

福島沖半外洋域に水平輸送される東京電力 福島第一原子力発電所事故由来の粒状態放射性セシウム

Buesseler, K. O.¹⁾, German, C. R.¹⁾, ◎本多牧生²⁾、乙坂重嘉³⁾、Black, E. E.¹⁾、川上創²⁾、Manganini, S. J.¹⁾、Pike, S. M.¹⁾
(1. ウッズホール海洋研究所、2. 海洋研究開発機構、3. 日本原子力研究開発機構)

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震および津波により東京電力福島第一原子力発電所から大量の人工放射性核種が環境中に放出された。そのうちの約80%は、大気経路で、あるいは直接漏洩で海洋へ輸送されたと推定されている。放出された放射性核種の代表的なものが放射性セシウム、¹³⁷Cs(半減期30.2年)と¹³⁴Cs(半減期2.1年)、である。海洋に供給されたCsの多くは溶存態として存在する事が知られているが、粒子態(生物、懸濁物、沈降粒子、海底堆積物)になったものは溶存態のように迅速に拡散、希釈されない。現在、福島沖海水中のCs濃度は低下したものの高いCs濃度をもった魚貝類が時折発見されるのは海底に堆積した放射性Csが原因ではないかと推定されている。そこで福島沖から半外洋域における粒子態Csの挙動を把握するために、東日本大震災発生から約4ヶ月後から時系列式セジメントトラップを福島沖半外洋域に設置し、2014年7月まで約3年間の沈降粒子を捕集、そのCs濃度・フラックスを調査研究した。

2. 研究方法

2.1 セジメントトラップ観測

2011年7月、時系列式セジメントトラップ(McLane Mark7G-13 / 21)を福島南東約115kmの観測地点F1(北緯26-27.5度／東経141-28.0度、水深約1300m、図1)の水深500mと1000mに設置し、沈降粒子の捕集を開始した。2012年7月、2013年7年、2014年10月にセジメントトラップを回収・再設置し、2011年7月～2014年7月までの約3年間、サンプリングインターバルが10～36日の、沈降粒子を時系列的に捕集した。

2.2 化学分析

(1) 主要成分

捕集された沈降粒子の1mm以下の成分を前処理(分割、ろ過、脱塩、乾燥、重量測定、粉碎)後、有機炭素濃度はelemental analyzer、Ca、Si、Al濃度はICP-AESで測定し、経験式を基に有機物(OM)、炭酸塩(CaCO₃)、生物起源オパール(Opal)、陸起源物質(LM)濃度を算出した。

(2) 放射性核種

井戸型Ge半導体検出器を備えたγ線スペクトロメータで、沈降粒子中の¹³⁷Cs、¹³⁴Cs、および²¹⁰Pbの比放射能を測定した。検出限界はそれぞれ0.4、0.8、4.2 mBq g⁻¹であった。¹³⁷Csと¹³⁴Cs比放射能は各サンプリングインターバルの中日に壊変補正した。

3. 結果

3.1 沈降粒子フラックスと化学組成

全粒子フラックス(TMF)は1000mの方が500mより高かった(3年間平均: 500m: 約420 mg m⁻² day⁻¹, 1000m: 約760 mg m⁻² day⁻¹)。観測点F1での表層域の低次生物活動の季節変動から春にTMFが増加し、冬季に減少することが予想されたが、観測されたTMFの季節変動は秋季や冬季にTMFが増加することが多々あった。また500mと1000mの季節変動が同調していないことが多かった。さらに沈降粒子の主成分が陸起源物質であった。これらのことからセジメントトラップには捕集された粒子の多くは海洋表層から鉛直的に輸送されたものではなく水平的に輸送されたものであることが窺えた。

3.2 放射性核種

(1) Cs

両水深の全ての沈降粒子から¹³⁴Csが検出された(図3)。かつ放射壊変補正後(2011年4月6日時点)の¹³⁴Cs/¹³⁷Csはほぼ1.0であった。これらのことから原発事故由来の放射性Csが2014年7月段階でも半外洋域の深海へ輸送されていることが明らかとなった。水深1000mの¹³⁴Csフラックス、¹³⁷Csフラックスはともに2011年9月後半～10月に最大となりその後は低下したが、2012年の10月頃に若干増加、そして2013年の9月後半～11月前半に比較的大きく増加した(図3 下図)。また水深500mでも2013年の9月後半～11月後半に¹³⁴Csフラックス、¹³⁷Csフラックスおよび両濃度が大きく増加していた(図3 上図)。

