

目次

若手共同研究

野田 祐作「高 Na 耐性を示す <i>Vigna</i> 属野生種を用いた Cs 吸収・蓄積機構の解析」	1
張 子見「福島原子力事故以降に常緑樹の葉面上で観測された不均一な放射能汚染の形成メカニズムの解明」	4
佐藤 志彦「放射性粒子の同位体比分析高度化」	6
辻 英樹「林内雨中の溶存態放射性セシウムの挙動評価と現場濃縮装置の改良」	8
脇山 義史「除染が斜面スケールでの土砂および ^{137}Cs の動態に及ぼす影響」	13
栗原 モモ「リター層における放射性セシウムのフラックス」	15
真塩麻彩実「医療系廃棄物として水圏環境へ放出される白金、ガドリニウム、テクネチウム-99 分析法の確立」	19
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」	20
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の解明」	23

重点共同研究

内藤 健「 <i>Vigna</i> 属野生種群が独自に獲得した耐塩性機構の解明： Na^+ 吸収特性および局在に関する解析」	27
竹中 千里「コシアブラのセシウム吸収・蓄積におけるカリウムと菌根菌形成の関係」	30
阿部 善也「帰還困難区域の土壤中に残留する放射性物質の正体解明」	32
大槻 勤「放射性セシウムを含んだエアロゾル成長過程に関するメカニズムに関する研究」	35
Ismail Md. Mofizur Rahman「Decontamination of radionuclide contaminated solids using biodegradable chelators coupled with molecular recognition」	38
頼 泰樹「セシウム低吸収水稻における ^{137}Cs の吸収および動態解析」	39
松中 哲也「陸水域における $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を用いた放射性ヨウ素と放射性セシウム動態解析」	41
北 和之・林 菜穂・南 光太郎・足立 光司・五十嵐 康人・古川 純「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」	44
二宮 和彦「福島第一原子力発電所事故に由来した土壤中の放射性ストロンチウム移動度決定」	49
Aleksei Konoplev「Comparative analysis of key processes governing the long-term dynamics of dissolved and particulate radiocesium in rivers of Fukushima and Chernobyl contaminated areas」	49
田中 万也「森林における放射性セシウムの化学状態の解明」	51
吉村 和也「市街地における放射性セシウムの流出調査」	55
谷口 圭輔「福島県内外の河川における放射性セシウムの形態別の濃度変化の把握とその要因」	58
宇都宮 聡「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」	61
久保田富次郎「帰還困難区域内のための池集水域等における放射性 Cs の流出率の算定」	67

保高 徹生「溶存態放射性セシウムの起源を探る」	69
田林 雄 「森林生態系内の ^{137}Cs の長期移行過程」	73
伊藤 芳樹「ドップラーソーダによる乱流測定 of 季節・大気安定度依存性」	75
山口 直文「波浪による底質の巻き上げにおける含有泥質堆積物の影響」	79
内山 雄介「海洋および海底堆積層における懸濁態・溶存態放射性核種の再循環過程に関する解析技術の開発」	81
鄭 建・門 武・山田 正俊「Distribution of hard-to-detect Pu and Cs-135 isotopes in early stage monitoring seawaters after the Fukushima nuclear accident」	86
立田 穰 「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」	88
赤田 尚史「少量の環境水試料を対象とした低濃度トリチウム測定に関する検討」	90
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」	92
本多 牧生・田副 博文・山田 正俊「福島沖海底堆積物の再懸濁と水平輸送過程の研究」	96
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」	99
張 勁 「化学トレーサーを用いた海底地下水湧出による放射性セシウムの沿岸海域への移行プロセスの解明」	102
神田 穰太「福島沿岸海域における高線量粒子の海洋生態系影響に関する研究」	104
猪股 弥生・青山 道夫・山田 正俊「統計解析による北太平洋における東電福島第一原発事故起源の放射性セシウムの時空間変動」	106
真田 哲也・赤田 尚史・細田 正洋・城間 吉貴・床次 眞司・岩岡 和輝「北海道内の鉱泉水中ラドン濃度の測定と環境動態に関する研究」	109
津旨 大輔「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」	110
齊藤 敬 「3D プリンタと 3D スキャナを利用したガンマ線測定用放射性セシウム基準線源の開発」	114
山形 武靖「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」	115
中田 章史「高線量汚染地域に生息するアカネズミの染色体を指標とした放射線影響評価」	117
鈴木 正敏「福島原発事故に被災した野生ニホンザル組織における放射線影響の解析」	120

国際共同研究

Xinchao Sun「Nitrate deposition processing of rainfall in forest canopies by using nitrogen and oxygen isotopic composition」	122
Lissak Candide「Diversion of remote sensing techniques to estimate the quantity of available radioactive material in Fukushima forest ecosystems」	124
Olivier Masson・Kazuyuki Kita・Ryo Ikeda・Yuko Hatano「Observation of atmospheric radioactive cesium and its wet deposition and modelling of resuspension and deposition processes」	127

高 Na 耐性を示す *Vigna* 属野生種を用いた Cs 吸収・蓄積機構の解析

野田祐作（農業・食品産業技術総合研究機構）

研究成果概要

① 研究目的

植物のセシウム（Cs）吸収抑制または高集積性を評価する上で同族元素の制御機構に着目することは重要な突破口となる。*Vigna* 属はアズキのなかまであり、沿岸部や塩分の多い土地等の塩集積土壤に適応している耐塩性野生種が存在する。*V. nakashimae* は葉のナトリウム（Na）蓄積を根および茎で抑制する。*V. riukiensis* は Na^+ を葉に高蓄積するが光合成を維持できる。*V. luteola* は Na^+ を根および特定の葉に蓄積する。このように *Vigna* 属耐塩性野生種は互いに全く異なる耐塩性機構を有していることがわかっている（内藤 未発表）。したがって、同族元素の Cs も同様に多様な制御機構を有している可能性がある。そこで、本研究では放射性 Cs を用いて *Vigna* 属耐塩性野生種群内の Cs 吸収・蓄積能の評価を行う。

② 研究方法

本年度は *Vigna* 属耐塩性野生種 *V. nakashimae*、*V. riukiensis*、*V. luteola* を研究に供した。まず *Vigna* 属耐塩性野生種を水耕栽培（大塚ハウス水耕液）で生育する。水耕栽培後、放射性 Cs (^{137}Cs ; ^{133}Cs 担体付与) 10 kBq を含む水耕液で 3 日間処理する。放射性 K (^{42}K および ^{43}K ; ^{39}K 担体付与) の局在解析の場合は、放射性 K 500 kBq を含む水耕液で 3 日間処理する。処理後、各種の植物体内の放射性 Cs の局在を BAS イメージング法にて評価する。

③ 結果・考察

V. nakashimae の Cs^+ 局在は葉への流入が抑制されるという点では Na^+ 局在と共通していた。しかしながら、茎頂部において Na^+ 蓄積は強く抑制されるが、 Cs^+ は主茎および腋芽の茎頂部へ多量に輸送・蓄積されていた（図 1）。

V. riukiensis は解析した 3 種の中で最も高い Cs^+ 蓄積能を示した。また、 Na^+ は植物上部より下部に多く蓄積するが、 Cs^+ は植物下部より上部に蓄積する傾向が見られた。さらに、葉まで輸送された Na^+ は葉肉細胞および葉縁部に蓄積するが、 Cs^+ は葉の中心部に蓄積していた（図 2）。

V. luteola は Cs^+ を根および特定の葉（解析に用いた生育ステージでは第 3 葉。最も基部側の葉は初生葉）に蓄積していた。また、他の 2 種と同様、 Cs^+ は主茎および腋芽の茎頂部に蓄積していた（図 3A）。 Na^+ や Cs^+ と同族元素かつ植物の必須栄養素であるカリウム（K）の局在を放射

性 $K(^{42}K, ^{43}K)$ を用いて観察したところ、植物体全体に K^+ が蓄積しており、 Na^+ や Cs^+ で見られた器官特異的な蓄積様式は見られなかった(図 3B)。

本研究結果は Cs^+ 輸送・蓄積に関して、同族元素との制御機構の共通点や違いを明確にした。 Na^+ と Cs^+ は同じアルカリ金属類に属することからも、価電子を介した化学結合や物性は植物体内でも大部分は共通していると予想される。しかしながら、*V. riukiensis* は Na^+ 蓄積と同様に 3 種の中でも高い Cs^+ 蓄積能を示したが、葉の中では明確に Na^+ とは異なる領域に Cs^+ が蓄積していた。このことは、葉に至るまで Cs^+ 輸送機構は共通であるものの、 Na^+ と Cs^+ が葉の中心部で明確に識別され（あるいはどちらか一方が識別され）蓄積が制御されていることを示唆している。

葉の蓄積領域の違いと同様に、蓄積器官の違いからも制御機構の共通点や違いを明らかにできた。*V. nakashimae* および *V. luteola* では Na^+ 局在解析では観察されなかった茎頂部への Cs^+ 輸送・蓄積が見られた。従前の研究では、地上部の Cs^+ 輸送は K^+ 輸送体が制御していると報告されている (White and Broadley, 2000)。しかし、*V. luteola* の地上部では Cs^+ は特定の葉・茎頂部に蓄積する一方で、 K^+ は地上部全体に蓄積していた。したがって、地上部の Cs^+ 輸送機構は K^+ 輸送制御機構と共通していないことが示唆される。また近年、 K^+ 輸送系に依存しない Cs^+ 輸送制御機構の存在が議論されてきて (Remy, E. et al. 2015; Noda, Y. et al. 2016; Ishikawa, S. et al. 2017) いることから、本研究はそれらを支持できる結果である。今後、各組織・各器官を詳細に観察するほか、遺伝子発現解析の比較を経て Cs 蓄積の分子機構の解明を目指す。



図 1. *V. nakashimae* の Cs 局在



図 2. *V. riukiensis* の Cs 局在

(A)



(B)

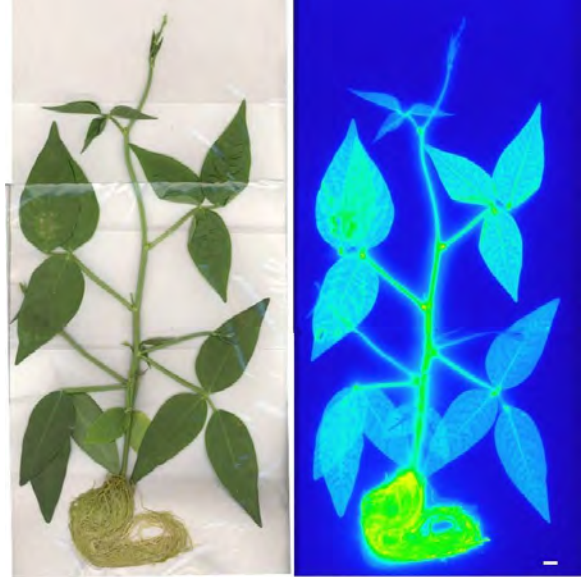


図 3. *V. luteola* の Cs 局在 (A) および K 局在 (B)

※参考文献

White, P.J., Broadley, M.R. *New Phytol.* **147**, 241-256 (2000)

Remy, E. *et al.*, *Plant Cell Physiol.*, **56**, 148-162 (2015)

Noda, Y. *et al.*, *Sci. Rep.*, **6**, 38360 (2016)

Ishikawa, S. *et al.*, *Sci. Rep.*, **7**, 2432 (2017)

成果発表

該当なし

福島原子力事故以降に常緑樹の葉面上で観測された不均一な放射能汚染の形成メカニズムの解明

張 子見（大阪大学大学院 理学研究科）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性物質は、福島県域の森林を汚染した。その放射能汚染をオートラジオグラフィで観察すると、植物葉面上で放射性物質が長期間にわたって不均一（ドット状）に分布していることが多数の研究者によって報告されている。この葉面上の汚染がどのようなプロセス、具体的にはどのような化学特性を持つ放射性物質が葉面に沈着したときに形成されるかを、明らかにすることが重要である。このプロセス研究によって得られる結果は、放射性物質の森林への初期沈着量の見積もりや、長期間にわたる森林内での放射性物質の循環を考えるうえで重要な知見を与える

② 研究方法

カリフォルニアタイプのチャンバー内で、放射性エアロゾル発生装置を構築した。放射性エアロゾルの発生方法は噴霧乾燥法と呼ばれる方法を取り、放射性物質を添加した溶液を加熱されたチャンバー内に噴霧を噴出することで、すぐに水分が蒸発し、溶液内の塩成分の化学組成をとる微小固体塩エアロゾルが得られる方法である。実際に、放射性物質を加えずに、調整した塩溶液を噴霧してエアロゾルを発生させ、インパクターで捕集することで、生成したエアロゾルの粒径を測定した。

これと並行して、環境試料中の不均一な放射能のイメージングならび定量的ためにイメージングプレート(IP)画像を自動で解析するプログラムの開発を行った。プログラムの評価には、放射能汚染した土壌を複数回イメージングしたデータセットを用いた。

③ 結果・考察

放射性エアロゾル装置で4種の塩溶液を噴霧して、塩エアロゾルを発生させ、インパクターによる捕集から粒径を導出した結果、表1のようになった。粒径はいずれも3~4 μm であり、大気中に一般的に存在するエアロゾルと同等の粒径を持つことから、放射性核種を加えれば、初期沈着の再現実験を行うことができると考えられる。捕集されたエアロゾルを電子顕微鏡で観察した結果、もっとも細かい粒径が捕集される段数では、図1のように粒径< 1 μm 程度の角ばった粒子、つまりは塩の結晶が観測できた。

表1：塩エアロゾルの粒径と収率

Chemical Composition	Aerosol Diameter (μm)	Yield (%)
KCl	3.0	42
CsCl	3.4	27
Na_2SO_4	3.4	31
$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	4.0	41

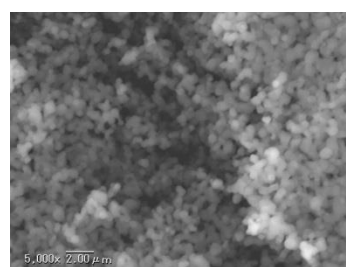


図1：塩エアロゾルの電子顕微鏡像

プログラミング言語 Python を使い、自動分析プログラムを作成した。同条件で曝露した6つの土壌IP画像について、PSL値と放射能の直線回帰の決定係数は、いずれも0.95以上と安定していた。土壌曝露領域に対して、99%以下のQL値を除去したのち、粒子検出することで、比放射能の高い点を安定して検出することに成功した。全処理時間は1データあたり5秒程度であった。以上のことから、大量のIP画像を分析するのに適したプログラムを開発できた。

成果発表

① 論文発表

準備中

② 学会発表

第19回「環境放射能」研究会, 2018年3月13-15日, 高エネルギー加速器研究機構

③ その他

放射性粒子の同位体比分析高度化

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セシウムボールと呼ばれる放射性粒子が環境中に放出したことが知られているが、現状の Cs 同位体比を使用した分析では 2、3 号機の弁別が困難である。本研究課題では前述の問題を解決するため、福島事故に特化した測定とデータ解析を実施することで、放出源ごとの同位体比を決定し、個別の放射性粒子が有する同位体比を評価し、放出源特定に応用可能な体制を筑波大学アイソトープ環境動態研究センター（CRiED）に整備する。

② 研究方法

本研究課題では申請者が在学中に得たデータと前年度の共同利用課題で得られたデータに加え、文部科学省マップ事業で採取した土壌試料を、申請者が使用していた CRiED 保有のゲルマニウム半導体検出器でクロスチェックすることで、測定による値のゆらぎを評価する。ついで同位体比の妥当性を統計的に解析することで、各炉に由来する環境中の代表的な Cs 同位体比を決定する。またこれまでに採取した放射性粒子固有の同位体比を測定し、粒子そのものの有する値の評価を再度行い、従前の結果に対し妥当性を再評価する。

③ 結果・考察

本研究課題では文科省マップ事業で採取された土壌のうち、原発に近いエリアの土壌を再測定した。結果、マップ事業で公開されたデータと再測定の結果では、得られた Cs 同位体比は概ね許容できる範囲で収まっていることが確認された。また一部で例外的なデータが確認されたが、それらの試料は、①セシウム 134 のサムピーク補正未実施、②初回測定時のデッドタイムが過大で適切に測定できていないという 2 事象で説明できることが明瞭になった。本研究によりマップ事業のデータが検証されたことに加え、CRiED で供用されているゲルマニウム半導体検出器のデータが信頼に足るものであることが実証された。

成果発表

① 論文発表

1. Yukihiko Satou, Keisuke Sueki, Kimikazu Sasa, Hideki Yoshikawa, Shigeo Nakama, Haruka Minowa, Yoshinari Abe, Izumi Nakai Takahiro Ono, Kouji Adaxhi, Yasuhito Igarashi, Analysis of two forms of radioactive particles emitted during the early stages of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident, Geochemical Journal, in press.
2. Peter Martin, Yukihiko Satou, Ian Griffiths, David Rechards, Thomas Scott, Analysis of External Surface Irregularities on Fukushima-Derived Fallout Particles, Frontiers in Energy Research, 5, p.25_1 - 25_9,

② 学会発表

1. Overview of insoluble radioactive cesium particles emitted from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station, Yukihiko Satou, EGU General Assembly 2017, April 2017 Vienna.
2. 福島第一原発事故で放出した Cs 含有放射性粒子の地表分布の推定, 日本保健物理学会第 50 回研究発表会/日本放射線安全管理学会第 16 回学術大会合同大会, 2017 年 6 月 大分.
3. 福島における放射性物質の分布状況調査, 14; Cs 同位体比を利用した研究のための再測定, 日本原子力学会 2017 年秋の大会 2017 年 9 月

③ その他

アウトリーチ活動 核化学夏の学校 和歌山県串本市 2017 年 8 月 19 日

(本研究課題の成果を紹介)

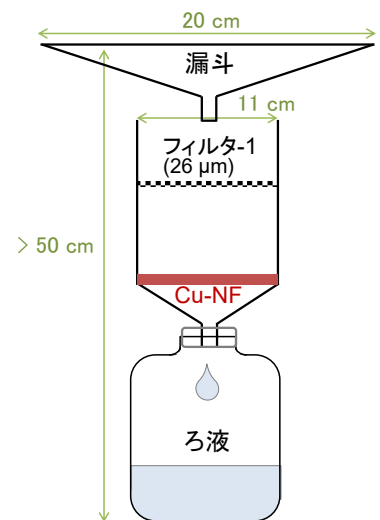
林内雨中の溶存態放射性セシウムの挙動評価と現場濃縮装置の改良

辻 英樹（国立環境研究所）

研究成果概要

① 研究目的

林内雨は樹冠から林床への物質移行の主要な経路の一つであり、特に福島第一原発事故の被災森林地域では、生物利用性の高い溶存態の放射性 Cs が林内雨を介して林床へ移行し、土壌生態系汚染の原因となっている。したがって、林内雨中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は、汚染現場での放射性 Cs の生物移行を評価するにあたって重要な基礎データとなるが、雨水中溶存態 Cs 濃度に関する既往報告が少ないことから、雨水サンプルの保管等によるサンプル水中での再分配等での溶存態 Cs 濃度の変化についての知見が不足している。そこで本研究では、1) 雨水サンプルの保管による溶存態 ^{137}Cs 濃度の変化について確認を行った。また、従来法より前処理が簡便な溶存態 Cs の現場濃縮装置を検討するため、2) 銅置換体プルシアンブルー担持不織布を用いた雨水の溶存態 Cs の現場濃縮装置 (Cu-NF 装置 (右図)、2016 年度の学際共同研究にて実施) の現場適用性と測定精度の向上を目的とした室内試験を実施した。



② 研究方法

1) 水サンプルの保管による溶存態 ^{137}Cs 濃度の変化確認試験

従来法において雨水が容器に回収された後、固液分離処理に至るまでの時間で Cs の再分配が生じているかどうかを確認するため、2017 年 9 月～10 月に南相馬市のスギ林および広葉樹林内で 1.2 mm プレメッシュを用いて林内雨を回収し、林内雨をポリバケツに入れ、蓋を開けた状態で 25℃の恒温室に保管した後、以下の試験を行った。

1-1. 保管による溶存態 ^{137}Cs 変化の確認

雨水サンプルを回収後してから直後 (0 日後)、1 日後、4 日後、7 日後にサンプル水を 0.45 μm メンブレンフィルタでろ過し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて溶存態 ^{137}Cs 濃度の測定を行った。

1-2. スパイク試験による溶存態 ^{137}Cs 変化の確認

雨水サンプルに、溶存態 ^{137}Cs 濃度 460 Bq/L の水を少量加えて攪拌し、添加直後（0 日後）、1 日後、4 日後、7 日後に 0.45 μm メンブレンフィルタでろ過し、ゲルマニウム半導体検出器を用いて溶存態 ^{137}Cs 濃度の測定を行った。

2) Cu-NF 装置の適用性確認試験

2017 年 9 月に回収した林内雨サンプルを Cu-NF 装置の上から 30 mm/h の速度で滴下し、Cu-NF 中の ^{137}Cs 濃度を、0.45 μm メンブレンフィルタろ液中の ^{137}Cs 濃度と比較することで、本装置の精度を従来法と比較した。

③ 結果・考察

1) 雨水の保管による溶存態 ^{137}Cs 濃度の変化

スギ林、広葉樹林の溶存態 ^{137}Cs 濃度は、いずれも保管後 1 日で 10～18% の上昇が見られた (Fig. 1)。その後 7 日目までは、計数誤差の範囲内で変動し、ほとんど変化が見られなかった。サンプル水中の共存イオンとして NH_4^+ を測定したところ、いずれにおいても採水直後は検出下限未満の濃度であったのが日数とともに上昇したことから、雨水サンプル中の有機物が保管中に分解されたことで溶存態 ^{137}Cs 濃度が上昇した可能性が高いと思われる。

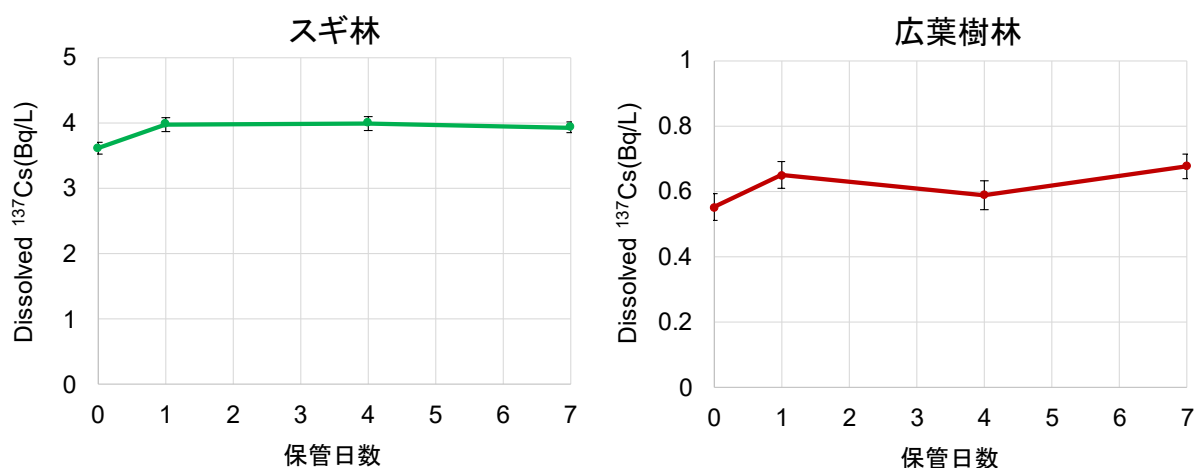


Fig. 1 スギ林と広葉樹林の林内雨サンプル保管による溶存態 ^{137}Cs 濃度の変化

つぎに 460 Bq/L 水を用いたスパイク試験の結果 (Fig. 2)、スパイク直後の溶存態 ^{137}Cs 濃度は、いずれのサンプル水に対しても想定された溶存態 ^{137}Cs 濃度に比べて約 1 Bq/L 低かったことから、スパイク直後に懸濁物質への ^{137}Cs 移行が生じていたと思われる。

一方、スパイクから1日目以降においては、 ^{137}Cs 濃度は計数誤差の範囲内で変動した。すなわち、1)2)の試験から、現場での雨水サンプルの溶存態 ^{137}Cs 濃度の変化は1日以内に発生し、長期保管による濃度変動の影響は小さいことがわかった。

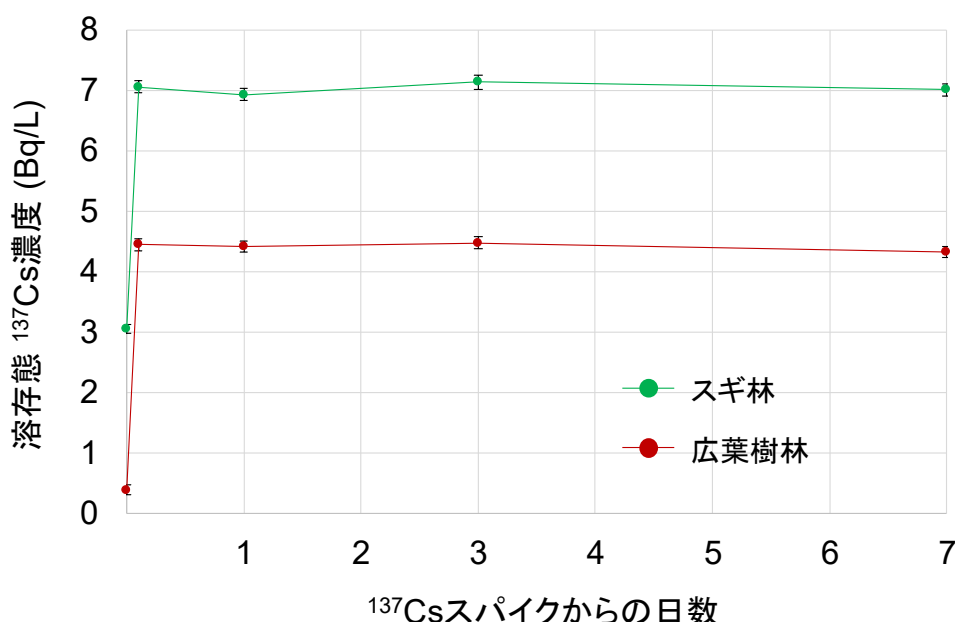


Fig. 2 スギ林と広葉樹林雨水のスパイク試験による溶存態 ^{137}Cs 濃度の変化

2) Cu-NF 装置の適用性確認試験

26 μm のろ過フィルタを封入した Cu-NF 装置を用いた林内雨サンプル滴下試験の結果 (Fig. 3)、Cu-NF の方が 0.45 μm のろ液に比べて 33% 高い ^{137}Cs 濃度となり、Cu-NF を超音波洗浄し、表面の粒子を取り除いた後で比較しても 25% 程度高い、という結果が得られた。0.45 μm のろ液を Cu-NF 装置に滴下して、U8 容器に充填した Cu-NF 中の ^{137}Cs 量と比較するとほとんど二手法間で差は見られなかったことから、サンプル媒体の違いが原因ではないと思われる。恐らく、26 μm 未満の粒子が Cu-NF 内にトラップされ、超音波洗浄後も、不織布内に絡め取られた粒子が残存していた可能性が高い。そこで、孔径 2.7 μm のガラス繊維ろ紙である Whatman GF/D を 26 μm フィルタのさらに後段に導入し、ろ液との比較試験を行った。その結果、2017 年 9 月の広葉樹林内雨では二手法間でほぼ一致する結果が得られた。一方、スギ林内雨では、CuNF の方が 71% ほど ^{137}Cs 濃度が高い、という結果が得られた。これは、雨水サンプルろ過の過程

で $26\mu\text{m}$ および $2.7\mu\text{m}$ のフィルタが詰まったことにより、Cu-NF 回収の過程でフィルタ上に湛水した懸濁物質入りのサンプル水が Cu-NF に流れこみ、Fig. 3 の試験と同様に懸濁物質の一部を Cu-NF 内にトラップしてしまったことが原因と思われる。したがって、ろ紙の詰まりによる粒子混入のリスクを考慮すると、本装置を十分現場で使用可能とするためには、 $100\mu\text{m}$ 程度の目を持ったプレメッシュの最前段への導入等による、さらなるろ過効率の向上が必要である、という課題があることが明らかになった。

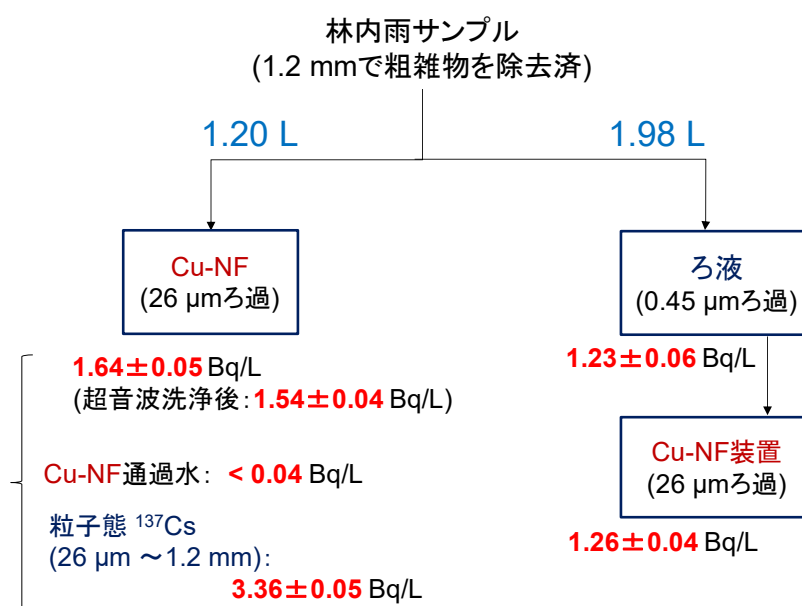


Fig. 3 Cu-NF 装置と従来法による ^{137}Cs 検出結果の比較 ($26\mu\text{m}$ ろ過)

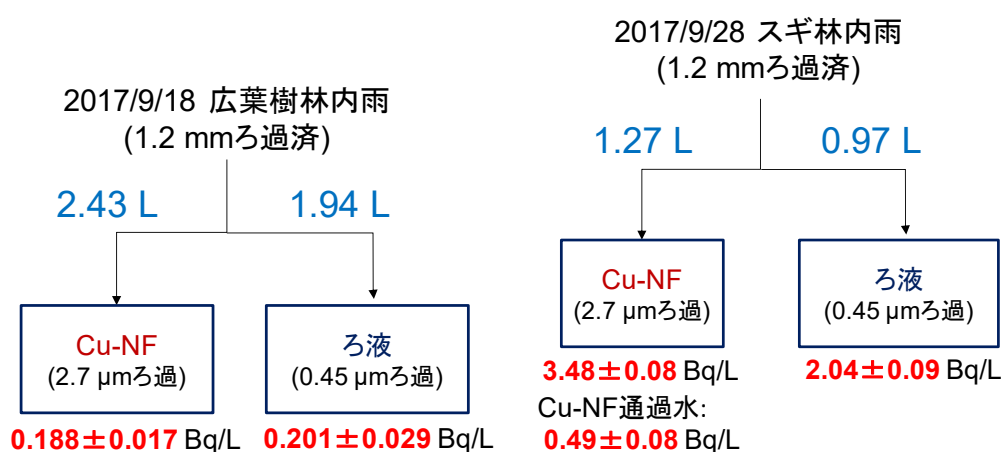


Fig. 4 Cu-NF 装置と従来法による ^{137}Cs 検出結果の比較 ($2.7\mu\text{m}$ ろ過)

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

なし

除染が斜面スケールでの土砂および ^{137}Cs の動態に及ぼす影響

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

現在、放射性物質が多量に沈着した地域では、表土の剥ぎ取りや客土などの除染作業が進められている。放射性物質の除去あるいは埋没による空間線量率の低下が期待される一方で、こうした大規模な土地改変によってその地域の水文応答や土砂動態が変化する可能性がある。しかし、これまでに除染地における土砂の ^{137}Cs および動態を調べた研究はほとんどない。本研究では、除染が土砂および ^{137}Cs 動態に及ぼす影響を明らかにすることを目的として、除染地を含む土地利用条件の異なる土地において土砂および ^{137}Cs の流出量を観測し、比較を行った。

② 研究方法

川俣町山木屋地区および伊達市月舘地区内の未除染地の4か所（未耕作畑、耕作畑、草地、森林）と除染地の2か所（未耕作、耕作）に2014年に設置した土壌侵食プロット（縦22.13 m、横5 m、森林のみ2011年設置）によって行った。なお、未耕作地は未除染・除染後ともに除草剤で土壌表面を裸地化した状態にした。流出した土砂を回収し、流出土砂の ^{137}Cs 濃度の測定を行い、 ^{137}Cs 流出量を算出した。比較のため、 ^{137}Cs 濃度を ^{137}Cs 初期沈着量で除して、正規化 ^{137}Cs 濃度を求めた。降水量のデータから USLE による侵食力ファクタを算出し、プロット内の表層の画像解析によって植被率を求めた。さらに、表層土壌を採取し、透水試験を行った。

③ 結果・考察

約3年間の観測年平均土壌侵食量は、耕作地 ($2.0 \text{ kg m}^{-2} \text{ year}^{-1}$) で最大で、未耕作地 ($0.23 \text{ kg m}^{-2} \text{ year}^{-1}$)、除染未耕作地 ($0.22 \text{ kg m}^{-2} \text{ year}^{-1}$)、除染後耕作地 ($0.13 \text{ kg m}^{-2} \text{ year}^{-1}$)、森林 ($0.0028 \text{ kg m}^{-2} \text{ year}^{-1}$)、草地 ($0.0022 \text{ kg m}^{-2} \text{ year}^{-1}$) の順に大きく、概ね植被率が小さいほど大きかった。加重平均正規化 ^{137}Cs 濃度は森林 (0.084 m kg^{-1}) で最も高く、除染後耕作地 (0.019 m kg^{-1} 、※除染前 ^{137}Cs 初期沈着量ベースでは 0.0048 m kg^{-1})、除染後未耕作地 (0.014 m kg^{-1} 、※除染前 ^{137}Cs 初期沈着量ベースでは 0.0035 m kg^{-1})、草地 (0.015 m kg^{-1})、未耕作畑 (0.011 m kg^{-1})、耕作畑 (0.0065 m kg^{-1}) の順であった。年間の ^{137}Cs 流出割合（積算 ^{137}Cs 流出量を ^{137}Cs 初期沈着量で除

した値)は、耕作畑 ($1.3 \text{ \% year}^{-1}$)、除染後未耕作 ($0.30 \text{ \% year}^{-1}$ ※除染前 ^{137}Cs 初期沈着量ベースでは $0.075 \text{ \% year}^{-1}$)、除染後耕作 ($0.25 \text{ \% year}^{-1}$ 、※除染前 ^{137}Cs 初期沈着量ベースでは $0.062 \text{ \% year}^{-1}$)、未耕作畑 ($0.25 \text{ \% year}^{-1}$)、森林 ($0.023 \text{ \% year}^{-1}$)、草地 ($0.0031 \text{ \% year}^{-1}$) の順であった。除染地では、流出土砂の ^{137}Cs 濃度が除染前にくらべてかなり低下する一方で、裸地化・耕作などを行って侵食されやすい状態にすると、流出土砂量の増加によって、未除染の森林や草地よりも ^{137}Cs 流出量が大きくなることを示唆する結果となった。

除染地における土砂および ^{137}Cs 流出量をほかの土地と比較するため、侵食力当たりの流出土砂量および ^{137}Cs 流出量を比較した。除染地では、除染前の植生被覆の多い状況に比べて侵食されやすい一方で、除草後の裸地化した斜面とはほぼ同等の侵食されやすさであることがわかった。 ^{137}Cs 流出量に関しては、流出土砂量との関係と概ね一致するが、除染地では ^{137}Cs 濃度の低下に応じて、除染前に比べて ^{137}Cs 流出量が小さいという結果になった。正規化 ^{137}Cs 濃度平均値は、表層土壌の透水係数が高いほど、低いという傾向が見られたことから、表面流の発生しやすさや土砂運搬力の違いが流出土砂 ^{137}Cs 濃度に影響していると考えられた。今後、観測を継続しながら、表面流の時間変化などの詳細なプロセスに着目して解析を行っていきたい。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

福島における放射性物質の分布状況調査(11)様々な土地利用下にある斜面上での土砂および放射性セシウムの移動 ○脇山義史，恩田裕一，小塚翔平，五十嵐康記，高橋純子，久保 貴旺 2017 年日本原子力学会秋の年会, 2017 年 9 月 札幌.

