

# 極微量分析技術を用いた北太平洋 での放射性セシウムの分布

環境放射能研究所  
青山道夫

第3回放射線計測フォーラム

2014年12月3日

コラッセふくしま、福島、日本

# 今日の講演内容

- | 研究概要 何故どんなことをしているか？
- | 福島事故以前：研究の始まりから55年の結果
- | 福島事故後の大気・海洋での人工放射能変動
- | まとめ

# なぜ研究していたか？(なぜ国として税金を使っていたか？)

国民が受ける放射線量を監視評価し、放射線防護の措置を講じるため

気象研究所での研究は

1. 環境(大気・海洋)における放射能汚染の実態の把握
  2. 大気・海洋における物質輸送研究のトレーサ - としての利用
- を目的としている。

降下物: 1957年から55年の世界最長記録

旧科学技術庁、旧文部科学省の放射能調査研究費、現在は原子力規制庁の放射能調査研究費

予算の詳細は、気象研HP「環境における人工放射能の研究」2013  
研究の歴史を参照されたい。

[http://www.mri-jma.go.jp/Dep/ge/2013Artifi\\_Radio\\_report/index.html](http://www.mri-jma.go.jp/Dep/ge/2013Artifi_Radio_report/index.html)

# 理想的な化学トレーサー

海水と同じ挙動をする

海洋への付加過程が単純。(付加期間が短いなど)

海洋への付加海域が均一あるいは地域的な分布が明確。

多くの海域で、時間変化が観測されている。

ある時間を経過後、海洋の断面分布を描ける観測が行われる。

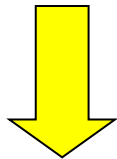
少なくとも、50年以上追跡可能である。

$^{137}\text{Cs}$ がこれらの条件を満たす可能性あり

# 海洋への<sup>137</sup>Csの付加過程

太平洋の<sup>137</sup>Csは大部分グローバルフォールアウトによる。  
主に、1960年代中頃までに海洋表層に降下した。

降下量の精密な分布の作成

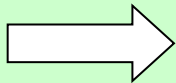


データベースの作成

1. 海洋放射能 (HAM : Aoyama and Hirose (2004))
2. 人工放射能降下量
3. 土壌中人工放射能濃度

# 海水中の $^{137}\text{Cs}$ の分析法の改善

目標



20リットル以下で測定可能

Ge半導体検出器の高感度化

1.5 %      ⊃      7-20 %

化学収率の改善

< 50-70 %      ⊃      > 90 %

(2リットルなら99.2%)

低バックグラウンドの実現

地下施設(金沢大学)との共同

精密な断面分布を書くことが可能。

165°E

Aoyama et al., (2000)

# 化学トレーサーは何に利用できるか

海洋循環過程の検証

海洋循環モデルの検証

例: 北部大西洋での深層水の形成

$^3\text{H}$  , CFCs

海洋炭素循環モデルへの利用

CFCs ,  $^{14}\text{C}$

海洋の炭素蓄積量の評価

$^{14}\text{C}$

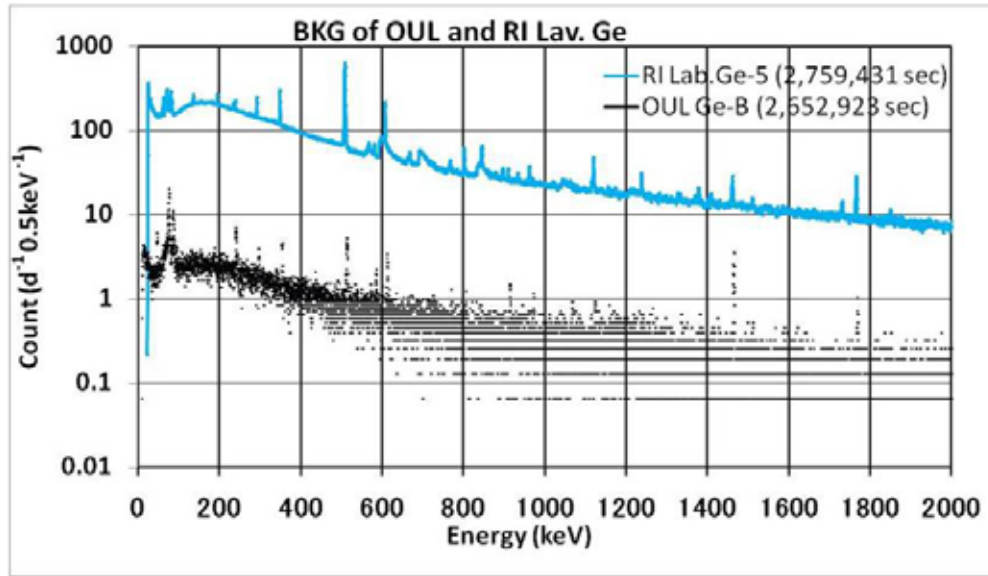
海洋のCO<sub>2</sub>吸収域、放出域及び蓄積量の推定

# 海水中の<sup>137</sup>Csの分析法の改善 第二段階

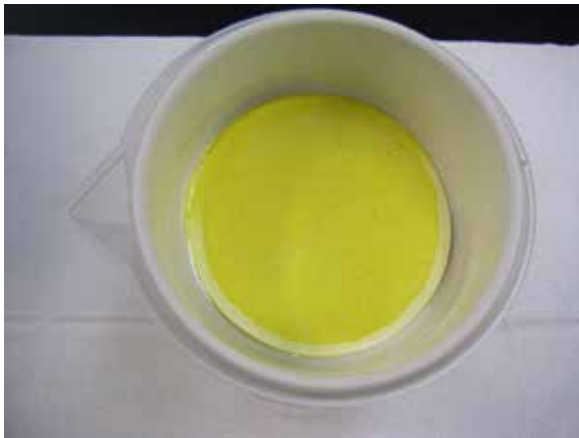
- リンモリブデン酸アンモニウムをもちこむと
- BGがあがって測定下限値が大きくなる
- 下限値0.5-1 mBq
- 10 L x 0.01 Bq m<sup>-3</sup> = 0.1mBq を目標
- リンモリブデン酸アンモニウムを再溶解し、
- 塩化白金酸セシウムとして取り出す → <sup>40</sup>Kの減少によるBGの減少(数分の一から十分の一)



# Low background measurements at Ogoya underground laboratory



**Double treatment by Aoyama and Hirose 2008 to reduce <sup>40</sup>K**

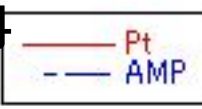


<- AMP/Cs compound

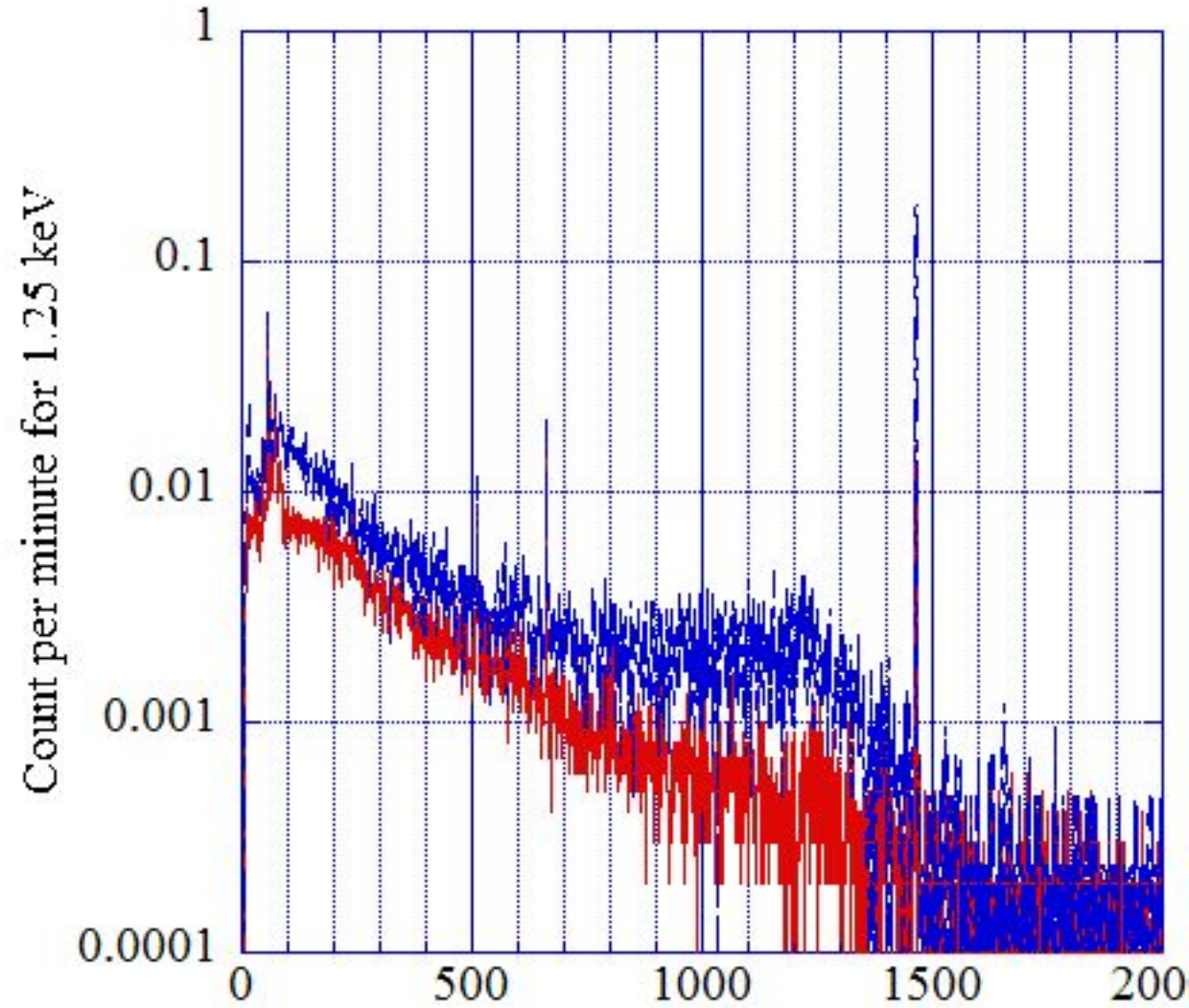
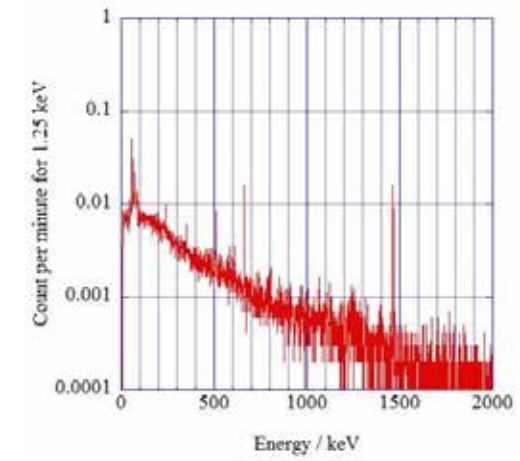
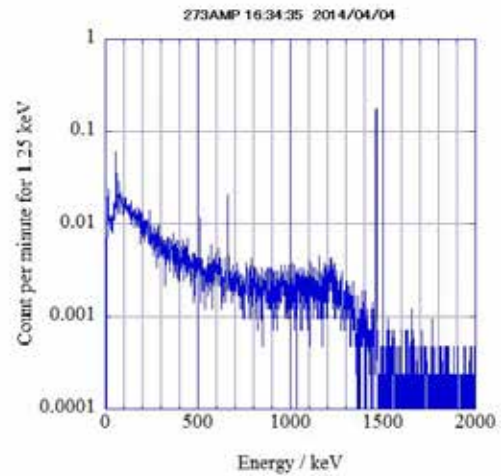
Cs<sub>2</sub>Pt(Cl)<sub>4</sub> precipitate ->

