

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物質の時空間分布の総合解析と気象学的考察

Comprehensive Study on Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing used Filter-tapes of Air Monitoring Sites

*鶴田 治雄¹、大浦 泰嗣²、海老原 充²、大原 利真³、森口 祐一⁴、中島 映至⁵

*Haruo Tsuruta¹, Yasuji Oura², Mitsuru Ebihara², Toshimasa Ohara³, Yuichi Moriguchi⁴, Teruyuki Nakajima⁵

1.リモート・センシング技術センター、2.首都大学東京、3.国立環境研究所、4.東京大学、5.宇宙航空研究開発機構

1.Remote Sensing Technology Center of Japan, 2.Tokyo Metropolitan University, 3.National Institute for Environmental Studies, 4.The University of Tokyo, 5.Japan Aerospace Exploration Agency

東京電力福島第一原子力発電所事故直後における大気中放射性物質の時空間分布の解明のため、大気環境常時測定局で使用されている、β線吸収法浮遊粒子状物質(SPM)計中の使用済みテープろ紙に採取された放射性物質の分析結果について、第1期40地点のCs-137の時空間分布と主なブルームの挙動については、すでに論文(Scientific Reports, 2014)として昨年度の学会で報告した。さらに第2期を含めて約100のSPM地点で分析された全データは、データ集論文(Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, 2015)として、最近公開された。そこで全データと空間線量率、および気象場とを解析して、第1期以後に明らかになった主な結果を、報告する。高濃度の放射性物質を含むブルーム/汚染気塊が、関東地方へは6回、東北地方南部へは7回輸送されたことが明らかになった。首都圏や東北地方の各モニタリングポストなどで観測された空間線量率の複数のピークはすべて、それらに対応するブルームが明らかになった。現在、各ブルームの原発からの輸送経路や炉内事象との関係をさらに詳細に解析中である。また、多くの事例解析により、海陸風、降水の有無、気温の逆転層などの局地気象が、大気中放射性物質の輸送と沈着、および最高濃度に強く影響を与えていることが、明らかになった。たとえば、関東地方西部への輸送は、3月15日午後と3月20日午後に観測され、関東西部では3月20日夜間から3月21日朝にかけて高濃度で滞留した。この主な原因は、つくばでの気温鉛直分布で観測された、強い気温の逆転層(高度119-245 m)の存在によると推測された。また、3月20日の午後ら夜にかけて、汚染気塊が福島原発から南寄りの風で東北地方中部へ輸送された。文科省の航空機モニタリング調査結果で、宮城県北部から岩手県南部にかけて、周辺よりも多量の放射性物質が地表面に沈着していたことがすでに報告されている。この主な原因は、3月20日午後の南寄りの風によりこの地域まで汚染気塊が輸送され、夜間に観測された降水により沈着したためと推測されている。しかし同時期における、東北地方南部のSPM地点の大気中Cs-137濃度はほとんど検出下限値(0.1-1 Bq m⁻³)以下だった。つくばで観測された20日夜間の気温逆転層は、東北地方南部にも存在したと推測され、それにより、高濃度の放射性物質を含む汚染気塊は、地上より上空の大気中を北方に輸送され、降水により地上に沈着したと推測される。一方、3月21日9時のつくばでは、高度236-330 mに強い逆転層が引き続き存在しており、その下層を巾約30 kmの高濃度のブルームが北東風により関東南部まで輸送されたと推測される。これらからブルーム/汚染気塊の輸送過程を解明するには、局地風系とともに大気の鉛直構造を考慮することが重要であることが強く示唆された。SPM計テープろ紙を提供して下さった全ての自治体、及びこの研究を協力・支援して下さった若松伸司教授(愛媛大)をはじめ、文部科学省、環境省、原子力規制庁及び多くの方々に深く感謝申し上げます。

キーワード：大気中Cs-137、浮遊粒子状物質、福島第一原子力発電所、汚染気塊、時空間分布

Keywords: Atmospheric Cs-137, Suspended Particulate Matter, Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, plume, Spatio-temporal variation

福島第一原発事故により放出された粒子状放射性物質の物理・化学的性状の解明

Investigation of Physical and Chemical Natures of Particulate Radioactive Matters Emitted from the Fukushima Nuclear Accident

*阿部 善也¹、飯澤 勇信¹、小野 貴大¹、中井 泉¹、佐藤 志彦²、末木 啓介²、金井 豊³、足立 光司⁴、五十嵐 康人⁴

*Yoshinari Abe¹, Yushin Iizawa¹, Takahiro Ono¹, Izumi Nakai¹, Yukihiko Satou², Keisuke Sueki², Yutaka Kanai³, Kouji Adachi⁴, Yasuhito Igarashi⁴

1.東京理科大学理学部応用化学科、2.筑波大学、3.産業技術総合研究所、4.気象研究所

1.Department of Applied Chemistry, Tokyo University of Science, 2.Tsukuba University, 3.National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 4.Meteorological Research Institute

我々は福島第一原発事故由来と考えられる放射性物質を含む固体粒子を大気粉塵や土壌といった環境試料から分離し、非破壊の放射光マイクロビームX線分析を中心に、1粒子レベルでの物理・化学的性状の解明を進めている^{1,2)}。本発表では、我々の研究によりこれまで発見された放射性粒子について、その物理・化学的性状に関するまとめを報告する。

茨城県つくば市の気象研究所および産業技術総合研究所で事故後の2011年3月にフィルター上に捕集された大気粉塵から、先行研究^{1,2)}に従って放射性粒子を分離した。同様に、2014年に福島県内の屋外プールで採取した堆積物、および2015年に県内で採取した土壌からも分離を行った。分離された放射性粒子に対して、Ge半導体検出器を用いた1粒子でのガンマ線スペクトル測定と、低真空型の走査型電子顕微鏡による形態観察および組成分析を行った。さらにこれらの放射性粒子を大型放射光施設SPring-8のBL37XUに持ち込み、縦横約1 μmに集光したマイクロビームX線をプローブとして、放射光蛍光X線分析法 (SR-μ-XRF) により各粒子の重元素組成とその分布を、放射光X線吸収端近傍構造解析法 (SR-μ-XANES) により含有元素の化学状態を、放射光X線回折法 (SR-μ-XRD) により結晶構造を非破壊で分析した。

本研究により、異なる物理・化学的性状を有する3種類の放射性粒子 (Group A, B, C) の存在が明らかとなった。Group Aは直径1~5 μmと小さく、基本的に全て球形である。足立ら¹⁾により、事故直後の2011年3月14~15日に気象研究所で捕集された大気粉塵から発見され、1粒子で約1 Bqの放射能を有し、質量濃度にして%オーダーの高濃度のCsを含むことから、通称「Csボール」と呼ばれる。またCsの他にもRb, Sn, Baなど核燃料の核分裂生成物 (FP) 由来と考えられる元素を含み、一部の粒子では核燃料由来の可能性もあるUも検出されている²⁾。FP以外にもSi, Fe, Znなど炉の構成材料由来と考えられる元素も含まれている。Siを母体とするガラスだと考えられ、非水溶性である²⁻⁴⁾。長期的な環境影響が懸念され、実際に福島県内の屋外プール堆積物中にもこの種類の粒子が残留していることが明らかになっている。¹³⁴Cs/¹³⁷Csは約1であり、2号機または3号機から放出された可能性が高い。ただしCuやNi, Agなど、一部の粒子からしか検出されていない元素も見られ、単一的な生成・放出過程であったとは考えづらい。

