

原子力災害による農業用水や水田への影響と放射性セシウムの動態に関する研究

久保田, 富次郎

<https://hdl.handle.net/2324/6787705>

出版情報 : Kyushu University, 2022, 博士 (農学), 論文博士
バージョン :
権利関係 :

原子力災害による農業用水や水田への影響と
放射性セシウムの動態に関する研究

久保田 富次郎

2023

本論文をルーツのひとつである福島・阿武隈の大地に捧ぐ

目次

第1章 緒論

第1節 東京電力福島第一原子力発電所の事故における放射性物質の放出	1
第2節 水系における放射性セシウムの動態に関する既往の研究	2
(1) 水中の放射性セシウムの存在形態	2
(2) 福島事故以前の研究	3
(3) 河川水	4
(4) 貯水池	5
第3節 農村地域の放射性セシウム汚染に対する行政と研究による対応の経過	6
第4節 研究の目的と論文の構成	10

第2章 水中の放射性セシウムの分析とモニタリング手法

第1節 水中の放射性セシウムの分析法	12
第2節 水中の放射性セシウムの遠隔モニタリング	13
(1) はじめに	13
(2) 観測システムと計測事例	14
1) 水文および水質分野における遠隔観測	14
2) 放射性セシウムの動態把握のための遠隔観測システム	15
(3) 原子力災害対応における遠隔システムの活用	17
(4) 運用上の問題と課題	20
1) システムの問題	20
2) 維持保守管理の問題と課題	20
3) 濁度センサーの問題	21
4) 今後の課題	23
第3節 要約	23

第3章 水田における放射性セシウムとカリウムの動態

第1節 水田における放射性セシウムの動態と水稻の放射性セシウムの吸収抑制対策に関するレビュー	25
(1) 灌漑水中の放射性セシウムの影響調査と水稻の吸収リスク	25
(2) 水田に流入する放射性セシウムの動態	26
(3) 用水中の放射性セシウムを除去する試み	29
第2節 浸透水の水質の違いが水田土壌のカリウム溶脱に及ぼす影響	31
(1) はじめに	31
(2) カリウム吸着比 (PAR) とその特性	33
(3) 材料および方法	35
1) 試験土壌	35
2) 実験の概要	36
3) 具体的な実験条件	39
a. 実験 1: 水質および通水量が カリウム溶脱量へ与える影響	39
b. 実験 2: 土壌カラムからの主要陽イオンの溶脱特性	40
c. 実験 3: カリウム溶脱に対する流入水中の異なる陽イオン組成比の影響	40
(4) 結果および考察	41
1) 小型カラム試験の再現性	41
2) カリウム溶脱に及ぼす流入水質および通水量の影響 (実験 1)	43
3) 土壌カラムからの主要陽イオンの溶脱特性 (実験 2)	45
4) カリウム溶脱に対する流入水の陽イオン組成比の違いの影響 (実験 3)	47
5) 本節の研究の限界と今後の課題	52
(5) 小括	53
第3節 要約	54

第4章 農業水利施設における放射性セシウムの動態

第1節 農業用水路への放射性セシウムの堆積	56
-----------------------	----

(1) はじめに	5 6
(2) 調査対象と方法	5 7
(3) 結果と考察	5 9
1) 水路関連施設および周辺の空間線量率	5 9
2) 堆積物の分布	6 0
3) 用水路内の堆積物の放射性セシウム	6 2
4) 堆積物に含まれる放射性セシウムの経年変化	6 5
(4) 水路堆積物の除染	6 6
(5) 小括	6 8
第 2 節 低水位で管理されたため池における放射性セシウムの動態	6 9
(1) はじめに	6 9
(2) 材料と方法	7 2
1) 調査地	7 2
2) 水質調査	7 4
(3) 結果と考察	7 5
1) 気象条件と水質観測の結果	7 5
2) 貯水池からの ^{137}Cs の供給フラックス	7 9
3) 溶存態 ^{137}Cs の季節的变化と 溶存態 ^{137}Cs 生成の要因	8 2
4) 懸濁態 ^{137}Cs の変化と懸濁態 ^{137}Cs の担体としての SS	8 5
(4) 小括	8 6
第 3 節 水質の鉛直分布からみた小規模灌漑貯水池における放射性セシウムの動態	8 8
(1) はじめに	8 8
(2) 材料と方法	8 9
1) 調査地	8 9
2) 水質調査	9 0
3) 水文観測とため池の水理学的滞留時間	9 2
4) 水中の懸濁物質と堆積物の調査	9 3
5) 水質の鉛直分布の安定性の検討	9 3

(3) 結果	9 4
1) 水温分布からみたため池内の鉛直方向の水の流動	9 4
2) ため池に流入する浮遊物質や底質に含まれる ^{137}Cs の形態	9 7
3) 年間を通じた平水時の水中の溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布の推移	9 8
4) 夏季における溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布と溶出	1 0 0
5) 降雨時の放射性セシウムの鉛直分布	1 0 4
6) 夏季における底質からの溶存態 ^{137}Cs の溶出速度	1 0 6
(4) 考察	1 0 7
1) ため池底質からの ^{137}Cs の溶出とその条件	1 0 7
2) 浅い小規模ため池における成層の特徴と貯水池における溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布	1 0 9
3) 農業用水としての利用性と今後の課題	1 1 1
(5) 小括	1 1 3
第 4 節 要約	1 1 4

第 5 章 総合考察

第 1 節 本研究のまとめ	1 1 6
第 2 節 残された課題	1 1 9
第 3 節 福島を超えて（おわりに）	1 2 0

謝辞	1 2 2
----	-------

引用文献	1 2 4
------	-------

Summary	1 4 2
---------	-------

第1章 緒論

第1節 東京電力福島第一原子力発電所の事故における放射性物質の放出

2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所（Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, FDNPP）の事故は、アジアモンスーン地域で発生した初めての規模の大量の放射性物質の放出を伴う原発事故であった。アジアモンスーン地域の多くの国々では水田農業が営まれているが、水田が広がる地域における大規模な放射性物質の沈着は、これまで人類が経験したことの無い出来事である。

FDNPPの放射性物質の放出事故に伴って、 ^{131}I （半減期：8.0 d）が $1.6 \times 10^{17} \text{ Bq}$ 、 ^{134}Cs （同：2.1 y）が $1.8 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 、 ^{137}Cs （同：30.1 y）が $1.5 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 、 ^{90}Sr （同：28.9 y）が $1.4 \times 10^{14} \text{ Bq}$ など、多くの放射性核種が環境中に放出されたことが指摘されている（Chino et al., 2011；小森ら，2013）。これらのうち ^{131}I を含む多くの短寿命核種は比較的短期間で検出されなくなり、当初は放出量が ^{137}Cs より多かった ^{134}Cs も、半減期が2年余りと短いことから、徐々に検出が難しくなった。また、 ^{137}Cs と同程度に寿命が長い ^{90}Sr は、放出量が ^{137}Cs と比べると2オーダー小さかったことから、ほとんど問題になることはなく、結果的に ^{137}Cs が環境中でその動態に注目が集まる唯一の長寿命核種となった。

^{137}Cs に ^{134}Cs を加えた放射性セシウムによる懸念される人体への影響は、それらが発するガンマ線による遺伝子の損傷であり、被曝の形態により大きく外部被曝と内部被曝に分けられる。外部被曝は、体外すなわち周辺環境に存在する放射性セシウムによる被曝であり、内部被曝は、食品や水の摂取や粉塵の吸入などに伴って体内に入り込んだ放射性セシウムによる被曝を指す。したがって、農作業時の外部被曝の低減のためには土壌等の農業環境における放射性セシウムの低減を、そして内部被曝を避けるためには農作物に含まれる放射性セシウムの低減、特に水稲作では生産物であるコメに含まれる放射性セシウムの低減を図ることが大きな目標となる。

FDNPP から放出された放射性核種を含むプルームの動向とそれに伴う規模の大きな陸地への沈着は、2011年3月12日に宮城県牡鹿半島方向、同月15日午後に関電所周辺、同15日夕方に、原子力発電所の北西方向で生じたと指摘されている（小森ら，2013）。

放出された当初は、放射性セシウムの多くはガス状で、降雨などにより地上に降下したと考えられていたが、一部は原子炉から直接飛散した放射性セシウム含有微粒子（CsMPs）と呼ばれるケイ酸塩ガラスで構成され、放射性セシウムが高い濃度で含まれている微粒子として沈着したと指摘されている（Okumura et al., 2019）。CsMPsは、沈着した陸上の環境の違いにより、徐々に溶解し、陸面に放射性セシウムを供給したものと考えられている。

なお、本論文では、一般論として放射性セシウムを扱う場合や、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の総量としての放射性セシウムを扱う場合は、単に「放射性セシウム」と呼び、個別に ^{134}Cs や ^{137}Cs を扱う場合は、それらの表記に従うこととする。

第2節 水系における放射性セシウムの動態に関する既往の研究

(1) 水中の放射性セシウムの存在形態

環境水中の放射性セシウムは、その存在形態によりいくつかの画分に分類される（図1.1）。まず、フィルター通過の可否により溶存態放射性セシウムと懸濁態放射性セシウムに分けられる。フィルターには、孔径 $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターが用いられることが多いが、他にも $0.025\ \mu\text{m}$ 等のメンブレンフィルターや $1.0\ \mu\text{m}$ のガラス繊維フィルターが用いられることもある。フィルター通過分は、溶存態として扱われ Cs^+ イオンの他、一部にコロイド態や溶存有機物へ付着した画分なども含まれる。溶存態放射性セシウムはイネへの移行が高いことが知られている（Suzuki et al., 2015）。

一方、フィルター上に捕捉される放射性セシウムは、懸濁態画分である。懸濁態放射性セシウムは、さらに交換態や有機結合態、強固結合態などの画分に分類される（Tsukada et al., 2008）。このうち交換態放射性セシウムは、土粒子や有機物の表面に存在する負電荷に吸着されるもので、イオン交換反応により脱着し、溶存態に移行しやすい形態である。また、有機結合態放射性セシウムは有機物の内部に取り込まれたものなどである。有機結合態放射性セシウムは、有機物の分解に伴って溶出し、植物等へ吸収されるリスクを有す

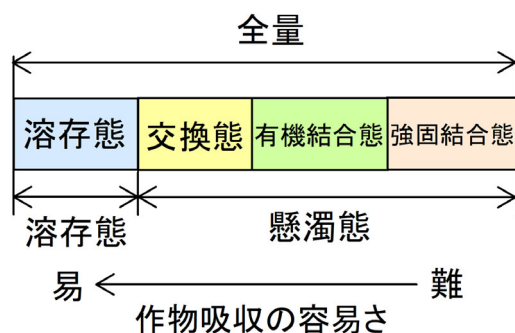


図 1.1 環境水中の放射性セシウムの存在形態

と考えられる。強固結合態は、2:1 型層状ケイ酸塩鉱物などの粘土粒子に強く固着されるもので、溶存態への移行や植物に吸収されるリスクは低いと考えられている。

(2) 福島事故以前の研究

福島における FDNPP の事故以前にも、環境中への放射性物質の放出事故に関連して、水系における放射性物質の動態研究は数多く行われている。米国では、1957 年にサウスカロライナ州の原子力施設から低濃度の ^{137}Cs が放出され、下流に設置された貯水池では、水中における ^{137}Cs の動態に関する多くの研究が実施された (Alberts et al., 1979; Evans et al., 1983)。また、1986年に発生した旧ソ連（現ウクライナ）のチョルノービリ原発事故では、放射性物質が欧州各地の表流水系に影響を与えた (IAEA, 2006)。チョルノービリより放出された放射性降下物の大部分は、ドニエプル川の上流に位置するプリピャチ川集水域に沈着し、ドニエプル貯水池カスケードと呼ばれる欧州最大規模の表流水利用システムにおいて、特に広域の水道水の汚染が懸念された。ライン川やドナウ川といった、欧州の他の大規模河川も放射性降下物の影響を受け、放射性物質の水系における動態に関する多くの研究報告がみられる (例えば, Smith et al., 1999; Zibold et al., 2002)。

これらの研究の進展に合わせて、 Cs^+ を含む陽イオンと粘土鉱物や土壌との相互作用も徐々にわかってきた。粘土鉱物や粘土鉱物を含む土壌や堆積物における溶液中の陽イオンの吸着、すなわち非選択的吸着は、一般的に単純なイオン交換プロセスであると考えられ

ている。しかし、 Cs^+ をはじめ、 K^+ 、 NH_4^+ の一部の陽イオンは、雲母や2:1型層状ケイ酸塩鉱物による選択的吸着、固定化の影響を受けることが指摘されている (Sawhney, 1972)。

このように淡水中において放射性セシウムは、堆積物中の雲母成分や一部の粘土鉱物に選択的に吸着される (Francis and Brinkley, 1976)。

チョルノービリ原発事故において、長期的な動態が問題となった表流水中の核種は、主に ^{90}Sr と ^{137}Cs であった (IAEA, 2006)。一方、福島事故では、 ^{90}Sr はほとんどみられず ^{137}Cs による汚染が主体であった。福島事故後数年間は、 ^{137}Cs に加えて半減期が約2年の ^{134}Cs も検出されていたが、事故後約10年近くを経て、その検出は難しくなっている。そのため、事故後の数年間を除くと、扱われる放射性核種は、半減期が約30年の ^{137}Cs に限られることが多い。

(3) 河川水

淡水中において放射性セシウムは、堆積物中の雲母成分に選択的に吸着される (Francis and Brinkley, 1976)。それゆえ、FDNPPから放出され陸域に沈着した放射性セシウムの一部は、土壌や浮遊物質に吸着され豪雨時に河川を通じて流出した (Onda et al., 2020)。チョルノービリ事故に関連する調査研究を通じて、河川水系による放射性核種の流出は、集水域に沈着したインベントリーのごく一部であることが知られている (IAEA, 2006)。同様の傾向は、これまでの福島における多くの研究において確認されている。Hayashi (2016)によれば、主に森林に覆われた河川流域における ^{137}Cs の流域平均沈着量に対する年間流出量の比は、0.05%～0.5%の範囲にある。出水時の放射性セシウムの流出の特徴を明らかにするため、Shinomiya et al. (2014)は、台風の通過に伴う豪雨時の森林集水域からの放射性セシウムの流出観測を行った。その結果、降雨強度が最高のときに、流出ピークと最大の放射性セシウム、SS濃度が観測され、同時に溶存態放射性セシウムは極めて低いことから、増水時に放射性セシウムは主に懸濁態として流出することが確認された。また、このときの放射性セシウムの総流出量は調査地点周辺の沈着量の0.07%に相当した。福島県飯舘村の新田川水系比曾川流域内の森林集水域における調査では、2014年から2016年の3年間の ^{137}Cs の流出率は総沈着量に対して1年当たり0.03%～0.10%にあ

り、大きな降雨イベントの有無により年間の流出率が大きく左右された（久保田ら，2018）． 以上のように河川を流下する放射性セシウムは流域に存在する放射性セシウムの一部ではあるものの，豪雨増水時を中心として，SS とともに河川水系に流出する．そしてそれは河道や農業用水路，貯水池等に放射性セシウムが集中して流下するため，局所的な堆積などで問題が生じる懸念がある．

また，河川水の放射性セシウム放射能濃度には季節変動が認められている．Tsuji et al. (2016) は，高線量率の森林流域の河川水では，平水時は夏季に溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度が高くなり，懸濁態 ^{137}Cs 放射能濃度より高いこと，そして，洪水時の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は平水時よりも高くなるものの懸濁態 ^{137}Cs 放射能濃度が支配的であるとした．Nakanishi and Sakuma (2019) は，FDNPP に近い河川水中の ^{137}Cs のモニタリングにより，溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は水温に関連して夏に高く冬に低い変動があり，その温度依存性は時間経過とともに弱まっていることを示した．

(4) 貯水池

一般に，豪雨時や融雪期に集水域で発生した土砂は，貯水池に流入して底に堆積するが，特に貯水池の貯水操作は土砂の堆積を強く促進する．そのため，チョルノーベリ事故後の研究（Hayashi, 2016）においても，FDNPP の事故後の研究（Aoi et al., 2013; Funaki et al., 2018; Hayashi and Tsuji, 2020）においても，放射性セシウムの大部分は，貯水池の底に堆積した．福島事故後，Tsuji et al. (2015b) は，浜通り地方北部の松ヶ房ダム（二級河川宇多川）と横川ダム（二級河川太田川）において放射性セシウムの年間収支を検討した．その結果，流入水がダムを通過することにより懸濁態放射性セシウムは 1 割未満へと大幅に減少し，溶存態放射性セシウムもやや減少した．このことからダム集水域から流入する放射性セシウムの 9 割以上はダムに堆積したことになる．浜通り地方中部の浪江町や葛尾村を主な集水域とする二級河川請戸川に，約 3500 ha の農地の用水源として重要な役割を担っている大柿ダムがあるが，ここでは東北農政局により 2012 年 2 月から継続的な水質調査が実施されている．2014 年の台風 18 号時には，ダムへの流入水の放射性セシウム放射能濃度の最大値が $553 \text{ Bq L}^{-1} \sim 810 \text{ Bq L}^{-1}$ であったのに対して，ダムからの流出水では最大 18 Bq L^{-1}

であったことから、流入した懸濁態放射性セシウムのほとんどがダム湖内に沈殿していることが推察された（高橋ら, 2015）。

そのため、農業用水の利用再開の上でも貯水池の底質に集積した放射性セシウムの動態に注目が集まることとなった。福島県内の農業用ため池においても、農林水産省と福島県が共同で実施した調査により、底質中の放射性セシウム放射能濃度が放射性物質汚染対処特措法の指定廃棄物に相当する 8 kBq kg^{-1} を大きく超える事例が見いだされた（吉永ら, 2021）。これを受けて、濱田ら（2013）は、底質中の放射性セシウム放射能濃度が高いため池において未攪乱コアを採取し、室内試験により放射性セシウムの溶出の評価を行い、底質からの溶出による湖水への放射性セシウム回帰量は少ないと考えられることを指摘した。

第3節 農村地域の放射性セシウム汚染に対する行政と研究による対応の経過

本節では、原発事故対応と関連した行政機関の動きとともに、国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構（農研機構）の農業農村工学分野が関わったプロジェクト研究（表 1.1）を中心として、事故後約 11 年に渡る営農再開に向けた行政と研究の動向について記す。

原発事故による放射性物質の大気への放出と拡散の後、農地や農産物の汚染が懸念されたことから、厚生労働省では 2011 年 3 月 17 日に玄米などの穀類中に含まれる放射性セシウムの暫定規制値を 500 Bq kg^{-1} （高橋, 2013）と定め、また、事故後に内閣府に設置された原子力災害対策本部では同年 4 月 8 日に稲の作付制限についての考え方を公表した（原子力対策本部, 2011）。その際、既往の知見から放射性セシウムの玄米への移行係数は最大 0.1 とされ、それにより土壌中の放射性セシウム放射能濃度が 5000 Bq kg^{-1} 以下であれば、暫定規制値超えは発生しないとの判断から、2011 年は作付制限区域（図 1.2）の外において水稻作付けが行われた。

表 1.1 農研機構の農業農村工学分野が携わった原発事故対応にかかるプロジェクト研究

主なプロジェクト研究		研究内容と対象		研究期間(年度)											主な対象地域	備考	
				H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29	H30	R元	R2	R3			R4
名称	省庁	農業農村工学分野	その他	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022		
科学技術戦略推進費	内閣府等	農地除染	環境影響	■												飯舘、川俣、福島県	総合科学技術会議, 2011
プロジェクト研究 1	農水	農地除染	森林除染	■	■											飯舘、川俣他	農林水産省, 2014
プロジェクト研究 2	農水	農地除染、計測技術	化学除染		■	■	■									飯舘、川俣他	農林水産省, 2016a
プロジェクト研究 3	文科・環境	ダム・ため池・水路	モデル予測・地理情報		■	■										福島・伊達・浪江	荒尾他, 2015
プロジェクト研究 4	農水	モニタリング技術 ため池・水田・水路	モニタリング・土壌・モデル			■	■									飯舘他	農林水産省, 2016b
プロジェクト研究 5	農水	ため池、用水	除染後農地の省力管理 吸収抑制メカニズム					■	■	■						飯舘・大熊他	
プロジェクト研究 6	農水	用水からのカリ供給 圃場からのカリ溶脱	地力回復、カリ卒 営農再開支援								■	■	■			大熊・浪江・福島 他	
プロジェクト研究 7	農水	圃場からのカリ溶脱低 減技術	特定復興拠点等の 営農再開支援											■	■	特定復興拠点 他	R7年度まで(予定)

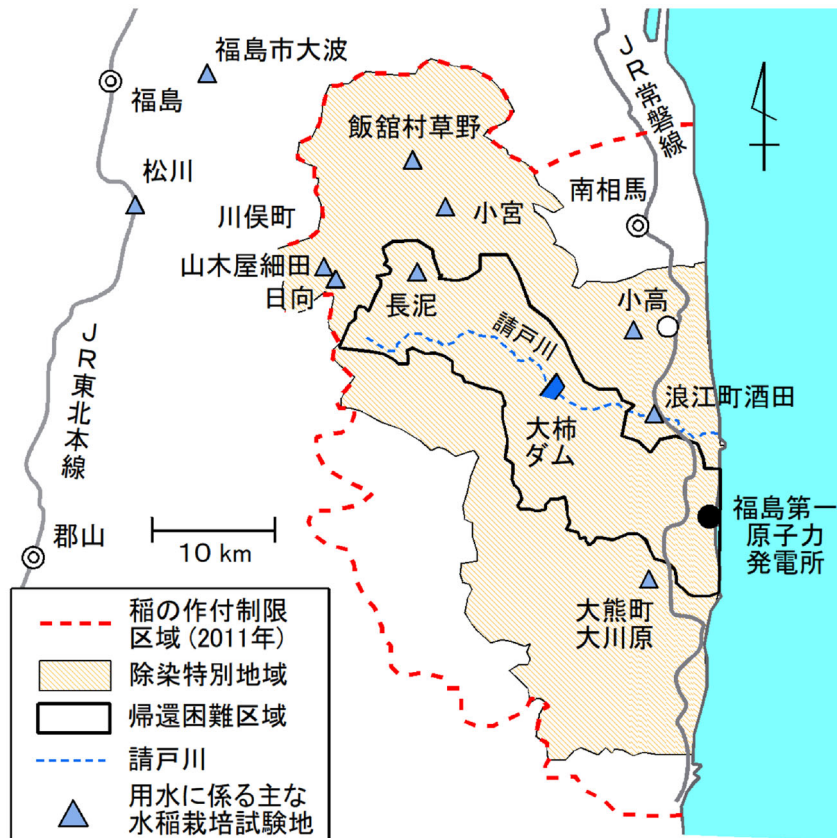


図 1.2 稲の作付制限区域（2011年）と主な試験地

一方、土壌中の放射性セシウム放射能濃度が 5000 Bq kg^{-1} を超える農地では除染が必要となり、その技術開発は、2011年6月から平成23年度科学技術戦略推進費（総合科学技術会議，2011）により始まった。この農地除染の研究は、独立行政法人（以下（独））農研機構，（独）農業環境技術研究所（現農研機構），（独）産業技術総合研究所，（独）日本原子力研究開発機構，福島県農業総合センターなど，7 独法，11 大学，6 県の農業試験場，1 財団法人，3 民間企業が参画する大型研究であった。除染技術として、表土削取り（若杉，2021）や反転耕などの物理的手法や生物学的手法であるファイトレメディエーション，そして土壌洗浄などの化学的手法（牧野，2014）が検討された。また，農地除染技術の確立を図るため，2011年度3次補正予算により農林水産省のプロジェクト研究1（農林水産省，2014）が2012年にかけて，さらに2012年から2014年にかけてプロジェクト研究2（農林水産省，2016a）が実施された。これら一連の研究から多くの成果が得ら

れ、例えば、中ら（2012）は、固化剤を用いた表土削取りにより土壌の放射性セシウム放射能濃度（0 cm ～ 15 cm, 乾土）が 82 %低減することを示し、また、今泉ら（2013）は耕起した水田を対象とした除染に水を用いた土壌攪拌・除去工法を検討し、15 % ～ 40 %程度の低減率を得た。これらは、その後農林水産省により実施された実証事業等の結果と併せて、農林水産省による農地除染対策の技術書（農林水産省，2013）や環境省の除染関係ガイドライン（環境省，2013）に反映された。以上の成果は、国直轄除染として除染特別地域（図 1.2）における農地除染で実践に移され、その後 2017 年 3 月までに帰還困難区域を除く全ての市町村において面的除染が完了した。さらに、2017 年度からは帰還困難区域内の一部に設定された特定復興再生拠点区域において面的除染が進められている。

農地除染と平行して、農地や農村、森林、流域等における放射性物質の動態の実態把握や将来予測などの必要性から、2012 年から 2013 年にかけて他省庁からの委託によるプロジェクト研究 3（荒尾ら，2015，通称：原研委託プロ），そして 2013 年から 2014 年にかけてプロジェクト研究 4（農林水産省，2016b，通称：動態解明プロ）が実施された。農業農村工学の関連では、これらのプロジェクト研究においてダム（荒尾ら，2015）やため池、用水路といった水利施設に加えて、水田における放射性セシウムの動態把握が課題となった。続いて 2015 年から 2017 年にかけてプロジェクト研究 5（通称：営農再開プロ）が実施された。営農再開プロは、①除染後農地の省力的維持管理技術の開発、②農地への放射性セシウム流入防止技術の開発、③放射性セシウム吸収抑制メカニズムの解明、の 3本の柱で構成され、このうち農業農村工学分野では、動態解明プロに引き続いて、営農再開プロにおいてため池や水田等を対象とした調査研究に参画した。これら一連のプロジェクト研究により、濁度センサーを用いて河川や用水路の水中の放射性セシウム放射能濃度の推定を行う安価な遠隔モニタリングシステムを構築し（申ら，2015a），得られた水質水文の情報を行政機関や土地改良区と情報共有を図る試み（申ら，2018）を行った。これらの研究の一部は本論文第 2 章の第 2 節で述べる。ここで開発されたシステムは 2017 年度より農業用水の供給が再開された大柿ダムの請戸左岸幹線用水路と支線用水路に設置され、県や土地改良区の協力を得て試行運用された。

大柿ダムやため池等の水利施設の対策については、放射性物質の蓄積や水利用への懸念等から行政を中心に早くから検討が進められていたため、プロジェクト研究では放射性物

質の動態を研究面から詳細に把握する観点からの取り組みが必要であると考えられた。そのため、営農再開プロでは、帰還困難区域内の一つのため池を共通フィールドとして、農研機構農村工学研究部門および農業環境変動研究センター、森林総合研究所、福島大学の4機関で分担連携した調査研究を実施した。この研究では、森林からの流入特性や経年変化、ため池における放射性セシウムの収支とため池内での形態変化、水中の懸濁物質の存在形態別分析、底質の鉍物特性ならびに数理モデルの構築が検討された。これらの研究で得られた成果の一部を、本論文第4章の第2節ならびに第3節で示す。

2018年から3ヶ年実施されたプロジェクト研究6（通称：営農促進プロ）では、経費の面から段階的な縮小が始まった水稻の放射性セシウム吸収抑制のためのカリウム増肥対策への対応の一環として、農業用水からのカリウムの供給量や水田圃場からのカリウム溶脱の評価の研究が進められた。続けて2021年からは、プロジェクト研究7（通称：特定復興営農）の一環として水田圃場からのカリウム溶脱低減技術の確立に向けた研究が進められている。これらの水田における放射性セシウムやカリウムの動態に関しては、第3章において詳説したい。

第4節 研究の目的と論文の構成

以上のように、農業農村地域における放射性セシウムの動態解明と水稻による放射性セシウムの吸収抑制が重要な課題となる中で、本研究の目的は、被災地における水田農業の再開に向けて安全安心な水田と農業水利施設（農業用水路と農業用ため池）の利用に資するため、放射性セシウムの動態を明らかにするとともに、水稻による放射性セシウム吸収抑制に重要なカリウムの水田土壌中の溶脱特性を明らかにすることである。なお、本論文は、農村地域における放射性セシウムの動態に関する一連の研究成果（久保田ら、2014, 2015a, 2015b, 2016a, 2020, 2021 ; Kubota et al., 2022a, 2022b）を中心にとりまとめたものである。本論文の構成は以下の通りである。

第1章では、東日本大震災に伴う東京電力FDNPPの事故による放射性物質による農村地域への影響と対応の概要について記す。また、チョルノービリ原子力発電所の事故など、

過去の原子力災害による水系汚染への影響を含めた既往研究を示す。さらに、本研究の目的と論文の構成を提示する。

第2章では、水中の放射性セシウムの存在形態と分析法、ならびに水中の放射性セシウムの遠隔によるモニタリング手法について記す。福島原発事故被災地では、放射能汚染の程度に応じて立入制限が実施されたため、そのような地区では、調査時に立入時間の制限を受けたため、遠隔で放射性セシウムの濃度把握や採水を行う必要性が生じた。そこで、遠隔で任意の時間に採水を行うとともに、濁度センサーを用いて間接的に簡易に放射性セシウム放射能濃度を測定する方法を試みた結果を記す。

第3章では、水田の現地試験で得られた放射性セシウムの動態に関するレビューと水稻の吸収抑制対策に重要なカリウムの溶脱低減に関する実験的研究について記す。

第4章では、農業水利施設における放射性セシウムの動態について記す。まず、第1節では農業用水路における放射性セシウムの堆積の特徴を示した。次に、第2節では低水位で管理されたため池における放射性セシウムの動態に関する調査研究、第3節では、小規模ため池における溶存態放射性セシウムの鉛直分布特性からみた用水としての利用性に関して得られた知見をそれぞれ提示する。

第5章は、総合考察とし、本論文のまとめを提示する。

第2章 水中の放射性セシウムの分析とモニタリング手法

第1節 水中の放射性セシウムの分析法

水試料中の放射性セシウムの分析では、環境水中の放射性セシウム放射能濃度は全般に低いため、分析には高感度の Ge 半導体検出器が用いられ、試料を 2 L や 0.7 L のマリネリ容器ないしは U8 容器に充填し分析する。水中の放射性セシウムを懸濁態と溶存態に分けずに全量を分析する場合、試料をそのままマリネリ容器等に充填して分析を行うが、試料中の懸濁物質 (SS) が多い場合、測定中の SS 沈降に伴うジオメトリの変化による測定値への影響が指摘されている。多くの懸濁物質を含む水試料をそのままマリネリ容器で測定した場合、SS 濃度が 100 mg L^{-1} 以上で測定結果が設定濃度の 120 % 以上となる (北島ら, 2013)。そのため、水試料にポリアクリル酸ナトリウムやシサentanガムなどの吸湿性樹脂や増粘剤を加えてゲル化することにより水中の SS を固定する手法が有効である (北島ら, 2013; 松波ら, 2015)。ゲル化により SS 濃度が $100 \text{ mg L}^{-1} \sim 10000 \text{ mg L}^{-1}$ の範囲において、測定誤差が 15 % 以内での測定が可能となる (北島ら, 2013)。

また、低濃度試料の分析では、相対効率が 40 % の Ge 半導体検出器と 2 L マリネリ容器で ^{137}Cs の分析を行った場合、分析時間を 3 万秒 (8.3 時間) とすると検出限界は 0.1 Bq L^{-1} 、30 万秒 (約 3.5 日) で検出限界は 0.03 Bq L^{-1} 程度となる。このように、低濃度試料の分析には機器の長期占有が必要となり、かつ変動係数も大きくなるため、効率化のため濃縮などの前処理が行われることが多い。

溶存態放射性セシウムの濃縮手法には、蒸発乾固法、蒸発濃縮法、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 法、固相ディスク抽出法 (藤村ら, 2013b)、プルシアンブルーフィルターカートリッジ法 (Yasutaka et al., 2013) などがある。これら環境水中の低濃度溶存態放射性セシウムの前処理や分析法の詳細は技術資料 (環境水等の放射性セシウムモニタリングコンソーシアム, 2020) にまとめられている。

前処理を含む低濃度放射性セシウム試料の分析には、測定値の信頼性確保のため、クロスチェックが重要である。保高ら (2017) は、 $0.01 \text{ Bq L}^{-1} \sim 1.0 \text{ Bq L}^{-1}$ の溶存態 ^{137}Cs を含有

する陸水を対象として濃縮法の違いによる分析値の差異を検討した。蒸発濃縮法，AMP法，プルシアンブルーフィルターカートリッジ法，固相ディスク法，イオン交換樹脂法を対象として，農研機構内の3内部研究所を含めた国内18機関と国際原子力機関において3種の試料の前処理と分析が行われ，各前処理方法は一定以上の精度が確保されていることが確認された。その後も多くの機関の参加で定期的にクロスチェックが行われた（Kurihara et al., 2019）。

第2節 水中の放射性セシウムの遠隔モニタリング

(1) はじめに

近年のICT技術の発展に伴い開発されてきた比較的低コストの遠隔観測技術は，農業農村工学の各方面で，導入が加速的に進む可能性がある。その際，信頼性の高いデータを低コストで安定的に取得するためには，機器の要求性能の検討や機材の適切な設置，維持保守管理が欠かせない。

立入が制限される地域が多い原子力災害被災地において，水中の放射性セシウム放射能濃度のモニタリングが必要となった。水の放射性セシウム放射能濃度の把握には，ガンマ線検出器を用いて直接，水中の放射性セシウム放射能濃度を測る方法（吉本ら，2022）と，濁度センサーを用いて間接的に放射性セシウム放射能濃度を把握する方法がある。前者は直接，水中の放射性セシウム放射能濃度を測定するため，測定原理としては望ましいものの，通常の河川や貯水池などの環境水中の放射性セシウム放射能濃度の範囲では検出が難しく，また，器材が高価であるというデメリットがある。一方，後者の間接的に推定する方法は，水中の放射性セシウムの多くが懸濁態として存在することを仮定し，水のSS濃度から放射性セシウム放射能濃度を推定するものであり，原理的には問題がある。しかし，実際的水域における溶存態放射性セシウムの変動範囲は懸濁態放射性セシウムの変動範囲と比べるとごく小さいことから，ほとんどの場合，実用上の問題は少ない。また，濁度センサーの感度は低濃度でも十分に高いことから， 1 Bq L^{-1} 未満の低濃度でも推定が

可能である。さらにガンマ線検出器と比べるとコストが格段に低いこともメリットである。そのため、本節では、放射性セシウムの動態把握のため、2012年以降、河川や用水路、ため池などにおいて、現地で広く実施した濁度センサーを利用した間接的推定によるモニタリング手法について述べる。濁度センサーを利用した間接的な水質測定法は、栄養塩の流出（山本ら，2003；Yamamoto and Suetsugi, 2006）などに広く用いられている。また、検証データを取るため、遠隔による任意時間における採水機能を併せ持つ遠隔観測システムを開発し、数年に及ぶ長期の観測事例を踏まえて、本システムを用いた水質水文観測における問題点と課題を整理するとともに、観測システムの今後の活用方向について提示する。

(2) 観測システムと計測事例

1) 水文および水質分野における遠隔観測

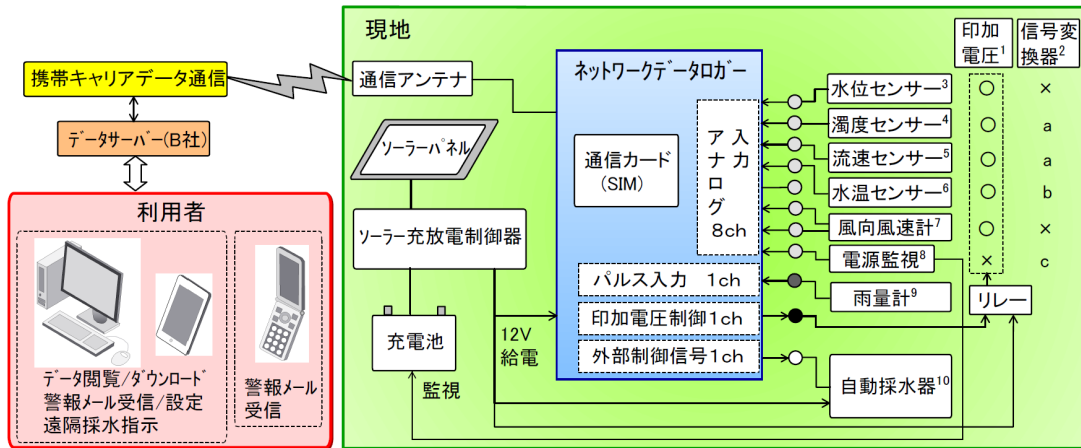
第2次世界大戦前より行われていた行政による河川の水文観測において、例えば、利根川流域では（中尾，2008），初期段階で昭和40年にはテレメータの導入がみられ、昭和50年頃にはテレメータの数が飛躍的に伸びるなど、水文分野の遠隔観測には少なくとも半世紀の歴史がある。農業農村工学分野でも、水位監視に加えてゲートやポンプの運転操作を加えた水管理システムが、昭和40年代後半から各地で導入が始まっている（農業農村工学会，2010）。遠隔観測技術はその後、ICT技術の発展に伴って大きく発展している（深津，平藤，2003；繁永，高橋，2012；溝口，2012；中矢ら，2014）。

また、水質監視に関連して、実用的かつ十分な精度で連続自動観測を実施できるのは、水温、pH、DO、濁度、電気伝導度、油分であり、CODや栄養塩の自動観測は可能であるが、メンテナンス頻度や精度、コストなどの面で課題があるとされている（斎藤，1999）。

近年の水質観測への適用例としては、2011年東日本大震災の津波被災地区における農業用水への塩水侵入対策として、友正ら（2014）により塩分濃度の遠隔観測による水管理手法が提案されている。

2) 放射性セシウムの動態把握のための遠隔観測システム

水中の放射性セシウムの動態把握のための遠隔観測機器のシステム構成を図 2.1 に、概観写真を図 2.2 に示す。本システムは市販品の組合せによるものであるが、後に述べる自動採水器を用いた任意時間における採水機能は本研究で開発し機能を追加したものである。



*1 : 印加電圧(測定時の 30 秒前よりセンサー電源を ON にする), ○ : 有, × : 無, *2 : 信号変換器 a : 4 mA ~ 20 mA → 1 V ~ 5 V, b : 白金測温抵抗体用, c : 0 V ~ 30 V → 1 V ~ 5 V, *3 : 圧力式, *4 : 透過光式, *5 : 電磁式流速計(UIZ-RF), *6 : 白金測温抵抗体式水温計(-20~80 °C, フィールドプロ製 TPT100S), *7 : 風速 0 m s⁻¹ ~ 50 m s⁻¹, 風向 0 ~ 360° (Young 製 5103VM 型), *8 : 電圧変換器による, *9 : 0.5 mm 転倒マス式 (太田計器製), *10 : ISCO 製 3700 型採水器

図 2.1 遠隔観測システムの構成

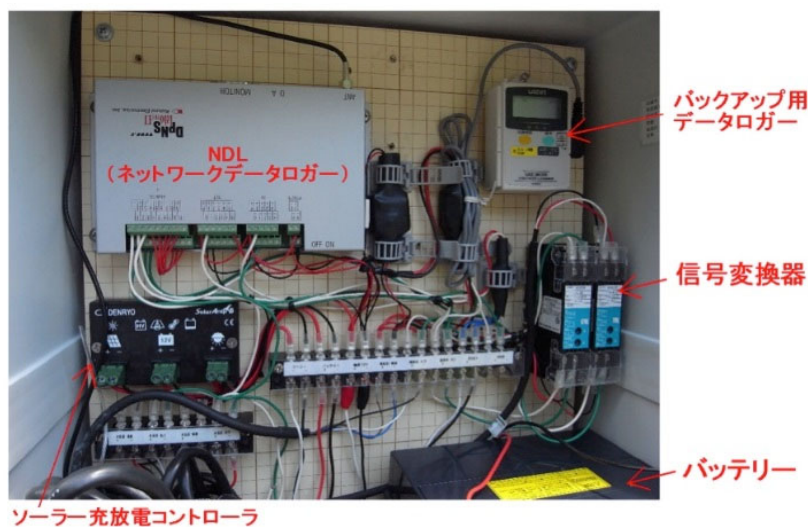


図 2.2 遠隔観測システムの主要部

現地に設置する機器の要がネットワークデータロガー（以下、NDL）である。NDL（UIZ-DPNS-LABO II，ウイジン，東京）は，入力として，0 V～5 V のアナログ入力ポートを 8 チャンネル，パルス入力ポートを 1 チャンネル持つ。アナログ入力には様々なセンサーの接続を行う。1 V～5 V のセンサー出力を持つ圧力式水位センサーであれば，直接入力ポートに接続し，出力が 4 mA～20 mA のように規格が異なればそれに合った信号変換器を介して NDL に入力する。変換器を介することで多くの観測用センサーの接続が可能である。パルス入力には，雨量計や流量計（水道メータ）などを接続できる。

また，センサーや信号変換器等への給電を制御する印加電圧制御回路を一つ有する。センサーの多くは，電源を必要とするが，通常は観測時以外における通電は不要である。そのため，通電後のセンサー出力の安定を考慮し，観測直前に通電することで消費電力の節減を図ることがこの回路の役割である。使用した濁度センサーでは，30 秒前からの通電を要するので印加電圧の制御はこれに合わせている。さらに，本システムの特徴として，自動制御や遠隔指示による機器動作を行う外部制御機能を 1 回路有している。ここでは自動採水器を接続しているが活用法には次の 2 通りがある。

一つは，センサー出力と連動し，あらかじめ水位計や濁度計，雨量計などの出力に閾値を設定しておき，その出力の単独もしくは複数の条件を満たしたとき採水動作を行う設定である。この方法では，例えば「10 分間降雨強度が 5 mm を超え，かつ／または水位が 0.5 m を超えたとき採水を行う」という使い方ができる。

一方の使い方は，PC（図 2.3）やスマートフォンを通じて，遠隔からの指令により，任意の時間に採水する方法で，Web ブラウザから採水の指示が可能である。採水器の制御では，今のところ，通信が一方向のみのため採水器の状態がわからないのが欠点である。また，本システムでは，センサー出力や閾値設定と連動した警報メールの送信も可能である。

今回使用したシステムのコストは，水位観測のみの最小セットを考えると，NDL が約 20 万円，電源周りで 6 万円，水位センサーが 10 万円で合計約 36 万円であった。あとは追加するセンサーの種類により，濁度センサー（25 万円～30 万円）や水温センサー（1 万円）などが必要となる。その他，通信費が 1 システム当たり月額 0.3 万円，データサーバー利用費月額 0.3 万円，年間で 8 万円程度を要している。通信費は，最近急速に普及が進んだ格安 SIM カードを活用すればさらなる低減が期待できる。

農研機構 農村工学研究所
株式会社 ウイジン

〇〇ため池

IPアドレス: 192.168.101.73

No.	観測項目	日時	データ種別	電圧	測定値	単位	閾値①	閾値②	接点出力閾値	接点出力論理
1	濁度(3000度)	2015/11/06 08:10	アナログ	1.002	1.5	度	500	10000	10000	non
2	水位	2015/11/06 08:10	アナログ	1.066	8.3	cm	10000	10000	1000	non
3	水温	2015/11/06 08:10	アナログ	2.183	9.6	°C	10000	10000	10000	non
4	電源	2015/11/06 08:10	アナログ	2.675	12.6	V	10000	10000	10000	non
5	-	2015/11/06 08:10	アナログ	0.020	0.0	V	10000	10000	10000	non
6	気温	2015/11/06 08:10	アナログ	0.269	6.9	°C	10000	10000	10000	non
7	湿度	2015/11/06 08:10	アナログ	0.998	99.8	%	10000	10000	10000	non
8	-	2015/11/06 08:10	アナログ	0.083	0.0	V	10000	10000	10000	non
P1	雨量	2015/11/06 08:10	パルス	0	0.0	mm	0.5	2	10000	non

[設定](#)

図 2.3 遠隔観測システムの PC 画面

3) 原子力災害対応における遠隔システムの活用

本システムは、2013 年以降、福島県内の用水路（申ら，2015a；申ら，2018），帰還困難区域内のため池（久保田ら，2016a）などで活用された。図 2.4 と図 2.5 に、福島県の帰還困難区域に立地するため池での観測データの取得事例を示す。

図 2.4 は、ため池への流入溪流における濁度と採水試料の分析により得た ^{137}Cs 放射能濃度の関係を示す。観測された範囲では濁度により比較的良好的に ^{137}Cs 放射能濃度の推定が可能であることが確認された。図 2.5 は、2014 年 10 月の台風 19 号通過時におけるため池からの流出水の観測結果であるが、10 分毎に更新される雨量や水位、濁度の値を遠隔監視しながら、必要なタイミングで採水動作の指示を送り、自動採水器で採水を行った。このように、立入制限地域でも遠隔操作により任意の時間での採水が可能となった。

このほか、申ら（2015a）は、幹線用水路の上流部に本システムを設置し（図 2.6），灌漑期を通じて河川から用水路に入り水路を流下する放射性セシウムの定量を試みるとともに、放射性セシウム放射能濃度が上昇した際に、用水路を管理する土地改良区にメールを送信し、河川からの取水を止める仕組みを構築した（図 2.7）。

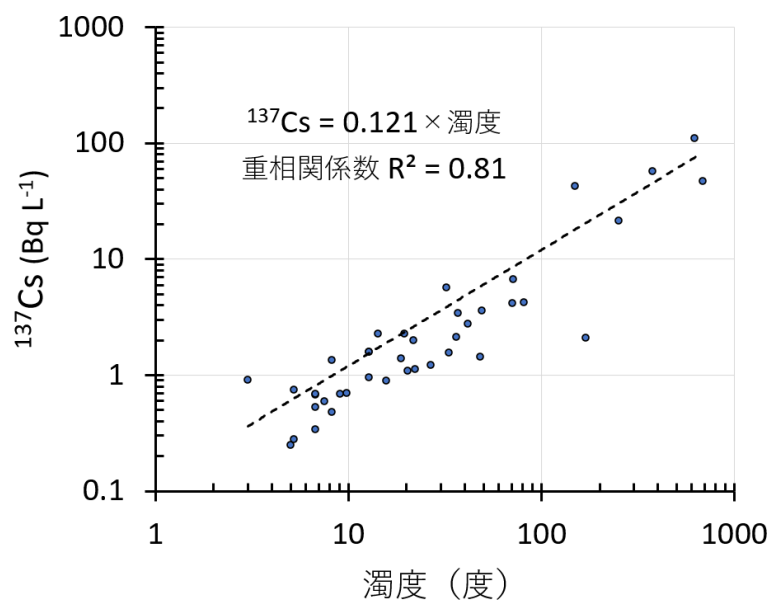
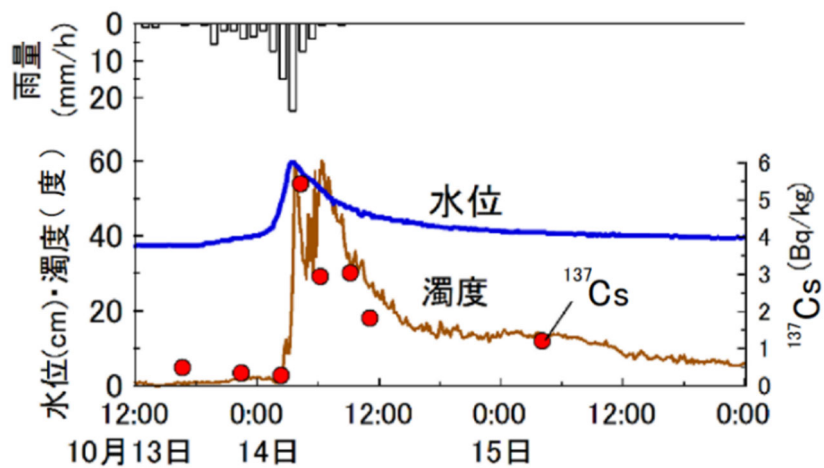


図 2.4 ため池流入溪流における濁度と ^{137}Cs の関係 (2014 年)



(福島県飯舘村ため池流出水, 2014 年 10 月 13 日~15 日)

図 2.5 遠隔観測システムによるため池洪水吐の水位, 濁度, 雨量および採水のタイミング. 青実線はため池の水位, 茶実線は濁度, 赤丸は遠隔指示により得た採水試料の分析による ^{137}Cs 放射能濃度を示す.



