

2D01

福島第一原発事故で放出した放射性粒子の特徴

○佐藤志彦¹、末木啓介¹、笹公和¹、小野貴大²、飯澤勇信²、
阿部善也²、中井泉²、足立光司³、五十嵐康人³
(¹筑波大数理、²東京理科大、³気象研)

2011 年 3 月に発生した福島第一原発事故では、大量の放射性物質が環境中に放出した。放出時における放射性物質の化学形態は、環境動態研究において重要な初期情報の 1 つであるが、その一形態として、放射性セシウムを含む粒子が確認されている。しかしながら福島事故では、炉心爆発・火災などの粒子状放射性物質が直接放出される可能性のある事象は報告されておらず、粒子の存在については多くが未解明である。本研究では福島事故における放射性粒子の実態を明らかにするため、第一原発から北西方向の半径 20 km 圏内の帰還困難区域において採取した土壌から放射性粒子を分離し、粒子の化学形態について分析を行った。

本研究で用いた試料は 2013 年 6 月に採取した。ビニール袋に入った土壌に対し、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィで、土壌と粒子の分離を行った。得られた粒子 1 粒ずつに対し、電子顕微鏡観察と、一部の粒子については SPring-8 BL37XU においてマイクロビーム X 線を用いた複合 X 線分析も行った。

粒子の形状は先行研究で報告されている球状に加え、断片状や複数の粒子が結合した構造のものが見つかった。ガンマ線測定で、全ての粒子から ^{134}Cs および ^{137}Cs を検出し、2 つの異なる Cs 同位体比が観測され、12 日に 1 号機からも放射性粒子が放出されたことを確認した。構成元素は EDS で Si、O、Fe、Zn に加え、一部の粒子から Cs の存在を確認したが、全ての粒子において Si の割合が突出していた。EDS で Cs が検出限界以下であった粒子は、いずれも 1 号機由来の粒子と判別された。そこで放射光蛍光 X 線イメージングを実施したところ、Cs が粒子内部に不均一に存在する様子が可視化された。この他、一部粒子から U を検出したが、いずれも特定の部位に局在しており、U は粒子の主要構成元素でないことが明らかとなった。

チェルノブイリ原発事故(1986)では、ホットパーティクルと呼ばれる放射性粒子が環境中に放出されたが、それらは核燃料であるウランの断片で、Cs 以外にも様々な放射性核種が検出された。しかし今回観察した放射性粒子は、どれもチェルノブイリ型のホットパーティクルの特徴とは明らかに異なり、福島第一原発事故特有の粒子であると考えられる。

Characteristics of the radioactive particles emitted from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

*Y. Satou¹, K. Sueki¹, K. Sasa¹, T. Ono², Y. Iizawa², Y. Abe², I. Nakai², K. Adachi³, and Y. Igarashi³ (¹Pure and Appl. Sci., Univ. of Tsukuba., ²Tokyo Univ. of Sci., ³MRI)

2D02

2013 年に福島県浜通り地域に沈着した放射性セシウム含有粒子の特徴

○山口紀子¹、藤原英司¹、井倉将人¹、浅野真希²、足立光司³、小暮敏博⁴

(¹農業環境技術研究所、²筑波大学、³気象研究所、⁴東京大学)

福島県南相馬市の南部において、2013 年産玄米から基準値を超える放射性 Cs が検出された。同じ植物体で登熟した玄米であるにもかかわらず、高濃度に汚染された玄米粒はごく一部であること、もみやイネの葉にスポット状に高放射能領域が存在することから、土壌中の放射性 Cs がイネに経根吸収されたのではなく、大気経路で輸送された放射性 Cs を含む粒子がイネ沈着したことが汚染の要因であると考えられた。そこで本研究では、基準超過のあった地点のイネ、双葉町および福島第一原子力発電所敷地内で採取した大気フィルターに捕捉された粒子を分析し、2013 年に沈着した放射性セシウムを含む粒子との関連性を明らかにすることを目的とした。

イネの葉、もみ、および大気中粒子を捕捉したフィルターをイメージングプレート (IP) で 5~10 分間感光させた。比較のため、基準超過のあった圃場より採取した土壌粒子、大熊町より採取した土壌粒子の分析もおこなった。イネおよびフィルターより感光部位を切り出し、細分化することにより、放射性物質を含む粒子と夾雑物を分離した。走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分析装置 (SEM-EDX) を用いて Cs が検出される粒子を同定し、形状を観察した。さらに、イネの葉およびもみ付着粒子、双葉町フィルター付着粒子については SPring-8 BL37XU において μ ビーム X 線で励起し、粒子構成元素を蛍光 X 線分析により同定した。さらに比較的高濃度に含まれていた Fe, Zn の K 吸収端 X 線吸収スペクトルを取得した。

基準超過圃場の土壌からは IP を感光させる粒子は見つからなかった。IP を感光させたイネの葉付着粒子は直径 $0.5 \mu\text{m}$ 、フィルター捕捉粒子は直径 $1\sim 3 \mu\text{m}$ の球状粒子であり、いずれの粒子からも Cs が検出された。Cs の他に、Si、Fe、Zn、Rb、Sn、Mo 等が検出された。イネ付着粒子の特徴は、土壌粒子、フィルター捕捉粒子と完全に一致しなかった。今後の廃炉作業にともない、放射性 Cs を含む粒子の再飛散と輸送がおこる可能性は否定できない。放射性 Cs 濃縮粒子が環境中にどの程度残存しているのか、再飛散の可能性があるのかを調査する必要がある。