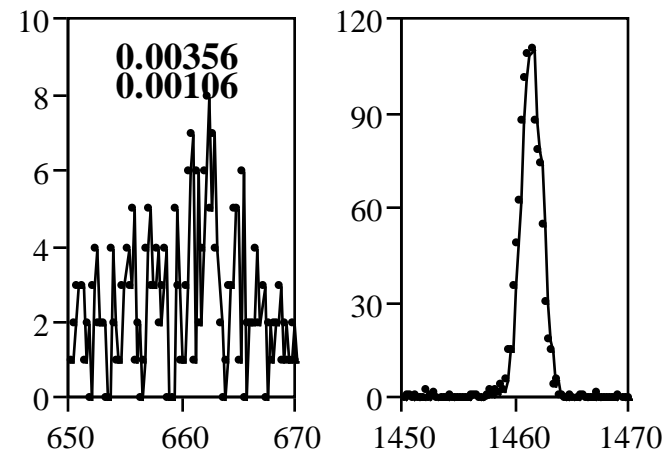
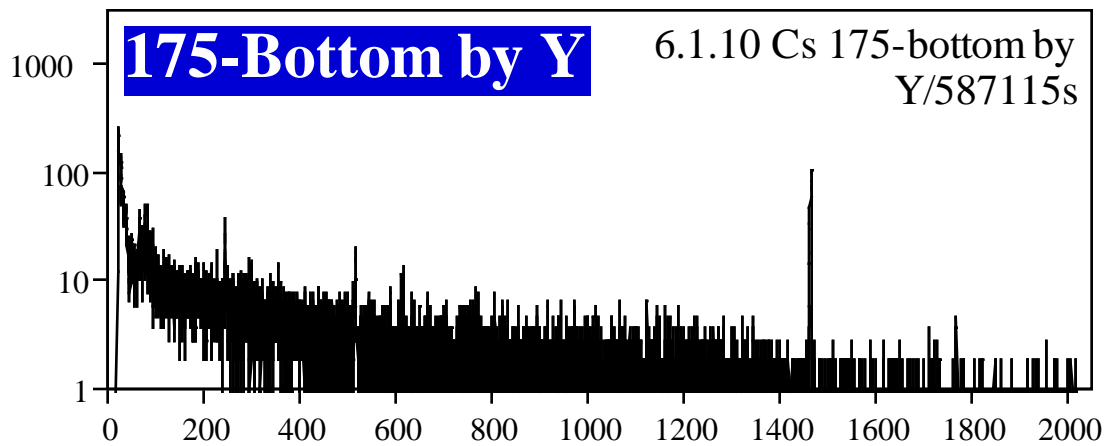
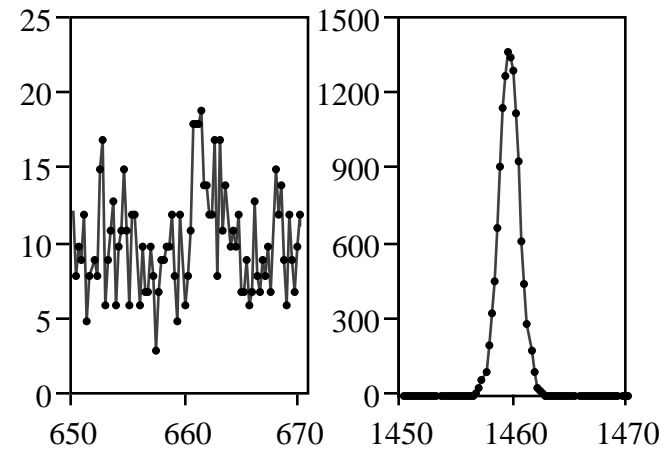
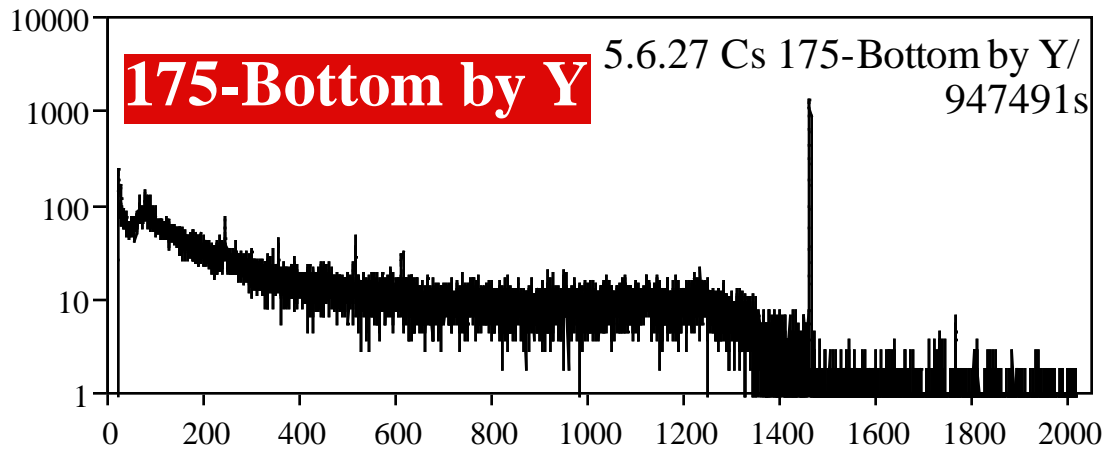


