

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K19951

研究課題名（和文）空間的不均一性を考慮した森林土壌における放射性セシウムの可給性評価

研究課題名（英文）Evaluation of radiocesium bioavailability in forest soils considering spatial heterogeneity

研究代表者

高橋 純子（Takahashi, Junko）

筑波大学・生命環境系・助教

研究者番号：30714844

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：福島第一原子力発電所事故により森林に沈着したCs-137は、空間的不均一性が非常に高いことが知られている。本研究では、その要因として土壌中の選択流に着目し、染料トレーサーを用いた人工降雨実験と土壌の理化学分析等を実施した。人工降雨実験の結果、染色部では非染色部と比較して有意にCs-137濃度の分散が大きく、濃度も高い傾向にあった。とくに10-15 cm深では、Cs-137濃度と飽和透水係数・孔隙率との間に正の相関が、仮比重との間に負の相関が認められた。交換態Cs-137濃度についても同様であり、当初の仮説通り、選択流によってCs-137の空間的不均一性と可給性が高くなることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

福島第一原子力発電所事故の被災地における林業復興を進める上で、森林のCs-137動態の将来予測が求められている。しかしながら、森林土壌内のCs-137の分布は空間的不均一性が非常に高く、樹木による吸収量や土壌中の下方移行モデルの予測精度を低下させているという問題があった。本研究では、この空間的不均一性を生み出す要因として選択流の影響を明らかにしたものであり、種々のモデル精度向上に資することが期待される。

研究成果の概要（英文）： It is reported that the deposited Cs-137 due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident has a very high spatial heterogeneity especially in forests. In this study, we focused on the preferential flow in soil as its factor, and conducted an artificial rainfall experiment using a dye tracer and physical and chemical analyses of soil samples.

As results of the artificial rainfall experiment, the dispersion (variability) of Cs-137 concentration in the dyed area was significantly larger than that in the unstained area, and also the concentration tended to be higher. Especially at 10-15 cm depth, there was a positive correlation between Cs-137 concentration and saturated hydraulic conductivity and porosity, and a negative correlation between Cs-137 concentration and bulk density. The similar trends were shown for the exchangeable Cs-137, indicating that the spatial heterogeneity and bioavailability of Cs-137 was enhanced by preferential flow, as initially hypothesized.

研究分野： 土壌環境化学

キーワード： 選択流 人工降雨実験 染料トレーサー 放射性セシウム 深度分布 下方移行

1. 研究開始当初の背景

福島県の森林整備面積は震災から10年が経過した現在も震災以前の半分に留まっており、林業復興を進める上で、森林内の空間線量率や土壌中のCs-137下方移行、樹木によるCs-137吸収量等、森林生態系内のCs-137動態の将来予測が求められている。しかし、実際には森林内のCs-137の分布はばらつきが非常に高く、予測精度に影響を与えているという問題がある。

その理由の1つとして、森林では土壌やCs-137沈着量が空間的に不均一であることが上げられる。とくに、土壌中を不均一に流れる選択流が土壌中のCs-137濃度のばらつきを増加させている可能性がある。これまでの研究によると、根やレキの多い場所に選択流が生じやすいことが報告されており、もし根の周囲に可給性の高いCs-137が高濃度に集積しているとすれば、Cs-137の下方移行や空間的な不均一性のみならず、生物利用性への寄与を考える上でも重要である。

2. 研究の目的

そこで、本研究では、土壌中の選択流に着目し、染料トレーサーを用いた人工降雨実験を行うことで以下の問いを実証し、定量的に評価することを目的とした。

選択流によるCs-137の輸送が生じているか？

選択流によってCs-137の空間的なばらつきとCs-137濃度は増加するか？

選択流の影響が強いと、Cs-137の可給性は増加するか？

3. 研究の方法

帰宅困難区域(浪江町)および旧避難区域(南相馬市)のスギ林において、人工降雨実験を実施した。本報告書では、主に南相馬市の調査地について報告する。

調査地は、福島第一原子力発電所から北西約25 kmに位置する林齢36年生のスギ林であり、空間線量率は2021年12月時点で $1.03 \mu\text{SV/h}$ 、Cs-137の初期沈着量は約 720 kBq/m^2 である。

2022年10月に、図1のように散水ホース(三井石油化学工業 エバーフローA型)を用いた人工降雨装置を用いて、林内の100 cm四方に降雨量約160 mm、降雨強度約90 mm/hの染料トレーサー(2g/L ローダミンB溶液)を含んだ降雨をリター層の上から散布した。

散布から24時間以上経過した後、100 cm四方の中心に30 cm×30 cmの4つの区画を設けた。区画aでは、5×5個の100 mLコアを用いた土壌採取を0-5 cm、10-15 cm、20-25 cmの三深度で実施し、残りの区画b-dでは、深度2.5 cm間隔で目視によって染色部と非染色部に分けて土壌を採取した(図2)。

