

博士学位論文

福島における放射性セシウム輸送解析と
空間線量評価シミュレーション

Simulation study of radiocesium transport and
air dose rates in Fukushima

指導教員 細見 正明 教授

2019.3

東京農工大学大学院
工学府 応用化学専攻

佐久間 一幸

目次

1 序論

- 1.1. 研究背景
- 1.2. 既往研究
- 1.3. 研究目的

2 流域物理モデルを用いた福島原発事故由来の¹³⁷Cs 輸送解析

- 2.1. 流域物理モデル(GETFLOWS)の概要
- 2.2. 支配方程式
- 2.3. 研究対象領域の概要
- 2.4. 三次元水理地質構造モデルの作成
- 2.5. パラメータ
- 2.6. 観測データ
- 2.7. 計算条件—平衡状態場の計算と解析対象降雨

3 水、土砂、¹³⁷Cs 輸送解析結果

- 3.1. 異なる降雨強度による流域ごとの流出特性
- 3.2. 小流域における土砂、¹³⁷Cs の再分布
- 3.3. 森林渓流水中の溶存態 Cs 解析における分配係数(K_d)の適用可能性

4 モンテカルロ放射線輸送コードを用いた森林内の空間線量率解析

- 4.1. 森林モデル
- 4.2. 調査サイトおよびモデル化
- 4.3. モンテカルロ放射線輸送シミュレーション (PHITS)
- 4.4. 動態を考慮した森林内の空間線量率評価

5 まとめ

- 5.1. 研究の成果
- 5.2. 今後の課題

引用文献

謝辞

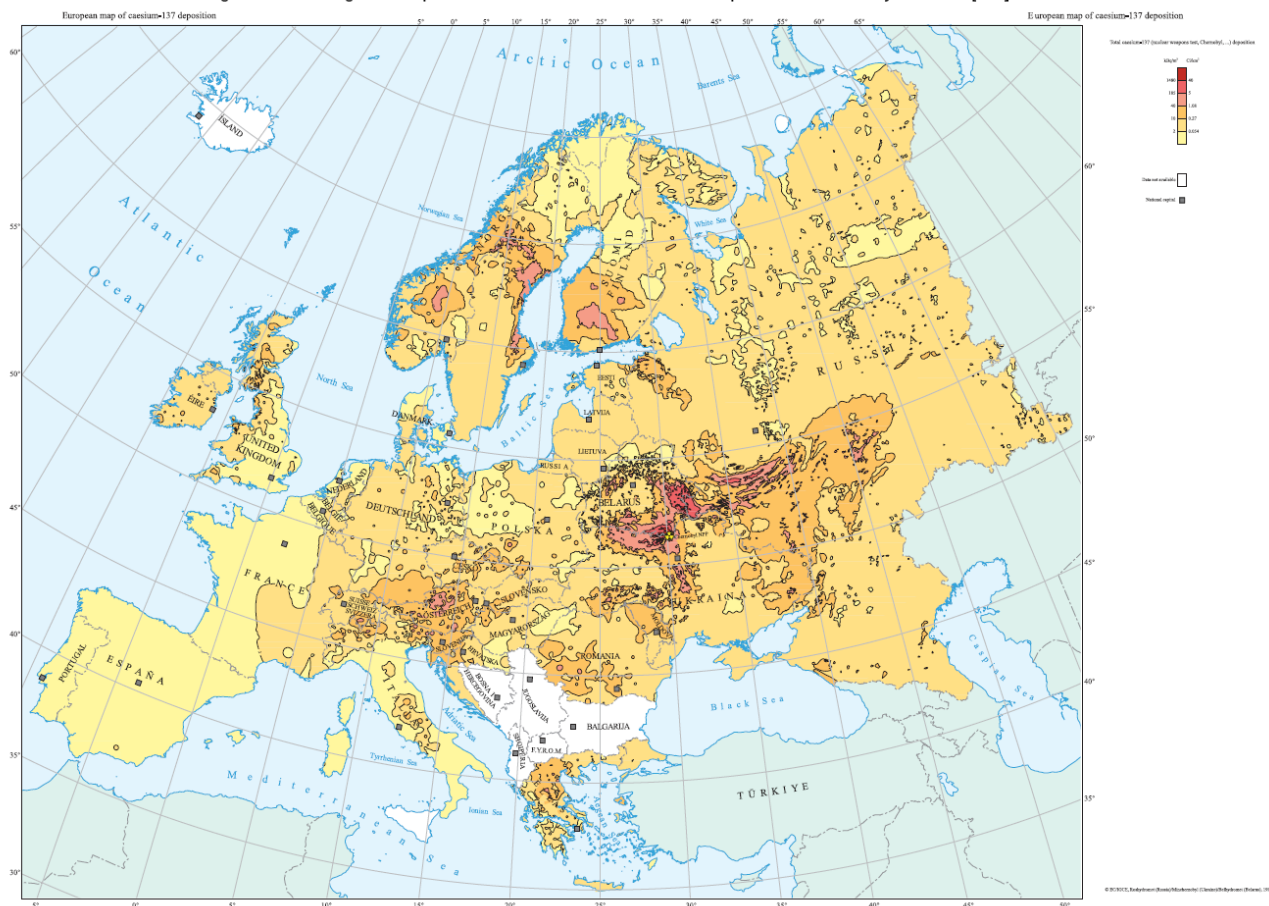
1 序論

1.1. 研究背景

環境放射能汚染の歴史は、アメリカ・旧ソ連を中心とした 1940 年代以降の原水爆実験に遡る。地上、地下における実験サイトの放射性核種による汚染(プルトニウム、アメリシウム、ユウロピウム、セシウム、ストロンチウム、トリチウム等)(Vintró et al., 2009; Evseeva et al., 2012; Aidarkhanov et al., 2013; Aidarkhanova et al., 2018; Serzhanova et al., 2018)や、大気圏における原水爆実験による世界中への拡散、沈着(グローバルフォールアウト)による汚染以降、環境中における放射性核種の動態研究や被ばく評価等が盛んに行われるようになった。さらに、核兵器作成用の原子炉、原子力発電所の建設、運転等が 1950 年代以降世界中で行われるようになり、様々な原子力施設からの環境中への放射性核種の放出が起きた(例えばウィンズケール原子炉火災事故(Crick and Linsley, 1984; Garland and Wakeford, 2007)、ウラル核惨事等(Akleyev and Lyubchansky, 1994; Degteva et al., 1994)。

その中でも最大級の原子力災害が 1986 年 4 月 26 日、旧ソ連のキエフ州(現ウクライナ)のチェルノブイリ原子力発電所で起こり、ヨーロッパを中心に大量に放射能汚染が拡大した(放射性ヨウ素、セシウム、ストロンチウム等)(Fig. 1.1)。特にチェルノブイリ周辺の地域は、高濃度に汚染され、住民の避難が余儀なくされ、強制移住が行われた。また、食物による内部被ばくも懸念され、牛乳やチーズ、農作物、魚等、様々な食品の汚染も確認され、接種制限が行われた。チェルノブイリ事故後、ヨーロッパ各地で様々な研究が行われ、森林、河川、貯水池、海洋、農地、住宅地等、様々な環境媒体中における放射性核種の動態研究とそれに基づく被ばく量評価、モデル構築が行われた(Cremers et al., 1988; Santschi et al., 1990; Zheleznyak et al., 1992; Roed and Andersson, 1996; Sansone et al., 1996; Tegen and Dörr, 1996; Smith et al., 2000; Onishi et al., 2007; Garcia-Sanchez, 2008; Monte, 2014)。現在もなお、各大学や研究所が研究を続けている。

Figure XI. Surface ground deposition of caesium-137 released in Europe after the Chernobyl accident [D13].

Fig. 1.1. Surface contamination of ^{137}Cs in Europe due to the Chernobyl accident (UNSCEAR, 2008).

そのような背景の中で、2011年3月11日以降の東京電力ホールディングズ株式会社福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性核種が環境中に放出された(Chino et al., 2011; Stohl et al., 2012; Katata et al., 2012; Terada et al., 2012; Kobayashi et al., 2013; Buesseler, 2014) (Fig. 1.2)。環境中に放出された放射性核種のうち、多数の地点の土壤中に存在が確認されたのは、セシウム(^{134}Cs , ^{137}Cs)、ヨウ素(^{131}I)、テルル($^{129\text{m}}\text{Te}$)、銀($^{110\text{m}}\text{Ag}$)、プルトニウム(^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu)、ストロンチウム(^{89}Sr , ^{90}Sr)であった(Saito et al., 2015)。なかでも半減期の長さ(^{134}Cs : 約2年、 ^{137}Cs : 約30年)や放出量の観点から、今回の福島第一原子力発電所事故によって被ばくに関与する物質は、放射性セシウムと考えられる。さらに、長期的な影響を考えると半減期が約30年の ^{137}Cs が最も重要な放射性核種と考えられる。原水爆実験由来、そしてチェルノブイリ事故由来の放射性セシウムの環境中における挙動は世界中で研究がなされてきたが、気候や地形、土壌や植生等、場所が異なれば当然環境が異なるので、環境中における挙動も当然異なることが予想される。

特に、福島県は、急峻な山間部を持ち、その約 70%が森林に覆われ(MAFF,2012)、アジア特有の水田を有し、非常に降水量の多いモンスーン地帯である。従って、過去の知見を活かしつつも、そういった違いに留意しつつ、福島特有の挙動を把握する必要がある。さらに、日本は大体的な除染活動を実施しており、さらに避難した人々が段階的に帰還もしている(福島県, 2018)。強制移住が行われ、あまり除染も行われておらず、帰還も行われていないチェルノブイリ事故とは事情も異なることが推察される。

従って、放射性セシウムが森林から河川、ダム湖、海洋へと流出する過程を十分に把握し、環境動態や除染に基づく空間線量、被ばく評価、特に面積の多い森林や住民が住んでいる市街地が重要であると考えられる。

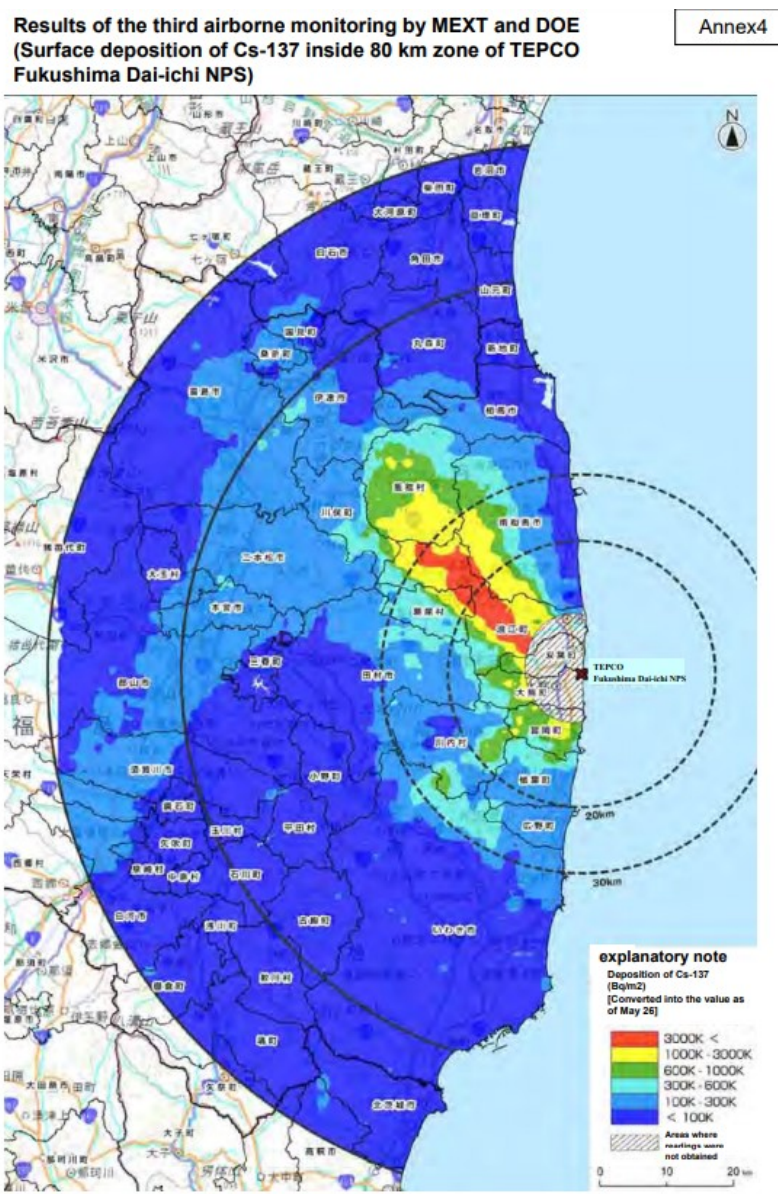


Fig. 1.2. Deposition of ¹³⁷Cs in Fukushima due to the Fukushima accident (NRA, 2011).

1.2. 既往研究

放射性セシウム(以降、放射性 Cs)は土壌中の粘土鉱物に強く取り込まれる特徴がある(Akai et al., 2013; Kozai et al., 2012; Tanaka et al., 2013)。事故初期においては、溶存態 Cs として流出している割合も 8-55% と多かったが(Nagao et al., 2013; Ueda et al., 2013; Yamashiki et al., 2014)、徐々にその割合は低下し(1-30%)、懸濁態由来の流出が大半を占めた(Nagao et al., 2013, 2015; Ueda et al., 2013; Yamashiki et al., 2014; Yoshikawa et al., 2014; Sakaguchi et al., 2015; Iwagami et al., 2016)。特に、懸濁態 Cs の流出は、台風等の出水時に年間流出のほとんどを占めることがわかった(Nagao et al., 2013; Chartin et al., 2013; Ueda et al., 2013; Yamashiki et al., 2014; Evrard et al., 2015; Yamasaki et al., 2016)。しかし、平水時に限ってみると、平水時は懸濁態 Cs の割合が少なく、溶存態 Cs の割合が 16-91% と多いことも複数報告された(Ochiai et al., 2015; Eyrolle-Boyer et al., 2016; Tsuji et al., 2016)。流域内の再分布への寄与として、懸濁態 Cs は流域内に留まるか、太平洋へと流出するかのどちらかである(Tanaka et al., 2015)。溶存態 Cs は流域内の放射性 Cs の再分布にあまり寄与しないとはいえ、生物利用性の高さから非常に重要な存在形態である(Yoshikawa et al., 2014; Uematsu et al., 2017)。

河川水中の懸濁態 Cs 濃度(Bq/kg)と溶存態 Cs 濃度(Bq/L)は、初期の流域沈着量(Bq/m²)に正の相関を示すことが多数報告されている(Tsuji et al., 2014a; Ochiai et al., 2015; Yoshimura et al., 2015b; Eyrolle-Boyer et al., 2016)。Yoshimura et al. (2015b)は、懸濁態 Cs 濃度と溶存態 Cs 濃度も正の相関があることを示しており、一方、Ochiai et al. (2015)では弱い相関であることを報告している。また溶存態 Cs の特徴として、Shinomiya et al. (2014)、Yoshikawa et al. (2014)、Tsuji et al. (2016)は、平水時に比べ出水時の濃度が上昇する傾向があることを報告している。Tsuji et al. (2016)は、さらに平水時の溶存態 Cs 濃度は季節変動すること(夏季に高く、冬季に低い)を報告している。

上流域のダムが存在によって、下流域への土砂供給を大幅に抑制する効果、すなわち放射性 Cs の下流への汚染の拡大を抑制する効果が Kurikami et al. (2014; 2016)および Yamada et al. (2015)によって報告されている。降水強度やダム湖の大きさ等様々なファクターが関与するものの、約 90% 程度の放射性 Cs 貯留効果があると報告されている。また水田からの流出に関しては、Yoshimura et al. (2016)によると、他の土

地利用よりも懸濁態 Cs 濃度の減少速度が速く、河川への影響の大きさを示唆している。

陸域のモデル研究としては、福島県内を対象に、流域スケールで土壌や放射性 Cs 流出を表現するモデル開発等が多数報告されている(Yamaguchi et al., 2014; Kitamura et al., 2014; Kinouchi et al., 2015; Mori et al., 2014, 2015; Wei et al., 2017)。Yamaguchi et al. (2014)および Kitamura et al. (2014)では、経験的な土砂流亡式(USLE)を用いた SACT (Soil And Cesium Transport)モデルを開発し、福島県の 14 の流域(5432 km²)を対象に流域からの年単位の土砂・放射性 Cs 流出量を算出している。Kinouchi et al. (2015)では、阿武隈川水系の口太川(140 km²)を対象に、物理ベースの流域モデル WEP (Water and Energy transfer Processes)を改良し、水、土砂、放射性 Cs の流出量解析を実施している。Mori et al. (2015)では、統合型流域物理モデル GETFLOWS (GEneral purpose Terrestrial fluid-FLOW Simulator)を用いて、堀川ダム流域(15 km²)を対象に、水、土砂、放射性 Cs の流出、再分布解析を実施している。

森林内における放射性 Cs の挙動については、事故初期においては、針葉樹の樹冠に大部分が沈着(Kato et al., 2012)し、その後、雨や落葉等によって林床へ移動する(Kato et al., 2017; Teramaga et al., 2014; Endo et al., 2015)。林床においては、落葉層から土壌層へ徐々に移動し、深さ方向の放射性 Cs 量が増加してきている(Imamura et al., 2017)。一方、広葉樹においては、事故初期の 3 月には落葉していたため、樹冠には沈着せず、多くは直接落葉層や土壌層へ沈着した(Imamura et al., 2017)。土壌層に移動した放射性 Cs の一部は、根を介して再び樹木内部へと移動する可能性が指摘されている(Yoschenko et al., 2017)。さらに、森林内から森林外への流出量は、いくつかの観測事例から非常に少ないことが報告されている(Yoshimura et al., 2015a; Niizato et al., 2016)。

森林内における空間線量評価については、Gonze et al. (2016)が植生と土壌のレイヤーを作成し、モンテカルロシミュレーションに基づいた評価を行っている。今村ら(2017)は、樹冠層、落葉層、土壌層に分割し、各層に放射性 Cs 量を配置し、解析的に空間線量を評価している。

市街地においては、日本原子力研究開発機構が事故初期に除染モデル実証事業の中で、詳細に空間線量のモニタリングや除染効果等を評価している。Yoshimura et al. (2017)は、家屋の屋根や壁、近傍の土壌、舗装面等で計測することによって、土壌に沈着した量に対する各面の割合を評価している。また佐久間ら(2015)においては、チェルノブイリ原子力発電所事故後にヨーロッパを中心に作成されてきた市街地で

の被ばく評価モデル ERMIN (The European Model for Inhabited Areas)を用いて、福島県富岡町の除染モデル実証事業サイトを対象に、除染前後の空間線量率や除染をすることによる被ばく量の低減効果とコストや廃棄物量等から総合的に除染計画を策定する方法を報告している。

1.3. 研究目的

本研究の最終目的は、環境中の放射性 Cs 動態解析結果をもとに、森林内や市街地における空間線量率評価である。しかしながら、現段階においては、各々開発、検証中であるため、現段階における本研究の目的は次の2つとなる。1つは流域物理モデル GETFLOWS を用いた放射性 Cs の流出解析、1つは放射線輸送コード PHITS を用いた森林内の空間線量評価である。

流域物理モデルを用いた放射性 Cs の動態解析研究は、チェルノブイリ事故後は開発されておらず、福島事故後に開発されてきた。水循環のみの流域物理モデルは世界中にいくつもあるが(例えば、Frei et al., 2009; Vanderkwaak and Loague, 2001; Sciuto and Dieckkruger, 2010)、中でも GETFLOWS はその信頼性の高さや水の流域解析の事例の多さ、土砂および放射性 Cs 輸送を既にモデル化していることから、本研究で用いることとした。しかし、放射性 Cs 動態解析に関しては、まだまだ開発途上で、実測値の再現性の検証や、GETFLOWS を用いた放射性 Cs の再分布評価や懸濁態 Cs のみならず、溶存態 Cs の再現性検証等の課題が多い。そこで、福島の調査対象地域を対象に、実測値が豊富に取られている調査サイトに適用し、モデルの検証を通じて、フィールド調査ではとらえきれない現象、例えば流域毎の流出特性、あるいは面的な放射性 Cs の再分布等を解析することによって、流域スケールでの放射性 Cs 動態を理解することを目的とする。さらに、一般的に懸濁態 Cs と溶存態 Cs の分配の比を表す分配係数 K_d を用いて解析が実施されることがほとんどであるが、河川水中の溶存態 Cs を再現し得るかどうかの検証はまだなされていない。そこに関しても検証を通じて、フィールドにおける放射性 Cs 動態を理解することを目的とする。

放射性輸送コードを用いた森林内の空間線量評価については、日本原子力研究開発機構が保有するコードに PHITS (The Particle and Heavy Ion Transport code System) (Sato et al., 2018)があるが、過去には平面に分布した放射性 Cs からの空間線量率評価(Malins et al., 2016)、斜面を考慮した評価(Malins et al., 2015)や、家屋内での評価(Furuta et al., 2015)は行われてきたものの、森林内での評価は実施されてこなかった。

そこで、樹木や落葉層をモデル化するツールを開発し、PHITSを用いて、森林内の空間線量を評価することを目的とする。

2 流域物理モデルを用いた福島原発事故由来の ^{137}Cs 輸送解析

2.1. 流域物理モデル(GETFLOWS)の概要

GETFLOWS (GEneral purpose Terrestrial fluid-FLOW Simulator)は、株式会社地圏環境テクノロジーが開発した統合型水循環シミュレーターである(Tosaka et al., 2000; 2010)。GETFLOWS では地表水と地下水を同時に解くことによって、流域全体の水循環および流出量を精度よく再現することが可能である。雨滴侵食および地表流の流れに伴う土砂流亡および輸送を解き、地表流および地下水の流れに従い、溶存態 Cs 輸送を計算する。懸濁態 Cs および溶存態 Cs の分配比を表す分配係数 K_d を用いて、懸濁態 Cs および溶存態 Cs の相互作用を考慮しながら、懸濁態 Cs および溶存態 Cs 輸送を計算することによって、流域全体での放射性 Cs 動態解析を実施する(Mori et al., 2014; 2015)。Fig. 2.1 に GETFLOWS の概要を示す。

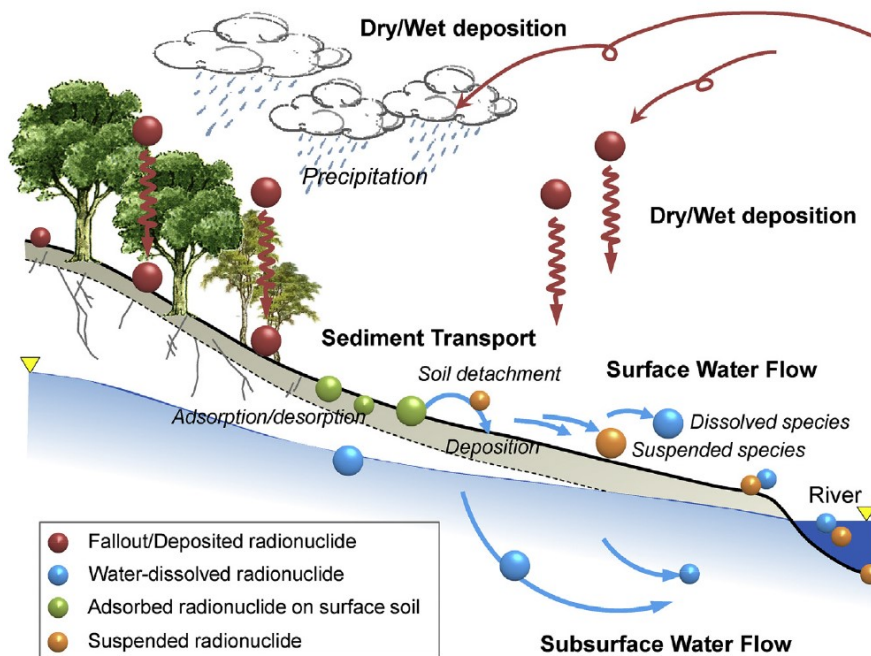


Fig. 1. Schematic representation of fallout radionuclide redistribution in a watershed system.

Fig. 2.1. Schematic diagram of GETFLOWS simulators (Mori et al., 2015).

2.2. 支配方程式

水・空気 2 相流体について

$$-\nabla \cdot M_p - q_p = \frac{\partial}{\partial t} (\rho_p \phi S_p) \quad (2-1)$$

ここで M_p は質量フラックス ($\text{kg}/\text{m}^2/\text{s}$)、 q_p はシンクソース項 ($\text{kg}/\text{m}^3/\text{s}$)、 ρ_p は密度 (kg/m^3)、 ϕ は有効間隙率 (m^3/m^3)、 S_p は飽和率 (m^3/m^3)、 t は時間 (s) である。添え字の p は空気 (a) あるいは水 (w) を表す。地表流はマニング則に従い、2次元の浅水波近似を仮定している。地下水流は一般化ダルシー則に従い、地表と地下の空気の流れと同様に3次元で表す。それらの方程式は以下の通りである。

$$\text{地表流: } M_w = -\frac{\rho_w R^{2/3}}{n_l} \sqrt{\left| \frac{\partial h}{\partial l} + \frac{\partial Z}{\partial l} \right|} \text{sgn} \left(\frac{\partial h}{\partial l} + \frac{\partial Z}{\partial l} \right), (l = x, y) \quad (2-2)$$

$$\text{地下水流: } M_w = -\frac{\rho_w K k_{r,w}}{\mu_w} \nabla (P_w + \rho_w g Z) \quad (2-3)$$

$$\text{地上と地下の空気流れ: } M_a = -\frac{\rho_a K k_{r,a}}{\mu_a} \nabla (P_a + \rho_a g Z) \quad (2-4)$$

ここで R は径深 (m)、 n_l はマニングの等価粗度係数 ($\text{m}^{-1/3} \text{s}$)、 h は地表水水深 (m)、 Z は基本水準面からの標高 (m)、 K は絶対浸透率 (m^2)、 μ_a と μ_w は粘性係数 (Pa s)、 $k_{r,a}$ と $k_{r,w}$ は相対透気係数および相対透水係数 (-)、 P_a と P_w は空気と水の圧力 (Pa)、 g は重力加速度 (m^2/s) である。

地下の物理的取り扱いは次の通りである。地下水面上の不飽和帯については、van Genuchten (1980) curves に基づき、Fig. 2.2 のように相対透気係数、相対透水係数および毛細管圧力は水飽和率に従う関数としている。これらのパラメータを算出するにあたり Japan Nuclear Cycle Development Institute (1999)、Kinouchi et al. (2011) および Japan Institute of Construction Engineering (2012) を用いた。

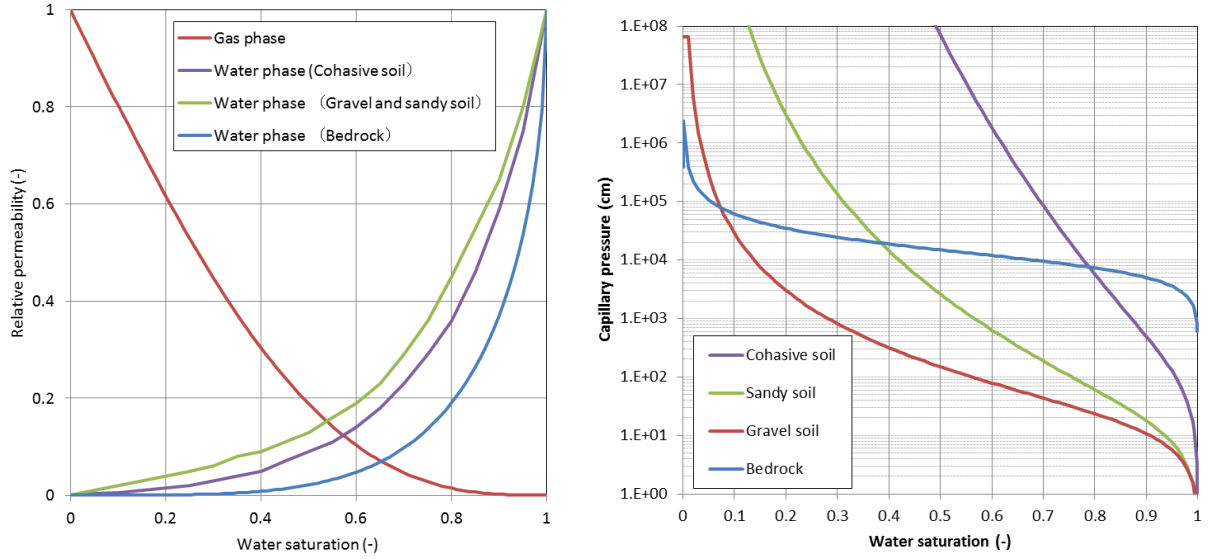


Fig. 2.2. Relative permeability curves and capillary pressure curves for surface soil and subsurface grid blocks.

土砂輸送について

GETFLOWS では、降水と地表流による土壌流亡プロセスを考慮している。降水による土壌の雨滴侵食は林内雨の影響を考慮している(Torri et al., 1987; Brandt, 1990)。地表流による土壌侵食は次の文献を参考にした。Govers (1990)、Morgan et al. (1998)および Kabir et al. (2011)である。侵食によって剥離した土壌は地表水の流れに従って流下する。その浮遊砂の支配方程式は以下の通りである。

$$-\nabla(M_w R_{ss,i}) + \nabla \cdot D_{ss,i} \nabla(\rho_w R_{ss,i}) - q_{ss,i} + \frac{m_{ss,i}^{splash} + m_{ss,i}^{erosion}}{d_e} = \frac{\partial}{\partial t}(\rho_w R_{ss,i}) \quad (2-5)$$

ここで $R_{ss,i}$ は粒径成分 i の浮遊砂濃度 (kg/kg)、 $D_{ss,i}$ は粒径成分 i の浮遊砂の地表水中拡散係数 (m^2/s)、 $q_{ss,i}$ は灌漑用水の取水等によるシンクソース項 ($\text{kg}/\text{m}^3/\text{s}$)、 $m_{ss,i}^{splash}$ は粒径成分 i の雨滴侵食量 ($\text{kg}/\text{m}^2/\text{s}$)、 $m_{ss,i}^{erosion}$ は地表流による粒径成分 i の侵食量 ($\text{kg}/\text{m}^2/\text{s}$)、 d_e は水深 (m)である。

表層土壌の層厚は以下で表される。

$$-\frac{1}{1-\phi} \sum_i \left(\frac{m_{ss,i}^{splash} + m_{ss,i}^{erosion}}{\rho_{ss,i}} \right) = \frac{\partial \xi}{\partial t} \quad (2-6)$$

ここで $\rho_{ss,i}$ は土壌粒子密度 (kg/m^3)、 ξ は基準表面からの標高 (m)である。

雨滴侵食に関する方程式は以下の通りである

$$m_{ss,i}^{splash} = SDI \cdot E_r \cdot e^{-Zh} \cdot r_i \quad (2-7)$$

ここで SDI は土壌剥離インデックス (kg/J)、 E_r は降雨の運動エネルギー ($\text{J/m}^2/\text{s}$)、 Z は土性を考慮した経験的パラメータ (-)、 r_i は粒径成分 i の割合 (-) である。降雨の運動エネルギーは直達雨と林内雨によるエネルギーによって表現される (Brandt, 1990)。

$$E_r = (8.95 + 8.44 \log(I)) \cdot (1 - C_c) \cdot (1 - C_L) \cdot H_T + (15.8 \sqrt{PH} - 5.87) \cdot C_c \cdot (1 - C_L) \cdot H_N \quad (2-8)$$

ここで I は降雨強度 (mm/h)、 C_c は樹冠密度 (-)、 C_L 林床被覆率 (-)、 H_T は直達雨量 (mm/s)、 PH は樹高 (m)、 H_N は林内雨量 (mm/s) である。

地表流による土壌侵食、堆積プロセスを表現するために粘着性、非粘着性物質を取り扱える TC (transport capacity theory) 理論を用いた (Kabir et al., 2011; Morgan et al., 1998)。以下のように、この理論は正味の土壌侵食、堆積を推定する。

$$m_{ss,i}^{erosion} = \beta_s \rho_{ss,i} v_{ss,i} (TC - R_{ss,i}) \quad (2-9)$$

ここで β_s は河床の粘着性物質に対する補正係数 (-)、 $v_{ss,i}$ は粒径成分 i の沈降速度 (m/s)、 TC は transport capacity である (後述)。 β_s は以下で与えられる。

$$\beta_s = A e^{B \cdot J} \quad (2-10)$$

ここで A および B は経験的パラメータ ($A=0.79$, $B=-0.85$)、 J は粘着力 (kPa) (Kabir et al., 2011) である。 $v_{ss,i}$ は以下の通りである。

$$v_{ss,i} = \sqrt{\frac{2}{3} \left[\frac{\rho_{ss,i}}{\rho_w} - 1 \right] g D_i + \frac{36v^2}{D_i^2}} - \frac{6v}{D_i} \quad (2-11)$$

ここで D_i は粒径成分 i の代表粒径 (m)、 v は流体の粘性係数 (Pa s) (Rubey, 1933) である。 TC は以下で与えられる。

$$TC = c(10Vs - \omega_{cr})^\eta \quad (2-12)$$

ここで c および η は経験的パラメータ (Morgan et al., 1998)、 V は地表流の速度 (m/s)、 s は傾斜率 (%),

ω_{cr} は Unit stream power の臨界値 (m/s) (Govers, 1990)である。

放射性 Cs 輸送について

放射性 Cs は主に 2 つの形態(懸濁態および溶存態)で環境中を移行する。懸濁態 Cs は浮遊砂(あるいは有機物)に取り込まれた状態で河川水中を移動する形態、溶存態 Cs はイオン状態で地表水及び地下水を移動する形態のことである。懸濁態 Cs および溶存態 Cs の支配方程式は以下の通りである。

$$-\nabla \cdot (M_w R_{ss,i} R_{cs,i}) + \nabla \cdot D_{ss,i} \nabla (\rho_w R_{ss,i} R_{cs,i}) - q_{ss,i} R_{cs,i} - \lambda \rho_w R_{ss,i} R_{cs,i} + \frac{R_{cs,i} m_{ss,i}^{sprash} + R_{cs,i} m_{ss,i}^{erosion}}{d_e} - \rho_w R_{ss,i} m_{ss,i}^{adsorption} = \frac{\partial}{\partial t} (\rho_w R_{ss,i} R_{cs,i}) \quad (2-13)$$

$$-\nabla \cdot (M_w R_{cw}) + \nabla \cdot D_{cw} \nabla (\rho_w R_{cw}) - \rho_w q_w R_{cw} - \lambda \rho_w \phi S_w R_{cw} + \rho_w R_{ss,i} m_i^{adsorption} + \rho_{ss,i} (1 - \phi) m_i^{adsorption} = \frac{\partial}{\partial t} (\rho_w \phi S_w R_{cw}) \quad (2-14)$$

ここで $R_{cs,i}$ は粒径成分 i の浮遊砂中の放射性セシウム濃度 (Bq/kg)、 λ は放射性 Cs の崩壊定数 (1/s)、

$m_{ss,i}^{adsorption}$ は放射性 Cs と粒径成分 i との吸着・脱離量 (Bq/kg/s)、 R_{cw} は水相中の溶存態 Cs 濃度 (Bq/kg)

である。吸脱着項 ($\rho_w R_{ss,i} m_i^{adsorption}$) および ($\rho_{ss,i} (1 - \phi) m_i^{adsorption}$) の前者は地表水中、後者は地下水のみ考慮する。地表水および地下水中の懸濁態 Cs および溶存態 Cs の吸脱着式は以下の通りである。

$$m_{ss,i}^{adsorp} = a_i^{1,2} (R_{ss,i} K_{d,i} R_{cs,i} - R_{cw}) \quad (2-15)$$

ここで $a_i^{1,2}$ は速度定数(1/s)、 $K_{d,i}$ は粒径成分 i の分配係数 (L/kg)である。Fig. 2.3 に地表水中および土壌中における放射性 Cs の固相と水相中の相互作用を示した。地表水中の懸濁態 Cs および溶存態 Cs は分配係数 K_d によって吸脱着反応が起こり、また地下格子の土壌中においても、土壌と間隙水中の溶存態 Cs の間で吸脱着反応が起こる。地表水中の懸濁態 Cs は水平方向の水の流速や勾配に依存して地表水中と土壌中を侵食および堆積しながら、移流、拡散で下流へと移行する。溶存態 Cs に関しては、土壌中は移流・分散で土壌中を移行し、地表水中へは、鉛直方向の水のフラックスに依存して移流・拡散によって移行、流下する。

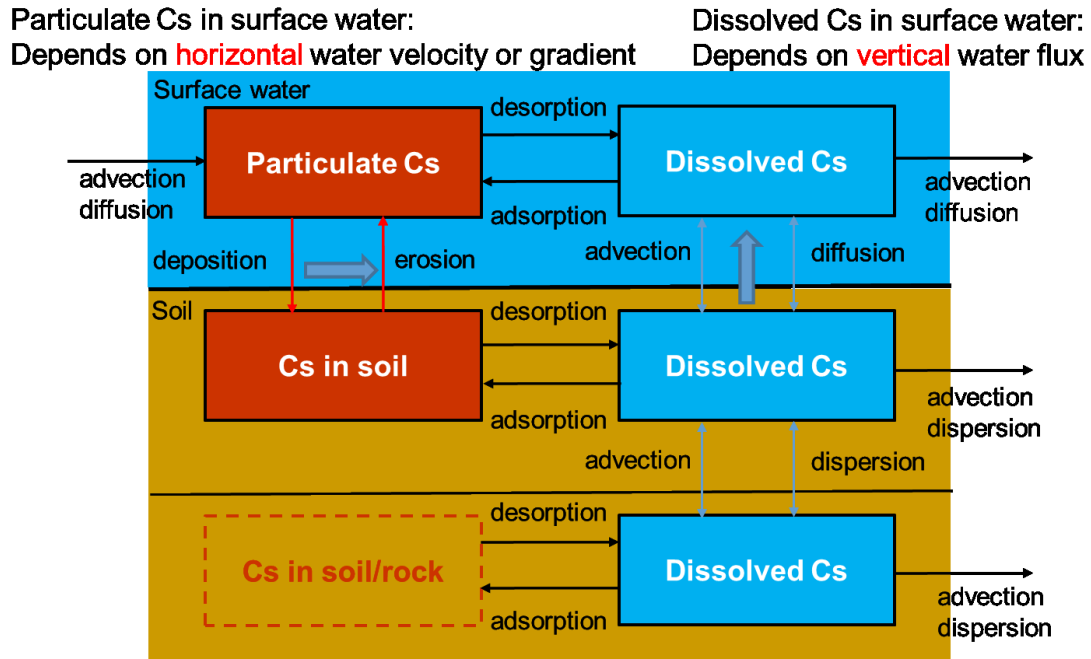


Fig. 2.3. ^{137}Cs transport processes.

