

## 福島第一原発近傍の2地点におけるSPM計使用済みテープろ紙の分析による放射性核種の動態

### Time series of atmospheric radiocesium just after the accident at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

\*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>、森口 祐一<sup>4</sup>、中島 映至<sup>5</sup>

\*Haruo Tsuruta<sup>1</sup>, Yasuji Oura<sup>2</sup>, Mitsuru Ebihara<sup>2</sup>, Toshimasa Ohara<sup>3</sup>, Yuichi Moriguchi<sup>4</sup>, Teruyuki Nakajima<sup>5</sup>

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

東電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、 $\beta$ 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セシウムの分析を、これまで東北地方南部と関東地方南部の99地点で実施して、その解析結果とデータ集を2つの論文(Tsuruta et al., Sci. Rep., 2014; Oura et al., JNRS, 2015)で公開した。その後、第一原発から約4km及び16km近傍に位置したSPM局2地点(双葉、楡葉)における事故直後のテープろ紙の提供を受け、SPM中の放射性セシウムを分析した結果の概要を報告する。まず、SPM計が東日本大震災直後も正常に作動していたかどうかを調べて慎重に検討した結果、信頼できると判断した。そこで、2011年3月12-23日(楡葉は3月14-23日)の期間、1時間連続採取されたSPM試料中のCs-134とCs-137濃度を分析した。また、これらのデータを総合的に解析するにあたり、福島県のモニタリングポスト(MP;上羽鳥、山田、繁岡、山田岡など)と第一・第二原発のMPの空間線量率、気象庁のAMeDAS地点と1000hPaの風向風速なども利用した。その結果、これまでの99地点のデータだけではわからなかった、原発近傍の大気中放射性セシウム濃度の詳細な時間変化が、初めて明らかになった。原発より北西方向に位置する双葉では、Cs-137が高濃度( $>100 \text{ Bq m}^{-3}$ )となったピークは、3月12-13日、15-16日、18-20日に6回も測定され、その多くはプルーム/汚染気塊として、さらに北西～北方へ運ばれたことが明らかになった。また、原発より南側に位置する楡葉でも、高濃度のピークが、3月15-16日、20-21日に6回測定され、その多くは、プルーム/汚染気塊として、風下側の関東地方か福島県南部に運ばれた。これらのプルーム/汚染気塊は、これまでの論文で明らかにしたプルーム/汚染気塊と良い対応が見られたが、今回の測定で新たに見つかったものも、いくつか存在した。また、近くのMPの空間線量率のピークとCs-137濃度のピークとを比較した結果、両者のピーク時間がほぼ一致し、良い対応関係が見られた。とくに、3月12日午後3時における双葉でのCs-137の高濃度のピークは、近くのMPで期間中に最大となった空間線量率のピーク時間とよく一致し、放射性物質のFD1NPP近傍での動態が、詳細に明らかになった。謝辞：2地点のテープろ紙を提供して下さった福島県に感謝します。この研究は、文科省科研費「ISET-R」と環境省推進費「5-1501」で実施中である。

キーワード：福島第一原子力発電所、放射性セシウム、浮遊粒子状物質、大気汚染常時監視網、経時変化  
Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Radiocesium, Suspended particulate matter, Air pollution monitoring network, Time series

# SPMテープ濾紙より分離された放射性エアロゾルの放射光X線複合分析による化学・物理的性状解明

## Investigation of chemical and physical properties of radioactive aerosols sampled from SPM tape filters using multiple synchrotron radiation X-ray analyses

\*小野崎 晴佳<sup>1</sup>、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>、足立 光司<sup>2</sup>、五十嵐 康人<sup>2</sup>、大浦 泰嗣<sup>3</sup>、海老原 充<sup>3</sup>、宮坂 貴文<sup>4</sup>、中村 尚<sup>4</sup>、鶴田 治雄<sup>5</sup>、森口 祐一<sup>6</sup>

\*seika onozaki<sup>1</sup>, Takahiro Ono<sup>1</sup>, Yushin Iizawa<sup>1</sup>, Yoshinari Abe<sup>1</sup>, Izumi Nakai<sup>1</sup>, Kouji Adachi<sup>2</sup>, Yasuhito Igarashi<sup>2</sup>, Yasuji Oura<sup>3</sup>, Mitsuru Ebihara<sup>3</sup>, Takafumi Miyasaka<sup>4</sup>, Hisashi Nakamura<sup>4</sup>, Haruo Tsuruta<sup>5</sup>, Yuichi Moriguchi<sup>6</sup>

1. 東京理科大学、2. 気象庁気象研究所、3. 首都大学東京、4. 東京大学先端科学技術研究センター、5. リモート・センシング技術センター、6. 東京大学

1. Tokyo University of Science, 2. Meteorological Research Institute, 3. Tokyo Metropolitan University, 4. Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo, 5. Remote Sensing Technology Center of Japan, 6. The University of Tokyo

2011年3月11日の東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所の事故により、膨大な量の放射性物質が環境中に放出された。大気中に放出された放射性物質の一形態として、「Csボール」と呼ばれる放射性Csを含む球状微粒子が注目を集めている。Csボールは2011年3月14日から15日にかけてつくば市内で捕集されたエアロゾル中から初めて発見され<sup>1)</sup>、燃料由来の核分裂生成物を含む非水溶性のガラス状物質であることが明らかとなっている<sup>2)</sup>。近年の調査により、同様の放射性粒子が福島県内の土壌<sup>3)</sup>を始めとする様々な環境試料中に幅広く存在することが示唆されているが、東京を含む関東地方における飛散状況は明らかではない。そこで本研究では、SPM（浮遊粒子状物質）が捕集された関東地方の複数の大気汚染常時監視測定局でのテープ濾紙を試料<sup>4)</sup>として、放射性エアロゾルの分離を行い、その化学・物理的性状を非破壊で分析した。SPring-8の放射光マイクロビームX線をプローブとして、蛍光X線分析法（SR- $\mu$ -XRF）により粒子の化学組成を、X線吸収端近傍構造分析（SR- $\mu$ -XANES）およびX線回折分析法（SR- $\mu$ -XRD）により化学状態を調べた。

本研究でSPM濾紙試料から分離された放射性粒子は、いずれも直径1  $\mu$ m前後の球形という共通した物理的性状を有していた。<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs放射能比（約1.0）に基づき、これらの粒子は福島第一原発2号機または3号機から放出されたと予想される。これらの性状は、先行研究<sup>1,2)</sup>で報告されたCsボールの性状とよく一致しているが、約2  $\mu$ mとされるCsボールに比べて直径がやや小さい。SR- $\mu$ -XRFにより、全ての粒子から核燃料の核分裂生成物由来とも考えられる様々な重元素（Rb, Mo, Sn, Sb, Te, Cs, Ba etc.）が共通して検出され、いくつかの粒子は微量のUを含むことが明らかとなった。さらに我々は粒子から検出された4種類の金属元素

（Fe, Zn, Mo, Sn）についてSR- $\mu$ -XANESから化学状態を調べたが、いずれの分析結果も高酸化数のガラス状態で存在することを示唆していた。またSR- $\mu$ -XRDからも、これらの粒子が非晶質であることが確かめられた。このように、関東地方のSPM濾紙から採取された粒子とCsボールの間に化学的・物理的性状の明確な類似性が見られたことから、我々は3月15日の時点で関東広域にCsボールと同等の放射性物質が飛来していたと結論付けた。同時にこれらの分析結果は、燃料由来の可能性のあるUが事故直後の時点で関東の広い範囲にまで到達していたことを実証するものである。

当日の発表では、流跡線解析による放出時間・飛散経路の推定を通じて、関東地方へのCsボールの飛散について多角的な考察を行う予定である。

謝辞：SPM計テープ濾紙を提供して下さった全ての自治体に感謝します。

1) K. Adachi *et al.*: *Sci. Rep.* **3**, 2554 (2013).

2) Y. Abe *et al.*: *Anal. Chem.* **86**, 8521 (2014).

3) Y. Satou *et al.*: *Anthropocene* **14**, 71 (2016).

4) H. Tsuruta *et al.*: *Sci. Rep.* **4**, 6717 (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, aerosol

## Unsteady source term estimation of the Fukushima dai-ichi release using contributed radiological measurements

\*Carolynne Hultquist<sup>1</sup>, Guido Cervone<sup>1</sup>

1. Geoinformatics and Earth Observation Laboratory and the Institute for CyberScience, Pennsylvania State University Main Campus

A new methodology is presented for reconstructing the unsteady release rate of an atmospheric nuclear release using a Lagrangian atmospheric transport and dispersion (T&D) model, contributed concentration measurements, and stochastic search techniques. The methodology was applied to the reconstruction of the 2011 Fukushima nuclear release using an atmospheric T&D model and contributed radiation data from the Safecast citizen science project.

First, the Safecast contributed measurements were compared to official aerial surveys completed by the Department of Energy (DOE) and the National Nuclear Security Administration (NNSA) in 2011. It is shown that the Safecast data provides a reliable spatial estimation of radiation concentration when compared to official data.

Then a T&D model is run to simulate the nuclear release using high resolution terrain and meteorological data. The model simulates multiple sequential releases with a constant rate. The model values are decayed to the dates for which Safecast data are present, and an error is then computed between the observed and simulated concentrations. A statistical process is performed to find scalar multipliers that minimize the error between observed and simulated values.

The outcome of the optimization is the non-steady release rate concentration for the Fukushima nuclear release over land. This is because the release rate is estimated for primarily land-based data so the estimation does not include consideration for the plume of radiation that spread over the ocean.

Environmental concerns and human impacts can be better addressed with long-term monitoring that confirms the prediction of models representing dynamic behavior of radionuclides dispersed in the environment.

Keywords: dispersion, radiation, fukushima, spatio-temporal analysis

## 夏季-秋季における放射性セシウム大気再飛散のメカニズム

### Mechanism of resuspension of radiocesium in summer and autumn

西岡 拓哉<sup>1</sup>、\*北 和之<sup>1</sup>、林 奈穂<sup>1</sup>、佐藤 武尊<sup>1</sup>、五十嵐 康人<sup>2</sup>、足立 光司<sup>2</sup>、財前 祐二<sup>2</sup>、豊田 栄<sup>3</sup>、山田 桂太<sup>3</sup>、吉田 尚弘<sup>3</sup>、牧 輝弥<sup>4</sup>、石塚 正秀<sup>5</sup>、二宮 和彦<sup>6</sup>、篠原 厚<sup>6</sup>、大河内 博<sup>7</sup>、阿部 善也<sup>8</sup>、中井 泉<sup>8</sup>、川島 洋人<sup>9</sup>、古川 純<sup>10</sup>、羽田野 祐子<sup>10</sup>、恩田 裕一<sup>10</sup>

Takuya Nishioka<sup>1</sup>, \*Kazuyuki Kita<sup>1</sup>, Naho Hayashi<sup>1</sup>, Takeru Sato<sup>1</sup>, Yasuhito Igarashi<sup>2</sup>, Kouji Adachi<sup>2</sup>, Yuji Zaizen<sup>2</sup>, Sakae Toyoda<sup>3</sup>, Keita Yamada<sup>3</sup>, Naohiro Yoshida<sup>3</sup>, Teruya Maki<sup>4</sup>, Masahide Ishizuka<sup>5</sup>, Kazuhiko Ninomiya<sup>6</sup>, Atsushi Shinohara<sup>6</sup>, Hiroshi Okochi<sup>7</sup>, Yoshinari Abe<sup>8</sup>, Izumi Nakai<sup>8</sup>, hiroto kawashima<sup>9</sup>, Jun Furukawa<sup>10</sup>, Yuko Hatano<sup>10</sup>, Yuichi Onda<sup>10</sup>

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

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

#### 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。重要な移行経路の一つとして地表から大気への再飛散がある。我々のグループのこれまでの観測で、山間部にある高線量地域では、夏季に大気中の放射性セシウムが増加していることが明らかになっている。夏季の森林生態系からの放射性セシウム再飛散過程を明らかにすることが本研究の目的である。

#### 観測

2012年12月より浪江町下津島地区グラウンドにおいて約10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を高時間分解能でサンプリングし、Ge検出器で放射能濃度を測定している。この大気エアロゾルサンプルの一部を取り出し化学分析及び顕微鏡観察を行っている。2015年よりグラウンドおよび林内で、バイオエアロゾルサンプリングを月に1-2回程度実施している。また、感雨センサーを用い、降水時・非降水時に分けたサンプリングも行っている。200mくらい離れた林内でも同様の観測を行っている。さらに、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、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。

#### 結果と考察

2015年夏季に行った観測と、そのサンプルのSEM-EDS分析により、夏季の大気セシウム放射能濃度は炭素質粒子濃度と正相関していることが分かった。夏季には粒径5 $\mu\text{m}$ 程度の炭素質粒子が多く、バイオエアロゾルサンプリングとその分析の結果、真菌類の孢子、特にキノコが主な担子菌類孢子が多数を占めていることが分かった。但し、降水中には、カビが多い子囊菌類孢子がむしろ多い。大気粒子サンプルの抽出実験を行った結果、夏季には放射性セシウムの半分以上が純水で抽出される形態(水溶性あるいは水溶性物質で付着した微小粒子)であることもわかった。

そこで、2016年夏季には、大気粒子サンプル中の真菌類孢子の数密度と大気放射能濃度の関係を調べるとともに、キノコを採取してその孢子の放射能濃度を測定して、大気放射能濃度が説明できるか、また大気粒子サンプルと同様に、半分程度の純水抽出性を持つか調べた。その結果、大気放射能濃度と孢子と思われる粒子の個数とは明瞭な正相関を示し、降水時には子囊菌類が増加することが示された。また、採取したキノコ孢子

