

未耕耘、未除染農地における放射性セシウムの深度分布と移動速度

中山秀貴¹・齋藤正明・片桐優亮²・永井華澄

Vertical distribution and rate of downward migration of radiocesium in uncultivated and non-decontaminated farmland in Fukushima Prefecture

Hidetaka NAKAYAMA¹, Masaaki SAITOU, Yuusuke KATAGIRI² and Kasumi NAGAI**Abstract**

At the Fukushima Prefectural Agricultural Research Centre, we investigated the depth distribution of radiocesium (RCs) in three sites (paddy field, arboretum, and grassland) that had not been cultivated and decontaminated since the 2011 accident at the Tokyo Electric Power Company's Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. At all sites, 90% of the RCs was confined to the upper 100 mm of soil. The rates of downward migration of RCs were 1-5 mm/year and decreased over time. The physical and chemical properties of the surface soil at each study site were investigated. However, there were no clear relationships between them and the rates of migration.

(Received October 4, 2021 ; Accepted March 17, 2022)

Key words : radiocesium, vertical distribution, uncultivated farmland, non-decontaminated farmland

キーワード : 放射性セシウム、深度分布、未耕耘農地、未除染農地

受付日 2021年10月4日、受理日 2022年3月17日

* 本研究の一部は、2020年9月、日本土壌肥料学会で発表した。

1 現農業総合センター会津地域研究所

2 現相双農林事務所農業振興普及部

1 緒言

2011年3月11日の東京電力福島第一原子力発電所事故（東電事故）により、福島県内の広範な農地に放射性セシウム（RCs）が降下した。表層に降下したRCsは、事故直後ではその多くが地表面に存在するが、事故後、時間経過とともに下方へ移動していることが報告されている^{9) - 17)}。

長期的な土壌中の鉛直分布に関するデータは、下方移行の将来予測のみならず、作物への吸収移行リスク評価、外部被ばく線量評価、物理的除染等の観点からも重要な情報である。福島県農業総合センターにおいても、表土剥ぎ等の除染及び作付けを行わない調査定点を設け、RCsの鉛直分布の推移を継続調査している。今回、それらの定点の土壌中のRCsの鉛直分布の経時変化の実態と移動速度に影響すると考えられる土壌要因について調査したので報告する。

2 試験方法

(1) 調査地点

調査を2014年から2020年まで福島県内の福島県農業総合センター試験圃場3地点で行った（表1）。いずれの地点も、事故当時は露地状態で栽培作物は無かった。また、2011年以降、除染作業、耕起等を

行っていない。調査回数は地点により異なり、相馬水田、郡山樹園地は3回（2014、2016 および2019年）、福島草地は2回（2017 および2020年）で、計8回の調査を行った。

(2) ¹³⁷Cs 鉛直分布調査

スクレーパープレート（150mm×300mm、図1）を用いて土壌採取を行った。採取深、採取層厚は調査回によって異なる（表2）。一部の調査では、下層土の採取に100ml円筒コア（高さ51mm×φ50mm）を用いた。各調査での土壌採取を圃場内の3地点で行った。3地点の採取土壌を混合せず、風乾、粉碎し、



図1 土壌採取で用いたスクレーパープレート

表1 調査地点

調査地点名 (市町村、圃場地点)	地目	土壌 タイプ	降水量 (mm/年)	調査年	2011年以降の圃場管理		
					作付	トラクター等耕耘	機械除草
相馬水田 (相馬市、浜地域研究所)	水田	灰色低地土	1,382	2014 2016 2019	無し	無し	あり
郡山樹園地 (郡山市、農業総合センター本部)	樹園地 (未植栽圃)	褐色低地土	1,095	2014 2016 2019	無し	無し	あり
福島草地 (福島市、畜産研究所)	草地	黒ボク土	1,188	2017 2020	牧草	無し	—

※いずれの圃場も除染作業なし。降雨等による表土浸食・流去は認められない。

※年間降水量は近傍アメダス観測所の2011年～2019年の平均値。

※郡山樹園地は2011以前から未植栽。

表2 各調査での採取深と採取層厚

調査地点名	調査回	調査年・月	採取深(mm)	採取層厚
相馬水田	1	2014・7	150	10mm単位で採取。
	2	2016・10	200	10mm単位で採取。
	3	2019・9	450	300mm深までは20mm単位。300～450mm深までは円筒採土器により50mm単位で採取。
郡山樹園地	1	2014・7	150	10mm単位で採取。
	2	2016・8	200	10mm単位で採取。
	3	2019・7	450	300mm深までは20mm単位。300～450mm深までは円筒採土器により50mm単位で採取。
福島草地	1	2017・8	300	10mm単位で採取。
	2	2020・8	450	300mm深までは20mm単位。300～450mm深までは円筒採土器により50mm単位で採取。