採取したコアサンプルについては、三相分布と細孔隙・粗孔隙率および飽和透水係数を測定した後、40で乾燥させ2 mmの篩に通して風乾試料を作成するとともに植物根含量とレキ含量を求めた。また、風乾試料中のCs-137濃度および交換態Cs-137濃度(1 M 酢酸アンモニウム抽出)はゲルマニウム半導体検出器で測定し、水抽出ローダミンB濃度は分光光度計により540 nmの波長を測定することで定量した。区画b-cの土壌試料についても、同様の方法でCs-137濃度とローダミンB濃度を測定した。



図1 人工降雨装置

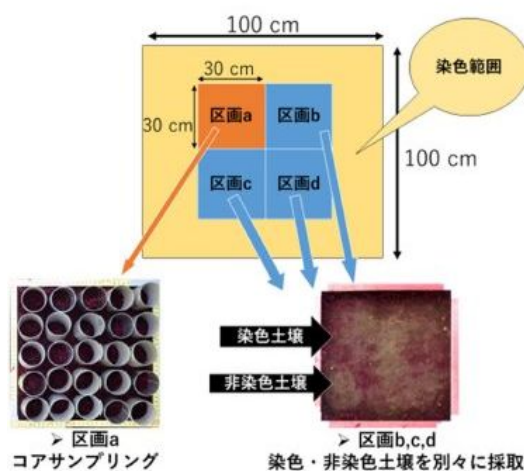


図2 土壌採取方法概要

4. 研究成果

調査地の土壌断面調査と理化学性分析の結果、A1層(0-8 cm)およびBC層(73-90+ cm)を除いて黒ボク特徴の基準である $\text{Al}_2\text{O}_3 + 1/2\text{Fe}_2\text{O}_3$ が 20 g/kg を上回り、すべての層位で SiO_2 は 6.0 g/kg を下回ったことから、非アロフェン質黒ボク土(日本土壌分類体系)に分類された。

人工降雨実験の結果、降雨量約 160 mm という強雨であるにもかかわらず、区画 b-d において表層 2.5 あるいは 5.0 cm からは目視で染色部と非染色部を見分けることが可能であり、選択流が生じたことが確認された（図 3）。

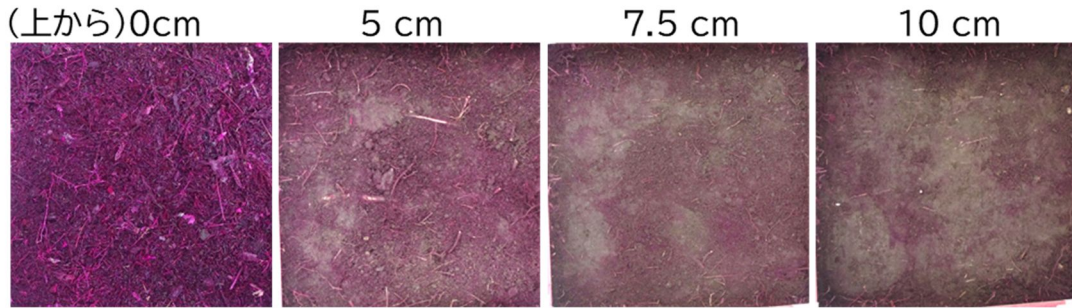


図 3 染料トレーサーを用いた人工降雨実験後の各深度の土壌の様子

また、染色部と非染色部に分けて各深度でサンプリングしたところ、非染色土壌では水抽出ロードミン B 濃度がほとんど検出されず、染色土壌の 100 倍以下であった（図 4）。

Cs-137 濃度については、染色土壌と非染色土壌の間で F 検定を行ったところ、染色土壌の分散が有意に高いことが確認された（図 5）。染色部の面積は深層ほど小さいため、Cs-137 存在量 (kBq/m²) としては大きくはないが、その濃度は最も差の大きい 10-12.5 cm では約 6 倍であった。各深度の区画 b-d の Cs-137 濃度の平均値についてウェルチの t 検定を行ったところ、染色土壌の分散が大きすぎるため、染色土壌と非染色土壌の間に有意な差は認められなかった。ただし、7.5-10 cm を除いてすべての深度で染色土壌のほうが高い値を示しており（図 6）選択流の影響で Cs-137 のばらつきと濃度が高くなったことが示された。