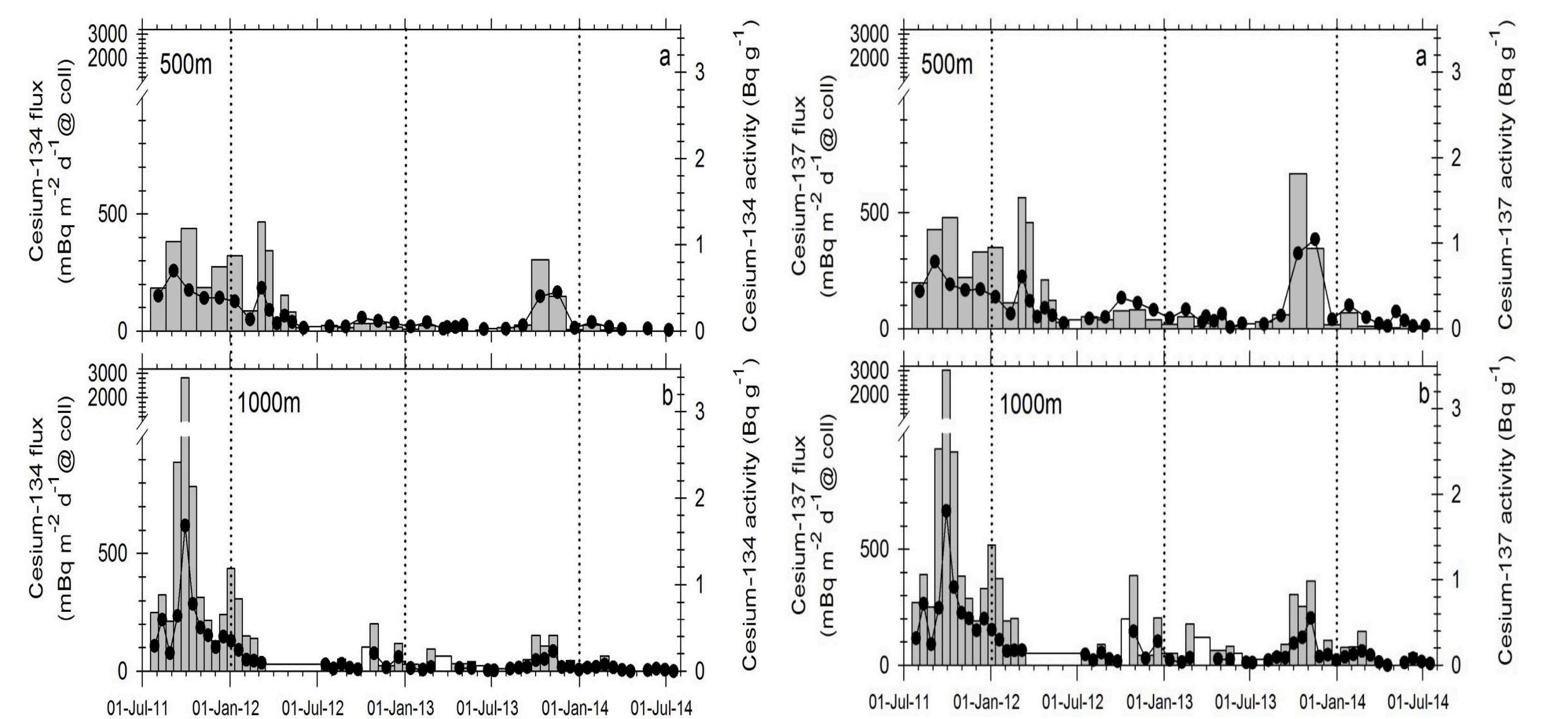


図3 水深500m(上)と1000m(下)における¹³⁴Csフラックス(左)と¹³⁷Csフラックス(右)。黒丸＋線は濃度。フラックス／濃度は各サンプリングインターバル中日に壊変補正されている。