(a) 農業用水路



(b) 農業用水取入口

図 2.6 現地に設置された水質水文遠隔監視システム

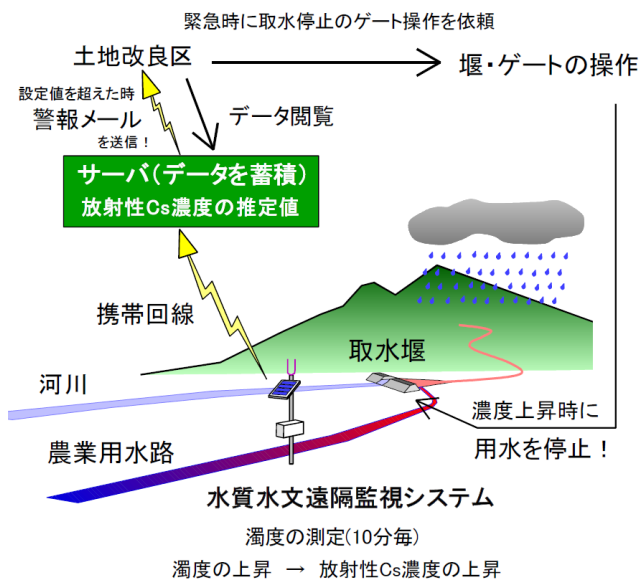


図 2.7 水質監視による放射性物質の流入防止のしくみ
(申ら (2015a) の図 9 を一部改変)

(4) 運用上の問題と課題

本システムの運用を行う上で遭遇した問題点と課題について項目に分けて紹介する。

1) システムの問題

現行のシステムでは、設置場所により、大雨時を中心に携帯通信に障害が発生し、欠測が生じることがあった。携帯通信で主に使用される周波数帯は、必ずしも電波の降雨減衰を受けやすいものではない。しかし、通信条件が良好でない場所に設置する場合、豪雨時の降雨減衰が影響する可能性がある。対策としては、データロガー内に一定期間のデータを保持するなど、欠測が生じないようデータの二重化を図る必要がある。今回は行っていないが避雷対策も重要である。

一方、メール警報システムでは、濁度センサーの異常値の影響により、多数の不要なメールを送信したり、通報を受ける土地改良区において深夜の携帯メール着信の処理が適切にできないなど、ソフトウェア上の改善の課題も見いだされた。

2) 維持保守管理の問題と課題

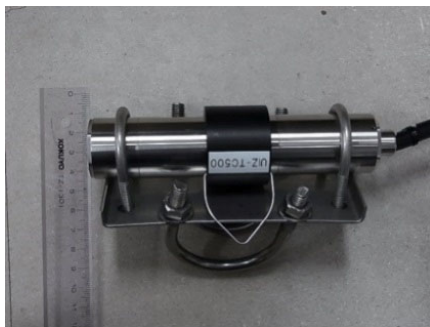
遠隔監視では、精密機器であるデータロガーや通信システムが、観測箱等の中とはいえ、高低温や高湿度など過酷な気象条件下に晒されることから、機器設置や維持管理において細心の配慮が必要である。使用条件を超えた温度での運用や多湿による電子回路の腐食や短絡、部品劣化などである。

筆者らの例では、寒冷地に設置したシステムで、冬期間に温度がやや高い NDL にクモが入り込んで糸を張り、回路を短絡させる故障があった(図 2.8)。このような機器は、野外での長期運用になることから、耐湿、対候、防塵性を含め耐久性のある構造とすることが欠かせない。また、電源はソーラーパネルとバッテリーの組合せで長期観測への対応ができるようになっているが、日照に制限がある場合への対策は課題である。

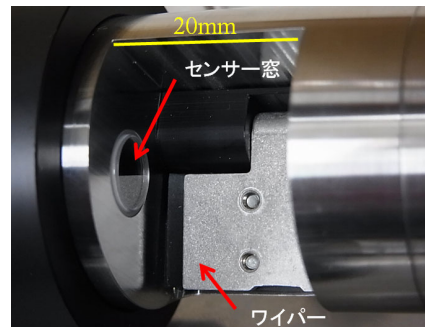


観測箱に侵入したクモが基板上に巣をつくったため、回路がショートし、修理不能となったネットワークデータロガー

図 2.8 電子機器のトラブルの事例



(a) 濁度センサーの外観と取付金具



(b) センサー部 (拡大)

図 2.9 透過光型濁度センサー

3) 濁度センサーの問題

近年、圧力式水位センサーの耐久性は向上し、長期間の使用に耐えるようになっている。ここでは、筆者らが使用した透過光型濁度センサー（図 2.9）の設置および維持管理上の問題を記す。使用したセンサー（TC-100/500/3000, OPTEX, 滋賀）は、水中の透過光の減衰により濁度を測定する構造で、透過部のワイパーで、観測直前にサファイアガラス製の透過窓の汚れを拭き取る構造である。

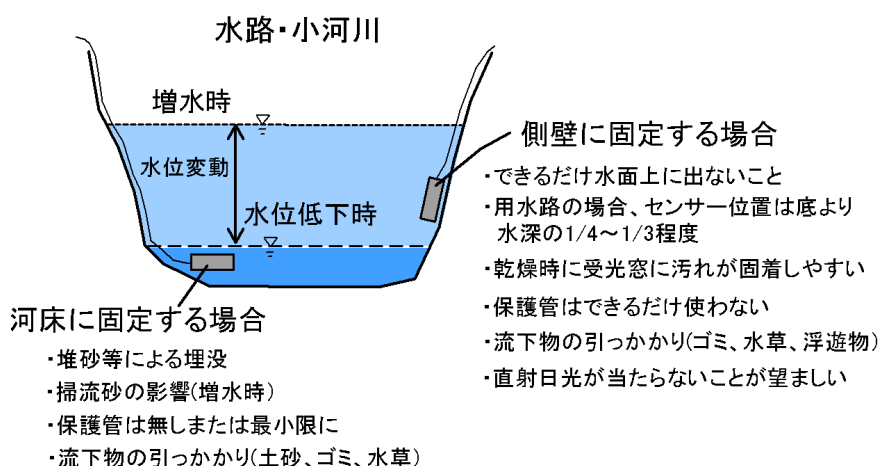


図 2.10 濁度センサー設置時の考慮事項

濁度センサーによる観測の問題は、主に、①設置場所と方法、②ゴミや堆積物による光路障害、③受光部への物質の付着、に起因する。

濁度センサーの設置では、光路部を流水が通過するように固定することが基本であるが、そのような場所は一般にゴミ等が引っかかりやすい。また、低水時に水位が河床近くまで低下する場所では、流路の河床にセンサーを取り付ける必要があるが、その際、増水時には浮遊砂ではなく掃流砂を捉えてしまう可能性がある（図 2.10）。このほか、出水時に堆砂に埋没してしまうケースもあった。

また、設置の際にセンサーを開孔率が低い保護管に入れると、流速の速い水路においても保護管内に濁質の堆積や滞留が発生し、流水の濁度の代表値を得ることは難しい。開孔率が高い保護管を使うか、センサーを剥き出しに設置することが望ましい。一方、センサーを剥き出しで設置すると流下物の接触により破損する危険性がある。比較的よく管理された水路においても、ゴミや水草の引っかかりによる光路障害によりスパイク状に発生する一時的な異常値や長期間の欠測が生じた。

ため池斜樋からの流出水の観測では、観測値のベースラインが上昇するという現象が見られた。本センサーは定期的なワイパーの動作により、通常の付着物や堆積物であれば影響を受けることは少ないが、透過窓の表面に固着するものの影響は避けられない。この

ケースでは、流出水、特に斜樋で発生した湧水に含まれる Fe^{2+} イオンが受光窓に鉄酸化物として沈着した影響と考えられた。

4) 今後の課題

今回使用した観測システムは、比較的低価格で導入可能であり、維持管理も容易であることから、水中の放射性セシウム放射能濃度の観測だけではなく、例えば、土地改良区に義務づけられている農業用水の取水量のモニタリングにも使用でき、初期投資や維持管理の費用の確保が難しい中小規模の土地改良区等でも活用の可能性がある。

また、フィールドサーバ（深津・平藤，2003）やフィールドモニタリングシステム（溝口，2012），Supervisory Control and Data Acquisition (SCADA)（中矢ら，2014）のように、イーサネット接続を基本とするシステムでは、画像データを含め格段に多くのデータ転送が可能で、拡張や組替えにも柔軟に対応できる。さらに SCADA では、専門的なプログラミング技術なしでメーカー仕様に依存しないシステム構築が可能とされる。これら低コストの汎用システムの利用は、保守点検や簡易な修理も施設管理者が対応することで保守管理費の低廉化など、施設費以外の低コスト化においても有利と考えられる。米価の低迷や農業従事者の減少が定着する中で、低コストで遠隔観測が可能なシステムの活用の余地がある。

今後、遠隔監視システムが、研究分野における現地観測や水管理の実務へ適用の拡大が見込まれる中で、さらに、機器の高耐久化や維持管理の容易化、ソフトウェアの改良、機材費および通信費の低減などを目指して機器の開発・改良を図っていく必要がある。

第3節 要約

第2章では、水中の放射性セシウムの分析について概説するとともに、水中の放射性セシウム放射能濃度の遠隔監視手法について検討した。使用したシステムは、携帯回線を用いて水位・水質センサーによる10分毎に水質水文観測を行うとともに、PCやスマートフォンを用いて遠隔で採水指令を送ることによって、任意の時間に採水を行うことができる。そのため、立入が制限されている原発事故被災地区内においても、採水時間の制限がない

採水調査の実施が可能となった。このシステムと濁度センサーを用いて、低コストで水中の放射性セシウム放射能濃度の遠隔観測を行った。必要な検証データは、現地における採水に加えて遠隔採水を活用して取得した。このシステムを利用して、農業用水路へ流入する放射性セシウムの量を減らす試みなどを行った。このような比較的 low コストの観測システムは、比較的 low 価格で導入が可能であり維持管理も容易であることから、今後、水中の放射性セシウム放射能濃度の観測だけでなく、土地改良区に求められている農業用水の取水量の記録などに活用することが期待される。

第3章 水田における放射性セシウムとカリウムの動態

第1節 水田における放射性セシウムの動態と水稻の放射性セシウムの吸収抑制対策に関するレビュー

(1) 灌漑水中の放射性セシウムの影響調査と水稻の吸収リスク

第1章2節で述べたように、2011年度は、制限区域外における水稻作付が行われた（図1.2）。ところが、2011年産の玄米に含まれる放射性物質を調べた結果、福島市の一部（旧福島市，小国村），伊達市の一部（月舘町，小国村，掛田町，富成村，柱沢村，堰本村），二本松市の一部（渋川村）の3市（9旧市町村）では、暫定規制値の 500 Bq kg^{-1} を超過する玄米が見つかり、12市町村（56旧市町村）では、区域内の最高値が 100 Bq kg^{-1} ～ 500 Bq kg^{-1} の玄米が見つかった（福島県水田畑作課，2012）。このように作付制限区域以外において、暫定規制値を超える放射性セシウム放射能濃度が検出されたことから、2012年度は、作付制限区域の見直しが行われるとともに、用水の影響などの土壌以外の要因についても調べられることになった。

水中の放射性セシウムのうち溶存態画分は、作物に吸収されやすいとされる。それでは、溶存態放射性セシウムはどれくらいの濃度でイネに影響するのだろうか。Suzuki et al. (2015) は、溶存態 ^{137}Cs が 0.1, 1.0, 10 Bq L^{-1} の3種類の放射能濃度の灌漑水を用いて水稻栽培を行い、収穫された玄米の ^{137}Cs 放射能濃度を比較した。その結果、玄米の ^{137}Cs 放射能濃度は、灌漑水の ^{137}Cs 放射能濃度に比例して増加したが、 ^{137}Cs が 0.1 Bq L^{-1} の灌漑水では、玄米中の放射性セシウムの暫定規制値である 500 Bq kg^{-1} に対して、玄米への移行は無視できる程度であった。そして、 1.0 Bq L^{-1} の灌漑水では影響が見られ、 10 Bq L^{-1} の灌漑水では土壌の種類によって玄米中の放射性セシウム放射能濃度は 65 Bq kg^{-1} ～ 341 Bq kg^{-1} となり顕著な影響が確認されている。なお、この結果はカリ施肥が行われない条件（供試土の交換性カリ含量は $3.7 \text{ mg } 100\text{g}^{-1}$ 乾土～ $14 \text{ mg } 100\text{g}^{-1}$ 乾土）で得られたものである。

一方、懸濁態放射性セシウムからイネへの移行は限定的であるとされる。Tsukada and Ohse (2016) は、伊達市小国地区で6月～8月に遠心分離により灌漑水から懸濁物質を採取し、放射性セシウムを存在形態別に分析した結果、約95%がイネへ移行しにくい強固結合態として存在することを明らかにしている。

(2) 水田に流入する放射性セシウムの動態

表 3.1 に各調査地における用水の放射性セシウム放射能濃度や放射性セシウムの流入量、収支等を示す。3.1.1 で述べたように、2012 年以降、水稻作における放射性セシウム吸収のリスク要因の一つとして、用水を通じて水田に流入／流出する放射性セシウムの定量的把握とその動態に関する調査が行われた。主な調査地を図 1.2 に示す。2012 年には福島市大波において、また 2013 年には川俣町山木屋の日向および細田、飯舘村草野、小宮、長泥の合計 5 地区の除染水田において、水稻試験栽培と併せて放射性セシウムの動態や用水水質が調べられた。このうち、帰還困難区域内に立地する飯舘村長泥地区では用水源としてため池を利用していたため水稻への影響が懸念されたが、2013 年に実施した調査の結果、用水中の放射性セシウムの平均値は 2.5 Bq L^{-1} 、溶存態放射性セシウムは 0.041 Bq L^{-1} 、用水を通じて水田に流入する放射性セシウムは一作期当たり 1.2 kBq m^{-2} であり、同地点で農地除染後に土壤内に留まる放射性セシウム 580 kBq m^{-2} と比べると、わずか 0.2 % と小さく、かつ玄米への影響も小さいことが明らかになった (Shin et al., 2015b)。なお、ここで紹介する試験は、すべてカリウムの増肥 (福島県農林水産部, 2012) によるイネの放射性セシウム吸収抑制対策を施した条件で実施されたものである。続く 2014 年の飯舘村草野 (2 圃場) と飯舘村小宮ならびに川俣町山木屋の日向と細田において得られた結果を見ると (表 3.1), 2013 年と同様に灌漑水からの放射性セシウムの流入が少ないことが確認された (Shin et al., 2019)。

表 3.1 水稲栽培試験における用水を通じた放射性セシウム (RCs) の流入と収支

		川俣町山木屋		飯館村				浪江町		
		日向	細田	小宮	草野A	草野B	長泥	酒田		
試験実施年度		2014	2014	2014	2014	2014	2013	2014	2015	
用水源		河川	河川	河川	河川	ため池	ため池	地下水	河川 (請戸川)	
用水量	mm	452 ¹⁾	452 ¹⁾	554 ³⁾	350 ⁴⁾	350 ²⁾	1572	-	1406	
雨量	mm	-	-	753	744	744	667	-	966	
圃場排水量	mm	-	-	-	145	145 ²⁾	437	-	223	
用水の平均 RCs濃度	全	Bq L ⁻¹ ()は分析数	0.16 (7)	0.34 (7)	0.91 (10)	0.35 (10)	0.58 (12)	2.5 (12)	0.003 (5)	0.47 (16)
	溶存態		0.016 (7)	0.032 (7)	0.14 (10)	0.11 (11)	0.068 (12)	0.041 (4)	0.002 (5)	0.25 (11)
用水からの RCs流入量	全	Bq m ⁻² 作期 ⁻¹	72 ¹⁾	150 ¹⁾	500	120	200 ²⁾	3900	-	670
	溶存態		7.2 ¹⁾	14 ¹⁾	78	39	24 ²⁾	64	-	350
RCs 流出量	全	Bq m ⁻² 作期 ⁻¹	-	-	-	15	38	720	-	32
	溶存態		-	-	-	3.3	2.3	100	-	10
収支 (流入-流出)	全	Bq m ⁻² 作期 ⁻¹	-	-	-	59	160	3200	-	640
	溶存態		-	-	-	34	23	-36	-	340
RCs 大気降水量	Bq m ⁻² 作期 ⁻¹	-	-	-	350	-	-	-	81	
作土のRCs濃度	Bq kg ⁻¹	240	440	940	930	420	1800	1700	3300	
作土中のRCs量	kBq m ⁻²	43	79	170	170	76	580	310	590	
用水流入RCs/作土RCs	%	0.17 ¹⁾	0.19 ¹⁾	0.29	0.07	0.26 ²⁾	0.67	-	0.11	
玄米の RCs濃度 ⁵⁾	平均	Bq kg ⁻¹	0.81	1.8	2.2	1.5	2.0	3.7	3.1	3.0
	水口側		0.81	3.1	3.4	1.6	1.8	-	3.1	3.1
	中央		0.77	1.3	1.7	1.7	2.7	-	3.6	2.8
	水尻側		0.86	0.92	1.5	1.3	1.5	-	2.6	3.1

注¹⁾ 用水量に近隣圃場(小宮・草野A)の平均値を使用した参考値

注²⁾ 用排水量に、草野A(隣接圃場)の測定値を援用した参考値

注³⁾ 用水量には代かき用水を含む

注⁴⁾ 用水量には代かき用水を除く

注⁵⁾ すべての圃場でRCsの吸収抑制対策のためカリ増肥を実施

さらに、2014年にはFDNPPからの直線距離が約10kmと近く、当時居住制限区域に指定されていた浪江町酒田地区の除染水田において、放射性セシウムによる汚染の影響がより小さいと考えられる地下水を用いて水稲の試験栽培が実施された。酒田地区は請戸川下流に位置するが、請戸川の集水域はFDNPPから北西方向に帯状に延びる放射性セシウムが濃く沈着した範囲と概ね重なり、かつ大柿ダムの受益地でもあることから、原発事故被災地の中でも水利用の可否への感心が高い地域であった。2013年11月に浪江町が実施した農業者意向調査(浪江町, 2014)によれば、当時、支援策・施策の中でも、「試験栽

「試験栽培・モニタリング・放射性物質の影響確認」や「大柿ダム・水利施設等の早期復旧」に高い期待が寄せられていた（図 3.1）。

2014 年の地下水利用による試験栽培で問題が見られなかったことを受けて、翌 2015 年には同地区で請戸川の水を用いた水稻の試験栽培が実施された。当地では、震災の影響で用水を取り入れる頭首工や用水路が使用できなかったため、2015 年の栽培試験では請戸川から直接ポンプで水をくみ上げて用水を供給した。本試験の結果から、用水を通じて水田に流入した放射性セシウムによる水田の再汚染の可能性は低く、カリ増肥を適切に行うことで、食品の基準値と比べて十分に放射性セシウム放射能濃度が低い玄米生産が可能であることが実証された（申，久保田，2021）。

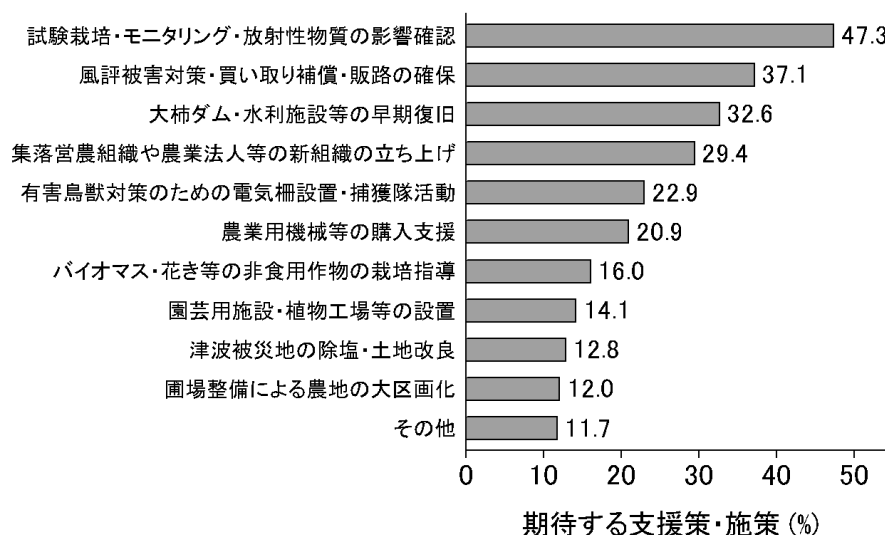


図 3.1 浪江町の農業者が期待する支援策・施策（浪江町，2014）

この試験において、2015年の灌漑期の用水中の平均放射性セシウムは 0.47 Bq L^{-1} 、このうち溶存態は 0.25 Bq L^{-1} と比較的低かったが、請戸川では増水時の濁水の放射性セシウムが最大で約 120 Bq L^{-1} まで上昇した。増水時の放射性セシウムはほとんどが懸濁態で構成されるものの、一部に作物吸収に影響すると考えられる交換態や有機態を含んでいると考えられることから、被災地の水管理ではこのような濁水を取水しないことが重要である。浪江町酒田における一連の試験は2016年以降、内容を少しずつ変えながら東北農政局の事業の一環として、農研機構と新潟大学等との共同研究として2020年まで継続して実施されている（NTC コンサルタンツ、2018、2020；日水コン、2019）。なお、2018年まではポンプを用いた河川水の直接利用であったが、2019年からは頭首工や用水路の復旧により本来の用水系統を利用した試験栽培が実施された。

なお、用水を通じて流入する放射性セシウムに関連して、水田の水口付近においては、それ以外の部分に比べて、玄米の単位面積当たりセシウム移行量がやや高いことが観測されている（宮津ら、2017；吉川ら、2020）が、浪江町酒田の試験からカリ増肥による吸収抑制対策を行う限り、玄米の放射性セシウム放射能濃度は食品基準値との比較において十分に小さいことが示された。少なくとも当面の間は、カリ増肥を適切に行うことが重要であると考えられる。酒田地区を含む浪江町の避難指示解除準備区域と居住制限区域では、2017年3月末に避難指示が解除となり、平行して用水復旧が進むなど徐々に条件も整っており今後の営農再開の進展が期待される。

(3) 用水中の放射性セシウムを除去する試み

用水への緊急的な対応が求められた2012年度を中心として、モミガラなどの資材を用いて用水中の放射性セシウムの除去を行う試験が実施された。まずは経緯について述べる。

福島県農地管理課では、2012年の水稲作に向けて、2012年2月末に用排水路の土砂上げ時の留意点と堆積した土砂が用水路や農地に流入しにくい施設運用法について各農林事務所へ指示を行った（久保田ら、2013）。それを受けて県北農林事務所では、3月に管内の自治体や土地改良区に対して農業用排水路とため池の堆積土対策に関する留意事項を伝えるとともに、水田の取水口に土砂溜めを設けて上澄みを水田に取り入れるなど土砂流入防

止への配慮を求めた。さらに、4月には農業用水の管理に関する当面の留意事項についてJAを通じて農家に通知を行ったが、その中で水田水口や沢水、ため池掛かりの用水路にモミガラをフィルター材とした対策を推奨した。これは、福島県生活環境部が2011年に実施した除染技術実証事業の中で安価で入手容易なモミガラに着目し、それを吸着資材として水中の放射性物質を低減する技術として検討されたものである（庄建技術、2012）。

以上のような背景から、モミガラやゼオライト、プルシアンブルーシート等の濾過・吸着資材を用いた用水中の放射性セシウム除去が試みられた。水田の水口に吸着資材を設置した用水中の放射性セシウムの除去試験では、モミガラとゼオライト（細粒および粗粒の2種）およびくん炭が比較された。その結果、回収効率で比較するとゼオライトの効果が最も高く、次いでモミガラ、くん炭の順であった（久保田ら2013）。くん炭、ブナおよびオークのおがくず、ならびに木炭（スギ）の4つの自然素材に対する¹³³Csの吸着特性を調べた試験（Miura et al., 2016）では、くん炭とブナおがくずが有効なセシウム吸着材として選定された。これらの物質は異なる初期セシウム濃度に対して連続的かつ安定したセシウム吸着率を示し、吸着等温線はフロイントリッヒモデルに従うことが示された。

その後、現地では使用済みのモミガラなどの吸着資材の処分方法や引受先がないことが支障となり、福島では広く農家に普及することはなかった。国内では、使用済み資材の処分方法の行き詰まりのため実施できなかったが、行政による使用済み資材の廃棄物としての受け入れなどの対応を取ることができれば、緊急時に実質的な効果が得られる可能性がある。

第2節 浸透水の水質の違いが水田土壌のカリウム溶脱に及ぼす影響

(1) はじめに

2011年3月に発生した東日本大震災に起因する東京電力FDNPPの事故により多量の放射性物質が放出された。農作物による放射性物質の吸収が懸念された農地では、カリウム肥料の施用がイネの放射性セシウム放射能濃度の低下に有効である (Fujimura et al., 2013a) ことから、2012年からカリウムの上乗せ施用が始められた。そのことにより、2012年以降、放射性セシウムの食品中の含有値基準を超える玄米の数は大きく減少し、高い効果が認められた。しかし、コストも大きいため、2015年からはカリウムの上乗せ施用の停止に向けた実証試験が始められ、2016年以降は、カリウムの上乗せ施用が打ち切られる地域が徐々に増えている (藤村, 2021)。そのため、水稻作では、確実に無駄のないカリウム施肥技術の確立が求められており、土壌中におけるカリウムの動態を把握することが課題である。

土壌中のカリウムの移動は、主に陽イオン交換と一部の粘土鉱物による選択的な吸着に影響される。陽イオン交換は、土壌中のカリウムを含む交換性陽イオンが、主に粘土粒子が持つ負電荷を介して交換・移動する現象として1800年代後半に知られていた (Johnston et al., 2016)。このように、カリウムの移動は他の主要な陽イオンの動態と密接に関連している。粘土の相対的な陽イオン選択性の大きさは、イオン半径とイオンあたりの電荷量に影響され、1価の陽イオンでは $Cs^+ > Rb^+ > K^+ \cong NH_4^+ > Na^+ > Li^+$ の順であることが実験的に知られている (Bolt et al., 1978)。

イライトやパーミキュライトなどの2:1型層状ケイ酸塩鉱物は、 Cs^+ 、 Rb^+ 、 NH_4^+ とともに K^+ に対する選択性が高く (Sawhney, 1972)、これもカリウム移動度に影響を及ぼす。これらのイオンは電離度が小さく、イオン半径が比較的大きいため、脱水和しやすく、脱水和イオンとして2:1型層状ケイ酸塩の単位層に挟まれるように吸着する (和田, 1997)。しかし、土壌は多くの種類の粘土鉱物の混合物であり、多くの陽イオンが共存しているため、一般にイオンの動態を厳密な理論や実験によって記述することは困難である (Evangelou and Phillips, 2005)。さらに、カリウムの移動は、イオンの形態だけでなく、

粘土コロイド粒子に吸着された形態でも生じることが指摘されている (Brouder et al., 2021) .

畑土壌を対象とした研究では、灌漑水の水質の違いによる土壌カリウムの溶脱への影響が調べられている (Kolahchi and Jalali, 2007; Jalali and Merrikhpour, 2007; Heidari and Jalali, 2016) . しかし、水田土壌を対象としたカリウム溶脱に関する研究は近年まであまりみられなかった.

福島での原発事故に関連する研究の中でも、土壌中の交換性カリウムの含量が玄米の放射性セシウム放射能濃度に大きく影響することから、近年、灌漑水によるカリウム供給や浸透による溶脱など、水田におけるカリウム収支の研究が行われている. Nishikiori et al. (2020) は、河川沖積地に位置し、浸透がかなりある圃場で、灌漑水からのカリウム供給と地下へのカリウム溶脱を含む水田のカリウム収支を測定し、過剰に灌漑を行った場合に溶脱が大きくなることを明らかにした.

農研機構では、水田での適切なカリウム施肥を推進するため、全国 5 県の農業試験場と共同で、水田土壌のカリウム収支に基づく水稻のカリウム施肥指針をまとめた (農業・食品産業技術総合研究機構, 2021) . それによると、稲わらの圃場還元の有無がカリウム収支に決定的な影響を及ぼし、稲わらの還元があれば、収穫によって持ち出されたカリウム量をほぼ補うことができ、施肥や灌漑水からの供給によって水田のカリウム収支がマイナスになることはない. ここでは、灌漑水中の K^+ 濃度が 2.5 mg L^{-1} のとき、灌漑水から供給されるカリウム量は約 15 kg ha^{-1} と仮定された.

以上のように、水を通じて供給されるカリウムの定量化を含め、農地におけるカリウムの動態は近年研究が進められている. その中で、灌漑用水や土壌に浸透する水の水質の違いがカリウムの溶脱に影響を与えることは容易に予想される. しかし、これまで、浸透水の水質が水田土壌中のカリウムの動態に及ぼす影響を定量的に評価した研究はほとんどなかった.

そこで、本章では、親指サイズの小型カラムを用いた実験により、様々な流入水質による土壌交換性カリウムの溶脱との関係を調べることを試みた. まず、流入水中の主要陽イオン濃度の違いが水田土壌からのカリウムの溶脱に及ぼす影響を検討した. 次に、流入水の K^+ 濃度だけでなく、主要な陽イオンの組成比もカリウム溶脱に影響を及ぼすとの仮

説を立て、この仮説を検証するために、カリウム吸着比 (Potassium Adsorption Ratio, PAR) を指標として検討を行った。

本節では、小型カラムを用いた実験を行った。必要な結果が得られるのであれば、カラムは小さい方が実験の省力化につながる。既往の類似研究で用いられたカラムのサイズは、例えば、直径 (D) 5 cm × 長さ (L) 20 cm ~ 50 cm (松川, 中野, 1992), D 4.9 cm × L 14 cm (松川ら, 1996), D 14.6 cm × L 60 cm (李ら, 1994), D 2 cm × L 15 cm (Colombani et al., 2015), D 5 cm × L 20 cm (Li et al., 2013) などさまざまであった。また、近年、国際標準化機構 (ISO) が上向き浸透試験の国際標準化を進めている (ISO 2019)。この規格化は、汚染物質の溶出を評価することを目的とし、カラムサイズは D 5 cm ~ 10 cm, L 30 cm ± 5 cm と規定されている。Yasutaka et al. (2017) は、国際標準サイズのカラムを用いて Ca²⁺ や Cl⁻ などの無機イオンの溶脱を評価した。以上のようにカラムの直径は 5 cm ~ 10 cm 程度、長さは 15 cm ~ 30 cm 程度がよく使われているが、本研究では、D 2.1 cm × L 5 cm という小型カラムを使用し、得られた結果の再現性も検討した。

(2) カリウム吸着比 (PAR) とその特性

乾燥・半乾燥地域の灌漑農業では、塩害の原因となるナトリウムハザードの回避や土壌粒子の分散による透水性の低下が重要である。そこで、灌漑用水の危険度を示す指標として、ナトリウム吸着比 (Sodium Adsorption Ratio, SAR) が定義され、広く用いられている (USDA, 1954)。

$$\text{SAR} = \frac{[\text{Na}^+]}{\sqrt{[\text{Ca}^{2+}] + [\text{Mg}^{2+}]}} \quad (3.1)$$

ここで、[Na⁺], [Ca²⁺], [Mg²⁺] は各イオンの濃度 (mol L⁻¹) である。SAR の高い灌漑用水を使用すると、土壌からの Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, リンなどの溶脱が促進され、地下水の水質に影響を与える (Jalali and Merrikhpour, 2007)。Sposito and Mattigod (1977) は、土壌と交換平衡にある水の潜在的な SAR の理論的、化学的根拠を検討し、ガボン陽イオン交換平衡定数が SAR の化学的根拠であることを明らかにした。

主要な一価陽イオンの一つである K^+ は、 Na^+ と同様に過剰に存在すると有害な影響を与えるが、その影響は Na^+ よりも弱い。そこで、SAR と同様に、 Na^+ を K^+ に置き換えた指標として PAR (Potassium Adsorption Ratio) を定義した (USDA, 1954)。

$$PAR = \frac{[K^+]}{\sqrt{[Ca^{2+}] + [Mg^{2+}]}} \quad (3.2)$$

灌漑用水中の K^+ の影響を表す指標としてのこの式の特徴は、 Na^+ の影響を無視していること、 Ca^{2+} と Mg^{2+} の化学的区別がないこと、組成比だけでなく濃度の影響も反映することである。陽イオンの組成比が一定の溶液を想定すると、 $[K^+]$ が 2 倍になると PAR は $\sqrt{2}$ 倍となる。

土壌溶液の PAR は、粘土粒子や土壌有機物の交換表面に吸着したカリウムの量を反映し、土壌内での凝集・分散の説明因子となる可能性がある。Shainberg et al. (1987) は、他の指標の中でも PAR が透水係数の減少に及ぼす影響について検討した。

PAR は、土壌の凝集・分散の説明因子としてだけでなく、農地の灌漑履歴や地下水環境の評価のための水質指標としても検討されている。Smiles and Smith (2004) は、豚舎排水で灌漑した農地の土壌溶液の PAR (論文では KAR) を調べ、PAR が豚舎排水による灌漑の影響を表す良い指標であることを示した。Griffioen (2001) は、PAR を指標として農地への施肥が地下水質に与える影響を調べ、地下水中の主要な陽イオンが二価である中性付近の pH では、カリウムの挙動が PAR を用いてよく説明されることを明らかにした。

SAR や PAR と類似したパラメータは、多くの理論的なイオン交換式で見られる (Bresler et al., 1982)。しかし、これらのパラメータとは異なり、SAR と PAR はイオン活性ではなくイオン濃度で表されるため、錯体の形成による遊離イオンの減少等は考慮されていない。

PAR が溶液の活量を考慮しないカリウム吸着比を表すのに対して、土壌溶液を対象に活量を考慮したカリウム吸着比を適用した事例として、Ramamoorthy and Paliwal (1965) は、インドの 4 地域の性質の異なる 40 土壌で水稻に施用した場合の土壌カリウムの利用率を調査した。その結果、多くの地区でカリウム吸着比と作物反応との間に相関を見出した。

PARと類似するパラメータを用いた研究として、Q/I関係の解析がある。Q/I関係は、 K^+ と $Ca^{2+}+Mg^{2+}$ のイオン対の活量比、すなわち、 a を活量、 $aK^+/\sqrt{aCa^{2+} + aMg^{2+}}$ を因子Iとし、カリウムの強度比（因子 I）と土壤によるカリウム吸収・放出（因子 Q）の関係を定量するものである（Beckett 1964a）。具体的には、Q/I 関係は、0.01 M $CaCl_2$ 溶液に数段階のカリウム濃度と土壤を固液比一定で一定時間反応させ、溶液の因子 I に対する土壤カリウム吸着量の変化を調べる（Eguchi et al., 2023）。因子 I の活量比が濃度比 $[K^+]/\sqrt{[Ca^{2+}] + [Mg^{2+}]}$ と比例するとみなすことができれば PAR と同型になる（Evangelou et al., 1986）。

流入水中の K^+ 濃度と主要陽イオン中のカリウムの組成を複数の説明変数として用いれば、カリウムの溶脱を説明することは難しくないかもしれない。しかし、本研究では、説明変数の数を減らし、よりシンプルな指標である PAR に着目して現象を把握し、交換性カリウムの溶脱・蓄積の説明を試みたい。

(3) 材料および方法

1) 試験土壌

試験土壌は、福島県福島市松川（図 1.2）の水田土壌から採取し、風乾後に直径 2 mm の篩を通過させたものである。この土壌は細粒質普通低地水田土に分類される（農業・食品産業技術総合研究機構, 2019）。試験土を採取した圃場は、稲わらの圃場還元と放射性セシウムの吸収低減対策としてカリウム増肥が行われており、土壌試料の採取は、田植え後の早い時期に行った。採取地点の土壌の母材は、中新世末期または鮮新世初期に小規模な堆積盆を埋めた陸水成層の固結堆積物（阪口, 1995; 吉田ら, 1983）で松川層と呼ばれる凝灰質砂岩及びシルト岩である。松川層の分布域の周囲には古第三紀の花崗閃緑岩帯が広がっており、その影響が大きい。供試土壌の理化学性を表 3.2 に示す。試験土の鉱物組成は、カオリナイトに富み、その他スメクタイト、パーミキュライト、イライトなどの 2:1 型粘土鉱物を含んでいる。

表 3.2 供試土壌の理化学性

項目	説明	
pH (H ₂ O)	6.0	1:5 水振とう抽出
EC	0.09 dS m ⁻¹	1:5 水振とう抽出
CEC	17.6 cmol _c kg ⁻¹	振とう浸出法 (10% 塩化カリウム抽出)
交換性 Ca (CaO)	276 mg kg ⁻¹	振とう浸出法 (1M 酢酸アンモニウム抽出)
交換性 Mg (MgO)	502 mg kg ⁻¹	振とう浸出法 (1M 酢酸アンモニウム抽出)
交換性 K (K ₂ O)	402 mg kg ⁻¹	コンパクトカリメータを用いた簡易法
リン酸吸収係数 (P ₂ O ₅)	5.41 g kg ⁻¹	オルトリン酸法
腐植	0.019 kg kg ⁻¹	全農法 (熊田式簡便法)
土性	CL	粗砂 : 26%, 細砂 : 18%, シルト : 33%, 粘土 : 23%
粘土鉱物 (X線回折法による)	富む	カオリナイト
	普通	スメクタイト, バーミキュライト, イライト, クロライト- バーミキュライト
	痕跡	クロライト
	なし	ハロイサイト

2) 実験の概要

本研究では、3種類の実験を行った。ここでは、3つの実験に共通する事項を中心に説明し、各実験における具体的な設定については次項で説明する。

実験に使用した装置を図 3.2 に示す。カラム試験には、直径 2.1 cm、長さ 5.0 cm、体積 17.3 cm³ の親指サイズの小さな土壌カラムを使用した。円筒形のアクリル製カラムには、試験土が均一に充填されるよう、一定の方法で丁寧に充填した。充填時に空のカラムと土壌を充填したカラムの質量差を測定し、乾燥密度を算出した。なお、風乾土を使っているため、厳密には乾燥密度の値はやや低く見積もられていると考えられる。このようにして求めた乾燥密度は約 1.12 g cm⁻³ であり、そのばらつきについては後述する。

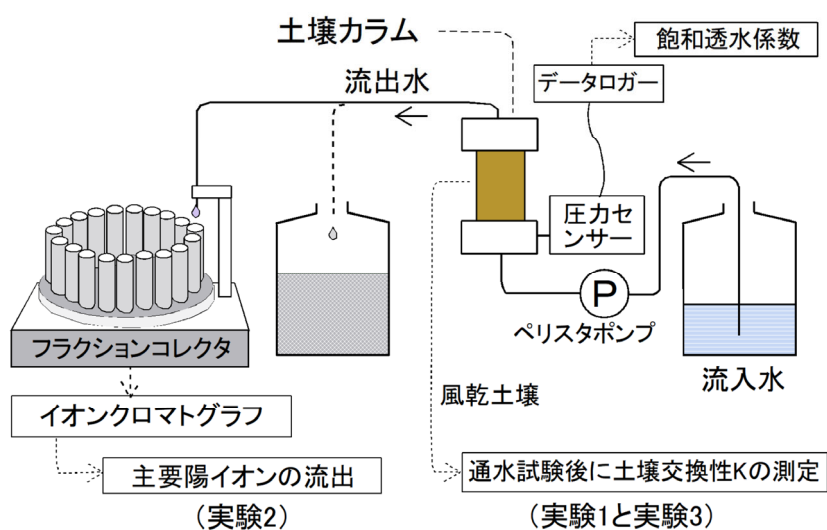


図 3.2 実験装置

表 3.3 供試土壌を採取した圃場における灌漑水の主要陽イオン濃度（2020年）と PAR

	陽イオン濃度 mmol L^{-1}				PAR
	K^+	Na^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	
平均*	0.036	0.19	0.29	0.13	0.055
最大	0.052	0.31	0.37	0.21	0.079
最小	0.023	0.095	0.23	0.091	0.037

