

研究資料 (Research record)

森林流域から流出する放射性セシウムの調査法

小林 政広^{1)*}、坪山 良夫²⁾、篠宮 佳樹³⁾、池田 重人⁴⁾

要旨

福島原発事故由来の放射性セシウムの森林流域からの流出を明らかにするために福島県内 6 カ所の森林で行った調査の方法を紹介する。渓流水中の放射性セシウムは、主に増水したときに発生する懸濁物質に含まれた形態(懸濁態)で流出することが想定されたため、原水での測定で放射性セシウムが検出された試料については濾過後に再度測定して懸濁態の寄与を明らかにした。また、流出水中の放射性セシウム濃度は濁度と明瞭な相関があることを利用し、濁度と流量を連続測定することで一定期間の放射性セシウム流出量を推定する方法も示した。

キーワード：福島原発事故、放射性セシウム、流出、渓流水、懸濁物質

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所(福島原発)の事故により環境中に放出された放射性物のうち、中長期の影響が懸念される放射性セシウム(Cs-134 および Cs-137)は、周辺地域の森林に乾性沈着および湿性沈着として流入し、一部が樹冠に補足され、残りが林床に達した(林野庁 2011, 金子ら 2012)。その後、森林内の放射性セシウムは樹冠からリター(堆積有機物)層、リター層から鉱質土壌層へと移行しており(林野庁 2014, 金子ら 2014)、その一部は林内を移動する水によって輸送されている(小林 2014)。地上から地下へと移動する水は、蒸発散で大気へ戻される分を除けば、やがて流出する。その水は下流において水道原水や農業用水として利用されるとともに、溪流や下流水域の生態系を支えているので、水の動きとともに放射性セシウムの動態を監視する必要がある。

福島原発事故の直後、各地の浄水場において放射性ヨウ素が高濃度で検出され、飲料水の放射能汚染という事態が現実のものとなり、国民生活に大きな影響を及ぼした。放射性ヨウ素は半減期が 8 日と短いため、その後短期間で河川水等からは検出されなくなった。一方、放射性セシウムについては、放射性ヨウ素が検出されている間においても当時の測定の検出下限を上回る事例はわずかであった。これはセシウムが土粒子に強く捕捉される性質をもつためと理解されている(Fujii et al. 2014)。ただし、降雨により増水して土粒子等の懸濁物質が流出する際には、それに保持されている放射性セシウムが一緒

に流出することが知られており、厚生労働省による「水道水等の放射能測定マニュアル」(厚生労働省健康局水道課 2011)においてもこのことが想定されている。

ここでは、森林からの放射性セシウム流出の実態解明を目的として森林総合研究所が実施した調査の方法を紹介する。なお、これら調査結果の多くは森林総合研究所からプレスリリースとして発表されている(森林総合研究所 2012a 2012b 2012c)。

2. 試験地と試料採取方法

2.1 試験地

福島県内の汚染程度の異なる 6 カ所(飯舘村、伊達市、二本松市、会津若松市、郡山市、広野町)の森林に設定した試験地において、渓流水を毎日 1 回採取する定時採水を行い、Cs-134 および Cs-137 の濃度を測定する調査を 2012 年 3 月 1 日から開始した。図 1 に各試験地の位置および降水量データを利用した最寄りのアメダス観測点の位置を示す。表 1 に各試験地の概況をまとめた。

このうち会津若松、郡山、広野は融雪期のみの調査とし、4 月 30 日まで採水を継続した。また、二本松は梅雨明け後までの調査とし、7 月 31 日まで採水を継続した。飯舘および伊達の 2 カ所は、台風の多い時期が終わるまでの調査とし、10 月 31 日まで採水を継続した。また、増水時の懸濁物質増加にともなう放射性セシウム濃度増加について詳しく調べるため、飯舘および伊達では 8 月 1 日から毎日 1 回の定時採水に加えて、降雨時に 1 時間に 1 回行う採水を追加した。