Characterization of Cs-bearing particles deposited around Hama-dori region, Fukushima in 2013
*N. Yamaguchi¹, H. Fujiwara¹, M. Igura¹, M. Asano², K. Adachi³, T. Kogure⁴ (¹Natl.Inst. Agro-environ. Sci., ²Tsukuba Univ., ³Met. Res. Inst., ⁴Univ. Tokyo)

2D03

福島県土壌試料におけるウラン同位体比

○賞雅朝子¹、Sarata Kumar Sahoo¹、中井俊一²、新江秀樹¹
(¹放射線医学総合研究所、²東京大学地震研究所)

福島第一原発事故由来の放射性物質のうち、ウランやプルトニウムなどの α 線核種についての挙動を理解するため、土壌のウラン同位体測定を行った。ウランは通常の土壌中にも含まれる元素であり、過去の原爆実験などのフォールアウトで福島第一原子力発電所の事故前の飛散も寄与している。福島第一原子力発電所事故由来のウラン飛散を調査するためには、同位体比分析が最適である。そこで、本研究ではマルチコレクター型 ICP-MS (IsoProbe; GV Instruments Ltd., Manchester, UK) を用いて、高精度なウラン同位体比測定を行った。

MC-ICP-MS での高精度分析には、ウランの分離が必須であるため、U-TEVA 樹脂による 2 回の分離方法を採用し、鉄などの妨害元素の除去を行いながらウランを分離した。土壌試料の前処理方法については、450°C で灰化处理したあと、マイクロウェーブ分解装置 (ETHOS One、マイルストーン社製) で酸分解し、ホウ酸溶液+塩酸でフッ化物溶解を行った。コンタミネーションやブランクの低減のため、すべて多摩化学工業の超高純度試薬 (TAMA-AA 100) あるいは関東化学の超高純度試薬 (KANTO Ultra-Pure) を用いた。ウラン分析のブランクは 9pg 以下で、分析の結果に影響しないことを確認した。同位体比は $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が 2SD で 0.1% 以下、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が 1.1% 以下の精度で測定を行った。

土壌中のグローバルフォールアウトによるウランと比較するため、福島第一原発事故以前の沖縄、神戸の土壌試料を測定した。福島第一原発付近 (30km 以内) の試料は、空間線量率が高い試料を 12 試料測定し、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比から土壌中の原発由来のウランの寄与を観察した。

今回測定した $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の結果からは、グローバルフォールアウトの同位体比とくらべて明らかな原発事故由来のウラン同位体は得られなかった。セシウムやストロンチウム同位体の測定結果と合わせて、詳しい考察を発表する。

Distribution of uranium isotope ratio in Fukushima soil samples

*A. Takamasa¹, S.K. Sahoo¹, S. Nakai², H. Arae¹ (¹ National Institute of Radiological Science, ² ERI, Tokyo Univ.)

1.はじめに

東北地方太平洋沖地震に起因する福島第一原子力発電所の事故により、原発周辺の広範囲の地域で放射性セシウム(Cs)による土壤汚染が深刻な問題となっている。原発周辺では、土壤中に普遍的に含まれている陽イオン交換能を有する粘土鉱物が Cs の取り込み媒体である可能性が指摘されている。一方、溶液中の主要陽イオンが高濃度である場合、強固に保持された Cs⁺であっても他の陽イオンとの交換によって Cs⁺が溶出する可能性が指摘される。主要陽イオンによる粘土鉱物からの Cs⁺の溶出挙動の予測は、放射性 Cs の天然環境における拡散挙動や健康影響の評価に不可欠である。本研究では、福島第一原発周辺に分布する土壤の土壤中の粘土鉱物を用いて、主要陽イオン(Na⁺,K⁺,Mg²⁺,Ca²⁺,NH₄⁺)添加による ¹³³Cs と ¹³⁷Cs の脱離挙動を系統的に検証すること目的とした。

2.試料と実験方法

福島県いわき市猿倉公園内のため池より表層の堆積物をグラブ式採泥器で採取した。採取した試料を室温で攪拌し、均質化した後に試料を-38℃で1日冷凍した。冷凍した試料を取り出して室温で保管し、水ひによりストークスの定理によって粒径 2 μm 以下の試料を抽出し、回収した。回収した試料を凍結乾燥して本研究の試料とした。試料は、粉末 X 線回折(XRD)による鉱物同定、LA-ICP-MS (金沢大学荒井研究室所有) による ¹³³Cs 濃度の測定、ガンマ線スペクトロメータ(ORTEC,GEM-25-P4)による ¹³⁷Cs 濃度の測定を行った。また試料に対して、固液比 1g/l で 0.1M の NaCl,KCl,MgCl₂,CaCl₂,NH₄Cl 溶液を添加して、24 時間室温で攪拌し、減圧濾過によってフィルターに残った試料の ¹³⁷Cs 濃度、溶液中に溶出した ¹³³Cs 濃度を測定するという方法で、¹³³Cs,¹³⁷Cs の脱離実験を行った。フィルターに残った試料は再び 1M の各塩溶液で同様の脱離実験を行った。

