

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：82105

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25292099

研究課題名(和文) 森林生態系の土壌に沈着したセシウム137の分布の長期変動予測

研究課題名(英文) Long term prediction of Cesium 137 in forest soil

研究代表者

三浦 覚 (Miura, Satoru)

国立研究開発法人 森林総合研究所・立地環境研究領域・領域長

研究者番号：30353866

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,000,000円

研究成果の概要(和文)：福島原発事故により森林に降下した放射性セシウムの将来の行方を予測するために、事故前に採取された森林土壌試料を用いて、1950～1960年代に多く行われた大気圏内核実験による放射性セシウムの分布沈着状況を調べた。沈着量は主に冬季降水量と高層気象の影響を受けて、東北から北陸地方の日本海側で多かった。気象官署における降水中の放射性セシウムの直接観測結果と比較したところ、50年を経ても大部分の放射性セシウムは森林土壌中に残存蓄積していると考えられた。福島原発事故で放出された放射性セシウムも長く森林土壌中に留まると予想される。

研究成果の概要(英文)：To predict the future distribution of fallout Cs-137 released from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, we investigated distribution of global fallout Cs-137 that had deposited to forest soils all over Japan during 1950-60s. Larger depositions of global fallout were observed at the Sea of Japan side along Tohoku to Hokuriku Districts because of large winter precipitation and aerological conditions. We revealed that most part of deposited global fallout remained at the initially deposited place after fifty years by comparing our estimation of radiation inventory with the meteorological observation. We anticipate that fallout Cs-137 from FDNPP will also remain over a long period in the forests.

研究分野：農学

キーワード：環境分析 放射線 土壌圏現象 気象学 森林科学

### 1. 研究開始当初の背景

2011年3月11日に発生した東日本大震災で引き起こされた東京電力福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性物質が大気中に拡散し東日本の広い範囲の自然環境が汚染された。福島県土の71%を占める森林の汚染も深刻であり、今後の汚染状況の推移には高い関心が集まっていた。大量に放出された主な放射性核種にはI-131、Cs-134、Cs-137があり、このうちCs-137は、半減期が30年で長いこと、放射線が人々の暮らしに及ぼす影響も長期に及ぶ。そのため、Cs-137の将来の行方はヒトの被曝防止の観点から社会の重大な関心事となっていた。

放射性セシウムは自然界には存在せず、核爆発や原子力発電の際の核反応によって人工的に生成される。福島原発事故以前には、1986年に旧ソビエト連邦（現在のウクライナ）のチェルノブイリで人類史上最大規模の原発事故が発生している。さらにその20～30年前の1950～60年代には、アメリカ、ソ連、フランス、中国などの大国が大気圏内核実験を多く行った時期があり、大量の放射性セシウムが大気圏に放出された。チェルノブイリ原発事故のCs-137放出量は福島原発事故の数倍に上るが、大気圏内核実験によるCs-137の総放出量はさらにその10倍に及び1963年に降下量のピークが観測されている。この大気圏内核実験由来の放射性セシウムは成層圏に到達して全世界に拡散して降下していることから、グローバルフォールアウト（地球規模の放射性降下物）と呼ばれている。1990年代には、地表に降下沈着したグローバルフォールアウトを利用して、多くの土壤侵食の研究が行われた。

森林総合研究所には、福島原発事故前に調査された全国の土壤試料が多数保管されている。これらの試料は、事故前まで50年間のグローバルフォールアウトの降下沈着とその後の二次移動の影響を累積記録したアーカイブ試料であると考えられる。そこで、これらの試料のCs-137蓄積量を明らかにすることで、50年間の長期に及ぶ森林域のCs-137分布の変動予測精度を高めることができることを考えて本研究を行うことにした。

### 2. 研究の目的

本研究では、東京電力福島第一原子力発電所事故が発生する前に採取された我が国の森林土壤試料を用いて、およそ50年前の1950～60年代に行われた大気圏内核実験により地球全体に降下した放射性セシウム137（Cs-137）が、現在、日本の森林にどのように分布し残存しているかを明らかにすることを目的とする。これにより、福島原発事故による森林に降下したCs-137の長期的な変動予測精度を高めることが可能になる。

