

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 10 月 6 日現在

機関番号：12102

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2012～2016

課題番号：24110006

研究課題名(和文)水・土砂移動に伴う放射性物質の移行過程の理解

研究課題名(英文)Understanding the migration process of radionuclides associated with water and sediment movement

研究代表者

恩田 裕一(Onda, Yuichi)

筑波大学・生命環境系・教授

研究者番号：00221862

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 105,300,000円

研究成果の概要(和文)：1. 陸域に沈着した放射性物質の内、森林渓流水における溶存態の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は二重指数関数的な低下傾向を示すこと、 $^{137}\text{Cs}$ 流出フラックスにおいて総流出量の97%以上を懸濁態が占めることを示した。2. 阿武隈川における $^{137}\text{Cs}$ の固液分配係数の経時変化が土地利用との関係が大きいことを解明した。3. 懸濁態として河川領域に輸送された $^{137}\text{Cs}$ は、9割以上が河川内に堆積することなく海域に輸送されることが示され、陸域からの流出量を海へのインプットとして沿岸域における海洋への懸濁物質の移行シミュレーション方法を確立した。

研究成果の概要(英文)：1. Among the radioactive substances deposited in the land area, the dissolved  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the forest stream water showed a double exponential decline trend, also the suspended sediment occupied 97% or more of the total discharge in the  $^{137}\text{Cs}$  flux. 2. It is clarified that the temporal change of the suspended - dissolved partition coefficient of  $^{137}\text{Cs}$  in the Abukuma River has a great relation with land use. 3. It is shown that more than 90% of the  $^{137}\text{Cs}$  transported to the river as suspended sediment were transported to the sea without sedimentation in the river. A method to simulate the migration of suspended sediment in the coastal area by using the discharge from the river as input has established.

研究分野：水文学・地形学

キーワード：Cs-137 陸域を通じた移行 土壌侵食 河川を通じた移行 湖沼における移行 福島第一原子力発電所  
大気循環 巻き上げ

### 1. 研究開始当初の背景

平成23年3月11日の大地震および津波を契機として、東京電力福島第一原子力発電所の事故が発生した。原子炉施設から放出された放射性物質は、福島県とその周辺地域をはじめ、東日本の広域に飛散・沈着した。放射性物質による影響は、初期の気象条件や地形、地表面の被覆状態等により特異な分布を示した。その後、地表面に降り積もった放射性物質の再飛散や、放射性物質を吸着した土砂の移動にともなう河川、湖沼、海洋への移行、森林・農作物、陸域・海洋生物への移行が問題となり、短期予測や除染などの対策基盤策定のための調査から、長期予測を視野に入れた学術研究の必要性が高まっている。

環境中に放出された放射性物質は、これまでに、大気・海洋・陸域での物理化学過程や生態系での移行・濃縮などの様々な移行が進行しているため、その影響や相互作用は多岐にわたる。そのため、この放射能汚染は、既存の学問分野の単独的な取り組みでは解決できない複合的で未曾有の問題であり、地球環境科学の多くの分野に放射化学や放射線計測技術の分野などを加えた、分野横断的で新しい学問領域を創設して取り組むことが必要である。

### 2. 研究の目的

放射性物質の陸域での移行に着目し、水・土砂移動にともなう移行過程の理解と森林をはじめとする陸域生態系での放射性物質の移行・循環過程の理解を目指す。

森林における放射能汚染に関しては、これまでの実態調査から、樹体に吸着した放射性物質は、雨水や落葉とともに徐々に地表に降下し、移行が開始していることがわかってきた。チェルノブイリの知見から、森林では約1年で放射性物質が樹体から土壌へと移行し、その後再び樹木に吸収されるという「循環」が始まる。こうした放射性物質の移行による環境の二次汚染の広がり、および農作物や飲料水への影響は、住民や産業に極めて深刻な被害を引き起こす。チェルノブイリ周辺と全く異なった地形・地質・気候環境における福島において、除染の優先順位や、山林のすそ野に住宅を建て、森林を生活圏の一部としてきた住民の今後の帰還を考える際、こうした放射性物質の移行を予測することが最重要課題である。

本研究では主に(1)森林から水・落葉を通じた放射性物質の環境への移行とモデル化(2)河川・湖沼・海洋への流出量とモデル化を目的とした。

### 3. 研究の方法

(1)福島県川俣地区の高濃度汚染地域にあたる源流域に位置する森林小流域において、また中濃度汚染地域にあたる栃木県那須の森林流域において、流量観測や雨量の計測などの水文観測に加え、水サンプル・浮遊砂サ

