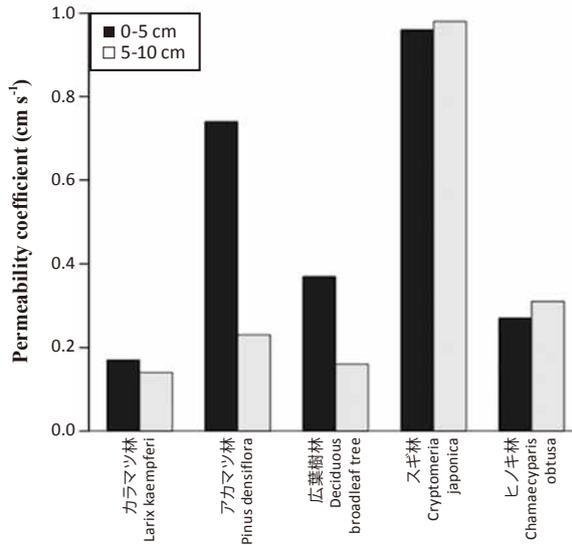


Fig.3-1 Permeability coefficient of each forest soil

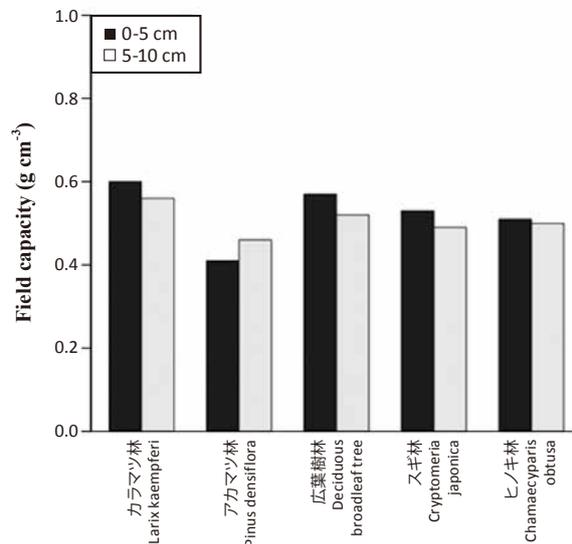


Fig.3-2 Field capacity of each forest soil

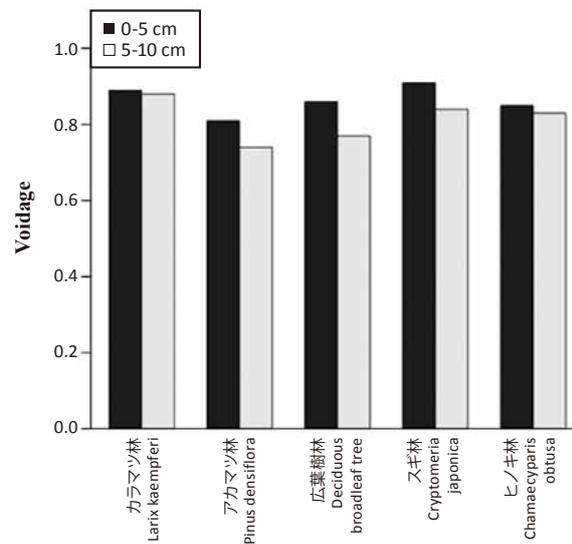


Fig.3-3 Voidage of each forest soil

3. 結果及び考察

(1) 飽和透水係数、圃場容水量、空隙率の測定

各地点の土壤層の飽和透水係数、圃場容水量、空隙率をそれぞれFig.3-1、Fig.3-2及びFig.3-3及びTable 1に示した。

飽和透水係数については、樹種ごとに大きな違いがあり、最も大きいスギ林では 0.96 cm s^{-1} (0-5 cm)、 0.98 cm s^{-1} (5-10 cm) であり、アカマツ林で 0.74 cm s^{-1} (0-5 cm)、 0.23 cm s^{-1} (5-10 cm)、広葉樹林で 0.37 cm s^{-1} (0-5 cm)、 0.16 cm s^{-1} (5-10 cm)、ヒノキ林で 0.27 cm s^{-1} (0-5 cm)、 0.31 cm s^{-1} (5-10 cm)、最も小さいカラマツ林では 0.17 cm s^{-1} (0-5 cm)、 0.14 cm s^{-1} (5-10 cm) であった。圃場容水量は、アカマツ林を除いては 0-5 cm よりも 5-10 cm の方が小さく、また、アカマツ林で 0.41 g cm^{-3} (0-5 cm)、 0.46 g cm^{-3} (5-10 cm) と、他の樹種の土壤と比較して若干小さかったものの、他の樹種では概ね $0.50 \text{ g cm}^{-3} \sim 0.60 \text{ g cm}^{-3}$ と、余り樹種間での差はなかった。

空隙率はいずれの樹種の土壤でも 0-5 cm よりも 5-10 cm の方が小さかった。また、値は約 74～91% と、どの樹種も大きく、樹種間での大きな差は見られなかった。

過去の調査において、各樹種が卓越する森林土壤の透水性 (Percolation rate) について、スギ林で 209 cc min^{-1} (0-5 cm)、 128 cc min^{-1} (20-25 cm)、アカマツ林で 149 cc min^{-1} (0-5 cm)、 83 cc min^{-1} (20-25 cm)、広葉樹天然生林で 128 cc min^{-1} (0-5 cm)、 81 cc min^{-1} (20-25 cm)、カラマツ林で 91 cc min^{-1} (0-5 cm)、 48 cc min^{-1} (20-25 cm) との報告もあり¹⁾、当該報告の中で分析がされていないヒノキ林を除いては、本研究における透水係数と同様の傾向を示していた。また、同報告において、孔隙率について、スギ林で 70.8% (0-5 cm)、67.4% (20-25 cm)、アカマツ林で 74.5% (0-5 cm)、66.9%

(20-25 cm)、広葉樹天然生林で 76.9% (0-5 cm)、63.2% (20-25 cm)、カラマツ林で 68.6% (0-5 cm)、68.2% (20-25 cm) となっており、樹種間の空隙率について、透水性ほどの大きな差がない点についても、本研究の結果と同様の結果となった。

(2) 各樹種の土壤における放射性セシウムの浸透状況及び強熱減量等の測定

各樹種が卓越する森林における土壤層における放射性セシウムの深度分布をFig.4-1～Fig.4-5に示した。なお、各森林において1箇所のみを試料採取を行っており、樹種と土壤性状との関連性については、より多くの試料を用いた分析を行う必要がある。Fig.4-1～Fig.4-5の縦軸は各層の風乾後の重量深度 (g cm^{-2})、横軸は放射性セシウムの濃度 (Bq kg^{-1}) であり、図中の近似曲線は式(4)によるフィッティングを行ったものである。一般的に、地表面からの重量深度に対して指数関数的に減少することが知られており、本分析においても、カラマツ林、広葉樹林、スギ林においては、近似曲線と実測値が比較的整合しているが、アカマツ林及びヒノキ林においては乖離がある箇所が見られる。他の森林と比較すると、特に土壤層深部の濃度が、浅部と比較して余り減少せず、式(4)の想定と比較すると深部でも高濃度を維持していることを示している。後述するように、強熱減量で現される有機物の含有量等が放射性セシウムの浸透に影響を及ぼしている可能性もあるが、土壤性状と浸透との関係に関するより詳細な分析が必要と考えられる。