Group Bは、福島第一原発北西地域 (福島県浪江町) の土壌から分離された放射性粒子である。同地域には、佐藤ら³⁾により1号機由来の放射性物質が飛来した可能性が指摘されている。球形でμmオーダーのGroup Aとは異なり、Group Bは大型の不定形粒子で100 μmを超えるものもある。粒子自体はGroup Aと同じくSiを母体とするガラスであると考えられるが、CsよりもBaを多く含む傾向にある、Group Aでは検出されていないSrを含む、Sbに富むといった点で、Group Aとは組成的特徴に差が見られる。また粒子内に数μmオーダーでFeやMo, Sn, Uなどの一部の金属元素の濃集が見られ、SR-μ-XANES/XRDにより、こうした濃集点においてガラスではない相の存在が示されている。

Group Cは、2011年3月30日に産業技術総合研究所で捕集された大気粉塵より分離された放射性粒子である。粒径はGroup Aと同程度の数μmであるが、球形ではなく凹凸があり、角張った形状のものが多い。上記の2グループの粒子とは異なり、Group Cの粒子の主成分はSiではなく、重元素組成にもGroup AおよびBとは明確な違いが見られた。これら3グループの粒子の物理的・化学的性状の違いは、その生成・放出過程の違いに起因するものであると考えられ、事故後に複数のプロセスによって粒子状の放射性物質が環境中に放出されたことが化学的に実証された。

- 1) K. Adachi *et al.*: *Scientific Reports* 3, 2554 (2013).
- 2) Y. Abe *et al.*: *Analytical Chemistry* 87, 8521-8525 (2014).
- 3) 佐藤 志彦ら: 「放射化学」 31, 27-28 (2015).
- 4) N. Yamaguchi *et al.*: *Scientific Reports* 6, 20548 (2016).

キーワード：福島第一原発事故、放射性粒子、大気粉塵、土壌、X線分析、放射光

Keywords: Fukushima Nuclear Accident, Radioactive particles, Aerosol, Soil, X-ray analysis,
Synchrotron radiation

原発事故由来の放射性セシウム大気濃度の長期解析：土壌、植物からの再飛散

Long-term assessment of airborne radio-cesium after the Fukushima nuclear accident:
re-suspension from soil and vegetation

*梶野 瑞王^{1,2}、石塚 正秀³、五十嵐 康人³、北 和之⁴、吉川 知里⁵、稲津 将⁶

*Mizuo Kajino^{1,2}, Masahide Ishizuka³, Yasuhito Igarashi³, Kazuyuki Kita⁴, Chisato Yoshikawa⁵, Masaru Inatsu⁶

1.気象研究所、2.理化学研究所 計算科学研究機構、3.香川大学、4.茨城大学、5.海洋開発研究機構、6.北海道大学

1.Meteorological Research Institute, 2.RIKEN Advanced Institute for Computational Science, 3.Kagawa University, 4.Ibaraki University, 5.Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 6.Hokkaido University

はじめに

2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所の事故に伴い大気中に放出された放射性Csは、東北・関東地方において広範囲に沈着した。事故約1年半後の2012年12月以来、避難指示区域内に位置する福島県浪江町・浪江高校津島分校の校庭において、放射性Csの大気濃度の長期間変動と、陸面に沈着した放射性Csの再飛散を評価するために、連続観測が行われて来た。本研究では、約30年と半減期の長い¹³⁷Csを対象として、再飛散モジュールを実装した3次元物質輸送モデルと、避難指示区域内（浪江高校）と区域外（茨城県つくば市）の2地点の長期間大気濃度観測結果を用いて、東北・関東地方における再飛散を伴う¹³⁷Csの収支解析を行った。期間は2012年12月から2013年12月までの約1年間を対象とした。

手法

モデル：ラグランジュ型移流拡散モデル（梶野ら、2014）を用いた。気象庁メソ解析データ（GPV-MSM）を用いて、放射性物質の放出、輸送、沈着、反応、放射性壊変を解く。土壌からの再飛散は、浪江高校校庭におけるダストフラックス観測に基づいて開発された再飛散モジュール（Ishizuka et al., 2016）を用いた。植生からの再飛散については、メカニズムが明らかになっていないため、放出率は一定として¹³⁷Csの航空機モニタリング結果による地表面沈着量（減衰率は放射性壊変のみ考慮）と森林面積および植物活性の指標としてGreen Fraction（Chen and Dudhia, 2001）を掛け合わせたものを用いた。

観測：大気濃度は、浪江高校校庭および茨城県つくば市の気象研観測露場（Igarashi et al., 2015）でハイボリウムエアサンプラーを用いて捕集されたエアロゾル中の¹³⁷Cs濃度の測定値を用いた。サンプリングの時間間隔はそれぞれ、浪江高校は1日間、気象研は1週間である。

結果

浪江における¹³⁷Cs濃度は、冬に低く（0.1 -1 mBq/m³）夏に高い（~1 mBq/m³）傾向が見られ、つくばにおける濃度（0.01-0.1 mBq/m³）に比べて1桁程度高かった。モデルにより計算された2地点間の濃度比は、観測の濃度比と整合的であった。土壌からの再飛散は、逆に冬に高く夏に低くなる傾向があり、絶対値は冬季の浪江の観測値を説明できるレベルであるが、夏季の濃度ピークを1-2桁程度過小評価した。解析期間中の原子炉建屋からの放出量は約10⁶ Bq/hr程度（TEPCO, 2013など）であり、浪江の観測値を説明できるレベルではなかった（2-3桁程度過小評価）。植生からの再飛散計算結果は、浪江の季節変動をよく再現し、10⁻⁷ /hrの放出率を仮定すると、観測濃度の絶対値と同レベルとなった。依然、事故から5年が経過した現在でも再飛散のメカニズムは明らかにされておらず、観測・実験に基づいたメカニズムの解明研究の発展が望まれる。

参考文献

Chen and Dudhia, Monthly Weather Review, 129, 569-585, 2001.

Igarashi et al., Progress in Earth and Planetary Science, 2:44, 2015.

Ishizuka et al. Journal of Environmental Radioactivity, 2016, in press.

梶野ら, 天気, 61, 79-86, 2014.

TEPCO, 2014 原子炉建屋からの追加的放出量の評価結果（平成26年3月）

キーワード：ダスト飛散モデル、3次元数値モデル、大気観測、収支解析

Keywords: Dust deflation module, Three dimensional numerical model, Atmospheric measurement, Budget analysis

夏/秋季における大気中の放射性セシウムの再飛散過程～生物—大気循環の可能性

Re-suspension processes of radioactive Cs emitted by the FNDPP accident in summer and autumn -possibility of biosphere-atmosphere circulation of radioactive Cs

*北 和之¹、木名瀬 健¹、堀内 貴明¹、坂本 宗一郎¹、武井 愛里¹、出水 宏幸²、五十嵐 康人³、足立 光司³、梶野 瑞王³、山田 桂太⁴、豊田 栄⁴、吉田 尚弘⁴、二宮 和彦⁵、篠原 厚⁵、大河内 博⁶、緒方 裕子⁶、石塚 正秀⁷、牧 輝弥⁸、阿部 善也⁹、中井 泉⁹、古川 純¹⁰、恩田 裕一¹⁰

*Kazuyuki Kita¹, Takeshi Kinase¹, Takaaki Horiuchi¹, Shuichiro Sakamoto¹, Airi Takei¹, Hiroyuki Demizu², Yasuhito Igarashi³, Kouji Adachi³, Mizuo Kajino³, Keita Yamada⁴, Sakae Toyoda⁴, Naohiro Yoshida⁴, Kazuhiko Ninomiya⁵, Atsushi Shinohara⁵, Hiroshi Okochi⁶, Hiroko Ogata⁶, Masahide Ishizuka⁷, Teruya Maki⁸, Yoshinari Abe⁹, IZUMI NAKAI⁹, Jun Furukawa¹⁰, Yuichi Onda¹⁰

