

目次

若手共同研究

佐藤 志彦「福島第一原発近傍で採取した土壤に含まれる放射性粒子の実態解明」	1
栗原 モモ「銅置換体プルシアンブルー不織布を用いた森林土壤中の溶存態放射性セシウムの移動メカニズムの解明」	3
脇山 義史「除染地を含むさまざまな土地利用における土砂および放射性セシウム流出プロセス」	4
辻 英樹「銅置換体プルシアンブルー担持不織布による林内雨中の溶存態放射性セシウムの現場濃縮装置の開発」	8
谷口 圭輔「福島県内河川における放射性セシウムの形態別移行状況の把握」	9
城間 吉貴「低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターを用いた水中ラドン濃度の精密測定システムの構築」	12
荻部 甚一「請戸川流域における福島第一原子力発電所事故に由来する放射性ストロンチウムの空間分布」	13
阿部 悠「染色体凝縮阻害剤を用いた新規細胞遺伝学的線量評価法の確立および自動解析ソフトによる二動原体染色体解析効率の改善」	16

重点共同研究

Ismail Md. Mofizur Rahman「Development of a new technique for selective separation of long-lived radionuclides using molecular recognition technology.」	18
田中 万也「安定セシウムから見た放射性セシウムの環境挙動の理解」	19
北 和之・西岡 拓哉・古川 純・野田 祐作「大気粒子から植物への放射性セシウム移行可能性の実証実験」	21
松崎 浩之「加速器質量分析による ^{236}U 測定法の開発及び福島原発周辺土壤中のウラン濃度測定」	24
阿部 善也「放射光マイクロビーム X 線分析による福島第一原発事故由来の放射性粒子の性状・起源解明」	26
宇都宮 聡「最先端電子顕微鏡法を駆使した福島原発由来の Cs 粒子の生成過程・移行挙動の解明」	29
高橋 嘉夫・三浦 輝・栗原 雄一・山崎 信哉・坂口 綾「河川 - 河口 - 海洋系での放射性セシウムの挙動」	31
二宮 和彦「福島県川俣町で採取した土壤中の放射性ストロンチウム移動度の決定」	33
竹中 千里「イメージングプレートを用いた樹皮表面の高濃度放射性物質の消失速度と実態の解明」	35
Mark Zheleznyak「Model based assessment of the impacts of the decontamination activities on river watershed on ^{137}Cs concentrations in river water : case study Niida River.」	44
田林 雄「那須における渓流水セシウムの時系列変化および水質形成過程」	53
青山 智夫「陸域の放射性物質の環境動態の長期予測」	55
岡田 往子「関東地方と EU 圏の環境放射能データの比較による福島原発事故影響及び地球環境変化の評価」	56

山口 直文「陸上に遡上した津波による時系列堆積過程の解明」	58
町田 学「輸送現象から理解する異常拡散」	60
伊藤 芳樹「ドップラーソーダと AWS 用超音波風速計による乱流計測手法の開発」	61
若月 泰孝・青山 智夫・浅沼 順「福島第一原発事故に伴う放射性物質の沈着過程と降水に関する研究」	65
山形 武靖「トリプル四重極型 ICP 質量分析計を用いた 129I 測定法の開発」	68
赤田 尚史「極低濃度トリチウム計測手法を用いたトリチウム計測用バックグラウンド水の検討」	70
中田 章史「高線量汚染地域に生息する野生生物の染色体を指標とした放射線影響評価」	71
熊本雄一郎「海域モニタリング試料を利用した 2011 年 5 月の福島県沿岸域における原発事故由来放射性セシウムの分布再現」	74
Jian Zheng「Distribution of hard-to-detect Pu and Cs-135 isotopes in early stage monitoring seawaters after the Fukushima nuclear accident.」	77
立田 穰「魚類胃内容物中堆積物の 137Cs/210Pb 濃度比による陸域起源粒子の推定手法」	79
青山 道夫「日本沿岸域における東電福島第一原発事故起源放射性セシウムの再循環の研究」	81
鈴木 正敏「福島原発事故に被災した野生ニホンザルの臓器別 DNA 損傷の定量解析」	83
猪股 弥生・青山 道夫・坪野 孝樹・津旨 大輔・山田 正俊「最適内挿法による北太平洋における放射性セシウムの分布の時空間変動及びその輸送速度の見積もり」	85
齋藤 敬「3D プリンタと 3D スキャナを利用したガンマ線測定用基準線源の開発」	90
津旨 大輔「福島第一原子力発電所から 90Sr の海洋への漏洩率の推定および挙動解析」	91
真田 哲也「可搬型液体シンチレーション計測装置を用いたラドン濃度測定法の開発と北海道内の温泉・鉱泉中ラドン濃度と環境動態研究」	98
神田 穰太「福島沿岸域における高線量粒子の海洋生態系影響に関する研究」	100

国際共同研究

Nuria Casacuberta Arola「Assessment of long-lived radionuclides (129I,236U and Pu isotopes) in the coast off Japan 5 years after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident.」	103
Anthony Parsons「Developing RFID technology for monitoring contaminated soil.」	105
Olivier Evrard「Tracing the sources of contaminated sediment stored in dam reservoirs of Fukushima coastal catchments.」	108
Frederic Coppin「Interdisciplinary Project on Environmental Transfer of Radionuclides: number FY2016.」	109
Qing Zhu・Jun Asanuma・Wenchao Ma「Determining the pathway and quantity of soil radioactive material losses at plot and catchment scales.」	113
Olivier Masson・Kazuyuki Kita・Yuko Hatano・Yuta Nakamura「Observation of atmospheric radioactive cesium and its wet deposition and modelling of resuspension and deposition processes.」	117

福島第一原発近傍で採取した土壌に含まれる放射性粒子の実態解明

佐藤志彦（日本原子力研究開発機構）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発事故ではCsを高濃度に濃縮した放射性粒子が飛散したことが知られている。しかしながらこれらの放射性粒子の分布や、成因についてはまだ十分な解明が進んでいない。筑波大学のグループでは福島第一原発周辺の土壌試料を多数保有しており、本共同研究課題ではそれらの土壌試料を活用し、福島事故に起因する放射性粒子の分布等について解明を試みた。

② 研究方法

筑波大学アイソトープ環境動態研究センターで保有する、福島第一原発周辺で採取した土壌を用い、オートラジオグラフィ上で放射性物質の濃集が確認できた範囲から粒子を分離し、含有する放射性物質の分析、Cs同位体比測定による放出源推定、ならびに走査型電子顕微鏡を利用し、粒子の表面観察を行った。

③ 結果・考察

全5地点の土壌を取り扱った結果、原発北部と西部で従前から知られているCs含有粒子（Csボール）と異なる粒子が見つかった。第一原発北部の粒子は粒径が大きいことに加え、表面に繊維状のケイ酸化合物が見られ、これまでに確認されていた何かが溶融して出来た微粒子とは異なる外観を呈していた。また西側で見つかった粒子は $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比が約1であり、Cs含有粒子と近い値を示しているにもかかわらず、粒径が数百 μm かつ、比放射能も明らかに小さかった。

これまでに報告されていた福島第一原発事故由来の放射性粒子は、大きく分けてつくば市で最初に見つかったAタイプ（通称Csボール）と、原発北側で見つかった1号機に由来するBタイプの2種類が確認されていたが、本研究では新たに1号機以外から放出され、比放射能が小さく、かつ放射能は強い新たな分類の粒子が発見された。本研究課題による発見は、今後の放射性粒子を利用した福島第一原発事故の事故進展挙動解析に貢献できると期待される。

成果発表

① 論文発表

1. Masahide Ishizuka, Masao Mikami, Taichu Y. Tanaka, Yasuhito Igarashi, Kazuyuki Kita, Yutaka Yamada, Naohiro Yoshida, Sakae Toyoda, Yukihiro Satou, Takeshi Kinase, Kazuhiro Ninomiya, Atsushi Shinohara, Use of a size-resolved 1-D resuspension scheme to evaluate resuspended radioactive material associated with mineral dust particles from the ground surface, Journal of Environmental Radioactivity, Elsevier, 166, pp436-448, 2017.
2. 小野貴大, 飯澤勇信, 阿部善也, 中井泉, 寺田靖子, 佐藤志彦, 末木啓介, 足立光司, 五十嵐康人 福島第一原子力発電所事故により 1 号機から放出された放射性粒子の放射光マイクロビーム X 線分析を用いる化学性状の解明, BUNSEKI KAGAKU Vol. 66, No. 4, pp251-261, 2017

② 学会発表

1. Overview of the Radioactive Particles in the Fukushima Accident, Yukihiro Satou, Keisuke Sueki, Kimikazu Sasa, Izumi Nakai, Yoshinari Abe, Yushin Iizawa, Takahiro Ono, Kouji Adachi, Yasuhito Igarashi, Goldschmidt 2016, June 2016 Yokohama.
2. 福島第一原発半径 3km 圏内における放射性粒子の発生源の検討 ○佐藤志彦、末木啓介、箕輪はるか、吉川 英樹、中間 茂 1、藤原 健壯 2016 年日本原子力学会秋の年会, 2016 年 9 月 久留米.
3. 福島第一原発北西部における $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比と放射性粒子の関係 ○佐藤志彦、末木啓介、笹公和 2016 年日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会, 2016 年 9 月 新潟.

③ その他

アウトリーチ活動

日本放射化学会核化学分會主催 核化学夏の学校 (徳島) 2016 年 8 月 (本研究課題の成果を、大学院生中心のグループで紹介)

研究課題名 銅置換体プルシアンブルー不織布を用いた森林土壌中の 溶存態放射性セシウムの移動メカニズムの解明

氏名（所属） 栗原 モモ（産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門）

研究成果概要

① 研究目的

申請者らが開発した、銅置換体プルシアンブルー不織布（Cu-NF）を用いたライシメータ（Cu-NF ライシメータ）を用い、既往のデータが蓄積されている筑波大調査地でリター中の溶存態放射性セシウムのフラックスの空間分布と環境要因（樹種、林内雨、林冠開空度）との関係を明らかにすることを目的とした。

② 研究方法

筑波大調査地である針広混交林とスギ人工林に、それぞれ 25 個、21 個の Cu-NF ライシメータを 3～5 m おきに設置し、2016 年 8 月から 2017 年 2 月までリター中の溶存態放射性セシウムのフラックスの調査を行った。また、林冠環境がフラックスに与える影響を明らかにするため、2016 年 10 月に林冠開空度の調査を行った。

③ 結果・考察

溶存態放射性セシウムのフラックスは夏（2016 年 8 月～10 月）より秋（10 月～12 月）のほうが大きく、フラックスの空間変動も大きかった。また、森林タイプ別の溶存態放射性セシウムのフラックスは、針広混交林のほうがスギ人工林よりもわずかに大きかった。リター中の溶存態放射性セシウムのフラックスと、リターの浸透水量には相関がなかったが、フラックスが大きい箇所は林冠開空度が小さい傾向がみられた。今後、より詳細に、フラックスと環境要因関係を明らかにするには、Cu-NF ライシメータ内に充填したリターの放射能、冬（2016 年 12 月～2017 年 2 月）のフラックスを求める（Cu-NF の測定）をする必要がある。

④ 成果発表

特になし。

除染地を含むさまざまな土地利用における土砂および

放射性セシウム流出プロセス

脇山 義史 (福島大学環境放射能研究所)

研究成果概要

① 研究目的

土砂移動にともなう放射性セシウムの再移動を理解することは将来予測を行う上で重要な課題である。Chernobyl 原発事故には、土壌侵食プロットを用いた調査により土砂移動にともなう放射性セシウムの側方移動量の定量化がなされたが、その多くが人工降雨をもちいた単発的な調査であり、長期的な観測例が少ない。また、福島では表土剥ぎ取りなどの除染作業が広範囲で行われてきたが、こうした大規模な人為的かく乱が土砂動態におよぼす影響は調べられていない。本研究では、筑波大学によって福島原発事故後に設置された土壌侵食プロットでの観測を行うことで、放射性セシウムの移動に関する長期的な時間変化傾向および除染の影響を明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

伊達市月舘地域内の休耕地 ($Cs-137$ 沈着量: 505 kBq m^{-2}) に未耕作畑、耕作畑、草地の 3 基、川俣町山木屋地区内の除染跡地 ($Cs-137$ 沈着量: 100 kBq m^{-2}) に未耕作畑、耕作畑の 2 基、同地区内のスギ若齢林 ($Cs-137$ 沈着量: 442 kBq m^{-2}) に 1 基、合計 6 基の土壌侵食プロット (長さ 22.13 m、幅 5 m) を設置した。このうち未耕作畑については、除草作業を行い、裸地化させることで侵食が起きやすい状況をつくった。耕作畑では耕作深 15 cm で耕作し、ダイズの作付けを行った。

土壌侵食プロットは、斜面の傾斜方向に長さ 22.13 m、幅 5 m の方形の受食域、その下端の量水用施設 (自記型水位計付き 30° ノッチ三角堰)、さらにその下流の土砂補足用タンクにより構成されている。降水量の観測のため、土壌侵食プロット近傍には自記型転倒ます雨量計を設置した。2 週間から 1 か月の間隔で各土壌侵食プロットに行き、降雨または融雪によって土砂の流出が見られた場合は、土砂の回収を行った。また毎回、水位計・雨量計のデータ回収および土壌侵食プロット表層の写真撮影を行った。

三角堰およびタンクに堆積した土砂（堆積土砂）の全量およびタンクに捕捉された懸濁水（浮遊土砂）の一部を回収し、実験室に持ち帰った。堆積土砂は乾燥・粉碎後、重量測定を行い、堆積土砂量 (kg m^{-2}) を求めた。回収した懸濁水は吸引ろ過によって浮遊土砂とろ液に分離した。分離した浮遊土砂を乾燥後、重量を測定し、浮遊土砂濃度 (kg L^{-1}) を求めた。これに三角堰の水位計で計測された水流出量 (L m^{-2}) を乗じて、浮遊土砂量 (kg m^{-2}) を求めた。得られた堆積土砂量と浮遊土砂量の合計を流出土砂量 (kg m^{-2}) とした。

堆積土砂および浮遊土砂試料をゲルマニウム半導体検出器によってそれぞれ堆積土砂および浮遊土砂 Cs-137 濃度 (Bq kg^{-1}) を測定した。堆積土砂量と浮遊土砂量の重みづけ平均 Cs-137 濃度を流出土砂の Cs-137 濃度 (Bq kg^{-1}) とした。さらに流出土砂の Cs-137 濃度を各プロットにおける Cs-137 初期沈着量で除すことによって、正規化 Cs-137 濃度 ($\text{m}^2 \text{kg}^{-1}$) を算出した。吸引ろ過によって得られたろ液は、吸引ろ過によって $0.45 \mu\text{m}$ 以上の粒子を除去した後、ゲルマニウム半導体検出器によって溶存態 Cs-137 濃度 (Bq L^{-1}) を測定した。浮遊土砂の Cs-137 濃度を対応するろ液の溶存態 Cs-137 濃度で除して分配係数 K_d (L kg^{-1}) を算出した。2014 年までに同様の方法で採取・ろ過して得られたろ液を分析し、本年度採取された試料と合わせて、土地利用ごとの分配係数 K_d を算出した。

転倒マス雨量計を設置し降水量の観測を行った。降水量のデータを基に Wischmeyer and Smith (1978) を参考に侵食力ファクタ R をもとにして各降雨イベントの侵食力（侵食力: $\text{MJ mm ha}^{-1} \text{hr}^{-1}$ ）を 1 回収期間ごとに算出した。

③ 結果・考察

土壌侵食量はスギの 0.20 t ha^{-1} から耕作畑の 72 t ha^{-1} であり、土砂量を侵食力で除した見かけの受食性は草地の 4.2×10^{-5} から耕作畑の 8.0×10^{-2} の範囲の値となった。除染後未耕作畑と耕作畑は $10^{-3} \text{ t ha MJ}^{-1} \text{ mm}^{-1}$ のオーダーにあり、除染前の畑とは概ね同様の値である一方、草地および森林より 2 オーダー高い値となった。平均 Cs-137 濃度は、除染後耕作畑の 710 Bq kg^{-1} からスギの 37000 Bq kg^{-1} の値を示し、Cs-137 初期沈着量が高いほど高い傾向が見られた。除染後の未耕作畑・耕作畑では、除染前の未耕作畑・耕作畑の値から、それぞれ 91%、83% 低下した。正規化 Cs-137 濃度は 0.007 から $0.085 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1}$ の値を示した。除染地における正規化 Cs-137 濃度は除染前の畑と同等の値であるが、除染前の Cs-137 初期沈着量を基準とした場合は 1 オーダー低い値を示した。Cs-137 の初期沈着量に対する流出率（Cs-137 流出率）の積算値

は0.15から8.8%であり、単位侵食力当たりのCs-137流出率は草地の 5.5×10^{-7} から除染前未耕作畑 8.9×10^{-4} % (MJ mm ha⁻¹hr⁻¹)⁻¹であった。除染後未耕作畑・耕作畑は10⁻⁴のオーダーにあり、除染前のCs-137初期沈着量を基準とした場合は10⁻⁵のオーダーにあった。除染前の未耕作畑・耕作畑と同等のCs-137流出率を示す一方で、草地および森林に比べて高い値となった。

侵食プロセスの違いについて考察するため、土砂・Cs-137流出に対する堆積土砂と浮遊土砂の寄与率および表面流流出率を調べた。除染前のプロットではいずれも浮遊土砂が土砂およびCs-137流出に対する寄与が大きいものに対して、除染後の未耕作畑および耕作畑では寄与率が低かった。表面流流出率を見ると、除染地では比較的低い値が見られる。対象とした除染地では花崗岩由来の粒径の粗い土壌が客土されており、透水性が高く表面流が発生しにくかったと考えられる。したがって、除染地では表面流が発生しにくいため、表面流による浮遊土砂の運搬が抑制されることで土壌侵食量が比較的小さくなったと考えられる。

分配係数 K_d は、スギの 1.7×10^3 から耕作畑の 4.9×10^5 L kg⁻¹までの範囲にあった。スギでは低い値を示しているが、その他の土地利用では、福島河川で観測された分配係数 K_d と概ね同等の値を示した。このうち、除染地については10⁵のオーダーにあり、除染前の未耕作畑・耕作畑と大きな差はなかった。

以上のように、除染した未耕作地・耕作畑では、除染前の未耕作・耕作畑と比べて、土砂流出量は同等であり、Cs-137濃度は低下することで、全体的にCs-137の流出量は小さくなることがわかった。また、除染前後の表面流の流出率が低く、細粒土砂の流出が抑制されることが示唆された表面流として流出する懸濁水における分配係数 K_d は森林を除く除染前の土地と同様の値を示していた。除染地においても、Cs-137は土砂に付着した形態で移動することがわかった。今後、除染地における土壌・土砂の粒径や透水性などに着目しながら、除染地におけるプロセスを明らかにしていきたい。

成果発表

- ① 論文発表

- ② 学会発表

脇山 義史, 恩田 裕一. 2016. 福島における放射性物質の分布状況調査と関連研究(13)
さまざまな土地利用における土砂および放射性セシウムの流出プロセス. 日
本原子力学会 2016 年秋の大会, 2016 年 9 月 9 日 久留米市

Wakiyama, Y., Onda Y., Takase, T., Yoshimura, K. 2016. CESIUM-137 WASH-OFF
ASSOCIATED WITH SOIL EROSION ON VARIOUS LAND USES IN FUKUSHIMA. II
international conference of radioecological processes, November 7, 2016,
Sevilla, Spain

③ その他

研究課題名 銅置換体プルシアンブルー担持不織布による林内雨中の溶存態放射性セシウムの現場濃縮装置の開発

氏名（所属） 辻 英樹（国立環境研究所 福島支部）

研究成果概要

① 研究目的

産総研らが開発した銅置換体プルシアンブルー担持不織布（以下 Cu-NF）を溶存態放射性 Cs の吸着剤とした林内雨モニタリング装置を開発し、従来法との精度比較により現場適用性の検証を行う。

② 研究方法

福島県伊達郡川俣町山木屋地区の針広混交林・スギ人工林内において Cu-NF 装置を 15～25 個設置し、手法比較のために、従来法に使われるバルクサンプラーを Cu-NF 装置の近傍に設置した。一定期間後に Cu-NF 装置およびバルクサンプラーの雨水を回収し、ろ過等の前処理を行った後、両手法における溶存態 ^{137}Cs 濃度を測定し、手法間比較を行った。

③ 結果・考察

Cu-NF 装置によって雨水中の溶存態 ^{137}Cs は十分に回収可能であることがわかった。しかし、Cu-NF 法による溶存態 ^{137}Cs 濃度は従来のバルクサンプラー法と比べて有意に高く（1.8～3.6 倍）、設置地点の溶存態 ^{137}Cs 濃度のバラ付きだけでは説明できないことがわかった。このような濃度差が生じた要因を現状の測定データから明らかにすることは困難であり、模擬雨水等を用いた室内実験を別途する必要がある。

成果発表

特になし。

福島県内の河川における放射性セシウムの形態別移行状況の把握

谷口圭輔（福島県環境創造センター）

研究成果概要

① 研究目的

東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により、福島県は広範囲にわたって放射性物質による汚染を受けた。特に放射性セシウムの沈着による県民生活への影響が懸念されており、長期的な対策を考えるためにその動態を把握することが求められている。放射性セシウムは溶存態と懸濁態で河川等に流出しており、形態の違いにより生物への移行経路などが異なるとされる。また、現在、県内各地で実施されてきた除染作業が、下流へ与える影響についても実態の把握が必要とされている。

本研究では、県内を流れる河川で観測を行い、溶存態と懸濁態の放射性セシウム濃度とフラックスを算出し、その変動を規定する要因についてGISを用いた解析を行う。

② 研究方法

福島県環境創造センターでは、30の河川観測点において、浮遊砂サンプラーによる懸濁態放射性セシウム濃度の測定を続けている。その観測点において、溶存態放射性セシウム濃度の測定を行うことで、形態別の放射性セシウムの移行状況を把握する。

また、県内で実施された除染活動の進捗についての情報を収集し、GISを用いて整理する。これを、河川の放射性セシウム濃度やフラックスの経時変化と比較をすることで、除染と放射性セシウム動態の関係を明らかにする。

③ 結果・考察

溶存態放射性セシウム濃度のデータ取得のため、現場濾過システムを導入し、阿武隈川流域において試用を行った。現場濾過システムは、懸濁態を捕集する多段フィルターブロック部と、溶存態を吸着する陽イオン交換樹脂フィルター部からなる。本事業では、多段フィルターブロックを2基直列に配置し、プレフィルターによる粗粒分除去と0.45 μ メンブレンフィルターによるろ過を同時に行う手法について検証を行った（その他1）。

環境省による除染が行われた川俣町山木屋地区について、除染作業の月次進捗率データを収集し、当該地域を流れる口太川の観測データとの比較を行った。その結果、除染作業が本格化した2014年に、口太川上流部の放射性セシウム濃度が急低下したことが分かった。また、同じ時期を境に、降水量に対するSS（懸濁物質）フラックスが増大していることも確認された。除染による農地の表土除去と客土の結果、裸地化した除染済み農地からの土砂流出が増加した可能性が示唆された（学会発表2,4）。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

1. 谷口圭輔, 倉元隆之, 恩田裕一(2016) 福島県を流れる河川における放射性セシウムの動態調査. 日本地球惑星科学連合大会 2016, 千葉.
2. 谷口圭輔, 倉元隆之, 恩田裕一, 吉村和也 (2016) 流域での除染が河川の放射性セシウム動態に与える影響. 第5回環境放射能除染学会研究発表会, 福島.
3. 谷口圭輔, 倉元隆之, 恩田裕一, 吉村和也 (2016) 事故後5年間の河川を介した放射性セシウムの移行状況. 日本原子力学会 2016年秋の大会, 福岡.
4. Keisuke Taniguchi, Yuichi Onda, Kazuya Yoshimura, Hugh Smith, William Blake, Takayuki Kuramoto, Takayuki Sato, Saori Onuma, Takaaki Kubo (2016) Effects of decontamination work on riverine radiocaesium activity concentrations in Fukushima affected area (福島原発事故の影響を受けた地域における河川の放射性セシウム濃度に対する除染作業の影響). AGU Fall meeting 2016 (米国地球物理学会 2016年秋の大会), サンフランシスコ.
5. 谷口圭輔, 倉元隆之 (2017) 福島県内の河川における河川水試料の現場処理システムを用いた溶存態セシウム濃度分布. 第3回福島大学環境放射能研究所成果報告会, 福島.

③ その他

1. 谷口圭輔, 倉元隆之 (2017) 福島県内の河川における河川水試料の現場処理

システムを用いた溶存態セシウム濃度分布. 第3回福島大学環境放射能研究所成果報告会, 福島.

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターを用いた水中ラドン濃度の精密測定システムの構築

城間 吉貴（核融合科学研究所）

研究成果概要

① 研究目的

ラドンの環境中での挙動を定量的に評価するには、低濃度の水中ラドンを正確に測定することが重要である。本研究では、低バックグラウンド型液体シンチレーションカウンターを用いた水中ラドン濃度測定法の確立と可搬型液体シンチレーションカウンターを用いた水中ラドン濃度測定の品質維持を目的とし、国内の研究機関と比較測定を行った。

② 研究方法

ラドンの較正には Ra 線源を使用するが、国内において使用することは容易ではない。本研究では、神戸薬科大学が所有する Ra 線源によって較正された汎用型液体シンチレーションカウンターを基準器として比較測定を行った。さらに、国内において地下水を採取し、水中ラドン濃度の測定を行った。

③ 結果・考察

比較測定の結果、低バックグラウンド型液体シンチレーションカウンターによる水中ラドン濃度の換算係数は、 3.2 cps Bq^{-1} となり、最小検出可能濃度 (MDC) は 0.3 Bq L^{-1} となった。また、可搬型液体シンチレーションカウンターの換算係数は 4.5 cps Bq^{-1} となり、MDC は 2.0 Bq L^{-1} となった。これらの結果をもとに国内において地下水を採取し、 $4.3\text{--}3600 \text{ Bq L}^{-1}$ の範囲の水中ラドン濃度を定量した。

成果発表

① 論文発表

投稿準備中

② 学会発表

日本保健物理学会第 50 回研究発表会 平成 29 年 6 月（発表予定）

③ その他

特になし

請戸川流域における福島第一原子力発電所事故に由来する 放射性ストロンチウムの空間分布

苧部甚一（茨城大学広域水圏環境科学教区研究センター）

研究成果概要

① 研究目的

2011年3月の福島第一原子力発電所（原発）事故によって生じた陸水環境における放射性ストロンチウム（Sr）汚染実態の解明は遅れている。その原因の一つには、放射性Sr分析法の難しさがある。そこで本研究では、簡略化・迅速化された新しい放射性Sr分析法（Karube et al. 2016, Tazoe et al. 2016）を用い、放射性Sr濃度が高いことが予想される福島県浪江町を流れる請戸川流域において、土壌、河川水および魚類の放射性Sr濃度から原発事故に由来する放射性Sr分布について明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

調査は福島県浪江町を流れる請戸川に流れ込む4つの支流（a, b, c, d, 図1）とその周辺において、2016年4～11月に実施した。なお、本研究では前年度（2015年）に請戸川の各地点で行った調査の試料についても分析対象とした。また、放射性Sr汚染レベルの相対的評価のため、原発事故の影響がない青森県の3河川（e, f, g, 図2）の渓流域でも同じ調査（2016年6月）を行った。採取した魚類は骨を灰化後に酸分解（王水、硝酸）、土壌は灰化後に酸抽出（硝酸）、河川水（30～40L）はキレートファイバー（MetaSEP CH-1, GL Sciences）による濃縮を行い、その後は各試料とも固相抽出法によるSr分離（Karube et al. 2016）もしくはY分離（Tazoe et al. 2016）を行い、最終的にY-90のベータ線を低バックグラウンド2 π ガスフローカウンター（LBC, 日立アロカメディカル）で測定し、Sr-90の放射能を算出した。

③ 結果・考察

請戸川の調査地点における土壌中のSr-90は5.1～182.0 Bq/kg dryを示した。特に、請戸川上流域の一部地域（地点：b, d）で高濃度（51.2～182.0 Bq/kg dry）を示した。一方、青森県内の調査地点の土壌（f, g）はそれぞれ2.9, 3.7 Bq/kg dryとなった。事故前の福島県内における土壌中Sr-90濃度は0.2～20 Bq/kg dry程度で

あることが報告されている（福島県 2012）．従って，今回の結果からは原発事故以前の濃度よりも高い地点（b, d）で原発事故に由来する放射性 Sr が検出されたといえる．河川水中の Sr-90 濃度は土壌中 Sr-90 が高濃度であった d において 0.004 Bq/kg を示し，請戸川の他の地点（a, b, c）および青森県内の河川水（f）では 0.001～0.002 Bq/kg となった．この傾向は土壌中の Sr-90 濃度の分布と同じであり，少なくとも地点 d では土壌中に沈着した原発事故に由来する Sr-90 の一部が河川水中に移行している可能性を示唆している．イワナの骨に含まれる Sr-90 濃度も河川水中の Sr-90 濃度と同様の傾向があり，土壌中の Sr-90 濃度が高い地点（b, d）において 113～254 Bq/kg ash，請戸川の他の地点（a, c）で 52～63 Bq/kg ash，青森県内の河川（f）では定量下限値以下（31～82 Bq/kg ash）となった．以上の結果から，請戸川上流の一部地域において陸域環境（土壌）だけでなく水環境中（河川水，魚骨）でも原発事故に由来する放射性 Sr が今も検出できるほどに分布していることが明らかとなった．また，その原発事故により土壌に沈着した放射性 Sr の一部が河川に溶出してイワナの骨に蓄積するという放射性 Sr 移行経路が示唆される結果となった．

図表

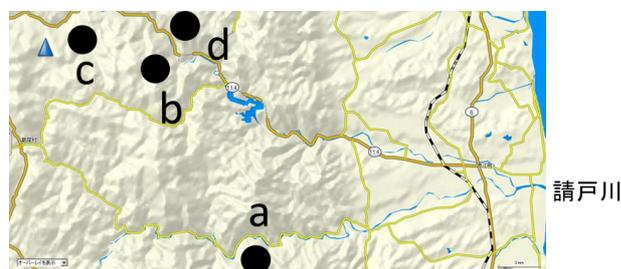


図 1 福島県浪江町を流れる請戸川の流域における調査地点（a, b, c, d）



図 2 青森県における調査地点（e, f, g）（左）と請戸川との位置関係（右）

引用文献

福島県 (2012) : 福島県における土壌の放射線モニタリング調査結果

Karube et al. (2016) : Environ Sci Pollut Res 23:17095-17104

Tazoe et al. (2016) : Talanta 152:219-22

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

苅部甚一，鈴木貴大，川上拓磨，Park Soeun，上田仁，中里亮治，鈴木仁根，加藤健一，田副博文，田中敦 (2017) : 避難指示区域内の渓流域における福島第一原子力発電所事故由来の放射性ストロンチウムの分布，第 51 回日本水環境学会年会，2017 年 3 月 15 日～17 日，熊本大学，熊本県熊本市

③ その他

染色体凝縮阻害剤を用いた新規細胞遺伝学的線量評価法の確立および自動解析ソフトによる二動原体染色体解析効率の改善

阿部 悠 (福島県立医科大学)

研究成果概要

① 研究目的

二動原体染色体(Dic)法は、緊急被ばく医療における生物学的線量評価法のゴールドスタンダードであり、正確な被ばく線量評価を行うには、長時間のコルセミド処理による分裂開始後、1回目の分裂中期染色体像を捉えなければならない。しかし、コルセミド処理時間が長くなるほど染色体が過度に凝縮しDicの鑑別が難しくなる。染色体凝縮はコンデンシン複合体の修飾によって制御されていることは既に知られており、この過程を阻害することで染色体凝縮を人為的に制御することができると考えられる。そこで染色体凝縮を人為的に制御した染色体標本作製し、新規染色体線量評価法を確立し、自動解析ソフトを用いたDic解析の効率化を図る。

② 研究方法

正常培養リンパ球細胞株にX線(0, 1, 3Gy)照射し、分裂停止剤(コルセミド)を加え48時間培養する。その際、各種染色体凝縮関連タンパク阻害剤を経時的かつ添加濃度を段階的に変更しながら培養液に加え、リンパ球を処理後、細胞を固定しギムザ法にて染色体標本を染色後、染色体解析顕微鏡システムにて染色体画像の自動取り込み、染色体の凝縮の程度や染色分体の開き具合等を比較・検討する。客観的な判断指標としてDIC解析ソフトウェアによる解析結果と人による解析結果を比較し、最も効率化が見られる標本作製条件を検討する。

③ 結果・考察

阻害剤投与実験に先駆け、染色体凝縮度の数値化のため正常培養リンパ芽球細胞株(B cell line)でもコルセミド長時間処理による過度の染色体凝縮が起きるのか確認した(図1)。その結果、B cell lineではヒト末梢血リンパ球よりも過度に染色体凝縮が起こることを確認し、染色体凝縮の阻害効果の観察に適していることが分かった。B cell lineでの染色体凝縮度の数値化が達成できたことから、現在分裂期関連キナーゼ阻害剤の添加による染色体過凝縮緩和効果の確認実験に取り組んでいる。細胞分裂時に必須であり、DNA超らせんの緩和などに関わるTopoisomerase II α の阻害剤

である Doxorubicin を始め、約 20 種類の阻害剤をリストアップし、添加濃度や処理時間の検討を進めている。

本研究によって染色体凝縮を人為的に制御した染色体標本作成法を確立できれば、適切な伸長具合の染色体標本が要求される Dic 自動解析ソフトウェアを使用した解析効率の向上と迅速化が期待できる。また、本研究で染色体形態に変化が見られたタンパク分子について網羅的解析を行うことで染色体形成・凝縮に関する新規メカニズムの解明にも繋がるのが期待できる。

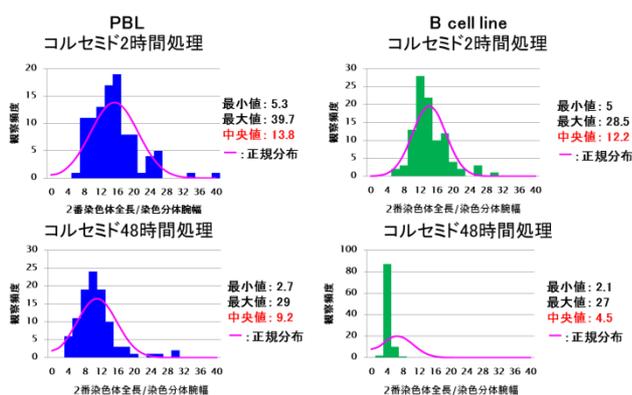


図 1：2 番染色体長/腕幅の比による染色体凝縮値の比較

成果発表

① 論文発表

特に無し

② 学会発表

③ その他

第三回北日本動物科学研究会 (H29. 3. 15～16. 新潟県東蒲原郡阿賀町)

Development of a new technique for selective separation of long-lived radionuclides using molecular recognition technology

Ismail Md. Mofizur Rahman (Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University)

Summary of the Project

The radionuclides released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) can be categorized to short, medium, long and extraordinary long-lived depending on the corresponding decay period. The ^{137}Cs and ^{90}Sr are known as long-lived radionuclides, which have the half-lives of about 30 years (*J. Environ. Radioact.* **2014**, *136*, 56). The ^{36}Cl ($t_{1/2} = 0.3$ million years), ^{135}Cs ($t_{1/2} = 2.3$ million years) and ^{129}I ($t_{1/2} = 15.7$ million years) are some extraordinary long-lived radioisotopes, which represents the extreme biohazards (*Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* **2013**, *44*, 2287). We assumed that the segmentation of radionuclides in aqueous radioactive waste based on the corresponding decay period can reduce the requirement of monitoring time-span of containment, disposal by nuclear transmutation, and cost related to the disposal storage designs. The aim of current work was to develop a unique technique for selective separation of radionuclides based on the respective half-lives. The objective also includes the minimization of the effect from the matrix ions during the separation process.