の放射性セシウムは、半分以上純水で抽出され、大気粒子サンプルと同様に性質を示すこともわかった。但し、採取した胞子は放射能は高いものの、それだけで大気放射能を説明できない可能性がある。

キーワード：放射性セシウム、大気再飛散、バイオエアロゾル、真菌類胞子

Keywords: radioactive cesium, atmospheric resuspension, bioaerosol, fungi spore

## 大気モデル相互比較に基づく福島第一原発事故起源の $^{137}\text{Cs}$ の動態解析 Model inter-comparison of atmospheric Cs-137 from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

\*北山 響<sup>1</sup>、森野 悠<sup>1</sup>、滝川 雅之<sup>2</sup>、中島 映至<sup>3</sup>、速水 洋<sup>4</sup>、永井 晴康<sup>1</sup>、寺田 宏明<sup>5</sup>、斉藤 和雄<sup>6</sup>、新堀 敏基<sup>6</sup>、梶野 瑞王<sup>6</sup>、関山 剛<sup>6</sup>、Didier Damien<sup>7</sup>、Mathieu Anne<sup>7</sup>、大原 利真<sup>1</sup>、鶴田 治雄<sup>8,9</sup>、大浦 泰嗣<sup>10</sup>、海老原 充<sup>10</sup>、柴田 徳思<sup>11</sup>

\*Kitayama Kyo<sup>1</sup>, Yu Morino<sup>1</sup>, Masayuki Takigawa<sup>2</sup>, Teruyuki Nakajima<sup>3</sup>, Hiroshi Hayami<sup>4</sup>, Haruyasu Nagai<sup>1</sup>, Hiroaki Terada<sup>5</sup>, Kazuo Saito<sup>6</sup>, Toshiki Shimbori<sup>6</sup>, Mizuo Kajino<sup>6</sup>, Sekiyama Tsuyoshi<sup>6</sup>, Damien Didier<sup>7</sup>, Anne Mathieu<sup>7</sup>, Toshimasa Ohara<sup>1</sup>, Haruo Tsuruta<sup>8,9</sup>, Yasuji Oura<sup>10</sup>, Mitsuru Ebihara<sup>10</sup>, Tokushi Shibata<sup>11</sup>

1. 国立環境研究所、2. 海洋研究開発機構、3. 宇宙航空研究開発機構、4. 電力中央研究所、5. 日本原子力研究開発機構、6. 気象庁気象研究所、7. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire、8. リモート・センシング技術センター、9. 東京大学、10. 首都大学東京、11. 日本アイソトープ協会

1. National Institute for Environmental Studies, 2. Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 3. Japan Aerospace Exploration Agency, 4. Central Research Institute of Electric Power Industry, 5. Japan Atomic Energy Agency, 6. Meteorological Research Institute, 7. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, 8. Remote Sensing Technology Center of Japan, 9. University of Tokyo, 10. Tokyo Metropolitan University, 11. Japan Radioisotope Association

After the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident in March 2011, atmospheric simulation models played important roles in understanding the atmospheric behaviors of radionuclides. For the evaluation of the validity and variability of model results, model inter-comparison provides valuable and useful information. In this study, we compared results of seven atmospheric transport models to simulate atmospheric  $^{137}\text{Cs}$  released from the FDNPP. All of model results used in this analysis were submitted for the model inter-comparison project of Science Council of Japan (2014). Model reproducibility was assessed from comparison with the observed hourly atmospheric concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  at 90 sites in Tohoku and Kanto regions (Tsuruta et al., 2014).

Tsuruta et al. (2014) identified 9 plumes (P1 –P9) which passed over Tohoku and/or Kanto regions. P1, P5 and P6 passed through the northern coastal area of Fukushima prefecture to the Pacific Ocean from FDNPP in the night of March 13, morning of 18th and afternoon of 19th, respectively. P2, P4, P7 and P9 reached Kanto region in the morning of 15th, morning of 16th, afternoon of 20th and morning of 21st, respectively. P3 and P8 widely spread over Fukushima prefecture in the afternoon of 15th and night of 20th, respectively.

On average, performance of the models was the best for P2 with FA2 (fraction of simulated data that reproduced the observations within a factor of 2) of 10% ~ 40%. Model performance for P1, P3 and P8 was moderate with FA2 of 0% ~ 10%. The models generally reproduced the observed  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in plumes which widely spread inland of Tohoku or Kanto regions (P2, P3, and P8). By contrast, the models largely underestimated the observed  $^{137}\text{Cs}$  concentrations for P4, P5, and P6, which passed coastal areas of Japan.

Ensemble average of seven models showed reasonable performance for most of plumes, and no individual models reproduced better than the ensemble average for all the plumes. These results suggest that ensemble average is effective for reliable and stable simulation of radioactive plumes.

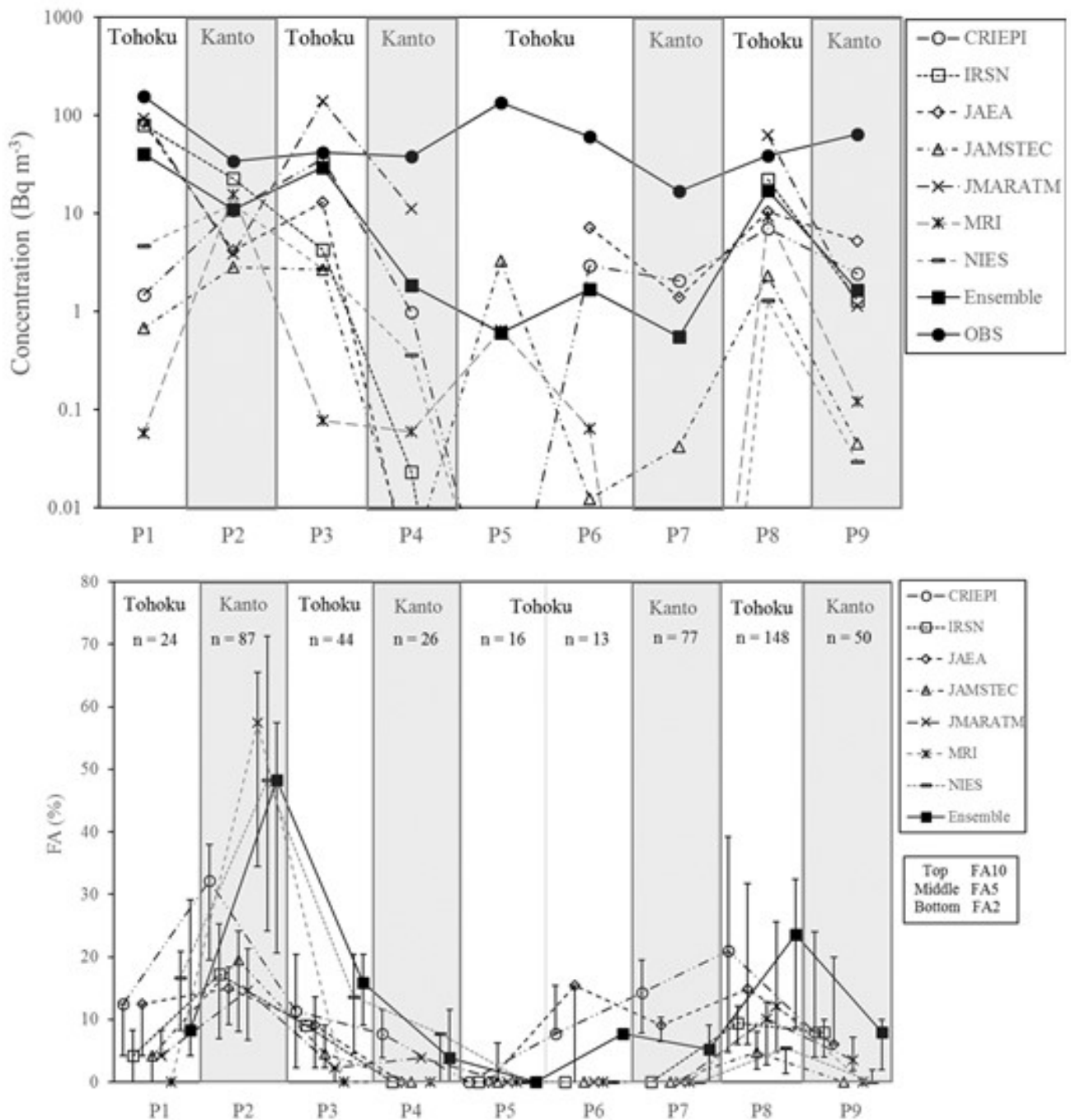
### References

Science Council of Japan, September 2, 2014.  
Tsuruta et al., Scientific Reports, 4:6717, 2014.

Fig. (top) Observed and simulated average concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  in nine radioactive plumes ([Observed- $^{137}\text{Cs}$ ]  $10 \text{ Bq m}^{-3}$ ). (bottom) Fraction of simulated data that reproduced the observations within a factor of 2, 5, and 10 (FA2, FA5, FA10, respectively).

キーワード：モデル相互比較、セシウム-137、福島第一原発事故

Keywords: Model inter-comparison, Cs-137, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident





## 福島第一原発事故に関わる放射能・放射線測定メタデータ検索システムの開発

### Development of meta-database system for radiation monitoring related to the Fukushima Dai-ichi reactor accident.

\*伊藤 好孝<sup>1</sup>

\*Yoshitaka Itow<sup>1</sup>

1. 名古屋大学宇宙地球環境研究所

1. Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University

2011年3月の福島第一原発事故によって環境に放出された放射能・放射線について、政府、自治体、企業、研究者、一般市民に至る様々な人々により多種多様な測定が行われている。これらの一部はデータベースとして整理され一般公開されているものもある。しかし大部分の測定データは存在すら知られていないものも多い。これらのデータのメタデータ情報を収集してデータベース化し、測定量、測定日時、地点などからデータの所在を検索できる「福島第一原発事故に関わる放射能・放射線測定メタデータ検索システム」を開発した。このシステムによってデータの相互利用が強化されると共に、データ自身の恒久アーカイブ化への端緒が開かれると期待される。本講演では、本メタデータ検索システムの内容と今後の展開について報告する。

キーワード：メタデータベース、福島第一原発事故、放射線測定データ

Keywords: meta-database, Fukushima Dai-ichi reactor accident, Radiation monitoring data

# 日本地球惑星科学連合一放射化学会連携による福島第一原子力発電所近傍における事故5年後の 土壌中放射性物質の調査概要

## Investigation of soil radionuclide near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant 5-year after the accident by JpGU-JNRS team

\*北 和之<sup>1</sup>、篠原 厚<sup>2</sup>、河津 賢澄<sup>3</sup>、二宮 和彦<sup>2</sup>、稲井 優希<sup>2</sup>、箕輪 はるか<sup>4</sup>、大槻 勤<sup>5</sup>、木野 康志<sup>6</sup>、小荒井 一真<sup>6</sup>、斎藤 敬<sup>7</sup>、佐藤 志彦<sup>8</sup>、末木 啓介<sup>9</sup>、高宮 幸一<sup>5</sup>、竹内 幸生<sup>10</sup>、土井 妙子<sup>10</sup>、阿部 善也<sup>11</sup>、岩本 康弘<sup>12</sup>、上杉 正樹<sup>13</sup>、遠藤 暁<sup>14</sup>、大河内 博<sup>12</sup>、勝見 尚也<sup>12</sup>、神田 晃充<sup>2</sup>、久保 謙哉<sup>15</sup>、小池 裕也<sup>16</sup>、末岡 晃紀<sup>12</sup>、鈴木 杏菜<sup>2</sup>、鈴木 正敏<sup>6</sup>、鈴木 健嗣<sup>3</sup>、高瀬 つぎ子<sup>3</sup>、高橋 賢臣<sup>2</sup>、張子 見<sup>2</sup>、中井 泉<sup>11</sup>、長尾 誠也<sup>13</sup>、南部 明弘<sup>2</sup>、藤田 将史<sup>2</sup>、森口 祐一<sup>18</sup>、谷田 貝 亜紀代<sup>17</sup>、横山 明彦<sup>13</sup>、吉田 剛<sup>2</sup>、吉村 崇<sup>2</sup>、渡邊 明<sup>3</sup>

\*Kazuyuki Kita<sup>1</sup>, Atsushi Sinohara<sup>2</sup>, Kencho Kawatsu<sup>3</sup>, Kazuhiko Ninomiya<sup>2</sup>, Yuki Inai<sup>2</sup>, Haruka Minowa<sup>4</sup>, Tsutomu Ohtuki<sup>5</sup>, Yasushi Kino<sup>6</sup>, Kazuma Koarai<sup>6</sup>, Takashi Saito<sup>7</sup>, Yukihiko Sato<sup>8</sup>, Keisuke Sueki<sup>9</sup>, Koichi Takamiya<sup>5</sup>, Yukio Takeuchi<sup>10</sup>, Taeko Doi<sup>10</sup>, Yoshinari Abe<sup>11</sup>, Yasuhiro Iwamoto<sup>12</sup>, Masaki Uesugi<sup>13</sup>, Satoru Endou<sup>14</sup>, Hiroshi Okochi<sup>12</sup>, Naoya Katsumi<sup>12</sup>, Akimitsu Kanda<sup>2</sup>, Kenya Kubo<sup>15</sup>, Yuya Koike<sup>16</sup>, Akinori Sueoka<sup>12</sup>, Anna Suzuki<sup>2</sup>, Masatoshi Suzuki<sup>6</sup>, Kenji Suzuki<sup>3</sup>, Tsugiko Takase<sup>3</sup>, Masaomi Takahashi<sup>2</sup>, Zi Jian Zhang<sup>2</sup>, Izumi Nakai<sup>11</sup>, Seiya Nagao<sup>13</sup>, Akihiro Nanbu<sup>2</sup>, Fujita Nobuhumi<sup>2</sup>, Yuichi Moriguchi<sup>18</sup>, Akiyo Yatagai<sup>17</sup>, Akihiko Yokoyama<sup>13</sup>, Go Yoshida<sup>2</sup>, Takashi Yoshimura<sup>2</sup>, Akira Watanabe<sup>3</sup>