1.茨城大学理学部、2.茨城大学技術部、3.気象研究所、4.東京工業大学、5.大阪大学、6.早稲田大学、7.香川大学、8.金沢大学、9.東京理科大学、10.筑波大学

1.Faculty of Science, Ibaraki University, 2.Ibaraki University, 3.Meteorological Research Institute, 4.Tokyo Institute of Technology, 5.Osaka University, 6.Waseda University, 7.Kagawa University, 8.Kanazawa University, 9.Tokyo University of Science, 10.Tsukuba University

平成23年3月の福島第一原発事故により環境中に多量に放出された放射性物質は、大気を通じ広域に拡散し陸域では土壌や植生に沈着した。放射性物質が沈着した地域では、それらが再飛散プロセスを経て再び大気中に戻ることで、現在も大気中に事故以前に比べ高濃度の放射性物質が浮遊している。この大気中に浮遊する放射性物質の濃度を継続的に監視することに加え、再飛散プロセスを定量的に理解していくことが、今後の推移を予測し対応を考える上で重要である。特に放射性物質の移行において、大気再飛散は、速く広範囲に移行を起こす可能性があるため、経路の一つとして重要である。

我々のグループでは、土壌や森林から大気への放射性セシウム再飛散プロセス解明のための観測を福島県川俣町山木屋地区内および浪江町津島地区内の5地点で実施している。ハイボリュームエアサンプラーを用い、大気粒子を連続的にサンプリングし、そのセシウム放射能強度をGe検出器で測定し、大気放射能濃度(単位体積大気中の放射能)に換算している。津島地区では、大気中のセシウム放射能濃度は毎年夏季に極大となる季節変化を示す。この時期、大気放射能濃度は風速と弱い逆相関傾向が見られ、昼間より夜間に大気放射能濃度が高くなった。これは、風速によらず再飛散が発生しており、地表境界層の成長や風により希釈されるためであると解釈できる。

大気サンプリング試料を電顕観察すると、夏季(6~8月)および秋季(9~11月)には、生物起源と思われる炭素に富む有機粒子が多かった。2015年夏に行なった集中観測では、試料中のCの割合とセシウム放射能濃度がよく正相関する変化を示しており、この有機粒子が放射性セシウムの再飛散における担体となっている可能性が高い。集中観測時にバイオエアロゾルサンプリングも行い、菌類の孢子や細菌と思われる粒子が多く飛散していることがわかった。一部の試料を有機分析した結果、放射性セシウムが多い分画で、生物起源有機物が多かった。また、津島地区において採取した林内雨と林外雨中の放射性セシウムを比較すると、特に夏季に林内雨で数倍高い濃度となっており、また降水時に大気放射能濃度も高くなる傾向があることから、樹木の表面に放射性セシウムが多く存在しており、雨で大気や土壌に移行していることがわかる。

夏季および秋季の大気粒子試料を、純水および過酸化水素水によって抽出する実験を行なった。放射性セシウムの約45-65%が純水により抽出された。また、過酸化水素水で不溶性有機物を分解すると、さらに10-40%と残りの大半が抽出された。大気試料には、Na, Cl, S(SO4)など水溶性粒子も含まれているものの、その量は有機物に比べると極小であり、先に示した結果も合わせ、純水で抽出された放射性セシウムは何らかの形で有機粒子に含まれていたものと考えている。この純水抽出液でポプラを栽培し、植物体に放射性セシウムが移行するか確認する実験を行なった。ガラスビーズに抽出液を入れ、ポプラ3本を挿して48時間培養を行なった。大半の放射性セシウムがガラスビーズに残留したものの、残りの放射性セシウムは、抽出液、ポプラの根、およびポプラの枝葉にほぼ3分され、少なくとも一部は植物体に移行することが確認された。このことから、大気-降水-植生間で、放射性セシウムが循環している可能性が示された。

キーワード：福島原発事故、放射性セシウム、環境放射能、生物大気循環

Keywords: Fukushima-dai'ichi Nuclear Plant Accident, Radioactive Cesium, Radioactivity in environment, Biosphere-atmosphere Curculation

森林樹冠から林床への放射性セシウムの移行がリター層及び土層中の放射性セシウム存在量に及ぼす影響

Effects of radiocesium transfer from the canopy to forest floor on its accumulation in litter and soil layers.

*加藤 弘亮¹、恩田 裕一¹、河守 歩¹、久留 景吾²

*Hiroaki Kato¹, Yuichi Onda¹, Ayumi Kawamori¹, Keigo Hisadome²

1.筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、2.アジア航測株式会社

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

原子力発電所等の事故により森林に降下した放射性セシウムは、樹冠による遮断を受けた後に雨水や落葉等とともに徐々に林床に移行する。そのため、森林樹冠に残存する放射性セシウムは林床の二次汚染の供給源となるが、リター層や土層の放射性セシウム存在量の時間変化に及ぼす影響は定量的に明らかになっていない。

本研究では、福島県伊達郡川俣町山木屋地区において、福島第一原子力発電所事故直後から4年間にわたって森林樹冠に捕捉された放射性セシウムの林床への移行状況を調査した。スギ人工林の2林分（31年生壮齢林及び18年生若齢林）とコナラ・アカマツからなる広葉樹混交林を対象として、樹冠通過雨、樹幹流、落葉等ともなう樹冠から林床への放射性セシウム移行フラックスを測定した。また、可搬型ゲルマニウムガンマ線検出器を用いて、林床の放射性セシウムの計数率の空間分布と時間変化を測定した。

調査対象森林において、調査期間中に林床に沈着した放射性セシウムは、スギ壮齢林、スギ若齢林、広葉樹混交林でそれぞれ166 kBq/m², 174 kBq/m², and 60 kBq/m²で、これらの値は大気からの総沈着量の38%、40%、13%にあたる。林床の放射性セシウムの空間分布が調査期間を通して大きく変化していないことから、現在も観測される樹冠から林床への放射性セシウム移行量の空間分布が初期沈着時の空間分布特性と大きく異なることを示唆している。同調査地点における林床の放射性セシウム存在量の調査結果（高橋ら、2015；原子力規制庁、2015）からリター層及び土層中の放射性セシウム存在量の時間変化を算出し、樹冠から林床への放射性セシウム移行フラックスとの関連を調査した。いずれの調査森林においても、リター層中の放射性セシウム存在量は、調査期間中の樹冠から林床への放射性セシウム移行速度が比較的に大きな値（～400Bq/m²/day）を示したにもかかわらず時間とともに減少する傾向を示した。このことから、樹冠から林床への放射性セシウム移行量の時間変化を二重指数関数モデルで表すとともに、土層中の放射性セシウム存在量の時間変化傾向の解析に基づいて、リター層から下部の土層への放射性セシウム移行速度を算出した。

キーワード：放射性セシウム、森林、移行、リター層

Keywords: Radiocesium, Forest, Transfer, Litter layer

大気圏核実験で降下した放射性セシウムは森林土壌にどの程度留まっているか

How much the radiocesium fallout remain in forest surface soils?