原稿受付：平成 26 年 7 月 15 日 原稿受理：平成 26 年 7 月 30 日

1) 森林総合研究所企画部

2) 森林総合研究所水土保全研究領域

3) 森林総合研究所東北支所

4) 森林総合研究所立地環境研究領域

* 森林総合研究所企画部 〒305-8687 茨城県つくば市松の里 1

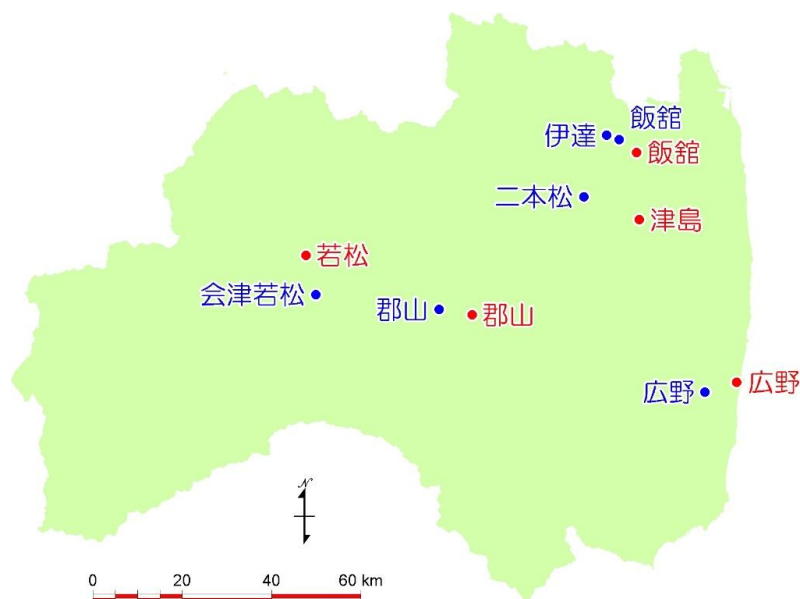


図 1. 試験地 (青) および最寄りのアメダス (赤) の位置

Fig. 1. Locations of study sites (blue) and the nearest AMeDAS stations (red).

表 1. 試験地概況

Table 1. Overview of the study sites.

試験地	集水面積 (ha)	Cs-137 沈着量 (kBq m ⁻²)
会津若松	27	<10
郡山	2	110
広野	134	97
二本松	13	300
伊達	14	610
飯舘	52	700

Cs-137 沈着量は「航空機モニタリング」(2012 年 6 月 28 日換算) (文部科学省 2012) の値

Cs-137 inventory at study sites are interpolated using the airborne monitoring data by MEXT (normalized to Jun 28, 2012)

2.2 定時採水

定時採水では、自動採水装置 (ISCO6712) を用いて毎日 14 時に 2L の渓流水を採取した (写真 1)。採水時刻を 14 時としたのは、調査を開始した融雪期においては主に昼過ぎから夕方にかけて流量が増加し、懸濁物質が増えることが予想されたためである。自動採水装置による採水では、採水時刻にチューブポンプが作動すると渓流内に固定されているチューブ末端の取水口から水が汲み上げられ、装置内の分取ボトルに設定量の水が導入される。取水口は河床から浮かせた状態で、水が滞ることのない、かつ、取水時に河床の堆積物をまきあげるような位置に固定した。これは、流出水中の放射性セシウムでは懸濁態の寄与が重要であり、流水中の懸濁物質を自然な形で採取する必要があるためである。また、

採取量を 2L としたのは、後述するゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能測定において、可能な限り短時間で測定値を得るために広く用いられている 2L マリネリ容器を使用することを前提としているためである。

2.3 降雨時採水

定時採水と並行して、専用に増設した自動採水装置を用いて増水時の渓流水の連続採水を行った。この採水では、採水装置に接続した雨量計で林内の雨量を測定し、降雨強度が 1 時間あたり 1mm を越えた時点から 1 時間間隔で 2L の渓流水を 12 回採取した。降雨時採水用の自動採水装置には水圧式水位センサーを接続し、採水口の高さを基準に水深を記録し、増水による水位の変化を測定した。



写真 1. 自動採水装置

Photo 1. Automatic water sampler.