### 3. 研究の方法

(1) グローバルフォールアウトの分布残留

### 特性

グローバルフォールアウトの蓄積量

福島原発事故前のグローバルフォールアウトCs-137の蓄積量を明らかにするために、森林総合研究所に保管されていた原発事故前の全国の土壤試料を分析した。2006～2010年に調査された全国約2500地点のうち概ね地理的に均等に配置された316地点を抽出した。それぞれの地点では、0.1haの範囲の1～4か所から0～5、5～15、15～30cmの3深度で土壤試料が採取保管されていた。その試料20mLを用いて、NaIシンチレーションカウンターでガンマ線を30分間測定したのち、スペクトル解析プログラム（Code Fukushima、仁木工芸）でCs-137のピークを同定定量し比放射能を算出した。比放射能は2008年10月1日時点に減衰補正したのち、測定済みの容積重データを利用して対象地点のCs-137蓄積量を算出した。

地形特性等の立地環境データの整備

解析対象地点の地形特性を明らかにするために、10mメッシュのデジタル標高モデル（DEM）データ（国土地理院）を地理情報システムに取り込んで解析した。解析のスケールと範囲を検討したのち、標高、傾斜、集水面積、曲率（斜面の凹凸の度合い）などの土壤侵食や土壤の安定性に関わる特性値を算出し、地形特性のデータセットを作成した。また、国土数値情報（国土交通省）及び森林生態系多様性基礎調査（林野庁）の公表データから、地形、表層地質、植生等のデータを整備した。

蓄積量の変動要因の解析

ある地点の森林に残存するCs-137は、初期降下量とその後の侵食等による二次移動により決定されると仮定した。初期降下量の影響を評価するために、アメダスの平年値降水量（気象庁）から季節別降水量データを作成して全国の土壤中のCs-137蓄積量との関係を解析した。また、二次移動の影響を評価するために、重回帰分析を用いて地形因子および植生因子がCs-137蓄積量に及ぼす影響を解析した。重回帰分析では、全国一括の解析のほか、日本海側（NW）と太平洋側（SE）での2区分ならびに北海道から九州沖縄までの5区分により計10ブロックに分けた地域別の解析を行った。

グローバルフォールアウトの初期降下量推定精度の向上

グローバルフォールアウトは、成層圏に放出されたCs-137が、対流圏から圏界面を突き抜けて成層圏まで上昇する積乱雲に捕捉されることにより降水として地表に降下する。初期降下量の推定精度を高めるために、高層気象の影響を評価した。2014年の高層気象観測データ（気象庁）を解析して圏界面高度を抽出し、圏界面の発生及び圏界面中を上昇する積乱雲の影響を組み込んでグローバルフォールアウトの初期降下量を推定した。

(2) リターの分解特性

森林のリター層における Cs-137 の存在形態を明らかにするために、福島県大玉村前ヶ岳国有林のスギ林およびアカマツ・落葉広葉樹混交林において 2012 年に採取したスギおよびアカマツ・落葉広葉樹のリター層試料を用いて、TAPPI 法に準じて有機物の逐次分画を行った。有機物画分中の Cs-137 濃度はゲルマニウム半導体検出器を用いて定量した。さらに逐次抽出により得られた残渣（硫酸残渣 - Cs 画分）をフッ化水素酸（HF）および過酸化水素水（ $H_2O_2$ ）により処理し、得られた残渣の Cs-137 濃度を測定し、各リター分解段階における Cs-137 の収着（放出）特性、特に、硫酸にも可溶化しない Cs の収着特性を検討した。