放射性セシウムの濃度は堆積有機物層についても分析しているが、3. (1)に示した土壤試料の分析結果との比較のため、土壤のみの深度分布と β 値を示している。 β 値が大きいほど、放射性セシウムが地中深部まで浸透していることを現しており、スギ林が最も土壤層の深部まで浸透しており ($\beta = 2.09 \text{ g}$

Table 1 Transfer coefficient and soil characteristics in each forest with different types of vegetation

		Larix kaempferi	Pinus densiflora	Deciduous broadleaf tree	Cryptomeria japonica	Chamaecyparis obtusa	
Transfer coefficient	$P=aQ^{-1}+b$	a	0.1138	0.3076	0.025	0.0114	0.0521
		b	-0.0997	-0.2026	0.0317	0.1024	-0.0208
	$P=aQ^{-b}$	a	0.0222	0.1119	0.0555	0.1139	0.0222
		b	2.4831	1.6202	0.6283	0.1787	1.7381
Permeability coefficient (cm s^{-1})	0-5 (cm)	0.17	0.74	0.37	0.96	0.27	
	5-10 (cm)	0.14	0.23	0.16	0.98	0.31	
Field capacity (g cm^{-3})	0-5 (cm)	0.6	0.41	0.57	0.53	0.51	
	5-10 (cm)	0.56	0.46	0.52	0.49	0.5	
Voidage	0-5 (cm)	0.89	0.81	0.86	0.91	0.85	
	5-10 (cm)	0.88	0.74	0.77	0.84	0.83	
CEC ($\text{meq (100g}^{-1})$)	0-5 (cm)	43	48	28	39	57	
	5-10 (cm)	52	23	16	23	42	

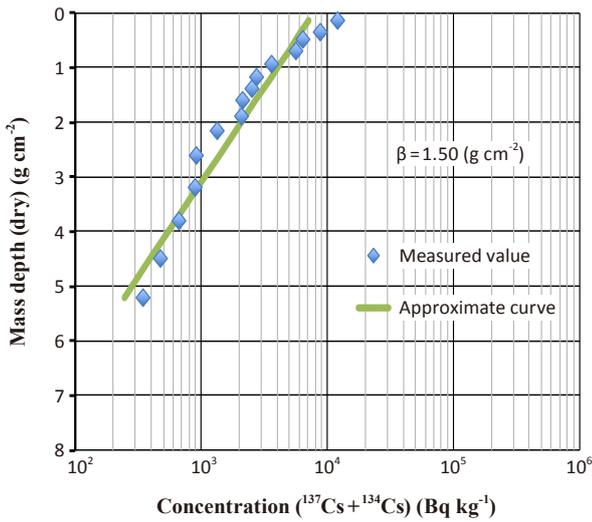


Fig.4-1 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (*Larix kaempferi*) (カラマツ林)

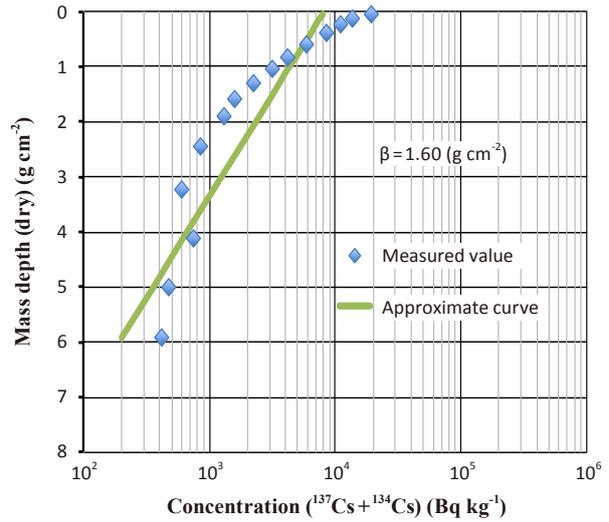


Fig.4-2 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (*Pinus densiflora*) (アカマツ林)

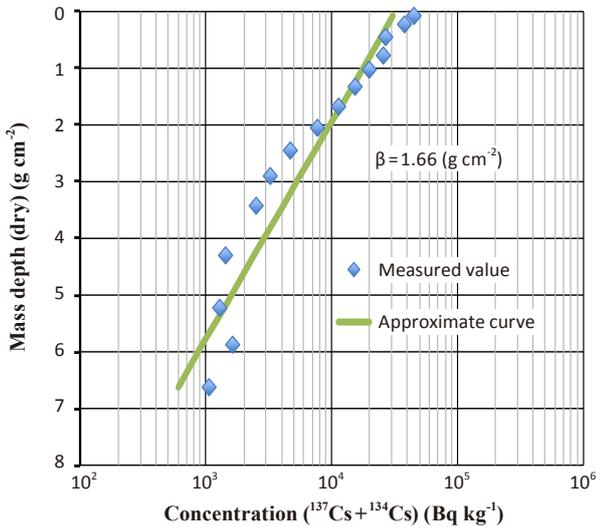


Fig.4-3 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (Deciduous broadleaf tree) (広葉樹林)

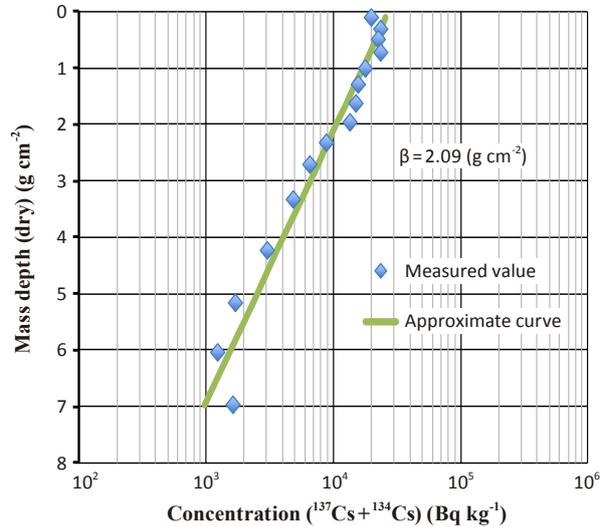


Fig.4-4 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (*Cryptomeria japonica*) (スギ林)