*試料は2020年5月から8月の間に15回採取された。

カラム試験に使用した流入水の水質は、試験土壌を採取した圃場の灌漑用水中の主要陽イオンである K, Na, Ca, Mg の濃度（表 3.3）に基づいて設定した。流入水は、イオン交換水に試薬（KCl, NaCl, CaCl₂, MgSO₄）を必要な濃度になるように適宜溶解して調製した。

土壌カラムへの流入水の供給には、ペリスタポンプ（MP-2010, 東京理化工機, 東京）を使用した。まず、試験開始前に流入水をカラム底部からゆっくりと供給し、空気を上方に押し出しながらカラムを飽和させ、試験開始まで一時的に給水を停止した。このため、カラム内に封入空気が残された可能性があるが、その影響は考慮していない。その後、設定した流量（0.35 mL min⁻¹）と時間で通水試験を実施した。この試験では、カラムの下部

から上部まで基本的に一定の流量で水を通した。試験は、室温 21 °C~25 °Cの実験室内で行った。

カラムからの流出水はポリエチレン容器（実験 1 および 3）またはフラクションコレクター（実験 2）で回収し、イオンクロマトグラフ（ICS-1500, Thermo Fisher Scientific, 米国）で主要陽イオンの濃度を決定した。ただし、実験 1 と実験 3 でポリエチレン容器に採取した試料の分析結果については、以降の解析で使用しなかったためここでは省略する。

一部の試験では、圧力センサー（HTV-200KP, HTV-400KP, Sensez, 東京）を用いてカラム底部の水圧を測定し、次式により飽和透水係数 K_s (cm s^{-1}) を算出した。

$$K_s = \frac{q}{A} \times \frac{L}{\Delta H} \times 0.0981 \quad (3.3)$$

ここで、 q ($\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$) は圧力測定時の流量、 A (cm^2) はカラムの断面積、 L (cm) はカラムの長さ、 ΔH (kPa) はカラムの上端と下端の圧力差、定数 0.0981 は単位の換算係数である。実験では、カラム上端の水圧は下端の水圧に比べて無視できるほど小さいと仮定し、 ΔH はカラム下端の圧力に等しいと仮定した。

試験後、カラム解体時に湿潤土壌の質量を測定し、カラム充填時の湿潤土壌質量と試料質量から体積含水率を算出した。体積含水率の算出には、風乾土の質量を用いているため、若干の過小評価があった可能性がある。試験後、土壌を風乾させた後、コンパクトカリウムイオンメータ（LAQUA twin K-11, 堀場製作所, 京都）を用いて、図 3.3 に示す簡易分析法（中山, 2013 ; 中山ら, 2018）により土壌の交換性カリウム含量を 3 反復で分析した。

さらに、小型カラムを用いた本試験の再現性を検討するため、実験 1 および実験 3 では乾燥密度および体積含水率の変動係数を、実験 3 では通水量および交換性カリウムの変動係数を検討した。

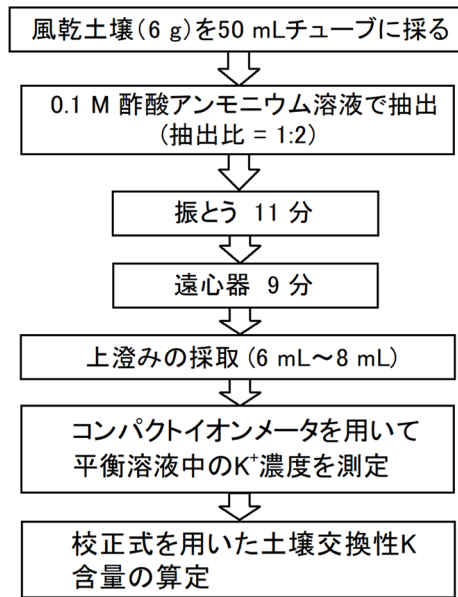


図 3.3 コンパクトカリウムイオンメータを用いた交換性カリウムの簡易分析の手順
(中山, 2013 ; 中山ら, 2018 を一部変更)

3) 具体的な実験条件

a. 実験 1 : 水質および通水量がカリウム溶脱量へ与える影響

実験 1 では、流入水の水質および通水量の変化に対する交換性カリウムの溶脱量の応答を調べた。流入水の水質 (表 3.4) は、灌漑用水の水質 (表 3.3) を参考に、標準水 (以下, 1×), 低濃度水 (以下, 0.3×), 高濃度水 (以下, 3×), 脱イオン水 (以下, DI) の 4 種類を設定した。ここで設定した濃度の範囲は、実際の灌漑用水の濃度変動を考慮したものではなく、流入水質の変化に対するカリウム溶脱量の応答をみるため、原水の 0.3 倍から 3 倍という大きな濃度変化とした。通水量は約 120 mm ~ 7500 mm の範囲で 8 段階、流量は 0.35 mL min^{-1} , 通水時間は約 2 h ~ 120 h とした。なお、本試験における通水量は、水田圃場における浸透量との比較がしやすいよう、通水量の総体積をカラム断面積で除し mm を単位として表すこととした。また、カリウム溶脱に流量の大小が影響する可能性が考えられるが、本研究では流量はほぼ一定としたため、流量の大小による影響は無視し、相対的な影響をみることにした。各試験後、土壌サンプルをカラムから外したのちに風乾し、土壌の交換性カリウムを分析した。なお、実験 1 では一部を除いて反復はない。

表 3.4 実験 1 と 2 における流入水の陽イオン濃度

項目	種類	陽イオン濃度 mmol L^{-1}				PAR
		K^+	Na^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	
1×	標準水	0.031	0.17	0.35	0.15	0.044
0.3×	4種の陽イオン濃度を	0.0094	0.051	0.11	0.045	0.024
3×	同時に変化させた場合	0.094	0.51	1.1	0.45	0.077
DI	イオン交換水	0.00	0.0	0.0	0.0	–

b. 実験 2 : 土壌カラムからの主要陽イオンの溶脱特性

実験 2 では、土壌カラムから溶脱する主要陽イオンの経時変化を調べるため、所定の時間間隔で土壌カラムからの流出水を回収し、水質分析を行った。本実験は実験 1 の一部として実施したため、流入水の水質および流速は実験 1 と同じである。通水時間は 72 時間とし（設定通水量は約 4600 mm）、フラクションコレクター（Model 2110, Bio-Rad, 米国）を用いて 0.2 時間から 71.9 時間までの間に 22 回流出水を採取した。採取した水は pH を測定するとともに（pH-22, 堀場製作所, 京都）、主要陽イオンを分析した。なお、実験 2 では反復試験は行わなかった。

c. 実験 3: カリウム溶脱に対する流入水中の異なる陽イオン組成比の影響

実験 3 では、流入水中の陽イオン組成比の違いが交換性カリウムの溶脱および蓄積に及ぼす影響について検討した。流入水の水質設定は全 19 パターン（表 3.5）、試験は一部を除き 3 反復で実施した。流入水の水質は、標準水（1×）とその変動パターン（0.3×, 3×, 10×）、および 4 種の主要陽イオンそれぞれと Ca^{2+} と Mg^{2+} の 2 陽イオンの組み合わせの変動パターン（0.3×, 3×, 10×）で構成した。

この試験は、通水量 1200 mm を目標値として、通水時間 20 h で実施した。試験終了後、カラム内の土壌サンプルを取り出し、風乾後、土壌交換性カリウムの分析を行った。一部の試験では、実験 1 と設定および結果を共有した。

表 3.5 実験 3 における流入水の陽イオン濃度と PAR ならびに実験の反復数

種類	濃度倍率	陽イオン濃度 mmol L ⁻¹				PAR	反復数
		K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺		
標準水	1×	0.031	0.17	0.35	0.15	0.044	4
4種の陽イオン濃度を同時に変化させた場合	0.3×	0.0094	0.051	0.11	0.045	0.024	3
	3×	0.094	0.51	1.1	0.45	0.077	3
	10×	0.31	1.7	3.5	1.5	0.14	3
K ⁺ のみを変化させた場合	0.3×	0.0094	0.17	0.35	0.15	0.013	3
	3×	0.094	0.17	0.35	0.15	0.13	3
	10×	0.31	0.17	0.35	0.15	0.44	3
Na ⁺ のみを変化させた場合	0.3×	0.031	0.051	0.35	0.15	0.044	3
	3×	0.031	0.51	0.35	0.15	0.044	3
	10×	0.031	1.7	0.35	0.15	0.044	3
Ca ²⁺ のみを変化させた場合	0.3×	0.031	0.17	0.11	0.15	0.061	3
	3×	0.031	0.17	1.1	0.15	0.029	3
	10×	0.031	0.17	3.5	0.15	0.016	3
Mg ²⁺ のみを変化させた場合	0.3×	0.031	0.17	0.35	0.045	0.050	3
	3×	0.031	0.17	0.35	0.45	0.035	3
	10×	0.031	0.17	0.35	1.5	0.023	3
Ca ²⁺ と Mg ²⁺ を変化させた場合	0.3×	0.031	0.17	0.11	0.045	0.081	2
	3×	0.031	0.17	1.1	0.45	0.026	1
	10×	0.031	0.17	3.5	1.5	0.014	2

(4) 結果および考察

1) 小型カラム試験の再現性

小型カラムを使用する利点は、容積が小さい分、用意する試験土の量が少なく済むことである。したがって、本研究のように様々な条件での繰り返しを含む試験設計を行う場合でも、必要な試料の量は少なく、それに応じて試験前後の試料処理に要する労力や必要な水の量も少なく済む。一方、カラムが小さいため、例えば、試料の不均一充填やその影響により試験の再現性の低下が懸念される。そこで、本項では、試料充填や試験結果の再現性について考察する。

3種類の実験で合計 96 回の試験を行った。これらのデータの一部を用いて、表 3.6 にカラムに充填した土壌の物性とその変動係数 (CV) を示す。実験 1 と実験 3 の乾燥密度はほぼ同じであり、その CV も小さく、土壌充填の再現性が良いことがわかる。一方、体積含水率には若干の差があり、実験 1 で CV が若干大きくなった。

表 3.6 実験 1 と 3 におけるカラム内の土壌の乾燥密度，体積含水率ならびにそれらの変動係数 (CV)

	乾燥密度*		体積含水率**	
	g cm ⁻³		m ³ m ⁻³	
	平均	CV %	平均	CV %
実験 1	1.12	1.6	0.562	6.8
実験 3	1.13	1.8	0.595	1.7

* 乾燥密度の算出には，風乾土の質量を用いたため，若干過大評価された可能性がある。

** カラム解体時に土の湿潤重量を測定し体積含水率を算定した。

体積含水率の算出には，風乾土の質量を用いたため，若干過小評価された可能性がある。

表 3.7 実験 3 における通水量とその変動係数 (CV) ならびに通水後の交換性カリウムの測定値の変動係数

通水量 (n=64) *				交換性 K**		
mm			CV %	CV %		
平均	最小	最大		平均	最小	最大
1241	1145	1339	3.2	5.8	0.9	11.8

* n: データ数

** 17 実験，各 3 反復の試験の結果

表 3.7 に，通水量の実測値の範囲とその CV，および実験で得られた土壌交換性カリウム含量の CV を示す。本研究では，ペリスタポンプで流量を設定し，通水時間を固定しているため，同じ設定でも実際の流量の増減により通水量が変化した。実験 3 では通水量を 1200 mm と想定したが，実際の通水量は 1145 mm ~ 1339 mm の範囲に分布した。交換性カリウム含量の値の変動には，土壌交換性カリウムの簡易分析法の手順に含まれる変動要因に加えて，通水量のバラツキの影響も反映している。本実験で得られた土壌交換性カリウムの値をみると，平均 CV は約 6 % であり，値の幅を考慮すると十分な再現性が得られたと考えられる。

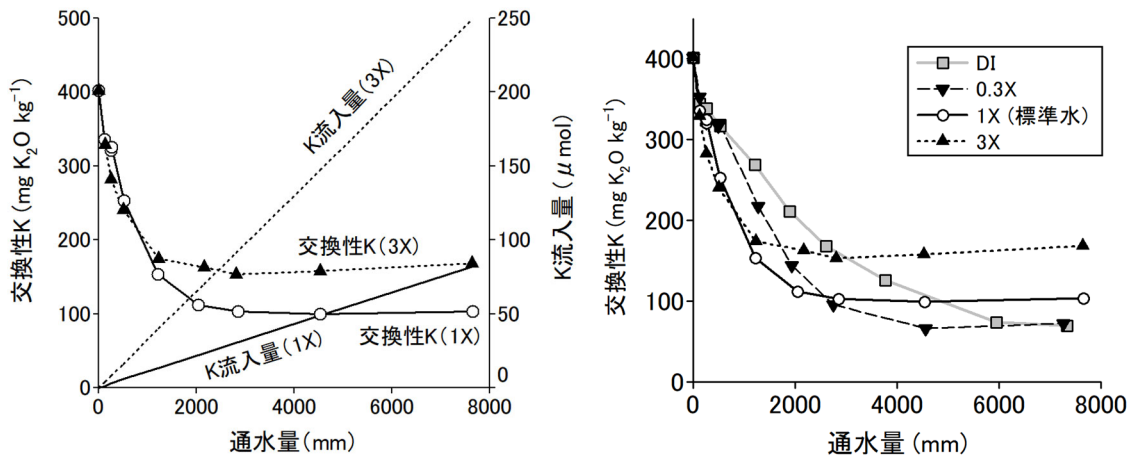
2) カリウム溶脱に及ぼす流入水質および通水量の影響 (実験 1)

実験 1 で得られた流入水の水質と通水量の違いが試験土壌の交換性カリウムに及ぼす影響を図 3.4 に示す。まず、図 3.4(a) に、通水量とカリウム流入量、交換性カリウムの溶脱の関係を示す。通水量の増加に伴ってカリウムの流入量は直線的に増加するが、交換性カリウムは当初は徐々に減少し、通水量の増加にしたがってほぼ一定値に収束し、平衡状態に達することがわかる。

図 3.4(b) は、流入水の水質と通水量が交換性カリウムの溶脱に及ぼす影響を示す。図 3.4(b) の縦軸の交換性カリウムの初期値と、任意の通水量における交換性カリウムの値の差は、その通水量によるカリウムの溶脱量を示す。カリウムの溶脱は通水量の増加とともに増加し、流入水の水質の違いがカリウムの溶脱に大きく影響した。溶脱速度は、通水量が 500 mm 程度までは $3\times > 1\times > 0.3\times > \text{DI}$ の順で、つまり濃度の高い順に溶脱が進み、その後は通水量の増加とともに交換性カリウムの溶脱速度が徐々に減少した。DI を除くと、交換性カリウム含量は流入水の濃度増加の順に平衡に達した。平衡時の交換性カリウム含量は、流入水質が $3\times$ および $0.3\times$ の場合、それぞれ $168 \text{ mg K}_2\text{O kg}^{-1}$ および $72.4 \text{ mg K}_2\text{O kg}^{-1}$ で、その差は約 $96 \text{ mg K}_2\text{O kg}^{-1}$ であった。

流入水質が $0.3\times$, $1\times$, $3\times$ の場合、カリウムの溶脱が停止した後、交換性カリウムは通水量の増加とともにわずかに増加した。DI では、約 7400 mm まで交換性 K が平衡に達することはなく、交換性カリウム含量は溶脱により徐々に減少し続けた。

流入水の平均 pH 値は、DI では、 $0.3\times$, $1\times$, $3\times$ でそれぞれ 5.8, 5.6, 5.6, 5.6 であったが、流出水の pH 値は 100 時間以上 (通水量にして約 6000 mm 以上) 通水するとそれぞれ 6.9, 6.6, 6.5, 6.3 に増加した。このように浸透過程で pH が上昇することは、 H^+ が陽イオン交換に寄与していることを示唆している。実際、DI を用いた試験において溶脱が徐々に進行するのは、 H^+ による陽イオン交換の影響を受けたものと考えられる。



(a) 通水量と K 流入量，交換性 K の溶脱との関係 (b) 流入水の水質と通水量が交換性 K の溶脱に及ぼす影響

図 3.4 流入水の水質と通水量が交換性カリウムの溶脱に及ぼす影響 (実験 1)

試験中のカラム底部の水圧は，概ね 26 kPa ~ 70 kPa の範囲にあり，それにより飽和透水係数は概ね $1.2 \times 10^{-5} \text{ cm s}^{-1} \sim 3.3 \times 10^{-5} \text{ cm s}^{-1}$ と算定された．しかし，透水係数は徐々に低下する場合もあり，DI や 0.3× を大量に通水した試験では，最終的に 1 桁程度低下した．それらのケースでは流出水の pH が高く，pH の上昇と交換性陽イオンの減少が透水係数の低下，すなわち粘土コロイド粒子の分散とその移動，土壤間隙の目詰まりに影響した可能性がある．Shainberg et al. (1987) は，蒸留水を含むいくつかの希薄溶液をスメクタイトと砂の混合物に通水し，透水係数の変化と流出水中の粘土濃度から粘土の膨潤と分散を評価した．その結果，Polkville スメクタイト (Mississippi 州) を用いた試験で，浸透水の SAR が 10 以下の場合，実験水の濃度が低いほど透水性は低下し，蒸留水で最も低かった．また，透水係数の低下が顕著な試験では，流出水の濁度が大きいものがあり，粘土コロイド粒子の分散・移動が示唆された．

図 3.5 は，図 3.4(b) の DI 以外のデータを，流入水の PAR と交換性カリウムとの関係で整理したもので，流入水の濃度上昇に伴って PAR が上昇することが確認された．通水量が約 4500 mm 以上の平衡状態における交換性 K 含量は，PAR と高い相関が認められた (相関係数 $R = 0.995$; 有意水準 $p \leq 0.01$; サンプル数 $n = 6$) ．

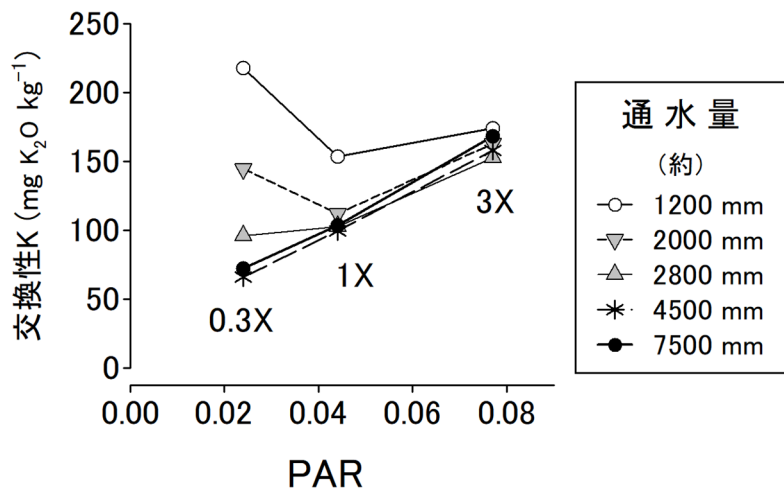


図 3.5 同じイオン組成で異なる濃度の流入水を通水した場合の PAR と交換性カリウムの関係 (実験 1)

この結果は、Q/I 関係にみられる因子 I と因子 Q の関係と整合的である。Q/I 関係は、バッチ試験における土壌溶液と土壌の平衡状態での因子 I と Q の関係を示すが (Beckett, 1964b ; 岡島, 松中, 1972) , 本研究では, 流入水の連続的な浸透から生じる平衡状態における PAR (≒因子 I) とカリウム溶脱量 (≒因子 Q) の関係をみているという違いがある。

3) 土壌カラムからの主要陽イオンの溶脱特性 (実験 2)

図 3.6 は, 流入水の水質を変えた場合の通水量と土壌カラムからの流出水の主要イオン濃度の関係を示したものである。最終的な通水量は, 0.3×, 1×, 3×では約 4600 mm, DI では約 3900 mm であった。DI を用いた試験では, 試験の途中で土壌カラムの透水性が低下し, 流量が減少したため, 他の試験と比較して約 15%通水量が減少した。

流出水中の主要陽イオンの濃度は, 実験開始直後から徐々に減少し, やがて多くの陽イオンで濃度の減少が止まり平衡に達した。実験開始から平衡に達するまでの通水量を基準とした濃度の安定化の早さについて, イオン種ごとに溶液濃度を比較すると, $3\times > 1\times > 0.3\times > DI$ の順に早く安定化することが示された。また, イオン種間で比較すると, $3\times, 1\times, 0.3\times$ の流入水を使用した場合, $Na^+ > Mg^{2+} = Ca^{2+} > K^+$ の順に早く安定化することが明らかになった。DI を除く 3 種類の流入水では, Mg^{2+} と Ca^{2+} の濃度は一旦流入水より低くな

り、その後徐々に流入水と近づいた。DI を使用した場合、 Na^+ の濃度は流量が 1000 mm を超えるとさらに低下する傾向を示した。同様に、流出水中の K^+ の濃度は、すべての水質の流入水に対して、通水量が 1000 mm 程度になるとさらに減少する傾向がみられた。一方、残りの Ca^{2+} と Mg^{2+} については、このような2段階の濃度低下は観察されなかった。

図 3.6 では、通水量の増加に伴い、流出水中の K^+ 濃度が流入水の K^+ 濃度に徐々に近づいていることが確認できた。しかし、DI では約 3900 mm、0.3× では 4600 mm の通水量でも平衡に達せず、1× と 3× では流出水の濃度が流入水よりもわずかに高いままであり、 K^+ は 4 種類の陽イオン中で最も流出が遅い傾向にあることがわかる。他の 3 種の陽イオンの流出水中のイオン濃度は、早いものでは数百 mm、遅いものでも 1000 mm 程度の流出水量で流入水中の濃度に近づいた。逆に、 K^+ の場合は、通水量を 4600 mm 程度にしても、流出水の K^+ 濃度は流入水の K^+ 濃度から若干のずれを示している。この要因としては、試験土壤に含まれるイライト、バーミキュライト、スメクタイトなどの 2:1 型層状ケイ酸塩鉱物に K^+ が選択的に吸着された影響や、継続的な鉱物からの K 供給の影響などが可能性として考えられる。

土壤中の交換性陽イオンの移動性については、これまでに多くの研究がなされている。例えば、Kozanecka et al. (2009) は、ポーランドの Skiemievice にある 85 年間固定単肥の畑の深さ 1 m までの土壤断面において、交換性陽イオン Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ の長期移動度を調査している。交換性陽イオンの移動度は、 $\text{Ca}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+$ であり、土壤などの条件によって交換性陽イオンの移動度が大きく異なることが示された。

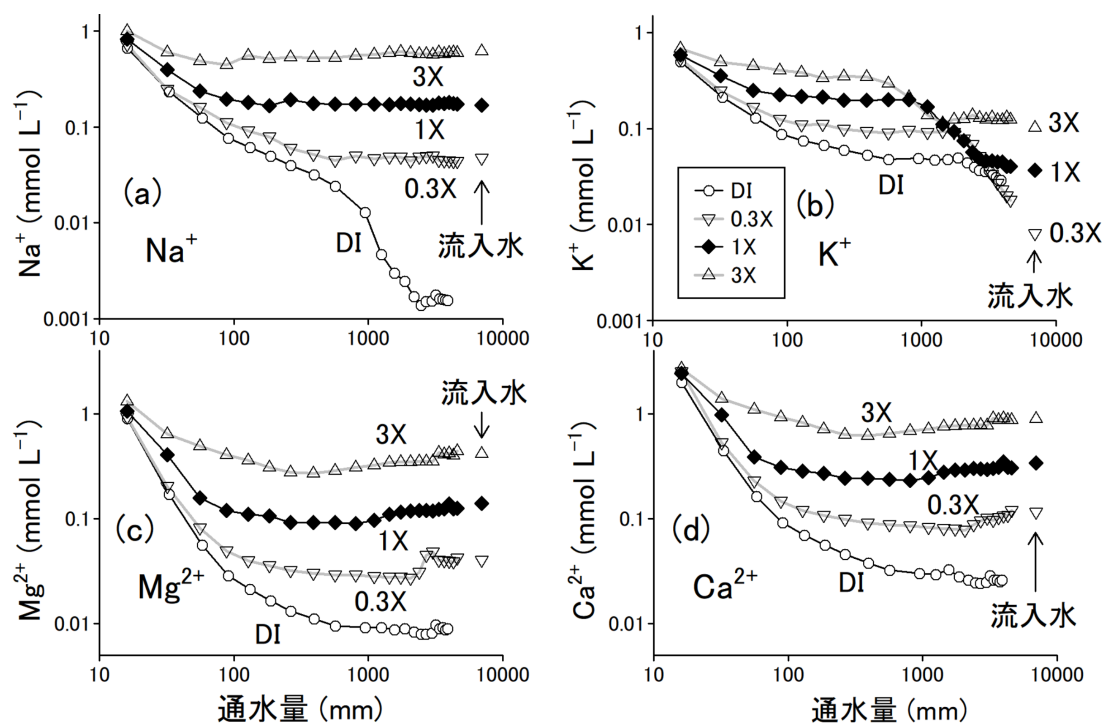


図 3.6 異なる濃度の流入水による主要陽イオンの溶脱, (a) Na^+ , (b) K^+ , (c) Mg^{2+} , (d) Ca^{2+} , 縦軸は流出水に含まれるそれぞれのイオン濃度 (実験 2).

4) カリウム溶脱に対する流入水の陽イオン組成比の違いの影響 (実験 3)

実験 1 では, 同じ陽イオン比率の流入水の濃度を上げると, その後交換性カリウム含量は高い値で平衡化することがわかった. それでは, 特定のイオンの濃度だけを変化させると, カリウムの溶脱にどのように影響するだろうか. 実験 3 では, 通水量を約 1200 mm に固定し, 流入水中の主要な陽イオンの組成比を変化させて, カリウムの溶脱を検討した.

図 3.7 は, 流入水中の K^+ 濃度のみを変化させ, 他の陽イオン濃度を固定した場合と, コントロールとして 4 種類の主要陽イオン全体の濃度を変化させた場合 (実験 1 と同様) の交換性カリウム量 (図 3.7 (a)) と流入水の PAR (図 3.7 (b)) のプロットを示したものである. 流入水中の K^+ 濃度のみを増加させた場合, 交換性カリウム含量はコントロールよりも高くなり, 陽イオン組成比の違いが K 溶脱に影響することが示された. ここで, 流入水の K^+ 濃度のみを 10 倍にすると, 供試土壌の実験前の交換性カリウム含量を超えてカリウムの蓄積が生じることが明らかになった.

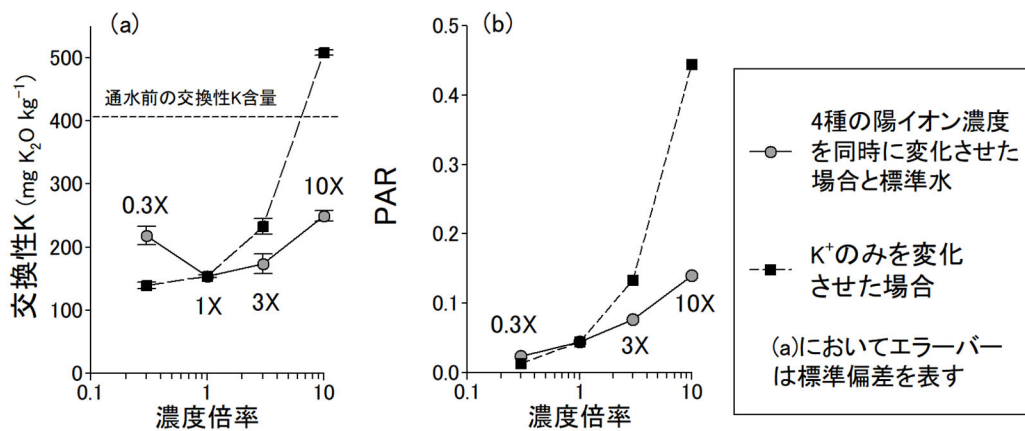


図 3.7 流入水中の 4 種の陽イオン濃度とカリウムイオン濃度を変えたときの濃度と交換性カリウムの関係 (a) と濃度と PAR の関係 (b) (実験 3)

図 3.7 (a) と 図 3.7 (b) のグラフを比較すると形状がよく似ている。両グラフを比較すると、PAR (図 3.7 (b)) は、主要陽イオン濃度を同時に変化させた場合と K⁺のみを変化させたどちらの場合も 0.3×ではどちらも 1×の PAR に対して減少するが、交換性カリウム含量の場合、主要陽イオン濃度を同時に変化させた場合の 0.3×は 1×に対して高くなった。これは、図 3.4(b)からわかるように、0.3×の流入水が約 1200 mm 通過した段階では、まだ溶脱が進んでいなかったためと考えられる。

同様に、図 3.8 (a) は、Na⁺、Mg²⁺、Ca²⁺の濃度を個別に増減させた場合と、Ca²⁺と Mg²⁺の濃度を同時に増減させた場合の交換性カリウム含量を示している。図 3.8 (b) は、流入水の PAR をプロットしたものである。興味深いことに、図 3.8 (a) の図は 図 3.8 (b) の図と非常によく似ている。式 3.2 では Na⁺が考慮されていないため、図 3.8 (b) では Na⁺濃度の変化による PAR の値の変化はない。Na⁺が 3×の流入水と 1×の流入水ではカリウムの溶脱はほとんどみられないが、Na⁺が 10×の流入水ではカリウムの溶脱が進んでいることがわかる。このことは、Na⁺の濃度がある程度以上に高いとカリウムの溶脱が進行することを示している。

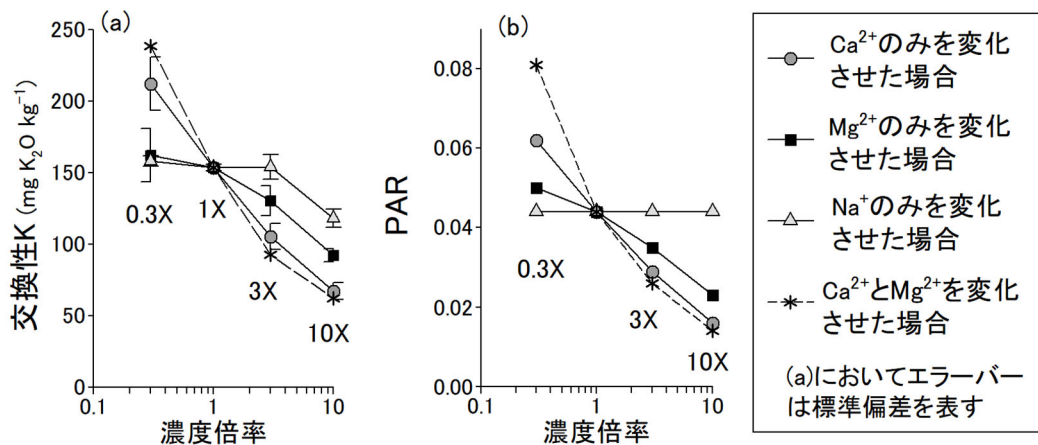


図 3.8 流入水中の 4 種の陽イオン濃度の構成を変えたときの濃度と交換性カリウムの関係 (a) と濃度と PAR の関係 (b) (実験 3)

次に、実験 3 の結果の一部を用いて、流入水中の各陽イオンの変化がカリウムの溶脱・蓄積に及ぼす影響を定量的に比較することを試みる。そこで、まず、陽イオン i の濃度が 1 mmol L^{-1} 変化したときの交換性カリウムの変化の感度 $S1_x^i$ (x は濃度倍率) を次式により算出した。

$$S1_{3x}^i = \frac{\text{ex}K_{3x}^i - \text{ex}K_{1x}^i}{C_{3x}^i - C_{1x}^i} \quad (3.4)$$

$$S1_{10x}^i = \frac{\text{ex}K_{10x}^i - \text{ex}K_{1x}^i}{C_{10x}^i - C_{1x}^i} \quad (3.5)$$

ここで、 $\text{ex}K_x^i$ は交換性カリウム ($\text{mg K}_2\text{O kg}^{-1}$)、 C_x^i は流入濃度 (mmol L^{-1})、 x は濃度倍率である。表 3.8 に計算結果を示す。この結果から、流入水中の K^+ 濃度の上昇は、交換性カリウムの維持・蓄積に大きく寄与していることがわかる。他の 3 種類の陽イオンについて、流入水中の各陽イオン濃度を 1 mmol L^{-1} 変化させたときの影響の大きさは、 $S1_{3x}^i$ でみると $\text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+$ の順であることが分かった。次に、実際の灌漑用水の陽イオン組成を基準として、流入水中の陽イオン i の濃度が 10% 変化した場合の交換性カリウムの変化の感度 $S2_x^i$ を以下の式で算出した (表 3.8)。

$$S2_{3x}^i = \frac{S1_{3x}^i}{0.1 \cdot C1_x^i} \quad (3.6)$$

$$S2_{10x}^i = \frac{S1_{10x}^i}{0.1 \cdot C1_x^i} \quad (3.7)$$

実際の灌漑用水の陽イオン組成を想定して、各イオンの濃度を 10 % 変化させた場合の影響の大きさは、 $S2_{3x}^i$ において $Ca^{2+} > Mg^{2+} > Na^+$ であった。この場合、 K^+ 濃度が 10 % 増加した場合の交換性カリウムへの影響は、 $S2_{3x}^{K^+} / S2_{3x}^{Ca^{2+}}$ より Ca^{2+} 濃度の約 16 % 減少に相当すると推定される。いずれにしても、カリウムの溶脱に対する Na^+ の寄与は小さかった。このことは、試験土壌の陽イオン交換における Na^+ の交換選択性が Mg^{2+} や Ca^{2+} に比べて相対的に低いことを示し、式 3.2 において Na^+ を考慮していないことを支持するものである。

表 3.8 流入水のイオン種のカリウムの蓄積／溶脱への影響

<i>i</i>	各陽イオン濃度をそれぞれ 1 mmol L ⁻¹ 変化させたとき の交換性 K の変化量		各陽イオン濃度をそれぞれ 10 % 変化させたときの交換 性 K の変化量	
	$S1_{3x}^i$	$S1_{10x}^i$	$S2_{3x}^i$	$S2_{10x}^i$
K^+	1250	1253	3.9	3.9
Na^+	1.2	-23	0.020	-0.40
Mg^{2+}	-77	-45	-1.2	-0.68
Ca^{2+}	-69	-27	-2.4	-0.96
単位	mg K ₂ O kg ⁻¹ (mmol L ⁻¹) ⁻¹		mg K ₂ O kg ⁻¹ (mmol L ⁻¹) ⁻²	

注：プラスは蓄積，マイナスは溶脱を示す。

以上より、カリウムの溶脱と流入水の PAR の関係は近いと考えられるため、PAR と交換性カリウムの変化率の関係、および比較のための K^+ との関係を検討した (図 3.9) . ここで、交換性カリウムの変化率 (R_c) は、以下の式で算出した.

$$R_c = \frac{\text{Exchangeable K after test}}{\text{Exchangeable K before test}} \times 100 (\%) \quad (3.8)$$

K^+ 濃度と R_c の関係 (図 3.9 (a)) は、ある程度の相関を示しているが、流入水の K^+ 濃度は K の溶脱を強く反映しているわけではない. 一方、PAR と R_c の関係 (図 3.9 (b)) は、一部のデータを除き、ほぼ一本の曲線上にプロットされており、PAR が R_c に対して良好な指標性を持つことが確認された. 除外した点は、 $0.3 \times$ 標準水と $0.3 \times K^+$ のみの 2 つの設定で実験を行った結果である. これらの各設定の 3 回の反復試験ではすべて同じ傾向にあり、かつその CV は小さかった. 図 3.4(b)に見られるように、除外した点のような低濃度の条件では初期における溶脱の進行が遅く、通水量が 1200 mm 程度では一部の設定条件では、カリウムの溶脱がまだ中途であることが影響したと考えられる. 低濃度の流入水を用いた際に平衡に到達するまでにより多くの通水を要することは、図 3.5 においても明瞭に確認できる.

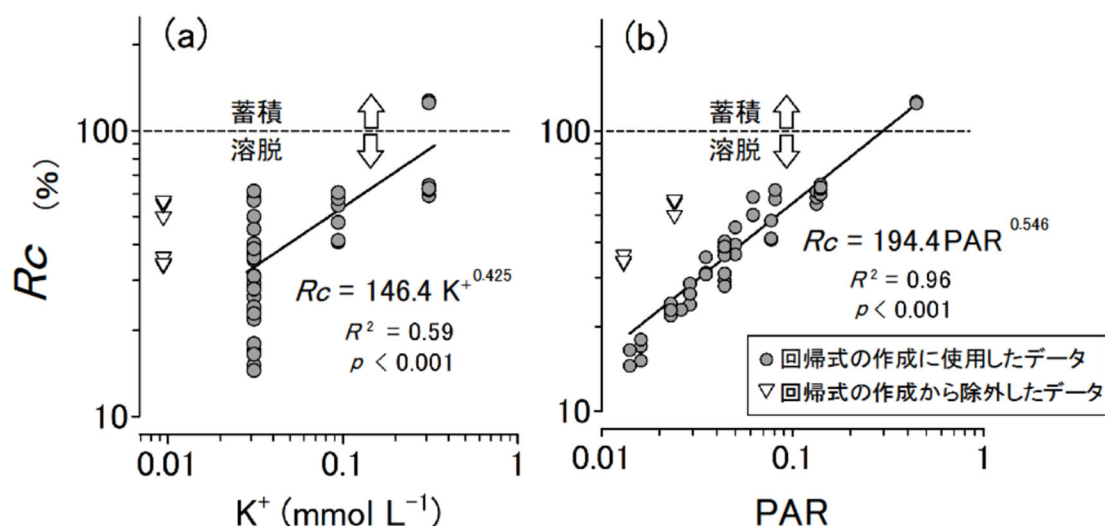


図 3.9 交換性カリウムの変化率 (R_c) の指標としてのカリウムイオン濃度と PAR, (a) カリウムイオンと R_c の関係, (b) PAR と R_c の関係, 図中の R^2 は重回帰係数, p は有意水準.