1. 茨城大学、2. 大阪大学、3. 福島大学、4. 東京慈恵会医科大学、5. 京都大学、6. 東北大学、7. 尚絅学院大学、8. 日本原子力研究開発機構、9. 筑波大学、10. 国立環境研究所、11. 東京理科大学、12. 早稲田大学、13. 金沢大学、14. 広島大学、15. 国際基督教大学、16. 明治大学、17. 弘前大学、18. 東京大学

1. Ibaraki University, 2. Osaka University, 3. Fukushima University, 4. The Jikei University School of Medicine, 5. Kyoto University, 6. Tohoku University, 7. Shokei Gakuin Daigaku, 8. Japan Atomic Energy Agency, 9. Tsukuba University, 10. National Institute of Environmental Studies, 11. Tokyo University of Science, 12. Waseda University, 13. Kanazawa University, 14. Hiroshima University, 15. International Christian University, 16. Meiji University, 17. Hirosaki University, 18. University of Tokyo

### 【研究背景】

2011年3月に起こった、東京電力福島第一原子力発電所の事故により、福島県を中心とする陸域に大規模な放射能汚染が起こった。事故後の2011年6月には、日本地球惑星科学連合および日本放射化学会を中心とした有志の研究グループが、汚染状況の把握のための土壌採取のフィールド実験を実施した。これにより初期の汚染状況が明らかとなったが、航空機サーベイ等による汚染状況の把握は継続して行われているものの、実際に土壌を採取して汚染状況の詳細を把握する大規模な調査はそれ以降行われていない。

事故から5年以上が経過し、土壌に沈着した放射性核種（主に放射性セシウム：<sup>134</sup>Csおよび<sup>137</sup>Cs）は環境中でその化学形態等を変化させ、土壌の深部への浸透や流出により、初期とは異なる分布状況に変化していることが予想される。帰還困難区域の除染作業が開始されようという状況で、土壌の放射性核種の汚染状況を把握するのはきわめて重要である。そこで本研究では、福島県内の帰還困難区域を中心として土壌採取のフィールド実験を行い、その分析により現在の汚染状況の把握することを目的に実施した。

### 【調査概要】

本研究プロジェクトは、2016年6月から9月にかけての9日間、のべ176名で実施した。福島県内の帰還困難区域を中心として、公共施設等を選定したうえで、各自治体との情報交換を行い、除染が行われていない地点全105か所を土壌採取場所として選択した。まずはNaIシンチレーターもしくは電離箱を用いて地面から1 mお

よび5 cmの空間線量の測定を行い、専用の採土器を用いて表層より5 cmの土壌を採取した。試料採取場所におけるばらつきを評価するために、1地点ごとに5試料の採取を実施し、5年間の環境中での放射性核種の移動状況を評価するために、土壌は表層部の0.0-2.5 cmと、深部の2.5-5.0 cmに分けて採取した。また放射性核種の移行過程をより詳しく調べるために、4地点につき1地点程度、深さ30 cmのコア試料の採取も行った。本講演では、この調査について概要を説明し、事故直後と5年後の比較などいくつかの初期結果について簡単に紹介する。より詳細な結果については、別の講演にて報告が行われる。

キーワード：福島第一原子力発電所、放射性セシウム、土壌沈着濃度

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Radiocesium, soil deposition density

## 福島第一原子力発電所近傍における事故5年後の土壌中放射性物質の調査 初期結果

### Radioactivity in soil from near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant at five years after the accident

\*箕輪 はるか<sup>1</sup>、北 和之<sup>2</sup>、篠原 厚<sup>3</sup>、河津 賢澄<sup>4</sup>、二宮 和彦<sup>3</sup>、稲井 優希<sup>3</sup>、大槻 勤<sup>5</sup>、木野 康志<sup>6</sup>、小  
荒井 一真<sup>6</sup>、齊藤 敬<sup>7</sup>、佐藤 志彦<sup>8</sup>、末木 啓介<sup>9</sup>、高宮 幸一<sup>5</sup>、竹内 幸生<sup>10</sup>、土井 妙子<sup>10</sup>、上杉 正樹<sup>11</sup>  
、遠藤 暁<sup>12</sup>、奥村 真吾<sup>13</sup>、小野 貴大<sup>14</sup>、小野崎 晴佳<sup>14</sup>、勝見 尚也<sup>15</sup>、神田 晃充<sup>3</sup>、グエン タットタ  
ン<sup>12</sup>、久保 謙哉<sup>16</sup>、金野 俊太郎<sup>15</sup>、鈴木 杏菜<sup>3</sup>、鈴木 正敏<sup>6</sup>、鈴木 健嗣<sup>4</sup>、高橋 賢臣<sup>3</sup>、竹中 聡汰<sup>11</sup>  
、張 子見<sup>3</sup>、中井 泉<sup>14</sup>、中村 駿介<sup>12</sup>、南部 明弘<sup>3</sup>、西山 雄大<sup>5</sup>、西山 純平<sup>6</sup>、福田 大輔<sup>13</sup>、藤井 健悟<sup>13</sup>  
、藤田 将史<sup>3</sup>、宮澤 直希<sup>11</sup>、村野井 友<sup>6</sup>、森口 祐一<sup>17</sup>、谷田 貝 亜紀代<sup>18</sup>、山守 航平<sup>11</sup>、横山 明彦<sup>11</sup>  
、吉田 剛<sup>3</sup>、吉村 崇<sup>3</sup>

\*Haruka Minowa<sup>1</sup>, Kazuyuki Kita<sup>2</sup>, Atsushi Shinohara<sup>3</sup>, Kencho Kawatsu<sup>4</sup>, Kazuhiko Ninomiya<sup>3</sup>,  
Yuki Inai<sup>3</sup>, Tsutomu Ohtsuki<sup>5</sup>, Yasushi Kino<sup>6</sup>, Kazuma Koarai<sup>6</sup>, Takashi Saito<sup>7</sup>, Yukihiro Satou<sup>8</sup>,  
Keisuke Sueki<sup>9</sup>, Koichi Takamiya<sup>5</sup>, Yukio Takeuchi<sup>10</sup>, Taeko Doi<sup>10</sup>, Masaki Uesugi<sup>11</sup>, Satoru Endo<sup>12</sup>,  
Shingo Okumura<sup>13</sup>, Takahiro Ono<sup>14</sup>, Seika Onozaki<sup>14</sup>, Naoya Katsumi<sup>15</sup>, Akimitsu Kanda<sup>3</sup>,  
Nguyen Tat Thanh<sup>12</sup>, Kenya Kubo<sup>16</sup>, Shuntaro Kinno<sup>15</sup>, Anna Suzuki<sup>3</sup>, Masatoshi Suzuki<sup>6</sup>, Kenji  
Suzuki<sup>4</sup>, Masaomi Takahashi<sup>3</sup>, Sota Takenaka<sup>11</sup>, Zi Jian Zhang<sup>3</sup>, Izumi Nakai<sup>14</sup>, Shunsuke  
Nakamura<sup>12</sup>, Akihiro Nambu<sup>3</sup>, Yudai Nishiyama<sup>5</sup>, Junpei Nishiyama<sup>6</sup>, Daisuke Fukuda<sup>13</sup>, Kengo  
Fujii<sup>13</sup>, Nobufumi Fujita<sup>3</sup>, Naoki Miyazawa<sup>11</sup>, Tomo Muranoi<sup>6</sup>, Yuichi Moriguchi<sup>17</sup>, Akiyo Yatagai<sup>18</sup>  
, Kouhei Yamamori<sup>11</sup>, Akihiko Yokoyama<sup>11</sup>, Go Yoshida<sup>3</sup>, Takashi Yoshimura<sup>3</sup>

1. 東京慈恵会医科大学、2. 茨城大学、3. 大阪大学、4. 福島大学、5. 京都大学、6. 東北大学、7. 尚絅学院大学、8. 日本原  
子力研究開発機構、9. 筑波大学、10. 国立環境研究所、11. 金沢大学、12. 広島大学、13. 明治大学、14. 東京理科大  
学、15. 早稲田大学、16. 国際基督教大学、17. 東京大学、18. 弘前大学

1. The Jikei University School of Medicine, 2. Ibaraki University, 3. Osaka University, 4. Fukushima University, 5. Kyoto  
University, 6. Tohoku University, 7. Shokei Gakuin University, 8. Japan Atomic Energy Agency, 9. Tsukuba University,  
10. National Institute for Environmental Studies, 11. Kanazawa University, 12. Hiroshima University, 13. Meiji  
University, 14. Tokyo University of Science, 15. Waseda University, 16. International Christian University, 17. Tokyo  
University, 18. Hirosaki University

【はじめに】日本地球惑星科学連合および日本放射化学会を中心とした研究グループにより、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陸域での大規模な調査が2011年6月に実施された。事故より5年  
が経過した2016年、その調査結果をふまえて放射性物質の移行過程の解明および現在の汚染状況の把握を目的  
として本研究プロジェクトを実施した。2016年6月から9月にかけて、のべ9日間176名により、帰還困難区域  
を中心とする福島第一原子力発電所近傍105箇所において、空間線量率の測定および土壌の採取を行った。プ  
ロジェクトの概要については別の講演にて報告するが、本講演では福島県双葉郡大熊町・双葉町の土壌中の放  
射性セシウム<sup>134</sup>Csおよび<sup>137</sup>Csのインベントリ、土壌深部への移行、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs濃度比、また空間線量率との  
相関についての評価を報告する。

【試料と測定】2016年6・7月に福島県双葉郡大熊町・双葉町の帰還困難区域内で未除染の公共施設36地点  
から深さ5 cm表層土壌を各地点5試料ずつ採取した。試料は深さ0-2.5 cmと2.5-5 cmの二つに分割し、乾燥処  
理後U8容器に充填し、Ge半導体検出器を用いてγ線スペクトルを測定し、放射性物質を定量した。

【結果と考察】<sup>137</sup>Csのインベントリを航空機による空間線量率の地図に重ねたプロットを図1に示す。最大  
濃度はインベントリで<sup>137</sup>Csが68400kBq/m<sup>2</sup>、比放射能で1180kBq/kg・dryであった。インベントリは空間  
線量率との明確な相関がみられた。深部土壌（深さ2.5-5.0 cm）放射能/浅部土壌（深さ0-2.5 cm）放射能の

比はおおむね1以下で表層の値の高い試料が多かったが、試料ごとの差が大きかった。また原子力発電所より北北西方向に $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 濃度比が0.87-0.93と明確に低い値を持つ地点が存在した。

キーワード：福島第一原子力発電所、放射性セシウム、Cs-134、Cs-137、土壌沈着濃度

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, radiocesium, Cs-134, Cs-137, soil deposition density

