

## SPM計使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後の大気中放射性核種の時空間分布の復元 Hourly atmospheric radionuclides after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of SPM monitoring sites

鶴田 治雄<sup>1\*</sup>; 大浦 泰嗣<sup>2</sup>; 海老原 充<sup>2</sup>; 大原 利真<sup>3</sup>; 中島 映至<sup>1</sup>  
TSURUTA, Haruo<sup>1\*</sup>; OURA, Yasuji<sup>2</sup>; EBIHARA, Mitsuru<sup>2</sup>; OHARA, Toshimasa<sup>3</sup>; NAKAJIMA, Teruyuki<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大気海洋研究所, <sup>2</sup> 首都大学東京, <sup>3</sup> 国立環境研究所

<sup>1</sup> Atmosphere and Ocean Research Institute, the University of Tokyo, Japan, <sup>2</sup> Tokyo Metropolitan University, JAPAN, <sup>3</sup> National Institute for Environmental Studies, JAPAN

これまでわからなかった、東京電力福島第一原子力発電所から放出された放射性物質の、事故直後における大気中濃度の時空間分布の解明を目的として、東日本の各自治体による大気環境常時測定局で使用されている、 $\beta$ 線吸収法浮遊粒子状物質 (SPM) 自動測定機での使用済みテープろ紙に採取された SPM 中の放射性物質を測定し解析した。その第 1 報の概要を報告する。用いた使用済みテープろ紙は、福島県と首都圏の各 16 及び 24 の SPM 地点で、2011 年 3 月 12-23 日の 1 時間毎の SPM 中の Cs-134 と Cs-137 を Ge 検出器で測定した。また、気象庁の GPV データで 1000hPa の風向風速と AMeDAS の気象データ、国と自治体のモニタリングポスト、及び高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 等の空間線量率なども用いた。(1) 高濃度 ( $\text{Cs-137} > 10 \text{ Bq m}^{-3}$ ) の放射性プルーム/汚染気塊は、この期間中に 9 回観測され、福島県と首都圏に、それぞれ 5 回と 4 回、輸送された。(2) 福島県浜通り北部へは 5 回 (3 月 12-13 日、3 月 15 日、3 月 18 日、3 月 19 日、3 月 20-21 日) 輸送され、期間中の Cs-137 の大気中積算濃度が全地点中で最も高かったことが、今回初めて明らかになった。(3) 福島県中通りでは、3 月 15 日のプルームの他に、3 月 20 日午後から 3 月 21 日朝にかけて汚染気塊が、地点によっては半日以上も観測された。(4) しかし空間線量率は、それまでの降水により地上に沈着した放射性物質の影響で高くなっていたので、このプルームの通過時に変化せず、この現象は見過ごされていた可能性がある。(5) 首都圏ではプルームが 4 回観測され、このなかで、3 月 15 日と 3 月 21 日のプルームはすでに知られていたが、他の 2 回 (3 月 16 日と 3 月 20 日) は、今回の解析により初めて明らかになった。(6) 3 月 21 日午前中のプルームは、北東風により茨城県南西部から千葉県東葛地域を通過して東京湾上に輸送され、その一部は降水により土壌に沈着した。SPM 地点の大気中積算濃度が高かった地域は、土壌への沈着量が相対的に多かった地域に対応していた。しかし、福島県内では、この関係はあまりはっきりしなかった。なお、放射性核種の測定に関してご協力下さった石本光憲様・勝村庸介教授 (東大院工) に深謝申し上げます。また、テープろ紙を提供して下さい下さった全ての自治体、及びその保存に関してご尽力下さった若松伸司教授 (愛媛大) はじめ、多くの方々へ厚く感謝いたします。この研究の一部は、文部科学省科研費及び環境省委託事業により実施した。

キーワード: 大気中放射性セシウム, 福島第一原子力発電所, 時空間分布, 浮遊粒子状物質  
Keywords: Atmospheric Cs-137, FDINPS, Spatio-temporal variation, SPM

## 福島事故により放出された放射性核種の沈着機構に対する新たな視点 A new insight into the deposition mechanism of airborne radionuclides from the Fukushima accident

兼保 直樹<sup>1\*</sup>; 細島 睦夫<sup>2</sup>

KANEYASU, Naoki<sup>1\*</sup>; HOSOSHIMA, Mutsuo<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 産業技術総合研究所, <sup>2</sup> 壬生高校

<sup>1</sup>National Institute of Advance Industrial Science and Technology, <sup>2</sup>Mibu High School

### Introduction

On the radiocesium emitted from Fukushima Daiichi Power Plant (FDNPP) and transported to Eastern Japan, airborne (MEXT, 2012) and car-borne (Tanigaki, 2014) surveys have been conducted to map the horizontal distribution of contaminated area.

In the mapped <sup>134,137</sup>Cs distribution by the airborne surveys, the contamination in the Nikko Mountain area, located 120 km north of Tokyo, is prominent. From the previously reported results of transport/dispersion/deposition modeling studies, this radioactive contamination appeared to have occurred in the transport event in March 15, 2011.

We thus analyzed the formation mechanism in this area by the on-hoot measurements of ambient gamma dose rate (GDR) in air at multiple mountains conducted from 2012 to 2014.

### Instrumentation and Measurements

Altitudinal distributions of GDR in air were measured in the Nikko Mountainous area at the northern rim of the Kanto Plain, Japan, using a portable CsI (TI) scintillation gamma-ray detector (Gamma RAE II R, RAE Systems) carried along the mountain trails. The horizontal position of the observer was pinpointed by a global positioning system.

### Results and Discussion

In the Nikko Mountain area, the altitudinal distribution of ambient GDR exhibited maxima at about 900-2,000 m above sea level (ASL).

Meteorological sounding data indicated that the corresponding altitudes were within the cloud layer. A visual-range monitor deployed in an unmanned weather station at 1,292 m ASL also recorded low visibility on the afternoon of March 15. In the gridded data products of Japan Meteorological Agency Meso-scale Model, cloud over (%) of low struts started to cover over the Nikko area at about 1500 JST, as seen in Figure 1. Radar-AMeDAS (Automated Meteorological Data Acquisition System) analysis shows this area was not affected by precipitation until 2300 Japan Standard Time on March 15, 2011. The mechanism anticipated to have caused the concentrated deposition in a particular altitudinal range was cloud deposition (or fog/occult deposition). Atmospheric aerosol particles often act as cloud condensation nuclei (CCN) so that cloud (fog) droplets form on them. With cloud/fog deposition, these droplets, and with them the original aerosol particles are intercepted by vegetation and deposited on the ground.

Airborne radiocesium, one of the major gamma-ray emitting radionuclides deposited onto the land and marine environments after the FDNPP accident, exists in the aerosol phase. Kaneyasu et al.(2012) reported that sulfate aerosols are a potential carrier of airborne radiocesium. Sulfate aerosol is one of the representative species acting as CCN. Therefore, cloud or fog droplets activated from CCN, including radiocesium and other gamma-ray emitting radionuclides, have greater deposition velocities than that of sulfate aerosol itself. This leads to the transfer of radionuclides from the atmosphere to the forest and ground surface being far more effective. Recently, Katata et al.(2014) incorporated a simple fog deposition scheme into their transport/disposition model and reproduced the deposition pattern in the mountain area qualitatively.

### Conclusion

The proposed mechanism of the altitude-dependent radioactive contamination in Nikko Mountain area was the cloud (fog/occult) deposition process of the radionuclides contained in aerosols acting as cloud condensation nuclei.

### Acknowledgement

The figure of cloud cover was produced by Dr. Y. Takane of AIST, Japan.

### References

- Kaneyasu, N. et al. (2012) *Environ. Sci. Technol.*, 46 (11), 5720-5726  
Katata, G., et al. (2014) *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14 (10), 14725-14832

MAG38-02

会場:301B

時間:5月26日09:15-09:30

MEXT (2012)[http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203\\_0928.pdf](http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/7000/6289/24/203_0928.pdf)

Tanigaki, M. (2014), *In* Radiation Monitoring and Dose Estimation of the Fukushima Nuclear Accident; Takahashi, S., Eds.; Springer: XV; pp.67-77

キーワード: 放射性核種,  $\gamma$ 空間線量率, 沈着機構, 高度分布, 雲沈着

Keywords: radionuclides, ambient gamma dose rate in air, deposition mechanism, altitudinal distribution, cloud deposition

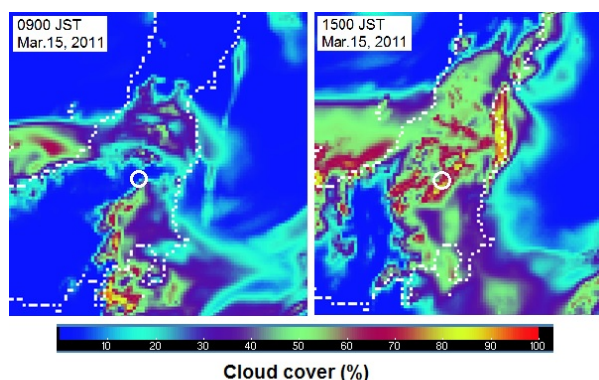


Figure 1 Cloud cover of low stratus in the gridded data products of Japan Meteorological Agency Meso-scale Model (MSM) on March 15, 2011. White circles indicate the location of Nikko Mountain area.

## 137Cs 及び 134Cs の大気中放射能濃度と粒径分布の季節変動 Seasonal variation of the atmospheric 137Cs & 134Cs - Concentration and aerosol size transporting radioactive Cs ?

木名瀬 健<sup>1\*</sup>; 北 和之<sup>2</sup>; 田中 美佐子<sup>1</sup>; 出水 宏之<sup>3</sup>; 五十嵐 康人<sup>4</sup>; 足立 光司<sup>4</sup>; 三上 正男<sup>4</sup>;  
山田 桂太<sup>5</sup>; 豊田 栄<sup>5</sup>; 吉田 尚弘<sup>5</sup>; 篠原 厚<sup>6</sup>; 二宮 和彦<sup>6</sup>; 大河内 博<sup>7</sup>; 石塚 正秀<sup>8</sup>; 川島 洋人<sup>9</sup>;  
中井 泉<sup>10</sup>; 阿部 善也<sup>10</sup>; 恩田 裕一<sup>11</sup>

KINASE, Takeshi<sup>1\*</sup>; KITA, Kazuyuki<sup>2</sup>; TANAKA, Misako<sup>1</sup>; DEMIZU, Hiroyuki<sup>3</sup>; IGARASHI, Yasuhito<sup>4</sup>;  
ADACHI, Kouji<sup>4</sup>; MIKAMI, Masao<sup>4</sup>; YAMADA, Keita<sup>5</sup>; TOYODA, Sakae<sup>5</sup>; YOSHIDA, Naohiro<sup>5</sup>;  
SHINOHARA, Atushi<sup>6</sup>; NINOMIYA, Kazuhiko<sup>6</sup>; OKOUCHI, Hiroshi<sup>7</sup>; ISHIZUKA, Masahide<sup>8</sup>;  
KAWASHIMA, Hiroto<sup>9</sup>; NAKAI, Izumi<sup>10</sup>; ABE, Yoshinari<sup>10</sup>; ONDA, Yuichi<sup>11</sup>

<sup>1</sup> 茨城大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup> 茨城大学理学部, <sup>3</sup> 茨城大学工学部, <sup>4</sup> 気象研究所, <sup>5</sup> 東京工業大学, <sup>6</sup> 大阪大学, <sup>7</sup> 早稲田大学, <sup>8</sup> 香川大学, <sup>9</sup> 秋田県立大学, <sup>10</sup> 東京理科大学, <sup>11</sup> 筑波大学

<sup>1</sup> Graduate school of science and engineering of Ibaraki Univ., <sup>2</sup> Collage of science, Ibaraki Univ., <sup>3</sup> Collage of engineering, Ibaraki Univ., <sup>4</sup> Meteorological Research Institute, <sup>5</sup> Tokyo Institute of Tech., <sup>6</sup> Osaka Univ., <sup>7</sup> Waseda Univ., <sup>8</sup> Kagawa Univ., <sup>9</sup> Akita Pref. Univ., <sup>10</sup> Tokyo Science Univ., <sup>11</sup> Tsukuba Univ.

2011年3月11日の東日本大震災によって福島第一原子力発電所の事故が発生し、大気中に大量の放射性物質が放出され広範囲にわたる土壌・植生・水域に沈着した。放射性セシウムは排出量が多く、<sup>137</sup>Cs 及び、<sup>134</sup>Cs の半減期はそれぞれ30.2年と2.06年と長い為、長期間にわたり陸域・水域・大気を通じ移行・拡散していく可能性がある。特に大気を通じての移行は、主に土壌・植生からの再飛散によって起こっていると考えられるが、大気中を再飛散する放射性セシウムの化学的・物理的形態はまだわかっていないことも多く、現在再飛散している放射性セシウムが飛散するメカニズムや濃度・粒径分布の季節変動は理解されていない。本研究では長期的に継続して観測した大気中放射能の観測値を元に、その濃度と粒径分布の季節変動及びその変動要因を理解することを目的としている。

本研究では大気中の放射性セシウムの季節変化を調べるため、Site-A(川俣地区杉林)、Site-B(浪江地区学校グラウンド)、Site-C(Site-Bに隣接した広葉樹林)、Site-D(除染済の浪江地区学校グラウンド)の四地点での2012年12月以降の観測データを使用した。Site-Aは2012年8~12月周辺まで、Site-Dは2011年12~2012年2月周辺にかけて除染が行われ、地表のセシウム存在量は低くなっている。Site-B,Cはまだ除染が行われていないため、地表のセシウム存在量は高いままとなっている。

Site-A、Cでは、主にカスケードインパクター(TE-236)を装着したハイボリュームエアサンプラーを使用し、粒径別にエアロゾルサンプリングを行った。サンプリング期間は2-3週間である。また、状況に応じ粒径分別しない全量サンプリングも行った。Site-Bでは24/48時間間隔の高頻度全量サンプリングと粒径別サンプリングも行った。Site-Dではサンプリング期間が1-2週間の全量サンプリングのみを行っている。それぞれ、エアロゾルをサンプリングした石英繊維フィルタに含まれる放射性セシウムを測定し、大気中の放射能濃度に換算している。

放射性セシウムは各地点とも同様の季節変動が見られ、冬季に低濃度となり夏季には高濃度となった。夏季でも雨の多い6~7月周辺に濃度が低下するため、5月および8-9月に極大を持つ2ピークとなっていた。

放射性セシウムの担体として働くエアロゾルの粒径分布にも季節変動が見られた。10.3~0.69 $\mu$ mの粒子の全放射能への寄与率は夏季及び秋季に高く、放射性セシウムのほとんどが粗大粒子を担体に運ばれていた。それに対し、バックアップフィルターに捕集される粒子(0.39 $\mu$ m以下の粒子と各ステージに補足されなかったより大きな粒子)の寄与率は冬季及び春季に高く、粗大粒子と微小粒子の双方で運ばれていると考えられる。このことから、季節ごとに再飛散メカニズムが変わっていることが示唆された。

Site-BとSite-Dは0.75km程度の距離しか離れていないが、Site-Dは除染が行われたため、近接した土壌から再飛散される放射性セシウム量は小さくなると思われる。よって二地点の濃度差から、再飛散した放射性セシウムの担体粒子の輸送・沈着の空間スケールが推定できる。Site-B/Site-D大気セシウム放射能濃度比は、冬季及び春季には平均約2.2であるのに対し、夏季及び秋季には平均約1.3と異なっていた。このことから、高濃度かつ粗大粒子が支配的となる夏季・秋季には再飛散の空間スケールは比較的大きく、低濃度で粗大粒子が支配的でない冬季及び春季には、ごく局所的なスケールで再飛散が起きていることがわかった。

キーワード: 放射能, セシウム, 大気, 再飛散, 福島第一原子力発電所, ISET-R

Keywords: radioactivity, cesium, atmosphere, resuspension, FDNPP, ISET-R



## 放射性セシウムの大気再飛散担体粒子の解明 Identification of aerosol contributing atmospheric re-suspension of radiocesium

北和之<sup>1\*</sup>; 田村匠<sup>1</sup>; 田中美佐子<sup>1</sup>; 木野日美子<sup>1</sup>; 木名瀬健<sup>1</sup>; 出水宏幸<sup>2</sup>; 足立光司<sup>3</sup>; 財前祐二<sup>3</sup>; 五十嵐康人<sup>3</sup>; 豊田栄<sup>4</sup>; 山田桂大<sup>4</sup>; 吉田尚弘<sup>4</sup>; 二宮和彦<sup>5</sup>; 阿部善也<sup>6</sup>; 中井泉<sup>6</sup>; 大河内博<sup>7</sup>; 石塚正秀<sup>9</sup>; 恩田裕一<sup>8</sup>  
KITA, Kazuyuki<sup>1\*</sup>; TAMURA, Sho<sup>1</sup>; TANAKA, Misako<sup>1</sup>; KINO, Himiko<sup>1</sup>; KINASE, Takeshi<sup>1</sup>; DEMIZU, Hiroyuki<sup>2</sup>; ADACHI, Kouji<sup>3</sup>; ZAIZEN, Yuji<sup>3</sup>; IGARASHI, Yasuhito<sup>3</sup>; TOYODA, Sakae<sup>4</sup>; YAMADA, Keita<sup>4</sup>; YOSHIDA, Naohiro<sup>4</sup>; NINOMIYA, Kazuhiko<sup>5</sup>; ABE, Yoshinari<sup>6</sup>; NAKAI, Izumi<sup>6</sup>; OKOCHI, Hiroshi<sup>7</sup>; ISHIZUKA, Masahide<sup>9</sup>; ONDA, Yuichi<sup>8</sup>

<sup>1</sup>茨城大学理学部/理学系研究科, <sup>2</sup>茨城大学技術部, <sup>3</sup>気象研究所, <sup>4</sup>東京工業大学, <sup>5</sup>大阪大学, <sup>6</sup>東京理科大学, <sup>7</sup>早稲田大学, <sup>8</sup>香川大学, <sup>9</sup>筑波大学

<sup>1</sup>Ibaraki Univ., <sup>2</sup>Ibaraki Univ., <sup>3</sup>Meteorological Research Institute, <sup>4</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>5</sup>Osaka Univ., <sup>6</sup>Tokyo Univ. of Science, <sup>7</sup>Waseda Univ., <sup>8</sup>Kagawa Univ., <sup>9</sup>Tsukuba Univ.