得られた回帰曲線から、PAR が 0.3 以上の流入水を使用すると交換性カリウムが蓄積されると推定された。この式を用いて、浸透量 1200 mm、降雨や施肥の影響を無視できると仮定すると、サンプリング地点の灌漑水質の平均値、最大値、最小値（表 3.3）に対して、交換性カリウム含量はそれぞれ 161, 195, 128 mg K₂O kg⁻¹ と推定された。

以上のように、流入水の PAR は交換性カリウムの溶脱と蓄積を反映する有効な指標になり得ることがわかった。

5) 本節の研究の限界と今後の課題

本節で得られた結果を制限する要因は何であろうか。まず、試験土壌の交換性カリウム含量の初期値の違いが結果に大きく影響すると考えられる。図 3.9 で用いた交換性カリウムの変化率は、試験土壌の初期交換性 K 含量に基づいているため、結果に直接的に影響する。また、流入する水の流量や pH などの実験条件の違いも結果に影響を与える可能性がある。

では、他の土壌の場合はどうであろうか。本研究は一種類の水田土壌を調べた結果に過ぎない。火山灰土壌や泥炭土壌などタイプが異なる土壌でどのようになるかは興味深い。平衡時の交換性カリウム含量については、Q/I 関係の既往研究から予想することができる。Eguchi et al. (2023) は、Q/I 関係を用いて、カリウム施用による作物の放射性セシウム取り込み抑制効果に及ぼす影響を検討した。彼らは、スメクタイト、アロフェン、バーミキュライトなどの特徴的な粘土鉱物を含む土壌は、それぞれ固有の Q/I 関係を持つことを見出した。このことは、試験土壌と同様に多くの土壌タイプで、PAR と平衡時の交換性カリウム含量の間に固有の関係が存在することが予想され、引き続き今後の検討が必要である。

また、今回は K⁺、Na⁺、Ca²⁺、Mg²⁺ の 4 種類の陽イオンを追加して検討したが、より精度を高めるためには、施肥により一時的に濃度が上昇する可能性のある NH₄⁺ の影響を考慮する必要があるかもしれない。さらに、小型カラム試験に関連して、ポンプで加圧した状態で行った溶脱試験の結果は、自然条件下で得られた結果とどのように異なるかは不明である。小型カラムで得られた一種の促進試験の結果は、圃場サイズにスケールアップし

て活用することができるのか、このように本研究の延長線上には、多くの課題が残されている。

さらに、本研究で得られた知見をもとに、土壌からのカリウムの溶脱を低減する方法の検討が必要である。肥料や土壌改良材など的人為的に投入している資材に不要な Mg や Ca が含まれるのであれば、その量を減ずることも交換性カリウムを増やす一助になると考えられる。今後は、小型カラム試験と圃場実験の組み合わせなどにより、ゼオライトやベントナイトなどの土壌改良資材の投入によるカリウム保持能の向上の定量的評価が重要な課題となる。

(5) 小括

本節では、水田土壌からのカリウム溶脱および灌漑水によるカリウム供給の要因を把握する一環として、細粒質低地水田土壌からのカリウム溶脱の特性を、小型カラム試験により検討した。実験では、濃度およびイオン組成の異なる流入水を用いて、交換性カリウムの溶脱・蓄積および主要陽イオンの流出を検討した。また、交換性カリウムの溶脱・蓄積と浸透水の PAR との関係も検討した。その結果、以下の知見が得られた。

- ア 小型カラム試験は細粒質の水田土壌に対して十分な再現性を有しており、試験後に得られた乾燥密度の平均 CV は 2% 以下、交換性カリウムの平均 CV は約 6% であった。
- イ 同じ陽イオン組成比を持つ流入水を浸透させた場合、全体の濃度が低いほど初期の溶脱が遅いが、通水量の増加とともに溶脱が進行する。反対に高濃度では、初期の溶脱速度は大きい、平衡への到達が早く、平衡時の交換性カリウム含量も多い。
- ウ 純水を通水した場合も、溶脱速度は小さいがカリウム溶脱が生じる。これは、プロトンとの交換が一因と考えられる。
- エ 流出水中の主要陽イオン濃度は、 $\text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} = \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$ の順に早く安定化する傾向があり、 K^+ は最も遅かった。カリウム流出の遅延は、2:1 型粘土鉱物による K^+ の選択的吸着が影響している可能性がある。
- オ 交換性カリウムの平衡時の含量は、流入水中の K^+ 濃度と共存する交換性陽イオンの組成比によって決定され、流入水の PAR と高い相関がある。

- カ 流入水の PAR は、カリウムの溶脱・蓄積を説明する有力な指標となる。
- キ カリウムの溶脱に及ぼすイオン種の影響は、濃度変化 1 mmol L^{-1} を基準として $\text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+$ 、濃度変化 10% を基準として $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+$ の順であり、二価陽イオンほど影響が大きく、 Na^+ の影響は小さい。
- ク K^+ 濃度が 10% 増加した場合の交換性カリウムへの影響は、 Ca^{2+} 濃度が約 16% 減少することに相当することが推察された。

第3節 要約

灌漑水中の放射性セシウムによる玄米への影響は、概ね溶存態放射性セシウム放射能濃度が 1 Bq L^{-1} 程度からみられるようになる。福島県内のいくつかの試験地で実施された水稻の栽培試験において、農業用水を通じて流入する溶存態放射性セシウムの放射能濃度や量と玄米中の放射性セシウム放射能濃度の関係を調べたが、水稻の吸収抑制対策としてカリウムの増肥対策を実施する限り、調べた範囲では用水の放射性セシウム放射能濃度や量と玄米の放射性セシウム放射能濃度の関係はみられなかった。また、モミガラやゼオライト等を用いて、灌漑水に含まれる放射性セシウムの除去の試みを行い、一定程度の効果がみられたものの、使用後の資材処理が課題になるとともに、水稻作でカリウム増肥対策を行う限り、用水中の放射性セシウムを取り除く必要性は認められなかった。

その後、水稻作におけるカリウム増肥対策は、コストの問題から徐々に中止されることとなった。今後も放射性セシウムの吸収を抑えるためには、水田におけるカリウムの動態を把握し、確実に効率的なカリウムの施肥技術を確立する必要がある。そこで、水田土壌からの交換性カリウムの溶脱の要因と灌漑水によるカリウム供給の影響を理解するために、親指サイズの小型カラムを用いて、異なる濃度および組成比の陽イオンが流入した後の水田土壌からのカリウムの溶脱特性を検討した。その結果、流入水の浸透後に形成される交換性カリウムの平衡含量は、流入水中の K^+ 濃度と主要陽イオン (K , Na , Ca , Mg) の組成比により決定された。また、流入水のカリウム吸着比

(PAR) は、浸透水の水質がカリウムの溶脱や蓄積に与える影響を示す有効な指標となることがわかった。カリウム溶脱に及ぼすイオン種の影響は、濃度変化 1 mmol L^{-1} では $\text{Mg}^{2+} > \text{Ca}^{2+} > \text{Na}^+$ 、濃度変化 10% では $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{Na}^+$ の順で、2価の陽イオンほど影響が大きく、 Na^+ は影響が小さいことがわかった。

第4章 農業水利施設における放射性セシウムの動態

第1節 農業用水路への放射性セシウムの堆積

(1) はじめに

水稻栽培を再開するにあたって、当初は、水田への農業用水を通じた放射性物質の流入が懸念されたが、営農が継続または再開しているところでは、灌漑用水中の放射性セシウム放射能濃度は概ね低く（農林水産省東北農政局，2012），こうした結果であればコメへの影響は限定的と考えられた（塩沢，2012）．一方，用排水路などの農業水利施設には，土砂が堆積しているところがあるが，被災地においてこれまでに調べられた用水路等の農業水利施設に堆積している底質の放射性セシウム放射能濃度は一部で数万 Bq kg^{-1} を超える比較的高いものも確認されている（村松，2013）．そこで本節では，まず，農業用水路における堆砂の発生と底質に含まれる放射性セシウムの堆積実態を示すとともに，原発事故後における水路システムの維持管理への課題について考察する．

一般に，用水路では灌漑期と非灌漑期で通水と落水を繰り返し，水路に流入した土砂の一部は水路内に新たに堆積する．原子力災害被災地では，被災後，放射性セシウムが含まれる水路堆積物の扱いが課題となった．通常であれば，水路内に堆積した土砂は，通水の障害になる場所では，灌漑期の前に取り除かれ，水路周りに積まれたり散布されることが多い．そのため，もし堆積物の放射線量が高いと水路周辺の一部に線量が高いホットスポットが生じる可能性があると考え，実態調査に取り組むこととした．このとき，取り扱いに問題が生じる恐れがある堆積物の放射性セシウム放射能濃度として，通常の廃棄物として処理できる基準である 8 kBq kg^{-1} が一つの目安となる．

村松（2013）によれば，2011年12月に伊達西根堰土地改良区では，38 kmの幹線用水路のうち5カ所で堆積物の放射性セシウム放射能濃度が調査され，最大 5.4 kBq kg^{-1} であった．また，福島県が実施した県北管内33箇所の水路の底質調査では， 8 kBq kg^{-1} を超える箇所が1/3あり 100 kBq kg^{-1} を超える箇所も2カ所あった．

福島県内では 2012 年の水稲作に向けて、2012 年 3 月 6 日に用水路に堆積した土砂について、放射性物質の拡散防止のため土砂上げを制限する通知がなされた（村松，2013）。そのため、堆積物が取水や通水の障害となっている水路を除き、多くの用水路で放射性物質はそのまま残された状態であった。

今後の水路の維持管理や配慮すべき事項を考えるには、農業用水路内における放射性物質の堆積特性を把握する必要がある。そのため、本節では、水路の上流から下流までを含むひとつの水路システムを対象とした実態調査に基づいて、水路堆積物の発生と放射性セシウムの堆積の特徴に関する知見を得ることとした。

(2) 調査対象と方法

調査対象の農業用水路は、福島県中通り北部に立地し、阿武隈川より取水する幹線水路および支線水路を含む総延長約 25 km の水路システムである。図 4.1 に水路システムの概略平面図、勾配、設計値による平均流速および調査地点を示す。水路はほぼ全区間が開水路である。調査地点は、A から G までの 7 地点で、このうち、A から C までは幹線水路上の地点で、A は水路橋の直上流に接続する越流型余水吐が設置された地点、B は越流型余水吐が設置された地点、C は分水工（円筒分水）であり、C で用水路は二方向に分岐し支線水路となる。D は支線水路 1 上の、E・F・G は支線水路 2 上の地点である。水路勾配は、最上流部が 1/240 とやや高いが、その後、幹線水路では 1/1000 ～ 1/2500 の範囲にあり、支線に分かれた後は 1/2900 と緩傾斜になる。

本水路の 7 地点を対象として空間線量分布、堆積物量および堆積物の放射性セシウム放射能濃度を以下の方法により調べた。なお、現地調査は 2012 年 11 月 14 日から 16 日にかけて実施した。

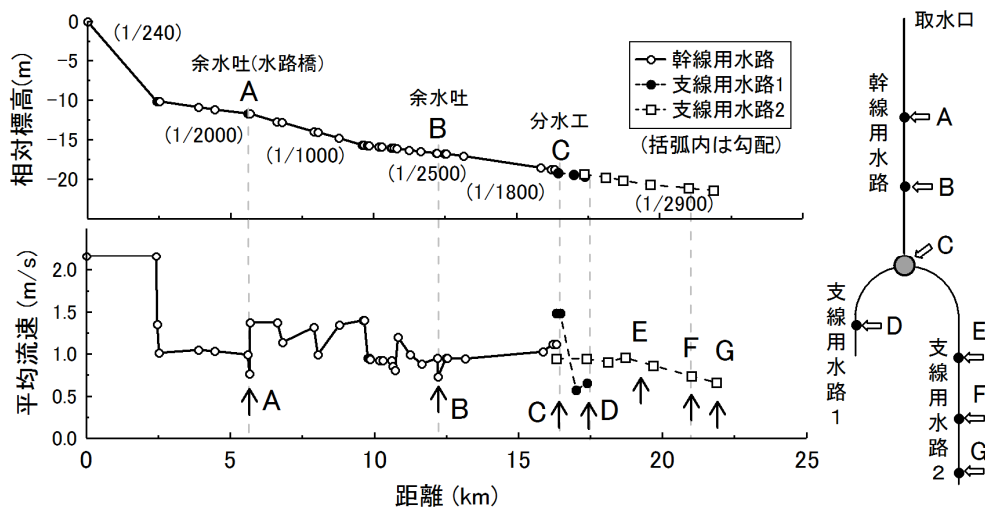


図 4.1 調査水路の概要，勾配，平均流速および調査地点（A～G）

まず，空間線量率の測定では，施設内外の空間線量を，施設内では底面もしくは水面から 10 cm および 100 cm，施設周辺では地面から 100 cm で測定した．測定には，CsI シンチレーション式検出器（A2700 型，クリアパルス（株），東京）を用い，60 秒移動平均が安定したところで $0.01 \mu\text{Sv h}^{-1}$ の単位で読んだ．

堆積物量は，A～C の施設内では，堆積深の分布を測定して求めた．また，D～F の水路では 125 m ～ 360 m 程度の範囲を対象に選定し，その中で，代表的な堆積状況を示す区間や横流入による堆積区間等を抽出して，長さ方向にほぼ一定間隔で横断方向に堆積物の測定を行うことで堆積量を算出した．例えば，調査地点 D では調査対象となる全長 360 m の水路のうち代表的な 7 区間の合計 39.3 m において堆砂量を調べた．また，堆積物の放射性セシウム放射能濃度の把握のため，代表的または特徴的な堆積物を採取し， 105°C で乾燥した上で U8 容器に詰めて，ゲルマニウム半導体検出器（GEM-40, ORTEC/AMETEC, 米国）で分析した．測定値は試料採取日で減衰補正を行った．なお，一部の試料では，採取面積が把握できるよう角型スコップや内径 5 cm の円筒管を用いて水路底まで採取することにより，単位面積当たりの放射性セシウム量が把握できるよう考慮した．

さらに，堆積物の放射性セシウムの放射能濃度の経年変化を把握するために，2013 年から 2015 年の灌漑期終了後に，B 地点と D 地点（D 地点は 2013 年を除く）において，2012

年度の調査と同様に堆積物を採取し放射性セシウムの測定を行った（久保田ら，2016b）。測定値は試料採取日で減衰補正した。

(3) 結果と考察

1) 水路関連施設および周辺の空間線量率

空間線量率の測定結果を表 4.1 に示す。地点 A と C では，周辺と比べて顕著に低い空間線量が測定されたが，これは施設内の湛水の影響が大きい。一方，地点 B では，施設内の地上 10 cm の空間線量率が地上 100 cm の空間線量率より高く，周辺の空間線量と同程度であった。施設内はコンクリート構造物で囲まれており，周辺の線量の影響を受けにくい構造となっている。そのため地上 10 cm の空間線量率が地上 100 cm より高いのは，堆積物の影響と考えられる。

同様に，地点 D や F の一部でも堆積物の影響が見られるが，その他の地点では，概ね周辺の空間線量率よりかなり低い値であった。

表 4.1 水路および周辺の空間線量率（単位： $\mu\text{Sv h}^{-1}$ ）

地点	測定箇所	水路内の空間線量			周辺の空間線量			湛水 状況 ^{*3}	備考
		10 cm	100 cm	n ^{*1}	10 cm	100 cm	100 cm ^{*2}		
A (余水吐)	掘込部	0.10	0.13	3				○	湛水
	水路橋入口	0.19	0.19	1			1.1	△	
	側道(歩道)				—	0.78			車道部は0.51
B (余水吐)	施設内	0.62	0.39	1				△	堆積物は水面上
	周辺水路	0.18	0.19	1			0.65	×	
	管理道路				—	0.62			
C (分水工)	施設内	0.12	0.14	4				○	
	管理道路				0.45	0.60	0.78		
D	水路（堆砂部）	0.65	0.41	3	—	0.66		△	堆積物は水面上
	水路（その他）	0.33	0.48	7	—	0.99	0.77	△	
E	水路	0.28	0.38	2			0.68	○	
F	水路（堆砂部）	0.49	0.28	1				△	一部水面上
	水路（ゴミ堆積）	0.29	0.26	1			0.55	△	堆積物は水面上
	水路（その他）	0.13	0.22	3				○	
G	水路	0.13	0.20	1	—	0.48	0.56	○	
備考		空欄は該当なし			空欄は該当なし —は未測定				

*1: n は測定箇所数

*2: 第 6 次航空機モニタリング（2012.12.28）の結果（文部科学省，2013）

*3: 水路の湛水状況：○湛水，△一部湛水，×湛水なし

2) 堆積物の分布

堆積量の測定結果を表 4.2 に示す。取水口から分土工 C までは、A および B 地点を除くと水路に顕著な堆砂、堆積物はみられなかった。幹線用水路で水路勾配が 1/2500 とやや緩和する B 地点の下流水路の代表点における堆積物は砂質であり、平均堆積厚は 0.3 cm と極めて小さい値であった。

表 4.2 堆砂量と堆積物

調査地点	堆砂量		主堆積物	堆砂発生の要因	
	局所 m ³	平均厚 cm ()内は値の幅			
A (余水吐) 施設	1.0	2.8 (0~35)	砂、泥、ゴミ	掘込みと断面拡大に伴う	
B (余水吐)	施設	4.9 ^{***} (0~29)	砂、貝、泥、枝・葉、ゴミ	掘込みと断面拡大に伴う	
	周辺水路	0.3	砂		
C (分土工) 施設	1.6	1.1 (0~1.8)	砂	断面拡大による流速低下 2012年6月22日に堆砂除去	
D (水路) 360 m* ()内は区間の長さ	区間 1 (6 m)**			横流入	
	区間 2 (1 m)		1.4 (0~6.5)		
	区間 3 (1.8 m)	0.25	8.0		掘り込み(余水吐)
	区間 4 (5 m)		2.8 (1~18)	砂利、砂	横流入
	区間 5 (12 m)		1.6 (0~3.5)		
	区間 6 (12 m)	0.52	2.1 (0.5~6.0)	泥	断面拡大、曲線部
	区間 7 (1.5 m)	0.07	1.8 (0~8)	泥	断面拡大、狭さく部手前、曲線部
E (水路) 200 m*	区間 1 (2 m)		4.2 (0~13)	土砂流入、粗大有機物	
	区間 2 (1.5 m)		1.0 (0~3.0)	土砂流入、粗大有機物	
F (水路) 125 m*	区間 1		0		
	区間 2 (11 m)		0.6 (0~8.5)	泥	曲線部
	区間 3		0		
	区間 4 (8 m)		0.9 (0~5.0)	小礫、砂	小河川の合流
	局所堆積	0.38		枯草	粗大有機物あり
	区間 5 (8 m)		0.8 (0~5.0)	泥	曲線部
備考	空欄は該当なし				

* 対象地点の水路の総延長

** 試料採取区間の距離

*** 水路幅拡大部および縮小部の底面積は除いて計算

一方、地点 A と B では、余水吐の掘込部に局所的な堆積がみられた（図 4.2 (a)）．堆積は A 地点の掘込部で主に砂質の堆砂で 0.83 m^3 ，よどみ部には泥質で 0.14 m^3 の堆積がみられ、計約 1.0 m^3 の堆積物がみられた．施設内の平均堆積厚は、掘込部に限ると 3.2 cm ，掘込部以外では、よどみ部の堆積を平均化すると 1.6 cm であった．また、地点 B では、施設内に厚さ $0 \text{ cm} \sim 29 \text{ cm}$ の範囲で主に砂質堆積物がみられ、一部は、枝葉などの未分解有機物を含む泥状の堆積物で構成され、総堆積量は 1.9 m^3 であった．これを余水吐施設の底面積で除して求めた堆積厚さは 4.9 cm である．

地点 C では、円筒分土工内に 1.6 m^3 の堆砂がみられたが、管理者からの聞き取りによれば、同地点では 6 月下旬に堆砂の搬出を実施しており、観測値は約 4 ヶ月間に発生した堆積量ということになる．

また、地点 C より下流の支線水路では、平均堆積厚をみると地点 D で $1.1 \text{ cm} \sim 2.8 \text{ cm}$ ，E 地点で $1.0 \text{ cm} \sim 4.2 \text{ cm}$ ，F 地点では、 $0 \text{ cm} \sim 0.9 \text{ cm}$ であった．この中で横流入の影響を除くと地点 D の特に断面が拡大する区間 6～7（表 4.2）で顕著な泥状の堆積物の発生がみられた（図 4.2 (b)）．この区間は、上流での分水による流量減少とともに断面拡大および水路の連続した湾曲による流速低下が要因と考えられる．曲線部内側における泥状堆積物の形成が目立つ状況であった．下流水路では、他の地点でも曲線部内側への泥状堆積がみられた．



(a) 地点 B 余水吐掘込部の堆積状況



(b) 地点 D 支線水路の堆積状況

図 4.2 農業用水路における堆積物の発生状況

3) 用水路内の堆積物の放射性セシウム

以下では、水路内の堆積物を現場の堆積状況から、便宜的に、より体積的に多い主要構成部と少ない副構成部に分けて堆積物の放射性セシウム放射能濃度の範囲を示す。以下では、B地点を例に、水路堆積物の主要構成部と副構成部の違いについて述べる。ここで主要構成部は、堆積物の大宗を占めるものであり、図4.3(a)の赤線で囲われた範囲で示され、主に砂や貝殻から構成されている。主要構成部の断面を図4.3(b)に示すが、基本的にはいわゆる土砂であり、下層に貝殻混じりの土砂の層が存在する。一方、副構成部は主構成部の周辺部に付帯的に存在し、量は主構成部より少なく性状は、主構成部と明瞭に区別される。副構成部は、図4.3(a)において黄線で囲われた範囲に存在し、主構成部を取り巻くように堆積した植物の枝葉や泥などを主体としている。

これらの堆積物の放射性セシウム放射能濃度の測定値の範囲を図4.4に示す。上流部は砂質の堆積物が過半を占め、量的には少ないものの一部に泥質もしくは未分解植物遺体等もみられた。



(a) 主要構成部（赤線）と副構成部（黄線）の区分の例

主要構成部は、対象区間の過半に見られる代表的な堆積物であり、副構成部は主要構成部の周囲に付帯的に、より少量存在し、主要構成部とは性状により明確に区別される。



(b) 主要構成部の断面の例

主要構成部の堆積厚さは最大40 cm程度あった。

(B地点)

図4.3 B地点における水路堆積物の状況と主要構成部と副構成部の区分

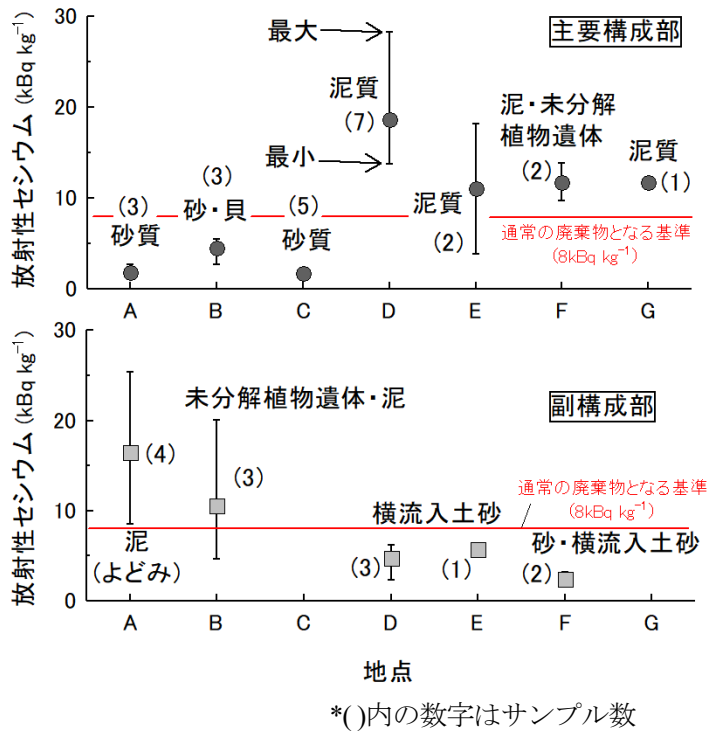


図 4.4 堆積物の放射性セシウム放射能濃度 ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$), 減衰補正は試料採取日 (2012 年 11 月) を基準とした。

地点 A の掘込部にみられる砂質物は放射性セシウム放射能濃度が 2.1 kBq kg^{-1} であるが、よどみ部の泥質物は 16.5 kBq kg^{-1} と高かった。同様に地点 B では、砂質物で 4.5 kBq kg^{-1} 、泥質物で 10.6 kBq kg^{-1} である。地点 C では、泥質物はほとんどみられず砂質物が主体を成し、5カ所で採取された底質の分析値のばらつきは小さく平均で 1.7 kBq kg^{-1} であった。

下流部の支線用水路では、上流部とは反対に堆積物は主に泥質であり、一部に横流入を起源とする放射性セシウム放射能濃度が低い土砂の堆積がみられた。

地点 D では、横流入の土砂を含む堆積物が $2.3 \text{ kBq kg}^{-1} \sim 6.1 \text{ kBq kg}^{-1}$ であるのに対して、その他の泥質物では $13.7 \text{ kBq kg}^{-1} \sim 28.2 \text{ kBq kg}^{-1}$ と高かった。地点 E, F でも同様の傾向がみられる。このように下流水路では、泥状堆積物が卓越し放射性セシウムが比較的高い傾向であった。また、地点 D の比較的形状が安定した泥状の堆積部で 2 本のコアサンプルを採取した。コアサンプルはそれぞれ長さ 3 cm~4 cm で厚さ 1cm 毎に切断し分析を行った (図 4.5)。得られた結果を鉛直方向にみると、下層における放射能濃度がやや高い傾向が確認された。

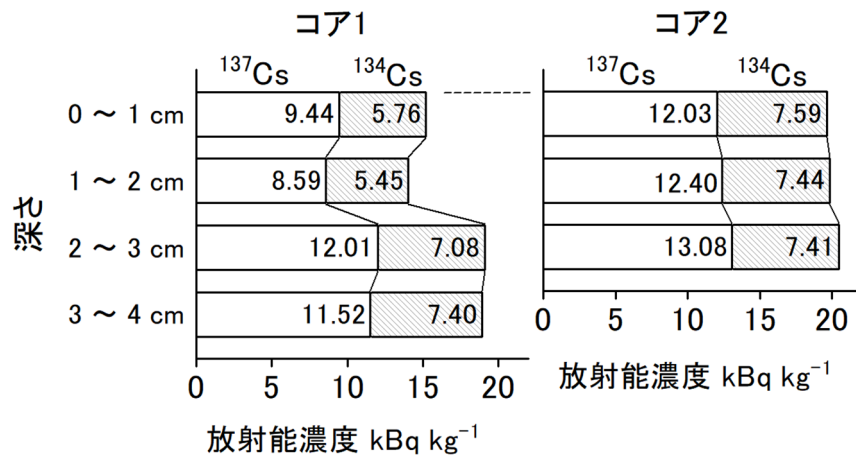


図 4.5 地点 D で採取した水路堆積物のコア中の放射性セシウムの鉛直分布，2012 年 11 月採取，コア 1 の長さは 4 cm，コア 2 の長さは 3 cm，両コアともコンクリート製の水路底まで採取，減衰補正は試料採取日。

以上を水路縦断勾配および平均流速と併せて考察すると，勾配が比較的大きな上流部では砂質物を主体とする堆積が，掘込部など流速が一時的に低下する地点で発生し，一方，勾配が緩やかで流速が低下する下流部の支線水路では，泥質物を主体とした堆積が生じている。すなわち，一連の水路システムの中で，用水の流下過程で放射性セシウムを含む土砂が運搬され，土砂の沈降特性に応じた場で堆積することによる分級作用が放射性セシウムの濃度分布を支配している可能性を示唆している。

ところで，現在水路内に堆積している放射性セシウムについて，原子力災害当初のフォーアアウトの影響か，それとも，その後流水により運ばれてきたものであるか，このことを直接示すデータはない。そこで，手がかりとして，水路内の単位面積当たりの ¹³⁷Cs の堆積量を，それぞれの場所への ¹³⁷Cs の沈着量と比較してみる。放射性セシウム沈着量は，放射線量等分布マップ（文部科学省，2013）において調査日時が近い 2012 年 12 月 28 日時点（6 次調査）の ¹³⁷Cs 沈着量と比較を行う。

その結果，地点 A で沈着量 210 kBq m⁻² に対して堆積量が 44 kBq m⁻² ~ 86 kBq m⁻²，同様に地点 C において 150 kBq m⁻² に対して 8 kBq m⁻² ~ 17 kBq m⁻²，地点 D で 140 kBq m⁻² に対して 25 kBq m⁻² ~ 315 kBq m⁻²，地点 E で 120 kBq m⁻² に対して 55 kBq m⁻² となった。このように地点 D の一部を除くと多くの地点で，水路内への放射性セシウムの堆積は周辺への沈

着量より小さい値を示すことがわかった。このことから、被災直後に水路内に沈着した放射性セシウムの多くは用水とともに流下したことが推察される。

4) 堆積物に含まれる放射性セシウムの経年変化

B地点とD地点における水路堆積物の放射性セシウム放射能濃度の経年変化をそれぞれ図4.6と図4.7に示す。2地点のうちB地点では、毎年非灌漑期に堆積物の除去が行われているが、D地点では堆積物の除去は行われていない。結果をみると、どちらの地点も調査初年の2012年に比べて放射性セシウム放射能濃度が自然減衰線を越えて低下する傾向がみられ、特にB地点では、2012年から2013年にかけて、D地点では、2012年から2014年にかけて大きな濃度低下が見られた。D地点では、水路堆積物の除去が行われていないにもかかわらず大きな濃度低下が見られたが、明確な理由は不明である。可能性としては水路を流下する水への放射性セシウムの溶出や堆積物の巻き上げによる放射性セシウムの流下や新規堆積物の放射能濃度の低下の影響などが考えられる。

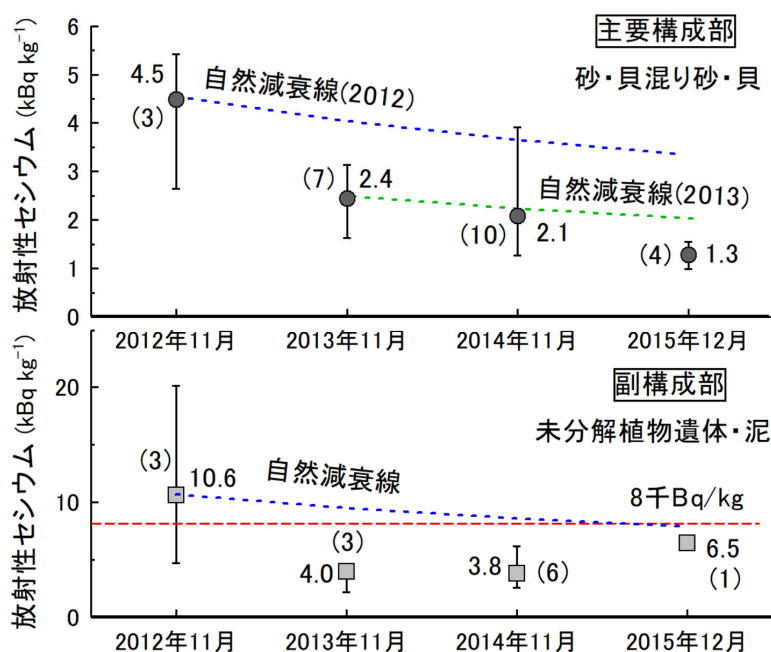


図 4.6 水路堆積物の放射性セシウム放射能濃度の経年変化 (B地点), 減衰補正は試料採取日を基準とした。

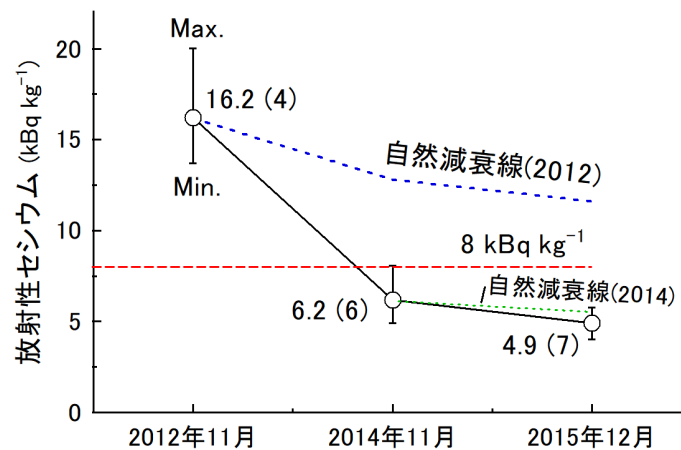


図 4.7 水路堆積物の放射性セシウム放射能濃度の経年変化 (D 地点), 減衰補正は試料採取日を基準とした。

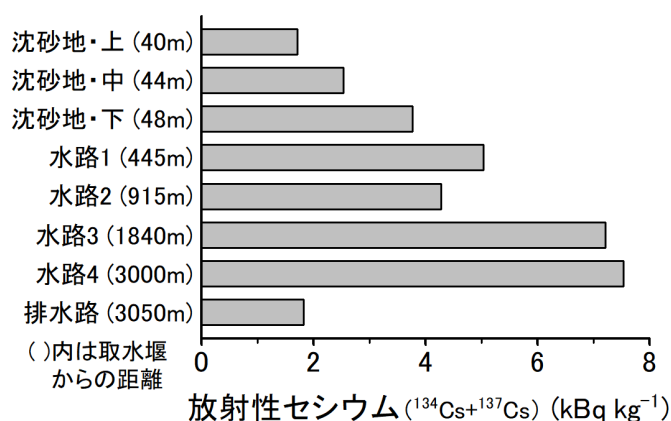
(4) 水路堆積物の除染

2013年度の灌漑期に向けて、環境省通知により水路除染の実施が決定された。水路除染を含む除染関係ガイドライン（環境省，2013）は2013年5月に改定された。これにより、2013年の水稲作付け前に、福島県の指導の元で水路除染を進めるよう指示が出された。水路除染は避難区域外で40市町村が対象となったが、そのうち帰還困難区域を取り巻く市町村、特に放射性セシウムの沈着量が比較的多い中通り北部を中心とした8市町村（2013年10月末時点）で取り組まれた。また、水路除染の進捗は、住宅地の除染などと同様に仮置場の確保に見通しがついた市町村、地域から進められているのが実態であり、仮置場が確保できない場所では現場仮置きで対応しているところもあった。実際には2013年の水稲作付け前の数ヶ月程度では、対象となる用水路の除染を完了するのは困難であったので、多くの市町村では、2014年度も引き続き作付け前に水路除染を行うよう計画が進められた。

また、水路除染はすべての用水路が対象となるわけではなく、除染ガイドラインに提示された3条件をすべて満たす箇所に限定されている。3条件とは、①例年、泥上げが行わ

れている水田近傍の水路，②事故の影響で例年通り泥上げができなかった地域，③農閑期の水路で水による遮蔽効果が見込めず周囲の空間線量率に影響すること，である。

農業用水路は通水に伴い必然的に土砂の再堆積を伴う。図 4.8 に水路除染が実施された農業用水路において，水稻一作期の灌漑を終えた後に堆積した土砂の放射性セシウム放射能濃度を測定した結果（久保田，2021）を示す。調査地区は，南相馬市内の新田川の水掛かりの農業用水路である。本地区では水路除染が 2015 年 5 月に実施され，調査は灌漑期の終了後の 2015 年 10 月 23 日に実施された。調査の結果，本地区では除染後の水路からは，放射性セシウム放射能濃度が指定廃棄物の基準を上回る堆積物は見いだされなかった。また，農業用水の取水口から下流に向かうにつれて，堆積物の放射性セシウム放射能濃度が上昇する傾向が確認された。



調査水路：南相馬市内（新田川水掛かり）
水路除染：2015 年 5 月実施 試料採取日：2015 年 10 月 23 日

図 4.8 水路除染後の新規水路堆積物の放射性セシウム放射能濃度の分布，減衰補正は試料採取日を基準とした。

(5) 小括

本節では、福島県中通りに立地する一連の水路システム等を対象として、農業用水路における空間線量率や堆積物の発生量、堆積物に含まれる放射性セシウム放射能濃度を調べ、水路や施設の立地条件と関連づけて解釈することを試みた。合わせて堆積物の放射性セシウムの経年変化等を検討した。その結果、以下の事項が明らかになった。

ア 水路への堆砂は、幹線水路では掘込部を除くとほとんどみられず、下流の支線水路では平均堆積厚は1 cm ～ 5 cm の範囲の堆積がみられた。

イ 水路勾配が比較的大きい幹線用水路上流では掘込部を中心として砂質堆積物が発生し、それらの放射性セシウムは1 kBq kg⁻¹ ～ 5 kBq kg⁻¹ と比較的低かった。一方、水路勾配が緩やかで流速が低下する支線用水路では泥状の堆積が卓越し、それらの放射性セシウム放射能濃度は3 kBq kg⁻¹ ～ 28 kBq kg⁻¹ と全般に高かった。

ウ 水路内の空間線量率は、全般的に湛水の影響を受けて低かったが、堆積面が露出した水路では、空間線量率に堆積物の影響が認められた。

エ 水路内の単位面積当たりの¹³⁷Csの堆積量は、同じ場所への¹³⁷Csの沈着量と比較すると、下流水路の一部を除き小さい値を示した。

オ 水路堆積物の放射性セシウム放射能濃度の経年変化を見ると、毎年減少がみられ主要構成部では自然減衰線を越えた減少がみられた。

以上を踏まえて水路堆積物の放射性セシウムの特徴をまとめると、①用水の集水域において放射性セシウムの沈着量が多くなければ、幹線水路内の堆積物中の放射性セシウム放射能濃度が高まるリスクは低い、②用水の集水域において放射性セシウムの沈着量が多く、水路の勾配が緩く流速が遅く堆積が発生しやすい区間では、堆積物の放射性セシウム放射能濃度が高まる傾向があるので、堆積物の拡散や飛散を避けるよう留意することが望ましい。ただし、③堆積物中の放射性セシウム放射能濃度は経年的には自然減衰を越えて大きく低下する傾向にあると考えられる。

第2節 低水位で管理されたため池における放射性セシウムの動態

(1) はじめに

第1章で述べたように、FDNPPから放出され水系に流出した放射性セシウムの多くは貯水池の底質として蓄積した。本節では、FDNPPから近く、放射性セシウムの沈着量が比較的多いため池における放射性セシウムの動態について現地観測に基づいて検討する。

放射性核種の溶存態画分と懸濁態画分間の分配は、しばしば固液分配係数 K_d で表される (IAEA, 2010)。

$$K_d (\text{L kg}^{-1}) = \frac{\text{固相の放射能濃度}(\text{Bq kg}^{-1})}{\text{液相の放射能濃度}(\text{Bq L}^{-1})} \quad (4.1)$$

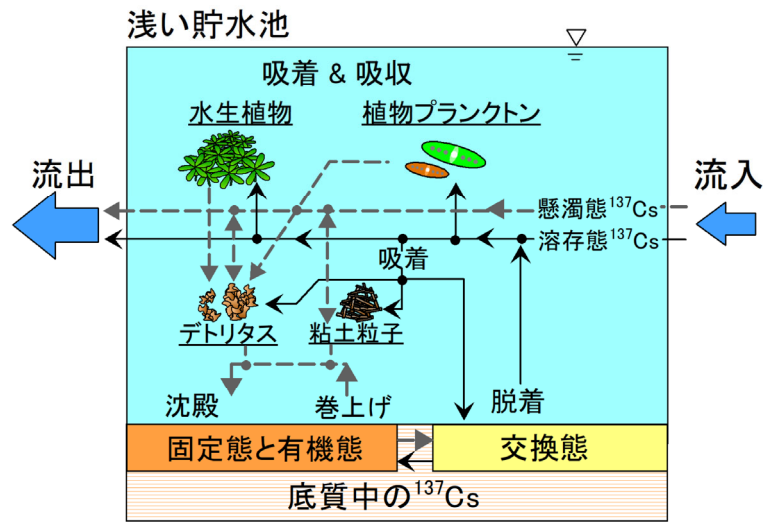
福島事故後の河川水の ^{137}Cs の K_d 値は、チョルノービリ被災地の河川水の K_d 値よりも総じて高く、FDNPPから80 km以内で採取した灌漑用水の K_d 値の幾何平均値は、IAEA (2010) の報告値よりも高かった (Tsukada et al., 2017)。そのため、一般的に溶存態放射性セシウムの放射能濃度は低く、懸濁態放射性セシウムの放射能濃度は高いことが報告されている (Ueda et al., 2013; Yoshimura et al., 2015)。福島県の河川水では、典型的なケースでは懸濁態の割合が98%を占めていた (Taniguchi et al., 2019)。そのため、福島では、典型的な河川水から灌漑を通じて水田に供給される溶存態放射性セシウムの量は限られている (Shin et al., 2019)。

前述のように、セシウムは堆積物に含まれる細粒の鉱物に優先的に吸着するため、汚染された水域において底質は ^{137}Cs のシンクとして機能する (Fransis and Brinkley, 1976)。Evans et al. (1983) は、堆積物の ^{137}Cs の吸着サイトとして、1) 非選択的な陽イオン交換を生じる表面サイト、2) 陽イオンが選択的に結合する wedge sites、3) ^{137}Cs が交換されにくい層間サイトの3種類を提示した。また、Wauters et al. (1996) は、底質中の ^{137}Cs の吸着サイトを、有機物や粘土の同型置換サイトと、粘土のエッジに存在し、 K , NH_4 などに高い吸着選択性を持ついわゆる Frayed Edge Sites (FES) に区分し、多様な堆積物の ^{137}Cs の分画

分析を行い適用性を調べた。その結果、放射性セシウムは堆積物中の FES に定量的に保持されることを示した。Rigol et al. (2002) は、土壌-放射性セシウム相互作用に対する有機物の影響を調べ、粘土がごく少ない有機質土壌においてのみ非特異的な部位における吸着が起こることを示した。これらのことは、底質中に粘土粒子が少なからず存在する多くの水域では、溶存態 ^{137}Cs の固定が進み水体から取り除かれるが、粘土が少なく有機物が多い特殊な水域では非選択的な吸脱着が卓越することで溶存態 ^{137}Cs の固定が進まず、長期間にわたって水域に残存する可能性があることを示唆している。半減期の長い (30.1 年) ^{137}Cs は長期間にわたって貯水池に蓄積され続ける可能性があるため、貯水池の管理やこれらの淡水資源の安全な水利用のためには、貯水池での蓄積過程や、脱離・再浮遊時の ^{137}Cs の挙動特性を理解する必要がある (Hayashi, 2016)。

特に、除染が進んでいない帰還困難区域では、2019 年に実施された調査 (農林水産省 東北農政局, 2020) においても、灌漑用貯水池の放射性セシウムの放射能濃度は、全 ^{137}Cs が最大 9 Bq L^{-1} 、溶存態 ^{137}Cs が最大 4 Bq L^{-1} と報告されており、玄米への放射性セシウム吸収のリスクを考慮すると、十分に高い値となっている。これらの貯水池の一部では詳細な水質調査が行われており (Wakiyama et al., 2017; 舟木, 2019)、貯水池によって傾向が異なるものの、季節変動 (Konoplev et al., 2021) や減衰傾向 (Wakiyama et al., 2019) が確認されている。このように高い濃度レベルの放射性セシウム放射能濃度は、他の水域ではほとんどみられない特徴的なものであるが、その形成要因は十分に明らかにされていない。

また、帰還困難区域にある貯水池の中には、2011 年 3 月 11 日の地震による堤防の損傷や、震災後の避難による管理者の不在などにより、低水位で管理されているものも少なくない。Yamada et al. (2015) は、大柿ダムの流入土砂の動態をシミュレーションし、貯水池に流入した砂やシルトのほとんどが底質として堆積すること、ダムの水位を上げることで貯水池から流出する粘土の量を減らすことができることを示した。このことは、貯水池の水位管理が ^{137}Cs の動態に影響を与えることを示唆しているが、これを検証する研究はほとんど行われていない。



供給フラックス = 流出フラックス - 流入フラックス

図 4.9 浅い貯水池における ¹³⁷Cs 動態の概念図

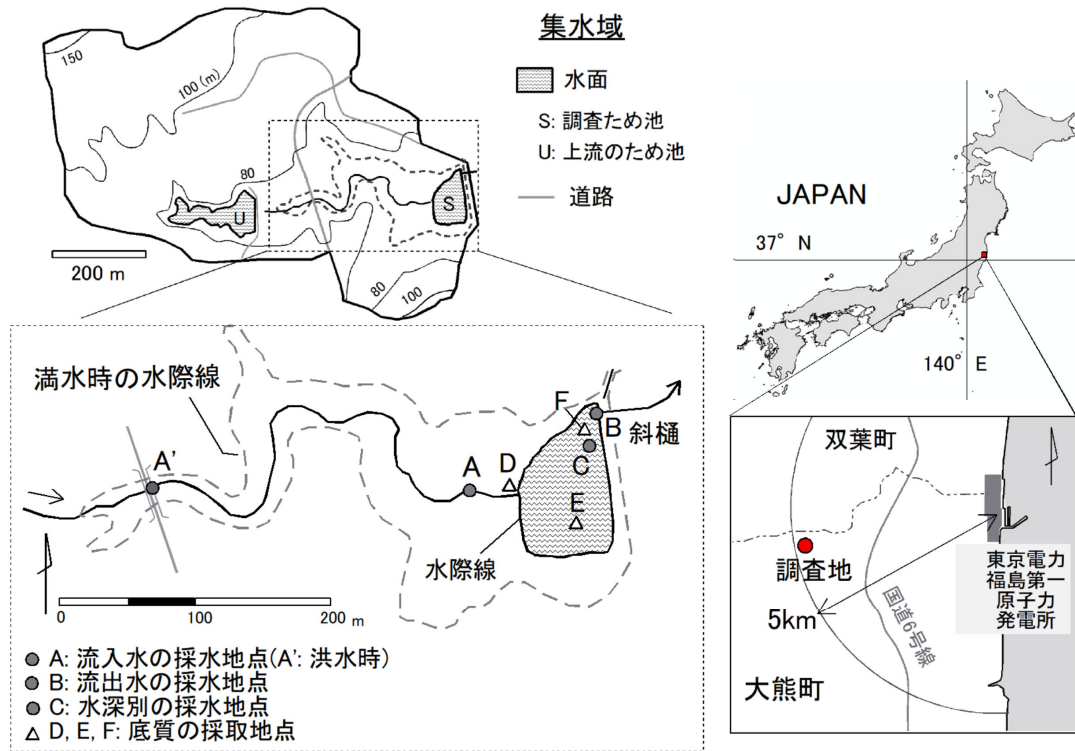
そこで本節では、低水位で管理されている貯水池が放射性セシウムの流出を増加させ、その発生源として機能するという仮説を立て、その検証を試みる。そこで、帰還困難区域にある低水位で管理された貯水池において、¹³⁷Cs の流出成分と流入成分を含む水質の季節観測を行う。平均的な流量条件下での貯水池からの溶存態 ¹³⁷Cs、懸濁態 ¹³⁷Cs、全 ¹³⁷Cs の供給フラックスを調べ、貯水池内の様々な形態の ¹³⁷Cs の動態を考察する。さらに、¹³⁷Cs の季節変動の要因と懸濁態 ¹³⁷Cs の担体について考察する。

図 4.9 は、浅い貯留層で想定される ¹³⁷Cs の動態の模式図である。仮説を検証するために、貯水池からの純流出成分として、流出フラックスと流入フラックスの差である供給フラックスを定義し評価することとした。なお、動物プランクトンや魚類の物質収支への寄与は比較的小さいと考え、図 4.9 では省略している。

(2) 材料と方法

1) 調査地

調査地は、FDNPP から 5 km 圏内の福島県大熊町の帰還困難区域にある灌漑用のため池 (37.4152N, 140.9802E) である (図 4.10) . 調査地における ^{137}Cs の沈着量は、2011 年 5 月 26 日の時点で、堤防周辺で 3.3 MBq m^{-2} , 集水域で $2.9 \text{ MBq m}^{-2} \sim 3.3 \text{ MBq m}^{-2}$ であった (文部科学省, 2011) . 調査時点では、現場周辺での除染は行われていなかった. 調査ため池では、震災後に全町避難と堤体の安全性への懸念から水管理ができないことから斜樋を開放して水位を低く管理していた. 斜樋のゲートは、ため池の取水施設としてよく見られるもので、調査ため池では高さの異なる 3 つの小さなゲートが取り付けられており、そのすべてのゲートが開放されていたため、平水時に水は最下段のゲートの高さでオーバーフローし水位はほぼ一定に保たれていた. そのため、ため池の満水時の水面積は約 40000 m^2 であるが、調査時点で平水時の水面積は約 4000 m^2 , 最大水深は 30 cm であった. 一方、洪水時には、ゲートのサイズにより流出量が制限されるため、一時的な水位上昇がみられた. 平水時のため池の水の出入りは、流入と流出がともに一カ所であった. また、ため池の上流には、面積約 0.85 ha の別のため池があり (図 4.10 (a)) , 降雨時における土砂流入は限定的である. 帰還困難区域では、人の立入りが厳しく制限されていたため、集水域での人為の影響はほとんど無視できる.