リンモリブデン酸アンモニウムを再溶解し、塩化白金酸セシウムとして取り出す →  $^{40}\text{K}$  の減少



KH1108-273





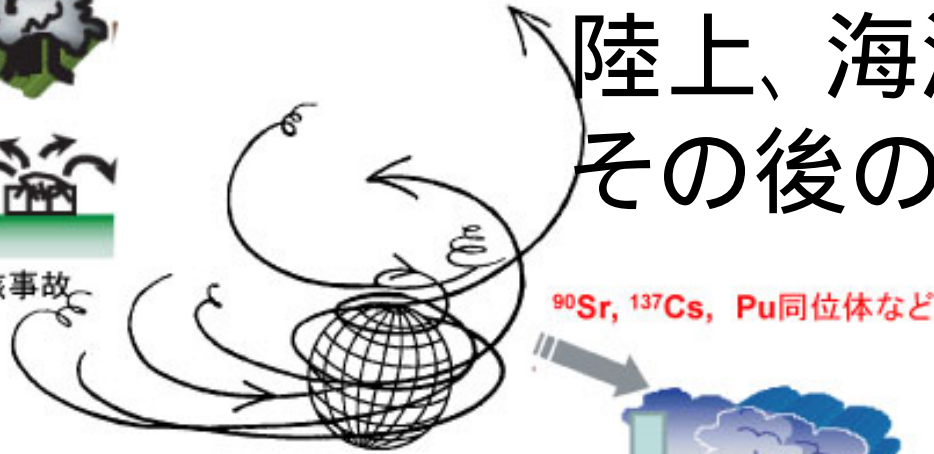
# 輸送模式図

大気に放出された後、  
陸上、海洋表層への輸送  
その後の海洋内部での輸送

過去の核実験



過去の核事故



$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , Pu同位体など

降雨等による降下

平地



降下

放射性核種

表層

沈降流による深層への輸送

湧昇流による表層への輸送

深層

長期的な海洋内部の輸送



# 気象庁凌風丸 回収した採水器

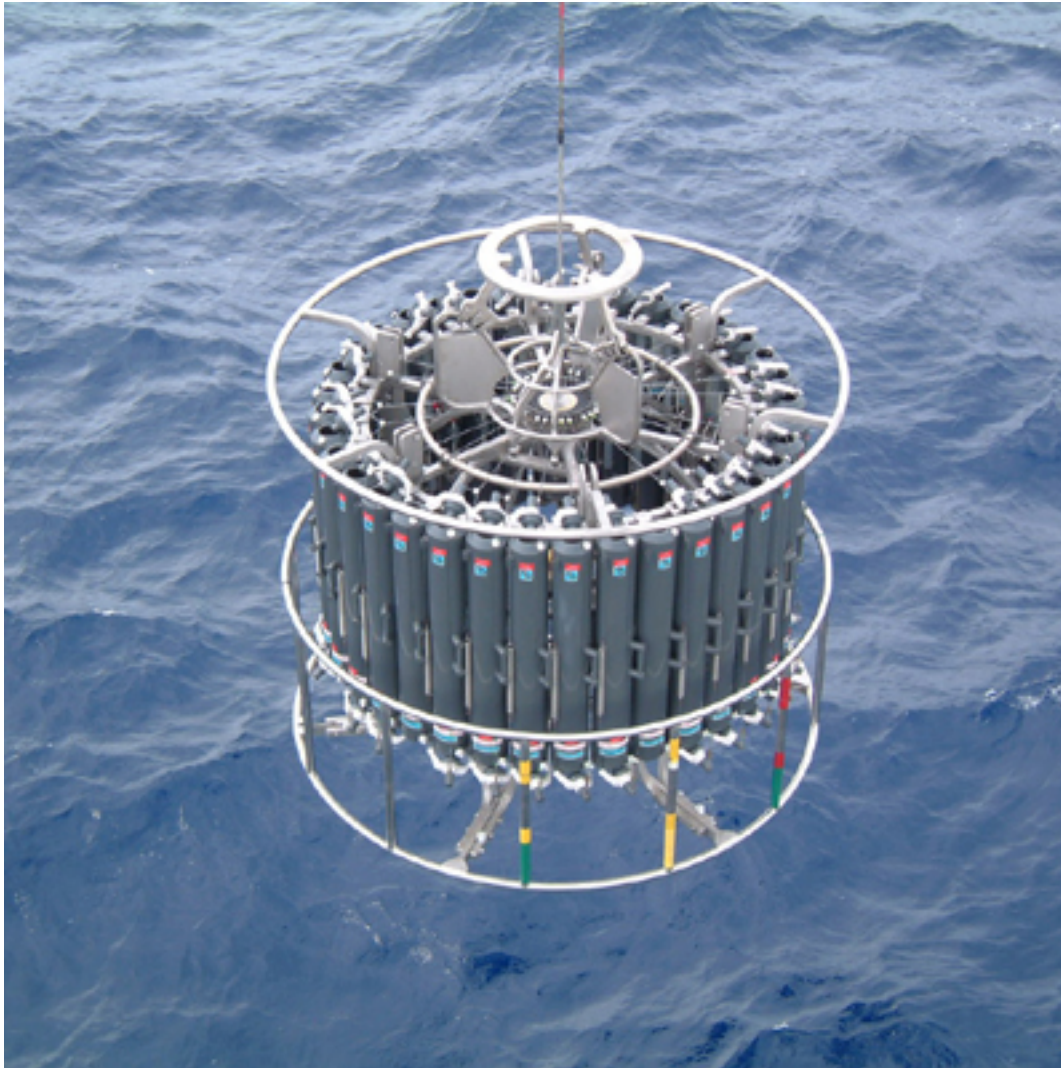


12リットルボトル 36本

秒速1 mで移動

6200 mの海底まで片道2時間往復4時間

一日あたり2-4点の観測 太平洋横断に2ヶ月から3ヶ月

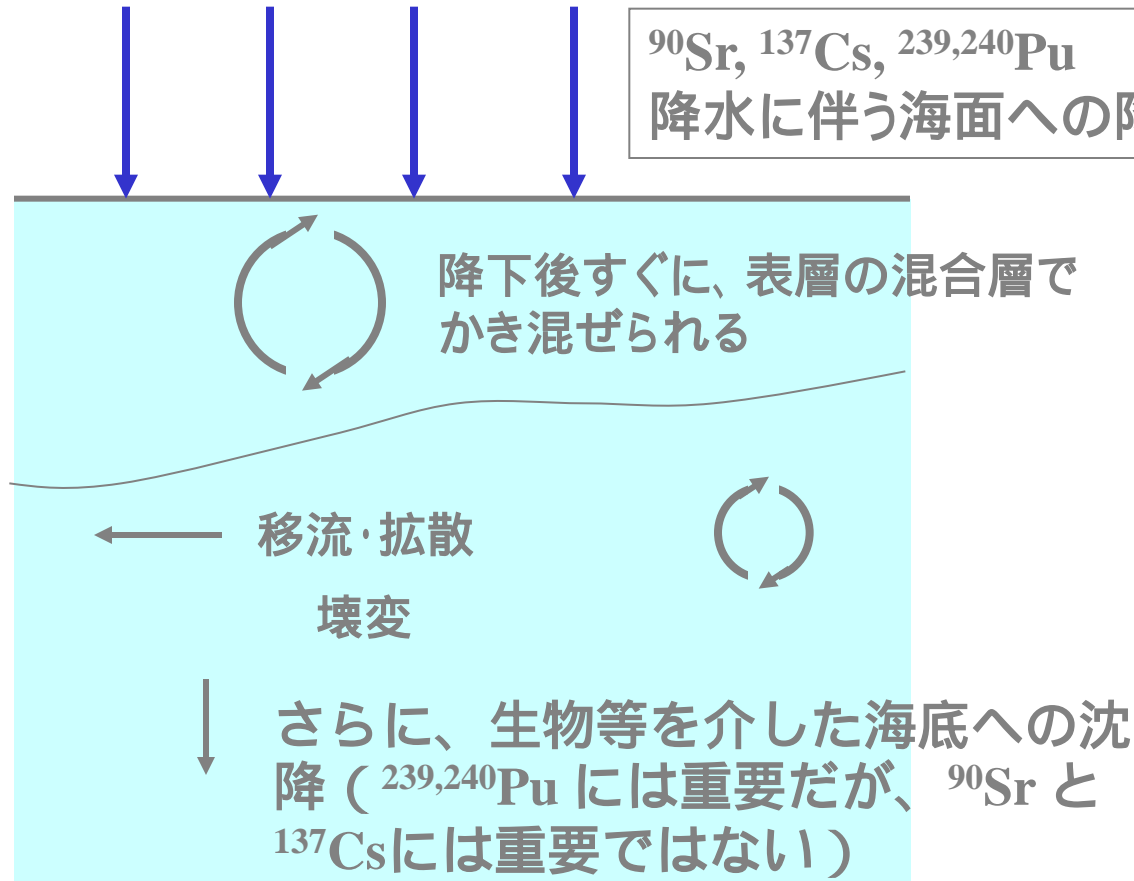


# 海洋表面に降下したものの行方

海洋への降下は、

- 1) 東西方向に一様
- 2) 南北方向の分布は成層圏-対流圏交換過程に依存

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$   
降水に伴う海面への降下

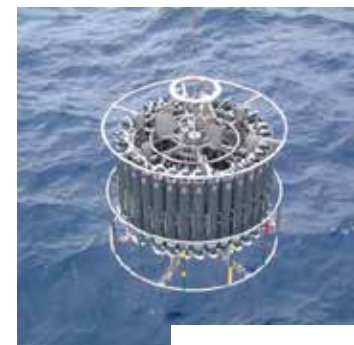


一部は  
プランクトンや  
魚へ移行

基本的には  
海水を測定

# 海水中人工放射性核種の試料採取

- 項目 主には長寿命の人工放射性核種
- 開始 1954年
- 採取方法 船で出かけていって海水を集める
- 量 一試料あたり以前は100-500リットル  
最近では2-20リットル