### 背景・目的

東京電力福島第一原子力発電所の事故によって、原子炉施設から多量の放射性物質が周辺地域に飛散・拡散し土壌や植生に沈着した。地表に沈着した放射性核種が今後どのように移行するか定量的に理解していくことが、モデル等により今後の推移を理解する上で重要である。現在、大気には地表や植生からの再飛散によって放射性セシウムが供給され、移流・拡散していると考えられる。その定量化のため、地表から大気中への放射性セシウムの飛散のメカニズムおよび放出フラックスの理解が必要である。飛散メカニズムを確定させるために、まずどのようなエアロゾル粒子に含まれる形で放射性セシウムが飛散しているか、担体物質の同定が必要である。季節によって飛散の様態が変化しているため、季節毎に同定を試みる。

### サンプリング・実験

2012年12月より、浪江町下津島地区において7台のハイボリュームエアサンプラーによって大気エアロゾル状で浮遊している放射性核種による放射能濃度を24時間の時間分解能で測定するとともに、カスケードインパクト1台によりエアロゾル粒径毎の大気放射能濃度を1週間から2週間の時間分解能で測定している。同時に、パッシブサンプラーによる放射性核種の沈着フラックスを測定するとともに、土壌水分と風速など気象要素を自動気象ステーション(AWS)にて、飛散する砂の量を飛砂カウンターにて、エアロゾル粒子の粒径別濃度を電子式陰圧インパクト(Electric Low-Pressure Impactor, ELPI)、黒色炭素エアロゾル濃度および硫酸エアロゾル濃度をそれぞれブラックカーボンモニタおよびサルフェートモニタにて連続的に測定している。

カスケードインパクトで粒径別に捕集したエアロゾルについて、Ge半導体検出器によりCs-137放射能強度を測定すると共に、走査型電子顕微鏡(SEM)およびEDS装置により粒子の観察と元素分析を行った。特に4.2-10.2 μmの粒子を捕集したサンプル(以下粗大サンプル)と0.4 μm以下(以下微小サンプル)の粒子を捕集したサンプルを対象に、純水により水溶性成分、および過酸化水素により有機物の抽出を行い、その際に減少した放射性セシウム量からそれらの成分の寄与を定量する。この操作によっても土壌鉱物粒子、金属粒子、無機炭素粒子は残存する。土壌特に粘土鉱物粒子に吸着したセシウムの脱着は困難といわれているが、福士(2015)によると高濃度Na+水溶液に入れるとイオン交換によってセシウムが溶出する。そこで0.2MNaCl水溶液による抽出も試み土壌鉱物粒子の寄与についても推定した。

### 結果

冬季の粗大サンプルには、主に鉱物粒子および植物破片が見られた。純水抽出および過酸化水素水抽出でのCs-137放射能強度減少は有意ではなく、鉱物粒子とC, Al, Sを含む粒子が残存していたので、鉱物粒子あるいは無機炭素が担体となっている可能性が高いと考えられる。冬季の微小サンプルではCとS元素が多く検出され、またFe, Alも微量検出された。純水抽出するとCs-137放射能強度は25%減少し、水溶性成分の寄与は1/4程度であることが示された。過酸化水素水抽出では変化がないが、Cを含む粒子が残存していたことから、微小粒子であるススなど無機炭素が担体となっている可能性が高い。

春季の粗大サンプルでは、Al, Feを含む鉱物粒子および花粉粒子が多く捕集されていた。純水抽出によりCs-137放射能強度は28%減少し、過酸化水素水抽出では38%減少した。水溶性物質、有機物はそれぞれ1/4および1/3程度寄与している可能性がある。残存粒子をNaCl溶液で抽出すると残存したCs-137の85%が失われ、主要な担体は鉱物粒子である可能性が高い。春季の微小サンプルにはカスケードインパクトを通り抜けた粗大粒子が含まれておりそれを除去したところ、Cs-137放射能強度は71%減少したため、微小粒子の担体を推定することは困難であった。

今後、夏/秋に採取されたサンプルについても同様に担体物質について同定を試みる。

MAG38-04

会場:301B

時間:5月26日 09:45-10:00

キーワード: 放射性セシウム, 大気再飛散, エアロゾル  
Keywords: radiocesium, atmospheric resuspension, aerosol

## 地域気候特性が放射性物質の輸送に与える影響 Impact of the regional climate on the transport of radioactive materials

吉兼 隆生<sup>1\*</sup>; 芳村 圭<sup>1</sup>; 佐谷 茜<sup>1</sup>  
YOSHIKANE, Takao<sup>1\*</sup>; YOSHIMURA, Kei<sup>1</sup>; SAYA, Akane<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大気海洋研究所

<sup>1</sup> Atmosphere and Ocean Research Institute, University of Tokyo

2011年3月の福島第一原子力発電所事故によって大気中に放出された放射性物質が関東や東北へ輸送された。多くの研究から放射性物質の輸送過程が明らかになりつつあるが、地域気候特性との関係を含めた調査は必ずしも十分ではない。本研究では3月の地域気候の特性を考慮しながら、関東への放射性物質輸送のメカニズムについて領域モデルを用いて調査した。モデル結果より、21日から23日に観測された関東への放射性物質の輸送は、福島から都心にかけて顕著であった北北東気流によることが分かった。北東気流は、関東南岸に形成する低気圧や停滞前線に対応して出現し、南からの暖気移流とともに温暖前線を形成する。北東気流に伴う寒気は、東北太平洋側で北西気流に伴う寒気の吹き出し（コールドサージ）によって形成され、下層の南北温度傾度に対応して南下していることから、重力流の特性を持つと推測される。強い寒気の吹き出しは福島沖でもみられ、局地的な温度分布が風系に大きく影響する可能性もある。以上を踏まえて、過去の複数の事例についてモデルによる実験を行い、詳細な輸送プロセスについての調査結果を報告する予定である。

キーワード: 放射性物質輸送, 地域気候, 領域モデル

Keywords: Radioactive materials, Regional climate, Regional model

## 数十年前に日本全国の森林域に降下した大気圏核実験由来の放射性セシウムの分布 Distribution of radiocesium fallout on forest area throughout Japan after decades from former atmospheric nuclear tests

三浦 覚<sup>1\*</sup>; 青山 道夫<sup>2</sup>; 伊藤 江利子<sup>3</sup>; 志知 幸治<sup>3</sup>; 高田 大輔<sup>1</sup>; 益守 真也<sup>1</sup>; 関谷 信人<sup>1</sup>;  
小林 奈通子<sup>1</sup>; 高野 直人<sup>4</sup>; 金子 真司<sup>3</sup>; 田野井 慶太郎<sup>1</sup>; 中西 友子<sup>1</sup>  
MIURA, Satoru<sup>1\*</sup>; AOYAMA, Michio<sup>2</sup>; ITO, Eriko<sup>3</sup>; SHICHI, Koji<sup>3</sup>; TAKATA, Daisuke<sup>1</sup>;  
MASUMORI, Masaya<sup>1</sup>; SEKIYA, Nobuhito<sup>1</sup>; KOBAYASHI, Natsuko I.<sup>1</sup>; TAKANO, Naoto<sup>4</sup>; KANEKO, Shinji<sup>3</sup>;  
TANOI, Keitaro<sup>1</sup>; NAKANISHI, Tomoko M.<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学, <sup>2</sup> 福島大学, <sup>3</sup> 森林総合研究所, <sup>4</sup> スカラベ・コーポレーション

<sup>1</sup>The University of Tokyo, <sup>2</sup>Fukushima University, <sup>3</sup>Forestry and Forest Products Res. Inst., <sup>4</sup>Scarabs Corporation

To predict the movement of radioactive contamination caused by Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident is a strong concern, especially for the forest and forestry sector. To learn from the precedent, we investigated soil samples collected systematically from 316 forest sites in Japan just before the accident, which retain the global fallout <sup>137</sup>Cs (<sup>137</sup>Cs-GFO) from the nuclear test bomb during the 1950s and 60s. We measured the radioactivity of <sup>137</sup>Cs-GFO in three layers of soil samples (0-5, 5-15 and 15-30 cm in depth) at each site. We divided 316 sampling sites into 10 groups separated by one longitudinal line and four transversal lines on the islands of Japan, then analyzed rainfall and geomorphological effects on <sup>137</sup>Cs-GFO inventories. In addition to the analysis of <sup>137</sup>Cs-GFO above, we examined the behavior of <sup>137</sup>Cs discharged from FDNPP (<sup>137</sup>Cs-Fk) within the whole trees to study a possibility of biological effect on <sup>137</sup>Cs transport to soils from trees. We measured the radioactivity of <sup>137</sup>Cs-Fk of above- and belowground tree parts of three 26 year-old *Quercus serrata* and associated soils at a contaminated area in Fukushima in April, 2014.

We estimated an average of <sup>137</sup>Cs-GFO inventories of forest soils in Japan to be  $1.7 \pm 1.4$  kBq/m<sup>2</sup> as of 2008. <sup>137</sup>Cs-GFO inventories varied largely from 0-7.9 kBq/m<sup>2</sup> around the country. We found high accumulation of <sup>137</sup>Cs-GFO in the north-western part facing to the Sea of Japan. We detected significant rainfall effects on the high accumulation due to winter rainfall. The vertical distribution of <sup>137</sup>Cs-GFO showed that 44% of <sup>137</sup>Cs-GFO remained within the 5 cm of soil from the surface whereas the rest of 56% was found in the layer of 5-30 cm in depth, indicating that considerable downward migration of <sup>137</sup>Cs-GFO occurred during these fifty years in forest soils in Japan. However, multiple linear regression analysis by geomorphological factors related to soil erosion, such as inclination angle or catchment area calculated from Digital Elevation Model, showed almost no significant effects on the distribution of <sup>137</sup>Cs-GFO.

The radioactivity of <sup>137</sup>Cs-Fk concentrations of fine roots collected from the 0-10 cm layer were 1600-2400 Bq/kg, which were comparable to those of one-year old branches (1400-2200 Bq/kg). The radioactivity of the fine roots was 7 times higher than that found in the soil of 50-100 cm layer (220-350 Bq/kg). This difference the radioactivity of the fine roots among the soil layers was remarkably small when compared with the 1000 times or more difference of radioactivity of soils in the same layers (one outlier sample in the 40-60 cm layer was excluded). The findings indicated that <sup>137</sup>Cs-Fk circulated through the whole tree within three years after the accident. Considering root litter fall inside the soils we estimated that contaminated <sup>137</sup>Cs on trees at the above ground part could be transported to soils through roots.

We clarified that <sup>137</sup>Cs-GFO has been held at deposited site and migrated downward gradually in soil. There are two possible major driving forces to be considered to explain the downward migration of <sup>137</sup>Cs-GFO. One is the migration of <sup>137</sup>Cs associated with vertical water movement and the other one is the transport of <sup>137</sup>Cs by root litter fall or root exudate. Further research is needed to analyze these processes to obtain reliable prediction of future distribution of <sup>137</sup>Cs-Fk.

キーワード: 放射能汚染, 福島第一原発, セシウム 137, 森林土壌, 樹木, 二次移動

Keywords: radioactive contamination, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, <sup>137</sup>Cs, forest soil, trees, secondary migration



福島第一原子力発電所事故から3年間の森林環境中における放射性セシウム移行と  
空間線量率変化  
Three-year monitoring study of radiocesium transfer and dose rate in forest environments  
after the FDNPP accident

加藤 弘亮<sup>1\*</sup>; 恩田 裕一<sup>1</sup>; ロフレド ニコラ<sup>1</sup>; 河守 歩<sup>1</sup>; 久留 景吾<sup>2</sup>  
KATO, Hiroaki<sup>1\*</sup>; ONDA, Yuichi<sup>1</sup>; LOFFREDO, Nicolas<sup>1</sup>; KAWAMORI, Ayumi<sup>1</sup>; HISADOME, Keigo<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター, <sup>2</sup> アジア航測株式会社

<sup>1</sup>Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Asia Air Survey Co., LTD.

本研究では、福島第一原子力発電所事故から3年間（平成23年7月～）の森林環境中の放射性セシウムの移行状況調査を実施した。スギ人工林からなる2林分（壮齢林・若齢林）と広葉樹混交林（コナラ及びアカマツ）において樹冠通過雨、樹幹流、リターフォールに含まれる放射性セシウム濃度を測定し、森林樹冠から林床への移行量をモニタリングした。また、サーベイメータ（TCS-172B、日立アロカメディカル）及び可搬型ポータブルゲルマニウム半導体検出器（Detective-DX-100T、Ortec, Ametek, Inc.）を用いて森林内の空間線量率（地上1m高）を測定した。調査地において、空間線量率の測定期間に環境省の森林除染が実施されたため、その影響も含めて評価した。

3年間の観測期間中に森林樹冠から林床に移行したセシウム137は、スギ壮齢林、スギ若齢林、広葉樹混交林でそれぞれ157 kBq/m<sup>2</sup>、167 kBq/m<sup>2</sup>、54 kBq/m<sup>2</sup>であった。これらの移行量は、原発事故後に大気から沈着した総量の36%、39%、12%にあたる。森林内の空間線量率は、いずれの森林でもほぼ物理減衰と同等の速度で低減する傾向を示したが、詳細に解析を行うと森林ごとに低下傾向がわずかに異なることが明らかになった。この低下傾向の違いを明らかにするために、林床へのセシウム137移行速度と林床1m高の空間線量率の変化傾向の関係解析を実施した。また、森林除染が林内空間線量率とその後の変化傾向に及ぼす影響について解析を行った。

キーワード: 福島第一原子力発電所, 放射性セシウム, 森林環境, 移行, 空間線量率

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Radiocesium, Forest environments, Transfer, Ambient dose rate

無人ヘリコプターを用いた福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質の核種別分布の詳細  
Analysis of each radionuclides discharged by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant measured by airborne surveys

西澤 幸康<sup>1\*</sup>; 吉田 真美<sup>1</sup>; 眞田 幸尚<sup>1</sup>; 鳥居 建男<sup>1</sup>  
NISHIZAWA, Yukiyasu<sup>1\*</sup>; YOSHIDA, Mami<sup>1</sup>; SANADA, Yukihisa<sup>1</sup>; TORII, Tatsuo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究開発機構  
<sup>1</sup> Japan Atomic Energy Agency

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震に起因して福島第一原子力発電所事故が発生し、大気中に多量の放射性物質が放出された。比較的半減期の長い<sup>134</sup>Csや<sup>137</sup>Csの他にも<sup>131</sup>I、<sup>132</sup>Te (<sup>132</sup>I)、<sup>133</sup>I等の多数の短半減期核種が放出された。発電所1~3号機からの核種毎の推定放出量が報告されているが、これらの短半減期核種は放出源である原子炉により大きく異なることが知られている。また、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの放射能比も発電所1~3号機でわずかに異なることから、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs比は放射性物質の放出原子炉を特定するための貴重な情報源が得られると考えられる。

原子力機構では放射性セシウムの放出源に近い発電所から3km圏内においてLaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器を搭載した無人ヘリコプターを用いて、上空から高分解能のガンマ線スペクトルを測定した。LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器はエネルギー分解能(FWHM)が優れていることから、多くの核種の弁別が可能である。また、無人ヘリコプターによる面的な測定により得られたデータ数が極めて多い。本発表では、無人ヘリコプターの測定データをスペクトル解析することで新たに明らかとなった放射性セシウム比率の分布を報告する。

キーワード: 無人ヘリコプター測定, 核種別分布  
Keywords: unmanned helicopter monitoring, radionuclide distribution

福島第一原子力発電所事故後の河川ネットワークを通じた水・土砂流出に伴う放射性セシウム移行  
Radiocesium transfer by water and sediment discharge through river networks after the Fukushima NPP accident