2mm 目のふるいで調整した。調整後、U8 容器に充填し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて土壤中 ^{137}Cs 濃度を測定した。測定データは、2020 年 12 月 1 日時点で半減期補正を行った。

測定結果より、 ^{137}Cs 濃度の深度分布を図 2 に示した。図での縦軸層厚のプロットは 20mm 単位とし、10

採取し、調査を行った。

表層から 50mm 毎に深度 200mm までの 4 層を対象に、孔隙率、仮比重の測定のための試料を 100ml 円筒コアで 3 試料採取した。また、粒径組成、CEC、全炭素、細根量測定のための土壌試料を移植ベラで層別に 500g 程度採取した。さらに、土壌採取時に各層

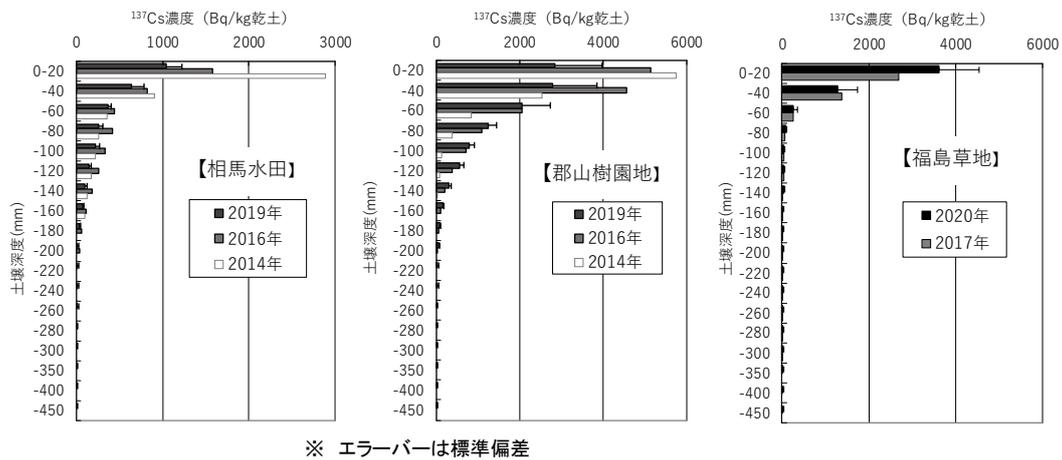


図 2 ^{137}Cs 濃度の鉛直分布の推移

mm 層厚での採取調査では、その層厚が含まれる ^{137}Cs 濃度 2 値の平均値を用いた。また、このデータを基に、各層のかさ密度は考慮せず、 ^{137}Cs の鉛直存在割合を図示した。これらのデータを基に 90% 深度（各層のかさ密度は考慮せず算出した ^{137}Cs 含量の 90% が含まれる深度）及び重心深度（ $\sum hi \cdot Ci \cdot \Delta hi \cdot (\sum Ci \cdot \Delta hi)^{-1}$ (Ci : i 層の ^{137}Cs 濃度、 hi : 中点の深さ、 Δhi : 層の厚さ) ¹²⁾ を算出した。 ^{137}Cs は事故時のフォールアウトにより各圃場の表面に落下し、その後下方へ浸透移動するものとした。また、2011 年の事故以前に蓄積していた大気圏核実験由来の表面土壌中の ^{137}Cs 濃度は 6 Bq/乾土程度 ⁶⁾ であり、考慮しなかった。移動速度は、各調査回での重心深度を事故後経過年で除した値を平均重心深度移動速度として算出した。また、調査毎の重心深度及び経過年数を差し引いた値を用い、調査間重心深度移動速度として求めた。第 1 回調査においては、2011 年 3 月時点の重心深度を 0 mm として算出した。