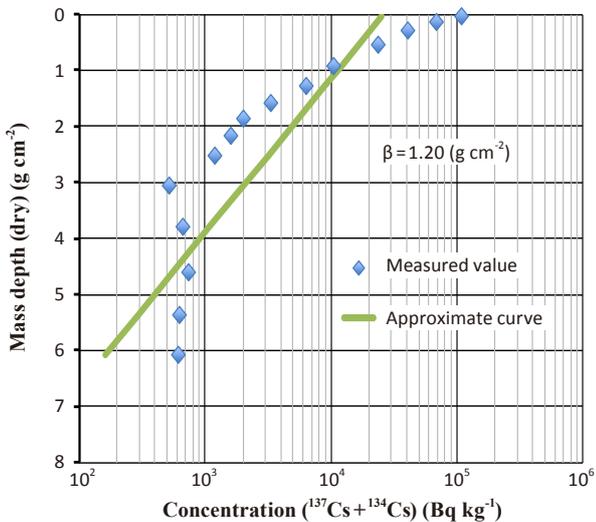


Fig.4-5 Depth profile of radioactive Cs with mass depth (*Chamaecyparis obtusa*) (ヒノキ林)

cm⁻²、ヒノキ林で最も土壌表層にとどまっていた ($\beta = 1.20 \text{ g cm}^{-2}$)。

また、各樹種における強熱減量 (堆積有機物層を含む) を Fig.5 に示した。横軸中の L、F、H については、2. (2) に示した堆積有機物層における L 層、F 層、H 層と同義である。各樹種ともに、最上部の L 層が 0.9 以上で、下層にかけて強熱減量が減少する傾向は共通しているが、減少の仕方については樹種ごとに差があった。全体的に最も強熱減量大きい傾向にあったカラマツ林では最下部の 9.0 - 10.0 cm の層でも約 0.4 であったのに対して、最も小さい傾向にあった広葉樹林では約 0.1 と、その差は大きかった。地点ごとの強熱減量の差の原因については、含水率が高く、過湿のために有機物の分解が促進されず、有機物含有量が高くなることなどが考えられている¹²⁾が、本研究における現地調査地点における含水率

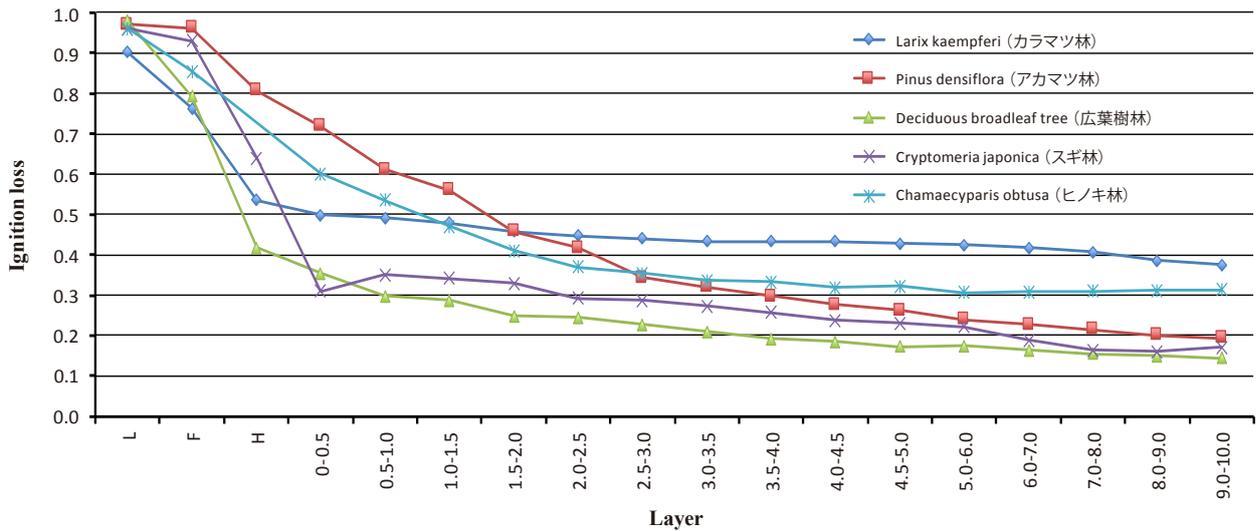


Fig.5 Ignition loss in each forest with different vegetation

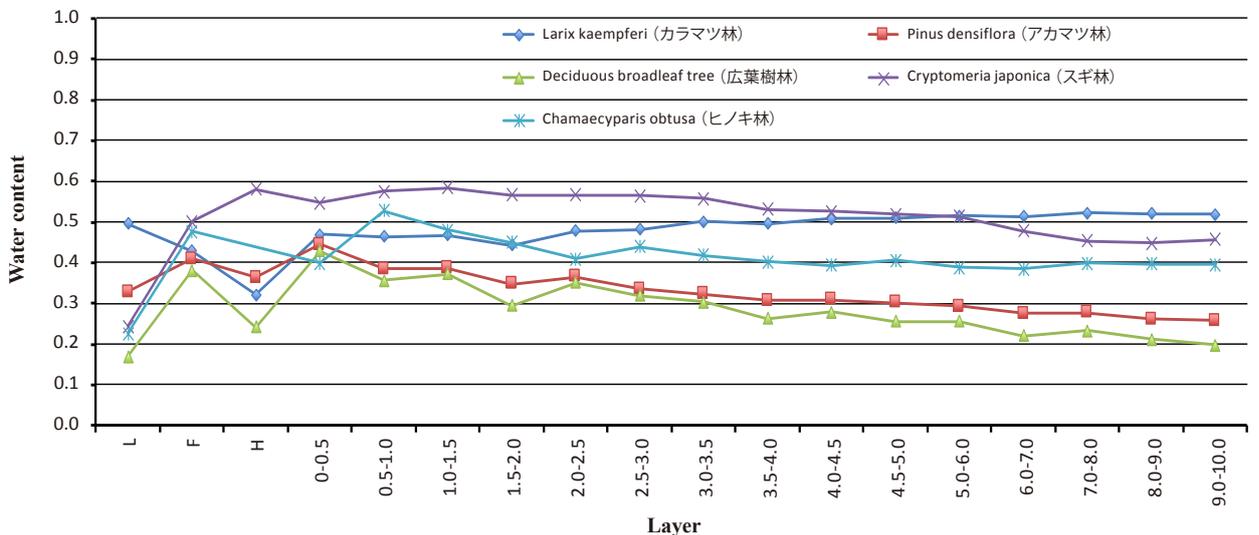


Fig.6 Water content in each forest with different vegetation

(Fig.6)については、強熱減量が深部まで比較的高かったカラマツ林やヒノキ林については、深部まで含水率が高く、深部では強熱減量が低かった広葉樹林やアカマツ林では、深部では含水率が低いなど、スギ林を除いて同様の傾向が観察されており、含水率が有機物含有量に影響している可能性が示唆された。

(3) 陽イオン交換容量の測定

陽イオン交換容量の測定の結果、カラマツ林を除き、上層(0-5 cm)よりも下層(5-10 cm)の方が陽イオン交換容量が大きくなった。また、樹種別に見た場合、ヒノキ林(0-5 cm及び5-10 cmの平均値:49 meq(100g)⁻¹、この段落において以下同じ。)やカラマツ林(48 meq(100g)⁻¹)で大きく、その後、アカマツ林(36 meq(100g)⁻¹)、スギ林(31 meq(100g)⁻¹)、

広葉樹林(22 meq(100g)⁻¹)の順に小さくなる結果となった(Fig.7)。陽イオン交換容量は土壌等中の負電荷量の指標であるが、保肥力や腐植量との関係もあるともされており¹³⁾、今回の実験においても、カラマツ林を除いて、0-5 cmの土壌層の方が陽イオン交換容量は大きい値となったのは、上部から供給される有機物により腐植量が大きくなっていることが原因である可能性が考えられる。また、河川の底土において、陽イオン交換容量と強熱減量との間に強い正の相関があったとの報告^{14,15)}はあったが、本研究においても、陽イオン交換容量と強熱減量との関係について、強い正の相関が確認され(Fig.8)、森林土壌中に含まれる有機物量が多いほど、当該有機物で負電荷の主体となっているカルボキシ基も増加し、それに伴って陽イオン交換容量も大きくなっていることが示唆された。