#### 4. 研究成果

##### (1) グローバルフォールアウトの蓄積量

日本の森林におけるグローバルフォールアウト起源の Cs-137 の蓄積量は、 $0.0\sim 7.9$   $kBq/m^2$  で大きくばらついていて、東北から北陸の日本海側（NW2～NW3）の地域が最大の蓄積量を示し、特異的に高かった（図 1）。日本海側より太平洋側が低く、西南日本（区画 4、5）の方が蓄積量は低かった。全国平均蓄積量は  $1.7 \pm 1.4$   $kBq/m^2$ （2008 年 10 月 1 日時点に減衰補正）であった。過去の全球レベルの推定では、日本の陸域の Cs-137 降下量は  $4\sim 9$   $kBq/m^2$  と見積もられている（Aoyama et al. 2006）。これを 2008 年 10 月 1 日に減衰補正すると  $1.7\sim 2.9$   $kBq/m^2$  に相当し、本研究の平均蓄積量と概ね一致した。ただし、森林土壌試料の測定結果は、変動範囲が大きかった。また、先行研究では極大値の分布域が日本列島東側の太平洋上に描かれており位置がずれていた。

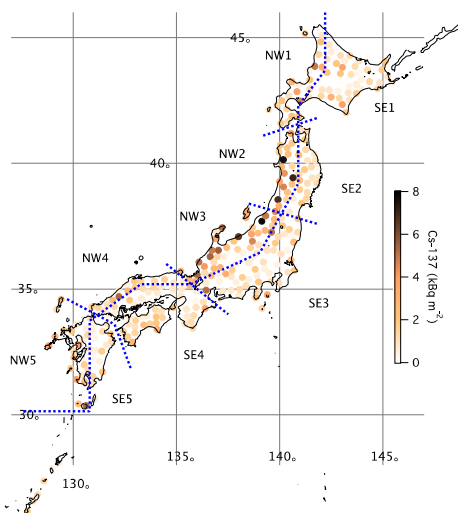


図 1. 森林土壌（0-30cm）中のグローバルフォールアウト由来の Cs-137 蓄積量の全国分布（2008 年 10 月 1 日に減衰補正）

##### (2) Cs-137 蓄積量に及ぼす環境要因

全国及び 10 ブロック別に、重回帰分析を

表 1. 重回帰分析による解析した地形要因（標高、真南からの方位角、傾斜角）と植生因子（下層植生植被率）が Cs-137 蓄積量に及ぼす影響

	全国	SE1	NW3	SE4
R二乗 調整済み	0.00	0.27	0.16	0.27
誤差の標準偏差(RMSE)	1.4	0.7	1.7	0.7
平均	1.7	1.2	3.1	1.2
モデル全体の p 値(Prob>F)	0.431	0.004	0.039	0.001
観測数(N)	306	40	39	52
パラメータの p 値(Prob> t )				
標高	0.196	0.001	0.007	0.075
真南からの方位角	0.734	0.808	0.702	<.0001
傾斜	0.274	0.579	0.107	0.017

用いて、侵食を想定した地形因子（標高、真南からの方位角、傾斜角）および植生因子が Cs-137 蓄積量に及ぼす影響を解析した。全国一括の解析では Cs-137 蓄積量を説明する有意な因子は無く、主な地形因子と植生因子から全国スケールの Cs-137 蓄積量は説明することはできなかった。ブロック別の解析では、一部のブロックでは有意な推定結果（SE1 と NW3 の標高、SE4 の方位角と傾斜角）が得られた（表 1）が、侵食過程が Cs-137 蓄積量に及ぼす影響は強いものではなかった。

アメダス観測データから作成されているメッシュ気候値 2000（気象庁）の平年値から、解析対象地点の月別降水量、夏季降水量（3-9 月）、冬季降水量（10-2 月）、年間降水量を算出し、ステップワイズ重回帰分析を用いて降水量が Cs-137 蓄積量に及ぼす影響を解析した。10 ブロックすべてにおいて、冬季降水量あるいは冬季の各月降水量が有意な説明変数として選択された（図 2）。特に Cs-137 蓄積量が多い地域（NW2、NW3）では 11 月の降水量が最も有効な説明変数であり、冬季降水量および夏季降水量と Cs-137 蓄積量の関係（図 2）においても Cs-137 蓄積量は冬季降水量の影響を強く受けていた。