(3) 表層土壌の特性把握

RCs の鉛直分布に影響を与える土壌特性を明らかにすることを目的に、2020 年 4 月に 3 地点で土壌を

断面の土壌硬度（山中式土壌硬度計）を測定した。

円筒コア試料を用い、土層毎の孔隙率を土壌三相計により測定した。また、仮比重を円筒コア試料の 105°C 乾燥前後の重量差から求めた。移植ベラ採取土壌を風乾、粉碎し、2mm 目のふるいで調整した風乾土を用い、粒径組成をピペット分析により、全炭素を乾式燃焼法により求めた。CEC をホルモール法により求めた。その際、アンモニウム飽和に 1M 酢酸アンモニウム (pH 7) を用い、抽出を固液比 1 : 12.5 で行った。移植ベラ採取土壌の未乾燥土壌 100g に含まれる植物根を分別、乾燥、重量を測定し、仮比重を用いて根量 (mg/L) を求めた。

3 結果及び考察

(1) ^{137}Cs 鉛直分布

大気圏内核実験由来、あるいは 1986 年のチェルノブイリ原発事故由来の ^{137}Cs の下方浸透速度は極めて遅く、表層付近にとどまっているとの報告が多い ¹⁾。また、チェルノブイリ事故後の調査で、地表面に沈着した放射性物質は、地表面への降下直後は地表面付近の平面線源として近似できるが、時間とともに地中に浸透し、多くの場合、深さ方向の指数

分布を示すこと¹¹⁾が報告されている。

今回、いずれの調査でも、¹³⁷Cs 濃度の鉛直分布は表層に濃度のピークを持つ典型的な指数分布を示していた(図2)。このデータを基に、各調査地点の存在割合を図3に、¹³⁷Cs の90%深度と重心深度を表3に示した。相馬水田では、2014年から2016年で下層での存在割合は増加していたが、その後の2019年ではほぼ同じであった。2014、2016及び2019年における相馬水田での¹³⁷Cs の90%深度は、80、109、108mm、重心深度は32、49、55mmであった。一方、郡山樹園地では、2014年の第1回から2019年の第3回まで、調査回が進むほど下層での存在割合が増加した。2014、2016及び2019年における郡山樹園地での¹³⁷Cs 90%深度は、42、72、98mm、重心深度は23、37、51mmであった。福島草地では、2017年と2020年で存在割合の違いはほとんどなく、2017及び2020年の¹³⁷Cs の90%深度は、38、38mm、重心深

度は22、28mmであった。調査3地点において、下層での¹³⁷Cs 存在割合が急激に増加するケースは見られず、また、2019/2020年時点での¹³⁷Cs の90%深度は33~108mmであった。

(2) 下方移動速度

チェルノブイリ事故後、欧州での土壌中におけるRCsの鉛直移動速度は、一部の泥炭土や砂質土壌を除けば1cm/年以下であり、年々減少する傾向を示した^{2) - 5) 10) 18) 20)}。東電事故4年経過後の福島県内3地点でのデータにおいても同様の傾向が報告されている¹³⁾。一方、川俣町山木屋地区の不作付け水田で行った調査では、1.3cm/年以上の大きな移動速度が見られ¹⁴⁾、当初指数分布を示していた濃度分布は、事故後4年目の時点で表層10cmの濃度が均一化したことが報告されている。また、他の農地に比べ不作付け水田土壌でのRCs鉛直移動は大きいこ