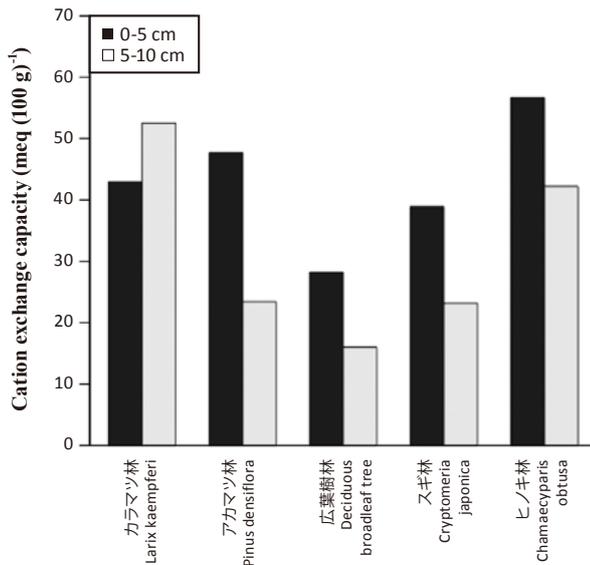


Fig.7 CEC of each vegetation soil

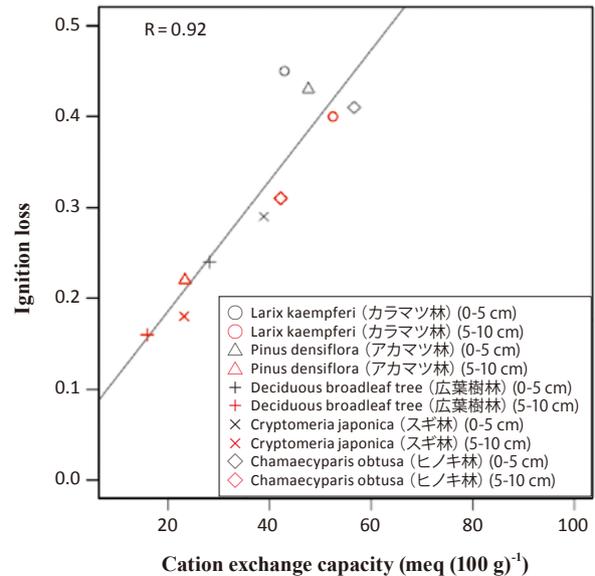


Fig.8 Correlation between CEC and Ignition loss vegetation

(4) 各樹種が卓越する森林土壌の性状と放射性セシウムの浸透との関係

各樹種が卓越する森林における土壌の性状と放射性セシウムの浸透状況との関係をFig.9-1 - Fig.9-4に示した。各図で使用した β 値は、Fig. 4-1 - Fig. 4-5で示した β 値である。飽和透水係数については β 値と強い正の相関が見られ、陽イオン交換容量については若干の正の相関が見られたが、圃場含水量及び空隙率については、重量緩衝深度との相関はなかった。

重力水が排除された後に、含有される水の量である圃場含水量や、単位堆積当たりの空隙の割合である空隙率と相関がなく、一方、土壌層が保有する陰イオンと交換できる陽イオンの量である陽イオン交換容量や、水の浸透のしやすさに関する指標である飽和透水係数と関連があるということは、放射性セシウムの浸透には、土壌等中の負電荷との電気的な吸着や脱着や、まだ放射性セシウムが溶存態である際の流水の動態が影響していることが示唆された。

事故により大気中に放出された放射性セシウムの形態については、事故発生後初期の段階に採取した降下物中において、水溶性放射性セシウムや、Fe、Zn、Csを含んだ、非水溶性の粒子という形態での放射性セシウムがあったとの報告¹⁶⁾、事故由来の放射性セシウムは硫酸エアロゾルの形態で降下したとの報告¹⁷⁾等があるが、いずれも水に溶けると、1価の陽イオン(Cs^+)となることが分かっている。

土壌中において Cs^+ は、① Cs^+ よりも Ca^{2+} などの他の陽イオンとの親和性が高く、一時的に Cs^+ を保持したとしても、容易に放出する負電荷、② Cs^+ を選択的に保持しやすいが、他のイオンとの競合により、 Cs^+ が放出される負電荷、③ Cs^+ を選

択的に固定し、一旦固定すると容易に放出しない負電荷の3種類に大別されるとする報告もある³⁾。③については、雲母類等の風化により、既に鉱物層の層間を占有していた K^+ が放出され、新たに出現した Cs^+ が吸着される余地が生じ、こうして入り込んだ Cs^+ により、再び鉱物層の間が閉じ、強固に固定されて簡単に放出されないとされている³⁾。この部位はフレイド・エッジ・サイト(FES)¹⁸⁾と呼ばれ、 Cs^+ に対する選択性が極めて高いことが知られている。水溶性の形態で沈着した放射性セシウムも、やがては Cs^+ 選択性のある負電荷によって強く吸着されていくが、FESが土壌中の陽イオン交換容量に占める割合は2%以下とされている¹⁹⁾。

また、事故に伴って大気中に放出された放射性セシウムが森林に降下する場合、降雨による湿性沈着や樹冠のフィルター効果による乾性沈着を経て、事故後1年という比較的短時間で、その大部分が枝、葉、幹といった地上部から、堆積有機物層、更には土壌層へと移行したことが分かっている²⁰⁾。また、チェルノブイリ事故の事例からも放射性セシウムが樹木の根からの吸収や生物への移行等を経て森林生態系内で循環していることも示唆されているが、森林のうちの地上部分に蓄積される放射性セシウムの量は温帯の場合、森林生態系全体の放射能の約5%とされ²¹⁾、地下部分への蓄積量と比較すると、地表面への新たな供給量は少ないものと考えられる。

以上を踏まえると、特に、事故直後の降雨等により、まだ放射性セシウムがFESに吸着される前段階での、降雨等による移動がその深度分布に影響を及ぼした可能性が考えられるが、更に、FESへのKの吸着しやすさに対する、放射性セシウムの吸着しやすさである選択係数と、FESの濃度との積で現され、放射性セシウムの土壌等への吸着されやすさを示す

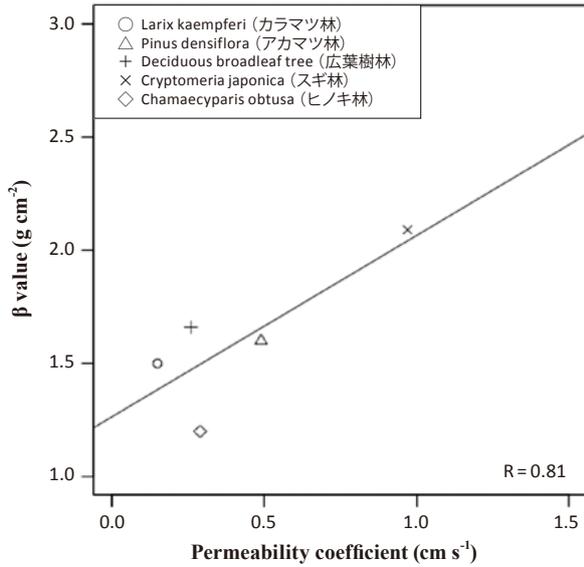


Fig.9-1 Correlation between permeability coefficient of each vegetation soil and β value