ンプル・粗大有機物サンプルの採取を行い、それぞれのセシウム濃度を測定するとともに、それらの流出量について算定した。

また様々な土地利用区画から流出する土砂のセシウム<sup>137</sup>濃度の測定を行うため、未耕作畑・耕作畑・草地・森林では土壌侵食観測プロットから流出した土砂、水田では代掻き時の田面水中の浮遊砂および長期観測水田の流出口における浮遊砂サンプラーに捕捉された浮遊砂のセシウム<sup>137</sup>濃度の測定を行った。

(2)森林小流域における観測と同様に阿武隈川を中心とした河川の30地点において浮遊砂のセシウム濃度を連続的に観測した。また河川における土砂移動の計算のため、1次元、2次元のモデル手法を用いた。土砂とともにどのようにセシウムが輸送されるのかを詳細に調べるために、化学的な手法を用いてその化学形態を調査した。

### 4. 研究成果

(1)森林から水・落葉を通じた放射性物質の環境への移行とモデル化について

森林渓流水における溶存態のセシウム<sup>137</sup>濃度は二重指数関数的な低下傾向を示し、2011年10月以降現在までSecond phaseの緩やかな低下傾向を示している。Second phaseにおける指数関数の係数は-1.0~-0.14(実効半減期 $T_{eff}$ は0.7-5.0y)の値を示した。浮遊砂(SS)では指数関数の係数は-0.35~-0.18( $T_{eff}$ は2.0-3.9y)、粗大有機物では-0.97~-0.14(0.70-2.3y)の値を示し、除染が行われた疣石山ではSSのセシウム濃度に顕著な低下が見られた。

いずれの流域でも、セシウム<sup>137</sup>流出フラックスにおいて全体を通してSSが総流出量の97%以上を占め、森林流域からの放射性セシウムの主な流形態となっていることが示された。

各土地利用についてのセシウム<sup>137</sup>濃度およびその時間変化傾向について以下の結果が得られた。未耕作畑(3プロット)では、各プロットのSc(セシウム濃度を沈着量で正規化した値)平均値は0.0079~0.063であり、おおむね低下傾向を示した。耕作畑(3プロット)では、Sc平均値は0.0065~0.0170であり、未耕作畑に比べて低く、低下傾向は見られなかった。草地(4プロット)では、Sc平均値は0.063~0.024であり、地点によってセシウム<sup>137</sup>濃度およびその変化傾向の差が大きかった。森林(1プロット)では0.085と比較的高い値を示し、若干低下傾向が見られた。水田では2011年5月の0.24から急激に低下し、2016年には0.018まで低下し、その時間変化は三重指数関数によって表された。

(2)河川・湖沼・海洋への流出量とモデル化について

河川30地点でSSのセシウム濃度変化を継続的に観測した。その結果、阿武隈川本線のSSのセシウム濃度変化はチェルノブイリの

プリピャチ川と比較すると2年目以降は1桁くらい低く、溶存態の濃度変化を Smith のデータの範囲と比較すると、阿武隈川本線は Smith の値に近いが支流は1桁低いことが分かった。逡減傾向を3重の指数関数モデルで示した場合、K2 については土地利用で説明できることが示された。