恩田 裕一<sup>1\*</sup>; 谷口 圭輔<sup>1</sup>; 加藤 弘亮<sup>1</sup>; 岩上 翔<sup>1</sup>; 脇山 義史<sup>1</sup>; 吉村 和也<sup>1</sup>; 辻村 真貴<sup>2</sup>; 坂口 綾<sup>1</sup>; 山本 政儀<sup>3</sup>  
ONDA, Yuichi<sup>1\*</sup>; TANIGUCHI, Keisuke<sup>1</sup>; KATO, Hiroaki<sup>1</sup>; IWAGAMI, Sho<sup>1</sup>; WAKIYAMA, Yoshifumi<sup>1</sup>; YOSHIMURA, Kazuya<sup>1</sup>; TSUJIMURA, Maki<sup>2</sup>; SAKAGUCHI, Aya<sup>1</sup>; YAMAMOTO, Masayoshi<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター, <sup>2</sup> 筑波大学生命環境系, <sup>3</sup> 金沢大学環日本海域環境研究センター  
<sup>1</sup>Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Faculty of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, <sup>3</sup>Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

我々の研究グループは、川俣町山木屋地区を調査対象地域として、福島第一原子力発電所事故による環境の放射能汚染のモニタリングを実施してきた。調査項目は次の通りである。

1. 様々な土地利用における流出-侵食プロットからの放射性セシウム流出量
2. 林内雨等の水文経路や斜面での地表流発生による森林環境中での放射性セシウム移行状況の観測
3. 河川水および森林流域からの渓流水に含まれる溶存態・懸濁態放射性セシウム濃度のモニタリング
4. 水田からの排水および懸濁物質に含まれる放射性セシウム濃度の測定
5. 阿武隈川および浜通りの河川の30地点における浮遊砂と河川水の連続観測

我々のモニタリング結果から、侵食土砂のセシウム 137 濃度は3年間を通してほぼ一定の値を示したが、森林流域からの浮遊砂のセシウム 137 濃度はわずかに低下傾向を示した。一方、水田からの浮遊砂と大流域の河川水では時間経過とともにセシウム 137 濃度が急速に減少する傾向が認められた。セシウム 137 濃度の減少傾向は二重指数関数モデルを用いて近似することができるが、様々な土地利用と流域スケールにおける減少傾向の違いについて考察を行った。それらの低下傾向の解析結果は、様々な土地利用により構成される河川流域からの放射性セシウム流出の将来予測に資する情報を提供しうる。

キーワード: 福島第一原子力発電所事故, 放射性セシウム, 河川システム, 水・土砂流出, 移行

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Radiocesium, River system, water and sediment discharge, transfer

## 福島県山木屋町の山地源流域における溶存態・浮遊砂・粗大有機物によるセシウム<sup>137</sup>流出 Radioactive Cs-137 discharge by Dissolved water, Suspended Sediment and Coarse Organic Matter from Headwater Catchment

岩上 翔<sup>1\*</sup>; 恩田 裕一<sup>1</sup>; 辻村 真貴<sup>2</sup>; 小沼 亮平<sup>3</sup>; 榊原 厚一<sup>3</sup>  
IWAGAMI, Sho<sup>1\*</sup>; ONDA, Yuichi<sup>1</sup>; TSUJIMURA, Maki<sup>2</sup>; KONUMA, Ryouhei<sup>3</sup>; SAKAKIBARA, Koichi<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター, <sup>2</sup> 筑波大学生命環境系, <sup>3</sup> 筑波大学大学院生命環境科学研究科  
<sup>1</sup>Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Faculty of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, <sup>3</sup>Graduate School of Life and Environmental Science, Tsukuba University

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, following the earthquake and tsunami disaster on March 11, 2011, resulted in a substantial release of radionuclides to the environment. Most of the area in which the radionuclides were deposited was forested area. Therefore it is very important to quantify the discharge of radionuclide from the forested catchment in headwater region which will be the input of the radionuclide to downstream various land use.

The concentration of dissolved <sup>137</sup>Cs in groundwater and stream water in the headwater catchments in Yamakiya district, located ~35 km north west of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP), was monitored from June 2011 to December 2014. Also <sup>137</sup>Cs concentration in suspended sediments and coarse organic matter such as leaves and branches were monitored. Groundwater and stream water were sampled at intervals of approximately 2 months at each site. Intensive sampling was also conducted during rainstorm events. Compared with previous data from the Chernobyl NPP accident, the concentration of dissolved <sup>137</sup>Cs in stream water was low. In the Iboishi-yama catchment, a trend was observed for the concentration of dissolved <sup>137</sup>Cs in stream water to decline, which could be divided into two phases by October 2011 (after 200 days after the accident).

The highest <sup>137</sup>Cs concentration recorded at Iboishi-yama was 1.2 Bq/L at the peak on August 6, 2011, which then declined to 0.021-0.049 Bq/L during 2013 (in stream water under normal water-flow conditions). During the rainfall events, the concentration of dissolved <sup>137</sup>Cs in stream water increased temporarily. The concentration of dissolved <sup>137</sup>Cs in groundwater at a depth of 30 m at Iboishi-yama displayed a decreasing trend from 2011 to 2013, with a range from 0.039 Bq/L to 0.0025 Bq/L. The effective half-lives of stream water in the initial fast flush and secondary phases were 0.1-0.2 y and 1.0-2.2 y, respectively, in the three catchments. The trend for the concentration of dissolved <sup>137</sup>Cs to decline in groundwater and stream water was similar throughout 2012-2013, and the concentrations recorded in deeper groundwater were closer to those in stream water. The declining trend of dissolved <sup>137</sup>Cs concentrations in stream water was similar to that of the loss of canopy <sup>137</sup>Cs by throughfall, as shown in other reports of forest sites in the Yamakiya district.

The <sup>137</sup>Cs concentration in suspended sediments showed 10000-45000 Bq/kg and <sup>137</sup>Cs concentration in organic matter showed 1000-12000 Bq/kg. The <sup>137</sup>Cs concentration in organic matter showed declining trend through the observation period and the trend was similar to that of dissolved <sup>137</sup>Cs concentration in stream water. In contrast <sup>137</sup>Cs concentration in suspended sediment did not show a clear declining trend in every catchment (before the decontamination works). After the decontamination works in Iboishi-yama catchment, the <sup>137</sup>Cs concentration in suspended sediment declined largely to 200-300 Bq/kg. The <sup>137</sup>Cs concentration in organic matter and dissolved <sup>137</sup>Cs concentration in stream water did not decline largely.

In conjunction with discharge data and turbidity data, <sup>137</sup>Cs discharge flux were calculated for three components (dissolved water, organic matter, suspended sediments). As a result, it is shown that more than 98% of the <sup>137</sup>Cs discharge was due to the discharge by suspended sediments. It is also suggested that dissolved <sup>137</sup>Cs concentration have relationship with <sup>137</sup>Cs concentration of organic matter and so it is still important to clarify the process of <sup>137</sup>Cs migration through dissolved water and organic matter.

キーワード: セシウム<sup>137</sup>, 溶存態, 浮遊砂, 粗大有機物, 源流域, 流出

Keywords: Cs-137, Dissolved water, Suspended sediment, Coarse organic matter, Headwater catchment, Discharge



## 2011-2014年の福島県内の新田川における放射性セシウムの移行挙動 Transport of radiocesium in the Niida River, Fukuhsima Prefecture in 2011-2014

長尾 誠也<sup>1\*</sup>; 田堂 修<sup>1</sup>; 上村 輝宙<sup>1</sup>; 金森 正樹<sup>1</sup>; 桐島 陽<sup>2</sup>; 宮田 佳樹<sup>1</sup>; 落合 伸也<sup>1</sup>; 山本 政儀<sup>1</sup>  
NAGAO, Seiya<sup>1\*</sup>; TADO, Shu<sup>1</sup>; UEMURA, Teruaki<sup>1</sup>; KANAMORI, Masaki<sup>1</sup>; KIRISHIMA, Akira<sup>2</sup>; MIYATA, Yoshiki<sup>1</sup>; OCHIAI, Shinya<sup>1</sup>; YAMAMOTO, Masayoshi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 金沢大学, <sup>2</sup> 東北大学

<sup>1</sup>Kanazawa University, <sup>2</sup>Tohoku University

Surface deposition of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs reveals considerable external radioactivity above 3000k Bq/m<sup>2</sup> in a zone extending northwest from the NPP after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (NPP) accident. Therefore, it is important to elucidate the short-term to long-term impacts of the accident on ecosystems of river watershed environments. This study investigated the transport of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in a small river, Niida River running through Iidate Viledge, in Fukushima Prefecture, Japan at normal and high flow conditions during 2011-2014.

Field experiments were conducted at a fixed station (Kinouchi bridge) in the lower Niida River during the period of May 2011-December 2014. The 20 L of surface river water samples were collected at the station using buckets. The radioactivity of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the river waters before and after the filtration was measured with gamma-ray spectrometry using ammonium molybdophosphate (AMP)/Cs compound method.

Total radioactivity of <sup>137</sup>Cs (dissolved and particulate phases) in the river waters ranged from 0.11 to 4.18 Bq/L during May 2011-December 2014. Highest value was found in May 2011. Total <sup>137</sup>Cs radioactivity indicates the decreasing trend with increasing time at normal flow condition. However the higher radioactivity was observed after rain events. The <sup>137</sup>Cs radioactivity increased by 1.83 Bq/L after the heavy rain event by Typhoon Guchol in June 2012, and 1.68 Bq/L by Typhoon Jelawat in October 2012.

Percentage of <sup>137</sup>Cs associated with riverine suspended solids was 47-48% at normal flow condition in July and September 2011, but after December 2011 ranged from 75 to 93% at normal flow condition and 86-91% at high flow condition due to rain events. The radioactivity of particulate phase of <sup>137</sup>Cs ranged from 20 to 42 Bq/g-riverine suspended solids. Rain events are mainly contributed to the transport of radiocesium in the Niida River.

キーワード: Cs-134, Cs-137, 降雨イベント, 河川懸濁粒子

Keywords: Cs-134, Cs-137, rain event, riverine suspended solids

## 福島第一原発事故後の新田川流域からの放射性セシウムの流出 Radiocesium discharge from Niidagawa river basin after the accident of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

脇山 義史<sup>1\*</sup>; 恩田 裕一<sup>1</sup>; Golosov Valentin<sup>2</sup>; Konoplev Alexei<sup>3</sup>; 高瀬 つぎ子<sup>2</sup>; 難波 謙二<sup>3</sup>  
WAKIYAMA, Yoshifumi<sup>1\*</sup>; ONDA, Yuichi<sup>1</sup>; GOLOSOV, Valentin<sup>2</sup>; KONOPLEV, Alexei<sup>3</sup>; TAKASE, Tsugiko<sup>2</sup>;  
NANBA, Kenji<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター, <sup>2</sup> モスクワ州立大学地理学部, <sup>3</sup> 福島大学環境放射能研究所  
<sup>1</sup>Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Department of Geography, Moscow State University, <sup>3</sup>Institute of Environmental Radioactivity Fukushima University

河川を介した放射性セシウムの移動は、その流域内の住民に対する潜在的なリスクをもたらす。福島県内を流れる新田川流域はその典型的な例である。上流部には放射性セシウム沈着量の大きい地域が存在し、河川は下流域の居住域へと流入する。放射性物質によるリスクを低減させるため、河川の土砂流出にともなう Cs-137 の移動の定量的に評価することが必要である。既往研究では放射性セシウムなどの土粒子と高い親和性を示す汚染物質は高強度の降雨にともなう出水時に集中的に流出することが報告されている。本研究では新田川流域における放射性セシウムの流出を定量化し、その流出プロセスを明らかにすることを目的とする。放射性セシウム流出量定量化のため、2014年夏に新田川流域内の3地点に浮遊砂サンプラー・水位計・濁度計の観測機材を設置した。観測地点は鮭川橋 (N37° 38' 33", E141° 00' 20")、野手上北 (N37° 39' 16", E140° 47' 47")、蕨平 (N37° 36' 49", E140° 48' 04") の3地点である。鮭川橋、野手上北、蕨平の集水面積はそれぞれ 281, 151, 86 km<sup>2</sup> であり、Cs-137 初期沈着量はそれぞれ 752, 810, 1462 kBq/m<sup>2</sup> である。浮遊砂サンプラーに捕捉された土砂をおよそ2カ月の間隔で回収し、Ge 半導体  $\gamma$  線検出器で Cs-137 の定量を行った。Cs-137 流出量は土砂の Cs-137 濃度に、流量と土砂濃度を乗ずることで算出した。土砂の Cs-137 濃度平均値 (3回回収分) は鮭川橋、野手上北、蕨平でそれぞれ 13, 14, 31 kBq/kg であった。現在までに明瞭な季節変化は見られなかった。期間内の Cs-137 流出量推定値は積算で 10<sup>11</sup> Bq のオーダーであった。これらは単位面積当たりの Cs-137 流出量は初期沈着量のおよそ 0.1% の値に相当する。出水時の Cs-137 流出量を評価するため、8月8-11日, 10月5-8日, 10月13-16日の降雨イベントにおける流出量を調べた。この3イベントでの積算 Cs-137 流出量の全観測期間での Cs-137 総流出量に占める割合は、鮭川橋、野手上北、蕨平でそれぞれ 0.3, 0.7, 0.7 となった。集水面積が小さい地点ほど、流出ピーク時に Cs-137 流出が集中することがわかった。

キーワード: 放射性セシウム, 河川, 福島第一原発, 浮遊砂

Keywords: Radiocesium, River, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Suspended sediment

## 福島とチェルノブイリの河川粒子分析: 放射性セシウムの挙動に関連して Investigation of the River Particulate Matters in Fukushima and Chernobyl Related to Cesium Behavior

菅 大暉<sup>1\*</sup>; Fan Qiaohui<sup>2</sup>; 武市 泰男<sup>3</sup>; 田中 万也<sup>4</sup>; 坂口 綾<sup>5</sup>; 井波 暢人<sup>3</sup>; 間瀬 一彦<sup>3</sup>; 小野 寛太<sup>3</sup>;  
高橋 嘉夫<sup>2</sup>  
SUGA, Hiroki<sup>1\*</sup>; FAN, Qiaohui<sup>2</sup>; TAKEICHI, Yasuo<sup>3</sup>; TANAKA, Kazuya<sup>4</sup>; SAKAGUCHI, Aya<sup>5</sup>;  
INAMI, Nobuhito<sup>3</sup>; MASE, Kazuhiko<sup>3</sup>; ONO, Kanta<sup>3</sup>; TAKAHASHI, Yoshio<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 広島大学大学院理学研究科地球惑星システム学専攻, <sup>2</sup> 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻, <sup>3</sup> 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所, <sup>4</sup> 広島大学サステナブル・ディベロップメント実践研究センター, <sup>5</sup> 筑波大学大学院数理物質科学研究科化学専攻

<sup>1</sup>Department of Earth and Planetary Systems Science, Hiroshima University, <sup>2</sup>Department of Earth and Planetary Science, The University of Tokyo, <sup>3</sup>Institute of Materials Structure Science, KEK, <sup>4</sup>Institute for Sustainable Sciences and Development, Hiroshima University, <sup>5</sup>Graduate School of Pure and Applied Science, University of Tsukuba

The behavior of the radioactive cesium (radio-Cs), which was emitted by nuclear power plant accident, was different between in the Abukuma River (Fukushima) and in the Pripyat River (Chernobyl). Previous studies showed that dissolved Cs was dominant in the Pripyat River (approximately 70%). Conversely, Cs in the particulate matters (PMs) was dominant in the Abukuma River (dissolved Cs is approximately 30%). This difference of radio-Cs behavior was related to the blocking effect by the coating of natural organic matter (NOM) on clay minerals in the aquatic environments. However, the mechanism of the blocking effect by NOM has not been investigated for environmental samples yet in terms of morphological image and characterization.

Scanning transmission X-ray microscopy (STXM), X-ray microscopy using soft X-ray region, is very comfortable to confirm the blocking effect by NOM. However, STXM had not been installed into synchrotron radiation facilities in Japan until 2012. Therefore, compact STXM (cSTXM) was newly designed and developed at BL-13A in KEK-Photon Factory (PF) until 2014. Its size, similar to laptop (A4 paper size), is much smaller than conventional STXM (Bruker's STXM). Piezo electronic driven stages were installed to all axis stages in the cSTXM. This system can be fast and precise sufficient to control the nano-scale imaging. As to spatial resolution using 30 nm outer most zone width FZP, we can attain resolution about 37 nm at sample measurement position. All detection was conducted by counting system using avalanche photo diode (APD) or photo multiplier (PMT). Soft X-ray region allow us to measure the light elements such as carbon, nitrogen, and oxygen.