2.3. 研究対象領域の概要

流域内の放射性 Cs の流出解析を実施するにあたり、検討課題として以下の 3 つが挙げられる。①流域ごとのどういった特徴が流域から流出する放射性 Cs の挙動に寄与するのか、②小流域においては、どこからどれくらいの放射性 Cs が流出するのか、③環境中の放射性核種の懸濁態および溶存態の存在比を表す見かけの K_d を用いて、溶存態 Cs 流出は計算可能かどうか。上記の 3 つの問いに対して、福島第一原発近傍の 5 河川流域、福島県川内村荻ノ沢(滝川ダム湖)流域および福島県太田川上流域を対象に解析を実施した (Fig. 2.4)。

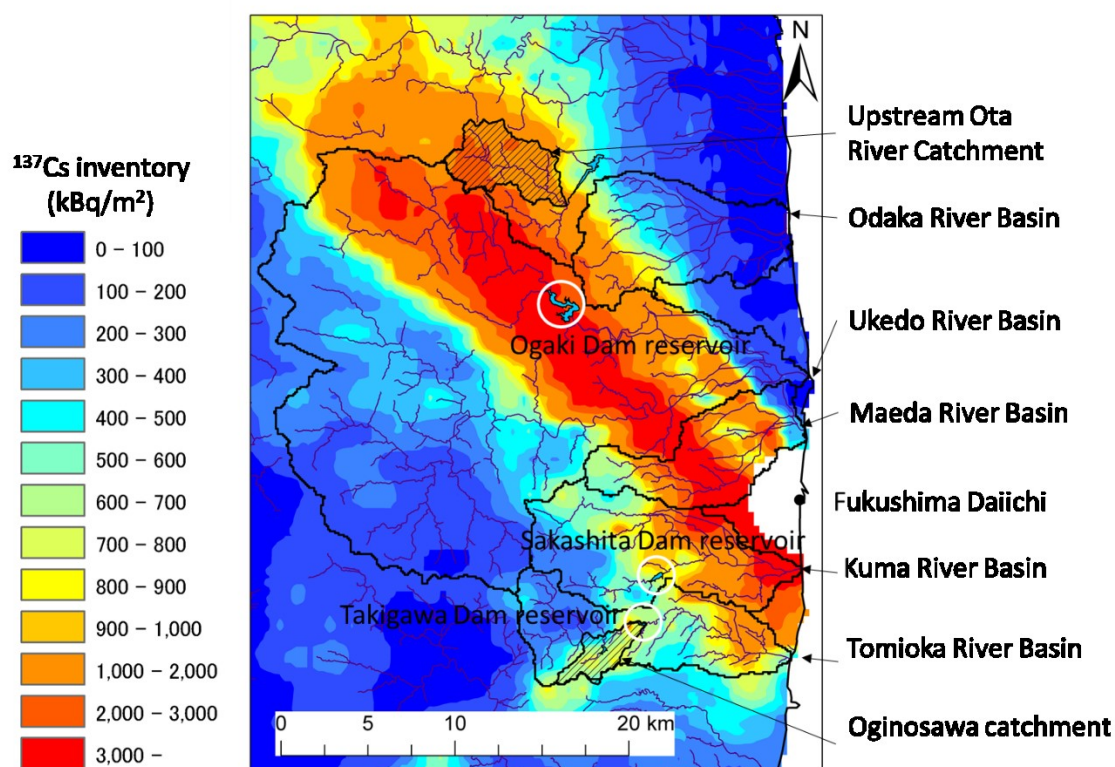


Fig. 2.4. Cesium-137 inventory distribution of five river basin such as Odaka, Ukedo, Maeda, Kuma, and Tomioka River near Fukushima Daiichi and Upstream Ota River and Oginosawa catchment based on the Forth Airborne Monitoring Survey (November, 2011).

福島第一原子力発電所近傍の5河川流域(674 km²)は、小高川、請戸川、前田川、熊川、富岡川を対象とした(**Fig. 2.4**)。対象の全流域の土地利用は森林 60%、水田 22%、畑地 7%、宅地 5%である(MLIT, 2014; MOE, 1986)。各々の流域面積、土地利用および ^{137}Cs 沈着量は **Table 2.1** に示す。表層土壌および地質については、Kitamura et al. (2016)に詳しい。流域間の特徴としては、上流域におけるダム湖の有無、 ^{137}Cs 初期沈着量の空間分布や土地利用の違いや空間分布等が考えられる。

荻ノ沢(滝川ダム湖)流域は、7.7 km²の広さがあり、福島第一原子力発電所から南西に 15 km のところに位置する。 ^{137}Cs の平均沈着量は、約 0.71 MBq/m²である(NRA, 2011)。土地利用は 92%が森林域であり、水田 2%、工業地帯 1%等である。残りは森林の伐採地やダム湖や河川である。荻ダム湖の上流近傍には、水田が広がっている。荻ノ沢は荻ダム湖、さらに滝川ダム湖にそそぎ、その後富岡町の市街地へと流下す

る。対象領域の一部は 2012 年秋ごろから 2014 年の 3 月頃まで除染が実施されていた(MOE, 2017)。除染は水田、草地、庭の表層土壌の剥ぎ取り、住宅地に接する森林縁部 20 m 内のリター除去等である。総除染面積は $\sim 0.3 \text{ km}^2$ であり、これは計算対象流域の $\sim 4\%$ である。従って、シミュレーションを実施する際には、除染の影響も考慮して考察する必要があると考えられる。

太田川上流域は、 21 km^2 の広さがあり、福島第一原子力発電所から北西に 24.4 km のところに位置する。 ^{137}Cs の平均沈着量は、約 1.9 MBq/m^2 である(NRA, 2011)。土地利用は、その 99%以上が森林である(MOE, 2016)。表層土壌は主に森林褐色度である(MLIT, 2016)。基盤岩は主に花崗岩および閃緑岩である(National Institute of Advanced Science and Technology, 2016)。太田川上流域は帰還困難区域内に属し(METI, 2017)、除染は全く行われていない区域である。そのため、人為的な影響は全く考慮する必要がなく、自然由来の要因を考察するには適したサイトである。流域の流出水は横川ダム湖にそそぎ、南相馬市内の農業や工業に利用されている。

Table 2.1. Characteristic of the each catchment.

Catchment	Catchment area (km^2)	Forest (%)	Paddy field (%)	Others (%)	^{137}Cs inventory	Initial (TBq)
Odaka River	68	49	26	25	48	
Ukedo River	424	57	25	18	833	
Maeda River	45	75	8	17	72	
Kuma River	75	71	14	15	86	
Tomioka River	62	71	13	16	38	
Oginosawa (Tomioka River system)	7.7	92	2	6	5.5	
Upstream Ota River	21	99	0	1	40	

2.4. 三次元水理地質構造モデルの作成

福島第一原子力発電所近傍の 5 河川(小高川、請戸川、前田川、熊川、富岡川)流域については **Fig. 2.5** のように 3 次元水理地質構造モデルを作成した。格子は地形を再現するように作成し、河川とその近傍は細かい格子で表し、河川から斜面の方向に向けて粗い格子になるように作成した。格子の水平解像度は 10-250 m(平均 70 m)とした。各格子に対して、**Fig. 2.5** のように土地利用、表層土壌および地質から、水理地質構造を分類した。地表には大気層および地表層を設け、大気層は空気のバッファの役割を果たし、地表層は地表流が流れる層である。土壌・地下層は 28 層からなり、表層ほど細かく、深層ほど粗くなるように作成した (**Table 2.2**)。各層は地質構造に沿うように設定し、地下 1000 m 深さまで格子を作成した。平面格子数は 140,800、総格子数は 4,224,000 である。

荻ノ沢流域および太田川上流域についても同様に **Fig. 2.6** および **Fig. 2.7** に表す。荻ノ沢流域については、詳細な土壌侵食、堆積および放射性 Cs 輸送解析を実施するため、約 10 m の細かい格子を用いて離散化した。鉛直方向の層のモデル化は 5 河川流域と同様に作成した。平面格子数は 62,109、総格子数は 1,863,270 である。太田川上流域については、格子の水平解像度は 5-200 m(平均 40 m)とした。但し、鉛直方向の層は 22 層と少なめに設定したが、深さ方向は同様に、地下 1000 m まで格子を作成した。平面格子数は 13,104、総格子数は 288,288 である。

ダム湖が存在する流域に対しては、**Table 2.3** のように、満水位を設定し、満水位を超えた分を堤の下流側に放流することで、ダム湖をモデル化した。計算期間中のダムの操作はないものと仮定した。

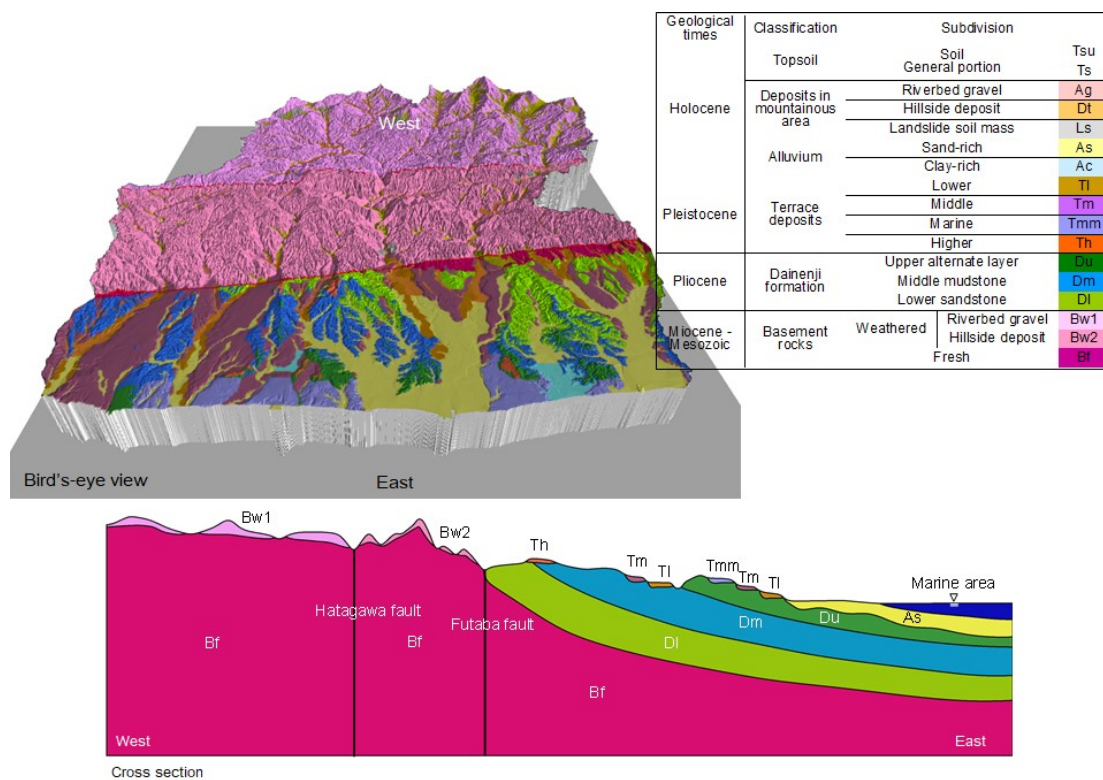


Fig. 2.5. Overviews of the hydrogeological structure model of the five river basins such as Odaka River, Ukedo River, Maeda River, Kuma River, and Tomioka River (Bird's-eye view and cross-section). (Kitamura et al., 2016 による図を一部修正).

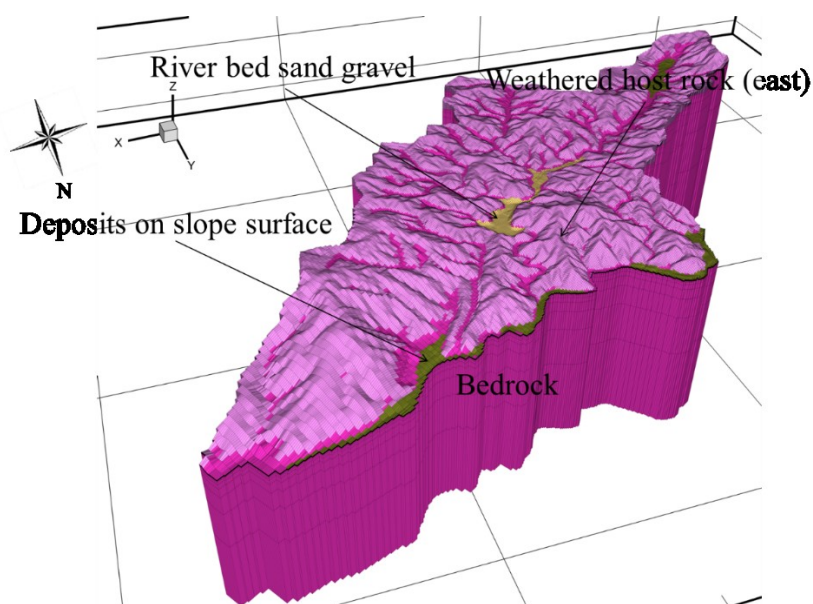


Fig. 2.6. Three dimensional hydrogeological structure model of the Oginosawa River catchment. Colors indicate different deposits and bedrock types (individually labelled).

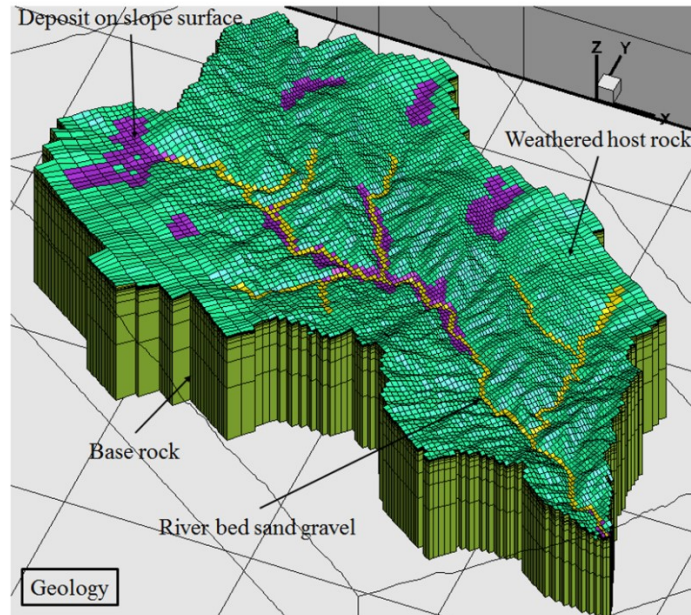


Fig. 2.7. Three dimensional hydrogeological structure model of the upstream Ota River catchment. Colors indicate different deposits and bedrock types (individually labelled).

Table 2.2. Thickness of 28 sub-surface layers.

Layer	Layer thickness (m)	Type
1	0.02	Surface soil
2	0.1	
3	0.18	
4	0.23	
5	0.23	
6	0.23	
7-28	Layers with increasing thickness with depth. Individually thicknesses depend on location	Bedrock, Weathered host rock etc.

Table 2.3. Main dam reservoirs in the study area.

Dam reservoir	River	Volume (1000 m ³)	Max water height (T.P. m)
Ogaki	Ukedo	17300	170
Ogi	Oginosawa	716	357.5*
Sakashita	Ohgawara	2532	127*
Takigawa	Tomioka	5165	215
Tateyama	Tomioka	1286	60*

Data published by association of the dam in japan.

*Calculated value from digital elevation map data of Japan (Geospatial Information Authority of Japan, 2012)

2.5 パラメータ

流域全体の水、土砂、放射性 Cs の挙動を物理的に解くため、GETFLOWS で取り扱うパラメータは多岐にわたる。水・空気の流れ、土砂および放射性 Cs 輸送に関する種々のパラメータを考慮する必要がある。本論文では3か所の流域に GETFLOWS を適用しているが、5河川流域およびその流域内に存在する荻ノ沢流域は同じパラメータセットを用いた。しかし、5流域の北側に位置する太田川上流域については、複数のパラメータについてチューニングを行ったので、別途、Table にまとめたが、それ以外は同様のパラメータセットを用いた。

Table 2.4 に地下層における透水係数および有効間隙率を示した。Table 2.5 に表層土壌層における透水係数、有効間隙率および Fig. 2.2 に示された相対透水・透気係数および毛細管圧カーブのいずれを用いるのかについて示した。Table 2.6 に土壌の粒径区分ごとの存在割合を示した。土壌の粒径区分は6粒径を考慮し、0.001 mm、0.01 mm、0.1 mm、0.3 mm、1 mm、5 mm の代表粒径を設定した。Table 2.7 にマニングの等価粗度係数を示した。Table 2.8 に蒸発散および雨滴侵食に関するパラメータ、例えば樹高、樹冠貯留量、樹冠被覆率、林床貯留量、林床被覆率を示した。Table 2.9 には雨滴侵食および表面流による侵食の起こりやすさを表すパラメータ、例えば SDI および粘着力を示した。Table 2.10 に放射性 Cs に関するパラメータ、特に沈着量、分配係数、水相中の分子拡散係数、土壌中を移流、分散を計算する際に必要な屈曲度や分散長および代表長さを示した。Table 2.11-14 は太田川上流域に関するパラメータである。5河川流域および荻ノ沢流域の計算で用いたパラメータから変更したものについてのみ太字で表した。

Table 2.11 について、出水時の流量を上昇させるために、透水係数を小さくした。**Table 2.12-13** について、出水時の浮遊砂濃度を上昇させるために、土壌侵食を受けた際に浮遊砂濃度が上がりやすいシルト成分の割合を増やし、さらに雨滴侵食時の土壌剥離のしやすさを大きくした。**Table 2.14** について、分配係数は2つのケースを設定した。Case 1 は粒径依存がない場合を想定した。値の設定は実測値に基づき設定した。放射性 Cs は細かい粒子ほど比放射能が高くなる傾向が認められているので(He and Walling, 1996)、粒径依存を考慮した Case 2 を設定した。

Table 2.4. Hydraulic parameters for grid-blocks in the subsurface layers.

Classification	Subdivision	Intrinsic permeability (m/s)	Effective porosity (-)
Deposits in mountainous area	Riverbed gravel	1×10^{-4}	0.3
	Hillside deposit	3×10^{-5}	0.3
	Landslide soil mass	3×10^{-5}	0.3
Alluvium	Sand-rich	H*: 1×10^{-4} V*: 1×10^{-5}	0.3
	Clay-rich	H: 1×10^{-6} V: 1×10^{-7}	0.2
Terrace deposits	Lower, Middle, Marine, Higher	3×10^{-5}	0.3
Dainenji formation	Upper alternate layer	H: 1×10^{-5} V: 1.1×10^{-8}	0.3
	Middle mudstone	1.1×10^{-8}	0.2
	Lower mudstone	H: 1×10^{-6} V: 1×10^{-7}	0.3
Basement rocks	Weathered (western area)	H: 5×10^{-7} V: 1×10^{-8}	0.2
	Weathered (eastern area)	1×10^{-6}	0.2
	Fresh	1×10^{-8}	0.1

*H: horizontal, V: vertical

Table 2.5. Hydraulic parameters for grid-blocks in the surface soil layer.

Land use and land cover	Subsurface	Intrinsic permeability (m/s)	Effective porosity (-)	Relative permeability curve and capillary curve
Urban city		5×10^{-7}	0.25	Sandy soil
Compound		5×10^{-5}	0.3	Gravel soil
Paddy		1×10^{-7}	0.2	Cohesive soil
Mountains and forests, waste land, farmland	Deposit on slope surface	1×10^{-3}	0.5	Gravel soil
	Alluvium with gravel			
	Alluvium with sand			
	Alluvium with clay			Cohesive soil
	Terrace (Lower, Marine, mid, high) Dainenji formation (Upper, Middle, Lower) Weathered host rock			
Sand dune plant	Alluvium with sand			Gravel soil
Glau soil, glau lowland soil, andosol on farmland				Gravel soil
Glau soil, glau lowland soil		1×10^{-7}	0.2	Cohesive soil
Andosol		1×10^{-3}	0.5	Cohesive soil
Peat bed ~ muck soil		1×10^{-5}	0.7	Cohesive soil

Table 2.6. Sediment particle size distribution.

Land use and land cover	Subsurface	Sediment particle size (mm)					
		0.001	0.01	0.1	0.3	1.0	5.0
Urban city Compound		-	-	-	-	-	-
		(Categorized by mountains in forest, waste land, farmland)					
Paddy		0.2	0.6	0.1	0.05	0.05	-
Mountains and forests, waste land, farmland	Deposit on slope surface	0.05	0.3	0.1	0.1	0.15	0.3
	Alluvium with gravel	0.05	0.15	0.1	0.1	0.2	0.4
	Alluvium with sand	0.05	0.15	0.3	0.3	0.2	-
	Alluvium with clay	0.2	0.7	0.1	-	-	-
	Terrace Lower	0.05	0.2	0.15	0.2	0.1	0.3
	Marine, mid, high	0.1	0.6	0.1	0.1	0.1	-
	Dainenji Upper	0.1	0.6	0.1	0.1	0.1	-
	formation Middle	0.2	0.7	0.1	-	-	-
	Lower	0.05	0.55	0.2	0.1	0.1	-
	Weathered host rock	0.05	0.4	0.15	0.2	0.1	0.1
Sand dune plant	Alluvium with sand	-	0.3	0.5	0.2	-	-
Glau soil, glau lowland soil, andosol on farmland		0.2	0.5	0.2	0.05	0.05	-
Glau soil, glau lowland soil		0.2	0.5	0.2	0.05	0.05	-
Andosol		0.1	0.4	0.2	0.2	0.1	-
Peat bed ~ muck soil		0.2	0.6	0.2	-	-	-

Saito et al., 2014.

Nakanishi et al., 2014.

Teramaga et al., 2014.

Takahashi et al., 2015.

Koarashi et al., 2012.

Matsunaga et al., 2013.

Table 2.7. Manning's roughness coefficient for each land use and vegetation.

Land use and vegetation	Manning's roughness coefficient ($\text{m}^{-1/3} \text{ s}$)
Urban area and industrial sites	0.1
Compounds with grass	0.2
Grassland	0.3
Paddy (fallow fields)	0.2
Farmland (abandoned)	0.4
Orchards and mulberry fields	0.4
Land with weeds (<i>Miscanthus sinensis</i>)	0.5
Waterside grassland (<i>Phragmites australis</i>)	0.05
Dune vegetation	0.3
Cutover area	0.5
Conifer forest	0.5
Japanese cedar and Japanese cypress	0.5
Larch	0.5
Broad leaved deciduous trees	0.8
River	0.03
Reservoir	0.01

Table 2.8. Raindrop-induced erosion parameters.

Land use and vegetation	Height (m)	Stem storage (mm)	Crown covering (-)	Floor storage (mm)	Floor covering (-)
Urban areas and industrial sites	0	0.5	0	0	0
Compounds with grass	0.5	0.5	0	0	0
Grassland	0.3	0.5	0.9	0	0
Paddy (fallow fields)	0	0.5	0.9	0	0
Farmland (abandoned)	0.3	0.5	0.9	0	0
Orchards and mulberry fields	3	0.5	0.5	0.25	0.5
Land with weeds (<i>Miscanthus sinensis</i>)	0.5	0.5	0.9	0	0
Waterside grassland (<i>Phragmites australis</i>)	0.05	0.5	0.9	0	0
Dune vegetation	0.3	0.5	0.8	0	0
Cutover area	0.5	0.5	0.9	0	0
Conifer forest	15	1.5	0.8	0.25	0.95
Japanese cedar and Japanese cypress	15	1.5	0.8	0.25	0.95
Larch	15	1.5	0.8	0.25	0.95
Broad leaved deciduous trees	15	1	0.8	0.25	0.95
River	0	0	0	0	0
Reservoir	0	0	0	0	0

Table 2.9. Soil detachment properties.

Land use land cover	Subsurface	Soil Detachability Index (g/J)	Cohesive strength (kPa)
Urban city Compound		-	0
		(Categorized by mountains in forest, waste land, farmland)	
Paddy		2.4	10
Mountains and forests, waste land, farmland	Deposit on slope surface	3	3
	Alluvium with gravel		
	Alluvium with sand		
	Alluvium with clay	2.4	10
	Terrace (Lower, Marine, mid, high)		
	Dainenji formation (Upper, Middle, Lower)		
	Weathered host rock		
Sand dune plant	Alluvium with sand	6	2
Glau soil, glau lowland soil, andosol on farmland		2.4	10
Glau soil, glau lowland soil			
Andosol			
Peat bed ~ muck soil			

Table 2.10. Radio-cesium transport parameters.

Parameters	Unit	Notes
Half-life	y	30.1
Inventory	Bq/m ²	Second Airborne Monitoring Survey ^a
Distribution coefficient K_d	L/kg	400,000 ^b
Molecular diffusion coefficient	m ² /s	2.07×10^{-9} (in water at 25 °C)
Tortuosity factor	-	0.5
Longitudinal and transverse dispersion lengths	m	0.1 (Longitudinal), 0.01 (Transverse)
Representative length	m	1

^a NRA (2011) – excludes 5 km zone surrounding Fukushima Daiichi Nuclear Site

^b IAEA (2010) – for sediment grains up to 0.3 mm, no radio-cesium absorbed to larger grains

Table 2.11. Hydraulic parameters for grid-blocks in the subsurface layers in case of the upstream Ota River Catchment.

Geology	Intrinsic permeability (m/s)	Effective porosity (-)
River bed sand gravel	1×10^{-4}	0.3
Deposits on slope surface	3×10^{-5}	0.3
Weathered host rock (west)	5×10^{-7} (horizontal)	0.2
	1×10^{-8} (vertical)	
Weathered host rock (east)	1×10^{-6} (horizontal)	0.2
	1.5×10^{-7} (vertical)^a	
Bedrock	1×10^{-8}	0.1

^a Tuned for this study such that simulations matched measurements for peak water discharge rates under storm flow conditions

Table 2.12. Sediment particle size distribution in case of the upstream Ota River Catchment.

Soil	Land use	Subsurface	Sediment representative particle size (mm)					
			0.001	0.01	0.1	0.3	1	5
Forest brown soil	River	-	0.01^a	0.04^a	0.25	0.30	0.20	0.20
	Forest	Weathered host rock	0.03^a	0.42^a	0.15	0.2	0.1	0.1
		Deposit on slope surface	0.03^a	0.32^a	0.1	0.1	0.15	0.3
		River bed sand gravel	0.03^a	0.17^a	0.10	0.10	0.20	0.40

^a Tuned for this study such that simulations matched measurements on suspended sediment fluxes under base flow conditions

Table 2.13. Soil detachment properties in case of the upstream Ota River Catchment.

Soil	Land use	Subsurface	SDI (g/J)	Adhesion (kPa)
Forest brown soil	River	-	3.0	-
	Forest	Weathered host rock	50^a	10
		Deposit on slope surface	50^a	3
		River bed sand gravel	50^a	3

^a Tuned for this study such that simulations matched measurements for peak suspended sediment fluxes under storm flow conditions.

Table 2.14. ^{137}Cs transport parameters in case of the upstream Ota River Catchment.

	Unit	Grain size (mm)	Case 1	Case 2
Molecular diffusion coefficient	m^2/s	-	2.1×10^{-9}	2.1×10^{-9}
Tortuosity factor	-	-	0.5	0.5
Dispersion length	m	-	0.1 (Vertical), 0.01 (Horizontal)	0.1 (Vertical), 0.01 (Horizontal)
$a_i^{1,2}$	s^{-1}	All grades	1.2	1.2
		0.001	2.0×10^5	2.0×10^5
		0.01	2.0×10^5	2.0×10^5
Distribution coefficient K_d	L/kg	0.1	2.0×10^5	5.0×10^4
		0.3	2.0×10^5	5.0×10^4
		1	0	0
		5	0	0

2.6. 観測データ

5 河川流域については、Kitamura et al. (2016)において、複数地点で水位、流量、浮遊砂濃度の経時変化に関して、実測値と計算値の比較、評価を実施している。ここでは、各流域の流出点に近い測定点において、2013年1-3月、9-11月に河川断面の測定およびプロペラ式流速計を用いた流速の結果から、流量(m^3/s)を算出した。また、東北農政局 (2014)が、2013年9月、10月に、大柿ダム上流に位置する2つのモニタリングポイント(昼曽根および矢具野)で、出水時における河川水中の懸濁態および溶存態 ^{137}Cs を測定した結果を整理した。

荻ノ沢流域については、2014年9-12月に流量を測定した。流速はプロペラ式流速計を用いて測定し、河川断面は2mのスタッフと10mの巻き尺を用いて測定した。濁度は連続観測装置を設置し、10分ごとに2014年4月9日から2015年12月31日まで測定した。濁度は河川水中の浮遊砂濃度に変換するために、数回河川水を採取し、濁度と浮遊砂濃度の関係を調べた。関係式は次のようになった。

$$\text{浮遊砂濃度 (mg/L)} = 0.874 \times (\text{濁度 (NTU)}) \quad (2-16)$$

この方程式の決定係数は $R^2=0.99$ であったため、精度は問題ないと考えられる。また、2014年から2015年の間、荻ダム湖内において、セディメントトラップを用いた沈降粒子中の懸濁態 ^{137}Cs 濃度を測定した。

セディメントトラップを **Fig. 2.8** 地点の深さ 3.7 m の位置に設置した。自動サンプルチェンジャーが 500

ml のポリプロピレンサンプルボトルを回転させて採取した。土壌試料は 105°C 、24 時間乾燥させ、100 ml のプラスチックコンテナ(U-8 容器)に封入し、Ge 半導体検出器を用いて、放射濃度を測定した。

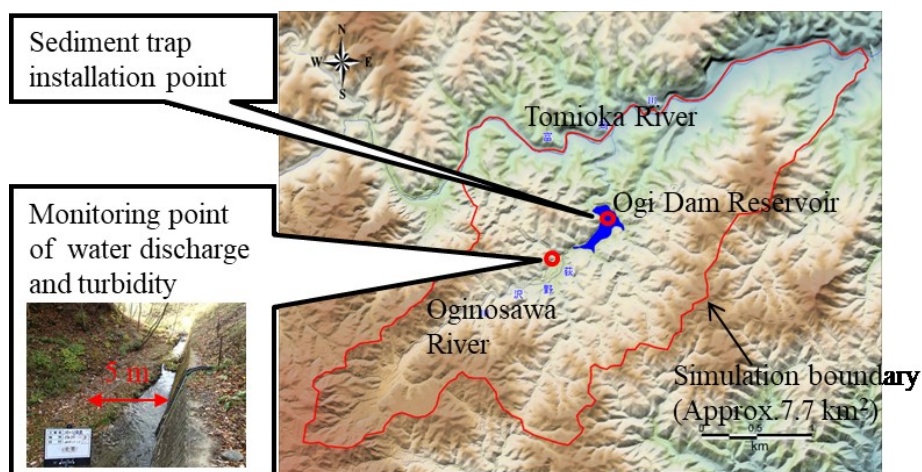


Fig. 2.8. Watershed boundary of the study area and monitoring points for water discharge, turbidity in river water and ^{137}Cs concentration in settling particle.