(a) 調査地の概略図



(b) 調査ため池の概観

図 4.10 調査地とサンプリング地点

2) 水質調査

水質調査は、流入水・流出水調査と深度別調査で構成される。流入・流出水の調査は、2016年3月から2017年1月にかけて7回実施した。流入水と流出水の採水は通常同じ日に行われるが、7月26日と27日には別々に採水した。水試料は、流入点A（洪水で水位が上昇している場合はA'）と流出点B（図4.10(a)）のそれぞれの流心において、水試料が調査地点の特性を代表するように注意深くバケツを用いて採水を行った。水深別調査は2015年11月5日に実施した。C地点のゴムボートからペリスタルティックポンプとプラスチックホースを用いて、水面から約5cm、約20cmの浅い層と深い層で水サンプルを採取し、全水深は約30cmとした。いずれの調査においても、水のサンプリングは堆積物の再浮遊が発生しないように慎重に行った。

採水時に測定した水温とその他の水質の測定／分析項目を表4.3に示す。水試料中の懸濁態¹³⁷Csと溶存態¹³⁷Csは、迅速な濃縮技術を用いた前処理により、現場で直ちに分離した（Yasutaka et al., 2013; Tsuji et al., 2014; Tsuji et al., 2015a）。得られたCs濃縮カートリッジは実験室に持ち込んで乾燥させ、その後Ge半導体検出器（GC2020等, CANBERRA, 米国；GEM-40, ORTEC/AMETEC, 米国）を用いて放射能を測定した。測定された放射能の平均の変動係数は、懸濁態¹³⁷Csで5.2%、溶存態¹³⁷Csで3.7%であった。全¹³⁷Csは懸濁態¹³⁷Csと溶存態¹³⁷Csの和として求めた。減衰補正は採水日を基準として行った。さらに、得られた分析値から固液分配係数Kdを算出した。

表 4.3 水質項目と測定方法

項目	分析法と機器	備考
溶存態 ¹³⁷ Cs, 懸濁態 ¹³⁷ Cs	Ge半導体検出器, GC2020 他, CANBERRA 他, 米国	前処理として迅速濃縮技術 を使用
pH, EC, 水温	WM-32EP, 東亜 DKK, 東京	電極法
浮遊物質 (SS)	ガラス繊維濾紙 GB-140 アドバンテック東洋, 東京	105°C, 2 h
強熱減量	ヤマト科学, FO610, 東京	500°C, 2 h
TOC, TN	燃焼触媒酸化法	
DOC, DN	TOC-V cph, 島津製作所, 京都	0.2 μm メンブレン濾過
Chl-a	蛍光クロロフィル, AAQ172 JFE-アドバンテック, 兵庫	変換式を利用
Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , NH ₄ ⁺	イオンクロマトグラフ, ICS-1500, Thermo Fisher Scientific, 米国	0.2 μm メンブレン濾過

貯水池の底質は、E地点とF地点（図4.10(a)）でエクスマンバージグラブを用いて採取し、 ^{137}Cs の放射能濃度を測定した。また、D地点ではシャベルで水位上昇時の底質である表土を採取した。E地点、F地点、D地点の採取では、局所的な影響を避けるために、各地点の周辺の複数の場所から底質を採取し、それぞれ混合した。その後、試料を105℃でオーブン乾燥させ、U8容器に詰め、Ge半導体検出器（GEM-40, ORTEC/AMETEC, 米国）を用いて ^{137}Cs を定量した。また、マッフル炉を用いて500℃で6時間処理した後、強熱減量を測定した。

(3) 結果と考察

1) 気象条件と水質観測の結果

採水時の先行降雨量、風速などの気象条件を表4.4に示す。気象データは、貯水池の北約9kmに位置するアメダス浪江（気象庁）から提供されたものである。風速は、サンプリング時を含む3時間の平均値である。9月22日は降雨時の調査で、貯水池では先行降雨が3日間で102.5mmの雨の影響を受けて貯水池水位の大きな上昇が見られた。8月25日の調査時には降雨はなかったが、先行降雨量は3日間で75.5mmと7日間で112.5mmとなっており、降雨の影響を若干受けている可能性がある。他の5回の調査では降雨の影響を受けず、流れの状態も安定していたため、対応するデータは各期間の気候やその他の条件を反映した平均的な流れの状態として、定常的な物質動態を代表していると考えられた。

表 4.4 採水日の気象データ

採水日	天候	先行降雨量 mm			風速** m s ⁻¹
		24 h	3 d	7 d	
2015/11/5	晴	0.0	9.5	18.5	1.9
2016/3/4	晴	0.0	0.0	0.0	2.7
2016/4/27	晴	0.0	0.0	7.5	3.4
2016/7/26	曇り	0.0	0.0	1.0	2.5
2016/7/27	晴	0.0	0.0	1.0	3.8
2016/8/25	晴	0.0	75.5	112.5	5.0
2016/9/22	雨天	12.5	102.5	151.0	2.2
2016/10/22	曇り	0.0	0.0	0.5	3.2
2017/1/13	曇り	0.0	0.5	19.5	2.7

*気象データは調査ため池から 9 km 離れた地点で観測された。

**採水時前後の 3 時間の平均風速。

表 4.5 水温, SS, ¹³⁷Cs 放射能濃度と Kd 値

採水日	水温	SS	SS の 強熱減量	懸濁態 ¹³⁷ Cs	溶存態 ¹³⁷ Cs	全 ¹³⁷ Cs	Kd	
	°C	mg L ⁻¹	% wt.loss	Bq L ⁻¹	Bq L ⁻¹	Bq L ⁻¹	L kg ⁻¹	
2016/3/4	12.0	11.1	27	0.69	1.1	1.8	5.7E+4	
2016/4/27	19.8	12.7	24	0.47	1.4	1.8	2.7E+4	
流 入	2016/7/27	25.6	10.1	19	0.25	1.1	1.4	2.2E+4
2016/8/25	25.8	14.7	24	0.63	1.5	2.1	2.8E+4	
2016/9/22	19.5	11.4	26	1.24	1.2	2.5	8.7E+4	
2016/10/22	15.2	7.5	17	0.33	1.2	1.5	3.8E+4	
2017/1/13	4.0	6.1	23	0.14	1.3	1.4	1.7E+4	
	°C	mg L ⁻¹	% wt.loss	Bq L ⁻¹	Bq L ⁻¹	Bq L ⁻¹	L kg ⁻¹	
2016/3/4	11.9	44.5	19	7.3	1.7	9.0	1.0E+5	
2016/4/27	18.6	114.2	15	19.8	2.6	22.4	6.7E+4	
流 出	2016/7/26	26.4	63.1	-	12.9	3.6	16.4	5.6E+4
2016/8/25	28.9	19.6	26	2.7	3.5	6.2	4.0E+4	
2016/9/22	19.8	10.8	27	1.2	1.2	2.3	8.4E+4	
2016/10/22	15.3	67.3	18	10.3	1.9	12.2	7.9E+4	
2017/1/13	4.6	17.0	25	1.3	1.1	2.3	7.1E+4	

各調査の水温, 懸濁物質 (SS), SS の強熱減量, 各画分の ¹³⁷Cs 放射能濃度, Kd 値を表 4.5 に示す. 流入水の SS 濃度は 15 mg L⁻¹ 以下, 平均 11 mg L⁻¹ であったのに対し, 流出水の SS 濃度は 11 mg L⁻¹ ~ 114 mg L⁻¹ であり, 平均 53 mg L⁻¹ と高い値を示した. また, 強熱減量は流入水と流出水の SS で 15 % から 27 % の範囲であった. さらに, 懸濁態 ¹³⁷Cs と溶

存態 ^{137}Cs の放射能濃度は、降雨の影響を直接受けた 9 月 22 日を除き、流出水の方が高かった。溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度は、流入・流出にかかわらず、すべての試料で 1 Bq L^{-1} 以上であった。Kd は流入、流出ともに $10^4 \text{ L kg}^{-1} \sim 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ と大きく、ほとんどのケースで流出の方が高く (t 値 $t(6) = 4.13$, 有意水準 $p < 0.01$) , 貯水池を通過するにつれて増加していることがわかった。これは、流入水に対して流出水では懸濁態 ^{137}Cs 放射能濃度の増加量が溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の増加量を大きく上回っていたことによる。Tsukada et al. (2017) は、2014 年に FDNPP から 80 km 以内の河川、ダム、池など 54 地点の灌漑用水の ^{137}Cs 放射能濃度を調査し、溶存態 ^{137}Cs が $0.0075 \text{ Bq L}^{-1} \sim 6.7 \text{ Bq L}^{-1}$, Kd が $4.1 \times 10^3 \text{ L kg}^{-1} \sim 2.1 \times 10^6 \text{ L kg}^{-1}$ と報告している。したがって、本研究の結果は、Tsukada et al. (2017) が 2014 年に観測した値と同程度であった。本研究では、2016 年時点でも 1 Bq L^{-1} を超える溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度が検出されていることが確認された。

表 4.6 一般水質項目と増加率

	単位	流入水			流出水			増加率* %
		平均	最小	最大	平均	最小	最大	
pH	-	6.8	6.2	7.3	6.7	6.1	7.2	-2
EC	mS m^{-1}	16.3	6.2	22.0	13.5	6.0	16.8	-17
TOC	mg L^{-1}	4.0	2.9	5.4	5.4	4.1	7.7	36
DOC	mg L^{-1}	3.9	2.7	5.0	4.9	3.6	6.3	28
Chl-a**	$\mu\text{g L}^{-1}$	11.0	7.4	14.2	40.3	16.9	92.1	365
TN	mg L^{-1}	0.38	0.32	0.51	0.40	0.29	0.66	7
DN	mg L^{-1}	0.36	0.31	0.49	0.30	0.19	0.37	-19
NO_3^-	mg L^{-1}	0.20	0.082	0.38	0.071	0.000	0.44	-65
NH_4^+	mg L^{-1}	0.070	0.000	0.23	0.006	0.000	0.028	-91
Na^+	mg L^{-1}	6.8	3.4	9.0	6.4	3.1	7.5	-6
K^+	mg L^{-1}	2.1	1.4	2.4	2.2	1.4	2.7	4
Mg^{2+}	mg L^{-1}	5.4	1.4	8.0	4.2	1.4	5.3	-21
Ca^{2+}	mg L^{-1}	11.6	3.6	16.6	9.5	3.4	12.6	-18
Cl^-	mg L^{-1}	5.4	3.7	6.6	5.3	3.5	7.0	-3
SO_4^{2-}	mg L^{-1}	39.1	10.4	51.3	32.9	10.4	42.2	-16

*増加率 = (流出水の平均値 - 流入水の平均値) / 流入水の平均値 × 100

**Chl-a の値は、調査地で得た校正式を用いて蛍光クロロフィルの値から算定した。

**一部が欠測：サンプル数 $n = 5$ (流入水) , $n = 6$ (流出水)

その他の水質値とその上昇率を表 4.6 に示す。このうち、流入水にもともと低濃度で含まれていた NO_3^- や NH_4^+ などの無機窒素は、貯水池を通過する間にほぼゼロになった。一方、全有機炭素 (TOC) と溶存有機炭素 (DOC) は増加しており、栄養不足で制限されるまで内部生産が行われたことを示している。流出水のクロロフィル a (Chl-a) 濃度は平均して流入水の約 3.7 倍であり、植物プランクトンが著しく増殖していることがわかった。また、 Na^+ 、 K^+ 、 Cl^- などの無機イオンの濃度はほとんど変化しなかったが、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} の濃度は約 20 % 減少し、電気伝導度 (EC) も 17 % 減少した。 Cl^- や Na^+ などの保守的なイオンの濃度変化が小さいことは、流入水量と流出水量の差が小さかったことを示している。

深度別調査の結果を表 4.7 に示す。貯水池の最大水深は 30 cm と浅いが、貯水池の水質は深さによって異なることが明らかになった。懸濁態 ^{137}Cs の放射能濃度は深層で浅層の約 5 倍、溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度は深層では浅層と比べると約 12 % 高かった。また、SS の濃度は下層で高くなっていた。このことは、平均的な流れの条件下で流出した ^{137}Cs の高い放射能濃度が、底質からの再浮遊と脱着に由来することを裏付けている。

表 4.7 水深の違いによる SS, ^{137}Cs と Kd 値

水深*	SS mg L^{-1}	懸濁態 ^{137}Cs Bq L^{-1}	溶存態 ^{137}Cs Bq L^{-1}	全 ^{137}Cs Bq L^{-1}	Kd L kg^{-1}
上層 (水面から 5 cm)	44	10.5	4.6	15.2	5.2E+4
下層 (水面から 20 cm)	334	49.0	5.2	54.2	2.8E+4

*全水深は 30 cm.

表 4.8 底質の ^{137}Cs と水深

地点	水深 m	^{137}Cs kBq kg^{-1}	強熱減量 % wt. loss
D	水面上	28.1	3.7
E	0.15	69.1	4.5
F	0.30	153	7.2

表 4.9 流出水と流入水の ^{137}Cs 放射能濃度の比と貯水池からの ^{137}Cs の供給フラックス

採水日	SS の流出水/ 流入水の比	^{137}Cs 放射能濃度の 流出水/流入水の比			^{137}Cs の供給フラックス* $\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$		
		懸濁態 ^{137}Cs	溶存態 ^{137}Cs	全 ^{137}Cs	懸濁態 ^{137}Cs	溶存態 ^{137}Cs	全 ^{137}Cs
2016/3/4	4.0	10.6	1.5	5.0	36	3.0	39
2016/4/27	9.0	41.9	1.9	12.1	104	6.5	110
2016/7/26-27	6.2	51.2	3.2	11.9	68	13	81
2016/8/25	1.3	4.3	2.3	2.9	11	11	22
2016/9/22	0.95	0.94	0.93	0.93	-	-	-
2016/10/22	9.0	30.7	1.6	8.1	54	4.1	58
2017/1/13	2.8	9.1	0.82	1.6	6.2	-1.3	4.9
平均値					47	6.0	53

*平均流量として 6L s^{-1} を仮定した。

底質分析の結果を表 4.8 に示す。E 地点と F 地点の ^{137}Cs 放射能濃度は高い (69 kBq kg^{-1} ~ 153 kBq kg^{-1}) が、流入地点付近の表土の ^{137}Cs 放射能濃度は低い (28 kBq kg^{-1})。堆積物の強熱減量は 4% から 7% であった。

2) 貯水池からの ^{137}Cs の供給フラックス

表 4.9 は、流入水と流出水に含まれる ^{137}Cs の各画分の放射能濃度と貯水池からの供給フラックス v_i (i は t: 総量, s: 懸濁態, d: 溶存態) の比を示したものである。供給フラックスは以下の式から算出され、正の値は貯水池が ^{137}Cs の供給源として働き、負の値は吸収源として働くことを示す (図 4.9)。

$$v_i = (i^{137}\text{Cs}_{\text{out}} - i^{137}\text{Cs}_{\text{in}}) \frac{3600q}{A} \quad (4.2)$$

ここで、 v_i ($\text{Bq m}^{-2} \text{h}^{-1}$) は供給フラックス、 $i^{137}\text{Cs}_{\text{out}}$ (Bq L^{-1}) と $i^{137}\text{Cs}_{\text{in}}$ (Bq L^{-1}) はそれぞれ流出水と流入水における各画分の ^{137}Cs 放射能濃度、 q は非洪水時の平均流量 (L s^{-1})、 A は貯水面積 (m^2) である。 q の値については後述する。

流入水と流出水の ^{137}Cs 放射能濃度の比は、9月22日を除き、懸濁態 ^{137}Cs が 4~51、溶存態 ^{137}Cs が 0.8~3.2、全 ^{137}Cs が 1.6~12 であった。これらの値は、平均的な流量の下では、

貯水池が懸濁態 ^{137}Cs と溶存態 ^{137}Cs の発生源であり、その中でも懸濁態 ^{137}Cs の流出が卓越していることを示している。9月22日の洪水時には、懸濁態 ^{137}Cs と溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度比はそれぞれ0.94倍と0.93倍に減少した。これは、3日間で100 mm以上の降雨により、流出しやすい懸濁物質が先行して流れたことと、 ^{137}Cs を含む懸濁物質が貯水池の水位上昇により主に沈殿したためと考えられる。先行する3日間の降雨量が約76 mmであった8月25日には、溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は 3.5 Bq L^{-1} 、濃度比は2.3と高かったが、懸濁態 ^{137}Cs 放射能濃度 (2.7 Bq L^{-1})、濃度比 (4.3) は比較的lowく、9月22日に次いで2番目に低い値であった。これは、 ^{137}Cs を吸着して貯水池に蓄積していた有機態の浮遊物質が、調査前の降雨によって洗い流され、採水時に有機態の浮遊物質の蓄積量が少なかったためと考えられる。

ここでは、概算ではあるが、水収支から非洪水時の平均流量を想定して、全 ^{137}Cs の供給フラックスの推定を試みた。この貯水池流域の年間平均降雨量が約1500 mm (アメダス浪江)、アメダス浪江のデータを用いてペンマン法で推定した蒸発散量が約600 mmであることを考慮すると、地表流出量は900 mmとなる。流出量の40%が直接流出、60%が低水流出と仮定し、流域面積を考慮すると、平均的な流れの条件での流入量は 6.0 L s^{-1} となる。各調査では流量は観測されなかったが、後日、平水時の2018年3月31日に調査ため池の流入地点で電磁流速計 (VP-2000, ケネック社, 東京) を用いて流量を測定したところ、 5.9 L s^{-1} であった。この観測流量は、大まかな水収支から算出した平均流量とほぼ一致した。そこで、流量 6 L s^{-1} を平均的な流量条件での流入・流出の平均流量 (q) とみなして、式4.2を用いて貯水池からの全 ^{137}Cs の供給フラックスを推定した。その結果、フラックスは $4.9 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ から $110 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (表4.9) となり、増水時の9月22日を除いて平均 $53 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ となった。フラックスが最も高かったのは4月27日の $110 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ で、最も低かったのは1月13日の $4.9 \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ であった。

同様に、平均的な流量条件での貯水池の平均流量を 6 L s^{-1} 、貯水池の平均水深を0.25 mとすると、貯水池の平均滞留時間は約2 dであり、滞留時間の数日の間に水中の全 ^{137}Cs 放射能濃度が急激に上昇したことを示唆している。

調査ため池が ^{137}Cs の動態に与える影響を、年間供給フラックスを指標として見てみよう。上に示したように、ため池からの全 ^{137}Cs の年間供給フラックスは $0.46 \text{ MBq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と

推定され、これは調査ため池とその周辺における ^{137}Cs の平均沈着量 (3.3 MBq m^{-2}) の約 14 %に相当する。また、懸濁態 ^{137}Cs と溶存態 ^{137}Cs の年間供給フラックスは、それぞれ $0.41 \text{ MBq m}^{-2}\text{y}^{-1}$ と $0.053 \text{ MBq m}^{-2}\text{y}^{-1}$ と推定された。なお、この値には洪水時の動態の影響は含まれない。

本節での検討は、貯水池の水位が極端に低下した場合であり、得られた結果は、貯水池が全 ^{137}Cs 、懸濁態 ^{137}Cs 、溶存態 ^{137}Cs すべての流出源であることを示している。貯水池には底質以外の流出源は考えられないので、底質に蓄積された ^{137}Cs は再浮遊と脱着によって放出されていることになる。

ここで、上流に立地するため池が、この結果に影響を与えているか検討する。上流のため池における ^{137}Cs の動態把握は行っていないが、上流のため池が調査ため池の SS ならびに懸濁態 ^{137}Cs の流入を制限していたと考えられ、特に中粒から粗粒の粒子が影響を受けた可能性が高い。同時に、粘土粒子を含む ^{137}Cs 放射能濃度の高い細粒画分 (Erlinger et al., 2009) を中心に流出し、調査ため池に流入したものと考えられる。したがって、調査ため池に沈降した ^{137}Cs 放射能濃度が高い細粒画分が再浮遊によって排出されることで ^{137}Cs 供給フラックスを増加させた可能性がある。

溶存態 ^{137}Cs については、貯水池が供給源となっていることを示唆する研究がある。Erlinger et al., (2009) は、高濃度のチョルノービリ放射性降下物地域内に位置するオーストリアのワラシー湖の流入水と流出水の ^{137}Cs を調査した。その結果、流出水に含まれる溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は流入水の 2 倍、 $63 \mu\text{m}$ 以下の SS 成分に含まれる懸濁態 ^{137}Cs 放射能濃度は半分であった。福島県では、大柿ダムで 2014 年から 2019 年に実施した調査に基づいて堆積物から上層水への溶存態 ^{137}Cs のフラックスを $0.57 \text{ Bq m}^{-2}\text{y}^{-1} \sim 1.3 \times 10^4 \text{ Bq m}^{-2}\text{y}^{-1}$ と推定し、堆積物から発生する溶存態 ^{137}Cs が水系の長期的な供給源になっている可能性があることが指摘されている (Funaki et al., 2020)。一方、本研究で得られた溶存態 ^{137}Cs の供給フラックスは $5.3 \times 10^4 \text{ Bq m}^{-2}\text{y}^{-1}$ であり、大柿ダムの約 4~9 倍の値となった。ここで、大柿ダムにおける ^{137}Cs の沈着量は、2011 年 5 月 26 日時点で、堤体周辺で 6.1 MBq m^{-2} 、集水域で $0.4 \text{ MBq m}^{-2} \sim 9.1 \text{ MBq m}^{-2}$ 、平均 4.0 MBq m^{-2} であり (文部科学省, 2011)、調査ため池における沈着量よりも概ね高い。しかし、溶存態 ^{137}Cs の供給フラックスを比較すると、本研究で得られた値は大柿ダムの値よりも大きいことがわかる。この違いは、貯水

池の深さの違いを反映しており、水や堆積物の温度の違いや、水温躍層の形成の有無による水流の違いに起因している。

両貯水池の底層の水温を見ると、調査ため池では夏場に水温が 30 °C を超えることがあったが、大柿ダムでは水深が 22 m 以上あり、明確な水温躍層が形成されるため、夏場でも底層の水温は 5 °C と低かった (Funaki et al., 2020) 。したがって、大柿ダムの堆積物中における有機物分解は緩慢であり NH_4^+ の生成や ^{137}Cs の脱離が制限を受けると考えられる。さらに、水温躍層の存在が、上下の物質交換を阻害するため、大柿ダムでは溶存態 ^{137}Cs の供給フラックスが強く制限される。

3) 溶存態 ^{137}Cs の季節的变化と 溶存態 ^{137}Cs 生成の要因

調査ため池からの流出水中の全 ^{137}Cs , 懸濁態 ^{137}Cs , 溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度はそれぞれ $2.3 \text{ Bq L}^{-1} \sim 22.4 \text{ Bq L}^{-1}$, $1.2 \text{ Bq L}^{-1} \sim 19.8 \text{ Bq L}^{-1}$, $1.1 \text{ Bq L}^{-1} \sim 3.6 \text{ Bq L}^{-1}$ (表 4.5) であり、夏に高く、冬に低いという明確な季節変動を示した。調査ため池を含むこの地域周辺の複数の貯水池でも同様の傾向にあることが報告されている (Konoplev et al., 2021) 。

図 4.11 は水温と溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の関係を示したものである。降雨の影響を受けた 9 月 22 日を除くと、流出水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は水温と有意な正の相関を示した (相関係数 $R=0.985$; 有意水準 $p \leq 0.01$) 。したがって、夏季の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の上昇は、水温上昇に伴う生物活動の影響が大きいと考えられる。反対に流入水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は約 1 Bq L^{-1} とほぼ一定で、水温変動の影響を受けなかった。1 月 13 日の低水温時には、流入水と流出水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度はほぼ同程度であった。このことから冬季に底質から脱離する溶存態 ^{137}Cs はほとんどないと考えられる。

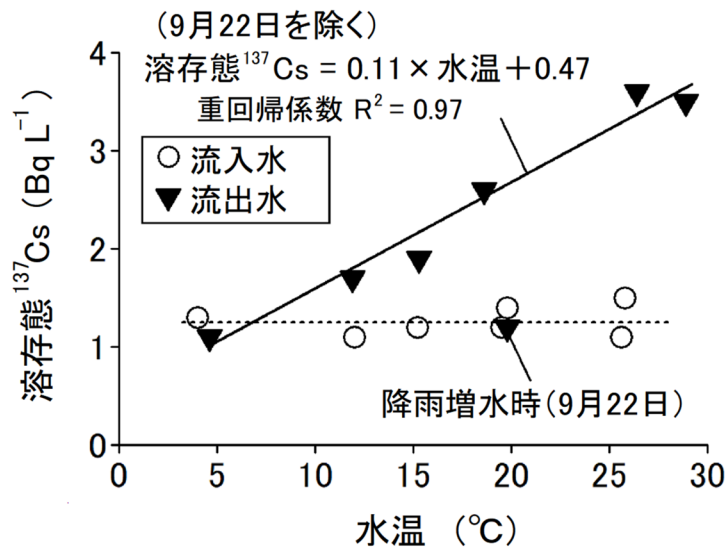


図 4.11 水温と溶存態¹³⁷Cs の関係

溶存態¹³⁷Cs 放射能濃度が夏季に増加し冬季に減少する理由の第一は、底質からの脱着速度の季節依存性である。Evans et al. (1983) は、夏季にサウスカロライナの 2 つの貯水池の底質から、嫌気状態で放出される NH₄⁺ や Fe²⁺ などの陽イオンとのイオン交換によって¹³⁷Cs が脱離することを観測した。同様に Nasvit (2002) は、チョルノービリ原子力発電所の冷却池における¹³⁷Cs 放射能濃度の長期観測結果に基づいて、¹³⁷Cs 放射能濃度の季節変動を報告しており、冬に最小値、夏に最大値を示している。一方、Kaminski et al. (1997) は、ドイツのプレアルプス地域の富栄養化した浅い湖で、冬に溶存態¹³⁷Cs の放射能濃度が最大となることを報告した。しかし、生物学的に生成された NH₄⁺ とのイオン交換が溶存態¹³⁷Cs 放射能濃度を増加させる主要な要因であることを指摘している点では、他の研究と同様である。

本研究では、ため池の流入水と流出水の NH₄⁺ 濃度は低く、それぞれ平均 0.075 mg L⁻¹ と 0.005 mg L⁻¹ であった。流出水に NH₄⁺ が含まれていないのは、前述したように内部生産により水中の無機栄養塩が消費されたためと考えられる。しかし、堆積物内部、特に微生物の活動に必要な温度が確保されている時期には、有機物の分解によって NH₄⁺ が生成されているはずである。したがって、堆積物に吸着した¹³⁷Cs は、堆積物内部で生成された NH₄⁺ とのイオン交換により脱着され、水中の溶存態¹³⁷Cs 放射能濃度が上昇したと考えられる。

反対に、冬場は底質の生物活性が低く、 NH_4^+ の生成も限られているため、底質から脱着される溶存態 ^{137}Cs の量はほとんどない。これらの結果は、このため池の溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度が、底質で生じる生物活動に応じた季節依存性の脱着の影響を受けて、季節的に変動することを示唆している。 NH_4^+ の他に、 K^+ や Fe^{2+} などの他のイオンがイオン交換の駆動力となっている可能性がある。調査ため池では、 K^+ 濃度の季節変動は小さく、流入水と流出水の濃度差も小さい（表 4.6）。したがって、少なくとも、年間を通じて K^+ が底質に吸着または溶出する傾向は見られない。さらに、水温に依存した K^+ 濃度変化のメカニズムは知られていないため、 K^+ が ^{137}Cs の脱離の駆動力となっている可能性は小さいと考えられる。一方、 Fe^{2+} は NH_4^+ と同様に嫌気条件下で堆積物から放出されるため、脱離の駆動力となる可能性がある。ただし、 Fe^{2+} が ^{137}Cs の脱離の駆動力となるケースは、前述のように水域の底質や懸濁物質に粘土粒子が少なく有機物が多い環境において非選択的な吸脱着が卓越する特殊なケースに限られる。本研究では Fe^{2+} を測定していないため、実態は不明である。

^{137}Cs の沈着量が多い地域であっても、河川や比較的大きな貯水池ではほとんど検出されない溶存態 ^{137}Cs が、帰還困難区域の灌漑用貯水池では 1 Bq L^{-1} を超える高濃度で広く検出されている要因を以下に指摘しておきたい。腐植物質が高濃度に存在する環境では、セシウム吸着の抑制効果により、浮遊固体粒子への吸着が弱いことが知られている（Lindner et al., 1993; 中尾ら, 2016）。したがって、粘土鉱物が少なく有機物が豊富な環境では、非選択的に放射性セシウムを弱く吸着し、陽イオンの存在により容易に脱着を生じる表面サイトの役割が相対的に増すことで、溶存態 ^{137}Cs が比較的長い時間存在することが可能になる。このような ^{137}Cs と有機物の関係は、有機物の負荷が大きい小規模湖でのみ観察されており（Lindner et al., 1992）、これは調査ため池を含む周辺の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の高い貯水池の条件と類似する。現在、帰還困難区域内の未除染のため池で比較的高い溶存態 ^{137}Cs が検出される理由はこのことに起因する可能性が高い。今後、これらの点をより詳細に調査する必要がある。

4) 懸濁態 ^{137}Cs の変化と懸濁態 ^{137}Cs の担体としての SS

SS の単位質量あたりの ^{137}Cs の経時変化を見ると、流入時の放射能濃度は $20 \text{ kBq kg}^{-1} \sim 60 \text{ kBq kg}^{-1}$ と全体的に低かったが（図 4.12）、流出水では春から秋にかけて $130 \text{ kBq kg}^{-1} \sim 200 \text{ kBq kg}^{-1}$ に増加し、冬には 80 kBq kg^{-1} 以下に減少した。流出水中の SS の ^{137}Cs 放射能濃度は、9月22日を除き、流入水中の 2.6 倍～8.2 倍（平均 4.2 倍）であった。これは、高い ^{137}Cs 放射能濃度を有する堆積物が再懸濁するとともに、流入した SS に堆積物から溶出した溶存態 ^{137}Cs が吸着または吸収されたことを意味する。ため池の流出点に近い F 地点の底質中の ^{137}Cs 放射能濃度は 153 kBq kg^{-1} であり、春から秋にかけてのため池水の SS 中の ^{137}Cs 放射能濃度と同じ範囲にあった。このことは、水中の懸濁態 ^{137}Cs と堆積物中の ^{137}Cs が沈降と再浮遊の双方向の関係で密接に結びついていることを示している。

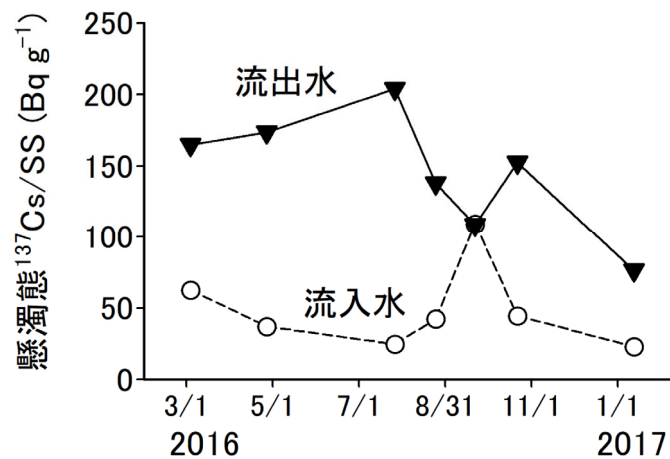


図 4.12 懸濁態 $^{137}\text{Cs}/\text{SS}$ の時間変化

最後に、懸濁態 ^{137}Cs の担体の組成を見る。採水時の風速は全体的に弱かったことから（表 4.4），再懸濁は主に粘土などの細粒土粒子や比重の小さいデトリタスや植物プランクトンなどの有機物で発生し，比重の大きな粗粒の鉱物粒子では発生しないと考えられる。ここで，強熱減量をみると SS で 15 % ~ 27 %，堆積物で 4 % ~ 7 % であり，SS が堆積物よりも多くの有機物で構成されていることを示した。自然環境中の代表的な有機物であるフミン酸について，同様に強熱減量を測定したところ 77 % であった。フミン酸のデータを参考に，SS の強熱減量を SS 中の有機物の割合に換算すると，20 ~ 35 質量 % となる。さらに，SS 中の有機物の比重を 0.3，非有機物である鉱物粒子の比重を 2.5 と仮定すると，有機物と非有機物の体積比は約 3 : 1 となる。したがって，非洪水時に放射性セシウムの担体として働く SS は，主に有機物と粘土を中心とした細粒の土粒子から構成されることが推察される。今後は， ^{137}Cs がどのような形で SS に結合し，運ばれて排出されるのかをより詳細に調べる必要がある。

(4) 小括

本研究では，低水位で管理されている貯水池が放射性セシウムの流出を増加させ，その発生源として働くという仮説を立て，低水位で管理されている灌漑ため池における ^{137}Cs の動態を平均的な流量の条件下で調べた。その結果，ため池から 1 年間に供給された ^{137}Cs のフラックスは，全 ^{137}Cs が $0.46 \text{ MBq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ ，懸濁態 ^{137}Cs が $0.41 \text{ MBq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ ，溶存態 ^{137}Cs が $0.053 \text{ MBq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と推定され，いずれも正であった。このように，低水位で管理されている貯水池は，懸濁態 ^{137}Cs と溶存態 ^{137}Cs の両方の発生源として作用し，懸濁態 ^{137}Cs の流出が支配的であることがわかった。 ^{137}Cs の発生源は底質であり，懸濁態 ^{137}Cs の流出は底質の再浮遊によるもの，溶存態 ^{137}Cs の流出は底質からの脱着や高濃度の放射性セシウムを含む CsMPs からの溶出の影響による可能性が考えられた。

ため池の流入水と流出水の水質を比較すると，懸濁態 ^{137}Cs ，溶存態 ^{137}Cs ともに流出水の方が高い傾向にあり，流出水の全 ^{137}Cs 放射能濃度は流入水の 1.6 倍から 12 倍であった。このうち，流出水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は水温と正の相関があり，底質からの溶存態 ^{137}Cs の脱着は生物活動による NH_4^+ などのイオンとの交換の影響を受けている可能性が示

唆された。このほかにも、高濃度の放射性セシウムを含む CsMPs からの溶出の影響を受けている可能性も考えられる。

流出水の溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度は、冬季には流入水とほぼ同じであり、脱着が少なく夏季に増加するという季節変動が確認された。流出水中の懸濁態 ^{137}Cs の担体は、主に粘土などの細粒の鉱物性土壌粒子とデトリタスやプランクトンなどの有機物と考えられた。

これまで、被災地では、高濃度の放射性セシウムを含む貯水池の堆積物を除去する一連の事業が進められ、今後も帰還困難区域内で実施される予定である。このような堆積物の除去は、水位が低下した貯水池からの放射性セシウムの流出を抑えることに貢献し、淡水資源の回復と農業用水の利用再開に効果的であると考えられる。

なお、本節で得られた知見は、測定場所、測定回数、仮定によって制限される。本節で触れたように、調査ため池の上流に立地するため池の影響など不明な点も少なくない。今後、貯水池における放射性セシウムの環境動態をより正確に評価するために、調査法の工夫やデータの蓄積などを行い、さらに知見の蓄積を図ることが必要である。

第3節 水質の鉛直分布からみた小規模灌漑貯水池における放射性セシウムの動態

(1) はじめに

本節では、放射性セシウムの沈着量が比較的多く、福島県東部に広がる阿武隈山地に立地する典型的な小型の谷型ため池における生物利用性が高い溶存態放射性セシウムを中心とした動態について水質の鉛直分布の現地観測に基づいて検討する。

一般に貯水池に流入した懸濁物質はほとんどが沈降するため、懸濁態 ^{137}Cs の放射能濃度は下層で高くなる。それゆえ、表層水に含まれる懸濁態 ^{137}Cs の放射能濃度は相対的に低く、表層水が澄んでいれば、灌漑水中に懸濁態 ^{137}Cs を含むリスクは小さい。そのため、貯水池の農業水利用にあたっては表層取水の確実な実施を推奨されている（農林水産省，2016c）。一方、生物利用性が高い溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布はどのようになっているだろうか。これまで、多くの研究者が貯水池底質から溶存態 ^{137}Cs が溶出することを明らかにしている（Evans et al., 1983; Kaminski et al., 1997; Tsuji et al., 2022）。しかし、底質から溶出した溶存態 ^{137}Cs が、表層水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度に影響しない限り、表層水の利用は可能である。したがって、貯水池における溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布を考慮した動態の把握が重要である。

福島県地方では、不足する灌漑水を補うため、大小さまざまなため池が建設されている。例えば、FDNPP に比較的近い相双地域には、898 個の灌漑用水池があり、そのうち記録のある 890 個の池の総貯水量の平均値は 25826 m^3 であるが、中央値は 4500 m^3 であり、小規模のため池が多いことが分かる。実際に本節の調査ため池の貯水量 7500 m^3 か、それ以下の貯水量を持つ小型のため池の個数は、全体の 62 % と過半を占めている。このように、原発事故被災地周辺では、小規模のため池が重要な灌漑水源となっていることから、小規模ため池における放射性セシウムの動態を把握しリスクを知ることが、貯水池の水利用の再開に向けた重要な課題となる。

しかし、これまで、福島では、溶存態 ^{137}Cs を含む湖水の鉛直分布の把握は、主に大型の貯水池（Funaki et al., 2020; Funaki et al., 2022）で行われており、小規模ため池を含む調査

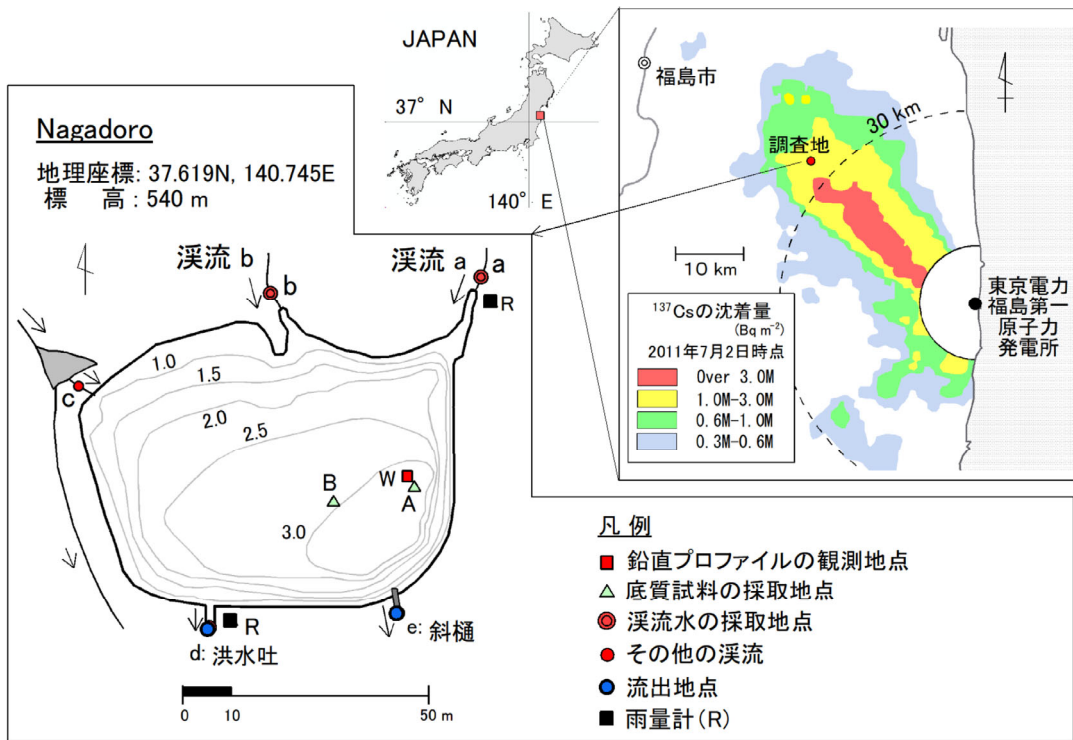
(Tsukada et al., 2017; Wakiyama et al., 2017; Wakiyama et al., 2019; Konoplev et al., 2021; Kubota et al., 2022a) では、鉛直分布に関する報告はほとんどみられない。また、チヨルノービリ後の欧州における湖沼の調査 (Kaminski et al., 1997; IAEA, 2006) や米国における調査 (Evans et al., 1983) などにおいても、貯水池の水の農業水利用を考慮した鉛直分布の検討事例はほとんどない。そこで、本研究では、比較的 ^{137}Cs の沈着量が多い福島地方の山間地に立地する小規模ため池において、 ^{137}Cs の鉛直分布を観測し、底質からの溶出を中心とした ^{137}Cs の動態を明らかにするとともに農業用水の利用上のリスクについて検討する。

(2) 材料と方法

1) 調査地

調査ため池は、福島県飯舘村の阿武隈山地の標高 540 m 地点に谷をせき止めて築造された灌漑用のため池であり、FDNPP から直線で約 34 km 離れている (図 4.13)。ため池の集水域への ^{137}Cs の平均沈着量は 2.0MBq m^{-2} であった (文部科学省, 2011)。本地区は、震災後に帰還困難区域に指定されたため、全住民は避難し、地区への立入は厳しく規制されていた。そのため、調査期間では、営農や生活排水など人為の影響はほとんどなかった。東日本大震災までは、水田への灌漑水の供給に使用されていたが、震災後は、2013 年に実施された水稻の試験栽培 (Shin et al., 2015b) を除くと使用されていない。ため池の満水時の水面積は 0.73 ha、貯水量は約 7500m^3 、最大水深は約 3.4 m であり、典型的な小規模ため池である。図 4.13(a)のため池の等深線図は、2013 年 8 月に超音波測深機 (HFD-100, 本多電子, 愛知) を用いて深淺測量を行い作図した。

ため池集水域の土地利用はほとんどが森林で、一部に道路や民家がみられる。表層地質は、全域にわたって黒雲母花崗岩であり、前期白亜紀の花崗岩で形成される阿武隈花崗岩類である (久保, 2014)。そのため、溪流の増水時には花崗岩が風化したマサと呼ばれる砂土の流出がみられる。この地域に沈着した放射性セシウムの多くはマサ土に普遍的に存在する風化黒雲母に固定され、時間とともに安定化することが指摘されている (Mukai et al., 2014, 2016, 2018)。



(a) 調査地の概略図



(b) 調査ため池の概観

図 4.13 調査地とサンプリング地点

2) 水質調査

調査ため池内の放射性セシウムおよびその他の水質の鉛直分布を知るために、2014年4月から2016年3月にかけて、最深部であるW地点において（図4.13(a)）、水質の鉛直分布調査を行った。調査は、池面が凍結する1月～2月を除いて、月1回～5回、合計34回実施した。調査では、池に浮かべたゴムボートから、採水ストレーナ付のホースと多項目水質計（AAQ172, JFE-アドバンテック, 兵庫）を水中に下ろして、水深毎の採水とセンサーによる水質測定を行った（図4.14）。採水深度は、水面より0.1 m, 1.0 m, 2.0 m, 3.0 mを基本として状況に応じて追加, 変更した。多項目水質計による測定値は、水深0.25 m毎に整理した。採水では、分析に必要となる最低5 L程度から最大40 L程度の水試料を採取するため、ステンレス製のストレーナとナイロン製ホースを通じて、地上に設置したペリスタポンプ（I/P, Cole-Parmer, 米国）を用い、慎重かつ連続的に採取した。採取した水は、Yasutaka et al., (2013), Tsuji et al., (2015a) による迅速濃縮技術を用いた前処理により、現場で直ちに分離した。得られたCs濃縮カートリッジは実験室に持ち帰り乾燥させ、その後、Ge半導体検出器（GC2020等, CANBERRA, 米国；GEM-40, ORTEC/AMETEC, 米国）を用いて、溶存態 ^{137}Cs と懸濁態 ^{137}Cs の測定を行った。全 ^{137}Cs は懸濁態 ^{137}Cs と溶存態 ^{137}Cs の和として求めた。試料採取日に基づいて減衰補正を行った。その他、観測・分析した水質項目を表4.10に示す。