③ その他

なし

リター層における放射性セシウムのフラックス

栗原 モモ (産業技術総合研究所)

研究成果概要

① 研究目的

森林のリター層におけるセシウムのフラックスは、林内雨によるセシウムのインプット、リターの分解によるアウトプット、土壌生物による土壌層のセシウムのリター層への吸い上げの要素が組み合わさっている。本研究は、これらのフラックスを別々に定量評価することを目的とした。

② 研究方法

2014 年 12 月から 2016 年 11 月まで、福島県川俣町山木屋地区のスギ人工林と広葉樹林（どちらも筑波大調査地）でリターバッグをもちいた分解試験を行った。分解試験では、汚染リターと汚染土壌（F-H 層および鉍質土壌層 5cm）、非汚染リターと非汚染土壌（筑波の森林から移動）を組み合わせた 4 区画の試験系で行い（Figure 1）、各区画のリターバッグのセシウム含有量の増減から、各フラックスを定量評価した。

③ 結果・考察

リター層におけるセシウム動態は、森林タイプによって異なることが示された（Figure 2）。スギ人工林では、林内雨を介してインプットされたセシウムは、一部はリター層にとどまるが、一部はリター層を通過して土壌へ移動した（0.42 ["/year]）。土壌層からリター層へのセシウムの移動は限定的であった（< 0.017 ["/year]）。広葉樹林では、林内雨によるセシウムのインプットはほぼリター層に吸着されていたが（< 0.003 ["/year]）、土壌層からリター層へのセシウムの移動が確認された（0.037 ["/year]）。リターの分解によるセシウムの下方移動は、スギ人工林のほうが広葉樹林より大きく、それぞれ 0.12 と 0.15 (["/year]) であった。

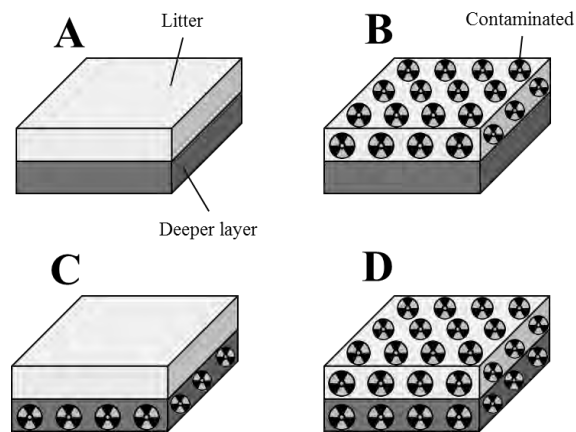


Figure 1 調査区のデザイン。A) 非汚染区、B) 汚染リターと非汚染土壌、C) 非汚染リターと汚染土壌、D) 汚染区。Kurihara et al. (2018), Figure 2

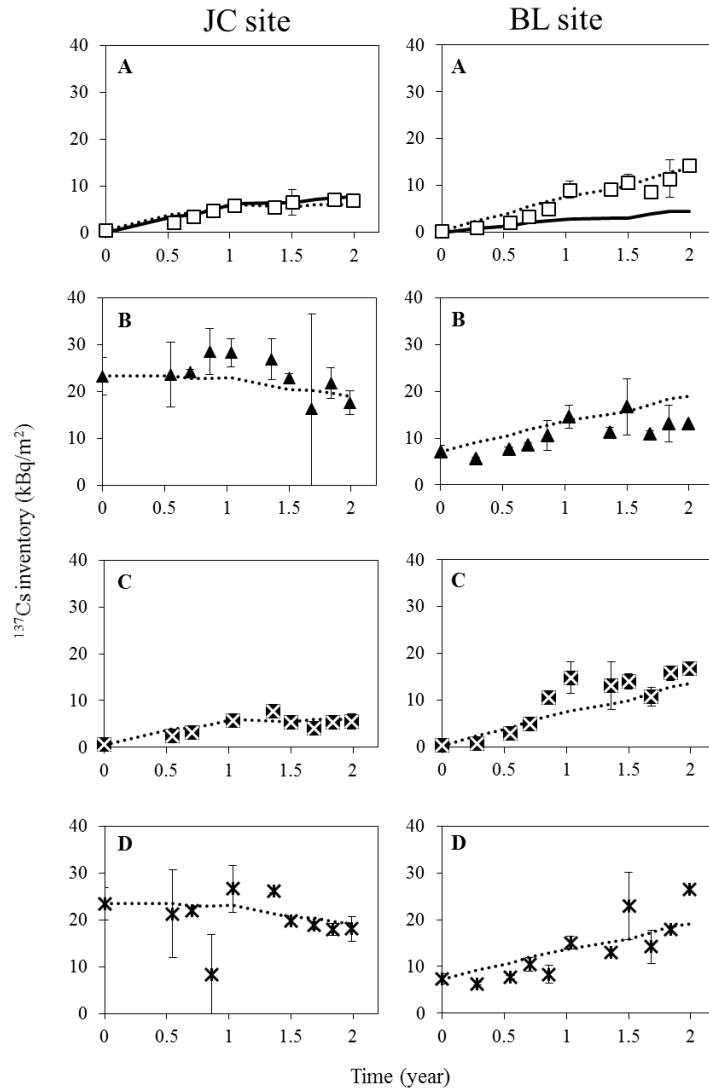


Figure 2 各試験区におけるリターバッグの ^{137}Cs インベントリの時間変化 (2014 年 12 月-2016 年 11 月)。JC はスギ人工林、BL は混交林を示す。Kurihara et al. (2018),

Figure 6

成果発表

① 論文発表

Momo Kurihara, Yuichi Onda, Hiroaki Kato, Nicolas Loffredo, Tetsuo Yasutaka, Frederic Coppin. Radiocesium migration in the litter layer of different forest

types in Fukushima, Japan. Journal of Environmental Radioactivity. In press.
<https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.01.027>

② 学会発表

なし

③ その他

なし

医療系廃棄物として水圏環境へ放出される白金，ガドリニウム，テクネチウム-99 分析法の確立

真塩 麻彩実（金沢大学）

研究成果概要

① 研究目的 白金やガドリニウム、テクネチウム-99 は医療系廃棄物として排出される元素とされている。白金は抗がん剤のシスプラチンに、ガドリニウムは MRI の造影剤に、テクネチウム-99 はがん細胞の検査に用いられており、病院の排水などでは濃度が高くなっていると考えられている。これらの金属元素の測定方法を確立し、河川水中の濃度を測定することで、病院からの医療系廃棄物がどこまで広がっているかを調べることを目的とした。

② 研究方法 陰イオン交換樹脂を用いて濃縮し、ICP-MS を用いて白金を測定する方法 (Suzuki et al. 2014) を改良し、白金と同時にガドリニウムやテクネチウム-99 が測定できるか検討を行う。陰イオン交換樹脂の種類やサンプル濃縮後の洗浄方法を変更することによって、濃縮分離の最適条件を検証する。

③ 結果・考察 途中で所属が変更したこともあり、実験室のクリーンな環境整備から行った。微量金属元素分析が行える環境を整え、実験を行っていった。テクネチウムに関しては弘前大学でやっていただいたが、今のところ正確な分析方法を確立できていない。白金は分析方法が確立できており、都市域の水圏環境中で濃度が高くなっていることが確認された。ガドリニウムに関しては同時分析を始めた段階であり、今後分析方法の確立が期待される。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

A. S. Mashio, H. Obata, T. Gamo, Distributions and biogeochemical cycles of platinum in seawaters at coastal areas around Japan. Goldschmidt2017 (2017/8, Paris)

③ その他

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若手研究セミナー口頭発表 (2017/12, 弘前大学)

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 2017 年度年次報告会口頭発表 (2018/2, 筑波大学)

「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」

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るが、正確な被ばく線量評価を行うには、長時間のコルセミド (分裂停止剤処理) 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。染色体凝縮は細胞分裂時にコンデンシン複合体による DNA の修飾によって主に制御されていることは既に知られており、その修飾の大部分はリン酸化によるものである。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。そこで本研究では染色体凝縮を阻害剤で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するとともに、Dic 解析の効率化を図るため自動解析ソフトウェアに適した染色体像の獲得を目的とする。

② 研究方法

正常培養 B リンパ芽球細胞株 (B cell line) に通常の方法と同様にコルセミドを加え 48 時間培養する。その際、分裂期を中心に機能するリン酸化酵素に対する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観察する。凝縮効果の確認には、2 番染色体の全長と腕幅の比をとり阻害剤未処理の検体との比較を行う。また、染色分体の開きの程度も指標の一つとする。客観的な判断指標として Dic 自動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 B cell line における染色体過凝縮の程度について確認した。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 (図 1)。

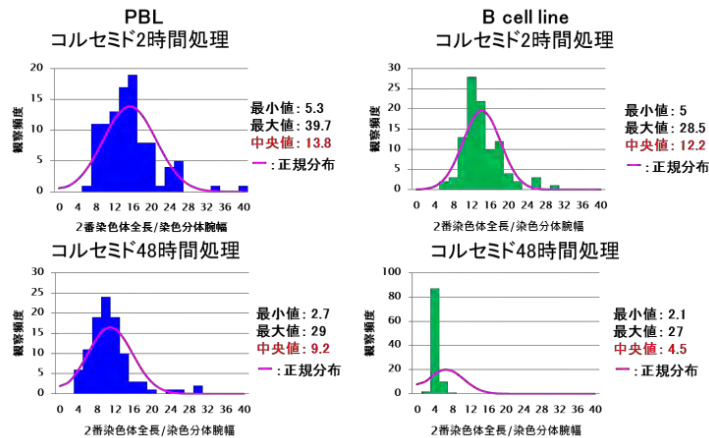


図 1：2 番染色体長/腕幅の比による染色体凝縮値の比較

次に、分裂期関連キナーゼ阻害剤の添加による染色体過凝縮抑制効果について検討した。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 を始め、現在までに 13 種類のキナーゼ阻害剤について単一処理時の効果を検討している。中でも細胞周期の進行に関わるキナーゼ (Wee1, casein kinase 2 (CK2)) や染色体構成分子であるヒストンやセントロメアタンパクの修飾に関わるキナーゼ (Mitogen-activated Protein Kinase 1 (MSK1), Haspin) を阻害することで染色体凝縮抑制効果の兆候が見られた (図 2)。今後は最大の凝縮抑制効果が得られる濃度及び処理時間についての検討が必要である。また、抑制効果の見られた上記 4 種類の阻害剤を軸に複数の阻害剤同時処理による抑制効果についても検討を進める。

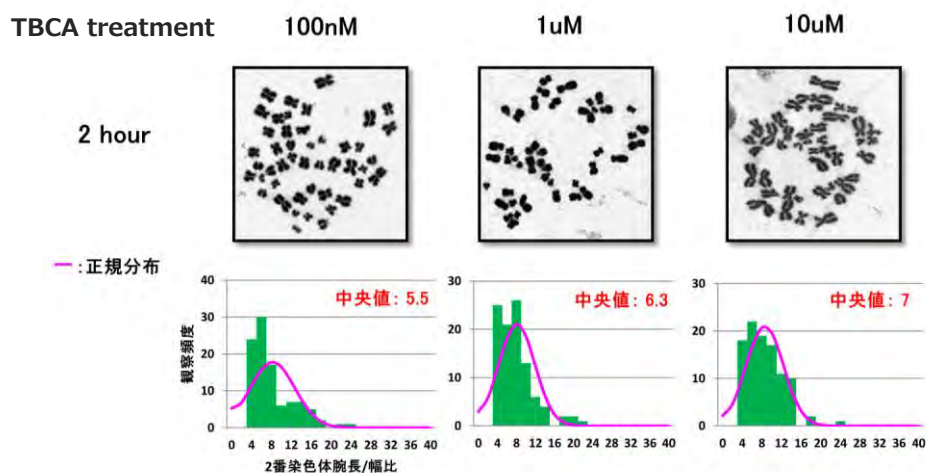


図 2：TBCA (CK2 inhibitor) 2 時間処理による染色体凝縮抑制効果の一例

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

「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」若手共同セミナー

平成 29 年 12 月 18 日（月）15：00～17：00

弘前大学大学院保健学研究科 F 棟 1 階 大学院講義室 I

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の解明

荻部 甚一（茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター）

研究成果概要

① 研究目的

前年度までの研究（荻部 2017）により，請戸川上流の一部地域では陸域環境（土壌）とともに水環境中（河川水，魚骨）においても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 (Sr) が特異的に多く存在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た．一方で，この研究では魚骨中の放射性 Sr 濃度の個体間で大きく変動する傾向が見られ，その要因については今後の検討課題となっていた．そこで，本年度の研究では，前年度と同様の調査および分析を進めると共に，特に，魚骨中の放射性 Sr 濃度の変動要因についての解析を行った．

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，2017 年 4～11 月に実施した．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（2017 年 6 月）を行った．なお，本研究では 2014～2016 年に請戸川の各地点および 2015 年の北海道南部（原発事故の影響がない地点，h, 図 2）で行った調査の試料についても分析対象とした．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，最終的に放射性 Sr（Sr-90）娘核種である 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（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．分析対象の魚類については体サイズ（体長，全長，体重）の計測および耳石を用いた年齢（生息日数）推定を行った．生息日数は魚類（イワナ）の孵化日を 1 月 1 日と仮

定し、魚類の採取日および耳石から得られた個体年齢を用いて、魚類が1月1日に孵化してから採取されるまでの日数として推定した。

③ 結果・考察

土壌および河川水中のSr-90濃度分布については昨年度の研究で報告した結果のとおりであり（苅部 2017）、請戸川上流の一部地域（b, d）では原発事故に由来する放射性Srの存在割合が特異的に高くなった。河川水も同様の傾向があり、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がある。このような環境に生息する魚類（イワナ）の骨に含まれるSr-90濃度は、土壌中のSr-90濃度が高い地点（b, d）において113～754 Bq/kg ash (n=10)、請戸川の他の地点（a, c）で定量下限値以下（39～60 Bq/kg ash）～63 Bq/kg ash (n=7)、青森県内の河川（f）では定量下限値以下（31～82 Bq/kg ash, n=3）、北海道の河川（h）では48～75 Bq/kg ash (n=3) となった。この傾向は土壌、河川水と同じであり、土壌から河川水を経由して最終的に魚類の骨に原発事故由来の放射性Srが移行している可能性を示している。また、地点bおよびdの魚骨中のSr-90の変動幅が他の地点に比べて明らかに大きくなっていた。そこで、地点dにおける魚骨中のSr-90および個体サイズ・年齢（生息日数）の相関関係を調べたところ、両者ともに関係は見られず、各個体の魚骨中のSr-90濃度に影響する要因を特定することはできなかった。今後は、魚類の放射性Sr取り込み過程を明らかにし、魚体（魚骨）中の放射性Sr濃度変動要因の詳細な検討を行う必要がある。また、本研究で実施した魚類の年齢推定結果からは、本研究で扱った魚類の個体年齢がおおよそ1～3歳（n=17）であることも明らかとなった。この結果は、本研究で分析した魚骨中のSr-90が2013～2016年の間に環境水から何らかの経路で魚体（魚骨）に取り込まれたものである可能性を示している。従って、本研究で明らかとなった魚骨中の放射性Sr濃度分布から、本研究の実施以前の水環境中のSr-90濃度水準を推定できる可能性があるといえる。

図表

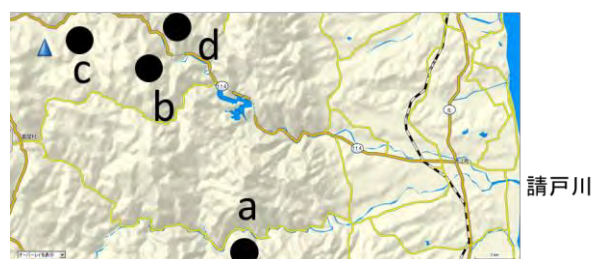


図 1 福島県浪江町を流れる請戸川の流域における調査地点 (a, b, c, d)

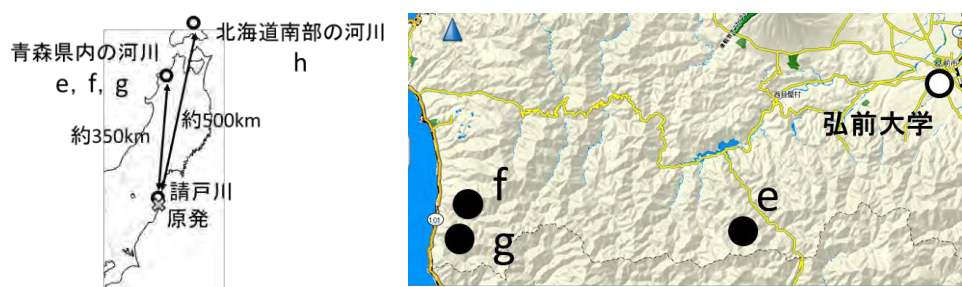


図 2 青森県および北海道における調査地点 (e, f, g, h) (左) と青森県内の調査地点詳細 (右)

引用文献

- 苅部 (2017) : 平成 28 年度 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 共同研究成果報告書
- 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

1, 苅部甚一(2017): 請戸川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, 12 回先進原子力科学技術に関する連携重点研究討論会, 量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所, 群馬県高崎市

2, 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): 請戸川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 6 回環境放射能除染研究発表会, とうほう・みんなの文化センター (福島県文化センター), 福島県福島市

3, 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 (2018): 山地河川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調査，第 52 回日本水環境学会年会，北海道大学，北海道札幌市

③ その他

なし

Vigna 属野生種群が独自に獲得した耐塩性機構の解明：Na⁺吸収特性

および局在に関する解析

内藤健 （農研機構 遺伝資源センター）

研究成果概要

① 研究目的

Vigna 属から選抜された耐塩性野生種の Na⁺の吸収特性や器官・組織ごとの Na⁺蓄積量を評価し、耐塩性機構の解明や遺伝子の単離に結びつけることである。

Vigna 属とはアズキのなかまであり、多様な環境に適応した野生種が多数あることが特徴である。特に耐塩性は種分化の過程で複数回独立に生じており、最上位展開葉の Na⁺蓄積量が種ごとに大きく異なることが明らかにされている (Iseki et al., 2016)。したがって耐塩性の機構もまた種ごとに異なっていると考えられる。

そこで、本研究では植物体の全身の元素局在様式を容易にモニターできる RI トレーサーの手法を用いて、多様性の宝庫である *Vigna* 属野生種群の Na⁺吸収特性および器官・組織ごとの蓄積量を詳細に評価する。

② 研究方法

本研究では耐塩性の *V. riukiensis* および *V. angularis* について、放射性ナトリウム (²²Na) を吸収させて BAS イメージング解析を行うことにより、植物体内における Na⁺の分布を明らかにすることを目指した。続いて、葉の切片を作成して透過型電子顕微鏡で観察することにより、*V. riukiensis* の葉肉細胞に形態学的な特徴がないかどうかを観察した。さらに、ヨウ素デンプン反応を行い、デンプン蓄積を評価した後、SEM-EDX によってデンプン顆粒と Na⁺との相互作用の有無を検証した。

植物体は水耕で3週間栽培した後、100 mM NaCl を含む水耕液に移して3日間栽培した。また、²²Na を使用する際はこのときに添加した。対照区は同様に水耕で2週間栽培した後、新たに調整した NaCl を含まない水耕液に移して3日間栽培した。切片は第2本葉をサンプリングして作成した。

EDX とは、電子線照射によって内殻の電子を励起し、それによって生じた内殻の空孔に外殻から電子が遷移する際に生じる特性 X 線を半導体検出器に導入し、物体を構成する元素と濃度を調べる元素分析手法である。SEM-EDX はこれに走査型電子顕微鏡

を組み合わせたもので、切片内の元素分布を高い解像度で取得することができる。本研究における SEM-EDX の実施条件は以下の通りである。

- 撮影モード：高真空 高加速電圧 (x 10K[~]) モード
- 加速電圧：15 kV
- スポット強度：80
- SEM 信号：SE
- 電子線照射時間：1 画像 1 時間

③ 結果・考察

結果の全体は図 1 に示した。²²Na および BAS イメージングを用いた結果、*V. angularis* が茎に Na⁺を蓄積するのに対し、*V. riukiensis* は葉に多量の Na⁺を蓄積することが明らかとなった。また、ヨウ素デンプン反応実験によって、*V. angularis* では塩ストレスによってデンプン蓄積が誘導されるのに対して、*V. riukiensis* では塩ストレスの有無にかかわらず多量のデンプンが蓄積されることが明らかとなった。さらに、電子顕微鏡による観察の結果、*V. angularis* では塩ストレス処理区でのみ葉緑体内にデンプン顆粒が観察されたのに対して、*V. riukiensis* では対照区・塩ストレス処理区を問わず発達したデンプン顆粒が多数観察された。最後に、SEM-EDX の結果、塩処理区の *V.*

riukiensis では葉緑体において強いナトリウムのシグナルが観察され、さらに拡大すると葉緑体内に形成されたデンプン顆粒の周辺にナトリウムが局在することが明らかとなった。一方、*V. riukiensis* の対照区サンプルや *V. angularis* においてはは

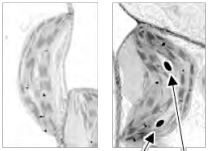
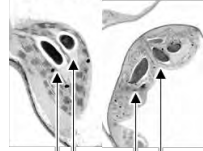
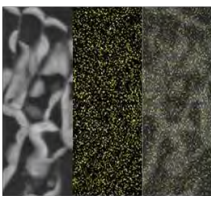
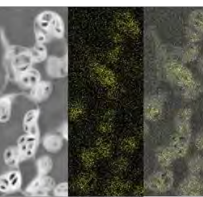
	<i>V. angularis</i>	<i>V. riukiensis</i>
耐塩性	低	高
RI画像 (²² Na)		
ヨウ素デンプン反応	Control +NaCl 	Control +NaCl 
電顕写真	Control +NaCl  デンプン顆粒	Control +NaCl  デンプン顆粒
分析電顕 (SEM-EDX)	 電顕 Na分布 重ね合せ	 電顕 Na分布 重ね合せ

図 1. アズキおよびヒナアズキのナトリウム局在およびデンプン顆粒の形成に関する比較写真。

ナトリウムシグナルはほとんど観察されなかった。したがって、*V. riukiensis* は葉緑体内に形成したデンプン顆粒にナトリウムを吸着することで、細胞質のナトリウム濃度を低く保っていると考えられた。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

第3回農学中手の会研究集会（2017年12月）「適応の選択肢は幾つある」内藤健

コシアブラのセシウム吸収・蓄積におけるカリウムと菌根菌形成の関係

竹中 千里（名古屋大学）

研究成果概要

① 研究目的

コシアブラは、2011 年の福島第一原子力発電所事故で放出された放射性セシウムに対して高い蓄積能力が報告されている木本植物である。一方で、コシアブラはその新芽が山菜として食されており、いまだに高い放射性セシウム濃度のために、福島県では出荷停止になっていることでも知られている。その蓄積性を制御しているメカニズムを解明することは、汚染された福島県の森林の利用再開にむけて非常に重要である。また、セシウムは同族元素であるカリウムと化学的性質が似ており、カリウムの施肥によって植物のセシウム吸収が抑制されることが報告されている。そこで本研究では、コシアブラにおけるセシウム吸収・蓄積メカニズムを明らかにすることを目的とし、先行研究で関係性が示唆されている AM 菌に注目した。

② 研究方法

実験 1. ポット実験による ^{137}Cs 吸収への AM 菌の影響の評価

ナイロンメッシュを用いて Root-Compartment を作成し、 ^{137}Cs を含む土壌に植物根は侵入できないが AM 菌糸は侵入できる環境を作成した。カリウムによるセシウムへの影響をみるため、無添加区(Ctl 区)、植物根が存在する土壌に K を添加した区(RK 区)、AM 菌のみが存在する土壌に K を添加した区を設定(HK 区)、生育後に高純度 Ge 半導体検出器により植物内の ^{137}Cs 濃度を測定した。また、AM 菌の活動の評価のため孢子数を測定した。

実験 2. リアルタイムイメージング装置を用いた ^{137}Cs 吸収の可視化

実験 1 同様に Root-Compartment を作成した根箱にてコシアブラ苗木を生育した。その後、菌糸のみが存在する土壌に ^{137}Cs を添加し、筑波大学環境動態センターが所有する GREI

(Gamma-ray emission imaging) によってリアルタイムイメージング装置を用いて、生育したコシアブラの根から地上部までの ^{137}Cs の分布の可視化を行った。リアルタイムイメージングを行った後、イメージングプレートによるオートラジオグラフ撮影及び高純度 Ge 半導体検出器による測定を行い、各器官の ^{137}Cs 存在量を評価した。

③ 結果・考察

実験 1. ポット実験による ^{137}Cs 吸収への AM 菌の影響の評価

3 処理区いずれについても ^{137}Cs の吸収が確認された。また、 ^{137}Cs 吸収量は RK 区>HK 区>Ctl 区であり、孢子数は Ctl 区に比べ RK 区、HK 区で多かった。このことから、AM 菌による ^{137}Cs

の吸収が確認され、また、カリウムの添加によって植物根系のバイオマスが増加していたことから、根量の増加にともなう AM 菌の活動が活発になり、 ^{137}Cs の吸収量が増加することが示唆された。

実験 2. リアルタイムイメージング装置を用いた ^{137}Cs 吸収の可視化

GREI によるコシアブラの ^{137}Cs の吸収・移行を観察することはできなかった。これは、土壌培地で実験を行ったことが原因であると考えられる。一方、オートラジオグラフ撮影及び高純度 Ge 半導体検出器による測定では地下部、地上部のいずれにおいても ^{137}Cs が検出されたことから、実験 1 の結果と同様に、菌根菌によるコシアブラの ^{137}Cs 吸収への関与が額人された。今後の展望として、土壌ではなく、寒天培地や液体培地を用いるなどの GREI による撮影により適した条件によるリアルタイムイメージング撮影を行うことがあげられる。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

特記無し

帰還困難区域の土壌中に残留する放射性物質の正体解明

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

福島県内における避難指示が進む今日、その周辺環境中に残留する放射性物質について、物理・化学性状の正確な理解が不可欠である。そこで本研究では、福島県内の帰還困難区域の土壌から、福島第一原発事故由来と考えられる放射性粒子を単離し、大型放射光施設 SPring-8 におい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を行った。化学組成・化学状態を 1 粒子レベルで明らかとし、電子顕微鏡による形態観察、およびガンマ線スペクトル測定の結果と合わせて、詳細な物理・化学性状の解明を目指した。これまでの研究で、土壌中に残留する放射性物質は異なる性状を有するいくつかのグループに分けられることが明らかになっているが、本研究ではこれまでに報告のない新しい性状を持つ粒子の探索も目的とした。

② 研究方法

2016 年度に研究代表者の所属機関を含む 18 機関で実施された、福島県内の帰還困難区域を中心とした 105 地点での土壌採取プロジェクトで得られた土壌試料のうち、研究代表者の所属機関が採取した 1 地点の土壌試料を対象とした。オートラジオグラフィにより放射性粒子を分離し、1 粒子単位で Ge 半導体検出器によるガンマ線スペクトル測定と、電子顕微鏡による形態観察を行った。その上で各粒子を SPring-8 へと持ち込み、分光分析ビームライン BL37XU において蛍光 X 線分析 (SR- μ -XRF) により化学組成を、X 線吸収端近傍構造分析 (SR- μ -XANES) により一部の金属元素の化学状態を、X 線回折分析 (SR- μ -XRD) により結晶構造を 1 粒子単位で明らかにした。分析は全て非破壊で実施した。SPring-8 での放射光実験は社会・文化利用課題として、2017 年度の前期 (2017A1719)、後期 (2017B1757) でそれぞれ実施された。

③ 結果・考察

本研究により 5 点の放射性粒子 (A~E) を土壌試料から分離した。形状は球形 (A・E) と不定形 (C・D・E) の 2 種類が見られたが、粒子自体の大きさはいずれも 50 μm 前後であった。各粒子の ^{137}Cs 放射能を 2011 年 3 月当時に減衰補正した結果、球形粒子 2 点では約 20 Bq、不定形粒子 3 点は約 2 Bq となり、同程度の大きさであるにもかかわらず、異なる傾向が示された。しかし各粒子の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を算出したところ、全ての粒子において約 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、いずれも事故により 1 号機から放出された放射性物質であると推定される。