List of Publication

1. Selective removal of cesium from aqueous matrix using an immobilized macrocyclic material containing solid phase extraction system (In preparation, 2017).

研究課題名：安定セシウムから見た放射性セシウムの環境挙動の理解

氏名（所属）：田中万也（国立研究開発法人日本原子力研究開発機構）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発事故により放出された放射性セシウム(^{134}Cs , ^{137}Cs)の環境挙動は、事故以前から環境中に存在する安定セシウム(^{133}Cs)と同様の化学的挙動を示すはずである。また、安定セシウムは放射性セシウムに比べて圧倒的に存在度が高く、化学反応の素過程において放射性セシウムの挙動を規定するはずである。そこで本研究では、河川堆積物における両者の分布を調べ、その関係を明らかにすることを目的とした。

② 研究方法

口太川上流域（川俣町山木屋）及び阿武隈川（福島市黒岩）において河床堆積物を採取した。山木屋堆積物は母岩（阿武隈花崗岩）近傍で採取しており、母岩の化学組成（鉱物組成）をほぼそのまま反映していると考えられる。黒岩は阿武隈川中流域に位置し、出水時に上流域から運搬されたとみられる土砂が堆積していた。採取した試料はシルトから砂にかけて9画分にサイズ分画した。各画分の鉱物組成を XRD、主成分元素濃度を ICP-OES、Rb 及び ^{133}Cs 濃度を ICP-MS を用いてそれぞれ測定した。 ^{137}Cs 濃度はゲルマニウム半導体検出器にて測定した。

③ 結果・考察

山木屋堆積物中の ^{133}Cs 濃度は粒径が小さくなるほど高い傾向を示した。細粒な画分ほど CIA(Chemical index of alteration)が高く、化学風化が進行していた。また、細粒な画分には粘土鉱物が含まれており、鉱物組成からみても化学風化が進行していることが示された。細粒な画分における高い ^{133}Cs 濃度は、風化の過程で粘土鉱物に濃集していくためであると考えられる。 ^{137}Cs の粒径分布も同様の傾向を示し、細粒な画分ほど濃度が高かった。一方、K 及び Rb は風化とともに堆積物粒子から溶脱している傾向にあり、同じアルカリ元素においても異なる挙動を示すことが明らかとなった。黒岩で採取した堆積物中の ^{133}Cs の粒径分布は山木屋堆積物とは対照的であった。シルトから細粒砂画分にかけて ^{133}Cs 濃度が低下していくものの粗粒砂画分ではシルトサイズと同等もしくはそれ以上の濃度を示した。粗粒砂画分には多数の黒雲母粒子が肉眼で確認でき、XRD パターンにも（風化）黒雲母に由来する大きなピークが認められた。こうした粗粒砂における高い ^{133}Cs 濃度は風化黒雲母に由来していると考え

られる。同様に、 ^{137}Cs の粒径分布においても粗粒砂画分において高い濃度が見られた。

以上のように福島県で採取した河床堆積物中の安定セシウムと放射性セシウムの粒径分布が類似していることが分かった。これは両者が同じセシウムという元素の同位体であることを考えれば、当初の予想どおりの結果が得られたと言える。こうした両者の類似性をもとに、安定セシウムの分布および挙動から放射性セシウムの移行挙動の予測が期待される。

成果発表

① 論文発表

Tanaka, K., Watanabe, N., **Yamasaki, S.**, Sakaguchi, A., Fan, Q.H. and Takahashi, Y.
Mineralogical control of the size distribution of stable Cs and radiocesium in riverbed sediment. Submitted to *Geochem. J.* (under review)

② 学会発表

田中万也、**山崎信哉**. 河床堆積物中の安定セシウムと放射性セシウムの関係. 2016 年度地球化学学会年会、大阪市立大学、2016/9/14

③ その他

特になし

大気粒子から植物への放射性セシウム移行可能性の実証実験

北 和之、西岡拓哉（茨城大学理学部）

古川 純、野田祐作（筑波大学アイソトープ環境動態研究センター）

研究成果概要

① 研究目的

東京電力(株)福島第一原発事故により環境中に多量に放出された人工放射性物質は、地面・植生に沈着した後、一部は様々な形で移行している。大気中に浮遊する放射性物質は事故直後より大幅に減少したものの、地表からの再飛散により現在もしばしば増大を示し、長期的な放射性物質の移行と環境リスクを推定するためには、再飛散プロセスの定量的理解が必要である。

放射性セシウムの地表沈着が多い地域は山間部にあり、そこでの再飛散プロセスを明らかにするため、2012年より浪江町津島地区での大気セシウム放射能濃度観測を実施している。その結果、夏季に冬季の5倍以上の放射能濃度増大が繰り返されていることが明らかになっている。夏季には、グラウンドに比べ隣接する林内での放射能濃度が高いことから、林内に放出源が存在することが示唆される。また、カスケードインパクトを用いた粒径別サンプリングにより、粒径2~10 μm の粒子に放射性セシウムが多く含まれていることが明らかになった。光学顕微鏡および電子顕微鏡観察により、このような粒径の粒子として、長径が5-10 μm の楕円形の有機物粒子が卓越していることが分かった。蛍光X線分析により、試料中の炭素濃度とセシウム放射能がよい正相関を示すこと。また上記の粒子数密度とも正相関を示すことが明らかになり、真菌類(特に担子菌類)胞子など生物由来粒子が再飛散に重要であることが示唆されている。また、夏季~秋季の大気粒子サンプルを、純水抽出すると約半分~8割以上の放射性セシウムが脱離することが分かった。この純水で脱離する放射性セシウムが、イオン態など水溶性である場合、植物に再吸収され放射性セシウムの大気-生態系間で循環している可能性がある。これは、森林内で放射性セシウムがなかなか減少しない原因となりえる。本研究では、大気中の放射性セシウムが、植物に再利用される形で再飛散しているのか調べることを目的としている。

②研究方法

本研究で使用する大気粒子サンプルは、2015年から2016年に浪江町津島地区でハイボリュームエアサンプラーを使用して石英繊維フィルター上に採取されたものである。12-2月の

冬季、3-5月の春季、8月の夏季、10月の秋季に採取されたサンプルを、40℃の純水で抽出したところ、冬季および春季サンプルでは約20%の放射性セシウムが抽出されたのに対し、夏季～秋季のサンプルでは45-70%の放射性セシウムが抽出された。その抽出液中のセシウム137放射能を測定したのちに、30ccずつ茶色ポリビンに分け、それぞれに培養液で水耕栽培されたイネの苗を根のみが抽出液にふれるように入れて、48時間抽出液での培養を行った。そのあと、培養液、根部、地上部に分け、それぞれセシウム137放射能を測定することで、抽出液の放射性セシウムが植物体に吸収されるか調べた。

② 結果・考察

冬季および春季については各1サンプル、夏季および秋季については、各2サンプルを用い、上記の実験を実施した。その結果、冬季、春季および夏季サンプルの1個においては、抽出液中の50-60%のセシウム137が根部あるいは地上部に吸着ないし吸収されていることが分かった。残る夏季1サンプルおよび秋季2サンプルでは、抽出液中の80-100%のセシウム137が根部あるいは地上部に吸着ないし吸収されていた。後者の結果は、夏季および秋季において、生物由来の担体粒子によって大気に再飛散した放射性セシウムのかなりの部分が植物に再吸収されうることを示している。他の季節では、あるいは夏季でも、大気飛散している放射性セシウムのごく一部分のみが植物に吸収されることが分かった。これは、放射性セシウムがイオン態でないためであるのか、あるいはカリウムなど競合する成分により吸収が阻害されているためであるのかなど、今後調べていく必要がある。

成果発表

① 論文発表

現在投稿論文準備中

② 学会発表

北ほか（.北 和之、.木名瀬 健、.堀内 貴明、.坂本 宗一郎、武井 愛里、出水 宏幸、五十嵐 康人、足立 光司、梶野 瑞王、山田 桂太、豊田 栄、吉田 尚弘、二宮 和彦、篠原 厚、大河内 博、緒方 裕子、石塚 正秀、牧 輝弥、阿部 善也、中井 泉、古川 純、恩田 裕一）

「夏/秋季における大気中の放射性セシウムの再飛散過程～生物—大気循環の可能性」、日本地球惑星科学連合大会 2016、幕張メッセ、2016.5

北ほか（北 和之、林 菜穂、西岡拓哉、佐藤武尊、五十嵐康人、足立光司、財前祐二、梶野瑞王、牧輝弥、豊田栄、山田桂太、吉田尚弘、篠原厚、二宮和彦、大河内 洋、石塚正秀、中井 泉、阿

部善也)、「夏季の放射性セシウム再飛散と森林起源バイオエアロゾル」、バイオエアロゾルシンポジウム、金沢大学、2017.2

③その他

Kazuyuki Kita, “Variation of atmospheric activity concentration of radiocesium and its possible atmosphere-biosphere cycling”, Ibaraki Univ.-IRSN joint symposium for environmental radioactivity studies on the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Ibaraki Univ., 2016.11

加速器質量分析による ^{236}U 測定法の開発及び福島原発周辺土壤中のウラン濃度測定

松崎 浩之（東京大学総合研究博物館）

研究成果概要

① 研究目的

東京大学タンデム加速器研究施設における、 ^{236}U の加速器質量分析法 (^{236}U -AMS) の開発において、実際の環境試料を測定対象とするための、適切な化学処理方法を会得すること。

② 研究方法

筑波大学アイソトープ環境動態研究センターにて、主として、土壤試料に対する ^{236}U -AMS 前処理の技術指導を受け、技術を取得する。

③ 結果・考察

土壤試料は乾燥後、酸および熱により全分解し、UTEVA 樹脂を使ったイオン交換および鉄共沈により、鉄粉マトリクス中にウラン酸化物がわずかに散在する形態を作る手法を会得した。これを加速器質量分析のイオン源のターゲットとした。福島第一原子力発電所から南方に約 3km 離れた森林で採取した土壤試料に対して上記の方法により測定ターゲットを作成し、東京大学タンデム加速器研究施設にて、 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比を測定した。測定結果は、 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 6-9 \times 10^{-8}$ となった。この結果は、グローバルフォールアウトによる結果 ($^{236}\text{U}/^{238}\text{U} \sim 1 \times 10^{-7}$ とほぼ整合するものであり (Sakaguchi et al., 2009)、現段階では福島第一原子力発電所事故起源のウランを有意に示しているとはいえない。

参考文献

A. Sakagushi, et al., Science of the Total Environment 407 (2009) 4238-4242.

成果発表

① 論文発表

② 学会発表

- 1) 中小司和広、松崎浩之、三宅泰斗「Development of U-236 AMS in MALT -Measuring the soil samples in Fukushima」Goldschmidt 2016 conference, 2016/6/28, 横浜
- 2) 中小司和広、松崎浩之、三宅泰斗「MALTにおける²³⁶U-AMSの開発」第19回AMSシンポジウム, 2016/12/17, 千葉
- 3) 中小司和広、松崎浩之、三宅泰斗「U-236AMSの開発と福島第一原子力発電所周辺土壌中のウラン同位体比の評価」次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス, 2017/3/7, 東京

③ その他

放射光マイクロビーム X 線分析による 福島第一原発事故由来の放射性粒子の性状・起源解明

氏名 阿部 善也 (東京理科大学 理学部第一部 応用化学科)

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発事故により飛散した放射性物質に関して、放射光マイクロビーム X 線を用いた非破壊の複合分析によって、その物理・化学的性状に関する基礎的研究と、炉内事象の考察を目的とした研究を行った。受入研究者である筑波大学アイソープ環境動態研究センターの末木 啓介教授が保有・管理する土壌試料から、強放射性粒子を分離した。分離した粒子を大型放射光施設 SPring-8 BL37XU に持ち込み、放射光マイクロビーム X 線分析による化学組成・化学状態の分析を非破壊かつ 1 粒子レベルで適用した。電子顕微鏡による形態観察、およびガンマ線スペクトル計測の結果と合わせて、1 粒子レベルで詳細な物理・化学的性状を考察した。また、含まれていた元素および化学状態から、その生成過程等についても考察を行った。

② 研究方法

福島県内で採取された土壌に対して、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィによって強放射性粒子の分布を可視化し、マイクロマニピレータを用いて 1 粒子ごとに分離した。先行研究によって福島第一原発 1 号機由来の放射性物質が飛来したと考えられる福島県北西地域の土壌(赤グループ)から 7 粒子、2~3 号機由来の放射性物質が飛来したと考えられる地域の土壌(緑・青グループ)から 10 粒子を分離した。各粒子について、低真空の走査電子顕微鏡(SEM-EDS)による形態観察および組成分析と、Ge 半導体検出器を用いた 1 粒子単位でのガンマ線スペクトル測定を行った。さらにこれらの粒子を SPring-8 の分光分析ビームラインである BL37XU に持ち込み、後述する 3 種類の X 線分析を非破壊で適用した。このビームラインでは、アンジュレータより発生した放射光 X 線を Si モノクロメータにより単色化後、Kirkpatrick-Baez ミラー集光素子を用いて縦横約 1 μm まで集光することが可能である。こ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(SR- μ -XRF)により各粒子の化学組成および元素分布を、X 線吸収端近傍構造分析(SR- μ -XANES)により粒子中の一部の元素の化学状態を、X 線回折分析(SR- μ -XRD)により結晶構造を非破壊で分析した。放射光実験は、2016 年度内の 2 期(課題番号:2016A1705, 2016B1811)に実施し、さらに各期内で X 線のエネルギー範囲が異なる 2 回のビームタイムで実験を行った。

③ 結果・考察

赤グループの土壌から分離された7粒子について、1粒子単位でガンマ線スペクトルを測定した結果、いずれも $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比が約0.9となった。この値はORIGEN Codeにより計算された事故当時の1号機炉内の値とよく一致したことから、事故により1号機から放出された放射性物質であると推定される。この結果は、2号機由来と考えられている直径数 μm の不溶性球状粒子、いわゆる「Csボール」とは異なるものである。またSEM-EDSにより形状を観察した結果、球形のものも存在していたものの、多くは球や棒が熔着したような不定形の粒子であり、発泡の痕跡もしばしば観察された。大きさはいずれも100 μm 前後と大きく、Csボールとは明らかに異なる物理性状を有していた。これらの粒子は1粒子で100~1000 Bqレベルの放射能を有するものの、粒子自体が大きいため、体積あたりの比放射能としてはCsボールよりは明らかに低い。なお青・緑グループの土壌から分離された10粒子については、Csボールと同様の物理性状を有しており、2号機由来の放射性物質であると考えられる。

SEM-EDS およびSR- μ -XRFにより1号機由来と考えられる7粒子の化学組成を分析した結果、Csボールと同様にSiおよびOが主成分であり、UやCsを始めとする様々な重元素を含んでいたが、SrやBaに富むという点でCsボールとは異なっていた。これらの元素は還元雰囲気下で揮発しやすいという特徴があり、酸化雰囲気下で発生しやすいMoを多く含むCsボールとは対照的である。SR- μ -XANESから、粒子本体においては金属元素がガラス状態で存在することが示され、Csボールと同様にケイ酸塩ガラスが母体であると考えられる。この結果は、これらの粒子が不溶性であり、環境中で長期的な影響力を持つことを示唆している。ただし、Mnなど一部の元素が不十分な酸化状態でガラス中に溶存していたことから、還元的な環境で生成された可能性が高い。また粒子内に μm 程度の点としてFeやSnなどの元素が濃集しており、SR- μ -XANES およびSR- μ -XRDから、これらの点で金属元素が酸化物または金属の状態が存在している可能性が示された。なお青・緑グループの土壌から分離された2号機由来と考えられる10粒子については、物理性状と同様に、放射光X線分析からCsボールと一致した化学性状を持つことが示された。

これらの分析結果から、1号機由来の放射性粒子は不均一かつ不十分な混合状態から、突発的に生成・放出されたものと考えられる。現在までに、これら1号機由来の放射性粒子について明確な放出時間を特定できる試料は発見されていないものの、粒子の形状や大きさ、還元雰囲気からの突発的な放出という状況から、3月12日に発生した1号炉の水素爆発に伴い生成・飛散したものと結論付けられた。またこうした粒子の性状は、2号機由来と考えられるCsボールとは明らかに異なる。Csボールは3月14日夜から15日にかけて、格納容器の損傷に伴い大気中に放出されたものと考えられるが、放出された粒子の性状の違いは、1号機と2号機で事故当時の炉内状況に大きな差があった可能性を示している。

成果発表

① 論文発表

- 1) 小野 貴大・小野崎 晴佳・飯澤 勇信・阿部 善也・中井 泉・寺田 靖子・佐藤 志彦・末木 啓介・足立 光司・五十嵐 康人：「放射光複合 X 線分析を用いた福島県北西地域 3 グループにおける放射性粒子の化学的特徴の解明」『第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム』2017 年 1 月 9 日，神戸芸術センター（兵庫），ポスター発表.

② 学会発表

- 1) 小野 貴大・小野崎 晴佳・飯澤 勇信・阿部 善也・中井 泉・寺田 靖子・佐藤 志彦・末木 啓介・足立 光司・五十嵐 康人：「放射光複合 X 線分析を用いた福島県北西地域 3 グループにおける放射性粒子の化学的特徴の解明」『第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム』2017 年 1 月 9 日，神戸芸術センター（兵庫），ポスター発表.
- 2) 阿部 善也・飯澤 勇信・小野 貴大・小野崎 晴佳・中井 泉・佐藤 志彦・末木 啓介・金井 豊・足立 光司・五十嵐 康人：「放射光 X 線分析による福島第一原発事故由来の放射性粒子の性状解明」『第 52 回 X 線分析討論会』2016 年 10 月 26 日，筑波大学東京キャンパス文京校舎（東京），ポスター発表.
- 3) 小野 貴大・飯澤 勇信・阿部 善也・中井 泉・佐藤 志彦・末木 啓介・足立 光司・五十嵐 康人：「福島第一原発事故由来の放射性粒子の化学組成に基づく分類および生成過程の推定」『分析化学会第 65 年会』2016 年 9 月 14 日，北海道大学工学部（北海道），口頭発表.
- 4) 阿部 善也・飯澤 勇信・小野 貴大・中井 泉・佐藤 志彦・末木 啓介・金井 豊・足立 光司・五十嵐 康人：「福島第一原発事故により放出された粒子状放射性物質の物理・化学的性状の解明」『日本地球惑星科学連合 2016 年大会』2016 年 5 月 23 日，幕張メッセ（千葉），口頭発表.

③ その他

特になし

最先端電子顕微鏡法を駆使した福島原発由来 Cs 粒子の 生成過程・移行挙動の解明

宇都宮 聡 (九大院・理・化学)

研究成果概要

① 研究目的

Cs は現在の福島の広い地域を汚染しているが、土壌中の濃度は ppt 以下とごく微量であり検出方法が限られていた。一方で近年、Cs 濃度が数 wt % と非常に高い微粒子(CsMP)が大気試料から検出され、電子顕微鏡による検出・組成分析や形状観察が可能となり、粒子内部に多様な原子炉・核反応由来の元素が存在することが分かってきた。しかしながら粒子内部の詳細な構造・組成分析の解析に基づく粒子の生成機構、反応場の条件推定までは行われていない。本研究では、最先端走査透過型電子顕微鏡と集束イオンビームを駆使し、広範囲の汚染域(福島、東京)を網羅した試料を原子レベルで精密分析し、原発事故時の反応機構と CsMP 生成プロセスの解明を目的とする。

② 研究方法

過去に採集した福島の表層土壌試料や東京の浮遊大気試料を用いた。γ線測定による放射性セシウムのバルク分析を行い、全体の Cs の放射能を定量した。イメージングプレートを用いて試料中 Cs 粒子の分別操作を繰り返し、微細領域を走査型電子顕微鏡で CsMP を探索した。発見した粒子は Cs-134, 137 放射能測定を行った後、集束イオンビームで 200nm 以下まで薄膜化した。この CsMP 試料を最先端のダブル球面収差補正走査透過電子顕微鏡を用いて原子スケールの分析を行った。東京の大気試料中の CsMP に関しては、超純水への溶解実験を行い、他の Cs 化合物との溶解度の違いを溶液の γ線測定により考察した。

③ 結果・考察

現行の環境中放射性 Cs 移行モデルに対する新たな因子として高濃度放射性 Cs 含有微粒子(CsMPs)の動態を調べた。福島県熊川河口堆積物、河川流域表層土壌から福島原発由来 CsMPs を単離後、原子スケールで分析した結果、内部構造は他の CsMPs と同様に Fe-Zn 酸化ナノ粒子の凝集体が SiO₂ のマトリックスに覆われていた。また、粒子内部から CsCl および CsOH の内包物が同定された。河川流域と河口堆積物で同様の粒子が検出されたことから、CsMPs が表層水中を移行したことが示され、その後の海洋への流出が示唆された。

成果発表

① 論文発表

Furuki, G., Imoto, J., Ochiai, A., Yamasaki, S., Nanba, K., Ohnuki, T., Grambow, B., Ewing, R. C. & Utsunomiya, S. Caesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci. Rep.* **7**, doi: 10.1038/srep42731 (2017).

Imoto, J., Furuki, G., Ochiai, A., Yamasaki, S., Nanba, K., Ohnuki, T., Grambow, B., Ewing, R. C. & Utsunomiya, S. (2017) Caesium fallout in Tokyo on 15th March, 2011 is dominated by highly radioactive, caesium-rich microparticles. *Sci. Rep. in press*.

② 学会発表

Utsunomiya, S. Challenging Radionuclides in Environment at the Atomic Scale: Issues in Waste Disposal and Fukushima (Plenary talk). Goldschmidt conference 2016, Yokohama, Japan.

Imoto, J., Furuki, G., Ochiai, A., Yamasaki, S., Nanba, K., Ohnuki, T., Grambow, B., Ewing, R. C. & Utsunomiya, S. Cesium-rich micro-particles unveil the explosive events in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Goldschmidt conference 2016, Yokohama, Japan.

井元純平, 古木元気, 落合朝須美, 大貫敏彦, 宇都宮聡 “福島第一原発から放出された高濃度放射性セシウム含有粒子の生成過程の解明”, 日本原子力学会 2016 秋の大会, 久留米シティプラザ

古木元気, 井元純平, 宇都宮聡, 落合朝須美, 大貫敏彦 “福島表層環境に存在する高濃度セシウム含有微粒子の原子スケール特性とその環境動態”, 日本原子力学会 2016 秋の大会, 久留米シティプラザ

井元純平, 古木元気, 落合朝須美, 山崎信哉, 難波謙二, 大貫敏彦, Bernd Grambow, Rodney C. Ewing, 宇都宮聡 “原子分解能顕微鏡で解き明かす福島第一原発メルトダウン時の放射性 Cs 含有微粒子の形成過程”, 日本地球化学会 2016 年年会, 大阪市立大学

古木元気, 井元純平, 宇都宮聡, 落合朝須美, 大貫敏彦 “福島表層環境に存在する高濃度セシウム含有微粒子の原子スケール特性とその環境動態”, 日本地球化学会 2016 年年会, 大阪市立大学

③ その他

河川-河口-海洋系での放射性セシウムの挙動

高橋嘉夫¹、三浦輝¹、栗原雄一¹、山崎信哉²、坂口綾² (東京大¹、筑波大²)

研究成果概要

① 研究目的

本研究では、河川を流れる放射性セシウムの懸濁粒子への分配と、懸濁粒子に吸着された放射性セシウムが河口-海洋でどの程度溶出するかについて研究を進めることを目指した。その一環として、Adachi et al. (2013)に報告された放射性セシウム包有微粒子（セシウムボール）が河川懸濁粒子や浮遊砂中に存在するかどうかを予備的に調べたところ、これらに放射性セシウム包有微粒子が存在することが分かったので、この放射性セシウム包有微粒子を重点的に調べることにした。このAdachi et al. (2013)によって最初に報告された放射性セシウム包有微粒子は、ガラス状の不溶性微粒子であり、この微粒子に含まれるセシウムは河川水や海水中でもすぐには溶け出さず、ガス態として放出され溶解し易いと考えられる放射性セシウムとは、表層環境で異なる挙動を示すと考えられる。セシウムの溶出挙動は、河川水や海水中でのセシウムの移行に関わり、水棲生物への影響を考える際に重要である。そのため、セシウムがこの不溶性微粒子の形態としてどの程度放出されたのかは、今後の重要な検討事項である。しかし、これら放射性セシウム包有微粒子の放出量を推定することは難しく、それに準ずるものとして、本研究では放射性セシウム包有微粒子が河川中でのセシウムの固液分配に与える影響を調べることを目的とした。固液分配はしばしば固液分配係数（Kd）を用いて議論されるが、放射性セシウム包有微粒子が吸着態セシウムに含まれている場合、Kd 値を算出する際に真の Kd の値よりも高く算出してしまう可能性があるため、この点について着目して考察を行った。

② 研究方法

口太川上流、口太川下流、阿武隈川（伏黒付近）で2014年から2016年までに採取された計13回分の河川懸濁粒子ろ過フィルター（3-63 μm）を用いた。溶存態のセシウムとして採取された、0.45 μm以下の粒子のみが含まれる河川水を用いた。各フィルターの放射能をゲルマニウム半導体検出器（HPGe）を用いてセシウム-137の放射能を測定（a）し、粒子に吸着しているセシウムを測定した。20 Lの河川水をリンモリブデン酸アンモニウム（AMP）で濃縮したのち、同様にHPGeでセシウム-137の放射能を測定（b）した。a、bの結果から、見かけ上のKd値を算出した。次にオートラジオグラフィーを用いて、各フィルターから放射能の高い微粒子を分離した。その後、その微粒子をSEM、EDSで観察し、その粒子がAdachi et al. (2013)などで報告されているセシウム包有微粒子と同様の元素組成を持つことを確認した。分離した微粒子のセシウム-137の放射能をHPGeで測定（c）し、cによりaの値を補正し（a'）とし、a'とbの結果から、真のKd値を算出した。

③ 結果・考察

2014年5月の口太下流のフィルターの場合、見かけ上のKd値（L/g）は約1650であったが、フィルター上には2つで計3.5 Bqのセシウム-137をもつセシウム包有微粒子があり、これはフィルター全体のCs-137のうち、約30%を占めていた。よって、真のKd値は約1150となり、微粒子によってKd値が高く算出されてしまっていたことがわかった。また、2015年11月の口太下流のフィルターでも同様にセシウム包有微粒子が見つかり、約46%を占めていた。この他のフィルターでもオートラジオグラフィーによっていくつかのセシウム包有微粒子と考えられる放射能の高い粒子は発見できており、今後分離に成功する可能性がある。Konoplev et al. (2016)によって、

チェルノブイリの河川の K_d 値と比べて福島の河川の K_d 値が 1-2 桁ほど高くなっている理由として、セシウム包有微粒子の存在が挙げられているように、セシウム包有微粒子が河川の K_d 値に与える影響は無視できないと思われる。

今後、サンプル数を増やすことで、より定量的な議論をできるようにする必要がある。また事故初期のサンプルも用いることで、時間的な影響の違いを議論する必要がある。

成果発表

① 論文発表

Q. Fan and Y. Takahashi, Employment of the generalized adsorption model for the prediction of the solid-water distribution of radiocesium in the river-estuary-ocean system. *Applied Geochem.*, 79 (2017) 75-84.