採水器

持ち帰って、対象核種を抽出し、測定

気象庁凌風丸

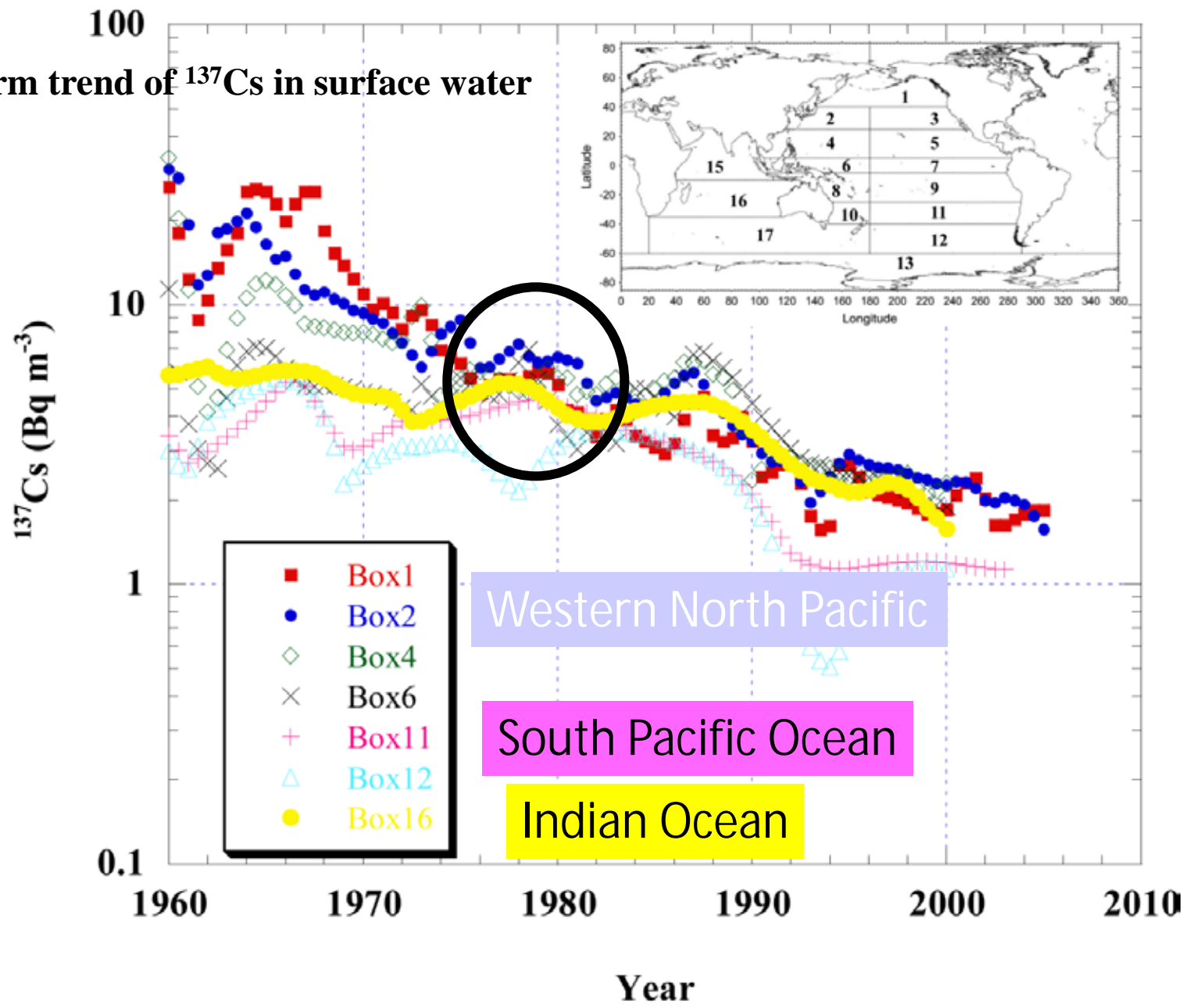


NYK HEIJIN

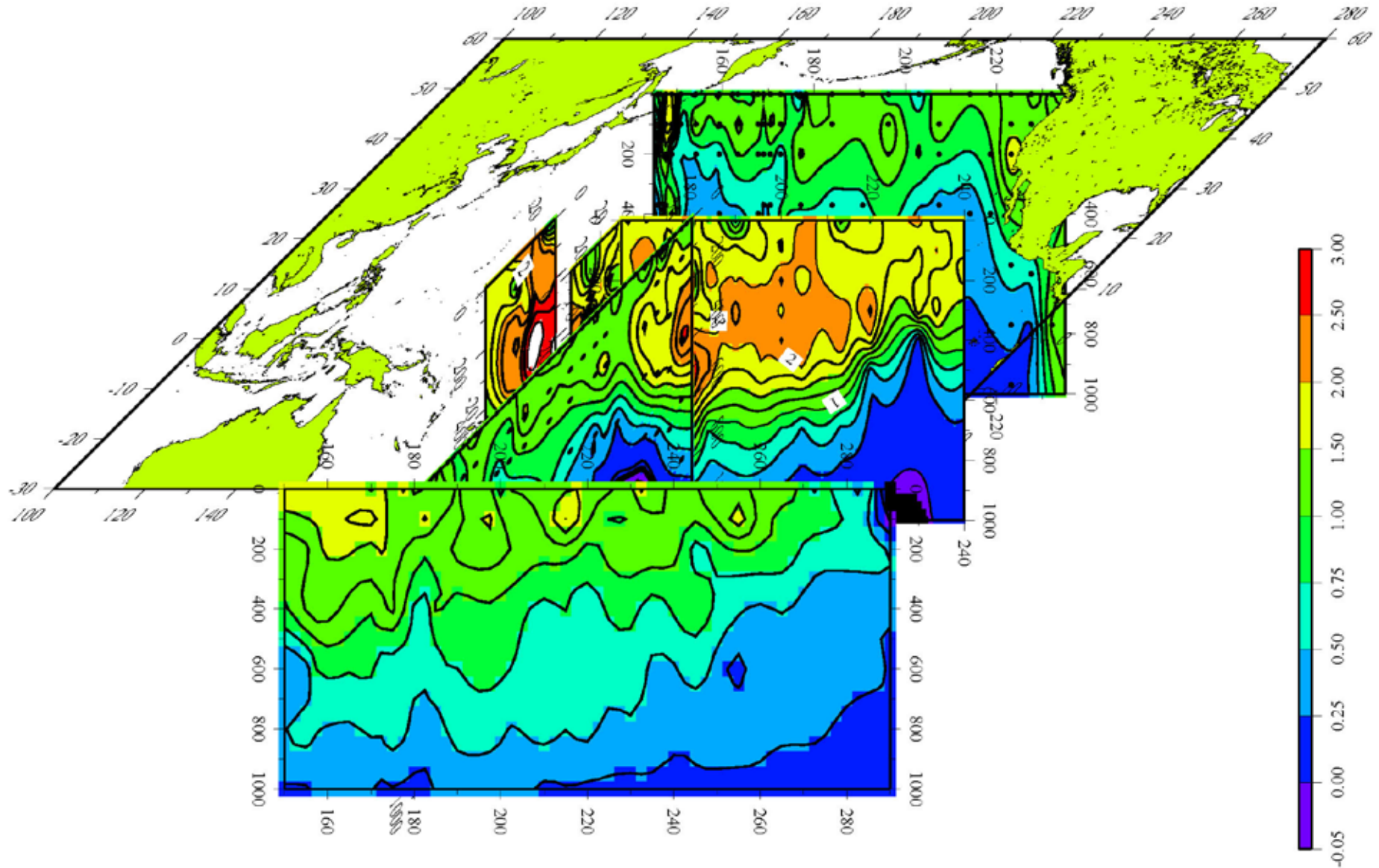




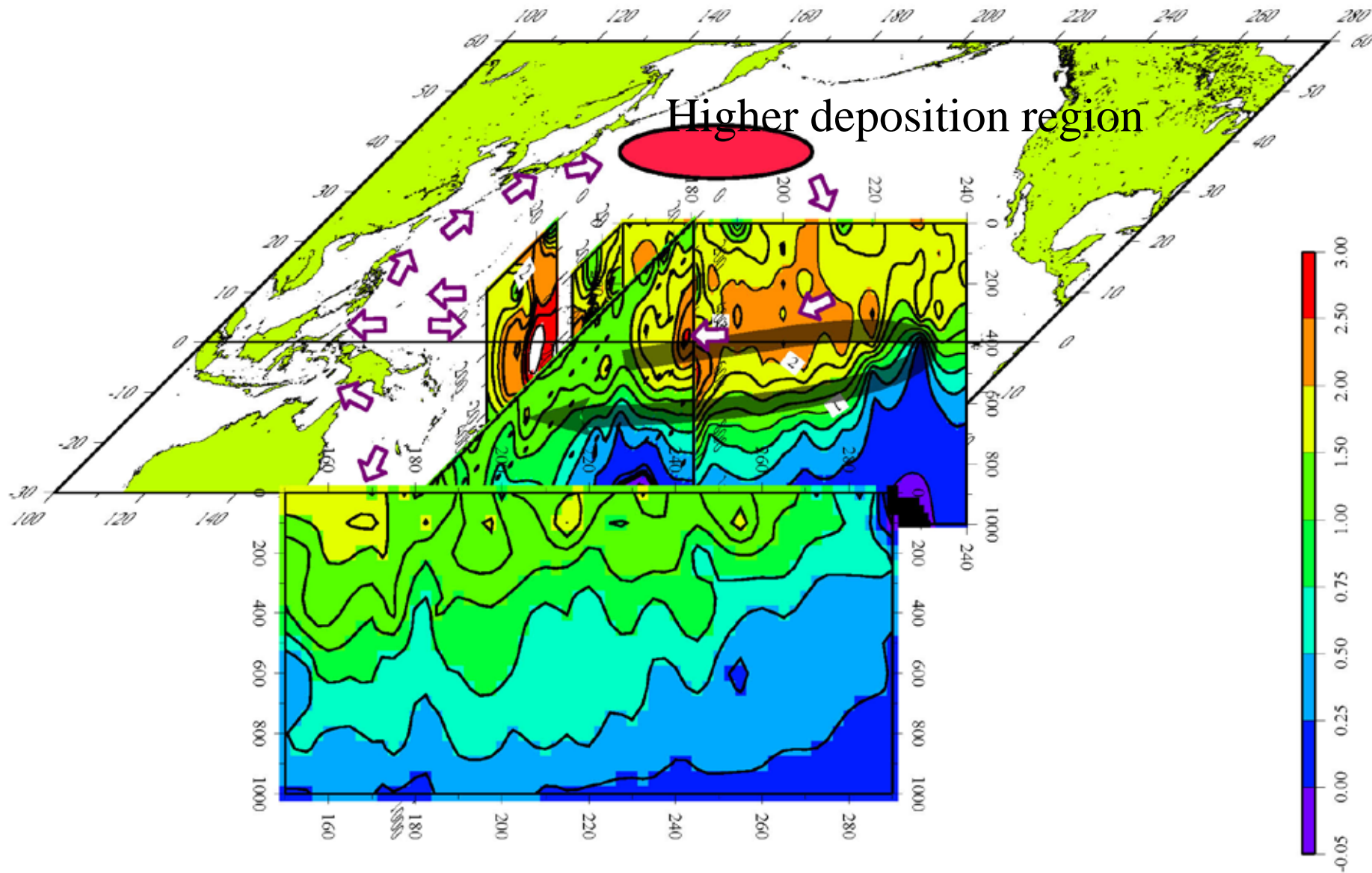
Long-term trend of  $^{137}\text{Cs}$  in surface water



# 3D distribution of $^{137}\text{Cs}$ in the Pacific Ocean based on 6 sections in 2000s: from south east



# 3D distribution of $^{137}\text{Cs}$ in the Pacific Ocean based on 6 sections in 2000s: with movements



# possible pathway of radiocaesium

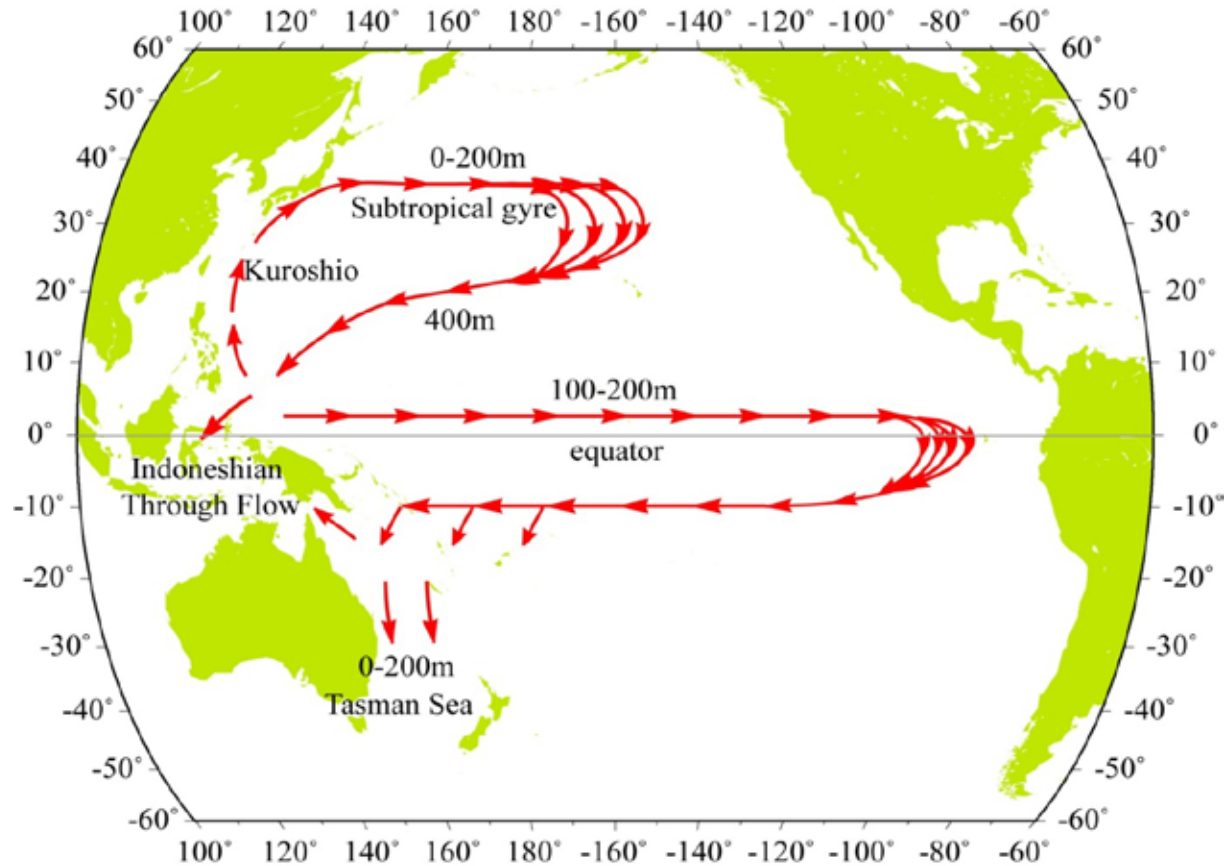
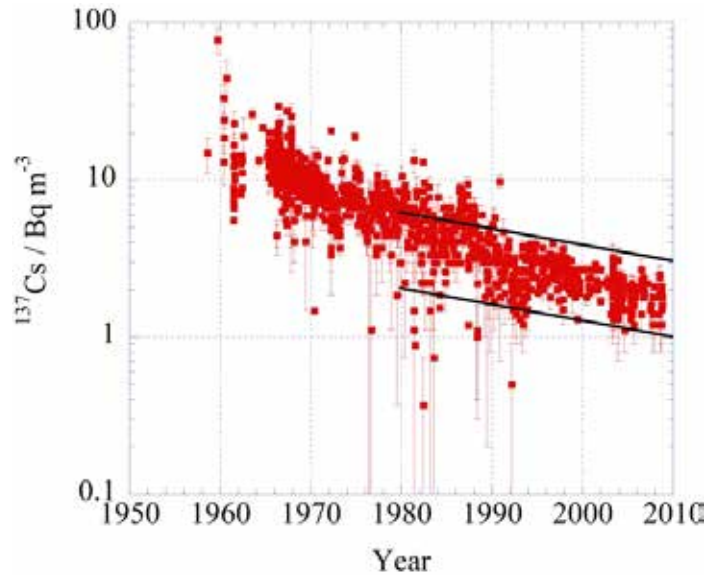
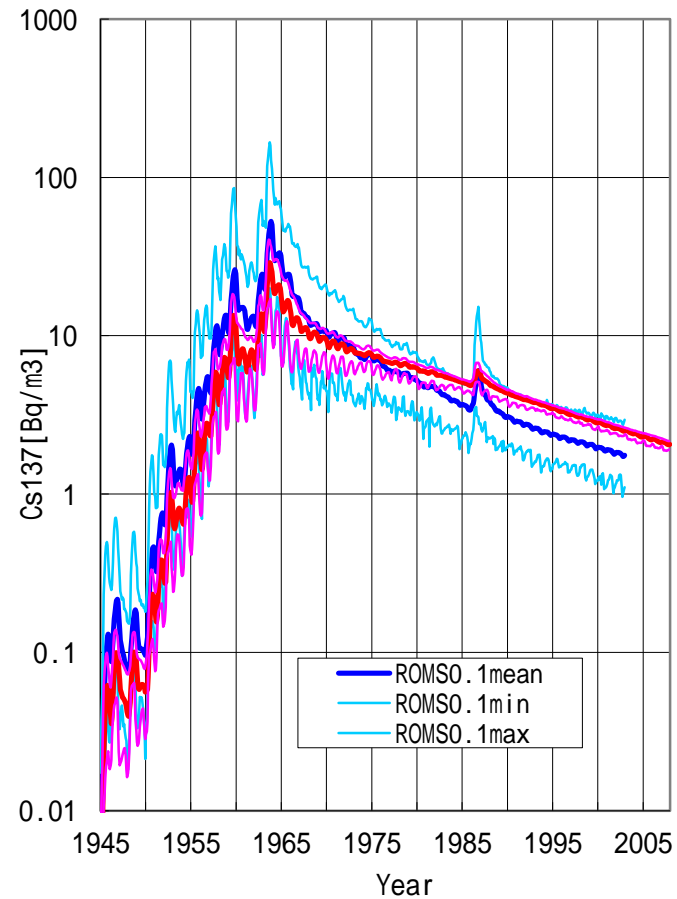


Fig. S2 Possible pathway of  $^{137}\text{Cs}$  in the Pacific Ocean

# 北太平洋 $^{137}\text{Cs}$ 表層濃度の時系列変化



北緯25度から40度、経度  
は日本沿岸から180度日付  
け変更線、東シナ海含まず



中解像度モデルPOP2.0

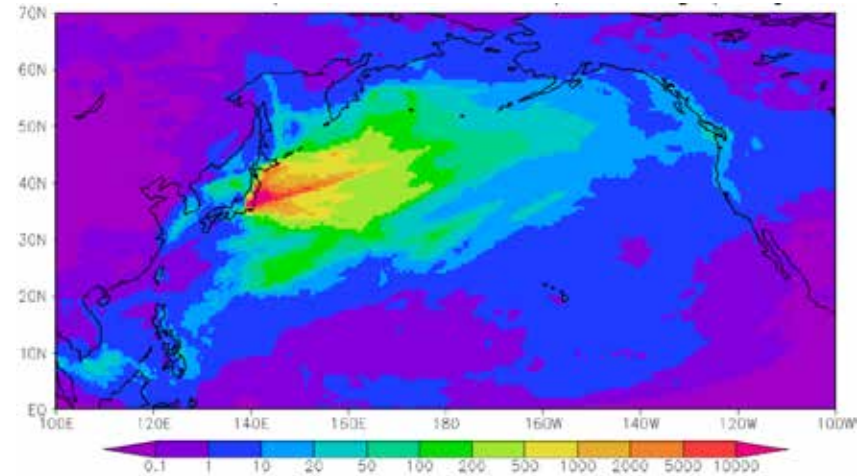
高解像度モデルROMS

# 福島事故での放出源：陸と海

- Atmospheric deposition
- Direct release
- Groundwater discharge
- Freshwater runoff from the 1F NPP site
- River runoff
- Planned release of low-level waste water