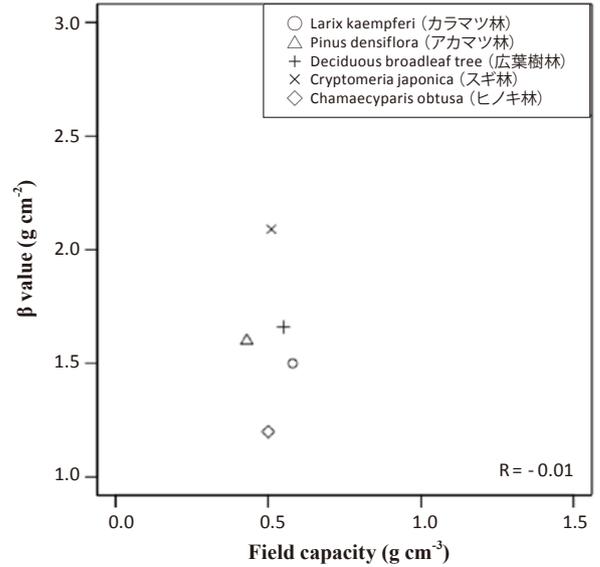


Fig.9-2 Correlation between field capacity of each vegetation soil and β value

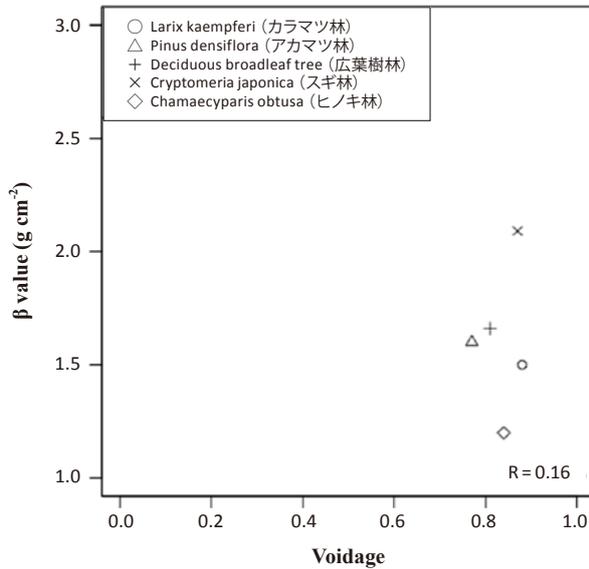


Fig.9-3 Correlation between voidage of each vegetation soil and β value

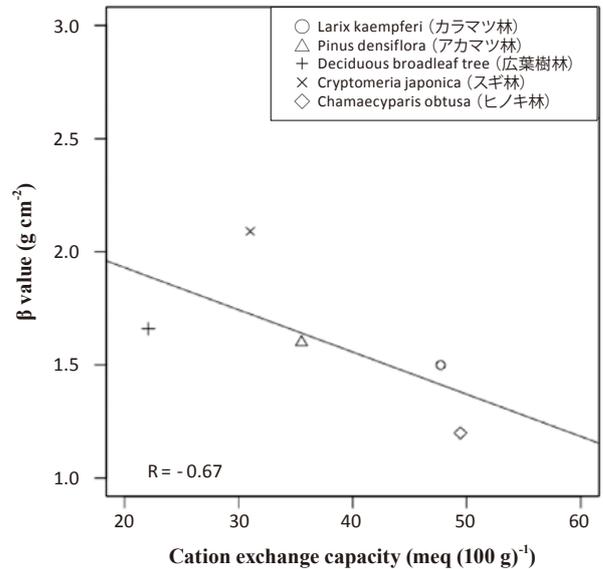


Fig.9-4 Correlation between CEC of each vegetation soil and β value

RIP (Radiocaesium Interception Potential) 値などの指標も更に分析していく必要がある²²⁾。

(5) コンパートメントモデルによる森林土壌等中の放射性物質濃度分布の再現

各樹種が卓越する森林内の堆積有機物層及び土壌層における、放射性セシウムの実測値、式(5)に基づく近似曲線及び強熱減量を基にしたコンパートメントモデルによって求めた計算値による深度分布をFig.10-1 - Fig.10-5 に示し、Microsoft Office Excel のVBAを活用して算出した、式(7)及び式(8)中のa及びbをTable 1 に示した。

アカマツ林のF層において、実測値と計算値とが5倍程度乖離した事例はあったものの、いずれの樹種においても、堆積有機物層、土壌層の双方について、実測値と計算値とで良い整合が見られた。ただし、土壌層の中位部(深度は概ね4-7 cm: 堆積有機物層を含めた重量深度は概ね2-5 g cm⁻²。以下同じ。)において、計算値が実測値よりも小さくなる傾向が見られた。

放射性セシウムが無機物中の負電荷に吸着されやすいという性質も考慮し、また、陽イオン交換容量と強熱減量との間に強い正の相関が見られたことから(Fig.8)、強熱減量を用いたモデルにより深度分布を再現できる可能性を検討した結果、

概ねいずれの樹種が卓越する森林においても、概ね実測値の良好な再現が可能であった。腐植物質の含有量が高い土壌でも、放射性セシウムの吸着への効果は限られているという報告^{23, 24)}もあるが、特にまだ放射性セシウムが溶存態やイオン交換態である状態においては、陽イオン交換容量が放射性セシウムの浸透に影響を及ぼしている可能性も示唆された。ただし、土壌層の中位部では実測値と計算値との間に誤差も見られたことから、放射性セシウムの浸透については、パラメータや、移行係数との関係を示す式の改良を行うとともに、引き続き、前述したRIP値など、放射性セシウムの吸着と関連する他の土壌指標との相関を調査する必要がある。

また、3. (1) で求めた、様々な土壌性状に関する値と、合わせて式(7)及び式(8)中のa及びbをTable.1に示したが、

両者の間には明確な相関は確認されなかった。

今後は、事故から間もない時期の動態が影響を及ぼした可能性があり、ラボ試験等により、初期の頃の動態に着目した研究を継続することや、徐々に表面から浸透していく放射性セシウムの、除染対象物の表面における残存状況を評価など、効果的な除染の実施に資する手法についても合わせて検討していくことが求められる。

4. 結論

既に報告した研究⁴⁾において、除染効果に放射性セシウムの浸透や堆積有機物層の状況が影響を及ぼしている可能性が示唆された。これらのうち、時間の経過とともに変化していく放射性セシウムの浸透に焦点を当てて、森林土壌の性状が浸