As to samples, suspended water was collected from in the Abukuma River and the Pripyat River, which was filtered initially by 3.0  $\mu\text{m}$  membrane filter and subsequently by 0.45  $\mu\text{m}$  membrane filter using a pressurized pumping system. Finally, fine PMs ( $>0.45 \mu\text{m}$ ) were obtained by this filtration. Before STXM measurement, these PMs were dispersed into water by supersonic wave for 5 min. The water droplet including the PMs was dropped on a 50-nm-thick Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> membrane and air-dried. In addition to the sampling, the concentration of dissolved organic carbon (DOC) was measured in these rivers. In this study, we analyzed these PMs obtained from the two rivers using scanning transmission X-ray microscope (STXM) to investigate (i) the chemical distribution images of NOM (mainly composed by carbon) and clay minerals (mainly composed by aluminum) and (ii) the functional group images of carbon. In addition, (iii) the characteristic of NOM was measured by STXM-near edge X-ray absorption fine structure (NEXAFS) extracted from target area of NOM adsorbed on clay minerals.

Two distribution images (carbon and aluminum) showed that clay minerals were covered with NOM in the Fukushima and Chernobyl samples. By functional group mapping of carbon, it was found that distribution of each functional group was similar among different functional groups (e.g. aromatic, phenolic, carboxylic) in the PMs obtained from the two rivers. NEXAFS spectra of carbon were also similar to all samples, suggesting that humic substances (mainly composed of humic and fulvic acid) are the main cause of the blocking effect in these rivers. Based on these results, it is suggested that the blocking effect could occur in the Abukuma and Pripyat Rivers, which is caused by humic substances covering with clay minerals. Therefore, it is concluded that the degree of the blocking effect by NOM related to radio-Cs behavior was dependent on the concentration of DOC in the river (in the River Abukuma: 0.9-1.3 mg/L, in the River Pripyat: 18 mg/L). In addition to the studies on the rivers, investigation results for PMs obtained from Fukushima pond (DOC value is between the Abukuma and Pripyat Rivers) will be explained in this presentation.

キーワード: 天然有機物, 河川粒子, Cs の挙動, 走査型透過 X 線顕微鏡, 福島, チェルノブイリ

Keywords: Natural organic matters, river particulate matters, Cs behavior, Scanning transmission X-ray microscopy (STXM), Fukushima, Chernobyl

## 福島第一原発周辺で採取した土壌から分離した放射性微粒子の同定 Identification of radioactive microparticles in the vicinity of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

佐藤 志彦<sup>1\*</sup>; 末木 啓介<sup>1</sup>; 笹 公和<sup>1</sup>; 足立 光司<sup>2</sup>; 五十嵐 康人<sup>2</sup>  
SATOU, Yukihiko<sup>1\*</sup>; SUEKI, Keisuke<sup>1</sup>; SASA, Kimikazu<sup>1</sup>; ADACHI, Kouji<sup>2</sup>; IGARASHI, Yasuhito<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学大学院数理物質科学研究科, <sup>2</sup> 気象研究所

<sup>1</sup> Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba, Japan, <sup>2</sup> Meteorological Research Institute, Japan

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) disaster in 2011 discharged a large amount of radionuclides to the environment. Previous studies already disclosed the source term and inventory of radionuclides. However, physical and chemical states of radionuclides in the environment have yet to be revealed. Numerous environmental samples have been analyzed to investigate distribution of radionuclides by digital autoradiography using an imaging plate (IP). These studies pointed out that the spot-type contaminations were appeared and very common not only for the samples collected during the early stage (collecting until April 2011) of the FDNPP disaster but also for those collected later. In the FDNPP disaster, major forms of radioactive materials have been assumed to be gaseous. This is because the disaster underwent no reactor explosion nor fire of the reactor core, which is quite different from the situation in the Chernobyl NPP (ChNPP) disaster in 1986. In addition, it has been revealed that the emitted nuclear fuel (uranium) and <sup>90</sup>Sr was very low. Therefore, elucidation of the cause of the spot-type contamination is crucial, which could contribute to know about physical and chemical state of radionuclides in the environment, as well as disclose their release processes from the FDNPP. Present study thus aiming at elucidation what makes the spot-type contamination in the IP analysis.

Surface soil samples were collected in the area about 20 km northwest from the FDNPP in June 2013. Spot-type contaminations were detected by IP analysis. Then, the radioactive particles were isolated by repeated sorting process and measured by the  $\gamma$ -spectroscopy with the high purity germanium semiconductor detector. The particles isolated were finally observed by SEM-EDS to determine the elemental composition and the morphology.

So far identified are four particles, and determined radionuclides by  $\gamma$ -spectroscopy were <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs. The morphology of the particles exhibited two types; spherical and fragmental. Thus, the spot-type contamination was characterized as due to such specific radioactive particles. The particles consist of Si, O, Zn, Fe, etc. and Cs (of which activity matched with the results by  $\gamma$ -spectroscopy) were also easily detected by SEM-EDS, suggesting glassy molten material. However, other fission products were not found in the particles. Tremendous amount of radioactive particles were collected around the ChNPP, and they were termed hot particle. Dominant components of the hot particle are nuclear fuel and typical fission products such as <sup>90</sup>Sr, <sup>153</sup>Eu as well as <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs. In contrast elemental composition of the present particles were dominated by Si. Uranium was found for only one of the present particles, but its concentration was very low and localized within the particle. In conclusion, characteristics of the present particles are quite different from the Chernobyl hot particles, but very similar to those reported for the particles isolated from HV filter samples in Tsukuba (Adachi et al., 2013, Abe et al., 2014).

キーワード: 福島第一原発事故, 放射性微粒子, 元素組成, 同位体比

Keywords: FDNPP disaster, Radioactive particle, Consist elements, Isotope ratio



## 福島第一原発周辺に分布する粘土鉱物からのセシウム ( $^{133}\text{Cs}$ および $^{137}\text{Cs}$ ) の脱離挙動 Desorption behavior of cesium ( $^{133}\text{Cs}$ and $^{137}\text{Cs}$ ) from the clay minerals distributed around the Power Plant

朝日 一成<sup>1\*</sup>; 青井 裕介<sup>1</sup>; 富原 聖一<sup>2</sup>; 福士 圭介<sup>1</sup>  
ASAHI, Kazunari<sup>1\*</sup>; AOI, Yusuke<sup>1</sup>; TOMIHARA, Seiichi<sup>2</sup>; FUKUSHI, Keisuke<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 金沢大学, <sup>2</sup> 公益財団法人ふくしま海洋科学館  
<sup>1</sup>Kanazawa University, <sup>2</sup>Environmental Aquarium Aquamarine Fukushima

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震に起因して、福島第一原子力発電所が水蒸気爆発を起こし、大量の放射性物質が原発周辺に放出された。放出された放射性物質の中で、総放出量と半減期から、原発周辺の土壤汚染の主な原因は放射性セシウム ( $\text{Cs}$ ) であるといわれている。原発周辺の広範囲で放射性  $\text{Cs}$  が土壤表層の細粒物質に濃集していることが確認されており、土壤に普遍的に含まれている層状粘土鉱物が  $\text{Cs}$  の主な取り込み媒体と指摘されている。福島県の土壤は阿武隈花崗岩を母岩としており、その風化生成物である層状粘土鉱物であるスメクタイト、バーミキュライト、イライトの存在が確認されている。層状粘土鉱物は層状の結晶構造を持っており、層間に保持される陽イオンは溶液中の陽イオンと交換可能である。 $\text{Cs}^+$ はこれら粘土鉱物への親和性が特に高いため、原発事故により放出された  $\text{Cs}$  は層状粘土鉱物の層間に強固に保持されていることが予想されている。しかし溶液中の主要陽イオンが高濃度である場合、強固に保持された  $\text{Cs}^+$ であっても他の陽イオンとの交換により  $\text{Cs}^+$ は溶脱する可能性がある。自然界において粘土粒子が接触する天然水は主要陽イオンを様々な濃度で含んでいる。したがって天然の土壤に吸着した放射性  $\text{Cs}^+$ が天然環境に溶出することが懸念される。環境中における放射性  $\text{Cs}$  の動態の理解には、天然土壤からの主要陽イオンによる  $\text{Cs}$  溶脱挙動の理解が必須である。本研究は福島県第一原発周辺に分布する土壤粘土を用いて、主要陽イオン ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Li}^+$ ) 添加による  $\text{Cs}$  の脱離挙動を系統的に検証することを目的とした。

## オートラジオグラフィによる実環境を考慮した粘土鉱物のCs吸着挙動の解析 A study of Cs-adsorption behavior of clay minerals using autoradiography and considering the actual environments

小暮 敏博<sup>1\*</sup>; 向井 広樹<sup>1</sup>; 廣瀬 農<sup>2</sup>; 甕 聡子<sup>1</sup>; 田野井 慶太郎<sup>2</sup>; 中西 友子<sup>2</sup>  
KOGURE, Toshihiro<sup>1\*</sup>; MUKAI, Hiroki<sup>1</sup>; HIROSE, Atsushi<sup>2</sup>; MOTAI, Satoko<sup>1</sup>; TANOI, Keitaro<sup>2</sup>;  
NAKANISHI, M.tomoko<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京大学 大学院理学系研究科, <sup>2</sup> 東京大学 大学院農学生命科学研究科

<sup>1</sup>Graduate School of Science, The University of Tokyo, <sup>2</sup>Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo

福島原発事故により放出された放射性Csの土壤汚染の実態を明らかにするため様々な研究が行われているが、実土壌中に放射性Csがどのように存在しているのかというミクロスコピックなレベルの解析はあまり進んでいない。最近我々は特殊なIPを用いたオートラジオグラフィと電子顕微鏡による解析を組み合わせ、実際に放射性Csを吸着・固定している数十 $\mu$ mレベルの土壤粒子を調べることにより、その中の多くのものはこの地域の地質である阿武隈花崗岩に由来する風化黒雲母 (weathered biotite) であることを報告した (Mukai et al., 2014)。一方、実験室でのCsの粘土鉱物等への吸着実験の結果では、風化黒雲母あるいはバーミキュライトへの吸着能は他の鉱物に比べて特別に高くはないことが示されている (例えば <http://reads.nims.go.jp/>)。この違いの原因は、福島の実際の汚染は単一の鉱物と溶液との間の吸着平衡に因るのではなく、もっと複雑な系におけるカイネティックな要因が支配しているためと考えられる。また実際の汚染を実験室で再現するためには、鉱物中の濃度で sub ppm レベルの吸着実験を行う必要がある。そこで我々は、放射性同位元素 (Cs-137) と IP オートラジオグラフィを用いて、様々な粘土鉱物種を同時に低濃度のCs-137溶液へ浸漬し、どの鉱物種に放射性Csがよく吸着するのかを調べた。その結果、福島で採取した風化黒雲母が、他の粘土鉱物 (同じ地域の未風化の黒雲母、モンモリロナイト、イライト、ハロイサイト、カオリナイト、アロフェン、イモゴライト等) に比べて極めて多くのCsを吸着・固定することが明らかとなった。また短時間で他の粘土鉱物に吸着したCs-137も、時間の経過とともに共存する風化黒雲母に移行していく実験結果も得られ、このことは最近の福島における放射性セシウムの不動化と対応している可能性がある。

キーワード: 福島原発事故, 放射性セシウム, 粘土鉱物, 風化雲母, 吸着, オートラジオグラフィ

Keywords: Fukushima nuclear accident, radioactive cesium, clay minerals, weathered biotite, adsorption, autoradiography

## SR- $\mu$ -XRDを用いた福島放射性土壌粒子の鉱物評価 Characterization of mineral phases in radioactive particles collected from Fukushima contaminated soil using SR-u-XR

甕 聡子<sup>1\*</sup>; 向井 広樹<sup>1</sup>; 綿貫 徹<sup>2</sup>; 大和田 謙二<sup>2</sup>; 福田 竜生<sup>2</sup>; 町田 晃彦<sup>2</sup>; 倉又 千咲<sup>1</sup>; 菊池 亮佑<sup>1</sup>;  
北澤 英明<sup>3</sup>; 小暮 敏博<sup>1</sup>

MOTAI, Satoko<sup>1\*</sup>; MUKAI, Hiroki<sup>1</sup>; WATANUKI, Tetsu<sup>2</sup>; OHWADA, Kenji<sup>2</sup>; FUKUDA, Tatsuo<sup>2</sup>;

MACHIDA, Akihiko<sup>2</sup>; KURAMATA, Chisaki<sup>1</sup>; KIKUCHI, Ryosuke<sup>1</sup>; KIRAZAWA, Hideaki<sup>3</sup>; KOGURE, Toshihiro<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院理学系研究科, <sup>2</sup> 日本原子力研究開発機構, <sup>3</sup> 物質・材料研究機構

<sup>1</sup>Graduate School of Science, The University of Tokyo, <sup>2</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>3</sup>National Institute for Material Science

福島第一原発事故で放出された放射線核種の中でも、半減期の長い放射性セシウム (Cs) の挙動は今後も重要である。様々な室内実験から、土壌中では粘土鉱物が放射性 Cs を吸着していると考えられているが、実土壌中の Cs 濃度は非常に小さいため、化学分析による吸着物質の特定は進んでいなかった。最近我々はイメージングプレート (IP) を用いたオートラジオグラフィなどによって、放射性 Cs を吸着している土壌中の数十  $\mu\text{m}$  の放射性粒子を特定し、SEM-EDS でその正体を調べた (Mukai et al., 2014)。その結果、1) 風化黒雲母、2) 微細な粘土鉱物で構成される土壌団粒、そして3) 微細な粘土鉱物粒子を含む有機物粒子などが存在することが明らかになった。しかし、SEM-EDS だけではその鉱物学的な特徴は十分に得られない。そこで SPring-8 の放射光を用いた微小領域 X 線回折 (SR- $\mu$ -XRD) によって、各粒子を構成する鉱物やその特徴を明らかにした。

IP オートラジオグラフィで特定され、SEM-EDS で評価した放射性粒子をマイクロマンピュレータによってカプトン製のピンに接着して XRD 測定を行った。測定は SPring-8 の BL22XU ラインを用いて、スリットで 40 もしくは 60  $\mu\text{m}$  に絞った 15 keV ( $\lambda = 0.8273 \text{ \AA}$ ) の X 線を放射性粒子に照射し、照射中に試料を 180° 回転させ、回折パターンを平板 IP で記録した。さらに得られた 2 次元パターンから同じ回折角の強度を積算し、1 次元の回折パターンを得た。SEM-EDS から風化黒雲母と考えられた放射性粒子からは、単結晶性の回折パターンが得られ、特に低角の領域に幅広い  $\sim 10 \text{ \AA}$  のピークが見られるものや、同様に幅広い  $\sim 14 \text{ \AA}$  や  $\sim 7 \text{ \AA}$  のピークが見られるものなどがあり、様々なパーミキュライト化やカオリナイト化の段階の風化黒雲母が存在することが明らかとなった。またこれらの粒子の Cs-137 の放射能を IP オートラジオグラフィの感光度から見積もりその XRD パターンと比較したが、明確な対応は見られなかった。また 2) の土壌団粒と考えられるタイプには smectite の環状の回折パターンを示す粒子があった。3) の有機物が主体のタイプでは粘土鉱物由来の顕著な回折斑点が認められない粒子も見られた。

キーワード: 福島原発事故, 放射性セシウム, オートラジオグラフィ, 粘土鉱物, 風化黒雲母, SR- $\mu$ -XRD

Keywords: Fukushima nuclear accident, radioactive cesium, autoradiography, clay minerals, weathered biotite, SR-u-XRD

## FIB と IP オートラジオグラフィを用いた福島汚染土壌粒子中の放射性セシウムの分布解析 Distribution of radioactive cesium in contaminated Fukushima soil particles using FIB and IP autoradiography

向井 広樹<sup>1\*</sup>; 囊 聡子<sup>1</sup>; 小暮 敏博<sup>1</sup>  
MUKAI, Hiroki<sup>1\*</sup>; MOTAI, Satoko<sup>1</sup>; KOGURE, Toshihiro<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院理学系研究科

<sup>1</sup> Graduate School of Science, the University of Tokyo

最近我々は特殊加工を施したイメージングプレート (IP) を使ったオートラジオグラフィと電子顕微鏡技術を組み合わせることにより、福島県で採取された放射能汚染土壌中の放射性粒子を特定した (Mukai et al., 2014)。これらの粒子はおおよそ数十  $\mu\text{m}$  の大きさであるが、さらに粒子中の放射性セシウムの分布を明らかにすることは、土壌中でのセシウムの動態について考える上で重要である。しかし、IP オートラジオグラフィの空間分解能はせいぜい数百  $\mu\text{m}$  であり、これでは粒子中の放射能の分布を見ることができない。そこで我々は、IP オートラジオグラフィに加えて集束イオンビーム (FIB) による微細加工技術を用いることにより、土壌粒子中の放射性セシウムの分布の解明に成功した。