$^{137}\text{Cs}$  :  $1.8\text{E}+12 \text{ Bq/m}^3$

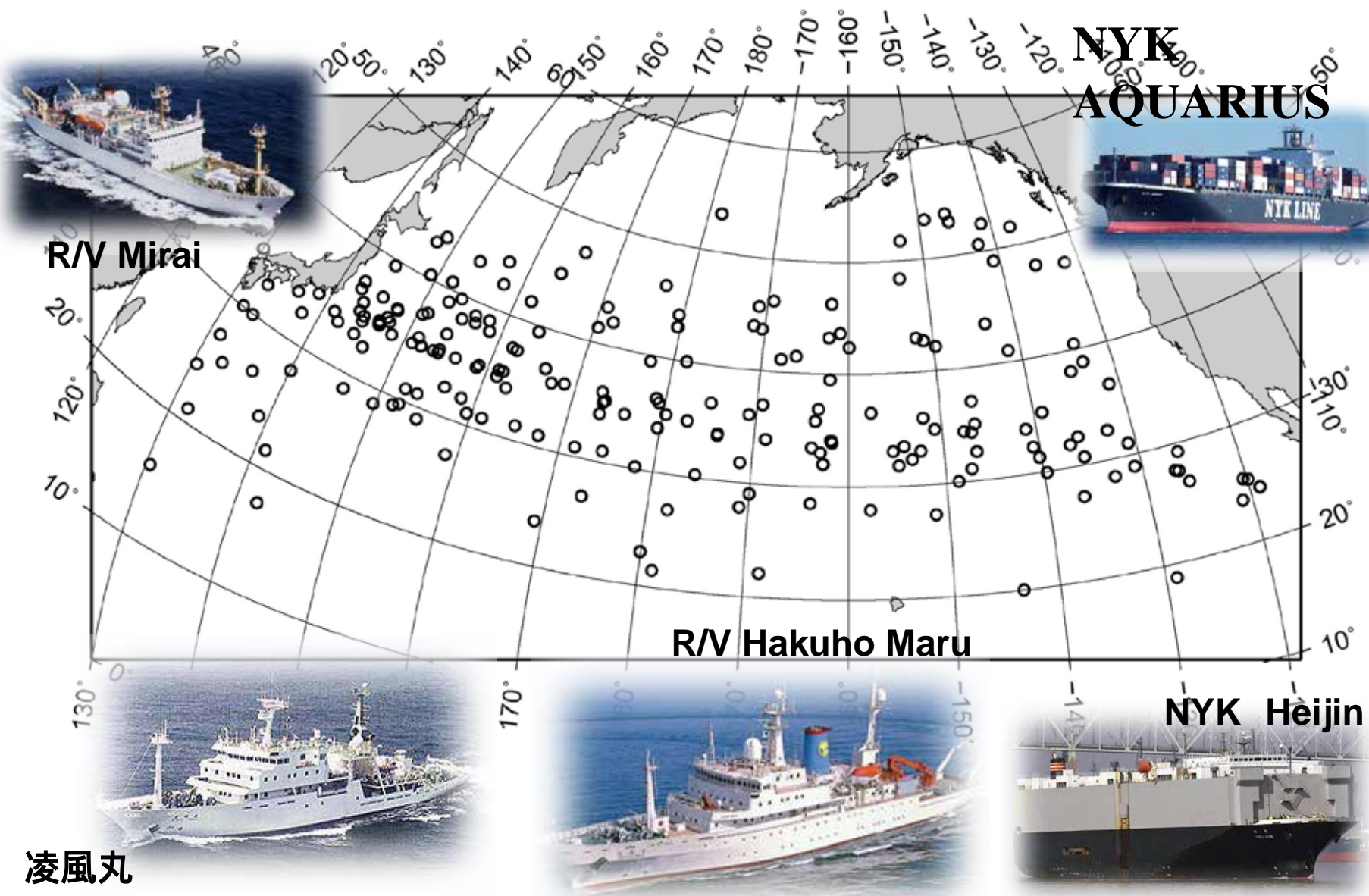
TEPCO Press release



Simulated atmospheric deposition of  $^{137}\text{Cs}$  ( $\text{Bq m}^{-2}$ ) (by Masingar II of MRI) (Aoyama et al., in preparation)



# Sampling locations during the period from March 2011 to Oct. 2012



**NYK  
AQUARIUS**

**R/V Mirai**

**R/V Hakuho Maru**

**NYK Heijin**

**凌風丸**

表. 2011年4-5月の北太平洋における放射性セシウム濃度

Station	Depth dbar	Latitude	Longitude	Date	<sup>134</sup> Cs Bq m <sup>-3</sup>	<sup>137</sup> Cs Bq m <sup>-3</sup>
NYK11-043	0	34.95°N	143.86°E	20110331	135 ± 10	150 ± 8
NYK11-001	0	35.68°N	143.77°E	20110401	507 ± 33	546 ± 28
NYK11-003	0	36.60°N	147.60°E	20110401	1000 ± 71	1080 ± 60
NYK11-044	0	35.07°N	146.44°E	20110401	34 ± 2.6	36.8 ± 2.1
NYK11-007	0	38.18°N	154.97°E	20110402	17.7 ± 1.6	21.5 ± 1.3

(分析結果の例)

Latitude	Longitude	Date	<sup>134</sup> Cs Bq m <sup>-3</sup>	<sup>137</sup> Cs Bq m <sup>-3</sup>
36.60°N	147.60°E	20110401	1000 ± 71	1080 ± 60
36.35°N	178.99°E	20110406	1.1 ± 0.6	2.4 ± 0.4
41.12°N	167.75°W	20110407	ND	1.8 ± 0.2

NYK11-091	0	35.15°N	158.95°E	20110405	3.4 ± 0.7	7.5 ± 0.6
NYK11-092	0	35.32°N	161.70°E	20110405	3.4 ± 0.6	5.3 ± 0.4
NYK11-095	0	36.35°N	178.99°E	20110406	1.1 ± 0.6	2.4 ± 0.4
NYK11-021	0	41.12°N	167.75°W	20110407	ND	1.8 ± 0.2
NYK11-023	0	42.33°N	159.88°W	20110408	0.6 ± 0.3	1.9 ± 0.2
NYK11-025	0	43.00°N	151.95°W	20110409	ND	1.8 ± 0.2
NYK11-055	0	33.46°N	154.15°W	20110409	ND	1.4 ± 0.2
NYK11-098	0	36.84°N	163.23°W	20110409	ND	1.9 ± 0.2
NYK11-027	0	43.62°N	143.57°W	20110410	0.7 ± 0.3	2.3 ± 0.2
NYK11-056	0	32.52°N	146.59°W	20110410	ND	1.8 ± 0.2
NYK11-100	0	35.88°N	151.92°W	20110410	ND	1.8 ± 0.2
NYK11-125	0	33.29°N	142.20°E	20110410	3.1 ± 0.6	3.5 ± 0.4
NYK11-029	0	38.18°N	134.97°W	20110411	ND	1.4 ± 0.2
NYK11-057	0	31.32°N	140.20°W	20110411	ND	1.9 ± 0.2
NYK11-101	0	34.97°N	146.43°W	20110411	ND	2 ± 0.2
NYK11-127	0	35.36°N	147.57°E	20110411	2.2 ± 0.5	3.3 ± 0.4
NYK11-102	0	33.92°N	141.12°W	20110412	ND	2 ± 0.2
NYK11-103	0	32.50°N	135.86°W	20110412	ND	1.8 ± 0.2
NYK11-129	0	39.01°N	152.70°E	20110412	1.9 ± 0.4	3.6 ± 0.3
NYK11-058	0	28.94°N	130.73°W	20110413	ND	1.6 ± 0.2

Fukushima Fukushima+ bomb

<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの放出比は  
福島事故では 0.99 ± 0.02  
(Buesseller et al., 2011)

<sup>134</sup>Cs半減期 2.1年

<sup>137</sup>Cs半減期 30年



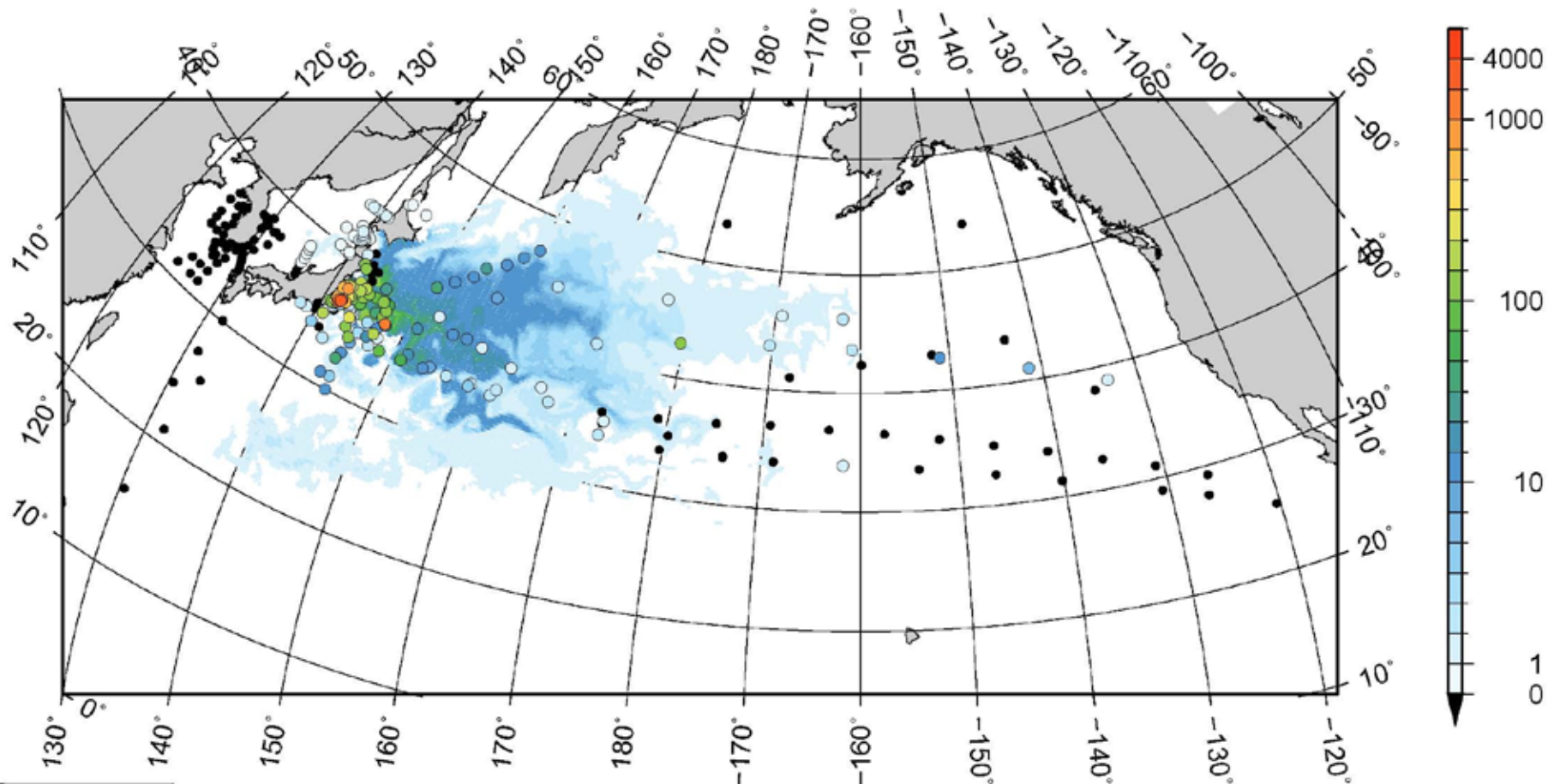
134Cs in surface water in April-June 2011