3.結果と考察

試料に含まれる鉱物はバーミキュライト、イライト、スメクタイト、カオリンであると同定された。脱離実験前の試料の ¹³³Cs 濃度で均質であったが、¹³⁷Cs 濃度ではばらつきが大きかった。これは ¹³⁷Cs が微量であることに起因する不均質が生じたためと考えられる。主要陽イオン添加による Cs 脱離実験では ¹³³Cs では Na⁺,K⁺,NH₄⁺添加で NH₄⁺>Na⁺>K⁺>2 価陽イオンの順番で脱離量が増加することを確認し、¹³⁷Cs で同様の序列を確認できた。認められた序列は Fukushi et al(2014)で示された標準スメクタイトに含まれる ¹³³Cs の主要陽イオン添加による脱離実験の挙動とも調和的であった。一方セシウムの同位体間の脱離挙動には大きな違いがみられ、脱離割合は ¹³³Cs よりも ¹³⁷Cs が約 20 倍大きい事が確認された。¹³³Cs は土壤中に普遍的に存在しているが、¹³⁷Cs は原発事故によってのみ放出されるので、粘土鉱物の層間には ¹³³Cs が先に存在していて、後から ¹³⁷Cs が粘土鉱物の反応しやすい部位に入ると考えられる。従って、¹³³Cs よりも ¹³⁷Cs の方が優先的に脱離する事が示唆される。

引用文献

Fukushi et al (2014) Desorption of Intrinsic Cesium from Smectite Inhibitive Effects of Clay Particle Organization on Cesium Desorption : Environ.Sci. Technol. 2014 , 48 , 10743-10749

Cesium desorption from clay minerals distributed around the Fukushima Daiichi nuclear power plant
○ K.Asahi¹,Y.Aoi¹,K.Fukushi¹,and S.Tomihara² (1.Kanazawa Univ., 2.Marine Science Museum, Fukushima Prefecture)

○室田健人¹、斉藤拓巳^{1,2}、田野井慶太郎¹、寺井隆幸¹(¹ 東京大学、² 日本原子力研究開発機構)

放射性セシウムを含む除染土壌の適切な処分には、セシウム (Cs) の土壌中の長期挙動の理解が必要である。土壌中の Cs は、雲母系粘土鉱物の風化した層間端部で、Cs の脱水和と層間距離の変化を伴い、強く収着されると認識されてきた¹。一方、長期間の収着実験では、Cs が拡散によってイライトの層間の奥まで移行し、収着状態が変化することも報告されている²。また、吸着剤の存在下で長期間の脱離実験を行うことで、汚染土壌中の ¹³⁷Cs の半数以上が脱離することが示されている³。これらの結果は、雲母系粘土鉱物への Cs の収着や脱離が動的なプロセスであることを示唆している。そこで、Cs を含む液相との接触時間を変えた雲母系粘土鉱物からの長期間の Cs の脱離を調べることで、異なる収着状態にある Cs の脱離速度を評価することを本研究の目的とした。

2 μm 以下に篩分けしたイライト及びバーミキュライト 50 mg を 1 M KCl, CaCl₂, KCl+CaCl₂ 溶液で置換した後、1 mM の各電解質に ¹³⁷Cs を含む Cs 約 50 nM を加えた溶液 20 ml 中で 1 日、4 週間、8 週間攪拌し、異なる接触時間で Cs を収着させた。収着後の試料を遠心分離にて固液分離し、液相中の ¹³⁷Cs 放射能測定から、収着量を求めた。また、Cs が収着した粘土鉱物試料に Cs を含まない電解質溶液 40 ml とプルシアンブルーナノ分散液 2 ml を含む透析膜を入れ、攪拌を続け、脱離実験を開始した。所定の時間経過後、透析膜を取り出し、¹³⁷Cs 放射能を測定し、Cs の脱離量の時間変化を調べた。

収着時間 1 日における Cs の収着割合は、K 型または K+Ca 型の試料で 54~62%であったのに対し、Ca 型の試料では 9 割以上と高い値を示した。このことは、高い水和エネルギーを持つ Ca²⁺が、鉱物層間を拡張させたこと、Cs への高い選択性を持つ層間端部のサイトにアクセスできないため、そのサイトへの Cs の収着に競合しないことが原因として考えられる。また、収着時間を 8 週間に延ばしたことで増加した Cs 収着割合は最大で 9%と、いずれの試料も小さかった。K 型と K+Ca 型の試料について、1 日で収着した Cs の 80~93%が脱離開始 12 時間後の時点で脱離しており、短時間で多くの Cs が脱離することがわかる。この傾向は 4, 8 週間と収着時間を延ばしても変化がなかった。このことは、鉱物を 1 M の K⁺で置換した際に層間端部が閉じ、ほとんどの Cs が外表面に位置する選択性の低いサイトに収着したことを示唆している。一方、Ca 型イライトにおける 12 時間後の脱離割合は 1 日、4, 8 週間の収着でそれぞれ 47, 34, 18%と、収着時間に伴い減少し、残った Cs は脱離実験を続けるにつれてゆっくりと脱離した。発表では、実験で得られた脱離の時間変化を異なるモデルで解釈した結果について報告する。

参考文献 1. B. Sawhney, *Clays and Clay Minerals*, 20, 93-100 (1972).