3. 水試料の放射能測定

3.1 試料の保管

自動採水装置内の分取ボトルに採取された水試料は、試料回収時に密閉性の高い2Lポリプロピレン製容器（アイボーイ広口ビン）に移し替えた。移し替えの際、郡山以外で採取した試料には、「緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法」（文部科学省, 1992a）にならい、2Lあたり6gの塩化ナトリウムを添加した。2L容器に移し替えた試料は冷蔵室内にて保管した。

3.2 濾過

前述したとおり、河川水中の放射性セシウムについては、水に含まれる懸濁物質に放射性セシウムが結びついた懸濁態の寄与が重要である。本調査においても、この点を念頭に置き、まず懸濁物質を含む原水の状態でCs-134およびCs-137の濃度を測定し、検出下限値として設定した1Bq/Lを超えた試料については、濾過を行って濾液の放射能を再度測定することとした。濾過には捕留粒子径0.5 μ mのガラス繊維フィルター（桐山製作所 SS-47、捕留粒子径：0.5 μ m、材質：ガラス繊維、直径：47mm）を用いた。ガラス繊維フィルターを用いたのは、懸濁物質の炭素含有率推定のために強熱減量測定や酸等を用いた抽出実験を行うことを想定しているためである。フィルターは使用前に蒸留水で洗浄し、乾燥機で乾燥させた後に電子天秤で質量を測定してから濾過に用いた。濾過後の懸濁物質はフィルターと共に乾燥機で乾燥させた後に秤量し、フィルターの質量を差し引いて懸濁物質の質

量を求めた。濾液についても質量を測定し、密度1として体積を求めた。

3.3 放射性セシウム濃度測定

水試料は、ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリー（文部科学省 1992b）によりCs-134およびCs-137の濃度を測定した。測定容器には2Lマリネリ容器を使用した。測定に先立ち、同じマリネリ容器で作成した多核種の標準線源を用いて半導体検出器の効率校正を行った。

マリネリ容器に2Lの水試料を直接入れ、フタをした後、容器を汚染防止のための使い捨ての薄手のポリエチレン袋に入れて検出器の測定室に導入した。水試料量が2Lより若干少ない場合があったため、このときは蒸留水を加えて2Lにして測定を行い、加えた水の量を勘案して濃度補正した。なお、懸濁物質を含む原水では、懸濁物質が沈降して底部に集まることもあり、これは厳密には試料の均一性を前提とした測定方法において誤差をもたらす可能性がある。しかし、放射性セシウム流出を多地点でモニタリングする緊急の調査として開始したため、多数の試料について一定レベルの放射性セシウムの有無を迅速に測定することを優先して、原水を測定することを基本とした。検出下限値は1Bq/Lとした。これは環境省によるモニタリング「平成23年度公共用水域放射性物質モニタリング調査結果（まとめ）」（環境省 2011）における検出下限値が1Bq/Lであることに準拠した。使用したゲルマニウム半導体検出器では、3600秒の測定でこの下限値を十分に確保することができた。

4. 測定結果の例

4.1 定時採水の結果

3月～4月（融雪期）、5月～7月（梅雨期）、8月～10月（台風期）に毎日1回採水した試料については、大部分からは放射性セシウムは検出されなかった（図2）。一部の試料からは放射性セシウムが検出されたが、これらはいずれも降雨のあった日に採水されたものであった（図3）。また、放射性セシウムが検出された試料には懸濁物質が見られた。このことから放射性セシウムは懸濁物質に含まれるものと考えられた。これら試料を濾過して再度放射能測定したところ、放射性セシウムは検出されなかった。以上より、森林流域から流出する水に含まれる放射性セシウムは、主に懸濁物質に含まれていることが確認された。

4.2 降雨時採水の結果

降雨時に1時間おきに採取した試料では、定時採水試料より高い割合で放射性セシウムが検出された。降雨により溪流が増水すると、一時的に放射性セシウム濃度が上昇した（図4）。また、この際、懸濁物質濃度が放射性セシウム濃度とほぼ同じように上昇していた。放射性セシウムが検出された試料を濾過して再度放射能測定したところ、ほとんどの試料で不検出となり、検出された試料も濾過前より大幅に値が低下した。これらの結果から、森林からの放射性セシウムの流出は、懸濁物質に含まれた形態が主体であり、降雨時に増水して懸濁物質濃度が上昇したときに放射性セシウム流出量も増加することが分かった。