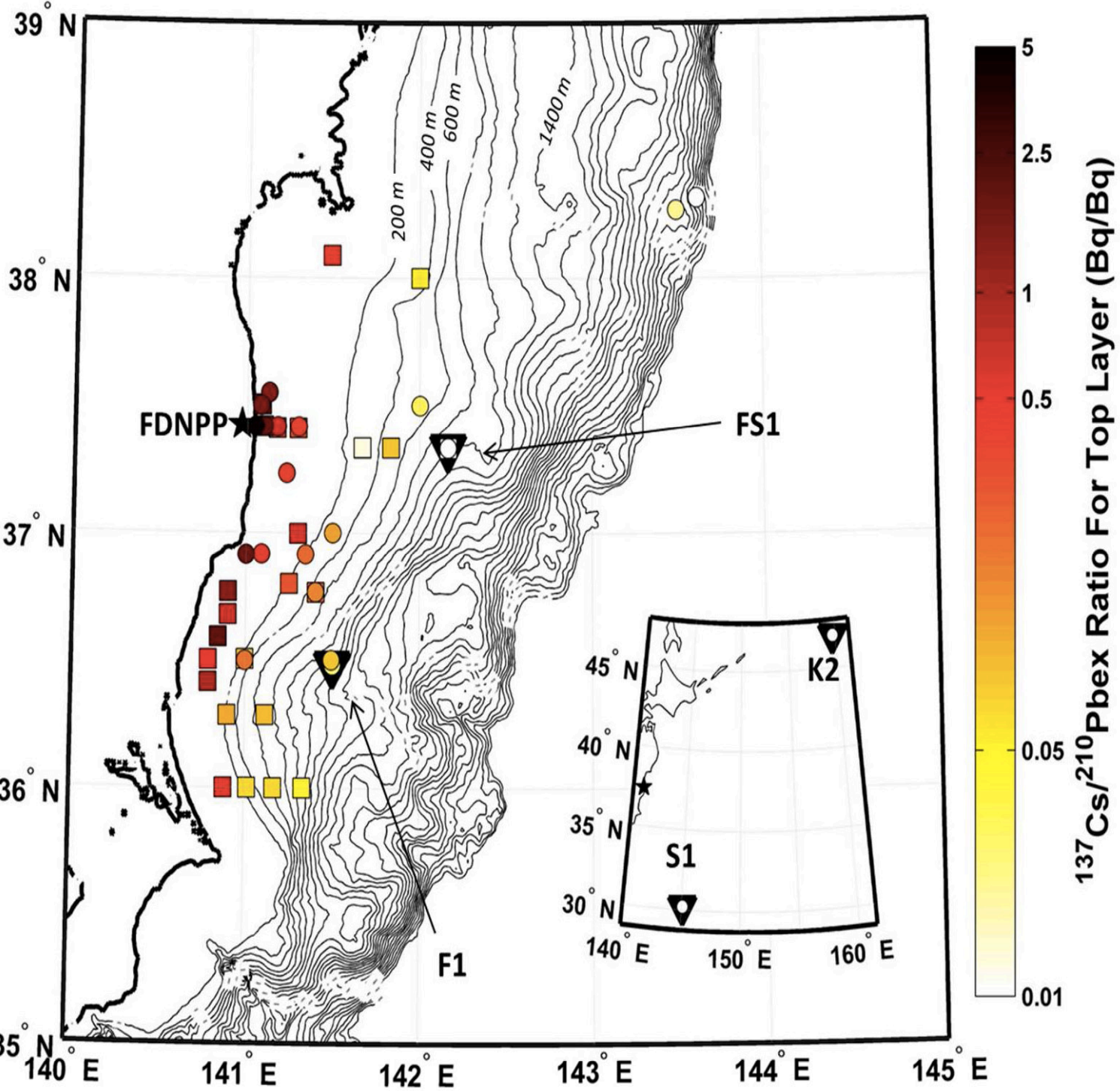


図1 観測地点F1およびその他のセジメントトラップ観測地点(FS1, K2, S1)。丸(Black and Buesseler, 2014)と四角(Otosaka et al. 2014)は表層海底堆積物中の¹³⁷Cs / ²¹⁰Pb_{ex}比(値は右スケール参照)