阿武隈川黒岩での溶存態・懸濁態の継続測

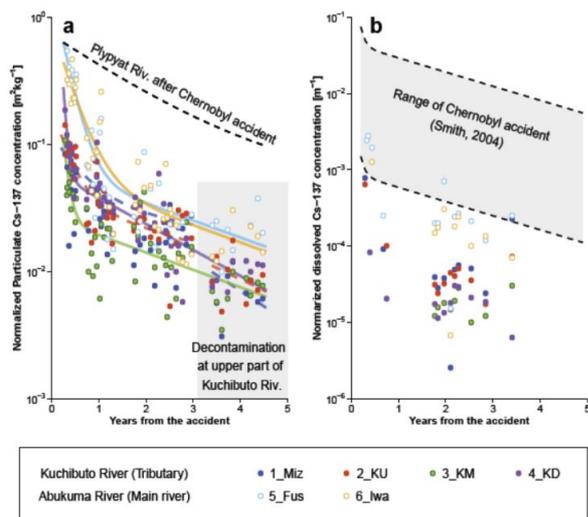


図. 阿武隈川における SS のセシウム濃度変化とプリピャチ川、チェルノブイリとの比較

定. 懸濁物乾重量 1kg 当たり含まれるセシウム 137 濃度は、2012 には 10,000 Bq を超える値が観測されたが、減少が続き 2015 年以降数千 Bq で横ばい傾向となった。河川水 1 リットル当たりのセシウム 137 濃度(Bq/L)は、夏季に増加し、冬季に減少する変動を示しつつ、長期的には低下傾向が見られた。阿武隈川黒岩と被川とを比較すると、懸濁物乾重量あたり、および溶存態のセシウム 137 は被川の方が高い値が続いた。Kd は水中の溶存有機物濃度との関係が見られたが、NH<sup>4+</sup> および K<sup>+</sup> との関係はみられなかった。Kd の値は低下傾向が見られた。これは、溶存態のセシウム 137 の濃度低下傾向が、懸濁態セシウム 137 の濃度低下よりも緩やかであることによる。

懸濁態として輸送される放射性核種の環境動態を数値モデル化し、特に河川領域におけるセシウム 137 の移行過程について把握するとともに、海域へのセシウム 137 移行量、タイミング等について推定することを試みた。一次元モデルによる検討より、懸濁態として河川領域に輸送されたセシウム 137 は、9 割以上が河川内に堆積することなく海域に輸送されること、また海域への輸送量については上流から供給される懸濁態セシウム 137 濃度の時間的減衰に大きく影響を受けることが明らかとなった。二次元モデルによる検討では、まず阿武隈川高水敷において実施された土砂サンプルから明らかとなったセシウムの堆積分布との比較検討により、モデル

が十分な予測精度を持って河川内のセシウム移行過程を再現できること明らかにした。さらに、河川モデルによって算出された土砂流出量をインプットとして海洋沿岸域における堆積状況を再現することができた。

網羅的分析アプローチによる自然水中での放射性セシウムの存在形態と溶出機構の解明のため、阿武隈川の微細浮遊砂・底泥 (<2mm) に含まれる RCs は、有機炭素・窒素含有量と非常に高い相関があった。RCs は、BET 表面積と高い相関がある一方で、レーザ回折から測定した粒子サイズと表面積とは低い相関であった。比重分離サンプルについても RCs は BET 表面積と有機物と高い相関を示した。有機物除去後も RCs は変わらずに残存していたため、底泥・浮遊砂中の RCs は有機物に直接吸着しているわけではないことが分かった。

河川浮遊砂 (31 地点) の粒子の歩放射性セシウム補足ポテンシャル (RIP), 固液分配係数 (Kd), 比表面積, イオン交換容量, 鉱物組成, 有機物濃度を測定した。RIP は、採取した河川流域の土壌の平均 RIP と相関しており、河川の後背地の土壌の RIP を反映することが示された。RIP あるいは Kd に与える比表面積, イオン交換容量, 鉱物組成 (XRD のピーク強度から(雲母)/(石英)比として算出), 有機物濃度の影響を調べるために、多重回帰分析を行った。その結果、有機物濃度に対して負の相関を示し、それ以外の比表面積, イオン交換容量, 鉱物組成に対しては正の相関を示すことが分かった。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 58 件)

- Kato, H., Onda, Y., Hisadome, K., Loffredo, N., Kawamori, A. (2017) Temporal changes in radiocesium deposition in various forest stands following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 166, Part 3, 449-457. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2015.04.016 査読有
- Iwagami, S., Onda, Y., Tsujimura, M. and Abe, Y. (2017) Contribution of Radioactive <sup>137</sup>Cs discharge by Suspended Sediment, Coarse Organic Matter, and Dissolved Fraction from a Headwater Catchment in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident, *Journal of Environmental Radioactivity*, 166, Part 3, 466-474. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2016.07.025 査読有
- Matsunaka, T., Sasa, K., Sueki, K., Takahashi, T., Satou, Y., Matsumura, M., Kinoshita, N., Kitagawa, J. and Matsuzaki, H. (2016) Pre- and post-accident <sup>129</sup>I and <sup>137</sup>Cs levels, and <sup>129</sup>I / <sup>137</sup>Cs ratios in soil near the

Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Japan, Journal of Environmental Radioactivity, 151, p.209-217, Doi:10.1016/j.jenvrad.2015.10.010 査読有