*伊藤 江利子¹、三浦 寛¹、青山 道夫²、志知 幸治¹、小野 賢二¹

*Eriko Ito¹, Satoru Miura¹, Michio Aoyama², Shichi Koji¹, Kenji Ono¹

1.森林総合研究所、2.福島大学

1.Forestry and Forest Products Research Institute, 2.Fukushima University

福島第一原発事故により森林に降下した¹³⁷Csは、その化学的性質（鉱物粒子への吸着）あるいは東電福島第一原発事故により汚染された陸上の除染の困難さが示すように、長期に渡り森林生態系内に留まると予想される。その長期的な移動の予測に資するため、過去60年間の大気圏核実験で森林域に降下した放射性セシウム(¹³⁷Cs)が森林土壌にどの程度留まっているかを検証した。原発事故前に日本全国316地点（各地点4断面）で3層の深さ（0-5,-15,-30cm）から採取された森林土壌試料中の¹³⁷Csを、NaIシンチレーションカウンターを用いて測定した。この測定で得られた単位面積あたりの森林土壌中の¹³⁷Cs蓄積量（以下、蓄積量）を全国の管区気象台で測定された¹³⁷Cs累積降下量と比較した。日本の森林域の蓄積量は $1.7 \pm 1.4 \text{ kBq m}^{-2}$ （2008年10月1日時点）であったが地理的変動が極めて大きく、測定点数が限られた管区気象台の放射壊変を補正した累積降下量（ $2.4 \pm 0.8 \text{ kBq m}^{-2}$, n=7）と単純な比較はできない。全国スケールの蓄積量分布は気象条件による初期降下量の多寡を反映したものと考えられる。初期降下量の空間変動を考慮した上で森林域の蓄積量と管区気象台の累積降下量と比較するため、気象条件を説明要因とした蓄積量推定モデルを作成した。使用した気象要素は降水量平年値、圏界面高度の垂直変動、大気圏核実験ピーク期の特殊降雨イベントの3種類である。降水量が¹³⁷Cs降下量と正の相関があることはよく知られている。圏界面高度の垂直変動は対流圏内の大気中¹³⁷Cs濃度に影響を及ぼし、圏界面高度の上昇局面において成層圏内に滞留する¹³⁷Csが対流圏内に移流するとされる。大気圏核実験による核分裂総量（あるいは爆発総量）は1962年が最大で1958年がそれに次いで多く、その影響は日本において1963年上半年および1959年における月間降下量の高さとして顕れている。1962年12月-1963年6月の降下量は成層圏および対流圏中の¹³⁷Cs濃度の高さを反映して、降水量に比して極めて多い傾向が認められ、この時期の特殊降雨イベントは降水量平年値では説明できない地域間の初期降下量のばらつきの原因となった可能性がある。1963年の梅雨は東北日本海側と西日本で平年の2倍を超える多雨の年であり、1962-1963年の冬には北陸や九州北部で記録的な豪雪（三八豪雪）が記録されている。降水量平年値のうち冬季降水量（10月-2月）は東北日本海側と北陸で大きい蓄積量分布傾向をよく説明していた。冬季降水量を固定効果、調査地点を変数効果に指定した一般混合モデルを作成した（モデル1）。2014年の圏界面高度観測結果を0.5度メッシュに外挿した日単位の圏界面高度データセットを用いて、1日間隔および2日間隔の高度差分データを作成し、圏界面高度の上昇局面における垂直変動の程度や頻度を各メッシュにおいて月単位で算出した。各月の著しい圏界面上昇イベント（差分値1500m以上）出現回数を1日間隔差分値と2日間隔差分値の双方で算出し、主成分分析の第一主成分を総合的な指標として用いた。この指標を説明変数として追加した蓄積量推定モデル（モデル2）では冬季降水量のみのモデル1では過小評価となっていた秋田や北九州、過大評価となっていた沖縄や東海地方における推定精度が良化した。特殊降雨イベントの影響解析のため、1950-1964年のアメダス観測地点月降水量をスプライン補間で外挿した0.1度メッシュデータセットを作成した。特殊降雨イベントとして1962年12月-1963年2月の降水量を説明要因に加えたモデル（モデル3）では、三八豪雪の影響を受けた地域である秋田・佐賀・長崎・福井などの蓄積量過小評価が緩和された。以上の3つのモデルを用いて、森林の蓄積量が管区気象台の累積降下量と比較して有意に小さいか検討した。3つのモデルのいずれにおいても管区気象台と森林の間に有意な違いは認められず、森林域に降下した¹³⁷Csはこの60年間は森林土壌の表層30cm以内に大部分が留まっていたと結論付けられる。

キーワード：セシウム、森林土壌、インベントリ

Keywords: Cs, Forest soil, inventory

農地除染と移行低減対策 5年の月日で見えてきたこと

The situation of radioactive contamination in crops after five years of FDNPP accident

*信濃 卓郎¹、太田 健¹、内田 智子¹、久保 堅司¹、松波 寿弥¹、江口 哲也¹、藤村 恵人¹、村上 敏文¹、高橋 義彦¹

*Takuro Shinano¹, Takeshi Ota¹, Tomoko Uchida¹, Katashi Kubo¹, Hisaya Matsunami¹, Tetsuya Eguchi¹, Shigeto Fujimura¹, Toshifumi Murakami¹, Yoshihiko Takahashi¹

1. 農研機構東北農業研究センター農業放射線研究センター

1. National Agriculture and Food Research Organization, Tohoku Agricultural Research Center, Agricultural Radiation Research Center

Tokyo electric power company's Fukushima Daiichi Nuclear Power plant (FDNPP) accident affected a large area of Eastern Japan by the fallout of radioactive cesium. In 2011, more than 8000 ha of agricultural field was restricted planting and the area decreased about 2000 ha by the end of 2014. Two major protocols have been applied to the agricultural field, one is decontamination of field mainly by surface stripping method but it results a huge amount of radioactive waste of soil and biomass (more than 2,000, 000 m³). The other method is applying sufficient amount of potassium to the soil before conventional fertilization. The problem is that it is not able to decide the termination of applying excess amount of potassium to the field. Furthermore, as some plant species seems to have higher transfer factor, it makes the radioactive cesium content of the harvest higher than the standard limit in food (100 Bq/kg from April 2012, in Japan). Several countermeasures have been tried to encounter these problems. In the presentation, present situation of Fukushima area which have been affected by radioactive materials and how the agriculture has been reconstructed after the FDNPP accident.

キーワード：放射性セシウム、除染、カリウム

Keywords: Radioactive cesium, Decontamination of radioactive cesium, Potassium

福島県山木屋地区の森林源流域、小斜面における溶存態セシウム137濃度の空間分布
Spatial distribution of dissolved Cs-137 at small Headwater Forested Catchment in
Fukushima after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident

*岩上 翔¹、辻村 真貴²、恩田 裕一¹、坂口 綾¹、榊原 厚一²、小沼 亮平²、佐藤 雄太郎²

*Sho Iwagami¹, Maki Tsujimura², Yuichi Onda¹, Aya Sakaguchi¹, Koichi Sakakibara², Ryohei konuma²,
yutaro sato²

1.筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、2.筑波大学大学院生命環境系

1.Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, 2.Faculty of
Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba. Japan

Radiocesium migration from headwater forested catchment is important perception as output from the forest which is also input to the subsequent various land use and downstream rivers after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident. In this study, dissolved Cs-137 concentration of stream water, soil water and groundwater were measured. Observations were conducted at headwater catchment in Yamakiya district, located 35 km northwest of FDNPP from April 2014 to November 2015. Stream water discharge was monitored and stream water samples were taken at main channel and sub channel. Stream water discharge was monitored by combination of parshallflume and v-notch weir. Stream water was sampled manually at steady state condition in 3-4 month interval and also intense few hours interval sampling were conducted during rainfall events using automated water sampler. Around the sub channel, it is found that there is a regularly saturated area at the bottom of the slope, temporary saturated area which saturate during the rainy season in summer and regularly dry area. 6 interval cameras were installed to monitor the changing situation of saturated area. Suction lysimeters were installed at three areas (regularly saturated area, temporary saturated area and dry area) for sampling soil water in depth of 0.1 m and 0.3 m. Boreholes were installed at three points along the sub channel. Three boreholes with depth of 3 m, 5 m and 10 m were installed at temporary saturated area, 20 m upstream of sub channel weir. Another three boreholes with depth of 3 m, 5 m and 10 m were installed at dry area, 40 m upstream of sub channel weir. And a borehole with depth of 20 m was installed at ridge of sub catchment, 52 m upstream of sub channel weir. Groundwater was sampled by electrically powered pump and groundwater level was monitored. Also suction-free lysimeter was installed at temporary saturated area for sampling the near surface subsurface water. Soil water samples were collected as much as collected in flask. Stream water and groundwater samples were collected for 40 L each. All the water samples were filtered through 0.45 μm pore-size membrane. Water samples with less than few L were concentrated by evaporative concentration. Water samples with more than 40 L were concentrated using the ammonium molybdophosphate (AMP)/Cs compound method. The Cs-137 concentration was determined using Gamma-ray spectrometry with a germanium semiconductor detector.