SR- μ -XRF により各粒子の化学組成を分析した結果、研究代表者が過去に報告した 1 号機由来と考えられる放射性粒子と定性的に組成が一致した。その組成的特徴としては、Sr や Ba など還元雰囲気下で揮発性が高くなる元素を多く含む点が挙げられる。この点は、2 号機由来と考えられている「Cs ボール」などの粒子に酸化雰囲気下で揮発性が高くなる Rb などが多く含まれることと対照的である。また粒子 B においては、球形の粒子本体とそれを覆う殻部分では組成に顕著な差が見られ、殻部分は Fe, Cr, Mo を多く含有していた。これらの元素は一部のステンレス鋼の主成分であることから、炉の鋼材由来である可能性が高い。同様に他の粒子においても、Fe ないし Fe と Zn の両方が局所的に濃集している点（以下、「濃集点」と記載）が存在し、Mo などの一部金属もこれに随伴する形で分布していた。また粒子 B 表面では U が高濃度かつ局所的（数 μm の点）に検出され、この粒子の生成当時、炉内が不十分な熔融状態であったことを示唆している。

SR- μ -XANES により、粒子中の Fe および Zn の化学状態を分析した結果、球形の粒子 A・B と、不定形の粒子 C・D・E とで異なる傾向が示された。粒子 A・B においては、粒子本体部分と濃集点部分の双方で共通して酸化物 $(\text{Zn,Fe})\text{Fe}_2\text{O}_4$ の存在が示された。一方、粒子 C・D・E は粒子本体、濃集点ともにガラス中のイオンとして存在していた。ただし粒子 C については、濃集点中の Zn の一部が硫酸塩として存在している可能性も示された。先行研究で分析された 1 号機由来の放射性粒子については、粒子本体部分はガラス、濃集点部分では酸化物であることが SR- μ -XANES から示されていたが、今回得られた 5 粒子の結果はこれとは一致しないものである。

これらの粒子について実施した SR- μ -XRD の結果、結晶性物質に由来する回折ピークが多数検出された。現時点では全てのピークの帰属は完了していないが、濃集点については上述の $(\text{Zn,Fe})\text{Fe}_2\text{O}_4$ が粒子 A・B において同定され、SR- μ -XANES の結果を支持した。また粒子 C～E の濃集点では、d 値が約 3.34 Å となる回折ピークが共通して検出されたが、これは α -石英の最強線と一致するものである。ケイ酸塩化合物が同定されたことは、これらの粒子の主成分であるガラスのソースを考えるうえできわめて重要である。なおセメント相 (C_3S , C_3A など) に帰属される回折ピークは現時点までに同定されていない。

以上の結果をまとめると、帰還困難区域の 1 地点で採取された土壌試料から 5 点の放射性粒子を分離し、放射光マイクロビーム X 線分析を中心とした研究から、その物理・化学性状の多様性を明らかにした。いずれも原発 1 号機由来であると考えられ、還元雰囲気下で揮発性が高くなる重元素に富む点、 μm オーダーでの分布の不均一性などは、先行研究での指摘同様、これらの粒子が 1 号機の水素爆発で生成・放出されたものであることを示唆している。また、Cr, Fe, Mo の粒子内分布に高い類似性が見られ、これらの元素の濃集点では Zn が固溶した Fe_3O_4 相を同定したことから、炉の鋼材として使用された Mo 含有ステンレス鋼と、メッキ等に含まれる Zn とが反応したものである可能性が示された。さらに主成分が必ずしもガラス相ではない、あるいは酸化物に富む粒子の存在が明らかとなり、土壌中に残留する不溶性放射性粒子の挙動が必ずしもケイ酸塩

ガラスと類似しない可能性を示した。また複数の粒子から α -石英と思われる回折線を検出され、これは炉内における Si の起源を考えるうえで重要な知見である。しかしながら、 α -石英は高温高圧下で異なる結晶相に変化することが知られているため、今回検出された α -石製が本当に粒子の炉内生成に関係しているか、より直接的に言えば放出後に環境中で付着したものである可能性についても十分に検討する必要がある。このように、帰還困難区域の 1 地点から採取された土壌であっても、そこに含まれる不溶性の放射性粒子はきわめて多種多様な性状を有することが、化学的に実証された。粒子の物理・化学性状は環境中での挙動を大きく左右することから、帰還困難区域の土壌中に残留する放射性粒子について、さらなる物理・化学的理解が必要である。一方で、こうした性状に関する知見は、環境中からの放射性粒子の効率的な分離の考案においても有益である。例えば、少量の Zn が固溶した Fe_3O_4 はきわめて強い磁性を持つため、本研究で発見された粒子 A・B のような Zn 固溶 Fe_3O_4 に富む粒子であれば、いわゆる「磁力選鉱」の技術が有効になる可能性も考えられる。

成果発表

① 論文発表

執筆準備中

② 学会発表

- 1) 小野崎 晴佳・鈴木 慧花・小野 貴大・阿部 善也・中井 泉・足立 光司・五十嵐 康人・末木 啓介：「放射光マイクロビーム複合 X 線分析を用いた福島第一原発 1 号機由来諸放射性粒子の化学性状分析」『第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム』2018 年 1 月 10 日、つくば国際会議場（茨城）、ポスター発表。

③ その他

特になし

放射性セシウムを含んだエアロゾル成長過程に関する

メカニズムに関する研究

大槻 勤 (京都大学原子炉実験所)

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原子力発電所事故において環境中に放出された放射性セシウム等の放射性物質が、どのような過程を経て、どのような形態で放出されたのかを解明する。本協同研究では、放出された放射性物質のうち不溶性のエアロゾル粒子に着目し、福島第一原子力発電所近傍の未除染地区で採取した土壌試料から不溶性の放射性物質を選別し、その形態について分析を行う。この分析の結果をもとに、不溶性の放射性物質の放出過程や放出時の炉内外の状況を推測する。本協同研究は、これらの物質に経験のある筑波大アイソトープ環境動態研究センターのグループと協同で探索及び成分分析研究を行う。京大原子炉においては、これらの不溶性物質の効率的な選別方法の開発、電子顕微鏡(SEM)およびエネルギー分散型X線分析(EDX)を用いた形状および成分の分析を行い、炉内事象の解析に役立てる。

② 研究方法

2016年に福島第一原子力発電所近傍の未除染地区での土壌サンプリングを行った。その中から比較的高放射能濃度の土壌サンプルから、イメージングプレート(IP)とSEMを用いて、不溶性のホットパーティクル(微粒子)を見つけ出す。見つけた微粒子を、Ge検出器を用いてCs-134, Cs137等の比放射能を測定する。またEDXにより成分分析を行う。

③ 結果・考察

対象とする粒子が不溶性であることを利用し、以下のような、土壌試料からの放射性粒子を効率的に選別する方法を開発した。

まず、IP を用いて土壤試料中の放射能分布を測定し、放射能濃度が局所的に高い地点（スポット）を識別した。次にスポット周辺の土壤試料を数 mL の水に懸濁させ、懸濁液をスポイトを用いて平滑なアルミニウム板上に分割して滴下、乾燥する。アルミニウム板上の放射能分布を IP にて測定することで、スポットの位置を再度特定し、その付近を再び水に懸濁させてアルミニウム板上に分割して滴下、乾燥する。この操作を繰り返すことで土壤粒子の個数濃度を減少させ、放射性粒子を選別した。

上記の選別により得られた放射性粒子を SEM/EDX により分析した結果、土壤試料中には数 μm の大きさの不溶性放射性微粒子と数百 μm から数 mm の大きさの放射性粒子が存在することがわかった。大きな放射性粒子については、EDX による分析で得られた元素組成が試料採取地点周辺の土壤の元素組成とほぼ同一であったため、可溶性の放射性セシウムを内包した土壤粒子であると考えられる。一方、小さい放射性微粒子については、元素分析の結果から主成分はケイ酸塩であると考えられ、0.3~0.7% と有意な量でのセシウムの含有が確認された。セシウム以外には鉄、アルミニウムなどが含まれており、これまでに報告されている不溶性の放射性微粒子と似た元素組成を持つことがわかり、目的としている放射性微粒子を選別できたことを確認した。これらの放射性微粒子に関しては、Ge 検出器により放射能の定量も行った。

また、前述のように IP を用いて放射性粒子の選別を行った際に、本共同研究にて対象としている数 μm の大きさの不溶性放射性微粒子以外に、放射性セシウムを内包する土壤粒子も多く土壤中に存在することが明らかとなった。土壤試料中にこの土壤粒子が存在すると、IP を用いて目的とする放射性微粒子を選別する際の妨害となる。そこで、IP によって得られた放射能分布の特徴から放射性微粒子と土壤粒子を識別する方法についても開発を試みた。その結果、土壤試料に含まれる粒子を IP に密着させて測定し、得られた放射能分布をモデル関数でフィッティングし、得られるパラメータを基準として識別を行う手法の開発に成功した。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

K. Takamiya, Y. Nishizawa, Y. Shibahara, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki
“Large-Size Insoluble Radioactive Particle in Soil near the Fukushima Daiichi
Nuclear Power Plant”, 9th International Symposium On Radiation Safety and
Detection Technology (ISORD-9), Nagoya, Jul/12/2017.

二上文也、高宮幸一、関本俊、沖雄一、大槻勤 「福島土壌試料からの不溶性放射性
微粒子の選別法の開発」, 第 19 回環境放射能研究会, つくば, Mar/13-14/2018

③ その他

高宮幸一、二上文也、関本俊、沖雄一、大槻勤 「京大炉における不溶性粒子探索の取
り組み」, 京都大学原子炉実験所 専門研究会 「福島原発事故で放出された放射性物
質の多面的分析」, 熊取, Dec/4/2017

Decontamination of radionuclide contaminated solids using biodegradable chelators coupled with molecular recognition

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

Summary of the Project

The earthquake-tempted tsunami initiated by a magnitude 9.0 Tōhoku earthquake besieged a vast area in the Tohoku and Kanto region of Japan, which included many farmlands. The occurrence of sandy- or muddy-type tsunami deposits in distributed areas later accumulated radionuclides released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Besides, the properties of soils beneath the tsunami deposits were assumed to be altered due to the compression of surface soil because of deposition of earth and sand, and infiltration of the chemicals eluted from the deposits (*Soils Found.* 2012, 52, 856; *Int. J. of GEOMATE* 2011, 1, 44; *Environ. Health Perspect.* 2011, 119, a290). Although the waste-mixed soil properties have spatial and temporal variations, the geo-environmental contamination generated a considerable volume of polluted solids that should be decontaminated. The proposed research aimed to evaluate the potential of chelator-assisted washing remediation of the radionuclide-contaminated solid waste generated from the decontamination activity in the Fukushima region of Japan using both biodegradable and non-biodegradable chelators.

List of Publication

1. Z.A. Begum, I.M.M. Rahman and H. Hasegawa, Complexation behavior of Sr^{II} and geochemically-related elements (Mg^{II} , Ca^{II} , Ba^{II} , and Y^{III}) with biodegradable aminopolycarboxylate chelators (GLDA and HIDS), *Journal of Molecular Liquids*, Vol. 242, pp. 1123-1130, 2017. [<http://dx.doi.org/10.1016/j.molliq.2017.07.126>].
2. H. Sawai, I.M.M. Rahman, C. Lu, Z.A. Begum, M. Saito and H. Hasegawa, Extractive decontamination of cesium-containing soil using a biodegradable aminopolycarboxylate chelator, *Microchemical Journal*, Vol. 134, pp. 230-236, 2017. [<http://dx.doi.org/10.1016/j.microc.2017.06.010>].

セシウム低吸収水稻における ^{137}Cs の吸収および動態解析

頼 泰樹 (秋田県立大学)

研究成果概要

① 研究目的

東日本大震災に起因する福島第一原発事故で放出された放射性セシウムの作物への移行阻止は日本の大きな課題である。セシウムとカリウムは性質がよく似ているため、長らくカリウムの輸送経路を通して植物はセシウムを吸収すると考えられてきた。しかしながら、カリウムは植物の生育にとって非常に重要な栄養であることから吸収経路が数多く存在し、どの経路によってセシウムが取り込まれているのかは今まで明らかにされていなかった。本研究ではトレーサーとして ^{137}Cs と $^{42,43}\text{K}$ をセシウムの吸収変異のイネ突然変異系統に与えトレーサー実験を行い、根からのセシウム吸収および植物体内を輸送する主要経路を特定することを目指した。

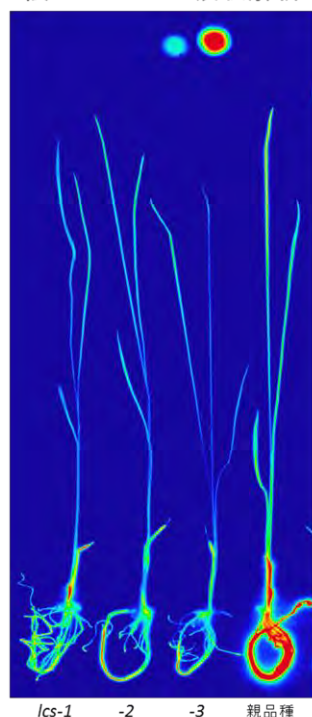
② 研究方法

突然変異誘発により独自に作成したセシウム低吸収変異系統 (*lcs1* ~ 3 ; 遺伝子解析の結果 *oshak1* と判明) および根で発現する K 輸送体の Tos ライン (*osakt1* など) の水稻幼植物に ^{137}Cs を与え、一定時間経過後にイメージングプレート (IP) で ^{137}Cs の体内分布を画像解析し、植物体内におけるセシウム動態を可視化した。また吸収実験後の各部位ごとに組織を採取してガンマカウンタによりセシウム吸収量を定量した。また同様な手法により $^{42,43}\text{K}$ をトレーサーとして植物体へのカリウム吸収および輸送について解析した。

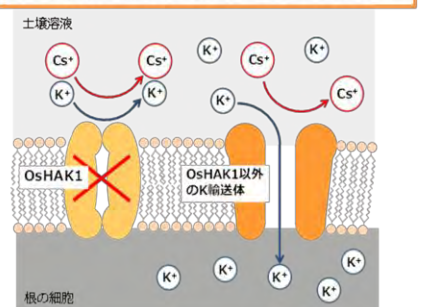
③ 結果・考察

遺伝子解析と合わせ、カリウム輸送体の一つ (*OsHAK1*) が、イネの根が土壌からセシウムを吸収するときの最も重要な輸送経路であり、その他の輸送体を経由した吸収は極わずかにすぎないことが明らかになった。トレーサー実験では根にほとんどセシウムが取り込まれないことが明らかにできた。また根で発現しているとされているその他の K 輸送体の Tos ラインについてはセシウムの根への取り込み量、地上部への移行量ともに大きな変化は見られず、セシウムの地上部輸送にかかわる輸送体は同定できなかった。

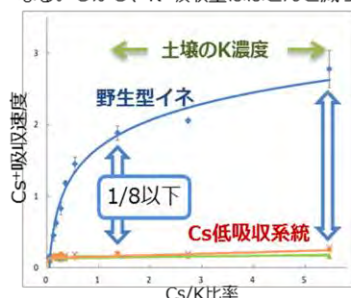
根への¹³⁷Csの吸収解析



Cs低吸収系統の根へのCs⁺とK⁺の取りこみ

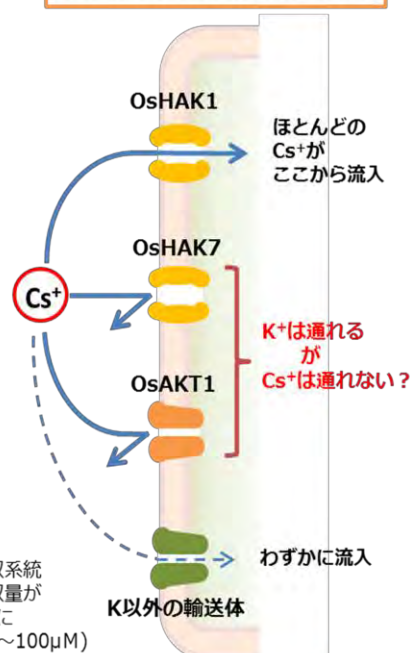


OsHAK1のノックアウトでCs⁺は取り込まれなくなる。しかし、K⁺吸収量はほとんど減らない。



Cs低吸収系統はCs吸収量が1/8以下に(K濃度0~100μM)

イネの根表面のCs吸収経路の予測



これまでの研究で明らかにしたイネの根へのCs吸収経路

成果発表

① 論文発表

Rai,H., Yokoyama,S., Satoh-Nagasawa,N., Furukawa,J., Nomi,T., Ito,Y., Fujimura,S., Takahashi,H., Suzuki,R., Mannai,Y.E.L., Goto,A., Fuji,S., Nakamura,S., Shinano,T., Nagasawa,N., Wabiko,H. and Hattori,H. 2017. Cesium uptake by rice roots largely depends upon a single gene, HAK1, which encodes a potassium transporter. Plant and Cell Physiology, vol.58(9), p1486-1493

② 学会発表

頼 泰樹、横山 咲、佐藤奈美子、古川 純、能美多希子、伊藤那香、森田祥司、藤村恵人、後藤明俊、信濃卓郎、永澤信洋、我彦廣悦、中村進一、服部浩之 セシウム低吸水稲のCs/K吸収特性と現地試験結果 日本土壌肥料学会 2017年度仙台大会

③ その他

陸水域における $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を用いた 放射性ヨウ素と放射性セシウムの動態解析

松中哲也（金沢大学環日本海域環境研究センター）

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って放出された長寿命の ^{129}I （半減期：1,570万年）は8.01 GBqと推定され、高い化学的活性や ^{137}Cs （半減期：30.1年）との挙動の違いなどの観点から、陸域から海洋環境にわたる移行挙動を長期的に把握することが必要な核種の1つである。本研究では、放射能汚染が比較的強かった福島県相馬郡飯舘村から南相馬市を通り太平洋に注ぐ新田川を対象とし、懸濁物質と溶存物質の ^{129}I 濃度、 ^{137}Cs 濃度、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比、および ^{129}I と ^{137}Cs の K_d 値に着目して事故起源 ^{129}I と ^{137}Cs の動態について以下2点を明らかにすることを目的とした。

- 1) 河川における懸濁態と溶存態の ^{129}I と ^{137}Cs の挙動
- 2) 2013–2016年にわたる河川における粒子状 ^{129}I と ^{137}Cs の月間フラックス変動

② 研究方法

新田川の上流域は、原子力発電所から北西へ30–40 kmに位置し、600–3000 kBq m^{-2} の ^{137}Cs が沈着した比較的汚染の強い地域である。試料は、上流から下流にわたる5つの地点において、2014年6月の出水時に採取した懸濁物質と溶存物質、および河口から上流へ5.5 kmの原町地点において、懸濁物質サンプラーを用いて2013年から2016年かけて約1ヶ月ごと連続的に採取した懸濁物質である。乾燥・粉碎させた懸濁物質（0.5 g）中のヨウ素は、熱加水分解法にて気化させた後、アルカリ溶液中にトラップした。これらのアルカリ溶液、および0.45 μm のフィルターでろ過した河川水1 Lに対して、2 mgのヨウ素キャリアを加えた後、ヨウ素を溶媒抽出・逆抽出で精製し、硝酸銀を添加してヨウ化銀のターゲットを作製した。筑波大学のAMSでターゲットの $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を測定し、ICP-QQQ-MSを用いて試料の ^{127}I 濃度を測定した後、懸濁態と溶存態の ^{129}I 濃度を算出した。筑波大学および福島県環境創造センターで測定された ^{137}Cs と合わせて $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を算出し、放射性核種の動態解析を行った。また、原町地点で観測された月平均の濁度と流量から懸濁物質のフラックスを求め、粒子状 ^{129}I と ^{137}Cs の月間フラックスを算出した。

③ 結果・考察

1) 新田川における懸濁態と溶存態の ^{129}I と ^{137}Cs の挙動

上流から下流にわたる 5 地点において、2014 年 6 月の出水時の懸濁態と溶存態の ^{129}I 濃度は、 $2.9\text{--}7.6\text{ mBq kg}^{-1}$ と $330\text{--}440\text{ nBq L}^{-1}$ であった。一方、懸濁態と溶存態の ^{137}Cs 濃度は、 $2.3\text{--}27\text{ mBq kg}^{-1}$ と $42\text{--}91\text{ nBq L}^{-1}$ であった。上流から下流にかけて、全 ^{129}I に対する懸濁態 ^{129}I の割合が31%から91%へ増加し、全 ^{137}Cs に対する懸濁態 ^{137}Cs の割合が76%から99%へ増加した。また、懸濁物質と溶存物質の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、 $1.6\times 10^{-7}\text{--}1.3\times 10^{-6}$ と $(4.1\text{--}7.8)\times 10^{-6}$ であった。出水時における懸濁物質の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、事故後の福島県における一般的な表層土壌の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比($1.0\times 10^{-7}\text{--}1.6\times 10^{-6}$)と一致し、原子炉内の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比(3.0×10^{-7})と比較的近い値を示したのに対し、溶存物質の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比はこれらより1桁程度高かった。加えて、懸濁物質と溶存物質の ^{129}I 濃度を基に算出した ^{129}I の K_d 値は $9.0\times 10^3\text{--}2.0\times 10^4$ であり、 ^{137}Cs の K_d 値($5.6\times 10^4\text{--}3.8\times 10^5$)と比べて1–2桁低かった。従って、新田川において ^{129}I は ^{137}Cs と比べて懸濁態から溶存態へ移行しやすいと考えられる。

新田川下流域の原町地点において、2013年に月別で採取した懸濁物質の ^{129}I 濃度、 ^{137}Cs 濃度、および $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、 $0.78\text{--}4.1\text{ mBq kg}^{-1}$ 、 $13\text{--}32\text{ kBq kg}^{-1}$ 、および $3.2\times 10^{-8}\text{--}1.3\times 10^{-7}$ の範囲にあった。懸濁物質の ^{137}Cs 濃度と各月の最大濁度との間には関連性が認められなかったが、 ^{129}I 濃度と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比はそれぞれ最大濁度と正の相関関係にあった($R^2 = 0.90, 0.96$)。特に最大濁度が高かった2013年9月と10月における懸濁物質 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は $(1.0\text{--}1.3)\times 10^{-7}$ であり、前述した一般的な表層土壌と原子炉内の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比に近い値を示した。従って、新田川下流域の懸濁物質は、出水時において表層土壌と同じ $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比をもって短期間で上流域から運ばれたのに対し、平水時において比較的長い時間をかけて運ばれる間に、 ^{129}I の溶出によって $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が低くなった可能性が考えられる。

2) 2013–2016年にわたる新田川における粒子状 ^{129}I と ^{137}Cs の月間フラックス変動

2013–2016年にわたる粒子状 ^{129}I と ^{137}Cs の月間フラックスは、 $0.024\text{--}43\text{ kBq month}^{-1}$ と $0.70\text{--}330\text{ GBq month}^{-1}$ の間で変動し、降水量が多い時期に高くなる傾向にあった。特に2015年以降、粒子状 ^{129}I と ^{137}Cs のフラックスが低下した原因の1つとして、2013年10月から計画的に進められてきた上流域の飯館村農地における除染の影響があると考えられ、その関連性について検討している。

成果発表

① 論文発表

Matsumura, M., Sasa, K., Matsunaka, T., Sueki, K., Takahashi, T., Matsuzaki, H. (2018) Temporal variation of iodine-129 in rainwater at Tsukuba before and after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *Geochemical Journal*, 52, doi:10.2343/geochemj.2.0505.

② 学会発表

松中哲也, 笹公和, 高橋努, 恩田裕一, 谷口圭輔, 脇山義史, 末木啓介 「福島河川の 2013 年から 4 年間にわたる粒子状ヨウ素 129 のフラックス」, 2017 年放射化学学会年会・第 61 回放射化学討論会, つくば, 2017. 9. 6–9.

③ その他

Matsunaka, T., Sasa, K. (2018) Distribution and migration of radioiodine in terrestrial environment, Chapter 6.4, *Radioactive Environmental Pollution from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident: --Earth Science Perspectives--*, Cambridge Univ. Press, in press.

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、林 菜穂、南 光太郎（茨城大・理）、足立 光司、五十嵐 康人（気象研）

古川 純（筑波大学）

研究成果概要

① 研究目的

（株）東京電力福島第一原子力発電所の事故により放出され、地表や植生に沈着した放射性セシウムは、何らかの形で一部が再飛散により大気中に放出され、拡散・移行している。観測により、森林の近傍では大気中の放射性セシウムが夏季にかけて増加する季節変化を示すことが明らかになり、この時期に大気中に浮遊する粒子の多くは植生から放出されたと思われる粗大有機物粒子であるため、それがこの季節の放射性セシウム再飛散をひき起こす担体となっている可能性が示唆されている。また大気粒子サンプルを純水抽出すると 60-90%の放射性セシウムが水中に脱離することが分かった。

本共同研究では、今年度、以下の 2 つを明らかにすることを目標とした。A：夏季に大気中に浮遊する粗大有機物粒子のかなりの部分を占めると考えられるキノコ胞子に含まれる放射性セシウムのうち純水抽出により脱離する割合を明らかにする。B：この大気粒子から純水中に脱離する放射性セシウムが植物に大部分吸収されるかを明らかにする。

② 研究方法

上記 A で示した、キノコ胞子に含まれる放射性セシウムのうち純水抽出により脱離する割合を明らかにするため、以下の手順で研究を実施した。

1) 福島県浪江町の観測サイト周辺でキノコを採集し、それらが大気中に放出した胞子をテフロンフィルタ上に捕集する。2) 捕集した胞子サンプルの Cs137 放射能を Ge 検出器で測定し、その後そのサンプルを純水 150ml 中に入れ超音波振動をかけ純水抽出を行い、ろ過した残留物の Cs137 放射能を再び Ge 検出器で測定する。3) さらに 80℃に熱した過酸化水素溶液でも同様に抽出とその後の Cs137 放射能を行った。

③ 結果・考察

福島県浪江町の観測サイト周辺で、数回キノコ採集を行った。そのうち、2016 年 10 月および 2017 年 10 月に採取したヌメリイグチ、および 2017 年 9 月に採取したカキシメジとイタチダケ

から胞子を捕集することに成功した。フィルタに採取した胞子の Cs137 放射能および純水と過酸化水素水抽出で脱離した割合を下表に示す。本研究により、キノコ胞子に含まれる Cs-137 のうち純水抽出により脱離する割合は約 50%から 70%であり、夏季から秋季の大気粒子中の Cs-137 の割合とほぼ一致し、キノコ胞子が Cs-137 の大気再飛散で大きな寄与をしているという推定を支持する結果が得られた。

キノコ採集日	キノコ種名	Cs-137 放射能 (Bq)	純水抽出割合 (%)	過酸化水素水抽出割合 (%)
2016. 10. 25	ヌメリイグチ	7.87±0.11	47	40
2017. 9. 26	カキシメジ イタチダケ混合	2.28±0.13	51	35
2017. 10. 12	ヌメリイグチ	2.29±0.14	70	29

成果発表

① 論文発表

Kinase T., K. Kita., Y. Igarashi, K. Adachi; K. Ninomiya, A. Shinohara, H. Okochi, H. Ogata, M. Ishizuka, S. Toyoda, K. Yamada, N. Yoshida, Y. Zaizen, M. Mikami, H. Demizu, and Y. Onda,(2018) The seasonal variations of atmospheric 134,137Cs activity and possible host particles for their resuspension in the contaminated areas of Tsushima and Yamakiya, Fukushima, Japan, Progress in Earth and Planetary Science, 20185:12, doi.org/10.1186/s40645-018-0171-z

② 学会発表

Y. Igarashi, K. Kita, T. Maki, T. Kinase, N. Hayashi, K. Adachi, C. Takenaka, M. Kajino, M. Ishizuka, T. T. Sekiyama, Y. Zaizen, K. Ninomiya, H. Okochi, A. Sorimachi, Temperate forest as big bioaerosol sources?: Implication from atmospheric Fukushima radiocesium studies, 2017 Symposium on Atmospheric Chemistry and Physics at Mountain Sites (ACPM2017), Nov 7-10, 2017, Tokinosumika(Gotemba-City, Shizuoka)

K. Kita, N. Hayashi, K. Minami, M. Kimura, Y. Igarashi, K. Adachi, T. Maki, M. Ishiduka H. Ohkochi, J. Furukawa, K. Ninomiya, and A. Shinohara, Bioaerosols sampled in Fukushima mountainous region and contribution to the radio-caesium resuspension, 2017 Symposium on atmospheric chemistry and physics at mountain sites (ACPM2017), Nov 7-10, 2017, Tokinosumika(Gotemba-City, Shizuoka)

北和之、林奈穂、南光太郎、木村茉央、五十嵐康人、足立光司、財前祐二、牧輝弥、保坂健太郎、古川純、大河内博、石塚正秀、反町篤行、福島山間部におけるバイオエアロゾルの放射性セシウム飛散における役割の推定、第11回大気バイオエアロゾルシンポジウム、2018年2月20～2018年2月21日、信州大学長野キャンパス（長野県長野市）

西岡 拓哉、北 和之、林 奈穂、佐藤 武尊、五十嵐 康人、足立 光司、財前 祐二、豊田 栄、山田 桂大、吉田 尚弘、牧 輝弥、石塚 正秀、二宮 和彦、篠原 厚、大河内 博、阿部 善也、中井 泉、川島 洋人、古川 純、羽田野 裕子、恩田 裕一、夏季-秋季における放射性セシウム大気再飛散のメカニズム、日本地球惑星科学連合-アメリカ地球物理学連合 ジョイントミーティング 2017、2017年5月20日～2017年5月25日、幕張メッセ(千葉県千葉市)

③ その他

福島第一原子力発電所事故に由来した土壤中の放射性ストロンチウム移動度決定

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、環境中に大量の放射性核種が放出された。セシウム同位体 ($^{134,137}\text{Cs}$) やヨウ素同位体 ($^{129,131}\text{I}$) に注目した研究がこれまで多く行われてきたが、 ^{90}Sr をはじめとする微量な放出元素に関する知見は極めて限られている。これらの放射性核種の分布や環境中の移行過程は、セシウムやヨウ素と異なっており、これらを理解することは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土壤中の分布を調べた。

② 研究方法

本研究では 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、深さ 5 cm まで採取された土壌試料とリター層を分析した。これらの試料について、加熱により有機物を分解したのち、硝酸により土壌成分から Sr を抽出し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、各試料における ^{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。また、化学分析に先立ち、各試料について Ge 検出器による ^{137}Cs の定量を行った。

③ 結果・考察

各試料について年度ごとの ^{90}Sr の深度分布を作成した。土壌とリターに含まれる放射能の量は、 ^{137}Cs と ^{90}Sr とともに 2012 年では同じ程度であり、以降は土壌に 7 割程度存在していることが分かった。また時間とともにリター層の放射能が減少するような傾向は得られなかった。さらに土壌中のトータルのインベントリーから、重心深度を

求め ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の移動度を決定した。2012 年採取の試料は、土壌への ^{90}Sr の沈着時に土壌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。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 よりも大きいと報告されており、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。

成果発表

① 論文発表

② 学会発表

[1]

Determination of migration rate of ^{90}Sr in soil in Kawamata Town, Fukushima Prefecture by measuring depth profile of ^{90}Sr concentration

Anna SUZUKI, Zijiang ZHANG, Kazuhiko NINOMIYA, Atsushi SHINOHARA, Yoshiaki YAMAGUCHI, Junko TAKAHASHI, Yuichi ONDA

6th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC17)

September 17-22, 2017, ICC Jeju, Jeju Island, Korea

[2]

福島県川俣町で採取した土壌とリター層の ^{90}Sr 濃度の経年変化

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19回「環境放射能」研究会

平成30年3月13－15日 高エネルギー加速器研究機構、つくば、茨城

③ その他

Comparative analysis of key processes governing the long-term dynamics of dissolved and particulate radiocesium in rivers of Fukushima and Chernobyl contaminated areas

Aleksei Konoplev (Institute of Environmental Radioactivity at Fukushima University)

Summary of the Project

Detailed analysis of Chernobyl data covering an extended period can become a foundation for long-term prediction of changes in environmental radioactive contamination in Fukushima. It has been shown that long-term dynamics of radionuclides in the surface runoff and rivers is initially governed by their fixation on mineral particles, while later mainly by changes in the radionuclide concentration in the top soil layer. Both processes are diffusion-based and can be described by inverse square root of time function. The advantage of proposed “diffusion-based approach” is that all phases after the accident (short-, middle- and long-term) can be described by the same equation with the same parameters. Data sets for Chernobyl contaminated rivers Sakhan, Pripyat and Dneper as well as available data on r-Cs dynamics in Fukushima contaminated water bodies have been used to test the model. The proposed semi-empirical approach to describe r-Cs dynamics in rivers and lakes provides a tool for long-term predictions of rivers and lakes contamination in the future.