また、ため池の水温の鉛直分布および流入水の水温を把握するために、ため池内では表層から底層まで7深度（図4.13）、流入水はaおよびb地点（図4.13(a)）において自記水温計（UTBI-001, Onset Computer, 米国）を設置し、30分毎に水温測定を行った。なお、調査ため池ではc地点からの流入もあるが、c地点からの流入は渓流水の一部に限られる（久保田ら, 2015b）。

表 4.10 水質項目と測定方法

項目	分析法と機器	備考
DO, 水温, 蛍光クロロフィル, 濁度, EC	多項目水質計 AAQ172, JFE-アドバンテック, 兵庫	
浮遊物質 (SS)	ガラス繊維濾紙 GB-140 アドバンテック東洋, 東京	105°C, 2 h
TOC, TN	燃焼触媒酸化法	
DN	TOC-V cph, 島津製作所, 京都	0.2 μm メンブレン濾過
Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , NH ₄ ⁺	イオンクロマトグラフ, ICS-1500, Thermo Fisher Sci., 米国	0.2 μm メンブレン濾過

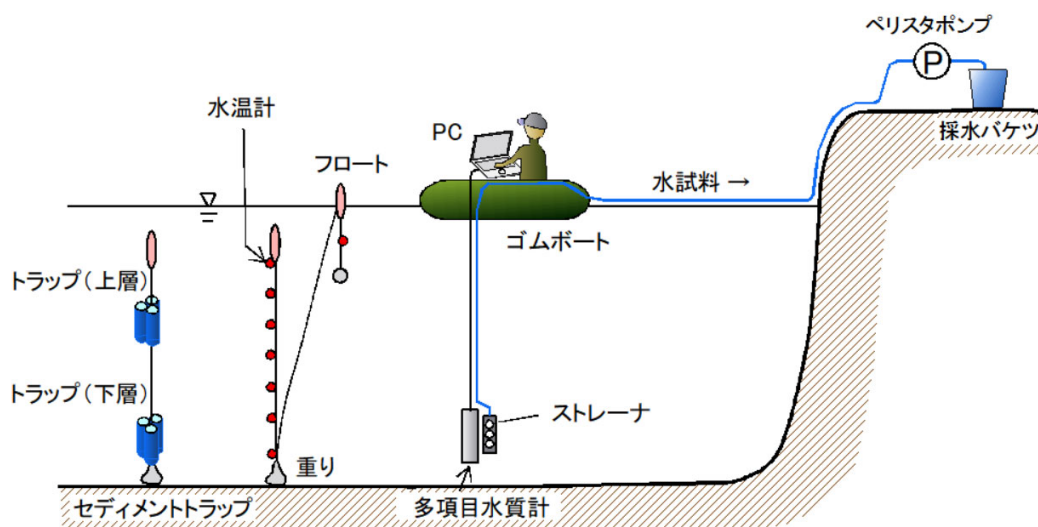


図 4.14 調査法

3) 水文観測とため池の水理学的滞留時間

現地では、0.5 mm 転倒マス雨量計 (OW-34-BP, 太田計器製作所, 東京) を用いて、10 分毎の雨量の記録を行った。また、観測期間のため池の水理学的滞留時間を把握するため、洪水吐 (d 地点) および斜樋 (e 地点) からの流出量を観測した。流出量は、洪水吐では、水位観測と堰の公式により、また、斜樋では四角堰における水位観測から、どちらも 10 分間隔で測定した水位から求めた越流水深を用いて算定した。洪水吐および斜樋からの流出量の和をため池流出量 q ($\text{m}^3 (10\text{min})^{-1}$) とし、水理学的滞留時間 HRT (d) を次式で算出した。

$$HRT = \frac{V}{q \times 144} = \frac{597 \cdot H^2 \times 201 \cdot H}{144 \cdot q} \quad (4.3)$$

ここで、 V (m³) はため池の貯水量で、実測に基づいてため池の水深 H (m) の関数として表わした。

4) 水中の懸濁物質と堆積物の調査

ため池に流入する懸濁物質やため池の底質に含まれる ¹³⁷Cs の放射能濃度や形態別割合を知るために、流入水中の懸濁物質の採取と、底質調査ならびにセディメントトラップによる沈降物の調査を行った。ため池に流入する懸濁物質の採取は、a および b 地点 (図 4.13 (a)) において 2015 年 7 月 15 日の降雨増水時に実施した。水試料を採水し、濾過により懸濁物質を得た。また、底質の採取は、2014 年 11 月 20 日と 12 月 3 日に、コアサンプラー (DIK-180A, 大起理化工業, 埼玉) を用いて、ため池の最深部である A 地点と底面の標高が約 30 cm ほど高い B 地点において、長さがそれぞれ 28 cm と 43 cm の不攪乱コアを採取し、実験室に持ち帰った後に深度方向に 1 cm ~ 2 cm 毎にスライスした。また、A 地点付近では、2013 年 8 月 23 日と 2015 年 11 月 20 日にエクマンバージ採泥器を用いて底質表層を採取した。これらの浮遊物質と底質試料は、110 °C で乾燥させた後、粉碎し、分析試料とした。

セディメントトラップは、W 地点 (図 4.13 (a)) において上層と下層の 2 深度、それぞれ開口部が底面より 2.3 m と 0.6 m に設置した (図 4.14) 。セディメントトラップは、内径 8 cm, 長さ 30 cm の有底の亚克力製円筒で 1 深度当たり 3 本を設置した。セディメントトラップ調査では、2015 年秋の 3 期間 (9/7 – 9/29, 9/29 – 10/15, 10/15 – 11/19) に採取した。採取した堆積物は 110 °C で乾燥させた後、粉碎し分析試料とした。

これらの堆積物の試料は、逐次抽出法 (Tsukada et al., 2008) により交換態、有機態ならびに固定態 (残差) に分け、Ge 半導体検出器を用いて形態別 ¹³⁷Cs を測定した。

5) 水質の鉛直分布の安定性の検討

成層の安定性を次式で定義されるブルント・バイサラ振動数 N を用いて検討した。

$$N^2 = -\frac{g}{\rho_0} \frac{d\rho}{dz} \quad (4.4)$$

ここで、 g は重力、 z は上向きを正とする鉛直方向の位置、 ρ は水の密度、 ρ_0 は平均密度である。 $N^2 > 0$ で安定成層、 $N^2 = 0$ で中立、 $N^2 < 0$ で不安定成層と評価される（有田・中井, 1998）。水の密度は、水温から計算した。

(3) 結果

1) 水温分布からみたため池内の鉛直方向の水の流動

溪流からの流入水とため池の表層ならびに底層の水温の経時変化を図 4.15 (a)に示す。それらを比較すると、流入水の水温は一年を通じてほぼ最低であった。平水時の渓流水には懸濁物質がほとんど含まれていないことを考えると、ため池への流入水は、密度の違いからため池の底層に流れ込むと考えられる。4月後半から9月前半にかけては、ため池表層と底層の水温差が大きくなり、8月には最大6°C程度の水温差がみられる。7月から8月にかけて、流入水とため池底層の水温がほぼ等しい状態で推移しているが、これは、流入水の影響が大きいと考えられる。

ため池内の水温の鉛直分布をみると、最大水深が約3.4 mと浅いため、水温差が大きな7月においても明瞭な水温躍層の形成はみられない（図 4.15 (b)）。7月の最下層の水温はより低くなっているが、これは流入水の影響と考えられる。また、7月の水温分布の早朝と昼間の温度プロファイルの違いをみると、夜間は放熱のため、表層から0.8 m程度までの水温が低下しており、この範囲内で水の対流・混合が生じていると考えられる。

また、9月下旬から翌年の3月中旬にかけては、ため池の上層から下層まで水温がほぼ等しく循環期となる（図 4.15 (a)）。10月14日14:00と15日6:00の水温分布を比較すると（図 4.15 (b)）、全水深で水温はほぼ同じであるが、15日には全体的に水温が低下している。これは、夜間に冷却された表層の水が下層まで降下し対流する全層混合の結果と考えられる。その後、12月中旬から2月下旬にかけては、結氷もみられる。この期間の流入水の水温は4°Cを下回ることが多く、その場合、流入水はため池の上層に流入するものと考えられる。

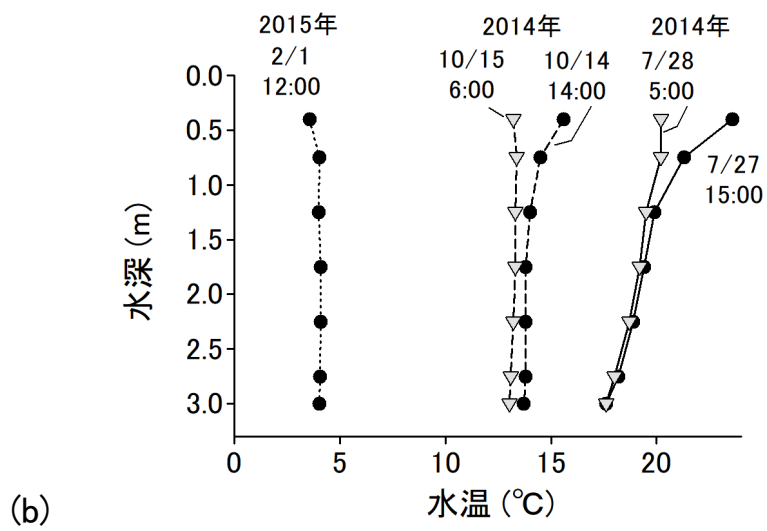
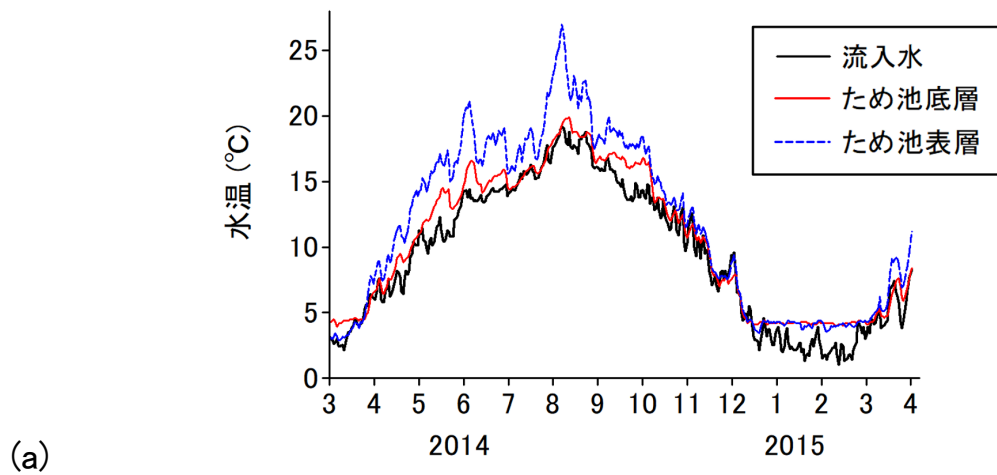
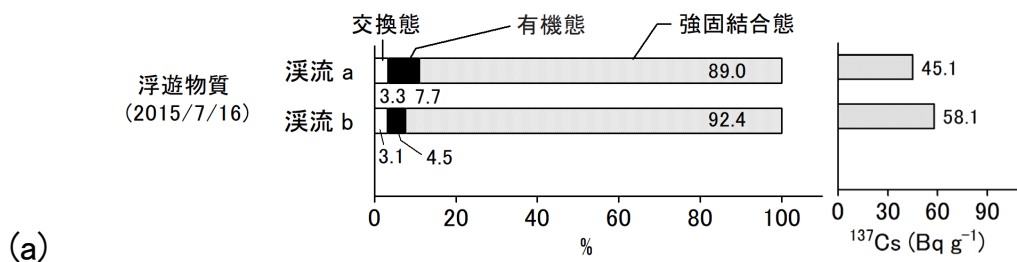
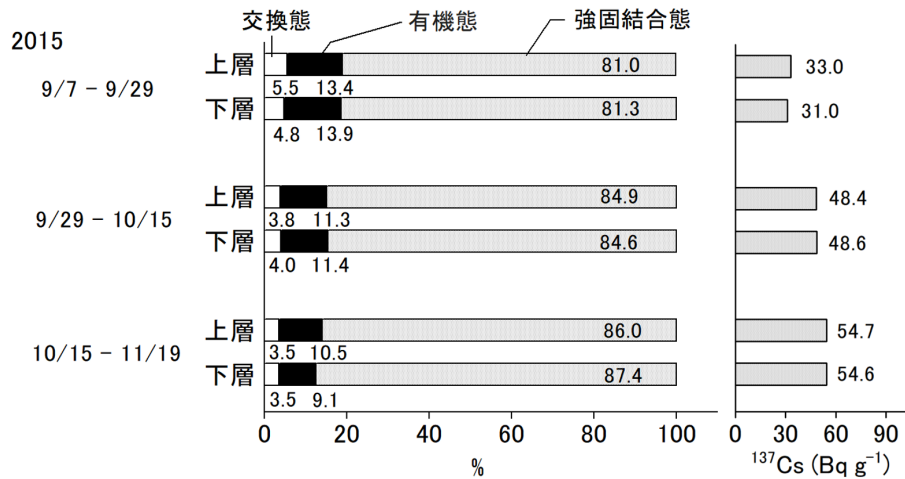


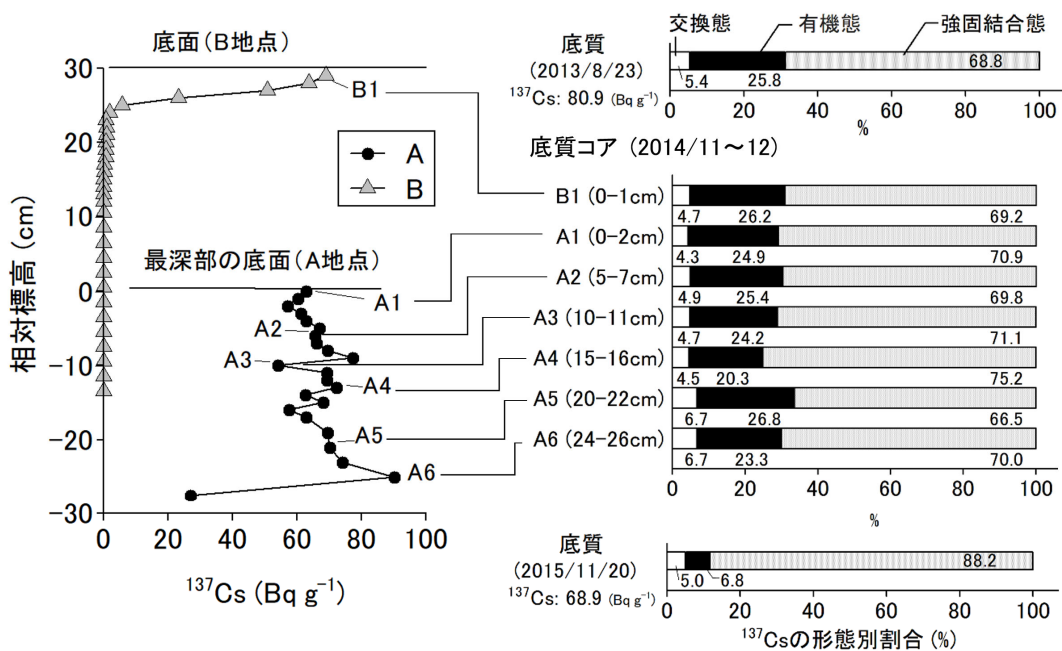
図 4.15 調査ため池の水温，(a) 流入水，表層水および底層水の水温の経時変化（2014年5月～2015年5月），(b) 夏季（2014年7月27日～28日），秋季（2014年10月14日～15日）および冬季（2015年2月1日）における水温の鉛直分布



(a)



(b)



(c)

図 4.16 ため池に流入する浮遊物質や底質に含まれる ^{137}Cs の形態, (a) 溪流から流入する懸濁粒子に含まれる ^{137}Cs とその形態別割合, (b) セディメントトラップにより捕捉された沈降粒子の ^{137}Cs とその形態別割合, (c) 底質中の ^{137}Cs の鉛直分布と形態別割合

2) ため池に流入する浮遊物質や底質に含まれる ^{137}Cs の形態

豪雨増水時にため池へ流入する渓流水中の浮遊物質に含まれる形態別 ^{137}Cs の割合と ^{137}Cs 放射能濃度を図 4.16 (a)に示す。流入する浮遊物質に含まれる ^{137}Cs のうち、9割前後が土壌粒子に固く結合した強固結合態で、残りが有機態と交換態であり、交換態は約3%と僅かであった。

表 4.11 に、セディメントトラップ調査における期間雨量と堆積速度等を示し、図 4.16 (b)に、セディメントトラップで捕捉された沈降粒子の形態別 ^{137}Cs の割合と ^{137}Cs 放射能濃度を示す。2015年9月7日から29日までの期間には、9月9日から11日にかけて総雨量が375 mmの大きな降雨イベントがあり、集水域から多くの土砂が流入したため、セディメントトラップによる捕捉量も他の期間と比べると格段に多かった。3期間とも下層の捕捉量は、上層と比べると、1.8倍~3.2倍と多かったが、 ^{137}Cs 放射能濃度や形態別 ^{137}Cs の割合に上下層間の差はなかった。

ため池底質表層およびコア分析により得られた底質中の ^{137}Cs 放射能濃度の分布と形態別 ^{137}Cs の割合を図 4.16 (c)に示す。底質表層の ^{137}Cs は、およそ 63 Bq g^{-1} ~ 81 Bq g^{-1} の範囲であった。最深部の地点 A と底面標高が約 30 cm 高い地点 B (図 4.13 (a)) を比較すると、底質表面の ^{137}Cs 放射能濃度に大差はないが、表層の下は大きく異なっている。地点 A では、約 28 cm 下まで ^{137}Cs が高濃度で検出されるのに対して、地点 B で ^{137}Cs が確認されるのは上端の 5 cm ほどであった。また、A 地点では底面下 26 cm の A6 層に ^{137}Cs 放射能濃度の最大値がみられ、上層にいくほど濃度が低下する傾向がみられる。A 地点の ^{137}Cs の形態別割合をみると、交換性画分の割合は、A5-A6 層で 6.7 % と最大であり、表層に向かうほど減少した。また、強固結合態と有機態には明瞭な傾向は見られなかった。A6 層の下方は急激に ^{137}Cs 放射能濃度が低下していることから、A6 層は、2011年3月の FDNPP の事故直後にはため池の底質表層部であったと考えられる。また、B 地点の ^{137}Cs の堆積状況と比較すると、ため池内に沈着、または流入した ^{137}Cs が、浮遊物質として最深部に移動し再堆積したことが推察される。

表 4.11 セディメントトラップ調査期間の雨量と堆積量

期間	層位	日数	降雨量 mm	堆積速度 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$	強熱減量** % wt. loss
2015年9月7日～9月29日	上層	22	497	501	3.7
	下層			916 (0.8%)*	—
2015年9月29日～10月15日	上層	16	8.5	6.6	4.5
	下層			20.8 (0.9%)	—
2015年10月15日～11月19日	上層	35	87	4.8 (1.2%)	7.2
	下層			11.8 (1.5%)	7.2

* () 内は変動係数，変動係数の値が記載されていないものは，得られたデータが 2 個以下で変動係数の算定ができなかったもの。

** 強熱減量の—は欠測を表す。

3) 年間を通じた平水時の水中の溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布の推移

表 4.12 に水質調査時の先行降雨量を示す。調査日の 85 %では 24 h 先行降雨量が 10 mm 以下と降雨の影響は限定的であったが，一部の調査では 24 h 先行降雨量が最大 64 mm と降雨の影響を受けている調査日もあった。

図 4.17 は，2014 年の調査のうち 24 h 先行降雨量が 10 mm 以下の調査日の代表的な ^{137}Cs の鉛直プロファイルを用いて季節変化を示す。溶存態 ^{137}Cs ならびに懸濁態 ^{137}Cs とも全体的にみると下層ほどそれぞれの濃度が高い傾向がみられた。このうち溶存態 ^{137}Cs は，4 月と 12 月は下層まで濃度が低く，5 月～8 月にかけて下層の濃度が高くなり，最大値は 8 月 21 日の水深 3.0 m において 0.58 Bq L^{-1} であった。また，冬季の表層と底層の濃度差は溶存態，懸濁態ともに小さかった。

表 4.12 調査日時の先行降雨量と水理学的滞留時間

調査日	先行降雨量 mm			水理学的滞留時間 (HRT)
	24 h	3 d (72 h)	7 d (168 h)	
2014年4月24日 15:00	0.0	7.0	7.0	8.7
2014年5月9日 14:00	0.0	0.0	2.5	14.2
2014年5月30日 12:00	0.0	1.0	10.3	11.7
2014年6月27日 12:00	3.0	3.0	17.5	9.6
2014年7月10日 15:00	20.5	67.0	91.5	2.3
2014年7月11日 12:00	0.0	60.0	88.0	3.2
2014年7月18日 14:00	41.0	57.0	58.5	2.2
2014年7月25日 14:00	0.0	1.0	33.3	5.8
2014年7月31日 14:00	0.0	0.0	0.0	9.4
2014年8月21日 14:00	0.0	32.0	61.0	7.9
2014年8月28日 15:00	7.0	52.8	93.8	3.5
2014年8月29日 12:00	0.0	34.5	93.8	4.5
2014年9月5日 14:00	0.0	0.0	13.5	7.5
2014年9月12日 13:00	3.5	6.0	26.0	8.1
2014年9月25日 13:00	10.0	10.0	10.0	9.3
2014年10月3日 13:00	1.0	1.0	1.0	10.9
2014年10月10日 15:00	0.0	0.0	119.0	8.0
2014年10月17日 12:00	4.0	4.0	84.5	5.3
2014年11月14日 14:00	0.0	1.0	6.0	10.9
2014年12月3日 13:00	0.0	11.0	33.0	8.6
2014年12月11日 12:00	0.0	0.5	3.0	11.2
2015年3月26日 13:00	0.0	0.0	2.5	9.2
2015年4月24日 14:00	0.0	0.0	16.0	7.8
2015年5月14日 14:00	0.0	9.8	10.3	23.1
2015年6月17日 14:00	1.0	13.0	13.0	31.6
2015年7月16日 14:00	63.5	63.5	64.0	1.6
2015年7月30日 14:00	0.5	0.5	2.0	53.3
2015年9月7日 14:00	46.5	46.5	60.0	3.0
2015年9月24日 13:00	0.0	0.0	44.3	4.2
2015年10月8日 14:00	0.0	0.0	7.0	11.0
2015年11月19日 14:00	26.8	27.3	45.8	6.0
2015年12月17日 11:00	0.0	0.0	37.5	8.9
2016年3月3日 13:00	0.5	3.5	3.5	12.0
2016年3月23日 13:00	0.0	0.0	0.5	18.6
全期間の平均水理学的滞留時間* (d)				14.5

* 平均値は調査日だけでなくすべての期間の平均である。

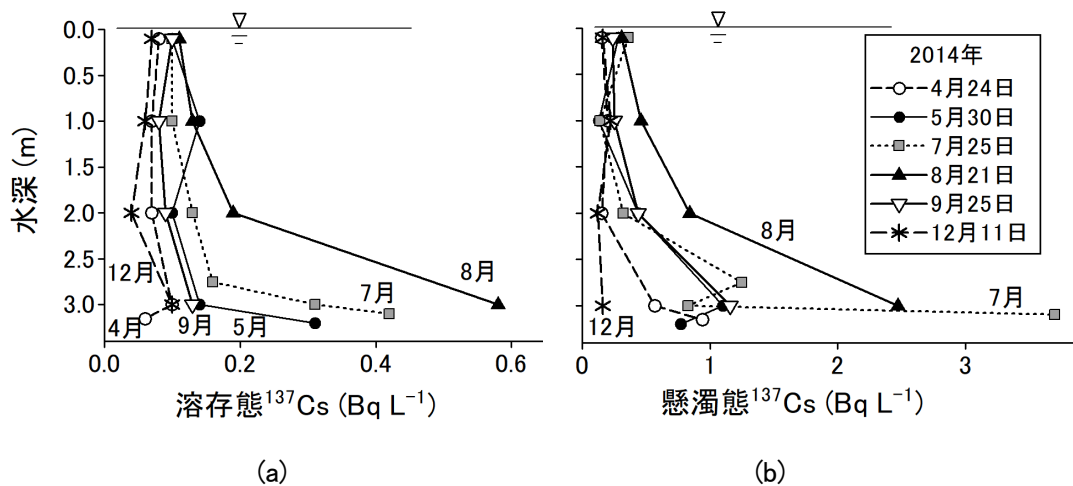
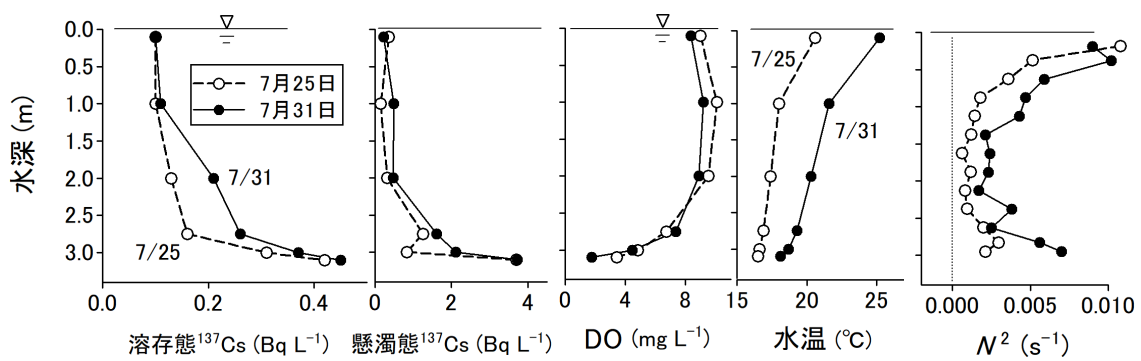


図 4.17 平水時における形態別 ^{137}Cs の鉛直分布の季節変化 (2014 年), (a) 溶存態 ^{137}Cs , (b) 懸濁態 ^{137}Cs

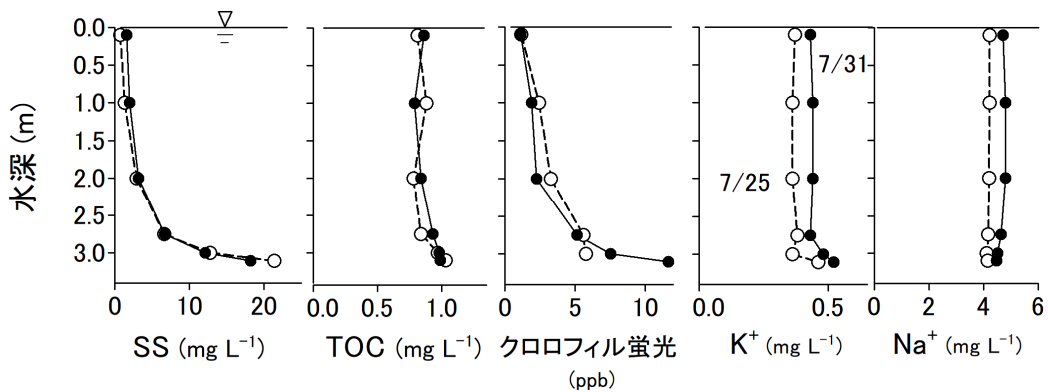
4) 夏季における溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布と溶出

図 4.18 に、夏季に無降雨であった 2014 年 7 月 25 日から 7 月 31 日にかけての 6 日間の中の溶存態 ^{137}Cs と関連する水質項目の鉛直分布を示す。この間、溶存態 ^{137}Cs は放射能濃度の高い最下層 (3.1 m) から水深 2.0 m まで濃度上昇がみられるが、これは明らかに底質からの溶出によるものと考えられる。この 6 日間の平均の水理学的滞留時間は 7.3 d である。したがって、この間に 8 割以上の水が入れ替わっていると考えるよい。この時期の流入水は底層に流入しているため、ため池の水の鉛直方向の流れは基本的に上向きで、池水はため池外へ最上層から流出していると考えられる。ため池の水位貯留量曲線から 8 割の水が流入したときの水深を逆算すると水面から 0.4 m 下となるため、水深 1.0 m 地点の水は、下層から上昇した水によって置き換わっているはずである。しかし、水深 1.0 m 地点の水の溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度は、水深 2.0 m とは異なりほとんど変化していない。したがって、溶存態 ^{137}Cs の上昇を抑制するなんらかの制限が働いているものと考えられる。

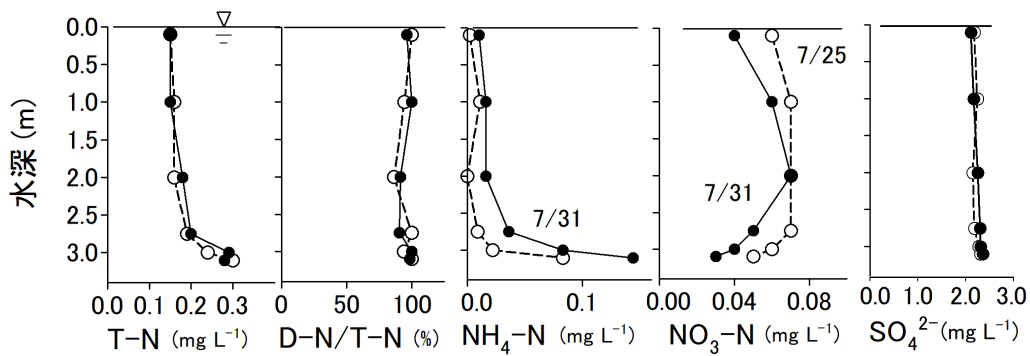
このときの他の水質項目との関連についてみてみよう。まず、水温の鉛直分布をみると (図 4.18 (a)), 明瞭な水温躍層こそ形成されていないものの、表層と底層での水温差は 7 月 25 日に約 4°C あり、7 月 31 日には、 7°C 以上に拡大した。また、そのときの水温は全層で上昇し、DO は最下層において 3.4mgL^{-1} から 1.8mgL^{-1} へ低下し貧酸素化が進んだ。 N^2 は全体的に増加し成層の安定性が増した。



(a)



(b)



(c)

図 4.18 夏季の無降雨期間（2014年7月25日～31日）における¹³⁷Csと関連する水質項目の鉛直分布の変化

次に、窒素についてみると（図 4.18 (c)），全窒素（T-N）の鉛直プロファイルは前後でほとんど変わらないものの、2.0m以深の下層ではアンモニア態窒素（NH₄-N）が明らかに増加し、2.75 m 以深では硝酸態窒素（NO₃-N）が減少した。これは、底質中の有機物の分

解により生じた NH_4^+ とともに、貧酸素化に伴う水中の NO_3^- の還元による NH_4^+ の生成が考えられる。水深 2.75 m における $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少量 0.023 mg L^{-1} は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の増加量 0.027 mg L^{-1} とほぼ等しい。また、水深 3.0 m と 3.1 m における $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少量はそれぞれ 0.019 mg L^{-1} , 0.013 mg L^{-1} であるが、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の増加量はそれぞれ 0.061 mg L^{-1} , 0.061 mg L^{-1} と格段に多い。これは、底質からの NH_4^+ の溶出の影響が卓越していることを示すものと考えられる。このときの溶存態窒素 (D-N) と T-N の比をみると、窒素のほとんどが溶存態として存在していた。

Thach et al. (2017, 2018) は、過剰な有機物を含んだ湖水をもつ小規模貯水池の調査から、無酸素状態の発生後、 $\text{NO}_3\text{-N}$ がゼロになった後に鉄の還元とともに、 $\text{NH}_4\text{-N}$ やリン酸態リンが直線的に増加するとした。また、硫化物は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の消失と同時に硫酸塩の還元による増加を観測した。調査ため池の底質は、人為汚染がほとんどない自然由来の有機物を含んだ土壌であるが、その有機物の分解により夏季の底層において貧酸素が生じている。それにより、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少と $\text{NH}_4\text{-N}$ の増加が観測されているが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度低下が顕著でなく、合わせて SO_4^{2-} の分布をみると、その減少がみられないことから、 Fe^{2+} の溶出や硫化物の生成などより進んだ嫌気化はほとんど生じていないことが推察される。

また、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は水深 0.1 m~1.0 m の範囲でも減少した。これは、内部生産、すなわち植物プランクトンの増殖による消費の可能性があるが、蛍光クロロフィルと TOC の鉛直分布をみるとほとんど変化がなく、明確な要因はわからない。

保存性が高い Na^+ の鉛直分布をみると全層にわたって濃度は均等であり、保存性の高いイオンの濃度分布からみると混合性が高いと言える。 Na^+ と類似の性質を持つものの、土壌への吸着の影響が大きい K^+ の鉛直分布をみると、水深 3.0 m~3.1 m において僅かであるが K^+ 濃度の上昇がみられる。これは底質表面からの溶出の影響である可能性がある。

以上を踏まえると、夏季に底層で観測される溶存態 ^{137}Cs は、底質中で発生する NH_4^+ と底質の交換態 ^{137}Cs とのイオン交換により溶出すると考えるのが自然である。このことは、既往研究の知見 (Evans et al., 1983; Kaminski et al., 1997; Funaki et al., 2020) と整合する。

溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布をみると、下層から水深 2.0 m までは濃度上昇がみられるものの、水深 1.0 m では濃度上昇はほとんどみられない。この分布と類似する鉛直プロファイルを持つ水質項目は、調査した中では $\text{NH}_4\text{-N}$ だけである。 $\text{NH}_4\text{-N}$ も下層から水深 2.0 m までは

濃度の明確な上昇がみられるが、実際に水深 1.0 m 以浅では大差ない。このことは、溶存態 ^{137}Cs の水中における存在が NH_4^+ の存在と密接に関係していることを示唆する。

すなわち、水深 2.0 m 以深の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の増分は、 NH_4^+ とある種の平衡状態を形成していて、 NH_4^+ が減少すると、不安定な溶存態 ^{137}Cs は、水中に共存する SS に吸着されると考えられないだろうか。水深 1.0 m では、懸濁態 ^{137}Cs の放射能濃度が 0.14 Bq L^{-1} から 0.49 Bq L^{-1} への上昇がみられ、これは、溶出により下層から上昇してきた溶存態 ^{137}Cs が、懸濁態に変化した影響を示している可能性がある。このとき、水深 1.0 m における SS の単位質量当たりの懸濁態 ^{137}Cs は、2014 年 7 月 25 日から 7 月 31 日にかけて 105 kBq kg^{-1} から 238 kBq kg^{-1} に上昇しており、溶存態 ^{137}Cs が SS に吸着された可能性を支持する。

それでも、水深 0.1 m ~ 1.0 m では、少ないながら安定して溶存態 ^{137}Cs が存在している。降雨の影響が明らかな 2014 年 7 月 18 日を除くと、5 月から 9 月までの溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度は、 0.10 Bq L^{-1} ~ 0.15 Bq L^{-1} 程度で安定していることが確認できる。このことは、水の動きが少ない平水時には、溶存態と懸濁態の ^{137}Cs 放射能濃度が平衡状態にあることが示唆される。そこで、溶存態および懸濁態 ^{137}Cs の平衡状態を表すパラメータである固液分配係数 K_d (式 4.1) をみる。

24 h 先行降雨量が 10 mm 以下で比較的水の動きが小さいと考えられる調査で得られた K_d を採水深度別で水温との関係で整理したのが図 4.19 である。SS 濃度が極端に低い試料があり、測定に誤差を含む可能性がある水深 0.1 m や、流入水の影響とともに鉛直方向の SS の濃度変化が大きく、場の環境が不安定な水深 3.0 m を除いた水深 1.0 m と水深 2.0 m では、 K_d は $5 \times 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ ~ $9 \times 10^6 \text{ L kg}^{-1}$ と比較的安定しており、水温との高い関係性が認められる。このことは比較的安定した水塊では、溶存態 ^{137}Cs と浮遊物質の ^{137}Cs 放射能濃度はほぼ平衡状態にあることを示しており、この関係は水温の影響を受けることが確認された。

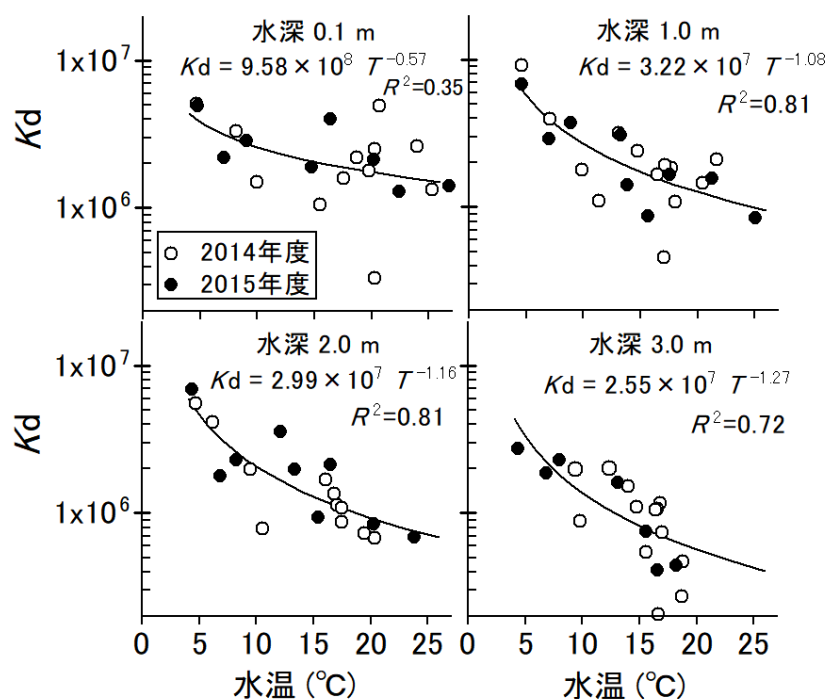


図 4.19 ため池の水の動きが比較的小さいと考えられる時期における水深別の K_d と水温との関係，図中の R^2 は重相関係数， T は水温 (°C)。

5) 降雨時の放射性セシウムの鉛直分布

図 4.20 に降雨時 (2014 年 7 月 18 日) の溶存態 ^{137}Cs と他の水質項目の鉛直分布を示す。表 4.12 によると，当日の先行降雨量は，24 h が 41 mm，72 h が 57 mm，水理的滞留時間は 2.0 d 程度であった。図には比較のため，降雨前 (7 月 11 日) と降雨後 (7 月 25 日) の鉛直分布を記している。降雨増水時の溶存態 ^{137}Cs の分布は平水時と比べると全体的に高くかつ水深方向に大きな変化がみられた。例えば，水深 0.1 m では 0.46 Bq L^{-1} ，水深 3.0 m では 0.88 Bq L^{-1} と平水時と比べると明らかに高かった。また，水深 3.0 m と水深 3.1 m の放射能濃度と比べると水深 3.0 m では放射能濃度が倍あり，濃度の逆転が生じている。さらに， $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は，表層を除いて水深 1 m~2 m の範囲で平水時とくらべて高くなっており，また，平水時にみられた $\text{NH}_4\text{-N}$ と溶存態 ^{137}Cs との関係性もみられない。これは，明らかに渓流水の流入によって池水が混合した影響であろう。

池水の鉛直混合が進むことにより、降雨時の水温の表層と下層との差は、 $1.7\text{ }^{\circ}\text{C}$ と小さくなり、SSも全体的に高くなっている（図4.20(b)）。ただし、底質直上の $3.0\text{ m}\sim 3.1\text{ m}$ では、DOの低下傾向や $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の上昇がみられるため、底質直上水の攪乱は限定的であると考えられる。同様の傾向は、24hの先行降雨量がそれぞれ 63.5 mm と 46.5 mm であった2015年7月16日と2015年9月7日においても確認された。したがって、この程度の降雨であれば、溶存態 ^{137}Cs の溶出は継続的に生じていると考えられる。一方、これらを超える降雨量の大きなイベント時の観測データはないため、どのような状況になるかは不明である。

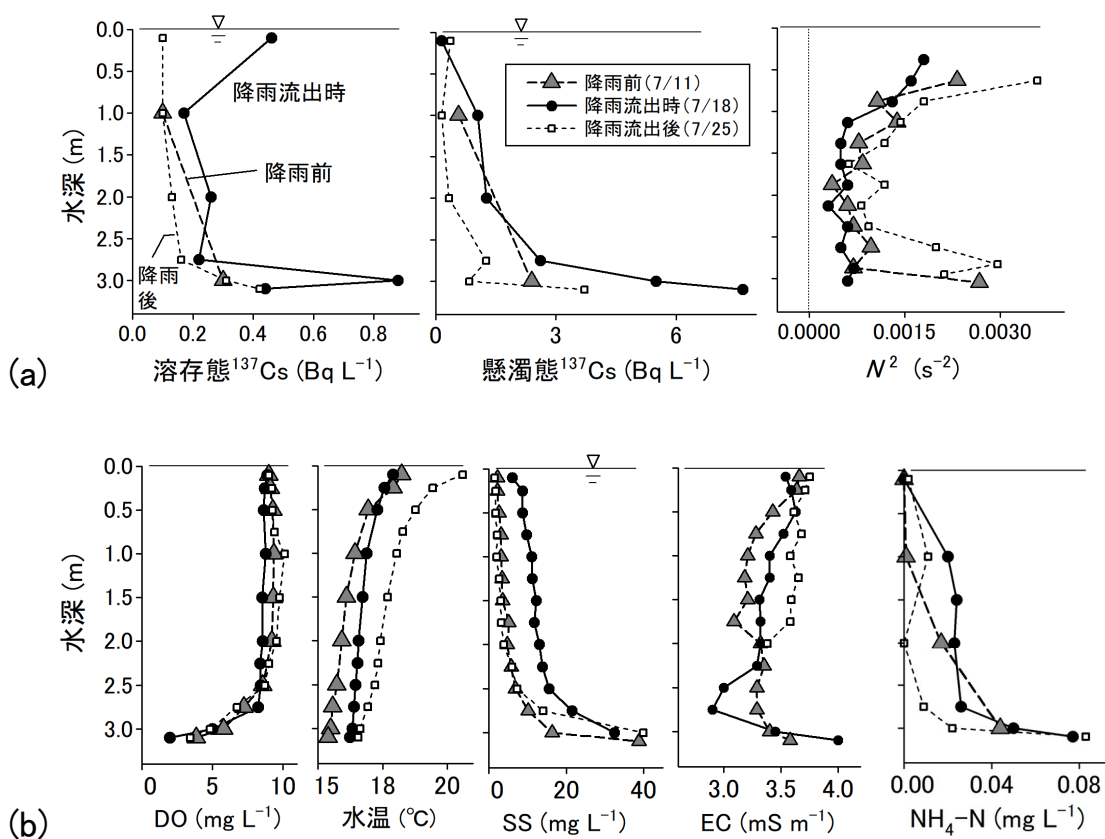


図 4.20 降雨流出時（2014年7月18日）とその前後（2014年7月11日および7月25日）における ^{137}Cs と関連する水質項目の鉛直分布

6) 夏季における底質からの溶存態 ^{137}Cs の溶出速度

それでは、調査ため池において夏季に生じている溶存態 ^{137}Cs の溶出速度はどれくらいであろうか。ここでは、ため池内の鉛直方向の水質の一様性を仮定して、4) で検討した2014年7月25日～31日の6日間の連続無降雨期間における溶存態 ^{137}Cs の変化から、盛夏時の溶出速度 $V_{e_j}(\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1})$ を次式で試算した。

$$V_{e_j} = \frac{El}{A_j} = \frac{\sum_i (V_i \cdot C_{inc_i})}{A_j} \quad (4.5)$$

ここで、 El は総溶出量 (kBq d^{-1})、 A_j は溶出範囲の基準面積 (m^2)、 i は鉛直方向に分割した層の番号、 V_i は各層に対応する水体積 (m^3)、 C_{inc_i} は各層の代表水深における溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の増加量 (Bq L^{-1}) である。溶出範囲の基準面積は次の3通りである；Case 1 ($j=1$): 満水時の水面積、Case 2 ($j=2$): 水深 2.5 m の水面積、Case 3 ($j=3$): 水深 3.0 m の水面積。溶出速度の算定結果を表 4.13 に示す。ため池の総面積を基準とすると、溶出速度は $12 \text{ Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ となり、溶出範囲を水深 2.5 m もしくは 3.0 m 以深であることを想定すると、それぞれ $32, 121 \text{ Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ となった。これらの値を、水深をごく浅く管理したため池における夏季の溶出速度 $310 \text{ Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$ (Kubota et al., 2022a) と比較すると、概ね 1/3 程度以下であった。

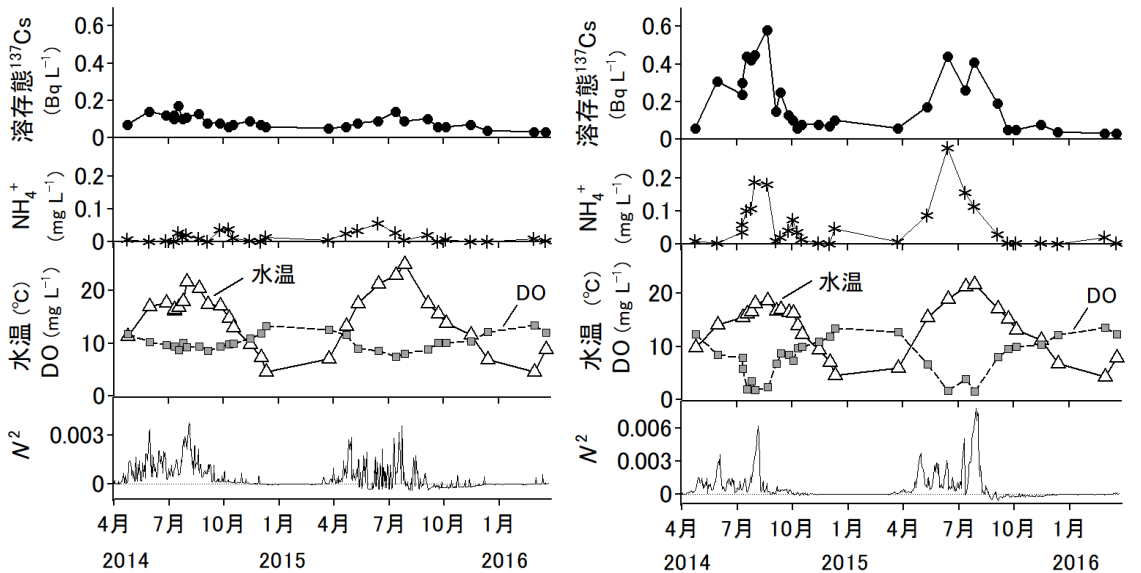
表 4.13 夏季の無降雨期間（6日間）における底質からの ^{137}Cs 溶出速度の推定

i	水深の範囲 m	代表水深 m	溶存態 ^{137}Cs の増加量 C_{inc_i} Bq L^{-1}	水の 体積 V_i m^3	総量 kBq d^{-1}	^{137}Cs の溶出速度		
						ケース 1: 全池面積 当たり	ケース 2: 水深 2.5m 以深 の面積を対象 とした場合	ケース 3: 水深 3m 以深 の面積を対象 とした場合
						$\text{Bq m}^{-2} \text{d}^{-1}$		
1	0.0–0.5	0.10	0.001	1981	0.3			
2	0.5–1.5	1.00	0.016	2982	8.0			
3	1.5–2.6	2.00	0.085	2079	29.5			
4	2.6–2.9	2.75	0.097	293	4.7			
5	2.9–3.05	3.00	0.055	107	0.98			
6	3.05–3.4	3.10	0.036	143	0.86			
Total					44	12	32	121

(4) 考察

1) ため池底質からの ^{137}Cs の溶出とその条件

図 4.21 は、水深 1.0 m と底質直上水の 2 年間の水質変化をみたものである。底質直上のため池最深部では、夏季に水温の上昇に伴う NH_4^+ の増加と DO の低下がみられ、それに対応して、溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の上昇がみられる。一方、水深 1.0 m では、水温が底層より高くなるものの、 NH_4^+ 濃度の上昇は限定的で、DO の低下もみられなかった。その結果、溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は、最高でも 0.17 Bq L^{-1} であり、最下層の最大 0.58 Bq L^{-1} の 30% 弱にとどまることがわかった。



(a) 水深 1.0 m

(b) 底質直上部, ブレントーバイサラ振動数のみ水深 2.5 m 地点の値.