② 学会発表

三浦輝、Fan Qiaohui、栗原雄一、坂口綾、桧垣正吾、石丸隆、神田穰太、放射性セシウムの河川から海水への移行に伴う懸濁粒子からの溶脱に関する GAM モデルからの考察、2016 年度日本地球化学会年会（2016 年 9 月 14 日、大阪市立大学）

高橋嘉夫、土壌-河川-河口-海洋系でのセシウムの移行に関する素過程の解析、第 18 回「環境放射能」研究会（2017 年 3 月 16 日、高エネルギー加速器研究機構）

③ その他

特になし

福島県川俣町で採取した土壤中の放射性ストロンチウム移動度の決定

二宮和彦（阪大院理）

研究成果概要

① 研究目的

2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所の事故により、多くの種類の放射性核種が環境中に放出された。これまでのほとんどの研究は、セシウム同位体($^{134}, ^{137}\text{Cs}$)やヨウ素の同位体($^{129}, ^{131}\text{I}$)に注目してきた。一方で ^{90}Sr , Pu 同位体をはじめとする微量な放出元素について、その分布や環境中の移行過程を理解することは、今回の事故の状況を解明する上で重要である。本研究では、これら微量元素のなかで、原子力事故において人体影響等でもっとも注目される放射性核種である ^{90}Sr に注目し、今後の環境動態を明らかにするために環境中での移動度を決定する。

② 研究方法

2012年から2016年に福島県川俣町において、スクレーパープレートにより0.5 cm ずつの深さごとに採取された土壤試料について、古典的な沈殿法に基づく ^{90}Sr の分離を行った。得られた ^{90}Sr フラクションについて、液体シンチレーションカウンターを用いた、チェレンコフ光の測定を2週間程度連続的に繰り返すことにより、 ^{90}Y の生長観察し各土壤深度における ^{90}Sr 濃度を決定した。化学収率は分離前に入れたSrキャリアーをICP-MSにより定量することで決定した。

③ 結果・考察

年度ごとの ^{90}Sr の土壤中の深度分布を作成し、その移動度を決定した。2012年採取の試料は、土壤への ^{90}Sr の沈着時に土壤への吸着に時間がかかるため、大きな移動度が得られたが、そのほかの試料からは0.2-0.3 cm/yという移動度が得られた。ガンマ線測定により放射性セシウム(^{137}Cs)を定量し移動度を導出したところ、同様の値が得られた。過去のチェルノブイリ事故等からの知見では、 ^{90}Sr の移動度は ^{137}Cs の数倍であると報告されており、川俣町においては ^{90}Sr の移動度が極端に小さいことが明らかとなった。本研究における試料採取地点は杉の若齢林であり、土壤中にはヨーロッパの土壤の10倍程度の有機物が含有されていた。 ^{90}Sr は土壤中に含まれる腐食酸などの有機物と強く結合を作るといわれており、これにより ^{90}Sr の下方浸透が抑制されたのだと考えられる。

成果発表

① 論文発表

② 学会発表

“福島県川俣町で採取した土壌中の Sr-90 の深度分布及び移動度の決定”

鈴木杏菜、張子見、二宮和彦、山口喜朗、高橋純子、恩田裕一、篠原厚

第 18 回環境放射能研究会(茨城、2017 年 3 月)

③ その他

研究課題名

イメージングプレートを用いた樹皮表面の高濃度放射性物質の消失速度と実態の解明

氏名（所属） 竹中 千里

（名古屋大学大学院生命農学研究科）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原子力発電所事故により放出された放射性セシウムの一部は、化学的に安定な粒子状物質であることが報告されている。樹木に沈着したこの粒子状物質は、いまだに樹皮に存在しており森林内の空間線量の低下を妨げている。この粒子状物質に含まれる放射性物質がどの程度の速度で再拡散するかについては、樹皮そのものの脱落速度が不明であり、この物質の化学的安定も不明であるため、推測できていない。そこで本研究では、森林環境において、樹皮表面に存在している高濃度放射性物質を含む粒子状物質（ホットパーティクル）の実態解明と、樹皮からの消失速度を明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

ホットパーティクルの消失速度現地測定

福島第一原発事故によって放射性物質に汚染された立木の樹皮にイメージングプレート（IP）を一定時間接触させて、高エネルギー放射性物質の分布を画像で示した（図1）。調査地は福島県川俣町山木屋地区の筑波大試験地のスギ（*Cryptomeria japonica*）壮齢林とし、健全なスギ立木8個体を調査対象に選んだ。2016年8月、10月、11月に、地上1.5～1.8mに位置するスギの樹皮に、チャック袋に入れたIP（BAS IP MS 2050を4分割；サイズ10cm×12.5cm）を約2時間密着させ、その後、室内にてTyphoon FLA 9000を用いてスキャンし、放射性物質分布の時間変化を解析した。IPを接写した場所の4隅に目印を付け、同じ個所に密着できるようにした。



図1. 樹皮へのIP設置

外樹皮におけるホットパーティクルの3次元分布

上記のスギ壮齢林にて、スギ立木5個体の、高さ1.0~1.4 mの位置から外樹皮を、2016年6月に採取した。その外樹皮を1辺5~8 cmの四角形に整形し、面積を測定した後、外表面（採取前に大気と接触していた面）を青色のラッカーで着色した。塗料が乾燥した後、3層（外層・中層・内層）に分離し、各層の全面積と着色箇所面積を測定した（図2）。各層の厚さは2 mm以下であった。樹皮は凹凸のある三次元構造をしているため、上記3層のうち、外層がすべて樹皮の表面に露出しているとは限らない。そこで（各層の着色面積/各層の全面積）によって、各層の外表面露出率を算出した。

その後、オートラジオグラフ法により、放射性物質の分布を視覚化した。外樹皮各層をIPに6~7時間接写し、Typhoon FLA 9000でスキャンして放射性物質の分布をデジタル画像化した。この取得画像を2値化（白色と黒色）し、放射性物質が分布する箇所を黒色化し、ノイズとバックグラウンドを除去した後の黒色の箇所数をホットパーティクルの沈着数とした（図3）。沈着数の計測にはフリーソフトのImageJを使用した。

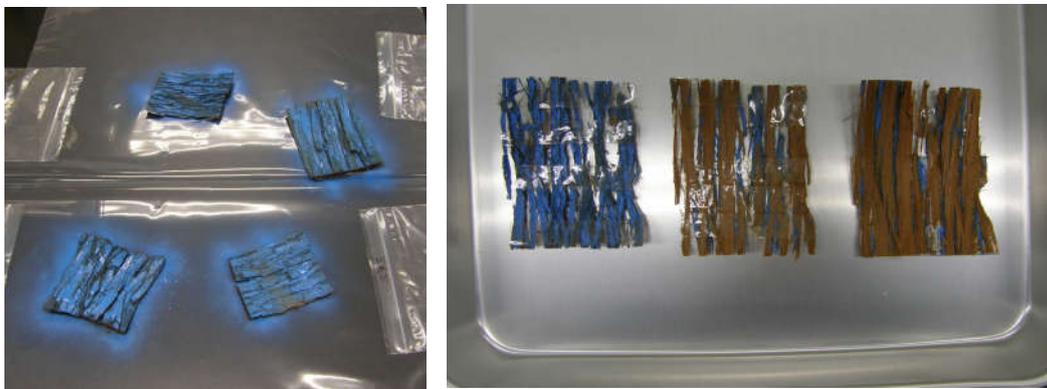


図2. 外樹皮の着色（左図）および3層分離後（右図）

③ 結果・考察

ホットパーティクルの消失速度

林地において樹皮に沈着したホットパーティクルをIPに接写した結果、同一箇所
に沈着したホットパーティクルを複数回の調査で検出することができた（図4）。
2016年8月に検出されたホットパーティクルが、同年10月、11月には検出されな
かった箇所が認められたが、逆に8月には検出されなくても、10月、11月の調査で
は検出された箇所もあった。

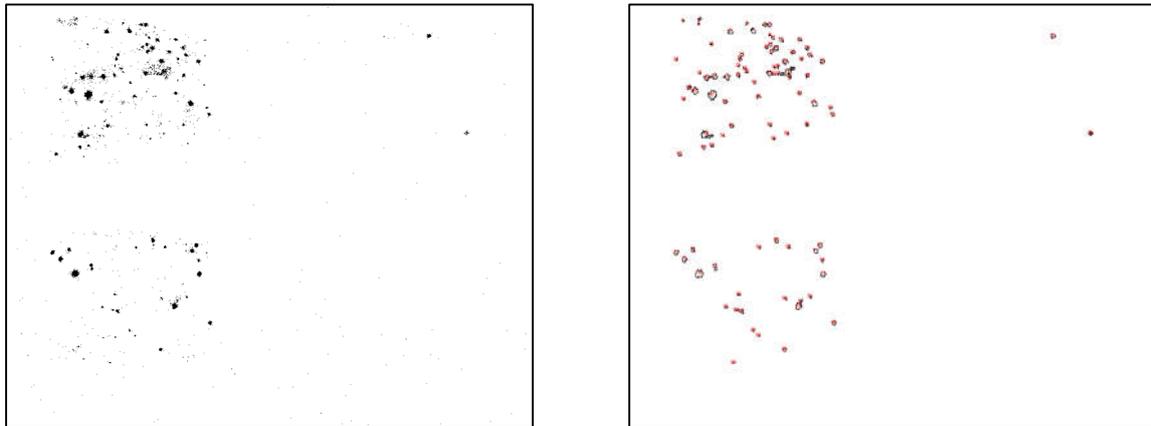


図 3. IP 画像から（左図）ホットパーティクルをカウントした結果（右図）の例
 左図の黒点が放射性物質の分布箇所を示し、ノイズとバックグラウンドを除去した後のパーティクル数を測定した。

本研究では、樹皮から検出されるホットパーティクルのほとんどは、2011年3月の福島第一原子力発電所事故によって原子炉から放出されて、樹皮に沈着したものが残存していると推察する。新たに沈着する可能性としては、周囲に存在するホットパーティクルが風などの気象条件で移動し、再沈着することが考えられる。

林地におけるホットパーティクルの分布測定法にも改善すべき点がある。IPは本来、紫外線と可視光線によるバックグラウンドの影響を最小にするため、カセットに入れて測定を行う（GEヘルスケア・ジャパン株式会社より私信）。林地にて測定する場合、カセットに代わる有効な遮光方法を採用して、バックグラウンドの影響を小さくすれば、短時間の暴露によって検出されたホットパーティクルが、バックグラウンドによって確認しにくくなることを低減できる可能性がある。

本研究では、数カ月の調査期間中では樹皮表面の放射性物質の消失速度を明らかにするまでには至らなかった。チェルノブイリ原子力発電所事故では、事故から20年以上経過しても、樹皮のセシウム137濃度が材部および生葉よりも高濃度になっているという報告がある（Zhiyanski et al., 2010）。高濃度になっている要因が樹皮に沈着したホットパーティクルの残存ならば、福島第一原子力発電所事故によって汚染された立木の樹皮にも、年単位の長期間に渡って残存する可能性が示唆される。そのため、長期的な調査プランを立てる必要がある。

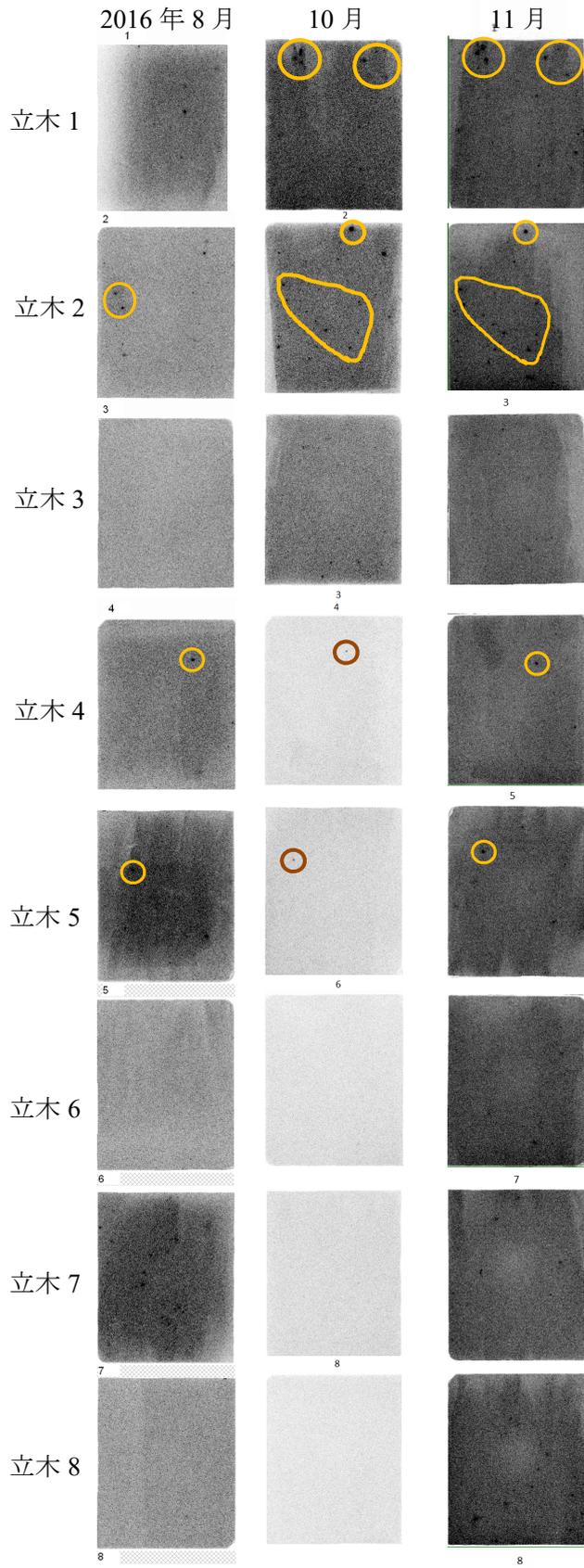


図 4. 樹皮に沈着したホット
パーティクル分布の時間変化

 再現性が認められた箇所

外樹皮におけるホットパーティクルの3次元分布

本研究では、外樹皮に沈着したホットパーティクルは 12356 ± 5883 個 m^2 存在していることが確認された。外樹皮の外層から最も多く検出され（図5）、各層のホットパーティクル数を割合に変換し、統計処理を行ったところ、外層で有意に大きかった（Steel-Dwass test; $p < 0.05$ ）。しかしながら、中層・内層にもホットパーティクルが検出され、青色に着色した面、すなわち大気接触面に分布している傾向が視覚的に認められた（図6）。外層の大気接触面は当然大きく、採取した樹皮面積の70%以上を占めていたが、中層・内層に分離した外樹皮でも、それぞれ8~27% および6~9% は大気接触面を構成していた（図7）。Cosma *et al.* (2016) の報告では、樹皮の ^{137}Cs 濃度は表面から5mmまでの部位が最も高く、深い部位ほど低濃度になっているため、本研究のようなホットパーティクルの深さ別の分布が濃度変化に影響を与えている可能性がある。

樹皮の肥大成長は、維管束形成層とコルク形成層の2ヶ所において行われ、樹皮のひび割れや剥離の現象は、樹木の成長により表面部の組織が変化することで生じる（広田ほか1998）。外樹皮は、いわゆる死んだ細胞で構成されているため、若齢期で樹体が細い時期に作られた外樹皮は、樹体の肥大成長とともに成長することができない。その結果、成長して太くなると、剥離していない箇所にはひび割れができ、比較的新しく作られた外樹皮の内部も大気接触面に現れると考える。このようなひび割れた部位に沈着したホットパーティクルは、樹幹流による洗脱、風による剥落など、物理的な作用による樹皮からの移動は難しく、長期に渡って樹皮に残存することが推察される。ただし、ホットパーティクル自体が分解される可能性もあるため、今後の推移を調査する必要がある。

今回はスギの樹皮を調査対象にしたが、樹皮の形態は樹種によって様々であるため、樹皮へのホットパーティクルの沈着・残存は樹種によって大きく異なることが予想される。原発事故による樹木の放射性物質汚染とその変化を明らかにするためには、樹皮に沈着したホットパーティクルの数的・質的变化を、樹皮の形態変化も含めて長期間モニタリングする必要があると考える。

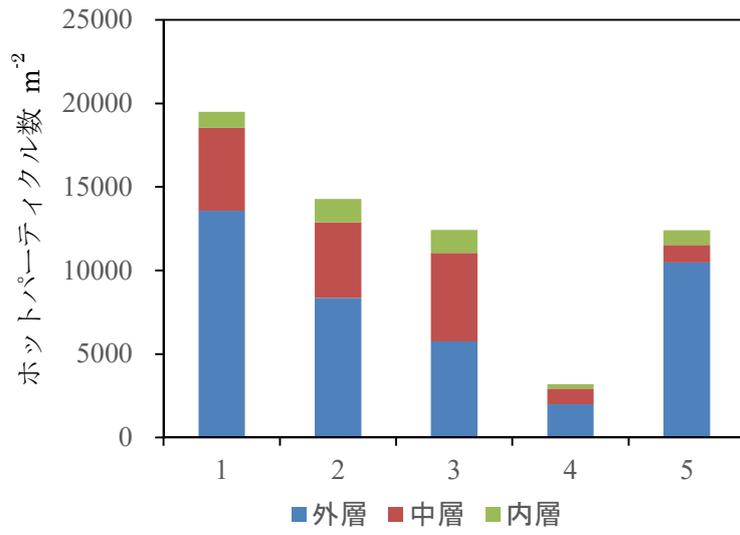


図 5. 外樹皮の外層・中層・内層におけるホットパッチ数

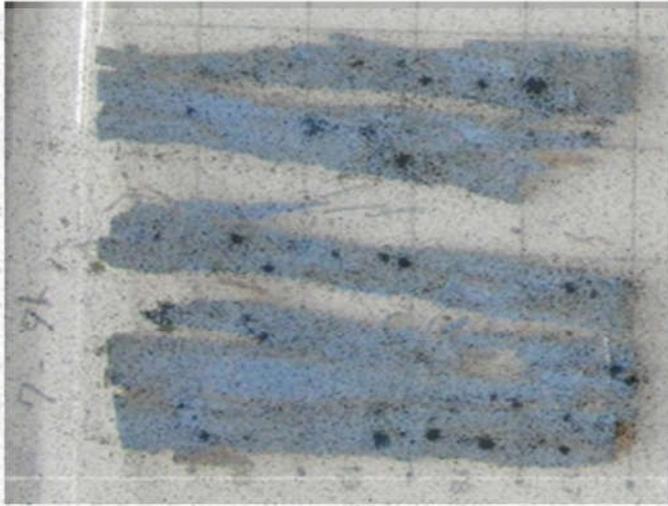
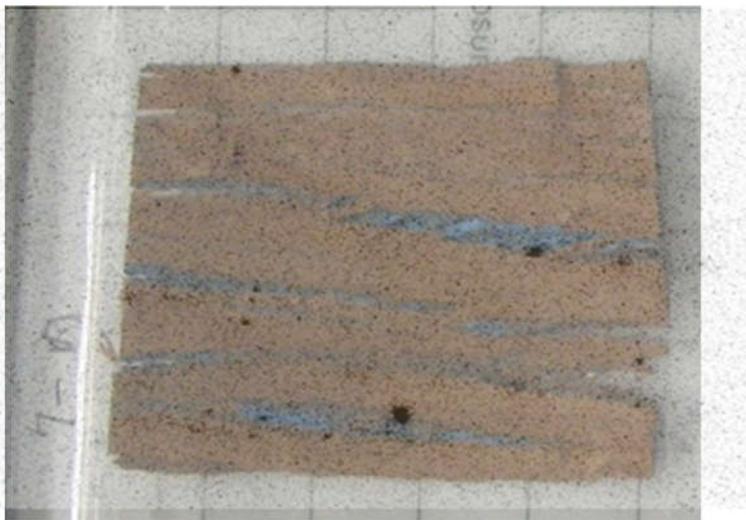


図 6. 外樹皮各層におけるホットパー
ティクルの沈着箇所

IP 接写に使用した樹皮画像に、半
透明処理した IP 画像を重ねた。上
段から外層・中層・内層の外樹皮画
像を示す。



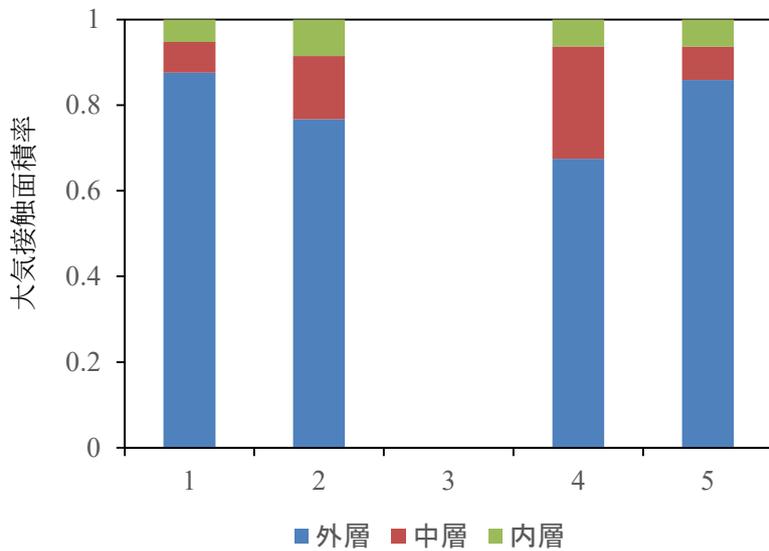


図 7. 外樹皮の外層・中層・内層における大気接触面積率

引用文献

Cosma, C., Andra-Rada I., Incze, R., Kovacs, T., Žunić, Z. S. The use of tree bark as long term biomonitor of ^{137}Cs deposition. *Journal of Environmental Radioactivity* 153. 2016. 126–133

広田 光一・加藤 弘和・金子 豊久. 成長を考慮した樹皮の CG モデル. *情報処理学会論文誌* 39. 1998. 3027–3034

Zhiyanski, M., Sokolovska, M., Bech, J., Clouvas, A., Penev, I., Badulin V. Cesium-137 contamination of oak (*Quercus petrae* Liebl.) from sub-mediterranean zone in South Bulgaria. *Journal of Environmental Radioactivity* 101. 2010. 864

成果発表

① 論文発表

Short communication で投稿準備中

② 学会発表

平成 29 年度に発表予定

③ その他

Model based assessment of the impacts of the decontamination activities on river watershed on ^{137}Cs concentrations in river water: case study Niida River

Mark Zheleznyak (Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University)

Summary of the Project

Background and Objectives

The field measurements and modeling studies of the environmental dynamics and fate of radionuclides accidentally deposited from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) on the surrounding watersheds have demonstrated that the role of the sediments in the transportation of r-Cs in surface waters is more significant in FDNPP region than in the region of the Chernobyl NPP. For the prediction of the fluxes of the radionuclides from the watersheds to the Fukushima rivers and to assess the consequences of the remediation measures on these watersheds it is necessary to apply the model that can simulate the sediment transport from the watersheds and the radionuclide transport in solute and with the suspended sediments. The distributed model of water/sediment/ radionuclide transport in watersheds and rivers DHSVM –R has been developed in IER in 2014-2016 and tested versus the data from the experimental USLE plots of CRIED, University of Tsukuba and IER Fukushima University. The main objective of the project research is calibration/verification DHSVM-R versus the field data for NiidaRiver collected within the set of the CRIED and IER projects and to test the possibilities of the comprehensive distributed model for the simulation of the impacts of the different scenarios of the decontamination activities in Niida river watershed, - scraping and removing surface soil. on the river water contamination

Method : Model: DHSVM-R

DHSVM is an open source distributed hydrologic developed by the Land Surface Hydrology Research Group at the University of Washington and Pacific Northwest National Laboratories, WA, USA

(<http://www.hydro.washington.edu/Lettenmaier/Models/DHSVM>).

DHSVM simulates the basic hydrological processes on a watershed: Interception, Evapotranspiration, Snow accumulation and melt, Energy and radiation balance, Saturation excess and infiltration excess runoff, Unsaturated soil water movement, Groundwater recharge and discharge

The Erosion and Sediment Transport Module of DHSVM is based on SHESED model (Bathurst, et al., 1995). It combines the parameterization of mass wasting, surface and channel erosion processes (Doten et al, 2006).

New model DHSVM-R developed in the IER, Fukushima University and Institute of Mathematical Machines and Systems of NAS Ukraine is based on the extension of DHSVM by the including into this modeling system also the supplementary module of radionuclide transport on watersheds. The optimization procedures were added to DHSVM for automatic model calibration. The computational code of DHSVM-R was refined by the replacement of D4 flow direction approach of DHSVM on D8 directions, by the implementation of the more efficient finite-difference schemes for the kinematic wave equation for overland water /sediment flow and channel flow, and by the including Added Morel-Seytoux model into the infiltration module. The radionuclide transport in solute, particulated radionuclide transport and dynamics of radionuclides in the upper soil layer and in river bottom was described by the 2D model in which the radionuclide exchanges between water and sediments is parameterized by the distribution coefficients and the exchange rate parameters (Zheleznyak at al, 1992, Kivva and Zheleznyak 2002).

DHSVM_R model was calibrated and validated on the experimental data for the set of USLE experimental plots has been established by CRIED, University of Tsukuba and IER Fukushima University after the Fukushima Daiichi accident to study soil erosion and ^{137}Cs wash off from the watersheds. The experimental data (Onda, Wakiyama et al, 2014-2016) were used for DHSVM-R calibration and testing.

Modeling of the sediment and radionuclide dynamics in Niida River basin during the high floods

DHSVM_R has been applied for the simulation of radionuclide transport in Niidariver basin during the high typhoon generated floods (Fig,1-Fig.33)

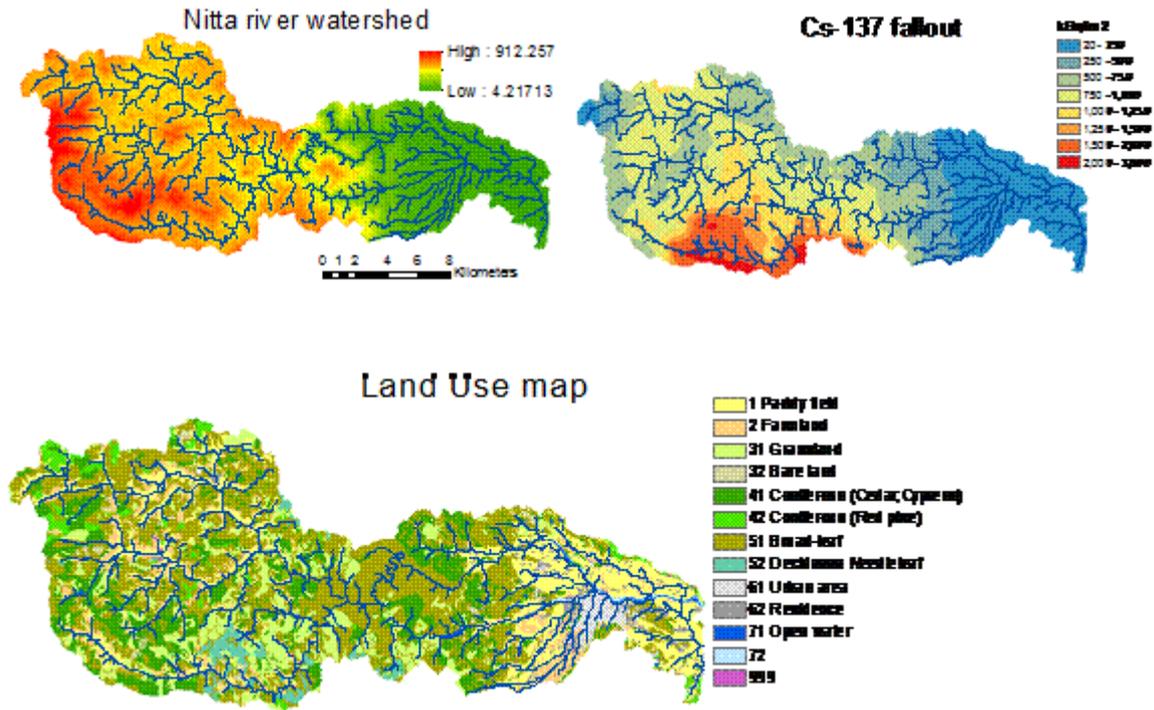


Fig. 1 Distributed data for Niidawatershed modeling: elevation map (a), density of ^{137}Cs fallout (b), land use map(c)

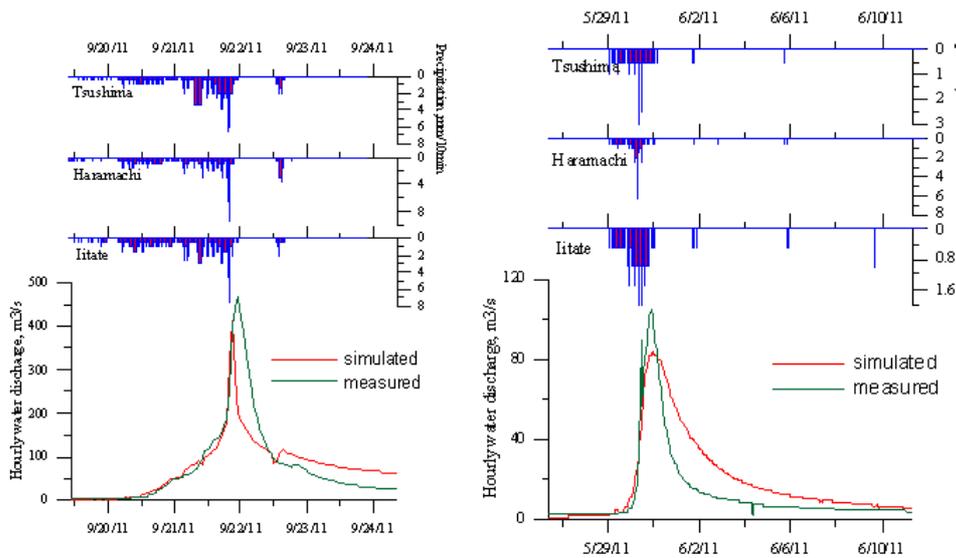


Fig.2 Validation of DHSVM –R model at Hiromachi for high floods 2011

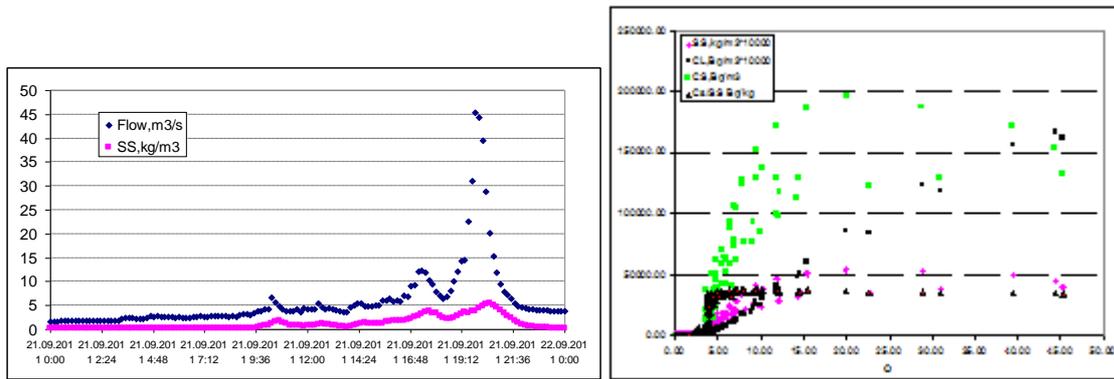


Fig.3 Modeling of water, suspended sediments and radionuclide transport at the river channel at the inflow to Takanokura reservoir

Modeling of the impacts of the decontamination activities on the river water contamination

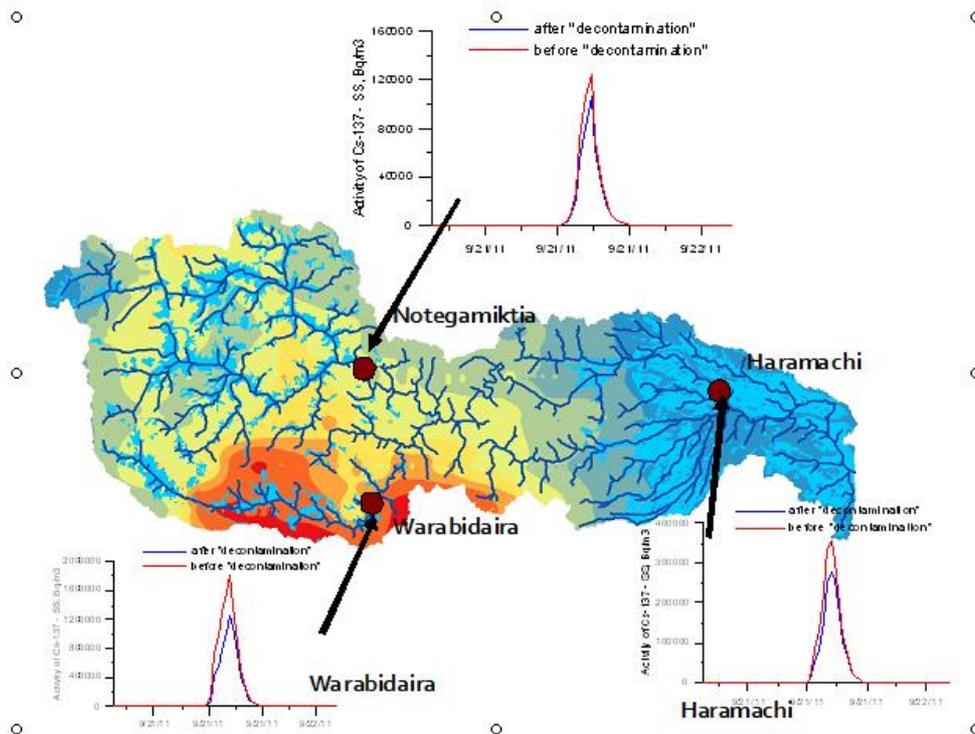


Fig.4 Comparison of ¹³⁷Cs concentration in river water for the conditions of 2011 flood without decontamination and after the decontamination in Scenario 1: cleaned blue territories.