太田川上流域については、福島県横川ダム事務所によって水位の測定および水位と流量の関係式が得られている。

$$\text{流量 (m}^3\text{/s)} = 38.8 \times (\text{水位 (cm)})^{1.81} \quad (2-17)$$

水位は 1 時間ごとに測定されていて、出水時においては 10 分ごとに測定されるように設定されている。濁度は 2014 年 5 月 29 日から 2015 年 9 月 10 日の間、5-10 分間隔で測定された。濁度から浮遊砂濃度への変換式は、上記と同様に作成し用いた。セシウム 137 の測定は、現場において $1\ \mu\text{m}$ のカードリッジフィルターでろ過し、フィルターに捕捉された粒子を懸濁態として(Tsuji et al., 2014b)、フィルターを通過した溶存態 ^{137}Cs をプルシアンブルー不織布カートリッジで捕捉し(Yasutaka et al., 2015)、Ge 半導体検出器を用いて測定した。

2.7. 計算条件—平衡状態場の計算と解析対象降雨

地表水と地下水を同時に解く、統合型の水循環モデルは、最初に水の流動場の平衡状態を計算する必要がある。つまり、地表面における地表水と地下水のやり取りが完全に平衡状態に達した状態を初期条

件として非定常解析を行わないと、意図せず河川水への地下水からの湧出あるいは河川水から地下水への涵養等が発生する可能性がある。一般的に、水の流動場の平衡状態を得るためには、地下水位を満水にした状態で、降水量から蒸発散量を引いた、有効降水量を流域全体に与え続け、自然に地下水位が下がると同時に河川が地表に形成されるプロセスを、非常に長い時間計算することで達成する。降水量は10年間の年平均降水量を算出し、蒸発散量は Hamon (1961)の式を用いて、対象流域毎に有効降水量を算出し、平衡状態を得る計算を実施した。平衡状態の判定は、地表層と地下層の境界における水の涵養量と湧出量のバランスをモニターし、ゼロに近い値となり計算が安定するまで実施した。水の平衡場を作成した次は、土砂交換層を設け、河川の流れて従って、河床が削られる過程を再現する。この計算においても、河床が形成されるまで計算をし続ける。判定基準としては、河川水中の浮遊砂濃度が非常に小さい値となり安定することとした。さらに、一度、大きな出水イベントを経験させることによって、出水時のみ水に浸水するような領域からの土砂流亡を起こさせることによって、次の出水時に不自然な土砂流亡を発生させないようにした。このように水および土砂に関して流域全体の場を作成した後、放射性 Cs を表層土壌、今回の解析では土壌層の一番上の層厚は 2 cm であるため、表層 2 cm 内に均一の濃度で、航空機モニタリングで得られている ^{137}Cs インベントリ (Bq/m^2) をフォールアウトさせた。実際のフォールアウト時においては、常に水が流れているような河川や湖沼においては、直接土壌にはフォールアウトしないと考えられるので、GETFLOWS で平衡状態を作成した際に、地表水深が 2 cm 以上の計算格子に関しては、沈着量を $0 \text{ Bq}/\text{m}^2$ とした。

実際の非定常解析時の各気象に関するデータは次の通りである。5 流域に関しては、流域面積が広いので、流域内に複数のアメダス観測地点が存在することになる。従って、複数の地点をどのように計算格子に割り当てるかを考える必要があるが、今回は、地点毎の垂直二等分線で領域を分けるポロノイ分割を採用した。非定常解析時においては、降水量は入力データとして与えるが、蒸発散量は地表格子における熱収支式を計算することによって算出する。従って、温度、日射時間、平均風速、相対湿度も入力データとして取り扱う。さらに、アメダスが設置されている空間解像度は、非常に粗いため、出水時の降水量に関しては 1 km 解像度のレーダーアメダス雨量を 5 流域および荻ダム流域解析で採用した。太田川流域においては、流域の中央位置に、雨量計が設置されていること、対象流域が 21 km^2 と比較的小さいため、

レーダーアメダスデータは用いず、雨量計のデータのみを降水量のデータとして取り扱った。詳細は **Table 2.15** に示した。温度は標高に応じて異なるので、格子ごとに標高を参照して、 $-0.0057\text{ }^\circ\text{C/m}$ の補正をしている。

5 流域の計算対象は、2011 年 9 月の台風 Roke 時および 2013 年の 9 つの出水イベントを対象とした。いずれも計算の 3 日間を対象として計算を実施した。荻ノ沢流域の計算対象は、放射性 Cs を降下させた 2011 年 5 月 26 日から、2015 年 12 月 31 日までの約 4 年半を対象とした。太田川上流域は、観測値を取得し始めた 2014 年 1 月 1 日から 2015 年 12 月 31 日の 2 年間を対象とした。

Table 2.15. Weather monitoring stations at each simulation catchment.

Simulation site	Precipitation	Air temperature Sunshine duration Wind velocity	Relative humidity	Reference
Five river basins	5 AMeDAS stations and RaderAMeDAS	5 AMeDAS stations	3 AMeDAS stations	JMA, 2011 and 2013
Oginosawa	Kawauchi station and RaderAMeDAS	Kawauchi station	Onahama station	JMA, 2011-2015
Upstream Ota river	Rain gauge station of the center of the catchment	Haramachi and Namie stations	Souma station	Tsuji et al. (2016) JMA, 2014 and 2015

5 流域および 5 流域内に位置する荻ノ沢流域については、第 2 次航空機モニタリングデータを利用した。これは計算対象時期が、2011 年からスタートしているため、測定時期が 2011 年 5 月 26 日と事故後比較的早く取得された航空機データ(NRA, 2011)を用いた。しかし、太田川上流域の計算対象時期は、2014 年からなので、最もその時期に近い 2013 年 11 月 2-19 日に測定された第 8 時航空機モニタリングデータ(NRA, 2014)を使用した。第 8 時航空機モニタリングデータからは、土壌中の沈着量(Bq/m^2)は公表されておらず、空間線量率($\mu\text{Sv/h}$)のみしか存在しない。そこで、空間線量率から沈着量を換算した。換算方法は、まず自然由来の放射量を航空機の測定値から引いた。自然由来の放射量は $0.05\text{ }\mu\text{Sv/h}$ を仮定した。次に、土壌中の放射性 Cs の存在分布を、指数関数的に地表から減少すると仮定し、緩衝重量深度を 2.0 g/cm^2 と仮定した。この値は、福島県内でスクレーパープレートを用いて土壌中の深度プロファイルを多数地

2 流域物理モデルを用いた福島原発事故由来の ^{137}Cs 輸送解析

点で経年的に測定しているデータを内挿することによって求めた(Malins et al., 2016)。異なる緩衝重量深度ごとに ^{134}Cs および ^{137}Cs が土壌中に存在する際の、地表 1 m 高さの空間線量率と沈着量(Bq/m^2)の換算係数は Saito and Pretoussi-Henss (2014)にまとめられている。緩衝重量深度が $2.0 \text{ g}/\text{cm}^2$ の時の換算係数を用いて、計算格子ごとの沈着量に変換した。

我々のモデルは地上の樹木やリター層を考慮していない。そのため、太田川上流域は森林の面積割合が 99%以上であるため、流出解析に影響を及ぼしかねない。そこで、MAFF (2015)のデータから、2013 年時点で針葉樹および広葉樹の地表バイオマス中に存在する放射性 Cs 割合を算出し、計算格子にフォールアウトさせる ^{137}Cs 量を引いた。具体的には、針葉樹については、全量に 0.73、広葉樹については、0.78 をかけた量を、実際に土壌中に存在する量として計算を実施した。

3 水、土砂、¹³⁷Cs 輸送解析結果

3.1 で 5 河川流域、3.2 で荻ノ沢流域、3.3 で太田川上流域の結果および考察を述べる。

3.1 異なる降雨強度による流域毎の放射性 Cs 流出特性

3.1.1. 地表流および地下水流れの結果

モデルの水の流れの妥当性の確認を行うために、小高川、請戸川、前田川、熊川、富岡川で観測された流量と計算値の比較をした。観測値は平水時および出水時を網羅した 2013 年の結果を用いた。**Fig. 3.1** に示すように、いずれの観測地点においても、計算値は観測値をよく再現していることを確認した。

GETFLOWS では地表流だけでなく地下水流の計算を同時に実施している。GETFLOWS では事前に河川の流れる場所を指定するのではなく、地下水流を計算することによって自然と地表流が発生し、河川が形成される仕組みで計算を実施している。**Fig. 3.2** は平衡状態時における流域全体の地表流および地下水流の流線を示した図である。地表流は計算対象流域において河川の実際の場所を流れていることが確認でき、シミュレーションは正確に流域の涵養と流出の現象を再現していると考えられる。**Fig. 3.3** は自由地下水位のコンター図である。コンター図は正しく地形を再現していることが確認できる。**Fig. 3.4** は涵養と流出フラックスを示す。双葉断層の西側において、地上に降下した雨は 2-4 mm/d の速度で涵養し (**Fig. 3.4 a**)、双葉断層の東側の沖積層において、比較的低い涵養量となっている(0-2 mm/d) (**Fig. 3.4 a**)。地下水の流出は主に河床において生じている(**Fig. 3.4 b**)。

2011 年台風 Roke および 2013 年の 9 つの出水イベント時(降水量は **Fig. 3.5** に示す)における小高川、請戸川、前田川、熊川、富岡川から太平洋への総流出量の結果を **Table 3.1** に示した。同様に大柿ダムへの流入量についても示した。それらの結果は同様に **Fig. 3.6** に図示した。

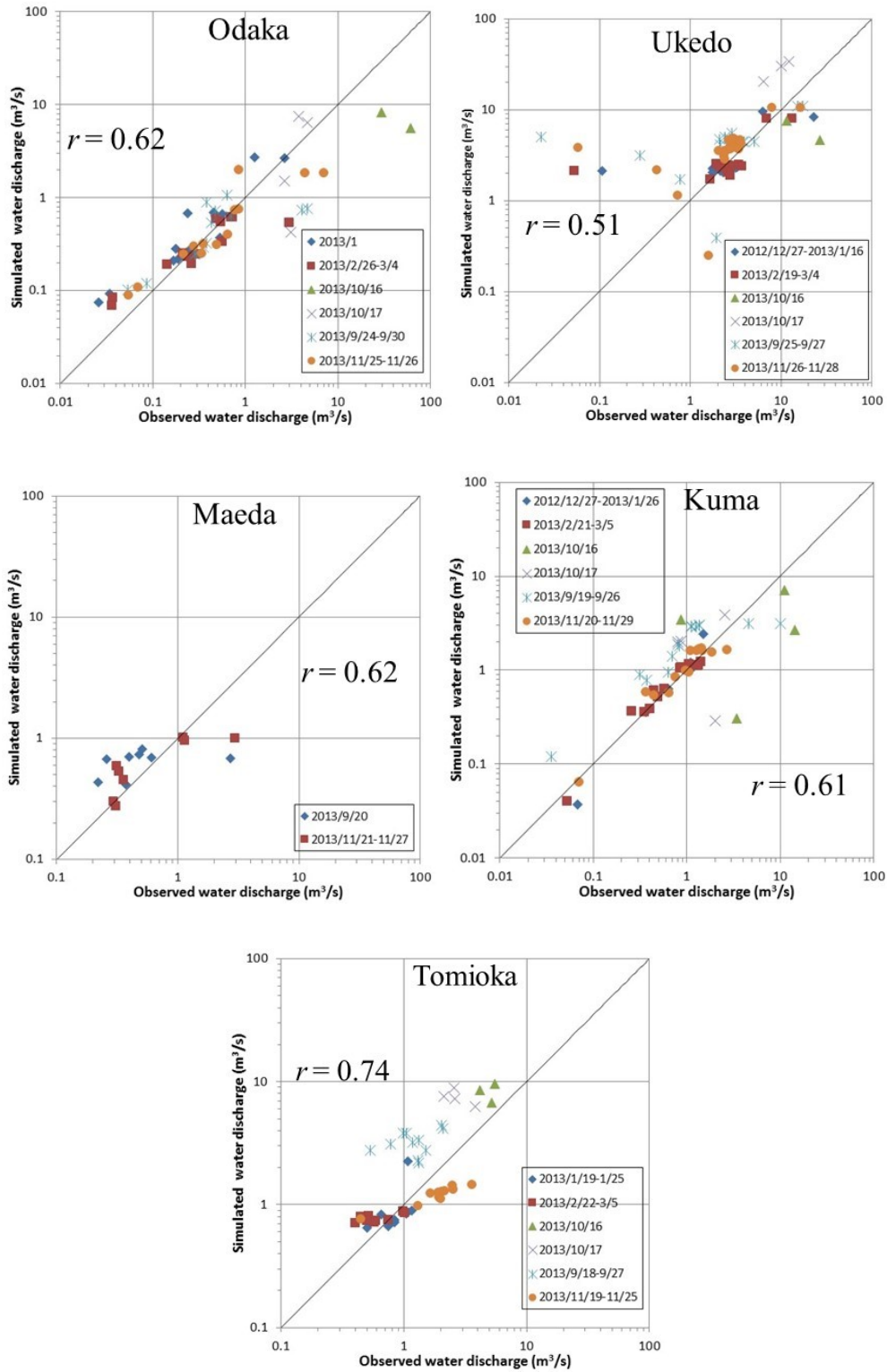


Fig. 3.1. Comparison of simulated with observed water discharge rates at monitoring stations on the Odaka, Ukedo, Maeda, Kuma and Tomioka Rivers. Superimposed on each panel is the Pearson correlation coefficient (r).

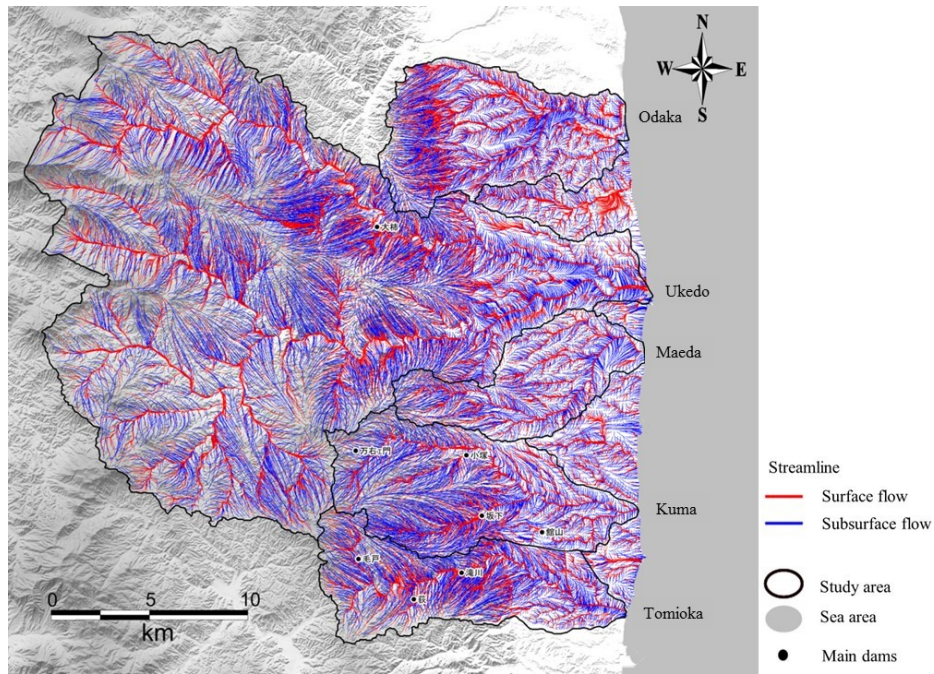


Fig. 3.2. Streamlines of surface water flow and subsurface flow of the study area under ambient flow conditions.

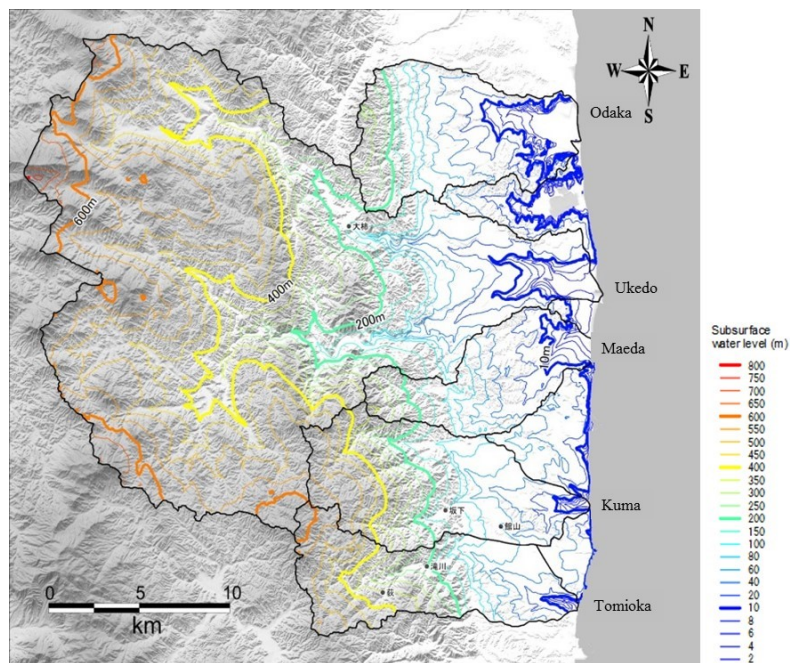
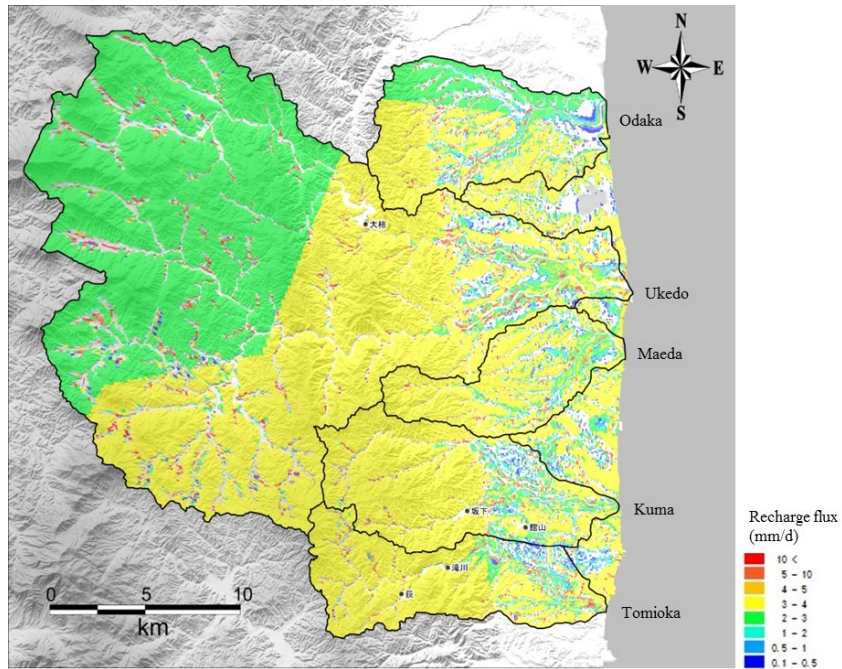
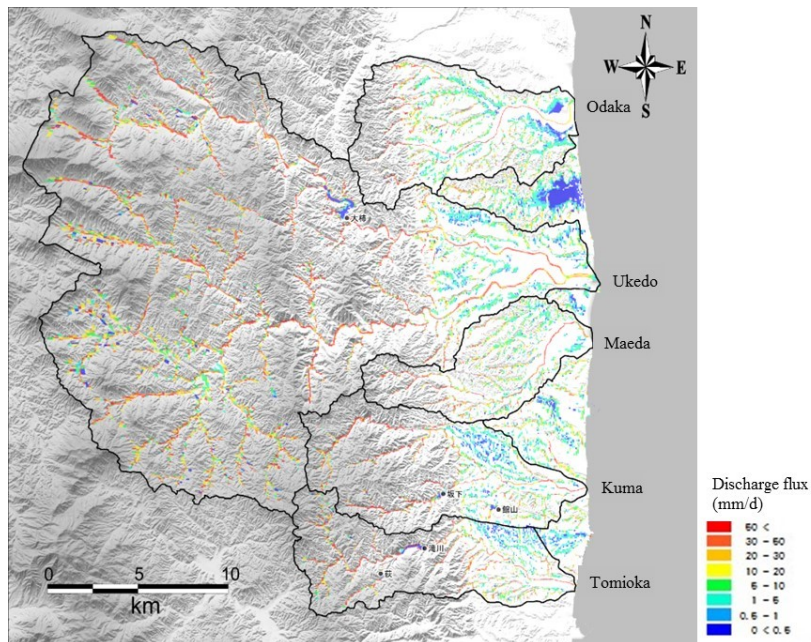


Fig. 3.3. Subsurface water table contours under ambient conditions.



(a)



(b)

Fig. 3.4. (a) Recharge flux and (b) discharge flux of groundwater through the land surface in the study area under ambient conditions.

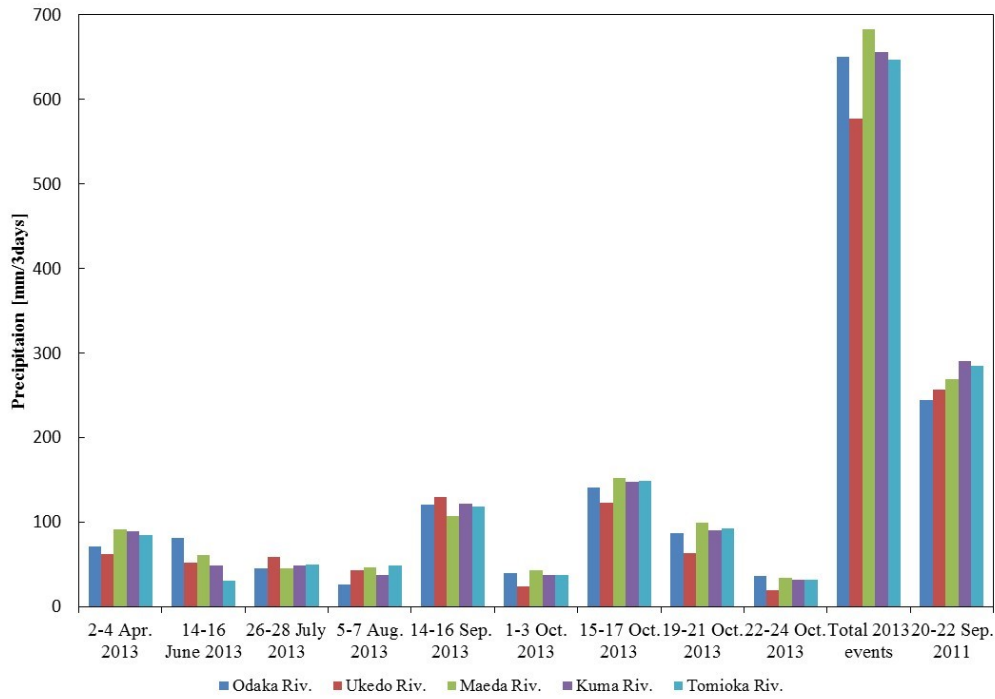


Fig. 3.5. Precipitation within each river basin over the periods of the different rainfall events.

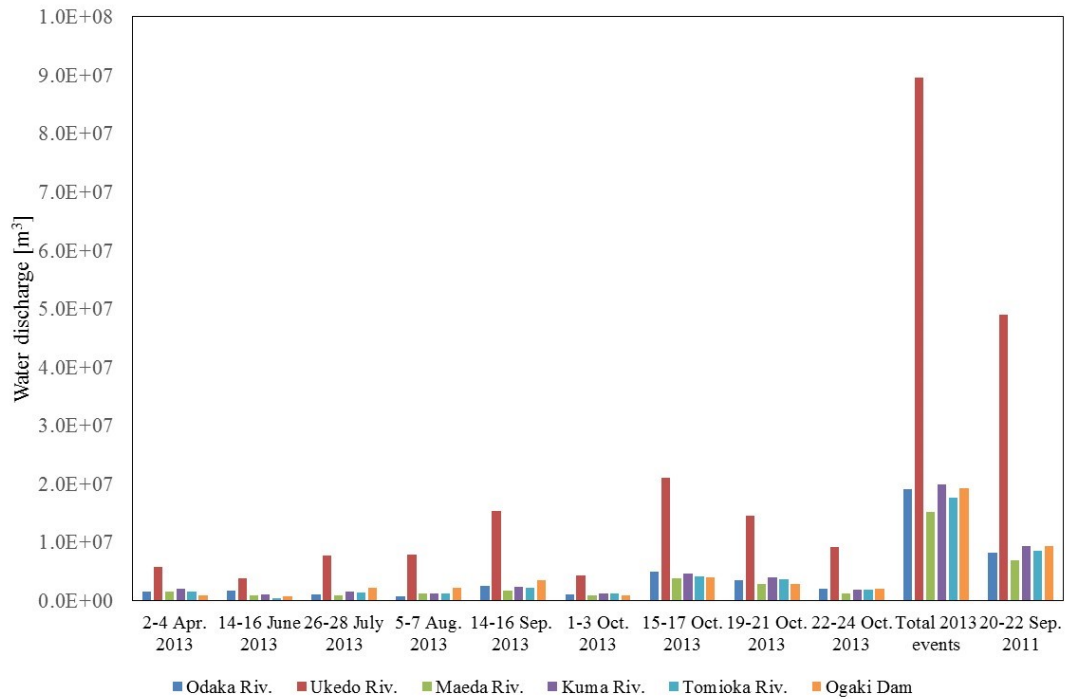


Fig. 3.6. Total water discharge from the Odaka, Ukedo, Maeda, Kuma and Tomioka rivers to the Pacific Ocean over September 2011 Typhoon Roke and the 2013 rainfall events. Also included are orange bars showing total water inflow to the Ogaki Dam over each period.

Table 3.1. Amount of water discharge to the ocean over nine heavy rainfall events in 2013, as well as Typhoon Roke in September 2011. Final column shows water inflow to the Ogaki Dam Reservoir in the Ukedo basin over the rainfall events.

Period	Total water discharge to ocean (m ³)					Total water inflow to dam (m ³)
	Odaka	Ukedo	Maeda	Kuma	Tomioka	Ogaki Dam
	Riv.	Riv.	Riv.	Riv.	Riv.	
2-4 Apr. 2013	1.57E+06	5.78E+06	1.56E+06	2.02E+06	1.60E+06	9.04E+05
14-16 June 2013	1.66E+06	3.88E+06	9.55E+05	1.01E+06	4.71E+05	7.46E+05
26-28 July 2013	1.09E+06	7.70E+06	8.97E+05	1.56E+06	1.38E+06	2.22E+06
5-7 Aug. 2013	7.30E+05	7.95E+06	1.22E+06	1.23E+06	1.27E+06	2.14E+06
14-16 Sep. 2013	2.50E+06	1.53E+07	1.64E+06	2.40E+06	2.15E+06	3.52E+06
1-3 Oct. 2013	1.05E+06	4.26E+06	9.03E+05	1.24E+06	1.13E+06	9.60E+05
15-17 Oct. 2013	4.91E+06	2.11E+07	3.81E+06	4.60E+06	4.16E+06	3.98E+06
19-21 Oct. 2013	3.46E+06	1.45E+07	2.90E+06	3.90E+06	3.60E+06	2.77E+06
22-24 Oct. 2013	2.03E+06	9.18E+06	1.27E+06	1.90E+06	1.80E+06	2.08E+06
Total 2013 events	1.90E+07	8.96E+07	1.52E+07	1.99E+07	1.76E+07	1.93E+07
20-22 Sep. 2011	8.20E+06	4.90E+07	6.84E+06	9.40E+06	8.59E+06	9.32E+06

3.1.2. 出水時における土砂流れの結果

Kitamura et al. (2016)において、浮遊砂濃度に関して計算結果と観測値の比較を大柿ダム上流の2つの観測サイトにおいて実施した。2つの観測地点における2013年9月の出水イベントについて計算値は、実測値をよく再現した。

Table 3.2 および **Fig. 3.7** は、異なる計算期間での5つの流域から太平洋へ流出する土砂の総量を示す。同様に大柿ダムへの流入量も示す。さらに **Fig. 3.8** のように土砂の侵食堆積する傾向の箇所がわかった。これは2011年台風 Roke 時の結果である。

3.1.3. 放射性 Cs の計算結果

主な結果は **Table 3.3** および **Fig. 3.9** に示した。これらは5流域を通じて太平洋へ流出する ^{137}Cs 流出量を示し、同様に大柿ダムへの流入量を示している。**Fig. 3.10** は2011年台風 Roke 時における、正味の ^{137}Cs インベントリの変化量を示す。一般的な傾向として、 ^{137}Cs は流域の多くの場所で侵食され、その結果インベントリが減少し、ダムや河床、下流域の河川敷等の場所に集積する傾向を示した。

セシウム 137 輸送解析の妥当性検証のために、大柿ダム上流域の2つの観測地点を対象に、出水時の溶存態および懸濁態 ^{137}Cs 濃度の合計値と計算値を比較した(**Fig. 3.11**)。計算結果は2013年の2つの台風の期間の観測値をよく再現した。

さらに、高瀬川および小高川の観測地点を流出する ^{137}Cs 流出量(JAEA, 2014)と計算値を比較した。請戸川の河口から2 kmに位置する高瀬川の観測地点については、2013年の初めの4つの出水イベントで河口から流出した総量は30 GBqであった。同期間における計算結果は58 GBqとなり、整合的な結果であった。同様に小高川の河口から5 kmに位置する小高川の観測地点における、2013年1月から11月の流出量は8 GBqであった。一方、この期間の主な出水時の総流出量は30 GBqであった。これらの計算結果は、観測値の不確実性の値の範囲内であると考えられた。

Table 3.2. Amount of sediment discharge to the ocean over nine heavy rainfall events in 2013, as well as Typhoon Roke in September 2011. Final column shows sediment inflow to the Ogaki Dam Reservoir in the Ukedo basin over the rainfall events.

Period	Total sediment discharge to ocean (kg)					Total sediment inflow
	Odaka	Ukedo	Maeda	Kuma	Tomioka	to dam (kg)
	Riv.	Riv.	Riv.	Riv.	Riv.	Ogaki Dam
2-4 Apr. 2013	2.36E+05	4.97E+05	3.46E+05	2.13E+05	1.39E+05	3.81E+04
14-16 June 2013	7.02E+05	4.83E+05	2.45E+05	1.32E+05	2.20E+04	7.08E+04
26-28 July 2013	1.08E+05	2.50E+05	7.32E+04	1.09E+05	1.25E+05	9.21E+04
5-7 Aug. 2013	3.33E+04	4.05E+05	3.02E+05	6.59E+04	6.59E+04	6.09E+04
14-16 Sep. 2013	7.79E+05	2.95E+06	4.19E+05	3.04E+05	1.85E+05	7.60E+05
1-3 Oct. 2013	1.11E+05	1.57E+05	8.45E+04	8.41E+04	6.72E+04	8.88E+03
15-17 Oct. 2013	1.48E+06	4.57E+06	1.37E+06	7.74E+05	5.89E+05	7.86E+05
19-21 Oct. 2013	7.79E+05	2.95E+06	4.19E+05	3.04E+05	1.85E+05	7.60E+05
22-24 Oct. 2013	3.28E+05	3.21E+05	1.66E+05	1.01E+05	7.47E+04	3.28E+04
Total 2013 events	4.56E+06	1.26E+07	3.42E+06	2.09E+06	1.45E+06	2.61E+06
20-22 Sep. 2011	1.80E+06	8.80E+06	1.65E+06	1.97E+06	1.70E+06	2.09E+06

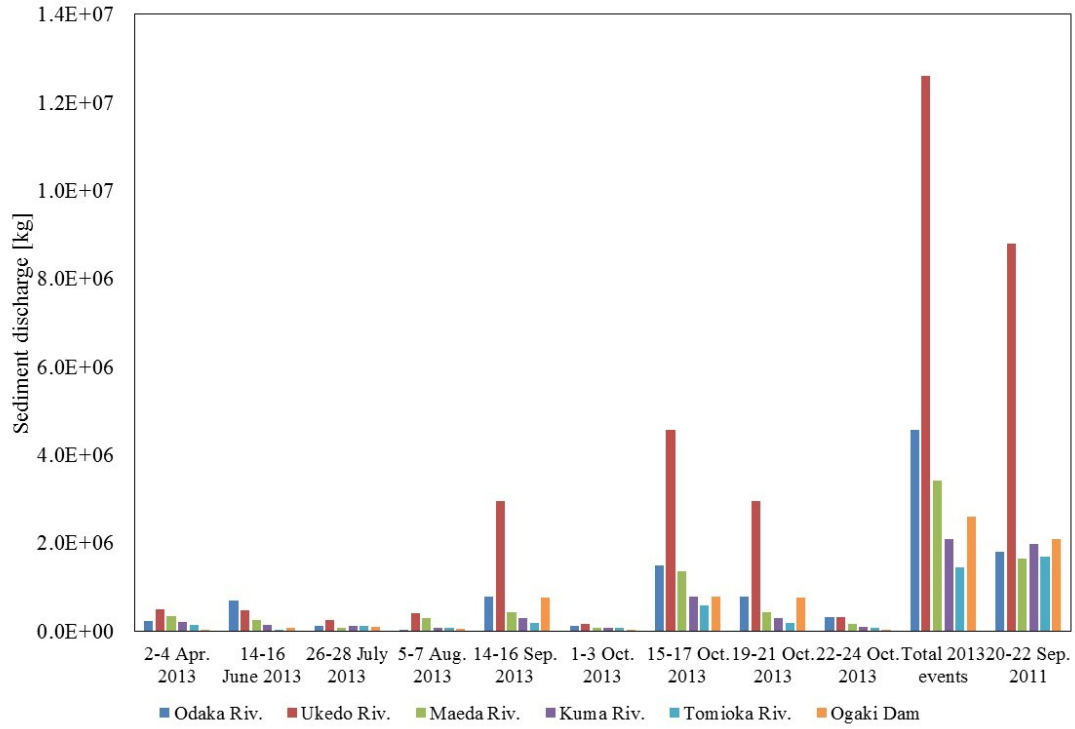


Fig. 3.7. Total sediment discharge from the five rivers to the Pacific Ocean over Typhoon Roke and the 2013 rainfall events, as well as inflow to the Ogaki Dam.