研究開始当初は、地形が急峻で降水量が多い我が国では、50 年を経て Cs-137 蓄積量がかなり減少しているのではないかと予想していたが、ここまでの解析から、グローバルフォールアウト起源の Cs-137 は初期降下量のかなりの部分が森林土壌中に残存してい

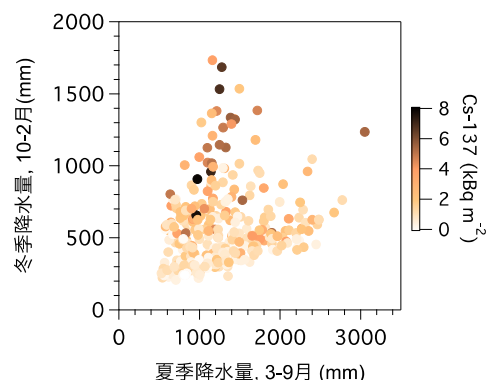


図 2. Cs-137 蓄積量と夏季降水量（3-9 月）と冬季降水量（10-2 月）の関係

ることが明らかになった。また、地形因子の影響は弱く降水量の影響を強く受けていることも明らかになった。全国の平均蓄積量では、先行研究 (Aoyama et al. 2006) と概ね一致したが、分布域では大きく異なっていたことから、研究期間を延長して初期降水量の推定精度の向上を図る試みを行った。

### (3) 初期降水量の推定精度の向上

初期降水量には、冬季降水量のほか、圏界面より上層を浮遊する Cs-137 を捕捉して降水とともに地表に降下させる発達した積乱雲の影響が大きいとされている (Reiter, 1978)。これに基づいて、2014 年の全国 16 か所の高層気象観測データを利用して圏界面の上昇特性を解析し、降水量と圏界面高度の 2 つの変数を用いた降水量モデルを作成し、高層気象の影響を Cs-137 降下量評価に組み込んだ。

$$P_{adj} = \sum_{t=1}^{12} p_t E_t$$

ただし、 $P_{adj}$ : 圏界面指数パラメータで調整した降水量、 $p_t$ : 降水量、 $E_t$ : 圏界面指数パラメータ、 $t$ : 月。

$$E_t = \mu_t + \beta_t + \alpha_t$$

ただし、 $\mu_t$ : 月平均圏界面高度、 $\beta_t$ : 圏界面高度の時間変化、 $\alpha_t$ : 圏界面上昇イベント。

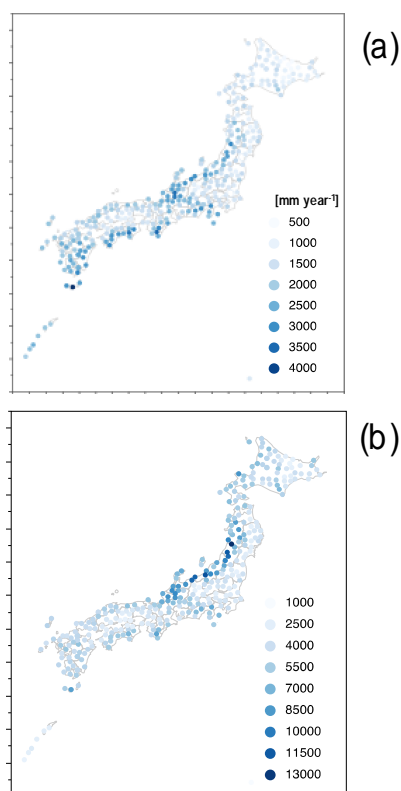


図 3. 森林土壌中のグローバルフォールアウト Cs-137 蓄積量を推定するための降水量モデルの全国分布

(a) 年降水量だけによる推定、(b) 圏界面指数パラメータを組み込んだ推定

その結果、当初の年降水量のみのモデル (図 3a) では過小評価となっていた秋田や北九州、過大評価となっていた沖縄や東海地方における Cs-137 降下量の推定精度を良化させることができた (図 3b)。全国 7 か所の気象官署における 1970 年 1 月 1 日までの Cs-137 降下量観測値を目的変数としてモデルのパラメータを決定した。この初期降水量推定モデルを全国に適用して Cs-137 降下量積算値を推定した。土壌試料の分析結果による Cs-137 蓄積量はモデル推定のおよそ 60%程度であったが、土壌分析値の空間的不均一性が大きいと、両者の間に有意な違いは無かった。以上のことから、大気圏内核実験により森林に降下した Cs-137 の大部分は、森林土壌の表層部分に沈着していると推定した。