図 4.21 調査期間を通じた水深 1.0 m と最深採水点における溶存態 ^{137}Cs と関連水質ならびにブルント・バイサラ振動数 (N^2) の経時変化

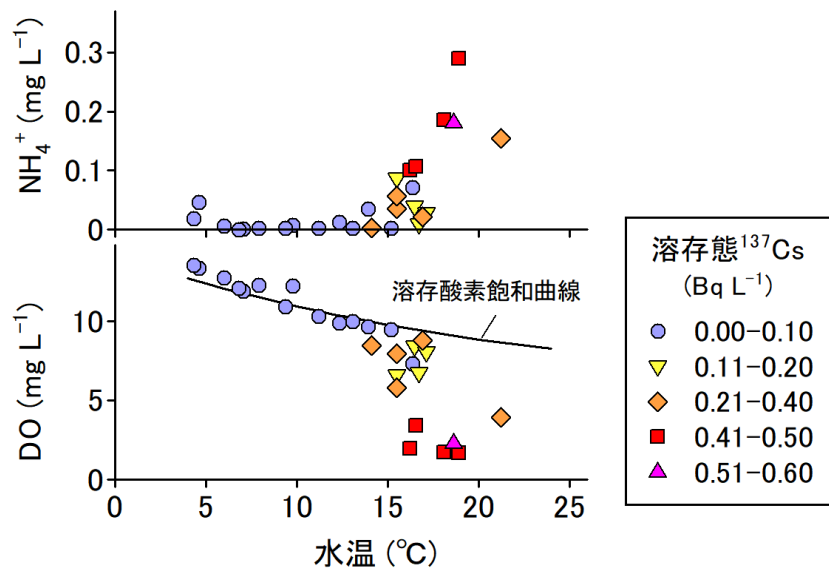


図 4.22 底質直上水における溶存態 ^{137}Cs と水温，溶存酸素および NH_4^+ との関係

図 4.22 は，底質直上層における水温と DO および NH_4^+ ならびに溶存態 ^{137}Cs との関係を示したものである。水温が $4\text{ }^\circ\text{C}\sim 14\text{ }^\circ\text{C}$ 前後までは，DO はほぼ飽和しており，その範囲の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は， 0.10 Bq L^{-1} 以下であったが，水温が $15\text{ }^\circ\text{C}$ を超えるとほとんど例外なく DO の減少とともに溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の上昇がみられた。

本ため池では，ため池底質から明らかに夏季にピークを持つ溶存態 ^{137}Cs の溶出の季節変動がみられた。これは，先にみたように，底質表面または底質中の有機物分解により発生した NH_4^+ とのイオン交換による交換態 ^{137}Cs の脱着によるものと考えられる。底質表面に堆積した有機懸濁物は，年代とともに，さらにその上部に堆積したもののために圧密を受け，また生物作用を受けて分解していく (Kamiyama et al., 1977) 。 Kamiyama et al. (1978) は，底泥の温度に季節変動が見られるような水深の浅い水域では，底泥中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度もその温度変動に伴って変動し，夏期に高く冬期に低くなり，一方，泥温度が年間を通じてほぼ一定であるような水深の深い水域では底泥中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は，年間を通じてほぼ一定であった，としている。同様に Wen et al. (2022) は，水深の浅い湖を対象に DIN の溶出を調べ，高温条件下で堆積物からの DIN の放出が大きくなることを示した。したがって，Vorse 湖 (Kaminski et al., 1997) のように水生植物が関与するなどの特殊な条件を除くと，本ため池のように，底質の温度に季節変化がみられるような水深が浅い水域では，底

質中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度も、その温度変化に伴って夏季に高く、冬季に低くなることから、 ^{137}Cs の溶出に明瞭な季節性が見いだされるものと考えられる。

2) 浅い小規模ため池における成層の特徴と貯水池における溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布

本節の調査ため池のように、小規模で最大水深が 3 m 程度の浅いため池では、春から初秋にかけての受熱期においても明瞭な水温躍層は形成されず、深い湖沼で観測されるような水温急変部を有する躍層は観察されない。一般に、水温躍層が形成された湖沼では、水温躍層より深部の深水層 (hypolimnion) では乱れや水質混合が小さく、上下層間の溶存物質の交換も制限されるのに対して、上層は混合層 (Mixed-layer) と呼ばれ混合しやすい環境にある。それでは、最大水深が 3 m 程度と浅く、受熱期においても明瞭な水温躍層が形成されないような不完全な成層は物質動態にどのように影響するだろうか。

一般に、浅い湖沼では水は鉛直方向によく混合していると仮定されることが多い (Condie and Webster, 2002)。実際に、本ため池では、 Na^+ のような保存性イオンの鉛直分布を見る限り、全層がよく混合しているといえる。しかし、水理的滞留時間が 9 d 程度あれば、水そのものはある程度入れ替わっても、比較的不安定な NH_4^+ や DO、そして溶存態 ^{137}Cs には、明瞭な放射能濃度の鉛直分布が形成された。

ブルント・バイサラ振動数 N^2 の鉛直分布をみると、夏季の無降雨期間には (図 4.18 (a))、成層の安定性が増す方向に変化し、降雨時には安定性が低下し (図 4.20 (a))、そして、循環期には数値はほぼ 0 を示した (図 4.21)。水深 1.0 m と 2.5 m の夏季における N^2 を比較すると (図 4.21)、まず 1.0 m では夏季において平均的には正值をとる期間が長いものの、変動が大きく一部で最低値が負になる期間も見られる。特に、2015 年 6 月や 7 月中旬以降は断続的に負値がみられ鉛直混合が生じているものと考えられる。一方、2.5 m では 1.0 m と比べると全体的に値が高く変動も小さい。そして、2014 年では 4 月中旬から 9 月末まで、2015 年においては 4 月中旬から 8 月中旬まで安定して正值をとる。このように、明瞭な水温躍層が形成されない条件であっても、夏季の下層では、より安定した成層が形成されていることがわかった。

それでは、どのような条件で成層を成す鉛直分布が乱されるだろうか。比較的規模が小さい湖における水柱の攪乱要因には、豪雨による流入の影響 (Laborde et al., 2010)、冷

却による対流や風による剪断力の影響 (Read et al., 2012) がある。Tuan et al., (2009) は、平均水深が 2.5 m の浅く小規模の貯水池で実施した集中観測から、涼しい時間帯には、熱対流が湖沼における混合層深度の発達を支配する主要な要因であることを示した。同様に、Read et al. (2012) は、40 の温帯湖の観測データから小規模な湖沼では対流が風による剪断力よりも一貫して大きな攪乱要因であったことを指摘した。また、亜熱帯の高標高に位置する台湾の浅い湖 (最大水深 4.5 m) では、強風と豪雨を伴う台風と晩秋から冬にかけて生じる水中の冷却が湖水の鉛直混合の要因であることを指摘した (Kimura et al., 2012)。

以上を踏まえると、2015 年 8 月下旬から 9 月中旬にかけて、深さ 1.0 m だけでなく 2.5 m においても、 N^2 が断続的に負値を示した要因は、2015 年 8 月 27 日～9 月 1 日の降雨 (総降雨量 86 mm, 平均滞留時間 4.3 d) ならびに同年 9 月 6 日～20 日の降雨 (総降雨量 500 mm, 平均滞留時間 2.4 d) という大きな降雨イベントで生じた流入による池水の攪乱の影響であったと判断される。

表 4.14 に、湖沼や貯水池で測定された溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布について、既往研究と本研究の比較を示す。はじめに、水深が深い貯水池についてみる。福島県の大柿ダムでは、水深が 27 m ～ 41 m の範囲にあるが、夏季には明瞭な水温躍層が形成されており、それにあわせて溶存態 ^{137}Cs は、底層では $0.4 \text{ Bq L}^{-1} \sim 0.8 \text{ Bq L}^{-1}$ と高いが、表層では $0.15 \text{ Bq L}^{-1} \sim 0.18 \text{ Bq L}^{-1}$ と低く差がみられた。このような傾向は、Par pond (Evans et al., 1983) や横川ダム (Funaki et al., 2022) でも確認される。一方、冬季には大柿ダムにおいて明瞭な水温躍層は見られないものの、貧酸素水塊が存在した 2018 年 1 月には底層で 0.43 Bq L^{-1} とやや高く、貧酸素水塊がみられない条件では 0.15 Bq L^{-1} と低かった。水深が深い貯水池では、冬季の表層水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は、底層の半分以下または半分程度と表層の濃度とは差異がみられた。

一方、明瞭な水温躍層が存在しない本調査ため池でも、夏季には深い貯水池と同様に、表層と底層では大きな濃度差が観察されたが、循環期以降、冬季には、表層と底層の濃度差はほとんどなくなった。ここで、夏季の表層水と底層水における溶存態 ^{137}Cs の関係は、水深の深い貯水池と水深が 3 m 程度の浅い貯水池で濃度のレンジを含めて似通っていることは興味深い。また、平均水深がさらに浅い Vorsee 湖 (Kaminski et al., 1997) , 灌漑貯水池 (Kubota et al., 2022a) では、鉛直方向の完全混合であった。

以上のように、明瞭な水温躍層の存在は、上層と下層の物質動態を大きく隔てるものであるが、溶存態 ^{137}Cs の動態に限れば、明瞭な水温躍層が存在しなくとも、貧酸素水塊の存在や比較的小さい水温勾配に起因する緩やかな密度成層が、溶存態 ^{137}Cs の移動範囲を制限するものと考えられる。

3) 農業用水としての利用性と今後の課題

これまでみてきたように、FDNPPの事故から3年～4年という比較的短期間後の調査にもかかわらず、調査ため池の表層水からは、生物利用性が高い溶存態 ^{137}Cs がコメの吸収による影響が懸念される放射能濃度で検出されることはなかった。このことは、本研究で検討を行ったように、3 m程度の最大水深により夏季に形成される緩やかな水温変化に伴う相対的に弱い密度成層が、底質から発生する溶存態 ^{137}Cs の上昇を抑制する効果と、雲母類が多い地質の2点が大きく寄与していると考えられる。そのため、灌漑期間と重なる夏季に、表層水を利用する上では、コメに含まれる ^{137}Cs 放射能濃度が食品基準値を超えるリスクはほとんどないと考えられる。また、秋以降の循環期に入ると、全層が混合するため、もし底質から溶出した ^{137}Cs が存在したとしても、希釈されるため放射能濃度が高まるリスクはさらに小さい。

しかし、夏季において水利用が進み、ため池の水位が低下したときに溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度がどの程度上昇するかという問題は未解決である。水位を極端に下げた場合、貯水池は ^{137}Cs のシンクではなく、ソースになるケース (Kubota et al., 2022a) が報告されており、水位を下げていった場合、底質の影響が表層水の放射能濃度に及ぶことは明らかである。言い換えると、約 3 m の水位をどこまで下げると表層水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度に影響を与えるようになるか、という水位管理による水質への影響の検討は今後の課題である。

表 4.14 貯水池の特徴と表層および底層の溶存態 ¹³⁷Cs 放射能濃度

名称	貯水量 (満水時) 1000 m ³	地質**	¹³⁷ Cs 沈着量 MBq m ⁻²	調査時期	水深 m	水温躍層 の位置	貧酸素 水塊 の位置	水理学的 滞留時間 d	水温		溶存態 ¹³⁷ Cs		引用文献
									表層 °C	底層 °C	表層水 Bq L ⁻¹	底層水 Bq L ⁻¹	
夏季	Nagadoro	G	2.0	2014-2015 年度 (6月~8月)	3.4	明瞭な躍層は ない	部分的	26	23.2 (20-27)	17.6 (16-21)	0.10 (0.09-0.11)	0.39 (0.24-0.58)	本研究
	Par pond	S	-	1979年9月	17	11-14 m	11 m 以深		24	16	0.26	0.52	Evans et al. (1983)
				2017年7月	37	1-3 m	34 m 以深		24.5	5	0.18	0.40	Funaki et al. (2020)
	Ogaki	G	6.1	2018年9月	27	1-3 m	26 m 以深		19.5	5	0.13	0.33	Funaki et al. (2020)
				2019年7月	39.5	1-2, 15 m	38 m 以深		22	5	0.15	0.83	Funaki et al. (2022)
	Yokokawa	G	1.9	2019年7月	51	28 m	44 m 以深		22	4-6	0.23	0.46	Funaki et al. (2022)
	Vorsee	O	0.3	1991年7月	0.6***	躍層はない	なし	88	24		0.08		Kaminski et al. (1997)
	An irrigation reservoir	S,M	3.3	2016年7月	0.3	躍層はない	なし	2	28		3.6		Kubota et al. (2022a)
冬季	Nagadoro	G	2.0	2014-2015 年度 (12月~3月)	3.4	躍層はない	なし	11	6.7 (4.6-9.0)	6.1 (4.3-7.9)	0.04 (0.03-0.07)	0.05 (0.03-0.10)	本研究
	Ogaki	G	6.1	2017年1月	41	躍層はない	38 m 以深		6	5	0.17	0.43	Funaki et al. (2020)
				2018年1月	25	躍層はない	なし		3	4	0.08	0.15	Funaki et al. (2020)
	Vorsee	D	0.3	1991年1月	0.6***	躍層はない	なし	88	1		0.31		Kaminski et al. (1997)
	An irrigation reservoir	S,M	3.3	2017年1月	0.3	躍層はない	なし	2	4		1.1		Kubota et al.(2022a)

* 調査時

** 地質 : G: 花崗岩質, S: 砂もしくは砂岩, M: 泥岩, D: ダイアミクトン (diamicton : 地すべりや氷河の活動などによって運搬・堆積した堆積物)

*** 平均水深

(5) 小括

本節では、 ^{137}Cs の沈着量が比較的多い地区に立地する最大水深が約3 mの浅い小規模ため池において、水中の ^{137}Cs や他の水質成分の鉛直分布を調べ、生物利用性放射性セシウムの動態を明らかにすることで農業用水として使用する際のリスクを検討した。その結果、以下の知見が得られた。

- ア 平水時における ^{137}Cs の鉛直分布は、夏季には、溶存態 ^{137}Cs 、懸濁態 ^{137}Cs とも基本的に下層の放射能濃度が高い分布を示しており、循環期（9月下旬～3月）には、両成分とも放射能濃度が一様化した。
- イ 水深が3 m程度と比較的浅く、明瞭な水温躍層が形成されていなくても、夏季の平水時には緩やかな密度成層が形成されており、成層の安定性は下層でより高い。
- ウ 夏季の底質直上水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の上昇は、底質中の交換態Csと NH_4^+ とのイオン交換による溶出が主因であり、その際、水温が約15度以上、低い溶存酸素ならびに NH_4^+ の濃度上昇の条件が揃った時のみ溶存態 ^{137}Cs の上昇がみられた。
- エ 底層の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度が高い時期においても、下層の濃度上昇は水深2 m以深までにとどまり、水深1 m以浅では濃度上昇はほとんどみられなかった。
- オ 盛夏期のため池からの溶存態 ^{137}Cs の溶出速度は、満水時の水面積を基準にすると平均 $12 \text{ Bq m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ 、そして実際に溶出していると考えられる底質の範囲を限定すると、 $32\text{--}121 \text{ Bq m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ 程度と推定された。
- カ 夏季の降雨流出時の溶存態 ^{137}Cs の鉛直分布は、池水の混合により成層が乱れ、表層水からも比較的高い溶存態 ^{137}Cs が検出された。
- キ ため池に流入する懸濁物質、沈降粒子および底質に含まれる交換態 ^{137}Cs の割合は最大5%程度であり、 ^{137}Cs の固定能が高い雲母類が多い地質・土壌が溶存態 ^{137}Cs の溶出リスクの低減に貢献していることが推察された。

以上のように、花崗岩質の地域に立地し、水深が3 m程度に保たれている比較的小規模ため池では、夏季の水温上昇期に底質からの溶存態 ^{137}Cs の溶出がみられるものの降

雨時を除くと表層では溶存態 ^{137}Cs の放射能濃度が 0.2 Bq L^{-1} を超えて高くなることはなく、ため池の農業水利用に際して平水時に表層取水を行う限り水稻生産への水中の放射性セシウムの影響はほとんどない、と結論された。

第4節 要約

本章では、農業用水路とため池における放射性セシウムの動態について検討した。

農業用水路で生じる堆積物は、幹線水路では洪水吐に付帯して設置される掘込部や流速が低下する下流の支線水路などでみられ、特に後者では当初、放射性物質汚染対処特措法の対象となる 8 kBq kg^{-1} を超える比較的高い放射性セシウム放射能濃度を有する堆積物がみられた。しかし、水路堆積物に含まれる放射性セシウム放射能濃度の経年変化を見ると、濃度は自然減衰を大きく超えて低減し、 8 kBq kg^{-1} を超える堆積物はその後、調査地区ではほとんどみられなくなった。また、水路除染が実施された地区において除染後に新規に生じた堆積物の放射性セシウム放射能濃度は、下流に向かって徐々に濃度が高まる傾向がみられた。

また、灌漑用貯水池では、生物利用性が高い溶存態放射性セシウムを含む放射性セシウムの動態を把握することが重要な課題である。そこでまず、低水位で管理されている灌漑用貯水池からの ^{137}Cs 供給フラックスの推定を試みた。その結果、全 ^{137}Cs 、懸濁態 ^{137}Cs 、溶存態 ^{137}Cs の年間供給フラックスはすべて正であり、貯水池が ^{137}Cs の供給源として機能していることがわかった。貯水池における ^{137}Cs の供給元は堆積物であり、懸濁態 ^{137}Cs は再浮遊により、そして溶存態 ^{137}Cs は脱着により供給されるものと考えられた。流出水中の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度は水温と正の相関があり、冬季には流入水の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度と等しく、流出水の濃度は夏季に増加するという季節変動を示した。そのため、堆積物からの溶存態 ^{137}Cs の脱着は生物活動によって発生する NH_4^+ などとの陽イオン交換によるものと推察された。また、流出水中の懸濁態 ^{137}Cs の担体は、デトリタスや植物プランクトンを中心とした有機物と粘土を含む微細な鉱物性土壌粒子であると考えられた。以上のことから、 ^{137}Cs 放射能濃度が高い底質を除去することは、放射性セシウムの流出を抑

制することに貢献し、淡水資源の回復や農業用水の利用再開に有効であると考えられる。

また、福島事故後、ダムを中心とした比較的大きな貯水池では、詳細な放射性セシウムの動態調査が行われてきたが、これまで、小規模ため池を対象とした研究は限定的であった。そのため、山間地に立地する小規模ため池を対象として、溶存態 ^{137}Cs の湖内の鉛直分布に着目して動態把握を行うとともに、農業用水の利用上のリスクを検討した。その結果、夏季を中心として、水温が約 $15\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以上、 NH_4^+ の濃度上昇と DO の低下が揃った条件においてのみ、ため池底質から溶存態 ^{137}Cs の溶出が観測された。しかし、平水時には水深 1.0 m 以浅の表層では底層で生じた溶存態 ^{137}Cs の影響による濃度上昇はほとんどみられなかった。このように明瞭な水温躍層がみられない水深が 3 m 程度の浅い貯水池においても、夏季は下層で安定的な密度成層が形成され、底層から溶出する溶存態 ^{137}Cs の表層への移行が制限された。また、調査ため池に存在する懸濁物質や底質に含まれる交換態 ^{137}Cs の割合は最大 5% 程度であり、 ^{137}Cs の固定能が高い雲母類が多い地質・土壌が溶存態 ^{137}Cs の溶出リスクの低減に貢献したことが推察された。これらを踏まえると同様の条件を有するため池では、平水時に表層水を利用する限り、用水の利用が水稻の ^{137}Cs の吸収リスクを高めることはないと考えられた。

第5章 総合考察

第1節 本研究のまとめ

本研究では、2011年3月の東日本大震災に起因する東京電力福島第一原子力発電所における放射性物質の放出事故と関連して、農業用水路とため池の農業水利施設における放射性セシウムの動態解明ならびに水田における放射性セシウムの吸収抑制に重要なカリウムの動態に関する実験的研究に取り組んだ。

第1章では、原発事故の概要と農村地域における放射性物質による汚染への対応の経過と、水系における放射性セシウムの動態に関する既往研究を概説した。そして、本研究の目的を記すとともに論文の構成を示した。

第2章では、水中の放射性セシウムの分析法について記すとともに、モニタリング手法について記した。福島の前被災地では、帰還困難区域など立入が制限されている場所が少なくないため、遠隔システムに任意時間の採水機能を追加した遠隔採水システムを開発するとともに、濁度観測による放射性セシウムの連続測定を用いた水中の放射性セシウムのモニタリング手法について記した。

第3章では、水田における放射性セシウムの動態に関してレビューを行うとともに、水稲作における放射性セシウムの吸収抑制に重要な役割を果たすカリウムの土壌からの溶脱特性に関する研究について記した。実験対象の水田土壌では、浸透に伴うカリウムの溶脱または蓄積は、浸透水中の主要陽イオン濃度と密接に関係していて、特に PAR（カリウム吸着比）の指標によりカリウムの溶脱や蓄積が説明できることが明らかになった。このことは、土壌物理または土壌化学の基礎的知見に相当すると考えられるが、これまでほとんど検討されていなかった。ここで得られた知見は、近い将来、カリ肥料の溶脱抑制や灌漑水によるカリウム供給能の評価の進展につながるものと考えられる。

第4章では、農業水利施設における放射性セシウムの動態に関する調査研究について記した。

第1節では、農業用水路への放射性セシウムの堆積実態について検討した。当初、農業用水路は、国による除染の対象から外れており、水路への堆積物に含まれる放射性セシウ

ムの扱いが懸念された。その実態を明らかにするため、本研究では上流から下流までを包含する一つの水路システムを対象として、線量や堆積物中の放射性セシウム放射能濃度を調べた。その結果、幹線水路におけるほとんどの堆積物の放射性セシウム放射能濃度は低かったが、幹線水路の掘込部の一部や、流速が低下する支流部では、堆積物中の放射性セシウム放射能濃度が高まる傾向がみられた。しかし、経年変化を調べた結果、放射性セシウムの自然減衰を超えて、堆積物中の放射性セシウム放射能濃度が減少する傾向が把握された。

次に、第2節では福島第一原子力発電所から約5 kmの距離にあり比較的放射性セシウムの沈着量が多く、水位を低く管理しているため池における放射性セシウムの動態を報告した。本ため池が立地する大熊町は、福島第一原子力発電所の立地自治体の一つであるが、地震の被害を受けるとともに、原子力災害により全町避難となっており、ため池の管理ができないため、地震後は斜樋を開放し、ため池の水位は最低位で管理されていた。ここで流入水と流出水の水質の比較を行った結果、平水時におけるため池が溶存態ならびに懸濁態の放射性セシウムに対してソースとして働いていることがわかった。これまで貯水池や湖沼は放射性セシウムのシンクとして機能するといわれてきたが、水位を大きく低下させた場合、定説とは異なり溶存態ならびに懸濁態の放射性セシウムの流出源となる特異な事例を提示することができた。また、流出水に含まれる溶存態放射性セシウムの放射能濃度と水温に高い相関性が認められ、ため池からの放射性セシウムの溶出が水温に依存することが明らかとなった。

第3節では、阿武隈山地山中に立地する小規模ため池を対象として、水質の鉛直分布の観測結果から溶存態放射性セシウムの動態を考察したものである。2年間の観測結果から、夏季の平水時には、底質からの溶存態放射性セシウムの溶出が観測され、それは、水温が15℃以上、溶存酸素の低下とアンモニウムイオンとの共存下でのみみられた。また、水深1 mより浅い範囲では、夏季においても溶存態放射性セシウム放射能濃度の上昇はほとんどみられなかった。一方、降雨流出時には、池の水の攪拌により浅層においても比較的高い放射性セシウム放射能濃度が検出された。これらのことから、3 m程度の水深を持つため池では、平水時に、夏季に形成される緩やかな水温変化が作り出す密度成層が、底層で生成される溶存態放射性セシウムの上方への移動を制限していることが明らかになった。

このことは、表層まで貧酸素化の進行が進みアンモニウムイオンが検出されるような状況にならない限り、ため池表層水の溶存態放射性セシウム放射能濃度が高まるリスクが小さいことを示している。

最後に本研究の全体の総括を行う。本研究の目的は、被災地における水田農業の再開に向けて安全安心な農業水利施設（用水路とため池）の利用に資するため、放射性セシウムの動態を明らかにするとともに、水稻による放射性セシウム吸収抑制に重要なカリウムの水田土壌中の溶脱特性を明らかにすることである。本研究で得られた知見をまとめると以下の点に集約される。

ア 水中の放射性セシウム放射能濃度を観測するための濁度センサーを用いて間接的に推定する方法は、溶存態放射性セシウムを検知できないという問題はあるが、簡便・低コストで実用的である。遠隔採水システムと併用することで遠隔地においても省力的効果的に検証データを取ることができ、水中の放射性セシウムの実用的なモニタリングが可能である。

イ 放射性セシウムの沈着量が比較的多い地区で実施された水稻の栽培試験において、用水の影響を調べたが、カリウム増肥による放射性セシウムの吸収抑制対策を行う限り、水中の溶存態放射性セシウムや全放射性セシウムによるコメの放射性セシウム放射能濃度への影響はみられなかった。

ウ 流入水の浸透により形成される水田土壌中の交換性カリウムの平衡含量は、浸透水中の K^+ 濃度と主要陽イオンの構成比の影響を受ける。そして、カリウム吸着比（PAR）が異なる水質の浸透水により形成される交換性カリウム含量の指標となる。

エ 農業用水路の堆積物中の放射性セシウムは、幹線水路よりも流速が小さくなる下流の支線水路で高くなる傾向が見られた。また、放射性セシウム放射能濃度の経年変化は、自然減衰と比較すると大きな濃度低下が見られた。

オ 一般に、貯水池は放射性セシウムのシンクとして働くとみなされているが、本研究のように、水位をごく低く管理した場合には、放射性セシウムのソースとして機能するケースがあることが示された。そのとき、放射性セシウムの起源は底質であるので、高濃度の放射性セシウムを含む底質を除去することで、水中の溶存態放射性セシウム放射能濃度の低減が図られることが推察された。

カ 小型の谷型ため池における水質の鉛直分布の観測から、夏季に底層の水温が 15 °C 以上、溶存酸素濃度の低下、 NH_4^+ イオン濃度の上昇が見られたときのみ底質からの ^{137}Cs の溶出が確認された。また、雲母を多く含む花崗岩質の地質が放射性セシウムの固定に寄与していることが推察された。これらのことより、最大水深が 3 m 程度確保されている場合、夏場においても平水時の表層水中の溶存態 ^{137}Cs 放射能濃度の上昇はほとんどみられないため、表層水を利用する限り灌漑水利用のリスクは低いと考えられた。

第 2 節 残された課題

これまで東京電力福島第一原子力発電所の事故に関連して、農業用水と水中の放射性セシウムについて、緊急的な対応も含めてさまざまな角度から取り組みを行ってきた。水稲作に関して、その結論について総じて言えば、2012 年以降実施されたカリ増肥等によるイネによる放射性セシウムの吸収抑制対策の実施のもとで、水に含まれる放射性セシウムによるコメの放射能濃度への影響はほとんどみられなかったといえる。

塩沢（2012）は、調査地域の用水の放射性セシウム放射能濃度は最大でも 1 Bq kg^{-1} のレベルで低濃度であること、ならびに、用水の放射性セシウム放射能濃度と灌漑水量ならびに移行係数の想定から、多めに見積もっても玄米の放射性セシウム放射能濃度に与える影響は問題にならないとした。その後、用水を通じた水田への放射性セシウムの動態調査の結果は、概ね塩沢の予測に沿ったものになっている。これは、増水時などの SS 濃度が高い時期を除くと用水中の放射性セシウム放射能濃度が低いこと、そして福島の中通りや浜通りの水田では河川沿いの一部を除くと細粒質～中粒質のグライ土を含む低地土が広く分布しているため、減水深が限定的で灌漑水量が多くないことも要因となっている。

一方、帰還困難区域内のため池の一部では、事故後 10 年近くを経てもなお、 1 Bq L^{-1} を超える溶存態 ^{137}Cs が検出されている（農林水産省東北農政局，2020）。環境水中で溶存態放射性セシウムが経年的に数 Bq L^{-1} の放射能濃度で存在し続けることは、当初の予想とは異なるものである。これは、高濃度の放射性セシウムを含むため池の底質除去を進めることで解消するものと考えられるが、この現象に関する科学的な理解が十分に進んでいると

はいえない。

また、水稻の現地実証試験において、水に含まれる放射性セシウムが玄米にほとんど影響しないように見えるのは、カリ増肥による放射性セシウム吸収抑制対策の効果である。これまでのところ、カリ増肥に要する経費は復興庁の東日本大震災復興特別会計に基づいた福島県営農再開支援事業により賄われているが、将来的な支援の打切りも想定される。放射性セシウムの沈着量の多い集水域を持つ地域では、当面の間、カリ増肥を適切に実施するとともに、濁水流入防止など用水管理に注意を払うことが必要である。

今後、これまでに得られた農業水利系における放射性セシウムの動態と影響について科学的知見を整理し、国際的に発信し記録を残すことが重要であると考えられる。

第3節 福島を超えて（おわりに）

原子力災害は、またいつか起こる可能性がある。それが起こらないことを願うがそれはわからない。その日に備えてこれまでの経験を知見とし、それを確実に残しておくことが、その場にいたものの役目である。

地球温暖化とそれによる人類や生態系への影響が広く認識されるにつれて化石燃料依存への風当たりは強まり、自然エネルギーの利用技術の確立と普及までの間、長い目でみると一時的なものになるかもしれないが、原子力利用への依存が高まる可能性がある。

アジアモンスーン地域における初めての大規模な原子力災害が日本で発生してしまった。このことに対してさまざま思いがあるが、この場で詳らかに記すことでもあるまい。しかし、その思いを一言に凝縮すると「残念」という言葉に尽きる。

原発事故被災地では、いまもなお自宅に戻れない人々が多い。除染が進み、たとえ人が戻れるようになったとしても、ふるさとの地から放射性物質がなくなることはない。以前のように、森や里山の実りを手放して享受できる生活は長い年月戻ることはない。

しかし、水に関していえば、内水面漁業への影響を除くと淡水への影響は比較的小さかったといえる。ほとんどの河川水や貯水池の水は、多少の放射性セシウムを含んでいても水稻作への影響では、問題になるような放射能濃度で検出されることはなかった。例外は、

第4章2節でみたような東京電力福島第一原子力発電所に比較的近い未除染のため池である。本論文で扱ったため池以外においても、いまだに 1 Bq L^{-1} を超えるような高い溶存態放射性セシウムが検出されるため池がある。これには、浜通り地方の丘陵と沖積地が、雲母類を多く含む阿武隈山地の地質と異なり有機物が多い環境であることが影響していると考えられる。それでも、高濃度の放射性セシウムを含む底質を除去する除染作業を行うことで水中の溶存態放射性セシウムの放射能濃度が低下することを示唆する結果が得られた。

今回の災害対応の研究の一端を担う間に、個人的にいくつかの確信のようなものが得られた。それは、まずは、非常時における円滑な協力体制である。普段、研究や行政に関わらず多くの組織は縦割りである。普段は反目しあい、円滑に物事が進まないことも多い。しかし、今回のような非常時には、その縦割りの壁は低くなる。普段は縦割り組織の改善を望む声も少なくないが、事を非常時に限ると日本の多くの組織では、協力体制が築かれ、目的のため連携した行動がとられる。

そして、これは多くの日本人の気質に依るものであろうが、気が遠くなるような膨大な作業であっても、長期にわたる計画を立て、それを着実に実行していく。被災地に10年あまり通う随に、町や集落、そして農地における果てしないように思われる除染作業の進捗を見る中で、改めて日本人の特性に触れた気がした。

災害大国である日本では、これからも確実に大災害に見舞われるだろう。しかし、その都度、日本は立ち上がるであろうという確信が得られたことが個人的に大きな収穫であった。

広く水稲作が営まれるアジアモンスーン地域において、日本も含めて複数の国で原子力発電所が稼働し、多くの国で導入が計画されている。今後、福島を超えて将来にわたって、本研究の成果が生かされるような日が来ないことを祈念しつつ本論文を終えたい。

謝 辞

本研究は、著者が2012年4月に国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構・農村工学研究所（当時）への異動後、約10年余りの間に、東日本大震災への災害対応の一環として多くの同僚や共同研究者、補助スタッフとともに取り組んだ研究です。特に多くの現場を共にした農研機構東北農業研究センターの申文浩氏（現福島大学）と錦織達啓氏の協力と尽力に支えられました。また、共同研究者として、農研機構農村工学研究部門の濱田康治氏、人見忠良氏、田中良和氏、宮津進氏（現新潟大学）、樽屋啓之氏（現北里大学）、農研機構東北農業研究センターの藤村恵人氏、農研機構農業環境研究部門の万福裕造氏、農研機構食品研究部門の濱松潮香氏（現農研機構本部）、八戸真弓氏、元農研機構の増田亮一氏、福島大学の塚田祥文先生、（株）ウイジンの田淵尚一氏には格段のご協力とご支援を頂きました。このほか、農研機構に加えて他機関、大学等を含めて多くの研究者のご助言やご支援を賜りました。

また、放射能分析では元農研機構の石田聡氏（現農業農村工学会）に、プロジェクト研究への参画にあたっては、農林水産省技術会議事務局に加えて、農研機構の信濃卓郎氏（現北海道大学）、荒尾知人氏、太田健氏らにお世話になりました。

水質分析や試料の処理においては、農研機構農村工学研究部門の富澤章子氏と元契約職員の高島真智子氏らに、文献整理では新井亜希子氏にご助力いただきました。さらに、観測機器の製作や設置ならびに現地調査にあたっては、農研機構農村工学研究部門の野口克行氏（元）と寺川浄司氏（元）、井沢憲行氏、農研機構東北農業研究センターの村田修氏（元）、三浦光浩氏（元）、島田貴志氏（現中央技術支援センター）、高橋明浩氏（現連絡調整課）、丹治順史氏（現中央技術支援センター）、伊藤聖一氏、宍戸力雄氏、櫻井貴雄氏（現中央技術支援センター）、吉田聖徳氏、菅正氏、小山貴晟氏（現中央技術支援センター）、平江水紀氏、太田貴生氏らに多大なご支援をいただきました。

被災地における円滑な現地調査や圃場試験の実施にあたっては、農林水産省農村振興局や東北農政局、福島県ならびに福島県農業総合センター、関係市町村、土地改良区、民間コンサルタント、そして、農家・住民など多くの方々に多大なご協力とご支援をいただきました。

本論文のとりまとめに際して、素稿の段階からご指導とご助言を賜りました九州大学大学院農学研究院の平松和昭教授に厚くお礼申し上げます。また、博士論文の副査として、九州大学大学院農学研究院の凌祥之教授、平舘俊太郎教授、ならびに、原田昌佳准教授にはご校閲とご助言を賜りました。深く感謝申し上げます。

私と九州大学との縁は、当時の農林水産省の国内留学制度により 1999 年 10 月から半年間、九州大学農学部農業工学科排水干拓工学講座でお世話になったことに始まりました。当時、国内留学の希望を快く受け入れてくださった故四ヶ所四男美名誉教授、故森健教授、平松和昭教授に改めて深謝します。当時、ゼミで輪読した「水圏の環境」で得た知見や数学への深い造詣を持つ四ヶ所先生の研究姿勢、森先生の可視化された密度成層の実験、そして、平松先生の緻密な実験や常に新しい研究手法を追求する姿勢、などに触れることができた九州大学における滞在期間は、その後の研究活動のみならず、本研究に繋がる貴重な経験となりました。特に、平松先生には、国内留学時に同室させていただいたことに始まり、20 年以上にわたり何度も学位論文の相談に乗っていただき、そのたびに毎回真摯に話を聞いていただくとともに、言い尽くせないほど多くの励ましとご支援をいただきました。これほどの長い時間を要したことへのお詫びも込めて、これまで受けてきたご指導と温情、献身に対して改めて深くお礼申し上げます。

最後に、折に触れて学位取得への励ましをいただいた父と、これまで常に支えてくれた妻、美樹と二人の子ども達に感謝します。

引用文献

- Alberts JJ, Tilly LJ, Vigerstad TJ (1979) Seasonal cycling of cesium-137 in a reservoir. *Science* 203, 649–651, doi: 10.1126/science.203.4381.649.
- Aoi Y, Fukushi K, Itono T, Kitadai N, Kashiwaya K, Yamada H, Hatta T, Manpuku Y (2013) Distribution and mineralogy of radioactive Cs in reservoir sediment contaminated by the Fukushima nuclear accident. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 109, 23–27, doi:10.2465/jmps.130620c.
- 荒尾知人, 江口定夫, 吉川省子, 板橋直, 井倉将人, 山口紀子, 藤原英司, 神山和則, 高田裕介, 小原洋, 楠本良延, 平舘俊太郎, 徳岡良則, 池田浩明, 波多野隆介, Wang Chunying, 小倉加世子, 倉持寛太, 久保田富次郎, 塚田祥文, 佐藤睦人, 大越聡 (2015) 農地に関わる放射性セシウムの移行調査. 平成 26 年度東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約及び移行モデルの開発事業成果報告書, 144–168, https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/11000/10921/37/2-2_H26field.pdf, 参照 2022 年 12 月 4 日.
- 有田正光, 中井正則 (1998) , 密度流の基礎. 有田正光編, 水圏の環境, 東京電機大学出版社.
- Bolt GH, Bruggenwert MGM, Kamphorst A (1978) Adsorption of cations by soil, in: Bolt GH, Bruggenwert MGM (Eds.). *Soil Chemistry A, Basic Elements*, 2nd ed., Elsevier, Amsterdam, 54–77.
- Beckett PHT (1964a) Studies on soil potassium I. Confirmation of the ratio law: measurement of potassium potential. *European Journal of Soil Science*, 15(1), 1–8, doi: 10.1111/j.1365-2389.1964.tb00239.x.
- Beckett PHT (1964b) Studies on soil potassium II. The ‘immediate’ Q/I relations of labile potassium in the soil. *European Journal of Soil Science*, 15(1), 9–23, doi: 10.1111/j.1365-2389.1964.tb00240.x.
- Bresler E, McNeal BL, Carter DL (1982) *Saline and Sodic Soils Principles-Dynamics-Modeling*. Springer-Verlag, 14–22.