Three scenarios of the decontamination were modeled. In Scenario 1 the densities of ^{137}Cs fallout are reduced 10 times below the contemporary level on the all territories which land use characteristics are “farmlands”, “paddy fields” and “bare land” (Fig.1), This territories colored by blue in Fig.4 are located mainly at the “near river” and lowlands parts of the watershed.

The weak impact of Scenario 1 on the ^{137}Cs concentration in river water is consequences of the lack of the decontamination activities on the most contaminated territories (Fig.4).

To simulate the consequences of the large scale decontamination on the heavy contaminated territories the Scenario 2 was considered in which all western part of Niidariver watershed including most contaminated South- West mountain region is cleaned (the shaded area in Fig,5)

Scenario 3 was set up us an “upper estimate” of the realistic scenario of the cleaning up on the territory of the Iitate village (Fig.6). Taking into account that the main areas of the clean up activities are located near the river channels in the areas described in the Scenario 1 as “farmlands”+“paddy fields” +“bare land”, the Scenario 3 considered the clean up activities within the administrative borders of the Iitate village (Fig.7) for these 3 kinds of the land use

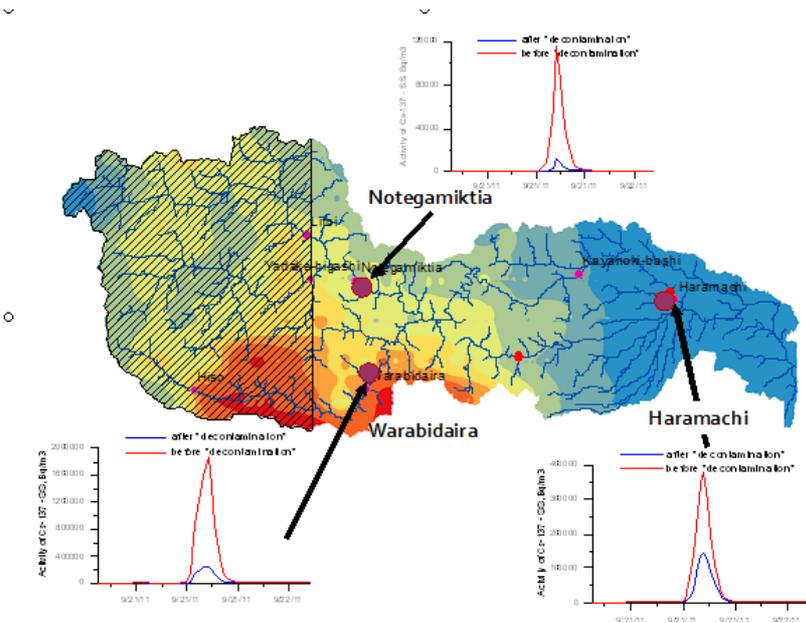


Fig.5 Comparison of ^{137}Cs concentration in river water for the conditions of 2011 typhoon

generated flood without decontamination and after the decontamination in Scenario 2: shadowed western part of the watershed. .

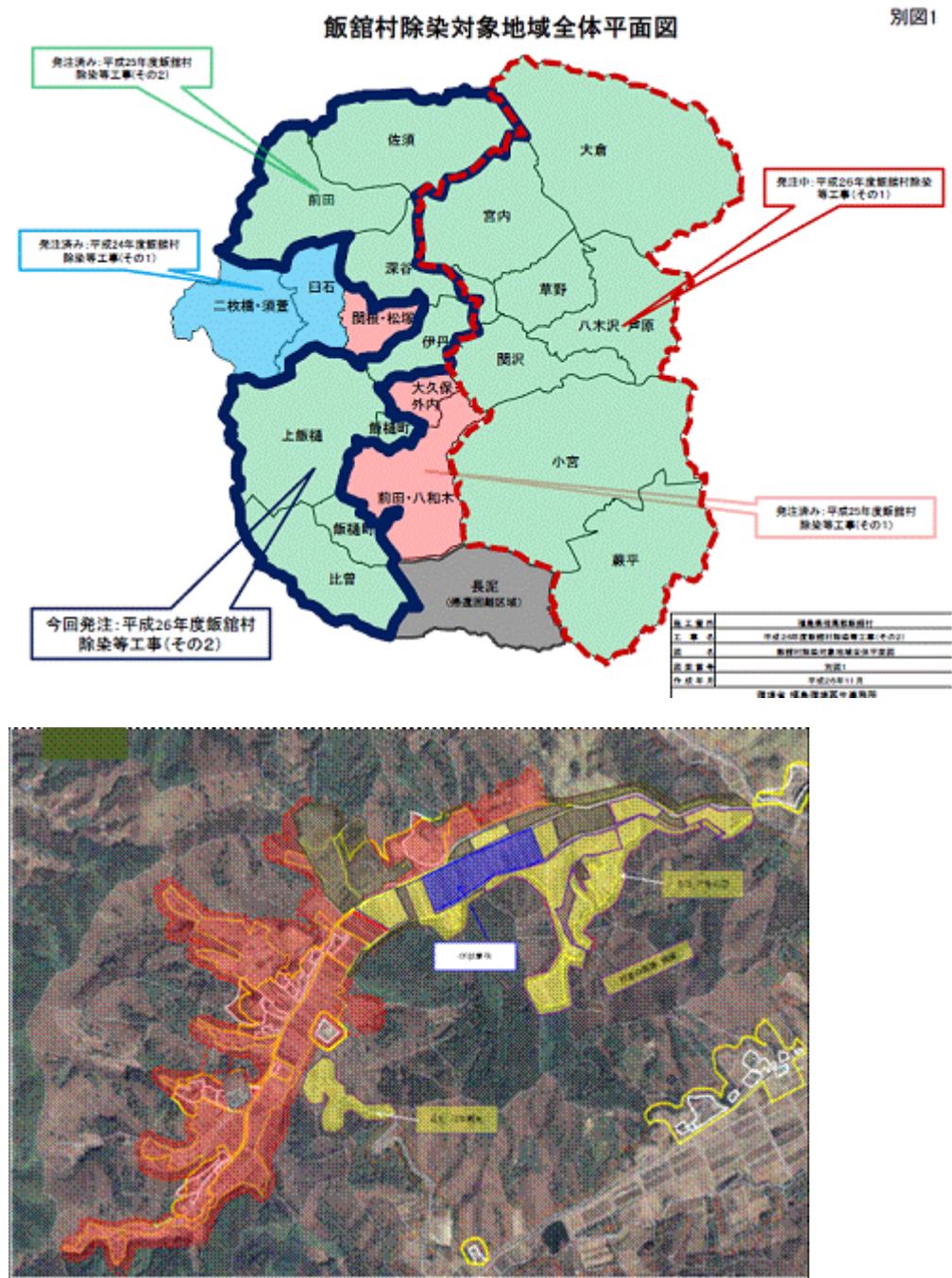


Fig.5 The administrative territory of the Iitate village planning for the clean up and the example of the planning “near river” areas of the cleaning up activities

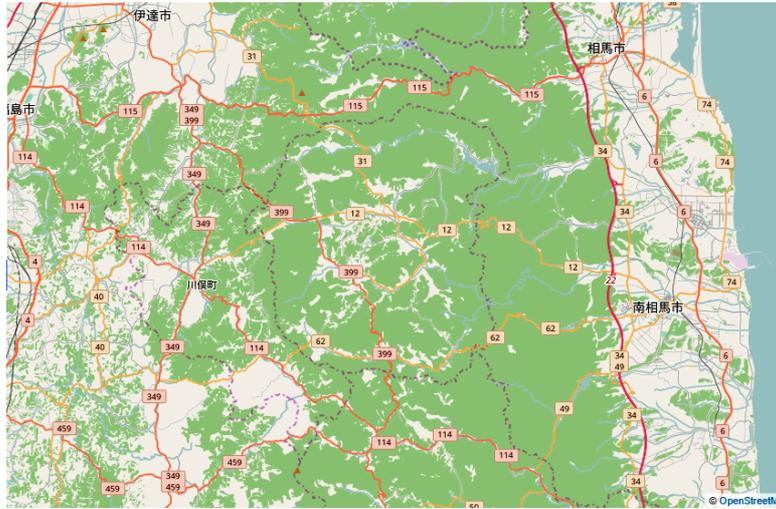
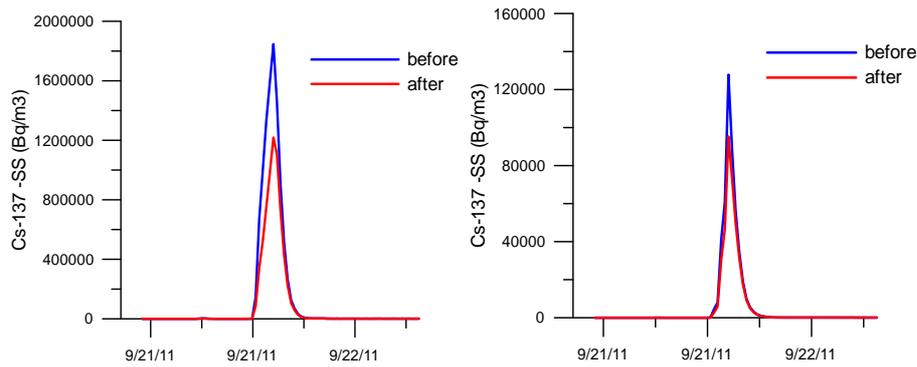
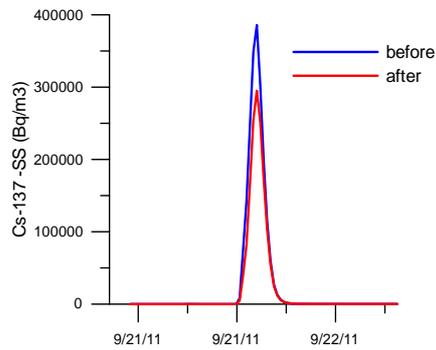


Fig.6 The map of the administrative border of Iitate village covering the part of the Niida river watershed



a) Warabidaira

b) Notegamiktia



c) Hiyomachi

Fig.7 Concentration of ¹³⁷Cs at 3 cross-section of Niida River basin without cleaning up and after cleaning up activities in Scenario 3

Results and Conclusions

- Physically based distributed model of water, sediments and radiocesium dispersion on watersheds and in river flow DHSM_R is customized for Niida river basin
- Model is tested versus preliminary collected sets of the hydrological and radiological data
- Three scenarios of virtual decontamination of the river basin were modeled : 1- Decontamination of three the specific “near river” kinds of land use categories in all watershed; 2- Full decontamination of the western most contaminated part of the Niida watershed, 3- Decontamination of three specific “near river” kinds of land use categories (the same as in the Scenario 1) . however only inside the administrative borders of the Iitate village.
- The results of the Scenario 2 simulations clear demonstrate that decontamination of the most heavy contaminated areas on the watershed can provide significant diminishing of ^{137}Cs concentration in the river water
- Scenarios 1 and 3 provide the similar results on the maximum diminishing of ^{137}Cs concentrations after the decontamination at 20% in the downflow part of the river (at Haramashi). It means that such impact of the decontamination would be difficult to find only by the field monitoring studies due to the the natural variability of sediment /radionuclide fluxes
- It is planning to use the results of this IPE project in cooperation with the monitoring studied provided in Niida river in CRIEPI (Prof Onda), and IER (Dr Wakiyama, Prof, Konoplev) for the more detailed study of the watershed process by the joint analyses of the modeling and monitoring results and for the preparation of the publication of the results of the study in top ranking international journals

Acknowledgments: I thank Host Researcher of the Collaborative Research IPE project - Prof. Yuichi Onda, CRIED , Tsukuba University for guidance on the Project’s research, Dr Sergei Kivva, Institute of Mathematical Machines and Systems of NAS Ukraine for the fruitful input into the modeling activities and Dr Yoshifumi Wakiyama & Prof Alexei Konplev, IER,

Fukushima University for the presented data of the studies on radiocesium dispersion in Niida river and the data of the experimental plots..

List of Publication

International Journal:

Nanba K., Zheleznyak M., Kivva S., Konoplev A., Maderich V., Koshebutsky V., Gallego E., Papush L., Mikhalskyi O..Implementation of Hydrological Dispersion Module of JRODOS for the assessment of ¹³⁷Cs transport and fate in rivers, reservoirs and ponds of the Fukushima Prefecture. *Radioprotection*, 1-4 (2016), DOI: 10.1051/radiopro/2016052

Conference presentation:

Zheleznyak M., Kivva S., Konoplev A., Wakiyama S ,Modeling of Radionuclide Transport in Watershed –River- Reservoir Systems of Niida River, (2016), *Goldschmidt Abstracts*, 2016., , Yokohama, Japan, Section 15b: Radionuclide fate and transport after the Fukushima accident: Identifying what we have learned and remaining knowledge gaps, p 3736,

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原子力発電所の事故によって周辺森林地域には多量のセシウムが沈着したが、その後森林生態系内での再移動や動態を明らかにすることは喫緊の課題である。本研究は、森林内の同じ地点において時間経過にともなうセシウム濃度の低減を明らかにすること、溪流水の流下にもなるとどのような過程を経て水質が形成されるかを明らかにすることを目的とした。

② 研究方法

栃木県那須塩原市の森林小流域に観測地点を設けて、2013年から2016年にかけて観測を行った。観測地点において林外雨、林内雨、溪流水、リターの定期的な観測・サンプル採取を実施した。溪流水は流下にもなう水質変化を明らかにする目的で観測点を2つ設け、ひとつは溪流の谷頭部（Up）に、いまひとつは谷頭より約20m下流（Down）に設置した。採取したサンプルは濾過したのち（リターを除く）、ゲルマニウム半導体検出器でCs-137を計測した。溪流水については濃度が低かったため、濾過の後にリンモリブデン酸アンモニウム三水和物を用いて濃縮し同検出器で計測した。

③ 結果・考察

溪流水のCs-137は0.003～0.116 Bq kg⁻¹までの値を示した。また、平水時に比べ出水時において高濃度のCs-137が認められた。

UpにおいてもDownにおいても約3.5年の時間を経て、溪流水のセシウム濃度は低減しており、低減率は下流の方がやや高かった（Fig. 1）。

また、同じ観測回に採取したサンプルの下流（Down）濃度より上流（Up）濃度の差分をとり、流下過程での濃度変化について検討した。平水時（Low）においては多くの観測回で正の値を示し、流下する過程で濃度上昇が起こっていることが示された（Fig. 2）。地下水にはCs-137がわずしか含まれないが、流下する過程で地表面にあるリター等に付着したCs-137を溪流水が取り込んで流下していることを示していると考えられる。一方で、高水時（High）においては負の値を示し、河畔帯からの河川水に流入する地下水による希釈が支配的になっていると考えられる（Fig. 2）。

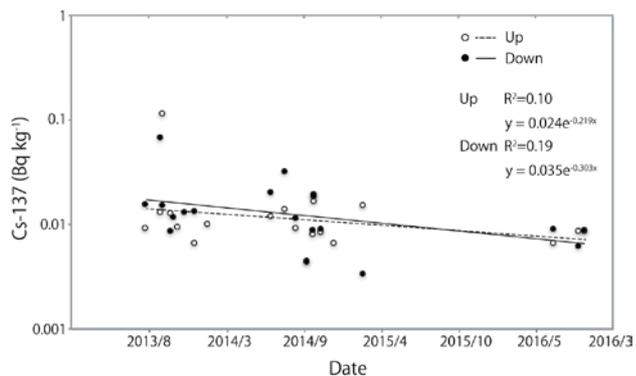


Fig.1 Cs-137 濃度の時系列変化

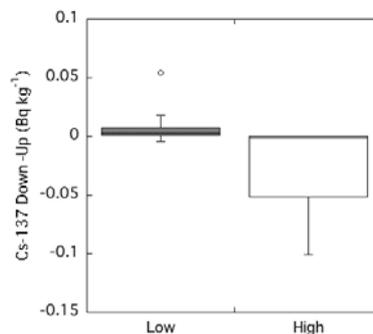


Fig.2 上・下流の Cs-137 濃度差

成果発表

① 論文発表

なし（現在執筆中で近く提出する予定である）

② 学会発表

田林 雄・金指努・小沼亮平・加藤弘亮・Nicolas Laffredo・恩田裕一: 中程度汚染地域における森林内の ^{137}Cs の移行過程の解明, 放射性物質環境動態・環境および生物への影響に関する学際共同研究 中間研究成果発表会, 2016年11月18日, 弘前大学.

③ その他

陸域の放射性物質の環境動態の長期予測

青山智夫 (江戸川大学)

研究成果概要

① 研究目的

陸域沈着 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 含有の放射性物質の環境中の定量的動態調査と空間線量率の長期予測

② 研究方法

空間線量率 DB を引用，線量率変化の支配方程式を推定，放射性物質拡散シミュレータにより検証する．該方程式から交差検証法で空間線量値を予測する．予測値検証は線形変換と統計的検証法である．

③ 結果・考察

空間線量の支配方程式は滞留半減期を記述項に含み，以下の知見を与える．

1. 原発 10km 圏では 5 年を経過しても放射性物質の移動が認められる．
2. 原発西北 30km 圏の山地に沈着した放射性物質が請戸川流域で移動しダムに沈着している．当該地の滞留半減期が 30 年と他域の 3 倍である．
3. 60km 圏で山火事が 3 日間継続しても放射性 Cs は大気中に飛散しない，土壌からの流出も空間線量率計では観測されない．
4. 滞留半減期を地点毎に最適化した方程式の線量率の決定係数は 0.9 である．1 年後まで線量を予測すると決定係数は 0.7 である．

成果発表

① 論文発表

1. Tomoo AOYAMA, Jun ASANUMA, “Analysis of time series of the ambient dose rates”, J. Compt. Chem. Japan IE, accepted at 04-Feb-2017*.
2. 青山智夫, 八木徹, 神部順子 「線形変換と交差検証法による空間線量率予測」 J. Compt. Chem. Japan, accepted at 23-Mar-2017*. *巻, ページともまだ決定していません.

② 学会発表

青山智夫 「放射性物質の沈着過程」日本コンピュータ化学会, 番号 2P02, 2016.6.3(東工大).

③ その他

関東地方と EU 圏の環境放射能データの比較による

福島原発事故環境影響及び地球環境変化の評価

岡田往子（東京都市大学）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原子力発電所から直線距離にして約 245km 南西に位置している東京都市大学原子力研究所（川崎市麻生区）にて、空間線量率および大気浮遊塵中の放射性セシウム（Cs-137）放射能濃度の測定を通して、関東地方における福島事故環境影響について検討し、1986 年に発生したチェルノブイリ原子力発電所の事故後の Cs-137 放射能濃度の減衰半減期との比較を行うことを目的とした。空間線量率と Cs-137 放射能濃度の相関関係から放射性セシウムの存在形態に関する考察も試みた。

② 研究方法

東京都市大学原子力研究所において NaI(Tl)シンチレーション式検出器による空間線量率の 24 時間連続測定およびハイボリューム・エア・サンプラにより収集した大気浮遊塵試料の分析により Cs-137 放射能濃度の分析を実施した。空間線量率と Cs-137 放射能濃度との相関係数から存在形態との関連性について考察した。

③ 結果・考察

空間線量率は 2013 年 8 月以降において福島原発事故以前の平均値 ($0.034 \mu\text{Sv/h}$) に漸近していることを確認した。2011 年 9 月以降、大気浮遊塵中の Cs-137 の放射能濃度の減衰は約 1 年で半減する速度となっており、これはチェルノブイリ事故後の Cs-137 濃度の減衰の半減期と成層圏での滞留半減期と同程度の長さであることを示した。また、空間線量率と大気浮遊塵中の放射能濃度の相関係数に着目し、放射性セシウムの浮遊しやすさが時期により異なることを示した。この結果は、今後放射性セシウムの移動を解明する上で、存在形態を検討する際に参考となる情報であると考えられる。

成果発表

① 論文発表

羽倉 尚人, 松浦 治明, 内山 孝文, 岡田 往子: 川崎北部における大気浮遊塵中の放射性セシウム濃度と空間線量率の経年変化, 分析化学, Vol. 66 (2017) No. 3, p. 201-204

② 学会発表

長橋孝将、松浦治明、今川峻、内山孝文、鈴木究真、湯浅由美、渡辺峻、新井肇、野原精一、岡田往子: 赤城大沼周辺土壌の放射性セシウム濃度分布、2016 日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会

③ その他

シンポジウム 火山性湖沼赤城大沼周辺調査報告, 2017. 2. 22 開催

陸上に遡上した津波による時系列堆積過程の解明

山口直文（茨城大学）

研究成果概要

① 研究目的

陸上に遡上した津波流に取り込まれ輸送される堆積物量の時系列推移を水路実験によって明らかにすることを目的とした。特に、海-陸方向での空間的な堆積運搬過程の違いを調べた。

② 研究方法

実験は、筑波大学アイソトープ環境動態研究センター環境動体予測部門実験棟の複合流水路を用いて行った。Yamaguchi and Sekiguchi (2015)の条件を、本研究の目的に合わせ、(1) 陸上地形模型の改善、および(2) 撮影照明の改善を特に行い、適切な実験環境を整えた。(1)では、堆積現象の空間的な把握と底面粗度の正確な設定のため、アクリル製の長さ4 mの陸上模型に変更し、模型の表面に粒径0.2 mmの珪砂を貼り付けた。また(2)は、水路上部にスリットを設置し、水路中央に上方からシート状に照明を当てることで、水路中央断面のみの現象を撮影可能となった。

こうした改善を行った上で、側面から3か所で画像解析用の動画撮影を行った。得られた動画の陸上区間沖側端から0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0 mの計6地点において、幅1ピクセル分を時系列に並べることで解析を行った。貯水槽水位、初期沖水深、堆積物粒径はそれぞれ、20 cm, 2.5 cm, 0.20 mmとした。

③ 結果・考察

時系列堆積過程の可視化によって、実験での津波によって運ばれる浮遊砂は、主に段波のヘッド部分において大きく巻き上げられ、浸水深が上昇しきらないうちに浮遊砂量は低下していることが明らかになった。この浮遊砂量の変動傾向は、流速の変化とも調和的であった。また、今回の実験条件においては、同様の巻き上げと浮遊砂量の低下の傾向が、内陸側まで堆積物の輸送が維持されていることが示唆された。この結果から、津波による堆積物の輸送と堆積が、必ずしも最大浸水深とは直接関係がなく、ヘッド部分の水理条件に大きく依存する可能性が初めて示された。今後、さらに津波規模を変えた実験を行い、この現象の一般性を検討することで、これまで直感的

に最大浸水深との関係で議論されてきた津波堆積物の解釈に一石を投じることができると考えられる.

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

一部を日本堆積学会 2017 年松本大会において発表

③ その他

なし

研究課題名 輸送現象から理解する異常拡散

氏名 (所属) 町田学 (浜松医科大学)

研究成果概要

① 研究目的

放射性物質に汚染された地下水の挙動は異常拡散を示すことが知られているが、具体的にどんな方程式に従うのかを探る。

② 研究方法

新しいモデルを提唱し、理論を構築する。さらに数値計算を行って、濃度の時間発展を調べる。

③ 結果・考察

解析的離散座標法によってボルツマン方程式を解いたところ、カラム実験で見られるような急激な立ち上がりの振舞いをするのがわかった。また、時間非整数階の非線形ボルツマン方程式について数学解析による考察を行い、土壌汚染解析で将来必要になる係数決定逆問題において、リップシッツ安定性があることを証明した。

成果発表

① 論文発表

A. Kawamoto and M. Machida, *Global Lipschitz stability for a fractional inverse transport problem by Carleman estimates*, arXiv:1608.07914

② 学会発表

(招待講演) M. Machida, *Half-order fractional inverse transport problems by Carleman estimates*, The 8th International Conference on Inverse Problems and Related Topics, Ewha Womans University, Seoul, Korea, June 2016.

③ その他

卒業論文：雨谷健司 (指導教員 羽田野祐子)、多孔質媒体中の物質輸送と線形ボルツマン方程式、2017年3月

研究課題名：

ドップラーソーダと AWS 用超音波風速計による乱流計測手法の開発

氏名（所属）：伊藤芳樹(株式会社ソニック)

研究成果概要

① 研究目的

放射性物質等の拡散の予測には、放射性物質を放出する可能性のある原子力発電所等の排気塔における継続的な風向風速と乱流指標のモニタリングが有効である。ドップラーソーダは音波を用いて上空の風向風速と乱流指標のモニタリングが可能な機器で既に原子力発電所 10 か所程度に導入されている。AWS(自動気象観測装置)は地上気象モニタリングに最適である。そこで本共同研究では下記を目的とする。

- (1) ドップラーソーダによる乱流測定機能の精度向上
- (2) ドップラーソーダによる EDR(渦消散率：乱流指標)測定法の開発
- (3) AWS 用超音波風速計(SAT)の測定値の評価

② 研究方法

ドップラーソーダのモノスタティックタイプおよびバイスタティックタイプを環境動態予測部門の観測圃場内に設置した(写真)。観測圃場の鉄塔には高さ約 30m と 1.6m に AWS 用としても使われている SAT が設置されている。ドップラーソーダによる高さ 30m における風向風速および乱流指標の観測結果と鉄塔の高さ 30m における SAT の観測値との相互比較検証を実施した。

③ 結果・考察

バイスタティックタイプのドップラーソーダは空港での下層の風向風速および乱流指標のモニタリングに用いることを目的として、開発されたものである。現在空港で用いられている高さ 10m の観測マストの風速計では測定できない上空の風向風速分布や乱気流の観測とともに、着陸決心高度付近以下の鉛直流（下降／上昇流）をリアルタイムで情報提供できるのが特徴である。図 1 に 2016 年 12 月 16 日の高さ 30m におけるバイスタティックタイプのドップラーソーダと SAT の 2 分間平均の風速および風向の時系列を示す。1 日の変化傾向は風速・風向共によく一致していた。

航空機の安全運航に関連する EDR 算出に不可欠で鉛直流の乱れの指標として有効な鉛直風速の標準偏差(σW)について、ドップラーソーダと SAT による観測値の比較検証を行った。その結果を元に鉄塔の SAT とドップラーソーダとの比較結果から補正係数を求めた。図 2 に補正した後の σW についてドップラーソーダと鉄塔の SAT による 10 分平均値とを比較した散布図を示す。回帰直線 (Y =は切片が 0 で傾きほぼ 1 となっており、相関係数 0.95 以上でよく一致していた。

σW については、今回は冬季のみであったので、今後さらに観測データの解析を進めて、大気安定度や季節による違いによる影響について検討する必要があると考えられる。

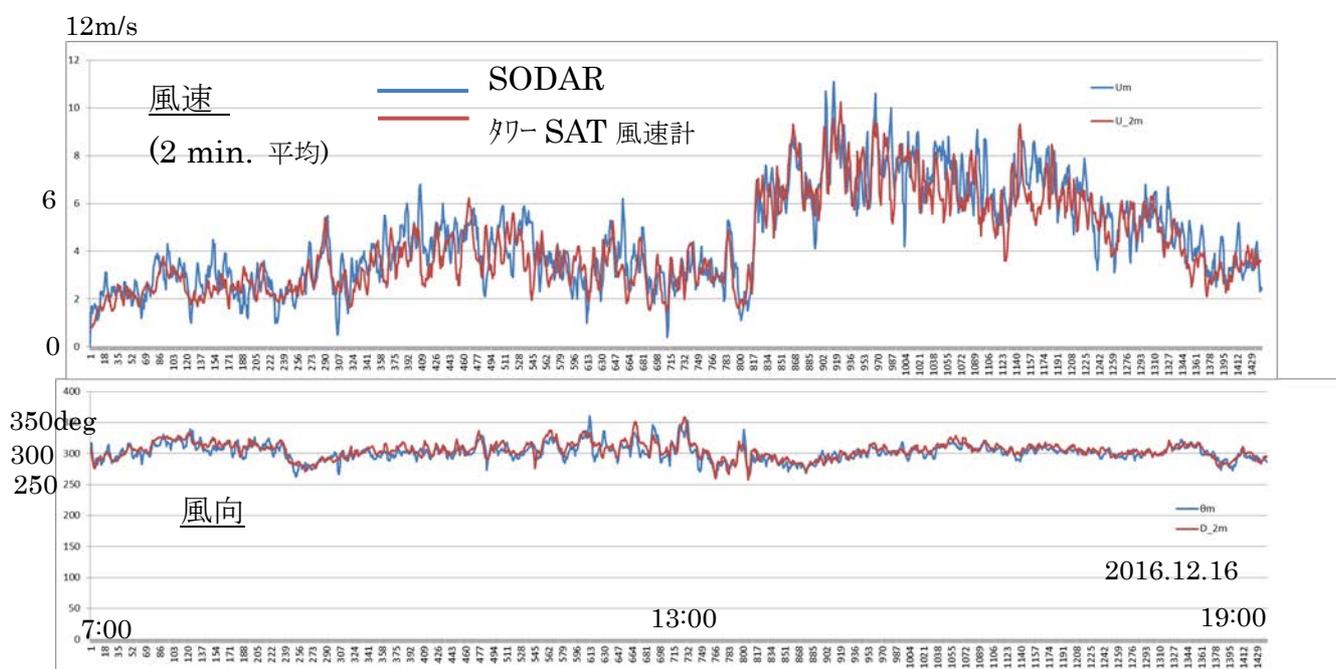


図 1：高さ 30m のドップラーソーダと SAT により観測された風速と風向の時系列

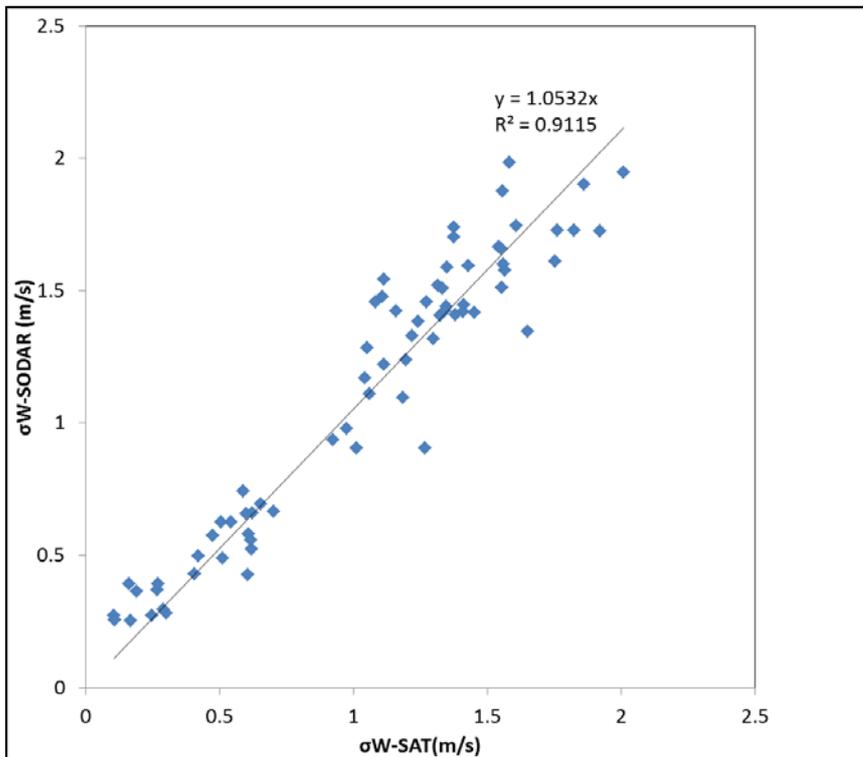


図 2:鉛直風速標準偏差の 10 分平均値のドップラーソーダと SAT との比較(補正後)

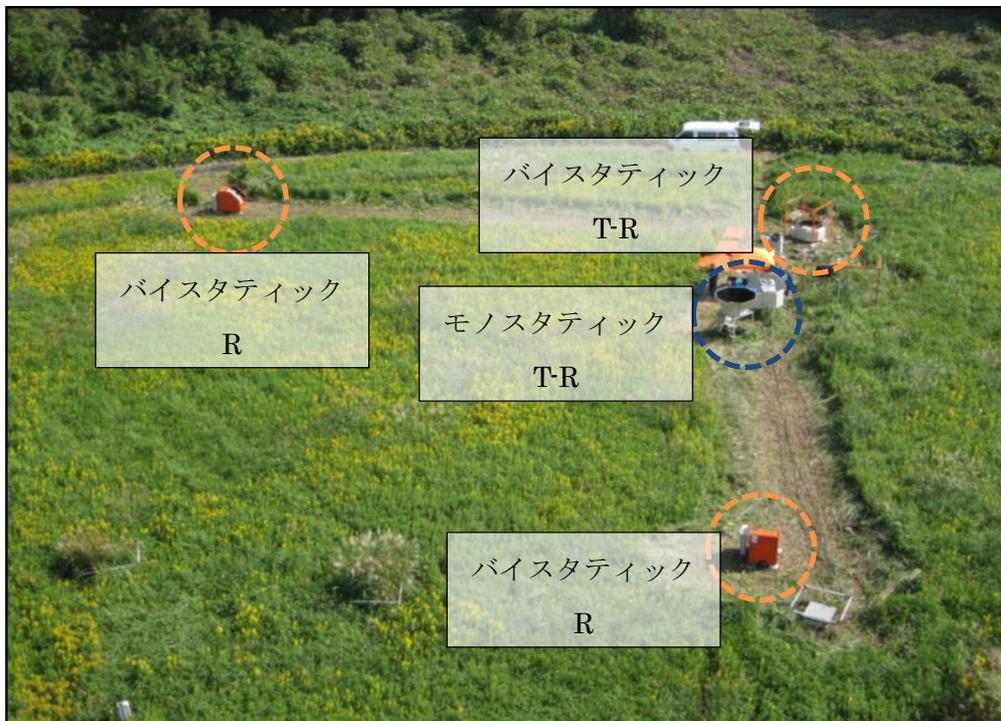


写真:ドップラーソーダ(バイスタティック型並びにモノスタティック型)設置状況
オレンジ色丸囲い(バイスタティック)、青色丸囲い(モノスタティック)

成果発表

① 論文発表

大城善郎、伊藤芳樹、内田孝紀、高桑晋、勝呂幸男、2016：複雑地形における超音波風向風速計を用いた高精度風況解析（青森県下北，岩屋ウィンドファームにおける2高度観測）、日本風力エネルギー学会論文集、Vol. 40(2)，7-12.

