

## 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>; HATANNO, 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2 mm 次いで100 μm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の、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、マイクロマンニユ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 $\mu$ 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 $\mu$ 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

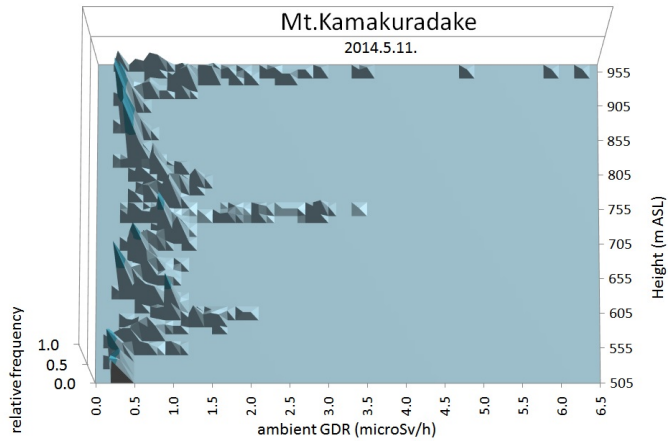
Kaneyasu, N. and Hososhima M. (2015), A new insight into the deposition mechanism of airborne radionuclides from the Fukushima accident, Proceedings of JpGU 2015.

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