2. A. J. Fuller, S. Shaw, M. B. Ward et al., *Applied Clay Science*, 108, 128-134 (2015).

3. 室田健人、斉藤拓巳、田中 知、地球化学会 2014 年度年会、2014 年 9 月

Evaluation of desorption rates of Cs with different sorption states on micaceous clay minerals

*K. Murota¹, T. Saito^{1, 2}, K. Tanoi¹, T. Terai¹ (¹The University of Tokyo., ²Japan Atomic Energy Agency.)

2D06

汚染土壌からの放射性セシウム脱離に対する低分子量有機物の影響

○山崎信哉¹、宇都宮聡²、末木啓介¹

(¹筑波大数理物質、²九大院理)

【序論】 福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された放射性セシウムは4年経過した現在も表層土壌に存在している。これらはフレイドエッジサイトと呼ばれる層状ケイ酸塩の層間に不可逆に吸着しているとされている。これらの鉱物は放射性セシウムを層間あるいはフレイドエッジサイトに取り込む際安定化し、層構造が閉じるために放射性セシウムを固定化していると考えられている。一方で、スメクタイトなどはエチレングリコールなどを加えるとインターカレーションにより層間距離が広がることが分かっており、X線回折などによる鉱物同定に用いられている。エチレングリコールのほかにさまざまな有機物を層間に取り込むことも報告されているため、一部の鉱物は天然有機物によるインターカレーションにより放射性セシウムが脱離する可能性が考えられる。そこで本研究では、土壌試料にさまざまな有機物を加え放射性セシウムの脱離量をγ線測定により定量し、土壌鉱物からの放射性セシウムの脱離に対する低分子量有機物の影響について検討した。

【実験】 本研究では有機物の影響を見るため、スメクタイトへのインターカレーションが報告されている、エチレングリコール (EG)、グリセロール (Gly)、尿素 (Urea)、アルキルアンモニウム ($\text{CH}_3\text{-(CH}_2\text{)}_n\text{-NH}_2$, $n = 5, 9$)、さらに塩基性アミノ酸 (リシン:Lys、アルギニン:Arg) を用いた。全ての抽出溶液は必要に応じて中性 ($\text{pH} = 7.01 \pm 0.02$) に調整した。土壌は熊川河口域で採取した土壌を用いた。さらに本研究ではケイ酸塩との相互作用を検討するために、連続化学抽出後の試料 (有機物、金属酸化物を分解処理した試料) を対象とした。脱離試験は土壌 0.6 g に対して固液比 1:50 (g/g) になるように、有機物溶液 0.2 M を加えた。さらに脱離した放射性セシウムが土壌鉱物に再吸着しないように酢酸アンモニウム 1.0 M を加えた。本研究で用いた土壌は XRD により定性分析を行った。

【結果】 XRD の結果、石英、長石を主成分とし、10、14 Å の層間距離を持つ層状ケイ酸塩の存在を確認した。また有機物を加えた土壌試料の XRD パターンから、スメクタイトの層間距離の増加が見られた。実験の結果、アミノ酸および 1-アミノデカンを加えると、放射性セシウムの脱離量が約 1% 増加した。また、EG、Gly、Urea、1-アミノヘキサンについては、コントロール (1M 酢酸アンモニウムのみ) と比較して脱離量はほぼ変わらなかったが、脱離速度に変化が見られた。今回の結果から、本研究で見られた放射性セシウムの脱離は、スメクタイトへのインターカレーションによる層間距離の変化によるものと考えられる。また、土壌中のスメクタイト含有量が増加すると有機物影響も大きくなることが予測される。

Effect of low molecular weight organic compounds on the desorption of radiocesium from contaminated soil

*S. Yamasaki¹, S. Utsunomiya², K. Sueki¹ (¹Univ. Tsukuba, ²Kyushu Univ.)

○田中万也¹、高橋嘉夫²(¹ 広島大サステナセンター、² 東大院理地球惑星)

はじめに

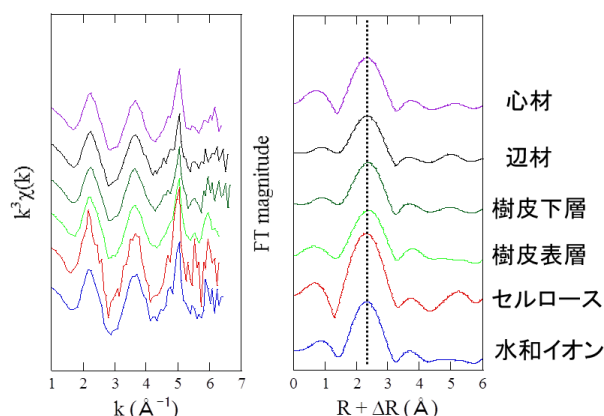
福島第一原発事故により放出された放射性セシウムの環境動態に関しては、特に陸域では粘土鉱物への吸着メカニズムの解明や河川を經由した移行過程に関して多くの研究がなされている。一方で、森林は福島県の大部分を占めており、そこでの生態系における放射性セシウムの循環を明らかにすることも重要な研究課題である。森林に沈着した放射性セシウムの樹木への主な吸収経路としては、樹葉表面からの吸収（葉面吸収）、樹皮表面からの吸収（樹皮吸収）、林床に沈着したセシウムの根からの吸収（経根吸収）が挙げられる。特に、コナラやコシアブラなどの落葉広葉樹では事故時には着葉していなかったことから、樹皮からの放射性セシウムの取り込みが重要な吸収過程となる。そこで、本研究では広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)法を用いて樹皮や樹木内でのセシウムの化学形態を調べた。