我が国では第二次世界大戦直後は森林の荒廃が進んでおり、はげ山が各地に見られた。グローバルフォールアウトがピークを記録した 1960 年代に比べれば福島原発事故が発生した 2010 年代の方が森林が回復成長して地表が安定していると予想される。したがって、福島原発由来の Cs-137 も降下した地域の森林土壌表層に長く留まると予想される。

### (4) リターの分解特性

スギ林およびアカマツ・落葉広葉樹の新鮮リター層 (L 層) および分解が進んだリター層 (F 層) をエタノール・ベンゼン (1:2, v/v) 溶液、72%硫酸 (加熱処理時に 3%硫酸に希釈して、その後に吸引濾過) を用いて逐次的に分画処理し、得られた各分画残渣の Cs-137 濃度を定量した。その結果、全 Cs-137 のうち 6~9 割の Cs-137 が酸不溶態として硫酸残渣中に残留していた。

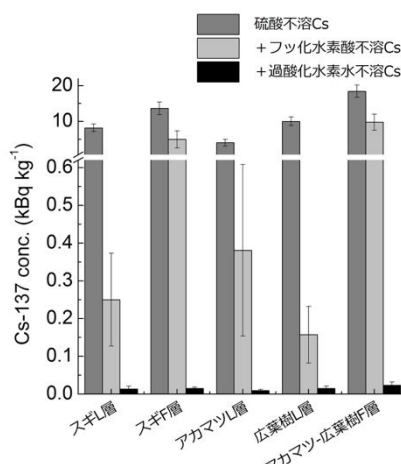


図 4. スギおよびアカマツ・落葉広葉樹のリター層の逐次抽出処理により得た硫酸、フッ化水素酸、および過酸化水素水の各残渣画分の Cs-137 濃度

この結果を受け、Cs-137 はアルカリ金属族に属する元素であるにもかかわらず、なぜ強酸である硫酸によって溶出されないのか、検討することとした。硫酸残渣中には、植物を構成する有機物成分のひとつ、リグニン構造体ばかりでなく、植物ケイ酸体などの無機成

分も含まれることから、どちらの成分が Cs をリター中から硫酸に溶出させず強固に残留させたのか明らかにすることを目的として、硫酸残渣画分に対して、46%フッ化水素酸または 30%過酸化水素水による処理を行い、得られた残渣中の Cs-137 濃度を測定した(図 4)。その結果、最初の HF 処理で、新鮮なリターからは 9 割以上の Cs が溶出する結果が得られた。反面、分解程度の進んだリターでは 4~5 割が HF 不溶 Cs として有機物残渣に残った。HF 不溶 Cs に対して H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> を処理したところ、90~96%の Cs が有機物とともに溶出した。このことから、酸不溶態有機物と Cs の間には何らかの相互作用の存在が示唆され、これがリター層を含む有機質土層への Cs 保持に寄与している可能性が考えられた。

Cs-137 は土壤中でイライトや風化黒雲母に強く吸着されることが知られているが、リター層中においても分解が進んだ有機物に強く吸着されている可能性があることが明らかになった。森林生態系内における樹木を介した Cs-137 の循環や保持特性を理解するためにはリターによる Cs-137 吸着機構の解明が不可欠である。

#### (5) 今後の研究の展望

核爆発や原発事故が発生するまでは自然界に存在していなかった Cs-137 は、1950~60 年代にグローバルフォールアウトとして地球環境に大量に放出された。土壤侵食の分野では、これをトレーサーに利用した多くの研究が行われてきた。そのような既往研究を参考に、降下した Cs-137 の約 50 年後の蓄積状況の概要を把握することができた。現在、福島原発事故で放出された放射性セシウムによる将来の樹木の汚染についての関心が高まっている。グローバルフォールアウトを利用することで、樹木の放射性セシウム濃度の将来予測にも大きな進展をもたらすことが期待される。

#### <引用文献>

- Aoyama, M., Hirose, K., Igarashi, Y., Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests 137Cs fallout, *J. Environ. Monit.* 8, 2006, 431-438  
Reiter, E. R., Atmospheric transport processes: 4. Radioactive tracers, report, 1978, 605 pp., Tech. Inf. Cent., U. S. Dept. of Energy, Washington, D. C.