Spatial distribution of dissolved Cs-137 concentration in the slope was obtained and the source of Cs-137 concentration in stream water was examined. The Cs-137 concentration in groundwater showed low value of around 0.001 Bq/L. The Cs-137 concentration of soil water showed 0.01-0.1 Bq/L. And Cs-137 concentrations of stream water were in order of 0.01-0.1 Bq/L at steady state condition. Also Cs-137 concentrations in stream water showed temporary increase during rainfall event. The source of dissolved Cs-137 was suggested to be shallow soil water under saturated condition or leaching from the litter might be affecting.

キーワード：溶存態セシウム137、福島第一原子力発電所、渓流水、土壌水、地下水

Keywords: Dissolved Cs-137, FDNPP, stream water, soil water, groundwater

侵食プロット観測およびレーザースキャン測量により推定した斜面スケールのCs-137流出プロセス Slope-scale Cs-137 wash-off processes estimated with erosion plot observations and laser-scanning

*脇山 義史¹、馬目 凌²、恩田 裕一³、吉村 和也⁴

*Yoshifumi Wakiyama¹, Ryo Manome², Yuichi Onda³, Kazuya Yoshimura⁴

1.福島大学環境放射能研究所、2.筑波大学生命環境科学研究科、3.筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、4.日本原子力研究開発機構福島研究開発部門

1.Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University, 2.Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, 3.Center for Researches in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, 4.Sector of Fukushima Research and Development, Japan Atomic Energy Agency

原発事故により陸域に沈着した放射性セシウムの移行を予測するためには、土砂移動にともなう放射性セシウムの移行量とプロセスを把握することが重要である。既往研究では土壌侵食プロットを用いた観測により放射性セシウムの流出量が調査された。これに関連した長期的な観測例は少なく、季節性や長期的な時間変化について不明の点が多い。土砂移動と放射性セシウムとの関係を調べた研究では、斜面上におけるリルの形成や土砂の堆積などの侵食プロセスが流出する土砂の量や含まれる放射性セシウムの濃度に影響することが知られている。土壌侵食に関する研究では、侵食プロットなどの施設を用いた侵食量の直接的な観測に加えて、画像解析や磁鉄鉱などのトレーサーを援用して詳細なプロセスを解明する試みが行われてきた。近年ではレーザープロファイラによる地形計測手法が急速に発達しており、これらの土壌侵食の解析手法を援用することで放射性セシウムの移行のより詳細なプロセスを明らかに出来ると考えられる。本研究では、斜面スケールでの土砂移動にともなう放射性セシウムの移動プロセスを明らかにすることを目的として、福島原発により放射性セシウムが沈着した地点に土壌侵食プロットを設置して土砂およびCs-137流出量の観測を行うとともにレーザープロファイラによる地表面の地形変化を追跡し、土砂移動にともなうCs-137流出の時間変化および季節性について考察を行った。調査は福島県川俣町山木屋地区内のタバコ畑に設置した土壌侵食プロットを対象として行った。対象地点の第3次航空機モニタリング調査によるCs-137初期沈着量は Bq/m^2 、斜面勾配は 4.4° である。土壌侵食プロットは縦22.13 m、幅5 mの受食域とその下端の量水施設と土砂捕捉用のタンクからなっており、表面流量の計測、流出土砂の回収ができる仕組みとなっている。2011年7月から2014年8月の間、およそ2週間から1か月の間隔で流出した土砂を回収し、乾燥・秤量後、土砂のCs-137濃度を測定した。また、プロットの近傍に雨量計を設置して、降水量を観測し、降水量データに基づいてUSLEに使用される侵食力を算出した。レーザープロファイラによる地形計測はプロット内の受食域を対象として、観測期間中10回の地形計測を行った。取得した地形データをラスターデータ化し、計測回ごとの1cmメッシュDEMを取得するとともに、前計測回のDEMデータとの差分により、地表面起伏変化量を算出した。なお、地表面起伏変化量は正の値が地表面上昇、負の値が地表面低下を示す。観測期間中の積算流出土砂量は 9.8 kg/m^2 であり、積算セシウム137流出量は 107 kBq/m^2 であった。土砂のCs-137濃度の平均値は 13 kBq/kg で変動係数は38%であった。Cs-137濃度の時間変化を原発事故からの経過年数を変数とする指数関数は減少傾向を示したが、その決定係数 $R^2=0.075$ であった。季節性に着目してCs-137濃度の傾向を見ると、春から秋にかけては減少や横ばいの傾向を示し、冬の期間を経ることで濃度が増加する傾向が見られた。一般的に未攪乱土壌中ではCs-137濃度は表層から鉛直下方に向けて指数関数的に減少する深度分布を示すため、表面侵食によって流出する土砂のCs-137濃度は侵食の進行とともに減少すると考えられたが、本研究の結果で減少傾向が明瞭とならなかったのはCs-137濃度が季節的な変動を示したためであると考えられる。プロット内の地表面起伏の変化に着目すると、春から夏にかけてリルが拡大し、夏から秋の間は地表面変化が小さく、冬から春の間では地表面が上昇する傾向が見られた。レーザープロファイラによる地表面起伏量は同期間中の積算流出土砂量との間に負の相関を示したが、Cs-137濃度とは有意な相関は見られなかった。しかし、浮遊土砂と堆積土砂のCs-137濃度について、それぞれ寒候期と暖候期に分けて地表面起伏量との関係を見ると、暖候期は地表面起伏変化量と土砂のCs-137濃度が弱い負の相関を示すのに対し、寒候期には土砂のCs-137濃度が高くなる傾向が見られた。この関係から、暖

候期はリルからCs-137濃度が相対的に低い土砂が定常的に供給されるが、規模の大きい降水イベント時には比較的Cs-137濃度の高いインターリル域からの寄与が増加したことが考えられる。一方、寒候期には表土の凍結や融解などによってプロット全体の受食性が高まり、その後の融雪や降雨にともなってインターリル域からの寄与が増加したと考えられる。以上のように、本研究の結果は放射性セシウムの移行には季節性があることを示しており、将来予測の精度向上のためには斜面スケールにおけるCs-137移動プロセスについての複数年の観測が有用であることが示唆される。

キーワード：レーザーสキャン、土壤侵食、セシウム137

Keywords: Laser scanning, Soil erosion, Cs-137

河川に流出する放射性物質の濃度とフラックスと土地利用の関係

:チェルノブイリ調査との比較

Landscape Controls Fate of Fukushima Contamination

*恩田 裕一¹、谷口 圭輔²、吉村 和也³、脇山 義史⁴*Yuichi Onda¹, Keisuke Taniguchi², Kazuya Yoshimura³, Yoshifumi Wakiyama⁴

1.筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、2.福島県環境創造センター、3.日本原子力研究開発機構、4.福島大学環境放射能研究所

1.Center for Research on Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, 2.Centre for Environmental Creation, Fukushima Prefecture, 3.Japan Atomic Energy Agency, 4.Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University