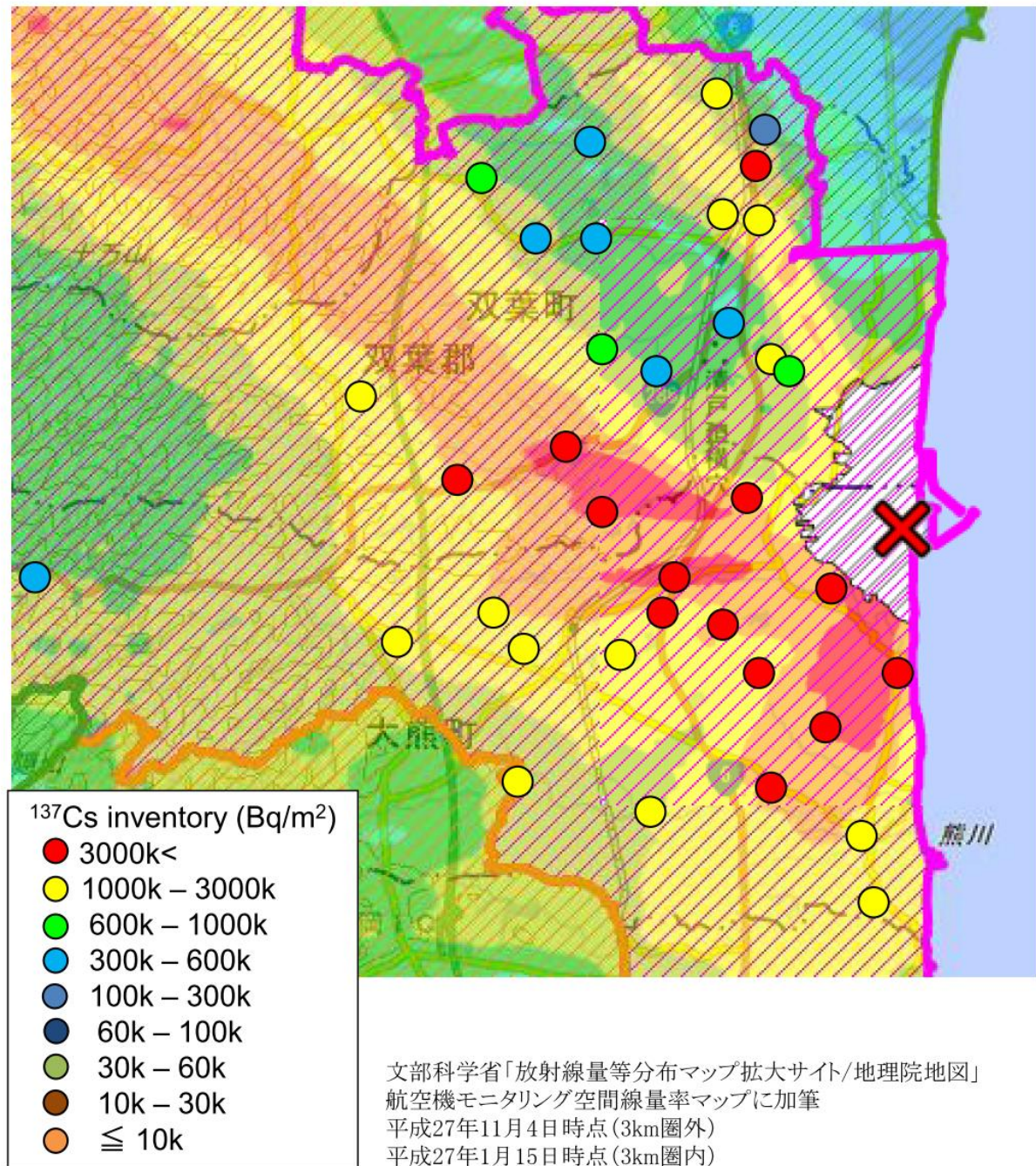


図1. 2016年の土壌調査による $^{137}\text{Cs}$ インベントリ  
(2016年7月1日時点) 36地点(双葉町18地点、大熊町18地点)

## 放射性セシウムの土壌への収脱着が深度プロファイルおよび空間線量率に与える影響に対する数値解析的検討

### Numerical study on sorption kinetics affecting vertical profile of radiocesium in soil and air dose rates

\*操上 広志<sup>1</sup>、Malins Alex<sup>1</sup>

\*Hiroshi Kurikami<sup>1</sup>, Alex Malins<sup>1</sup>

1. 日本原子力研究開発機構

1. Japan Atomic Energy Agency

放射性セシウムは土壌への強い収着特性を有する一方、深度方向に緩やかに移動し、その結果として空間線量率は物理減衰以上の低減を示している。放射性セシウムの深度分布はExponential型あるいはそれ以上に深度方向に延伸する型が多く認められる。このような放射性セシウムの分布の変遷は、数値解析によって収脱着の反応速度と分散の効果で説明しうることがわかってきた。本報告では、収脱着の反応速度を考慮した移流分散モデルおよび放射線輸送モデルを用い、放射性セシウムの深度分布変化に基づく空間線量率変化の予測結果を例示する。空間線量率の低下は、フォールアウト後10年程度まで放射性セシウムの土壌深度方向への移動により物理減衰以上であることが期待される。その後は、放射性セシウムの土壌への固定化が進むとともに物理減衰程度になると想定される。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、放射性セシウムの深度分布、Exponential分布、収脱着速度論

Keywords: Fukushima NPP accident, radiocesium vertical distribution, exponential-shape distribution, sorption kinetics

## 福島県の森林における放射性セシウムの移行と林内空間線量率の時間変化傾向

### Temporal changes of radiocesium transfer and ambient dose rate in forest of Fukushima Prefecture

\*加藤 弘亮<sup>1</sup>、恩田 裕一<sup>1</sup>、Saidin Zul<sup>1</sup>、山口 敏朗<sup>1</sup>

\*Hiroaki Kato<sup>1</sup>, Yuichi Onda<sup>1</sup>, Zul Hilmi Saidin<sup>1</sup>, Toshiro Yamaguchi<sup>1</sup>

1. 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター

1. Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba

本研究では、福島第一原子力発電所事故後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の観測を実施してきた。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、落葉等に含まれる放射性セシウム濃度を測定した。また、サーベイメータと可搬型ゲルマニウムガンマ線検出器を用いて、林内の異なる高度における放射性セシウムの計数率と空間線量率の測定を行った。調査対象森林において、林内の空間線量率は、樹種や林齢によって異なる特徴的な垂直分布を示した。また、林内空間線量率はいずれの森林においても時間とともに指数関数的な低下傾向を示したが、測定高度や樹種によって異なる低下速度を示した。樹冠（およそ10 m高）の空間線量率は物理減衰速度よりも早く低下したが、林床（1 m高）の空間線量率は調査森林によって異なる低下傾向を示した。本研究の観測結果から、林内空間線量率は樹種や林齢による樹冠から林床への放射性セシウム移行状況の違いを反映して空間的・時間的に異なる時間変化を示すことが示唆された。また、林内空間線量率の低減は、原発事故後4年間（平成23年～26年）とその後の2年間（平成26年～27年）で異なる傾向が認められた。このことから、林内空間線量率の長期変化傾向を予測するためには、林内の放射性セシウムの移行メカニズムと空間分布の時間変化を解明することが必要であることを示した。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、森林環境、放射性セシウム、空間線量率

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Forest Environment, Radiocesium, Ambient dose rate



除染農地における土砂および $^{137}\text{Cs}$ の移動Migration of sediment and  $^{137}\text{Cs}$  on decontaminated arable lands\*脇山 義史<sup>1</sup>、恩田 裕一<sup>1,2</sup>\*Yoshifumi Wakiyama<sup>1</sup>, Yuichi Onda<sup>1,2</sup>

1. 福島大学環境放射能研究所、2. 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター

1. Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University, 2. Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba

現在、放射性物質が多量に沈着した地域では、表土の剥ぎ取りや客土などの除染作業が進められている。放射性物質の除去あるいは埋没による空間線量率の低下が期待されるが、人為的な土壌のかく乱によってその土地の水文応答や土砂動態が変化する可能性がある。しかし、これまでに除染地における土砂の $^{137}\text{Cs}$ および動態を調べた研究はほとんどない。本研究では、除染地を含む利用条件の異なる土地において土砂および $^{137}\text{Cs}$ の流出量を観測し、除染が土砂および $^{137}\text{Cs}$ 動態に及ぼす影響の解明に取り組んでいる。観測は未除染地の4か所（未耕作畑、耕作畑、草地、森林）と除染地の2か所（未耕作、耕作）に設置した土壌侵食プロットによって行っている。これまでの観測の結果、除染地で生産される土砂の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は除染前に比べて1オーダー小さい値を示した。また、除染地の土砂流出量は、除染前の畑と同等であり、除染前の森林や畑より大きかった。除染地における土砂の $^{137}\text{Cs}$ 濃度と土砂流出量から算出した $^{137}\text{Cs}$ 流出率は、未除染の畑より少なく、未除染の森林や草地より大きい値となった。以上の結果から、除染によって畑のような侵食されやすい土地では $^{137}\text{Cs}$ の移動量が減少する一方で、森林や草地などの侵食されにくい土地では $^{137}\text{Cs}$ の移動量が増加する可能性が示唆される。除染地の表面流出率や細粒土砂の発生量を見ると、除染前の畑に比べて、表面流が発生しにくく、細粒土砂の流出が少ないという傾向が見られた。今後、除染地における土壌の粒径や透水性を把握し、その土壌侵食プロセスを明らかにすることが課題である。

キーワード：除染、土壌侵食、斜面、 $^{137}\text{Cs}$ Keywords: Decontamination, Soil erosion, Slope,  $^{137}\text{Cs}$

## 福島河川中のセシウム濃度の急速な低減傾向とその要因 The rapid decline of Cs-137 concentration in Fukushima rivers

\*恩田 裕一<sup>1</sup>、谷口 圭輔<sup>2</sup>、脇山 義史<sup>3</sup>

\*Yuichi Onda<sup>1</sup>, Keisuke Taniguchi<sup>2</sup>, Yoshifumi Wakiyama<sup>3</sup>

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. 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. Fukushima Prefectural Centre for Environmental Creation, 3. Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University

福島原発事故後5年間のモニタリングによって、福島河川中の放射性セシウム濃度は激減した。本発表では、その低下要因および濃度がチェルノブイリより1桁低いことを紹介する。また、除染の効果についても算定したのでその結果も報告する。

キーワード：セシウム137、福島原発事故、河川流出

Keywords: Cs-137, Fukushima NPP accident, runoff from rivers

# セシウム包有微粒子が河川水中のセシウムの固液分配へ与える影響

## Effect of Cesium-bearing Microparticles to the Solid-Liquid Distribution of Cesium in Rivers

\*三浦 輝<sup>1</sup>、栗原 雄一<sup>1</sup>、谷口 圭輔<sup>2</sup>、坂口 綾<sup>3</sup>、桧垣 正吾<sup>4</sup>、恩田 裕一<sup>3</sup>、高橋 嘉夫<sup>1</sup>

\*Hikaru Miura<sup>1</sup>, Yuichi Kurihara<sup>1</sup>, Keisuke Taniguchi<sup>2</sup>, Aya Sakaguchi<sup>3</sup>, Shogo Higaki<sup>4</sup>, Yuichi Onda<sup>3</sup>, Yoshio Takahashi<sup>1</sup>

1. 東京大学大学院 理学系研究科、2. 福島県環境創造センター、3. 筑波大学大学院 アイソトープ環境動態研究センター、4. 東京大学 アイソトープ総合センター

1. Department of science, Graduate school of The university of Tokyo, 2. Center for Environmental Creation Fukushima Prefecture, 3. Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, 4. Isotope science center, The university of Tokyo

Introduction: The Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident occurred on 11<sup>th</sup> March 2011 and a lot of radionuclides were emitted into the environment from the reactors (Yoshida and Takahashi, 2012). About  $1.3 \times 10^{16}$  Bq of Cesium-137 (Cs-137) was deposited to the ground by dry and wet depositions (Chino et al., 2011). According to Konoplev et al. (2016), solid-liquid distribution coefficient  $K_d$  values in Fukushima rivers are by 1-2 orders of magnitude higher than those in Chernobyl and it is possibly because the presence of Cs-bearing microparticles and higher Radiocesium Interception Potential (RIP) values of soils in Fukushima than those in Chernobyl. Cesium-bearing microparticle is a glassy, water-insoluble particle (Adachi et al., 2013). Cesium and many other elements from the reactor were found in the microparticles (Abe et al., 2014). The calculation of isotope ratio of Cs shows that the particles are from unit 2 or 3 (Nishihara et al., 2012). In this paper, the microparticles in suspended particles on the filters in river waters will be shown, focusing on the effect of the microparticles to the  $K_d$  values in the rivers. If there are the microparticles on the filter, apparent  $K_d$  value will be higher than intrinsic  $K_d$  value related to the adsorption-desorption reaction to the clay minerals.

Method: Suspended particles (3-63  $\mu\text{m}$ ) were collected from some rivers in Fukushima Prefecture by filtering water (60-90 L) in 2014 - 2016. After the filters were dried, total radioactivity of Cs-137 on the filters was measured by high purity Germanium semiconductor detector (HPGe). Planar distribution of radiation of filter was measured by autoradiography with Imaging Plates (IPs). After microparticle with high radioactivity was found on the filter, it was separated from other particles by water and NaI scintillation counter. Our method can separate microparticles more quickly and efficiently than previous methods (Adachi et al., 2013). Also, the microparticles can be more readily found by Scanning Electron Microscope (SEM) without using glue in the separation processes. The microparticles were measured by SEM coupled with Energy Dispersive x-ray Spectroscopy (EDS) to determine that the particles were similar to the particles reported in Adachi et al. (2013) etc. In the end, radioactivity of Cs-137 in the microparticle was measured by HPGe.

Result: Some hot spots were found on filters of Kuchibuto River collected in 2014 and 2015 by autoradiography. No hot spots were found on the filters from other rivers. The results of SEM-EDS showed that these hot particles and reported Cs-bearing microparticles were almost similar because they consist of elements such as Si, Cs, Fe, and Zn. Radioactivities of Cs-137 in the microparticles were about 0.8-3.0 Bq. Their isotope ratios of Cs (Cs-134/Cs-137 around 1.1) showed that the microparticles were from unit 2 or 3 of FDNPP. On filters collected on 3<sup>rd</sup> May 2014, 30% of Cs-137 on the filters was from the microparticles, while 46% of Cs-137 on filters was from the microparticles for the samples of 11<sup>th</sup>

November 2015. If  $K_d$  value is calculated using these filters, the value will be overestimated compared with intrinsic  $K_d$  value that assumes adsorption-desorption reactions on clay minerals etc. The filters after 1-3 years from the accident and from different places should be measured successively. These results may explain the phenomenon that  $K_d$  values in rivers in Fukushima are higher than those in Chernobyl. The effect of the Cs-bearing microparticles must be considered when  $K_d$  values of Cs in Fukushima are discussed.