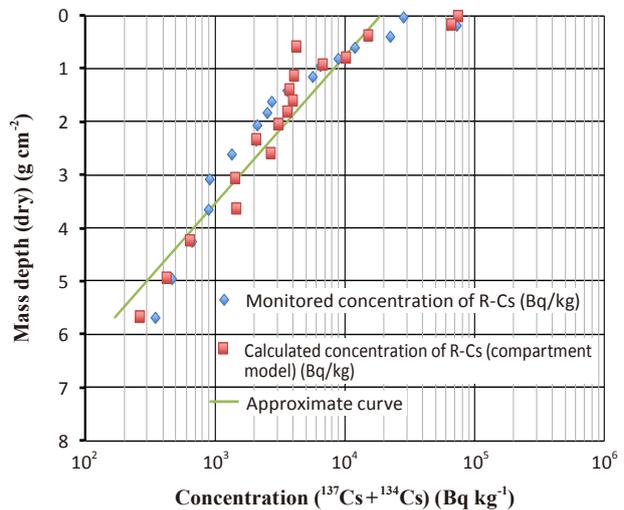
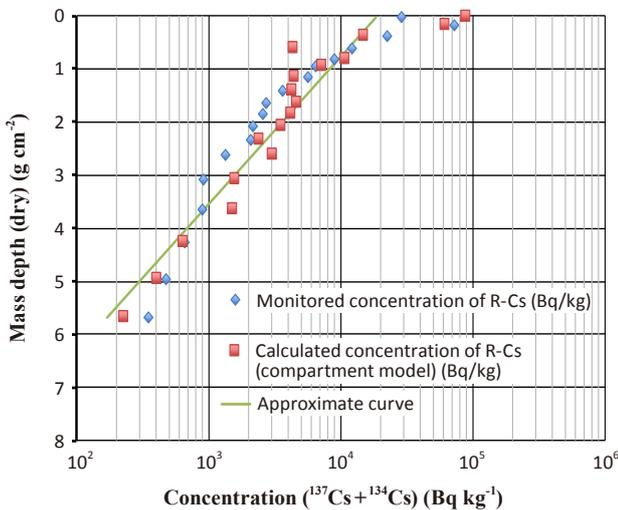


Fig.10-1 Mass depth profile of radioactive Cs in forest with *Larix kaempferi*, represented by monitored values, approximate curve, and values calculated by compartment model based on the ignition loss. In compartment modeling, transition coefficient (P) was assumed to be expressed by ignition loss (Q) through equation: $P=aQ^{-1}+b$ (left) and $P=aQ^{-b}$ (right).

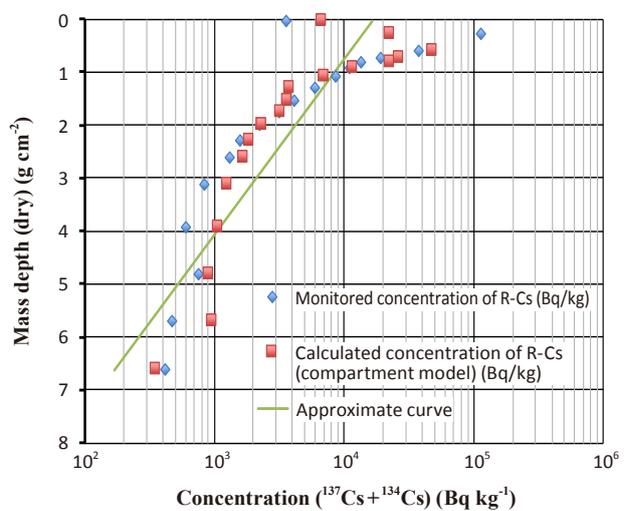
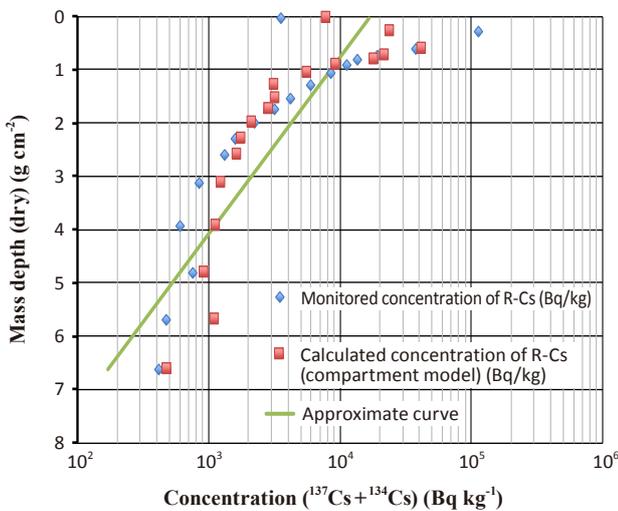


Fig.10-2 Mass depth profile of radioactive Cs in forest with *Pinus densiflora*, represented by monitored values, approximate curve, and values calculated by compartment model based on the ignition loss. In compartment modeling, transition coefficient (P) was assumed to be expressed by ignition loss (Q) through equation: $P=aQ^{-1}+b$ (left) and $P=aQ^{-b}$ (right).

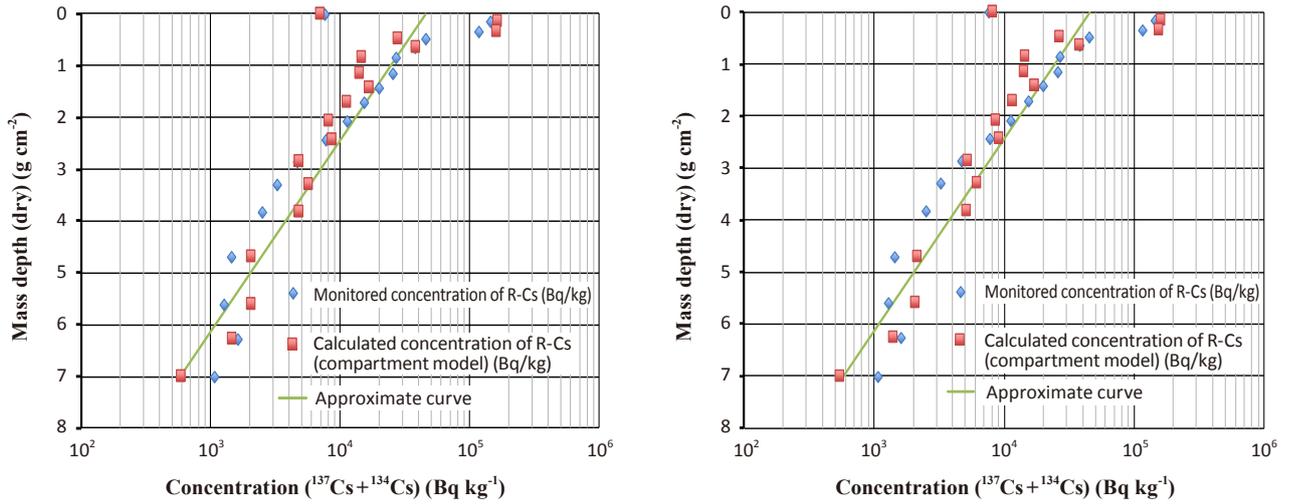


Fig.10-3 Mass depth profile of radioactive Cs in forest with Deciduous broadleaf tree, represented by monitored values, approximate curve, and values calculated by compartment model based on the ignition loss. In compartment modeling, transition coefficient (P) was assumed to be expressed by ignition loss (Q) through equation: $P=aQ^{-1}+b$ (left) and $P=aQ^{-b}$ (right).