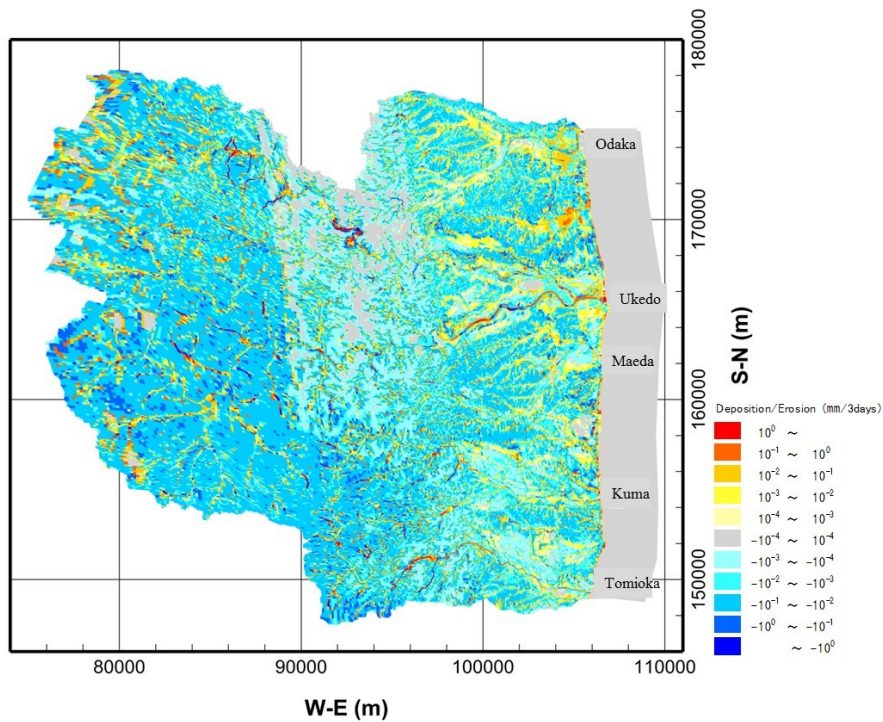


Fig. 3.8. Locations of sediment erosion/deposition across the study area over 2011 Typhoon Roke.

Table 3.3. Amount of ¹³⁷Cs discharge to the ocean over nine heavy rainfall events in 2013, as well as Typhoon Roke in September 2011. Final column shows ¹³⁷Cs inflow to the Ogaki Dam Reservoir in the Ukedo basin over the rainfall events.

Period	Total ¹³⁷ Cs discharge to ocean (GBq)					Total ¹³⁷ Cs inflow to dam (GBq)
	Odaka Riv.	Ukedo Riv.	Maeda Riv.	Kuma Riv.	Tomioka Riv.	Ogaki Dam
2-4 Apr. 2013	2.6	30.0	16.6	14.8	4.2	6.5
14-16 June 2013	13.0	26.1	7.7	8.8	0.7	10.5
26-28 July 2013	1.3	13.1	3.7	8.2	4.7	16.0
5-7 Aug. 2013	0.3	15.4	7.5	4.4	2.6	11.1
14-16 Sep. 2013	12.3	144.0	22.6	19.6	6.0	146.9
1-3 Oct. 2013	0.9	8.2	2.4	5.9	2.4	1.8
15-17 Oct. 2013	21.8	218.0	91.2	61.4	17.5	146.2
19-21 Oct. 2013	14.7	78.8	76.2	72.4	19.2	32.6
22-24 Oct. 2013	2.3	20.1	5.9	7.0	2.1	8.1
Total 2013 events	69.3	553.7	233.8	202.6	59.5	379.6
20-22 Sep. 2011	29.2	502.6	116.5	106.0	25.0	333.1

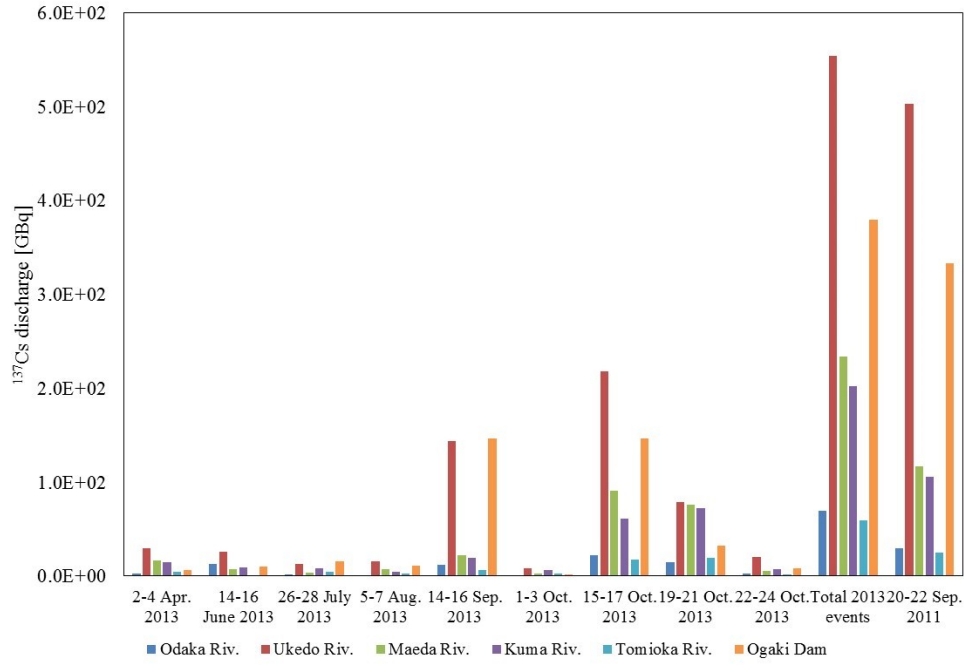


Fig. 3.9. Total ¹³⁷Cs discharge from the Odaka, Ukedo, Maeda, Kuma and Tomioka rivers to the Pacific Ocean over Typhoon Roke and the 2013 events, as well total inflow to the Ogaki Dam reservoir.

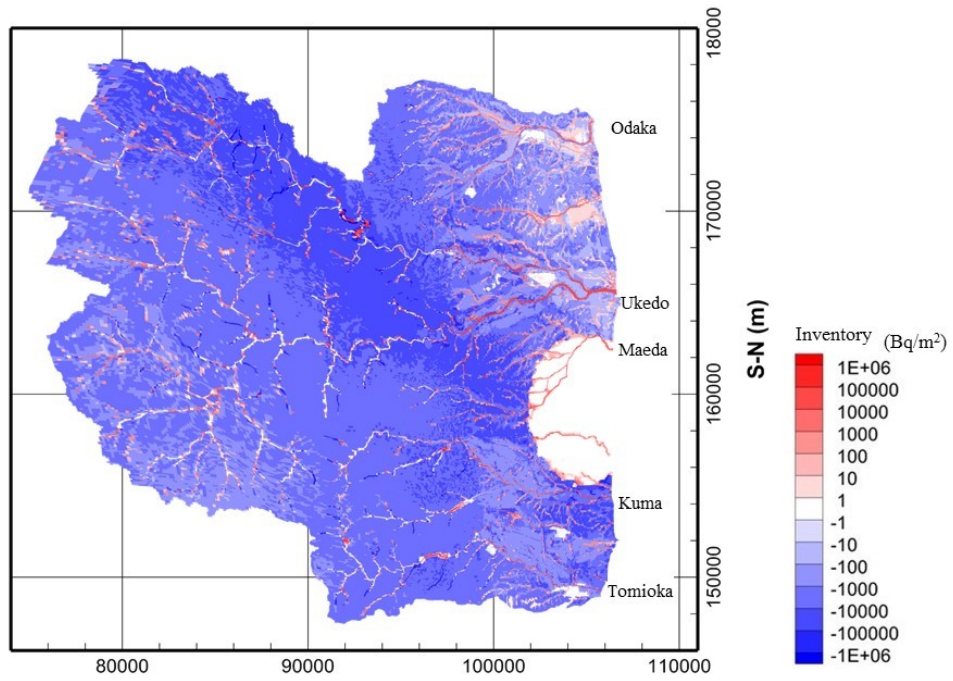


Fig. 3.10. The net change in ¹³⁷Cs inventory over Typhoon Roke across the study area.

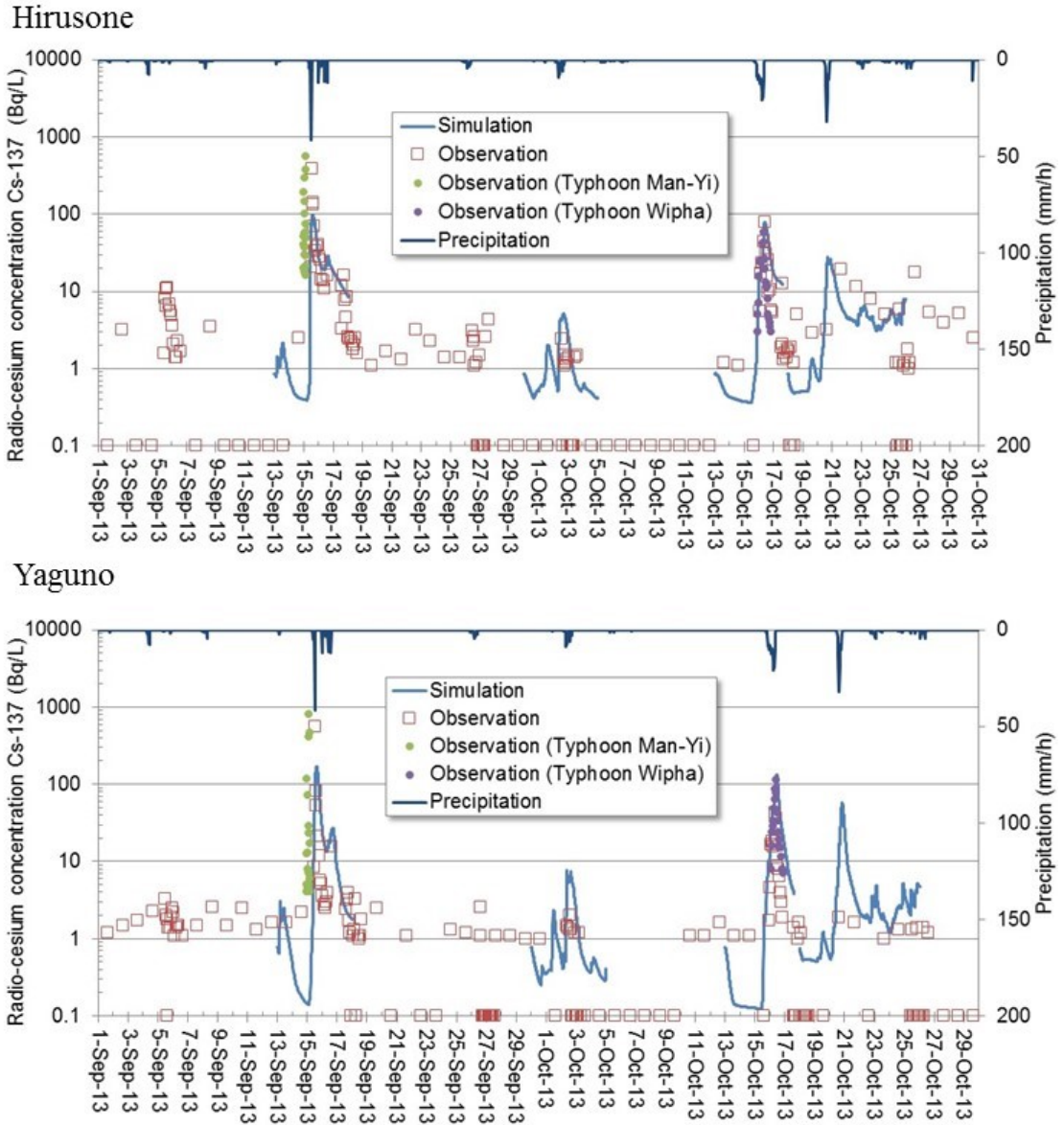


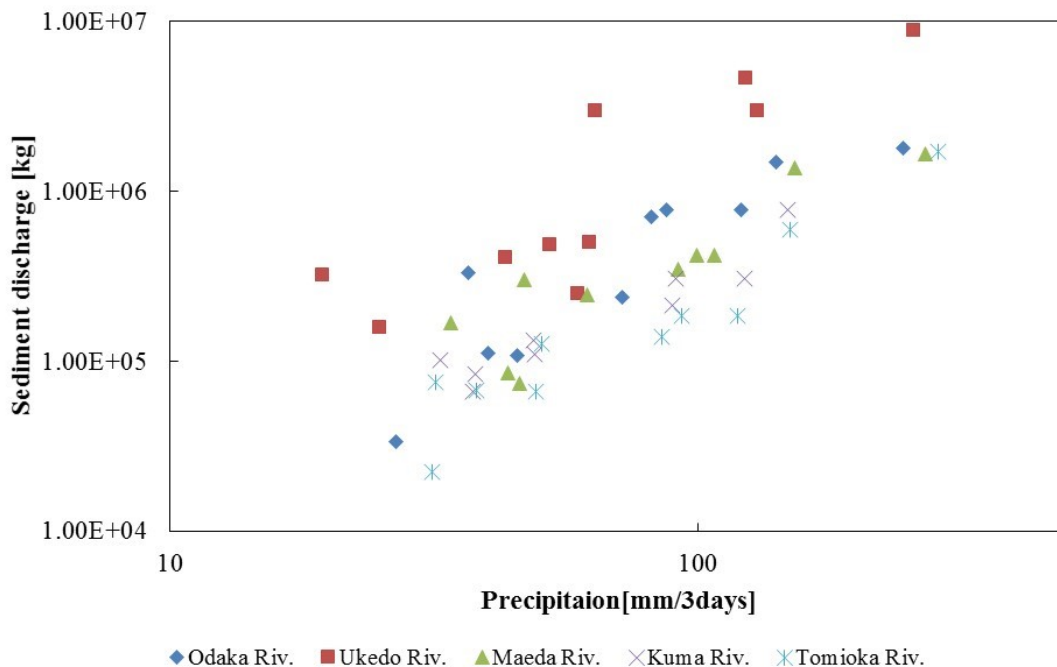
Fig. 3.11. Simulation predictions and monitoring results for radio-cesium concentrations (total of dissolved and sediment-sorbed components) at the Hirusone and Yaguno monitoring on the upstream Ukedo River. Squares show discontinuous monitoring results taken year round. Circles show continuous monitoring data measured especially over typhoon periods.

3.1.4. 異なる降水強度における ^{137}Cs 流出量の傾向

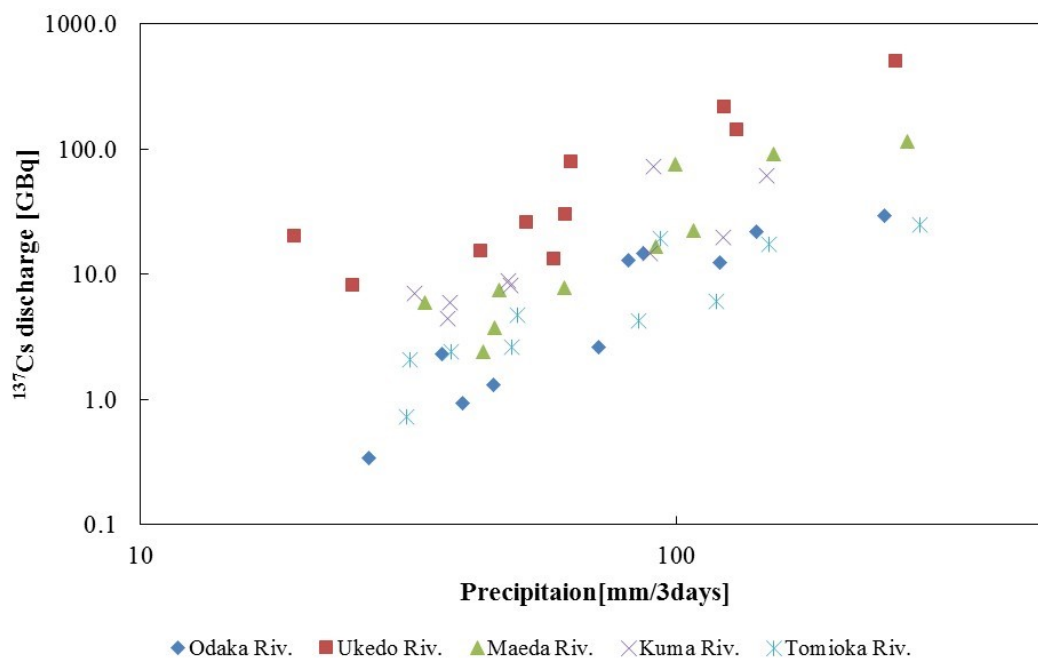
降水イベントごとの海への ^{137}Cs 流出量は降水強度に依存する。**Fig. 3.12** はイベント毎の総降水量と土砂および ^{137}Cs 流出量の間に関連があることを示す。一般的に降水量が多ければ多いほど、土砂と ^{137}Cs の流出量は上昇する傾向がある。**Fig. 3.12 b** は、降水量に対して異なる流域から流出する ^{137}Cs 量は明確に異なることがわかる。流域ごとに流出量が異なる理由は **3.1.6** で説明する。

3.1.5. 溶存態および懸濁態 ^{137}Cs 輸送

溶存態および懸濁態のどちらがより重要であるかは、その時々河川流量によって異なる。出水時においては、懸濁態 ^{137}Cs の流出が最も重要な形態であると考えられる。**Fig. 3.13** は 2013 年台風 Wipha 時の昼曾根観測地点における河川流量に対する溶存態および懸濁態 ^{137}Cs 濃度を表す。台風 Wipha が到来する直前の平水時において、溶存態 ^{137}Cs 濃度は 0.3 Bq/L 程度であった。一方懸濁態 ^{137}Cs 濃度は約 0.1 Bq/L であった。出水時において河川流量が上昇するにつれて、懸濁態 ^{137}Cs 濃度は上昇し、最大 90 Bq/L となった。しかし溶存態 ^{137}Cs 濃度は最大 0.6 Bq/L 程度であった。従って、この流域において、 ^{137}Cs は平水時においては主に溶存態として移行し、出水時は懸濁態として移行することがわかった。この結果はフィールド観測の結果(Nagao et al., 2013; Ueda et al., 2013)とも整合的であった。



(a)



(b)

Fig. 3.12. (a) Relationship between water and sediment discharge to the ocean, and (b) that of water and ¹³⁷Cs discharge, for the nine rainfall events in 2013.

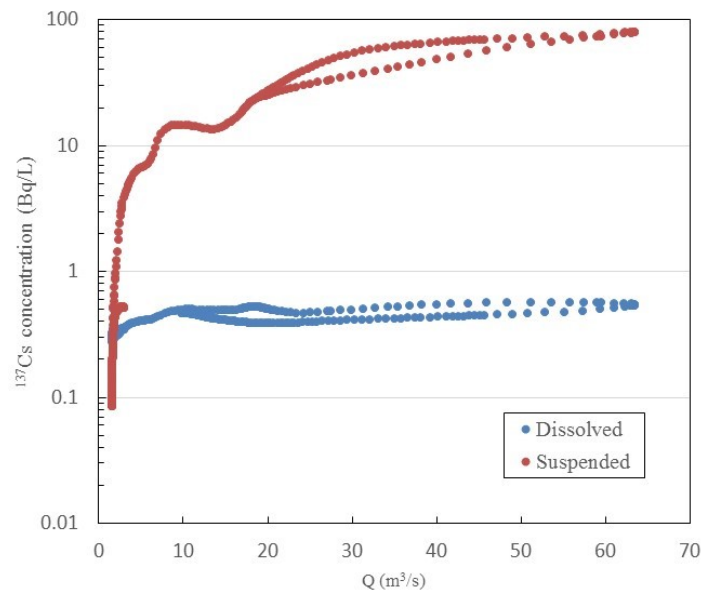


Fig. 3.13. Dissolved and suspended ^{137}Cs concentration as a function of river water flow at Hirusone monitoring station during 2013 Typhoon Wipha.

3.1.6. 異なる流域から流出する ^{137}Cs の特性

請戸川から海へ流出する ^{137}Cs 量は、どの降水イベント時においても最大であった(**Fig. 3.9**)。この理由は他の流域に比べ、流域面積が大きく、その沈着量が大きいためである。しかし、**Fig. 3.9** より、小高川、前田川、熊川および富岡川について、流域面積および沈着量があまり変わらないにもかかわらず、海への流出量は異なることがわかる。流域間の ^{137}Cs 流出の支配要因を考察するために、第2次航空機モニタリングデータ(NRA, 2011)を用いて初期沈着量で規格化し、 ^{137}Cs 流出率を求めた(**Fig. 3.14**)。

前田川流域は、多くの出水イベント時において高い ^{137}Cs 流出率となった。2013年出水時の総流出率は0.33%となった。熊川 0.23%、富岡川 0.15%、小高川 0.14%、請戸川 0.07%であった。これらの流出率のオーダーは、他の流域等で実施されたモデル計算や観測値と整合的な結果であった(Evrard et al., 2015)。

流出率に影響を与える重要な要因は、初期の ^{137}Cs 沈着分布と沈着量、土壌侵食の起こりやすさと河川への供給のしやすさ、土砂を貯留する効果のあるダムの有無が考えられる。前田川は、高い ^{137}Cs 流出率であるが、これは高濃度に汚染された領域が流域の中流域に存在し、ダム湖の下流域に存在しているからである。水田は河川に沿って存在し、この高濃度に汚染された領域に多くが存在する。土性侵食に伴う

¹³⁷Cs の河川への供給が森林域に比べ水田の方が起こりやすいため、その結果、前田川は非常に高い流出率となったと推測された。

2 番目に高い流出率となった熊川は、前田川と似た特徴を有する。高い沈着量の領域は流域の中流ほどに位置し、さらにダム湖（例えば坂下ダム）はその上流域にのみ存在する。水田は下流域に存在し、河川への懸濁態 ¹³⁷Cs を供給しやすい流域である。

前田川、熊川流域と対照的なのは、請戸川流域である。請戸川流域は、流出量は最大であるが、流出率は最小であった。これは、高い沈着量の領域が流域の上流域に位置し、さらにその土地利用は森林域であるため、河川への供給はかなり抑えられる(Yoshimura et al., 2015a; Niizato et al., 2016)。さらに請戸川の中流域に位置する大柿ダムが土砂流出を抑制するため、下流域への汚染を抑える効果がある。河口近くで河川が 2 本に分かれる請戸川は、請戸川と支川の高瀬川からなる河川である。その高瀬川の上流域は畑川および双葉断層の間に位置している。この地帯は花崗岩基盤の破碎帯であり、高い透水係数を持つと推測される(Kitamura et al., 2016)。Fig. 3.15 は台風 Roke 時の表層土壌中の水飽和度を示す。畑川断層および双葉断層の間の領域は、出水時においても他の領域に比べ水飽和度が低い傾向がある。これは地下水への浸透が速いことによって、地表流が発生しにくいことを意味し、その結果土壌侵食も起こりにくく、河川への流出が少ないことが推測される。これらの効果もあいまって、高瀬川における流出率は低い傾向を示した。これらの理由から、請戸川における ¹³⁷Cs 流出率は低いことが考えられた。

小高川および富岡川における流出率は、次のことが考えられた。小高川流域は沈着量が高い領域は河川の上流域の森林域に位置している。さらにそこは畑川断層および双葉断層の間に位置している。これらが前田川と熊川に比べ低い流出率であると考えられた。富岡川は沈着量が高い領域は中流域と下流域である。上流域で発生した ¹³⁷Cs は中流域に位置する荻ダムおよび滝川ダムによってトラップされると考えられた。

3.1.7. 土砂および ¹³⁷Cs 侵食堆積の空間分布

セシウム ¹³⁷ インベントリがどこでどれだけ増減するのかを把握することは、空間線量および環境の側面から非常に重要である。Fig. 3.8 および Fig. 3.10 は、どちらも Roke 時の正味の土砂および ¹³⁷Cs の変

化量を示す。土壌侵食は流域の多くの場所で発生している(Kitamura et al., 2016)。同様の傾向が ^{137}Cs にも言えた。正味の ^{137}Cs インベントリ減少は流域の多くの場所で発生していた。土壌侵食の程度は水文学的特徴によって決まるが、一方 ^{137}Cs インベントリの減少の絶対的な割合は初期の沈着量分布に依存している。

土砂と ^{137}Cs 侵食のパターンが同じ傾向を示す理由は、福島県内における高い分配係数 K_d であるからである(Yoshimura et al., 2015b)。セシウム 137 は土壌中の粘土鉱物に強く取り込まれるため、地表水中で溶存態成分として存在する割合は非常に少ない。そのため、 ^{137}Cs 分布は主に懸濁態 ^{137}Cs の動きに由来する。土壌の堆積は、主に計算対象領域の東側に位置する河川敷に堆積していた。また貯水池の底や河川の曲がりや広がっている箇所であった。それらの場所は同様に ^{137}Cs も堆積する場所となっている。

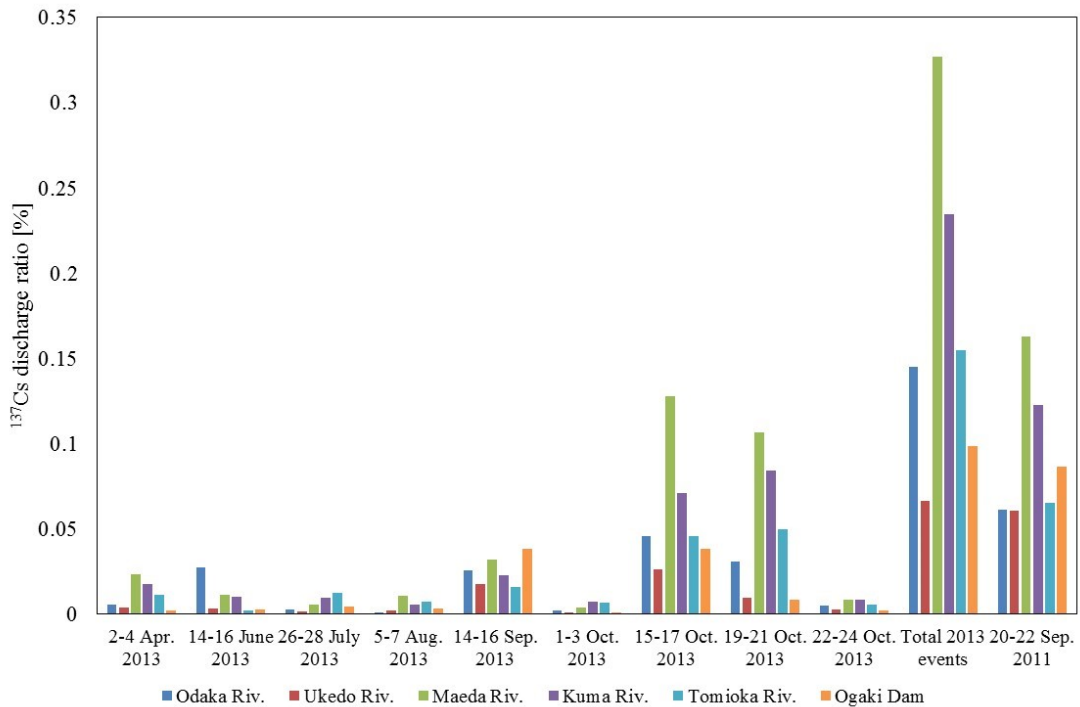


Fig. 3.14. The ratio of ^{137}Cs activity discharged to the ocean to the total inventory of the basin at the Second Airborne Monitoring Survey over each of the flood events. The results for the Ogaki Dam show the ratio of ^{137}Cs activity inflow to the reservoir relative to the initial inventory upstream of the reservoir at the Second Monitoring Survey.

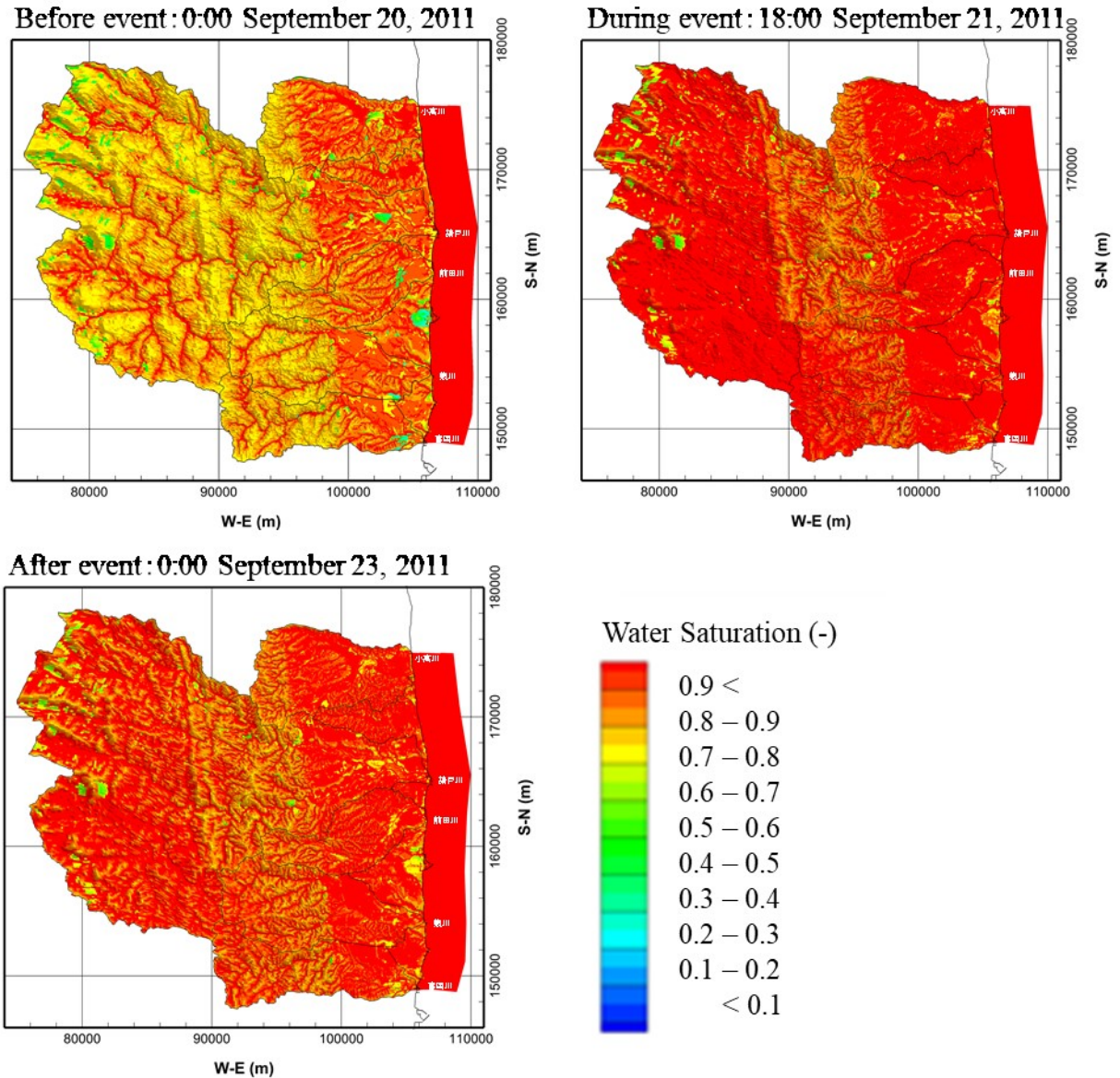


Fig. 3.15. Distribution of water saturation in the top surface soil layer before, during, and after 2011 Typhoon Roke.

3.2 小流域における土砂、 ^{137}Cs の再分布

3.2.1. 河川水中の流量、浮遊砂濃度および ^{137}Cs 濃度の妥当性評価

平衡状態時における地表水および地下水流れはスピニアップ計算によって実施した。Fig.3.16 は平衡状態時の地表水深を示す。荻ノ沢の水源は、流域の南西に位置し、河川は荻ダム湖へと流れる。Fig.3.17 は流域内での地表水および地下水の流れを表す。地表水の流れは、衛星画像と計算結果を重ね合わせて検証した結果、実際の河川の位置と整合していた。地下水位は流域の上流部で主に涵養し、荻ダム湖より下流の富岡川において湧出する傾向があった。Fig. 3.18 は平衡状態時における自由地下水面のコンターを

示す。**Fig. 3.19** は地表面を通過する地下水流れのフラックスを表す。涵養は約 96%の面積（森林域および伐採後）において 3-4 mm/d であった。水田においては 1-3 mm/d であった。正味の湧出は河床やダム湖等限られた場所で起こっていた。湧出量は概ね 30 mm/d 以下であった。

Fig. 3.20 より、荻ダム湖の上流地点における流量計算の結果(0.016-2.4 m³/s)は、2014 年 9 月から 12 月の間に測定された実測値(0.070-0.45 m³/s)とよく一致していた(**Fig. 3.20 b**)。相関係数は $r=0.92$ であった。しかし、計算値と実測値の比較の限界として測定点が 11 しかない点には留意する必要がある。

同地点における浮遊砂濃度は $0.16-2.2 \times 10^3$ mg/L である(**Fig. 3.21**)。計算値と実測値との一致の度合いは 2014 年 10 月以降の期間の方がより良い結果となった。2014 年 1 月以前の計算結果は、浮遊砂濃度を一桁程度、過小評価する傾向にあった。これは流域内における除染作業によって土壌侵食を受けやすい可能性が考えられた。植生等の被覆がない状態の土壌は、土壌流亡量が増大することが報告されている (Lepage et al., 2015)。気象外力は日データを使用していることが、出水時の実測値を過小評価している大きな原因である。この期間の主な出水イベントは台風 Phanfone, Vongfong, Nangka および熱帯暴風雨 Etau である。**Fig. 3.22** は、荻ダム湖内の沈降粒子中の ¹³⁷Cs 濃度の実測値および流入口における ¹³⁷Cs 濃度の計算値の結果を示す。計算値は 0.0058-22 kBq/kg であり、実測値は 2.2-28 kBq/kg であった。**Fig. 3.22 b** より、計算結果と実測値との比較はある程度整合的だった ($r=0.40$)。

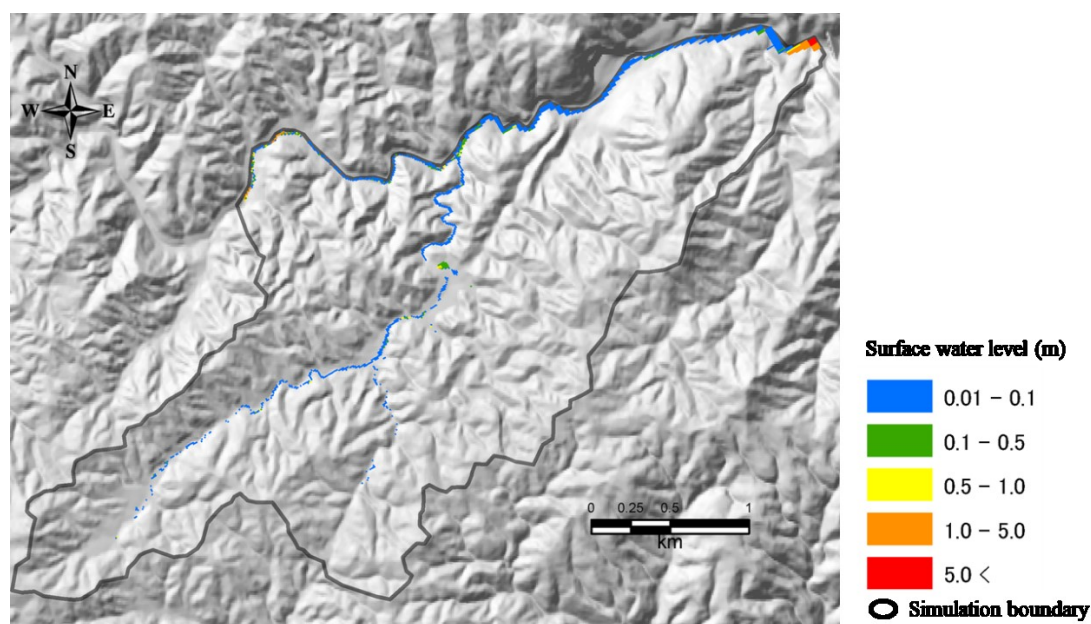


Fig. 3.16. Surface water level under ambient weather conditions.