Mukai et al. (2014) の結果に基づき、(1) 風化黒雲母、(2) 鉱物微粒子を含む有機粒子、(3) 微細粘土粒子の凝集体の3種類の放射性土壌粒子について解析を行った。まず FIB を用いて平板状の風化黒雲母を数  $\mu\text{m}$  のいくつかの小片に切断し、さらに IP オートラジオグラフィで区別できるようマイクロマンピュレータを使ってこれらの小片を十分な距離に分離した。オートラジオグラフィの結果、これらすべての小片から放射能が検出され、放射性セシウムが風化黒雲母の粒子中にほぼ均質に分布していることを示した。これは放射性セシウムを含む溶液が、風化黒雲母に発達した劈開の空隙を通過して、結晶内部へ浸透したためと考えられる。一方有機粒子では、同様に得られたいくつかの小片のうちわずか1、2個の小片のみが放射能をもっていた。すなわちセシウムは有機粒子においては局在しており、限られた鉱物粒子や有機物に濃集していると考えられる。最後に粘土鉱物の凝集体については IP 上でマイクロマンピュレータを用いて粉碎・分散させた。その結果、多くの小片は放射能を示し、放射性セシウムがこの粒子中においては広く分散していることを示唆した。

キーワード: 風化黒雲母, 福島原発事故, 放射性セシウム, オートラジオグラフィ, FIB

Keywords: Weathered biotite, Fukushima nuclear accident, Radioactive cesium, Autoradiography, FIB



## 2011年の海域モニタリングで採取された予備海水試料中に含まれる放射性セシウム濃度の測定 Measurement of radiocesium in spare seawater samples collected in marine monitoring for the Fukushima accident in 2011

熊本 雄一郎<sup>1\*</sup>; 山田 正俊<sup>2</sup>; 青山 道夫<sup>3</sup>; 浜島 靖典<sup>4</sup>; 村田 昌彦<sup>1</sup>; 河野 健<sup>1</sup>

KUMAMOTO, Yuichiro<sup>1\*</sup>; YAMADA, Masatoshi<sup>2</sup>; AOYAMA, Michio<sup>3</sup>; HAMAJIMA, Yasunori<sup>4</sup>; MURATA, Akihiko<sup>1</sup>; KAWANO, Takeshi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 海洋研究開発機構, <sup>2</sup> 弘前大学, <sup>3</sup> 福島大学, <sup>4</sup> 金沢大学

<sup>1</sup>JAMSTEC, <sup>2</sup>Hirosaki University, <sup>3</sup>Fukushima University, <sup>4</sup>Kanazawa University

2011年3月に発生した福島第一原子力発電所(FNPP1)事故により、破損した原子炉から放射性セシウムを含む放射性物質が環境中に放出された。これまでの研究により、放出された放射性セシウムの多くの部分が北太平洋に移行したことが推定されている。しかし、その移行過程及び移行した総量の推定はまだ十分に明らかになっていない。文部科学省は、FNPP1から約30~50km離れた沖合海域において、事故直後の2011年3月23日から空間線量、大気ダスト及び海中の放射性物質の濃度測定を開始した(「海域モニタリング」)。それら放射性物質(放射性セシウム、放射性ストロンチウム、放射性ヨウ素)の測定結果は、すでに文部科学省より公表されている(2013年4月以降は原子力規制委員会のHPにて公開)。しかし、事故発生に即応するための緊急性の高い「海域モニタリング」によって得られたデータは、放出された放射性物質の海洋環境中での拡散過程を議論するためには、決して十分とは言えない。放射性セシウムについては、2011年7月まで簡易的な方法(直接測定法)による測定しか実施されていない。そのため、その海水中の濃度が急速に低下した2011年5月から7月にかけては、ほとんどのデータが「検出下限値以下」と報告されており、その期間中のFNPP1から約200km圏内の沖合・外洋域における放射性セシウムの分布詳細は明らかになっていない。2011年度の沖合・外洋域における「海域モニタリング」は、その一部が(独)海洋研究開発機構(JAMSTEC)の調査船航海によって実施された。同航海における海水試料の採取時、不測の事態に備えるために予備の試料も合わせて採取された。我々はこの「予備海水試料」をJAMSTECより譲り受け、その中に含まれている放射性セシウムを高感度な濃縮法によって測定し、これまでデータの空白時期であった2011年5月から7月における放射性セシウム(<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Cs)の分布を明らかにしたので報告する。「予備海水試料」は、JAMSTECの調査船による7回の観測航海で採取された(YK11-E02、NT11-E01、YK11-E03、NT11-E02、MR11-E02、YK11-E05、KR11-E04)。採取にはノスキンの採水器が使用され、「予備海水試料」は各10、もしくは20リットル採取された。それらのうち、4航海分(YK11-E02、NT11-E01、MR11-E02、KR11-E04)の試料について、蒸発及びリンモリブデン酸アンモニウム法によって濃縮し、JAMSTECむつ研究所及び金沢大学低レベル放射能実験施設の極低バックグラウンドGe半導体検出器を用いて放射性セシウム濃度を測定した。濃縮前処理と測定を通じて得られた分析の不確かさは、約8%であった。5月上旬、FNPP1からの汚染水の直接流入(4月上旬)に由来すると考えられる高濃度(500 Bq/m<sup>3</sup>以上)の<sup>134</sup>Csを含む表面海水は、福島県及び宮城県南部の沖合約50km圏内で観測された。これは、FNPP1近傍に放出された<sup>134</sup>Csが南北に卓越する福島県沖の沿岸流に沿って拡がったものと考えられる。一方、FNPP1から約100km沖合の北緯37.5度/東経142度付近の1観測点でも高濃度の<sup>134</sup>Csが観測されており、中規模渦に起因する表面海流によって<sup>134</sup>Csが帯状に東に拡がったことが暗示された。6月上旬には、福島県沖50km圏内で<sup>134</sup>C濃度は低下した一方、高濃度水は仙台湾から鹿島灘南部にまで南北に拡がった。さらに北緯36.5~37度では、すぐ南を東進する黒潮続流と並行するように、約200km沖合(東経142.5度付近)まで<sup>134</sup>Cs高濃度水が帯状に東に拡がっていた。6月に観測されたこの東・南部への大きな拡大は、5月末まで茨城県沖に存在していた暖水渦構造が解消されたことによる影響が推察される。7月上旬になると、FNPP1の近傍海域を除くと、高濃度(500 Bq/m<sup>3</sup>以上)の<sup>134</sup>Csは仙台湾と鹿島灘南部の表面水でのみ観測された。これは、この時期までに汚染水由来<sup>134</sup>Csを含む表面水の主要部分が200km圏外に移行したことを暗示している。講演では、鉛直積算量から推定される汚染水由来放射性セシウムの総量についても考察する。本研究は、JSPS 科研費 24110005 の助成を受けた。

キーワード: 福島第一原子力発電所事故, 放射性セシウム, 海域モニタリング

Keywords: accident of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plants, radiocesium, marine monitoring

## 最適内挿法による福島原発事故により放出された $^{134}\text{Cs}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の分布及びインベントリ見積もり Estimation of total released $^{134}\text{Cs}$ and $^{137}\text{Cs}$ derived from TEPCO-FNPP1 accident into the North Pacific Ocean by

猪股 弥生<sup>1\*</sup>; 青山 道夫<sup>2</sup>; 坪野 孝樹<sup>3</sup>; 津旨 大輔<sup>3</sup>; 廣瀬 勝己<sup>4</sup>

INOMATA, Yayoi<sup>1\*</sup>; AOYAMA, Michio<sup>2</sup>; TSUBONO, Takaki<sup>3</sup>; TSUMUNE, Daisuke<sup>3</sup>; HIROSE, Katsumi<sup>4</sup>

<sup>1</sup> アジア大気汚染研究センター, <sup>2</sup> 福島大学, <sup>3</sup> 電力中央研究所, <sup>4</sup> 上智大学

<sup>1</sup> Asia Center for Air Pollution Research, <sup>2</sup> Fukushima University, <sup>3</sup> Central Research Institute of Electric Power Industry, <sup>4</sup> Sophia University

福島第一原子力発電所 (TEPCO-FNPP1) から放出された人工放射性核種 ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $T_{1/2}$  2.06 年;  $^{137}\text{Cs}$ ,  $T_{1/2}$  30.07 年) の海洋表層における分布とその時間変化を、最適内挿法を用いて解析した。解析期間は、人工放射性核種漏洩直後の 2011 年 3 月から 2011 年 5 月までである。解析には、論文や報告書等において公表されているすべてのデータを使用した。

人工放射性核種の直接漏洩のあった 3 月下旬—4 月上旬にかけて、TEPCO-FNPP1 の沿岸域における  $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  濃度は非常に高い値であった。 $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  の高濃度域は、北緯 40 度付近を中心に、東経 165 度付近まで輸送されていく様子が明らかになった。

最適内挿法による解析値を用いて推定した北太平洋における  $^{134}\text{Cs}$  のインベントリは、 $15.2 \pm 1.8 \text{ PBq}$  と推定された。また、そのうち半分に相当する  $8.3 \pm 1.8 \text{ PBq}$  が、TEPCO-FNPP1 沿岸部 (<東経 141.5 度) に分布していた。海洋への  $^{137}\text{Cs}$  の直接漏洩量が  $3.5 \pm 0.7 \text{ PBq}$  (Tsumune et al., 2012) と報告されていることから、海洋への直接漏洩に加えて、大気から海洋への降水量が沿岸部のインベントリにも寄与しているものと考えられる。

大規模な直接漏洩が停止した 4 月 6 日以降、 $^{134}\text{Cs}$  放射能は約 4.2 日の見かけの半減時間で指数関数的に減少しており、2011 年 5 月中旬には約  $2 \pm 0.4 \text{ PBq}$  に減少していたことが推定された。

TEPCO-FNPP1 事故以前の北太平洋における  $^{137}\text{Cs}$  は、1950 年代—60 年代の大規模大気圏核実験由来のものであり、その存在量は  $69 \text{ PBq}$  であった。 $^{134}\text{Cs}$  はその半減期が短いことから大気圏核実験由来の存在量は極めて少ないものと考えられる。福島第一原子力発電所から大気及び海洋に放出された  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  比が約 1 であること、その値は事故後 1 カ月程度は海域による違いはみとめられなかったことから、TEPCO-FNPP1 からの  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の放出量はほぼ等しいと考えることができる。これらのことを考慮すると、TEPCO-FNPP1 事故によって、北太平洋の  $^{137}\text{Cs}$  のインベントリは、約 20 % 増加したものと推定された。

キーワード: 福島第一原子力発電所,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , 北太平洋, 最適内挿法, インベントリ

Keywords: TEPCO-FNPP1,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , North Pacific Ocean, Optimal Interpolation analysis, Inventory

## 河川由来懸濁態放射性核種の福島県沿岸域での分散について Modeling dispersal of land-derived suspended radionuclides in the Fukushima coast

山西 琢文<sup>1\*</sup>; 内山 雄介<sup>1</sup>; 恩田 裕一<sup>2</sup>; 津旨 大輔<sup>3</sup>; 三角 和弘<sup>3</sup>  
YAMANISHI, Takafumi<sup>1\*</sup>; UCHIYAMA, Yusuke<sup>1</sup>; ONDA, Yuichi<sup>2</sup>; TSUMUNE, Daisuke<sup>3</sup>; MISUMI, Kazuhiro<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 神戸大学, <sup>2</sup> 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター, <sup>3</sup> 電力中央研究所

<sup>1</sup>Kobe University, <sup>2</sup>University of Tsukuba, <sup>3</sup>Central Research Institute of Electric Power Industry

Several oceanic dispersal modeling have been conducted on dissolved radionuclides leaked at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FNPP). These models normally consider scenarios where the direct release of radionuclides from the FNPP and atmospheric deposition as the secondary source. In the present study, we view freshwater discharge from the rivers as a missing piece for the inventory of the radionuclides in the ocean. The land-derived input introduces a time lag behind the direct release through hydrological process because these radionuclides mostly attach to suspended particles (sediments) that are transported quite differently to the dissolved matter in the ocean. Therefore, we develop a sediment transport model consisting of a multi-class non-cohesive sediment transport model, a wave-enhanced bed boundary layer model and a stratigraphy model proposed by Blaas et al. (2007) incorporated into ROMS. A 128 x 256 km domain with the grid resolution of  $dx = 250$  m centered at the FNPP is configured as a test bed within the existing  $dx = 1$  km domain (Uchiyama et al., 2012, 2013). Three classes of sediments, viz., fine sand, silt and clay fractions, are considered here. The bed skin stress is evaluated by a combined wave-current stress model of Soulsby (1995) with the wave field computed with a SWAN spectral wave model at  $dx = 1$  km embedded in the JMA GVP-CWM wave reanalysis. A total of 20 rivers inclusive of the 6 major rivers located in the domain are considered as point sources of the sediments. The daily-averaged freshwater discharges from the 20 rivers are evaluated with a surface runoff model HYDREEMS (Toyoda et al., 2009). Sediment volume fluxes from the rivers are then calculated with an empirical  $L^2-Q^2$  (discharge to sediment flux) relation proposed by Takekawa et al. (2013). Fraction of three sediment classes in the riverine discharge is determined empirically based on the outcome of a USLE-based river sediment modeling conducted by JAEA.

The developed model successfully reproduces the dispersal of the land-derived sediments and their recirculation processes associated with resuspension and deposition in the Fukushima coast for 4 months after the accident. The discharged sediments can be transported about 50 km from the shore with prominent patchiness of deposition and erosion near the mouth of each river. For instance, the offshore region of the mouth of the Niida River is evaluated to be erosion dominated, consistently with the measurement. Misumi et al. (2014) estimate suspended  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the bed with considering static adsorption and desorption of  $^{137}\text{Cs}$  between the seawater and the bed sediments based on the dissolved  $^{137}\text{Cs}$  model result of Tsumune et al. (2012). The inferred bed  $^{137}\text{Cs}$  agrees well with the observation in the shallow area, whereas substantially underestimated in the offshore area at depth deeper than 200 m. They attribute the reason of the underestimate to the  $^{137}\text{Cs}$  due to sediment transport that is omitted in their model. We carefully diagnose our model results and find that although the clay-class sediments reach the deeper area, the time-integrated deposition is merely about 0.002 kg/m<sup>2</sup> that is considered to be a minor fraction. Therefore, it is suggested that detritus and debris of organic matters rather than land-derived minerals likely cause the offshore  $^{137}\text{Cs}$  deposition. We further examine nearshore dispersal patterns and quantify the inventory of  $^{137}\text{Cs}$  attached to the sediments originated from the land by applying the empirical power law for  $^{137}\text{Cs}$  concentration as a function of specific surface area of the suspended particles proposed by Onda et al. (2014).

キーワード: 粒径別土砂輸送モデル, 放射性セシウム 137, 多段ネスティング, ROMS

Keywords: multi-class sediment transport model, radioactive cesium 137, multiple nesting approach, ROMS (Regional Oceanic Modeling System)

福島第一原発事故により放出された $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の北太平洋における表層輸送経路および鉛直分布  
 $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the North Pacific Ocean derived from the TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

青山 道夫<sup>1\*</sup>; 浜島 靖典<sup>2</sup>; Hult Mikael<sup>3</sup>; 植松 光夫<sup>4</sup>; 岡 英太郎<sup>4</sup>; 津旨 大輔<sup>5</sup>; 熊本 雄一郎<sup>6</sup>  
AOYAMA, Michio<sup>1\*</sup>; HAMAJIMA, Yasunori<sup>2</sup>; HULT, Mikael<sup>3</sup>; UEMATSU, Mitsuo<sup>4</sup>; OKA, Eitarou<sup>4</sup>;  
TSUMUNE, Daisuke<sup>5</sup>; KUMAMOTO, Yuichiro<sup>6</sup>

<sup>1</sup> 福島大学環境放射能研究所, <sup>2</sup> 金沢大学低レベル放射能実験施設, <sup>3</sup> European Commission, Joint Research Centre, Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM), <sup>4</sup> 東京大学大気海洋研究所, <sup>5</sup> 電力中央研究所, <sup>6</sup> 海洋研究開発機構  
<sup>1</sup>Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University, <sup>2</sup>Low Level Radioactivity Laboratory, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa Univ, <sup>3</sup>European Commission, Joint Research Centre, Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM), <sup>4</sup>Center for International Collaboration, Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of T, <sup>5</sup>Environmental Science Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry, <sup>6</sup>Research Institute for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

We collected 2 - 10 litre surface seawater samples at more than 300 stations and water column samples were also collected at 24 stations.

The measured  $^{137}\text{Cs}$  concentration in a seawater sample at north 5 and 6 canal of the FNPP1 site reached 68 MBq m<sup>-3</sup> on 6 April. It decreased to 1000 ? 10000 Bq m<sup>-3</sup> during the period from August 2011 to July 2012 which means that direct discharge rate became very small, about ca. 100 GBq day<sup>-1</sup>. After July 2012, the activities of  $^{137}\text{Cs}$  in surface water at near FNPP1 site were still kept around 1000 Bq m<sup>-3</sup> which corresponds about 10 GBq day<sup>-1</sup>.