河川・水系を通じて流下する放射性物質は、外部被ばく・内部被ばくの算定のためにもきわめて重要となる。近年、河川水系中において、浮遊砂、溶存体に含まれる放射性物質濃度は大きく減少しつつある。河川を通じた放射性セシウムの濃度の低下については、Smith (2004)を中心にヨーロッパの河川における濃度変化とその要因についてとりまとめられており、流域内の水域面積、土壌、土地利用との関連について示唆されているものの、実測値による検証は、あまりなされていないのが現状である。そこで本研究においては、上流の土地利用とそれぞれの土地利用から流出するセシウム濃度の変化、その寄与の算定から、河川を通じて流出する放射性物質濃度・フラックスの変化とその要因の推定、およびチェルノブイリの研究例との比較を行う。さらに、この算定に基づいた今後の放射性物質濃度の予測についても試みる。

キーワード：セシウム、福島、水系

Keywords: Cs-137, Fukushima, watershed

福島県土壌試料における高精度ウラン同位体比測定
Uranium isotope ratio in Fukushima soil samples

*賞雅 朝子¹、サフー サラタ クマール¹、中井 俊一²、新江 秀樹¹

*Asako Takamasa¹, Sarata Kumar Sahoo¹, Shun'ichi Nakai², Hideki Arae¹

1.放射線医学総合研究所、2.東京大学地震研究所

1.National Institute of Radiological Sciences, 2.Earthquake Research Institute

There were huge amounts of radionuclides such as fission products released into atmosphere due to accident of Fukushima Daiichi nuclear power plant (FDNPP). A few studies have been reported about actinide elements released from FDNPP accident as fingerprint of isotope ratio using accelerator mass spectrometry (AMS). Levels of actinides were at much less concentration than ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr. However, we need to consider the influence of alpha ray particles on a long-term contamination in environment. We have focused on ²³⁶U isotope, and its measurement using a thermal ionization mass spectrometry (TIMS), which may be used as an index of a nuclear accident. We measured highly precise uranium isotope ratios in the soil samples from Fukushima prefecture with high Cs concentration using Isotopx Ltd. Phoenix TIMS.

We also measured Kobe and Okinawa soil samples before the accident as Global Fallout and geological standard sample as JSd-2 and NIST 4350b. Chernobyl and Kosovo samples were measured to notice artificial radioactive materials.

Soil samples were decomposed by a microwave (ETHOS one) digestion method with mixed acids after ashing. Uranium fraction from the dissolved sample was chemically separated by UTEVA-UTEVA resin chromatography to minimize interferences of Fe and Pb prior to isotope ratio measurement using TIMS and MC-ICP-MS.

Results of ²³⁵U/²³⁸U and ²³⁴U/²³⁸U ratio by TIMS and MC-ICP-MS couldn't reveal any significant difference between Fukushima soil samples and Global Fallout samples.

²³⁶U/²³⁸U detection limit of TIMS were considered by a standard solution from U ore and could be considered that was not under the influence of Global Fallout. We could measure ²³⁶U/²³⁸U ratio in U ore samples from 10^{-10} ~ 1.5×10^{-9} range. The yield for JSd-2 and NIST 4350b were noticed to be 4.2 - 7.8×10^{-8} and Kobe and Okinawa as an index of global atomic fallout were 6.5 - 9.8×10^{-9} . The detailed results will be presented.

キーワード：福島県土壌試料、ウラン同位体比、TIMS、²³⁶U

Keywords: Fukushima soil sample, Uranium isotope, TIMS, ²³⁶U

福島第一原発事故に関わる放射線・放射能測定メタデータベースの構築

Development of meta-database of radiation and radioactivity monitoring data for Fukushima Dai-ichi reactor accident

*伊藤 好孝¹

*Yoshitaka Itow¹

1.名古屋大学宇宙地球環境研究所

1.Institute for Space-Environmental Research, Nagoya University

2011年3月11日に発生した東日本大震災により福島第一原発から多量の放射性物質が飛散する事故が行った。付近住民の初期被ばく推定の観点から、事故当時の放射性物質の飛散状況を、モデルと当時の放射線測定データと付き合いながら推定する努力が行われている。これら多岐にわたる測定データを相互検索できるメタデータ検索システムを構築し、同時に測定データ自身の恒久アーカイブ化を図る「福島第一原発事故に関わる放射線・放射能測定データアーカイブ」の試みについて報告する。

キーワード：放射線、メタデータベース、福島第一原発事故

Keywords: Radiation, Meta-database, Fukushima Dai-ichi reactor accident

福島県を流れる河川における放射性セシウムの動態調査

Survey on riverine Cs-137 transport in Fukushima prefecture

*谷口 圭輔¹、倉元 隆之¹、恩田 裕一²

*Keisuke Taniguchi¹, Takayuki KURAMOTO¹, Yuichi Onda²

1.福島県環境創造センター、2.筑波大学

1.Centre for Environmental Creation Fukushima Prefecture, 2.University of Tsukuba

福島県では、農業・工業用水等に河川水が広く使われている。多くの河川で、飲用基準に対し放射性セシウム濃度は十分低下しているものの、出水時の再堆積による空間線量への影響や、農産物・生態系を介した放射性セシウム移行などの評価のため、継続した観測が必要とされる。

そこで、阿武隈水系および浜通りに30の観測地点を設け、浮遊砂サンプラーによる浮遊砂採取を実施し、懸濁態放射性セシウム濃度を測定した。加えて、流量・濁度データを取得し、土砂および放射性セシウムのフラックスを算出した。

懸濁態Cs-137濃度は、事故後低減傾向が続くものの、2012年以降減少速度は低下している。また、除染が進行中の口太川上流部では、2014年以降濃度の急激な低下が見られた。農地の除染で、表土のはき取りと客土が行われたこととの関係が示唆される。

2015年9月に、台風の接近に伴う豪雨イベントが起き、阿武隈川下流域では、2011年9月の台風（Roke）による出水と同程度の水位を記録した。しかし、Cs-137濃度が低下しているため、懸濁態のCs-137フラックスは2011年9月に比べ1桁低い値となった。

キーワード：放射性セシウム、河川

Keywords: Radiocaesium, River

河川浮遊砂の放射性セシウム捕捉ポテンシャル (RIP) と陽イオン交換容量・有機物濃度・粒径・鉱物組成などの因子との関係

Relationship between radiocesium interception potential (RIP) and other parameters such as cation exchange capacity, organic matter content, particle size, and mineral composition

*栗原 雄一¹、高橋 嘉夫¹、チャオフィ ファン¹、谷口 圭輔²、三浦 輝¹、恩田 裕一³

*Yuichi Kurihara¹, Yoshio Takahashi¹, Fan Qiaohui¹, Keisuke Taniguchi², Hikaru Miura¹, Yuichi Onda³

1.東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻、2.福島県環境創造センター、3.筑波大学アイソトープ環境動態研究センター

1.Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The university of Tokyo,

2.Centre for Environmental Creation Fukushima Prefecture, 3.Center for Research on Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba

The solid-water distribution of radiocesium can be expressed by the distribution coefficient (K_d), but the K_d value is conditional depending on the condition of the solution such as major ion composition and concentration of cesium in the aqueous phase. On the other hand, radiocesium interception potential (RIP) is primarily important to show the solid-water distribution of radiocesium, because of the low total concentration of cesium in aqueous environment, where frayed-edge site is not saturated by the cesium.

In this study, the effects of cation exchange capacity (CEC), organic matter content, particle size, and mineral composition on RIP were discussed. Based on the laboratory studies using suspended sediment (SS) samples collected from various rivers in Fukushima area, we found the results from (i) to (iv):

(i) RIP is positively correlated with CEC, but some RIP values at higher CEC region were lower than those at lower CEC region, because the latter values were obtained from the SS with high organic content.