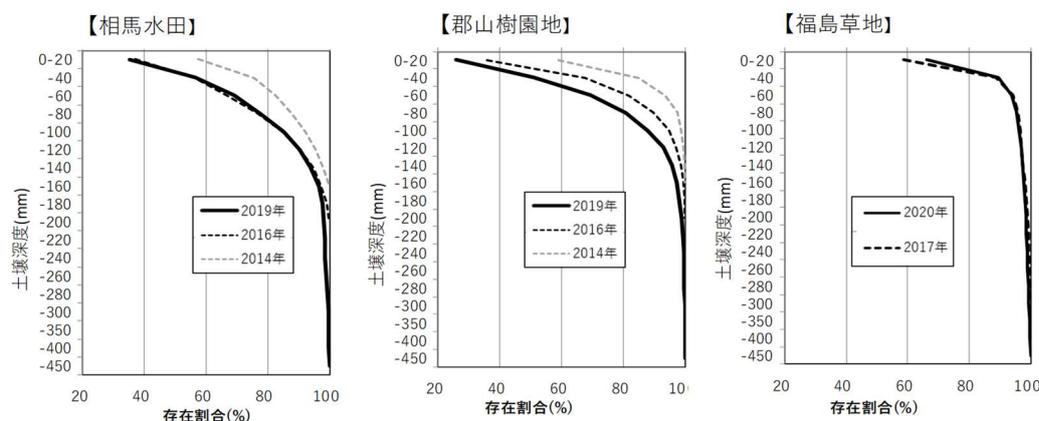


図3 ¹³⁷Cs の鉛直存在割合の推移

表3 ※存在割合の算出にあたり各層のかさ密度は考慮しなかった。

調査地点	調査回	調査年・月	¹³⁷ Cs	
			90% 深度 ¹⁾	重心 深度
			mm	mm
相馬水田	第1回	2014・7	80	32
	第2回	2016・10	109	49
	第3回	2019・9	108	53
郡山樹園地	第1回	2014・7	42	23
	第2回	2016・8	72	37
	第3回	2019・7	98	51
福島草地	第1回	2017・8	38	22
	第2回	2020・8	33	28

1) 各層のかさ密度は考慮せずに算出した。

とがいくつかの福島県内の調査結果で報告されている^{7) 15)}。

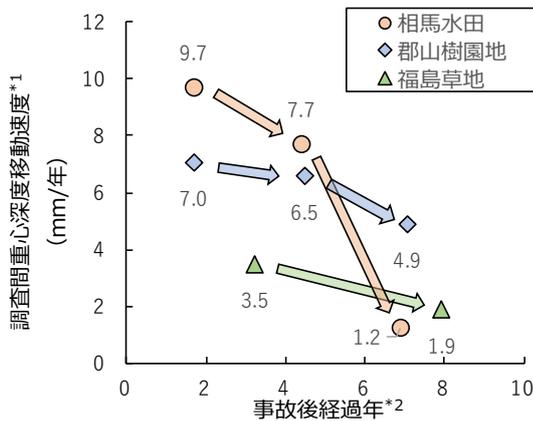
地点別の各調査回での平均重心深度移動速度を表4に示した。各調査地点とも経過年とともに移動速度は低下し、最も移動速度が大きいのは相馬水田

表4 平均重心深度移動速度の比較

調査地点	調査回	調査年・月	平均重心深度
			移動速度 mm/年
相馬水田	第1回	2014・7	9.7
	第2回	2016・10	8.9
	第3回	2019・9	6.2
郡山樹園地	第1回	2014・7	7.0
	第2回	2016・8	6.8
	第3回	2019・7	6.2
福島草地	第1回	2017・8	3.5
	第2回	2020・8	3.0

の2014年調査の9.7mm/年で、同時期に調査を行った郡山樹園地では7.0mm/年であった。一方、2019年、2020年の調査結果を比較すると、福島草地は3.0mm/年と他の2地点の結果(6.2mm/年)と比べ低かった。

調査間重心深度移動速度を図4に示した。相馬水田での移動速度は、経過年約5年までは7.7~9.7mm



*1 : ^{137}Cs 濃度重心深度を下記式で求め、前回調査時点(初回調査は事故発生時点)からの増加量を経過年で除して算出した。
 ^{137}Cs 濃度重心深度 = $\sum \text{hi} \cdot \text{Ci} \cdot \Delta \text{hi} \cdot (\sum \text{Ci} \cdot \Delta \text{hi})^{-1}$
 (Ci:i層の ^{137}Cs 濃度、hi : 中点の深さ、 Δhi : 層の厚さ)
 *2 : 「事故後経過年」のプロットは対象期間の中間年とした。

注) いずれの圃場も原発事故後耕うんなし。
 また、いずれの圃場も除染作業は行われていない。

図4 調査間重心移動速度と事故後経過年の関係

/年で他の地点に比べ高く、次いで郡山樹園地、福島草地は相馬水田の半分程度であった。5年経過後、相馬水田の移動速度は急激に低下した。その時点での調査間重心深度移動速度は郡山樹園地で4.9mm/年で、他2地点は2mm/以下であった。2019/2020年時点の移動速度が維持される、又は低下するのであれば、10年後、20年後も、RCsの多くは15cm程度までの表層にとどまることが予想される。チェルノブイリ事故後の未耕地における ^{137}Cs の垂直分布の調査により、事故後8年でもその97%が土壌の表層0-5cmに存在し、移行性が極めて小さい¹⁶⁾ことが報告されている。本調査については、深度分布と移動速度の変化を明らかにするため、今後も継続的に実施する予定である。