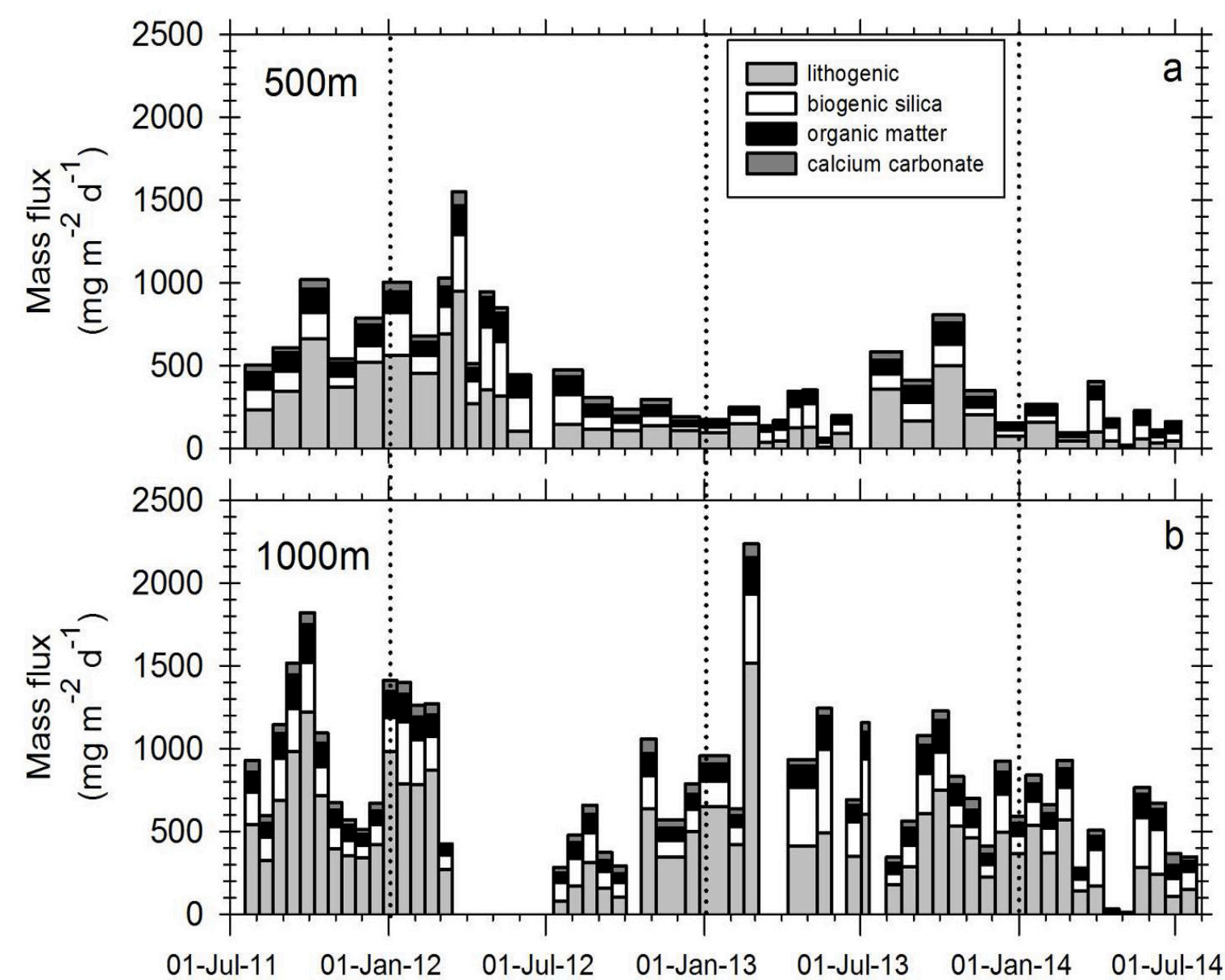


図2 沈降粒子フラックスと化学組成の時系列変化 a)は水深500m、b)は水深1000mトラップで観測されたもの。Lithigenic、biogenic silica, organic matter, calcium carbonateはそれぞれ、陸起源物質、生物起源オパール、有機物、炭酸塩