After the FNPP1 accident, both  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  are observed in a wide area in the North Pacific Ocean and  $^{134}\text{Cs}$  activity and  $^{137}\text{Cs}$  activity ranged from 1000 +/- 71 to less than 0.4 Bq m<sup>-3</sup> and from 1080 +/- 60 to 1.2 +/- 0.2 Bq m<sup>-3</sup>, respectively. A zonal speed of FNPP1 derived radiocaesium in surface water at mid latitude in the North Pacific Ocean was 7 km day<sup>-1</sup>, 8 cm s<sup>-1</sup>, until March 2012 just after one year the accident (Aoyama et al., 2014). It after March 2012 till August 2014 was also estimated to be ca. 3 km day<sup>-1</sup>, 3.5 cm s<sup>-1</sup> which showed apparent decrease of zonal speed. In 2013 and 2014, a maximum of Fukushima origin  $^{137}\text{Cs}$  activity in surface water was already close to pre-Fukushima level and observed at the eastern part of the North Pacific Ocean.

Until the end of 2011, a main body of Fukushima derived radiocaesium were existed at surface mixing layer, however, after winter cooling occurred subsurface maximum of Fukushima derived  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  due to subduction were observed at about 300 to 400 meters at 35 deg. N to 40 deg. N along 165 deg. E due to subduction. Southward transport due to subduction was also observed at 24 deg. N, 165 deg. E, too.



## 福島県及びその近隣県沖海域の堆積物における福島起源 Cs-137 の変遷 Temporal change of Fukushima-derived Cs-137 in the sediments in the waters off Fukushima and nearby Prefectures

日下部 正志<sup>1\*</sup>; 高田 兵衛<sup>1</sup>; 稲富 直彦<sup>1</sup>; 長谷川 一幸<sup>1</sup>; 磯野 良介<sup>1</sup>

KUSAKABE, Masashi<sup>1\*</sup>; TAKATA, Hyoe<sup>1</sup>; INATOMI, Naohiko<sup>1</sup>; HASEGAWA, Kazuyuki<sup>1</sup>; ISONO, Ryosuke<sup>1</sup>

<sup>1</sup> (公財) 海洋生物環境研究所 中央研究所

<sup>1</sup> Marine Ecology Research Institute

福島第一原子力発電所事故により海洋にもたらされた <sup>137</sup>Cs は、その大部分は海流と共に希釈されながら外洋に運ばれ、当初、原発より 30 km 圏外でも 200Bq/L 近くまでその濃度は上昇したが、以後は指数関数的に低下した。しかし、海底に堆積した <sup>137</sup>Cs は、海水ほどの減少を見せず、その分布パターン及び経年変化は福島原発事故の環境影響を定量的に把握するために系統的に調査・研究を継続する必要がある。同時に、海洋環境の回復予測には、その時系列変化の機構解明が重要になる。海洋生物環境研究所は事故直後より、文部科学省（現在は原子力規制庁）の委託事業の一環として、福島県沖及び近隣海域において放射能のモニタリングを行ってきた。本発表では、海底堆積物に関わるモニタリング結果をもとに、福島原発事故由来の <sup>137</sup>Cs の分布の現状とその経年変化、更にそれらを規定している要因を紹介する。

観測：宮城県から千葉県沖の海域にかけて、2011 年 5 月から 7 月までは 12 点で 6 回の試料を採取し、以後観測点を増やし現在は年 4 回 32 点で調査を行っている。堆積物試料はマルチプルコアラーを用いて採取し、その表層 3 cm の <sup>137</sup>Cs を測定した。一部の観測点では、<sup>137</sup>Cs の鉛直分布も測った。更に、堆積物の粒度組成、有機物含量、元素組成等の関連するパラメータも測定した。

結果：表層堆積物中の <sup>137</sup>Cs 濃度は全てすでに原子力規制庁のウェブサイトから公表されている。また、2011 年度の <sup>137</sup>Cs データ及び付随するデータは論文 (Kusakabe et al., 2013) として公表されている。

上記観測期間で観測された濃度は地理的及び時系列的の変動は大きく、0.8-540 Bq/kg の範囲に広がっている。これらは、ほぼ全ての観測点で事故前 5 年間の福島沖海域の平均 (0.87 +/- 0.41 Bq/kg) を超えている。基本的に、高濃度の観測点は原発に近いところもあるが、必ずしも原発からの距離が濃度と一対一で対応しているわけではない。

時系列な変化は海水のような劇的な変化は認められなく、各々の観測点では時系列変化もその変動が激しく全体的な傾向は掴みにくい。しかし、2011 年 9 月からの 2014 年 11 月まで各観測における濃度の幾何平均を計算すると、47 Bq/kg から 17 Bq/kg まで指数関数的に減少していることがわかる。それに呼応して、表層 3 cm の存在量 (Bq/cm<sup>2</sup>) も同じ割合で減少している。

水平的な変動及び時系列減少傾向は多くの要因に関与していると考えられる。水平的には、堆積物の多様な粒子組成や元素組成、陸からの供給量の違い、事故直後の汚染された海水の移動経路等、様々な要因が関与しているであろう。時系列的には、堆積物からの Cs の脱着、海底堆積物の再懸濁とその水平移動、底生動物による海底堆積物の鉛直混合等が挙げられる。鉛直分布のデータ数は限られているものの、下層での顕著な濃度上昇は見つかっていないことから、海底堆積物の鉛直混合はあまり重要ではない可能性がある。

発表では、時空間的な変動の詳細とそれに関わる要因について、関連する種々のパラメータとともに紹介する。

<謝辞>

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁の委託業務の成果の一部である。

キーワード: 福島原発事故, Cs-137, 海底堆積物

Keywords: Fukushima nuclear power plant accident, Cs-137, bottom sediment

## 福島県及びその近隣県沖海域の動物プランクトン群集に含まれる<sup>137</sup>Csの時系列変化とその主要因 Temporal variation of <sup>137</sup>Cs in zooplankton and its primary factor in the waters off Fukushima and nearby prefectures

池上 隆仁<sup>1\*</sup>; 高田 兵衛<sup>1</sup>; 長谷川 一幸<sup>1</sup>; 工藤 なつみ<sup>1</sup>; 磯野 良介<sup>1</sup>; 日下部 正志<sup>1</sup>  
IKENOUE, Takahito<sup>1\*</sup>; TAKATA, Hyoe<sup>1</sup>; HASEGAWA, Kazuyuki<sup>1</sup>; KUDO, Natsumi<sup>1</sup>; ISONO, Ryosuke<sup>1</sup>; KUSAKABE, Masashi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> (公財) 海洋生物環境研究所  
<sup>1</sup>Marine Ecology Research Institute

福島第一原発の事故に際し、多量の人工放射性核種が周辺環境にもたらされた。セシウム (Cs) は生物にとって必須元素であるカリウムと似た化学的性質を有し、生物に取り込まれやすい元素である。放射性セシウムの半減期は<sup>134</sup>Csが約2年、<sup>137</sup>Csが約30年である。<sup>137</sup>Csは<sup>134</sup>Csに比べ半減期が長いので、<sup>137</sup>Csによる汚染状況を継続的にモニタリングすることが欠かせない。

動物プランクトンは二次生産者として食物連鎖の中間に位置し、海洋物質循環において重要な役割を果たしている。そのため、動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Csと海水、海底堆積物、懸濁粒子といった動物プランクトンを含む周囲の環境の<sup>137</sup>Csの挙動を明らかにする必要がある。

観測：本研究では、宮城県沖から茨城県沖にかけての7~8観測点において2012年5月から2014年1月までの期間に採集した動物プランクトンについて、<sup>137</sup>Csの測定と顕微鏡観察による群集組成の算出を行った。試料の採集は、表層0-80mの水平曳きにより行い、同時に海水及び海底堆積物試料の採取を行った。

結果：動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Cs濃度 (Bq/kg-dry) は、2012年5月から2014年1月までの期間に0.26-184 (Bq/kg-dry) の範囲で変化した。濃度が高い時期は観測点により異なる。2014年1月の濃度は6.59-40.3 (Bq/kg-dry) の範囲で、事故前に東北地方沿岸で報告された濃度 (0.09-0.4 Bq/kg-dry, Kaeriyama et al., 2008) より依然として1-2桁高い。群集組成は、概して顎脚綱が高い割合を占めたが、各分類群の割合は季節及び観測点により変動した。そこで、生息環境が動物プランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度に及ぼす影響と動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Cs濃度が観測点によりばらついた原因について考察を行った。

動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Csは、生息環境の海水、海底堆積物、懸濁粒子、餌に含まれる<sup>137</sup>Csが起源であると考えられる。海底堆積物中の<sup>137</sup>Cs濃度は海水ほどの時系列的な濃度減少は見られないため、再懸濁等により動物プランクトンへの取り込みの可能性がある。動物プランクトンに含まれるアルミニウムを海底堆積物由来と仮定した場合、動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Cs濃度に対する海底堆積物の寄与率は10%と見積もられた。また、海水中の動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Csの濃度 ( $\mu$  Bq/m<sup>3</sup>) は、海水中の<sup>137</sup>Cs濃度、動物プランクトンのバイオマス (mg-dry/m<sup>3</sup>) のいずれとも相関が見られなかった。一方、動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Cs濃度の増加時期は尾虫綱と硬骨魚綱 (主に魚卵) の増加時期、および試料中に植物プランクトンが多く混在した時期と概ね一致した。これらの結果から、動物プランクトンに含まれる<sup>137</sup>Cs濃度の変化は、生息環境における<sup>137</sup>Cs濃度や動物プランクトンの重量よりも群集組成の違いに起因している可能性が示唆された。

### <謝辞>

本成果は、原子力規制委員会原子力規制庁の委託業務の成果の一部である。

### 引用

Kaeriyama, H., Watabe, T., and Kusakabe, M. (2008). <sup>137</sup>Cs concentration in zooplankton and its relation to taxonomic composition in the western North Pacific Ocean. *Journal of environmental radioactivity*, 99(12), 1838-1845.

キーワード: 福島原発事故, <sup>137</sup>Cs, 動物プランクトン, 群集組成

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, <sup>137</sup>Cs, Zooplankton, community composition

## 富士山山頂における Ge 半導体検出器を用いた福島原発起源の放射線核種について Revisiting research on the vertical transport of radioactive nuclide from Fukushima Nuclear Accident

鴨川 仁<sup>1\*</sup>; 齋藤 将監<sup>1</sup>; 鈴木 裕子<sup>1</sup>  
KAMOGAWA, Masashi<sup>1\*</sup>; SAITO, Shogen<sup>1</sup>; SUZUKI, Yuko<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 東京学芸大学教育学部物理学科

<sup>1</sup>Dpt. of Phys., Tokyo Gakugei Univ.

2011年3月の福島第一原発事故による放射能物質の飛来の研究には、シミュレーションとの比較のため、高度方向のデータが貴重と考えられる。そのため、測候所の複数グループによる放射線の研究がなされ、山頂の福島原発事故由来の放射性物質の存在は検知できる範囲以下であると結論づけた。複数の手法によって行われた前測定では、Cs134は検知限界以下であったが、サンプル量や検出時間が短かった可能性があるため、検知されなかったことも考えられる。このことを再検討するために2014年度はより高精度に放射性物質起源の弁別が可能となるゲルマニウム半導体検出器を山頂に設置した。その結果、富士山山頂で観測された放射線測定データを1か月積算することで、極めて微量のCs134のガンマ線を検知することができた。

キーワード: 福島原発事故, 放射性物質, ゲルマニウム検出器

Keywords: Fukushima Daiichi nuclear disaster, Radioactive material, Germanium detector

## 移流拡散による土壤中放射性核種の下方浸透のモデル化と濃度予測 Modeling of downward percolation and prediction of concentration of the radionuclide in soil by ADE

岡 宏樹<sup>1\*</sup>; 羽田野 祐子<sup>1</sup>; 山本 昌宏<sup>2</sup>  
OKA, Hiroki<sup>1\*</sup>; HATANO, Yuko<sup>1</sup>; YAMAMOTO, Masahiro<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学大学院システム情報工学研究科, <sup>2</sup> 東京大学大学院数理科学研究科

<sup>1</sup>Faculty of Systems and Information Engineering, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Graduate School of Mathematical Sciences, the University of Tokyo

2011年3月11日に福島第一原子力発電所において発生した事故により、周辺環境が放射性物質により汚染される被害が発生した。地表面へ付着したCs-137は土壤中に潜り込み下方へ浸透していく。原子力事故由来の放射性核種の地中移行は研究され続けており、代表的なモデルとして Walling and He らによって移流拡散方程式 (ADE) が提案されている。このモデルは他のモデルに比べ単純だということもあり現在最も用いられている一方で、土壌といった多孔質媒体中の移行モデルは移流拡散方程式だけでは表現しきれないという事例の報告もある。これは各土地の土壌特性の違いが放射性核種の下方浸透に影響を及ぼしていることが原因だと考えられるが、このような様々な環境要因の複雑なプロセスを全て考慮してモデル化を行うことは非常に労力を要する。そこで本研究ではそのようなモデルとは異なる立場に立ち、最も用いられている Walling and He らの移流拡散モデル (以降、ADE モデル) の改善を行うことによって、より汎用性の高いモデルを提案する。

この ADE モデルは境界条件に Robin 境界条件を用いており、ディリクレやノイマンといった境界条件に比べより一般的な解析解を導出している。Robin 境界条件とは境界面での放射性核種の流入出は起こらないとしたものである。この ADE モデルは濃度の総量を一定に保ちながら下方浸透していくモデルである。しかしながら、実際現象で地表面での流入出が全く起こらないというのは考えがたい。ゆえに本研究ではこの Robin 境界条件に着目し、ADE モデルの改善を行う。支配方程式に移流拡散方程式を設定し解析解を導出するが、このとき境界条件に一般化した Robin 境界条件を用いる。これにより上記の ADE モデルに加え、地表面での流入出も考慮している移流拡散モデル (新 ADE モデル) を導出する。この新 ADE モデルの妥当性を検証するために福島県土壤中の放射性セシウム濃度データとのフィッティングも行うが、モデルはデータを良く追従する。ゆえに提案した新 ADE モデルは、地表面での流入出も含む土壤中放射性核種の下方浸透モデルとして確立できる。

キーワード: 移流拡散方程式, 土壤中下方浸透, 福島第一原発事故, 放射性セシウム

Keywords: Advection Diffusion Equation, Downward percolation in soil, The accident at the Fukushima First Nuclear Power Plant, Radioactive Cesium



## 空間線量率の変動と気象条件の相関に関する研究 Correlation-research about fluctuations of the air dose rate and weather conditions

古谷 真人<sup>1\*</sup>; 羽田野 祐子<sup>1</sup>; 青山 智夫<sup>2</sup>; 北 和之<sup>3</sup>; 五十嵐 康人<sup>4</sup>  
FURUYA, Masato<sup>1\*</sup>; HATANO, Yuko<sup>1</sup>; AOYAMA, Tomoo<sup>2</sup>; KITA, Kazuyuki<sup>3</sup>; IGARASHI, Yasuhito<sup>4</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学システム情報工学研究科リスク工学専攻, <sup>2</sup> 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター, <sup>3</sup> 茨城大学, <sup>4</sup> 気象研究所

<sup>1</sup>Faculty of Systems and Information Engineering, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, <sup>3</sup>Ibaraki University, <sup>4</sup>Meteorological Research Institute

2011年3月11日に太平洋三陸沖を震源とするマグニチュード9.0の東北地方太平洋沖地震が発生した。その地震と津波により福島第一原子力発電所でメルトダウンする事故が発生、周辺環境が放射性物質に汚染された。国際原子力事象評価尺度はレベル7(深刻な事故)とされている。同レベルの事故は1986年4月26日にウクライナで起きたチェルノブイリ原子力発電所事故以来2例目となる。この事故により放出された放射性物質であるCs-134, Cs-137は空間の単位時間あたりの放射線量を示す空間線量率を大きく上昇させ、福島第一原子力発電所周辺に居住していた多くの人々がその場所に住むことができなくなった。福島第一原子力発電所周辺地域では未だに除染作業が始まっていない土地が多く、多くの人たちが居住地を追われた。

大気中に放出された放射性物質は大気乱流に乗り移流し、地表面に付着する。付着した汚染物質は土などに吸着し、大気乱流により再浮遊した移流する。そして他の地点に付着し、また大気乱流により再浮遊というプロセスを繰り返す。このようなプロセスには気象条件が深く影響しており、その気象条件を考慮した新たな空間線量率の減衰を示す予測のモデルが必要である。

本研究では、放射性崩壊を考慮した場合の空間線量率の変動と気象条件との相関について言及する。スペクトル解析により得た周期性を考慮して空間線量率の変動と各種気象条件との相関係数を求めた。その結果、放射性崩壊を考慮した場合の空間線量率の変動と土壌水分量には強い負の相関があることが明らかになった。この結果は被曝リスクを評価する新しい方法を作るきっかけになり得る。