伊藤芳樹、宮崎真、2016：地方空港向け低層風情報提供システム（SOLWIN）の開発、航空技術、No. 736，34-40.

② 学会発表

大城善郎、宮崎真、伊藤芳樹、内田孝紀、高桑晋、勝呂幸男、相原雅彦、太田健一郎、2016、地形影響を受けた観測場における大気安定度別の3次元高精風況解析、第38回風力エネルギー利用シンポジウム 回風力エネルギー利用シンポジウム、科学技術館、2016年12月1日。

③ その他

宮崎真、伊藤芳樹、林孝明、2016：ドップラーレーザとAWS用超音波風速計による乱流計測手法の開発、放射性物質環境動態・環境および生物への影響に関する学際共同研究中間研究成果発表会、2016年11月18日、弘前大学

福島第一原発事故に伴う放射性物質の沈着過程と降水に関する研究

若月泰孝（茨城大学）

青山智夫（江戸川大学）

浅沼順（筑波大学，受入教員）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発事故に伴う放射性核種の拡散・移行に関連して、大気中での放射性物質の輸送過程や沈着過程について、簡易モデル化などの研究を実施する。特に霧雨を含めた降雨の推定アルゴリズムの研究、湿性過程の簡易モデル化研究を進める。霧雨の沈着効果は無視できないと想像されるが、そのモデル化や定量化はこれまで十分になされていなかった。研究では、観測された環境放射線量データなどを解析し、大気モデルシミュレーションと比較する。

② 研究方法

- ・ 降雨の観測データの収集によって、霧雨を含めた降雨の状況把握を行う。特に、ディストロメータと雨量計データを比較することによって、雨量計データによる雨量を時間的に再分配する簡易アルゴリズムを開発する。
- ・ WRF/chem などを利用した放射性物質の拡散シミュレーションのデータを収集すると同時に、茨城大学の計算サーバでも数値実験を実施する。
- ・ ガス状放射性物質 (I-131) 粒子状同物質 (Cs-134/137) の沈着に関するオフラインのモデル化を降雨だけでなく霧雨も考慮して検討する。
- ・ オフラインモデルの沈着係数をシミュレーションと観測されたガンマ線束の観測データの比較によって optimizer を利用して推定する。オンライン化にむけたモデル修正を行う。

③ 結果・考察

雨量計データによる雨量を時間的に再分配する簡易アルゴリズムについては、ある程度よいアルゴリズムを開発することができた。福島第一原発事故においては、霧雨状の弱い雨が地上への放射性物質の沈着に寄与したのではないかと推定された。しかし、霧雨は転倒マス雨量計で観測するのは極めて難しい。そこで、転倒マス式雨量計の雨量をそれよりも前の時刻の弱い雨として分配する。その際、分配式を条件付きの時間に関する関数とした。その条件とは、転倒マス雨量

計が降雨をカウントした時刻の前に、レーダ雨量が降雨を識別しているか、相対湿度が閾値（例えば 95%）以上（微弱な雨が降っているときの飽和に近い湿潤環境）であることである。ディストロメータを用いた雨滴粒形分布観測データを検証に用いることで、降水量の分配モデルのパラメータを推定し、モデル作成した。

WRF/chem などを利用した放射性物質の拡散シミュレーションのデータを収集したものの、茨城大学での WRF/chem などの拡散シミュレーションは共同研究期間内に実施することができなかった。ただし、高解像（1km 解像度）の大気モデルシミュレーション（WRF と CReSS を利用）を実施することで、原発西側の山間部で空間線量率が高くなった要因について考察した。高解像度実験でなければ、複雑な地形をもつ原発周辺の山間部での風の場を表現することができないと考えられた。原発周辺の線量観測データは、2号機の格納容器が破損した15日昼前頃に増加の傾向を示したが、それ以前の15日0時頃にも高い線量を観測していた。シミュレーション結果によると、原発周辺の風の分布は、15日の9時頃までごく下層で海から山に向かう風を表現していたが、それ以降は山から海に吹く西風となっていた。つまり、原発周辺の山間部に放射性物質を輸送したのは、15日の2号機の格納容器破損前の放射性物質の放出も重要な役割を果たしていた可能性が示唆された。また、15日の深夜から朝にかけて、山間部では非常に弱い雨が降っていたことが推定された。しかし、この地域の地上の気象観測データは残っていない。また、線量観測については、浪江町などの観測はないが、川内村では10時ころに高い線量を観測しており、午前中の東風によって運ばれた放射性物質が弱雨によって沈着し、川内村での高線量に寄与したと示唆された。ただし、10時頃の雲水量は早朝のそれよりも減少していた。もし、雨がもっと降っていたら、川内村での沈着量はさらに大きくなっていた可能性がある。一方、飯舘村や福島市での観測値は、16時頃に線量が高くなったことを示していた。これは、シミュレーションにおける海からの東風が西風に入れ替わったずっと後であり、午前中の東風による放射性物質輸送とは必ずしも対応しないことが示唆された。ただし、シミュレーションの風は、それを裏付ける観測による証拠が十分でない。また、解像度 1km 程度の解像度でも、谷間をぬける風を精度よく表現できているわけではない。したがって、さらに細かい解像度での LES によるシミュレーションが必要とされている。なお、本共同研究では、高解像度シミュレーションの補助と観測データ収集整理において、学生のアルバイトを活用した。

放射性物質の沈着に関するオフラインのモデル化を降雨だけでなく霧雨も考慮して検討した。湿性沈着モデルについては、基本的に雨水混合比や地上降水量の関数として表現される。この場合、霧雨ではほとんど沈着しないことになってしまうが、落下速度が遅く浮遊状態に近い霧雨であっても、落下・浮遊中に地表面や植生に衝突することによって沈着は起きる。線量や降水量などの気象観測が継続していた福島では、線量が高くなった15日15時ころから転倒マス雨量計でも検出可能な程度の弱い雨（0.5mm程度）が降りはじめていた。雲量も高い状態であった。これ

をモデルで表現するために、降水量に関する湿性沈着とは別に、沈着モデルを作成する必要があると考えた。霧雨については、少なくとも粗い解像度のモデルでは表現できない。高解像の雲解像大気モデルでも、格子サイズより細かいスケールで変動する雲分布を表現することは難しい。そこで、雲量を沈着パラメータに用いることを検討した。雲量は、

$$C = RH^p \left[1 - \exp\left(-\alpha_0 \bar{q}_i / [(1 - RH)q^*]^\gamma\right) \right]$$

ここで、 C は雲量、 RH は相対湿度、 \bar{q}_i は雲水と雲氷の混合比の和、 q^* は、飽和水蒸気混合比である。 p 、 α_0 、 γ はチューニングパラメータ

と表現される。高解像度モデルの雲量の分布は、雲水混合比のそれと比較的類似しているが、それよりも少し広がったような分布をもつ。シミュレーションによる雲量データと降水量データを比較したところ、降水量がほとんどゼロでも、雲水が十分に存在する期間が同定できた。特に、15日の午前中、原発西部の山間部でそのような傾向がみられた。なお、パラメータの最適化・オンラインモデルへの組み込みなどは本共同研究では、時間の都合上達成することができなかった。若月ほか（2015）によって沈着モデルが定式化されている。これは沈着モデルの一例に過ぎないが、これに雲量の効果を組み込んだモデル化研究を継続する必要がある。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

参考文献

若月泰孝, 青山智夫, 滝川雅之, 2014: 2011年3月15~16日の福島県中通り地方の空間線量率シミュレーション. *Journal of Computer Chemistry, Japan*, 13, 5, 268-277, doi: 10.2477/jccj.2014-0012.

トリプル四重極型 ICP 質量分析計を用いた ^{129}I 測定法の開発

氏名 (所属) 山形武靖 (日本大学)

研究成果概要

① 研究目的

^{129}I は、初期内部被曝の評価として重要な ^{131}I の復元に非常に有効である。 ^{129}I 濃度の分析は大型の測定施設を利用した中性子放射化分析または加速器質量分析 (AMS) での測定でのみ測定が可能であったが、近年の技術発展により誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) の ^{129}I の検出感度は飛躍的に上昇し ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-8}$)、中性子放射化分析に匹敵する。ICP-MS による環境試料中の ^{129}I 測定法を確立することが出来れば、チェルノブイリ原子力発電所事故時に中性子放射化分析で測定された土壤や動物の甲状腺等の ^{129}I 濃度を簡便に測定が出来る。

そこで本研究はトリプル四重極型 ICPMS (Agilent8800 ICP-MS/MS) を用いて ^{129}I 濃度の測定法を開発することを目的とする。

② 研究方法

ICP-MS を用いた先行研究 (Ohno *et al.* 2013) の方法を踏襲し、ICP-MS 内での酸素ガスリアクションによりキセノンの同重体干渉を低減する。弘前大学の ICP-MS/MS (Agilent8800) での ^{129}I の検出及び条件の最適化を行う。その後、福島土壤試料のヨウ素を加熱抽出および四塩化炭素を用いた溶媒抽出法で精製し、ICP-MS/MS を用いて分析する。さらに申請者は東京大学 MALT における AMS を用いた ^{129}I の測定を行っており、平成 28 年度のマシンタイムの確保もしている。同試料について異なる分析機器を用いた測定結果を比較検討することで分析結果の妥当性の評価を行う。

③ 結果・考察

本年度は AMS を用いた測定について行ったが、ICP-MS/MS の試料の調整には至らなかった。AMS を用いた土壤および海水試料の測定では福島土壤中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は表層で 10^{-8} 、海水では 10^{-10} となった。ICP-MS/MS の検出感度から、海水試料の測定は難しく、測定目標は福島の土壤および原子力発電所内の廃棄物等のモニタリングが妥当であることが確認された。

成果発表

① 論文発表

特になし

② 学会発表

1. 東電福島事故直後に採取された大気浮遊塵中の¹²⁹I/¹³¹I比, 海老原充, 大浦泰嗣, 白井直樹, 鶴田治雄, 森口祐一, 永川栄泰, 櫻井昇, 羽場宏光, 松崎浩之, 山形武靖, 永井尚生, 関本俊, 2016 日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会, 9/10-9/12, 新潟大学
2. 北極海-北太平洋における海水中ヨウ素129の濃度分布, 工藤輝, 山形武靖, 永井尚生, 熊本雄一郎, 西野茂人, 松崎浩之, 2016 日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会, 9/10-9/12, 新潟大学
3. Distribution of ¹³⁷Cs and ¹²⁹I in Seawater Near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in May 2011, Nagai, H, Yamagata, T & Kumamoto, Y, Goldschmidt Conference 2016, 6/26-7/1, Geochemical Society.
4. Development of Automated Separation System for Determination of Strontium-90 in Soil and Fish Bone Samples, Tazoe, H, Yamagata, T, Karube, Z & Yamada, M, Goldschmidt Conference 2016, 6/26-7/1, Geochemical Society.

③ その他

極低濃度トリチウム計測手法を用いた トリチウム計測用バックグラウンド水の検討

氏名（核融合科学研究所） 赤田尚史

研究成果概要

① 研究目的

液体シンチレーションカウンターを用いた環境水中トリチウムの計測を行う場合、無トリチウム水（BG 水）によるバックグラウンドカウントの計測が不可欠である。BG 水としては、主に日本各地の深部地下水（古い水）が用いられているが、採水時に地表水が混入しやすいことから極低濃度トリチウム計測システムを用いてトリチウムが検出下限値以下であることを確認する必要がある。本研究では、極低濃度トリチウム計測手法を確立し、青森県内温泉水の BG 水としての可能性を検討する。また、同手法を用いて、世界のミネラルウォーター中トリチウム濃度を把握する。

② 研究方法

固体高分子膜電解濃縮装置と低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターを用いて低濃度測定手法を確立し、青森県内の深部地下水（温泉水）およびの世界で市販されているミネラルウォーターのトリチウム計測を実施する。

② 結果・考察

青森県東部に位置する新第三紀堆積盆地に取り込まれた古海水が地温で温められた弱アルカリ性の食塩泉（ナトリウム-塩化物泉）である「おいらせ町石田温泉病院」の源泉（深度：約 1,300m）が BG 水として利用できることが明らかとなった（0.03Bq/L 以下）。また、世界各地で採水・市販されているミネラルウォーターを分析した結果、Theodora（ハンガリー）と Tangui（カメルーン）からはトリチウムが検出されず、バックグラウンド水として利用できる可能性が示唆された。

成果発表

① 論文発表 なし

② 学会発表

日本保健物理学会第 50 回研究発表会，平成 29 年 6 月 28-30 日，大分市（申込み済）

③ その他 なし

高線量汚染地域に生息する野生生物の染色体を指標とした放射線影響評価

氏名（所属） 中田章史（北海道薬科大学）

研究成果概要

① 研究目的

福島原発事故から5年余が経過し、現在、特別地域内除染実施計画に基づき本格除染が行われているが、生活圏から離れた大部分の森林については対象外となっている。そのため、除染が困難とされる森林地帯に生息する動物は依然として低線量放射線の長期被ばくを受けているため、除染対象外地域の野生動物の遺伝的影響、特に継世代的影響が懸念される。本研究では、放射線汚染地域のアカネズミの継続的なモニタリングを行い、体細胞および生殖細胞における放射線影響を把握することを目的とする。さらに、生殖細胞に染色体異常が生じた際の染色体異常モデルを想定する必要がある。アカネズミは黒部川と天竜川を境に、東日本型は染色体数 $2n=48$ 、西日本型は染色体数 $2n=46$ の個体が生息し、両者の交雑型である染色体数 $2n=47$ の個体群が長野県伊那谷周辺に生息している。この染色体数の異なるアカネズミを染色体異常モデルとして生殖細胞形成機構について解析し、放射線汚染および非汚染地域のアカネズミとの違いを比較する。

② 研究方法

長野県伊那市および福島県の放射線汚染地域でアカネズミの捕獲を実施した。捕獲した個体は外部形態を計測し、安楽死後、各種組織（レンズ、肺、肝臓、脾臓、腎臓、脾臓、腸管、卵巣、精巣、骨髄、大腿四頭筋、尾椎）を摘出した。脾臓の一部は短期培養法、精巣の一部は直接法にて染色体標本を作成した。また、将来的に様々な細胞実験に供するために、尾椎は初代培養および骨髄細胞は凍結保存した。レンズおよび頭骨は齢査定を行った。残りの臓器は組織切片および核酸を抽出するために適切な処理で保存した。

③ 結果・考察

尾椎の初代培養および脾臓リンパ球の短期培養から作成した染色体標本の解析の結果、長野県伊那市に西日本型アカネズミ（染色体数：46本）、東日本型アカネズミ（染色体数：48本）、および両者の交雑型アカネズミ（染色体数：47本）が生息していることを確認できた。いずれの個体群の雄の精巣が発達していたため（71.4%（5/7）～100%（4/4））、長野県伊那市では6月上旬が繁殖期であることが判明した。

福島県の放射線汚染地域では計 27 個体のアカネズミの捕獲に成功した。精巣が発達した個体は 1 と 4 の比較的太平洋側で観察された。一方、2 と 3 の精巣が萎縮していたため、すでに繁殖期を過ぎていることが判明した。そのため、福島県では太平洋側と内陸部では繁殖時期のずれがある可能性がある。

精巣から作成した染色体標本の解析の結果、いずれの群においても分裂頻度が低かったため、染色体の解析が困難であった。今後、ノネズミの生殖細胞の染色体解析を行うために、染色体標本の作成方法に関して条件検討が必要である。

成果発表

① 論文発表

Kitaya T, Maeda T, Yasui H, Mizukawa H, Inanami O, **Nakata A**, Miura T, Hosokawa Y, Kuwabara M. Attempts of radiation dose measurement in the teeth of mice living around the nuclear power plant in Fukushima using electron spin resonance spectroscopy. *Radiation Emergency Medicine* 6, 1-5, (2017).

Takino S, Yamashiro H, Sugano Y, Fujishima Y, **Nakata A**, Kasai K, Hayashi G, Urushihara Y, Suzuki M, Shinoda H, Miura T, Fukumoto M. Analysis of the Effect of Chronic and Low-Dose Radiation Exposure on Spermatogenic Cells of Male Large Japanese Field Mice (*Apodemus speciosus*) after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *Radiat Res*, 187: 161-168 (2017)

② 学会発表

氏家里紗、藤嶋洋平、阿部悠、**中田章史**、葛西宏介、三浦富智、津山尚宏、有吉健太郎、吉田光明、坂井晃：未成（早期）熟凝縮染色体（PCC）法と FISH 法を併用した二動原体染色体線量推定法の検討。日本放射線影響学会第 59 大会。広島市。2016 年 10 月 26-28 日

藤嶋洋平、**中田章史**、三浦富智、田副博文、豊田正、葛西宏介、有吉健太郎、山田正俊、吉田光明：福島県浪江町におけるネコの内部被ばく解析。日本放射線影響学会第 59 大会。広島市。2016 年 10 月 26-28 日

中田章史、藤嶋洋平、葛西宏介、有吉健太郎、斎藤幹男、鈴木亨純、三浦富智、吉田光明、福本学：放射性物質汚染地域に生息するノネズミの被ばく線量推定法の開発。日本放射線影響学会第 59 大会。広島市。2016 年 10 月 26-28 日

有吉健太郎、中田章史、藤嶋洋平、三浦富智、葛西宏介、尚奕、柿沼志津子、島田義也、立花章、吉田光明：放射線誘発悪性腫瘍の発生に關与する染色体異常の解析。日本放射線影響学会第 59 大会。広島市。2016 年 10 月 26-28 日

大平拓也、伊藤洵、藤嶋洋平、菅原淳史、山城秀昭、中田章史、鈴木正敏、有吉健太郎、葛西宏介、篠田壽、三浦富智、福本学：電子線マイクロアナライザによる被災アカネズミ精巢の元素分析。日本放射線影響学会第 59 大会。広島市。2016 年 10 月 26-28 日

③ その他

海域モニタリング試料を利用した 2011 年 5 月の福島県沿岸域における原 発事故由来放射性セシウムの分布再現

熊本雄一郎（海洋研究開発機構）

研究成果概要

① 研究目的

2011 年 3 月 11 日の大津波によって破損した福島第一原子力発電所から、放射性セシウムが北太平洋に放出された。文部科学省は事故直後から東北沿岸域において海水中放射性セシウム濃度の測定（「海域モニタリング」）を開始したが、濃度が急速に低下した 2011 年 5 月以降は、その簡易的な測定法では正確な濃度測定が困難となった。2011 年 8 月以降は、リンモリブデン酸アンモニウム（AMP）を用いたより高感度な測定方法に変更されたが、それまでの 2011 年 5 月～7 月の間はデータの空白期間となっている。本研究は、弘前大学に保管されている「海域モニタリング」海水試料に含まれる放射性セシウムを高感度な AMP 濃縮法を用いて再測定し、2011 年 5 月の福島県沿岸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を再現することを目的とする。

② 研究方法

上記の「海域モニタリング」で採取された海水試料は、前処理を施されることなく直接ガンマ線検出器によってその中に含まれる放射性セシウム濃度が測定された。本研究では、その海水試料に含まれる放射性セシウムを AMP によって濃縮した後に、そのガンマ線を計測することによってより低濃度の放射性セシウム、すなわちセシウム 134 とセシウム 137 を定量化した。海水試料は、国立研究開発法人海洋研究開発機構の「よこすか」航海 YK11-E02（2011 年 5 月）において、福島第一原子力発電所から 30～50km 離れた福島県沖合海域で採取された 56 検体を用いた。AMP を用いた濃縮作業、及びゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線計測による放射性セシウムの測定は、海洋研究開発機構むつ研究所で実施された。AMP 濃縮を実施する前に、各海水試料 100ml を蒸発乾固させて得られた海塩中の放射性セシウム濃度を測定し、その蒸発乾固法では測定できなかった試料について AMP 処理を実施した。前処理作業およびガンマ線計測に伴う測定の不確かさは、おおよそ 8%と見積もられた。

③ 結果・考察

図1に、同一海水試料の文部科学省と本研究によるセシウム 137 濃度の比較した結果を示す。全 56 検体のうち、文部科学省による簡易測定法、すなわち海水試料をそのままゲルマニウム半導体検出器に挿入してガンマ線を計測する方法ではわずかに 6 検体しか有意なデータが報告されていない。文部科学省と我々によって測定されたセシウム 137 濃度を比較すると、前者が相対的に高めに測定されていることが分かった。簡易計測法の検出下限値は 10 kBq/m³程度と報告されており、同法による下限値近くのセシウム 137 濃度の計測には大きな不確かさが含まれていることが推定された。

図2に、YK11-E02 航海の 16 観測点得られたセシウム 134 濃度 (kBq/m³) の鉛直分布 (全 56 検体のうち 47 検体) を示す。なお、福島第一原子力発電所事故によって環境中に放出されたセシウム 137 とセシウム 134 の総量は、ほぼ等しかったことが推定されている。セシウム 134 の鉛直分布では、表面水で最も濃度が高く、中層および底層では濃度が低いという傾向が確認された。これは福島第一原子力発電所事故によって北太平洋に放出された放射性セシウムのほとんどが、海洋表面水に大気沈着または直接流出したことによる。水平分布では、福島第一原子力発電所の北側および南側のより沿岸に近い海域において高いセシウム 134 濃度が観測された。この傾向は、水中濃度を鉛直的に積算した総量 (インベントリ) の分布でも観測された (図2)。この水平分布傾向は、原発から直接流出したセシウム 134 が同心円状に拡がっていったのではなく、沿岸海域を南北方向に拡がったことを示唆している。福島県の沿岸域では海上風に起因して南北に流向が周期的に変化する沿岸流が存在することが確認されており、福島第一原子力発電所から放出されたセシウム 134 の水平方向への拡がり、その南北方向に卓越した沿岸流による影響が大きかったことが推測された。今後は、今回得られた観測結果にすでに報告されている結果、特に福島第一原子力発電所から 30km 圏内の東京電力による放射性セシウム濃度の測定結果を合わせて議論し、事故直後の 2011 年 5 月の福島県沿岸域における原発事故由来放射性セシウムの分布を再現する。

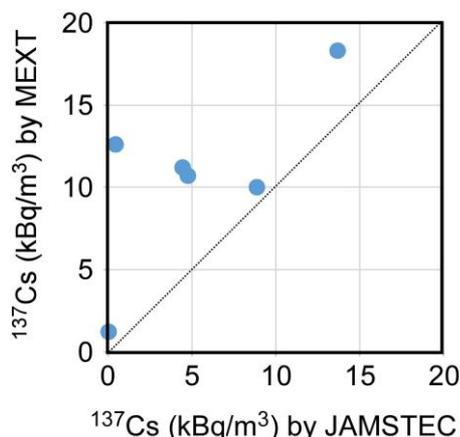


図1 YK11-E02 航海で得られた海水試料に含まれるセシウム 137 濃度 (kBq/m³) の比較。縦軸は文部科学省 (MEXT) による簡易測定法による結果を、横軸は我々 (JAMSTEC) による AMP 法による結果を示す。

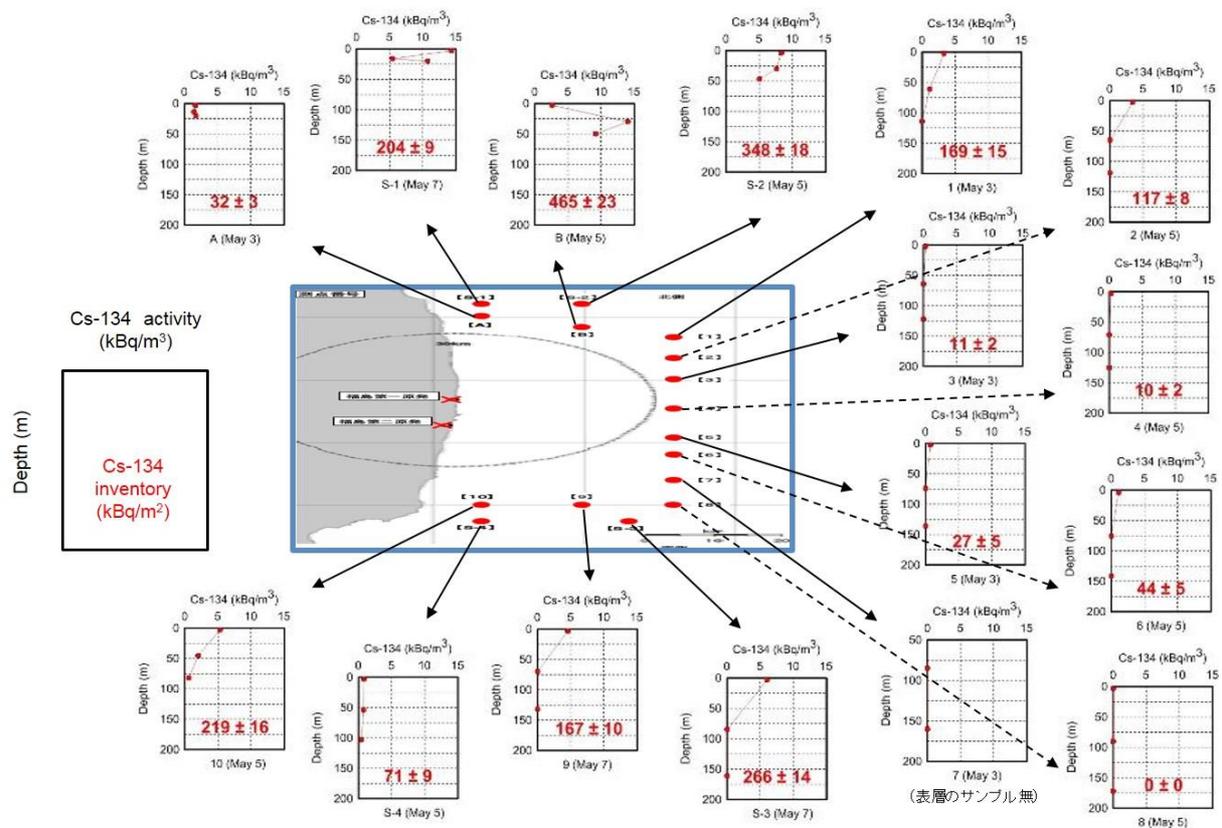


図2 YK11-E02 航海の 16 観測点において観測されたセシウム 134 濃度 (kBq/m³) の鉛直分布と鉛直積算総量 (インベントリ、kBq/m²)。

成果発表

① 論文発表

熊本雄一郎、2011 年北太平洋東北地方沿岸・沖合域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動態、沿岸海洋研究誌 54、135-142 (2017)

② 学会発表

該当なし

③ その他

熊本雄一郎、2016 年度前半の研究成果と今後の試料採取の予定、科研費新学術領域研究 ISETR 平成 28 年度海洋班会議、函館市、2016 年 8 月 3 日。

Distribution of hard-to-detect Pu and Cs-135 isotopes in early stage monitoring seawaters after the Fukushima nuclear accident

Jian Zheng (National Institute of Radiological Sciences)

Summary of the Project

This collaborative study exploited the cutting-edge mass spectrometric analytical methods developed in National Institute of Radiological Sciences to analyse the hard-to-detect radioactive isotopes of ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{135}Cs and ^{137}Cs in seawater samples provided by Hirosaki University. These monitoring seawater samples were collected from the coastal area off Fukushima in the early stage (in April and May 2011) after the Fukushima nuclear accident.