実験方法

福島県伊達郡川俣町のコナラアカマツ混交林にてコナラ及びコシアブラの伐採を行った。伐採した樹木の幹部分から樹皮、辺材、心材を切り出した。切り出した樹皮、辺材、心材をそれぞれ 1 M CsCl 水溶液中に浸しセシウムを飽和吸着させた。Cs 吸着試料を純水でよく洗い流した後、高エネルギー加速器研究機構 Photon Factory の BL9A にて Cs-L_{III} 吸収端 EXAFS スペクトルの測定を行った。比較試料として樹木の主要構成物質であるセルロースにセシウムを吸着させ同様に EXAFS スペクトル測定を行った。

結果及び考察

コナラとコシアブラに吸着させた Cs の EXAFS スペクトル測定からはそれぞれ同様の結果が得られた。樹皮、辺材、心材に吸着したセシウムはセシウム水和イオンと類似した EXAFS スペクトルを示した（図 1）。また、セルロースに吸着したセシウムも同様のスペクトルであった。このことは、樹皮、辺材、心材におけるセシウムの吸着形態が外圏型錯体であることを示している。外圏型錯体は比較的弱い吸着形態であり、これは粘土鉱物への強いセ

図 1 Cs-L_{III} 吸収端 EXAFS スペクトル解析結果

シウム吸着の要因である内圏型錯体とは対照的な吸着メカニズムである。樹皮、辺材、心材へのセシウム吸着メカニズムが外圏型錯体であることは、セシウムが樹体内を移動しやすい化学形態で存在していることを意味している。したがって、本研究で得られた結果は樹体内に取り込まれた放射性セシウムが時間とともに転流していくことと調和的である。

Chemical species of Cs incorporated into trees

*K. Tanaka¹ and Y. Takahashi² (¹ISSD, Hiroshima Univ., ²Graduate School of Sci., Univ. of Tokyo.)

福島第一原子力発電所事故から 3 年間の森林環境中における放射性セシウム移行状況について

○加藤弘亮¹、恩田裕一¹、河守歩¹、久留景吾²、ロフレド・ニコラ¹

(¹筑波大学アイソトープ環境動態研究センター、²アジア航測)

既往研究により、森林に降下した放射性セシウムは樹冠に補足され、その後の降雨や落葉等によって徐々に林床に移行することが明らかになっている。しかし、日本のように温暖で多雨な森林環境中での放射性セシウムの移行状況については十分に解明されていない。そこで本研究では、福島県伊達郡川俣町山木屋地区のスギ林及び広葉樹混交林を対象として、福島第一原子力発電所事故から 3 年間の林内雨、樹幹流、落葉等に伴う林床へのセシウム-137 移行量を観測した。

福島県伊達郡川俣町山木屋地区のスギ林及び広葉樹混交林を調査対象に選定した。スギからなる人工林 2 林分 (31 年生壮齢林・15 年生若齢林) と広葉樹混交林 (コナラ及びアカマツ) において、樹冠通過雨、樹幹流、リターフォールに含まれる放射性セシウム濃度を測定し、森林樹冠から林床への移行量をモニタリングした。モニタリングは 2011 年 7 月から開始し、現在も継続中である。また、サーベイメータ (TCS-172B、日立アロカメディカル) 及び可搬型ポータブルゲルマニウム半導体検出器 (Detective-DX-100T、Ortec, Ametek, Inc.) を用いて、森林内の放射性セシウムの空間分布変化を定期的 (2 ヶ月から 6 ヶ月間隔) に測定した。

3 年間の観測期間中に森林樹冠から林床に移行したセシウム 137 は、スギ壮齢林、スギ若齢林、広葉樹混交林でそれぞれ 166 kBq/m²、174 kBq/m²、60 kBq/m²であった。これらの移行量は、原発事故後に大気から沈着した総フォールアウト量の 36%、39%、12% に相当する。このうち、スギ壮齢林および若齢林では、それぞれ総移行量の 48% と 39% が林内雨とともに移行した。特に原発事故から 200 日以内の期間では林内雨が主要な移行経路となっており、樹冠に遮断された放射性セシウムが降雨時に林床に移行していることが明らかになった。一方、広葉樹混交林では、林内雨による移行量の割合は 26% とスギ林に比べて小さく、落葉等の寄与が大きいことが分かった。可搬型ポータブルゲルマニウム検出器によるモニタリング結果から、林床の放射性セシウムの空間分布は観測期間中に大きく変化しないことが明らかになった。この結果は、放射性セシウムの初期樹冠遮断と、その後の雨水や落葉等にもなう林床への移行メカニズムの解明において有用な知見であり、森林環境中の大気降下物の動態解明に貢献することが期待される。

Three-year monitoring study of radiocesium transfer in forest environments affected by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident.

*H. Kato¹, Y. Onda¹, A. Kawamori¹, K. Hisadome², N. Loffredo¹ (¹Center for Res. In Isotopes and Environ. Dynamics, University of Tsukuba, ²Asia Air Survey Co., LTD.)