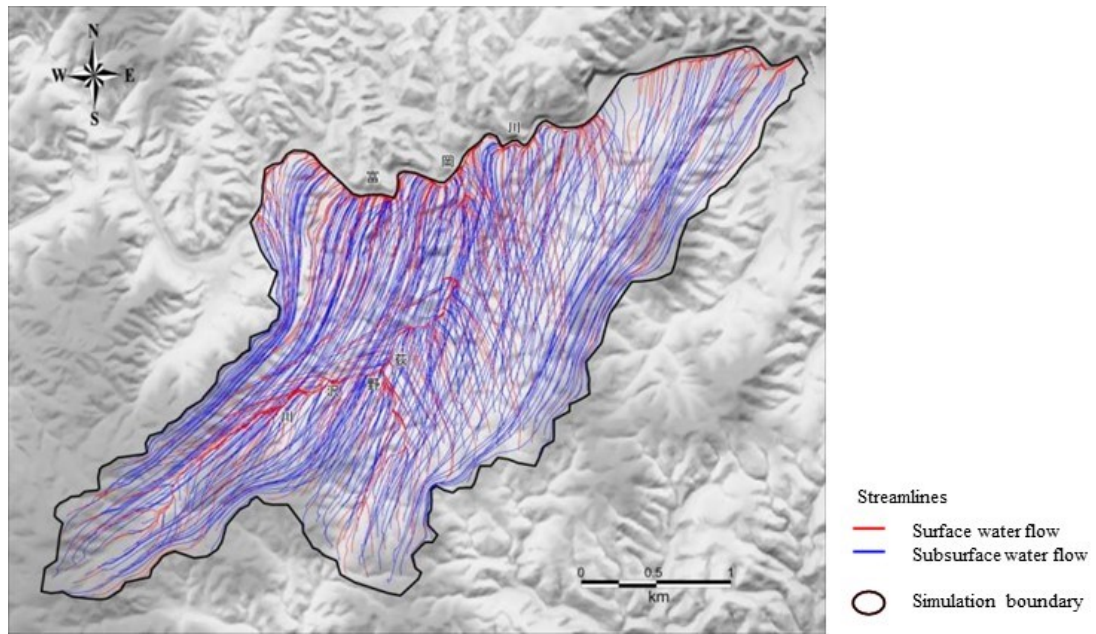


Fig. 3.17. Streamlines of surface and subsurface water flows under ambient conditions.

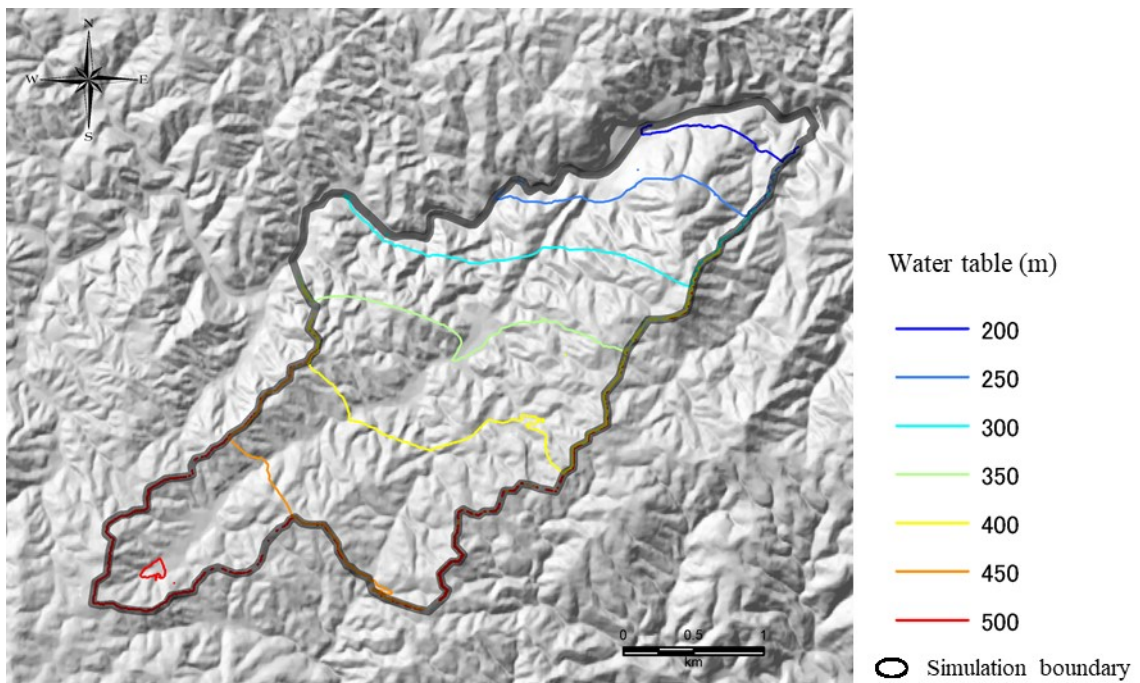
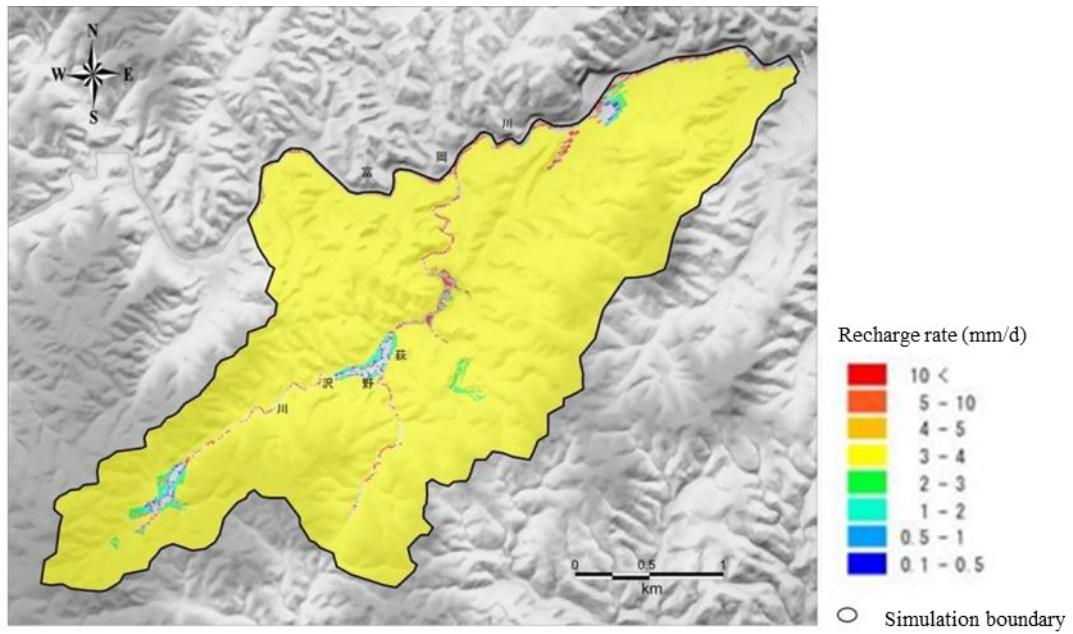
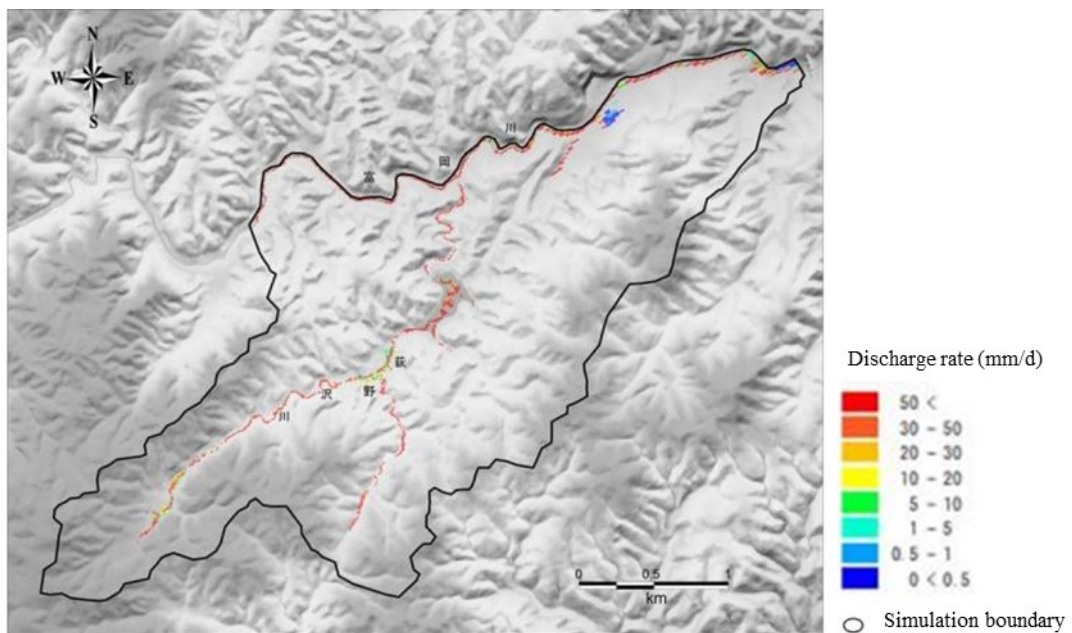


Fig. 3.18. Subsurface water table contours under ambient weather conditions.



(a)



(b)

Fig. 3.19. Recharge flux and (b) discharge flux of groundwater through the land surface in the study area under ambient weather conditions.

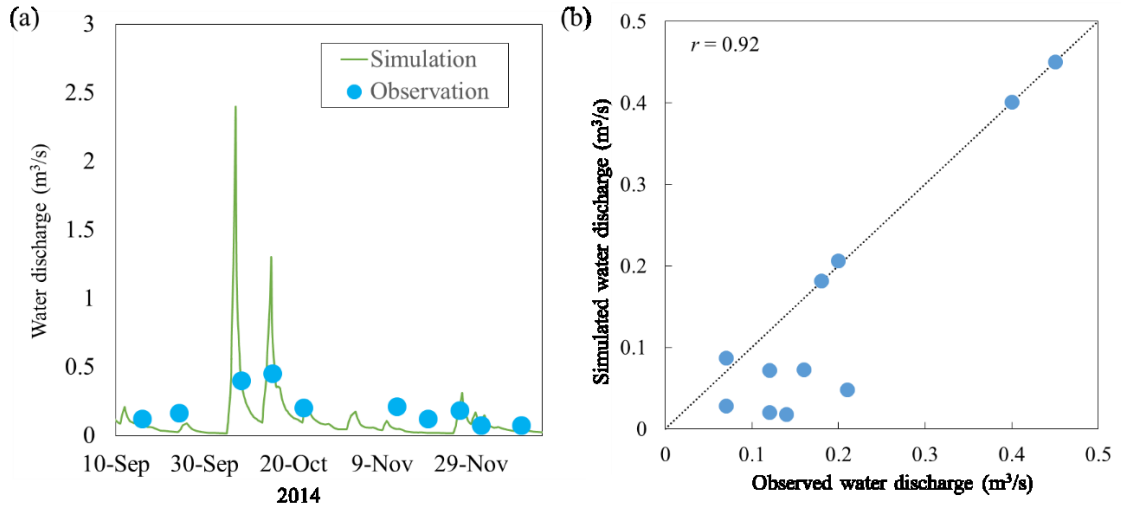


Fig. 3.20. Simulated and observed water discharge rates for the Oginosawa River. Dotted line in panel (b) is line of equality.

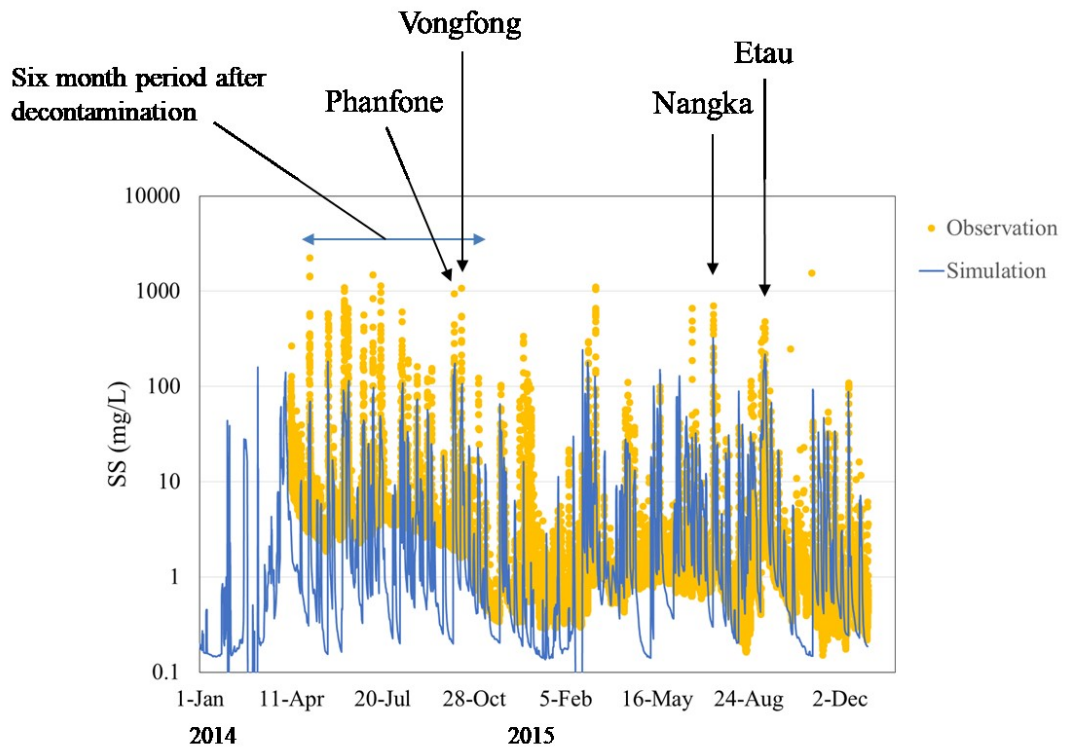


Fig. 3.21. Simulated and observed suspended sediment concentrations in the Oginosawa River. Peaks occurring during main typhoons in the observation period are highlighted.

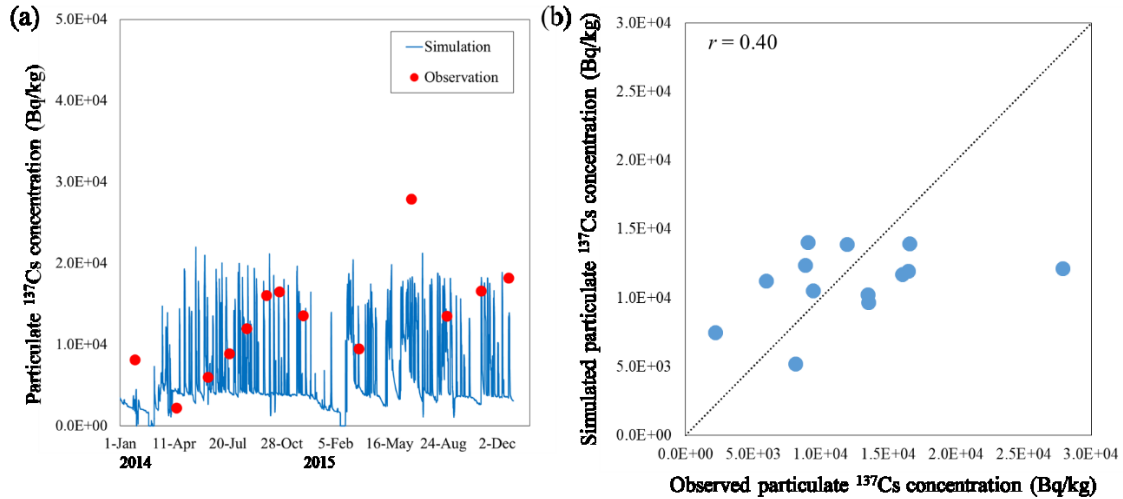


Fig. 3.22. Simulated and observed ^{137}Cs concentrations in suspended sediments in the Ogi Dam reservoir. Dotted line in panel (b) is line of equality.

3.2.2. 土壌侵食および堆積、 ^{137}Cs 再分布の特性

一年間での土壌インベントリの正味の変化量(2011年5月から2015年12月の年平均)および総計算期間(2011年5月から2015年12月)における正味の変化量の計算値を **Fig. 3.23** および **Fig. 3.24** に示す。多くの土壌侵食は、河川近傍および森林ガリにおいて起こっていることが推定された。対象的に、河川から離れた森林域においてはほとんど正味の侵食は発生していない(平均侵食速度は $0\text{-}10\text{ g/m}^2/\text{y}$ 、計算対象期間の総侵食高さは $0.001\text{-}0.1\text{ mm}$)。これは侵食速度が非常に遅いか侵食した土壌がすぐに森林内で堆積してしまうかのどちらかと考えられた。最も重要な堆積箇所は荻ダム湖内および河床である。河川に沿って特定の場所、特に流速が落ちる場所において堆積が起こっていると考えられた。**Fig. 3.24** は、計算開始時(2011年5月26日)の ^{137}Cs インベントリに対し、計算終了時(2015年12月31日)の表層土壌 2 cm 以内に残存する ^{137}Cs インベントリの割合を示す。物理減衰で ^{137}Cs インベントリの減少の 10% 程度が説明される(約 $2.3\%/y$)。他の要因として、表層 2 cm より下方への浸透(ウェザリング効果)が挙げられるが、平均して、計算対象領域全体で 2 cm より下方への浸透した割合は $1.4\%/y$ であった。

河川から離れた多くの森林域においては、 $10\text{-}30\%$ の ^{137}Cs インベントリの減少(約 $2.3\text{-}6.9\%/y$)を示した。上記の通り、物理減衰は $2.3\%/y$ であり、森林域における下方への移動は平均で $1.1\%/y$ である。 ^{137}Cs インベントリは河床近傍および森林ガリにおいて大きく減少した($10\text{-}100\%$, **Fig. 3.24**)。河川近傍からの影響

と河川から離れた森林域からの影響の大きさを評価するために、各々から河川へ入る ¹³⁷Cs 量を計算した。その結果、河川から離れた森林域から河川へ入る ¹³⁷Cs 量は 4.1 GBq であったのに対し、河川近傍から河川へ入る ¹³⁷Cs 量は 53 GBq であった。つまり、河川への ¹³⁷Cs の供給は主に限られた河川近傍からの影響が大きいことがわかり、その程度は一桁程度異なることが推測された。河川近傍の主な土地利用は森林であり、次いで水田である。2011 年 5 月から 2015 年 12 月における土壌侵食高さは **Fig. 3.25** のように、0.1 cm から 1 cm 以上となっている。

シミュレーションでは、70%以上の ¹³⁷Cs が土壌表層 2 cm 以内に残存している結果となったが、2016 年福島県内の森林調査サイトにおいて採取された土壌において、ほとんどの ¹³⁷Cs は土壌表層 5 cm 以内に残存していることが報告されている(MAFF, 2017)。荻ノ沢流域に残存している ¹³⁷Cs インベントリは、将来、河川への供給ソースとしての可能性を秘めている。しかし、将来供給する速度は、今回の計算対象期間に比べ遅くなることが推測される。それは、下方への浸透や物理減衰、河川近傍の ¹³⁷Cs インベントリの減少に伴って、河川への供給能力が減少すると考えられるからである。

河川近傍や森林ガリで土壌侵食が起りやすく、¹³⁷Cs が流出しやすい理由は次の通りである。**Fig. 3.26** は 2011 年台風 Roke 時の表層土壌の水飽和率の空間分布を示す。この図のように河川と森林ガリは台風期間中非常に高い水飽和率となっている。このことが多くの地表流を発生させる原因となり、地表流に伴い土壌が侵食されることによって、¹³⁷Cs も流出していると考えられた。河川から離れた森林域における表層土壌は不飽和のまま存在しており、地下へ浸透していることが見て取れた。

計算対象期間における流域内での水田および森林における土壌侵食速度は、265 g/m²/y および 10.6 g/m²/y であった。従って、水田の土壌侵食速度は、河川から離れた森林域の 25 倍程度高かった。Wakahara et al. (2014)では、耕作された水田からの土壌侵食速度は 151 g/m²/y であり、(表層土壌の 5-10 cm の表土の剥ぎ取り除染)を実施した水田からは 658 g/m²/y と報告している。Niizato et al. (2016)では、山地森林域における河川から離れた森林域においては 12 g/m²/y と報告している。従って、計算結果は観測値と整合的であることが言えた。

河川近傍の土壌において、異なる土地利用から河川への土壌および ¹³⁷Cs 供給の相対的な寄与率(森林および水田)を算出することは困難である。しかし、Lacey et al. (2016)では、福島県浜通りの流域におい

て、懸濁物質の発生源は 17%が森林、38%が耕作地(主に水田)、残り 45%はサブソイル(河川近傍の斜面が急な土壌面、地滑り、除染によって新たに露出した土壌面)と報告している。

この計算領域の土地利用はほとんど森林であるものの、荻ダム湖の流入近くに 2 つの大きな水田が存在している(**Fig. 3.23** および **Fig. 3.25**)。Chartin et al. (2013)、Wakahara et al. (2014)、Yoshikawa et al. (2014)、Yoshimura et al. (2016)は、水田から河川への流出は重要であることを報告している。**Fig. 3.23** および **Fig. 3.25** から、ダム湖流入近くの水田からの土壌流出が高いことを示している。Lepage et al. (2015)は、事故後に放棄地となった畑地が雑草で覆われることによって、土壌侵食が抑えられることを述べている。しかし、避難住民が帰還したことによって、再び耕作された場合、土壌侵食が促進される可能性が考えられるため今後も注視していく必要があると考えられた。

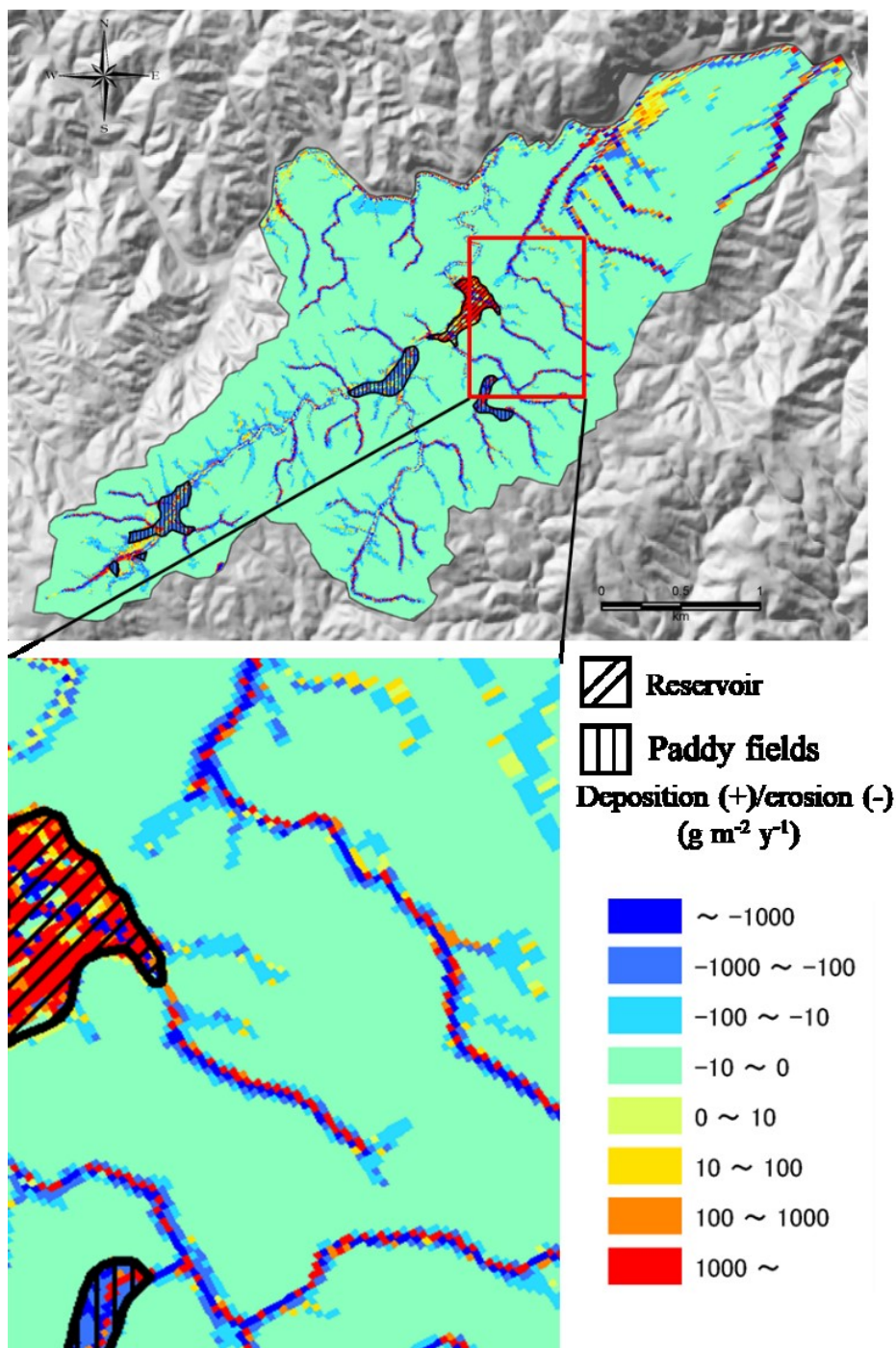


Fig. 3.23. Spatial distribution of the net inventory change of soil in the unit of soil mass per area per year (average of results over May 2011 and December 2015).

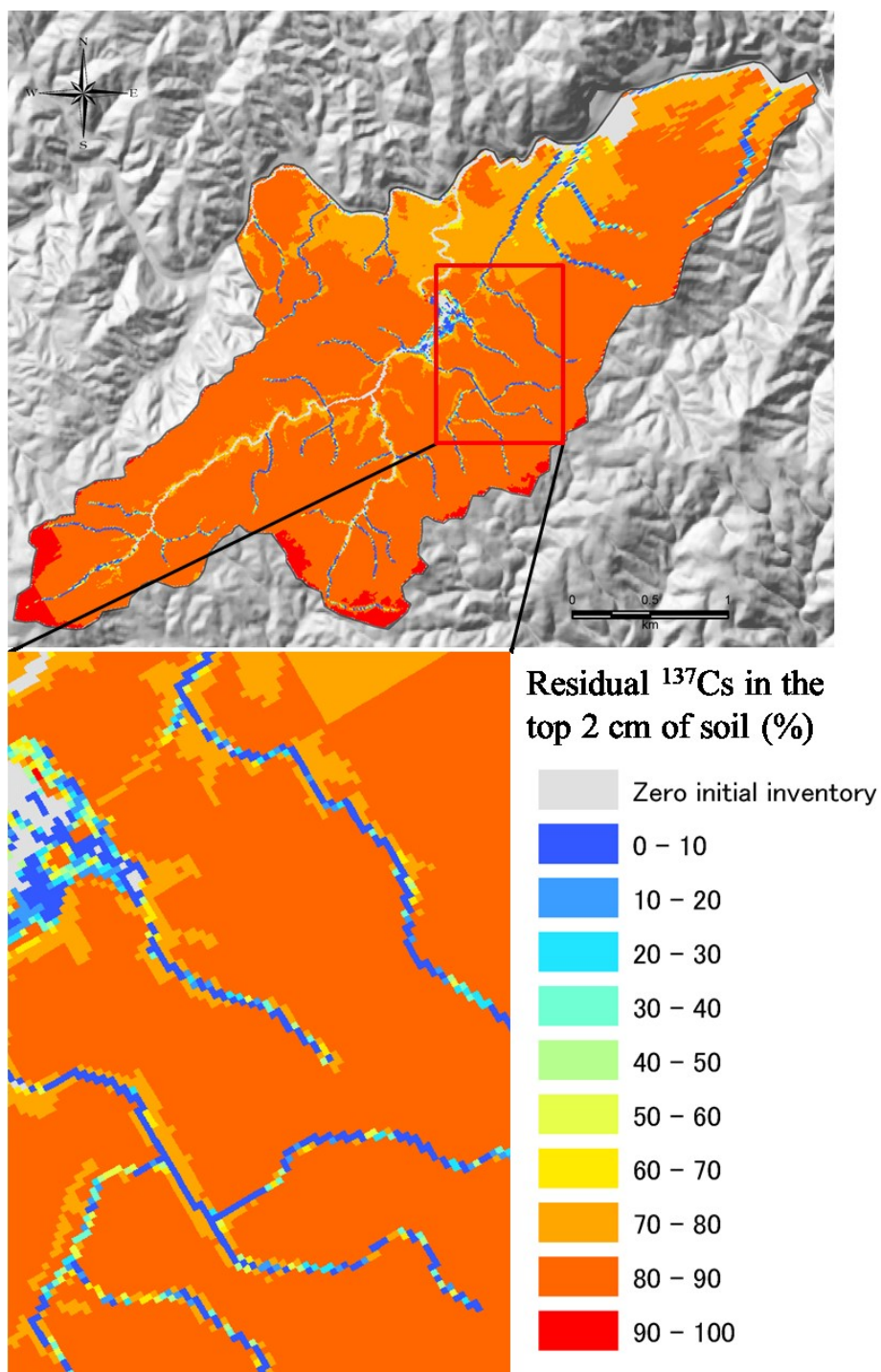


Fig. 3.24. Spatial distribution of the remaining ^{137}Cs in the top 2 cm of soil on December 31, 2015, relative to the initial inventory on May 26, 2011 (simulation start date). The inventory of cells normally covered by surface water was set at 0 Bq m^{-2} at the start of the simulation (zero initial inventory), hence no applicable value for residual ^{137}Cs for these cells.

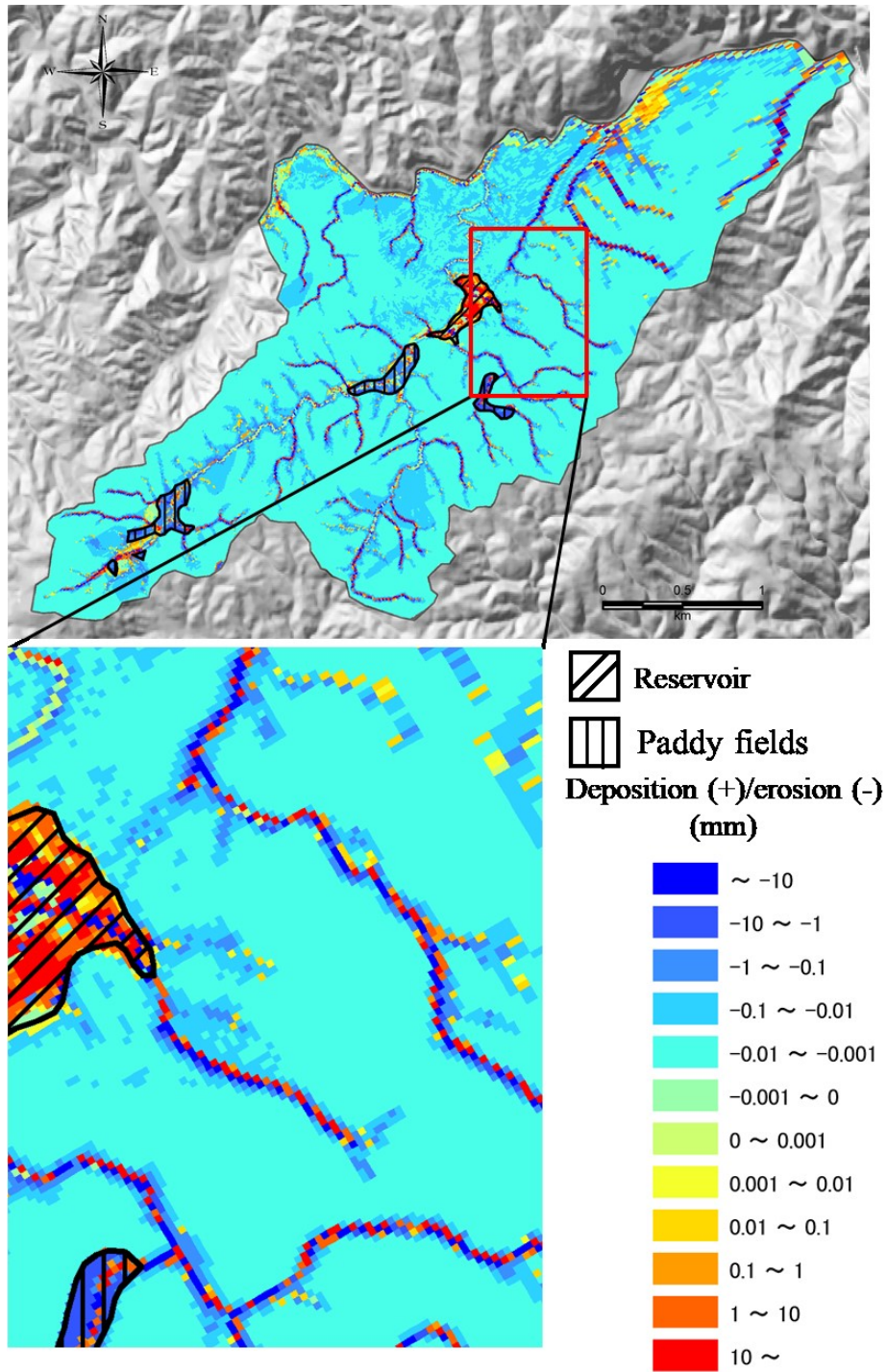
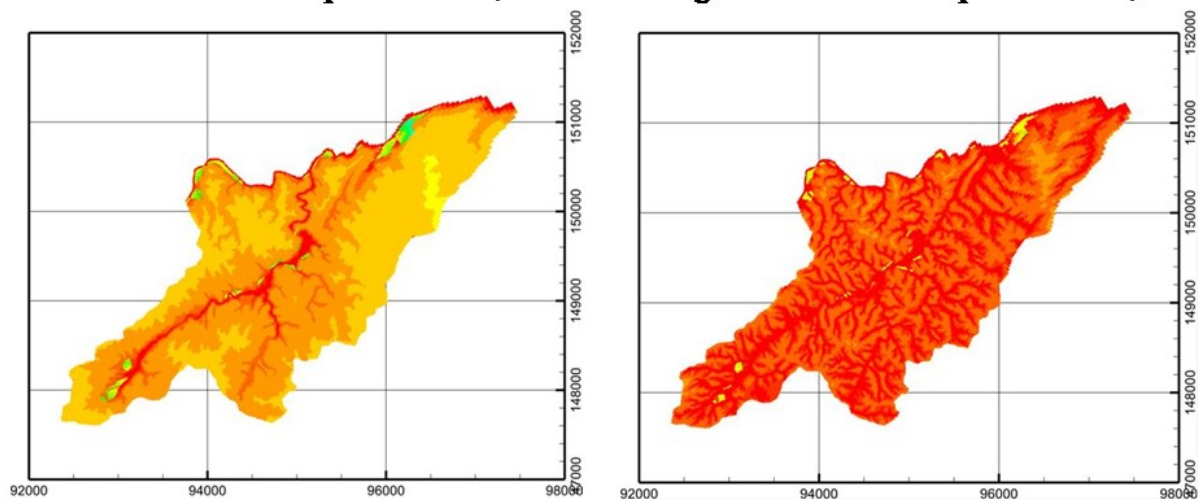


Fig. 3.25. Spatial distribution of the net change of soil (net deposition or erosion) between May 2011 and December 2015.