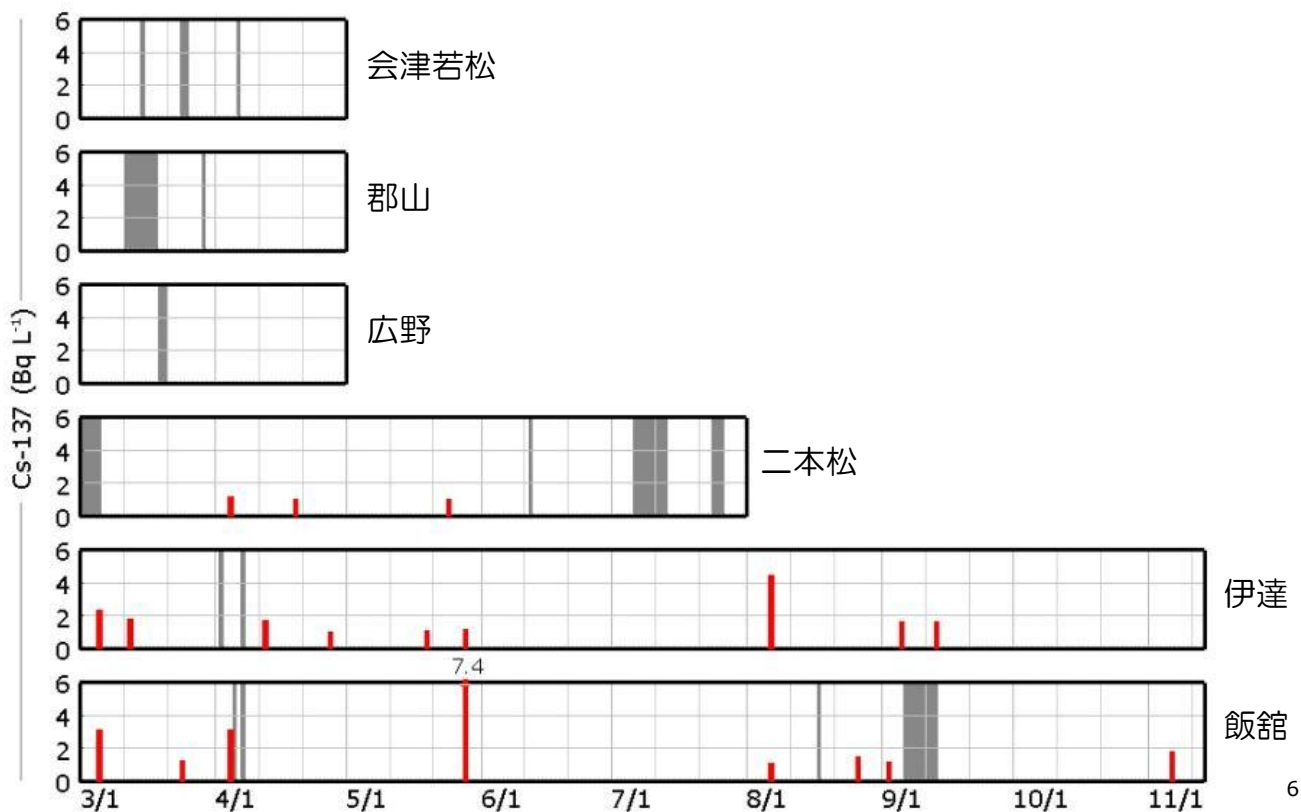


図2. 定時採水試料のCs-137濃度。網掛けは欠測を表す

Fig. 2. Cs-137 concentration of daily sampled water. Gray shaded areas represent missing data.