(3) 移動速度と土層土壌特性との関連性

表4、図4を基に地点間の比較を行うと、①相馬水田は他地点に比べ、事故後5年程度までの移動速度が速いが、その後急激に低下している、②福島草地での移動速度は他地点に比べ遅い、③郡山樹園地の移動速度は中程度であるが、事故後5年経過後は他地点に比べ早い、という結果であった。各地点の深さ200mmまでの土層別の土壌特性を表5に示した。各地点、最近年の調査結果から、 ^{137}Cs の大部分は深さ100mm以内に存在することから、これまでの移動速度は特に1層目(0~50mm)、2層目(50~100mm)の土壌特性の影響を受けるものと考えられた。上記①の相馬水田での事故5年経過後の移動速度の急激な低下について、その要因は不明であった。また、孔隙率や土壌硬度が比較的低い福島草地において、上記②のような結果は矛盾しているように考えられた。 Cs^+ を選択的に吸着・固定するフレイド・エッジ・サイトの指標となるRCs捕捉ポテンシャル(Radiocesium Interception Potential, RIP)と土壌特性の関連性について、RIP値は全炭素含量、リン酸吸収係数と負の相関があること^{8) 19)}が報告されている。今回測定は行っていないが、福島草地は黒ボク土であるためRIPは低いと考えられ、このことも②の結果と一致しない。これは、福島草地では表層根圏で根が密集しており、RCsの下方移動速度

表5 各地点の200 mm深までの層別土壌特性

調査地点	層	仮比重 (g/cm ³)	孔隙率 (%)	粒径組成(%)			土性	CEC (cmol _c /kg)	全炭素 (mg/ml)	断面土壌硬度 (kg/cm ²)	土層細根重 (乾物g/L)
				粘土	シルト	細砂+粗砂					
相馬 水田	層1	1.1	57	33	22	44	LiC	22	31	4.2	0.74
	層2	1.3	52	34	22	44	LiC	22	19	5.6	0.19
	層3	1.2	52	34	22	44	LiC	20	17	6.5	0.11
	層4	1.3	49	31	22	47	LiC	20	14	6.7	0.05
郡山 樹園地	層1	1.2	55	18	22	60	CL	15	21	5.3	0.92
	層2	1.4	50	19	18	64	CL	15	13	6.3	0.32
	層3	1.4	48	17	19	64	CL	14	12	5.9	0.08
	層4	1.5	46	18	17	66	SCL	15	11	4.7	0.04
福島 草地	層1	0.7	68	24	28	48	CL	32	64	3.3	5.93
	層2	1.0	64	13	20	67	SL	21	38	5.9	0.35
	層3	1.0	63	14	19	67	SL	17	27	8.0	0.20
	層4	0.9	67	13	16	71	SL	17	22	6.5	0.12

※各土壌特性は2020年4月に各調査地点の土壌を採取し測定したもの。

※層1: 0~50mm深、層2: 50~100mm深、層3: 100~150mm深、層4: 150~200mm深。

※全炭素(mg/ml)は全炭素濃度(%)と仮比重(g/cm³)から算出した。

※断面土壌硬度: 山中式土壌硬度計で測定し次式で土壌硬度に換算。土壌硬度(kg/cm²)=(100 × x) / (0.7952 × (40 - x)²)

x: 山中式硬度計測定値(mm)

が他地点に比べ遅いことが影響を与えているかもしれない。さらに、上記③の結果についても、郡山樹園地の第1層、第2層の土壌特性が他地点に比べ下方移動を助長するような値ではなかった。

本研究でのRCsの深度分布や移動速度の変化に与える環境条件を理解するために、今後は、土壌鉱物の種類やRIPの測定、カラム試験等の実験室での調査やコロイド担体輸送や生物による攪乱も考慮に入れた孔隙状態等の現地データの収集が必要である。

4 摘要

東京電力福島第一原子力発電所事故後、未耕耘、未除染の福島県農業総合センター内の3地点の圃場(水田、樹園地、草地)のRCsの深度分布を調査した。いずれの圃場も深度100mm以内に90%のRCsがとどまっていた。また、近年、RCsの下方への移動速度は低下しており、現在の移動速度は1~5mm/年程度で、これまでの報告と同様の下方移動速度であった。表層土壌の物理性、化学性について調査したが、移動速度との明確な関連性は見られなかった。