キーワード：福島、セシウム、セシウム包有粒子、原発事故、放射能、固液分配

Keywords: Fukushima, Cesium, Cesium-bearing particle, nuclear power plant accident, radioactivity, Solid-liquid distribution

# Radiocaesium in the North Pacific Ocean derived from atmospheric weapons tests and Fukushima accident: A review of past and present

\*青山 道夫<sup>1</sup>

\*Michio Aoyama<sup>1</sup>

1. 福島大学環境放射能研究所

1. Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University

## 1, Two major sources terms of radiocaesium to the Ocean from the Fukushima accident and fallout from atmospheric weapons tests before the accident

The <sup>137</sup>Cs derived from atmospheric weapons test conducted late 1950s and early 1960s and the inventory in the North Pacific Ocean in 1970 was 290 +- 30 PBq (Aoyama et al., 2006). Some portion of the <sup>137</sup>Cs in the North Pacific Ocean were transported to South Pacific Ocean and Indian Ocean and also radioactive decay occurred with a half-life of 30.7 years, the <sup>137</sup>Cs inventory in the North Pacific Ocean before the FNPP1 accident decreased to 69 +- 7 PBq as of 2011 (Aoyama et al., 2016).

There are two major sources of radionuclides to the environment derived by the TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FNPP1) accident in 2011. The largest and earliest source of artificial radionuclide was atmospheric release from FNPP1, which led to atmospheric deposition on both land and in the ocean. Atmospheric release peaked mid of March 2011 and total amount of atmospheric release of <sup>137</sup>Cs was estimated to be 15.2-20.4 PBq and same amount of <sup>134</sup>Cs was also released because activity ratio of <sup>134</sup>Cs vs. <sup>137</sup>Cs was almost 1 (Aoyama et al., 2016). About 20 % of released radiocaesium fell on land and 80% of released radiocaesium fell on the ocean. Therefore 11.7-14.8 PBq of <sup>137</sup>Cs was injected in the North Pacific Ocean as atmospheric deposition.

Second largest source was the direct discharge of contaminated waters to the ocean since 26 March 2011 and peaked on 6 April 2011 based on analysis of <sup>131</sup>I vs. <sup>137</sup>Cs activity ratio (Tsumune et al., 2012). Total amount of released <sup>137</sup>Cs was estimated to be 3.5 +- 0.7 PBq. A combined input to the North Pacific Ocean of <sup>137</sup>Cs from both atmospheric deposition and direct discharge was therefore estimated to be 15.2 -18.3 PBq.

## 2, Three major pathways of FNPP1 derived radiocaesium in the North Pacific Ocean

The fastest pathway of FNPP1 derived radiocaesium might be surface pathway. FNPP1-derived radiocaesium injected at north of Kuroshio front by atmospheric deposition and direct discharge spread eastward in surface water up to 200 meters by the North Pacific Current across the mid-latitude North Pacific (Aoyama et al., 2016). In 2013 main body of FNPP1 radiocaesium in surface layer was already in the eastern Pacific. A model simulation (Tsubono et al., 2016) also shows good agreement with the observed radiocaesium activities in the Pacific Ocean reported by several studies.

The second pathway is subduction of central mode water (CMW). A maximum of radiocaesium activity in June/July 2012 was observed at potential densities of 26.1-26.3 at 34 deg. N-39 deg. N, 165 deg. E, which correspond to 400 meters depth. The density is in a range of density of CMW and radiocaesium activity was higher than those in the surrounding waters, including STMW. In June-July 2015 and June 2016 at 36°N-44°N along 165°E, there are only very weak signal of subduction of FNPP1 radiocaesium. This means that subducted radiocaesium might move eastward from this region. Before the Fukushima accident, <sup>137</sup>Cs maximum corresponding CMW region was observed, however, it located at 20°N, 165°E because it was 40 years after subduction (Aoyama et al., 2008).

The third pathway is subduction of subtropical mode water (STMW). FNPP1-derived radiocaesium injected at south of Kuroshio front by atmospheric deposition transported to southward rapidly due to subduction of STMW at potential densities of 25.1-25.3. In 2015 along 165 deg. E, FNPP1 radiocaesium

corresponding STMW spread entire subtropical gyre and a part of them reached 2 deg. N and recirculated in the subtropical gyre and reached Japanese coast.

### **3, Mass balance of FNPP1 radiocaesium in the North Pacific**

$^{134}\text{Cs}$  inventory was estimated to be 8 PBq in surface layer in summer 2012 (Inomata unpublished).

Kaeriyama et al. (2016) estimated that  $^{134}\text{Cs}$  inventory in STWM in 2012 was about 4 PBq. We believe that FNPP1 derived  $^{134}\text{Cs}$  injected in the North Pacific was 15.2 - 18.3 PBq. Therefore  $^{134}\text{Cs}$  inventory can be estimated 3-6 PBq in CMW at this moment based on a mass balance of FNPP1 radiocaesium.

The  $^{137}\text{Cs}$  inventory in the North Pacific Ocean before the FNPP1 accident, which was derived mainly from nuclear weapons testing, was 69 PBq at the end of 2010. Thus, the FNPP1 accident increased the  $^{137}\text{Cs}$  inventory of 15.2 - 18.3 PBq by as much as 22 - 27%.

キーワード：福島事故、核実験降下物、北太平洋

Keywords: Fukushima accident, global fallout, North Pacific Ocean

# 北太平洋における福島第一原子力発電所事故に由来する放射性セシウムの6年間の拡散状況

## Oceanic dispersion of radioactive cesium derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in the North Pacific during six years

\*帰山 秀樹<sup>1</sup>

\*Hideki Kaeriyama<sup>1</sup>

1. 水産研究・教育機構

1. Japan Fisheries Research and Education Agency

福島第一原子力発電所事故による放射性セシウム(<sup>134</sup>Csおよび<sup>137</sup>Cs)の環境放出により北太平洋全域の表層の放射性セシウム濃度が上昇した。水産研究・教育機構では2011年3月より水産物の緊急モニタリング調査を開始、それ以降海洋生態系を構成する様々な生物群、環境試料における放射性セシウム濃度の把握と、放射性セシウムの海洋生態系内における挙動を解析してきた。本研究では、海洋生態系における放射性セシウムの挙動を把握する際の最も基礎となる情報である、溶存態放射性セシウムの北太平洋における拡散状況を採水調査の結果に基づき報告する。調査は漁業調査船による資源調査航海などの機会を活用し、バケツによる表層海水の採取や採水器を用いた鉛直多層採水により得た海水20L試料を対象とした。その他、福島県沿岸では漁船を用いた用船調査、福島県水産試験場の協力による小名浜地先の汲み上げ海水などを採取している。海水試料はリンモリブデン酸アンモニウム共沈法を適用し、ゲルマニウム半導体検器によるガンマ線測定に基づき放射性セシウム濃度を求めた。

北太平洋の広域拡散状況の把握という観点では144E、155Eおよび175.5Eにおける南北側線を設け、2011年7月、10月、2012年7月、2013年7月に表面海水採水による観測を実施しており、黒潮続流の北側における東方への拡散状況を把握している。また2012年9月の鉛直断面観測により、黒潮続流の南方においては亜熱帯モード水に補足された放射性セシウムを確認した。事故当時に減衰補正した<sup>134</sup>Csの総量は $4.2 \pm 1.1$  PBqと試算され、北太平洋全域における福島第一原発事故由来の<sup>134</sup>Cs放出量の22~28%が亜熱帯モード水に存在すると推定された。亜熱帯モード水の輸送先である日本南方の亜熱帯海域に着目し、放射性セシウムの経年変化を<sup>137</sup>Csの水深0~500mの水柱積算値で見ると2012年の $3600 \text{ Bq m}^{-2}$ から2015年の $1500 \text{ Bq m}^{-2}$ まで減少していることが明らかとなった。冬季の鉛直混合により亜熱帯モード水の一部は表層水塊へ表出し、移流・拡散により福島第一原発事故由来の放射性セシウムは希釈されたと推察される。

一方、福島第一原子力発電所近傍海域として小名浜地先における汲み上げ海水を週一回の頻度で採水し放射性セシウム濃度の時系列変動を解析している。小名浜地先における溶存態放射性セシウム濃度は基本的に緩やかな減少傾向を示すものの、夏季および冬季にスパイク状に濃度の上昇が認められる。特に冬季、爆弾低気圧が福島県沖合を北上した時期に顕著な放射性セシウム濃度の上昇が認められた。2013年12月から2014年2月の期間には福島第一原子力発電所と小名浜の中間に位置する四倉沖で物理観測を実施しており、その際の流速データは、四倉沖で強い南向きの流れが継続した時期と、小名浜地先で放射性セシウム濃度が上昇した時期が一致することを示している。すなわち福島第一原子力発電所近傍の海水が強い南下流により小名浜地先近傍まで希釈をされずに移流したと推察される。このように福島第一原子力発電所近傍海域における溶存態放射性セシウムの分布は時空間的に変動が大きく、今後も引き続きモニタリング調査が必要である。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、放射性セシウム、北太平洋、モード水

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Radioactive cesium, North Pacific, Mode  
water



## 海底地下水湧出による放射性セシウムの沿岸海域への移行：間隙水の地球化学的特徴によるアプローチ

### Transport of Fukushima-derived radiocesium into the coastal ocean via submarine groundwater discharge: an approach from geochemical character of pore water

\*神林 翔太<sup>1</sup>、張 勁<sup>2</sup>、成田 尚史<sup>3</sup>

\*Shota Kambayashi<sup>1</sup>, JING ZHANG<sup>2</sup>, Hisashi Narita<sup>3</sup>

1. 富山大学大学院理工学教育部、2. 富山大学大学院理工学研究部、3. 東海大学海洋学部

1. Graduate School of Science and Engineer for Education, University of Toyama, 2. Graduate School of Science and Engineer for Research, University of Toyama, 3. School of Marine Science and Technology, Tokai University

陸域から海洋への放射性セシウム (Cs) の供給源として河川水以外に海底地下水湧出 (Submarine Groundwater Discharge: SGD) の存在が指摘されている。しかし、採取が容易な河川水に対し、SGDは一般的に目に見えない現象であるため試料採取が困難であり、これまで定量的な評価が行われていなかった。本研究では、汽水湖「松川浦」で収集した海底堆積物中の間隙水の化学分析を通じてSGDを含めた陸域から沿岸域への放射性Csの流入量を見積もることを目的とした。

間隙水及び同地点の直上水に含まれる<sup>137</sup>Cs濃度はそれぞれ1,398 mBq/L、117.7 mBq/Lであった。この結果は、海底堆積物から間隙水中に有意な量の放射性Csが溶脱していることを示している。また、フィックの法則を用いてフラックスの計算を行った結果、堆積物表層から直上水へ11.3 mBq/cm<sup>2</sup>/hの<sup>137</sup>Csの逸出が起きる事が推定された。さらに、本研究で得られた堆積物-間隙水間の分配比と松川浦の表層堆積物に含まれる<sup>137</sup>Cs濃度の平均値を用いて湖水中に逸出される<sup>137</sup>Csフラックスを見積もると0.08 GBq/dayと推定され、松川浦に供給される<sup>137</sup>Csの大部分を占めていることが明らかになった。本研究の結果から、沿岸海域には海水が海底下に潜り、堆積物間隙水の逸出という形で再び海洋へと流出する再循環水(Recycled Submarine Groundwater Discharge: RSGD)によって多量の放射性Csが供給されており、今後、沿岸海域や外洋における放射性Csの評価に供給源としてSGDを把握する重要性が示唆された。

キーワード：放射性セシウム、海底地下水湧出、間隙水、松川浦

Keywords: Fukushima-derived radiocesium, Submarine Groundwater discharge, Pore water, Matsukawa-ura Lagoon

## 福島第一原子力発電所事故時に海洋へ直接漏洩した<sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr and <sup>3</sup>Hの 領域海洋シミュレーション

### Regional-scale oceanic simulations of <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>3</sup>H radioactivity directly released by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

\*津旨 大輔<sup>1</sup>、坪野 考樹<sup>1</sup>、三角 和弘<sup>1</sup>、立田 穰<sup>1</sup>、青山 道夫<sup>2</sup>、広瀬 勝巳<sup>3</sup>

\*Daisuke Tsumune<sup>1</sup>, Takaki Tsubono<sup>1</sup>, Kazuhiro Misumi<sup>1</sup>, Yutaka Tateda<sup>1</sup>, Michio Aoyama<sup>2</sup>,  
Katsumi Hirose<sup>3</sup>

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、3. 上智大学 理工学部

1. Central Research Institute of Electric Power Industry, 2. Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima  
University, 3. Faculty of Science and Technology, Sophia University

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. The activities attributable to the direct release were observed adjacent to the 1F NPP site. The sea side impermeable wall was closed at 26 October 2015. We estimated the direct release rate of <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr and <sup>3</sup>H for more than four-and-a-half years after the accident by the Regional Ocean Model System (ROMS).

Direct release rate of <sup>137</sup>Cs were estimated by comparing simulated results and measured activities adjacent to the 1F NPP site (adjacent to 5,6 discharge and south discharge). Direct release rate of <sup>137</sup>Cs was estimated to be  $2.2 \times 10^{14}$  Bq/day and decreased exponentially with time to be  $3.9 \times 10^9$  Bq/day by 26 October 2015. Estimated direct release rate have exponentially decreased with constant rate since 4 November 2011. Apparent half-life of direct release rate was estimated to be 346 days. The estimated total amounts of directly released <sup>137</sup>Cs was  $3.6 \pm 0.7$  PBq from 26 March 2011 to 26 October 2015. Simulated <sup>137</sup>Cs activities attributable to direct release were in good agreement with observed activities, a result that implies the estimated direct release rate was reasonable. Simulated <sup>137</sup>Cs activity affected off coast in the Fukushima prefecture.

<sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs activity ratio of stagnant water was 0.05 in the basement of the 1F NPP reactor 2 turbine building on 27 March 2011. Direct release rate of <sup>90</sup>Sr was estimated to be  $1.1 \times 10^{13}$  Bq/day from 26 March to 6 April 2011 using the activity ratio in stagnant water because the stagnant water released to the ocean in this period (Tsumune et al., 2012). And the temporal change of direct release rate was estimated by the measured <sup>90</sup>Sr activity adjacent to 1F NPP. Directly release rate decreased exponentially to  $3.9 \times 10^{10}$  Bq/day by 30 April 2011. The direct release rate was constant and decreased exponentially from 27 June to 16 December 2013. And the direct release rate was  $2.9 \times 10^9$  Bq/day by 26 October 2015. The estimated total amounts of directly released <sup>90</sup>Sr was  $208 \pm 42$  TBq.

<sup>3</sup>H/<sup>137</sup>Cs activity ratio of stagnant water was  $8.7 \times 10^{-3}$  in the basement of the 1F NPP reactor 2 turbine building on 27 March 2011. Directly release rate of <sup>3</sup>H was estimated to be  $1.9 \times 10^{12}$  Bq/day from 26 March to 6 April 2011 and decreased exponentially by 16 April 2011. The rate was decreased exponentially with constant rate by 26 October 2015. The direct release rate was estimated to be  $7.7 \times 10^9$  Bq/day at 26 October 2015. The estimated total amounts of directly released <sup>3</sup>H was  $131 \pm 26$  TBq.

キーワード：福島第一原子力発電所事故、領域海洋モデル、直接漏洩、放射性セシウム、放射性ストロンチウム、トリチウム

Keywords: Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident , regional ocean model, direct release, radiocaesium, radiostrontium, tritium

# Radiocaesium activities in the North Pacific Ocean Water from 1945 to 2020 Calculated by eddy-resolving ROMS

\*坪野 考樹<sup>1</sup>、三角 和弘<sup>1</sup>、津旨 大輔<sup>1</sup>、青山 道夫<sup>2</sup>、廣瀬 勝己<sup>3</sup>

\*Tsubono Takaki<sup>1</sup>, Kazuhiro Misumi<sup>1</sup>, Daisuke Tsumune<sup>1</sup>, Michio Aoyama<sup>2</sup>, katsumi hirose<sup>3</sup>

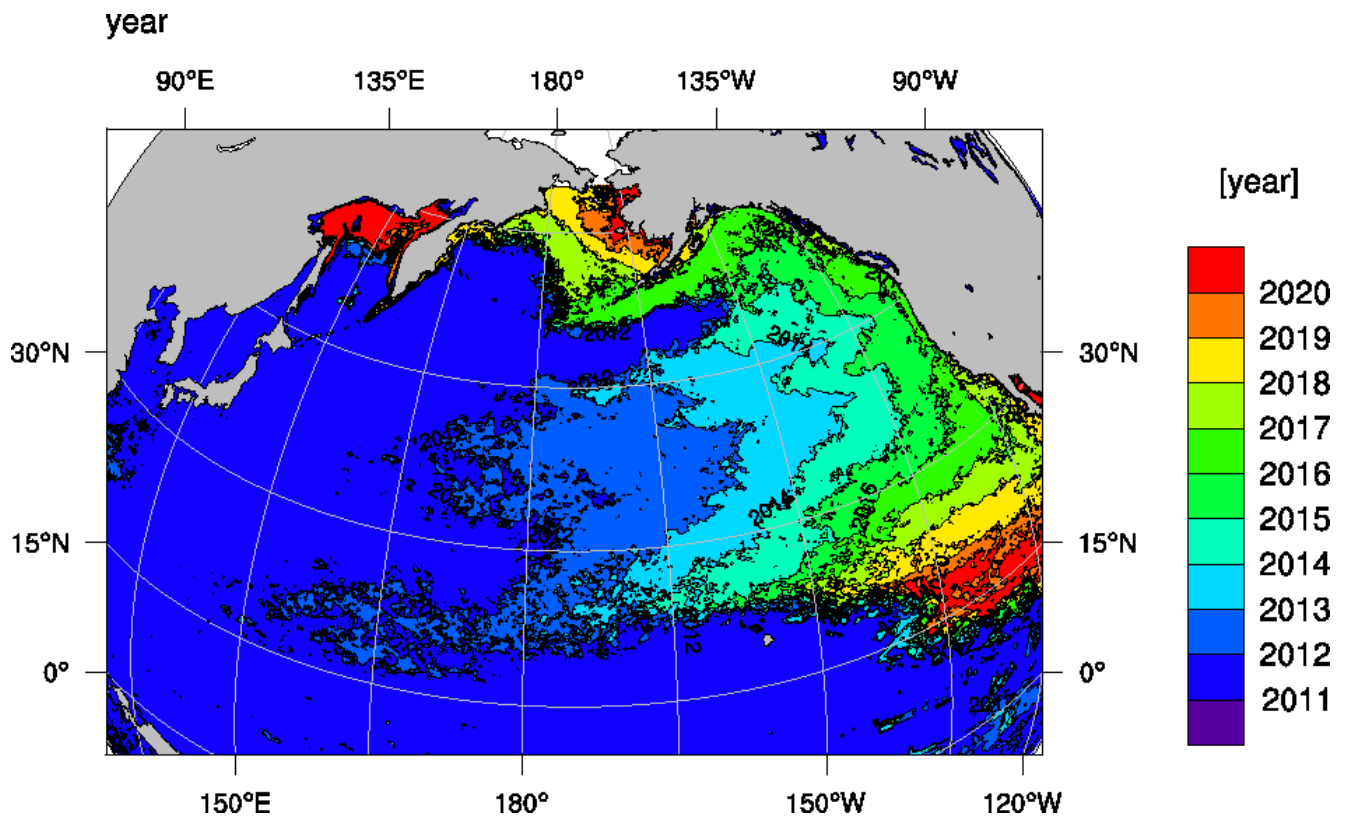
1. 一般財団法人 電力中央研究所、2. 福島大学、3. 上智大学

1. Central Research Institute of Electric Power Industry, 2. Fukushima University, 3. Sophia University

We conducted the ensemble simulation of  $^{137}\text{Cs}$  activity in the North Pacific Ocean (NPO) water from 1945 to 2020, before and after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (1F NPP) accident, because we used the estimations of  $^{137}\text{Cs}$  activity flux, but climatology as physical forcing. Using the Regional Ocean Model System (ROMS) with high resolution ( $1/12^\circ$ - $1/4^\circ$  in horizontal, 45 levels in vertical), of which domain was the NPO, we preliminarily estimated a factor multiplying the total of  $^{134}\text{Cs}$  fluxes, which have been estimated for the atmospheric deposition and the direct discharge from the accident. The direct comparison of the observed and calculated  $^{134}\text{Cs}$  showed that the total  $^{134}\text{Cs}$  Flux was 1.6 times greater than the previous estimate. We re-calculated the  $^{134}\text{Cs}$  activities in the NPO water using the flux multiplied by 1.6 and confirmed the improvement of the simulation by the multiplied flux, which suggested that each the  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  inventories in the NPO increase by about 16PBq due to the accident. For the hindcast and forecast of the  $^{137}\text{Cs}$  activity in the NPO water, we calculated the  $^{137}\text{Cs}$  activity in the NPO water from 1945 to 2020 by using the global fallout flux due to atmospheric nuclear weapons' tests and the Chernobyl accident and the estimated fluxes of the 1F NPP accident. For the calculation, five ensemble calculations of  $^{137}\text{Cs}$  activity were conducted by moving the start period of the input flux for one year. The  $^{137}\text{Cs}$  activity in the surface water showed that the plume due to the 1F NPP accident with relatively higher activity than  $5 \text{ Bq m}^{-3}$  was transported to the western area of  $135^\circ\text{W}$  in 2015, while the activity of the plume was rather lower than that in 1985. The peak year of the  $^{137}\text{Cs}$  activity can be estimated from the hindcast and forecast. The  $^{137}\text{Cs}$  activity in the surface water north of  $30^\circ\text{N}$  shows that the peak activity of  $^{137}\text{Cs}$  reached  $180^\circ$  in 2011, but in 2012 it moved near  $180^\circ$  and in 2017 moved around  $90^\circ\text{W}$ . The total inventory of  $^{137}\text{Cs}$  in the NPO increased up to 77 PBq in 2011 and gradually decreased to 61PBq in 2018 by transport outside of the domain, which is almost the same as that in Dec. 2010. The whole amount of  $^{137}\text{Cs}$  in the subsurface layer (200-600m depth) is larger than that in the surface layer (0-200m depth) since the 1F NPP accident except 2011.

キーワード :  $^{137}\text{Cs}$ 、北太平洋、渦解像モデル

Keywords:  $^{137}\text{Cs}$ , North Pacific ocean, eddy-resolving model



## Radioactive cesium-bearing particles in various environmental samples

\*栗原 雄一<sup>1</sup>、三浦 輝<sup>1</sup>、小暮 敏博<sup>1</sup>、山口 紀子<sup>2</sup>、桧垣 省吾<sup>3</sup>、坂口 綾<sup>4</sup>、恩田 裕一<sup>5</sup>、山本 政義<sup>6</sup>、田中 万也<sup>7</sup>、神田 穰太<sup>8</sup>、石丸 隆<sup>8</sup>、高橋 嘉夫<sup>1</sup>

\*Yuichi Kurihara<sup>1</sup>, Hikaru Miura<sup>1</sup>, Toshihiro Kogure<sup>1</sup>, Noriko Yamaguchi<sup>2</sup>, Shogo Higaki<sup>3</sup>, Aya Sakaguchi<sup>4</sup>, Yuichi Onda<sup>5</sup>, Masayoshi Yamamoto<sup>6</sup>, Kazuya Tanaka<sup>7</sup>, Jota Kanda<sup>8</sup>, Takashi Ishimaru<sup>8</sup>, Yoshio Takahashi<sup>1</sup>

1. 東京大学 大学院理学系研究科 地球惑星科学専攻、2. 農業環境技術研究所、3. 東京大学 アイソトープ総合センター、4. 筑波大学 数理物質系、5. 筑波大学 アイソトープ環境動態研究センター、6. 金沢大学 低レベル放射能実験施設、7. 日本原子力研究開発機構、8. 東京海洋大学

1. Department of Earth and Planetary Science, Graduate School of Science, The university of Tokyo, 2. National Institute for Agro-Environmental Sciences, 3. Radioisotope Center, The university of Tokyo, 4. Faculty of Pure and Applied Science, University of Tsukuba, 5. Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, 6. Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, 7. Japan Atomic Energy Agency, 8. Tokyo University of Marine Science and Technology

Radioactive materials released by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident caused extensive radioactive contamination. Adachi et al. (2013) discovered radioactive Cs-bearing particles (Cs-bearing particles) from air filter in Tsukuba (170 km from FDNPP). This finding is an important, since the particle which is likely to be emitted directly from FDNPP may contain various information on the phenomena occurring in FDNPP during the accident. However, because of the difficulty of separating Cs-bearing particle from environmental sample, comprehensive information on physical and chemical properties of the particles as well as distribution of particles in Fukushima contaminated areas is limited. In this study, the distribution and physical and chemical properties of Cs-containing particles were investigated using various types of environmental samples, such as suspended particles in river and surface seawater, tree leaves, and road dust (noted as black substances).

Radioactive cesium-bearing particle in the sample was separated from other particles by the wet-separation method using a NaI scintillation counter. The separated particle was identified by a scanning electron microscope (SEM) equipped with an energy dispersed X-ray spectrometer (EDS). The activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the identified particle were measured by non-destructive gamma-ray spectrometry.

Spherical particles with diameters of approximately  $< 5 \mu\text{m}$  were found in any samples. Particles of this type are similar in terms of chemical composition to those reported so far, and were estimated to be derived from Units 2 or 3 of FDNPP estimated by the <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio. In the dust samples of the northwest direction within 20 km from FDNPP, particles with diameters of several tens to several hundreds of microns were found. This area has been reported to be contaminated with radioactive materials from Unit 1 (Satou et al., 2015). Most of the particles in this region were not uniform in shape. The main components of the particles in this region were Si, Ca, K, and Al derived from Unit 1 from the <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio. In addition, although it is reported that the shape of the particles in this region is not uniform, some spherical particles with a diameter larger than  $> 20 \mu\text{m}$  were also found.

From the facts above, it was found that three kinds of radioactive particles are widely present in various environmental samples.