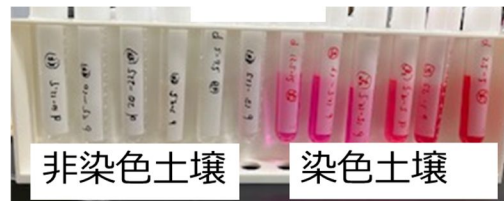


図 4 染色および非染色土壌の水抽出液

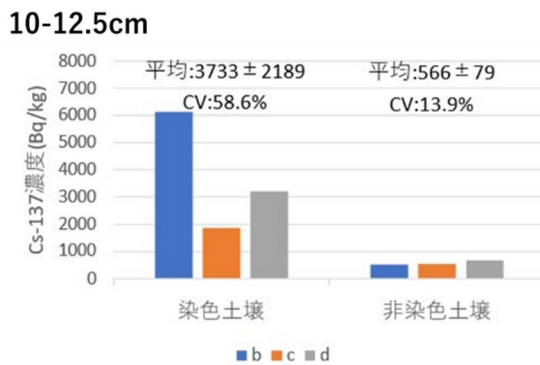


図 5 染色および非染色土壌中の Cs-137 濃度

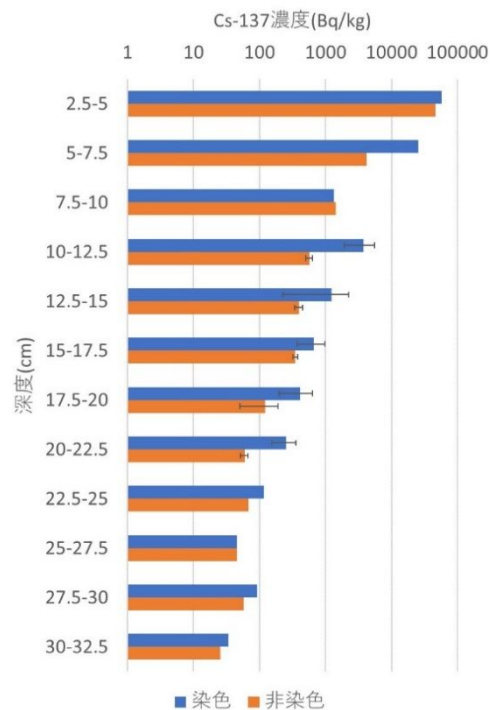


図 6 染色および非染色土壌中 Cs-137 深度分布

区画 a におけるコアサンプリングの結果、Cs-137 濃度は 0-5 cm で 51.6 kBq/kg (CV38.1%, n=25)、10-15 cm で 0.95 kBq/kg (CV65.3%, n=25)、20-25 cm で 0.27 kBq/kg (CV58.0%, n=25) となり、上記の区画 b-d で最も Cs-137 濃度の差が大きい傾向にあった 10-15 cm で最も変動係数 (CV) が高い結果となった。飽和透水係数についても、10-15 cm で CV が 154% と 0-5 cm (CV67.8%)、20-25 cm (CV54.6%) と同様の傾向を示した。さらに、10-15 cm において、飽和透水係数と Cs-137 濃度の間に正の相関が認められた（図 7）。0-5 cm と 20-25 cm では明確な関係は認められず、0-5 cm では選択流量のばらつきが小さいが、事故から調査を実施した 11 年の間に選択流の経路が変わったため、20-25 cm では選択流量と比較して 20 cm 以下までの Cs-137 の到達量が少なかったために相関が認められなかったものと考えられた。

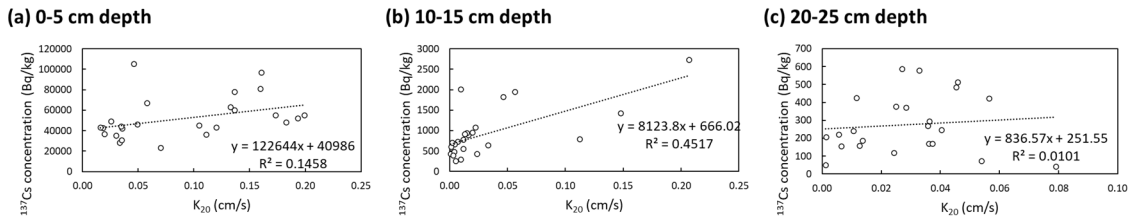


図7 各深度における飽和透水係数とCs-137濃度の関係

10-15 cm では、飽和透水係数と同様にCs-137濃度と仮比重 ($r=-0.77$, $p<0.0001$)、粗孔隙率 ($r=0.68$, $p<0.001$)との間にも相関が認められ、水が通りやすいほどCs-137濃度が高くなることが示唆された。さらに、交換態Cs-137についても同様に飽和透水係数・仮比重・粗孔隙率との間に相関が認められた。ただし、交換態の存在割合との間には有意な相関は認められず、選択流には割合を増やすほどの影響はないと考えられた。