In FY2016, our study focused on analytical method development for radiocesium isotope analysis in seawater. For seawater radiocesium isotope analysis, it is essential to separate Cs isotopes from the seawater matrix, Na, Mg, and K, which could cause low recovery of Cs isotope for the chromatographic separation and resulted in the deposition of salts in the sample introduction interface cones, thus decrease the sensitivity of ICP-MS. As shown in Fig. 1, using AMP selective adsorption of Cs followed by a hybrid chromatographic separation employing anion-exchange (AG MP-1M), cation-exchange (AG 50Wx8) and extraction (Eichrom Sr resin) resins, we realized almost base-line separation of Cs isotopes from the matrix elements, Na, K, and Mg in 2 L seawaters. This

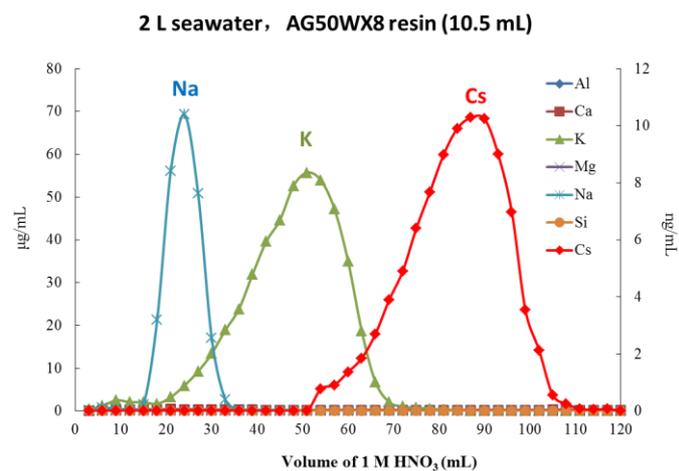


Fig. 1 Separation of Cs from seawater matrix elements by cation exchange chromatography

This newly developed chemical separation procedure was combined to the established APEX-Q/ICP-MS/MS development of an effective chemical separation method for radiocesium isotope analysis in seawater samples, in particular the separation of

Cs from the seawater matrix. With 2 L seawater, the developed APEX-Q/ICP-MS/MS analytical system can measure accurately ^{137}Cs activity at > 0.1 Bq/L level, and ^{135}Cs concentration at > 0.05 pg/L. The developed analytical method was validated by the analysis of IAEA seawater reference material (IAEA-443), and the detected values of ^{137}Cs activity and $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotopic ratio were in a good agreement with certified/reported values. The analysis of radiocesium isotopes (^{135}Cs and ^{137}Cs) in the early stage monitor seawater samples is in progress.

List of Publication

1. Jian Zheng, Liguao Cao, Keiko Tagami, Shigeo Uchida, Analytical methodology and potential applications of a new geochemical tracer of $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotope ratio. Goldschmidt 2016, June 26-July 1, 2016, Yokohama, Japan. (Invited talk).

魚類胃内容物中堆積物の $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}$ 濃度比による陸域起源粒子の推定手法

立田穰（電力中央研究所）

研究成果概要

① 研究目的

原発事故由来の福島沿岸海水中放射性セシウム濃度は、5ヶ年経過後低下しているが、海底土や懸濁粒子における放射性セシウム濃度は充分低減してはいない。原因として、より汚染された陸域河川からの高濃度粒子流入の寄与の可能性がある。海底粒子中の安定炭素・窒素同位体比と ^{137}Cs の相関解析は、粒子上の有機物の起源推定に適用できるが、粘土粒子吸着性の ^{137}Cs の陸域起源寄与の推定には必ずしも決定的ではない。一方、陸域ラドン起源の ^{210}Pb の無機物吸着性を利用した、沈降粒子中の $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ 比により、沿岸懸濁粒子の沖合への輸送を見積った例があるが、沿岸食物連鎖内での陸域起源粒子態放射性セシウムの移行寄与推定に用いられた例はない。そこで、本研究では、魚類胃内容物にみられる懸濁粒子の起源を明らかにするために、微量試料における $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ 比を求める方法について検討する。

② 研究方法

カレイ類の胃内容物において、餌生物および連行堆積物中の双方に ^{210}Pb が含まれると考えられる。本研究では、陸域からの河川流入粒子の食物連鎖への寄与を明らかにするため、カレイ胃内容物のうち、堆積物粒子のみの ^{210}Pb を検討対象とする。餌生物が多く含まれる胃内容物から目視により有機物を除き、得られた堆積物を金沢大学低レベル放射能分析設備を用いて ^{137}Cs と ^{210}Pb のガンマ線を計測する。 ^{137}Cs 放射能については、福島大学により得られた計数効率を用いる。 ^{210}Pb については、標準環境試料により計数効率を求めるとともに、アルファスペクトロメータを用いて、 ^{209}Po スパイクにより ^{210}Pb 平衡 ^{210}Po から ^{210}Pb の放射能を求め、測定精度の確認を行う。陸域土壌をエンドメンバーとして、得られた $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$ 比から、沿岸生態系内の食物連鎖における陸上由来 ^{137}Cs の存在寄与の多寡を検討する。

③ 結果・考察

福島沿岸海底に生息するベントス（ブンブク・イモナマコ）排泄堆積物、ベントスを餌とするマコガレイ・ババガレイ・コモンカスベの胃内容物分離堆積物、および福島県河川氾濫物の微粒子(粒径 $75\mu\text{m}$)における放射性セシウム濃度は、各々 $100 - 500$, $20 - 900$, $1000 - 3000 \text{ Bq kg-dry}^{-1}$ の範囲にあった。一方、陸域ラドンを供給源とする過剰の ^{210}Pb 濃度、および堆積物に含まれるラジウム平衡 ^{210}Pb 濃度について、微量試料における定量法として極低レベルバックグランド測定の実用性を検討した結果、1から10gの試料で数週間の測定が必要なことが明らかとなった。平

衡 ^{210}Po のアルファスペクトロメトリから求める過剰 ^{210}Pb のみならず、低レベルBGガンマスペクトロトリから求めるラジウム平衡 ^{210}Pb が流入陸上粒子の岩石成分由来であることを利用すれば、特定河川の沿岸域への陸上粘土粒子輸送および、能動的堆積物摂食者であるカレイの陸域由来セシウムの負荷度合を明らかにできる可能性を理論的に考察した。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

なし

研究課題名

日本沿岸域における東電福島第一原発事故起源放射性セシウムの再循環の研究

氏名（所属）

青山道夫（福島大学環境放射能研究所）

研究成果概要

① 研究目的

2011年3月の東京電力福島第1原発事故で海に放出された放射性セシウムのうち一部は北太平洋の西部亜熱帯循環により、数年未満の時間スケールで日本周辺の海域に戻ってきているというシグナルが本研究申請者らのグループの観測で明らかになった。日本周辺海域では東京電力福島第1原発事故後、事故サイト近傍を除くと、いったん下がっていた表層海水中の放射性セシウムの放射能は2014年くらいから日本西部沿岸を中心に事故以前よりも高くなり、2015/2016年冬では九州西方から対馬海峡で極大となり、1立方メートル当たり2ベクレルを超えており、今後も濃度が上昇する可能性が高い。この亜熱帯循環内の早い時間スケールの表層循環の実像を明らかにする。

② 研究方法

日本の沿岸80地点で表層海水を採取し、放射性セシウムを測定した。あわせて、政府および地方自治体のモニタリングデータをデータベースに収録した。

これらのデータを用いて、字空間分布の特徴を抽出し、解析した。

③ 結果・考察

日本の沿岸全域の観測により、東電福島第一原発事故により放出された放射性セシウムが亜表層再循環により日本沿岸に戻ってきている状況を明かにした。日本周辺では、FNPP1近傍を除くと、2011年3-4月に放射性セシウム放射能がFNPP1事故の影響で上昇したのち、徐々に減少していた。2014年から2016年では、NPP1近傍では、漏洩がわずかに継続しているが表層海水中放射能はゆっくり減少していた。それに対し、FNPP1の南に位置する茨城県波崎では、表層海水中放射性セシウムがほとんど減少し

ない傾向が見られるようになるとともに、日本海あるいは東シナ海北部では放射性セシウムが 2014 年頃にわずかであるが増加する傾向が見られるようになった。FNPP1 起源の証拠であるセシウム 134 は東シナ海南部陸棚域を除く広い範囲で検出された。これらの観測結果は、FNPP1 事故により海洋環境に放出された放射性セシウムのわずかな部分が、既に西部北太平洋の亜表層を通り、北緯 28 度以北のから東シナ海に入って、対馬暖流沿に再循環していること、および再循環の放射性セシウムが事故後数年の期間内に日本の沿岸に達したことを示している。

成果発表

① 論文発表

Aoyama, M., Hamajima, Y., Inomata, Y., Oka, E.: Recirculation of FNPP1-derived radiocaesium observed in winter 2015/2016 in coastal regions of Japan. Applied Radiation and Isotopes (2016) DOI: 10.1016/j.apradiso.2016.12.003

② 学会発表

青山 道夫, 浜島 靖典、猪股 弥生、熊本雄一郎、岡 英太郎、坪野考樹、津旨大輔、東電福島第一原発事故起源の放射性セシウムの日本沿岸での挙動 2011-2016、日本原子力学会 2017 春の年会

③ その他

Michio Aoyama, Daisuke Tsumune, Takaki Tsubono, Yasunori Hamajima, Yuichiro Kumamoto, Oka Eitarou and Yayoi Inomata, Recirculation of FNPP1-derived radiocaesium observed in winter 2015/2016 in coastal regions of Japan, Hirosaki, Japan, November 2016, 放射性物質環境動態・環境および生物への影響に関する学際共同研究 中間研究成果発表会

福島原発事故に被災した野生ニホンザルの 臓器別 DNA 損傷の定量解析

鈴木正敏（東北大学）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発事故による低線量・低線量率長期放射線被ばくの生物影響を調査するために、旧警戒区域内およびその周辺地域で捕獲された野生ニホンザルを研究対象とし、人間に近縁である霊長類への影響解明を目指して本課題を実施した。染色体異常や高感度分子マーカーを指標とし、放射性セシウムの体内分布と臓器別 DNA 損傷量との関連性を検討するために、野生動物試料を用いた試験法の確立を特に検討した。

② 研究方法

行政目的で処分された野生ニホンザルの各臓器試料を収集し、試験用途に適した方法で処理した。血液、骨髄、脾臓を染色体試験に供し、標準的な手順と条件で染色体標本を作成した。ギムザ染色後の標本を光学顕微鏡(オリンパス、BX43)で観察し、染色体を評価した。また、大腿筋由来初代線維芽細胞を樹立し、リン酸化 H2AX と 53BP1 を指標とした蛍光免疫染色法により DNA 二重鎖切断を可視化した。一次抗体は抗リン酸化 H2AX 抗体(BioLegend、2F3)と抗 53BP1 抗体(Bethyl、A300-272A)を使用し、二次抗体には Alexa488 標識抗マウス IgG 抗体と Alexa594 標識抗ウサギ IgG 抗体 (Invitrogen)を用いた。細胞核の対比染色はヘキスト染色を行った。作成した標本を蛍光顕微鏡(ニコン、Ni-E)で観察し、DNA 二重鎖切断の指標となるフォーカスの形成を観察した。

③ 結果・考察

染色体標本の作成について血液、骨髄、および脾臓を用いて検討し、特に脾臓を用いた染色体標本作成については受入研究者からの技術指導をもとに検討した。骨髄から染色体標本作成する事ができたが、個体処分後の時間経過などが要因で染色体標本の作成に成功した個体は限られた。コルセミド処理条件、試料収集後から標本作成までの行程を検討し、本課題で用いる試料での染色体標本作成法を確立した。捕獲地の空間線量率を指標として代表的な個体の染色体標本を解析したところ、染色体数は

正常であった。空間線量率が低い地域で捕獲された個体では染色体の構造異常は観察されておらず、高い地域の個体では染色体断片が出現する個体があった。次に、染色体を形成する分裂期以外の細胞で DNA 損傷を検出する方法について、野生ニホンザル試料を用いて検討した。放射性セシウム濃度が高い大腿筋由来の初代培養細胞を樹立し、リン酸化 H2AX と 53BP1 のフォーカス形成を検討した。樹立した細胞に X 線を照射するとフォーカス形成が誘導され、細胞当りのフォーカス数はヒト正常 2 倍体細胞での解析結果と類似していた。使用した抗体はヒト試料において確認されている抗体だったが、本結果より野生ニホンザル試料において同等の精度で適応できる事を確認した。本解析手法は分裂期細胞を必要としないため、染色体標本を作成できない個体において、DNA 損傷を高感度に検出できる有効な試験法として期待される。

成果発表

- ① 論文発表
なし
- ② 学会発表
なし
- ③ その他
なし

最適内挿法による北太平洋における放射性セシウムの分布の時空間変動 及びその輸送速度の見積もり

猪股 弥生¹、青山道夫²、坪野孝樹³、津旨大輔³、山田正俊⁴

(1 金沢大学, 2 福島大学, 3 電力中央研究所, 4 弘前大学)

研究成果概要

① 研究目的

2011年3月の東京電力福島第一原発(FNPP1)事故で海洋に放出された放射性セシウム(ここでは¹³⁴Cs,¹³⁷Cs)は、太平洋上を輸送され、2015年にはアメリカ沿岸部まで到達したことが報告されている。これまでに報告されている研究の多くは、限られた場所や時間に得られたデータを元に議論されており、放射性セシウムの海洋汚染の実態については把握できていないのが実情である。本研究では、これまでに報告された離散的に分布しているデータを使用し、データ同化の一手法である最適内挿法(Optimum Interpolation; OI)により(Inomata et al., 2016)、格子値(緯度・経度・水深・時間)に再解析し、得られた濃度分布から、北太平洋における放射性セシウムの分布の時空間変動及びその輸送速度を明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

本研究ではOI法を用いて、福島沿岸域や北太平洋における放射性セシウムの濃度分布やその輸送過程を調べ、海洋汚染の実態を明らかにする。OI解析は、論文や報告書等で公表されている放射性セシウムのデータ(2011年3月から2015年7月まで)を使用する。離散的に分布している観測値からOI解析値を得るために、パラメーター(有効半径と誤差分散)を変えて感度計算を行い、グリッド毎の解析値を作成する。また、一般的な内挿法であるアキマ法(隣接する5点から各区間の勾配を求め、その比例配分を基に補間する方法; Akima et al., 1970)を用いて得られたグリッド値とOI解析値を比較し、相関係数が大きくなる値を最適値とした。

最適パラメーターをもとに、OI解析値を計算し、その計算結果を使用して北太平洋表層水における放射性セシウムの時空間分布や輸送速度を見積もった。

③ 結果・考察

OIパラメーターである有効半径及び誤差分散を変えて感度計算を行った結果、有効半径800km、誤差分散100が最適値となった。これらの最適値で計算したOI解析値をもとに、FNPP1事故により海洋に移行した放射性セシウム輸送速度や北太平洋におけるインベントリの推定を行った。

1. 北太平洋表層における輸送速度の見積もり

北太平洋に存在する放射性セシウム（ ^{134}Cs ）の起源の大部分は、1950-1960年代に行われた大規模大気圏核実験であり、そのほかに1986年におこったチェルノブイリ事故や2011年のFNPP1事故に由来するものがある。FNPP1事故以前に北太平洋に存在していた放射性セシウムは、半減期30.17年の ^{137}Cs である（Aoyama et al., 2012）。 ^{134}Cs は半減期が2.06年であることから、FNPP1事故以前の北太平洋においてはその濃度が検出下限値以下であった。そこで、FNPP1由来の放射性セシウムの北太平洋における動態を明らかにするために、ここでは ^{134}Cs に着目する。図1に、北緯40-45度における ^{134}Cs の時間—経度分布図を示す。2011年のFNPP1事故直後から数ヶ月間は、北緯40-45度付近では、日本付近のみならず、北太平洋全域で ^{134}Cs が観測されていた。FNPP1事後による海洋への放射性セシウムの放出は、大気からの沈着と放射能汚染水の海洋への直接漏洩であった。海流速度を考慮すると、日本から離れた太平洋中央部や東部で観測された ^{134}Cs は大気からの沈着に由来するものと考えられる。 ^{134}Cs 濃度の高い水塊は、日本付近から東方に移動していき、FNPP1事故から約1年後の2012年7月には、北緯40-45度、経度180度を中心とした海域まで到達したことが明らかになった。日本付近から経度180度までの輸送速度推定値は 8.5cm s^{-1} であった。その後、2014年にはアメリカ西海岸で ^{134}Cs 濃度の増加傾向が確認された。なお、経度180度から210度までの輸送速度は 5.2cm s^{-1} であった。

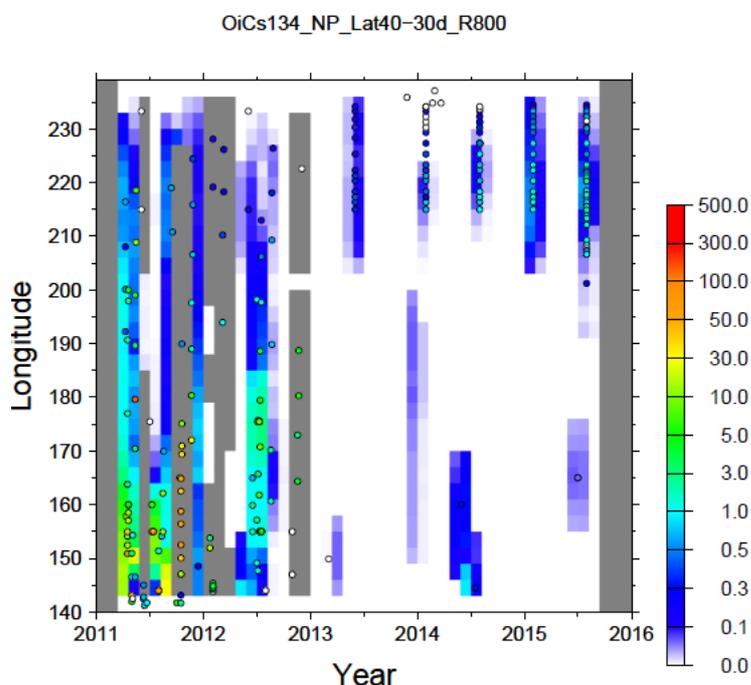


図1. 北緯40-45度における ^{134}Cs の時間—経度分布図。○は測定値。単位は Bq m^{-3} 。

2. 表層水インベントリの推定

2012年に、FNPP1由来の放射性セシウム高濃度が北太平洋中央部にまで到達していたことが観測されたことから、2012年8-12月に観測されたデータを用いて、2012年の北太平洋表層水における放射性セシウム分布を明らかにした(図2)。

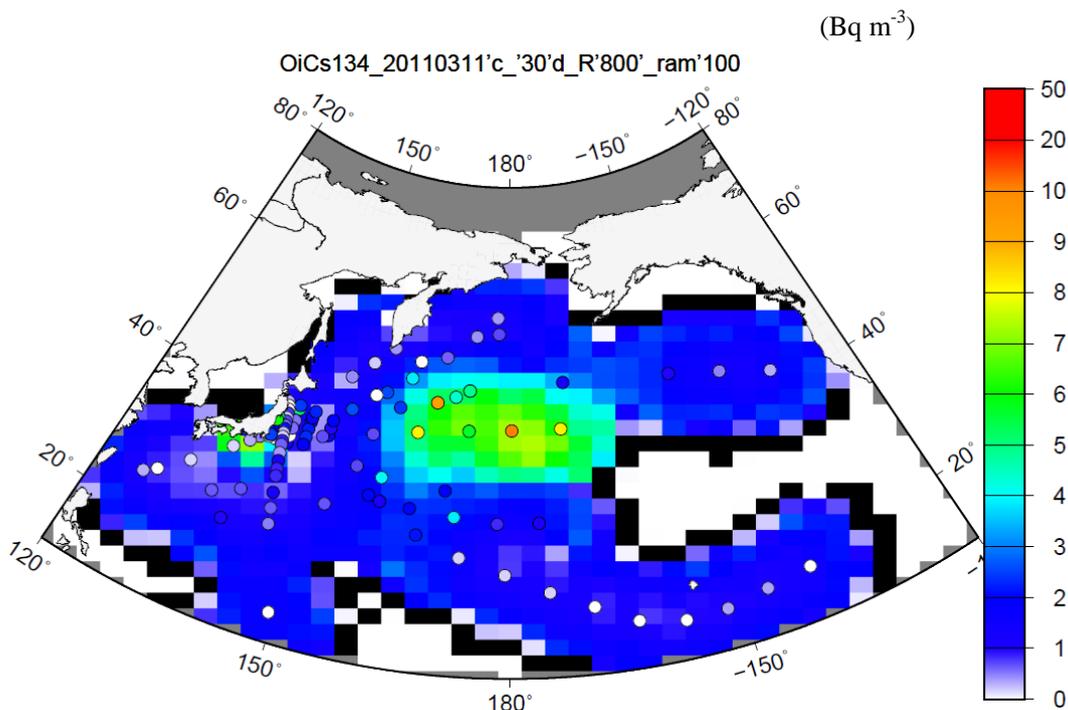


図2. 2012年8-12月に観測された ^{134}Cs 濃度の分布. ^{134}Cs は、2011年3月11日に壊変補正.

2012年8-12月には、経度160-210度、北緯35-45度の領域に、高濃度の放射性セシウムが存在していた。混合層深度を100mと仮定した ^{134}Cs 存在量は、2012年10月1日(データの間日)には、 ^{134}Cs 4.7 PBq、 ^{137}Cs 12.5 PBqであった。また、2011年3月11日時点に放射壊変補正した放射性セシウム存在量は、 ^{134}Cs 7.9 PBq及び ^{137}Cs 13 PBqであった。

FNPP1事故による放射性セシウムの海洋への放出量は15.2-18 PBqであり、そのうち大気からの沈着量は12-15 PBq (Aoyama et al., 2016)、海洋への直接漏洩量は 3.5 ± 0.7 PBq (Tsumune et al., 2012)であるといわれている。これらのことから、北太平洋へ注入された放射性セシウムの43-52%が海洋表層水に存在し、日本から東部北太平洋へ輸送されていることが見積もられた。残りの放射性セシウムについては、亜表層に放射性セシウム濃度の極大値があることから (Kumamoto et al., 2014)、中央モード水 (CMW) と亜熱帯モード水 (STMW) の沈み込みに伴って、海洋表層から内部へ輸送されたものと考えられている。Kaeriyama et al. (2016) は、2012年10-11月に行った観測から、STMWにおける放射性セシウム存在量は 4.1 ± 1.1 PBqと見積もっている。太平洋へ

の ^{134}Cs 放出量、表層水における存在量及び STMW 存在量を考慮すると、CMW に存在する ^{134}Cs は 3—6PBq 程度であると計算される。しかし、実際に放射性セシウム濃度の鉛直分布のデータは非常に少なく、観測データだけで海洋内部への沈み込み量を評価することは非常に難しい。今後、大気モデル(masingar など)や日本沿岸海洋変動予測システム再解析データ(JCOPE)を用いて、事故直後に大気から STMW や CMW へ沈着した放射性セシウム量を定量的に評価する。

最後に、FNPP1 事故以前に存在していた北太平洋における放射性セシウム(^{137}Cs)量の推定をおこなった。FNPP1 事故以前に存在していた ^{137}Cs の起源は、1950-1960 年代に行われた大規模大気圏核実験、1986 年に生じたチェルノブイリ事故であると言われている。上述したように、 ^{134}Cs の半減期は 2.06 年であることから、観測された ^{134}Cs は FNPP1 事故に由来するものと考えられている。FNPP1 事故時に大気中に放出された ^{137}Cs と ^{134}Cs の存在量は 1:1 であったと報告されていることを考えると (Saito et al., 2015)、北太平洋表層水における ^{137}Cs と ^{134}Cs 存在量の差分から大規模大気圏核実験由来の北太平洋表層水中の ^{137}Cs 存在量は約 5PBq であることが見積もられた。これは、FNPP1 事故によって北太平洋表層水の ^{137}Cs 量は約 1.6 倍増加したことを示唆している。

引用文献

- Akima, H.. *J. ACM*, 17,589-603,1970.
- Aoyama, M., Kajino, M., Tanaka, T.Y., Sekiyama, T., Tsumune, D., Tsubono, T., Hamajima, Y., Inomata, Y., T. Gamo. *J. Oceanogr.*, 72, 67, 2016.
- Inomata, Y., Aoyama, M., Tsubono, T., Tsumune, D., Hirose, K. *Environ. Sci.: Processes & Impacts*, 18, 126, 2016.
- Tsumune, D., Tsubono, M., Aoyama, M., Hirose, K., *J. Environ. Radioact.*, 111,100, 2012.
- Kumamoto, Y., Aoyama, M., Hamajima, Y., Aono, T., Koutestu, S., Murata, A., Kawano, T., *Sci. Rep.*, DOI10.1038/srep0246, 2016.
- Kaeriyama, H., Shimizu, Y., Setou, T., Kumamoto, Y., Okazaki, M., Ambe, D., Ono, T., *Sci. Rep.*, DOI 10.1038/srep22010, 2016.
- Saito, K., Tanihara, I., Fujiwara, M., Saito, T., Shimoura, S., Otsuka, T., Onda, Y., Hoshi, M., Ikeuchi, Y., Takahashi, F., Kinouchi, N., Saegusa, I., Seki, H., Takemiya, H., Shibata, T. *J. Environ. Radioact.*, 129, 308, 2015.

成果発表

① 論文発表

1. Inomata, Y., Ohizumi, T., Take, N., Sato, K., Nishikawa, M. Transboundary transport of anthropogenic sulfur in $\text{PM}_{2.5}$ at a coastal site in the Sea of Japan as studied by sulfur isotopic ratio measurement. *Science of Total Environment*, 553, 617-625, 2016.
2. Inomata, Y., Aoyama, M., Tsubono, T., Tsumune, D., Hirose, K. Spatial and temporal distribution

of ^{134}Cs and ^{137}Cs derived from TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident into the North Pacific Ocean by using optimal interpolation analysis. Environmental Science: Processes & Impacts, 18, 126-136, 2016.

3. Aoyama, M., Kajino M., Tanaka T. Y., Sekiyama T. T., Tsumune T., Tsubono T., Hamajima Y., Inomata Y., Gamo Y.: ^{134}Cs and ^{137}Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan: Part Two - Estimation of ^{134}Cs and ^{137}Cs inventories in the North Pacific Ocean, Journal of Oceanography 72, 1, 67-76, 2016.
4. Aoyama, M., Hamajima, Y., Inomata, Y., Oka, E.: Recirculation of FNPP1-derived radiocaesium observed in winter 2015/2016 in coastal regions of Japan. Applied Radiation and Isotopes, DOI: 10.1016/j.apradiso.2016.12.003, 2016.
5. Ohizumi, T., Take, N., Inomata, Y., Yagoh, H., Endo, T., Takahashi, M., Yanahara, K., Kusakabe, M. Long-term variation of the source of sulfate deposition in a leeward area of Asian continent in view of sulfur isotopic composition, Atmospheric Environment 140, 42-51, 2016.
6. 猪股弥生, 梶野瑞王, 佐藤啓市, 早川和一, 植田洋匡. 2000-2013年の日本における大気中ベンゾ[a]ピレン濃度の経年変動—トレンド解析—, 大気環境学会誌, 51, 111-123, 2016.

② 学会発表

- Estimate of radiocaesium derived FNPP1 accident in the North Pacific Ocean, Yayoi Inomata, Michio Aoyama, Takaki Tsubono, Daisuke Tsumune, and Masatoshi Yamada, EGU, 2017Apr
- Estimate of spatial and temporal variation of radiocaesium amount derived FNPP1 accident in the North Pacific Ocean, 猪股 弥生, 青山 道夫, 坪野 孝樹, 津旨 大輔, 山田 正俊, JpGU, 2017May

③ その他

なし

3Dプリンタと3Dスキャナを利用したガンマ線測定用基準線源の開発

氏名（所属） 齊藤敬（尚絅学院大学）

研究成果概要

① 研究目的

近年低価格化・高精度化が進んでいる3Dプリンタ・3Dスキャナを用い、任意形状の試料の放射能を正確に求めるためのガンマ線測定用基準線源を開発することを目的としている。

② 研究方法

3Dスキャナを用い、放射能を測定したい試料の容器をモデリング。その後放射能濃度が既知の天然の放射性物質を含んだ試薬等を混ぜ込んだ光硬化性樹脂を3Dプリンタでプリントアウトし、さらに幾何学的な条件をあわせ、ガンマ線スペクトロメトリを行うことで試料の放射能濃度を正確に測定した。

③ 結果・考察

模擬線源を用いて環境試料である北投石中のラジウム濃度の結果、過去の報告と比較的近い値が得られた。これよりSLAプリンタと天然放射性核種を用い、北投石中の放射能濃度の非破壊測定が可能となった。しかし、模擬線源の作成回数を増やす度にラジウム濃度が高く見積もられる傾向がみられた。本研究では、光硬化性樹脂と試薬 (Lu_2O_3) が均一に混合されていると仮定している。しかし、 Lu_2O_3 の比重が樹脂より大きいため、長時間樹脂を放置すると Lu_2O_3 が樹脂ボトルの下方に沈殿してしまった。よって、模擬線源の作成の際は樹脂ボトルなどをよく攪拌する等の工夫が必要となる。

成果発表

① 論文発表

② 学会発表

- ・ 3Dプリンタを利用した玉川温泉産北投石中の放射能の非破壊測定，日本温泉科学会第69回大会，2016年9月7日～10日，富山県庄川温泉。
- ・ 3Dプリンタと天然放射性核種を利用した環境試料測定用ガンマ線源の開発，2016日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会，2016年9月10日～12日，新潟大学五十嵐キャンパス。
- ・ 3Dプリンタと天然放射性核種を利用した環境試料測定用ガンマ線源の開発，第18回「環境放射能」研究会，2016年9月10日～12日，高エネルギー加速器研究機構。

③ その他

研究課題名 福島第一原子力発電所から ^{90}Sr の海洋への漏洩率の推定 および挙動解析

氏名 (所属) 津旨 大輔 (電力中央研究所)

研究成果概要

① 研究目的

福島原子力発電所事故により海洋に漏洩した ^{137}Cs の漏洩率の推定、および挙動の解析が行われている。これまでに公表されている ^{90}Sr 濃度データから求めた $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比のばらつきが大きいと、 ^{90}Sr の漏洩率の推定には不確実性が大きい。本共同研究では、これまでに公表されている $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の誤差を解析することによって、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の推定精度を上げ、2011年3月から海側遮水壁閉合の2015年10月26日までの期間を対象に、 ^{90}Sr の海洋中への漏洩率および挙動を明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

領域海洋シミュレーションによって得られた単位漏洩率に対する放射性物質濃度 ($(\text{Bq m}^{-3})/(\text{Bq day}^{-1})$) が得られていれば、次式で示すように、東京電力のモニタリングで得られた ^{137}Cs 濃度 (Bq m^{-3}) から、発電所からの ^{137}Cs の漏洩率 (Bq day^{-1}) を推定する (Tsumune et al., 2012; 2013)。

$$\text{漏洩率}(\text{Bq day}^{-1}) = \frac{\text{観測濃度}(\text{Bq m}^{-3})}{\text{単位漏洩時のシミュレーション濃度} \left(\frac{\text{Bq m}^{-3}}{\text{Bq day}^{-1}} \right)}$$

同様に、東京電力によってモニタリングされた ^{90}Sr 濃度や $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の観測結果を用い、発電所からの ^{90}Sr の漏洩率 (Bq day^{-1}) を推定する。

領域海洋モデルシステム (Regional Ocean Modeling System, ROMS) にトレーサ計算スキームを組み込んだモデルを福島沖合海域に適用した。シミュレーション領域 ($35^{\circ}20'\text{N}$ – $39^{\circ}40'\text{N}$, $140^{\circ}20'\text{E}$ – $147^{\circ}00'\text{E}$) に対して、水平解像度は約 1 km ($1/120^{\circ}$) とし、鉛直解像度は s 座標 (海表面から海底までを、水深に関わらず同数の層で区切る座標系) で 30 層とした。海底地形は、太平洋では水深が急激に深くなっており 2000 m を

超える地点があるが、シミュレーション時間短縮化を図るために 1000 m までの水深とした。

外洋における境界条件には、リアルタイムに更新されている海洋の 1 日毎の再解析データ(JCOPE2; Japan Coastal Ocean Prediction Experiment 2; Miyazawa et al., 2009)の結果(水温、塩分、海面高度)をシミュレーション格子に内挿して用いた。さらに、外洋における中規模渦などの複雑な挙動を再現するため、シミュレーション結果を JCOPE2 による水温および塩分の再解析結果に緩和させた。なお、緩和係数は、1 日の逆数とした。福島第一原子力発電所事故による海洋中の放射性物質濃度評価において、福島沖では潮汐の影響が小さいことが確認できたため、潮汐による駆動力は考慮していない。