キーワード：福島第一原発、セシウム含有粒子、環境試料、放射能

Keywords: Fukushima Daiiti Nuclear Power Plant, Cs-bearing particle, Environmental sample,  
Radioactivity

## ダスト事象の際の放射性セシウム

### Atmospheric radioCs in case of the local dust event

\*五十嵐 康人<sup>1</sup>、梶野 瑞王<sup>1</sup>、早崎 将光<sup>2</sup>、足立 光司<sup>1</sup>、財前 祐二<sup>3</sup>、関山 剛<sup>1</sup>

\*Yasuhito Igarashi<sup>1</sup>, Mizuo Kajino<sup>1</sup>, Masamitsu Hayasaki<sup>2</sup>, Kouji Adachi<sup>1</sup>, Yuji Zaizen<sup>3</sup>, Thomas Sekiyama<sup>1</sup>

1. 気象研究所 環境・応用気象研究部、2. 国立環境研究所 地域環境研究センター 都市大気環境研究室、3. 気象研究所 予報研究部

1. Atmospheric Environment and Applied Meteorology Research Department, Meteorological Research Institute, 2. Center for Regional Environmental Research, National Institute for Environmental Studies, 3. Forecast Research Department, Meteorological Research Institute

Atmospheric radioCs seems suspended along with surface soil dust when the strong wind creates local dust event. Local surface contamination may have resulted in the enhancement of the radioCs concentration when the local dust event occurred. Although Ishizuka et al. (2017) made the radioCs resuspension computation scheme due to the dust uplift in the air by wind blow, the effect of the local dust event has not been evidenced nor confirmed in detail so far. Furthermore, though Kajino et al. (2016) has simulated yearly resuspension in 2013 due to the dust suspension and those from the forest, event-based case study has not been carried out. In this presentation, some of such events are analyzed in terms of the radioCs resuspension. The dust event occurred in March 2013 was analyzed for meteorology and temporal change in radioCs concentration observed at Meteorological Research Institute in Tsukuba. The simulated results of radioCs concentration in Tsukuba is compared with the observed results. These analysis would suggest qualitatively minor effect of the local dust events on the enhancement of the radioCs concentration.

キーワード：セシウム、風塵現象、濃度

Keywords: radioCs, local dust event, concentration



## 福島県の里山に大気沈着した放射性セシウムの長期変動 Long-term Changes in the Distribution of Atmospherically Deposited Radioactive Cs in a Small Forest in Fukushima Prefecture

金野 俊太郎<sup>1</sup>、\*大河内 博<sup>1</sup>、黒島 碩人<sup>1</sup>、勝見 尚也<sup>1</sup>、緒方 裕子<sup>1</sup>、片岡 淳<sup>2</sup>、岸本 彩<sup>2</sup>、岩本 康弘<sup>2</sup>、反町 篤行<sup>3</sup>、床次 眞司<sup>4</sup>

Shuntaro Kinno<sup>1</sup>, \*Hiroshi Okochi<sup>1</sup>, Hiroto Kuroshima<sup>1</sup>, Naoya KATSUMI<sup>1</sup>, Hiroko Ogata<sup>1</sup>, Jun Kataoka<sup>2</sup>, Aya KISHIMOTO<sup>2</sup>, Yasuhiro IWAMOTO<sup>2</sup>, Atsuyuki SORIMACHI<sup>3</sup>, Shinji TOKONAMI<sup>4</sup>

1. 早稲田大学理工学術院 創造理工学部環境資源工学科、2. 早稲田大学理工学術院 先進理工学部、3. 福島県立医科大学 医学部、4. 弘前大学 被ばく医療総合研究所

1. School of Science and Engineering, Waseda University,, 2. School of Advanced Science and Engineering, Waseda University, 3. School of Medicine, Fukushima Medical University, 4. Institute of Radiation Emergency Medicine, Hirosaki University

2012年より積雪期を除き1ヶ月もしくは2ヶ月毎(2015年以降)に、浪江町南津島の山林でスギと落葉広葉樹の生葉、落葉、表層土壌、底砂の放射性Cs濃度を調査した。福島市-浪江町間の走行サーベイでは、除染により空間線量率は急速に減衰したが、未除染の山林では物理的減衰と同程度であった。

2014年以降、落葉広葉樹林では林床(落葉と表層土壌)で放射性Csは物理減衰以上に減少していないが、スギ林では生葉と落葉で減少し、表層土壌に蓄積した。2014年までスギ落葉中放射性Csは降水による溶脱が顕著であった。2013年春季には放射性Csはスギ林よりも広葉樹林で表層土壌から深層に移行していたが、2015年冬季にはスギ林で深層への移行率が上回った。

小川では放射性Csは小粒径の底砂に蓄積しており、一部は浮遊砂として流出するが、表層土壌に対する比は広葉樹林で2013年:0.54, 2015年:0.29, スギ林で2013年:1.4, 2016年:0.31と下がっており、森林に保持されていることが分かった。しかし、春季にはスギ雄花の輸送による放射性Csの生活圏への流出が懸念された。

キーワード: 森林、表層土壌、生葉、落葉、川砂、エッジ効果

Keywords: Forest, Surface soil, Fresh leaves/needles, Litter, Stream sand, Edge effect

## 福島第一原子力発電所事故から5年後の樹種別の林床の有機堆積物および 土壌の放射性セシウムの分布

### Radioactive Cs distribution of litter and soil in forests in each kind tree for 5years after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

\*山口 敏朗<sup>1</sup>、恩田 裕一<sup>1</sup>、加藤 弘亮<sup>1</sup>

\*Toshiro Yamaguchi<sup>1</sup>, Yuichi Onda<sup>1</sup>, Hiroaki Kato<sup>1</sup>

1. 筑波大学 アイソトープ環境動態研究センター

1. Center for Research Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba

The Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant fall-out contaminated the surrounded areas with high levels of radioactive materials in march 2011. We have been investigated based on soil samples as part of a cooperative pilot survey involving both government and academia since May 2011. The surveys detected widespread radioactive contamination throughout the forested areas in Fukushima prefectures, where approximately 71% of the land area is forested. And, there is an artificial forest more than 35% in Fukushima forest. Usually, artificial forest is made with a specific kind tree. They are processed to plant mushrooms and/or to build houses. Mushrooms are cultured on *Quercus serrata*. It's a deciduous tree. It means that *Quercus serrata* had not put leaves in the accident. Another hand, houses are built of *Cryptomeria japonica*. It is an evergreen tree. It means that fall-out was contaminated canopy of *Cryptomeria japonica*. Radionuclides deposited in forested areas by either wet or dry processes encounter the canopy. Most radioactive Cs (>90%) deposited onto the canopy is intercepted and retained by tree leaves and branches and subsequently transferred to the forest floor as a result of weathering by rainwater and wind.

The fall-outed radioactive Cs contaminated any kind tree forest. It is important to know the distribution of radioactive Cs in each kind tree forest for decontamination of forests.

Therefor we studied to know radioactive Cs distribution of litter and soil in the forest floor in each kind tree from 2011 to 2016.

Forests were separated for *Pinus densiflora* forest (PDF), *Pinus densiflora* Mix forest (PD Mix), deciduous tree forest (DTF), *Cryptomeria japonica* forest (CJF) and other coniferous tree forest (OCF). Air dose rate measured 3 times in 2011, 2014 and 2016. The number of samples were each 26, 56, 153, 71 and 52 in 2011, each 7, 28, 88, 52 and 33 in 2014, and each 7, 13, 24, 33 and 9 in 2016. The litter and soil radioactive Cs measured in 2011 and 2016.

Each kind tree forests air dose rate was positive correlated an initial deposition radioactive Cs. And, each forests air dose rate decreased with time. 2011-2014 air dose rate decrease was faster than 2014-2016 decrease in PDF, PD Mix, DTF and OCF. Another hand, 2014-2016 air dose rate decrease was faster than 2011-2014 decrease in CJF. It means that the timing of air dose rate decrease was delay in CJF. Each forests air dose rate decrease was faster than the physical decay of radioactive Cs. Another hand, each radioactive Cs inventory of litter and soil decrease was slower than the physical decay of radioactive Cs. CJF's radioactive Cs inventory of litter and soil increased significantly faster than PDF's and DTF's. It means that each forest air dose rate was negative correlated radioactivity of the litter and soil from 2011 to 2016. The litter's radioactive Cs inventory decreased faster than radioactive Cs physical decay in PDF, PD Mix, DTF and CJF. DTF's rate of decrease was significantly faster than PD Mix's and CJF's. The soil's radioactive Cs inventory decrease slower than radioactive Cs physical decay in PDF's and OCF's. And, the radioactive Cs of soil of PD Mix, DTF and CJF in 2016 were more than the radioactive Cs inventory of soil in 2011. And, CJF's rate of radioactive Cs inventory of soil increased significantly higher

than PDF' s. It means that radioactive Cs distributed from litter to soil in each forest. Therefore, air dose rate of forest was decreased faster than radioactive Cs physical decay from 2011 to 2016. And, litter' s radioactive Cs inventory decreased from 2011 to 2016. Soil' s radioactive Cs inventory increased from 2011 to 2016. It was thought that radioactive Cs distributed from litter to soil in every forest from 2011 to 2016.

# Temporal changes of Cs-137 concentration and its flux (dissolved fraction, suspended sediment, and coarse organic matter) at small Headwater Catchment in Fukushima after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident

\*岩上 翔<sup>1</sup>、辻村 真貴<sup>2</sup>、恩田 裕一<sup>1</sup>、榊原 厚一<sup>2</sup>、佐藤 雄太郎<sup>2</sup>、長野 倭介<sup>2</sup>

\*Sho Iwagami<sup>1</sup>, Maki Tsujimura<sup>2</sup>, Yuichi Onda<sup>1</sup>, Koichi Sakakibara<sup>2</sup>, Yutaro Sato<sup>2</sup>, Kosuke Nagano<sup>2</sup>

1. 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、2. 筑波大学持続環境科学専攻

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

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. In this study, dissolved Cs-137 concentration of stream water, subsurface water, suspended sediment (SS) and coarse organic matter (Org) were measured. Observations were conducted from 2011 at four headwater catchments in Yamakiya district, located 35 km northwest of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP).

Stream water discharge was monitored by combination of parshallflume and water level recorder. Stream water was sampled manually at steady state condition in 2-4 month interval. Also intense few hours interval sampling of stream water was conducted during rainfall events using automated water sampler. Suction lysimeters were installed for sampling the soil water. Boreholes were installed for the groundwater sampling. Stream water and groundwater samples were collected for 40 L each. All the water samples were filtered through 0.45  $\mu\text{m}$  pore-size membrane. Water samples with less than few L were concentrated by evaporative concentration. Water samples with more than few L were concentrated using the ammonium molybdophosphate (AMP)/Cs compound method. The SS was sampled using time-integrated SS sampler. Turbidity sensor was set in the streambed. The output of the turbidity (mV) was converted to SS concentration (mg/L). A 15 mm mesh net was placed in the stream channel to trap Org sample carried by the stream flow. The SS and Org samples were dried at 105 degree in an oven for 24 h and then finely crushed. The radioactivity of the samples was measured using gamma-ray spectroscopy.

The fast decline of first phase and secondary comparatively gradual decline were observed in time series of dissolved Cs-137 concentration in stream water and therefore fitted to two-component exponential line. During the rainfall events, the concentration of dissolved Cs-137 in stream water increased temporarily. Also the declining trend of Cs-137 concentration in SS and Org were fitted to exponential line however, those components were started to collect from August 2012 and the fast declining phase were not observed therefor fitted to single-exponential line. After 5 years passed from the accident, the difference of declining trend between catchments are shown.

In conjunction with Cs-137 concentration results, Cs-137 discharge flux were calculated for three components (dissolved fraction, SS, and Org). As a result, it is shown that more than 96% of the Cs-137 discharge was due to the discharge by SS. The total discharge ratio of Cs-137 to its deposition amount at each catchment was ranged 0.002–0.3% per year.

キーワード：セシウム137、福島第一原子力発電所、源流域

Keywords: Cs-137, FDNPP, headwater catchment

## Dynamic association of radioactive cesium between sediment and suspended sediment in river

\*高翔<sup>1</sup>、恩田裕一<sup>2</sup>、谷口圭輔<sup>3</sup>

\*XIANG GAO<sup>1</sup>, Yuichi Onda<sup>2</sup>, Keisuke Taniguchi<sup>3</sup>

1. 筑波大学生命環境科学大学院、2. 筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、3. 福島県環境創造センター  
1. Master's Program in Environmental Sciences, University of Tsukuba, 2. Center for Research on Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba, 3. Centre for Environmental Creation Fukushima Prefecture

### Abstract

After earthquake and tsunami of 11 March 2011, a lot of radionuclides  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were released into environment due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident. For the safety of people and the support of decontamination, the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) has taken a long term monitoring system, in which about river sediment, surrounding environment and water quality, in areas such as Iwate, Miyagi and Fukushima Prefectures since August 2011. Meanwhile, 7 sites were newly opened in Nakadori and Hamadori since July 2011, 24 sites were opened since October 2012, to monitor the dynamics of water quality and suspended sediment. However due to previous researches, we can see the obviously tendency of declining radiocesium concentration in suspended sediment, which slowed down after one year from the accident. But we cannot conclude the same ideal by analyzing the sediment samples which was taken by MEXT during 2011-2012, owing to the low correlation and widely variation between time and concentration caused by the influences of particle size. So during this survey we reanalyzed the particle size of samples and correction the particle size effect on the concentration of  $^{137}\text{Cs}$ . As a result, 80% sites' declining rate and the relationship between time and concentration were improved. On the other hand, we compared the decline rate between suspended sediment and river sediment in the same watershed, we find there are same tendencies and numerical correlations of radiocesium between suspended sediment and river sediment.