2D09

福島事故起源の放射性物質の陸域から海洋への移行

○恩田裕一¹ 谷口 圭輔¹

(¹筑波大アイソトープ環境動態センター)

1. はじめに

福島第一原発事故により自然環境に沈着した放射性セシウムについて、河川を介した移行は移動距離が長いため陸域環境中での分布状況の把握において重要なプロセスである。これまでに、福島及び宮城県内の河川の 30 か所に調査地点を設置し、懸濁粒子及び河川水に含まれる放射性セシウム濃度の測定と、河川流量及び浮遊砂濃度の観測に基づいて放射性セシウム移行量（フラックス）のモニタリングを実施してきた。

河川を通じた放射性セシウム移行量観測を実施し、河川水中の放射性セシウム濃度の経時変化傾向の把握及び地域性の解析を行う。また、移行量のモニタリング結果を解析し、放射性セシウム濃度の経時変化 $C(t)$ 、河川流量 Q 及び浮遊砂移行量 Q_s の関係式を地点ごとに算出することを目的とした。

2. 方法

各調査地点には、浮遊砂サンプラー、濁度計（Analite turbidity meter、MacVan 社製、3000-NTU）・水位計（RuggedTROLL100, In-situ Inc.社製、一部国交省・福島県による水位データで代用）を設置している。浮遊砂サンプラーは、サンプラー内を通過する河川水に含まれる浮遊砂を連続的に採取する装置で、設置期間中の時間平均的な浮遊砂試料を得ることができる。浮遊砂サンプラー内に捕捉された浮遊砂試料を回収し、110℃で乾燥した後、ゲルマニウム検出器で放射性セシウム濃度を測定し、懸濁態セシウム 134、セシウム 137 濃度とした。

3. 結果・考察

平成 26 年 12 月までのデータをもとに、懸濁態セシウム 137 濃度の変化傾向を 2 重指数関数の形で定式化した。懸濁態セシウム 137 濃度を流域の平均初期セシウム 137 沈着量（第 3 次航空機モニタリングによる平成 23 年 7 月 2 日の値を使用）で割った値 $C'(t)$ $[(Bq/kg)/(Bq/m^2)]$ は、以下の形でフィッティングできた。経過時間 t の単位は年である。

$$\text{阿武隈川本川} : C'(t) = 2.55 \exp(-4.88 t) + 0.149 \exp(-0.694 t) \quad (1a)$$

$$\text{阿武隈川東側支流} : C'(t) = 0.202 \exp(-4.96 t) + 0.0507 \exp(-0.410 t) \quad (1b)$$

$$\text{阿武隈川西側支流} : C'(t) = 1.02 \exp(-4.58 t) + 0.141 \exp(-0.441 t) \quad (1c)$$

$$\text{浜通りの河川} : C'(t) = 0.793 \exp(-4.01 t) + 0.0385 \exp(-0.160 t) \quad (1d)$$

Transfer of radionuclides to river by Fukushima Daiichi NPP

○Y. Onda¹ K. Taniguchi (¹Center for Research in Isotopes and Environmental Dynamics, University of Tsukuba)

2D10

福島県東部の河川流域における土砂流送と空間線量率の変化

Sediment Redistribution and Air Dose Rate Changes in River Basins in Eastern Fukushima Prefecture

○Alex Malins¹、Kazuyuki Sakuma¹、Hiroshi Kurikami¹、Masahiko Machida¹、Akihiro Kitamura¹

(¹Japan Atomic Energy Agency)

The Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident in 2011 resulted in the contamination of several river basins with thousands of TBq of ¹³⁷Cs. As radiocesium binds strongly to soils, it redistributes primarily by soil erosion and sediment transport within water flows. Each year circa 1% of the ¹³⁷Cs inventory in the basins enters into watercourses and is exported out to the Pacific Ocean [1,2]. Therefore, although the total inventory in the basins does not reduce much each year due to sediment migration, a large amount of ¹³⁷Cs in terms of absolute magnitude is redistributed by soil erosion and sediment transport. This is a particular concern for areas in the basin where eroded sediments deposit and accumulate, such as near river mouths at the Pacific Ocean, on floodplains in the lower basins near the coast, and in reservoirs [3, 4]. Moreover, the gradient of high ¹³⁷Cs densities arising from the accident plumes over the upland areas in the west of the basin areas, compared to relatively lower ¹³⁷Cs levels towards the coast, mean that the watercourses are generally transporting highly contaminated sediments into areas with lower contamination levels.

This study combined sediment transport modelling with air dose rate simulations to understand how dose rates at areas with high soil erosion/sediment deposition rates in a river basin are being affected by radiocesium redistribution. The sediment and radiocesium transport simulations were conducted using GETFLOWS [5]. We simulated sediment redistribution during typhoon floods, as the contamination redistribution predominantly occurs over these events during the year. The air dose rate modelling was completed with a tool designed to model ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs distributions varying both spatially and with depth in soil [6]. The dose rate modelling took GETFLOWS results for ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs erosion and emission as an input. We analyze the relation between the soil redistribution pattern and the air dose rate in particular.