unit: Bq m<sup>-3</sup>

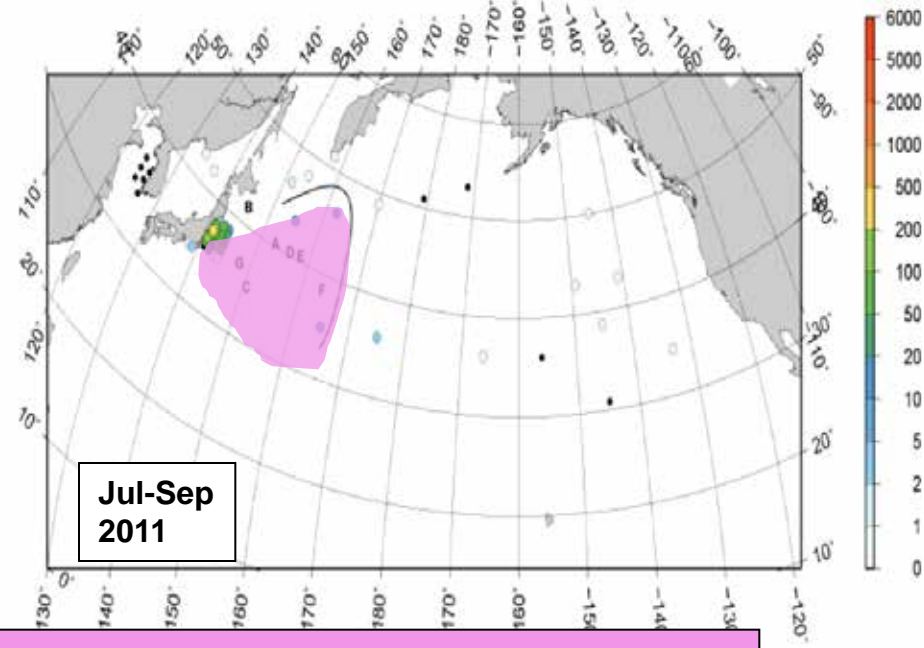
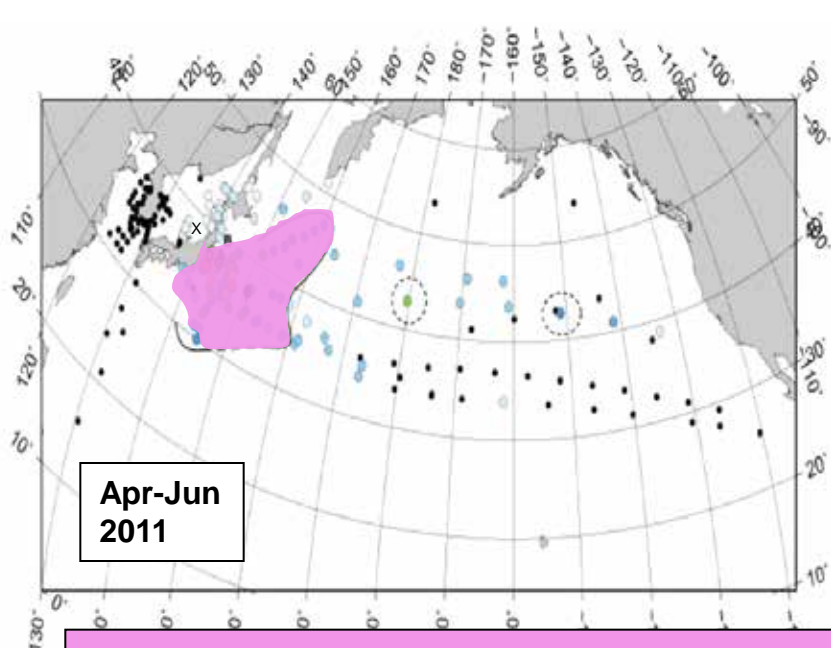
Data sources: Aoyama et al., Honda et al., CKKim et al., Inoue et al., MEXT, Tansei

Solid circle with color: observed data

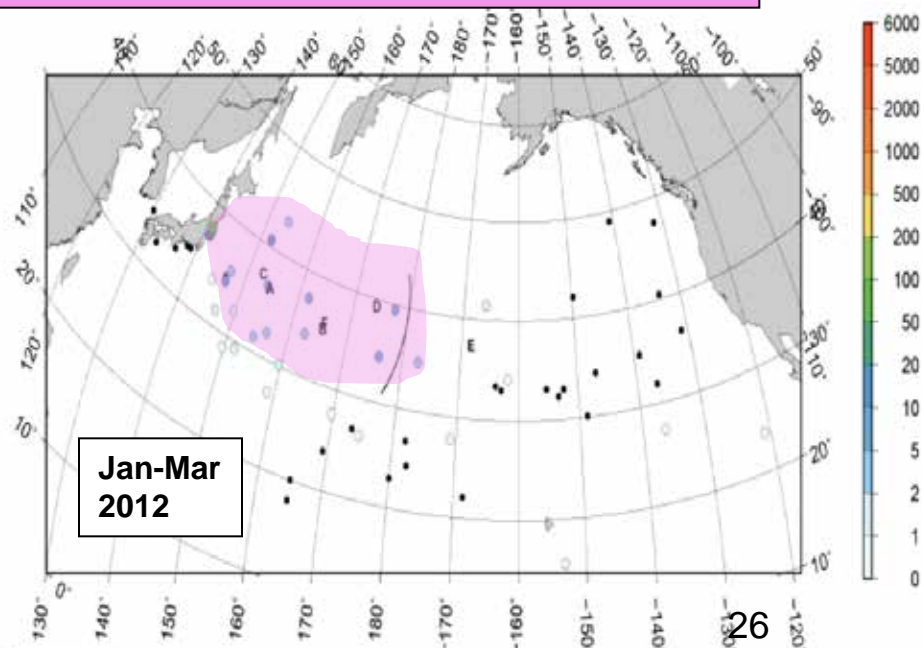
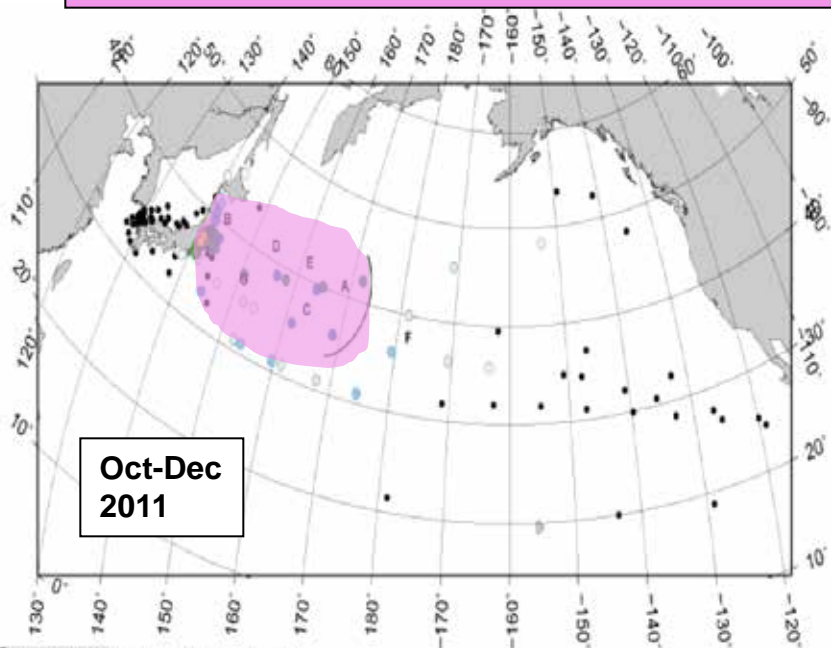
Pattern: Atmospheric model with ocean model simulation



Solid black circle: below detection (ca. 0.2-0.4 Bq m<sup>-3</sup>)



**Surface speed of contaminated water ca. 7 km day<sup>-1</sup>**



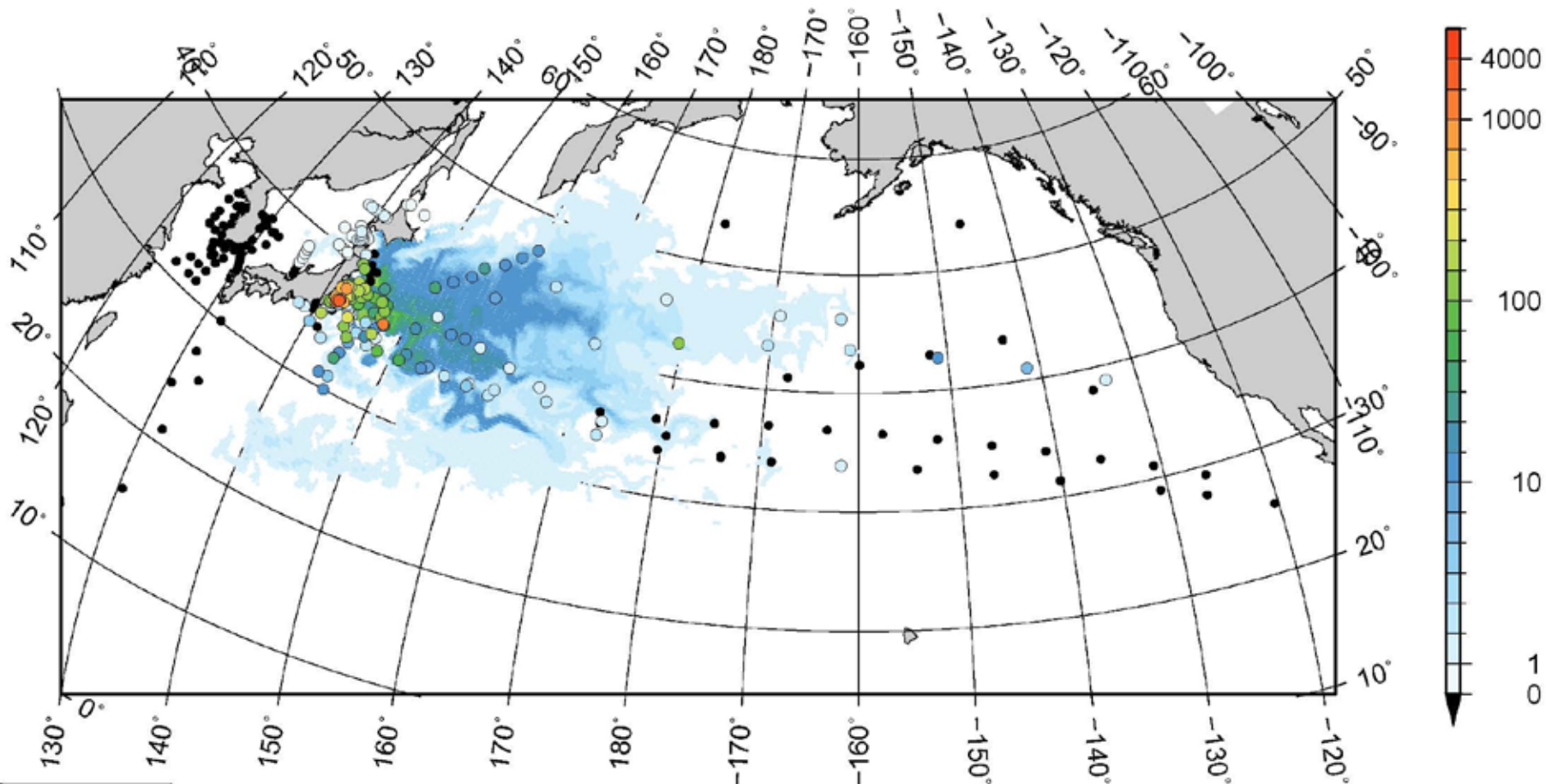
134Cs in surface water in April-June 2011