## 噴霧乾燥法による放射性エアロゾル発生システムの開発 Development of the radio-aerosol generation system using spray drying method

張子見<sup>1\*</sup>; 二宮和彦<sup>1</sup>; 篠原厚<sup>1</sup>  
ZHANG, Zi jian<sup>1\*</sup>; NINOMIYA, Kazuhiko<sup>1</sup>; SHINOHARA, Atsushi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 大阪大学大学院 理学研究科, <sup>2</sup> 大阪大学大学院 理学研究科, <sup>3</sup> 大阪大学大学院 理学研究科  
<sup>1</sup>Graduate School of Science, Osaka University, <sup>2</sup>Graduate School of Science, Osaka University, <sup>3</sup>Graduate School of Science, Osaka University

福島第一原子力発電所の事故により大気中に大量の放射性物質が環境中に放出された。気体の化合物以外の放射性物質は主にエアロゾルの組成で大気中を輸送され環境中に沈着した。その中で植生（森林や農作物）への沈着に着目した場合、放射性物質はエアロゾルが直接植生に衝突して沈着する乾性沈着と、雲のなかで雨滴に取り込まれ、溶液として沈着する湿性沈着の二つの沈着挙動を取る。このたびの事故において、特に放射能濃度が高い原発近辺の森では乾性沈着プロセスがメインであると考えられる。植生への放射性物質の乾性沈着において、葉から元素が吸収される葉面吸収と呼ばれる現象が起きたと考えられる。葉面吸収プロセスは一般的によく調べられている経根吸収よりも、吸収速度が速いと言われており、事故初期の放射性物質の植生への沈着量を評価する際には大きな影響を及ぼす。放射性物質の農作物への初期沈着量はその後の人体への内部吸収を評価するうえで、森林に関しては長期間にわたる森林内での放射性物質の循環をモデリングするうえで重要である。

これまで、放射性物質（特にCs）の葉面吸収に関しては、安定同位体Csを含んだ溶液を葉の表面に液滴として添加する方法で調べられている。植物の成長段階、溶液を添加後に洗い流すまでの時間、溶液の化学組成などの変化させることで、葉面吸収について多くのことが分かってきている。化学組成に着目した場合、例えば Dong らの研究ではCs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>の化学組成で葉面に添加した場合、CsNO<sub>3</sub> や Cs<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> の2~5倍ほど吸収されることがわかっている [1]。しかしいずれの実験も、微小固体塩であるエアロゾルが直接衝突して沈着する乾性沈着挙動を再現するものではなく、また放射性元素のような微量の物質の挙動への適用において疑問が残る。それらに対して、放射性物質を加熱して発生させた酸化物エアロゾルを葉面に吸着させ、沈着挙動を調べた Madoz-Escande らの実験がある [2]。しかし、今回の事故においてCsは大気中を硫酸エアロゾルの組成で輸送されたことが示唆されており [3]、Csの化学組成によって葉面吸着挙動が変化する可能性があることから、Madoz-Escande らの実験データを用いて今回の事故における乾性吸着挙動を直接に評価することは難しい。初期沈着量を正確に計算するためにも、事故時の状況を再現した実験系で、エアロゾルに含まれる放射性物質の沈着速度や吸収速度を得る必要がある。

本研究は、福島第一原子力発電所の事故により放出され、硫酸エアロゾルとして大気中を輸送されたCsの、植生への乾性吸着挙動を観察することを目的としている。そのために、放射性Csが含まれた硫酸エアロゾルを人工的に発生させ、コントロールされた環境下で植物の葉面に直接沈着させる実験系の構築が必要となる。放射性Csを用いることで、植物体に取り込まれてからも非破壊で定量することができ、植物体中へのCsの移行を巨視的に観測できる。本研究では放射性Csエアロゾルの発生システムの開発の基礎研究を行った。具体的な放射性エアロゾルの発生方法は噴霧乾燥法と呼ばれる方法を取り、放射性物質を添加した溶液をシリンジポンプにより送液し、流量をコントロールした乾燥空気に乗せて、ノズルを経由することで微細な噴霧として放出する。加熱されたチャンバー内に噴霧を噴出することで、噴霧発生後すぐに水分が蒸発し、溶液内の塩成分の化学組成をとる微小固体塩エアロゾルが得られる。発表では、作成したチャンバーの条件、生成される噴霧の形状、得られるエアロゾルの収率や粒径について報告し議論する。

[1] D. Yan, et al., Journal of Environmental Radioactivity, 126 pp232-238, (2013)

[2] C. Madoz-Escande, et al., Journal of Environmental Radioactivity, 73 pp49-71, (2004)

[3] N. Kaneyasu, et al., Environmental Science & Technology, 2012, 46 (11), pp 5720-5726

キーワード: 放射性エアロゾル, セシウム, 葉面吸収, 噴霧乾燥法  
Keywords: radio-aerosol, cesium, foliar uptake, spray drying method

## 榛名山における放射性ストロンチウムとセシウムの降下量 Atmospheric Radio-Sr and -Cs Depositions at Mt. Haruna

五十嵐 康人<sup>1\*</sup>; 財前 祐二<sup>1</sup>; 足立 光司<sup>1</sup>; 梶野 瑞王<sup>1</sup>  
IGARASHI, Yasuhito<sup>1\*</sup>; ZAIZEN, Yuji<sup>1</sup>; ADACHI, Kouji<sup>1</sup>; KAJINO, Mizuo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 気象研究所 環境・応用気象研究部

<sup>1</sup> Atmospheric Environment and Applied Meteorology Res. Dpt., Meteorological Research Institute

著者らは、関東地方の北西の角に位置する孤立峰の頂上近傍において、大気降下物を捕集し、そこに含まれる放射性核種の<sup>90</sup>Srや放射性Csの量を定量し、大気降下量の観測を実施してきた。当初この観測は、平地のつくばにおける降下量観測との比較を念頭において、自由大気中を輸送される風送ダストを主体に捕集するため、山岳地点を選んで開始されたものである。しかしながら、図らずも福島第一原発事故による大気環境の汚染状況についても比較可能なデータが得られている。

榛名山(群馬県高崎市, 36° 28'N, 138°52'E, 標高1370 m)において、<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの降下量観測を行った。試料採取は2006年末に開始し、4平米の水盤を用いた。福島第一原発事故後には1平米の水盤を用いている。全試料を2mm次いで100μmメッシュの篩でろ過し夾雑物と大粒径の粒子を除き、濃縮処理をした。乾固した試料をGe半導体検出器によるγ線測定に供し、放射性Csを測定した。その後の放射化学分離によって得た炭酸ストロンチウム沈澱を<sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Yを放射平衡としてから2πガスフローβ線検出器により測定した。それぞれの分析工程は、気象研究所で調整した降下物標準試料により品質管理した。<sup>90</sup>Srの分析工程中に分取した画分をICP-AES等の装置で分析し、安定元素の分析値を得た。各分析値および降下物乾燥重量を元に、降下量を算定した。

<sup>137</sup>Cs月間降下量は、事故が発生した2011年3月に14±0.5 kBq/m<sup>2</sup>で震災前の水準よりも5ないし6桁大きい。しかし、つくばと比較すると約6割の降下量であった。2011年全体では、<sup>137</sup>Cs降下量は18.8 kBq/m<sup>2</sup>であり、やはりつくばの降下量の約7割であった。福島事故では<sup>134</sup>Csがほぼ同量降下しているため、両核種併せておおよそ40 kBq/m<sup>2</sup>の地表面汚染となり、つくばよりも相対的に軽度な汚染しか受けなかったことが分かった。榛名山は、群馬県北部のいわゆるホットスポットにかかる領域に位置し、文部科学省による航空機マッピングによる榛名湖周辺では60-100 kBq/m<sup>2</sup>も観測されているが、試料採取地点は榛名湖よりも高高度のため、事故当時に湿性沈着をもたらした雲層による汚染を免れたのかもしれない。他方、2011年3月の<sup>90</sup>Sr降下量は3.11±0.03 Bq/m<sup>2</sup>であり、<sup>137</sup>Cs降下量の約1/4500だった。この<sup>90</sup>Sr降下量もつくばにおける値の約6割であった。つくば同様に、榛名山においても<sup>90</sup>Srの降下量は放射性Csに比べ小さく、関東地方における<sup>90</sup>Srによる環境への影響は放射性Csほど大きくなかったことが結論できた。

キーワード: 福島第一原発事故, 放射性降下物, ストロンチウム, セシウム, 再浮遊

Keywords: the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Radioactive deposition, Strontium, Cesium, Resuspension

## 福島県いわき市ため池における放射性セシウム汚染土壌の堆積過程 Sedimentation processes of radioactive Cs contaminated soil in storage reservoirs in Iwaki, Fukushima prefecture

青井 裕介<sup>1</sup>; 福土 圭介<sup>1\*</sup>; 富原 聖一<sup>2</sup>; 吉田 光輔<sup>2</sup>; 糸野 妙子<sup>1</sup>; 柏谷 健二<sup>1</sup>; 長尾 誠也<sup>1</sup>  
AOI, Yusuke<sup>1</sup>; FUKUSHI, Keisuke<sup>1\*</sup>; TOMIHARA, Seiichi<sup>2</sup>; YOSHIDA, Kosuke<sup>2</sup>; ITONO, Taeko<sup>1</sup>;  
KASHIWAYA, Kenji<sup>1</sup>; NAGAO, Seiya<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 金沢大学, <sup>2</sup> 公益財団法人ふくしま海洋科学館

<sup>1</sup>Kanazawa University, <sup>2</sup>Environmental Aquarium Aquamarine Fukushima

The Great East Japan Earthquake (M 9.0) and subsequent tsunami, which occurred along the eastern coast of Japan on March 11, 2011, caused the accident in Fukushima Daiichi nuclear power plant. As a result, large amount of radionuclides were released from the nuclear power plant and caused radioactive contamination in forest, soil and reservoir. It is recognized that the cause of the contamination is mainly due to the radioactive cesium (Cs), because of the relatively long half-lives and the released amounts

The attenuation of the actual radiation dose in the evacuation-directed zones in Fukushima prefecture has been greater than that predicted from physical half-lives of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs (Nuclear Regulation Authority, Japan (NRA), 2013). The radiation dose in Fukushima is related to the abundance of radioactive Cs accumulation per unit area (radioactive Cs inventory). Therefore, the attenuation of the radioactive dose were most likely attributable to (1) desorption of radioactive Cs from soils to natural water and the subsequent diffusion and/or (2) erosion and transport of the contaminated soils to downstream. The distribution coefficients (Kd) determined from <sup>137</sup>Cs concentrations of suspended particles and the solutions in some rivers in the affected area has been reported to be 105-106 (mL/g), which indicates that radioactive Cs was hardly desorbed to the solution (Sakaguchi et al. 2015; Nagao et al. 2013). Consequently, the former scenario is more plausible to explain the monitoring results.

It has been documented that the transports of the soil particles with radioactive Cs were accompanied with the natural water current. Then, it is expected that radioactive Cs tend to accumulate in the places where the retentions of water current occur. In terrestrial environment, one of such places is strange reservoir. Aoi et al. (2014) suggested that radioactive Cs in the catchment area had been eroded and continuously deposited in the storage reservoir. Their study suggested that the reservoirs possibly play role of a sink for radioactive Cs.

Fukushima Prefecture Government (2013) investigated the <sup>134</sup>+<sup>137</sup>Cs concentrations of the bottom sediment of 1640 reservoir in Fukushima Prefecture. The results <sup>134</sup>+<sup>137</sup>Cs concentrations was weakly correlated with the air dose rate. On the other hand, even the space dose rate is the same in each district, the cesium concentrations of sediment varied 3-4 orders, which indicates that the functions of the storage reservoir as sinks for are depending on not only ambient air doses but also the sedimentation processes in each catchment of the reservoir.

The continuous observations of the deposition of radioactive Cs into the reservoir is essential to understand the storage function of radioactive Cs in reservoirs for the future use of the storage reservoir and for the prediction of the migration of radioactive Cs in the local terrestrial environment. The aim of the study is characterize the sedimentation processes of contaminated soils contaminated by radioactive Cs by means the sediment traps in two reservoirs in Iwaki City, Fukushima prefecture.



## 福島県松川浦における放射性セシウムの堆積状況及び移行過程の詳細解明 Behavior and migration of radiocesium in brackish water: A case study of the Matsukawa-ura lagoon, Fukushima, Japan

神林 翔太<sup>1\*</sup>; 張 勁<sup>1</sup>; 廣上 清一<sup>2</sup>; 成田 尚史<sup>2</sup>; 柴沼 成一郎<sup>4</sup>; 相馬双葉漁業協同組合 松川浦支部一同<sup>5</sup>  
KAMBAYASHI, Shota<sup>1\*</sup>; ZHANG, Jing<sup>1</sup>; HIROKAMI, Kiyokazu<sup>2</sup>; NARITA, Hisashi<sup>2</sup>; SHIBANUMA, Seiichiro<sup>4</sup>;  
SOMA FUTABA FISHERIES COOPERATION, Matsukawa-ura branch members<sup>5</sup>

<sup>1</sup> 富山大院理工, <sup>2</sup> 富山大 RI 施設, <sup>3</sup> 東海大海洋, <sup>4</sup> シーベック, <sup>5</sup> 相馬双葉漁業協同組合

<sup>1</sup>Graduate school of Sci. and Eng. Univ. of Toyama, <sup>2</sup>Lab. of Radioisotope, Univ. of Toyama, <sup>3</sup>School of Marine Sci. and Tech. Tokai Univ., <sup>4</sup>C-bec, <sup>5</sup>Soma Futaba Fisheries Cooperation Matsukawa-ura branch members

東京電力福島第一原子力発電所事故により多くの放射性核種が環境中へ飛散した。陸上に堆積している放射性セシウム(以下, Cs とする)は河川を通じ最終的に海洋へ移行すると考えられる。本研究では, 幅広い塩分勾配をもつ海跡湖「松川浦」とその流入河川を河川-沿岸域のモデル域として, Cs 分布状況及び移行過程を明らかにすることを目的とした。試料採取は2013年9月から継続的に行っている。また, 2013年11月26日から12月19日にかけて松川浦内9地点にセジメントトラップを設置し, 沈降粒子を捕集した。採取した堆積物・沈降粒子は乾燥させた後, Ge 半導体検出器を用いて測定を行った。水試料はろ過を行い, 懸濁物は粒子態として, ろ液はリンモリブデン酸アンモニウム法によって回収した後, 溶存態として測定を行った。松川浦のCs-137濃度の水平分布は時空間的に不規則かつ大きく変動していたことから, 面積を加味したCs-137濃度の加重平均値の時系列をプロットした結果, 堆積物のCs-137の実効半減期は物理的半減期よりも速く, 何らかの自然浄化機能が働いていることが推測された。一方, 沈降粒子の全粒子束及びCs-137粒子束は, 湾奥に比べ湾口部で大きいことから, 湖内で再懸濁した粒子が潮汐により湾外へ輸送されていると考えられ, 粒子の再懸濁と湾外への輸送は松川浦のCsの自然浄化機能の重要な要素であることが推測された。また, 水中における粒子態Cs-137は河川, 溶存態Cs-137は汽水域で高濃度であり, 溶存態存在比が汽水域で増加することから, 溶存態としての流出も重要であることが分かった。更に, 汽水域における溶存態Cs-137濃度は, 河川と外海水の混合線の上部にプロットされることから, 汽水域で粒子から溶脱していることが示唆された。松川浦のCsの自然浄化機能には, Csの溶脱した湖水と外海との海水交換も寄与していることが推測された。

キーワード: 放射性セシウム, 汽水域

Keywords: Radiocesium, Blackish water

## 福島県内の堆積物中から分離された原発事故由来の強放射性粒子の放射光 X 線分析 Multiple synchrotron radiation X-ray analyses of radioactive microparticles emitted from the Fukushima Nuclear Accident

小野 貴大<sup>1\*</sup>; 飯澤 勇信<sup>1</sup>; 阿部 善也<sup>1</sup>; 中井 泉<sup>1</sup>; 寺田 靖子<sup>2</sup>; 佐藤 志彦<sup>3</sup>; 二宮 和彦<sup>4</sup>; 足立 光司<sup>5</sup>; 五十嵐 康人<sup>5</sup>

ONO, Takahiro<sup>1\*</sup>; IIZAWA, Yushin<sup>1</sup>; ABE, Yoshinari<sup>1</sup>; NAKAI, Izumi<sup>1</sup>; TERADA, Yasuko<sup>2</sup>; SATO, Yukihiko<sup>3</sup>; NINOMIYA, Kazuhiko<sup>4</sup>; ADACHI, Kouji<sup>5</sup>; IGARASHI, Yasuhito<sup>5</sup>

<sup>1</sup> 東京理科大学理学部, <sup>2</sup> 高輝度光科学研究センター, <sup>3</sup> 筑波大学, <sup>4</sup> 大阪大学, <sup>5</sup> 気象研究所

<sup>1</sup> Faculty of science, Tokyo university of science, <sup>2</sup> JASRI/SPring-8, <sup>3</sup> Tsukuba university, <sup>4</sup> Osaka university, <sup>5</sup> Meteorological Research Institute