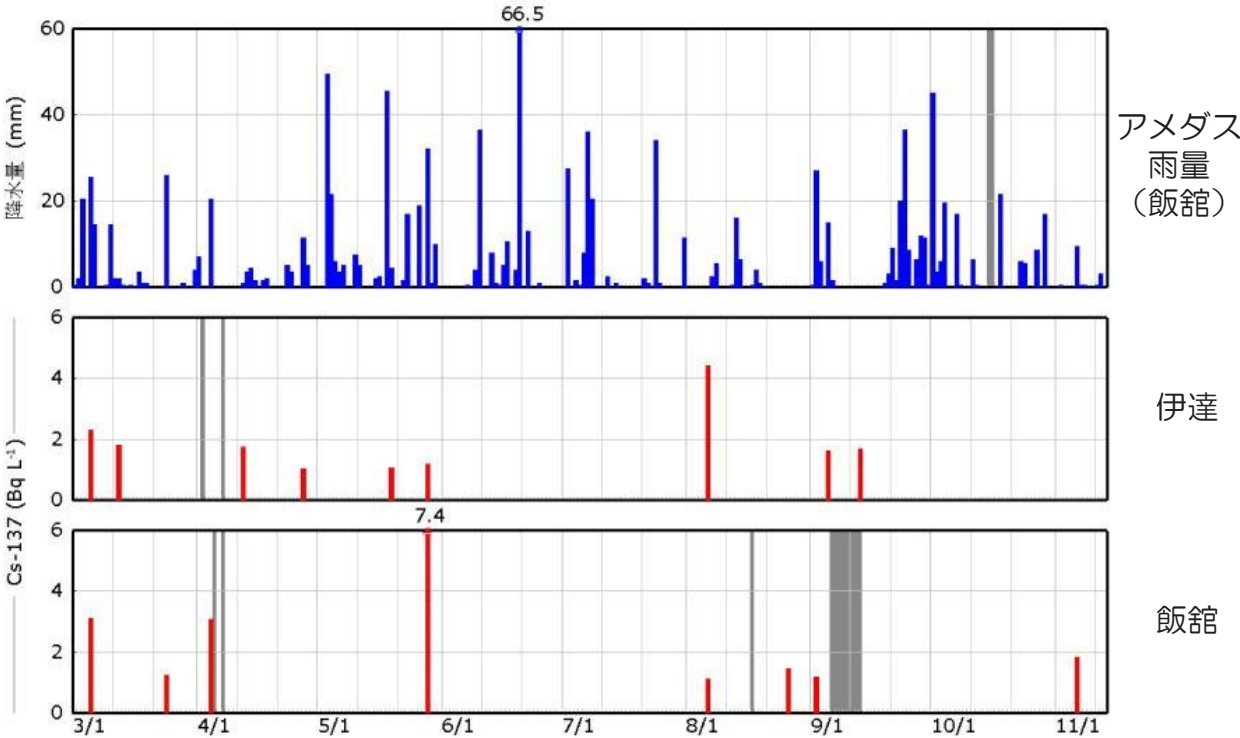


図 3. 降雨と Cs-137 検出の関係。網掛けは欠測を表す
Fig. 3. Relationship between rainfall and Cs-137 concentrations. Gray shaded areas represent missing data.