#### 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 2 件)

- 三浦覚、森林の放射能汚染とこれからの課題、現代化学、査読無し、540 号、2016 年 3 月号、40-43

#### [学会発表](計 9 件)

三浦覚、伊藤江利子、青山道夫、志知幸治、日本の森林土壤中のグローバルフォールアウト、日本森林学会大会 128 回、2017 年 3 月 26~29 日、鹿児島大学(鹿児島県鹿児島市)

Miura, S., Consequences of radiation disaster by a nuclear accident for people living on forest products, IUFRO Regional Congress for Asia and Oceania 2016, 2016 年 10 月 24~27 日、北京(中国)

Ito, E., Miura, S., Aoyama, M., Shichi, K., Ono, K., How much the radiocesium fallout remain in forest surface soils?, Japan Geoscience Union Meeting 2016, 2016 年 5 月 22~26 日、幕張メッセ(千葉県幕張市)

三浦覚、益守真也、高田大輔、関谷信人ほか、グローバルフォールアウト Cs-137 を利用したコナラの移行係数推定、日本森林学会大会 127 回、2016 年 3 月 27~30 日、日本大学生物資源学部(神奈川県藤沢市)

Miura, S., Aoyama M., Ito, E., Shichi, K., Takata D., Masamori, M., et al., Towards prediction of redistribution of fallout radiocesium on forested area discharged from Fukushima Nuclear Power Plant, Geophysical Research Abstracts, European Geosciences Union 2015, 2015 年 4 月 12~17 日、ウィーン(オーストリア)

三浦覚、志知幸治、伊藤江利子、金子真司、森林土壌における福島原発事故前の放射性セシウム蓄積量、日本土壌肥料学会 2014 年度東京大会、2014 年 9 月 9~11 日、東京農工大学(東京都小金井市)

#### [図書](計 1 件)

Miura, S., Springer Japan, The effects of radioactive contamination on the forestry industry and commercial mushroom-log production in Fukushima, Japan, Agricultural implications of the Fukushima nuclear accident; The first three years, Editors: Nakanishi, T. M., Tanoi, K., 2016, 145-160

#### [その他]

森林のセシウムはどこへ?、東京大学広報誌 弥生 61、

<http://www.a.u-tokyo.ac.jp/pr-yayoi/61.pdf>

森林から流出せず、福島民報、2015 年 4 月 19 日付け記事

森のセシウム 土壌が遮蔽、東京新聞、2015 年 4 月 20 日付け記事

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

三浦 覚 (MIURA, Satoru)

国立研究開発法人森林総合研究所・立地環境研究領域・領域長

研究者番号：3 0 3 5 3 8 6 6

### (2) 研究分担者

志知 幸治 (SHICHI, Koji)

国立研究開発法人森林総合研究所・立地環境研究領域・主任研究員

研究者番号：1 0 3 5 3 7 1 5

伊藤 江利子 (ITO, Eriko)

国立研究開発法人森林総合研究所・北海道支所・主任研究員

研究者番号：2 0 3 5 3 5 8 4

小野 賢二 (ONO, Kenji)

国立研究開発法人森林総合研究所・東北支所・主任研究員

研究者番号：3 0 3 5 3 6 3 4

青山 道夫 (AOAYMA, Michio)

福島大学・環境放射能研究所・特任教授

研究者番号：8 0 3 4 3 8 9 6

### (3) 連携研究者

なし

### (4) 研究協力者

金子 真司 (KANEKO, Shinji)