2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴う福島第一原発事故により、大量の放射性物質が大気環境中へ放出され、各地に飛散した。さらに事故から4年経過した今日においても、事故由来の放射性物質は環境中で検出され続け、今後も長期的な影響力が懸念される。その一方で、確認された放射性物質そのものの詳細な物理的・化学的な性状について、知見が不足している。イメージングプレート (IP) を用いたオートラジオグラフィにより、事故初期段階では大気粉塵、土壌および植物に付着した事故由来の放射性物質の存在が確認されている<sup>1,2)</sup>。特に大気粉塵について、我々は先行研究<sup>1,3)</sup> でつくば市の気象研究所で事故直後に採取した大気粉塵から放射性 Cs を含んだ粒子 (通称 Cs ボール) を発見し、大型放射光施設 SPring-8 を用いた放射光 X 線分析を行い、原子炉の構成材料と核分裂生成物 (FP: Fission Product) などを含む非水溶性のガラス状物質であることを解明した。しかし、Cs ボールのような非水溶性の放射性粒子はつくば市以外では確認されておらず、土壌や植物で確認された粒子状の放射性物質について実際に分析された例がない。そこで本研究では、つくば市以外の環境中に同様の放射性粒子が存在することを実証するために、福島県内の堆積物を採取し、放射性粒子の探索および放射光 X 線分析を用いた化学的性状の解明を行った。

試料には、福島県双葉郡浪江町にある学校の屋外プールから採取した堆積物を用いた。過酸化水素を用いて有機物を除去したのち、IP を用いたオートラジオグラフィにより放射能を有している粒子の場所を特定し、マイクロマンニピレータを用いて分離した。分離後、粒子の粒径・形状を確認するために走査型電子顕微鏡 (SEM-EDS) による観察・分析を行い、また放射性 Cs の有無を確認するために Ge 半導体検出器を用いたガンマ線スペクトル測定を行った。これらの粒子をカプトンテープ上に貼り付け、アクリル板に固定し、放射光実験用の測定試料とした。放射光実験は SPring-8 BL37XU にて行い、K-B ミラーを用いて縦横約 1  $\mu\text{m}$  に集光した X 線を励起光とした。蛍光 X 線分析 (SR- $\mu$ -XRF) ではスペクトル測定の他に、XY ステージを用いて試料を縦横に走査し、イメージングを行った。また SR- $\mu$ -XRF で検出された Fe, Zn, Mo, Sn の K 吸収端と U の L<sub>3</sub> 吸収端に対し、蛍光法による X 線吸収端近傍構造解析 (SR- $\mu$ -XANES) を行い、これらの元素の化学状態を調べた。さらに試料後方に X 線フラットパネルセンサーを設置し、X 線回折分析 (SR- $\mu$ -XRD) により粒子の結晶構造を調べた。

採取された堆積物から、計 6 粒子の放射性粒子を分離することに成功した。SEM-EDS による観察では、ほとんどが粒径約 2  $\mu\text{m}$  の球状粒子であった。また、ガンマ線スペクトル測定により 6 粒子すべてで放射性 Cs を含むことを確認した。2011 年 3 月当時に減衰補正した <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs の放射能比が約 1 であったことから、これらの粒子が福島第一原発由来<sup>1)</sup> であることが明らかになった。SR- $\mu$ -XRF 分析により、分析した 6 粒子すべてから、FP と思われる様々な重元素 (Rb, Mo, Sn, Cs, Ba など) と、原子炉の構成材料由来と思われる元素 (Si, Fe, Zn など) が検出された。また粒子 6 粒子のうち 1 粒子からは、核燃料と思われる U が検出された。SR- $\mu$ -XRF イメージングの結果から、これらの元素は粒子中に均一に分布していることが分かった。SR- $\mu$ -XANES では、いずれの粒子においても、主成分である Fe, Zn および FP 由来の微量元素である Mo, Sn 共に、高酸化数のガラス状態で存在していることが明らかになった。この結果は、XRD により 6 粒子すべてで回折ピークが検出されなかったことから支持された。以上の化学的性状は、先行研究<sup>1)</sup> で発見されたつくば市の Cs ボールときわめてよく一致していたことから、非水溶性の放射性粒子が、限定された地域・時間帯だけでなく、広範囲に飛散したことを化学的に実証した。同時に、本研究の試料は事故後数年経過した水環境中に存在していたことから、長期的な影響力を持つことが示唆された。今後粒子に含有している元素について定量分析を行い、地域による特性化を行う計画である。

1) K. Adachi et al.: *Scientific Reports* **3**, 2554 (2013)

2) N. Niimura et al.: *Journal of Environmental Radioactivity* **139**, 234-239 (2015).

3) Y. Abe et al.: *Analytical Chemistry* **87**, 8521-8525 (2014).

キーワード: 福島第一原発事故, 放射性物質, 放射光 X 線分析, 大気粉塵

Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Radioactive material, Synchrotron radiation X-ray analysis,

---

MAG38-P08

会場:コンベンションホール

時間:5月26日 18:15-19:30

aerosol

## 栃木・福島県の山岳における放射能汚染の標高依存性 Altitude dependent radioactive contamination in the mountain area of Tochigi and Fukushima prefectures

細島 睦夫<sup>1\*</sup>; 兼保 直樹<sup>2</sup>  
HOSOSHIMA, Mutsuo<sup>1\*</sup>; KANEYASU, Naoki<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 栃木県立壬生高校, <sup>2</sup> 産業技術総合研究所

<sup>1</sup>Mibu highschool, <sup>2</sup>National Institute of Advance Industrial Science and Technology

### Introduction

During the accident of Fukushima Dai-ichi Power Plant (FDNPP), the discharged radionuclides into the air were transported to the wide area of Eastern Japan and contaminated land and marine environments. For the plain areas where most population resides, the horizontal distribution contamination has been surveyed intensely. On the other hand, in the mountain areas where less populated, the studies were limited. Airborne surveys conducted by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science, and Technology, have mapped the contaminated are in Eastern Japan widely, but the obtained horizontal resolution is relatively low, i.e., the horizontally averaged value from a diameter ranging between 300 and 1,500 m underneath the aircraft.

We measured the altitude and horizontal distribution of ambient gamma dose-rate (GDR) in mountain areas of Tochigi and Fukushima prefectures on foot by use of a portable gamma ray detector carried along. With the results, the contamination patterns are categorized and the possible mechanisms that formed them are proposed.

### Results and Discussion

Instrumentation used in the survey is described in Kaneyasu and Hososhima (2015). According to the altitudinal distribution of ambient GDR and the location where the contamination is intense, we classified the contamination pattern into four categories.

[Type A] In Nikko-Kirifuri mountainous area, ambient GDR distributions have same altitudinal pattern showing the maxima around 900-1400 m (ASL). In particular, sharp peaks were observed at approx. 1,040-1,080 m ASL at Mt. Nakimushi-yama, Kirifuri Highland, Mt. Gassan, and Mt. Bizen-tateyama. This area is about 20km in width and located approx. 120 km north of the central part of Tokyo and 160 km southwest of FDNPP. The variance of GDR is large at the GDR peaks. A hypothesis on the formation mechanism is presented in the separate presentation in the oral session (Kaneyasu and Hososhima, 2015).

[Type B] In Aso-Maenikko mountain area, the altitudinal distribution pattern of GDR is vague and showed constant value with small variance.

[Type C] In Mt. Takahata-yama and Mt. Gonta-kurayama (located in the southern end of Oh-u mountain range), the contamination intensity was intermediate, and any particular altitudinal distribution pattern was not observed.

[Multiple types integrated and other formation mechanism] In Abukuma mountain range, which is located closer to the FDNPP, several patterns are identified. Sharp peaks in the altitudinal distribution of GDR exist in Mt. Kamakura-dake and Mt. Yomogida-dake (Type A). The mountain ridge between Mt. Kittoya-san Mt Futatsuya-san, significantly high GDR values were observed (similar to Type A). However, the south-southwest face of Mt. Futatsuya-san (the opposite side from the FDNPP), the GDR was smaller one order of magnitude than the ridge and had constant values with small variance (Type B). In the other mountains in Abukuma mountain range, the ridge of the mountains were often contaminated intensely. In some mountains, Type A contamination were observed with an additional contamination localized in the upper part of valleys.

Simple dichotomy paradigm of dry and wet deposition is not enough to explain the formation of these various types of distribution. We presume that Type A is caused by cloud/fog deposition (Kaneyasu and Hososhima), Type B is the result of dry deposition, and Type C is formed by wet deposition. In Abukuma mountain range, where is close to the FDNPP, the integration of Type A, B, and C may have occurred in many mountains due to the arrivals of several waves of radionuclides in the form of clouds, aerosol state (dry deposition), and precipitations, followed by the modification due to experiencing 'weathering effect'.

### References

Kaneyasu, N. and Hososhima M. (2015), A new insight into the deposition mechanism of airborne radionuclides from the Fukushima accident, Proceedings of JpGU 2015.

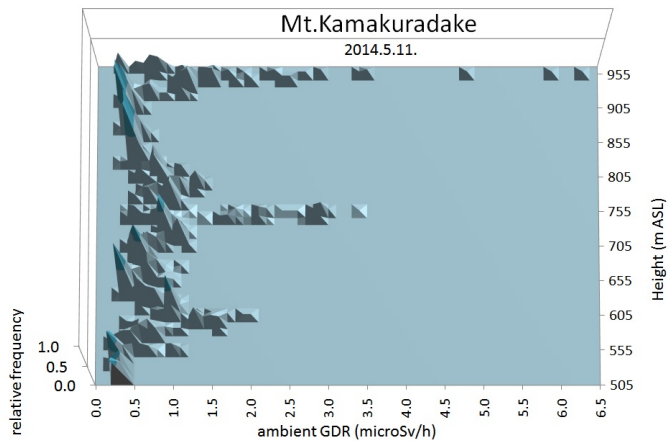
キーワード: 雲霧沈着, オカルト沈着, 放射能汚染の高度依存性, 空間線量率, 栃木県・福島県, 山岳地帯  
Keywords: cloud/fog deposition, occult deposition, altitude dependent radioactive contamination, ambient gamma dose-rate



MAG38-P09

会場:コンベンションホール

時間:5月26日 18:15-19:30



## 福島第一原発事故後の堆積物中における粒径別の放射性セシウム存在量分布とその挙動

### The distributions and behavior of radiocaesium according to grain sizes in sediments after the FDNPS accident

福田 美保<sup>1\*</sup>; 山崎 慎之介<sup>1</sup>; 青野 辰雄<sup>1</sup>; 吉田 聡<sup>1</sup>; 長沼 翔<sup>2</sup>; 久保 篤史<sup>2</sup>; 嶋田 啓資<sup>2</sup>; 高澤 伸江<sup>2</sup>;  
保坂 拓志<sup>2</sup>; 佐藤 憲一郎<sup>3</sup>; 山口 征矢<sup>2</sup>; 伊藤 友加里<sup>2</sup>; 石丸 隆<sup>2</sup>; 神田 穰太<sup>2</sup>  
FUKUDA, Miho<sup>1\*</sup>; YAMAZAKI, Shinnosuke<sup>1</sup>; AONO, Tatsuo<sup>1</sup>; YOSHIDA, Satoshi<sup>1</sup>; NAGANUMA, Sho<sup>2</sup>;  
KUBO, Atsushi<sup>2</sup>; SHIMADA, Keishi<sup>2</sup>; TAKASAWA, Nobue<sup>2</sup>; HOSAKA, Takuji<sup>2</sup>; SATO, Kenichiro<sup>3</sup>;  
YAMAGUCHI, Seiya<sup>2</sup>; ITO, Yukari<sup>2</sup>; ISHIMARU, Takashi<sup>2</sup>; KANDA, Jota<sup>2</sup>

<sup>1</sup>放射線医学総合研究所, <sup>2</sup>東京海洋大学, <sup>3</sup>マリンワークジャパン

<sup>1</sup>National Institute of Radiological Science (NIRS), <sup>2</sup>Tokyo University of Marine Science and Technology, <sup>3</sup>Marine Works Japan

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station (FDNPS) accident in March 2011 led to releases of large amounts of artificial radionuclides including <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs (radiocaesium) into the environment (ocean, atmosphere and land). As of February 2015, based on TEPCO's monitoring data, <sup>137</sup>Cs activities in seawater had exponentially decreased more than 10 times compared to the activities before the FDNPS accident. However, the activities in sediments have decreased more slowly than those in seawater and they have had large fluctuations. Some controversy remains about the radiocaesium transition process from seawater to sediments and its behavior after accumulation. In soil and sediments, the radiocaesium activities for finer grain sizes tend to be higher because specific surface areas of smaller grains are larger (e.g. He and Walling, 1996). Therefore, it is necessary to consider the differences of grain size composition in sediments in order to compare distributions of lateral and vertical radiocaesium activities and inventories in coastal sediments, which are commonly of several grain sizes. This study was aimed at elucidating spatial variation and the behavior of radiocaesium activities and inventories for different grain sizes in sediments collected in the Fukushima coastal area in May 2014.

The sediments were divided into four classes based on grain sizes using several mesh sizes: granules (grain size larger than 2 mm); very coarse to coarse sand particles (1 to 2 mm); coarse to very fine sand particles (0.063 to 1 mm); and silt particles (smaller than 0.063 mm). Radionuclides were measured for each grain size class using high-purity gamma ray spectrometry and then corrected to the sampling date.

In collected sediments, the only artificial radionuclides detected were radiocaesium. In the surface layer of sediments (0-5 cm), the percentage ranges were: granules, 0 to 23 %; very coarse to coarse sand particles, 0 to 39 %; coarse to very fine sand particles, 38 to 98 %; and silt particles, 0 to 46 %. The <sup>137</sup>Cs activities for coarse to very fine sand particles and silt particles ranged from 8.5 to 609 Bq kg<sup>-1</sup>-dry and 18 to 1487 Bq kg<sup>-1</sup>-dry, respectively and the latter particle activities were higher than those for the former particles in most layers. The <sup>137</sup>Cs inventories for coarse to very fine sand particles ranged from 972 to 3285 Bq m<sup>-2</sup> and those in the water depth range of 100 to 150 m were highest. The <sup>137</sup>Cs inventories for silt particles ranged from 1387 to 31321 Bq m<sup>-2</sup> and they decreased with increasing water depth. The fractions of <sup>137</sup>Cs inventories in the uppermost layer of sediments (0-3 cm) to those in the surface layer of sediment (F'<sub>0-3</sub>) for coarse to very fine sand particles and silt particles were 0.33 to 0.88 and 0.24 to 0.77, respectively. The F'<sub>0-3</sub> values for silt particles were lower than those for coarse to very fine sand particles. It appeared that silt particles more easily adsorbed radiocaesium that had been transported to a deep sediment layer compared to coarse to very fine sand particles.

He, Q., and Walling, D., E. (1996) Journal of Environ. Radioact, 20 (2), 117-137.

キーワード: 放射性セシウム, 福島沿岸域, 海底堆積物, 粒径, 福島第一原発

Keywords: radiocaesium, Fukushima coastal area, marine sediment, grain size, FDNPS

## USLE モデルに基づく放射性セシウム分布および移行量の広域評価 Evaluation of wide area inventory and migration rate of radioactive caesium based on USLE model

中村 典子<sup>1\*</sup>; 恩田 裕一<sup>1</sup>; 近藤 昭彦<sup>2</sup>; 脇山 義史<sup>1</sup>

NAKAMURA, Noriko<sup>1\*</sup>; ONDA, Yuichi<sup>1</sup>; KONDOH, Akihiko<sup>2</sup>; WAKIYAMA, Yoshifumi<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学 アイソトープ環境動態研究センター, <sup>2</sup> 千葉大学 環境リモートセンシング研究センター

<sup>1</sup>Center for research in isotopes and environmental dynamics, University of Tsukuba, <sup>2</sup>Center for Environmental Remote Sensing, Chiba University

The radioactive contaminations which flowed out from the Fukushima nuclear power plant first due to the Great East Japan Earthquake are still contained great amounts in the soil around the nuclear power plant, and it causes serious concern over the health of inhabitants. In this study, for the prediction of the migration dynamics of radioactive caesium deposited on the soil around the nuclear power plant, the time-spatial variation of deposition and washoff ratio of <sup>137</sup>Cs up to the present was calculated based on the soil erosion rate obtained from the USLE and the initial <sup>137</sup>Cs inventory obtained by the airborne monitoring. The parameters needed for calculation of USLE were determined from the observation results obtained from the study sites established in the Fukushima prefecture. The estimation results from the calculation were compared with the measurements of <sup>137</sup>Cs washoff ratio obtained from the rivers around the nuclear power plant. As the result, calculated <sup>137</sup>Cs washoff rate was approximately underestimate than the measured rate however was consistent qualitatively. And in the view of landuse, in the catchment of Abukuma river, the ratio of washoff from the paddy was large in the early period from the accident, however, as time goes on, the ratio of washoff from the paddy has decreased and the ratio of other landuses has increased.

キーワード: 東日本大震災, 福島原発事故, セシウム 137, USLE, 土壌侵食, 放射性物質移行

Keywords: the Great East Japan Earthquake, Fukushima nuclear power plant accident, caesium 137, USLE, soil erosion, migration of radioactive contamination