Before event: 0:00 September 20, 2011 During event: 18:00 September 21, 2011



After event: 0:00 September 23, 2011

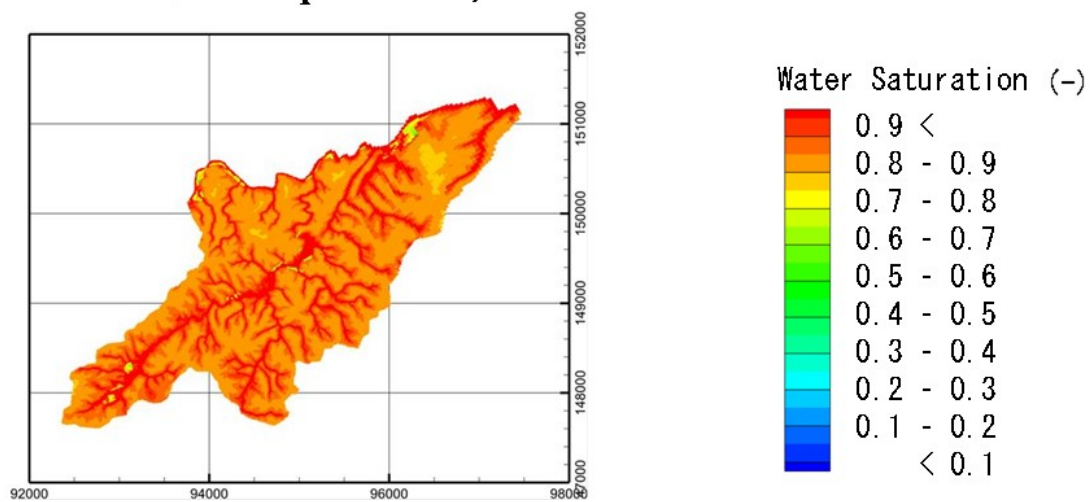


Fig. 3.26. Distribution of water saturation in the surface soil layer of the model, before, during, and after 2011 Typhoon Roke.

3.3. 森林溪流水中の溶存態 Cs 解析における分配係数(K_d)の適用可能性

3.3.1. 河川流量、浮遊砂フラックス、¹³⁷Cs 流出について

計算対象流域の流出点における計算流量は、計算対象期間である 2014-2015 年間に於いて実測値をよく再現した(**Fig. 3.27**)。Nash-Sutcliffe 係数(Nash and Sutcliffe, 1970)は 0.75 であり、十分な再現性を示した。2014 年流域からの流出比(年間流出量(m³)を流域面積(m²)で除した値)は、計算結果は 1225 mm に対して実測値は 1050 mm であった。2015 年に関しては、計算結果は 1345 mm に対して実測値は 1148 mm であった。年間を通じて、計算値と実測値が乖離する時期は、降雪および融雪時期であった。つまり、シミュレーションは降雪を降水として扱ってしまうあるいは降雪量を過小評価することによって、河川流量を過小評価する傾向があった。

シミュレーションは観測された時間平均の浮遊砂フラックスをよく再現した(**Fig. 3.28**)。浮遊砂を測定している期間におけるシミュレーションの総流出量は 2.9×10^9 g に対して、実測値は 2.0×10^9 g であった。2015 年 2 月のピーク流量の過小評価がそのまま、浮遊砂流出の過小評価に影響している(**Fig. 3.28**)。台風 Phanfone(2014 年 10 月 6 日)、Vongfone(2014 年 10 月 14 日)および Nangka(2015 年 7 月 16 日)における流量および浮遊砂フラックスを別々に **Fig. 3.29** に示した。シミュレーションは台風 Nangka の浮遊砂フラックスを除いて概ね実測値を再現した。シミュレーションは出水後の浮遊砂フラックスを過大評価する傾向があったが、同様の乖離が Kitamura et al. (2016)で報告されている。Kitamura et al. (2016)によると、土砂の TC (Transport capacity)モデルに問題があると指摘している。そのほかの要因としては、観測地点の上流域には砂防ダムが存在するが、シミュレーションでは砂防ダムを表現していない。従って、その分シミュレーションが過大評価する可能性を含んでいると考えられた。

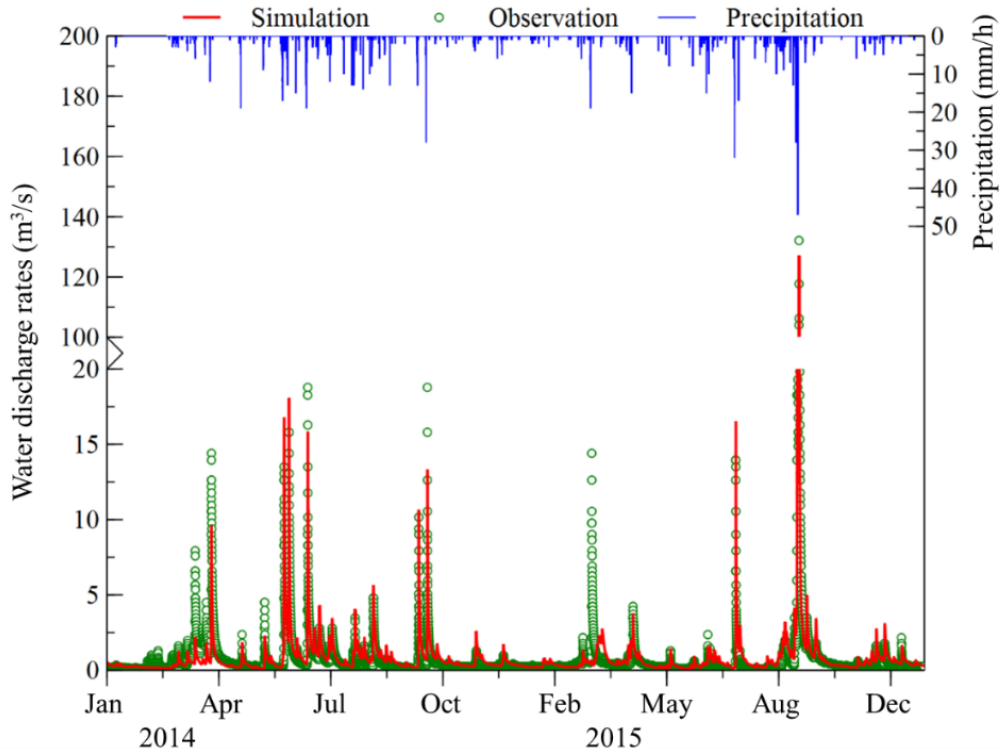


Fig. 3.27. Simulated and measured hourly mean water discharge rates at the catchment outlet over the full two year study period, along with hourly precipitation rates.

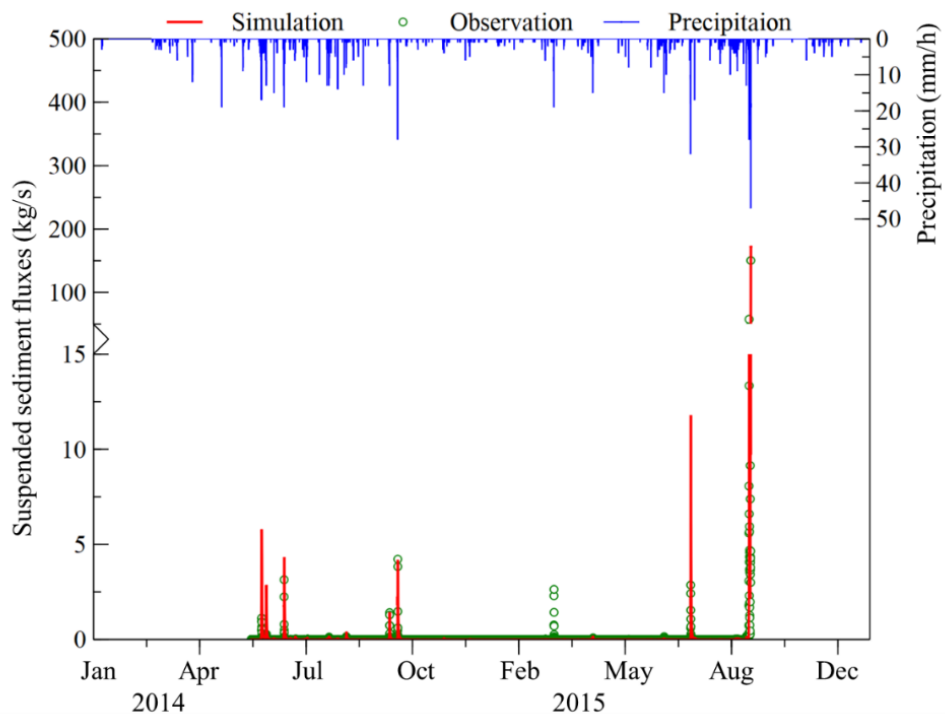


Fig. 3.28. Simulated and measured hourly mean suspended sediment fluxes at the catchment outlet between 29 May 2014 and 10 Sep 2015.

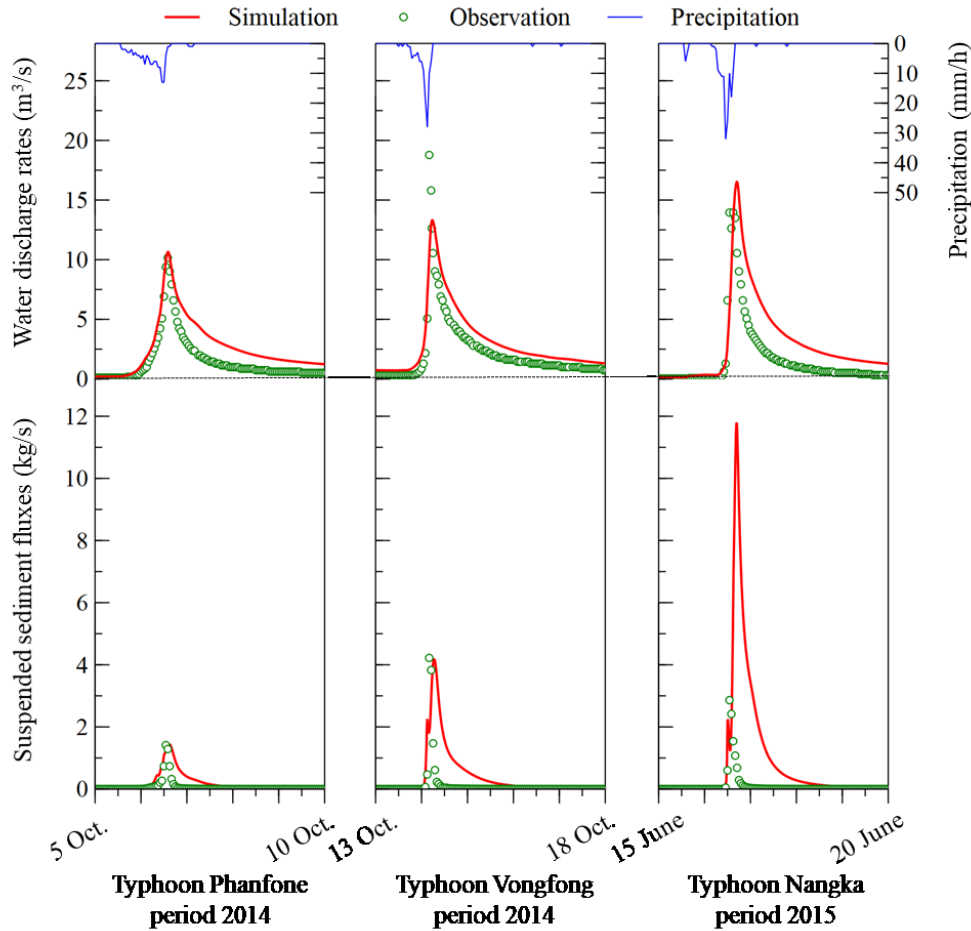


Fig. 3.29. Simulated and measured river water discharge rates (upper panels) and suspended sediment fluxes (lower panels) at the catchment outlet over the periods of Typhoons Phanfone (5-10 October 2014), Vongfong (13-18 October 2014), and Nangka (15-20 June 2015). Upper panels also show precipitation rates over the storms.

3.3.2. 溶存態および懸濁態 ^{137}Cs 濃度

平水時における春、夏、秋の時期において、一つ目の K_d のパラメータセット (Case 1、オレンジ線、**Fig. 3.30**) におけるシミュレーションは、流域の流出点で観測された実測値 (0.14-0.53 Bq/L、平均値: 0.32 Bq/L) を過小評価した (赤マーカー、**Fig. 3.30**)。一方、Case 1 のシミュレーション結果は、冬にかけては実測値と整合的であった。チューニングを行った K_d のパラメータセット (Case 2、青線、**Fig. 3.30**) の計算結果 (平均 0.36 Bq/L) は、夏と秋の時期に最も観測値と整合的な結果となった。しかし、Case 2 のシミュレーション結果は、冬の時期に過大評価する傾向にあった。**Fig. 3.31** に、平水時における観測値と計算値の分布図を示す ($n=33$)。Case 1 については、76% のプロットがファクター 2 の値の範囲であった。一方、Case 2 に

については 94%であった。ピアソン相関係数はわずかに Case 1 に比べ Case 2 の方が高かった(**Table 3.4**)。いずれのシミュレーション結果も実測値の季節変動(夏季に高く、冬季に低い)(赤マーカー、Fig. 3.30)および出水時の濃度上昇(紫マーカー、**Fig. 3.30**)を再現することが出来なかった。台風 Phanfone, Vongfong, Nangka 時の結果について、**Fig. 3.30** より、シミュレーション結果は河川水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度のピーク(0.18-0.88 Bq/L、平均値: 0.55 Bq/L)を再現することが出来なかった。この結果は懸濁態 ^{137}Cs 濃度とは対照的で、懸濁態 ^{137}Cs 濃度に関してシミュレーション結果は、観測値と整合的な結果となっている(**Fig. 3.30**)。

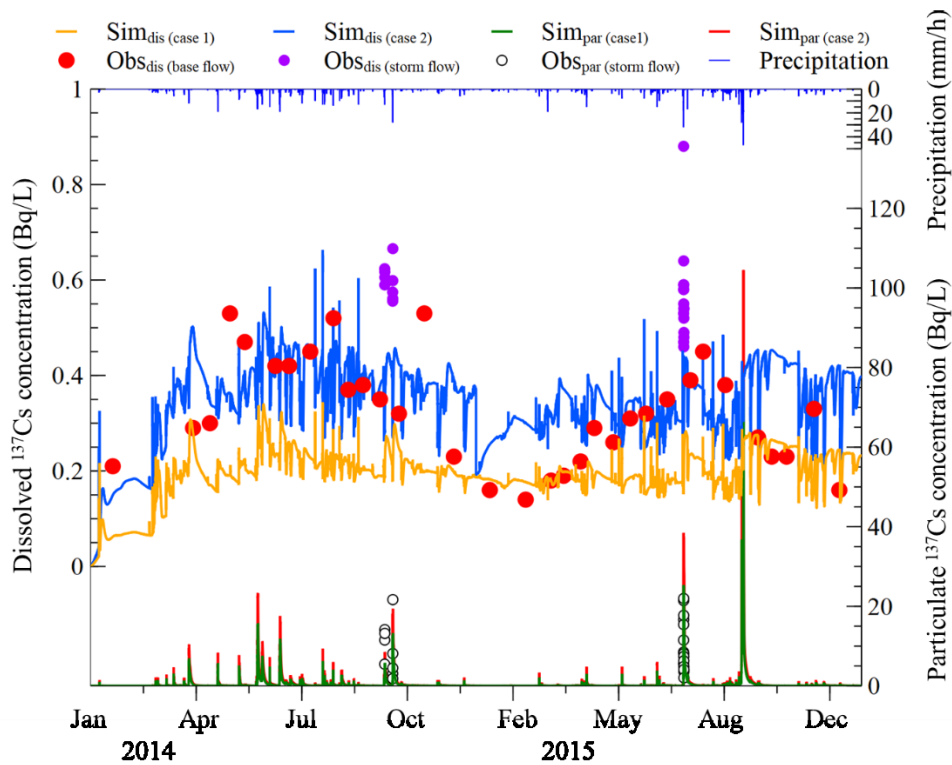


Fig. 3.30. Results for dissolved and particulate ^{137}Cs concentrations in the catchment outflow.

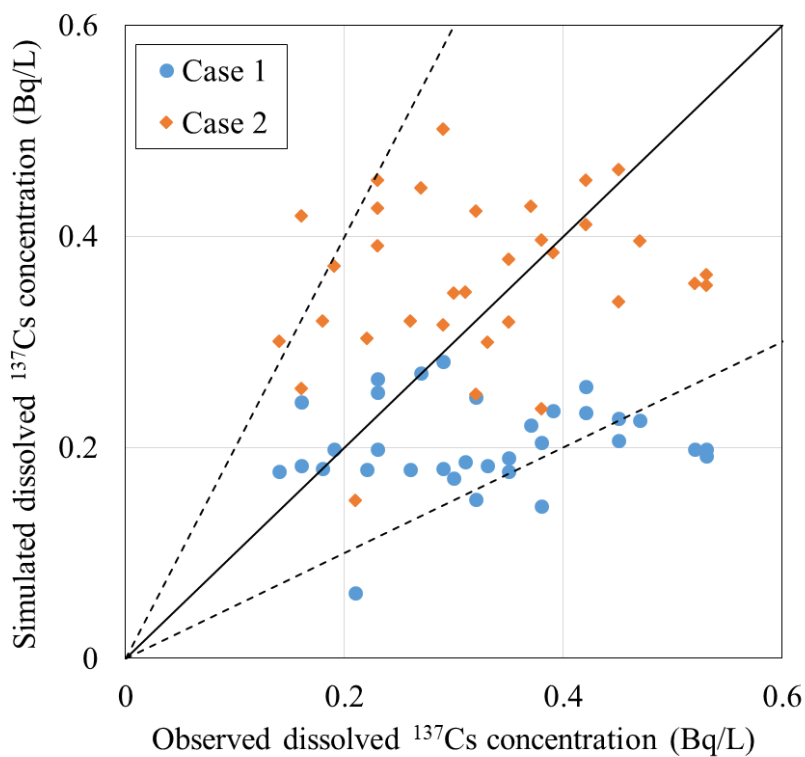


Fig. 3.31. Scatter plot of dissolved ^{137}Cs concentrations at the catchment outlet under base flow conditions ($n=33$), comparing measurements and simulations. Solid line indicates equality, while dashed lines indicate bands within a factor of 2.

Table 3.4. Correlation between simulated and measured dissolved ^{137}Cs concentrations in river water at the catchment outflow under base flow conditions ($n=33$).

Simulation case	Percentage of results within a factor of 2 from measurements (%)	Pearson correlation coefficient, r
Case 1	76	0.13
Case 2	94	0.21

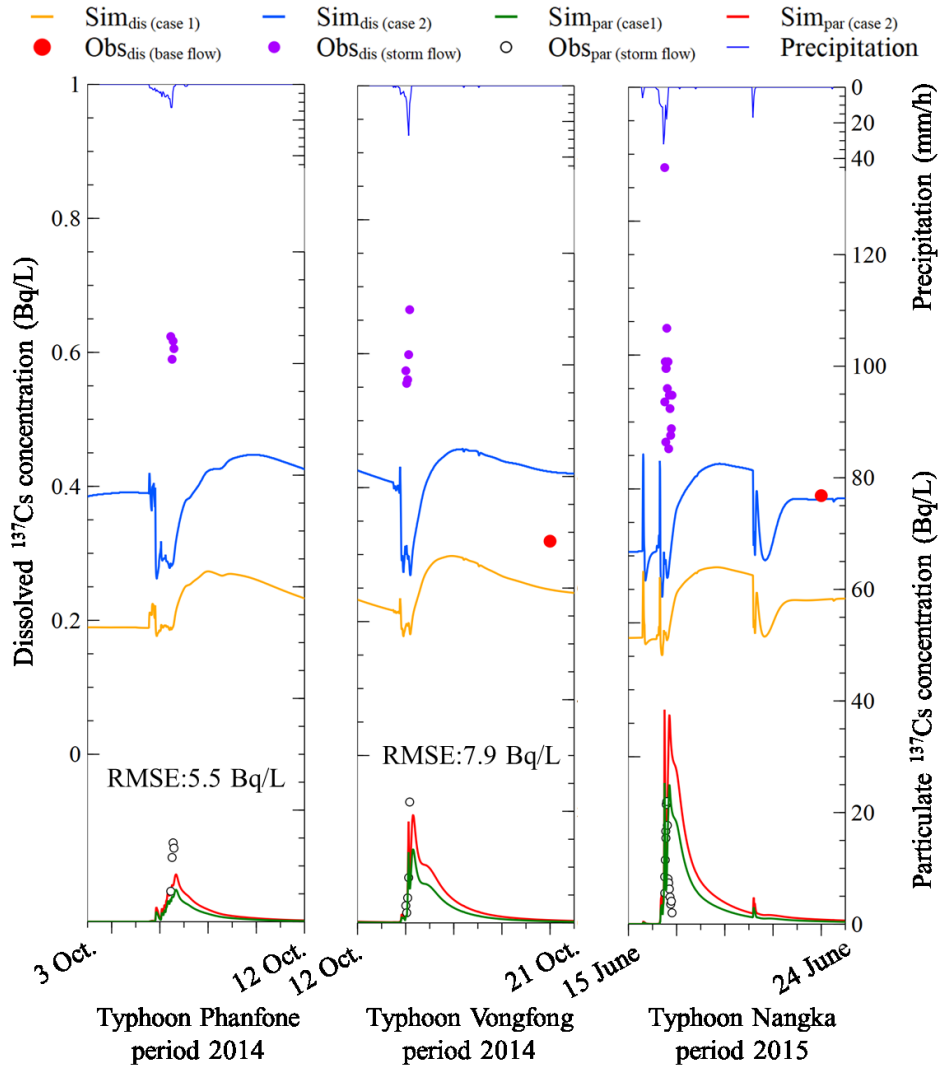


Fig. 3.32. Comparison of simulated and measured dissolved ^{137}Cs concentrations under storm flow conditions in the catchment outflow.

3.3.3. 流域全体における ^{137}Cs の再分布

Table 3.5 に示すように、2014 年 5 月 29 日から 2015 年 5 月 29 日において、流域から流出する溶存態 ^{137}Cs 量シミュレーション結果は、Tsuji et al. (2016) で測定された実測値とよく一致した。Case 2 のシミュレーション結果 (7.9×10^9 Bq) は、観測値 (8.7×10^9 Bq) の結果を Case 1 の結果 (4.0×10^9 Bq) よりもよく再現していた。これは Case 2 の方が K_d のチューニングを実施しているからである。一方、懸濁態 ^{137}Cs については実測値に比べて 2-3.5 倍程度過大評価していた (Table 3.4)。これは浮遊砂フラックス (Fig. 3.29) および懸濁態 ^{137}Cs フラックス (Fig. 3.32) が出水後の減水過程で過大評価していることに由来すると考えられた。

Yoshimura et al. (2015a)は、2011年7月17日から2012年11月18日にかけて森林内で USLE (Universal Soil Loss Equation)流出プロットを用いて、プロットから流出する土壌粒子に吸着した ¹³⁷Cs を測定し、流出率が 0.07%と報告している。Niizato et al. (2016)は、同様のプロットを作成し、2013年から2014年の143-234日間において0.04-0.12%の流出率を報告している。2014年5月29日から2015年5月29日にかけて懸濁態 ¹³⁷Cs の流出量は、0.12%(Case 1)および0.18%(Case 2)であった。

Fig. 3.33 は2014年1月1日から2015年12月31日の2年間における ¹³⁷Cs インベントリの正味の変化量を示す。セシウム 137 は河床と河畔帯において集積する傾向にあり、反対に森林域から侵食していた。これらの結果は、**3.1** および **3.2** の結果と整合的であった。

Table 3.5. Total ¹³⁷Cs discharge from catchment between 29 May 2014 and 29 May 2015.

Case	Dissolved (Bq)		Particulate (Bq)	
	Simulation	Observation ^a	Simulation	Observation ^a
Case 1	4.0×10^9	8.7×10^9	4.8×10^{10}	2.1×10^{10}
Case 2	7.9×10^9		7.3×10^{10}	

^a Tsuji et al. (2016).

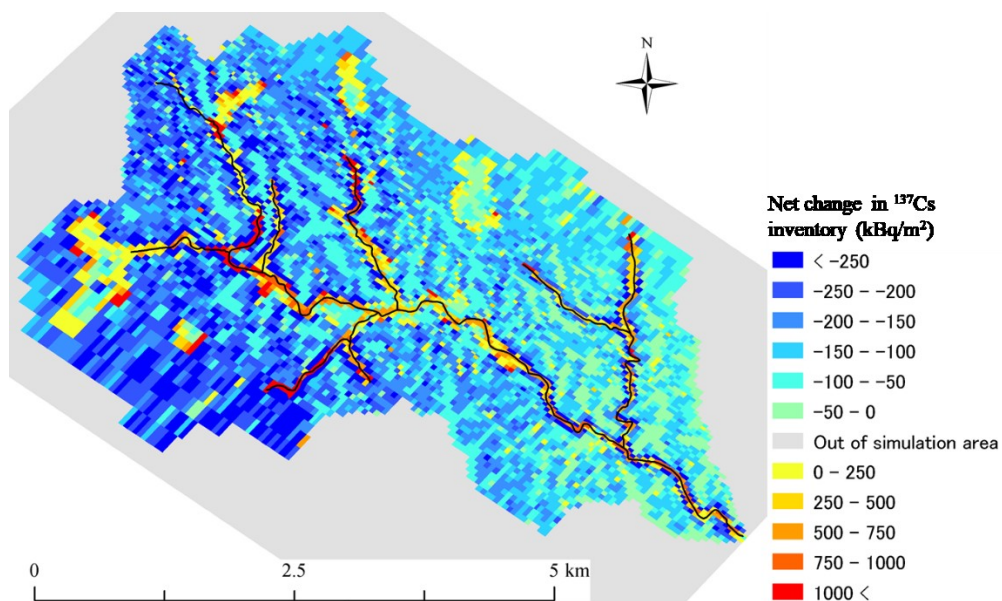


Fig. 3.33. Case 2 simulation results for net change in ¹³⁷Cs inventory between 1 January 2014 and 31 December 2015.

3.3.4. K_d を用いた溶存態 ¹³⁷Cs 濃度モデリング

K_d の吸脱着の影響を地下水(間隙水)と地表のセル(地表流および河川)で分けて考慮している。間隙水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度は、吸脱着係数が非常に速い($a_i^{1,2}$ 、**Table 2.14**)ため、固相と液相は瞬時平衡が成り立っている。つまり、モデルの地下のセルは常に、土壌の ¹³⁷Cs インベントリに応じて一定の濃度となる。従って、溶存態 ¹³⁷Cs 濃度に影響を与える要因は、 K_d 、粒径分布、インベントリによって値が決まる土壌粒子中の ¹³⁷Cs 濃度である。表層のセルに関しても同様に、シミュレーション中、懸濁態 ¹³⁷Cs と溶存態 ¹³⁷Cs は瞬時平衡が成り立っている。従って、溶存態 ¹³⁷Cs 濃度を定める重要な要因は、 K_d 値と浮遊砂の粒径分布、浮遊砂濃度、セルに入ってくる(および出ていく)溶存態および懸濁態 ¹³⁷Cs 濃度である。後半 2 つの要因については地表セルと地下セルで挙動が異なる。地下においては土壌中に既に大量の ¹³⁷Cs が存在するため、セルへの入力および出力は地下においては影響が少ないと考えられる。一方、地表のセルにおいては、非常に大きな影響をもたらす、溶存態 ¹³⁷Cs 濃度と浮遊砂濃度、懸濁態 ¹³⁷Cs 濃度が K_d 値によってバランスするためである。

シミュレーション Case 1 においては、 K_d は 0.3 mm 以上を除き、均一に設定した(**Table 2.14**)。一方、Case 2 は細かい粒子である 0.001、0.01 mm と大きめの粒子 0.1、0.3 mm で異なる K_d 値を与えた。**Fig. 3.34 a** より、河川水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度は、近傍のセルの地下の間隙水中の平均的な溶存態 ¹³⁷Cs 濃度に近い値となっている。従って、平水時における懸濁態 ¹³⁷Cs は溶存態 ¹³⁷Cs 濃度にあまり影響を与えないことを意味する。地表水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度は、間隙水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度が高いために、シミュレーション Case 1 に比べ Case 2 の方が高い。これは言い換えると、Case 1 に比べ、大きめの粒子 0.1 および 0.3 mm に吸着する ¹³⁷Cs が少なくなっていることを意味する(**Table. 2.14**)。

シミュレーションは流量と浮遊砂フラックス、懸濁態 ¹³⁷Cs 濃度を再現したにも関わらず、Case 1、2 どちらも台風中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度の上昇を再現することが出来なかった。さらに、季節変動も再現することが難しかった。GETFLOWS のような精緻な水循環モデルを用いたシミュレーションにおいては、水文学的要因、例えば降水量、蒸発散量、河川流量、地下水位は、河川水中の懸濁態 ¹³⁷Cs 濃度に比べ、溶存態 ¹³⁷Cs 濃度に影響を及ぼさないことがわかった。夏季の降水量の多さは、特に台風によって、河川を介した土砂輸送を引き起こす。このことは吸脱着を通じて河川水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度を変化させ得るかも

しれないが、出水時中の溶存態濃度の上昇を説明するには不十分であることがわかった。また、河川流量が増えることによる溶存態 ¹³⁷Cs 濃度の希釈効果(Muraoka and Hirata, 1988)あるいは計算中の浮遊砂量が高くなることによって、浮遊砂からの ¹³⁷Cs 脱着量が増えた可能性がある。しかし、Tsuji et al. (2016)によると、浮遊砂濃度および溶存態 ¹³⁷Cs 濃度は平水時および出水時どちらにおいても相関関係にあることを報告している。

仮定した瞬時平衡(Table. 2.14)モデルの限界もあり得る。Yoshimura et al. (2015b)は、現場で採取した河川水中の懸濁態および溶存態 ¹³⁷Cs 濃度は平衡状態に達していないと提案している。共存イオン効果(Tsuji et al., 2016)や浮遊砂中の鉱物組成(Cha et al., 2006)について、本研究の K_d モデルではとらえきれていない。さらに、 K_d 自体も粒径サイズの違いにより、河川水や河床、森林間で異なると考えられる。分配係数は、さらに有機物によって変化することが言われている(Valcke and Cremers, 1994)。以上のような現象がフィールドにおいては考えられるが、GETFLOWS 計算において K_d 値を変化させることによってでは、出水時の濃度上昇と平水時の季節変動を再現することを難しいと考えられた。

シミュレーションは森林流域の有機物層を考慮していない。出水時において、地表面の飽和によって森林リター層を通じた大量の流出が考えられる。¹³⁷Cs はこういった際にリター層から溶脱し、河川へ流入すると考えられる(Tsuji et al., 2016)。夏季に高く、冬季に低いといった季節変動を説明する主要因は、微生物が挙げられる。微生物活性は温度に依存し、リター層の総量も季節によって異なる。溶存態 ¹³⁷Cs 濃度を計算するためには、リター層を考慮に入れる必要があると今回のシミュレーションから示唆された。

3.3.5. 溶存態 ¹³⁷Cs の発生源

今回の計算において、固相と液相は瞬時平衡を仮定しているため、間隙水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度はほぼ常に一定の値となる。Fig. 3.34 a のように、計算対象領域間で間隙水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度の変動は小さい。このわずかな違いは、異なる粒径分布と初期インベントリの違いによる。高い傾向の場所は、初期沈着量の高い場所の傾向がある(Fig. 2.4)。本研究のシミュレーションでは、間隙水は湧水が起こる場所において地表水の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度に影響した。平水時における河川水中の溶存態 ¹³⁷Cs 濃度の空間分布を Fig.