- [1] A. Kitamura et al., *Anthropocene* 5 22-31 (2015).
- [2] O. Evrard et al., *J. Environ. Radioactiv.* 148 92-110 (2015).
- [3] H. Kurikami et al., *J. Environ. Radioactiv.* 137 10-17 (2014).
- [4] S. Yamada et al., *Environ. Res. Lett.* 10 014013 (2015).
- [5] K. Mori et al., 7th Int. Congr. Environ. Model. Softw. (2014).
- [6] A. Malins et al., Submitted to *J. Environ. Radioactiv.* (2015).

河川-汽水-海洋の系における放射性セシウムの移行過程：福島県松川浦を例として

○神林翔太¹、張 勁¹、柴沼成一郎²、成田尚史³(¹ 富山大院理工、² シーベック、³ 東海大海洋)

【はじめに】福島第一原子力発電所事故により飛散し、陸上に沈着した放射性セシウム (Cs) は水・物質循環に伴い海洋へ移行する (Yoshida and Kanda, 2012) ため、今後は海洋への移行予測が重要になる。水・物質循環の経路において、汽水域は河川水と海水の混合領域であり、塩分の急激な変化に伴う吸着・溶脱等により化学物質の濃度が大きく変化するため、海洋への移行を考える上で汽水域での放射性 Cs の動態把握は重要である。しかし、先行研究では大河川や沿岸域での動態把握に留まり (e.g. Sakaguchi *et al.*, 2015 ; Volpe *et al.*, 2002), 汽水域での挙動は明らかにされていない。本研究では、汽水域での放射性 Cs の動態を把握し、河川-汽水-海洋の系における移行過程を明らかにするため、幅広い塩分変動をもつ海跡湖「松川浦」において現場観測を行った。

【現場観測及び分析】現場観測は四季にわたって行い、通常時と豪雨イベント後に水温・塩分の観測と水試料を採取した。水試料は 0.45 μm メンブレンフィルターでろ過を行い、フィルター上の懸濁物質は粒子態として、ろ液は溶存態として測定した。

【結果と考察】粒子態 ^{137}Cs は塩分の上昇に伴い濃度が減少したが、通常時と豪雨イベント時で減少傾向が異なり、通常時は急激に減少することから、多くが低塩分域で沈降・堆積すると推測された。一方、豪雨イベント後は緩やかに減少するため、沈降・堆積することなく海域へ移行すると推測された。溶存態 ^{137}Cs は塩分の上昇に伴い濃度が増加し、河川と外海水の混合線の上部にプロットされた。そのため、 ^{137}Cs は非保存成分として存在し、汽水域で懸濁物質から溶脱 (Na^+ や K^+ とイオン交換 (Liu *et al.*, 2003 ; Evans *et al.*, 1983)) することが示唆された。現場観測で得られた溶存態 ^{137}Cs の増加量は溶脱実験で得られた結果より多いことから、汽水域内での溶脱以外の溶存態 ^{137}Cs 流入が考えられた。加茂ら (2015) は松川浦に海底地下水湧出 (Submarine Groundwater Discharge : SGD) が存在する可能性を述べており、本研究でも SGD のシグナルと考えられる底層水の栄養塩濃度異常や水温異常を確認している。SGD の一種である堆積物間隙水の溶存態 ^{137}Cs 濃度は底層水に比べ高濃度である (Sholkovitz *et al.*, 1983; 小埜ら, 2015) ため、堆積物内で溶脱した ^{137}Cs が SGD に含まれている可能性がある。また、SGD の他に、表層堆積物の巻き上げによっても堆積物間隙水が水中へ放出される (Bera *et al.*, 2015)。今後は、さらなる放射性 Cs の移行過程の詳細解明のため、堆積物間隙水や SGD 等の影響も含めた水-堆積物相互作用を研究する必要がある。

Dynamics of Fukushima-derived Radiocesium in the System of River – Estuary – Ocean: A Case Study of the Matsukawa-ura Lagoon, Northern Fukushima, Japan

S. Kambayashi¹, J. Zhang¹, S. Shibamura², and H. Narita³ (¹Graduate School of Sci. and Eng. Univ. of Toyama, ²Cbec, ³School of Marine Sci. and Tech. Tokai Univ.)

福島原発起源ヨウ素 129 の陸域から海洋への移行研究

○松中哲也¹、笹公和¹、末木啓介²、恩田裕一²、石丸隆³、
谷口圭輔⁴、脇山義史⁵、高橋努¹、松村万寿美¹、松崎浩之⁶

(¹ 筑波大応用加速器、² 筑波大アイソトープ、³ 東京海洋大海洋
観測、⁴ 福島県環境創造、⁵ 福島大環境放射能、⁶ 東京大博物館)

はじめに

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 (Hou et al., 2013)、高い化学的活性、環境中での移動性、生物の甲状腺との親和性などの観点から、陸域から河川および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。事故起源 ^{129}I の分布と移行挙動に関して以下の 3 点を明らかにすることを目的とした。

- 1) 新田川における粒子状 ^{129}I の供給源とフラックス
- 2) 新田川河口沖における海洋堆積物中の ^{129}I 分布
- 3) 原発周辺海域における海水および海洋生物中の ^{129}I 分布