unit: Bq m<sup>-3</sup>

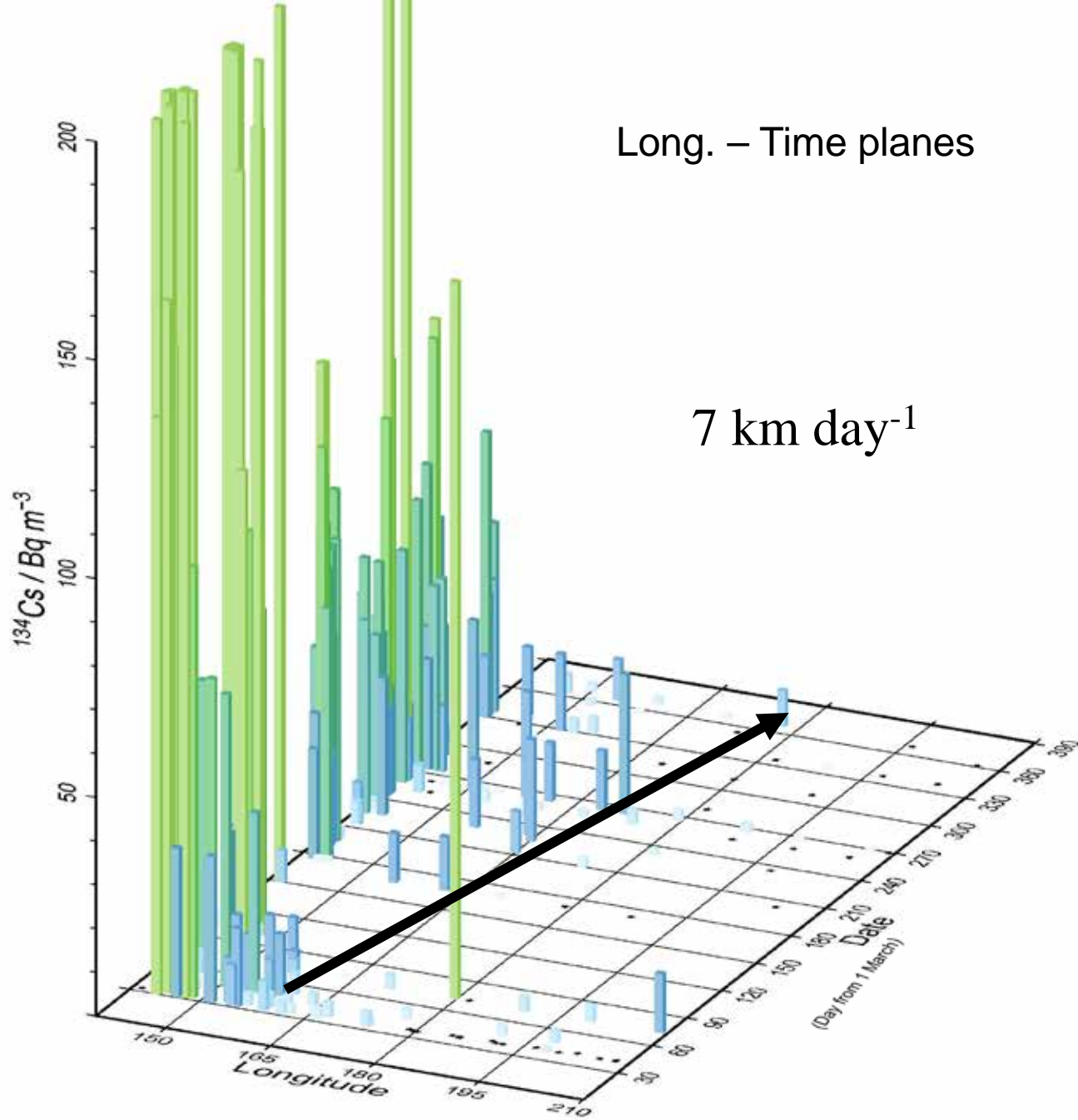
Data sources: Aoyama et al., Honda et al., CKKim et al., Inoue et al., MEXT, Tansei

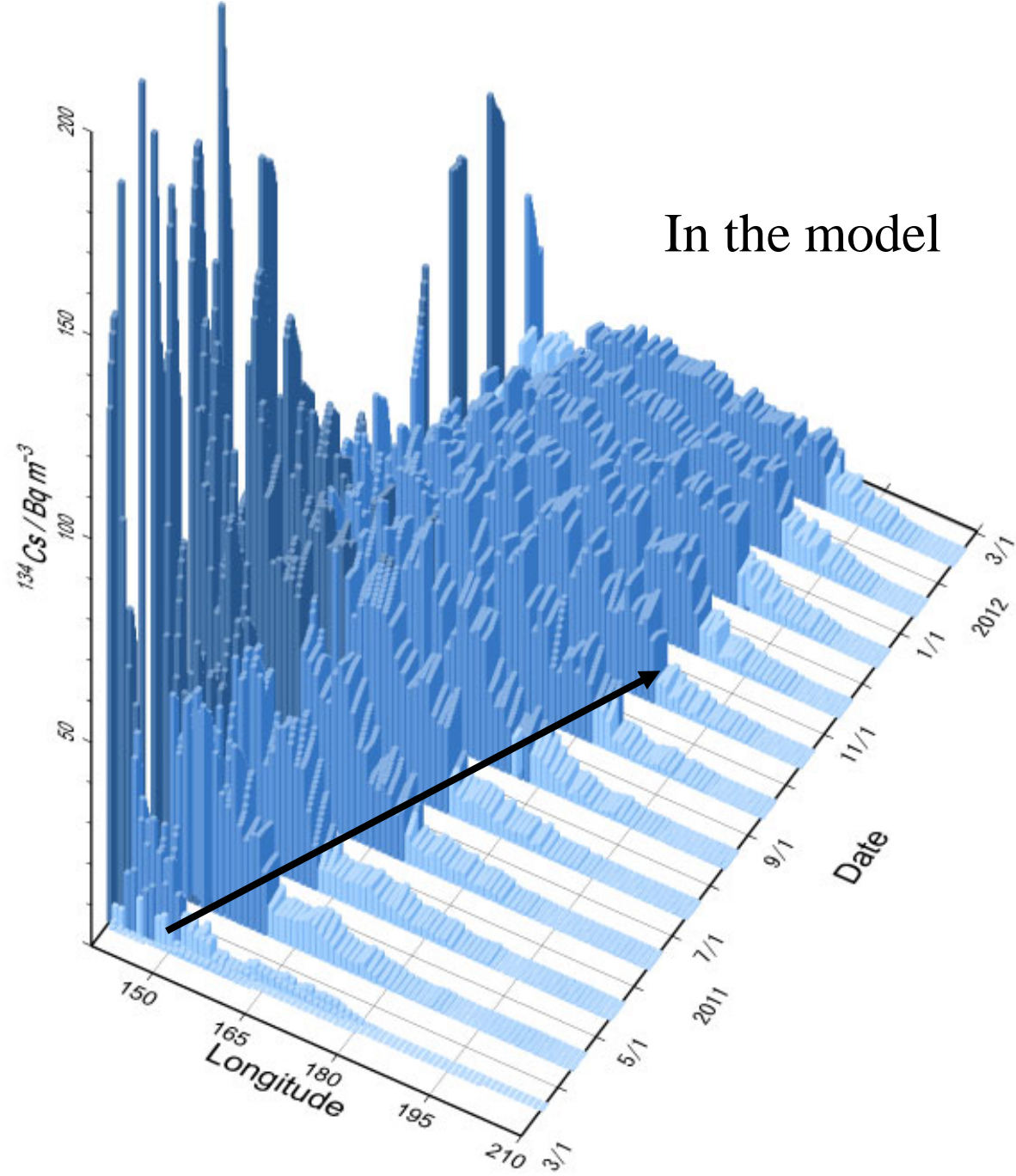
Solid circle with color: observed data

Pattern: Atmospheric model with ocean model simulation



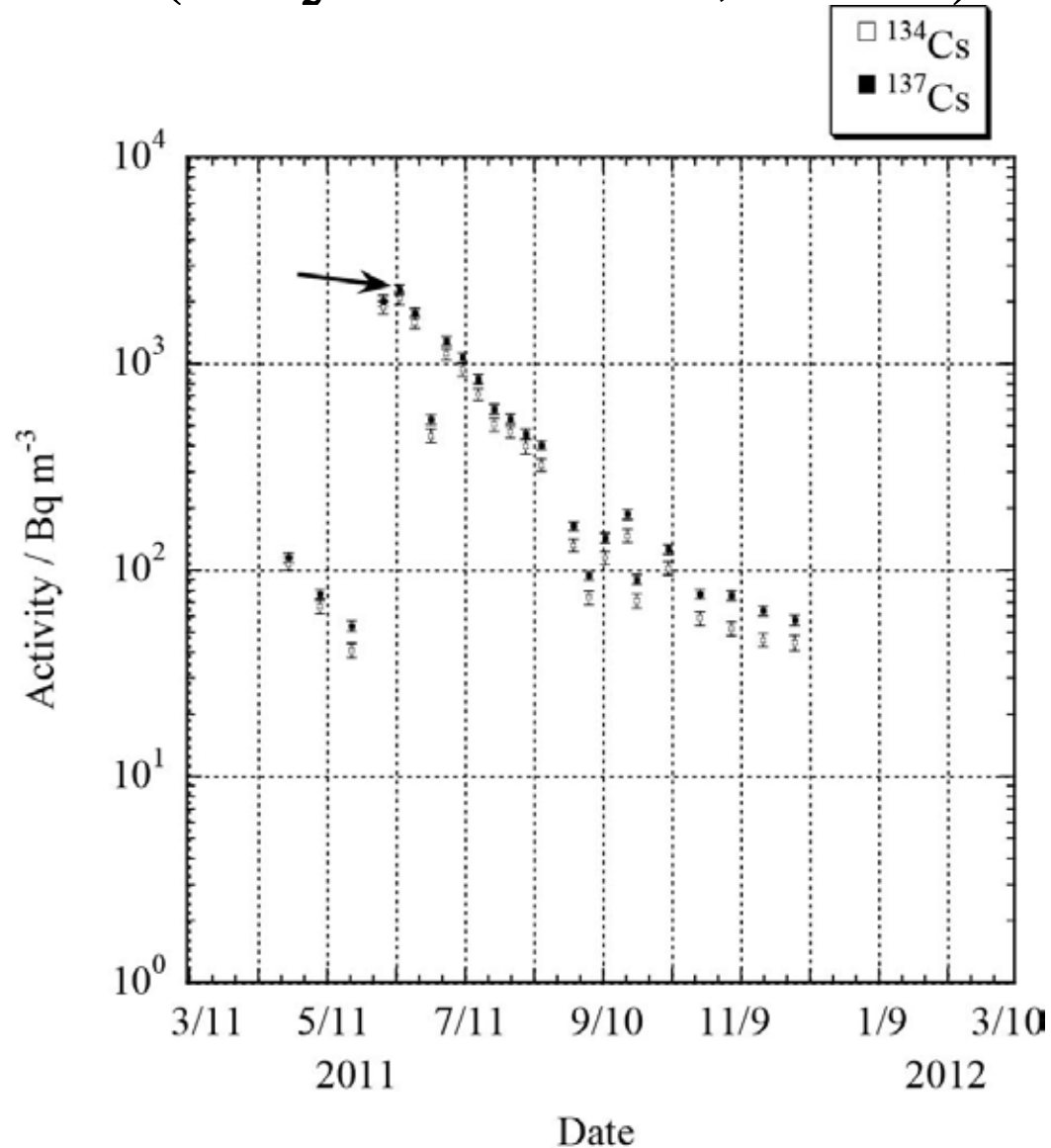
Solid black circle: below detection (ca. 0.2-0.4 Bq m<sup>-3</sup>)