List of Publication

1. Konoplev A., Golosov V., Wakiyama Y., Takase T., Yoschenko V., Yoshihara T., Parenjuk O., Cresswell A., Ivanov M., Carradine M., Nanba K., Onda Y. (2018). Natural attenuation of Fukushima-derived radiocesium in soils due to its vertical and lateral migration. *J. Environ. Radioact.*, 186, pp. 23-33.
2. Konoplev A., Wakiyama Y., Wada T., Golosov V., Nanba K., Takase T. (2018). Radiocesium in ponds of the proximity to the Fukushima Dai-ichi NPP. *Water Resources*, in press

3. Golosov, V.N., Walling, D.E., Konoplev, A.V., Ivanov, M.M., Sharifullin, A.G. (2018). Application of bomb- and Chernobyl-derived radiocaesium for reconstructing changes in erosion rates and sediment fluxes from croplands in areas of European Russia with different levels of Chernobyl fallout. *J. Environ. Radioact.*, 186, pp. 78-89.
4. Botavin D., Golosov V., Konoplev A., Wakiyama Y. (2018). Consequences of the river valley bottom transformation after extreme flood (on the example of the Niida River, Japan). IOP Conference Series: *Earth and Environmental Science*. 107(1),012002
5. Golosov V., Botavin D., Konoplev A., Wakiyama Y. (2017) Transformation of different reaches of the Niida River (Japan) after extreme flood. *Revista de Geomorfologie*, 19, pp. 75-87.
6. Wakiyama Y., Konoplev A., Wada T., Takase T., Byrnes I., Carradine M., Nanba K. (2017). Behavior of ¹³⁷Cs in ponds in the vicinity of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. *J. Environ. Radioact.*, 178-179, pp. 367-376.

森林における放射性セシウムの化学状態の解明

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

福島第一原発事故由来の放射性セシウムのうち、森林に沈着した放射性セシウムの多くは林内に留まっていると考えられている。そのため、森林内での循環及び生態系への移行などの観点から、放射性セシウムの化学状態を明らかにすることが重要である。そこで、本研究では森林における放射性セシウムの化学状態を明らかにすることを目的とした。

② 研究方法

EXAFS（広域 X 線吸収微細構造）測定

本研究では、常緑樹であるスギ・アカマツ及び落葉広葉樹であるコナラ・コシアブラをそれぞれ実験対象とした。樹木試料は福島県川俣町山木屋地区の森林において採取した。各樹木を葉、樹皮、心材、辺材の部位ごとに切り分け粉碎した。ただし、コナラ・コシアブラについては葉を用いなかった。粉碎した試料は各々 1 M 塩化セシウム ($^{133}\text{CsCl}$) 溶液に浸し、室温で三日間振とうしてセシウムを吸着させた。その後、フィルター上に回収して純水で表面を軽く洗い、ポリエチレンバッグに封入した。EXAFS スペクトルの測定は、高エネルギー加速器研究機構 Photon Factory の BL9A 及び 12C にて行った。市販のセルロース粉末に同様の手順でセシウムを吸着させ、参照試料（樹木の主要成分）として測定した。また、50 mM 塩化セシウム溶液を調製し、セシウム水和イオンの標準試料として測定した。樹木の各部位及びセルロースへのセシウム吸着量は、筑波大学アイソトープセンターに設置された ICP-MS を用いて求めた。

放射性セシウム分析

2013 年 11 月に山木屋地区の森林で採取したスギ樹葉中の放射性セシウムの分布を調べた。試料分析には筑波大学アイソトープセンターに設置されたオートラジオグラフ分析装置と Ge 半導体検出器を用いた。まず、オートラジオグラフ分析により樹葉の放射能分布を調べた。その後、放射能の分布をもとに試料を分割して Ge 半導体検出器でセシウム 137 の放射能濃度を定量した。

③ 結果・考察

Cs-L_{III} 吸収端 EXAFS スペクトルの測定結果を図 1 に示した。スギ、アカマツ、コナラ、コシアブラのすべての樹木が同様のスペクトルであったので、ここではスギの結果のみを示した。樹葉、心材、辺材、樹皮及びセルローズ試料はすべて同様の EXAFS スペクトルを示した。また、これらのスペクトルは水和イオンと類似していた。このことは、樹木の各部位及びセルローズに吸着したセシウムが外圏錯体として静電的に吸着していることを示している。以上のことから、セシウムが樹木中の組織に吸着したとしてもそれほど強く固定されるわけではなく、比較的移行しやすい化学形態であることが示された。また、すべての樹木が同様の EXAFS スペクトルを示したことから、こうした傾向は樹種による大きな違いはないと考えられる。

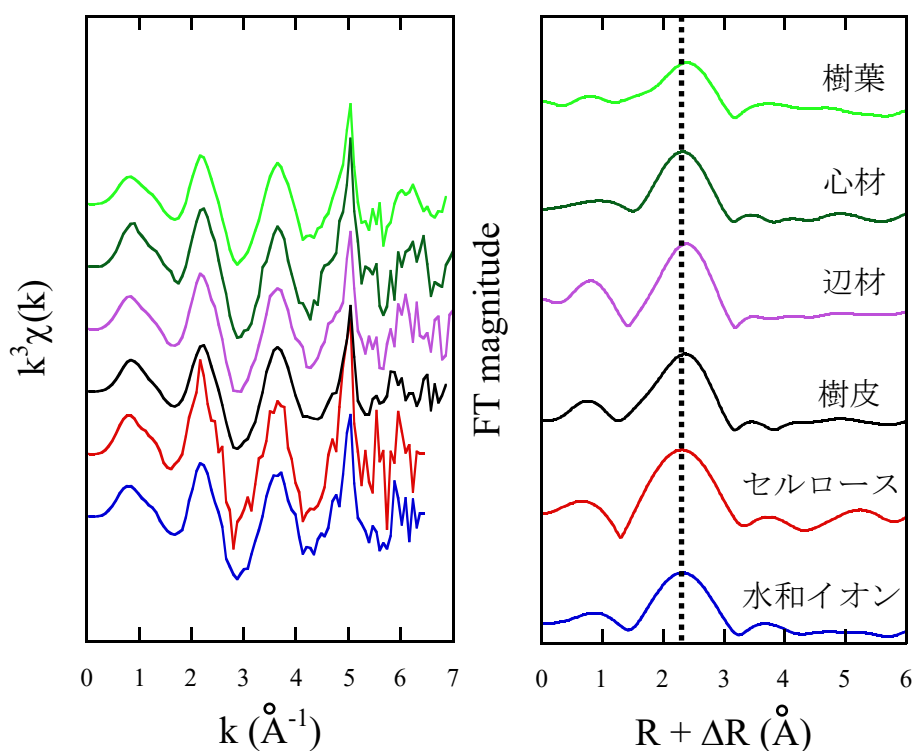


図 1. スギの樹葉、心材、辺材、樹皮に吸着した安定セシウムの Cs-L_{III} 吸収端 EXAFS スペクトル. (左図) EXAFS 振動スペクトル. (右図) 動径構造関数.

図 2 にスギ樹葉の分析結果を示した。オートラジオグラフ像の分析結果から、樹葉の先端に向かって放射能が強くなっていく様子が観察された。また、セシウム 137 の放射能濃度も同様に先端に向かって高くなっていった。以上のことから、スギ樹葉において放射性セシウムが生長点に向かって転流していることが分かった。上記のとおり、EXAFS スペクトルの解析結果から、セシウムは樹体内において移行しやすい化学形態であると考えられる。したがって、こうした放射性セシウムの転流している観測結果と EXAFS スペクトルの解析結果は調和的であると言える。

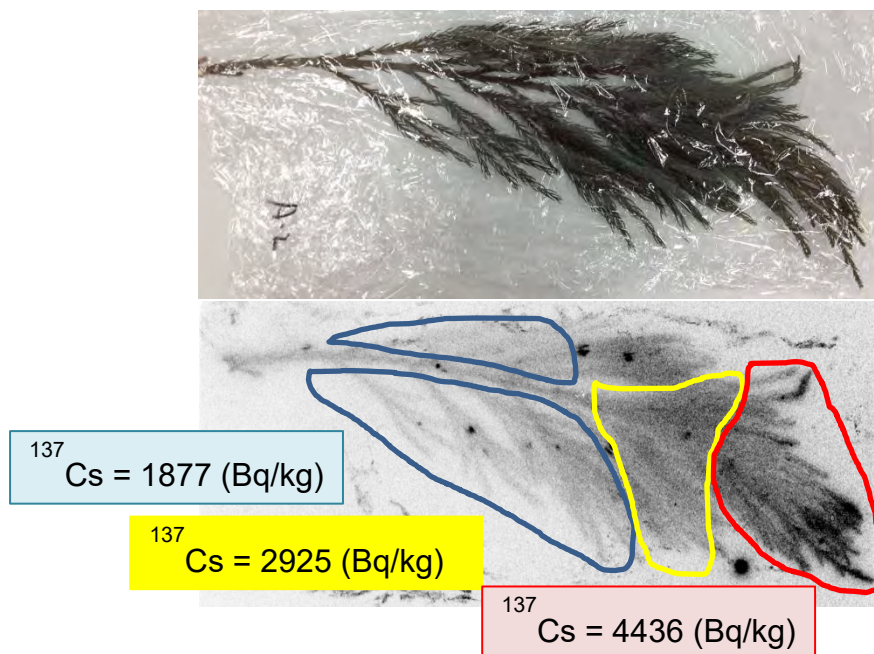


図 2. スギ樹葉の放射能分布及びセシウム 137 濃度分析. (上図) 光学写真像. (下図) オートラジオグラフ像.

成果発表

① 論文発表

Tanaka, K., Watanabe, N., Yamasaki, S., Sakaguchi, A., Fan, Q. and Takahashi, Y. Mineralogical control of the size distribution of stable Cs and radiocesium in riverbed sediments. *Geochem. J.* (in press)

② 学会発表

Tanaka K., Yamasaki S. and Takahashi Y. Contamination of forests by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and chemical species of radiocesium in trees. Migration2017, Barcelona, 2017/9/10-9/15

Yamasaki S., Tanaka K., Kozai N. and Ohnuki T. Kinetic study on uranium(VI) reduction by flavins and anthraquinones- electrochemical approach for

understanding the extracellular reduction. Migration2017, Barcelona,
2017/9/10-9/15

③ その他

市街地における放射性セシウムの流出調査

吉村和也（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

市街地は住民の被ばくに大きく寄与する環境である。そのため市街地における放射性核種の動態は、外部被ばくの低減や将来予測、除染計画の策定において重要な情報である。また、水系の放射性セシウムの移行挙動に、市街地は大きく影響している可能性が指摘されている。しかしながら市街環境における研究例は、森林や河川といった他の陸域環境に比較し非常に限定的である。市街地における放射性セシウムの移行には、ウェザリング効果の他、除染など人間活動が影響する。人間活動の影響は地域差が大きいと考えられるため、ウェザリング効果と人間活動の影響を区別した放射性セシウムの移行評価が重要である。

本研究では、市街地におけるウェザリング効果に起因した Cs-137 の移行量を評価することを目的とし、帰還困難区域内の市街地を対象に雨水排水を介した Cs-137 の流失を観測した。

② 研究方法

調査は帰還困難区域内の市街地に位置する 2 つの集水域を対象に実施した(図 1)。

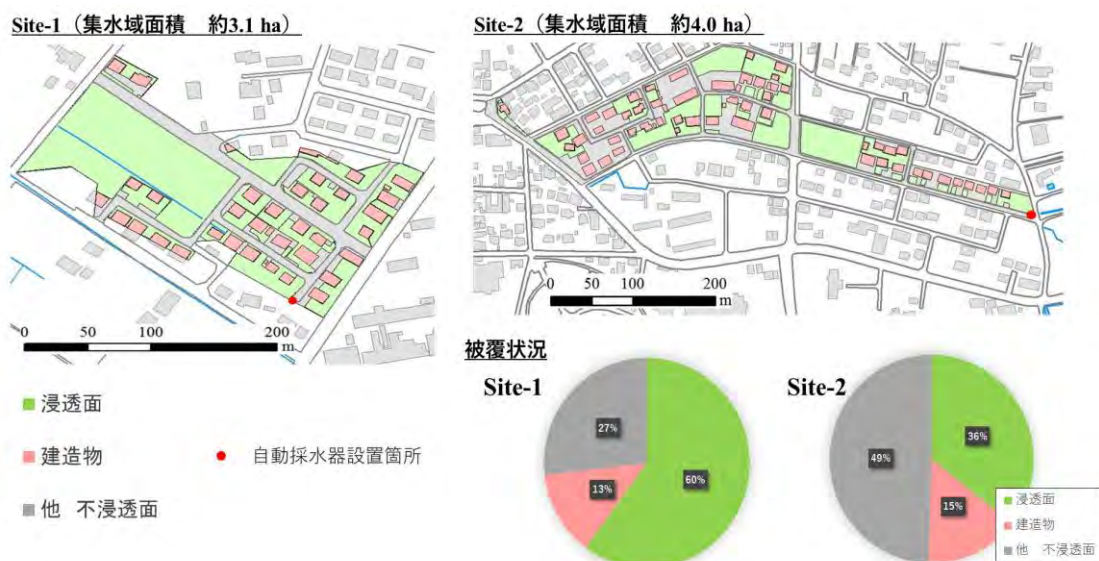


図 1 調査対象の集水域

調査期間は2014年12月から2017年6月である。調査対象地の排水は分流式であり、また期間困難区域に位置することから生活排水を介したCs-137の移行はない。集水域末端の雨水排水溝における流量、および土砂流出量は、連続的に観測した水位、および濁度を元に推定した。得られた結果から降雨流出係数(流量/降雨量比)、L-Q式を作成し、降雨イベント時に欠測となったデータを雨量、ないしは流量から推定し補完した。

降雨時の雨水排水は、自動採水機により採取した。試水はメンブレンフィルタ(孔径 $0.45\mu\text{m}$)でろ過し、懸濁態画分と溶存態画分に分けた。懸濁態/溶存態画分のCs-137濃度は、Ge半導体検出器(GMX40P4-76 germanium detector, Seiko EG&G ORTEC)により測定した。懸濁態/溶存態Cs-137の移行フラックスは、流量、ないしは土砂流出量にCs-137濃度を乗じて算出した。

③ 結果・考察

第4次航空機モニタリングから推定した集水域内の沈着量に対する、2016年7月-2017年6月に観測されたCs-137の流出率は、0.02-0.05%であった。これは森林域の値と同程度か大きい値である。上記観測期間におけるCs-137の移行フラックスは、懸濁態で $0.17\text{--}0.29\text{ kBq/m}^2/\text{yr}$ 、溶存態で $0.38\text{--}0.65\text{ kBq/m}^2/\text{yr}$ であり、57-79%が溶存態として移行していることが示された。流出率は森林域と大差ないものの、その移行形態が溶存態優占であることは、市街地は生物利用が可能なCs-137の主要なソースとなりうることを示唆する。今後は溶存態Cs-137の起源とその生成支配要因を評価する予定である。

成果発表

① 論文発表

② 学会発表

Yoshimura K., Rapid removal of Cesium-137 from urban area after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. 2017. 6th East Asia Forum on Radwaste Management Conference.

吉村和也，地上計測を用いた市街地からのセシウム-137 流失率の評価．2017．第 16 回 環境放射能研究会．

③ その他

福島県内外の河川における放射性セシウムの形態別の濃度変化の把握とその要因

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

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り放射性物質による汚染を受けた。河川を介して移動する放射性セシウム(Cs)の濃度は経時的に低下を続けていることがわかっているが、河川水の飲用及び農業利用の安全確認のため、その動態を把握することが必要とされる。特に、溶存態の放射性Csは生体への取り込みが起きやすいため、非常に低濃度であるものの観測を続ける必要がある。

本共同研究では、現場ろ過装置を用いた溶存態の放射性セシウム濃度の測定を実施し、申請者が取得している懸濁態の放射性Csのデータと合わせて解析を行い、河川の放射性セシウムの動態と流域の特徴との関係を解明することを目的とする。

② 研究方法

溶存態放射性Cs濃度の測定のため、図1に示す福島県内の河川において、30-100Lの採水調査を行った。採取した水試料を福島県環境創造センターに持ち帰り、多段フィルターブロック・陽イオン交換樹脂カートリッジで通水処理した。フィルターブロックの前段に定量ろ紙5Bを、後段に0.45μmメンブレンフィルターを使用した。

通水後の陽イオン樹脂を均質化した後、0.7Lマリネリ容器に封入して、HpGe半導体検出器で溶存態の放射性Cs濃度の測定を行った。60Lを通水した後、2日間の測定を行うことで、検出限界を0.5mBq/L程度まで下げることができた。

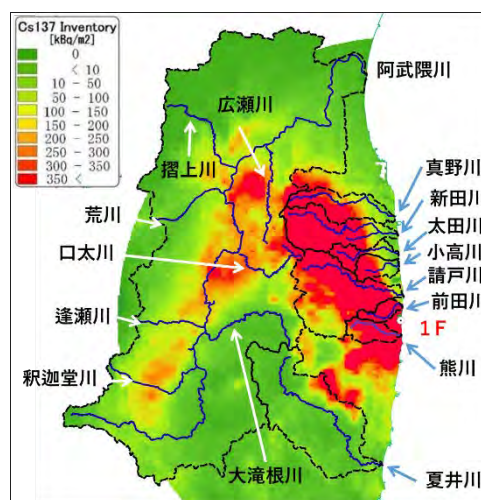


図1 試料採取を行った河川とその流域。背景のカラーコンターは2011年7月時点のCs-137沈着量。

③ 結果・考察

図2に、口太川における、2011年6月からの溶存態Cs-137濃度を示す。事故直後の1年間に急激な濃度低下を示した後、事故後2年目以降、減少速度が鈍化していることが確認できる。また、2011年と2017年を比べると、2桁程度の濃度低下が確認できる。この傾向は、並行して観測を行っている懸濁態Cs-137濃度（図4（b））と同様であった。

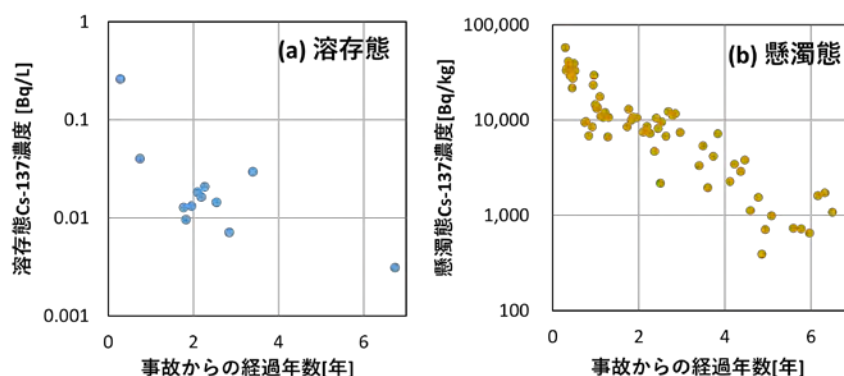


図2 口太川における、形態別の放射性Cs-137の時間変化。

図3に、流域の初期沈着量あたりの溶存態Cs-137濃度の、2012年12月以降の経時変化を示す。逢瀬川・荒川などの都市域を流れる支流で、沈着量の割に高い値を示した。また、溶存態Cs-137濃度の実効半減期(T)を算出したところ、2.2～4.4年という値が得られた。この値は、チェルノブイリ原子力発電所事故後の欧州の河川の“intermediate phase”の実効半減期（1.1～5.0年。Smith et al., 2005 より）と同程度であった。

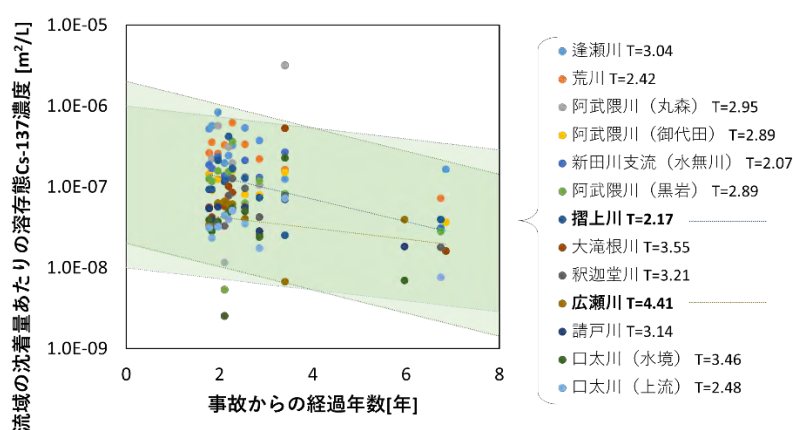


図3 流域の初期沈着量あたりの溶存態Cs-137濃度の経時変化。凡例中のTは実効半減期[年]を表す。緑色の帯は観測値から求めた実効半減期の最大値（2.17年）と最小値（4.41年）の傾きを示す。

本年度の調査により、これまでデータ数の少なかった、河川における溶存態 Cs-137 濃度についてのデータを得ることができた。事故後 2 年目以降の実効半減期については、欧州の河川の事例と同程度であることが示された。今後、流域の特徴や土地利用状況の変化に注目した解析を進めていく。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

1. 谷口圭輔、恩田裕一、倉元隆之、佐藤貴之、大沼沙織、新井宏受 (2017) 福島における放射性物質の分布状況調査 (10) 河川における放射性セシウムの移行状況の広域多地点調査. 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 札幌.
2. Keisuke Taniguchi, Kuramoto Takayuki, Yuichi Onda, Kazuya Yoshimura, Hugh Smith, William Brake, Saori Onuma, Takayuki Sato, Hirotsugu Arai (2017) Evaluation of trapping of fine sediments in reservoir lakes by using radiocaesiums adsorbed by SS in river systems in Fukushima, JAPAN. AGU Fall meeting 2017, New Orleans (USA).
3. 谷口圭輔、倉元隆之、恩田裕一、吉村和也、新井宏受、大沼沙織、佐藤貴之 (2018) 面的除染が河川の土砂及び放射性セシウム輸送に与える影響. 第 52 回日本水環境学会年会, 札幌.

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.

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 (九州大学)

研究成果概要

① 研究目的

2011 年に発生した東日本大震災の津波によって、福島第一原子力発電所で原子炉燃料のメルトダウンを伴う重大な事故が発生し、およそ 520 ペタベクレル（ペタは 10 の 15 乗）の様々な放射性核種が放出され、周辺地域に沈着した。事故から 7 年が経過した今では、放出された核種のうち、比較的長半減期であり透過性の高い β 線、 γ 線を放出する Cs（セシウム）の放射性同位体による土壤汚染などが問題となっている。放出当時の Cs の性質は大きく分けて水溶性・難水溶性の 2 種類が存在すると考えられ、そのうち難水溶性 Cs は、高濃度放射性セシウム含有微粒子（CsMP）と呼ばれる数マイクロメートルのガラス質粒子を形成していることがわかっています。難水溶性であるため、事故当時の炉内の情報を記録した貴重な資料であると考えられ、粒子の存在が明らかになって以来様々な分析が行われた。これまでの研究で、考えられる CsMP の形成プロセスの一つとして、事故発生時、高温の溶けた燃料が構造物であるコンクリートと接触した際に発生する一酸化ケイ素ガスと、Cs を吸着した Zn（亜鉛）-Fe（鉄）酸化物ナノ粒子やその他の小さな粒子が凝集してこの粒子を形成するという「molten core-concrete interaction」を発表した。炉内は未だ高い放射線量であり直接的な分析がなされておらず、この粒子が持つ情報は過去のみならず現在の炉内の状況を知る手がかりになることが期待される。そこで本研究では、マイクロメートルサイズの個々の CsMP に対して二次イオン質量分析を初めて行ない、電子顕微鏡での観察の結果を組み合わせ、含まれる核種の同位体割合からそれらの由来や化学状態を解き明かしました。筑波大学の共同研究としてこれらの CsMP の放射能測定を行った。

② 研究方法

本研究に用いた CsMP は全て福島県の土壌中から採取した。福島第一原発から西側に 4km 以内に位置する双葉郡大熊町大沢から 2 つ（CsMP のラベル名：OTZ3、OTZ10）、2.9km 南西に位置する双葉郡大熊町小入野から 1 つ（KOI2）、10.5km 北西に位置する双葉郡浪江町小丸から 1 つ（OMR1）単離し、それぞれに対して γ スペクトロメーターで放射能を測定し、形状や主要元素を走査型電子顕微鏡（SEM）で観察・分析を行った（[図 1](#)）。さらに、OTZ3、KOI2、OMR1 に対して、高感度・高分解能イオンマイクロプローブ（Sensitive High-Resolution Ion Microprobe、SHRIMP）二次イオン質量

分析計を用いて、同位体分析を行い、OTZ3 の残存部分と OTZ10 については集束イオンビームを用いて薄片加工し、高分解能の走査透過電子顕微鏡（STEM）で観察を行った。

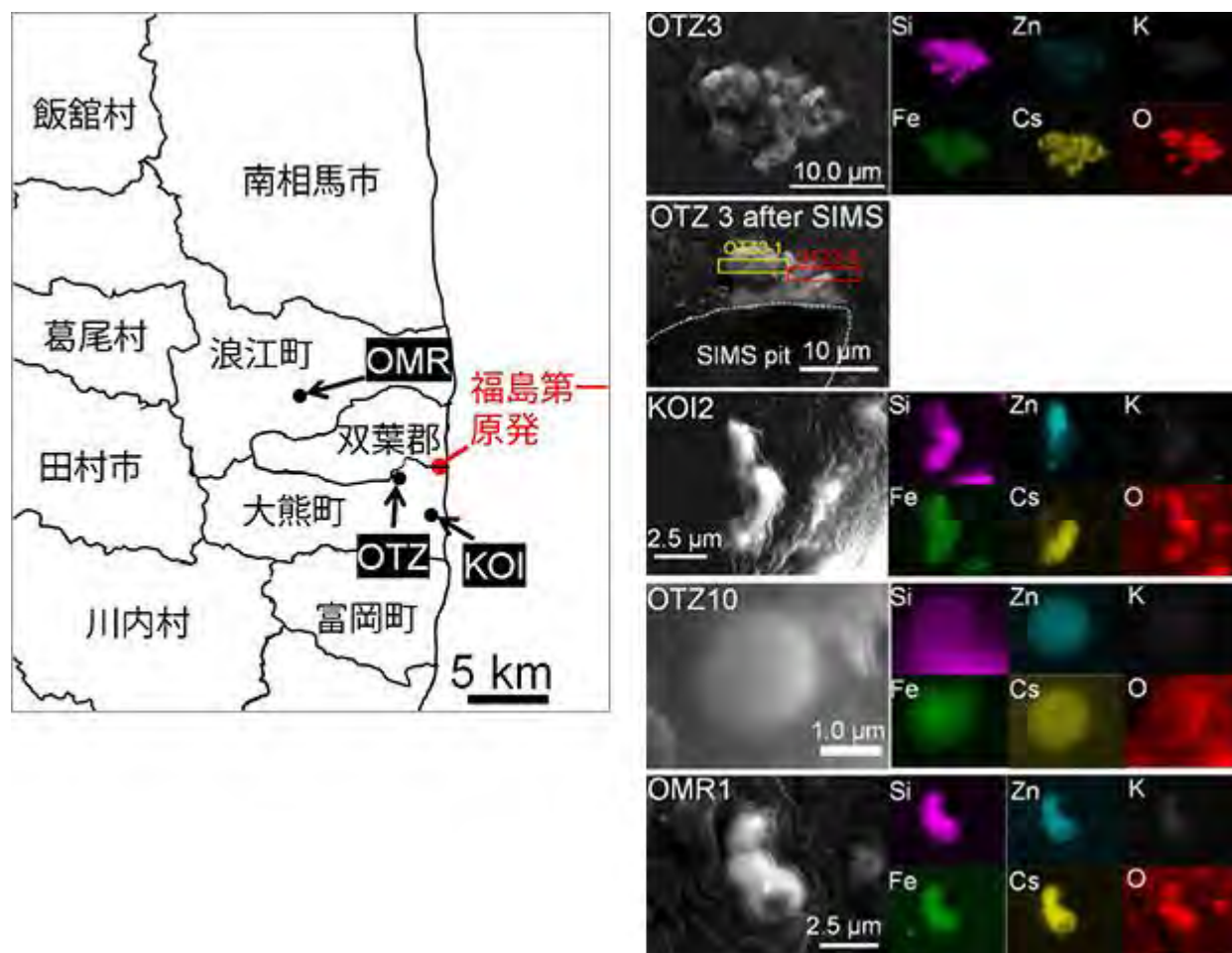


図 1：（左）CsMP の採取場所。（右）CsMP の SEM 画像と元素マップ

③ 結果・考察

SHRIMP 分析により CsMP のそれぞれの粒子に含まれる元素の同位体情報を得ることで、含まれる U（ウラン）、Cs、Ba（バリウム）、Rb（ルビジウム）、K（カリウム）、Ca（カルシウム）の由来や化学状態を同定することができた。K や Ca の同位体比は天然存在比と同一である一方で、U、Ba、Rb の同位体比は天然存在比より高いことから、後者は原発の燃料由来であることがいえる（表 1）。また、 $^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ が ORIGIN コードから計算される現在の燃料中の同位体比とほぼ一致していることから、事故当時に燃料から揮発した Cs がそのまま含まれていることがわかる。

表 1：3 つの CsMP の同位体比。n/d: 検出なし。ORIGEN の#1, #2, #3 はそれぞれ福島第一原発の 1 号機、2 号機、3 号機を意味する。

Isotope ratio	OTZ3 (std)	KOI2 (std)	OMR1 (std)	天然存在比	ORIGEN (文献 3)
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	0.029584 (0.004967)	0.029341 (0.003032)	n/d	0.00729	0.0172 (#1) 0.0193 (#2) 0.0192 (#3)
$^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$	0.3901 (0.0121)	0.3685 (0.0062)	0.3777 (0.0025)	-	0.388 (#1) 0.344 (#2) 0.353 (#3)
$^{136}\text{Ba}/^{138}\text{Ba}$	0.1523 (0.0124)	0.1638 (0.0191)	0.4293 (0.0697)	0.1095	~0.0126
$^{87}\text{Rb}/^{85}\text{Rb}$	2.407 (0.014)	2.284 (0.017)	2.236 (0.120)	0.3856	
$^{41}\text{K}/^{39}\text{K}$	0.07217 (0.00001)	-	-	0.07216	
$^{43}\text{Ca}/^{44}\text{Ca}$	0.06465 (0.00115)	-	-	0.06472	

また、Cs の新たな結晶として、OTZ3 の粒子の一部分が「Fe-pollucite」であると同定した（[図 2](#)）。この結晶は Fe と Si が高温で混じり合う条件で形成されたと考えられます。

さらに、 $^{136}\text{Ba}/^{138}\text{Ba}$ 同位体比の測定により、CsMP に含まれる Ba のほとんどは放射性 Cs の崩壊生成物であることが示された。測定した $^{136}\text{Ba}/^{138}\text{Ba}$ 同位体比は、天然存在比や、ORIGEN コードにより計算される現在の燃料中の同位体比よりも高い値をとった（[表 1](#)）。この理由として、Ba は揮発しにくいいため、CsMP の形成時にはほとんど取り込まれず、一方で CsMP には ^{136}Cs （半減期 13.16 日）が取り込まれ、その後放射壊変して ^{136}Ba に変化したと考えられる。このため、 ^{136}Ba の割合が、天然存在比や現在の燃料中の同位体比より高くなり得る。