(2) ²¹⁰Pb

測定された²¹⁰Pb比放射能から²²⁶Raから自生する²¹⁰Pbを差し引いたexcess ²¹⁰Pb

$$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = \text{total } ^{210}\text{Pb} - ^{226}\text{Ra}$$

は放射性Csしほど年による変動は大きくなく、天然起源のものであることが窺えた。1年目(2011年7月～2012年7月)、2年目(2012年7月～2013年7月)、3年目(2013年7月～2014年7月)の水深1000m(500m)の²¹⁰Pb_{ex}フラックス総量はそれぞれ約600(500)、720(210)、580(270) Bq m⁻² yr⁻¹であった。¹³⁷Cs / ²¹⁰Pb_{ex}比は2011年秋季、および2013年秋季に比較的高い値を示した。

4. 考察

4.1 ²¹⁰Pb_{ex}フラックスと海底堆積物²¹⁰Pb_{ex}インベントリとの比較から推定したトラップの捕集効率および粒子の水平輸送

F1海底の堆積物中²¹⁰Pb_{ex}インベントリは約16,100 Bq m⁻²で、このインベントリを²¹⁰Pbの平均寿命(1/λ = 1 / (ln2/22.3) = 32年)で除すると、1年あたりの²¹⁰Pb_{ex}堆積フラックスは503 Bq m⁻² yr⁻¹と見積もられた。この²¹⁰Pb_{ex}フラックスは、前述の水深1000 m層における²¹⁰Pb_{ex}フラックス(580～720 Bq m⁻² yr⁻¹)と25 %の誤差範囲で一致した。一方で、500 m層での値(210～500 Bq m⁻² yr⁻¹)に比べて高かった。換言すれば、水深1000 mでは沈降粒子を100±25 %で捕集していたが、水深500 m(特に2年目、3年目)ではその捕集効率が低かったことが窺えた。

一方、F1から北北東へ約115km離れた地点であり福島原発東方沖約100kmの観測点FS1における²¹⁰Pb_{ex}インベントリは7,600 Bq m⁻²程度と推定され、F1における²¹⁰Pb_{ex}インベントリはその2倍以上であった。またFS1付近の海底堆積物の²¹⁰Pb_{ex}インベントリ観測値は10,000 Bq m⁻²程度だったので、F1にはFS1に比べて水平方向から輸送されてきた²¹⁰Pb_{ex}がより多く堆積していることが窺えた。

4.2 Csフラックスと海底堆積物Csインベントリとの比較から推定された捕集し損ねた放射性Cs

水深1000mの¹³⁷Csフラックスは1年目、2年目、3年目でそれぞれ年間140、31、31 Bq m⁻² yr⁻¹であり、1年目、2年目の合計は170 Bq m⁻²であった。一方、2012年7月と2013年5月に測定された海底堆積物中の¹³⁷Csインベントリは平均で約235 Bq m⁻²であった(測定値: 295 Bq m⁻²から東日本大震災前に存在していたと考えられた¹³⁷Csインベントリ: 60 Bq m⁻²を差し引いたもの)。本セジメントトラップによる沈降粒子の捕集は東日本大震災後約4ヶ月後から開始したので、その前にF1に輸送されてきた放射性セシウムを捕集し損ねているはずである。従って両者の差: 65 Bq m⁻²が震災後4ヶ月間にF1に輸送されたものであると推定された。