海洋中の放射性核種濃度評価手法は、流動場の評価結果を用いて、核種の崩壊を考慮した 3 次元移流拡散方程式を解くものである。

③ 結果・考察

(ア) 福島第一原子力発電所事故の再現計算による ^{137}Cs の漏洩率の推定結果

東京電力による ^{137}Cs のモニタリングデータと領域海洋モデルによるシミュレーションを組み合わせ、福島第一原子力発電所事故による海洋への直接漏洩率(Bq/day)を推定した。図 1 に 2011 年 3 月 1 日から海側遮水壁を閉合した 2015 年 10 月 26 日までの直接漏洩率の推定結果を示す。2011 年 3 月 26 日に直接漏洩が開始し、最初の 12 日間は 2.2×10^{14} Bq/day であった。その後、指数関数的に減少し、海側遮水壁閉合の直前では、 10^9 Bq/day のオーダーまで低下した。特に 2011 年 11 月から約 4 年間に渡って。見かけの半減期 346 days の一定割合で指数関数的に減少している。それぞれの期間の漏洩率はそれぞれ以下の回帰式で表される。

$$[1] 2011/3/26-4/6; 2.20 \times 10^{14}$$

$$[2] 2011/4/7-4/26; 2.20 \times 10^{14} e^{(-0.236t)}$$

$$[3] 2011/4/27-6/30; 1.96 \times 10^{12} e^{(-0.026t)}$$

$$[4] 2011/7/1-2011/11/3; 3.62 \times 10^{11} e^{(-0.013t)}$$

$$[5] 2011/11/4-; 7.04 \times 10^{10} e^{(-0.002t)}$$

単位は Bq/day で、t は期間開始からの日数を示す。2015 年 10 月 26 日までに漏洩量は 3.6 ± 0.7 PBq と推定された。初期の ^{137}Cs 濃度の観測結果とシミュレーション結果の比較から誤差を 20% と推定した。

図 2 に福島第一原子力発電所近傍における観測結果(5,6 放水口と南放水口)とシ

シミュレーション結果の比較を示す。シミュレーション結果は、観測結果の短期的な変動幅も含め、高い再現性を示すことが分かった。シミュレーションによる年間平均¹³⁷Cs濃度の観測結果に対する誤差は、2013年では21%、2014年では11%、2015年では24%であった。これは、初期データから推定した漏洩量の推定結果の誤差と整合的であった。

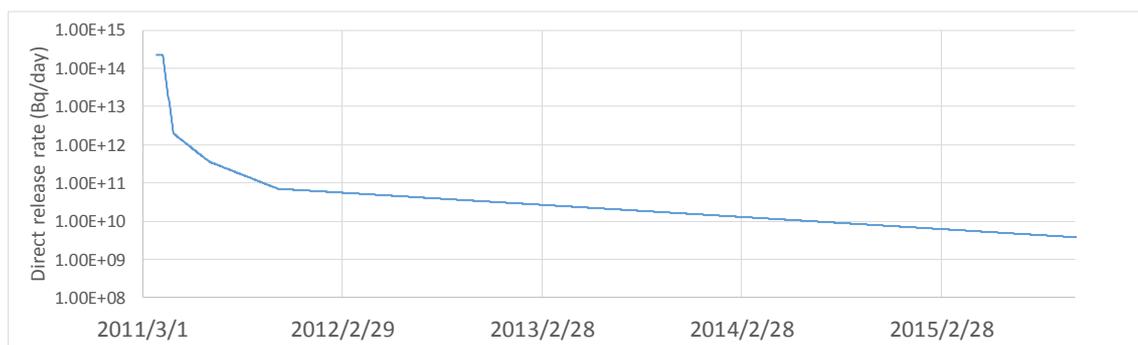


図1 直接漏洩率の推定結果

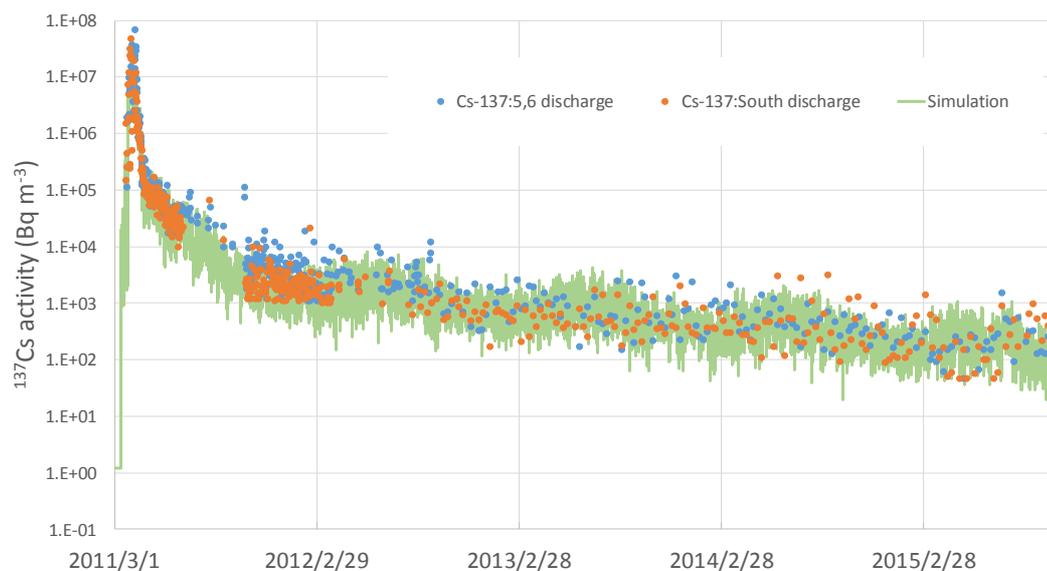


図2 福島第一原子力発電所近傍における観測結果（5,6放水口と南放水口）とシミュレーション結果の比較

(イ) ⁹⁰Srの漏洩率の推定結果

福島第一原子力発電所近傍における⁹⁰Sr濃度の観測結果は、2011年4月17日から存在する。図3にその時系列変化を示す。観測結果は1ヶ月に1回程度であり、¹³⁷Csと比べると頻度が少ない。5,6放水口と南放水口における観測結果の差は、¹³⁷Csと比べると大きく、2桁程度になる場合もあった。2013年7月1日までは、ばらつきは大

きいものの ^{90}Sr 濃度の変化は少なく、回帰式の傾きはなく $3.9 \times 10^{10} \text{ Bq/day}$ で一定と推定できる。その後、指数関数的に減少し、2013年12月20日以降の回帰式は再び $2.9 \times 10^9 \text{ Bq/day}$ で一定となった。指数関数的に減少する期間の回帰式は、以下となる。

$$[1] 2013/7/1-12/20; 3.9 \times 10^{10} e^{(-0.015t)}$$

初期の漏洩率は、2011年3月26日から、 $3.9 \times 10^{10} \text{ Bq/day}$ で一定となる4月30日まで、 ^{137}Cs の漏洩率と比例関係にあると考えた。その際の、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は、西原ら(2012)の推定値 0.05 を用いた。

^{90}Sr 濃度の回帰式と、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比によって、2011年3月2日から、2015年10月26日までの ^{90}Sr の漏洩率の時系列変化を求めた。その結果、 ^{90}Sr の漏洩率は、 $1.1 \times 10^{13} \text{ Bq/day}$ から $2.9 \times 10^9 \text{ Bq/day}$ まで低下することが分かった。また ^{90}Sr の漏洩量は、2015年10月26日までで 210 TBq と推定された。 ^{137}Cs と同じ手法を用いているため少なくとも 20% の誤差を含む。加えて、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の誤差も含むため、推定誤差は 20% よりも大きくなると考えられる。より適切な誤差の推定のためには、東京電力だけではなく、今後、他機関による ^{90}Sr 濃度の観測結果を参照する必要がある、今後の課題となる。

また、2015年10月26日時点での ^{90}Sr の漏洩率は ^{137}Cs とほぼ同等であり、沿岸行きの挙動も ^{137}Cs と同様である。すなわち、検出可能な範囲は福島沿岸域に限定的であることが分かった。

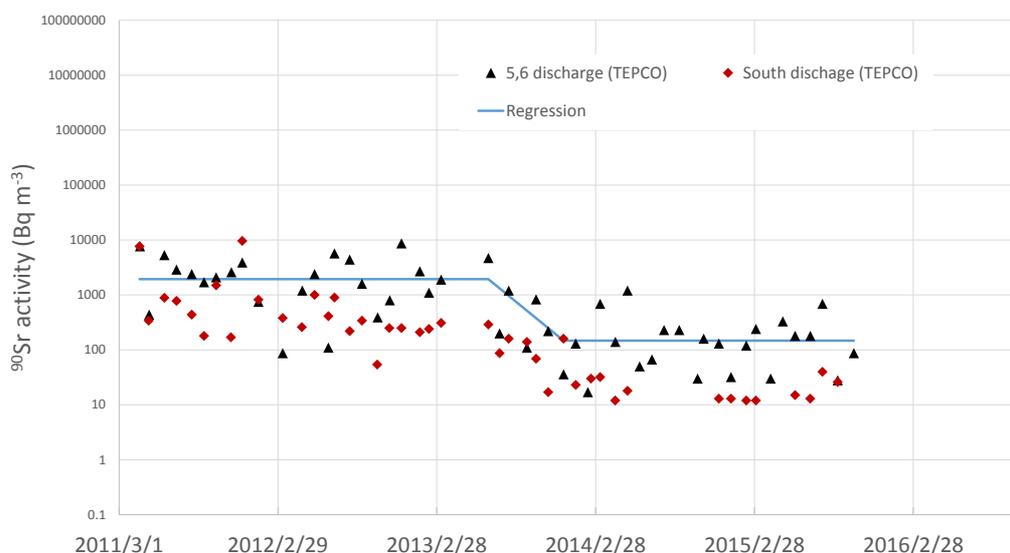


図 3 福島第一原子力発電所近傍における ^{90}Sr 濃度の観測結果 (5,6 放水口と南放水口)

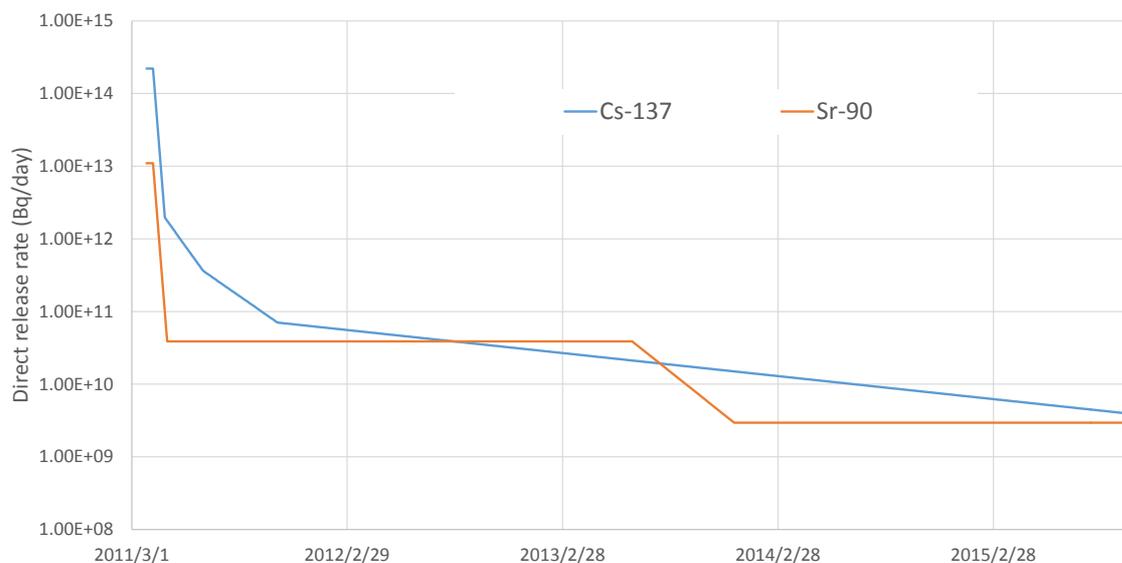


図4 ^{90}Sr と ^{137}Cs の直接漏洩率の推定結果

参考文献

- 西原健司, 山岸功, 安田健一郎, 石森健一郎, 田中究, 久野剛彦, 稲田聡, 後藤雄一, 福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出, 日本原子力学会和文論文誌, 11, 13-19, 2012.
- Miyazawa, Y., Zhang, R., Guo, X., Tamura, H., Ambe, D., Lee, J-S., Okuno, A., Yoshinari, H., Setou, T., Komatsu, K.: Water mass variability in the western North Pacific detected in a 15-year eddy resolving ocean reanalysis, *Journal of Oceanography*, 65, 737-756, 2009.
- Tsumune, D., T. Tsubono, M. Aoyama, K. Hirose, Distribution of oceanic ^{137}Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model, *Journal of Environmental Radioactivity*, 111, 100-108, 10.1016/j.jenvrad.2011.10.007, 2012.
- Tsumune, D., T. Tsubono, M. Aoyama, M. Uematsu, K. Misumi, Y. Maeda, Y. Yoshida, and H. Hayami, One-year, regional-scale simulation of ^{137}Cs radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *Biogeosciences*, 10, 5601-5617, doi:10.5194/bg-10-5601-2013, 2013.

成果発表

① 論文発表

- Tsumune, D., T. Tsubono, K. Misumi, Y. Yoshida, Estimation of the radiation dose equivalent for the hypothetical submergence of a sea-transport package of low-level radioactive waste, *Journal of Nuclear Science and Technology*, <http://dx.doi.org/10.1080/00223131.2017.1299647>, 2017.
- Tateda, Y., D. Tsumune, K. Misumi, T. Aono, J. Kanda, T. Ishimaru, Biokinetics of radiocesium depuration in marine fish inhabiting the vicinity of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant *Journal of Environmental Radioactivity*, 1-7, 2017, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.02.028>.
- Tateda, Y., D. Tsumune, T. Tsubono, K. Misumi, M. Yamada, J. Kanda, T. Ishimaru, Status of ^{137}Cs contamination in marine biota along the pacific coast of eastern Japan derived from a dynamic biological model two years simulation following the Fukushima accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 151, 495-501. 2016.
- Tsubono, T., K. Misumi, D. Tsumune, F. O. Bryan, K. Hirose, M. Aoyama: Evaluation of radioactive cesium impact from atmospheric deposition and direct release fluxes into the North Pacific from the Fukushima Daiichi nuclear power plant, *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, Volume 115, 10–21, 2016, doi:10.1016/j.dsr.2016.02.019.
- Inomata, Y., M. Aoyama, T. Tsubono, D. Tsumune and K. Hirose, Spatial and temporal distributions of ^{134}Cs and ^{137}Cs derived from the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in the North Pacific Ocean by using optimal interpolation analysis, *Environmental Science Processes and Impacts*, 18, 126-136, DOI: 10.1039/c5em00324e, 2016.
- Aoyama, M., Y. Hamajima, M. Hult, M. Uematsu, E. Oka, D. Tsumune, Y. Kumamoto, ^{134}Cs and ^{137}Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan: Part One - Surface pathway and vertical distributions, *Journal of Oceanography*, DOI:10.1007/s10872-015-0335-z, 2016.
- Aoyama, M., Kajino M., Tanaka T. Y., Sekiyama T. T., Tsumune T., Tsubono T., Hamajima Y., Inomata Y., Gamo Y.: ^{134}Cs and ^{137}Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan: Part

Two - Estimation of ^{134}Cs and ^{137}Cs inventories in the North Pacific Ocean, Journal of Oceanography 72, 1, 67-76, 2016.

② 学会発表（主著のみ）

津旨 大輔ら、福島第一原子力発電所事故により海洋に漏洩した ^{137}Cs の 4 年半の挙動、Japan Geoscience Union Meeting 2016, 幕張メッセ, 2016/5/23

津旨 大輔ら、福島第一原子力発電所事故による放出した放射性物質の沿岸域における 5 年間の挙動、第 53 回アイソトープ・放射線研究発表会、東京大学、2016/7/7.

Tsumune, D., et al., Five-years, regional-scale simulation of ^{137}Cs radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Goldschmidt 2016, パシフィコ横浜, 2016/7/1

津旨 大輔ら、福島第一原子力発電所事故で放出された放射性物質の沿岸域における 5 カ年の挙動の再構築、第 24 回地球環境シンポジウム、首都大学東京、2016/8/31

Tsumune, D., et al., Estimation of the radiation dose equivalent for the hypothetical submergence of a sea-transport package of radioactive materials by the state-of-the-arts oceanic dispersion model, PATRAM2016, The 18th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials, 2016/9/23

③ その他

可搬型液体シンチレーション計数装置を用いたラドン濃度測定法の開発 と北海道内の温泉・鉱泉水中ラドン濃度と環境動態研究

氏名（所属）真田哲也（北海道科学大学）

研究成果概要

① 研究目的

2011年3月に起こった東京電力福島第一原子力発電所事故以降、多くの国民が放射線被ばくによる不安を抱いている。我々は毎日の生活においても自然放射線源から被ばくを受けており、その中でもラドンからの線量寄与が大きい。ラドンは主に地殻からもたらされ、特に温鉱泉水はその空隙を通り自噴あるいは動力により地表に揚湯されており、地殻との相互作用によりラドンが多く含まれることがある。

本研究では、可搬型液体シンチレーション計数装置等を用いたラドン濃度測定法の開発を行い、その手法を用いて日本でも有数の温泉を有する北海道内の温泉・鉱泉水中のラドン濃度を測定し、温泉水の湧出機構等の環境動態を把握する。

② 研究方法

過去の調査結果（青柳ら，北海道衛生研究所報，53，55-57，2003）から道内の温泉で最も高いラドン濃度を示した長万部町の二股ラジウム温泉において、温鉱泉水中のラドン濃度を可搬型液体シンチレーション計数装置等を用いて測定を行った。温鉱泉水試料をシリンジで10 mL採取し、あらかじめ10 mLのミネラルオイルシンチレータを入れた20 mLのガラスバイアルに静かに注入後、30秒間振とうして抽出した。静置後、放射平衡を待った後（3.5 h以上）、可搬型液体シンチレーションカウンタ（Hidex社製 Triathler）で3600秒間測定し積算計数率は積分バイアス法によって求めた。ラドン濃度 C_0 (Bq L^{-1}) は次式より求めた。

$$C_0 = (A_0 - B_0) \times \exp\left(\frac{0.693 \times t_e}{T}\right) \times \frac{1}{f} \times \frac{1}{V}$$

ここで、 A_0 は試料の積算計数率 (cps)、 B_0 はバックグラウンドの積算計数率 (cps) である。また、 t_e は経過時間 (s)、 T はラドンの半減期、 f は計数率からラドンへの換算係数 (4.5 cps Bq^{-1})、 V は試料量 (10^{-2} L) である。精度管理の目的で核融合科

学研究所の低バックグラウンド型液体シンチレーション計数装置 Quantulus を用いて比較測定を行い、さらに複数試料採取し並行分析も行った。

③ 結果・考察

二股ラジウム温泉の鉱泉水（観音のお湯）中のラドン濃度の範囲は $150\text{--}217\text{ Bq L}^{-1}$ 、算術平均値は $196 \pm 10.4\text{ Bq L}^{-1}$ であり、採取時期によりラドン濃度の変動が確認された。並行分析した結果は相対標準偏差が 4.3%（2月14日採取試料）であり、11月6日に採取した試料は Quantulus の結果とよく一致した。また、温泉水は検出下限値以下 ($\leq 2\text{ Bq L}^{-1}$) であった。

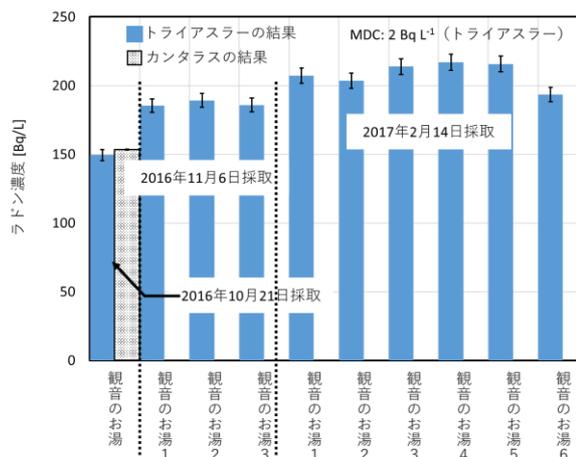


図 二股ラジウム温泉鉱泉水中ラドン濃度

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

日本保健物理学会第50回研究発表会、平成29年6月28-30日、大分市（申込み済）

③ その他

なし

福島沿岸域における高線量粒子の海洋生態系影響に関する研究

神田穰太（東京海洋大学）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発の事故により放出された高い放射能をもつさまざまな性状の粒子（以下、高線量粒子と呼ぶ）が原発周辺および遠隔地の陸上から発見されているが、海洋においてはそのような報告はほとんどない。本研究では、福島沖で採集されたさまざまな試料から高線量粒子を探索し、それらの粒子を観察・分析することにより、高線量粒子の性状を明らかにするとともに、Cs-137の海洋への拡散経路を明らかにすることを目的とした。

② 研究方法

福島第1原発事故後に、東京海洋大学練習船「海鷹丸」、「神鷹丸」による福島沖調査、および漁船観測により原発周辺から採集された、数多くの海底堆積物、懸濁粒子、セディメントトラップ試料、プランクトンネット試料のうち、ゲルマニウム半導体検出器により、高濃度の放射性セシウムを含むことが確認された試料について、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィにより、高線量粒子の存在の有無を明らかにした。特に高い放射能をもつ高線量粒子を含む試料について、分割と、GMサーベイメーターあるいはオートラジオグラフィによる検出を繰り返すことにより、高線量粒子の単離を行い、EPMA および SEM-EDX による観察と元素分析を行った。また、懸濁粒子に関してはオートラジオグラムの高線量粒子により黒化したスポットの濃度（Gray Value）と面積（Area）の積（GVA）が粒子の放射能（Cs-134+Cs-137）に比例することを検証し、両者の関係を直線回帰して個々の粒子の放射能を求め、さらに試料全体の放射能に対する高線量粒子の寄与を見積もった。

③ 結果・考察

2011年7月に、いわき市沖で採集したプランクトン試料中に Cs-137 濃度が約 700Bq/kg-wet と非常に高いものが存在した。イメージングプレートを用いて、試料中の高放射能粒子を探索したところ、約 2mm 角の繊維強化プラスチックが該当する粒子であることが判明した。このプラスチックを細分化し、さらに探索したところ、20 μ m の微小粒子にたどり着いた。EPMA で元素をマッピングしたところ、粒子上の 2 μ m

×10 μm の部分にセシウムが分布していることが明らかになった。この微小範囲を、SEM-EDX を用いて精査したところ、セシウム数%の他、ケイ素、鉄などを含有する 4 つの粒子から構成されていることが明らかとなった。同様の繊維強化プラスチック片（放射性であるものと、そうではないものが存在）は、同時期に得られたプランクトン試料中に多数見られることから、原子炉周辺に配置された断熱材の一部に放射性セシウムを含む粒子が固着し、水素爆発により海洋に飛散したものと推測された。

2016 年 10 月に小名浜沖約 10km、水深 60m の地点でコアサンプラーにより採集された堆積物から、1 粒で約 1 万 Bq の極めて高濃度の Cs-137 を含む粒子（約 200 μm 角）が単離された。SEM-EDX による観察では、この粒子は多孔質でカルシウム含量が高いコンクリート様の物体であり、粒子の広い範囲にセシウムが分布すること、原発近傍の陸上で採集される粒子の一つに類似していることから、原発周辺の陸上から流入したか、或いは海に直接飛散した粒子が、流れにより運搬されて堆積物中に混ざったものと推定された。

2014 年 1 月から 2015 年 6 月の間のほぼ毎月、第 1 原発から約 6km 南の熊川沖の定点において、海水の大量ろ過（0.45 μm メンブレンフィルター）により得られた懸濁物は、平均して約 1,500 Bq/kg-dry の高い Cs-137 濃度を持ち、期間中有意な低下は見られなかった。この試料をイメージングプレートで解析したところ、多くについて高線量粒子が認められ、各月の試料全体の放射能に対するそれらの寄与率は 15~95% であった。海水の Cs-137 濃度は著しく低下しており、新たな高線量粒子が海中で形成されたとは考えられないため、これらの粒子は、河川等から継続的に流入しているものと推定された。

以上のように、海洋で得られたさまざまな試料中に、高線量粒子が認められた。今後は、さらに多くの粒子を単離して性状を明らかにし、形成過程や海域への移行経路を明らかにする予定である。

成果発表

① 論文発表

Fukuda M, Aono T, Yamazaki S, Nishikawa J, Otosaka S, Ishimaru T, Kanda J (2017)

Dissolved radiocaesium in seawater off the coast of Fukushima during 2013–2015. J

Radioanal Nucl Chem311:1479–1484

Ikenoue T, Takata H, Kusakabe M, Kudo N, Hasegawa K, Ishimaru T (2017) Temporal

variation of cesium isotope concentrations and atom ratios in zooplankton in the Pacific off the east coast of Japan. *Sci Rep.* 2017 Jan 4;7:39874. doi: 10.1038/srep39874.

石丸 隆・伊藤友加里・神田穰太 (2017) 放射性物質と海洋生態系.沿岸海洋研究, 54,143-149

Tateda Y, Tsumune D, Misumi K, Aono T, Kanda J, Ishimaru T. (2017) Biokinetics of radiocesium depuration in marine fish inhabiting the vicinity of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. *J Environ Radioact.* 166(Pt 1):67-73. doi: 10.1016/j.jenvrad.2016.02.028.

Tateda Y, Tsumune D, Tsubono T, Misumi K, Yamada M, Kanda J. and Ishimaru T. (2016). Status of ¹³⁷Cs contamination in marine biota along the Pacific coast of eastern Japan derived from a dynamic biological model two years simulation following the Fukushima accident. *Journal of Environmental Radioactivity.*

② 学会発表

石丸 隆¹・伊藤友加里¹・大槻まゆみ¹・神田穰太¹・小川展弘²・津田 敦²
(¹東京海洋大学、²東京大学大気海洋研究所)

福島沖で採集したプランクトン試料の放射能濃度と高セシウム線量粒子.
日本海洋学会秋季大会、2016年9月13日、鹿児島大学

貫井 郁・伊藤 友加里・宮崎 奈穂・石丸 隆・神田穰太 (東京海洋大学)
海産珪藻による放射性セシウムの取り込み. 日本海洋学会秋季大会、2016年9月13日、鹿児島大学

③ その他

NHK 総合TV 復興サポート 石丸・神田出演「放射能汚染からの漁業再生」
2016年9月18日

**Assessment of long-lived radionuclides (^{129}I , ^{236}U and Pu isotopes)
in the coast off Japan 5 years after
the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident**

Núria Casacuberta Arola (ETH Zürich)

Summary of the Project

The goal of this research, as a result of a collaborative effort between Tsukuba University and ETH Zürich, was to study the presence and distribution of long-lived artificial radionuclides (^{236}U , Pu isotopes and ^{129}I) in the coast off Japan, 5 years after the FDNPP accident. The main goal will be nourished of the following specific objectives: i) improve the radiochemistry of actinides; ii) assess the impact of old and new releases of artificial radionuclides to the coast off Japan and; iii) use the new source of radionuclides as ocean tracers to the Pacific Ocean.

In October 2016 a cruise to the Pacific Ocean took place onboard R/V Shinsei Maru. Previous to the cruise, a sampling surveillance along the coast off Fukushima was performed. Both sampling campaigns had the specific aim to: i) see if there are still ongoing releases of artificial radionuclides to the Pacific Ocean from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant; ii) study the role of subgroundwater discharge as a source of artificial radionuclides to the Pacific Ocean; and iii) see if beach sands may be a source of artificial radionuclides to the coast off Japan. A total of 30 beach samples and 30 seawater samples were collected and are currently now being analyzed by Accelerator Mass Spectrometry at ETH Zürich. Final results are expected to be ready in the following weeks.

Tsukuba University, and in particular the group of Dr. Aya Sakaguchi, helped on the organization and logistics of both the beach sampling and the off-shore expedition (goals (ii) and (iii), first paragraph). They provided with the necessary material to take the samples and provided supporting laboratory material for the ^{236}U radiochemistry (goal (iii), first paragraph). Once all the data will be ready this will result into a joint publication.

The resulting data of this project will be part of an European project COMET-FRAME “the impact of recent releases from the Fukushima nuclear accident on the marine environment”, where a time series of artificial radionuclide releases from Fukushima Dai-ichi nuclear power plant has already been done since 2013. Some of the publications are included below.

List of Publication

- Casacuberta, N., Christl, M., Buessler, K.O., Lau, Y., Vockenhuber, C., Castrillejo, M., Synal, H.-A. & Masqué, P. Potential releases of ^{129}I , ^{236}U and Pu isotopes from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plants to the ocean during 2013 to 2015. Submitted to *Environmental Science & Technology* (March 2017).
- Castrillejo, M., N. Casacuberta, C. F. Breier, S. M. Pike, P. Masqué and K. O. Buessler (2016). "Reassessment of ^{90}Sr , ^{137}Cs , and ^{134}Cs in the Coast off Japan Derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident." *Environmental Science & Technology* **50**(1): 173-180.

Developing RFID technology for monitoring contaminated soil

Anthony Parsons (University of Sheffield)

Summary of the Project

Background and Aim

RFID (Radio-frequency identification) tags offer a potential method for tracking the movement of soil particles on hillslopes, and thereby the movement of contaminants adhered to these soil particles. This technology would have its greatest value if remote interrogation of the location of RFID-tagged particles were possible. This project aims to assess the potential for such interrogation.

Methods and Experiment Design

We manufactured 100 tagged particles with a median diameter of 6 mm in which the RFID tags were coated in a clear silicone, in order to make them roughly spherical in shape, and then coated in bronze powder to give them an overall density similar to that of quartz particles. For ease of identification, they were further coated in fluorescent powder (see Parsons *et al.*, 2014).

We constructed a plot 11.5 m long by 1.0 m wide with a surface 'soil' comprising gravel particles (median diameter 2.86 mm). Onto this plot we placed the tagged particles in a 5*20 array at a 50 mm spacing.

Trials with an RFID reader showed that the tags could be read from a distance of about 100 mm. We established a grid over the area of the tagged particles and sited the RFID reader at 25-mm spacings in a rectangular grid, recording all the RFIDs that could be detected from each location.

The plot was then subject to 22 minutes of rain at 200 mm/hr. Runoff was collected volumetrically in 1-minute samples. RFIDs leaving the plot were collected with the runoff samples, and those remaining on the plot were located using the same grid as in the pre-rainfall survey.

Preliminary results

Analysis of the data from the RFID reader shows that each tagged particle was identified from 3-5 locations on the grid. We will use these locations, and the neighbouring ones from which a given particle was not identified to determine individual read distances (which vary from particle to particle depending on its orientation and differences in manufacture). Using this distance, we will be able to resect onto the location of each particle. This result provides a proof-of-concept of the approach.

Future developments

The ability to read the locations of tagged particles without disturbing them provides the potential for long-term monitoring of soil particles. The approach developed in this experiment has two shortcomings. First, the manufactured tagged particles are large compared to soil particles that are of interest in assessing movement of contaminants, and secondly their read distance is relatively small. The latter shortcoming is not a problem for small-scale research experiments, where the experimental design employed here could be used. But it is a problem for any plans for large-scale routine monitoring. It is likely that with improved antenna technology the read distance will be improved, but any such improvement is likely to be at the expense of further miniaturization for the RFID tags, thereby exacerbating the former shortcoming.

Understanding of the relationship between particle size and transport distance is relatively poor, so that size-dependent predictions of soil erosion remain weak (see Wainwright *et al.*, 2008). Parallel developments in individual particle tracking during events (e.g. Hardy *et al.*, 2017) should enable improved particle-size predictions that would allow the scaling of the movement of large RFID-tagged particles to that of smaller soil particles.

References

- Hardy RA, James MR, Pates, JM, Quinton JN. 2017. Using real time particle tracking to understand soil particle movements during rainfall events. *Catena* **150**: 38-38.
- Parsons AJ, Onda Y, Noguchi T, Patin J, Cooper J, Wainwright J, Sakai N. 2014. The use of RFID in soil-erosion research. *Earth Surface Processes and Landforms* **39**: 1693-96.
- Wainwright J, Parsons AJ, Mueller E, Brazier R, Powell DM, Fenti B. 2008. A transport-distance approach to scaling erosion rates: 3. evaluating scaling characteristics of MAHLERAN. *Earth Surface Processes and Landforms* **33**: 1113-1128.