- Brouder SM, Volenec JJ, Murrell TS (2021) The potassium cycle and its relationship to recommendation development, in: Murrell ST, Mikkelsen RL, Sulewski G, Norton R, Thompson ML (ed.). *Improving Potassium Recommendations for Agricultural Crops* Cham, Switzerland Springer. 1–46, doi: 10.1007/978-3-030-59197-7.
- Chino M, Nakayama H, Nagai H, Terada H (2011) Preliminary estimation of release amounts of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the atmosphere. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 48(7), 1129–1134, doi: 10.1080/18811248.2011.9711799.
- Colombani N, Mastrocicco M, Giuseppe DD, Faccini B, Coltorti M (2015) Batch and column experiments on nutrient leaching in soils amended with Italian natural zeolites. *CATENA*, 127, 64–71, doi: 10.1016/j.catena.2014.12.022.
- Condie SA and Webster IT (2002) Stratification and Circulation in a Shallow Turbid Waterbody. *Environmental Fluid Mechanics*, 2, 177–196, doi: 10.1023/A:1019898931829.
- Eguchi T, Yamada D, Hirayama T, Kohata K, Kanno N, Nihei N, Hamamoto S, Kubo K, Saito T, Shinano T (2023) Potassium buffering characteristics and detection of soils with challenges in evaluating radiocesium uptake risk of crops by exchangeable potassium. *Archives of Agronomy and Soil Science*, doi: 10.1080/03650340.2023.2172166.
- Erlinger Ch, Lettner H, Hubmer A, Hofmann W, Steinhäusler F (2009) Determination of ^{137}Cs in the water system of a pre-Alpine lake. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100, 354–360, doi:10.1016/j.jenvrad.2009.01.002.
- Evangelou VP, Karathanasis AD, Blevins RL (1986) Effect of soil organic matter accumulation on potassium and ammonium quantity–intensity relationships. *Soil Science Society of America Journal*, 50, 378–382, doi: 10.2136/sssaj1986.03615995005000020025x.
- Evangelou VP and Phillips RE (2005) Cation exchange in soils, in: Tabatabai M.A. and Sparks D.L. (Eds.). *Chemical processes in soils*, SSSA, 343–410, doi: 10.2136/sssabookser8.c7.
- Evans DW, Alberts JJ, Clark RA III (1983) Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 47, 1041–1049, doi:10.1016/0016-7037(83)90234-X.

- Francis CW and Brinkley FS (1976) Preferential adsorption of ^{137}Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. *Nature*, 260, 511–513, doi:10.1038/260511a0.
- Fujimura S, Yoshioka K, Saito T, Sato Mutsuto, Sato Makoto, Sakuma Y, Muramatsu Y (2013a) Effects of Applying Potassium, Zeolite and Vermiculite on the Radiocesium Uptake by Rice Plants Grown in Paddy Field Soils Collected from Fukushima Prefecture. *Plant Production Science*, 16(2), 166–170, doi: 10.1626/pp.s.16.166.
- 藤村恵人, 山口裕顕, 梅原孝之, 武藤景子 (2013b) 固相抽出ディスクを用いた農業用水の放射性セシウム濃度測定, *RADIOISOTOPES*, 62, 841–845.
- 藤村恵人 (2021) 玄米の放射性セシウム濃度を低減する試み. 農研機構研究報告, 2021(8), 69-75, doi: 10.34503/naroj.2021.8_69.
- 深津時広, 平藤雅之 (2003) 圃場モニタリングのためのフィールドサーバの開発. *農業情報研究* 12(1), 1–12.
- 福島県水田畑作課 (2012) プレスリリース 米の放射性物質緊急調査の結果について (とりまとめ) 【訂正】2012年2月7日.
- 福島県農林水産部 (2012) 水稲の放射性セシウム対策としてのカリ施用. 「がんばろう福島!」農業技術情報, 24, <https://www.pref.fukushima.lg.jp/download/1/ganba24H240410.pdf> (参照 2019年9月17日).
- Funaki H, Yoshimura K, Sakuma K, Iri S, Oda Y (2018) Evaluation of particulate ^{137}Cs discharge from a mountainous forested catchment using reservoir sediments and sinking particles. *Journal of Environmental Radioactivity* 189:48–56. doi: 10.1016/j.jenvrad.2018.09.012.
- 舟木泰智 (2019) 福島における放射性セシウムの環境動態研究の現状 (平成30年度版). No. JAEA-RESEARCH-2019-002. 日本原子力研究開発機構, doi:10.11484/jaea-research-2019-002.
- Funaki H, Sakuma K, Nakanishi T, Yoshimura K, Katengeza EW (2020) Reservoir sediments as a long-term source of dissolved radiocaesium in water system; a mass balance case study of an artificial reservoir in Fukushima, Japan. *Science of The Total Environment*, 743, 140668, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.140668.

- Funaki H, Tsuji H, Nakanishi T, Yoshimura K, Sakuma K, Hayashi S (2022) Remobilisation of radiocaesium from bottom sediments to water column in reservoirs in Fukushima, Japan. *Science of The Total Environment*, 812(6), 152534, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.152534.
- 原子力対策本部 (2011) 稲の作付に関する考え方.
http://www.maff.go.jp/j/kanbo/joho/saigai/ine_sakutuke.html (参照 2019 年 10 月 10 日).
- Griffioen J (2001) Potassium adsorption ratios as an indicator for the fate of agricultural potassium in groundwater. *Journal of Hydrology*, 254(1), 244–254. doi: 10.1016/S0022-1694(01)00503-0.
- 濱田康治, 吉永育生, 久保田富次郎, 白谷栄作 (2013) 汚染されたため池底質からの Cs 溶出と湖水濃度の関係. *農業農村工学会誌*, 81(9), 713-716, doi: 10.11408/jjsidre.81.9_713.
- Hayashi S (2016) Migration and accumulation of radioactive cesium in the upstream region of river watersheds affected by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: A review. *Global Environmental Research*, 20(1&2), 45–52,
http://www.airies.or.jp/journal_GlobalEnvironmentalResearch_201705291027585.html,
accessed 21 Jan 2023.
- Hayashi S and Tsuji H (2020) Role and effect of a dam on migration of radioactive cesium in a river catchment after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Global Environmental Research*, 24(2), 105–113,
http://www.airies.or.jp/journal_GlobalEnvironmentalResearch_journal_24-2eng.html,
accessed 21 Jan 2023.
- Heidari S and Jalali M (2016): Effect of some cations, anions, and organic residues on potassium leaching and fractionation in calcareous sandy loam soil. *Archives of Agronomy and Soil Science*, 62(1), 19–35, doi:10.1080/03650340.2015.1040397.
- 今泉眞之, 奥島 修二, 塩野隆弘, 石田聡, 吉本周平, 鎌田雅美, 千田善秋, 友口勝, 中達雄 (2013) 耕起した放射能汚染水田を除染するための濁水回収システムを組み込んだ水による土壌攪拌工法の開発. *農業農村工学会論文集*, 286, 37–49, doi: 10.11408/jsidre.81.319.

- International Atomic Energy Agency (IAEA) (2006) Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: Twenty years of experience. report of the Chernobyl Forum Expert group ‘environment’, https://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1239_web.pdf, accessed 1 Sep 2020.
- International Atomic Energy Agency (IAEA) (2010) Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series No. 472.
- International Organization for Standardization (ISO) (2019) ISO 21268–3:2019 Soil quality — Leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soil and soil-like materials — Part 3: Up-flow percolation test. <https://www.iso.org/standard/68252.html>, accessed Aug. 20, 2022.
- Jalali M and Merrikhpour H (2007) Effect of poor quality irrigation waters on the nutrient leaching and groundwater quality form sand soil. *Environmental Earth Sciences* 53, 1289–1298, doi: 10.1007/s00254-007-0735-5.
- Johnston AE, Poulton PR, Goulding KWT, Macdonald AJ, Glendining MJ (2016) Potassium management in soils and crops: a review. *International Fertiliser Society, Proceedings* 792.
- Kaminski S, Richter T, Walser M, Lindner G, Schink B (1997) Microbially mediated redissolution of cesium radionuclides from the sediment of a shallow eutrophic lake. *Studies in Environmental Science*, 68, 141–150, doi:10.1016/S0166-1116(09)70090-1.
- Kamiyama K, Okuda S, Kawai A (1977), Studies on the Release of Ammonium Nitrogen from the Bottom Sediments in Freshwater Regions I. Generation of Ammonium Nitrogen in the Bottom Sediments in Lake Biwa. *陸水学雑誌*, 38, 2, 62–69.
- Kamiyama K, Okuda S, Kawai A (1978), Studies on the Release of Ammonium Nitrogen from the Bottom Sediments in Freshwater Regions III. Ammonium Nitrogen in the Sediments of Different Water Regions. *陸水学雑誌*, 39, 4, 176–180.
- 環境省 (2013) 除染関係ガイドライン第2版. <http://www.env.go.jp/press/files/jp/22255.pdf>, 参照 2019年9月17日.

環境水等の放射性セシウムモニタリングコンソーシアム技術資料改定 WG (2020) 技術資料 環境水中の放射性セシウムの前処理手法・分析法 (第2版) .

https://staff.aist.go.jp/t.yasutaka/MoniCons/files/techdata/03_cs-water_R3_0204_note_ver1.pdf, accessed 21 Jan 2023.

Kimura N, Liu WC, Chiu CY, Kratz T (2012) The influences of typhoon-induced mixing in a shallow lake. *Lakes & Reservoirs Research & Management* 17(3), 171–183, doi: 10.1111/j.1440-1770.2012.00509.x.

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, 513–520.

Kolahchi Z and Jalali M (2007) Effect of water quality on the leaching of potassium from sandy soil. *Journal of Arid Environments*, 68(4), 624–639, doi:10.1016/j.jaridenv.2006.06.010.

小森昌史, 小豆川勝見, 野川憲夫, 松尾基之 (2013) $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を指標とした福島第一原子力発電所事故に由来する放射性核種の放出原子炉別汚染評価. *分析化学*, 62(6), 475–483, doi:10.2116/bunsekikagaku.62-475.

Konoplev A, Wakiyama Y, Wada T, Udy C, Kanivets V, Ivanov MM, Komissarov M, Takase T, Goto A, Nanba K (2021) Radiocesium distribution and mid-term dynamics in the ponds of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant exclusion zone in 2015–2019. *Chemosphere*, 265:129058, doi:10.1016/j.chemosphere.2020.129058.

Kozanecka T, Brogowski Z, Kisiel M, Stepień W (2009) Mobility of exchangeable cations in soils from long term field experiments in Skierniewice. *Polish Journal of Soil Science*, 42(1), 1–14.

久保和也 (2014) 川俣地域の地質, 第4章, 貫入岩類, 地域地質研究報告 (5万分の1地質図幅). 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 33–35, https://www.gsj.jp/data/50KGM/PDF/GSJ_MAP_G050_07034_2015_D.pdf, 参照 2022年11月3日.

久保田富次郎, 人見忠良, 濱田康治, 吉岡邦雄, 佐藤睦人, 齋藤隆 (2013) 水田水口におけるモミガラ等を用いた用水中の放射性Csの除去効果. *農村工学研究所技報*, 214, 123–133.

- 久保田富次郎, 樽屋啓之, 田中良和, 濱田康治 (2014) 水路システムへの放射性 Cs の堆積の特徴と今後の課題. 農業農村工学会誌, 82(3), 229–233.
- 久保田富次郎, 田淵尚一, 濱田康治, 申文浩 (2015a) 遠隔監視による濁度・水文観測の課題と今後の活用. 農業農村工学会誌, 83(2), 97–100.
- 久保田富次郎, 申文浩, 濱田康治, 人見忠良 (2015b) 阿武隈高地に立地する N ため池における水中の放射性セシウムのモニタリング. 農村工学研究所技報, 217, 85–100.
- 久保田富次郎, 濱田康治, 人見忠良, 申文浩 (2016a) 農業水利施設における濁度の遠隔監視と浮遊物質, 全リン, 放射性 Cs の濃度推定. 農村工学研究所技報, 218, 77–88.
- 久保田富次郎, 申文浩, 濱田康治, 人見忠良 (2016b) 農業用水路への放射性 Cs の堆積状況と経年変化の特徴. 平成 28 年度農業農村工学会大会講演会講演要旨集, 835–836.
- 久保田 富次郎, 李相潤, 申文浩, 恩田裕一, 加藤弘亮 (2018) 阿武隈山地の森林小集水域における放射性セシウムの流出率. 水文・水資源学会研究発表会要旨集 31, 64.
- 久保田富次郎, 申文浩, 宮津進, 錦織達啓 (2020) 農研機構の農業農村工学分野を中心とした原発事故対応研究. 農業農村工学会誌, 88(2), 11–14.
- 久保田富次郎 (2021) 水系における放射性セシウムの動態と農業用水への影響. 農研機構研究報告, (8), 43–54, doi: 10.34503/naroj.2021.8_43.
- Kubota T, Shin M, Mampuku Y, Hamamatsu S, Hachinohe M (2022a) Dynamics of radiocesium in an irrigation reservoir managed at low water level from the perspective of inflow and outflow water quality under non-flood conditions. *Paddy and Water Environment*, 20, 369–379, doi:10.1007/s10333-022-00898-3.
- Kubota T, Masuda R, Nishikiori T, Fujimura S (2022b) Effects of influent water quality on potassium leaching from paddy soil. *土壤の物理性*, 152, 9–23, doi:10.34467/jssoilphysics.152.0_9.
- Kurihara M, Yasutaka T, Aono T, Ashikawa N, Ebina H, Iijima T, Ishimaru K, Kanai R, Karube Z, Konnai Y, Kubota T, Maehara Y, Maeyama T, Okizawa Y, Ota H, Otosaka S, Sakaguchi A, Tagomori H, Taniguchi K, Tomita M, Tsukada H, Hayashi S, Lee S, Miyazu S, Shin S, Nakanishi T, Nishikiori T, Onda Y, Shinano T, Tsuji H (2019) Repeatability and

- reproducibility of measurements of low dissolved radiocesium concentrations in freshwater using different pre-concentration methods. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 322, 477–485, doi: 10.1007/s10967-019-06696-2.
- Laborde S, Antenucci JP, Copetti D, Imberger J (2010) Inflow intrusions at multiple scales in a large temperate lake. *Limnology and Oceanography*, 55, 1301–1312, doi:10.4319/lo.2010.55.3.1301.
- Lindner G, Greiner I, Grom R (1992) Transport of Chernobyl radionuclides in freshwater lakes. International congress of the International Radiation Protection Association (IRPA8), Montreal, 1693–1696.
- Lindner G, Kaminski S, Greiner I, Wunderer M, Behrschmidt J, Schröder G, Kress S (1993) Interaction of dissolved radionuclides with organic matter in prealpine freshwater lakes. *SIL Proc* 25, 238–241, doi:10.1080/03680770.1992.11900102.
- 李品芳, 山本太平, 長井武雄, 藤山英保 (1994) 鳥取砂丘土壌でのカラム実験 乾燥地条件下での土壌中の水・塩の動態と作物の要素吸収について (I). *農業土木学会論文集*, 171, 83–88, doi: 10.11408/jsidre1965.1994.171_83.
- Li Y, Gao R, Yang R, Wei H, Li Y, Xiao H, Wu J (2013) Using a Simple Soil Column Method to Evaluate Soil Phosphorus Leaching Risk. *Clean–Soil Air Water*, 41(11), 1100–1107, doi: 10.1002/clen.201200372.
- 牧野知之 (2014) 水による土壌攪拌・除去. *日本土壌肥料学会誌*, 85(2), 132–135.
- 松川進, 中野政詩 (1992) 湛水浸潤による塩類移動. *農業土木学会論文集*, 162, 15–22, doi: 10.11408/jsidre1965.1992.162_15.
- 松川進, 富田平四郎, 鈴木敬 (1996) 酸性溶液が土壌の透水性と塩類溶脱に及ぼす影響. *土壌の物理性*, 73, 53–58, doi: 10.34467/jssoilphysics.73.0_53.
- 松波寿弥, 申文浩, 高橋義彦, 北島枝織, 土屋貴史, 信濃卓郎 (2015) ゲル化法を用いた懸濁物質を含む農業関連水試料中の放射性セシウムの定量. *RADIOISOTOPES*, 64, 681–686, doi: 10.3769/radioisotopes.64.681.

- Miura A, Kubota T, Hamada K, Hitomi T (2016) Adsorption efficiency of natural materials for low-concentration cesium in solution. *Water Science and Technology*, 73(10), 2453–2460, doi: 10.2166/wst.2016.098.
- 宮津進, 久保田富次郎, 吉川夏樹, 中島浩世, 鶴田綾介, 鈴木啓真, 飯塚大河, 原田直樹, 野中昌法, 申文浩, 田中豊, 伊藤健太郎, 引木信也, 月舘瑞寛 (2017) 農薬用水を介して新規流入した放射性セシウムの水田圃場内動態. 平成 29 年度農業農村工学会大会講演要旨集, 472–473.
- 溝口勝 (2012) フィールドモニタリングシステム. *農業農村工学会誌*, 80(9), 50.
- 文部科学省 (2011) 放射線量等分布マップ. <http://ramap.jaea.go.jp/map/>, 参照 2013 年 12 月 20 日.
- 文部科学省 (2013) ①第 6 次航空機モニタリングの測定結果, および②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の測定結果について. プレスリリース (2013 年 3 月 1 日)
- Mukai H, Hatta T, Kitazawa H, Yamada H, Yaita T, Kogure T (2014) Speciation of radioactive soil particles in the Fukushima contaminated area by IP autoradiography and microanalyses. *Environmental Science & Technology*, 48, 13053–13059, doi: 10.1021/es502849e.
- Mukai H, Motai S, Yaita T, Kogure T (2016) Identification of the actual cesium-adsorbing materials in the contaminated Fukushima soil. *Applied Clay Science*, 121–122, 188–193, doi: 10.1016/j.clay.2015.12.030.
- Mukai H, Tamura K, Kikuchi R, Takahashi Y, Yaita T, Kogure T (2018) Cesium desorption behavior of weathered biotite in Fukushima considering the actual radioactive contamination level of soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 190–191, 81–88, doi: 10.1016/j.jenvrad.2018.05.006.
- 村松秀則 (2013) 農業土木施設の放射線対策に至るまでの経緯と現状について「原子力災害で起こったこと」. *農業農村工学会東北支部第 56 回講演要旨集*, 138–141.
- 中達雄, 若杉晃介, 原口暢朗, 奥島修二, 塩野隆弘, 石田聡, 吉本周平, 今泉眞之 (2012) 農地の物理的除染対策技術の開発. *農業農村工学会誌*, 80(7), 19–22.

- Nakanishi T and Sakuma K (2019) Trend of ^{137}Cs concentration in river water in the medium term and future following the Fukushima nuclear accident. *Chemosphere*, 215, 272–279.
- 中尾淳, 和田信一郎, 小暮敏博, 高橋嘉夫, W Crawford Elliott, 山口紀子 (2016) 土壌化学で解く放射性セシウム–土壌鉍物間の反応機構. *日本土壌肥科学雑誌*, 87, 70–74.
- 中尾忠彦 (2008) 水文観測の現状と展望. *河川情報シンポジウム講演集*, 1–12, (財)河川情報センター.
- 中矢哲郎, 桐博英, 安瀬地一作 (2014) SCADA による用排水管理の高機能化. *ARIC 情報*, 114, 26–33.
- 中山秀貴 (2013) 小型カリウムイオンメーターによる土壌交換性カリ含量簡易測定法, 平成 25 年度東北農業研究成果情報.
<http://www.naro.affrc.go.jp/org/tarc/seika/jyouhou/H25/kankyuu/H25kankyuu013.html>, 参照 2022 年 5 月 1 日.
- 中山秀貴, 佐藤翔平, 荒井義光, 佐藤睦人 (2018) 小型カリウムイオンメーターによる土壌交換性カリ含量簡易測定の確度向上のための改良. *日本土壌肥科学雑誌*, 89(4), 311–316, doi:10.20710/dojo.89.4_311.
- Nasvit O (2002) Radioecological situation in the cooling pond of Chernobyl NPP, recent research activities about the Chernobyl NPP accident in Belarus, Ukraine and Russia. *Research Reactor Institute Kyoto University*, 74–85, <http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/NSRG/reports/kr79/kr79pdf/kr79.pdf>, accessed 12 Sep 2020.
- 浪江町 (2014) 農業者意向調査の結果をお知らせします. *広報なみえ No. 577*, 10–12, <https://www.town.namie.fukushima.jp/site/kouhou/list10-104.html>.
- Nishikiori T, Kubota T, Miyazu S, Harada N, Yoshikawa N, Fujiwara H, Saito T (2020) Input and output pathways determining potassium budgets in two paddy fields subjected to countermeasures against radiocesium in Fukushima, Japan. *PLoS ONE* 15(4), doi: 10.1371/journal.pone.0232139.
- 日水コン (2019) 平成 30 年度東北農政局直轄農業水利施設放射性物質対策事業大柿ダムかんがい用水放射性セシウム動態調査業務報告書.
- 農業農村工学会 (2010) 改訂 7 版農業農村工学ハンドブック本編. 486-487.

- 農業・食品産業技術総合研究機構（農研機構）（2019）日本土壌インベントリー。
<https://soil-inventory.rad.naro.go.jp/>, 参照 2022 年 8 月 20 日.
- 農業・食品産業技術総合研究機構（農研機構）（2021）水田土壌のカリ収支を踏まえた
水稲のカリ適正施用指針～低地土の水田に広く適用できるカリ減肥の指針～。
https://www.naro.go.jp/publicity_report/publication/files/suiden_k2o_tekiseishishin_main.pdf
, 参照 2022 年 5 月 1 日
- 農林水産省（2013）農地除染技術の技術書。<http://www.maff.go.jp/j/nousin/seko/josen/>, 参
照 2019 年 9 月 17 日.
- 農林水産省（2014）農地・森林等の放射性物質の除去・低減技術の開発。研究成果 525,
<https://agriknowledge.affrc.go.jp/RN/2039017317>, 参照 2019 年 9 月 17 日.
- 農林水産省（2016a）農地等の放射性物質の除去・低減技術の開発－高濃度汚染地域にお
ける農地土壌除染技術体系の確立－。研究成果 551, [https://agriknowledge.affrc.go.jp/RN/
2039017846](https://agriknowledge.affrc.go.jp/RN/2039017846), 参照 2019 年 9 月 17 日.
- 農林水産省（2016b）農地等の放射性物質の除去・低減技術の開発－農地土壌における放
射性セシウム動態予測技術および拡散防止技術の開発－。研究成果 553,
[https://agriknowledge.affrc.go.jp/RN/ 2039017848](https://agriknowledge.affrc.go.jp/RN/2039017848), 参照 2022 年 12 月 5 日
- 農林水産省（2016c）ため池の放射性物質対策技術マニュアル（第 2 版）。
https://www.maff.go.jp/j/nousin/saigai/pdf/tamemanu_zentai_2.pdf, 参照 2022 年 9 月 21
日.
- 農林水産省東北農政局（2012）福島県内のため池（3 回目）及び農業用水路における放
射性物質の測定結果について。プレスリリース(2012 年 9 月 5 日).
- 農林水産省東北農政局（2020）令和元年度福島県内のため池等における放射性物質の調
査結果について（令和 2 年 6 月 5 日）。
https://www.maff.go.jp/tohoku/osirase/higai_taisaku/hukkou/200605_matome.html, 参照
2020 年 9 月 3 日.
- NTC コンサルタンツ（2018）平成 29 年度東北農政局直轄農業水利施設放射性物質対策事
業大柿ダムかんがい用水放射性セシウム動態調査業務報告書。

- NTC コンサルタンツ (2020) 平成 31 年度東北農政局直轄農業水利施設放射性物質対策事業請戸川地区かんがい用水放射性セシウム動態調査業務報告書.
- 岡島秀夫, 松中照夫 (1972) 土壌のカリウム供給力測定法としての AR^K, PBC^K の評価 (その 2) PBC^K について. 日本土壌肥科学雑誌, 43(12), 456–459, doi: 10.20710/dojo.43.12_456.
- Okumura T, Yamaguchi N, Dohi T, Iijima K, Kogure T (2019) Dissolution behaviour of radiocaesium-bearing microparticles released from the Fukushima nuclear plant. *Scientific Reports* 9(1), 3520, doi: 10.1038/s41598-019-40423-x.
- Onda Y, Taniguchi K, Yoshimura K, Kato H, Takahashi J, Wakiyama Y, Coppin F, Smith H (2020) Radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in terrestrial systems. *Nature Reviews Earth & Environment*, 1, 644–660, doi:10.1038/s43017-020-0099-x.
- Ramamoorthy B and Paliwal KV (1965) Potassium adsorption ratio of some soils in relation to their potassium availability to paddy. *Soil Science*, 99(4), 236–242, doi: 10.1097/00010694-196504000-00005.
- Read JS, Hamilton DP, Desai AR, Rose KC, MacIntyre S, Lenters JD, Smyth RL, Hanson PC, Cole JJ, Staehr PA, Rusak JA, Pieson DC, Brookes JD, Laas A, Wu CH (2012) Lake-size dependency of wind shear and convection as controls on gas exchange. *Geophysical Research Letters*, 39(9), doi:10.1029/2012GL051886.
- Rigol A, Vidal M, Rauret G (2002) An overview of the effect of organic matter on soil–radiocaesium interaction: Implications in root uptake. *Journal of Environmental Radioactivity* 58:191–216, doi:10.1016/s0265-931x(01)00066-2.
- 斎藤秀晴 (1999) 「水質」をはかる. 土木学会誌, 84(12), 85–87.
- 阪口圭一 (1995) 二本松地域の地質, 地域地質研究報告 5 万分の 1 地質図幅. 地質調査所, 28, https://www.gsj.jp/data/50KGM/PDF/GSJ_MAP_G050_07033_1995_D.pdf, 参照 2022 年 5 月 1 日.
- Sawhney BL (1972) Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: A review. *Clays and Clay Minerals*, 20, 93–100, doi: 10.1346/ccmn.1972.0200208.

- Shainberg I, Keren R, Alperovitch N, Goldstein D (1987) Effect of exchangeable potassium on the hydraulic conductivity of smectite-sand mixtures. *Clays and Clay Minerals*, 35(4), 305–310, doi: 10.1346/ccmn.1987.0350408.
- 繁永幸久, 高橋英紀 (2012) 携帯電話通信網を利用したフィールドデータ伝送システム. *農業農村工学会誌*, 80(9), 11–14, doi: 10.11408/jjsidre.80.9_723.
- 申文浩, 久保田富次郎, 濱田康治, 人見忠良 (2015a) 農業用水の放射性 Cs のリアルタイム予測と水管理への展開. *農業農村工学会誌*, 83(1), 35–38, doi: 10.11408/jjsidre.83.1_35.
- Shin M, Kubota T, Hamada K, Hitomi T, Ota T (2015b) Dynamic Analysis of Radioactive Cesium in Decontaminated Paddy Fields. *Journal of Water and Environment Technology*, 13(5), 383–394, doi:10.2965/jwet.2015.383.
- 申文浩, 久保田富次郎, 宮津進, 引木信也, 李相潤 (2018) 被災地の農業用水の安全・安心へ向けた ICT 活用の取組み. *農業農村工学会誌*, 86(4), 281–284
- Shin M, Kubota T, Manpuku Y, Suzuki Y, Yasutaka T, Matsunami H, Ota T (2019) Behavior of radiocesium in decontaminated paddy fields in Fukushima Prefecture, Japan. *Paddy and Water Environment*, 17, 703–714, doi:10.1007/s10333-019-00694-6.
- 申文浩, 久保田富次郎 (2021) 請戸川の水を用いた水稻栽培における放射性セシウムの影響. *農業農村工学会誌*, 89(7), 19–22.
- Shinomiya Y, Tamai K, Kobayashi M, Ohnuki Y, Shimizu T, Iida S, Nobuhiro T, Sawano S, Tsuboyama Y, Hiruta T (2014) Radioactive cesium discharge in stream water from a small watershed in forested headwaters during a typhoon flood event. *Soil Science and Plant Nutrition*, 60(6), 765–771, doi: 10.1080/00380768.2014.949852.
- 塩沢昌 (2012) 水田の放射能汚染と稲への移行. *農業農村工学会誌*, 80(7), 539–542.
- 庄建技術株式会社 (2012) 放射性物質除染法解説シリーズ 2 水田土壌のための農業用水のモミガラ除染.
- Smiles DE and Smith CJ (2004) A survey of the cation content of piggery effluents and some consequences of their use to irrigate soils. *Australian Journal of Soil Research* 42(2), 231–246, doi: 10.1071/sr03059.

Smith JT, Comans RNJ, Elder DG (1999) Radiocaesium removal from European lakes and reservoirs: Key processes determined from 16 Chernobyl-contaminated lakes. *Water Research*, 33(18), 3762–3774.

総合科学技術会議（2011）平成 23 年度 科学技術戦略推進費「重要政策課題への機動的対応の推進及び総合科学技術会議における政策立案のための調査」によるプロジェクトに係る実施方針。 <https://kn2.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/10212648>, 参照 2022 年 11 月 3 日。

Sposito G and Mattigod SV (1977) On the Chemical Foundation of the Sodium Adsorption Ratio. *Soil Science Society of America Journal*, 41(2), 323–329, doi: 10.2136/sssaj1977.03615995004100020030x.

Suzuki Y, Yasutaka T, Fujimura S, Yabuki T, Sato M, Yoshioka K, Inubushi K (2015) Effect of the concentration of radiocesium dissolved in irrigation water on the concentration of radiocesium in brown rice. *Soil Science and Plant Nutrition* 61, 191–199, doi: 10.1080/00380768.2014.1003192.

高橋寛，鈴木浩之，渡辺孝志（2015）大柿ダムの放射性セシウム対策と農業復興支援の取り組み。 *農業農村工学会誌*, 83（8），657–660.

高橋知之（2013）食品中の放射性核種濃度基準値の設定。 *食品衛生学雑誌*, 54(2), 97–101, doi: 10.3358/shokueishi.54.97.

Taniguchi K, Onda Y, Smith HG, Blake W, Yoshimura K, Yamashiki Y, Kuramoto T, Saito K (2019) Transport and redistribution of radiocesium in Fukushima fallout through rivers. *Environmental Science & Technology* 53:12339–12347. doi: 10.1021/acs.est.9b02890. doi:10.1021/acs.est.9b02890.

Thach TT, Harada M, Oniki A, Hiramatsu K, Tabata T (2017) Experimental study on the influence of dissolved organic matter in water and redox state of bottom sediment on water quality dynamics under anaerobic conditions in an organically polluted water body. *Paddy and Water Environment*, 15, 889–906, doi: 10.1007/s10333-017-0600-4.

Thach TT, Harada M, Hiramatsu K, Tabata T (2018) The Influence of Bottom Sediment Redox State on Water Quality Dynamics under Long-term Anoxic Conditions in an Organically

- Polluted Reservoir. *Journal of Rainwater Catchment Systems*, 24(1), 23–31, doi: 10.7132/jrcsa.24_1_23.
- 友正達美・谷本岳・内村求 (2014) 震災からの復旧過程における農業用水の塩分モニタリング. *農村工学研究所技報* 216, 1–7.
- Tsuji H, Kondo Y, Suzuki Y, Yasutaka T (2014) Development of a method for rapid and simultaneous monitoring of particulate and dissolved radiocesium in water with nonwoven fabric cartridge filters. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 299, 139–147, doi:10.1007/s10967-013-2735-0.
- Tsuji H, Kondo Y, Kawashima S, Yasutaka T (2015a) Non-destructive detection of particulate radiocesium using a non-woven fabric cartridge filter for rapid preprocessing. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 303, 1803–1810, doi:10.1007/s10967-014-3800-z.
- Tsuji H, Nishikiori T, Yasutaka T, Hayashi S (2015b) Radiocesium balance and its behavior in dam on Uda river and Ota river in Fukushima Prefecture. American Geophysical Union, Fall Meeting 2015, abstract id. B12A-07.
- Tsuji H, Nishikiori T, Yasutaka T, Watanabe M, Ito S, Hayashi S (2016) Behavior of dissolved radiocesium in river water in a forested watershed in Fukushima Prefecture. *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 121(10), 2588–2599.
- Tsuji H, Funaki H, Watanabe M, Hayashi S (2022) Effects of temperature and oxygen on ^{137}Cs desorption from bottom sediment of a dam lake. *Applied Geochemistry*, 140, 105303, doi:10.1016/j.apgeochem.2022.105303.
- Tsukada H, Takeda A, Hisamatsu S, Inaba J (2008) Concentration and specific activity of fallout ^{137}Cs in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 875–881, doi:10.1016/j.jenvrad.2007.11.014.
- Tsukada H, Ohse K (2016) Concentration of radiocaesium in rice and irrigation water, and soil management practices in Oguni, Date, Fukushima. *Integrated Environmental Assessment and Management*, 12, 659–661.
- Tsukada H, Nihira S, Watanabe T, Takeda S (2017) The ^{137}Cs activity concentration of suspended and dissolved fractions in irrigation waters collected from the 80 km zone around TEPCO's

- Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. *Journal of Environmental Radioactivity*, 178–179, 354–359, doi:10.1016/j.jenvrad.2017.08.002.
- Tuan NV, Hamagami K, Mori K, Hirai Y (2009), Mixing by wind-induced flow and thermal convection in a small, shallow and stratified lake. *Paddy and Water Environment*, 7, 83–93, doi:10.1007/s10333-009-0158-x.
- Ueda S, Hasegawa H, Kakiuchi H, Akata N, Ohtsuka Y, Hisamatsu S (2013) Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 118, 96–104, doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.11.009.
- USDA (1954) Diagnosis and improvement of saline and alkali soils. Agriculture handbook No.60. <https://www.ars.usda.gov/pacific-west-area/riverside-ca/agricultural-water-efficiency-and-salinity-research-unit/docs/publications/handbook-no-60/>, accessed May 1, 2022.
- 和田信一郎 (1997) 土壌の化学性 : 久馬一剛 (編) . 最新土壌学, 朝倉書店, 80.
- 若杉晃介 (2021) 水田の表土剥ぎ取りによる放射性物質除去技術の開発. 農研機構研究報告, 8, 29–34, doi: 10.34503/naroj.2021.8_29.
- Wakiyama Y, Konoplev A, Wada T, Takase T, Byrnes I, Carradine M, Nanba K (2017) Behavior of ¹³⁷Cs in ponds in the vicinity of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 178–179, 367–376, doi: 10.1016/j.jenvrad.2017.07.017.
- Wakiyama Y, Konoplev A, Wada T, Takase T, Igarashi Y, Nanba K, Byrnes I (2019) Temporal trends of ¹³⁷Cs activity concentration in pond waters in the vicinity of Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. *Proceedings of IAHS*, 381, 101–106, doi:10.5194/piahs-381-101-2019.
- Wauters J, Madruga MJ, Vidal M, Cremers A (1996) Solid phase speciation of radiocaesium in bottom sediments. *Science of The Total Environment*, 187, 121–130, doi:10.1016/0048-9697(96)05133-9.
- Wen Y, Zhang W, Shan B, Qu J (2022) Evidence of temperature-controlled dissolved inorganic nitrogen distribution in a shallow lake. *Journal of Environmental Sciences*, 122, 105–114, doi:10.1016/j.jes.2021.09.032.

- Yamada S, Kitamura A, Kurikami H, Yamaguchi M, Malins A, Machida M (2015) Sediment and ¹³⁷Cs transport and accumulation in the Ogaki Dam of eastern Fukushima. *Environmental Research Letters*, 10:014013, doi:10.1088/1748-9326/10/1/014013.
- 山本浩一, 二村貴幸, 坂野章, 日下部隆昭, 末次忠司, 横山勝英 (2003) 濁度計による懸濁態栄養塩負荷推定に関する研究. *河川技術論文集* 9, 515–520.
- Yamamoto K and Suetsugi T (2006) Estimation of particulate nutrient load using turbidity meter. *Water Science & Technology*, 53(2), 311–320, doi: 10.2166/wst.2006.065.
- Yasutaka T, Kawamoto T, Kawabe Y, Sato T, Sato M, Suzuki Y, Nakamura K, Komai T (2013) Rapid measurement of radiocesium in water using a Prussian Blue impregnated nonwoven fabric. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 50, 674–681, doi: 10.1080/00223131.2013.797936.
- 保高徹生, 申文浩, 恩田裕一, 信濃卓郎, 林誠二, 塚田祥文, 青野辰雄, 飯島和毅, 江口定夫, 大野浩一, 吉田幸弘, 上東浩, 北村清司, 久保田富次郎, 野川憲夫, 吉川夏樹, 山口裕顕, 末木啓介, 辻英樹, 宮津進, 岡田往子, 栗原モモ, TARJAN Sandor, 松波寿弥, 内田滋夫 (2017) 陸水中における微量溶存態放射性セシウムの濃縮法の比較. *分析化学*, 66(4), 299–307.
- Yasutaka T, Naka A, Sakanakura H, Kurosawa A, Inui T, Takeo M, Inoba S, Watanabe Y, Fujikawa T, Miura T, Miyaguchi S, Nakajou K, Sumikura M, Ito K, Tamoto S, Tatsuhara T, Chida T, Hirata K, Ohori K, Someya M, Katoh M, Umino M, Negishi M, Ito K, Kojima J, Ogawa S (2017) Reproducibility of up-flow column percolation tests for contaminated soils. *PLoS ONE*, 12(6), e0178979, doi: 10.1371/journal.pone.0178979.
- 吉田義, 鈴木敬治, 真鍋健一, 中馬教允, 伊藤七郎 (1983) 土地分類基本調査, 二本松 5 万分の 1. 福島県, 28, <https://nlftp.mlit.go.jp/kokjo/tochimizu/F3/data/pdf/0711t.pdf>, 参照 2022 年 5 月 1 日.
- 吉川夏樹, 稲葉麟士, 榎島みどり, 宮津進, 鈴木啓真, 鈴木一輝, 野川憲夫, 原田直樹 (2020) 現地水田模型による懸濁態セシウムの挙動の解明. 令和 2 年度 農業農村工学会大会講演会講演要旨集, 223–224.

- 吉本周平, 土原健雄, 白旗克志, 久保田富次郎, 石田聡 (2022) NaI(Tl)シンチレーション検出器による河川水中の放射性セシウム流出イベントの検知. 農業農村工学会論文集, 90(1), II_77-II_83, doi: 10.11408/jsidre.90.II_77.
- Yoshimura K, Onda Y, Sakaguchi A, Yamamoto M, Matsuura Y (2015) An extensive study of the concentrations of particulate/dissolved radiocaesium derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in various river systems and their relationship with catchment inventory. *Journal of Environmental Radioactivity*, 139, 370–378, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.08.021.
- 吉永育生, 濱田康治, 久保田富次郎 (2021) 福島県内のため池の底質における放射性物質対策. 農研機構研究報告, 8, 55–65, doi: 10.34503/naroj.2021.8_55.
- Zibold G, Kaminski S, Klemt E, Smith JT (2002) Time-dependency of the ¹³⁷Cs activity concentration in freshwater lakes, measurement and prediction. *Radioprotection*, 37 C1, C1-75–C1-80, doi: 10.1051/radiopro/2002111.

Summary

The accidental release of radioactive materials from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (FDNPP) of Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc., was caused by the Great East Japan Earthquake of March 2011. This study discusses the effects of the nuclear disaster in rural areas, and it clarifies the radiocaesium dynamics. The main focus of the study was to examine the dynamics of radiocaesium in irrigation facilities such as canals and reservoirs, and to conduct experimental studies on the dynamics of potassium, which is essential for suppressing the absorption of radiocaesium in rice paddies.

Chapter 1 presents an overview of the nuclear power plant accident, the response processes applied against radioactive contamination in rural areas, and the previous studies on the dynamics of radiocaesium in water systems. The objectives of this study and the framework of the thesis are presented.

Chapter 2 describes the characteristics and analytical methods used for assessing the radiocaesium levels in water and the remote monitoring methods. We describe a method for monitoring radiocaesium in water; it uses continuous measurement of radiocaesium through turbidity observation. Several areas affected by the nuclear disaster have restricted access; therefore, we developed a remote water sampling system with an added arbitrary time-sampling function.

In Chapter 3, the dynamics of radiocaesium in the paddy fields are reviewed. In addition, a study on the leaching characteristics of soil potassium is presented; potassium leaching plays an essential role in suppressing the absorption of radiocaesium in paddy rice crops. In the experimental paddy soil, the leaching or accumulation of potassium during infiltration was closely related to the concentration of major cations in the infiltrated water. The potassium adsorption ratio (PAR) index

could explain the leaching or accumulation of soil potassium. These findings could lead to the development of an evaluation system for the potassium supply capacity of irrigation water and implementation of ways for the reduction of potassium fertilizer leaching.

Chapter 4 discusses the dynamics of radiocaesium in agricultural irrigation facilities.

Section 1 presents the characteristics of radiocaesium deposition in agricultural irrigation canals. Initially, the national decontamination program did not cover agricultural irrigation canals, and there were concerns about handling radiocaesium in the sediments deposited in the canals. The level of radiocaesium activity in the sediments and the doses in an irrigation canal system that includes the entire area from upstream to downstream were investigated, to clarify the actual situation. The level of radiocaesium activity in most of the sediments in the main channel were low; however, the levels increased in some parts of the dugouts of the main channel and in the branches where the flow velocity was low.

Section 2 presents the dynamics of radiocaesium in an irrigation reservoir located approximately 5 km from the FDNPP; it had high levels of deposited radiocaesium. The town where the study reservoir is located was unable to manage the reservoir due to earthquake damage and the evacuation following the nuclear power plant accident. Therefore, the water levels of the reservoir were lowered. Reservoirs are generally considered to be sinks for radiocaesium; however, we present a unique case in which a reservoir acts as a source when the water level is significantly lowered. A comparison of quality of the inflow and outflow water showed that the reservoir acted as a source for both dissolved and suspended radiocaesium under normal water conditions. In addition, a high correlation was observed between the activity levels of dissolved radiocaesium in the effluent and the water temperature, suggesting that the elution of dissolved radiocaesium from the reservoir is influenced by biological activity.

In Section 3, the dynamics of radiocaesium in a small pond located in the Abukuma Mountains are discussed based on the observations of vertical distribution of water quality. The results of the two-year observations indicated that the elution of radiocaesium from the bottom sediment occurred during summer when the water was in normal conditions. Elution was observed only when the water temperature was above 15°C, dissolved oxygen was low, and there was a co-existence of ammonium ions. However, at depths shallower than 1 m, there was almost no increase in the activity levels of dissolved radiocaesium, even during the summer season. In contrast, during rainfall-runoff, relatively high activity levels of radiocaesium were detected even in the shallow layer due to mixing of the pond water. These results suggest that in reservoirs with a depth of approximately 3 m, the density stratification created by the gradual changes in water temperature during summer restricted the upward movement of radiocaesium from the bottom layer during normal water conditions. Therefore, the risk of an increase in the activity of dissolved radiocaesium in the surface water was negligible. In addition, the risk of radiocaesium in the water being absorbed by the paddy rice and increasing the radiocaesium activity levels in the brown rice was negligible, even after three to four years of significant deposition, as long as the pond surface water was used.

In view of the nuclear power plant accident, we have been working on the various aspects of the relationship between the agricultural water and radiocaesium in the water. In general, there was little impact on rice cultivation from the radiocaesium in the water, under the countermeasures of adding potassium fertilizers to suppress the absorption of radiocaesium. However, in some reservoirs near the FDNPP, dissolved ^{137}Cs exceeding 1 Bq L^{-1} was detected even nine years after the accident. The presence of dissolved radiocaesium in the environmental water at concentrations of several Bq L^{-1} over time does not meet the initial expectations. The scientific understanding of this phenomenon has yet to be fully advanced and remains a research topic for the future. However, removing the

bottom sediment from reservoirs containing high radiocaesium activity will help reduce the relatively high activity of dissolved radiocaesium in irrigation ponds.

Furthermore, in rice paddies, the radiocaesium in water had little effect on brown rice because of the countermeasures to suppress the absorption of radiocaesium through increasing potash fertilizers. Catchment areas with large amounts of deposited radiocaesium require the application of appropriate amounts of potash fertilizers and careful water management to prevent the inflow of turbid water. In addition, it is crucial to organize and present the scientific findings on the dynamics and effects of radiocaesium in agricultural water use systems to the international community.