4.3 水平輸送された放射性Csフラックス

表層海水から粒子にとりこまれ鉛直方向に輸送されるCsフラックス(F_{cs})は以下の式で推定可能と考えられる(Otosaka et al., 2014)。

$$F_{cs} = C_w \times K^* \times F_v$$

ここでC_wは海水中の¹³⁷Cs濃度(Bq m⁻³)、K*は海水と粒子のCs分配係数(L g⁻¹)、F_vはTMF(mg m⁻² day⁻¹)である。¹³⁷Cs濃度に3.5 Bq m⁻³(2012、2013年5月にF1付近で測定)、K*に3.5 L g⁻¹(IAEA, 1993)、F_vに500mのTMFの1年目の平均値740 mg m⁻² day⁻¹を代入すると、F_{cs}は9 mBq m⁻² day⁻¹(もしくは3.3 Bq m⁻² yr⁻¹)と算出された。これらは実測された水深1000mの¹³⁷Csフラックス(31～140 Bq m⁻² yr⁻¹)よりはるかに小さい。従ってセジメントトラップに捕集されたほとんどの放射性Csは鉛直方向に輸送されたものではなく水平方向に輸送されたものであることがこのことから示唆された。

4.4 捕集粒子の特徴とその起源

捕集された粒子を、(1)陸起源物質(2)

有機物(3)Opal + CaCO₃を頂点とした、三角ダイアグラムにプロットした。さらに各

値をCs濃度別に色分けした(図5)。その結果、捕集された多くの粒子が(a) 陸起

源物質: 70%+有機物:10%+Opal + CaCO₃: 20%と(b)陸起源物質: 20%+有機物: 35%

+Opal + CaCO₃: 45%の2成分をエンドメン

バーとした粒子であること、(1)に近い(陸

起源物質の割合が多い)粒子の¹³⁷Cs濃

度は高いことなどが明らかとなった。

4.5 粒子の水平輸送のメカニズム

Csフラックスおよび濃度は表層付近の低次生物活動が活発でない時期、原発事故から時間が経過した時期、にしばしば増加した。最も顕著なのが2013年の10月の増加であった。同年9月～10月にかけては福島原発の100km圏内に3つの台風が通過していた(台風18号: Man-Yi, 22号: Sepat, 26号: Wipha, <http://www.ima.go.jp/en/typh/>)。この台風が浅海域海底の放射性Csが堆積した海底堆積物を再懸濁させそれらが海流によって水平輸送されたと推定される。2011年10月にもCsフラックス・濃度が増加していたが、9月下旬に台風15号(Roke)が福島を通過していた。1年目(2011年)は東北地方太平洋沖地震の余震が頻発しており、それによる福島沖浅海域海底堆積物の再懸濁・水平輸送が考えられるが、それ以外は台風がトリガーとなっていると推定された。

4.6 福島沖海底堆積物中の放射性Csの滞留時間

1000mトラップで得られた¹³⁷Csフラックスの3年間の平均70 Bq m⁻² yr⁻¹であった。この値を福島沖の水深200-1500m／北緯35.7度～北緯38.5度の範囲(2.05 × 10¹⁰ m²)の200m以浅の海底から水平輸送されてくる¹³⁷Csフラックスの平均値と考えると、水平輸送総量は1.4 × 10¹² Bq yr⁻¹と試算される。福島沖水深200m以浅の海底における¹³⁷Csインベントリは100 × 10¹² Bqとの報告があるので、滞留時間は約70年(100/1.4)と試算される。海底堆積物は底棲生物による生物攪乱により攪拌されたり、放射性Csは溶出するので、放射性Cs濃度はより速く低下すると推定されるが(半減期: 0.5 ～ 30年: Black and Buesseler, 2014)、福島沖浅海の海底堆積物中原発事故由来の放射性Csの迅速な除去は期待できない、という結論となった。

本発表は以下の論文からの抜粋である。上記参考文献の詳細も以下の論文を参照のこと。Buesseler, K. O., C. R. German, M. C. Honda, S. Otosaka, E. E. Black, H. Kawakami and S. J. Manganini. Tracking the fate of particle associated Fukushima Daiichi cesium in the ocean off Japan. *Environmental Science and Technology*. DOI: 10.1021/acs.est.5b02635. (2015)