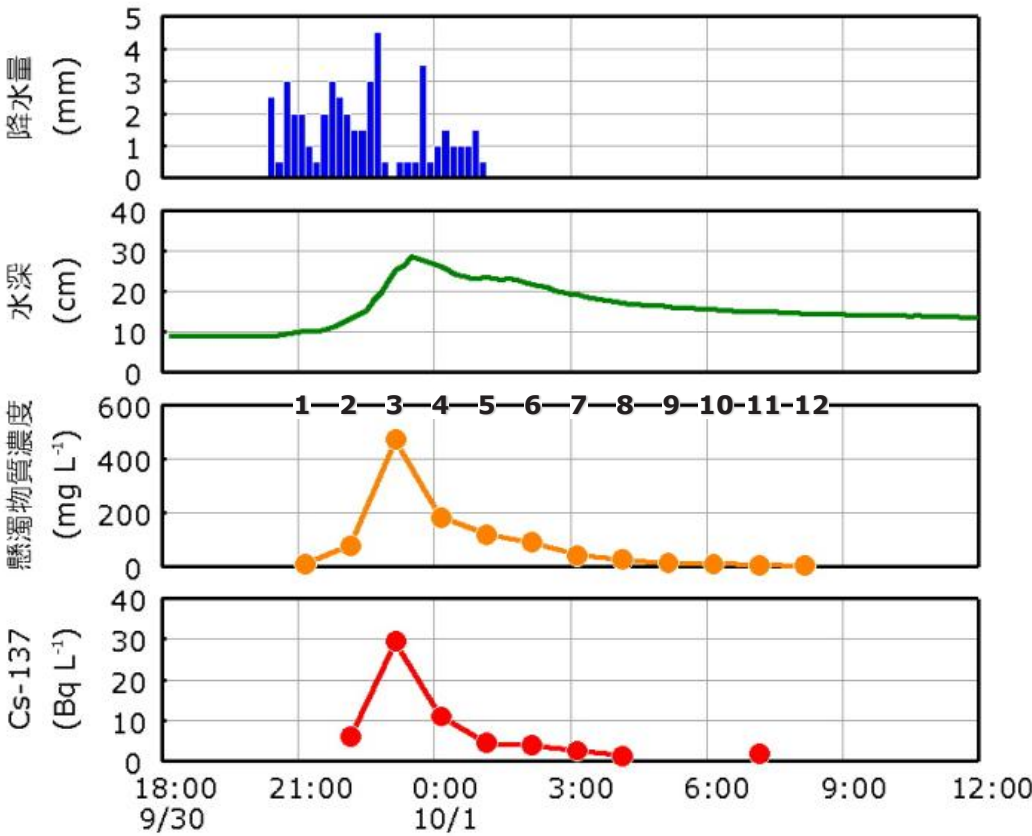


図 4. 降雨時採水データの例
Fig. 4. Example of event sampling data.

5. 一定期間の放射性セシウム流出量の推定

前述のように、森林流域からの放射性セシウムは主として降雨時に懸濁物質とともに流出している。一定期間の放射性セシウム流出量を把握したい場合、全ての増水について採水および試料測定を行うことは労力的に難しく、現実的ではない。これに代わるものとして、連続測定かつ自動記録可能な濁度データを用いて一定期間の放射性セシウム流出量を推定する方法がある。ここでは、郡山市に位置する福島県林業研究センター多田野試験林における放射性セシウム流出量推定（篠宮ら 2013）の方法を紹介する。なお、対象とした小流域は定時採水を行った流域とは異なる。

放射性セシウム流出量の推定のためには、自動採水装置を用いた降雨時採水に加えて、水流出量および濁度の連続測定を行う必要がある。多田野試験林では、Vノッチ式の量水堰を設置して水位を連続測定し、別途定めた水位と流量の関係から水流出量の連続測定データを得た。また、濁度は量水堰内に設置した濁度センサーを用いて 10 分間隔で測定した。濁度センサーは自動採水装置の取水口と同様に、量水堰内において水の流れが滞らない位置に設置することが重要である。なお、ここで採取した試料については、共存イオンや溶存有機炭素の測定も行ったため、塩化ナトリウムを添加しなかった。

2012 年の 9 つの出水において自動採水装置で採取した水試料の放射性セシウム濃度（濾過せず懸濁物質を含んだ状態で測定）と採取時刻直近の濁度との間には明瞭な正の相関関係が認められた（図 5）。なお、時間経過とともに Cs-137 濃度は減衰するため、全ての Cs-137 濃度は任意の基準日（例えば 2011 年 4 月 1 日など）に換算してから、濁度と Cs-137 濃度との関係を解析した。

回帰された関数を用いることにより、濁度データを Cs-137 濃度に換算し、さらに、推定された Cs-137 濃度と流量の積を一定期間積算することにより Cs-137 流出量を推定した。多田野試験林の対象流域については、2012 年 3 月 20 日～2013 年 3 月 14 日の 360 日間の Cs-137 流出量は 199 Bq m^{-2} と推定された。これは航空機モニタリングによる同流域の推定沈着量の 0.3% であり、放射性セシウムは大部分が森林内に保持され続けており流出は限定的と言える。日雨量 5mm 以上の日を増水時とすると、Cs-137 は増水時に 90% が流出した計算になる。