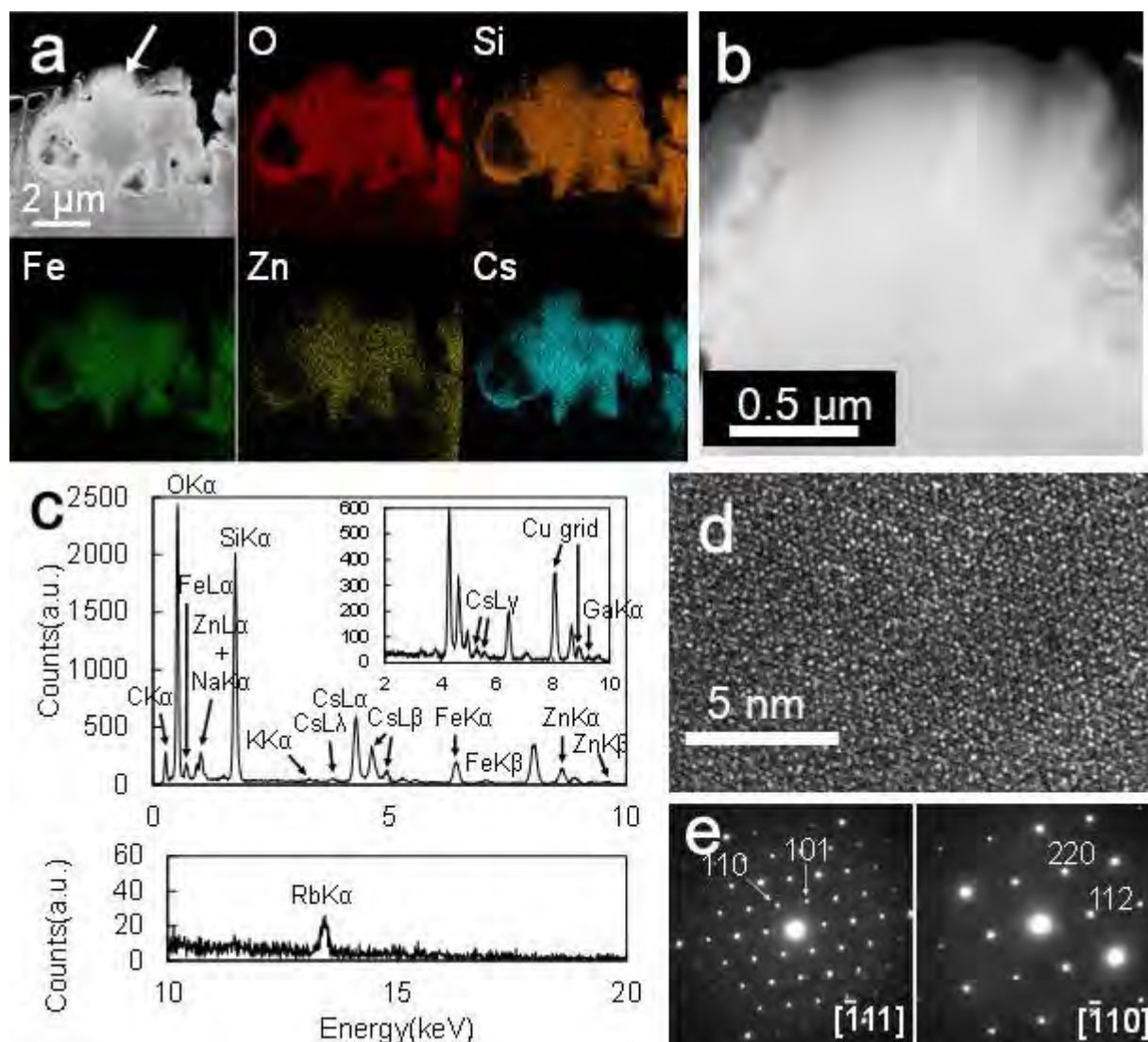


図 2 : (a) OTZ3 の STEM 画像と原子マップ、(b) (a)の矢印部分の拡大図、(c) (a)の矢印部分のエネルギー分散型 X 線分光スペクトル、(d) (a)の矢印部分の TEM 画像、(e) (d)部分の 2 方向からの制限視野回折像。Fe-pollucite と同定。

加えて、福島第一原発の燃料成分由来である $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ の同位体比の検出に初めて成功した。過去にバルク試料で $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比を測定した報告では、共存する天然 U の量が多いために原発由来であると決定できませんでした。本研究では測定サンプルを CsMP 一粒に絞ることで、CsMP 形成時に取り込まれた U の同位体組成を得ることができた。CsMP から検出された $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ の比は～0.030 であり、天然の同位体比 (0.00729) や ORIGIN コードにより計算される現在の燃料の平均同位体比 (～0.0193) より大きく、未使用燃料の同位体比 (0.0389) より小さいことがわかった (表 1)。一般的に燃料集合体や燃料棒は、内側ほど温度が高くて燃焼度が低く (= $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ が大きい)、

外側ほど温度が低くて燃焼度が高い（ $=^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ が小さい）ことが知られている。CsMP から検出された U は燃料中心の燃焼度が低い部分からの揮発成分であるために、ORIGEN コードによる計算値より ^{235}U の割合が高いと考えられる。また、OTZ10 の STEM 分析から、U は Zn-Fe 酸化物とともに存在していることが示唆された（図 3）。

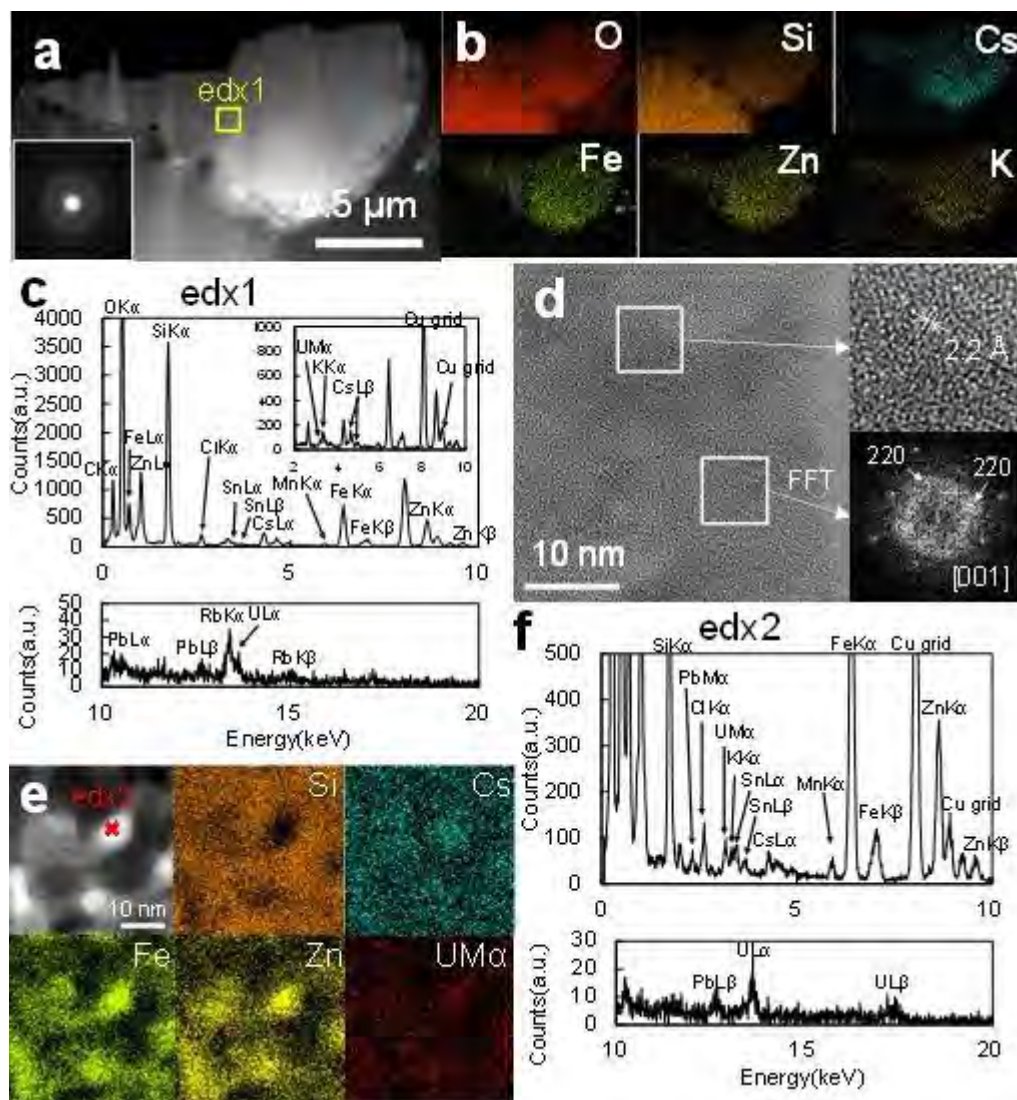


図 3 : (a) OTZ10 の STEM 画像と SAED 画像、(b) OTZ10 の元素マップ、(c) (a)の edx1 部分のエネルギー分散型 X 線分光スペクトル、(d) Zn-Fe 酸化物の TEM 画像と高速フーリエ変換像。franklinite と同定。(e) (a)の粒子端の拡大像と元素マップ、(f) (e)の edx2 部分のエネルギー分散型 X 線分光スペクトル。

以上のように、CsMP 形成時、すなわち事故当時の炉内の反応の重要な情報を得ることができた。さらなる情報を得ることにより、メルトダウン中のソースターム評価に貢献し、シビアアクシデント解析コードのさらなる改善に寄与することが期待される。

成果発表

① 論文発表

掲載誌: Scientific Reports

タイトル: Isotopic signature and nano-texture of cesium-rich micro-particles: Release of uranium and fission products from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

著者:

井元純平¹、落合朝須美¹、古木元気¹、末武瑞樹¹、池原遼平¹、堀江憲路^{2,3}、竹原真美²、山崎信哉⁴、難波謙二⁵、大貫敏彦⁶、Gareth T. W. Law⁷、Bernd Grambow⁸、Rodney C. Ewing⁹、宇都宮聡¹

¹九州大学、²国立極地研究所、³総合研究大学院大学、⁴筑波大学、⁵福島大学、⁶東京工業大学、⁷University of Manchester, UK、⁸University of Nantes, France、⁹Stanford University, USA

URL: <https://doi.org/10.1038/s41598-017-05910-z>

DOI: 10.1038/s41598-017-05910-z

受理原稿公開日: 2017 年 7 月 14 日 (オンライン公開)

② 学会発表

③ その他

帰還困難区域内のため池集水域等における放射性 Cs の流出率の算定

久保田 富次郎 （農研機構）

研究成果概要

① 研究目的

東日本大震災に起因する東京電力福島第一原子力発電所の事故により生じた福島県東部を中心とした放射性物質による汚染は、地域の主要産業の一つである農業へ大きな影響を与えている。これまで、申請者らは、安全な農業用水源の確保を目指すとともに、環境中における放射性物質の動態を明らかにするために、河川やため池等において放射性セシウムのモニタリングを実施してきた。本共同研究では、これまでに蓄積してきた集水域における水質モニタリングデータから流出量を算定し、筑波大学が開発を進めてきた放射性セシウムの初期沈着量の GIS データにより正確なセシウム沈着量を求めることで、セシウムの流出率を推定・算出することを目的とする。

② 研究方法

福島県飯舘村長泥地区のため池集水域(流域面積:15.5ha)を対象として、溪流を通じた放射性セシウムの流出モニタリングを行い、筑波大が開発した放射性セシウムの初期沈着量データを利用して正確なセシウム沈着量を求めることで、セシウム流出率を推定する。ため池集水域において、水文観測は、流量観測用三角堰(120度)を設け、自記水位計で10分毎に計測した越流水深から流量を算定した。水質調査は、月1~4回の定期調査に加えて、自動採水器を用いて増水時の採水を行った。また、三角堰において、自記濁度計を設置し、10分から1分間隔で連続観測を行った。水試料は、低濃度時には、蒸発濃縮やフィルターカートリッジ法で濃縮を行うなどの前処理を施した。放射性セシウムの分析には、ゲルマニウム半導体検出器を用いて、ごく低濃度の一部試料を除くと、RSD5~10%未満となる条件で測定した。これらの観測により、2014年4月から2016年3月末までのCs-137の流出負荷量を算定し、初期沈着量に対する流出率を年度毎に算定した。

③ 結果・考察

(1) 集水域から流出する Cs-137 と流出率

対象集水域の土地利用は、一部の道路を除くと他はほぼ林地であった。現地観測の結果、当集水域における溪流を通じた流出高は、2014 年度(2014/4/1～2015/3/31)で 689mm、2015 年度(2015/4/1～2016/3/31)で 786mm であった。また、Cs-137 の流出量は、2014 年度で 424MBq、2015 年度で 678MBq であった。一方、当集水域の放射性セシウムの初期沈着量は Cs-137 で 310000MBq であった。この結果、Cs-137 の流出率は、2014 年度が 0.14%、2015 年度が 0.22%となった。これらの結果は、福島県内外で得られている文献値等と比較すると、同じオーダーにあることが確認された。

(2) 流出率の算定上の問題点と課題

今回、増水時を中心に濁度センサーの土砂埋没などの問題が生じ、一部で欠測値を生じた。そのため、年間の負荷量を算定するために、濁度または SS を流量との相関を用いて推定することにより補間した。しかし、流量と濁度や SS の関係では、個別の流出イベント毎の相関は比較的高いものの、年間の平均的な関係性を用いて、個別の流出イベントの補間を行おうとすると、接続部のずれが大きいケースも確認された。林地からの溪流を通じた放射性セシウムの流出は、主に増水時に懸濁物質に含まれて流出するため、まずは、欠測を生じない観測が重要となるが、不安定な森林集水域での現地観測が対象であることを考えると、欠測が生じたときの適切な補間法について検討することも課題である。

成果発表

① 論文発表

論文執筆予定

② 学会発表

2018 年度の水文水資源学会等で公表予定

③ その他

共同研究の年次報告会でポスター発表(2/24)

溶存態放射性セシウムの起源を探る。

保高 徹生 （産業技術総合研究所）

研究成果概要

① 研究目的

林内雨、リター浸出水、溪流水、河川水中の溶存態放射性セシウムは、生物移行可能性の観点からその評価は重要である。山林部において、同レベルの沈着量の地域においては林内雨、リター浸出水、溪流水中の溶存態放射性セシウム濃度は、リター浸出水＞林内雨＞溪流水となっている場合が多い。これらの溶存態放射性セシウムの主要な供給源は、枝葉、幹、落葉、リター等の ^{137}Cs の供給源と水との接触である。本研究では、まず、リター浸出水中の溶存態放射性セシウムに着目した。リター浸出水中の溶存態放射性 Cs は、リターの放射性 Cs 濃度だけでなく、リターからの放射性 Cs の溶出率にも大きく影響をうける (Kurihara et al., 投稿中)。リターからの溶存態放射性 Cs の溶出率を決める環境要因を調べた。

② 研究方法

リター浸出水中の溶存態 ^{137}Cs 濃度 (Bq/L : 以下、 $^{137}\text{Cs}_{\text{water}}$) は、以下の式で推定できる。

$^{137}\text{Cs}_{\text{water}} = \text{リターの } ^{137}\text{Cs} \text{ 放射能 (Bq)} \times \text{リターからの } ^{137}\text{Cs} \text{ 溶出率 (\%)} / \text{浸出水量 (L)}$

浸出水中の ^{137}Cs 濃度、リターの ^{137}Cs 放射能、浸出水量は、福島県川俣町山木屋地区の筑波大の調査地（コナラ-アカマツ混交林、スギ人工林）でライシメータを用いて実測し (Kurihara et al. 投稿中)、 ^{137}Cs 溶出率 (%) は上記の式から求めた。また、ライシメータに充填したリターの C/N 比、強熱減量 (%) も測定した。

③ 結果・考察

同一森林でも、リターからの放射性 Cs の溶出率は大きくばらつくことがわかった (Figs. 1-3)。溶出率はインベントリ（つまり林床に存在するリターの Cs 放射能）と逆相関を示し、リターの Cs 放射能と溶出率が両方とも大きな値を示すことはなか

った (Fig. 1)。混交林で、溶出率は C/N 比と正の相関を示し (Fig. 2)、リターの分解が溶出率を上昇させることを示唆した。また、強熱減量が低い (つまり、鉍物等の含有率が高い) と溶出率が低く (Fig. 3)、リターから溶出した溶存態 Cs が鉍物に吸着され、結果的に溶出率が低くなった可能性が示唆された。

本研究により、同一森林内でもリターからの溶存態放射性 Cs の溶出率が大きくばらつくことが明らかになったが、その要因を明らかにするには調査、および室内での溶出試験が必要である。今後は、上記を明らかにするとともに、林内雨、渓流水についても同様に評価を進める。

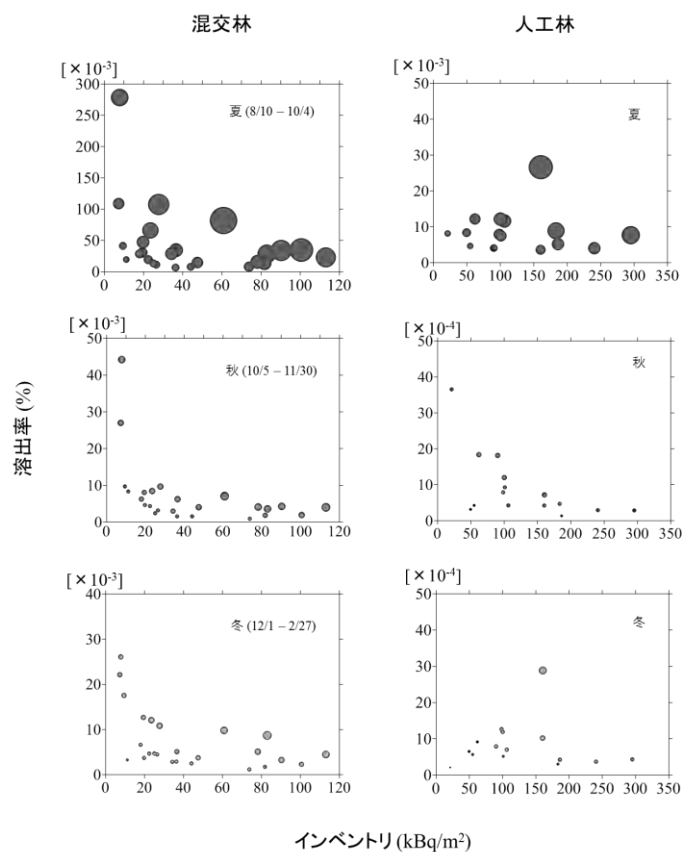


Figure 1 インベントリ (kBq/m²)、溶出率 (%) とフラックス (Bq/m²/d) の関係。
シンボルの大きさは、相対的なフラックスの大きさを示す。

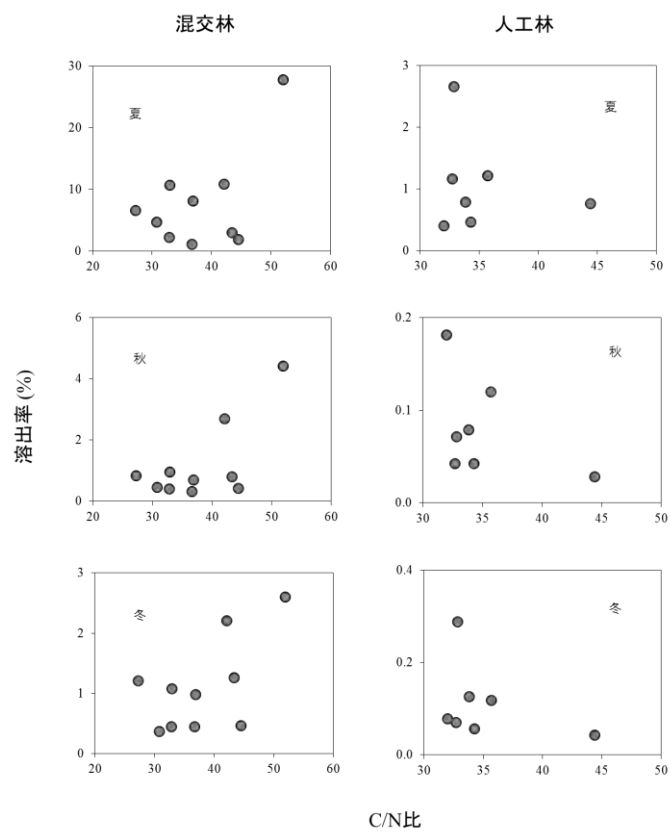


Figure 2 C/N 比と溶出率 (%) の関係。

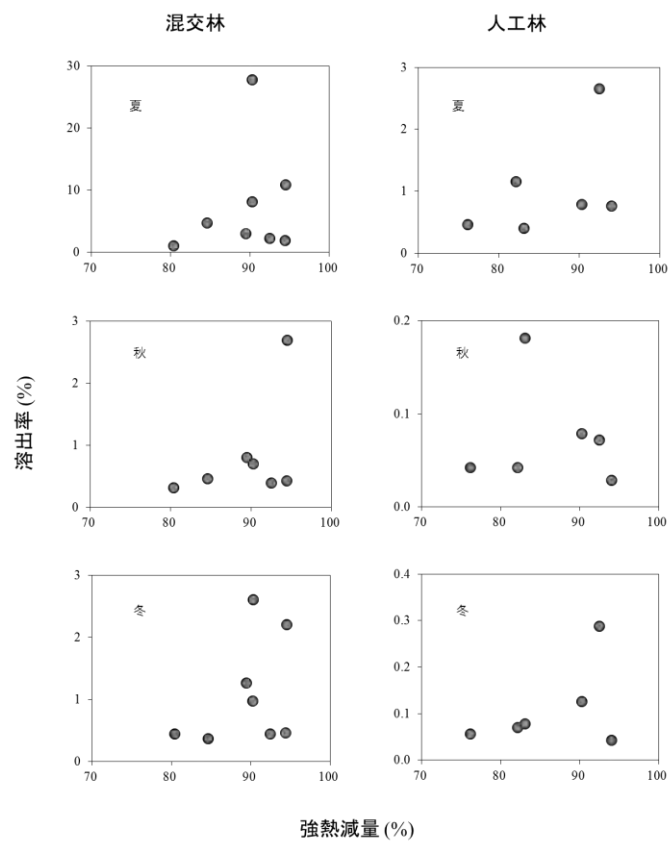


Figure 3 強熱減量 (%) と溶出率の関係

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

なし

森林生態系内の ^{137}Cs の長期移行過程

田林 雄（関東学院大）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発の事故に伴い周辺森林地域に多量の放射性セシウム（特に ^{137}Cs ）が沈着したが、その後の動態を明らかにすることは、近隣地域や当該の流域内部に住む住民や沈着した地域の材木の安全評価をする上で重要な課題である。森林内の移行過程に関する既往研究は、原発近くの高濃度汚染地域や首都圏内の低濃度汚染地域で実施されている。研究の成果を広く汚染した地域に適用する際には中濃度汚染地域の事例もあわせて一般化する必要がある。本研究では中濃度汚染地域である那須塩原市の森林（ 132k Bq m^{-2} の ^{137}Cs の初期沈着があった）を対象とし、これまでの研究と合わせて林内において比較的長期の移行過程を明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

栃木県那須塩原市の中濃度汚染地域に多数のサンプラーを設けて ^{137}Cs の森林内部での移動を明らかにする。

具体的にはプロットには溪流の流量計（2 か所）、リタートラップ（10 か所）、林内雨計（20 か所）、樹幹流トラップ（3 か所）を既に設置済みである。約 3 月おきに、これらのサンプリングポイントにおいて、溪流水・リター（落葉・枝）・林内雨・樹幹流を回収した。回収した水サンプルはろ過の後 AMP 沈殿処理による濃縮の前処理を行い、リターはオープンにて乾燥させ粉碎処理を行った後、Ge 半導体検出器によって ^{137}Cs を測定した。

また、台風等の高水時は浮遊砂に付着したセシウムが多く流出していると考えられるので、以上の定期観測とは別に溪流水のサンプルを行った。

③ 結果・考察

那須サイトにおいて森林生態系から溪流を通じて系外に排出される ^{137}Cs は徐々に減少していることが明らかになりつつある。これは、事故後約 7 年を経て溪流水の ^{137}Cs の主なソースであるリターの ^{137}Cs が低下していることが主な原因であることが予想された。平水時には地下水が溪流水のソースとして支配的であるが、出水時にはリターや表層の土壌が多く溪流水にとりこまれ ^{137}Cs の上昇を招いていると考えられた。

成果発表

① 論文発表

準備中（これまでの調査結果及び追加分析結果を合わせて準備中）

② 学会発表

なし

③ その他

ドップラーソーダによる乱流測定の季節・大気安定度依存性

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。風力発電のための風況調査においては、風向風速の鉛直分布と乱流指標の測定精度についての検討と取得率向上に必要な手法の開発が求められている。

そこで本共同研究では、(1)ドップラーソーダによる風向風速の鉛直分布と乱流指標の測定精度と取得率について季節と大気安定度による違いを明らかにし、(2)測定精度と取得率向上に必要な手法を明らかにすることを目的とする。

② 研究方法

ソーダのモノ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、長期観測を行った。ソーダの観測データと気象観測鉄塔上(高さ 30m)の 3 次元超音波風向風速計の観測データを季節毎や大気安定度ごとに相互比較し、風向風速および乱流指標(鉛直風速の標準偏差等)について評価を行った。

季節毎のドップラーソーダによる風向風速と乱流指標の測定精度を明らかにするために夏季と冬季の数日間を抽出して総合解析を行った。

夏季：2017 年 8 月 23 日、25 日、9 月 2 日(風向 NW～NE)

冬季：2018 年 1 月 27 日、2 月 6 日～8 日(風向 W～NW)

③ 結果・考察

図1と図2に夏季における鉄塔の30mの3次元超音波風向風速計とソーダとの間で風速と風向の比較結果を示す。風速風向共に相関係数(風速:0.84、風向:0.99)が高かった。

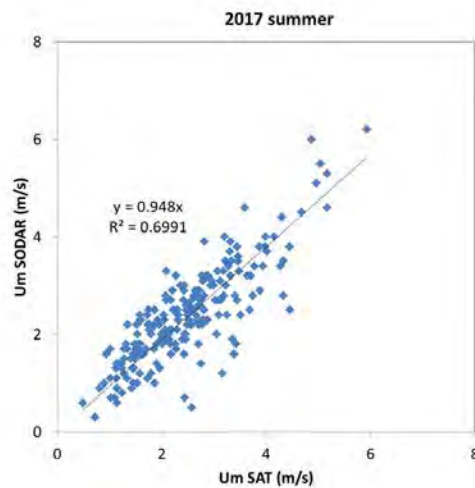


図1:風速の比較結果(夏季)

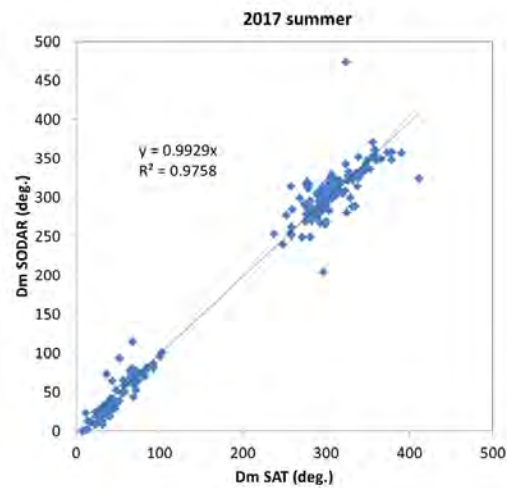


図2:風向の比較結果(夏季)

図3と図4に夏季における乱流指標(σ_w (鉛直風速の標準偏差)、EDR(乱流消散率))を安定度別に整理した結果を示す。中立時と安定時には相関係数0.7以上で高いが、オフセットが大きい点が問題点として残る。不安定時には有意な相関がなかった。風速が4m/s以下の時が多かったことで、限られた測定レンジのデータしか得られなかったためであると考えられる。

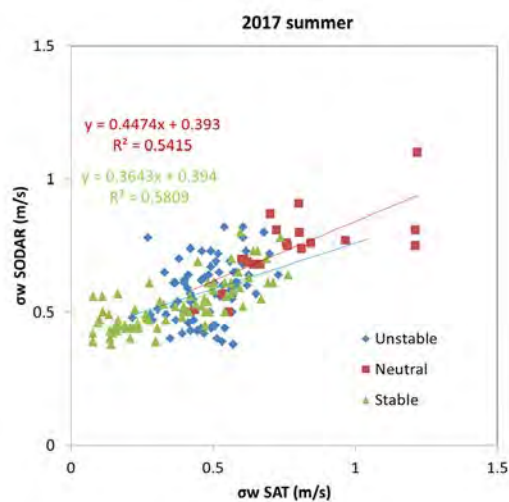


図3: σ_w の比較結果(夏季)

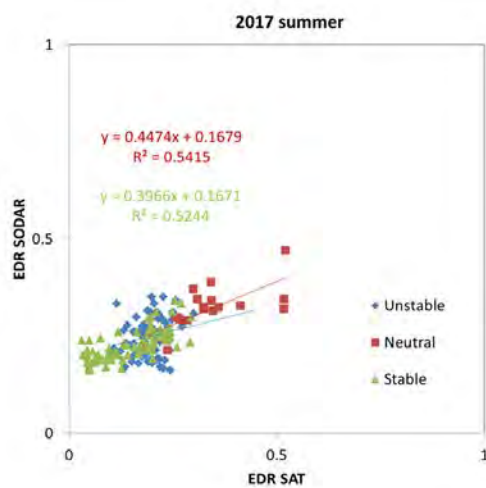


図4:EDR の比較結果(夏季)

図5と図6に冬季における鉄塔の30mの3次元超音波風向風速計とソーダとの間で風速と風向の比較結果を示す。風速風向共に相関係数が0.9以上と高くよく一致していた。

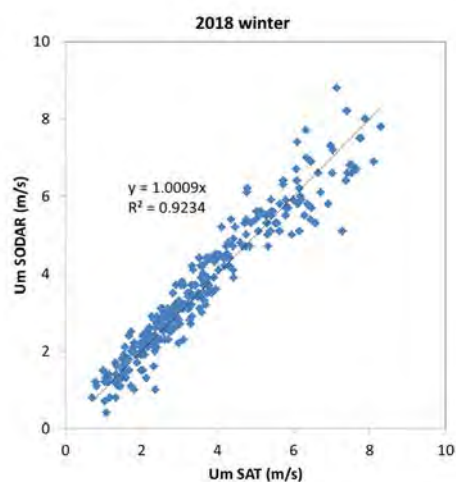


図5:風速の比較結果(冬季)

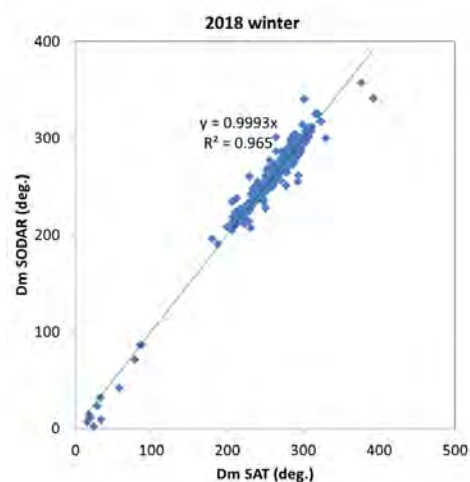


図6:風向の比較結果(冬季)

図7と図8に冬季における乱流指標(σ_w 、EDR)を安定度別に整理した結果を示す。不安定時、中立時、安定時ともに相関係数0.7以上で高いが、オフセットが大きい点が問題点として残る。

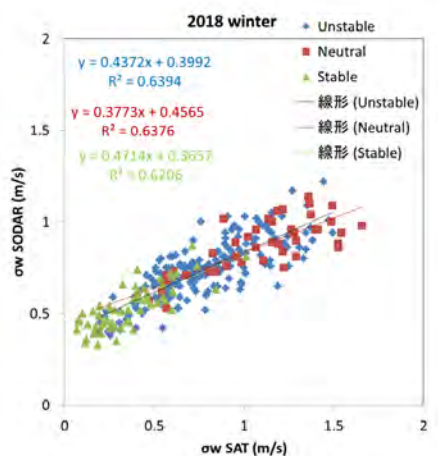


図7: σ_w の比較結果(冬季)