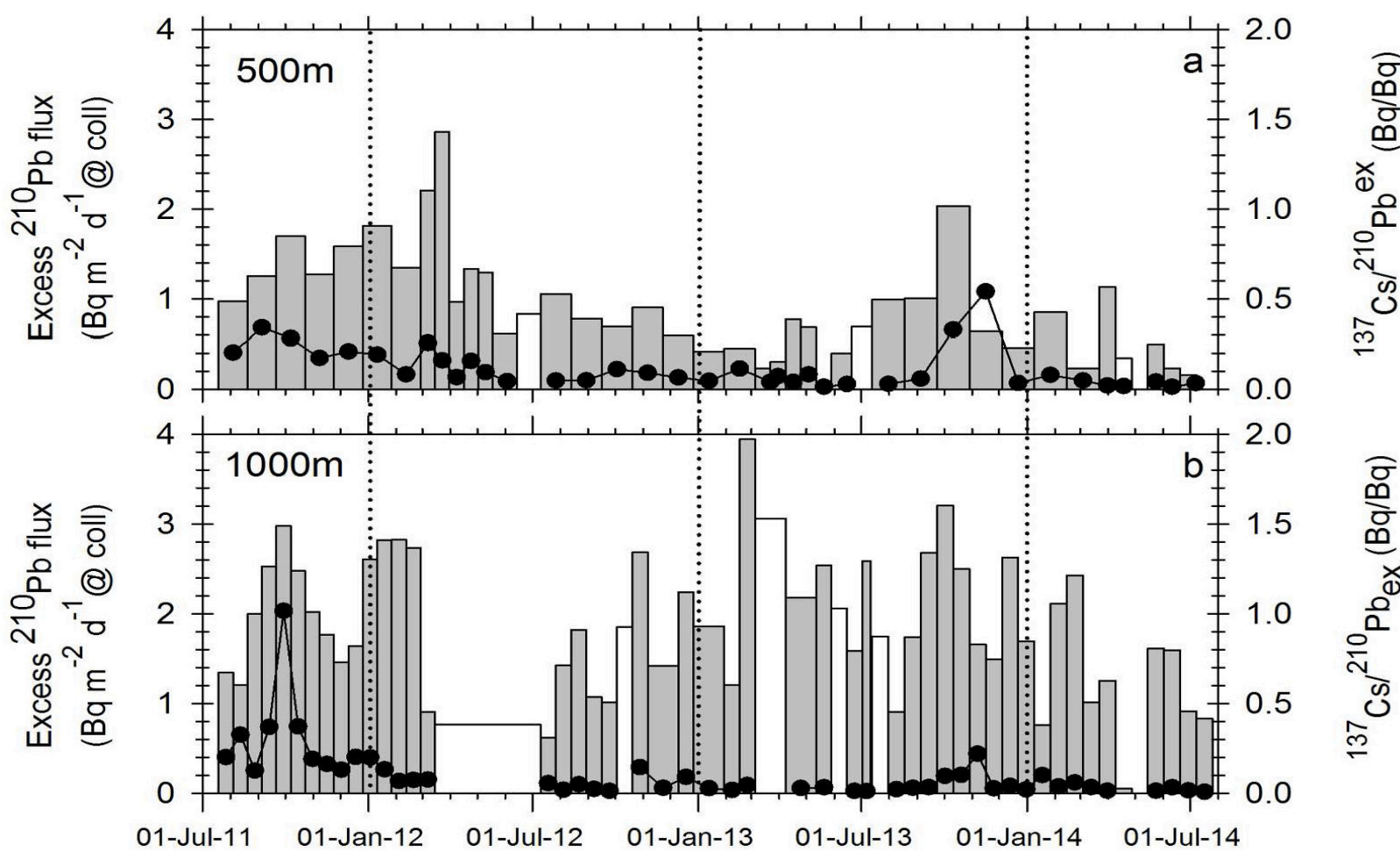


図4 水深500m(上)と1000m(下)における²¹⁰Pb_{ex}フラックス(棒グラフ)と¹³⁷Cs / ²¹⁰Pb_{ex}比(黒丸)の時系列変化。白抜き棒はデータが欠落したため前後の値から内挿したフラックス