引用文献

- 1) Almgren, S. and M. Isaksson. 2006. Vertical migration studies of Cs-137 from nuclear weapons fallout and the Chernobyl accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 91 : 90-102.
- 2) Bunzl, K. W. Kracke. W. Schimmack and K. Auerswald. 1995. Migration of fallout ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in the various horizons of a forest soil under pine. *Journal of Environmental Radioactivity* 28 : 17-34
- 3) Chibowski, S. Zygmunt, J. and Klimowicz Z. 1999. Investigation of adsorption and vertical migration of ¹³⁷Cs in three kinds of soil at Lublin vicinity. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 242 : 287-295.
- 4) Forsberg, S. K. Rosén. V. Fernandez and H. Juhan. 2000. Migration of Cs-137 and Sr-90 in undisturbed soil profiles under controlled and close-to-real conditions. *Journal of Environmental Radioactivity* 50 : 235-252.
- 5) Holgye Z. and Maly M. 2000. Sources, vertical distribution, and migration rates of ^{239,240}Pu, ²³⁸Pu, and ¹³⁷Cs in grassland soil in three localities of central Bohemia. *Journal of Environmental Radioactivity* 47 : 135-147.
- 6) 木方展治. 2012. 農業環境中の放射性物質長期モニタリングデータの活用. 農業環境技術研究所研究成果情報 28 : 6-9.
- 7) Lepage H. Evrard O. Onda Y. Lefevre I. Lacey JP. Ayrault S. 2015. Depth distribution of cesium-137 in paddy fields across the Fukushima pollution plume in 2013. *Journal of Environmental Radioactivity* 147 : 157-164.
- 8) Nakao A. Takeda A. Ogasawara S. Yanai J. Sano

- O. Ito T. 2015. Relationships between Paddy Soil Radiocesium Interception Potentials and Physicochemical Properties in Fukushima, Japan. *Journal of Environmental Quality* 44:780-788.
- 9) Ohno T. Muramatsu Y. Miura Y. Oda K. Inagawa N. Ogawa H. Yamazaki A. Toyama C. Sato M. 2012. Depth profiles of radioactive cesium and iodine released from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in different agricultural fields and forests. *Geochemical Journal* 46(4) : 287-295.
- 10) Rosén, K. I. Oborn. and H. Lonsjö. 1999. Migration of radiocesium in Swedish soil profiles after the Chernobyl accident, 1987-1995. *Journal of Environmental Radioactivity* 46 : 45-66
- 11) 斎藤公明・青木和弘・谷畑勇夫. 2013. 福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の第二次分布状況等に関する調査研究成果報告書 第2編 放射線量等分布マップ関連調査研究 土壌中における放射性物質の深度分布の確認. 日本原子力研究開発機構.
- 12) 塩沢昌・田野井慶太郎・根本圭介・吉田修一郎・西田和弘・橋本健・井健太・中西友子・二瓶直登・小野勇治. 2011. 福島県の水田土壌における放射性セシウムの深度別濃度と移流速度. *Radioisotopes* 60 (8) : 323-328.
- 13) 塩沢昌. 2016. 放射性セシウムの土壌中の挙動と水系への流出. *水土の知* 84(6) : 495-499.
- 14) 高橋純子・須田智也・田村憲司・恩田裕一. 2016. 放棄水田における放射性 Cs の深度分布と下方移行 - 事故直後から除染後までの経時変化 -. *日本土壌肥料学会講演要旨集* 62 : 13.
- 15) Takata Y. Kohyama K. Obara H. Maejima Y. Ishitsuka N. Saito T. Taniyama I. 2014. Spatial prediction of radioactive Cs concentration in agricultural soil in eastern . *Japan. Soil Science and Plant Nutrition* 60(3) : 393-403.
- 16) Yakushev BI. Budkevich TA. 1995. 原子力資料情報室通信第255号. 原子力資料情報室.
- 17) Yamaguchi N. Eguchi S. Fujiwara H. Hayashi K. Tsukada H. 2012. Radiocesium and radioiodine in soil particles agitated by agricultural practices: Field observation after Fukushima nuclear accident . *Science of the Total Environment* 425 : 128-134.
- 18) 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. 2012. 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. *農業環境技術研究所研究報告* 31 : 75-129.
- 19) Yamaguchi N. Tsukada H. Kohyama K. Takata Y. Takeda A. Isono S. Taniyama I. 2017. Radiocesium interception potential of agricultural soils in northeast Japan. *Soil Science and Plant Nutrition* 63 : 119-126.
- 20) Zygmunt, J. Chibowski, S. and Klimowicz, Z. 1998. The effect of sorption properties of soil minerals on the vertical migration rate of cesium in soil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 231 : 57-62.