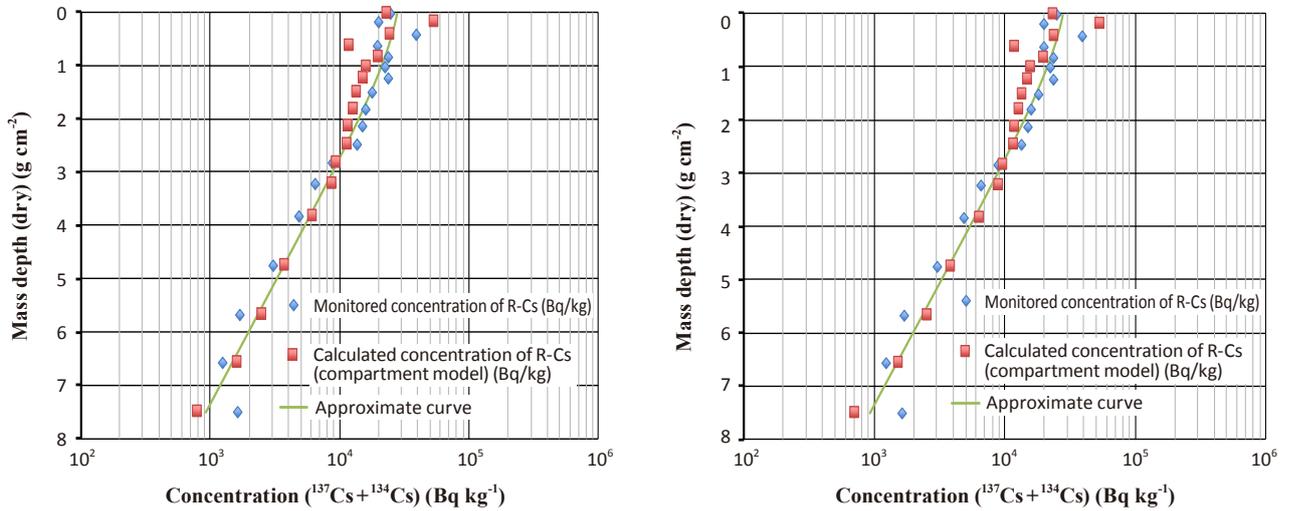


Fig.10-4 Mass depth profile of radioactive Cs in forest with *Cryptomeria japonica*, represented by monitored values, approximate curve, and values calculated by compartment model based on the ignition loss. In compartment modeling, transition coefficient (P) was assumed to be expressed by ignition loss (Q) through equation: $P=aQ^{-1}+b$ (left) and $P=aQ^{-b}$ (right).

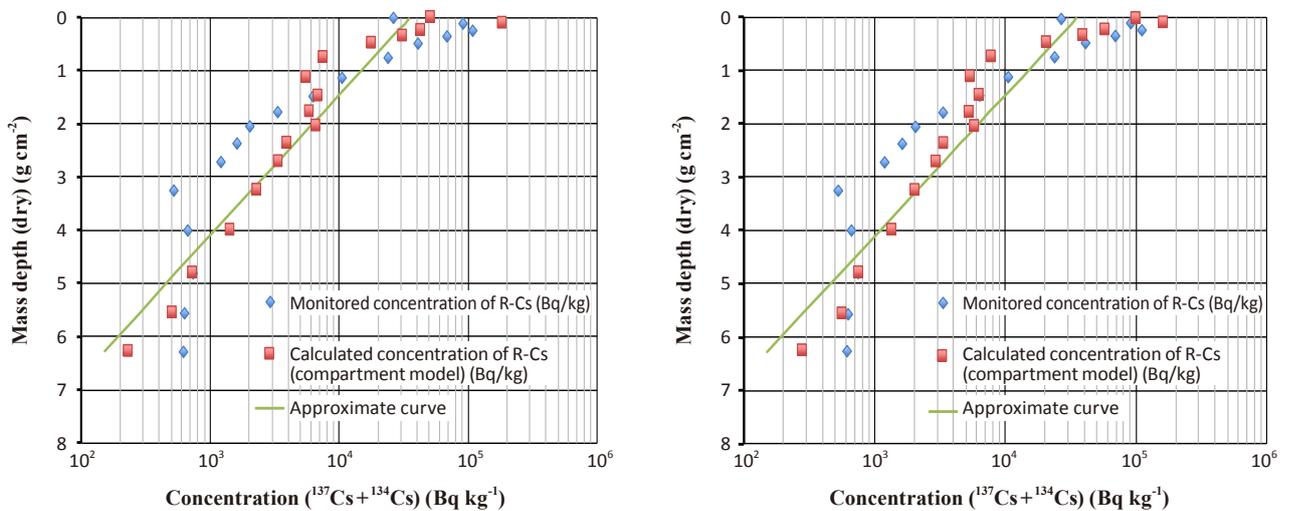


Fig.10-5 Mass depth profile of radioactive Cs in forest with *Chamaecyparis obtusa*, represented by monitored values, approximate curve, and values calculated by compartment model based on the ignition loss. In compartment modeling, transition coefficient (P) was assumed to be expressed by ignition loss (Q) through equation: $P=aQ^{-1}+b$ (left) and $P=aQ^{-b}$ (right).

透に及ぼす要因の分析を試みた。その結果、圃場含水量、空隙率との相関は余り見られず、陽イオン交換容量との若干の相関と、飽和透水係数との強い相関が見られた。

また、強熱減量と陽イオン交換容量との間に強い正の相関が見られたことから、強熱減量をパラメータとして、コンパートメントモデルにより、放射性セシウムの深度分布の再現性について分析した。その結果、いずれの樹種についても、一部の樹種の土壌層の中位部において、計算値と実測値との間に若干の乖離が見られたが、計算値は比較の実測値に近い値となった（ただし、一部実測値の再現ができていない部分もあることから、パラメータや移行係数との関係式の改良等が必要と考えられる）。

放射性セシウムは複数の形態で地上に沈着したと考えられるが、そのうち、水溶性の放射性セシウムも、時間の経過とともに土壌等の中の負電荷によって静電的に中程度の強さで吸着される交換態、そして、フレイド・エッジ・サイトと言われる、雲母類の風化により形成されるセシウムに対して極めて選択性の高いサイトに吸着され、固定態となっていくことが知られている。²⁵⁾

また、放射性セシウムの移動速度は年々遅くなるとされている²⁵⁾こと等も考慮すると、放射性セシウムは、地表面に沈着後、ほぼ一定の速度で浸透していくというよりは、沈着後初期で、特に溶存態である時期に、強度の降雨等といった、比較的短時間に起こる現象により、土壌中の負電荷の影響も若干受けながら、鉛直方向に浸透し、固定化されたとも推測される。

ただ、本研究では土壌層を中心に浸透との関連を調査したものであり、樹種によって厚さや密度等が異なる堆積有機物層に関する透水性の調査や、事故後初期の放射性セシウムの形態等を考慮した実験等により、放射性セシウムの沈着から浸透のメカニズムの解明や、徐々に表面から浸透していく放射性セシウムの残存状況を評価する手法等についても、既に報告した研究²⁶⁾等により、引き続き検討することが必要と考えられる。