試料と方法

原発から北西へ 30–40 km 付近を上流にもつ新田川の下流において、連続浮遊物質サンプラーを用いて 2012 年 12 月~2014 年 1 月の浮遊物質を月ごとに採取した。河口から 2 km 内の 2 地点において、深さ 3 cm の海洋堆積物を採取した。原発から南南東へ 6 km の水深 20 m 地点において、水深 5 m ごとの海水、およびシロメバルを採取した。これらの試料について、加速器質量分析法により ^{129}I 測定を行い、ゲルマニウム半導体検出器を用いて ^{137}Cs 測定を実施した。

結果と考察

- 1) 新田川下流における懸濁粒子中の ^{129}I 濃度は $0.92\text{--}4.1 \text{ mBq kg}^{-1}$ であり、月ごとの懸濁物質量と強い相関性が認められた ($R^2 = 0.88$)。降水量の多かった 2013 年 9–10 月の粒子状 ^{129}I フラックスは $7.6\text{--}9.0 \text{ kBq month}^{-1}$ と推定され、放射能汚染の比較的強い上流域から粒子状 ^{129}I が多量に輸送された。
- 2) 新田川沖表層堆積物中の ^{129}I 濃度は $5.8\text{--}8.4 \text{ }\mu\text{Bq kg}^{-1}$ であり、河口からの距離と関連していた。これらの値は河川中の懸濁物質より 2–3 桁低かった。海洋に放出された粒子状 ^{129}I の堆積物中での希釈、および海洋生態系への移行の可能性が考えられた。
- 3) 2014 年 7 月における海水中の溶存態 ^{129}I は $0.12\text{--}2.2 \text{ }\mu\text{Bq L}^{-1}$ であり、表層濃度はこれまでの報告の中で最も高かった。シロメバルの ^{129}I は $42\text{--}48 \text{ }\mu\text{Bq kg}^{-1}$ であり、海水よりも 20–400 倍高かった。この原因として、事故直後における海水の高い ^{129}I 濃度の保存が考えられた。

Study on the migration behavior of Fukushima accident-derived iodine-129 from land area to the marine environment

○T. Matsunaka¹, K. Sasa¹, K. Sueki¹, Y. Onda¹, T. Ishimaru², K. Taniguchi³, Y. Wakiyama⁴, T. Takahashi¹, M. Matsumura¹, H. Matsuzaki⁵ (¹Univ. of Tsukuba, ²Tokyo Univ. of Marine Science and Technology, ³Fukushima Prefectural Government, ⁴Fukushima Univ., ⁵The Univ. of Tokyo)

2D13

福島第一原発事故により海洋に放出されたトリチウムの直接漏洩量の推定

○高畑直人¹、熊本雄一郎²、山田正俊³、佐野有司¹

(¹東大大気海洋研、²海洋研究開発機構、³弘前大)

【はじめに】トリチウム (^3H) は原子力発電所で生成される放射性物質の1つである。福島第一原発の事故の後、多量の放射性物質を含む汚染水が発生し、その一部が海洋に漏出したが、トリチウムがどのくらい海洋に放出され、どのように広がったかはよくわかっていない。本研究では原発事故後に東北沖太平洋で採取した表層海水のトリチウム濃度を分析することで、トリチウムの海洋での分布を明らかにし福島第一原発からの直接漏洩量を見積もることを目的とした。

【試料および分析】原発事故から約2ヶ月後の2011年5月上旬に海洋観測船よこすかにより採取された福島沖の表層海水を分析した。トリチウムの分析には、ヘリウム-3 イングロウ法を用いた。この方法を用いれば従来の β 線計測法に比べて1/10以下の少ない試料量で測定することができる。採取された海水試料は、約100cm³を蒸留した後真空バルブ付きの金属製容器に入れ、真空排気装置を使って溶存ヘリウムを脱ガスした。その後、密封したまま真空デシケーター内で数ヶ月保管した。保管中にトリチウムが壊変してヘリウム-3が生成するので、その量を測定してトリチウムの濃度を間接的に求めた。

【結果および考察】福島沖海洋中でのトリチウムの分布は、沿岸で高く沖合で低い傾向が見られ、セシウム-137 (^{137}Cs) と似た分布を示した。これは沿岸の流れが岸に沿って流れていることを示唆する。分析した海水のトリチウム濃度は0.1~0.3Bq/Lであり、最大でも現在の東京で降る雨の濃度(0.2~0.5Bq/L)と変わらないが、事故前の表層海水バックグラウンド(約0.07Bq/L)よりは明らかに高い値を示した。さらに、 ^3H と ^{137}Cs の濃度には正の相関が見られ、その傾きから海水の $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比を見積もった。西原他(2012)によると、タービン建屋滞留水の ^3H と ^{137}Cs の放射能濃度比はおおよそ1:100と報告されており、今回観測した $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比はこれに近い。この海水の $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比が原発から放出された汚染水の $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比を保っているとすれば、 ^{137}Cs の海洋への直接漏洩量と今回求めた $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比から ^3H の海洋への直接漏洩量を見積もることができるかもしれない。

Reference: 西原他 (2012), 日本原子力学会和文論文誌, 11, 13-19.

Direct emission of tritium to the ocean due to the Fukushima-1 NPP accident.

*N. Takahata¹, Y. Kumamoto², M. Yamada³ and Y. Sano¹ (¹AORI, Univ. Tokyo, ²JAMSTEC, ³Hirosaki Univ.)