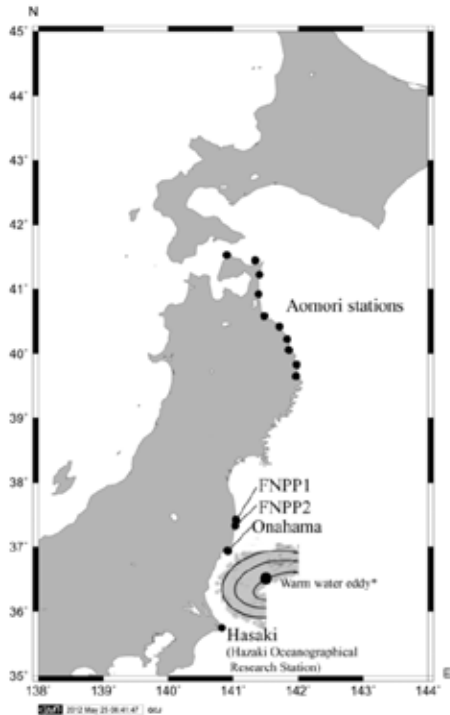


In the model

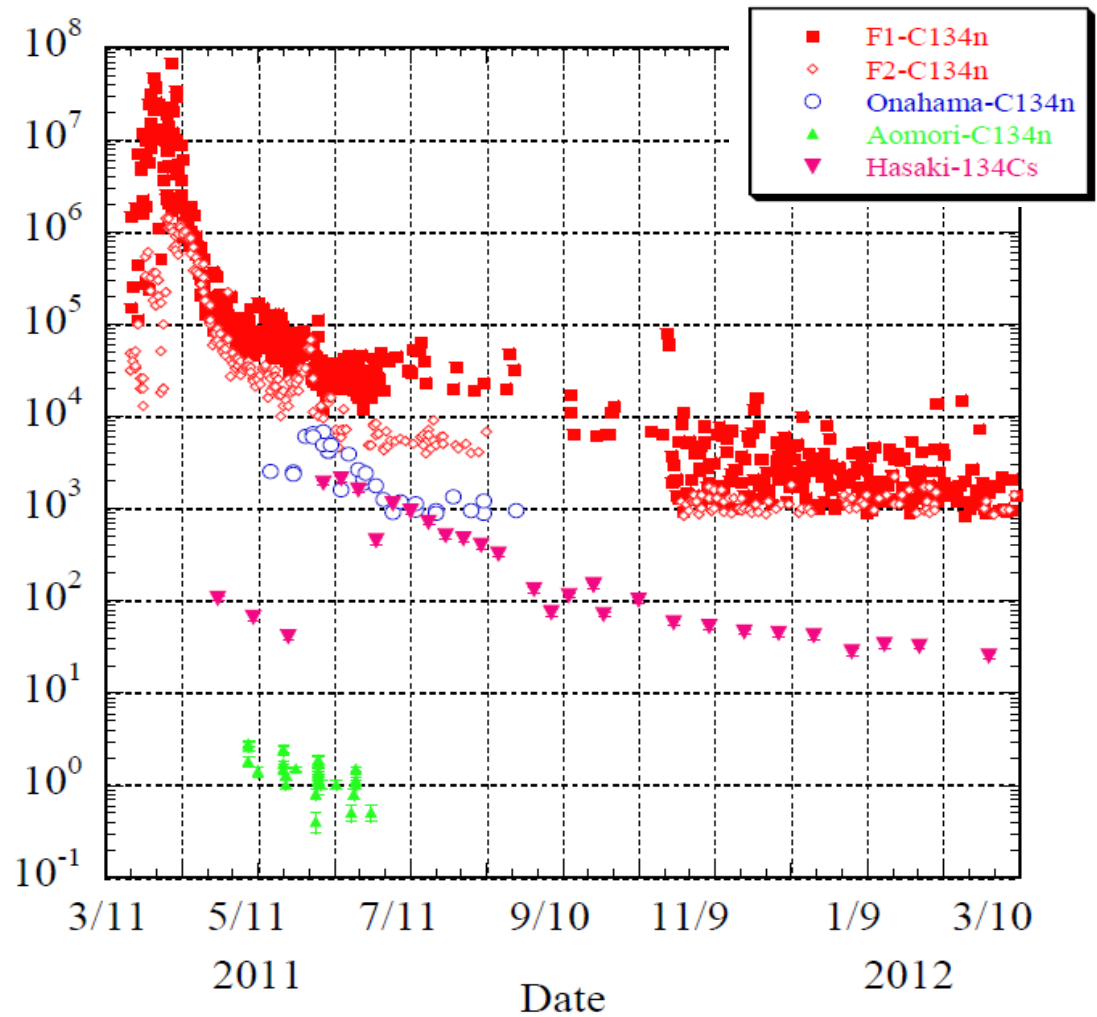
# Radiocaesium at Hasaki until the end of 2011 (Aoyama et al., 2012)



# $^{137}\text{Cs}$ concentration at Hasaki



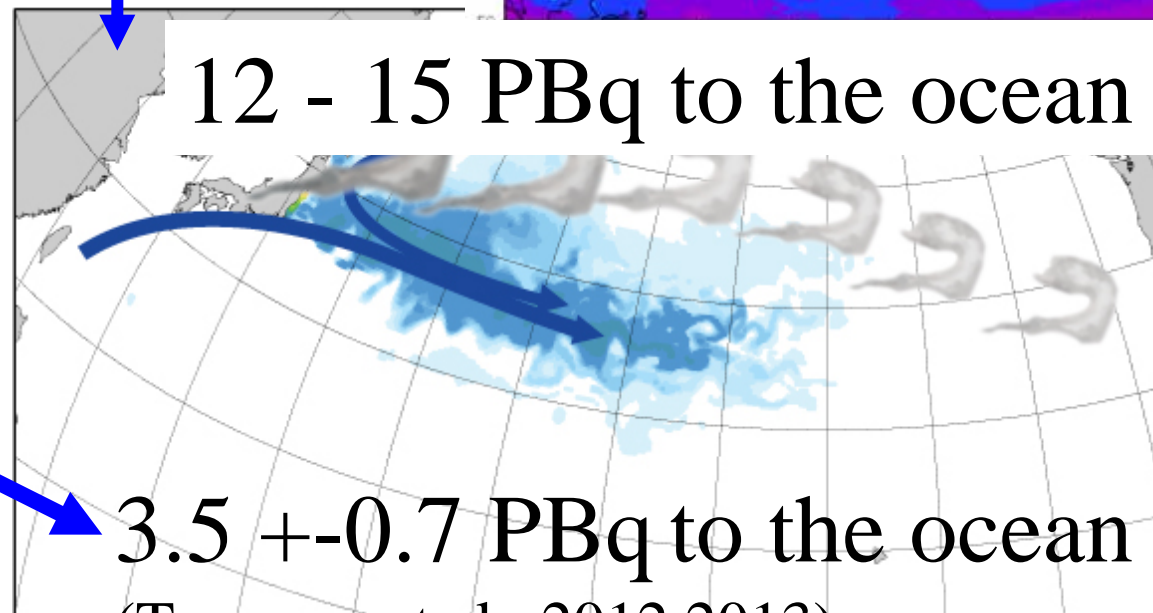
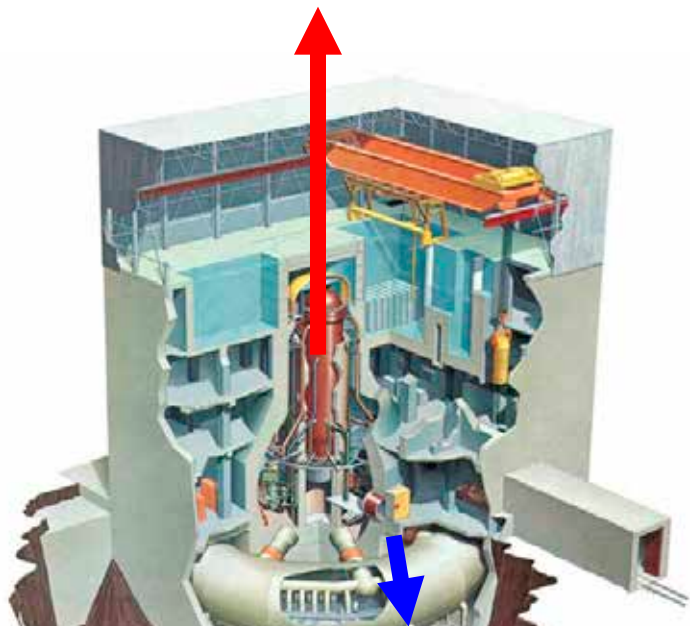
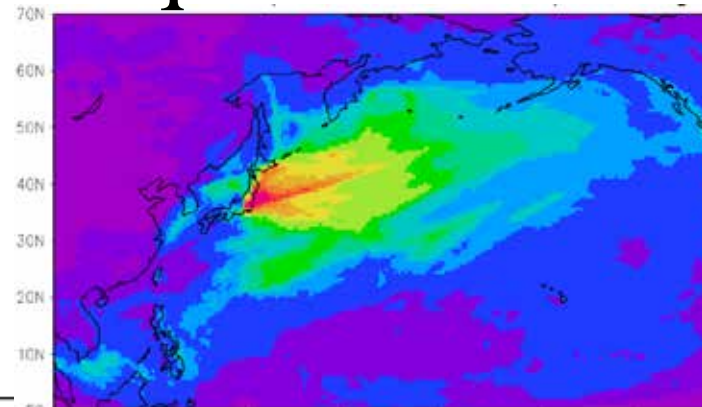
$^{134}\text{Cs}$  activity /  $\text{Bq m}^{-3}$



# $^{137}\text{Cs}$ mass balance

2-3 PBq on land

14-17 PBq to the atmosphere



12 - 15 PBq to the ocean

3.5  $\pm$  0.7 PBq to the ocean

(Tsumune et al., 2012,2013)

140 PBq in stagnant water

Boiling Water Reactor Systems "Nuclear Reactor Concepts" Workshop Manual, U.S. NRC

700 PBq in the three core

(Nishihara et al., 2011)

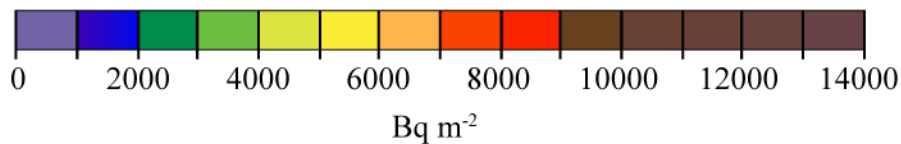
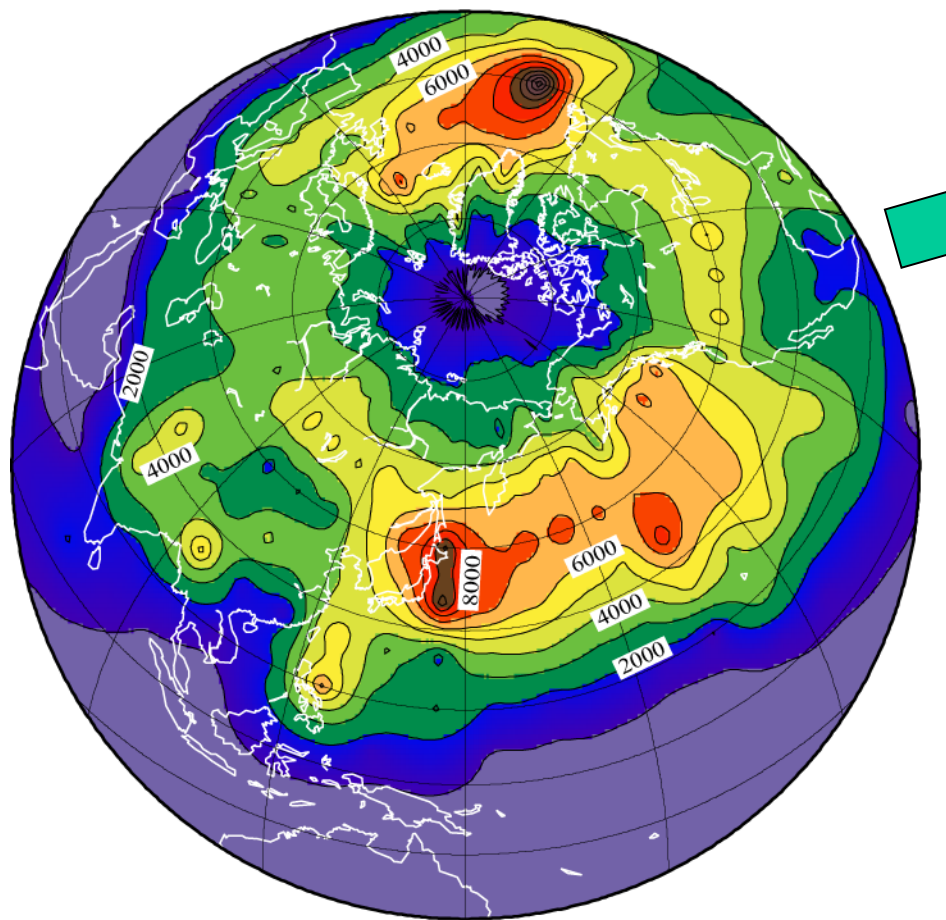
140 PBq in stagnant water

(Nishihara et al., 2011)



# 地球上に降った $^{137}\text{Cs}$ のマップ

Decay corrected accumulative fallout as of 1970



北半球への総降下量  
765 ± 79 PBq 1970年時点

それに加えて...

チェルノブイリ事故 1986年  
85 PBq

福島事故 2011年  
大気経由 15-20 PBq  
海洋への直接漏洩  
3.5 ± 0.7 PBq

# まとめ

- 2リットル試料で北太平洋全域での試料採取をおこなった。測定は極微量放射能測定として行った。
- 福島事故により海洋環境に放出された人工放射性核種の北太平洋における分布と総量を明らかにした。総量は直接漏洩もあわせて15.5 - 18.5 PBq。
- 輸送の様相をモデルも合わせて解析し、移動速度や、内部への輸送の様相も明らかにした。
- 海洋表層では、太平洋の横断に約3年半かかってアメリカ大陸西岸近くに到達した。大気経由では1か月未満で到達。
- 環境中の $^{90}\text{Sr}$ や $^{137}\text{Cs}$ は長半減期であるがゆえに放射線防護の観点から、監視されなければならない核種である。長期途切れることのない観測は、影響評価の基礎となる。