6. まとめと課題

上に紹介したような方法で調査を行った結果、森林流域からの放射性セシウムの流出は懸濁物質に含まれる形態、すなわち懸濁態が主であり、降雨により流量と懸濁物質濃度がともに増加したときに流出量も増加することが確認された。森林からの放射性セシウム流出のモニタリングでは、懸濁物質の寄与を正しく評価できる方法を用いることが重要である。ここで紹介した緊急調査では

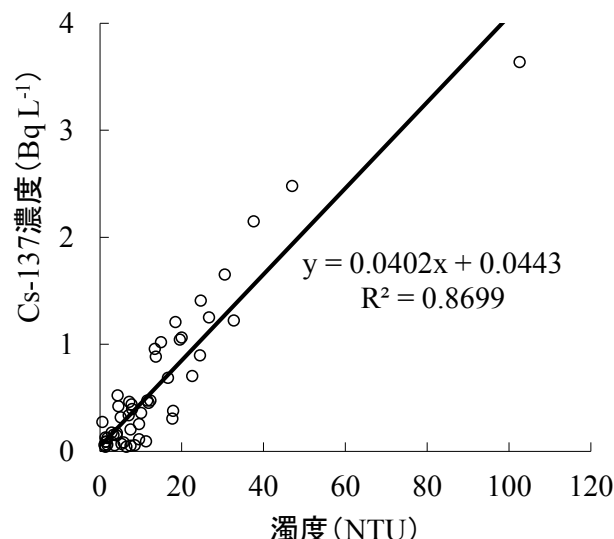


図 5. 採水試料の濁度と Cs-137 濃度の関係

Fig. 5. Relationship between the turbidity and Cs-137 concentration.

採取試料の濾過前後で放射能測定を行ったが、正確な測定には、懸濁物質を捕捉した濾紙と濾過水を個別に測るか、懸濁物質を含む水をゲル化させて測る（北島ら 2013）が必要あり、我々の継続調査では前者の方法に順次切り替えている。

今後はさらに、放射性セシウムを運んでいる懸濁物質の組成、すなわち鉱物であるか有機物であるかについても明らかにする必要がある。前者の場合、放射性セシウムが強く保持されているため流出先で水に溶けた形態（溶存態）になる可能性は低い、後者の場合は分解により溶存態になり、生物が吸収する可能性があるためである。

また、ここで紹介した定時採水と降雨時採水の調査では 1 Bq/L 未満を不検出としたが、溶存態の放射性セシウムについては、この検出下限に満たない低い濃度レベルであっても生物生産に影響を及ぼす可能性がある。例えばイネの水耕栽培実験では、 0.1 Bq/L という低濃度の水耕液でも茎葉部に約 80 Bq/kg （乾物）の放射性セシウムが蓄積することが示されている（根本 2013）。このような背景から、森林から流出する水に含まれる放射性セシウムの濃度をより低いレベルまで明らかにすることも課題である。