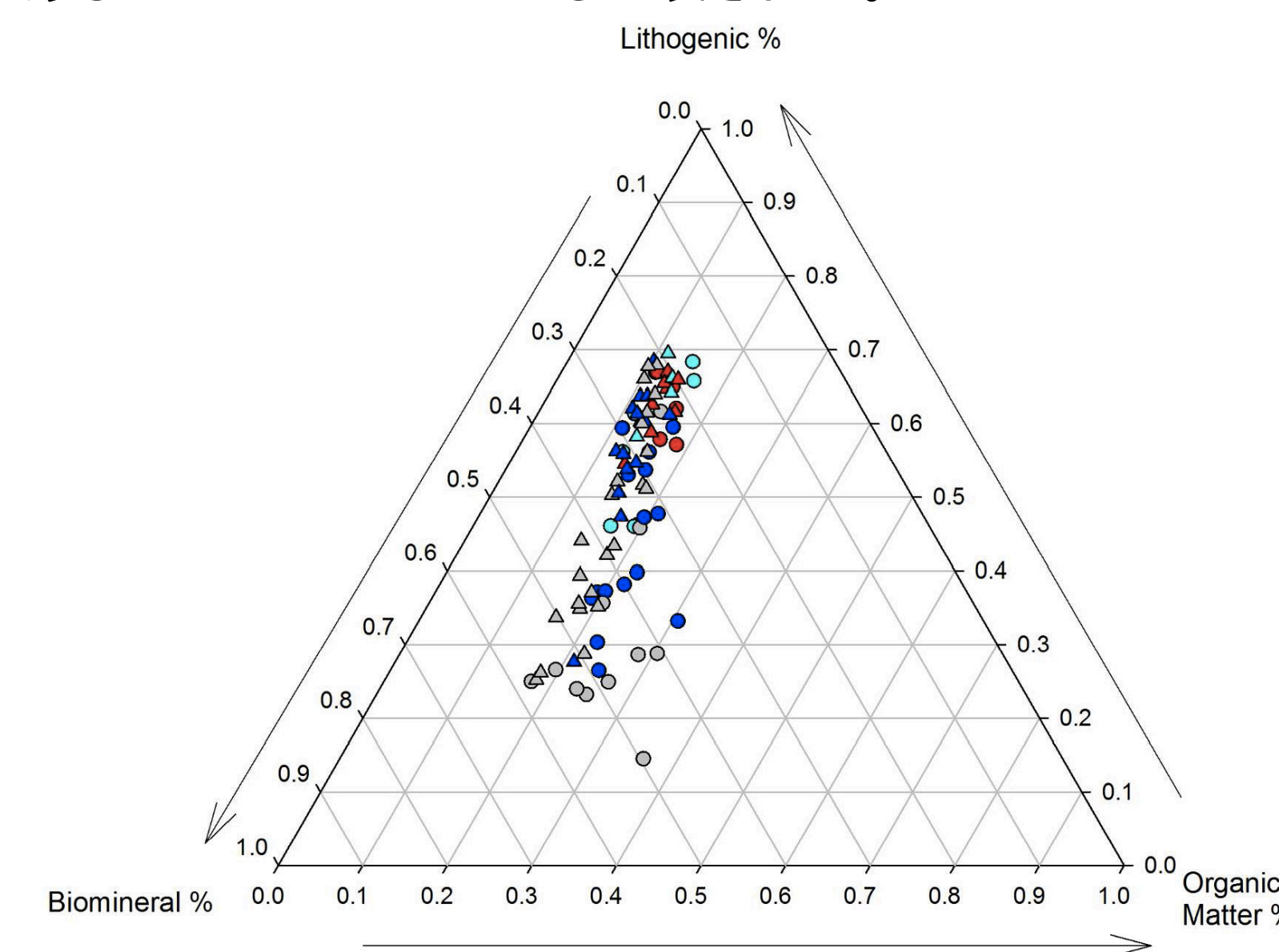


図5 陸起源物質、有機物、Opal + CaCO₃を頂点とした(陸起源物質%+有機物%+Opal + CaCO₃%=100)三角ダイアグラム。丸は500m、三角は1000m。¹³⁷Cs濃度は赤 > 0.5、シアン 0.3-0.5、青 0.1-0.3、灰色 < 0.1 Bq g⁻¹。