Satou, Y., Sueki, K., Sasa, K., Adachi, K., Igarashi, Y. (2016) First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Anthropocene, 14, p.71-76. Doi: 10.1016/j.ancene.2016.05.001 (also in A01-2)査読有

Yoshimura, K., Onda, Y., Wakahara, T. (2016) Time dependence of the <sup>137</sup>Cs concentration in particles discharged from rice paddies to freshwater bodies after the Fukushima Daiichi NPP accident, Environmental Science & Technology, 50 (8), p. 4186-4193. DOI: 10.1021/acs.est.5b05513. 査読有

〔学会発表〕(計 219 件)

Yuichi Onda, Kazuya Yoshimura, Keisuke Taniguchi, Takaaki Kubo, Hugh Smith, William Brake, Takayuki Kuramoto and Takayuki Sato “Change in Rainfall-runoff event hysteresis in suspended sediments due to surface decontamination in the area affected by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident.”2016年12月12日-16日、サンフランシスコ(アメリカ合衆国)

Yuichi Onda, “Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, Japan”、IAEA(International Expert’s Meeting)、2015年4月22日、ウィーン(オーストリア)

Hiroaki Kato, Yuichi Onda, Nicolas Loffredo, Keigo Hisadome, Ayumi Kawamori “Effect of radiocesium transfer on ambient dose rate in forest environment”、European Geoscience Union (EGU) General Assembly 2014、2014年4月27日-5月2日、ウィーン(オーストリア)

恩田 裕一、加藤 弘亮、吉村 和也、安部 豊、ジェレミー・パティン、辻村 真貴、田村 憲司、「川俣町山木屋地区における放射性セシウムの移行状況集中モニタリング」、日本地球惑星科学連合2013大会、2013年5月19日-24日、幕張メッセ国際会議場(千葉県・千葉市)

難波 謙二、”Decontamination activity in Fukushima”、The 5<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Economy and Technology、2012年8月2日-3日、福岡工業大学、福岡県・福岡市

〔図書〕(計 1 件)

恩田 裕一、中島 映至、大原 利眞、植松 光男、「原発事故環境汚染 福島第

一原発事故の地球科学的側面」、東京大学出版会、2014年

〔産業財産権〕該当なし

〔その他〕

ホームページ等

ISET-R: 福島原発事故により放出された放射性核種の環境動態に関する学際的研究  
<http://www.ied.tsukuba.ac.jp/hydrogeo/isetr/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

恩田 裕一 (ONDA, Yuichi)  
筑波大学・生命環境系・教授  
研究者番号：00221862

(2)研究分担者

辻村 真貴 (TSUJIMURA, Maki)  
筑波大学・生命環境系・教授  
研究者番号：10273301

清水 康行 (SHIMIZU, Yasuyuki)  
北海道大学・工学研究科・教授  
研究者番号：20261331

笹 公和 (SASA, Kimikazu)  
筑波大学・数理物質系・准教授  
研究者番号：20312796

山敷 庸亮 (YAMASHIKI, Yosuke)  
京都大学・総合生存館・教授  
研究者番号：20335201

近藤 昭彦 (KONDOH, Akihiko)  
千葉大学・環境リモートセンシング研究センター・教授  
研究者番号：30201495

浅沼 順 (ASANUMA, Jun)  
筑波大学・生命環境系・教授  
研究者番号：40293261

脇山 義史 (WAKIYAMA, Yoshifumi)  
福島大学・環境放射能研究所・講師  
研究者番号：40594792

難波 謙二 (NANBA, Kenji)  
福島大学・共生システム理工学類・教授  
研究者番号：70242162

福島 武彦 (SUKUSHIMA, Takehiko)  
筑波大学・生命環境系・教授  
研究者番号：90124354

末木 啓介 (SUEKI, Keisuke)  
筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：90187609

田林 雄 (TABAYASHI, Yu)  
関東学院大学・経済学部・講師  
研究者番号：30549837

(3)連携研究者

関口 智寛 (SEKIGUCHI, Tomohiro)  
筑波大学・生命環境系・講師  
研究者番号：90400647

高橋 隆行 (TAKAHASHI, Takayuki)  
福島大学・共生システム理工学類・教授  
研究者番号：70197151

(4)研究協力者

Olivier Evrard

LSCE・CEA・研究員

Valentin GOLOSOV  
モスクワ大学・教授

Laurent Garcia-Sanchez  
IRSN・研究員