3.34 b に示す。ただし、計算の格子解像度(約 40m)は現実の溪流の河床幅(約 1-5m)に比べ大きいことに留意する必要がある。出水時において、地表水は徐々に流域全体を覆った(Fig. 3.34 c-d)。出水時の初期は、初めに河畔帯が地表流に覆われ(Fig. 3.34 c)、その後、涸沢に復帰流が表れ始めた(Fig. 3.34 d)。従って、出水時における溶存態 ^{137}Cs の主要な発生源は、河畔帯および涸沢と考えられた。

Tegen and Dörr (1996)、Nakanishi et al. (2014)および Koarashi et al. (2016)は、森林リターから ^{137}Cs が即座に溶脱すること、森林土壌中における ^{137}Cs の下方への移行は冬季よりも下記の方が速いことを発見した。Murakami et al. (2014)および Sakai et al. (2016)は、森林リターに比べて、河床リターの ^{137}Cs 濃度は一般的に低いことを示した。従って、有機物からの ^{137}Cs の溶脱は、河川水中の ^{137}Cs 濃度を決定する重要な要因として考えられるものの、現状、河畔帯と河川とのコネクティビティの理解が不十分である。

出水時の非常に大きな流量は、河畔帯および涸沢からの ^{137}Cs 流入に対し、河川水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度を希釈する。このことが、出水時中に濃度が上昇しない理由として考えられる(Fig. 3.32)が、観測結果では、出水時の河川水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は上昇しているので(Shinomiya et al., 2014; Yoshikawa et al., 2014; Tsuji et al., 2016)、この乖離を再現、理解するために、GETFLOWS にリター層を考慮したシミュレーションが今後望まれる。

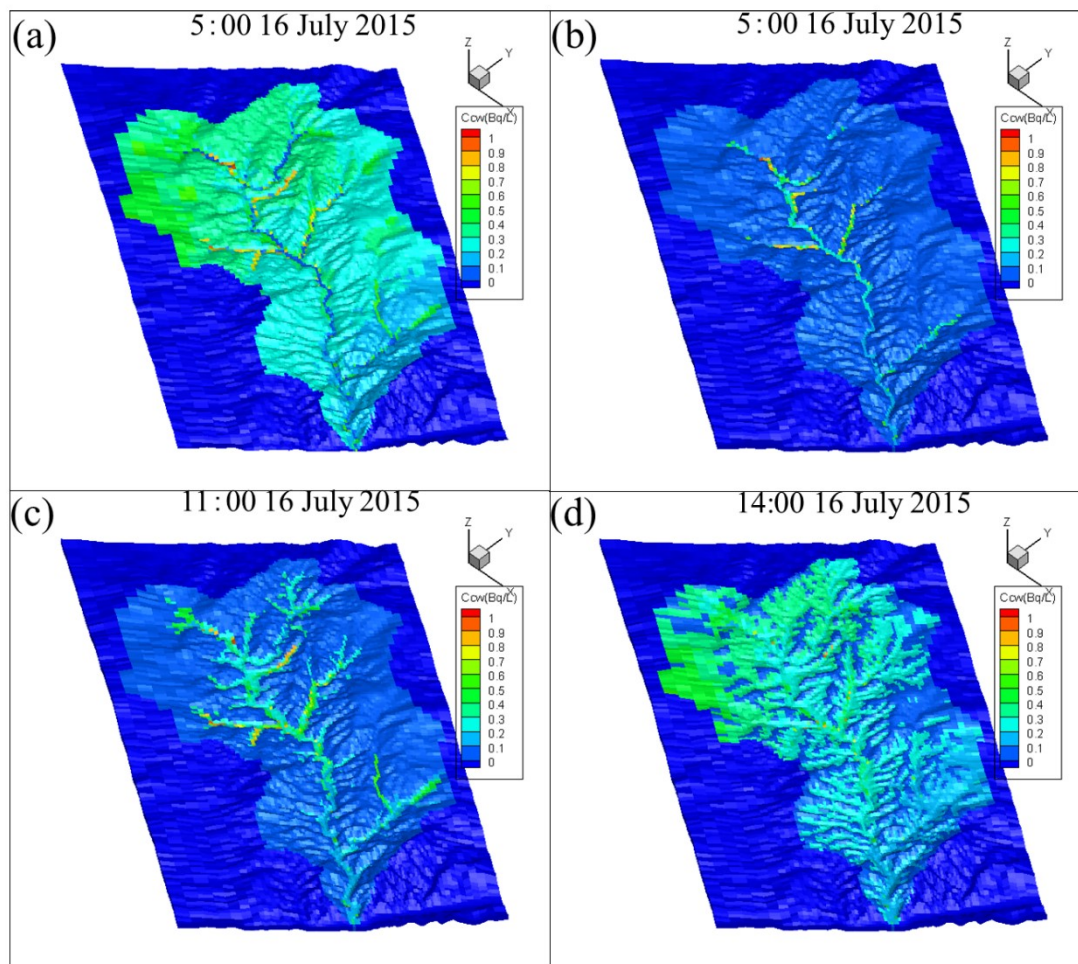


Fig. 3.34. Spatial distribution of dissolved ^{137}Cs concentration (a) in the pore water in surface soil and (b) – (d) in the surface water before and during 16 July 2015 (Typhoon Nangka) for simulation case 1 (case 2 simulation shows similar trends).

4 モンテカルロ放射線輸送コードを用いた森林内の空間線量率解析

4.1. 森林モデル

森林内外の放射線の挙動をより現実的にシミュレーションするには、森林内の樹木をモデル化する必要がある。そこで、樹木をモデル化するにあたり、**Fig. 4.1**のように、樹高、生枝下高、胸高直径(地上高1.3 mでの直径)、枝張りといった4つの特徴量を指定することによって、樹木を作成できるようにした。樹幹については、**Fig. 4.1**のように円柱型とした。また、**Fig. 4.2**のように、樹木内は心材と辺材、樹皮に区分し、その各々に対し、梶本ら(2014)に示された方法に従って、容積比(%)および容積密度(g/cm^3)を与えた(**Table 4.1**)。樹冠の枝葉については、**Fig. 4.3**のように、針葉樹に対しては三角形の回転体(円錐)の形状を想定し、底辺半径は枝張りの半分の大きさ、高さは(樹高)-(生枝下高)とした。枝葉については、梶本ら(2014)より、胸高直径に応じた存在量(乾燥重量)の推定式を用いて算出した。計算式は以下を参照する。

$$\text{乾燥重量 (kg)} = A \times (\text{胸高直径 (cm)})^B \quad (4-1)$$

ここで、葉の場合： $A = 4.36 \times 10^{-3}$, $B = 2.61$ 、枝の場合： $A = 4.36 \times 10^{-4}$, $B = 3.17$ とする。

さらに、樹木試料の含水率を用いて算出する生材料重量(g)の計算式を以下に示す。

$$\text{生材重量 (g)} = \text{乾燥重量 (g)} \times \{1 + (\text{含水率 (-)})\} \quad (4-2)$$

$$\text{含水率 (-)} = (\text{生材重量 (g)} - \text{乾燥重量 (g)}) / \text{乾燥重量 (g)} \quad (4-3)$$

樹幹および枝葉の元素成分はC, H, Oのみと仮定した。樹木の各部位ごとの放射能については、福島事故由来の主要な放射性物質である ^{134}Cs および ^{137}Cs の濃度(Bq/m^3)を与えた。上記の樹木モデルを、後述する立木密度に基づき、また本研究の対象領域は、針葉樹のみ存在しているため、針葉樹モデルのみを考慮し、さらに10 m解像度の数値標高モデル(DEM)を用いて作成した地形上に、ランダムに樹木を生やすことによって、森林モデルを作成した(**Fig. 4.4**)。

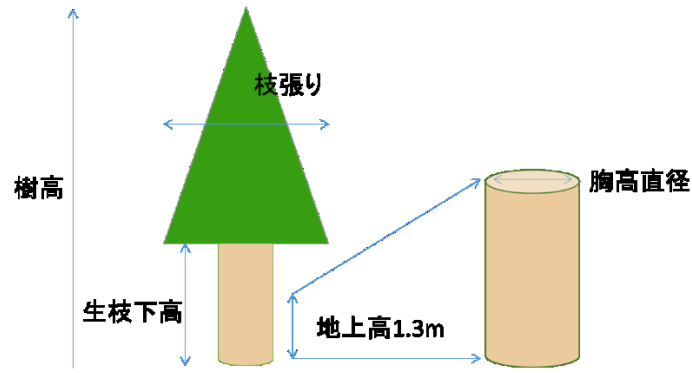


Fig. 4.1. 樹木モデルの特徴量

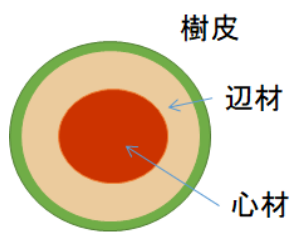


Fig. 4.2. 樹幹モデル

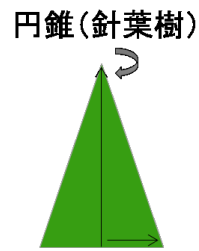


Fig. 4.3. 枝葉モデル

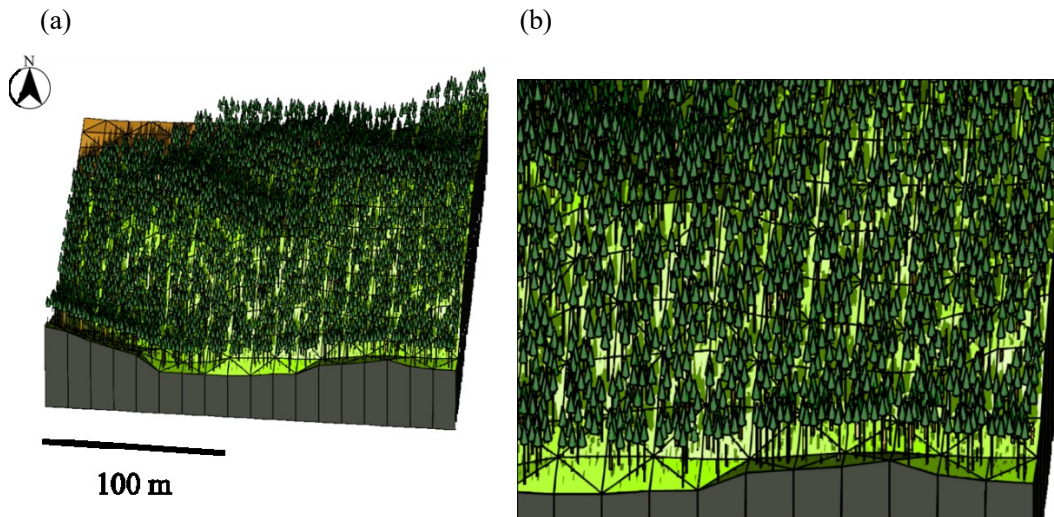
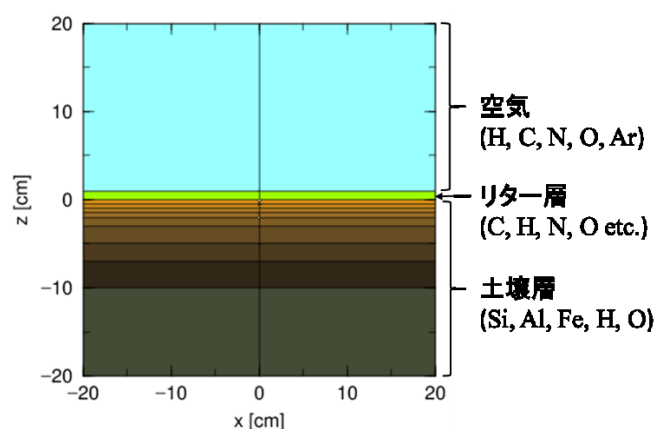


Fig. 4.4. 森林内3次元モデル(a)モデル適用範囲の全体図 (b)拡大図

Table 4.1. 樹皮、辺材、心材の容積比および容積密度

樹幹部位	容積比 (%)	容積密度 (g/cm ³)
樹皮	5.8	0.234
辺材	62.0	0.231
心材	32.2	0.266

森林内外の放射線をシミュレーションするためには、樹木のみならずリター層や土壌層もモデル化する必要がある。森林内の放射性 Cs の深度分布は、基本的に表層土壌ほど濃度が高い傾向がある(Imamura et al., 2017)。これは、土壌中の粘土鉱物が放射性 Cs を特異的に取り込む特性があるからである(Akai et al., 2013; Kozai et al., 2012; Tanaka et al., 2013)。また、リター層においても放射性 Cs が確認されていることから(Imamura et al., 2017)、地表近傍をより細かく設定した方がより、現実的となる。そこで、**Fig. 4.5** のように、土壌およびリターの物性、層厚を設定した。リター層厚を 1 cm、土壌層厚を表層から順に 0.5, 0.5, 0.5, 0.5, 1.0, 2.0, 2.0, 3.0 cm とした。リター層の元素は有機物(構成元素 C, H, N, O 等)(犬伏, 2001)とし、土壌層の元素は無機(構成元素 Si, Al, Fe, H, O)を考慮した(犬伏, 2001)。またリター層より上部に空気層(構成元素 H, C, N, O, Ar)を設定した。

**Fig. 4.5.** リター層および土壌層モデル

4.2. 調査サイトおよびモデル化

福島県川内村荻地区の杉林を対象とした。このサイトは福島県第一原子力発電所から南西 15 km のところに位置する。サイト内に生育するスギ立木を 5 本選定し(**Fig. 4.6**)、2015 年 10 月 27-29 日に伐採し、

樹高、生枝下高、胸高直径の測定(**Table 4.2**)および葉、樹皮、辺材、心材を採取した。現存量を容積密度から算出し、含水率、 ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度を測定した(**Table 4.3**)。さらに、サイトの面積とスギ立木の本数から、立木密度を算出した(**Table 4.2**)。枝葉張りは実測値を取得しておらず、**Table 4.2** のように仮定した。2015年10月30日に採取面積が $15 \times 30 \text{ cm}$ のスクレーパープレートを使用して、調査サイト内の3か所(**Fig. 4.6**)において、LおよびF層、土壌を0-10 cmまでは1 cm厚で採取し、10-18 cmは2 cm厚で採取した。各層毎に湿潤および乾燥重量 (g)、含水率 (-)、 ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg)を測定し、モデルへの入力値は、それらの平均値とした。モデルの妥当性評価として、計算対象領域内で2015年10月1日に取得されたグリッドサーベイ(**Fig. 4.6**)データを使用した。

Table 4.2. 樹木の特徴量および立木密度

樹高 (m)	生枝下高 (m)	枝張 (m)	胸高直径 (cm)	立木密度 (本/ha)
21.5	14.6	2.1	21.6	731

Table 4.3. 樹木における放射性 Cs 濃度

部位	容積 密度 (g/cm ³)	^{134}Cs (Bq/cm ³)		^{137}Cs (Bq/cm ³)		含水率 (-)
		2015 年実測 ベース ^a	2011 年実測 ベース ^b	2015 年実測 ベース ^a	2011 年実測 ベース ^b	
枝葉	0.0048	0.055	0.51	0.16	0.59	0.85
樹皮	0.234	1.02	3.25	3.05	3.77	0.6
辺材	0.231	0.0156	0.044	0.047	0.051	0.6
心材	0.266	0.019	0.02	0.056	0.023	1.2

a: 2015年10月現地取得データ

b: 2015年10月現地取得データおよび放射性Cs濃度のみ2011年8-9月取得データ

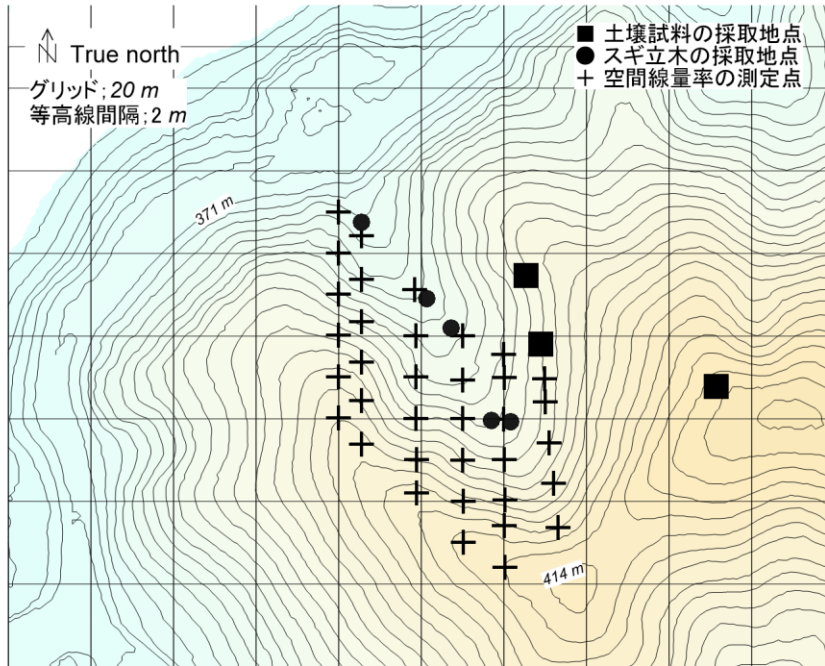


Fig. 4.6. 調査サイトにおける土壌試料、スギ立木の採取地点及び空間線量率の測定点

等高線データは国土地理院による航空レーザー測量成果を利用。地形図作成には Surfer 11.6 (Golden Software, Inc., USA)を用いて描画。

得られた観測データから、森林内3次元放射源モデル(Fig. 4.7-8の上段)を作成した。シミュレーションケースは以下の3つを想定した。ケース①は放射性Csが樹木、リター層、土壌層に存在するケース、ケース②は樹木に存在していた放射性Csがリターフォール等に伴い全てリター層へ移行したケース、ケース③はリター層に存在した放射性Csが分解や降雨等によって全て表層土壌層へ移行したケースである。計3つのケース(Table 4.4)を想定して、計算を実施した。さらに、2015年10月の観測値では、放射性Csのほとんどが既に樹冠から林床へ移行しているため、Imamura et al. (2017)の2011年8-9月取得データを参考に、樹木に多量の放射性Csが残存するパターン(Table 4.3)を想定し、上記と同様に、それらがリター層および表層土壌層へと移行したケース(Table 4.5)を設定した。放射性Csデータのみ、Imamura et al. (2017)を使用し、それ以外は現地の観測データをそのまま利用した。

Table 4.4. リターおよび土壌層パラメータ

層	層厚 (cm)	全乾 重量 (g/cm ³)	¹³⁴ Cs (Bq/cm ³)			¹³⁷ Cs (Bq/cm ³)			含水率 (-)
			ケース	ケース	ケース	ケース	ケース	ケース	
			①	②	③	①	②	③	
リター	1.0	0.17	1.35	1.86	0	7.85	10	0	0.29
土壌	0.5	0.11	1.71	1.71	5.42	7.53	7.53	27.5	0.52
	0.5	0.11	1.71			7.53			0.52
	0.5	0.1	0.89			3.88			0.47
	0.5	0.1	0.89			3.88			0.47
	1.0	0.11	0.42			1.87			0.44
	2.0	0.11	0.18			0.78			0.41
	2.0	0.16	0.11			0.43			0.41
	3.0	0.18	0.06			0.25			0.39

2015年10月現地取得データに基づき作成

Table 4.5. リターおよび土壌層パラメータ

層	層厚 (cm)	全乾 重量 (g/cm ³)	¹³⁴ Cs (Bq/cm ³)			¹³⁷ Cs (Bq/cm ³)			含水率 (-)
			ケース	ケース	ケース	ケース	ケース	ケース	
			①	②	③	①	②	③	
リター	1.0	0.17	10.3	50.7	0	11.9	58.8	0	0.29
土壌	0.5	0.11	1.13	1.13	103	1.31	1.31	119	0.52
	0.5	0.11	1.13			1.31			0.52
	0.5	0.1	1.06			1.23			0.47
	0.5	0.1	1.06			1.23			0.47
	1.0	0.11	1.16			1.34			0.44
	2.0	0.11	1.09			1.26			0.41
	2.0	0.16	0.05			0.06			0.41
	3.0	0.18	0.06			0.07			0.39

2015年10月現地取得データおよび放射性Cs濃度のみ2011年8-9月取得データに基づき作成

4.3. モンテカルロ放射線輸送シミュレーション (PHITS)

日本原子力研究開発機構が主に開発したモンテカルロ放射線輸送コードに PHITS (The Particle and Heavy Ion Transport code System - version 2.64)(Sato et al., 2018)がある。PHITS は重粒子線からガンマ線まで幅広い放射線輸送の計算が行えるシミュレーションコードである。本研究では、この PHITS への入力データとして必要な、ジオメトリ、物質の材料データ、放射源の種類と量のデータを出力することが可能

なツールを開発した。そのツールを用いて、入力ファイルを作成し、PHITSを用いて、森林内外のガンマ線の放射線挙動をシミュレーションした。ガンマ線の発生回数(ヒストリー数)は40万回、バッチ数は11回行い、統計処理を行うことによって、粒子フルエンスの空間分布および相対誤差を算出した。出力された粒子フルエンスについては、ICRP 1997, Publ.74 の換算係数($\mu\text{Sv cm}^2$)を用いて、空間線量率($H^*(10)$ ($\mu\text{Sv/h}$))に換算し、空間線量率の空間分布を得た。

4.4. 動態を考慮した森林内の空間線量率評価

Fig. 4.7 について、2015年10月時点でほとんど樹冠に放射性Csが残っていないため、樹木、リター層、土壌層に放射性Csが存在するケース①においては、樹木からリター層へ移行したケース②とほとんど傾向が変わらない結果となった。一方、リター層から土壌層へ移行したケース③においては、表層土壌近傍を除き、一様に地上から上空200 mまで減少傾向が見てとれた。また、地上1 m高さの空間線量率をケース毎に比較すると、今回の放射性Cs線源分布の設定において、ケース①、②では、リター自身の遮蔽効果よりも線源が近くなったことによる効果によって、わずかに空間線量率が高くなった。ケース③においては、表層土壌内自身の遮蔽効果が大きいため、ケース③とケース①および②を比較すると2倍程度の違いがあった。従って、2015年以降においては、リターフォールによる地上1 mの空間線量率の上昇は非常に限定的と考えられ、さらに放射性Csが土壌深さ方向に徐々に浸透することによって、空間線量率は減少傾向になると予測された。

地上1 m高さの空間線量率の実測値として、計算対象領域内で $1.49 \pm 0.20 \mu\text{Sv/h}$ ($n=36$)であるため(Fig. 4.6)、Fig. 4.7より、計算値 $0.41 \pm 0.037 \mu\text{Sv/h}$ と比較すると、3分の1程度過小評価している結果となった。今後、定量的な妥当性評価が課題として挙げられた。

Fig. 4.8 について、2011年8月時点では樹冠に多くの放射性Csが残っているため、放射性Csが樹木、リター層、土壌層に存在するケース①では樹冠近傍で線量率が高い傾向となり、樹木からリター層へ移行するケース②においては、地表面近傍が上がり、逆に樹冠近傍の空間線量率が下がり、樹冠および樹幹の遮蔽効果によって、地上から上空200 mまでの範囲において、大きく減少する傾向が見て取れた。高さ方向の空間線量率の定性的な分布傾向は、筑波大学において実施された、森林内にタワーを建てて、測

定された空間線量率のデータと同様な傾向を示した(JAEA, 2014)。リター層から土壌層へと移行するケース③においては、表層土壌による遮蔽効果が大きいものの、全体的な傾向はケース②と大きくは変わらなかった。

しかし、**Fig. 4.8** より、地上 1 m 高さの空間線量率をケース毎に比較すると、今回の放射源分布の設定においては、ケース②ではリター自身の遮蔽効果よりも線源との距離が近くなったことにより、大幅に上昇し、一方ケース①については、空気の遮蔽は大きくないものの、地上 1 m 高さに対して、距離が 20 m 程度(**Table 4.2**)あり、さらに樹幹自身の遮蔽効果もあいまって、ケース②で 2-3 倍程度高い傾向を示した(Golikov et al., 1999)。ケース③においては、土壌の高い遮蔽効果によって 3 倍程度低い傾向を示した。もちろん、今回の計算結果は、今回設定したパラメータセットに依存する。実際の測定(JAEA, 2014; 福島県, 2018)においては、森林内においてここまで大きく空間線量率の変化は認められていない。さらに、現実にはリターフォールが起これつつ、リター層の分解および土壌層内の深度分布の変化が同時に起これ、放射性 Cs の深度分布は大きくなるが、今回の設定では、リター、土壌層での下方浸透は考慮しておらず、そのため過大評価している可能性が考えられた。今後、樹木高さ、枝葉の放射性 Cs 濃度、あるいは含水率や樹木本数等、様々な要因に対して感度解析を実施する予定である。

今回、リター層および土壌層中の放射性 Cs 深度分布は、3 地点で測定された平均値を全平面に与えているが、実際は深度分布の空間分布が存在する(Kato et al., 2017)。林床における放射性 Cs インベントリの水平方向の空間分布も多数報告(Takada et al., 2016; Ochi et al., 2017)されているため、これ以上の詳細なモデル化は難しい。しかし、それらをできる限り現実的なモデル化を行くことの意義としては、今後の森林内における空間線量率がどのように減少、変化していくのかといった問いに対し、どこの媒体、例えば樹冠、樹幹、リター層、土壌層が、1 m あるいは 200 m 空間線量率に対して、どの程度寄与しているのかが、定性的に、可能な限り定量的に示唆できる点にあると考えられる。

4 モンテカルロ放射線コードを用いた森林内の空間線量率解析

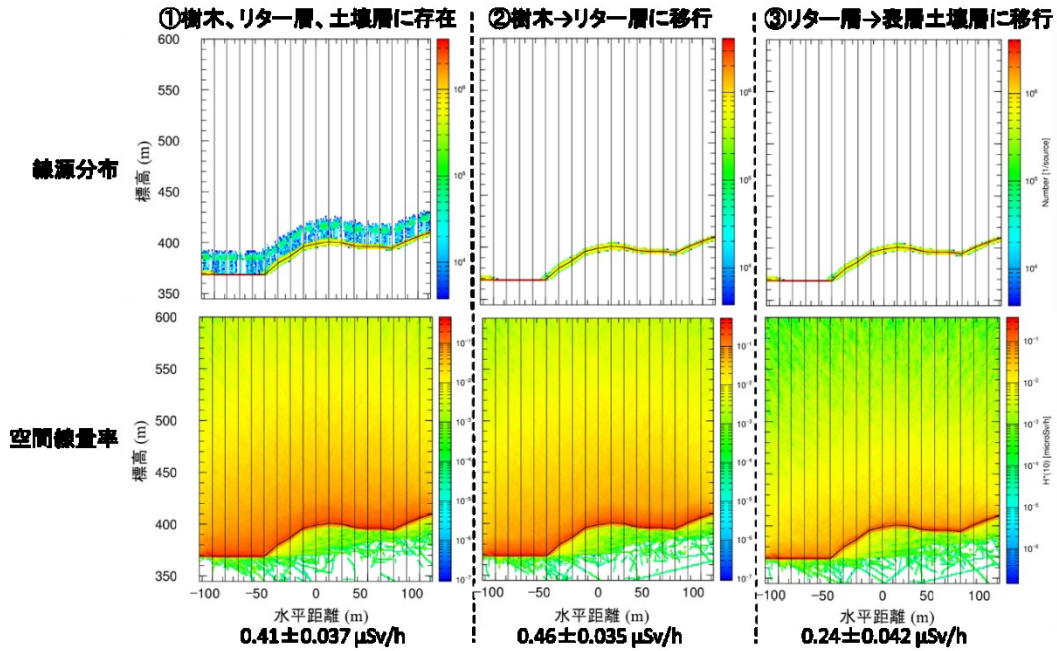


Fig. 4.7. 放射性 Cs 分布および空間線量率分布

2015 年 10 月現地取得データに基づき計算。下部の値は地上 1m 高さの空間線量率の平均値。エラーバーは相対誤差。

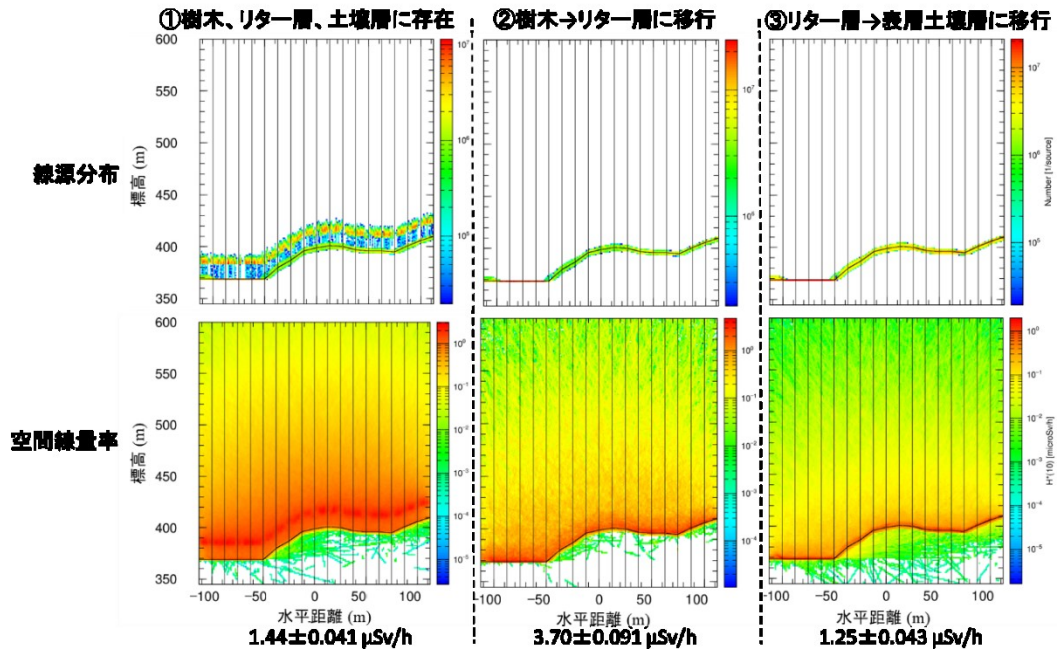


Fig. 4.8. 放射性 Cs 分布および空間線量率分布

2015 年 10 月現地取得データおよび放射性 Cs 濃度のみ 2011 年 8-9 月取得データに基づき計算。下部の値は地上 1m 高さの空間線量率の平均値。エラーバーは相対誤差

5 まとめ

5.1. 研究の成果

本研究では、流域物理モデルを用いた放射性 Cs 輸送解析とモンテカルロ放射線輸送コードを用いた森林内空間線量率評価を実施した。前者の研究においては、福島第一原子力発電所近傍の 5 つの流域を対象に、異なる降雨強度の計算結果から、流域毎の放射性 Cs 流出特性の評価、荻ノ沢流域を対象に、詳細な計算格子を用いて、流域内の詳細な土砂および放射性 Cs 動態の評価、太田川上流域を対象に、溶存態 Cs の流出動態および分配係数 K_d の適用可能性評価を実施した。

5 流域における評価については、水、土砂、放射性 Cs の 5 つの流域から海洋への流出量を、異なる出水イベント毎に計算、整理することによって、今後の出水イベントの降水量を把握すれば、どの程度流出するのかを予測ができるよう結果を整備した。さらに、放射性 Cs の流出率を算出することによって、流域のどのような特性が流出に寄与するのかを考察した。流出量においては、流域の面積とインベントリの積、つまり流域の総沈着量によって流出量が概ね決まるが、流出率については、放射性 Cs がどの土地利用にどれだけ沈着したのか、流域内のダム湖の有無が非常に重要であることを明らかにした。

荻ノ沢流域における評価については、放射性 Cs で汚染されてから 4 年半程度の長期間の計算を実施することによって、流域のどこから、どれくらい土砂および放射性 Cs が流出しているのかがわかった。土砂流出および放射性 Cs 流出は、河川近傍において、地表流が発生しやすいことによって、侵食が起りやすく、河川から離れた山地森林域に比べ、約 10 倍程度流出しやすいことが示唆された。さらに、水田においても土壌侵食が起りやすく、河川への流出が多いことが示唆された。河川から離れた森林域においては、侵食による流出はわずかであるため、物理減衰による減少が一番大きく、次に、降水等による下方への浸透が表層土壌から移動する量としては多いことが推測された。

太田川上流域における評価については、2014 年から 2015 年までの 2 年間で計算し、月一程度で観測されていた溶存態 Cs 濃度と、3 度の台風イベントの出水時において、比較、検証を実施した。平水時の溶存態 Cs 濃度は、今回実施した 2 つのシミュレーションケースの値の幅に概ね入っており、ある程度再現することは確認できたが、水、土砂および懸濁態 Cs の実測値の再現性を確認したモデルを用いても、観測されている平水時の溶存態 Cs 濃度の季節変動および出水時の濃度上昇を再現することが出来なかつ

た。99%以上森林である流域を対象に計算を実施したが、今回のモデルでは森林の樹冠やリター層をモデル化していない。そのため、森林リターからの放射性 Cs の溶脱を考慮することが出来ておらず、森林リターが溶存態 Cs の発生源として重要であることが示唆された。

森林は一部の林縁部を除き、除染対象外となっているため、森林内の空間線量率評価は非常に重要なテーマであり、モンテカルロ放射線輸送コードを用いた森林内の空間線量率評価を実施した。福島事故後、土壌平面や家屋内外における空間線量評価は実施されてきたものの、森林内は樹木があることによる複雑さから解析はあまり進んでこなかった。そこで、森林内でも評価を可能にするために、樹木やリター層をモデル化することが可能なツールを開発し、そのツールを用いて、モンテカルロ放射線輸送コード(PHITS)の入力条件として、森林内外の評価を実施した。樹冠、リター層、土壌層と時々刻々、森林内で放射源が変化するパターンを模擬し、シミュレーションを実施することで、森林内の動態および樹木があることによる遮蔽効果や放射源としての振る舞いを考慮した空間線量率評価を実施することが出来た。2015年に取得された放射源のデータを用いた解析では、ほとんど土壌層中に放射性 Cs が移行してしまっているため、樹冠からリター層、リター層から土壌層へ移行した計算ケースは、実際に取得された放射源分布の計算ケースと地上 1 m 高さの空間線量率の値はあまり違わなかった。一方、2011年に取得された放射源のデータを用いた解析では、樹冠に非常に多くの放射性 Cs が残存しているため、樹冠近傍の空間線量率が高い傾向が見て取れ、またそれがリター層に落葉することによって、放射源が地上 1 m 高さに対して近くなることによって、線量率が高くなる傾向が見て取れた。実際の観測値においては、1m 高さの空間線量率は、概ね物理減衰相当に減少している。従って、放射源が近くなる効果とリター層および土壌層深くに放射性 Cs が沈み込むことによる遮蔽効果が相殺されていることが考えられた。

5.2. 今後の課題

流域モデルにおいて水および土砂流出の再現性が確保されれば、放射性 Cs は非常に高い分配係数を持つため、懸濁態 Cs の流出解析も再現することは確認できたものの、分配係数のみで溶存態 Cs を表現するのでは、環境中の溶存態 Cs 濃度を再現することが出来ないことがわかった。従って、今後の課題としては、溶存態 Cs の流出を再現することが出来るように、森林リターをモデル化し、シミュレーターに反

映させて、実際に溶存態 Cs が再現可能かどうかを検証する必要がある。

森林内における空間線量率評価は、定性的な再現性はある程度確認できたものの、定量的な再現性の確認を行う必要がある。さらに、現在は環境動態解析と空間線量率評価が独立して実施されているため、その 2 つを有機的にシミュレーションすることによって、被ばく量まで評価できるためにツールあるいはシステムを今後構築していくことも非常に重要である。