謝 辞

本研究は、科研費 15H04068（研究代表者：島田 洋子）により実施したものです。厚く御礼申し上げます。

現地調査に当たっては、日本原子力研究機構 福島技術本部 福島環境安全センター 川瀬 啓一氏、渡邊 雅範氏、寺川 友斗氏、東京電力除染推進室 満尾 晃一氏には、技術的助言等をいただくとともに、所属研究室の近藤 均氏、米谷 達成氏、Mr.Hendra Adhi Pratama、Mr.Yongqiang Cui、Mr.Adriraga Pratamaには現地調査にご協力頂きました（所属は当時のもの）。関係各位に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

1) 「福島の森林・林業の再生のための関係省庁プロジェクトチーム（第2回）」復興庁 HP (<http://www.reconstruction.go.jp/topics/main-cat1/sub-cat1-4/forest/20160309170328.html>), 2016年9月閲覧。

- 2) H.Tsukada, A. Takeda, S. Hisamatsu, J. Inaba: Concentration and specific activity of fallout ¹³⁷Cs in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *J. Environ. Radioactiv.*, **99**, 875-881 (2008).
- 3) 山口 紀子：土壌への放射性Csの吸着メカニズム. *J. Jpn. Soc. Soil Phys.*, **126**, 11-21 (2011).
- 4) 森 芳友, 米田 稔, 島田 洋子, 福谷 哲, 池上 麻衣子：統計的手法及び深度分布調査による森林除染の効果に影響を及ぼす要因に関する分析. 環境放射能除染学会誌, **4**, 313-324 (2016).
- 5) 地盤工学会：「地盤材料試験方法と解説－二分冊の1－」, pp.101, 丸善株式会社, 東京 (2009).
- 6) 日本林業技術協会：「森林・林業百科事典」, pp.628, 丸善株式会社, 東京 (2001).
- 7) Gamma-ray spectrometry in the environment. International Commission on Radiation Units and Measurements (ICRU) Report: 53, (1994).
- 8) N. Matsuda, S. Mikami, S. Shimoura, J. Takahashi, M. Nakano, K. Shimada, K. Uno, S. Hagiwara, K. Saito: Depth profiles of radioactive cesium in soil using a scraper plate over a wide area surrounding the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan. *J. Environ. Radioactiv.*, **139**, 427-434 (2015).
- 9) 村本 穰司, 後藤 逸男, 蛭木 翠：振とう浸出法による土壌の交換性陽イオンおよび陽イオン交換容量の迅速分析. 日本土壌肥料学雑誌, **63**, 210-215 (1992).
- 10) 「環境放射線データベース」 (<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top?pageSID=214332894>), 2016年10月閲覧。
- 11) 村井 宏, 岩崎 勇作：林地の水および土壌保全機能に関する研究（第1報）. 林試研報, **274**, 23-84 (1975).
- 12) 三好 祐司, 春木 雅寛, 荻原 裕：野幌国有林の代表的な林分における土壌の化学性. 日林北支論, **58**, 67-70 (2010).
- 13) 小河 甲, 桑名 健夫, 牛尾 昭宏, 清水 克彦, 牧 浩之, 吉倉 惇一郎, 渡辺 和彦：堆肥および肥料三要素の長期間（50年）連用が水稻・麦の収量に及ぼす影響. 近畿中国四国農業研究, **5**, 3-9 (2004).
- 14) 下川 洪平, 高田 英明, 渡辺 憲人, 森 仁, 原 信行, 安田 裕, 小瀬 洋喜：長良川における底質の陽イオン交換容量と強熱減量, 粘土および重金属との関係. 水質汚濁研究, **3**, 181-186 (1980).
- 15) 細川 巖, 岡部 史郎：浅海底土の化学的研究（第4報）. 日化, **78**, 191-195 (1957).
- 16) K. Adachi, M. Kajino, Y. Zaizen, Y. Igarashi: Emission

- of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.*, **3**, Article No. 2554 (2013).
- 17) N. Kaneyasu, H. Ohashi, F. Suzuki, T. Okuda, F. Ikemori: Sulfate Aerosol as a Potential Transport Medium of Radiocesium from the Fukushima Nuclear Accident. *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 5720-5726 (2012).
- 18) B.L.Sawhney: Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clays Clay Miner.*, **20**, 93-100 (1972).
- 19) A. Cremers, A. Elsen, P. Depreter, A. Maes.: Quantitative analysis of radiocesium retention in soils. *Nature*, **335**, 247-249 (1988).
- 20) 林野庁：平成26年度 森林内の放射性物質の分布状況調査結果について。農林水産省のプレスリリース（2015年3月27日）における添付資料，全11ページ（林野庁HP参照，<http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/kaihatu/pdf/150327-01.pdf>）。
- 21) IAEA（日本学術会議訳）：「チェルノブイリ原発事故による環境への影響とその修復：20年の経験」，第3章 環境の放射能汚染，pp.74, IAEA, 日本学術会議，東京（2006）。
- 22) L. Vandebroek, M. V. Hees, B. Delvaux, O. Spaargaren, Y. Thiry: Relevance of Radiocesium Interception Potential (RIP) on a worldwide scale to assess soil vulnerability to ^{137}Cs contamination. *J. Environ. Radioactiv.*, **104**, 87-93 (2012).
- 23) S. Loftsa, E.W. Tippinga, A.L. Sanchezb, B.A. Dodd: Modelling the role of humic acid in radiocesium distribution in a British upland peat soil. *J. Environ. Radioactiv.*, **61**, 133-147 (2002).
- 24) J. Wauters, M. Vidal, A. Elsen, A. Cremers: Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocesium in soils and sediments. Part two: a new procedure for solid phase speciation of radiocesium. *Appl. Geochem.*, **11**, 595-599 (1996).
- 25) 山口 紀子, 高田 裕介, 林 健太郎, 石川 覚, 倉俣 正人, 江口 定夫, 吉川 省子, 坂口 敦, 朝田 景, 和穎朗太, 牧野 知之, 赤羽 幾子, 平舘 俊太郎: 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).
- 26) 森 芳友, 米田 稔, 島田 洋子, 福谷 哲, 池上 麻衣子: 表面線量率及び表面汚染密度の測定による放射性セシウムの表面残存状況の評価. 環境放射能除染学会誌, **5**, 3-15 (2017).

2016年11月26日受付

2017年2月13日受理

和文要約

福島県内の5地点の森林において、各樹種の土壌層の試料を採取し、飽和透水係数、圃場容水量及び空隙率を調査した。また、スクレーパープレートにより堆積有機物層及び土壌層のサンプリングを実施し、放射性セシウムの深度分布及び各層の強熱減量を調査するとともに、土壌層(0-5 cm及び5-10 cmのコンポジットサンプル)の陽イオン交換容量を測定した。各樹種における土壌中の放射性セシウムの浸透の程度は大きく異なっており、圃場容水量、空隙率とは相関が見られなかったが、陽イオン交換容量との間には若干の相関があり、飽和透水係数との間には強い正の相関が見られた。また、陽イオン交換容量と強熱減量との間に強い正の相関が確認されたことも踏まえ、各層の強熱減量をパラメータにしたコンパートメントモデルにより、放射性セシウムの深度分布の再現を試みた。いずれの森林においても、概ね実測値に近い値が得られたが、一部の樹種の土壌層の中位部においては、実測値よりも計算値が大きくなった。今後はパラメータや移行係数との関係式の改良を図るとともに、他の土壌指標との相関や、放射性セシウムが沈着した初期の頃の動態に着目した研究等が必要と考えられる。