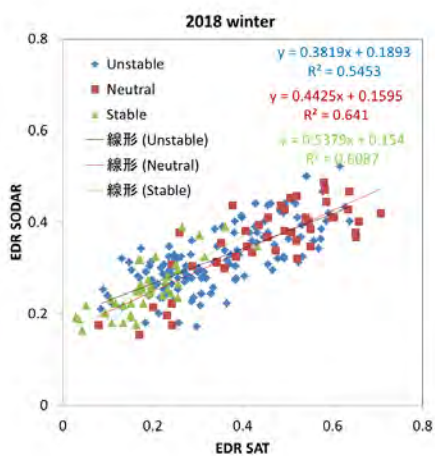


図8:EDRの比較結果(冬季)

ソーダの観測データを3次元超音波風向風速計との比較結果から測定精度の検証を行ったところ、風速と風向に関しては夏季・冬季共に相関が良く測定精度が高いと言える。乱流指標に関し

ても夏季の不安定時は未確認ながら、夏季・冬季共に相関が高かった。しかし、オフセットが大きいため、今後、改良する必要がある。今後の課題を以下に示す。

- ・乱流量の過大評価オフセットの改善
- ・安定度のカテゴリー検出
- ・逆転層の有無の探知判別（→接地逆転高度の検出）

成果発表

① 論文発表

なし

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、2017、3次元高精度風況解析に基づく風力発電量の新規推計手法、第39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、2017年12月7日。

③ その他

- ・又吉直樹、伊藤芳樹、2018：大分空港 SOLWIN の実証試験結果、(公財)航空輸送技術研究センター第4回 国内空港への低層風情報提供システムの整備に関する調査委員会、航空会館、2018年1月24日
- ・又吉直樹、伊藤芳樹、2018：大分空港での SOLWIN 実証試験結果 一機体への影響一、(公財)日本航空操縦士協会気象委員会、航空会館、2018年3月24日

波浪による底質の巻き上げにおける含有泥質堆積物の影響

山口直文 （茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター）

研究成果概要

① 研究目的

近年、細粒堆積物、特に粘着性を持つ泥質堆積物が含まれた場合の堆積物輸送の特殊性について、次々と新しい成果が報告されている。こうした先行研究では、10%にも満たない程度の泥質堆積物の含有によって、一方向の流れによる堆積物輸送やリップルなどの微小地形の形成に大きく影響し、それらを抑制する作用が示されている。一方で、波浪が作用する場において、泥質堆積物の含有率（含泥率）がどのように影響するかについては未だに明らかになっていない。放射性物質を吸着しやすいことが知られている泥質堆積物が、波浪下での堆積物の運ばれやすさに影響するかどうかは、沿岸域での放射性物質の運搬・拡散のしやすさを考える上でも問題となる。こうした点を考えるとき、ウェーブリップルの発達は、波浪による堆積物の巻き上げやそれに伴う輸送されやすさに大きく影響することから、底質の動きやすさの指標としてとらえることができる。そこで本申請研究では、波浪場における（泥質）堆積物の輸送を考えるための基礎研究として、底質に泥質堆積物が含まれる場合のウェーブリップルの発達しやすさへの影響を調べた。

② 研究方法

筑波大学の二方向振動板装置を用いることで、一般的な造波水槽では難しい泥質堆積物の含有率を制御した実験を行った。実験では、砂床材料として、(a)豊浦標準砂（中央粒径：244 μm ）のみの場合の実験をコントロールとし、この標準砂に(b)粗粒シルト（中央粒径：35 μm ）を10%混ぜた場合、(c)同じものを50%混ぜた場合、(d)カオリン（中央粒径：5 μm ）を10%混ぜた場合の計4種類の砂床で実験を行った。それぞれの砂床の硬度については、山中式土壤硬度計（平面型）を用いて計測した。各実験試行では、砂床と水理条件（周期および最大流速）を設定し、同じ初期地形の状態から30分間でウェーブリップルが発達するか否かを記録した。実験は、砂床と水理条件の組み合わせで計97条件98試行を行った。

③ 結果・考察

実験の結果、砂床の種類によってウェーブリップルが形成し発達しはじめる底面最大流速に違いが見られた。一連の実験結果から、砂床中の泥質堆積物はウェーブリップルの形成・発達に対して、以下のような影響をあたえることが示唆された：(1) 泥質堆積物を含む砂床の方が、砂のみの砂床と比較してウェーブリップルが形成・発達しにくい、(2) 砂床中に粗粒シルトが含まれる

場合、より多く含まれる方がウェーブリップルは形成・発達しにくい、(3) 砂床中にカオリンが含まれる場合、シルトよりも少量でもウェーブリップルは形成・発達しにくくなる。これらの結果において、ウェーブリップルが形成・発達しにくくなるということは、すなわち底質堆積物の輸送・拡散が抑制されることを意味している。今回の実験からは、泥質堆積物の割合や特性の違いが、こうした輸送・拡散の抑制に影響していることを示している。

成果発表

① 論文発表

準備中

② 学会発表

準備中

③ その他

なし

海洋および海底堆積層における懸濁態・溶存態放射性核種の

再循環過程に関する解析技術の開発

内山 雄介 （神戸大学工学研究科）

研究成果概要

① 研究目的

福島第一原発事故によって陸域へ沈着した放射性核種は、降雨に伴う表面流出によって、河川を通じて現在もなお海洋環境中に懸濁質として供給され続けている。海域中での懸濁質の挙動は溶存物質とは大きく異なり、沈降や再懸濁、再輸送を通じた海底堆積層-海水間での交換、懸濁相-溶存相間の移行（吸脱着）を繰り返しながら、長期間をかけて広範囲に分散する。本研究ではこのような問題に対応するために、事故直後に堆積層に吸着した懸濁態核種と、事故後に断続的に陸域から供給される懸濁態核種の交換、再輸送、広域循環プロセスを表現可能な新しい数値シミュレーション技術を開発することを目的とした。

福島新田川流域には原発事故直後に大量の放射性セシウム ^{137}Cs が大気経由で沈着し、高濃度の懸濁態 ^{137}Cs として河道に集積したのち、出水毎に間欠的に海域へ供給され、沿岸域の底質環境に影響を与え続けている。本研究では、開発したモデルを用いたテスト計算として、4 段ネスト JCOPE2-ROMS 海洋モデル、波浪推算モデル SWAN、河川土砂流出モデル iRIC-Nays2DH、混合粒径土砂 3 次元海洋輸送モデル、放射性核種吸着モデルを連成させた超高解像度広域での土砂およびそれらに吸着した懸濁態 ^{137}Cs の海洋移流分散モデリングを行い、台風 201326 号出水イベントに伴う新田川起源土砂の河口・沿岸域における輸送、再懸濁、堆積、浸食過程の時空間特性を評価した。さらに懸濁態 ^{137}Cs インベントリ解析を行い、水深 5m までの河口域、水深 10m までの河口外縁域での堆積、沿岸・岸沖漂砂に伴う河川起源 ^{137}Cs の海域堆積層への移行特性を定量化した。

② 研究方法

モデルの概要：4 段ネスト海洋モデル（図-1）を用い、2013/10/16 に福島海域に最接近した台風 201326 号に伴う大規模出水に着目した 2 ヶ月間の再解析を行った（図-2）。本研究では、計算初期に海底に分布していた土砂と河川からの流入土砂を別個にモデル化することにより、土砂輸送に対する河川影響を陽的に分離することに成功した。

気象海象条件：台風が接近した 10/16 には風速 20 m/s、有義波高 4.6 m の強風・高波が惹起され、河川流量は最大で 180 m³/s に達した（図-2）。

平均構造：河口周辺の平均表層流（図-3a）は概ね南南東方向であり、海岸線湾曲部、構造物、

河口地形による強い沖向き流れが数か所で発現している．一方，底層流には表層流を補償するような岸向き流れが発達し，沿岸湧昇モードであった（図-3b）．水深 10 m 以浅でのせん断応力には沿岸方向に周期性が見られるものの，全体的に 0.5 N/m^2 以上となり，全画分土砂に対して浸食が卓越する状況にあった．

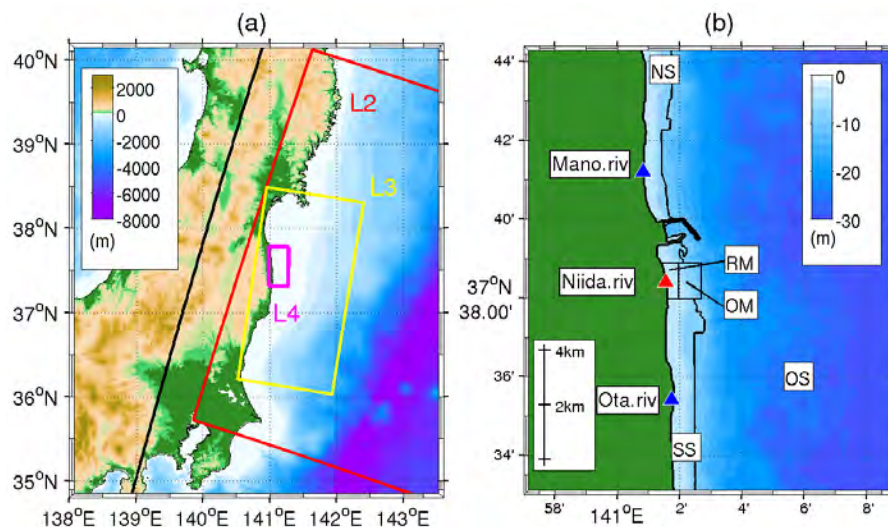


図-1 (a) 4 段ネスト JCOPE2-ROMS モデルの計算領域．黒枠：ROMS-L1，赤枠：L2，黄枠：L3，マゼンダ枠：L4 の計算領域を表す．(b) 新田川河口（赤三角）海域拡大図．カラー：水深 (m)．黒線は領域分割境界（表-1）．

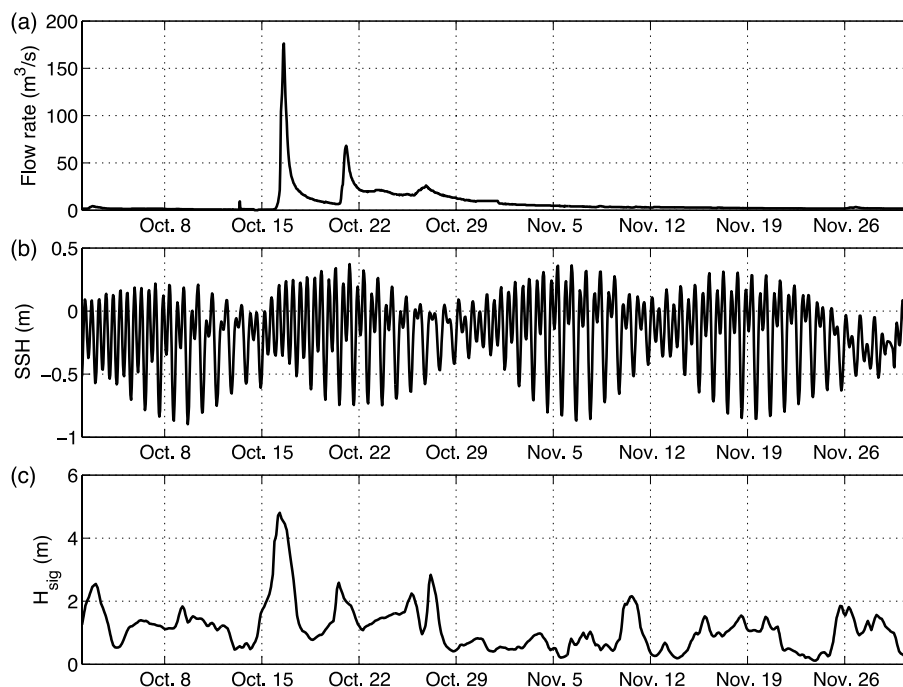


図-2 解析期間 (2013/10/1–11/30) の気象・海象条件．(a) iRIC-Nays 2DH による新田川流量，(b) ROMS-L4 による河口前面 1km 地点での水位，(c) CWM-SWAN による同地点での有義波高の時系列．

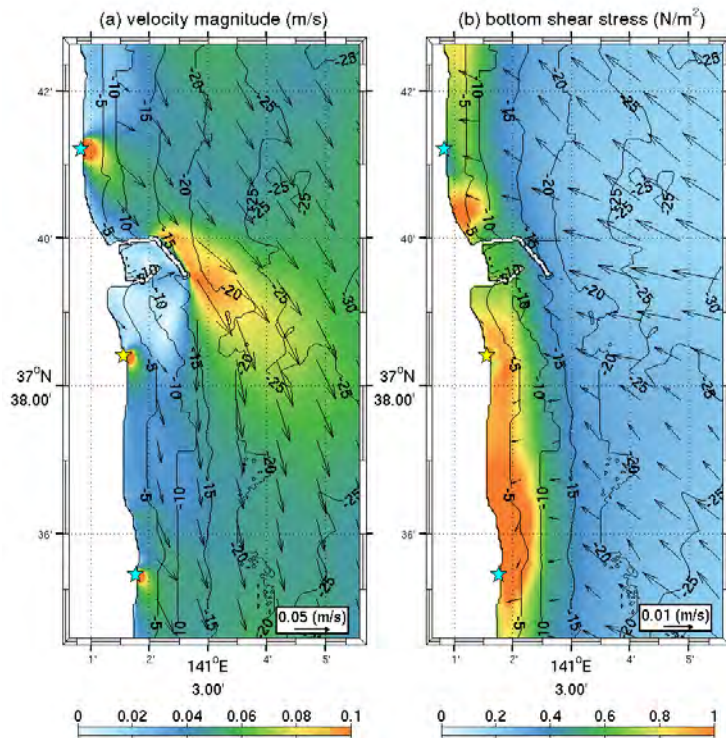


図-3 (a) 表層流速ベクトルと絶対値 (カラー), (b) 底層流速ベクトルと底面せん断応力 (カラー) の期間平均値 (10/1-11/30). 星印は河口, 黄色星印は新田川河口.

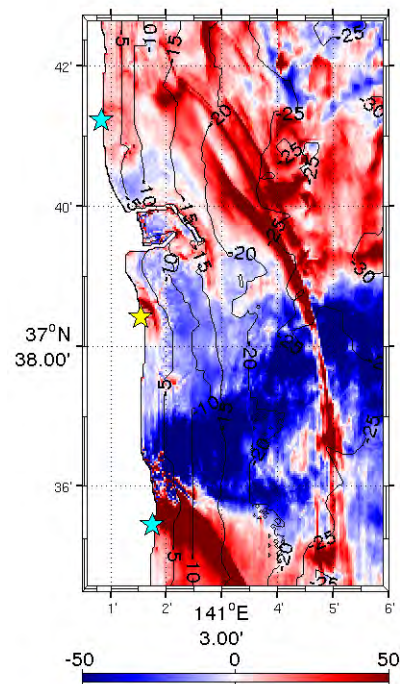


図-4 2013/10/1 を基準とした 11/30 の堆積量空間分布 (kgm⁻²). 細砂, シルト, 泥の三面分合計値であり, 青は浸食, 赤は堆積を表す.

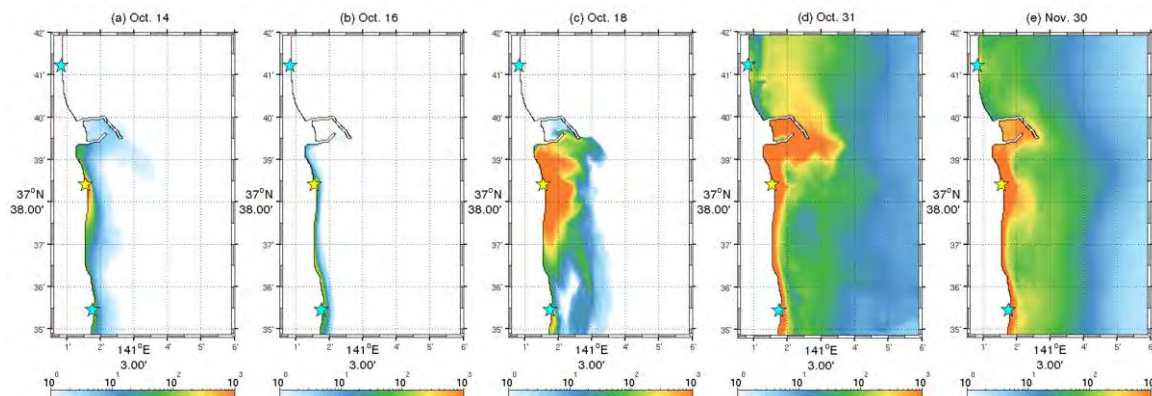


図-5 新田川起源の流入土砂に吸着した懸濁態 ^{137}Cs の海底堆積物中への移行量分布 (Bqm^{-2})。全画分粒子の合計値。左から、10/14, 10/16 (台風通過前), 10/18, 10/31, 11/30 (0:00 UTC) の分布。

表-1 新田川から供給された懸濁態 ^{137}Cs 量 (NR) と、5つのセグメント (領域分割・略号は図-1b 参照) と計算領域外 (OD) へ移行した懸濁態 ^{137}Cs インベントリ。単位は全て GBq。

Date in 2013	NR	RM	OM	NS	SS	OS	OD
10/14	0.530	0.249	0.002	0.021	0.182	0.021	0.056
10/16	0.578	0.023	0.001	0.003	0.132	0.003	0.417
10/18	32.00	21.05	1.333	0.855	2.573	0.403	5.790
11/30	55.73	25.22	0.365	1.694	14.01	6.541	7.902

懸濁質輸送特性：河口周辺に堆積域 (赤) が形成され、河口の沖合では浸食 (青) が卓越する (図-4)。冲向き流れが強化される領域 (図-3) を中心としてその北側に浸食域、南側に堆積域が形成される傾向にあり、河口地形や構造物に沿岸漂砂が捕捉され、浸食・堆積域が沿岸方向に交互に形成される。淡水流入に伴う重力循環による底層向岸流に伴う岸向き漂砂によって、河口域には土砂が集積しやすいことが分かった。

懸濁態 ^{137}Cs 輸送：海底堆積層に移行した新田川起源懸濁態 ^{137}Cs の空間分布 (図-5) から、台風接近前 (10/14, 16) は南方向への土砂輸送によって河口南の岸近傍に張り付くように集中して分布する。台風・出水後 (10/18) には河口前面の半径約 2 km 程度の領域に大量に堆積したあと、主に南方向に徐々に輸送されて分散する (10/31, 11/30)。新田川北の発電所港湾内での顕著な集積も確認される。

③ 結果・考察

表-1 に懸濁態 ^{137}Cs インベントリ解析結果をまとめた。台風通過直後の 10/18 までに新田川から海域へ流入した懸濁態 ^{137}Cs の総量は約 30 GBq, 11/30 までに約 56 GBq であり、このうち 25 GBq (45.3 %) は河口 1 km 圏内に堆積していた。その沖側の河口外縁域での堆積はごく僅かであり、出水後の 10/18 に 1.3 GBq まで増加したあと減少し、11/30 までに 0.37 GBq (河口堆積量の約 1.5 %)

に低下した。河口外縁域では浸食が卓越し、懸濁態 ^{137}Cs の空間的な半減期は 3 日程度と見積もられた。浅海域における沿岸漂砂は南方向に偏っており、河口南側には約 14 GBq (流出量の 25.1 %) が堆積しているのに対し、北側には 1.7 GBq しか輸送されない。一方、水深 10 m 以深の沖合へは約 6.5 GBq (11.7 %), 計算領域外へは 7.9 GBq (14.2 %) が流出した。以上の結果は現地調査結果と整合的であり、原発事故に伴う陸域-海域間の放射性核種移行プロセスの解明、堆積物中放射能の動態把握や予測に向けて大きな一歩が刻まれた。

成果発表

① 論文発表

Uchiyama, Y., Kanki, R., Takano, A., Yamazaki, H. and Miyazawa, Y. (2017): Mesoscale reproducibility in regional ocean modeling with a 3-D stratification estimate based on Aviso-Argo data, *Atmosphere-Ocean*, Vol. 55, pp.1-18, doi: 10.1080/07055900.2017.1399858

内山雄介・東 晃平・小谷瑳千花・岩崎理樹・津旨大輔・上平雄基・清水康行・恩田裕一 (2017): 台風 201326 号出水に伴う新田川起源懸濁態放射性核種の沿岸域でのインベントリ解析, 土木学会論文集 B2 (海岸工学), Vol. 73, No. 2, pp. I_685-I_690, doi:10.2208/kaigan.73.I_685

内山雄介 (2017): マルチクラス懸濁質輸送モデルを用いた福島沿岸域における河川由来懸濁質および懸濁態放射性核種の海洋分散について, 沿岸海洋研究, Vol. 54, No. 2, pp. 159-172.

② 学会発表

Uchiyama, Y., Aduma, K., Iwasaki, T., Odani, S., Kamidaira, Y., Tsumune, D., Shimizu, Y. and Onda, Y. (2018): Storm-driven flood and associated coastal dispersal of suspended radiocesium from Niida River: A high-resolution numerical assessment with a coupled river-ocean-wave-sediment model, *European Geosciences Union General Assembly 2018 (EGU2018)*, Vienna, Austria, April 8-13, 2018.

山田正俊・青山道夫・池原 研・猪股弥生・植松光夫・内山雄介・帰山秀樹・加藤義久・日下部正志・熊本雄一郎・高畑直人・田副博文・張 勁・坪野考樹・津旨大輔・鄭 建・永井尚生・浜島靖典・本多牧生・三角和弘・楊 国勝 (2017): 福島原発由来の放射性核種の環境動態に関する学際的研究 (3) 海洋における放射性物質の分布状況・要因の把握, 第 18 回環境放射能研究会, 筑波市, 2017 年 3 月 14-16 日.

③ その他

なし

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

研究代表者：鄭 建 Jian Zheng (National Institute of Radiological Sciences)

共同研究者：門 武 (放医研)

受入研究者：山田正俊 (弘前大学)

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 FY2017, our study focused on analytical method development for rapid analysis of Pu isotopes in seawater. Many current analytical techniques for Pu isotopes in seawater are inadequate, not only due to the difficulties in sampling large volumes of seawater, but also due to the complexities of the chemical treatments required. In addition, many current analytical methods cause quite lot of waste acids enhancing great burdens for laboratory management. Since the early stage seawater samples available for Pu isotope analysis were limited to less than 10 L, an analytical method with high Pu recovery and high U decontamination factor is highly required. As shown in Fig. 1, a new analytical method to rapidly determine Pu isotopes in seawater by SF-ICP-MS including $\text{Fe}(\text{OH})_2$ primary co-precipitation, $\text{CaF}_2/\text{LaF}_3$ secondary co-precipitation and TEVA+UTEVA+DGA extraction chromatographic separation was established. High concentration efficiency ($\sim 100\%$) and high U decontamination factor ($\sim 10^7$) were achieved. The plutonium chemical recoveries were 74-88% with the mean of $83 \pm 5\%$. The precisions for both $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios and $^{239+240}\text{Pu}$ activity concentrations were less than 5% when 15 L of seawater samples with the typical $^{239+240}\text{Pu}$ activity of the Northwest Pacific were measured. It just needs 12 hours to determine plutonium using this new method. The limit of detection (LOD) for ^{239}Pu and ^{240}Pu were both 0.08 fg/mL, corresponding to 0.01 mBq/m³ for ^{239}Pu and 0.05 mBq/m³ for ^{240}Pu when a 15L volume of seawater was measured. This method was applied to determine the

seawater samples collected 446-1316 km off the FDNPP accident site in the Northwest Pacific in July of 2013. The obtained $^{239+240}\text{Pu}$ activity concentrations of 1.21-2.19 mBq/m³ and the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios of 0.198-0.322 suggested that there was no significant Pu contamination from the accident to the Northwest Pacific.

The analysis of Pu isotopes ($^{239+240}\text{Pu}$ activity and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio) in the early stage monitor seawater samples is in progress.

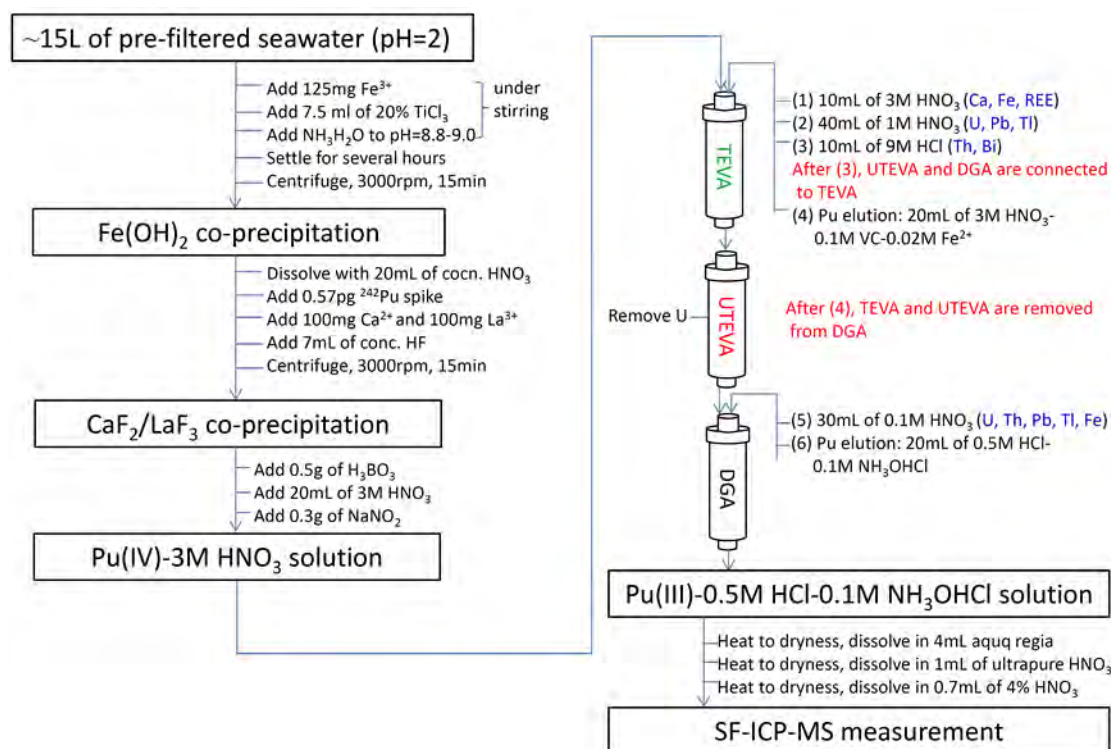


Figure 1. Flow chart of the analytical procedure for the determination of Pu isotopes in seawater by extraction chromatography and SF-ICP-MS.

List of Publication

1. W. Men, **J. Zheng***, H. Wang, Y. Y. Ni, T. Aono, Sherrod L. Maxwell, K. Tagami, S. Uchida, M. Yamada (2018): Establishing rapid analysis of Pu isotopes in seawater to study the impact of Fukushima nuclear accident in the Northwest Pacific. *Sci. Rep.* 8:1892. Doi:10.1038/s41598-018-20151-4.

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、陸域大気ラドン起源の ^{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した。

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 を検討対象とした。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 のガンマ線を計測した。 ^{137}Cs 放射能については、福島大学の計算プログラムを用いた。 ^{210}Pb については、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 の放射能を求めた。用いた分析法についてIAEA環境標準試料で分析信頼性の確認を行った結果、保証値の範囲内であった。

③ 結果・考察

1FNPPのモニタリング地点のマコガレイ・ババガレイの胃内の海底土粒子、および南側沖合 St. A, B, IO2 の海底土中有機物を餌とするベントスの船上培養排泄海底土粒子では、鉛 210 濃度はおよそ3から400 $\text{Bq kg-dry-sediment}^{-1}$ の濃度範囲に、またセシウム 137 はおよそ30から500 $\text{Bq kg-dry-sediment}^{-1}$ の濃度範囲にあった。 $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}$ 比は、0.6から10の範囲であった。 ^{210}Pb 濃度は沿岸カレイ類の胃内容物海底土粒子よりも沖合ベントス排泄海底土粒子における方が高い傾向がみられた。陸域の河川から流入する堆積物粒子のエンドメンバーとしての河川氾濫堆積物では、放射性セシウム濃度は高かったが、 ^{210}Pb 濃度は海底土粒子と大きくは異ならなかった。本

研究期間中に ^{210}Pb の親核種 (^{226}Ra , ^{214}Bi) 濃度測定は完了しなかったが、沿岸粒子中 ^{210}Pb の最小濃度およそ 3 Bq kg-dry^{-1} が平衡 ^{210}Pb 濃度 と推定された。

カレイ類の胃内容物における海底土粒子中の放射性セシウム濃度は、初期に海洋へ導入された放射性セシウムの吸脱着で理論的には説明できると考えられているが、沖合の海底表層土やベントス中の堆積物粒子は吸脱着では説明できない高い実測値を示している(Tateda et al.投稿準備中)。このような吸脱着以外の寄与が推定される海底土中の放射性セシウムの起源としては、1) 濃度が高い沿岸域からの再懸濁移動、2) 大規模出水時の陸域からの陸上粒子の運搬、が考えられる。2 ヶ年の研究結果では、2013 年の沖合のベントス中堆積物微粒子(<75mm) 中で総鉛 210 と放射性セシウム濃度の有意な相関がみられた($p<0.01$)。沿岸堆積物粒子中の ^{137}Cs 濃度が、おおむね初期の吸脱着で説明可能なこと、沖合へ向けて ^{137}Cs と ^{210}Pb 濃度が上昇すること、および過剰鉛は粒子沈降時に吸着されること、から考えて、沖合の微粒子中の ^{137}Cs は、初期の濃度が高い沿岸域からの再懸濁移動と推定された。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

なし

少量の環境水試料を対象とした低濃度トリチウム測定に関する検討

赤田尚史（自然科学研究機構）

研究成果概要

① 研究目的

環境水に含まれるトリチウムは、地球表層における水循環を明らかにするためのトレーサーとして古くから利用されてきたが、近年ではその濃度レベルが低下し、液体シンチレーションカウンターによる定量下限値付近で推移している。トリチウムをトレーサーとして利用するには高精度での測定が不可欠であり、試料水を濃縮するなどの前処理が必要となる。しかし、環境試料によっては十分な試料水量を確保することが困難な場合もある。本研究では、固体高分子膜電解濃縮装置を利用し、低トリチウム濃度かつ試料量の少ない環境試料に含まれるトリチウム定量手法を確立する。また、低濃度測定のために必要なバックグラウンド水の探査も実施する。

② 研究方法

精密測定において、その精度は重要となる。本研究では、測定精度の確認としてIAEA標準水（TRIC-2012）の分析を行い、保証値との比較を行った。濃縮効率と試料水回収率の向上のため、固体高分子膜電解濃縮装置の試料水タンクをガラスの二重構造とし、外側に冷却水を流すことで試料水を冷却した。

③ 結果・考察

測定に用いる 2 台の低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置（Quantallus（パーキンエルマー）、LB-7（日立））について、標準溶液を用いて校正曲線を作成した後、IAEA標準水の分析を行った。その結果、測定結果は保証値の持つ不確かさの範囲で一致し、高精度で測定できることが明らかとなった。また、トリチウム濃縮装置の試料水タンクに接続した冷却水循環装置を 14℃に設定し、外部から試料水を冷却すると濃縮効率と回収率が最適であった。この条件で 300mL の試料水を濃色した場合、0.7TU 程度のトリチウムを検出できることが明らかとなった。本手法を用いて南極表層積雪を分析した結果、沿岸域から表彰頂上部に向かうにつれてトリチウム濃度が上昇すること、水蒸気の起源に応じて変化する d-excess と同様な変動傾向を示すことが明らかとなった。これは、南極における降雪システムに関連する現象と考えられ、低濃度精密測定手法を用いることでこの現象を検出できたと言える。更に、東南アジアのミネラルウォーターを分析した結果、微量ではあるがトリチウムは検出され、BG 水には適していないことが分かった。

成果発表

論文発表 なし

学会発表 栗田直幸，赤田尚史，藤田耕史，本山秀明：東南極における表層積雪の同
位体分布とその形成要因，第8回極域科学シンポジウム，（2017）

その他 なし

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 日の東日本大震災とその後の大津波によって破損した東京電力福島第一原子力発電所（FNPP1）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、急激な濃度低下が起った 5 月以降はその緊急時対応用の簡易測定法では正確な濃度測定が困難となった。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、5 月～7 月の間はデータの空白期間となった海域もある。本研究は、弘前大学に保管されている「海域モニタリング」の予備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 月を含む事故から数カ月以内の福島県沿岸域における FNPP1 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