List of Publication

Tracing the sources of contaminated sediment stored in dam reservoirs of Fukushima coastal catchments

Olivier EVRARD LSCE (Institute)

Summary of the Project

Sediment contaminated with radionuclides is redistributed in Fukushima coastal catchments draining the main radioactive pollution plume (i.e. Mano, Niida, Ota, Odaka and Ukedo Rivers catchments). This dispersion is mainly controlled by the occurrence of heavy rainfall including typhoons and land cover change that may increase soil exposition to rainfall (e.g., remediation works). Radioactive contamination of sediment transiting these coastal rivers strongly decreased between 2011-2015, because of the combined impact of erosion triggered by typhoons and decontamination works. However, a significant quantity of contaminated sediment is stored in dam reservoirs of the region. The objective of this project is to investigate the sources of contaminated material that is stored in a dam reservoir representative of those found in the region (i.e. Mano Dam).

The source of contaminated sediment (i.e. cropland, woodland and subsoil) deposited in the Mano Dam reservoir was determined based on the analysis of carbon and nitrogen stable isotope ratios ($\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$), total organic carbon (TOC) and total nitrogen (TN) concentrations in four sediment cores collected across the reservoir. The main source of sediment was shown to be cropland ($48\pm 7\%$), whereas the contributions of woodland ($27\pm 6\%$) and subsoil ($25\pm 4\%$) were lower, although not negligible. These results show that the ongoing decontamination of cropland in the Fukushima region should lead to a rapid decrease of the contaminated sediment supply to the reservoirs. In contrast, the supply of contaminated material from forests should be further investigated in the future.

List of Publication

Huon, S., Hayashi, S., Laceby, J.P., Tsuji, H., Onda, Y., Evrard, O. Sources of radiocesium contaminated particulate matter deposited in a reservoir after the Fukushima accident. *Agriculture, Ecosystems & Environment* (submission expected in April 2017).

Interdisciplinary Project on Environmental Transfer of

Radionuclides: number FY2016

Potential impact of cross contamination in litter bags degradation in situ experiment

COPPIN IRSN

Summary of the Project

The target of this study was the modelling of the ^{137}Cs flux from the canopy to soil mineral layers in a Japanese broadleaves forest (*Q. serrata*/Konara oak) contaminated by the FDNPP fallouts. It aimed to propose an operational model in order to describe the dynamic of ^{137}Cs in litter and soil mineral layers. This study was handled through three complementary paths: 1) Estimating the ^{137}Cs fluxes in litter layers during the degradation process, 2) Estimating the ^{137}Cs fluxes in the soil mineral layers, 3) Acquiring a set of measurable parameters that characterize these fluxes over time. A part of the project is already done in another collaborative project (AMORAD). However some information was missing to completely modelling all the processes occurring in the transfer of contamination between the forest floor and the soil : the presence of contaminated understory could generate a cross contamination with litter really coming from trees, and the following of fresh leaves concentration on trees, to extrapolate results over years, could also give interesting information.

Concerning the main project (AMORAD Project, initially N. Loffredo Post-doctoral position followed from October 2016 by Momo Kuriyara after N. Loffredo resignation) the system studied can be described by the following fluxes: (i) input of ^{137}Cs by litterfall/throughfall, (ii) output of ^{137}Cs by litter degradation to underlying layers, (iii) distribution of ^{137}Cs on mobile and non-mobile soil fractions.

Four litter degradation designs were experimented: 1) non-contaminated litter on contaminated soil, 2) contaminated litter on non-contaminated soil, 3) non-contaminated litter on non-contaminated soil and 4) contaminated litter on contaminated soil. The litter bags are collected frequently and the Konara oak stand is located in Kawamata.

For this project the objective was to estimate the potential impact of cross contamination due to contaminated understory and potential fresh leaves fallen.

As in AMORAD we observed that understory cross contamination seems negligible (no understory growth in the litter bags location) this project was focused on the cross contamination by fresh leaves fallen.

Based on the results measured on non-contaminated litter bags deployed on December 2014 (figure 1), we observed an increase of the ^{137}Cs surfacic activities in the non-contaminated litter bags (condition D) mainly in the autumn period (Figure 2). The increase of litter bags activity can be explained by a canopy depuration flux due to throughfall or litterfall.

To determine if the ^{137}Cs increase observed in the litter bags is due to canopy depuration (throughfall or litterfall) 15 samples of fresh leaves were sampled by University of Tsukuba (Hiroaki Kato) in august 2016. The fresh leaves were dried and store until December 2016. In December 2016 the samples were crushed and packed to be sending to IRSN (France) to be analyzed. The analyses of the samples received in February 2017 are under progress. By using the fresh leaves litterfall and throughfall concentrations and the weight fluxes it will be possible to determine which process is the main contributor to the litterbags contamination. These calculations will be done when the fresh leaves samples measurements will be finished.



A condition : contaminated litter (L), non-contaminated organic fragmented layer (OF) and soil (S)

B condition : non-contaminated L, OF and S.

C condition : contaminated L, OF, S

D condition : non-contaminated L, contaminated OF and S.

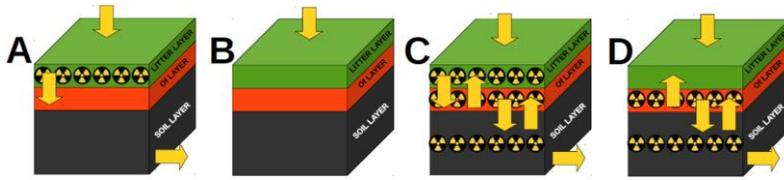


Figure 1 : Litter bags installation with the detail of the different conditions

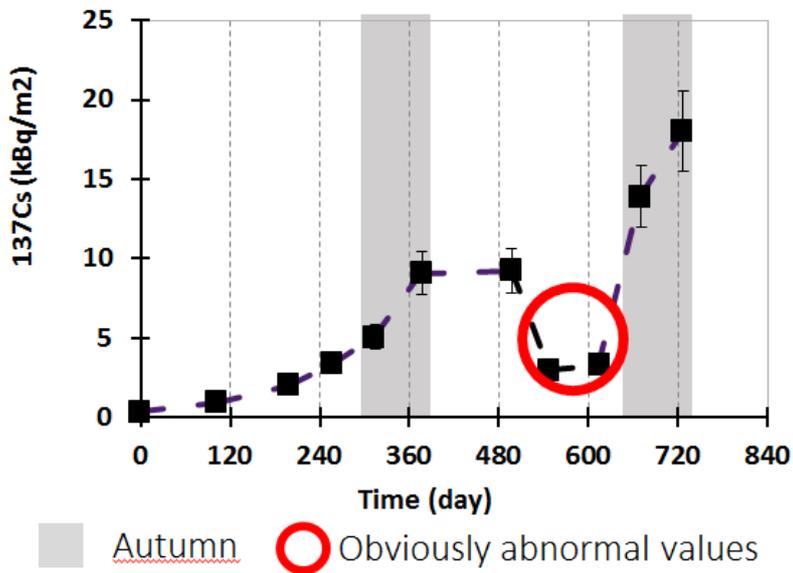


Figure 2 : Evolution with time of ^{137}Cs surfacic activity for the initially non contaminated litter bags (condition D)

List of Publication

Coppin, F., Hurtevent, P., Loffredo, N., Simonucci, C., Julien, A., Gonze, M.-A., Nanba, K., Onda, Y. and Thiry, Y., 2016. Radiocaesium partitioning in Japanese cedar forests following the “early” phase of Fukushima fallout redistribution. *Scientific Reports*, 6: 37618.

M. Kurihara et al. (in preparation) Cs leaching processes on forest floors

Determining the pathway and quantity of soil radioactive materials losses at plot and catchment scales

Qing Zhu (Nanjing Institute of Geography and Limnology, CAS)

Jun Asanuma (University of Tsukuba, CRiED)

Wenchao Ma (University of Tsukuba, CRiED)

Summary of the Project

(1) Field experiment

In 2016, soil moisture automatic monitoring and soil water solution collecting system has been installed in Nasu, Tochigi Prefecture (Fig. 1a). A soil profile has been opened in the center of a woodland (Fig. 1b,c). The soil morphological features have been carefully described based on this soil profile.

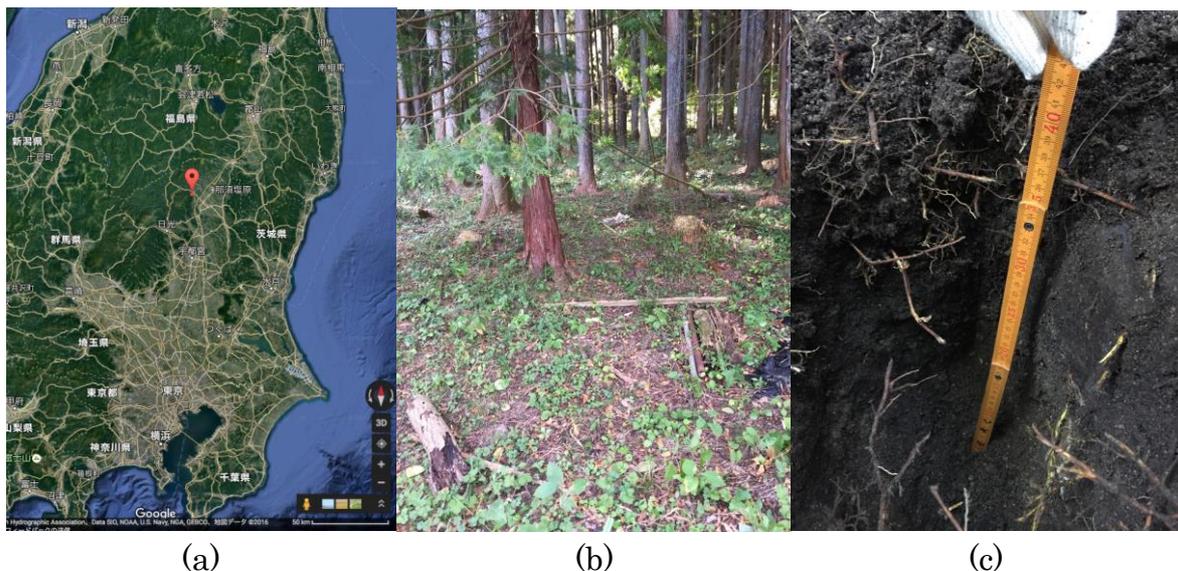


Fig. 1 Location of the study site

Soil samples were collected at this site and soil texture and bulk density were analyzed. The EC-5 sensors (Decagon Devices Inc) were installed at 10-, 20- and 30-cm depths to collect soil moisture at 5-min interval (Fig. 2a). The ECRN-100 rain gauge (Decagon Devices Inc) were also installed to collect the precipitation data at 5-min interval (Fig. 2b). The EM50 datalogger was used to record the soil moisture and rainfall data (Fig. 2b). Three lysimeters were installed at 10-cm depth to sample the soil water solution (Fig. 2c,d). The soil water solution has

been collected and analyzed for radioactive materials.

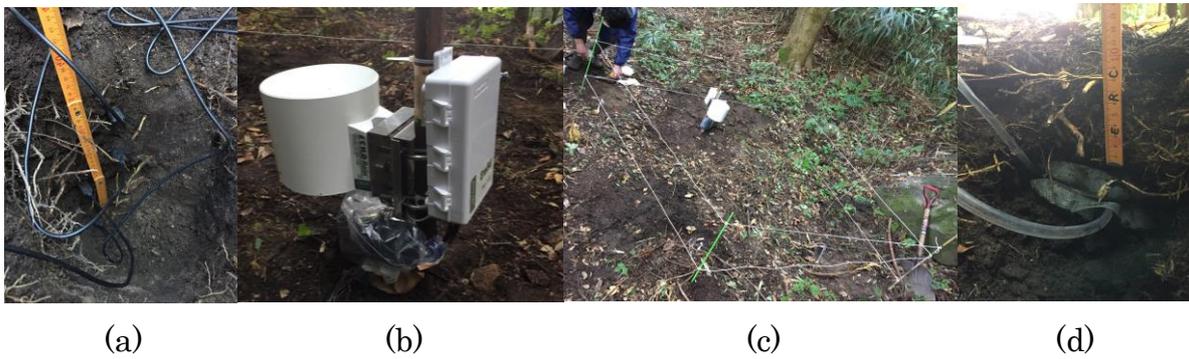


Fig. 2 Soil moisture, rainfall and soil water solution sampling

(2) Model application

The Hydrus-1D/2D software have been used to simulate the soil water movement at the pedon and hillslope scales.

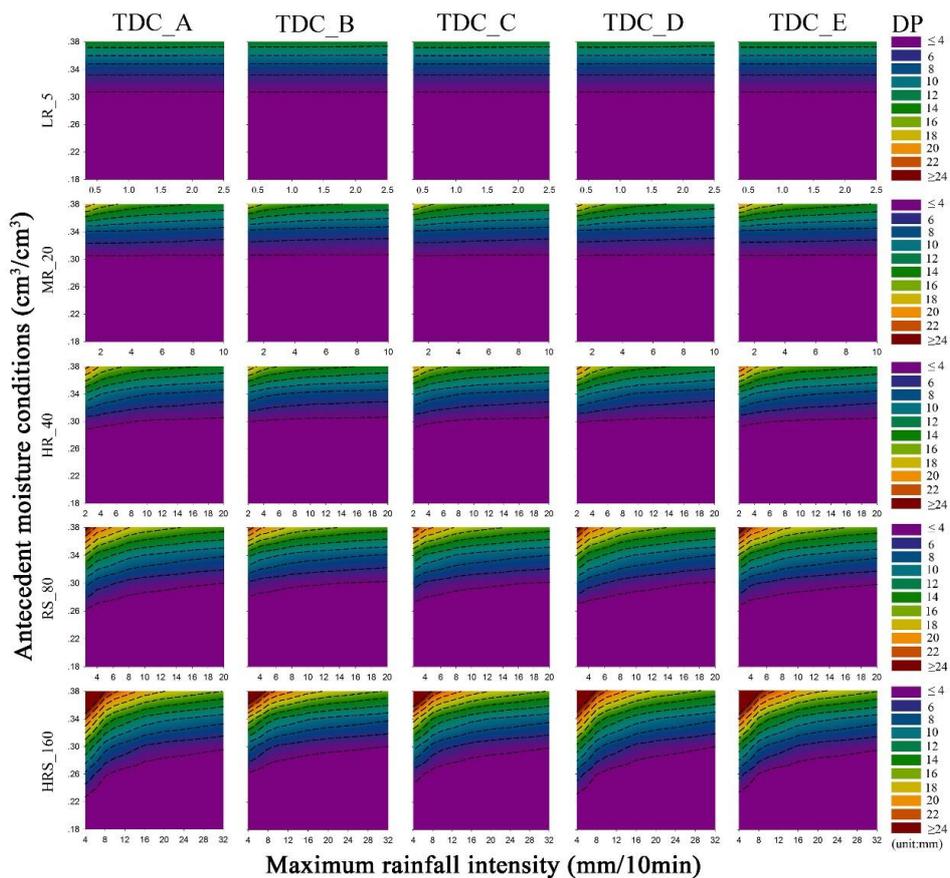


Fig. 3 Soil water percolation (DP) as interactively influenced by maximum rainfall intensity, antecedent soil moisture, rainfall grade, and rainfall distribution (TDC)

At the pedon scale, the Hydrus-1D was used to quantify the vertical soil water

percolation and its influencing factors. When the model was carefully calibrated, it can simulate the vertical distribution and movement of soil water with an acceptable accuracy (RMSE < 0.03 m³ m⁻³; NSE > 0.75). Antecedent moisture had the greatest relative contribution to vertical soil water percolation (85.7%), followed by rainfall amount (10.9%) and maximum rainfall intensity (3.4%). The relative contribution of antecedent moisture was the greatest in summer (87.8%), while that of the rainfall was the least. The influence of antecedent moisture decreased with the increasing of rainfall amount, while the influence of the season and rainfall increased.

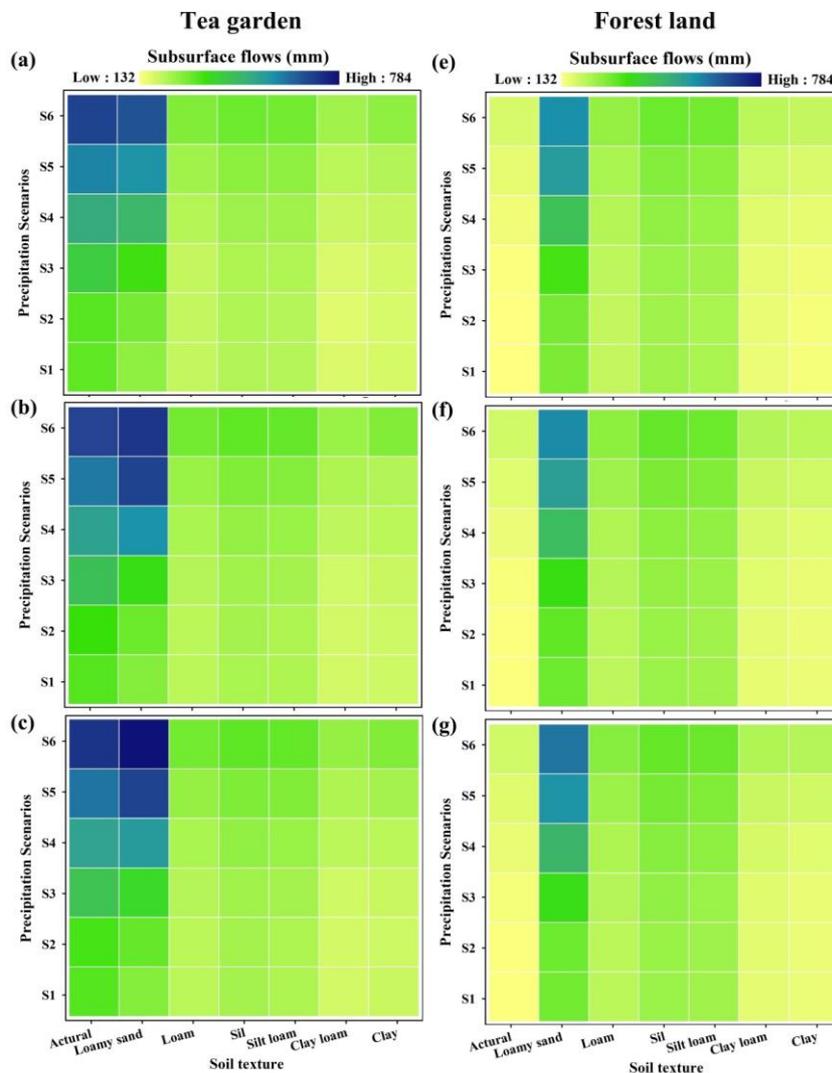


Fig. 3 Subsurface flow as interactively influenced by land use, rainfall, soil texture, and slope (a and c: 5%; b and f: 10%; c and g: 20%)

At the hillslope scale, the Hydrus-2D was used to quantify the lateral and vertical soil water movement and its influencing factors. The hillslope water movement was dominated by subsurface soil water flow, which was influenced by precipitation and antecedent moisture conditions. A threshold value of $0.18 \text{ m}^3 \text{ m}^{-3}$ of mean hillslope soil moisture was observed for the initiation of subsurface soil water flow. High precipitation intensity substantially increased subsurface flow, regardless soil textures. In addition, the sensitivity of the bare soil hillslope to rainfall patterns was more than two times higher than that of the vegetated hillslope.

(3) Future research

In the future, the soil water flow will be coupled with the concentration of soil water radioactive materials to calculate the quantity of radioactive material loss through soil water flow. To calculate this quantity, equation 1 will be used:

$$F_R = Q_W \times C_R \quad (1)$$

Where F_R is the subsurface flux of radioactive materials, Q_W is the quantity of subsurface water flow, C_R is the concentration of radioactive materials in the soil water.

The Hydrus-1D/2D can help us to determine Q_W based on the field observed soil water data. The lysimeters installed in the field site can help us to collect soil water solution samples and after analyzing, the C_R can be determined.

List of Publication

1. Lai, X.M., Liao, K.H, Feng, H.H, **Zhu, Q***. 2016. Responses of soil water percolation to dynamic interactions among rainfall, antecedent Moisture and season in a forest Site. *Journal of Hydrology*. 540: 565-573.
2. Liao, K., Lv, L.G, Liu, Y.J, **Zhu, Q***. 2016. Sensitivity of simulated hillslope subsurface flow to rainfall patterns, soil texture and land use. *Soil Use and Management*. 32: 422-432.

Observation of atmospheric radioactive cesium and its wet deposition and modelling of resuspension and deposition processes

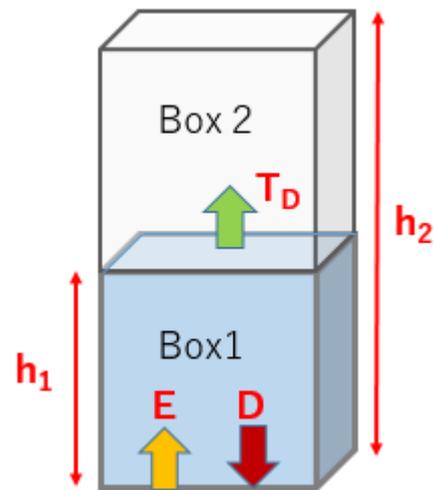
Olivier Masson (IRSN)

Kazuyuki Kita (Ibaraki University)

Yuko Hatano, Yuta Nakamura (Tsukuba University)

Summary of the Project

Atmospheric re-suspension is one of major transportation processes of the radiocesium deposited on the ground in the environment, and it is quite significant to evaluate transport rate by this process for prediction of radiocesium emitted from the Fukushima daiichi nuclear power plant accident. In this study, we are trying to evaluate the re-suspension flux from the ground based on the observed time series of atmospheric concentration of Cs-137 activity by adopting two-box model approach.



In the two-box model as shown in the above figure, assuming horizontal homogeneity, time variation of atmospheric concentration of Cs-137 activity in the surface box (Box 1), R_{A1} , can be described by the following equation of continuity:

$$\frac{dR_{A1}}{dt} = E - D - T_D \quad (1),$$

where E , D and T_D denote re-suspension emission rate, dry/wet deposition rate and vertical transport rate by diffusion, respectively. The re-suspension emission rate, E , is assumed to be represented by the following equation:

$$E[\text{Bq}/\text{m}^3/\text{hr}] = R_G \cdot [\{\alpha \cdot V + \beta \cdot (V - V_{th})^3 \times H(V)\} \times H(P) + \gamma \cdot P + C]/h_1 \quad (2)$$

and

$$H(V) = \begin{cases} 1 & (V \geq V_{th}) \\ 0 & (V < V_{th}) \end{cases} \quad H(P) = \begin{cases} 1 & (P = 0) \\ 0 & (P > 0) \end{cases}$$

where R_G , V , V_{th} , P , C , h_1 denote deposited radiocesium density at the ground surface, wind velocity, a threshold wind velocity for wind blowing sand dispersion, precipitation rate, nearly-constant resuspension coefficient, and height of 1st box. α , β , γ are coefficients showing the intensities of corresponding re-suspension terms. The deposition rate, D , is assumed to be represented by the following equation:

$$D[Bq/m^3/hr] = R_{A1} \cdot \{a + b \cdot P^{0.16}\} / h_1, \quad (3)$$

where a and $bP^{0.16}$ denote dry and wet deposition coefficients (cf. Ulbrich 1983). The vertical transport rate by diffusion between Box1 and Box 2, T_D , assumed to be represented by the following equation:

$$\begin{aligned} T_D[Bq/m^3/hr] &= k_D(R_{A1} - R_{A2})/h^*/h_1 \times 3600 \\ k_D &= \phi \cdot \kappa \cdot V \cdot h_1 \end{aligned}, \quad (4)$$

where k_D , ϕ , κ and h^* denote diffusion coefficient, Karman coefficient, and thickness of the surface mixing layer.

To observe the atmospheric concentration of Cs-137 activity, R_{A1} , aerosols at a height of 1.2m were sampled at a playground in Tsushima, Namie-town, Fukushima, since December 2012, by using high-volume air samplers (Shibata HV1000R). In this study, we use R_{A1} values obtained during an intensive sampling in April and May, 2016. Each sample consists of two sets of 12 hours, 6-18 LST (daytime sample) or 18-6 LST (nighttime sample) and total sampling time was 24 hours. For evaluating dry deposition coefficient, a , deposited aerosol samples were also sampled at the same site with another high-volume air sampler without air suction. Value of 'a' was determined as average of ratio of Cs-137 activities of aerosol samples with and without air suction. Total (dry and wet) deposition rate was observed with deposited aerosols and rain water samples, obtained with a 0.3 m by 0.9 m stainless steel tray to estimate the 'b' value. R_G value was measured by sampling surface (0-2.5cm depth) soil at the sampling site.

The re-suspension rate can be deduced by least-square fitting in equations (1) - (4) with substitution of dR_{A1}/dt values (difference of two successive R_{A1} values), 'a' and 'b' values, V and P values measured by an automated weather station. The h^*

value was assumed to be identical with h_1 value, and the h_1 value was set to 1/5 of the h_2 value, estimated by a regional meteorological model calculation for Tsushima site by Japan meteorological agency.

At first, daytime and nighttime R_{A1} samples in April were added and C value was fixed to zero, resuspension rate (α , β , γ values) were estimated to fit the R_{A1} values calculated with equations (1)-(4) to those observed.

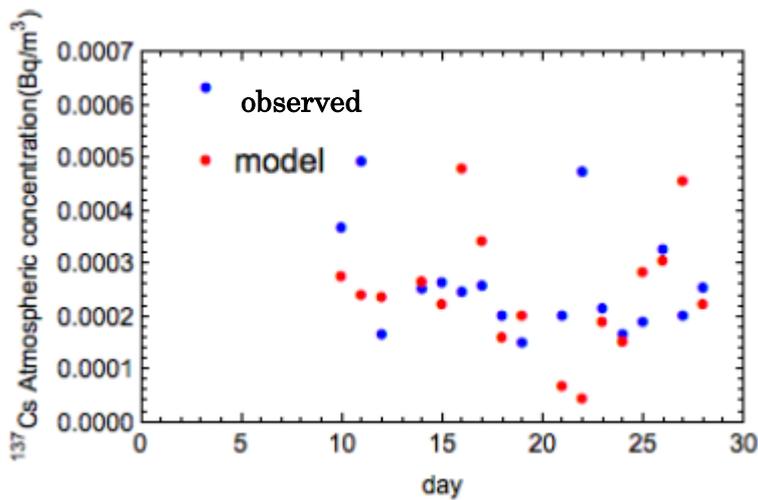


Figure 2

Comparison between the observed and calculated R_{A1} values in April.

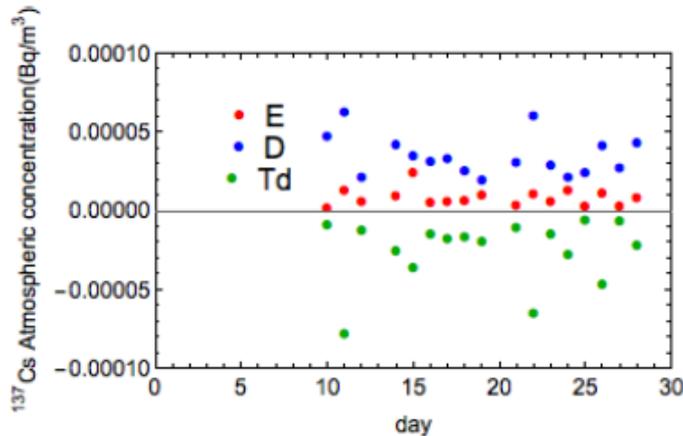


Figure 3

Variation of calculate E, D and $-T_D$ values.

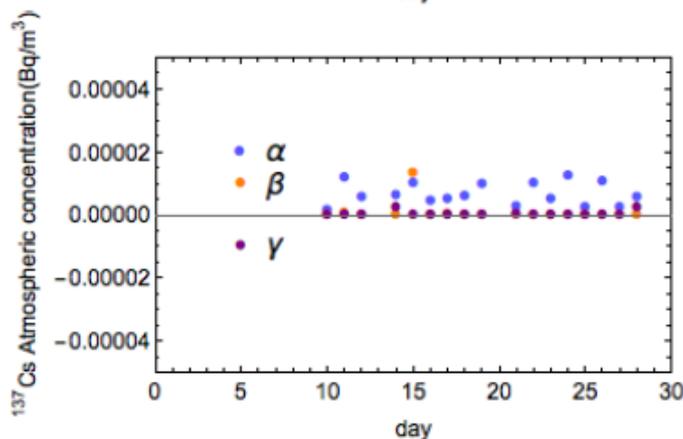


Figure 4

Comparison of estimated 1st (α), 2nd (β) and 3rd (γ) terms in equation (2).

The estimated values of α , β and γ values as well as ϕ value are :

$$\alpha = 5.8 \times 10^{-10}$$

$$\beta = 5.7 \times 10^{-10}$$

$$\gamma = 3.2 \times 10^{-10}$$

$$\phi = -0.0135.$$

Figure 4 indicate that resuspension intensity in this period was generally in proportional with wind speed. However, as shown in Figure 3, deposition (D) term was generally exceeded the resuspension (E) term, and this result is not reasonable, probably. Estimated D values were probably larger than the actual value, and ϕ value was also enlarged to compensate large D values. We will improve estimation of D and T_D values for more reliable evaluation of resuspension coefficient. Figure 5 shows systematic day-night difference of R_{A1} values in May, and this difference also should be in consideration.

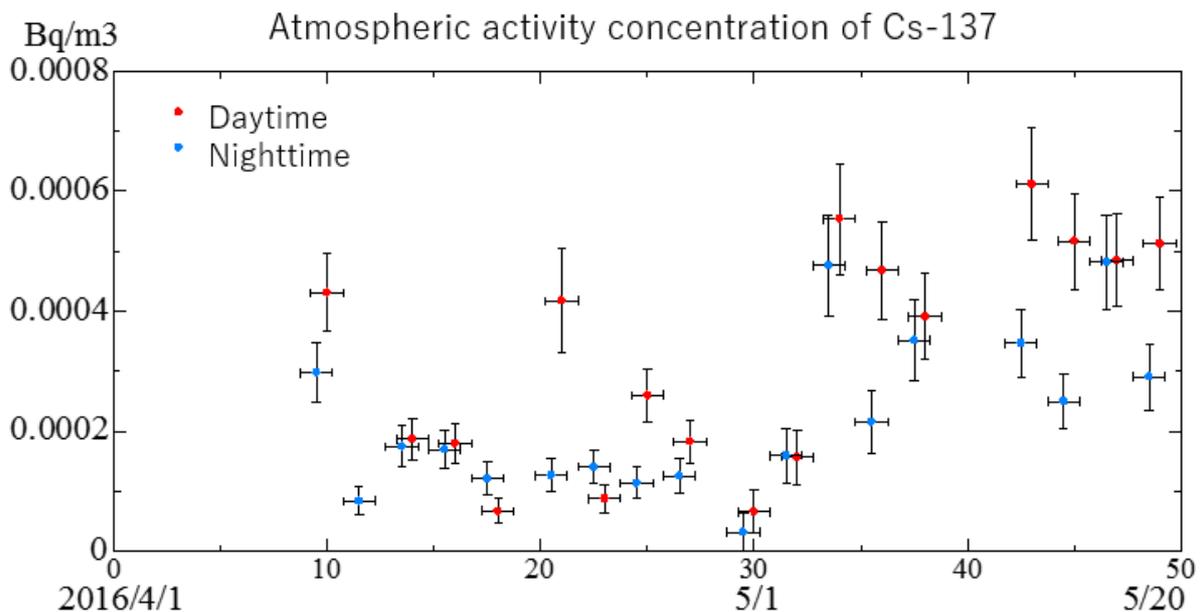


Figure 5 Time series of R_{A1} values in April and May, 2016.