(ii) RIP is positively correlated with surface area, or negatively correlated with average particle size of SS samples. However, some RIP values with large surface areas were out of the trend written above, possibly because the smaller particles did not contain weathered mica that can strongly adsorb cesium.

(iii) However, the correlation of RIP against mineral composition indicated by the mica/quartz ratio is not very clear, suggesting that the role of bulk mineral content is not very clear. It is possible that the capacity needed for the cesium in water is not that large, which suggests that a small amount of mica-type mineral is sufficient to show the high affinity for cesium.

(iv) Finally, there was clear negative correlation between RIP and the organic content. This effect is explained by the coating of minerals by humic materials, which inhibits adsorption of cesium on the SS samples, as suggested in our previous study (Fan et al., 2014).

We found that the four parameters more or less affect the RIP value. Thus, multiple regression equation is needed to take into account the effects of the four parameters to obtain empirically the RIP value in each environment. We will give the results of the multiple regression equation in the presentation, by which we can discuss important parameters that control adsorption behavior of radiocesium in Fukushima area.

キーワード：福島第一原子力発電所、放射性セシウム捕捉ポテンシャル、セシウム、陽イオン交換容量

Keywords: Fukushima Dai-ichi nuclear power plant, RIP, cesium, cation exchange capacity

Source Identification and Simulation of Radiocesium Infiltration into Separate Sewer System after Nuclear Power Plant Accident

*Mochamad Adhiraga Pratama¹, Minoru Yoneda¹, Yoko Shimada¹, Yasuto Matsui¹, Yosuke Yamashiki

1.Department of Environmental Engineering, Kyoto University

Following the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident, numerous amount of radiocesium was emitted and infiltrates separate sewer system in the surrounding urban areas. To simulate the infiltration of radiocesium into separate sewer, we developed the Improved Model Radionuclide Migration in Urban Environments and Drainage Systems (iMUD) bases on model Radionuclide Migration in Urban Environments and Drainage Systems (MUD), which was only applicable for combined sewer system. In this study, we attempted to predict the concentration of radiocesium in the final sludge of wastewater treatment plant (WWTP).

iMUD is a multi compartment model, consits of urban and WWTP sub-model and divides the surface of urban area into five components according to the type of surface layer (roof, paved, soil, tree, wall). Firstly we identified the mechanism of radiocesium infiltration, which after several analysis, the mechanisms are Rainfall-Derived Inflow and Infiltration (RDII) and Human excretion. There after, the model was applied on the two largest urban areas in Fukushima Prefecture, Fukushima and Koriyama. Finally, we compared the predicted values of concentration of radiocesium in the sludge with the three years obeserved data in order to validate the model.

Based on the calculation of Nash Efficiency Coefficient (n), the model showed a satisfactory result, which for Fukushima WWTP case n value of 0.85, and for Koriyama WWTP case, n value of 0.84 were achieved. In addition, R^2 value of 0.85 and 0.86 were achieved for Fukushima and Koriyama respectively. We predicted that the sludge containing radiocesium reaches the standard limit after 3 years for Fukushima and 4 years for Koriyama.

Keywords: radiocesium, separate sewer system, simulation

2014年夏季の北太平洋亜寒帯域および北極海における福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウム¹³⁴Csの分布

Fukushima-derived radiocesium in the North Pacific subarctic region and Arctic Ocean in summer 2014

*熊本 雄一郎¹、青山 道夫²、浜島 靖典³、西野 茂人¹、村田 昌彦¹、菊地 隆¹*Yuichiro Kumamoto¹, Michio Aoyama², Yasunori Hamajima³, Shigeto Nishino¹, Akihiko Murata¹, Takashi Kikuchi¹

1.国立研究開発法人海洋研究開発機構、2.福島大学、3.金沢大学

1.Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 2.Fukushima University, 3.Kanazawa University

2011年3月11日に発生した巨大地震とそれに引き続く大津波は、福島第一原子力発電所（FNPP1）の核燃料露出と炉心損傷を引き起こした。その結果、多くの放射性セシウム（¹³⁴Csと¹³⁷Cs）がFNPP1より漏えいし北太平洋に放出された。これまでの観測研究によって、放出された放射性セシウムは北太平洋海流に沿って北太平洋中緯度の表層を西から東に移行しつつあることがわかっている。しかし、その海洋内部への拡がりについては、観測データの不足からまだ十分には解明されていない。我々は、事故から約3年半後の2014年7月～10月に、北太平洋亜寒帯域および北極海において、表面から深度約800mまでの海水中溶存放射性セシウムの濃度を測定したのでその結果を報告する。海水試料は、海洋地球観測船「みらい」MR14-04及びMR14-05航海において採取した。表面水は、バケツ採水及び連続ポンプ汲上採水によって、鉛直採水はニスキン採水器を用いて、各20～40リットルを採取した。採取した海水は、その一部を船上でろ過した。その後、濃硝酸を添加して陸上の実験室に持ち帰った。陸上の実験室（海洋研究開発機構むつ研究所、日本海洋科学振興財団）では海水中の放射性セシウムをリンモリブデン酸アンモニウム共沈法によって濃縮し、金沢大学低レベル放射実験施設の低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器を用いてその濃度を測定した。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。北極海の表面から深度200mでは約1.5 Bq/m³、200～800mでは約3.5 Bq/m³の¹³⁷Csが測定された。これらはFNPP1事故前から観測されており、大気中核実験（主に1950～60年代）と欧州の核燃料再処理工場からの漏洩（主に1980～90年代）に由来したものと考えられる。一方で、FNPP1事故にのみ由来する¹³⁴Csはほぼ全層で検出下限値（約0.1 Bq/m³）以下であったが、極低濃度（0.07 Bq/m³）であるが深度150mにおいてのみ有意に検出された。同深度は塩分極小に対応しており、太平洋水を起源とする中層水に相当する。一方、2012年および2013年の鉛直観測では全層にわたって¹³⁴Csは検出されていない。ベーリング海の表面水では～0.3 Bq/m³の¹³⁴Csが検出されたが、これは過去2年間に観測された濃度とほぼ同程度であった。これらの結果は、FNPP1事故由来の¹³⁴Csがベーリング海から北極海に移行するために、事故から約3年半を要したことを示唆している。亜寒帯域の北緯47度線に沿った観測点の表面水中¹³⁷Cs濃度は、西部亜寒帯域で～2 Bq/m³と低く、西経約150度を中心とした東部で～8 Bq/m³と相対的に高くなっていた。¹³⁷Cs濃度は深度とともに漸減し、深度800mでは東西を問わず約0.2 Bq/m³であった。FNPP1事故にのみ由来する¹³⁴Csは、亜寒帯域の全観測点で深度200m以浅の表面混合層でのみ検出された。このことは、200m以深で観測された¹³⁷CsはFNPP1事故由来ではなく、主に核実験由来であることを示している。¹³⁴Cs濃度は西部亜寒帯で～0.3 Bq/m³であったのに対して、西経約150度を中心とした東部では～2.5 Bq/m³と相対的に高くなっていた。この相対的に¹³⁴Cs濃度の高い水塊は、2012年夏季には日付変更線付近に存在していたことが報告されている。これらの観測結果は、事故直後の日本近海への沈着また汚染水流出に起因する¹³⁴Cs高濃度水が、2014年夏季にはさらに東へ輸送されて西経150度を中心とする東部亜寒帯域まで到達したことを示唆している。この本研究は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、北太平洋亜寒帯域

Keywords: Fukushima-Dai-ichi Nuclear Power Plant, Radiocesium, North Pacific subarctic region