「海域モニタリング」初期に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、ガンマ線計測することによって低濃度の放射性セシウム（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所属の調査船航海において、FNPP1 から 30～50km 離れた福島県沖合海域で採取された予備の海域モニタリング海水 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。また、国立研究開発法人水産研究・教育機構の中央水産研究所が、2011 年 4～5 月に FNPP1 沿岸海域で採取した海水に含まれる放射性セシ

ウム濃度も、AMP 処理して再度測定した。これら再測定によって得られた新しいデータを、先行研究によって報告されているデータと統合することで新たなデータセットを作成した。

③ 結果・考察

本研究で得られた新たなデータセットをもとに作成された、2011 年 3 月下旬から 7 月上旬の間の表面水中溶存セシウム 137 の分布を図 1 に示した。沿岸から数 km 以内では、FNPP1 から放出された放射性セシウムは南北方向への流れが卓越する沿岸流によって南北方向に輸送された。一方 3 月下旬から 5 月上旬にかけては、茨城県沖に存在した高気圧性渦が、高濃度のセシウム 137 を含む北側の海水が南へ広がることを阻止していた。その間、放射性セシウムはその高気圧性渦北側の西および南西向きの流れに沿って西側に運ばれたものと考えられる。5 月下旬にその高気圧性渦が急速に南へ後退したため、茨城県沿岸に沿って高濃度のセシウム 137 を含む海水が南へ運ばれた。その後、それらも表面海流によって西側に運ばれた。

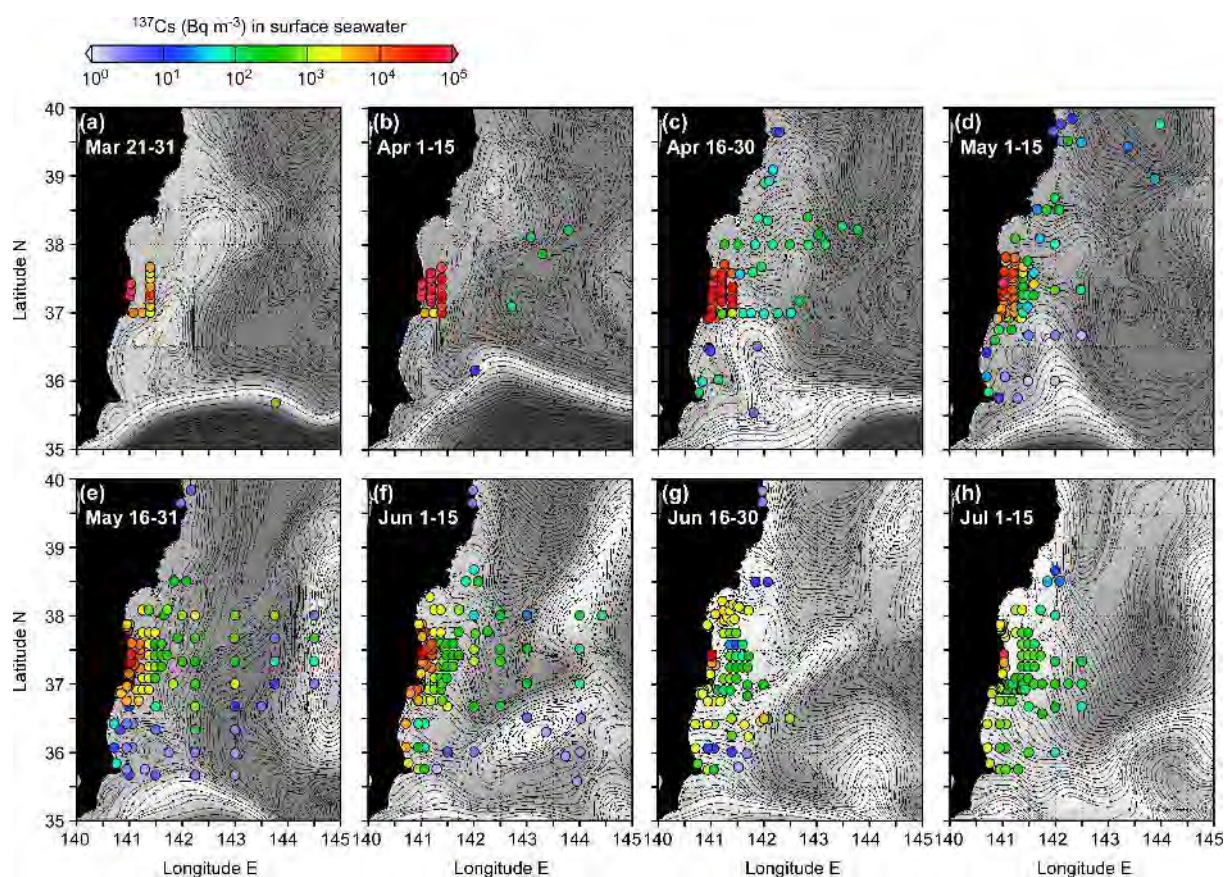


図 1 2011 年 3 月下旬から 7 月上旬の間の表面海水中セシウム 137 濃度 (Bq/m^3)。濃度は、FNPP1 事故時 (2011 年 3 月 11 日) に放射壊変分を補正してある。背景のグレイスケースのコンタと線は、それぞれ同化モデルを用いて推定された海面高度と表面海流の流れ線を表す。

観測海域を8つに分割し、それぞれの海域における表面海水中セシウム 137 濃度の時間変化を図2に示した。FNPP1 近傍の海域 A では3月下旬に 10^8 Bq/m³ 近くまで濃度が急上昇した。これは、原子炉内の高濃度放射性セシウムを含む汚染水が直接北太平洋に流出した結果である。その濃度ピークは4月上旬には海域 B、4月下旬には海域 C、さらに5月下旬には海域 D に移動した。この間の平均西進速度は、約 5 cm/s と計算された。5月下旬に茨城県沖の高気圧性渦が南へ後退した結果、海域 E と H のセシウム 137 濃度が上昇した。これらの結果は、FNPP1 から放出されたセシウム 137 が、宮城ー福島ー茨城県の沿岸・沖合海域の複雑な表面海流によって、次第に西側に広がっていったことを示している。

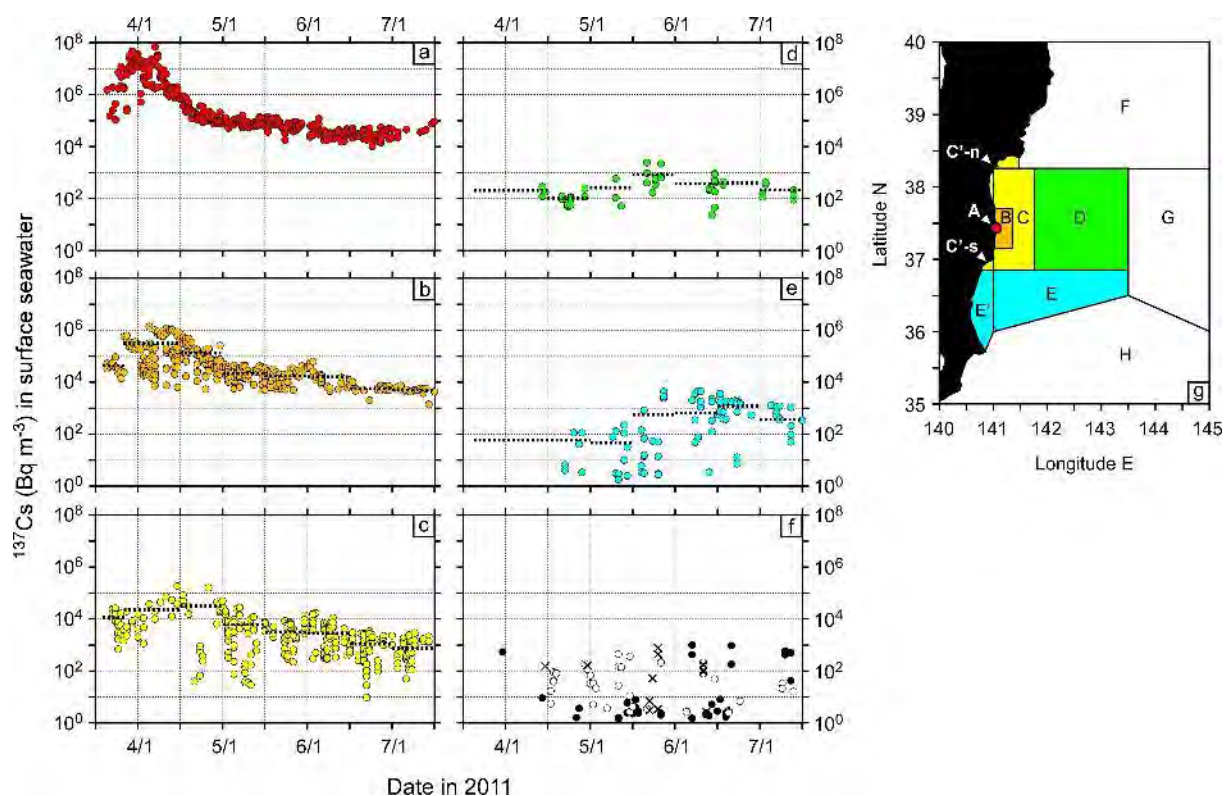


図2 2011年3月下旬から7月上旬の間の表面海水中セシウム 137 濃度 (Bq/m³) の時間変化。(g)中示された海域 AーE は、それぞれ(a)、(b)、(c)、(d)、(e)を指す。海域濃 F、G、H はそれぞれ(f)の○、×、●を示す。

成果発表

① 論文発表

該当なし

② 学会発表

該当なし

③ その他

該当なし

福島沖海底堆積物の再懸濁と水平輸送過程の研究

研究代表者：本多牧生（海洋研究開発機構）

共同研究者：田副博文（弘前大学）

受入研究者：山田正俊（弘前大学）

研究成果概要

① 研究目的

東京電力福島第一原子力発電所（FNPP1）事故により放出され海洋へ流入した人工放射性セシウム（Cs）の一部が福島県および近隣県沖の浅海（水深 200m 以浅）海底堆積物に沈着した。これまでの調査で、堆積した Cs（海底 Cs）量は徐々に低下しており、そのメカニズムの一つとして海底 Cs が剪断応力の上昇により再懸濁し、外洋あるいは対象海域外へ向かって水平方向に輸送されていることが明らかとなった。しかし時空間変動の詳細については不明である。そこで同海域および周辺海域で収集された沈降粒子や海底堆積物中の微量金属（希土類元素）を測定することで海底 Cs の時空間変動の解明を試みる。

② 研究方法

2011 年 7 月～2014 年 6 月、FNPP1 南東約 100km 沖大陸斜面の水深 500m と 1000m においてセジメントトラップで時系列的に捕集された沈降粒子試料（約 100 サンプル）の希土類元素（軽希土類：La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, 重希土類：Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu）を測定し、過去に報告されたセジメントトラップ試料中希土類元素測定結果、および FNPP1 沖堆積物中の REE 報告値と比較し捕集粒子の起源の推定を試みた。

③ 結果・考察

(1) セジメントトラップ試料中希土類元素の分析方法の確立

セジメントトラップ試料約 20mg をフュージョン法により分解し、約 50ml の 6%硝酸溶液としたものを、さらに内標準物質として Ln, Tl, Cs を含む 3%硝酸溶液で 10 倍希釈したものを準備し、誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）により希土類元素を測定した。その結果、La の値が時折

大きな値を示し不純物の混入の可能性が示唆されたが、その他の元素は精度が 2%(Ce)–6%(Tm) 以内で測定することができた。

(2) セジメントトラップ試料の希土類元素濃度

標準物質として使用される頁岩 (Post-Archean Australian average Shale: PAAS) に規格化した各希土類元素濃度 (ns-REE) は 0.1 - 1.0 の値をとり、軽希土類の ns-REE が低く、重希土類の ns-REE が高かった。季節変動では、概して 5-6 月頃に低くなる傾向があった。また FNPP1 事故由来の放射性 Cs が高い試料中の ns-REE は相対的に高い傾向があった。これまで報告されたセジメントトラップ試料中の ns-REE と比較すると、多くの試料中の ns-REE が 0.1 以下のベーリング海やアリューシャン列島沖中央太平洋のセジメントトラップ試料 (Akagi et al., 2011) より、ns-REE が 0.1 - 1.0 の日本海溝でのセジメントトラップ試料 (Lerche and Nozaki, 1998; Otosaka and Noriki, 2000) に ns-REE パターンに近いことが明らかとなった。

(3) FNPP1 沖海底堆積物中 REE との比較

産業技術総合研究所作成の「海と陸の地球化学図データベース」(<https://gbank.gsj.jp/geochemmap/>) より、FNPP1 の位置する北緯 37.5 度から上記セジメントトラップを設置した北緯 36.5 度の間の水深約 20m - 1500 m の海底堆積物中の REE 値を抽出し、ns-REE を計算したあと、深度別に解析した。その結果、全ての深度の ns-REE が軽希土類の ns-REE が低く重希土類の ns-REE が高く、0.1 - 1.0 の値を示し、セジメントトラップの ns-REE パターンと同様の値を示した。一方、水深 100m 以浅の海底堆積物の軽希土類 ns-REE の変動が大きいことがわかり、場所によって軽希土類の値が異なる可能性が示唆された。そこで重希土類の ns-Yb に対する軽希土類の ns-La, ns-Ce, ns-Nd の比 (それぞれ La/Yb(ns), Ce/Tb(ns), Nd/Yb(ns)) を深度別に計算し比較した。その結果、水深 100m 以浅の海底堆積物のこれらの値が、その他の深度のものより高い傾向があることが明らかになった。そこでセジメントトラップ試料の La/Yb(ns), Ce/Tb(ns), Nd/Yb(ns) を計算し、その変動を調べ海底堆積物のものと比較した。その結果、セジメントトラップ試料中の Ce/Tb(ns), Nd/Yb(ns) は、水深 100m 以浅の海底堆積物の Ce/Tb(ns), Nd/Yb(ns) と同様な値 (～0.6) を示した。従ってセジメントトラップ試料に水深 100m 以浅の海底堆積物が含まれていることが窺えた。ただ有意な季節変動は見られず、FNPP1 起源 Cs との関係性は見出せなかった。今後は海底堆積物中 REE と FNPP1 起源 Cs との関係を含む詳細な解析、および陸堆積物の REE も解析し、REE が海底堆積物の化学トレーサーとして有用か否かを検討する予定である。

成果発表

① 論文発表

準備中

② 学会発表

準備中

③ その他

年次報告会でポスター発表。

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

青山 道夫（国立大学法人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

本研究では、自ら採取し精密分析した福島県沿岸、東シナ海および日本海のデータと合わせて、日本および韓国政府のモニタリングデータを収集し解析した。また福島沿岸でのセシウムとトリチウムの挙動の違いに着目し、解析した。

③ 結果・考察

2011 年 3 月 11 日以降、日本周辺海域では、福島事故前の 1.5 Bq m^{-3} （大規模核実験由来）から約 3 Bq m^{-3} 程度まで濃度の増加傾向が認められた。2012 年以降、福島事故由来 ^{137}Cs は徐々に増加（＜約 1.2 Bq m^{-3} ）していた。福島事故由来 ^{137}Cs は、日本海のモニタリングサイトと比較して、東シナ海に位置する鹿児島・佐賀で大きく、2016 年では福島事故由来 ^{137}Cs 濃度の減少傾向が認められた。日本海のモニタリングサイトでは、2015 及び 2016 年における福島事故由来 ^{137}Cs 濃度はほぼ同程度であった。北海道沖の泊と青森核燃沖で観測された福島事故由来 ^{137}Cs 濃度は、

日本海の南に位置するモニタリング地点（島根等）と比較して低い傾向が認められた。 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比から、日本海で観測された福島事故由来 ^{137}Cs は、亜熱帯モード水形成領域である西部北太平洋の表層から subduct して海洋内部へ輸送され、数年スケールで移動し、東シナ海から日本海にかけて obduct して日本海沿岸表層に再循環していることが明らかになった。2012-2016 年の期間、対馬海峡から日本海へ流入した福島事故由来 ^{137}Cs 量は $0.20 \pm 0.03 \text{ PBq}$ と見積られた。これは亜熱帯モード水に存在していた福島事故由来 ^{137}Cs の約 5 %であることが明らかになった。

(Inomata et al., OSD

<https://www.ocean-sci-discuss.net/os-2017-90/#discussion> に掲載済、改訂版査読中)。

福島沿岸での表面海水中の放射性セシウムおよび ^3H の放射能濃度は、福島第一原発の近傍で極大となり、北と南の両方向に向かいそれぞれ減少傾向を示した。しかし、両者の傾向は異なり、それぞれのソースは、放射性セシウムは事故サイトからの点線源と推定されるのに対し、トリチウムは沿岸の河川からの流入が主たる線的なソースであると推測された。 ^3H と ^{137}Cs の放射能比は福島沿岸では時間と空間で大きく変動していた。 ^3H と ^{137}Cs の放射能比の空間変動は、1) 福島原発事故サイトからの ^3H の豊富な汚染水の散発的な流出が近傍では認められるとともに、2) 事故サイトから離れるにしたがって、セシウムと同様の外洋海水との混合による希釈効果とともに、3) 河川水からの寄与（比が大きくなる効果）あるいは ^3H のみが表層から蒸発することによる寄与（比が小さくなる効果）が大きくなることによる複合的な結果であることを示唆している。（論文改訂版査読中）

成果発表

① 論文発表

Michio Aoyama, Yayoi Inomata, Daisuke Tsumune, Yutaka Tateda, Fukushima radionuclides in the marine environment from coastal region of Japan to the Pacific Ocean through the end of 2016, Progress in Nuclear Science and Technology, in press

Inomata, Y., Aoyama, M., Hamajima, Y., and Yamada, M.: Rapid recirculation of FNPP1 derived radiocaesium suggesting new pathway of subtropical mode water in

the western North Pacific to the Sea of Japan, Ocean Sci. Discuss.,
<https://doi.org/10.5194/os-2017-90>, in review, 2017.

② 学会発表

Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Yayoi Inomata, Yuichiro Kumamoto, Eitarou Oka, Takaki Tsubono and Daisuke Tsumune, Radiocaesium in surface water observed in winter 2015/2016 in both coastal regions of Japan and the western North Pacific Ocean, 6th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry, September 17 - 22, 2017, Jeju Island, Korea [Invited]

③ その他

化学トレーサーを用いた海底地下水湧出による放射性セシウムの 沿岸海域への移行プロセスの解明

張 勁 （富山大学大学院理工学研究部）

研究成果概要

① 研究目的

2011 年に起こった福島第一原子力発電所事故によって陸上に沈着した放射性セシウム（Cs）は、水・物質循環に伴う移動で海洋へ移行することから今後は沿岸域への移行予測が重要になる。陸域から海洋への放射性セシウムの供給源として河川水以外に海底地下水湧出（以下、海底湧水）の存在が指摘されている。しかし、採取が容易な河川水に対し、海底湧水は一般的に目に見えない現象であるため試料採取が困難であり、これまで定量的な評価が行われていなかった。本研究では、汽水湖「松川浦」で採取した水試料及び海底堆積物中の間隙水の化学分析を通じて海底湧水を含めた陸域から沿岸域への放射性 Cs の流入量を見積もることを目的とした。

② 研究方法

2014 年 10 月から 2017 年 3 月にかけて汽水湖「松川浦」で採取した水試料及び海底堆積物間隙水に含まれる放射性 Cs 濃度はゲルマニウム半同位体検出器を用いて測定した。また、イオンクロマトグラフを用いて塩化物イオン濃度を定量し、UNESCO（1976）の方法を用い、塩化物イオン濃度を塩分に換算した。これらのデータを用いて、塩分勾配に伴う放射性 Cs の挙動解析及び海底湧水による放射性 Cs の供給量推定を行った。

③ 結果・考察

汽水域において放射性 Cs は懸濁態と溶存態で異なる挙動を示した。懸濁態は低塩分域で凝集・沈降するのに対し、溶存態は低塩分から高塩分において懸濁粒子に吸着していた放射性 Cs が溶脱していることが明らかになった。また、間隙水中の放射性 Cs 濃度は直上水に比べて有意に高いことから堆積物中の放射性 Cs が脱離することが強く示唆された。水・物質収支モデルから、堆積物から脱離した高濃度の放射性 Cs

を含む間隙水が海底湧水の 1 種である「潮汐に応答した海水—堆積物の再循環水」として湧出していることが示された。また、再循環水によって松川浦へ供給される ^{137}Cs フラックスは、河川から供給される ^{137}Cs フラックスに比べて極めて大きいことが分かった。さらに、太平洋へ流入する ^{137}Cs フラックスは、再循環水を含めることで $1.7\pm 0.2 - 4.2\pm 0.6$ 倍大きくなると見積もられたことから、福島第一原子力発電所事故に由来する放射性 Cs の海洋への供給源として再循環水が重要であることが明らかになった。

成果発表

① 論文発表

1. 神林 翔太, 張 勁, 成田 尚史, 山田 正俊 (印刷中): 汽水域における放射性セシウムの分布状況と輸送過程の把握: 福島県松川浦での事例. 月刊海洋号外
2. Kambayashi, S., Zhang, J., Narita, H. (2017): Spatial assessment of radiocaesium in the largest lagoon in Fukushima after the TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident. Mar. Pollut. Bull. 122, 344-352.

② 学会発表

1. Zhang, J., Kambayashi, S., Zhang, B. (2017): Significance of Submarine Groundwater Discharge on Material Transportation from Land to Ocean: Under Long Term Climate Change and Environmental Accident. Goldschmidt Conference 2017. August 15, Paris France.
2. 神林 翔太, 張 勁, 成田 尚史 (2017): 海底地下水湧出による放射性セシウムの沿岸海域への移行: 間隙水の地球化学的特徴によるアプローチ. 日本地球惑星科学連合 2017 年大会. 5 月 25 日, 千葉

③ その他

福島沿岸海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

福島第一原子力発電所事故による沿岸海域の汚染については、未だに一部の海域、魚種から放射性セシウムが検出されており、沿岸漁業の全面的な再開には至っていない。これらの海域における海底堆積物や懸濁粒子中の放射性セシウム分布や動態や、魚への放射性セシウムの移行過程には依然として多くの不明点があり、海域や魚類の今後の汚染の推移を見通すことを難しくさせている。本研究は、海底堆積物や懸濁粒子の放射性セシウム動態に大きな影響を与えていることが明らかになりつつある高線量粒子中の放射性セシウムの存在形態を中心に解析し、沿岸海域生態系の放射性セシウムレベルの今後の推移の予測に資することを目的とする。

② 研究方法

高線量粒子については、福島沿岸海域のプランクトンネット試料、セディメントトラップ試料、懸濁粒子試料、堆積物試料などで、イメージングプレート（IP）による解析により、高頻度で存在が確かめられている。引き続きイメージングプレート（IP）による解析を続け、出現頻度や放射能測定値への寄与を定量的に評価すると共に、走査型電子顕微鏡、電子線マイクロアナライザー（EPMA）などにより形状、化学組成等の解析を行う。

③ 結果・考察

今年度は主に堆積物中の高線量粒子について形態及び化学的性状を調べた。合計 31 個の高線量粒子を単離したが、大きさは数十 μm ～数百 μm で球形もしくは不定形であり、土壌等で見つかっているものと形状が似ていた。元素組成分析では、主に Si、O、Ca、Al、Fe 等で構成されていることが示され、コンクリート系の成分が形成過程に関与していると推測された。31 個中 20 個の粒子では、1 個の粒子の放射能が該当する堆積物試料の放射能の半分以上を占めていた。高線量粒子の存在が、堆積物の放射能の測定値に大きな影響を与えており、同一地点で採取された堆積物中の放射能の測定値を大きく変動させる主な要因であることが示された。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

田辺魁・久保篤史・鈴木元太・伊藤友加里・石丸隆・津旨大輔・水野拓治・荒川久幸・神田穰太、福島沿岸海域における懸濁物質中の放射性セシウム、2017 年度日本海洋学会秋季大会、仙台国際センター、平成 29 年 10 月 14 日

鋤柄千穂・三野義尚・伊藤友加里・石丸隆・神田穰太・石坂丞二、福島沖底層における放射性物質の挙動、2017 年度日本海洋学会秋季大会、仙台国際センター、平成 29 年 10 月 14 日

③ その他

田辺魁、福島県沖堆積物における高セシウム粒子の解析、修士論文、平成 30 年 3 月、東京海洋大学大学院海洋科学技術研究科

統計解析による北太平洋における東電福島第一原発事故起源の

放射性セシウムの時空間変動

研究代表者 猪股 弥生（金沢大学）

共同研究者 青山 道夫（福島大学）

受け入れ研究者 山田 正俊（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事故に伴い、直接漏洩及び大気からの沈着によって北太平洋に放射性セシウム (^{134}Cs , ^{137}Cs) が放出された。黒潮北側の亜寒帯域に放出された放射性セシウムの一部は北太平洋中緯度を流れる海流に沿って、西から東に輸送された。さらに、この海域は、冬季の冷たい季節風によって冷却された表層水が亜表層に沈みこむ中央モード水 (Central mode water; CMW) 形成域に相当しているため、CMW 形成に伴い表層から海洋内部へ運ばれた放射性セシウムがあることが観測によって明らかになっている (Kumamoto et al., 2014)。一方、黒潮の南側の亜熱帯域に沈着した放射性セシウムは、混合層の発達する冬季に形成される亜熱帯モード水 (Subtropical Mode Water; STMW) の南への移流に伴って亜表層を南方に運ばれたことが明らかになっている (Kumamoto et al., 2014; Kaeriyama et al., 2014)。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観測値を使用し、データ同化の一手法である最適内挿法 (Optimum Interpolation; OI) を用いて、北太平洋表層水における放射性セシウム濃度の時空間変動やインベントリを見積もる。また、STMW や CMW の形成とともに海洋内部に輸送された放射性セシウム量を定量的に評価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 解析には、論文や報告書等で公表されている、可能な限り多くの放射性セシウムのデータを使用した。本研究では、海洋表層水における放射性セシウムの分布、インベントリ、及び輸送速度を

見積もる。さらに、大気化学輸送モデル (MASINGAR, MASINGARII, PMr) 及び日本沿岸海洋変動予測システム再解析データ (Japan Coastal Ocean Predictability Experiment) を用いて STMW 及び CMW 形成域への放射性セシウム沈着量を見積もった。

③ 結果・考察

FNPP1 に由来する放射性セシウム (^{134}Cs $\sim 10 \text{ Bq m}^{-3}$) は、2012 年 8–12 月には、北緯 45 度、日付変更線を中心とした北太平洋中央域 (北緯 35–45 度、東経 165 度–西経 170 度) に到達していた。北緯 40 度を中心として経度 180 度まで到達する放射性セシウムの輸送速度は 8.5 cm s^{-1} と見積もられた。2012 年 8–12 月に観測されたデータをもとに推定した表層水における ^{134}Cs 及び ^{137}Cs インベントリ (2012 年 10 月 1 日に放射壊変補正) は、それぞれ $4.7 \pm 0.83 \text{ PBq}$ 、 $12.5 \pm 0.89 \text{ PBq}$ であった。なお、2011 年 3 月 11 日における ^{134}Cs 及び ^{137}Cs のインベントリは $7.9 \pm 1.4 \text{ PBq}$ 、 $13 \pm 0.93 \text{ PBq}$ であった。直接漏洩及び大気からの沈着によって北太平洋に放出された ^{134}Cs は $15.2\text{--}18.3 \text{ PBq}$ と推定されていることから (Aoyama et al., 2016)、2012 年の北太平洋表層水には、北太平洋に放出量された ^{134}Cs の 43–53% が存在していることが明らかになった。2012 年 10–12 月に STMW に存在していた ^{134}Cs は $4.2 \pm 1.1 \text{ PBq}$ (Kaeriyama et al., 2016) であったことを考慮すると、CMW への ^{134}Cs 存在量は 3–6 PBq と推定された。また、STMW に取り込まれた放射性セシウムは、数年のスケールで日本南岸の亜表層を西へ輸送され、東シナ海に入り、対馬海峡を通過して日本海沿岸に輸送されることが明らかになった。2012–2016 年の期間日本海に流入した FNPP1- ^{137}Cs は約 $0.21 \pm 0.01 \text{ PBq}$ と見積もられた。これは、STMW に取り込まれた FNPP1- ^{137}Cs の約 5% に相当していた。

引用文献

- Aoyama et al.: ^{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. *J. Oceanogr.* 2016, 72:53–65.
- Kaeriyama et al.: Intrusion of Fukushima-derived radiocaesium into subsurface water due to formation of mode waters in the North Pacific. *Sci. Report.*, 2016, doi: 10.1038/srep22010.
- Kaeriyama et al.: Southwest Intrusion of ^{134}Cs and ^{137}Cs Derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident in the Western North Pacific, *Environ. Sci.*

Technol., 2014, 48, 3120-3127.

Kumamoto et al.: Southward spreading of the Fukushima-derived radiocaesium across the Kuroshio Extension in the North Pacific. Sci. Report., 2014, doi:10.1038/srep04276.