謝辞

ここで紹介した調査は、農林水産省農林水産技術会議委託プロジェクト「森林内の放射性物質に由来する影響を低減させる技術の開発」によって実施した。

引用文献

- Fujii, K., Ikeda, S., Akama, A., Komatsu, M., Takahashi, M., and Kaneko, S. (2014) Vertical migration of radiocesium and clay mineral composition in five forest soils contaminated by the Fukushima nuclear accident, *Soil Sci. and Plant Nutr.* (2014), DOI:10.1080/00380768.2014.926781
- 金子真司・外崎真理雄・清野嘉之・池田重人・黒田克史・田中浩・川崎達郎・齋藤哲・梶本卓也・阿部真・杉田久志・矢崎健一・太田敬之・三浦覚・大貫靖浩・阪田匡司・篠宮佳樹 (2012) 東京電力福島原子力発電所事故による森林放射能汚染の実態調査. 関東森林研究 63-(1), 97-100.
- 金子真司・高橋正通・池田重人・赤間亮夫 (2014) 福島原発事故による森林生態系における放射性セシウム汚染とその動態, 日土肥誌, 85(2), 86-89
- 環境省 (2011) “平成 23 年度公共用水域放射性物質モニタリング調査結果 (まとめ)”, http://www.env.go.jp/jishin/monitoring/results_r-pw-h23.html.
- 北島枝織・畠山雅人・土屋貴史・保高徹生 (2013) 高濃度懸濁物質を含む環境水中の放射性セシウム定量へのゲル化法の適用, 分析化学, 62, 513-519.
- 小林政広 (2014) 森林における放射性 Cs の動態, 土壌の物理性, 126, 31-36.
- 厚生労働省健康局水道課 (2011) “水道水等の放射能測定マニュアル”, http://www.mhlw.go.jp/file/06-Seisakujouhou-10900000-Kenkoukyoku/houshasei_manual_20120206_01.pdf.
- 文部科学省 (1992a) “緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリのための試料前処理法”, 51pp, <http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No24.pdf>
- 文部科学省 (1992b) “ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリ”, 362pp, <http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No7.pdf>
- 文部科学省 (2012) “第 5 次航空機モニタリング及び福島第一原子力発電所から 80km 圏外の航空機モニタリング”, 平成 24 年 9 月 28 日発表, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/index.html>
- 根本圭介 (2013) 放射性セシウムのイネへの移行, 化学と生物, 51, 43-45.
- 林野庁 (2011) “森林内の放射性物質の分布状況調査結果について”, 平成 23 年 12 月 23 日発表, http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/hozen/pdf/111227_2-01.pdf
- 林野庁 (2014) “平成 25 年度森林内の放射性物質の分布状況調査結果について”, 平成 26 年 4 月 1 日発表, http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/ken_sidou/pdf/140401-01.pdf.
- 篠宮佳樹・玉井幸治・小林政広・大貫靖浩・清水貴範・飯田真一・延廣竜彦・澤野真治・坪山良夫・蛭田利秀 (2013) 森林からの流出水に含まれる放射性物質の動態, 関東森林研究, 64, 53-56.
- 森林総合研究所 (2012a) “融雪期における渓流水中の放射性物質の観測結果”, 平成 24 年 6 月 12 日発表, <http://www.affrc.go.jp/press/2012/20120612/documents/20120612.pdf>.
- 森林総合研究所 (2012b) “梅雨期における渓流水中の放射性物質の観測結果”, 平成 24 年 9 月 21 日発表, <http://www.affrc.go.jp/press/2012/20120921/documents/20120921.pdf>.
- 森林総合研究所 (2012c) “8 ～ 10 月における渓流水中の放射性物質の観測結果”, 平成 24 年 12 月 20 日発表, <http://www.affrc.go.jp/press/2012/20121220/documents/20121220.pdf>.

Methods of assessing radiocesium runoff from forested watersheds

Masahiro KOBAYASHI^{1)*}, Yoshio TSUBOYAMA²⁾, Yoshiki SHINOMIYA³⁾ and Shigeto IKEDA⁴⁾

Abstract

Potential methods for investigating runoff containing Fukushima-derived radiocesium from six forested watersheds in Fukushima prefecture are introduced. It was assumed that radiocesium is associated with suspended solids (SS) when the stream swells during a rainfall event. Therefore, the contribution of the radiocesium associated with SS was determined by measuring radioactivity before and after sample filtration. A method for estimating the cumulative radiocesium runoff in a certain period using flow rate and turbidity data, which is based on the clear relationship between the radioactivity and the turbidity of the runoff water, is also indicated.

Key words : Fukushima nuclear accident, radiocesium, runoff, stream water, suspended solid

Received 15 July 2014, Accepted 30 July 2014

1) Research Planning and Coordination Department, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)

2) Department of Soil and Water Conservation, FFPRI

3) Tohoku Research Center, FFPRI

4) Department of Forest Site Environment, FFPRI

* Research Planning and Coordination Department, FFPRI, Matsunosato 1, Tsukuba, Ibaraki 305-8687, Japan; e-mail: kbmasa@affrc.go.jp