引用文献

- Abbott, M. B., Bathurst, J. C., Cunge, J. A., O'Connell, P. E., Rasmussen, J., 1986. An introduction to the European Hydrological System - Systeme Hydrologique Europeen, "SHE", 1: History and philosophy of a physically-based, distributed modelling system. *J. Hydrol.* 87, 45–59, doi: 10.1016/0022-1694(86)90114-9.
- Aidarkhanov, A.O., Lukashenko, S.N., Lyakhova, O.N., Subbotin, S.B., Yakovenko, Y.Y., Genova, S. V., Aidarkhanova, A.K., 2013. Mechanisms for surface contamination of soils and bottom sediments in the Shagan River zone within former Semipalatinsk Nuclear Test Site. *J. Environ. Radioact.* 124, 163–170. doi:10.1016/j.jenvrad.2013.05.006.
- Aidarkhanova, A.K., Lukashenko, S.N., Larionova, N. V, Polevik, V. V, 2018. Radionuclide transport in the “sediments – water – plants” system of the water bodies at the Semipalatinsk test site. *J. Environ. Radioact.* 184–185, 122–126. doi:10.1016/j.jenvrad.2018.01.014.
- Akai, J., Nomura, N., Matsushita, S., Kudo, H., Fukuhara, H., Matsuoka, S., Matsumoto, J., 2013. Mineralogical and geomicrobial examination of soil contamination by radioactive Cs due to 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Phys. Chem. Earth* 58–60, 57–67. doi: 10.1016/j.pce.2013.04.010.
- Akleyev, A.V., Lyubchansky, E. R., 1994. Environmental and medical effects of nuclear weapon production in the Southern Urals. *Sci. Total Environ.* 142, 1–8.
- Beven, K., 1989. Changing ideas in hydrology - The case of physically-based models. *J. Hydrol.* 105, 157–172, doi: 10.1016/0022-1694(89)90101-7.
- Brandt, C.J., 1990. Simulation of the size distribution and erosivity of raindrops and throughfall drops. *Earth Surf. Process. Landf.* 15, 687–698, doi: 10.1002/esp.3290150803.
- Buesseler, K., 2014. Fukushima and ocean radioactivity. *Oceanography* 27, 92–105, doi: 10.5670/oceanog.2014.02.
- Cha, H.J., Kang, M.J., Geun, H.C., Geun, S.C., Chang, W.L., 2006. Accumulation of ¹³⁷Cs in soils on different bedrock geology and textures. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 267, 349–355. doi:10.1007/s10967-006-0054-4.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefevre, I., Otle, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonte, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene* 1, 23–34, doi: 10.1016/j.ancene.2013.07.001.
- Chino, M., Nakayama, H., Nagai, H., Terada, H., Katata, G., Yamazawa, H., 2011. Preliminary estimation of release amounts of ¹³¹I and ¹³⁷Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere. *J. Nucl. Sci. Technol.* 48, 1129–1134. doi:10.1080/18811248.2011.9711799.
- Cremers, A., Elsen, A., Preter, P.D., Maes, A., 1988. Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature*, 335, 247–249.
- Crick, M.J., Linsley, G.S. 1984. An assessment of the radiological impact of the Windscale reactor fire, October 1957. *Int. J. Radiat. Biol.*, 46, 479-506.
- Degteva, M.O., Kozheurov, V.P., Vorobiova, M.I., 1994. General approach to dose reconstruction in the population exposed as a result of the release of radioactive wastes into the Techa river. *Sci. Total Environ.* 142, 49–61.
- Endo, I., Ohte, N., Iseda, K., Tanoi, K., Hirose, A., Kobayashi, N.I., Murakami, M., Tokuchi, N., Ohashi, M., 2015. Estimation of radioactive ¹³⁷-cesium transportation by litterfall, stemflow and throughfall in the forests of

- Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 149, 176–185. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.07.027.
- Evrard, O., Chartin, C., Onda, Y., Lepage, H., Cerdan, O., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2014. Renewed soil erosion and remobilisation of radioactive sediment in Fukushima coastal rivers after the 2013 typhoons. *Sci. Rep.* 4, 4574. doi:10.1038/srep04574.
- Evrard, O., Laceby, J.P., Lepage, H., Onda, Y., Cerdan, O., Ayrault, S., 2015. Radiocesium transfer from hillslopes to the Pacific Ocean after the Fukushima Nuclear Power Plant accident: A review. *J. Environ. Radioact.* 148, 92–110, doi: 10.1016/j.jenvrad.2015.06.018.
- Eyrolle-Boyer, F., Boyer, P., Garcia-Sanchez, L., Métivier, J.M., Onda, Y., De Vismes, A., Cagnat, X., Boulet, B., Cossou, C., 2016. Behaviour of radiocaesium in coastal rivers of the Fukushima Prefecture (Japan) during conditions of low flow and low turbidity - Insight on the possible role of small particles and detrital organic compounds. *J. Environ. Radioact.* 151, 328–340. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.10.028.
- Frei, S., Fleckenstein, J.H., Kollet, S.J., Maxwell, R.M., 2009. Patterns and dynamics of river-aquifer exchange with variably-saturated flow using a fully-coupled model. *J. Hydrol.* 375, 383–393. doi:10.1016/j.jhydrol.2009.06.038.
- Furuta, T., Takahashi, F., 2015. Study of radiation dose reduction of buildings of different sizes and materials. *J. Nucl. Sci. Technol.* 52, 897–904. doi:10.1080/00223131.2014.990939.
- Garcia-Sanchez, L., 2008. Watershed wash-off of atmospherically deposited radionuclides: review of the fluxes and their evolution with time. *J. Environ. Radioact.* 99, 563–573.
- Garland, J.A., Wakeford, R., 2007. Atmospheric emissions from the Windscale accident of October 1957. *Atmos. Environ.* 41, 3904–3920. doi:10.1016/j.atmosenv.2006.12.049.
- Golikov, V., Barkovski, A., Kulikov, V., Balonov, M., 1999. Gamma ray exposure due to sources in the contaminated forest. In 'Contaminated Forests', ed. by I. Linkov and W.R. Schell, Springer Com., 333-341.
- Geological Survey of Japan, 2012. Seamless Digital Geological Map of Japan (1:200,000) https://gbank.gsj.jp/seamless/index_en.html (accessed 02.24.16).
- Geospatial Information Authority of Japan, 2012. <http://www.gsi.go.jp/ENGLISH/> (accessed 02.24.16).
- Gonze, M.A., Murlon, C., Calmon, P., Manach, E., Debayle, C., Baccou, J., 2016. Modelling the dynamics of ambient dose rates induced by radiocaesium in the Fukushima terrestrial environment. *J. Environ. Radioact.* 161, 22–34. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.06.003
- Govers, G., 1990. Empirical relationships for transport capacity of overland flow, in *Erosion, transport and deposition processes* (Proceedings of the Jerusalem Workshop, March-April 1987), International Association of Hydrological Sciences, 189, 45–63.
- Hamon, W.R., 1961. Estimating potential evapotranspiration, *Proceedings American Society of Civil Engineers.* 87(HY 3), 107–120.
- He, Q., Walling, D.E., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediments. *J. Environ. Radioact.* 30, 117–137. doi:10.1016/0265-931X(96)89275-7.
- 福島県, 2018. <http://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/281738.pdf> (2018年10月閲覧).
- 福島県, 2018. <http://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal/> (2018年10月閲覧).
- IAEA, 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater

- environments, Technical reports series. 472.
- Imamura, N., Komatsu, M., Ohashi, S., Hashimoto, S., 2017. Temporal changes in the radiocesium distribution in forests over the five years after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Sci. Rep.* 1–11. doi:10.1038/s41598-017-08261-x.
- ICRP, 1996. Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation. ICRP Publication 74. *Ann. ICRP* 26 (3-4).
- 今村直広, 赤間亮夫, 大谷義一, 小林政広, 坪山良夫, 高橋正通, 2017. 森林内の放射性セシウム分布を考慮した空間線量率の推定. *日林誌*, 99, 1-9.
- 犬伏和之: 2 章 土壌の構成, 「土壌学概論」, pp.9, 朝倉書店, 東京(2001).
- Iwagami, S., Onda, Y., Tsujimura, M., Abe, Y., 2016. Contribution of radioactive ^{137}Cs discharge by suspended sediment, coarse organic matter, and dissolved fraction from a headwater catchment in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 166, 466–474. doi:10.1016/j.jenvrad.2016.07.025.
- Japan Atomic Energy Agency (JAEA), 2014. <http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat03/pdf06/2-4.pdf> (accessed 09.04.15) (in Japanese).
- Japan Atomic Energy Agency (JAEA), 2014. <https://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat03/pdf06/2-2.pdf> (accessed 02.04.18) (in Japanese).
- Japan Institute of Construction Engineering, 2012. Guideline for structure investigation of river bank (in Japanese).
- Japan Meteorological Agency (JMA), 2011 and 2013. Radar-AMeDAS data (in Japanese).
- Japan Meteorological Agency (JMA), 2011–2015. AMeDAS Data (in Japanese).
- Japan Nuclear Cycle Development Institute, 1999. Technical confidence of the geological disposal for high-level nuclear waste in Japan. (in Japanese).
- Kabir, M.A., Dutta, D., Hironaka, S., 2011. Process-based distributed modeling approach for analysis of sediment dynamics in a river basin. *Hydrol. Earth Syst. Sci.* 15, 1307–1321, doi: 10.5194/hess-15-1307-2011.
- Katata, G., Ota, M., Terada, H., Chino, M., Nagai, H., 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part I: Source term estimation and local-scale atmospheric dispersion in early phase of the accident. *J. Environ. Radioact.* 109, 103–113, doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.02.006.
- Kato, H., Onda, Y., Gomi, T., 2012. Interception of the Fukushima reactor accident-derived ^{137}Cs , ^{134}Cs and ^{131}I by coniferous forest canopies. *Geophys. Res. Lett.* 39, L20403. doi:10.1029/2012GL052928.
- Kato, H., Onda, Y., Hisadome, K., Loffredo, N., Kawamori, A., 2017. Temporal changes in radiocesium deposition in various forest stands following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 166, 449–457. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.04.016.
- 梶本卓也, 高野勉, 齊藤哲, 黒田克史, 藤原健, 小松雅史, 川崎達郎, 大橋伸太, 清野嘉之, 2014. 森林生態系における樹木・木材の放射性セシウム分布と動態の調査法. *森林総合研究所研究報告*, 13, 3, 113-136.
- Kinouchi, T., Watanabe, Y., 2011. Hydrological model analysis considering spatial distribution of geological, soil and land use conditions. *J. Japan Soc. Civil Eng., Ser. B1 (Hydraul. Eng.)* 67, I_565–I_570, doi: 10.2208/jscejhe.67.I_565.

- Kinouchi T., Yoshimura K., Omata T. 2015. Modeling radiocesium transport from a river catchment based on a physically-based distributed hydrological and sediment erosion model. *J. Environ. Radioact.* 139, 407–415, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.022.
- Kitamura, A., Yamaguchi, H., Kurikami, Y., Yui, M., Onishi, Y., 2014. Predicting sediment and caesium-137 discharge from catchments in eastern Fukushima. *Anthropocene* 5, 22–31, doi: 10.1016/j.ancene.2014.07.001.
- Kitamura, A., Kurikami, H., Sakuma, K., Malins, A., Okumura, M., Machida, M., Mori, K., Tada, K., Tawara, Y., Kobayashi, T., Yoshida, T., Tosaka, H., 2016. Redistribution and export of contaminated sediment within eastern Fukushima Prefecture due to typhoon flooding. *Earth Surf. Proc. Landforms* 41, 12, 1708–1726, doi:10.1002/esp.3944.
- Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Matsunaga, T., Sato, T., Nagao, S., Nagai, H., 2012. Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radio-cesium in soil under different land-use conditions. *Sci. Total Environ.* 431, 392–401, doi: 10.1016/j.scitotenv.2012.05.041.
- Koarashi, J., Nishimura, S., Nakanishi, T., Atarashi-Andoh, M., Takeuchi, E., Muto, K., 2016. Post-deposition early-phase migration and retention behavior of radiocesium in a litter-mineral soil system in a Japanese deciduous forest affected by the Fukushima nuclear accident. *Chemosphere* 165, 335–341. doi: 10.1016/j.chemosphere.2016.09.043.
- Kobayashi, T., Nagai, H., Chino, M., Kawamura, H., 2013. Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 50, 255–264, doi: 10.1080/00223131.2013.772449.
- Kozai, N., Ohnuki, T., Arisaka, M., Watanabe, M., Sakamoto, F., Yamasaki, S., Jiang, M., 2012. Chemical states of fallout radioactive Cs in the soils deposited at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J. Nucl. Sci. Technol.* 49, 473–478. doi:10.1080/00223131.2012.677131.
- Kurikami, H., Kitamura, A., Yokuda, S.T., Onishi, Y., 2014. Sediment and ¹³⁷Cs behaviors in the Ogaki Dam Reservoir during a heavy rainfall event. *J. Environ. Radioact.* 137, 10–17. doi:10.1016/j.jenvrad.2014.06.013.
- Kurikami, H., Funaki, H., Malins, A., Kitamura, A., Onishi, Y., 2016. Numerical study of sediment and ¹³⁷Cs discharge out of reservoirs during various scale rainfall events. *J. Environ. Radioact.* 164, 73–83. doi:10.1016/j.jenvrad.2016.07.004.
- Lepage, H., Evrard, O., Onda, Y., Lefevre, I., Laceby, J.P., Ayrault, S., 2015. Depth distribution of cesium-137 in paddy fields across the Fukushima pollution plume in 2013. *J. Environ. Radioact.* 147, 157–164. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.05.003.
- Laceby, J.P., Huon, S., Onda, Y., Vaury, V., Evrard, O., 2016. Do forests represent a long-term source of contaminated particulate matter in the Fukushima Prefecture? *J. Environ. Manage.* 183, 742–753, doi:10.1016/j.jenvman.2016.09.020.
- Livens, F.R., Baxter, M.S., 1988. Particle size and radionuclide levels in some west Cumbrian soils. *Sci. Total Environ.* 70, 1–17. doi:10.1016/0048-9697(88)90248-3.
- Lyakhova, O.N., Lukashenko, S.N., Mulgin, S.I., Zhdanov, S. V, 2013. Tritium as an indicator of venues for nuclear tests. *J. Environ. Radioact.* 124, 13–21. doi:10.1016/j.jenvrad.2013.03.004.
- Malins, A., Okumura, M., Machida, M., Saito, K., 2015. Topographic effects on air dose rates from radiocesium

- fallout. Proceedings of Joint International Conference on Mathematics and Computation, Supercomputing in Nuclear Applications and the Monte Carlo Method, 12 pages.
- Malins, A., Kurikami, H., Nakama, S., Saito, T., Okumura, M., Machida, M., Kitamura, A., 2016. Evaluation of ambient dose equivalent rates influenced by vertical and horizontal distribution of radioactive cesium in soil in Fukushima Prefecture. *J. Environ. Radioact.* 151, 38–49. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.09.014.
- Matsunaga, T., Koarashi, J., Atarashi-Andoh, M., Nagao, S., Sato, T., Nagai, H., 2013. Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radio-caesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Sci. Total Environ.* 447, 301–314, doi: 10.1016/j.scitotenv.2012.12.087.
- Ministry of Agriculture Forestry and Fisheries (MAFF), 2012.
<http://www.rinya.maff.go.jp/j/keikaku/genkyou/h24/1.html> (accessed 10.04.18).
- Ministry of Agriculture Forestry and Fisheries (MAFF), 2015.
<http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/kaihatu/pdf/150327-01.pdf> (accessed 09.04.15)
- Ministry of Agriculture Forestry and Fisheries (MAFF), 2017.
http://www.rinya.maff.go.jp/j/kaihatu/jyosen/attach/pdf/H28_jittaihaaku_kekka-1.pdf (accessed 10.15.18)
- Ministry of Economy Trade and Industry (METI), 2017.
http://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/roadmap/pdf/gainenzu_201704e.pdf (accessed 11.14.17).
- Ministry of the Environment (MOE), 1986. National Surveys on the Natural Environment.
http://www.biodic.go.jp/kiso/fnd_f.html (accessed 09.04.15).
- Ministry of the Environment (MOE), 2016. Natural Environmental Information GIS.
http://www.biodic.go.jp/trialSystem/top_en.html (accessed 11.04.16).
- Ministry of the Environment (MOE), 2017. <http://josen.env.go.jp/area/details/kawauchi.html> (accessed 08.01.17).
- Ministry of Land, Infrastructure, Transport and Tourism (MLIT), 2014.
http://www.mlit.go.jp/river/shishin_guideline/gijutsu/gijutsukijunn/index2.html (accessed 02.25.16)
- Ministry of Land, Information, Transport and Tourism (MLIT), 2016.
<http://nrb-.www.mlit.go.jp/kokjo/inspect/landclassification/land/20-1/07.html> (accessed 03.29.17) (in Japanese).
- Monte, L., 2014. Application of the migration models implemented in the decision system MOIRA-PLUS to assess the long term behaviour of ^{137}Cs in water and fish of the Baltic Sea. *J. Environ. Radioact.* 134, 136–144. doi:10.1016/j.jenvrad.2014.03.009.
- Morgan, R.P.C., Quinton, J.N., Smith, R.E., Govers, G., Poesen, J.W.A., Auerswald, K., Chisci, G., Torri, D., Styczen, M.E., 1998. The European soil erosion model (EUROSEM): a dynamic approach for predicting sediment transport from fields and small catchments. *Earth Surf. Process. Landf.* 23, 27–544, doi: 10.1002/(SICI)1096-9837(199806).
- Mori, K., Tada, K., Tawara, Y., Ohno, K., Asami, M., Kosaka, K., Tosaka, H., 2014. An integrated watershed modeling to assess the long-term fate of Fukushima derived radionuclides. International Environmental Modelling and Software Society (iEMSs) 7th International Congress on Environmental Modelling and Software, San Diego, CA.
- Mori, K., Tada, K., Tawara, Y., Ohno, K., Asami, M., Kosaka, K., Tosaka, H., 2015. Integrated watershed modeling

- for simulation of spatiotemporal redistribution of post-fallout radionuclides: Application in radiocesium fate and transport processes derived from the Fukushima accidents. *Environ. Model. Softw.* 72, 126–146, doi: 10.1016/j.envsoft.2015.06.012.
- Murakami, M., Ohte, N., Suzuki, T., Ishii, N., Igarashi, Y., Tanoi, K., 2014. Biological proliferation of cesium-137 through the detrital food chain in a forest ecosystem in Japan. *Sci. Rep.* 4, 3599. doi:10.1038/srep03599.
- Muraoka, K., Hirata, T., 1988. Streamwater chemistry during rainfall events in a forested basin. *J. Hydrol.* 102, 235–253. doi:10.1016/0022-1694(88)90100-X.
- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Tomihara, S., Fukushi, K., Yamamoto, M., 2013. Export of ^{134}Cs and ^{137}Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences* 10, 6215–6223. doi: 10.5194/bg-10-6215-2013.
- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Inoue, M., Yamamoto, M., 2015. Migration behavior of ^{134}Cs and ^{137}Cs in the niida river water in Fukushima prefecture, Japan during 2011-2012. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 303, 1617–1621, doi: 10.1007/s10967-014-3686-9.
- Nakanishi T., Matsunaga T., Koarashi J., Atarashi-Andoh M., 2014. ^{137}Cs vertical migration in a deciduous forest soil following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 128, 9–14, doi: 10.1016/j.jenvrad.2013.10.019.
- Nash, J.E., Sutcliffe, J.V., 1970. River flow forecasting through conceptual models part 1 – a discussion of principles. *J. Hydrol.* 10, 282–290.
- National Institute of Advanced Science and Technology, 2016. GeomapNavi. <https://gbank.gsj.jp/geonavi/?lang=en> (accessed 11.14.17).
- Nuclear Regulation Authority (NRA), 2011. <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/362/list-1.html> (accessed 10.12.18).
- Nuclear Regulation Authority (NRA), 2014. <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/362/list-1.html> (accessed 10.12.18).
- Niizato, T., Abe, H., Mitachi, K., Sasaki, Y., Ishii, Y., Watanabe, T., 2016. Input and output budgets of radiocesium concerning the forest floor in the mountain forest of Fukushima released from the TEPCO's Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *J. Environ. Radioact.* 161, 11–21, doi:10.1016/j.jenvrad.2016.04.017.
- Nylén, T., Grip, H., 1997. The origin and dynamics of ^{137}Cs discharge from a coniferous forest catchment. *J. Hydrol.* 192, 338–354, doi:10.1016/S0022-1694(96)03083-1.
- Ochi, K., Sasaki, M., Ishida, M., Hamamoto, S., 2017. Estimation of the Vertical Distribution of Radiocesium in Soil on the Basis of the Characteristics of Gamma-Ray Spectra Obtained via Aerial Radiation Monitoring Using an Unmanned Helicopter. *Int. J. Environ. Res. Public Health*, 14, e926.
- Ochiai, S., Ueda, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ohtsuka, Y., Hisamatsu, S., 2015. Effects of radiocesium inventory on ^{137}Cs concentrations in river waters of Fukushima, Japan, under base-flow conditions. *J. Environ. Radioact.* 144, 86–95. doi:10.1016/j.jenvrad.2015.03.005.
- Onishi, Y., Voitsekhovich, O.V., Zheleznyak, M.J., 2007. *Chernobyl – What Have We Learned?*, Springer, ISBN: 978-1-4020-5348-1.
- Roed, J., Andersson, K.G., 1996. Clean-up of urban areas in the CIS countries contaminated by Chernobyl fallout. *J. Environ. Radioact.* 33, 107–116. doi:10.1016/0265-931X(95)00092-O.
- Rubey, W.W., 1933. Settling velocities of gravels, sand and silt particles. *Am. J. Sci.* 148, 325–338.

- Saito, K., Pretoussi-Henss, N., 2014. Ambient dose equivalent conversion coefficients for radionuclides exponentially distributed in the ground. *J. Nucl. Sci. Technol.* 51, 1274–1287. doi:10.1080/00223131.2014.919885.
- Saito T., Makino H., Tanaka S., 2014. Geochemical and grain-size distribution of radioactive and stable cesium in Fukushima soils: implications for their long-term behavior. *J. Environ. Radioact.* 138, 11-18. doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.025.
- Saito, K., Tanihata, I., Fujiwara, M., Saito, T., Shimoura, S., Otsuka, T., Onda, Y., Hoshi, M., Ikeuchi, Y., Takahashi, F., Kinouchi, N., Saegusa, J., Seki, A., Takemiya, H., Shibata, T., 2015. Detailed deposition density maps constructed by large-scale soil sampling for gamma-ray emitting radioactive nuclides from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 308–319. doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.02.014 .
- Sato, T., Iwamoto, Y., Hashimoto, S., Ogawa, T., Furuta, T., Abe, S., Kai, T., Nitta, K., 2018. Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 55, 684–690.
- Sakaguchi, A., Tanaka, K., Iwatani, H., Chiga, H., Fan, Q., Onda, Y., Takahashi, Y., 2015. Size distribution studies of ^{137}Cs in river water in the Abukuma Riverine system following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 379–389. doi:10.1016/j.jenvrad.2014.05.011.
- Sakai, M., Gomi, T., Negishi, J.N., 2016. Fallout volume and litter type affect ^{137}Cs concentration difference in litter between forest and stream environments. *J. Environ. Radioact.* 164, 169–173. doi:10.1016/j.jenvrad.2016.07.030.
- 佐久間一幸、難波謙二、寺田昭彦、細見正明, 2015. EU 長期被ばく評価モデル (ERMIN) を用いた住居地域における地域条件を反映した除染計画の策定. 3, 3–13.
- Sansone, U., Bellia, M., Voitsekovitchb, O. V, Kanivetsb, V., 1996. ^{137}Cs and ^{90}Sr in water and suspended particulate matter of the Dnieper River-Reservoirs System (Ukraine). *Sci. Total Environ.* 186, 257–271. doi:10.1016/0048-9697(96)05120-0.
- Santschl, P.H., Bollhalder, S., Zingg, S., Luck, A., Farrenkothen, K., 1990. The Self-Cleaning Capacity of Surface Waters after Radioactive Fallout. Evidence from European Waters after Chernobyl, 1986–1988. *Environ. Sci. Technol.* 24, 519–527.
- Sciuto, G., Diekkruger, B., 2010. Influence of Soil Heterogeneity and Spatial Discretization on Catchment Water Balance Modeling. *Vadose Zo. J.* 9, 955. doi:10.2136/vzj2009.0166.
- Serzhanova, Z.B., Aidarkhanova, A.K., Lukashenko, S.N., Lyakhova, O.N., Timonova, L. V, Raimkanova, A.M., 2018. Researching of tritium speciation in soils of “Balapan” site. *J. Environ. Radioact.* 192, 621–627. doi:10.1016/j.jenvrad.2018.02.016.
- 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 Sci. Plant Nutr.* 60, 765–771. doi:10.1080/00380768.2014.949852.
- Smith, J.T., Clarke, R.T., Saxen, R., 2000. Time-dependent behaviour of radiocaesium: A new method to compare the mobility of weapons test and Chernobyl derived fallout. *J. Environ. Radioact.* 49, 65–83. doi:10.1016/S0265-931X(99)00088-0.
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhart, J.F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A., Yasunari, T.J.,

2012. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: Determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmos. Chem. Phys.* 12, 2313–2343. doi:10.5194/acp-12-2313-2012.
- Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kanai, Y., Tsuruta, H., Shinohara, A., Takahashi, Y., 2013. Heterogeneous distribution of radiocesium in aerosols, soil and particulate matters emitted by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: Retention of micro-scale heterogeneity during the migration of radiocesium from the air into ground and river. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 1927–1937. doi:10.1007/s10967-012-2160-9.
- Tanaka, K., Iwatani, H., Sakaguchi, A., Fan, Q., Takahashi, Y., 2015. Size-dependent distribution of radiocesium in riverbed sediments and its relevance to the migration of radiocesium in river systems after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 139, 390–397. doi:10.1016/j.jenvrad.2014.05.002.
- Takada, M., Yamada, T., Takahara, T., Endo, S., Tanaka, K., Kajimoto, T., Okuda, T., 2017. Temporal changes in vertical distribution of ¹³⁷Cs in litter and soils in mixed deciduous forests in Fukushima, Japan. *J. Nucl. Sci. Technol.* 54, 452–458. doi:10.1080/00223131.2017.1287602.
- Takahashi, J., Tamura, K., Suda, T., Matsumura, R., Onda, Y., 2015. Vertical distribution and temporal changes of ¹³⁷Cs in soil profiles under various land uses after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *J. Environ. Radioact.* 139, 351–361, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.004.
- Tegen, I., Dörr, H., 1996. Mobilization of cesium in organic rich soils: Correlation with production of dissolved organic carbon. *Water Air Soil Pollut.* 88, 133–144. doi:10.1007/BF00157418.
- Terada, H., Katata, G., Chino, M., Nagai, H., 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: Verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *J. Environ. Radioact.* 112, 141–154, doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.05.023.
- Teramage, M.T., Onda, Y., Patin, J., Kato, H., Gomi, T., Nam, S., 2014. Vertical distribution of radiocesium in coniferous forest soil after the Fukushima Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 137, 37–45, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.06.017.
- 東北農政局, 2014. http://www.maff.go.jp/tohoku/osirase/higai_taisaku/hukkou/140918_torimatome.html (in Japanese) (accessed 9 March 2015).
- Torri, D., Sfalaga, M., Del Sette, M., 1987. Splash detachment: runoff depth and soil cohesion. *Catena* 14, 149–155, doi: 10.1016/S0341-8162(87)80013-9.
- Tosaka, H., Itho, K., Furuno, T., 2000. Fully coupled formulation of surface flow with 2-phase subsurface flow for hydrological simulation. *Hydrol. Process.* 14, 449–464, doi: 10.1002/(SICI)1099-1085(20000228).
- Tosaka, H., Mori, K., Tada, K., Tawara, Y., Yamashita, K., 2010. A general-purpose terrestrial fluids/heat flow simulator for watershed system management. IAHR International Groundwater Symposium 2010, Valencia, Spain.
- Tsuji, H., Yasutaka, T., Kawabe, Y., Onishi, T., Komai, T., 2014a. Distribution of dissolved and particulate radiocesium concentrations along rivers and the relations between radiocesium concentration and deposition after the nuclear power plant accident in Fukushima. *Water Res.* 60, 15–27. doi:10.1016/j.watres.2014.04.024.
- Tsuji, H., Kondo, Y., Kawashima, S., Yasutaka, T., 2014b. Non-destructive detection of particulate radiocesium using a non-woven fabric cartridge filter for rapid preprocessing. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 300, 1803–1810.

doi:10.1007/s10967-014-3800-z.

- 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. *J. Geophys. Res.: Biogeosciences* 121, 2588–2599. doi:10.1002/2016JG003428.
- 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. *J. Environ. Radioact.* 118, 96–104. doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.11.009.
- Uematsu, S., Vandenhove, H., Sweeck, L., Hees, M.V., Wannijn, J., Smolders, E., 2017. Foliar uptake of radiocaesium from irrigation water by paddy rice (*Oryza sativa*): an overlooked pathway in contaminated environments. *New Phytol.* 214, 820–829. doi: 10.1111/nph.14416.
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), 2008. <http://www.unscear.org/unscear/en/chernobylmaps.html> (accessed 30 October 2018).
- Valcke, E., Cremers, A., 1994. Sorption-desorption dynamics of radiocaesium in organic matter soils. *Sci. Total Environ.* 157, 275–283. doi:10.1016/0048-9697(94)90590-8.
- Vanderkwaak, J.E., Loague, K., 2001. Hydrologic-response simulations for the R-5 catchment with a comprehensive physics-based mode. *Water Resour. Res.* 37, 999–1013. doi:10.1029/2000WR900272.
- van Genuchten, M.Th. (1980), A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 44, 892–898, doi: 10.2136/sssaj1980.03615995004400050002x.
- Vintró, L.L., Mitchell, P.I., Omarova, A., Burkitbayev, M., Nápoles, H.J., Priest, N.D., 2009. Americium, plutonium and uranium contamination and speciation in well waters, streams and atomic lakes in the Sarzhai region of the Semipalatinsk Nuclear Test Site, Kazakhstan. 100, 308–314. doi:10.1016/j.jenvrad.2008.12.009.
- Wakahara, T., Onda, Y., Kato, H., Sakaguchi, A., Yoshimura, K., 2014. Radiocesium discharge from paddy fields with different initial scrapings for decontamination after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Environ. Sci. Process. Impacts* 16, 2580–2591. doi:10.1039/c4em00262h.
- Wei, L., Kinouchi, T., Yoshimura, K., Velleux, M.L., 2017. Modeling watershed-scale ¹³⁷Cs transport in a forested catchment affected by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 171, 21–33. doi:10.1016/j.jenvrad.2017.01.017.
- 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. *Environ. Res. Lett.* 10, 014013.
- Yamaguchi, M., Kitamura, A., Oda, Y., Onishi, Y., 2014. Predicting the long-term ¹³⁷Cs distribution in Fukushima after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: a parameter sensitivity analysis. *J. Environ. Radioact.* 135, 135–146. doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.04.011.
- Yamasaki, S., Imoto, J., Furuki, G., Ochiai, A., Ohnuki, T., Sueki, K., Nanba, K., Ewing, R.C., Utsunomiya, S., 2016. Radioactive Cs in the estuary sediments near Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci. Total Environ.* 551–552, 155–162. doi:10.1016/j.scitotenv.2016.01.155.
- Yamashiki, Y., Onda, Y., Smith, H.G., Blake, W.H., Wakahara, T., Igarashi, Y., Matsuura, Y., Yoshimura, K., 2014. Initial flux of sediment-associated radiocesium to the ocean from the largest river impacted by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci. Rep.* 4, 3714. doi:10.1038/srep03714.

- Yasutaka, T., Tsuji, H., Kondo, Y., Suzuki, Y., Takahashi, A., Kawamoto, T., 2015. Rapid quantification of radiocesium dissolved in water by using nonwoven fabric cartridge filters impregnated with potassium zinc ferrocyanide. *J. Nucl. Sci. Technol.* 52, 792–800. doi:10.1080/00223131.2015.1013071.
- Yoschenko, V., Takase, T., Konoplev, A., Nanba, K., Onda, Y., Kivva, S., Zheleznyak, M., Sato, N., Keitoku, K., 2017. Radiocesium distribution and fluxes in the typical *Cryptomeria japonica* forest at the late stage after the accident at Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant. *J. Environ. Radioact.* 166, 45–55. doi:10.1016/j.jenvrad.2016.02.017.
- Yoshikawa, N., Obara, H., Ogasa, M., Miyazu, S., Harada, N., Nonaka, M., 2014. ^{137}Cs in irrigation water and its effect on paddy fields in Japan after the Fukushima nuclear accident. *Sci. Total Environ.* 481, 252–259. doi:10.1016/j.scitotenv.2014.01.129.
- Yoshimura K., Onda Y., Kato H. 2015a. Evaluation of radiocaesium wash-off by soil erosion from various land uses using USLE plots. *J. Environ. Radioact.* 139, 362–369, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.019.
- Yoshimura K., Onda Y., Sakaguchi A., Yamamoto M., Matsuura Y. 2015b. 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. *J. Environ. Radioact.* 139, 370–378, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.08.021.
- Yoshimura K., Onda Y., Wakahara T. 2016. Time dependence of the ^{137}Cs concentration in particles discharged from rice paddies to freshwater bodies after the Fukushima Daiichi NPP accident. *Environ. Sci. Technol.* 50, 4186–4193, doi:10.1021/acs.est.5b05513.
- Yoshimura, K., Saito, K., Fujiwara, K., 2017. Distribution of ^{137}Cs on components in urban area four years after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.* 178–179, 48–54. doi:10.1016/j.jenvrad.2017.07.021
- Zheleznyak, M.J., Demchenko, R.I., Khursin, S.L., Kuzmenko, Y.I., Tkulich, P.V., Vitiuk, N.Y., 1992. Mathematical modeling of radionuclide dispersion in the Pripyat- Dnieper aquatic system after the Chernobyl accident. *Sci.Total.Environ.* 112, 89–114.

謝辞

本研究の遂行にあたって、非常に多くの方々からご指導、ご鞭撻ならびにご協力賜り、助けられながら、学位論文として取りまとめることが出来ました。

東京農工大学工学研究院 細見正明教授には、大変ご多忙な中、有難い叱咤激励を度々いただき、自分を鼓舞することが出来ました。また東京農工大学工学研究院 寺田昭彦教授にも、大変ご多忙な中、私を気にかけて下さり、博士後期課程に関わる諸手続き等、取り計らっていただきました。

日本原子力研究開発機構福島環境安全センター、計算科学研究センターの職員の方々には、論文執筆の方法や、解析方法等様々なご指導いただき、宮原要センター長、油井三和元センター長はじめ、センター幹部の方々には、日ごろから研究に専念できるよう、ご協力いただきました。特に、飯島和毅博士、北村哲浩博士には、私が機構に配属になった当初から、研究計画の段階から特にお世話になりました。操上広志博士、山田進博士、町田昌彦博士、Malins Alex 博士には論文執筆や解析方法について特にお世話になりました。研究テーマが環境モデリングであるため、フィールド調査に関しても、詳しくなった方が多いとのことで、舟木泰智博士、吉村和也博士、中西貴宏博士、新里忠史博士、鶴田忠彦博士、佐々木祥人博士には、森林、河川、ダム湖、ため池、海洋におけるフィールド調査を教えていただきました。

国立環境研究所福島支部の林誠二博士、辻英樹博士には、フィールド調査と環境モデリングの両面からご指導いただき、またフィールド調査のデータをご提供いただきました。

GETFLOWS に関する技術的サポートは、株式会社地圏環境テクノロジーの方々にお世話になりました。また、私が学士課程在籍時に、GETFLOWS の使い方を国立保健医療科学院の下ヶ橋雅樹博士にご指導いただきました。

学士課程、修士課程を含め、細見・寺田研究室のスタッフの方々、特に神谷洋子 秘書には大変お世話になりました。また、研究室の先輩、同輩、後輩にも大変お世話になりました。

本研究は、上記の方々をはじめとする皆様から多くのご助力を賜りましたおかげで、何とか学位論文としてまとめたものです。お世話になった方々に対して、深く感謝申し上げます。最後に、長きにわたり、博士後期課程への進学への理解と、心身ともに支えていただいた家族に、心から感謝いたします。