成果発表

① 論文発表

Inomata, Y., Aoyama, M., Hamajima, Y., Yamada, M. Rapid recirculation of FNPP1 derived radiocaesium suggesting new pathway of subtropical mode water in the western North Pacific to the Sea of Japan. Ocean Science Discussion, 2017, <https://doi.org/10.5194/os-2017-90>

② 学会発表

- ・ Inomata, Y., Aoyama, M., Tsubono, T., Tsumune, D., Yamada, M. Estimate of radiocaesium derived FNPP1 accident in the North Pacific Ocean, EGU, 2017 April

- ・ Inomata, Y., Aoyama, M., Tsubono, T., Tsumune, D., Yamada, M. Estimate of spatial and temporal variation of radiocaesium amount derived FNPP1 accident in the North Pacific Ocean, JpGU, 2017 May

- ・ 猪股弥生, 青山道夫, 浜島靖典, 山田正俊. 日本沿岸域における福島第一原発事故由来放射性セシウムの再循環. 九州沖縄地区合同シンポジウム,九州大学, 2017 年 12 月

③ その他

特記事項なし

北海道内の鉱泉水中ラドン濃度の測定と環境動態に関する研究

共同研究者	真田哲也 (北海道科学大学)
	赤田尚史 (核融合科学研究所)
	細田正洋 (弘前大学大学院)
受入研究者	城間吉貴 (弘前大学大学院)
	床次眞司 (弘前大学被ばく医療総合研究所)
	岩岡和輝 (弘前大学被ばく医療総合研究所)

研究成果概要

① 研究目的

我々は毎日の生活において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。昨年度の研究で北海道長万部町にある二股ラジウム温泉に湧出する鉱泉水中のラドン濃度が 100 Bq L^{-1} を超える放射能濃度であることが明らかとなり、採取時期によりその濃度が異なることも見い出された。そこで本研究では、当該鉱泉水中のラドン濃度の季節変動を把握しその変動要因と環境動態等を考察し、地下水流動系のイメージ構築を試みることを目的とする。

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、四半期ごとに鉱泉水（観音のお湯）を採取し、その中に含まれる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した。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）で測定した。測定時間は 3600 秒で積算計数率を積分バイアス法により求めた。ラドン濃度 C_0 (Bq L^{-1}) は次式により求めた。

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

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った。

③ 結果・考察

2016年9月から四半期ごとに7回採取した二股ラジウム温泉の鉱泉水中ラドン濃度の範囲は $150\text{--}209\text{ Bq L}^{-1}$ 、算術平均値は $186 \pm 19.9\text{ Bq L}^{-1}$ であり、採取時期によりラドン濃度の変動が確認された。冬季に高く夏季に低くなる傾向を示した。これは、季節により降水の地下水への流入量が増加することによって起因していることが考えられるが、今後、トリチウム濃度との関係を考察する等して、さらに解析を進めていく予定である。

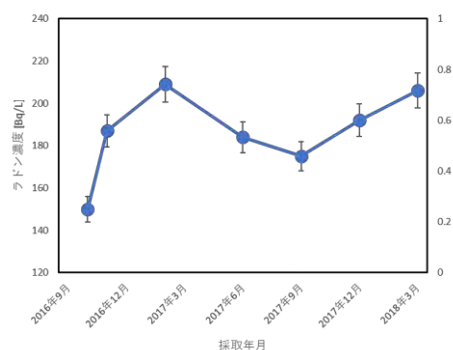


図1 二股ラジウム温泉鉱泉水中ラドン濃度の季節変動

トライアスラーとカンタラスの測定結果を比較しその妥当性を検討した。並行分析した試料はラドン濃度の異なる2種類の鉱泉水を用いた。二股ラジウム温泉で採取した鉱泉水4試料とローソク温泉(岐阜県)で採取した1試料の合計5試料で比較した。その結果を図2に示す。両結果はばらつきを考慮すると一致していた。また、トライアスラーによるラドン濃度測定の検出下限値は 2 Bq L^{-1} 以下であった。

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51回研究発表会、平成30年6月29-30日、札幌市(申込み済)

③ その他

なし

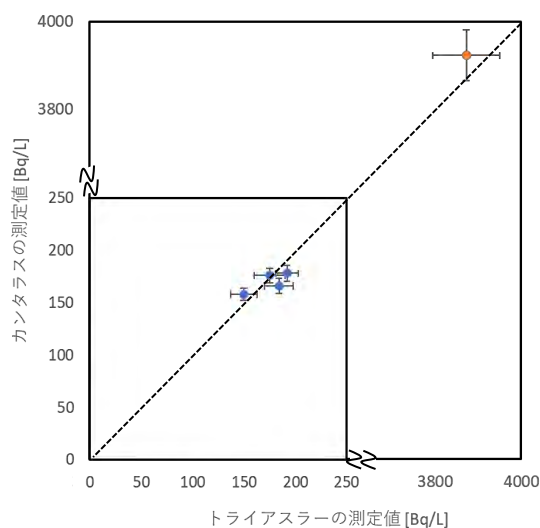


図2 トライアスラーとカンタラスの測定結果の比較

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

津旨 大輔 （電力中央研究所）

研究成果概要

① 研究目的

東日本大震災と津波による東京電力福島第一原子力発電所の事故により、海洋へ放射性物質が漏洩した。海洋への主な供給過程としては大気からの降下と直接漏洩がある。 ^{137}Cs の北太平洋スケールの大気からの降下量の推定は行われているが(Tsubono et al., 2016)、領域海洋への降下量の推定においては不確実性が大きい。一方、 ^{137}Cs の直接漏洩率に関しては、事故後約 4 年半に分かって推定を検証が行われている。一方、 ^{90}Sr と ^3H に関しては観測データが十分でないため、事故後長期間にわたる推定は行われていなかった。直接漏洩が開始した 2011 年 3 月 26 日から海側遮水壁が閉合された 2015 年 10 月 26 日までを対象に、 ^{137}C 、 ^{90}Sr 、 ^3H の直接漏洩率の推定を行う。

② 研究方法

沿岸海洋モデル (ROMS, Shchepetkin, and McWilliams, 2005) にトレーサ計算機能を組み込み (坪野ら、2010)、福島沖合海域($35^{\circ} 54' \text{ N}$ - $40^{\circ} 00' \text{ N}$, $139^{\circ} 54' \text{ E}$ - $147^{\circ} 00' \text{ E}$)を対象に、水平解像度は 1km、鉛直方向は σ 座標系で 30 層とし、水深 1000m 以深は計算対象外とした。駆動力として、気象庁の GSM を気象モデル(WRF, Skamarock, et al., 2008)で 5km メッシュに内挿するシステム(NuWFAS, 橋本ら, 2010)の結果を利用した。外洋域の流出入境界条件として、JCOPE2(Miyazawa et al., 2009)による再解析データを用いた。さらに福島沖合の複雑な流況を再現するため、JCOPE2 の再解析データに対して Nudging を行った。計算対象核種は ^{137}Cs とした。計算期間は 2011 年 3 月から 2015 年 9 月末とした。福島第一原子力発電所近傍の ^{137}Cs 濃度 (Bq m^{-3}) の観測値を、領域海洋モデル(ROMS)によって得られた単位漏洩率に対する放射性物質濃度 ($(\text{Bq m}^{-3})/(\text{Bq day}^{-1})$) で除することによって、 ^{137}Cs の直接漏洩率(Bq day^{-1})を推定する(津旨ら、2012; Tsumune et al., 2012; 2013)。 ^{137}Cs の直接漏洩率の推定結果を基に、 ^{90}Sr と ^3H の放射能比を考慮することによって、 ^{90}Sr と ^3H の直接漏洩率を推定する。

③ 結果・考察

初期の ^{137}Cs の直接漏洩率の推定結果は $2.2 \times 10^{14} \text{ Bq day}^{-1}$ であり、その後低下し $3.9 \times 10^9 \text{ Bq day}^{-1}$ となった。期間中の漏洩量は初期の再現結果の誤差も考慮し、 $3.6 \pm 0.7 \text{ PBq}$ と推定された。推定した直接漏洩率による ^{137}Cs 濃度の計算結果は、2013 年、2014 年、2015 年の年間平均濃度において、観測結果とよい一致を示し、その誤差は約 20% であった。 ^{90}Sr の直接漏洩率は、 $1.1 \times 10^{13} \text{ Bq day}^{-1}$ から $2.9 \times 10^9 \text{ Bq day}^{-1}$ まで低下したと推定された。期間中の漏洩量は、 ^{137}Cs と同じ誤差であるとする、 $210 \pm 42 \text{ TBq}$ と推定された。 ^3H の直接漏洩率は、 $1.9 \times 10^{12} \text{ Bq day}^{-1}$ から $3.8 \times 10^{10} \text{ Bq day}^{-1}$ まで低下したと推定された。期間中の漏洩量は、 ^{137}Cs と同じ誤差であるとする、 $190 \pm 38 \text{ TBq}$ と推定された。 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr と ^3H の直接漏洩率の時系列変化はそれぞれ異なっていた (図 1)。また、 ^{90}Sr と ^3H の直接漏洩量は、 ^{137}Cs と比較し、それぞれ 5%、0.07% と小さいことが分かった。ただし ^{90}Sr と ^3H の誤差に関しては、他の観測データの解析を行い、より適切な誤差を推定する必要がある。直接漏洩率の推定結果を用いた沿岸海洋シミュレーションを行い、再現計算結果は観測結果と整合的であることを確認した。

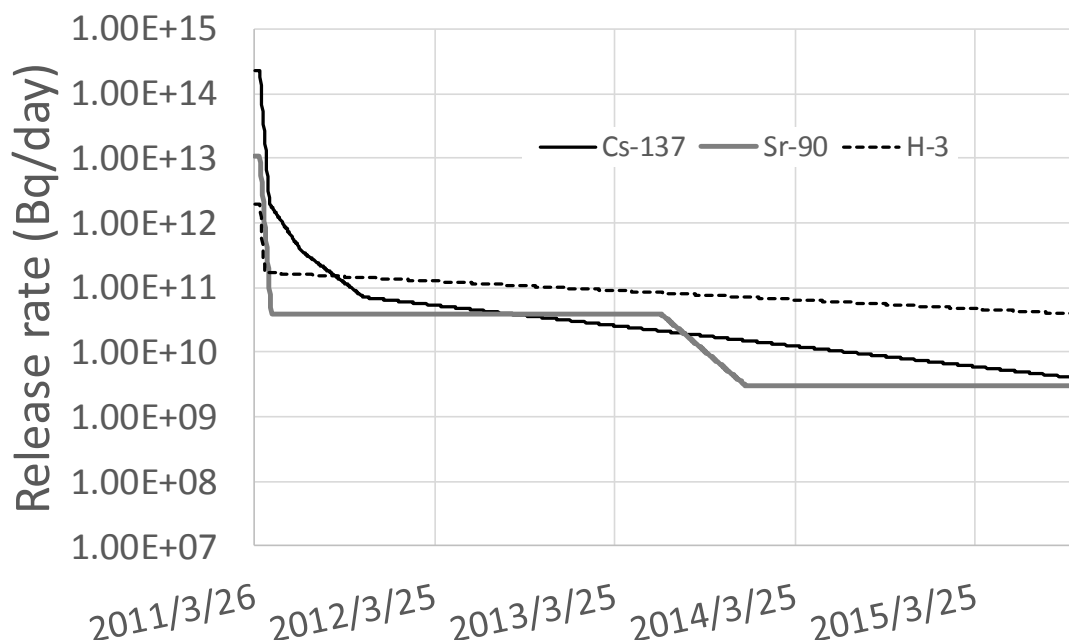


図 1 ^{137}C 、 ^{90}Sr 、 ^3H の直接漏洩率の推定結果

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

津旨大輔、青山道夫、坪野考樹、三角和弘、立田穰、Estimations of direct release rate of ^{137}Cs and ^{90}Sr to the ocean from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant for five-and-a-half years. EGU General Assembly 2017. 2017/04/27, Austria Center Vienna (ACV).(Austria)

津旨大輔、坪野考樹、三角和弘、立田穰、青山道夫、廣瀬勝巳、福島第一原子力発電所事故時に海洋へ直接漏洩した ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^3H の領域海洋シミュレーション、JpGU-AGU Joint Meeting 2017、2017/05/25、幕張メッセ

津旨大輔、青山道夫、廣瀬勝巳、坪野考樹、三角和弘、立田穰、Estimations of direct release rate of ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^3H from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant for four-and-a-half years、ENVIRA2017、2017/05/30, BEST WESTERN Vilnius Hotel, Vilnius (Lithuania)

津旨大輔、坪野考樹、芳村毅、三角和弘、立田穰、青山道夫、福島第一原子力発電所事故によって海洋へ直接漏洩した放射性物質の領域海洋における長期挙動、アイソトープ・放射線研究発表会、2017/07/05、東京大学弥生講堂

津旨大輔、坪野考樹、三角和弘、立田穰、豊田康嗣、青山道夫、福島第一原子力発電所事故によって海洋へ 直接漏洩した Cs-137, Sr-90, H-3 の領域海洋 における長期挙動、土木学会地球環境シンポジウム、2017/09/09、神戸大学

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 放射性セシウム基準線源の開発

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放射性セシウムを吸着させた鉱物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、SLA プリンタと天然放射性核種等を用い、放射能濃度の非破壊測定が可能となったが、現時点で2つの大きな問題が発生している。1つは、線源自身にガンマ線が吸収される「自己吸収」に関する問題ともう1つは「試料中に放射能の偏り」がある場合、正しい濃度が計算できない問題である。現在、これらの問題を解決するため、2つのノズルを持ち2種類のフィラメントを任意の割合で混合できる熱溶解積層方式3Dプリンタを用いた新しい線源の開発法を行っている。今後さらなる開発により、より高精度の線源の作成が可能となることが期待される。

成果発表

① 論文発表

② 学会発表

- ・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，2018年3月13日～15日，高エネルギー加速器研究機構。

③ その他

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

山形武靖 （日本大学文理学部）

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壌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、福島土壌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 の測定を行っているため、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

ICP-MS 試料作成について高マトリックス試料測定を想定し、液体試料で測定を行う従来法から大気・海水中の ^{129}I の測定法を応用し、揮発性ハロカーボンに変換し、コールドトラップに回収する方法の開発を試みたが、測定までは至らなかった。本法の開発が出来れば ICP-MS 測定における問題点である試料のマトリックスの影響によるイオン化効率の変動によらない測定が出来ると考えられる。

成果発表

① 論文発表

特になし

② 学会発表

1, Temporal variation of ^{129}I concentrations in seawater of the southern Canada Basin, Hisao Nagai, Akira Kudo, Takeyasu Yamagata, Yuichiro Kumamoto, Shigeto Nishino, Hiroyuki Matsuzaki, 14th International conference on Accelerator Mass Spectrometry, 8/12-8/20, University of Ottawa

2, 北極海に置ける海水中 ^{129}I 濃度の経年変化, 永井尚生、山形武靖、工藤輝、熊本雄一郎、西野茂人、松崎浩之, 第 20 回 AMS シンポジウム, 12/14-12/15, セラトピア土岐

③ その他

特になし

高線量汚染地域に生息するアカネズミの染色体を 指標とした放射線影響評価

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7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。染色体異常頻度を指標とした線量評価法が被ばく事故においては最も信頼できる生物学的線量評価法である。そこで、アカネズミの染色体異常頻度を調査したところ、事故当初から現在まで年々染色体異常の頻度が減少していることから、染色体異常の解析が環境モニタリングとしても有用であることを示している。しかしながら、体細胞における染色体異常の出現頻度を指標にした線量の推定法は単一染色による染色体の形態の違いを基準としていることから、細胞分裂のステージや標本作成時の条件により染色体の形態の識別が困難な場合があるということが問題となっている。さらに生殖細胞の染色体観察には、体細胞の問題点に加えて別の課題があるため、染色体の同定が困難であり、放射線の影響評価の障害となっている。そこで、この問題点を解決するために、染色体の識別を容易にする様々な手法がこれまで開発されてきた。その中でもセントロメア領域を識別する方法が有効であることが知られている。しかしながら、ゲノムの解析が進んでいるヒトや実験動物（マウス、ラット）に関しては動原体を特異的に染色するDNAプローブが既に市販されているが、野生生物に関してはゲノム情報が乏しくプローブのデザインが困難である。本研究では、アカネズミの線量評価を容易にするために、セントロメアに存在するDNA反復配列を単離することを試みた。

② 研究方法

制限酵素による反復配列の探索

21種類の制限酵素でゲノムDNAを消化し電気泳動を行い、反復配列で構成されているバンドを探索した。

PCR による反復配列の探索

アカネズミのゲノム情報が乏しいため、アカネズミの近縁種であるヒメネズミ (Fukushi et al., 2001) およびハントウアカネズミ (Matsubara et al., 2008) のセントロメア領域、マウスのセントロメア領域のマイナーサテライト配列 (Wong and Rattner 1988) のコンセンサス配列からプライマーをデザインした。さらに真核生物で保存性の高いことで知られている CENP-B box もプライマーとして利用した。PCR の条件は、標的の DNA 配列が多様性がある反復配列であることを考慮し、アニーリング温度の条件を複数設定した。

③ 結果・考察

セントロメア領域に存在する DNA 配列は高頻度反復配列で構成されていることが知られており、反復単位と呼ばれる特徴的な配列が縦列に配置されている。そのため、反復単位に制限酵素の認識配列が存在する場合、適切な制限酵素で切断することで同じ長さの DNA 断片が生じることがある。そこで、21 種類の制限酵素でアカネズミのゲノム DNA を消化し電気泳動を行い、反復配列で構成されているバンドを探索した。しかし、どの制限酵素で消化しても、反復配列を含んでいると推測できるバンドは検出されなかった。そのため、アカネズミのゲノム DNA に存在する反復配列には今回使用した制限酵素の認識配列が含まれていないことが示唆された。

セントロメアを構成する DNA 配列は、機能的な制約があるため多くの生物で共通する DNA 配列が保存されていることが知られている。そこで、アカネズミの近縁種であるヒメネズミ (Fukushi et al., 2001) およびハントウアカネズミ (Matsubara et al., 2008) のセントロメア領域、マウスのセントロメア領域のマイナーサテライト配列 (Wong and Rattner 1988) のコンセンサス配列からデザインしたプライマーおよび真核生物で保存性の高い CENP-B box をプライマーとして用いてアカネズミのセントロメア領域に存在する反復配列の増幅を試みた。様々な条件を検討した結果、Mus min F および Mus min R のプライマーを用いて増幅した産物に対して、AAR cen F および APE R のプライマーを用いた 2nd PCR の条件が比較的良好な増幅バンドが観察された。この 2nd PCR 産物のアカネズミの染色体上の分布を FISH 法で確認したところ、多くの染色体のセントロメア領域にシグナルが検出された。そのため、この 2nd PCR 産物がセントロメア領域に特異的な配列を含んでいることが示唆された。今後、この 2nd PCR 産物のクローニングを行うことで、アカネズミのセントロメアを識別する DNA プローブを作成できる可能性がある。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

1. 有吉健太郎、三浦富智、中田章史、葛西宏介、藤嶋洋平、鈴木享純、吉田光明：放射性物質汚染地域に生息するアカネズミ骨髓前駆細胞への放射線影響解析．日本放射線影響学会第 60 回大会．千葉市．2017 年 10 月
2. 藤嶋洋平、三浦富智、有吉健太郎、中田章史、田副博文、葛西宏介、Valerie Goh Swee Ting、豊田正、山田正俊、吉田光明：放射線汚染地域に生息するアライグマにおける放射性セシウムの臓器分布と細胞遺伝学的解析．日本放射線影響学会第 60 回大会．千葉市．2017 年 10 月
3. Valerie GST, Azumaya A, Ariyoshi K, Fujishima Y, Yoshida MA, Nakata A, Miura A: DNA damage and chromosomal aberrations were increased after X-ray irradiation in type 2 diabetes mouse model. 4th. Educational Symposium on Radiation and Health by young scientists. 青森県弘前市, 2017 年 9 月
4. Fujishima Y, Miura T, Ariyoshi K, Nakata A, Tazoe H, Kasai K, Valerie GST, Toyoda T, Yamada M, Yoshida MA: Distribution of radioactive-caesium and cytogenetic analysis of raccoon (Procyon lotor) in Namie town, Fukushima. 4th. Educational Symposium on Radiation and Health by young scientists. 青森県弘前市, 2017 年 9 月

③ その他

福島原発事故に被災した 野生ニホンザル組織における放射線影響の解析

鈴木正敏 （東北大学災害復興新生研究機構）

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て本課題を実施した。平成 29 年度に収集された個体の試料は、福島原発事故後 6 年以上の長期被ばくの解析試料となる。放射性セシウムが最も多く蓄積する筋肉に囲まれた大腿骨中の骨髓単核細胞に着目し、DNA 損傷の誘発について検討した。

② 研究方法

南相馬市から提供された野生ニホンザルの大腿筋と大腿骨を収集した。大腿筋に含まれる放射性セシウムをゲルマニウム半導体検出器で計測し、放射性セシウム濃度を計算した後に内部被ばく線量率に換算した。大腿骨から骨髓を取り出して RPMI 培地に入れた後、解析目的に応じて 2 群にわけた。1 群はコルセミドを培地に添加して数時間培養する事で分裂期細胞を回収し、標準的な方法で染色体標本を作成した。ギムザ染色後の標本を受け入れ研究機関に設置されている自動染色体解析システム、あるいは光学顕微鏡(オリンパス、BX43)で観察し、染色体構造を評価した。もう 1 群の骨髓試料は赤血球溶解液で処理した後にメタノールで固定し、蛍光免疫染色標本を作成した。蛍光免疫染色ではリン酸化 H2AX と 53BP1 を指標とし、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

本年度捕獲した野生ニホンザルの大腿筋に含まれる放射性セシウム ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) 濃度と、PHITS コードを用いて野生ニホンザルに最適化された換算係数を用いて採材日時点の内部被ばく線量率を 83.7 ± 108.5 ($\mu\text{Gy}/\text{day}$ 、平均 $\pm$ 標準偏差) と評価した。染色体標本が作成できた個体では、染色体構造の異常は観察されなかった。染色体標本が作成できなかった個体を含めて、採取した骨髓試料中には分裂期へ進まずに間期にとどまっている単核細胞が存在していたので、リン酸化 H2AX を指標とした蛍光免疫染色によって DNA 二重鎖切断を可視化した。リン酸化 H2AX 陽性細胞で観察されたフォーカス数は 1 個で、陽性細胞の割合は 10%以下であった。陽性細胞の割合は個体差が大きく、また内部被ばく線量率との相関はなかった。以上の結果より、今回解析した内部被ばく線量率の範囲では、骨髓中の単核細胞で DNA 二重鎖切断が蓄積していないことを確認した。またリン酸化 H2AX と同時に 53BP1 を共染色したが、53BP1 由来のフォーカスはリン酸化 H2AX と共局在していなかった。昨年度の成果より、野生ニホンザル由来の線維芽細胞では同じ染色条件においてリン酸化 H2AX と 53BP1 のフォーカスは共局在していたことから、骨髓単核細胞を用いた DNA 二重鎖切断の検出にリン酸化 H2AX を指標とする事の妥当性が示された。

成果発表

① 論文発表

なし

② 学会発表

なし

③ その他

なし

Nitrate deposition processing of rainfall in forest canopies by using nitrogen and oxygen isotopic composition

Xinchao Sun (Tianjin University, China)

Summary of the Project

Gross precipitation (Pg) is intercepted by forest canopies, and thus mainly reaches the soil as throughfall (TF). Forest structure (e.g., stand density, canopy cover and basal area) has a significant influence on the TF process, which affects the inputs of water amount, solutes (e.g., nitrate) and their isotopic composition ($\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{18}\text{O}$ and $\Delta^{17}\text{O}$) to forests due to the passage of Pg through the canopy, and causes them extremely spatial and temporal variability. Thus, TF is a key component that links hydrological and biogeochemical cycles in forested watersheds. However, numerous questions remain the processes of TF interactions with the forest canopy and its fate in forest hydrological and biogeochemical (e.g., nitrogen) cycles.

With the support of this project, we have obtained some findings about the models of TF with forest structure, and the spatial variability of TF isotopic composition as below:

① the TF rate (TF/Pg) was significantly negatively correlated with stand density, canopy cover, and basal area on a stand scale. Additionally, the slope (a_{TF}) of event-based linear TF-Pg equation significantly decreased with increasing stand density and canopy cover, whereas its intercept (b_{TF}) was not significantly correlated with any forest-structure variables. Further, the TF rate and a_{TF} were estimated, respectively, by their related stand-structural variables in multiple regression models with high determination coefficients and moderate relative errors. The b_{TF} was assumed to be a constant and its mean value obtained from all the experimental plots. Thus, the models of stand-scale TF rate and event-based TF amount were developed with input of commonly forest inventories and showed good fit between the estimated and measured values. These models are practical tools that can be readily used for assessing the changes in TF with changing stand structures at both stand and event-based scales, and have also potential

implications in evaluating the spatial TF patterns at catchment scale and exploiting similar models in other species and regions (details please see the following publication one).

② the spatial variability of TF isotopic composition was not temporally stable. Additionally, the isotopic composition of TF was best related to canopy openness calculated at the zenith angle of 7°, exhibiting three different relationships, that is, significantly negative, significantly positive, and non-significant. Changes in meteorological factors (wind speed, rainfall intensity, and temperature) were found to affect the relationships between TF $\delta^{18}\text{O}$ and canopy openness. The observed shifts in the relationships reveal different dominant factors (partial evaporation and the selection), and canopy water flowpaths control such differences. This study provides useful insights into the spatial variability of TF isotopic composition and improves our understanding of the physical processes of interception through canopy passage (details please see the following publication two).

List of Publication

1. **Xinchao Sun***, **Yuichi Onda**, Akiko Hirata, Hiroaki Kato, Takashi Gomi, Xueyan Liu*. 2018. Effect of canopy openness and meteorological factors on spatial variability of throughfall isotopic composition in a Japanese cypress plantation. *Hydrological Processes*, in press. DOI:10.1002/hyp.11475.
2. **Xinchao Sun***, **Yuichi Onda**, Hiroaki Kato, Takashi Gomi, Xueyan Liu*. 2017. Estimation of throughfall with changing stand structures for Japanese cypress and cedar plantations. *Forest Ecology and Management*, 402: 145-156.

Diversion of remote sensing techniques to estimate the quantity of available radioactive material in Fukushima forest ecosystems

Lissak Candide (Caen Normandy University)

Summary of the Project

The project aims at establishing a detailed diagnosis of the forest structure of various forest types located in Tochigi prefecture (36°22'0.33"N / 139°36'20.05"E).

The environmental diagnosis has been established from the combination terrestrial laser scanning (TLS) airborne photogrammetry (UAV) techniques, with the aim of realizing a high resolution 3D modeling and measurement of forest structure (from the canopy to undercover vegetation). These techniques are thus complementary.

The study area ($\approx 400\text{m}^2$) is particularly difficult to in situ investigate because of its high density (anthropogenic) vegetation cover. Especially because of the understory vegetation cover and the slope (30°) of the area. Consequently, the acquisition method must be adapted (multiplication of TLS stations on the ground, and combination of station above ground and aerial survey).

With the combination of acquisition methods, we can propose a high-resolution 3D model of the forest structure based on point cloud classification (figure 1).

From this model various parameters (figure 2) which can explain the radiocesium storage can be extracted, according the fact that the most radiocesium deposited into the canopy is intercepted and retained by tree leaves and branches. And one of the parameters on which we focused our research is the forest canopy. The purpose was to estimate its volume (figure 3).



Figure 1. Point cloud of the study area

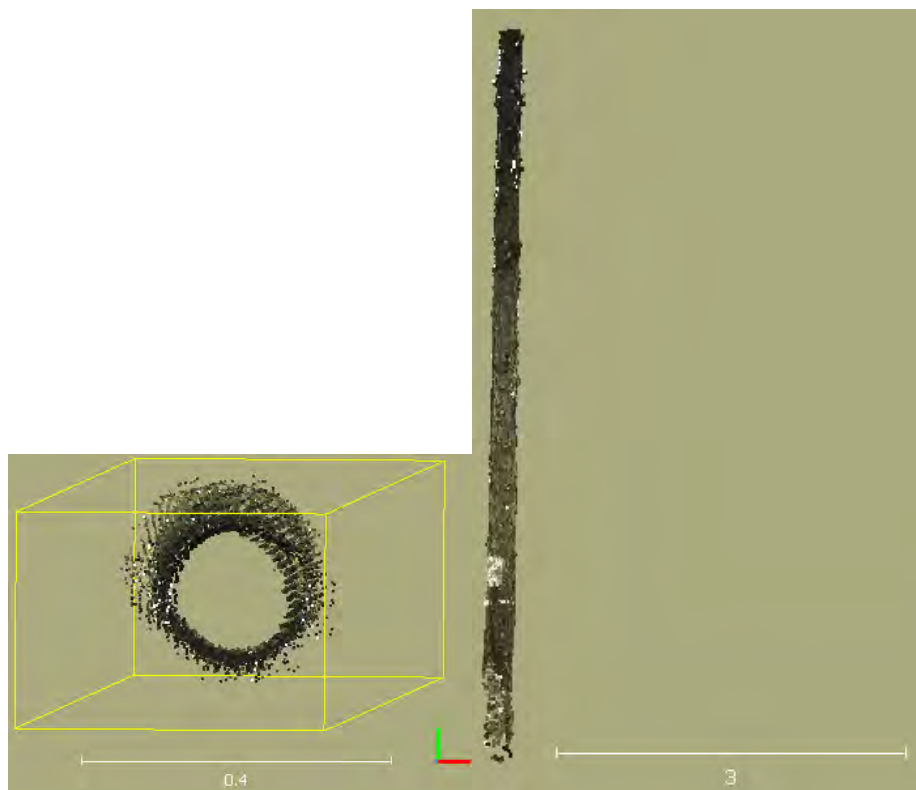


Figure 2. Morphometry analysis (a) Trunk diameter (DBH), (b) Trunk high.

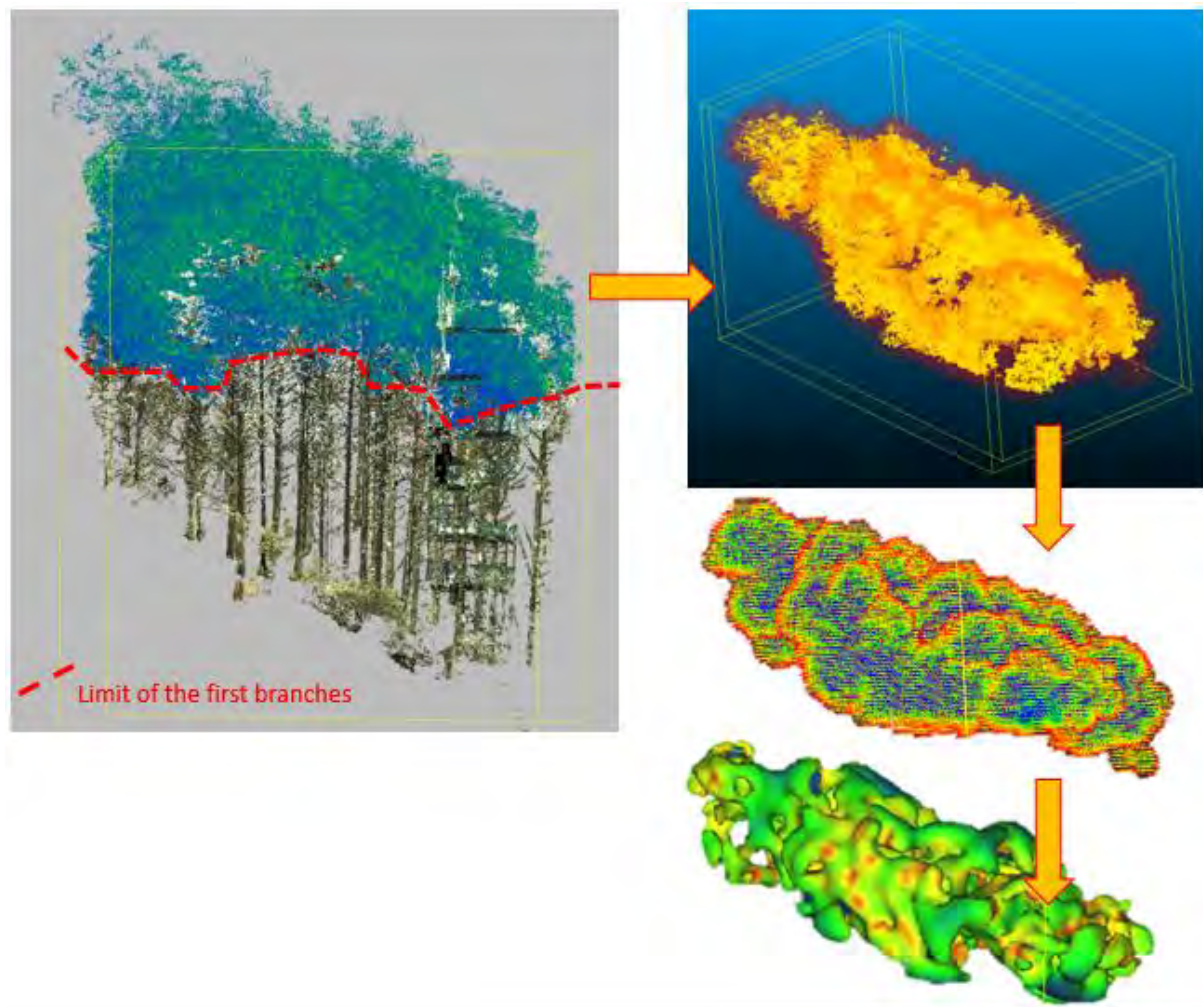


Figure 3. Canopy modeling based on multi-point clouds analysis

List of Publication

Lissak C., Onda, Y., Kato, H. Nanko, K., Sun, X., Estimation of vegetation structure in forest area using combination of TLS and UAV sfm technologies, Remote Sensing of Environment, *In prep.*

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

Olivier Masson (IRSN), Kazuyuki Kita (Ibaraki U.), Ryo Ikeda,

and Yuko Hatano (Tsukuba U.)

Summary of the Project

Although 5 years has passed since TEPCO Fukushima Dai'ichi Nuclear Plant Accident, significant amount of radioactive cesium (radioCs) has been detected in Fukushima. Several studies showed that re-suspension processes are the source of radioCs in the atmosphere, however the flux of the resuspension has not quantified. In this study, we will observe atmospheric concentration of radioCs activity as well as deposition flux and will evaluate the re-suspension flux by adopting 2-box model approach. We also try to measure the contribution of fog deposition.

In spring (April-May) and summer (August-September) in 2016, we intensively sampled aerosols and precipitation at Namie, Fukushima. Because atmospheric stability and relative humidity is largely different between day and night, we separately sample daytime and nighttime aerosols. We have tried to estimate re-suspension flux by top-down approach. The atmospheric concentration of ^{137}Cs varies with the difference among re-suspension flux, deposition flux, and atmospheric diffusion flux. We have estimated deposition flux by comparing radioactive concentrations in the atmospheric and in the rain water. Comparing the observed values of ^{137}Cs atmospheric concentration and deposition flux with those calculated with 1-dimensional (1-D) model, we tried to evaluate the re-suspension flux and its dependence with meteorological parameters. In the 1-D model, vertical diffusion coefficient calculated by a regional meteorological model developed by MRI, Japan, for Namie was adopted. Comparing the model and observation, we found that the model overestimated the vertical diffusion. Near the ground surface, the vertical diffusion coefficient should be determined based on the observation. Now we are planning to estimate the vertical diffusion coefficient constrained by the meteorological observation.