2011-2013年の西部北太平洋における放射性セシウム分布とその要因

Factors controlling radiocaesium distributions in the western North Pacific in 2011-2013

*福田 美保¹、青野 辰雄¹、山崎 慎之介¹、本多 牧生²、吉田 聡¹、川上 創²、才野 敏郎²*Miho Fukuda¹, Tatsuo Aono¹, Shinnosuke Yamazaki¹, Makio C Honda², Satoshi Yoshida¹, Hajime Kawakami², Toshiro Saino²

1.放射線医学総合研究所、2.海洋研究開発機構

1.National Institute of Radiological Sciences, 2.Japan Agency for Marine Earth Science and Technology

The 2011 off the Pacific coast of Tohoku Earthquake and subsequent tsunami on 11 March 2011 caused damages that led to the accident at TEPCO's Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station (FDNPS). Large amounts of radionuclides were dispersed by hydrogen explosions, and radionuclides also leaked from the FDNPS into the terrestrial and marine environments. In the approximately 5 years that have passed since the accident, radiocaesium activities in seawater in the Fukushima coastal area have decreased, but are about 10 times higher than before the accident [1]. There is some controversy about factors affecting radiocaesium in the open ocean, particularly in subarctic area. To improve the accuracy of the diffusion simulation predictions in the ocean, more data are required from many regions regarding temporal changes. This study aimed at elucidating distribution and behavior of dissolved radiocaesium in seawater collected from the western North Pacific during the four sampling periods in 2011- 2013 (Period I; 14 April to 5 May 2011, Period II; 27 June to 4 August 2011, Period III; 4 June to 12 July 2012 and Period IV; 9 July to 29 July 2013). Collected seawater samples were filtered through a 0.2- μ m pore size filter and was concentrated by means of improved ammonium phosphomolybdate (AMP) method [2]. In upper-layer seawater (water depth 0-10 m), the dissolved ¹³⁷Cs activities were relatively high off the Fukushima Prefecture in Periods I and II. In Periods III and IV, the activities at most of monitoring stations were same order. The activity profile patterns at most of stations decreased with increasing water depth were constant at all depth. The activity in middle-layer (water depth 100 or 200 m) was relatively higher than those in upper-layer at KEO in Period II and at JKEO in Period III. At S1, the activity profile patterns were its maximum layer at water depth 100-400 m in Periods III and IV. It seems that maximum layers of ¹³⁷Cs activity at S1 and KEO had happened because upper-layer seawater including radiocaesium had subducted more deep associated with formation of the North Pacific subtropical mode water. In upper-layer, integrated ¹³⁷Cs amounts in 35° N-40° N and 140° E-150° E, which zone is located just eastward from the Fukushima Prefecture, were highest compared to those in another zones until Periods II and accounted for more than 50 % of the total ¹³⁷Cs amounts of each sampling periods. In Periods III and IV, the amounts in divided all zones were small order. It is possible that the amount distributions influenced on several factors such as the location and strength of Kuroshio and Oyashio current and semipermanent eddy.

[1] Nuclear Regulation Authority, (2015) Environmental radioactivity database <http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top>, [2] Aoyama and Hirose (2008) Radiometric determination of anthropogenic radionuclides in seawater, in: Analysis of Environmental Radionuclide,

In P. P. Pavel (Ed.), Radioactivity in the Environment (pp. 137-162). Hungary: Elsevier.

This work was partially supported by Grants-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas, the Ministry of Education Culture, Sports, Science and Technology (MEXT), Japan (nos. 24110004, 24110005) and Research and Development to Radiological Sciences in Fukushima Prefecture.

キーワード：福島第一原発事故、溶存態放射性セシウム、西部北太平洋

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident, dissolved radiocaesium, western North Pacific

福島第一原子力発電所事故により海洋に漏洩した¹³⁷Csの4年半の挙動

Behaviour of oceanic ¹³⁷Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant for four and a half years

*津旨 大輔¹、坪野 考樹¹、三角 和弘¹、立田 穰¹、青山 道夫²

*Daisuke Tsumune¹, Takaki Tsubono¹, Kazuhiro Misumi¹, Yutaka Tateda¹, Michio Aoyama²

1.一般財団法人 電力中央研究所、2.福島大学 環境放射能研究所

1. Central Research Institute of Electric Power Industry, 2. Fukushima University Institute of Environmental Radioactivity

A series of accidents at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (1F NPP) following the earthquake and tsunami of 11 March 2011 resulted in the release of radioactive materials to the ocean by two major pathways, direct release from the accident site and atmospheric deposition. Additional release pathways by river input and runoff from 1F NPP site with precipitation and were also effective for coastal zone in the specific periods before starting direct release on March 26 2011.

We reconstructed spatiotemporal variability of ¹³⁷Cs activity in the regional ocean for four and a half years by numerical models, such as a regional scale (horizontal resolution is about 1 km) and the North Pacific scale (horizontal resolution is about 10 km) oceanic dispersion models, an atmospheric transport model and river runoff model.

Direct release rate of ¹³⁷Cs were estimated for four and a half years after the accident by comparing simulated results and observed activities very close to the site. The estimated total amounts of directly release was 3.7 ± 0.7 PBq. Directly release rate of ¹³⁷Cs was the order of magnitude of 10^{14} Bq/day and decreased exponentially with time to be the order of magnitude of 10^9 Bq/day by the end of September 2015. Estimated direct release rate have exponentially reduced with constant rate since November 2011. Apparent half-life of direct release rate was estimated to be 346 days. Simulated ¹³⁷Cs activities attributable to direct release were in good agreement with observed activities, a result that implies the estimated direct release rate was reasonable, while there is no observed data of ¹³⁷Cs activity in the ocean from 11 to 21 March 2011. Observed data of marine biota should reflect the history of ¹³⁷Cs activity in this early period. The comparisons between simulated ¹³⁷Cs activity of marine biota by a dynamic biological compartment and observed data also suggest that simulated ¹³⁷Cs activity other than attributable to direct release was underestimated in this early period. We reconstructed the history of ¹³⁷Cs activity in this early period with direct release, atmospheric deposition, river input, runoff from 1F NPP site with precipitation. River runoff process is still unknown in the early period because there were no observed data. We assumed that 10% of deposited ¹³⁷Cs on each river basin run off thorough rivers along the Miyagi, Fukushima and Ibaraki coasts. The simulation with overestimated river runoff rate (10 %) suggests that the river flux of ¹³⁷Cs to the ocean was not effective to the ¹³⁷Cs activity in the ocean in this early period. We estimated the release rate of ¹³⁷Cs with rain water runoff from the 1F NPP site from the observed ¹³⁷Cs activity before 26 March 2011 and precipitation data close to 1F NPP site. Simulation with additional release of ¹³⁷Cs from the 1F NPP site suggests that additional release from 1F NPP site was effective to the ¹³⁷Cs activity adjacent to 1F NPP and 2F NPP. Simulated atmospheric depositions of ¹³⁷Cs on a regional ocean by 9 regional atmospheric transport models still have huge uncertainties. It is also important to estimate the deposition process on a regional ocean to understand contamination process of marine biota.

In the North Pacific scale, ¹³⁷Cs activity in the intermediate water increased due to the Subtropical Mode Water (STMW) formation. ¹³⁷Cs is a useful tracer to detect the STMW formation. Not

only the direct release but also the atmospheric deposition are essential for the distribution of ^{137}Cs activity in the North Pacific. Five-member, ensemble simulation with high resolution can represent the increase of ^{137}Cs activity in the intermediate water.

キーワード：福島第一原子力発電所事故、海洋分散、セシウム-137、領域海洋モデル、海洋大循環モデル

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident, Oceanic dispersion, Cesium-137, Regional Ocean Model, Ocean General Circulation Model