以上のことから、選択流によるCs-137の輸送が生じていること、選択流によってCs-137の空間的なばらつきとCs-137濃度が増加していること、選択流の影響が強いと、交換態Cs-137濃度は高くなるものの、その割合までを高めるほどではないことが確認された。

既存の多くの土壤中Cs-137の下方移行モデルでは10cm以下のCs-137濃度が過小評価されやすく、モデルに考慮されていない下方移行メカニズムが存在することがその理由である。本研究によって選択流による下方移行の影響が評価されたことで、これらのモデルの改良に貢献することが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Nakanishi Miyu, Onda Yuichi, Takahashi Junko, Kato Hiroaki, Iida Hikaru, Takada Momo | 4. 巻 334 |
| 2. 論文標題 Changes in air dose rates due to soil moisture content in the Fukushima prefecture forests | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 Environmental Pollution | 6. 最初と最後の頁 122147 ~ 122147 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.envpol.2023.122147 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Takahashi Junko, Hihara Daichi, Sasaki Takuya, Onda Yuichi | 4. 巻 816 |
| 2. 論文標題 Evaluation of contribution rate of the infiltrated water collected using zero-tension lysimeter to the downward migration of 137Cs derived from the FDNPP accident in a cedar forest soil | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Science of The Total Environment | 6. 最初と最後の頁 151983 ~ 151983 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2021.151983 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|--------------------|
| 1. 著者名 高橋純子 | 4. 巻 2 |
| 2. 論文標題 土壤中の放射性Csの深度分布モニタリング：次の10年へ向けて | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Isotope News | 6. 最初と最後の頁 7-10 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 三嶋 駿介; 高橋 純子; 恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 福島県におけるスギ林土壤中の Cs-137 の空間 分布に対する選択流の影響 |
| 3. 学会等名 第135回日本森林学会 |
| 4. 発表年 2024年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 三嶋 駿介; 高橋 純子; 恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 スギ林土壌における ¹³⁷ Csのばらつきと化学形態に対する選択流の影響 |
| 3. 学会等名 日本ペドロロジー学会2023年度大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 高橋 純子; 日原 大智; 佐々木 拓哉; 恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 スギ林土壌中 ¹³⁷ Cs深度分布の経年変化と降雨浸透水による下方移行 |
| 3. 学会等名 日本ペドロロジー学会2023年度大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 三嶋 駿介; 高橋 純子; 恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 福島における放射性物質分布調査 (8)南相馬市スギ林土壌におけるCs-137の化学形態に対する選択流の影響 |
| 3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 三嶋 駿介; 高橋 純子; 恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 福島県のスギ林における土壌中のCs-137濃度と透水性の関係 |
| 3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2023 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高橋 純子、日原大智、佐々木拓哉、井口 啓、恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 福島における放射性物質分布調査 (4) 森林土壌中Cs-137深度分布の経年変化と 下方移行メカニズム |
| 3. 学会等名 日本原子力学会 2022年秋の大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 井口 啓、高橋 純子、恩田 裕一、加藤弘亮 |
| 2. 発表標題 福島における放射性物質の分布調査 (3) 福島県浪江町のスギ林における土壌及び樹木根のCs-137深度分布 |
| 3. 学会等名 日本原子力学会 2022年秋の大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高橋純子、佐々木拓哉、井口 啓、恩田裕一 |
| 2. 発表標題 福島県川俣町の森林における樹木根中放射性セシウムの経年変化 |
| 3. 学会等名 第134回日本森林学会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 井口 啓、高橋純子、佐々木拓哉、恩田裕一 |
| 2. 発表標題 福島県におけるスギ林細根中の Cs 137 深度分布に対する転流量の影響 |
| 3. 学会等名 第134回日本森林学会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 高橋純子・小野哲也・佐々木拓哉・恩田裕一 |
| 2. 発表標題 福島県の森林土壌におけるCs-137の空間不均一性および化学形態に対する選択流の影響 |
| 3. 学会等名 JpGU2021 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高橋 純子・佐々木 拓哉・井口 啓・恩田 裕一 |
| 2. 発表標題 福島における放射性物質分布調査 (10)染料トレーサーを用いた森林土壌中Cs-137の空間不均一性評価 |
| 3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 高橋純子・日原大智・佐々木拓哉・井口 啓・恩田裕一 |
| 2. 発表標題 森林土壌における降雨浸透水中の Cs 137 濃度と化学性の関係 |
| 3. 学会等名 2022 年第133 回日本森林学会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 小野哲也・高橋純子・佐々木拓哉・恩田裕一 |
| 2. 発表標題 森林土壌における放射性セシウム深度分布の空間不均一性に対する 選択流の影響 |
| 3. 学会等名 日本ベドロロジー学会2021年度大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|