キーワード：放射性セシウム、底質、浮遊砂、持続性

Keywords: Radiocesium, Sediment, Suspended Sediment, Persistent

## 福島県沖の堆積物と直上水中の放射性セシウム濃度分布

### Distributions of radiocaesium activity in sediment and overlying water off the Fukushima

\*福田 美保<sup>1</sup>、山崎 慎之介<sup>1</sup>、青野 辰雄<sup>1</sup>、石丸 隆<sup>2</sup>、神田 穰太<sup>2</sup>

\*Miho Fukuda<sup>1</sup>, Shinnosuke Yamazaki<sup>1</sup>, Tatsuo Aono<sup>1</sup>, Takashi Ishimaru<sup>2</sup>, Jota Kanda<sup>2</sup>

1. 量子技術研究開発機構 放射線医学総合研究所、2. 東京海洋大学

1. National Institute for Quantum and Radiological Science and Technology, National Institute of Radiological Science, 2. Tokyo University of Marine Science and Technology

After the accident at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station (FDNPS) happened in March 2011, large amounts of radionuclides including radiocaesium also released from the FDNPS into the terrestrial and marine environments. In marine environment, parts of particulate radiocaesium have transported in seawater and accumulated to seafloor. Then, radiocaesium in sediment have partly re-suspended as particulate form and re-eluted as dissolved form due to several factors such as bottom current and deformation. The characters of seafloor topography are more different in the area off the coast of northern and southern part of Fukushima Prefecture, dividing areas at the Onahama port (Mogi and Iwabuchi, 1961). Because the wave bases in fine and stormy weather are about 20 and 80 m, respectively (Saito et al., 1989), it seems that the area of shallower than 100 m is also affected by erosion and re-sedimentation near seafloor with ocean wave degree. Thus, it is necessary to elucidate interaction for radiocaesium between sediment and seawater close to seafloor with more stations in order to guess radiocaesium activity variation at long times. For example, in the case of collected bottom-layer water with the Conductivity-Temperature-Depth (CTD) system, it is very difficult to collect seawater close to sediment because it is careful not to touch CTD system seafloor. This study was aimed at elucidating the relationship for radiocaesium activity concentration between sediment and trapped water on sediment collected using Multiple Corer, which is considered as overlying water.

Sediment samples were collected using a Multiple Corer during UM14-04 cruise in May 2014 at three stations: I01 (37°14' N, 141°07' E, water depth:60 m), I02 (37°14' N, 141°13' E, water depth:120 m) and C (36°55' N, 141°20' E, water depth:190 m). Overlying waters were collected using tube for 2 hours later from collected sediment. In laboratory, collected sediment sample are dried and overlying water samples were filtered through a 0.2- $\mu$ m pore size filter and was concentrated by the ammonium phosphomolybdate (AMP) method (Aoyama and Hirose, 2008). The radiocaesium activity concentrations in each sediment and overlying water samples were measured by gamma-ray spectrometry using a high-purity Ge-detector and corrected to sampling date.

In overlying water, the dissolved <sup>137</sup>Cs activity concentrations (mBq/l) were 3.1-16 and the activity at I01, I02 and C in order from the higher. In the surface-layer sediments (core depth 0-3cm), the activity concentrations (Bq/kg-dry) were 8.4-286 and the high activities at I01 and I02 have characters of relatively high percentage for silt to clay particle compared to those at C. At I02 and C, the activity in overlying water were same value compared those in bottom-layer of seawater, which collected above water depth 10 m from seafloor. On the other hand, the activity in overlying water at I01 was five time higher than those in bottom water. The calculated  $K_d'$  (L/kg) of apparent distribution coefficient using <sup>137</sup>Cs activity concentrations in surface-layer sediment and overlying water were  $8.8 \times 10^2$ - $1.5 \times 10^4$  and within ranges of recommended  $K_d$  value of  $2.0 \times 10^3$  for caesium by IAEA TRS422.

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：放射性セシウム、堆積物直上水、堆積物、福島第一原発事故

Keywords: radiocaesium, overlying water, sediment, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident



# 2015年および2016年の北太平洋西部亜熱帯循環域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の分布

## Fukushima-derived radiocesium in the western subtropical gyre of the North Pacific Ocean in 2015/2016

\*熊本 雄一郎<sup>1</sup>、青山 道夫<sup>2</sup>、濱島 靖典<sup>3</sup>、岡 英太郎<sup>4</sup>、村田 昌彦<sup>1</sup>

\*Yuichiro Kumamoto<sup>1</sup>, Michio Aoyama<sup>2</sup>, Yasunori Hamajima<sup>3</sup>, Eitrou Oka<sup>4</sup>, Akihiko Murata<sup>1</sup>

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、4. 東京大学

1. Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, 2. Fukushima University, 3. Kanazawa University, 4. University of Tokyo

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（ $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ ）がFNPP1より漏れ出し北太平洋に放出された。これまでの観測研究によって、日本近海の北太平洋に大気沈着および直接流出した放射性セシウムは北太平洋海流に沿って中緯度表層を東に移行しつつあることが明らかにされた（Kumamoto et al., 2016）。また、黒潮・黒潮続流の南側に大気沈着した放射性セシウムは亜熱帯モード水の亜表層への沈み込みによって、2014年末までに西部亜熱帯域のほぼ南端に相当する北緯15度まで南下したことが確認されている（Kumamoto et al., 2017）。一方、2011年から2015年の約4年余の間、北海道西部、新潟、石川、福井、島根、佐賀、鹿児島、愛媛、静岡県の各原子力発電所の沿岸域では、海水中放射性セシウムの継続的な濃度上昇が確認されている（規制庁, 2016）。また、Aoyama et al.(2017)も2015/2016年に同沿岸海域における表面水中濃度の上昇を報告している。放射性セシウム濃度の上昇が観測された海域は黒潮系水の影響が比較的大きい沿岸海域であり、これらの結果はFNPP1事故で西部亜熱帯域全体に拡がった放射性セシウムが、時計回りの亜熱帯循環流によって日本沿岸に回帰していることを暗示している。しかしながら、西部亜熱帯循環域におけるFNPP1事故起源放射性セシウムの時空間変動は明らかではない。我々は2015年および2016年に黒潮・黒潮続流南側の西部亜熱帯域において、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、新青丸KS15-14(2015年10月)、白鳳丸KH16-03(2016年6月)、および「かいめい」KM16-08(2016年9月)の各観測航海において、バケツ及びニスキン採水器を用いて各10~20リットルを採取された。陸上の実験室（海洋研究開発機構むつ研究所）において硝酸酸性にした後、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、ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射性セシウムの濃度を測定した。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。北緯30-32度/東経144-147度で得られた $^{134}\text{Cs}$ 濃度（FNPP1事故時に放射壊変補正済）の鉛直分布を、同海域において2014年に得られたそれ（Kumamoto et al., 2017）と比較した。その結果、深度100m程度までの表面混合層においては、2014年には約1 Bq/m<sup>3</sup>であった $^{134}\text{Cs}$ 濃度が、2015/2016年には1.5-2.5 Bq/m<sup>3</sup>に増加したことが分かった。一方、深度300-400mの亜表層極大層におけるその濃度は、2014年から2016年の3回の観測を通じてほとんど変化していなかった（約3-4 Bq/m<sup>3</sup>）。この $^{134}\text{Cs}$ 濃度の亜表層極大層は、亜熱帯モード水の密度層とよく一致していた。一方、同じく黒潮続流南側の北緯34度/東経147-150度における放射壊変補正済 $^{134}\text{Cs}$ 濃度は、2012年から2014年の約3年間に、表面混合層では検出下限値以下（約0.1 Bq/m<sup>3</sup>）から約1 Bq/m<sup>3</sup>に増加し、亜表層の300-400mでは約16 Bq/m<sup>3</sup>から約3-4 Bq/m<sup>3</sup>に低下したことが報告されている（Kumamoto et al., 2017）。これらの観測結果は、FNPP1事故から5年以上が経過した2016年までに、亜熱帯モード水によって南方に輸送されたFNPP1事故起源の放射性セシウムが同モード水の時計回りの循環によって、日本南方の西部亜熱帯域北部に回帰してきたことを強く示唆している。その他の起源（例えば陸水）の影響が小さいと仮定できるならば、表面混合層における2012年から2016年の間の $^{134}\text{Cs}$ 濃度上昇（0.1 Bq/m<sup>3</sup>以下から1.5-2.5 Bq/m<sup>3</sup>）は、亜表層極大の高濃度水が entrainmentによって表面水に取り込まれたためと推測される。講演では、日本沿岸域の2015/2016年の観測結果速報も報告する予定である。この本研究はJSPS科研費24110004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、西部亜熱帯域、亜熱帯モード水

Keywords: Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident, radiocesium, western subtropical gyre, subtropical mode water

## Estimate of spatial and temporal variation of radiocaesium amount derived FNPP1 accident in the North Pacific Ocean

\*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>、山田 正俊<sup>4</sup>

\*Yayoi Inomata<sup>1</sup>, Michio Aoyama<sup>2</sup>, Takaki Tsubono<sup>3</sup>, Daisuke Tsumune<sup>3</sup>, Masatoshi Yamada<sup>4</sup>

1. 金沢大学 環日本海域環境研究センター、2. 福島大学 環境放射能研究所、3. 電力中央研究所、4. 弘前大学 被ばく医療総合研究所

1. Kanazawa University, Institute of Nature and Environmental Technology, 2. Fukushima University, Institute of Environmental Radioactivity, 3. Central Research Institute of Electric Power Industry, 4. Hirosaki University, Institute of radiation emergency medicine

$^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  (radiocaesium) were released to the North Pacific Ocean by direct discharge and atmospheric deposition released from the TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FNPP1) accident in 2011. It is recognized that estimation of the total amount of released  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  is necessary to assess the radioecological impacts of their release on the environment. It was reported that the inventory of  $^{134}\text{Cs}$  or  $^{137}\text{Cs}$  on the North Pacific Ocean after the FNPP1 accident was 15.2-18.3 PBq based on the observations (Aoyama et al., 2016a),  $15.3 \pm 1.6$  PBq by OI analysis (Inomata et al., 2016),  $16.1 \pm 1.64$  PBq by global ocean model (Tsubono et al., 2016). These suggest that more than 75 % of the atmospheric-released radiocaesium (15.2-20.4 PBq; Aoyama et al., 2016a) were deposited on the North Pacific Ocean. It was revealed that these radiocaesium existed in the Subtropical Mode Water (STMW, Aoyama et al., 2016b; Kaeriyama et al., 2016) and Central Mode Water (CMW, Aoyama et al., 2016b), suggesting that mode water formation and subduction are efficient pathway for the transport of FNPP1 derived radiocaesium into the ocean interior within 1-year timescale. Kaeriyama et al. (2016) estimated the total amount of FNPP1 derived radiocaesium in the STMW was  $4.2 \pm 1.1$  PBq in October–November 2012. However, there is no estimation of the amount of radiocaesium in the CMW. Therefore, it is impossible to discuss about the mass balance of radiocaesium injected into the North Pacific Ocean. In this study, we conducted the optimum interpolation (OI) analysis to estimate the inventory of radiocaesium in the ocean interior as well as surface seawater by using the measured activities. Furthermore, transport speed of radiocaesium in the surface layer in the North Pacific Ocean were also estimated. The data used in this study were derived from all of the available data reported by such as the Tokyo Electric Power Company (TEPCO), the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT), and voluntary cargo ships. The data analysis period was until December 2015 after the FNPP1 accident. It was found that the radiocaesium across the North Pacific Ocean were reached to  $180^\circ \text{E}$  around  $40^\circ \text{N}$  latitude at July, 2012 by OI analysis. The transport speed was estimated to  $8.5 \text{ cm s}^{-1}$ . These were reached to the coastal site of America continent and the activities were increased after the year of 2014. The transport speed across  $70^\circ \text{W}$  ( $40^\circ \text{N}$  latitude) was decreased to  $5.2 \text{ cm s}^{-1}$ . We estimated the inventory of radiocaesium in the surface seawater (depth; 0-100m) during the periods from August to December, 2012, based on the OI analysis. Amount of  $^{134}\text{Cs}$  inventory was estimated to 4.7 PBq with decay-corrected to 1 October 2012 (7.9 PBq at the time on 11 March 2011). (In the case of  $^{137}\text{Cs}$ , the inventory was estimated to 12.5 PBq with decay-corrected to 1 October 2012 and 13 PBq at the time on 11 March 2011 which includes pre-Fukushima  $^{137}\text{Cs}$ ). These correspond to 43-53% of the injected  $^{134}\text{Cs}$  in the North Pacific Ocean. It was reported that the  $4.2 \pm 1.1$  PBq of  $^{134}\text{Cs}$  were distributed in the STMW (Kaeriyama et al., 2016). Taking into account these estimation, FNPP1 derived radiocaesium existed in the CMW in the North Pacific Ocean would be about 3-6 PBq.

(References)

- Aoyama, M., Hamajima, Y., Hult, M., Uematsu, M., Oka, E., . 2016. *J. Oceanogr.* 72:53–65.
- Aoyama, M., Kajino, M., Tanaka, T. Y., Sekiyama, T.T., Tsumune, D., Tsubono, T., Hamajima, Y., Inomata, Y., Gamo, T., .2016. *J. Oceanogr.* 72:53–65.
- Inomata, Y., Aoyama, M., Tsubono, T., Tsumune, D., Hirose, K. 2016. *Environ. Sci. Process. Impacts* 18:126–36
- Tsubono, T., Misumi. K., Tsumune, D., Bryan, F.O., Hirose, K., Aoyama, M. 2016. *Deep-Sea Res. I.* 115:10–21
- Kaeriyama, H., Shimizu, Y., Setou, T., Kumamoto, Y., Okazaki, M., Ambe, D., Ono, T. 2016. *Sci. Report.*, 6:22010 | DOI: 10.1038/srep22010

キーワード：放射性セシウム、福島第一原子力発電所、北太平洋

Keywords: Radiocesium, FNPP1, North Pacific Ocean