Study on dynamics of radionuclides in marine environment by gamma-ray spectrometry

出版者: 公開日: 2020-01-09 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス:	メタデータ	言語: jpn
公開日: 2020-01-09 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス:		出版者:
キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス:		公開日: 2020-01-09
キーワード (En): 作成者: メールアドレス:		キーワード (Ja):
作成者: メールアドレス:		キーワード (En):
メールアドレス:		作成者:
		メールアドレス:
所属:		所属:
URL http://hdl.handle.net/2297/00056518	URL	http://hdl.handle.net/2297/00056518

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



博士論文

γ線測定手法による海洋環境における放射性核種動態研究

Study on dynamics of radionuclides in marine environment by gamma-ray spectrometry

金沢大学大学院自然科学研究科

氏 名 小藤 久毅

提出年月 2019年6月

目 次

第1章 緒言
1.1 研究の背景
1.2 本研究の目的
1.3 本論文の構成
第1章の参考文献
第2章 海水中の放射性核種の in situγ線測定の基礎的検討および福島第一原発事
故事例を用いたデータ解析手法の検討
2.1 はじめに
2.2 データ取得手法
(1) 観測システム
(2) 水中放射線センサ ······· 7
(3) データ処理方法
2.3 通常時における放射線レベルの変動要因およびその特徴
(1) 降水による影響
(2) 塩分変化
(3) 宇宙線
(4) 生物付着
2.4 人工放射性核種の濃度変動把握のためのデータ解析手法の検討
2.5 まとめ
第2章の参考文献

第3章 天然放射性核種をトレーサとした海表面付近における鉛直混合解析

3.1 はじめに	$\cdot 29$
3.2 データ取得手法	·29
3.3 結果および考察	·29
(1) 気象・海象と海水中の ²¹⁴ Pb、 ²¹⁴ Bi 濃度変化	·29
(2) 見かけの鉛直拡散係数推定	·33
3.4 まとめ	$\cdot 35$
第3章の参考文献	·36

第4章	海底に	おける	人工放射	性核種	濃度水平	立分布調	査におけ	ナる効率	率的手 着	去の検	討
4.1 は	じめに									•••••	37

4.2 データ取得手法
(1) 試験システム
(2) 海上試験
(3) 計数効率
4.3 結果および考察
(1) 堆積物中の鉛直分布および堆積物との距離の影響41
(2) 検出限界
(3) 効率的なデータ解析手法46
4.4 まとめ
第4章の参考文献

第5章 下北半島・三陸沿岸における福島第一原発事故由来 ¹³⁴ Cs、 ¹³⁷ Cs 濃度変化
5.1 はじめに
5.2 試料および方法 ·······49
(1) 海水試料
(2) 分析法
5.3 結果および考察
(1) 沿岸表層海水における ¹³⁴ Cs、 ¹³⁷ Cs 濃度変動
(2) ¹³⁴ Cs、 ¹³⁷ Cs の鉛直分布形成過程
5.4 まとめ
第5章の参考文献
第6章 まとめ
謝辞

第1章 緒言

1.1 研究の背景

2011年3月11日の東日本大震災によって発生した東京電力株式会社の福島第一原子力発電所事 故により、¹³¹I(半減期:8.02d)および¹³⁴Cs(半減期:2.06y)、¹³⁷Cs(半減期:30.17y)を主な ものとした大量の放射性核種が環境中に放出された(Hirose, 2012 など)。海洋においても、事故後 の早い段階から北西太平洋の広範囲において海水中の¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の上昇がみられている

(Honda et al, 2012)。事故による海洋への放射性核種の供給経路としては、大気中へと放出された後、大気の流れによって輸送され降水等によって海表面に沈着する経路、汚染水の漏洩により海洋へ直接放出された経路があり(Tsumune et al., 2012)、¹³⁷Csの場合、その量はそれぞれの経路で10-50 PBq および4-40 PBq と推定されている(Buesseler, 2014)。また、長期的には陸域から河川を通じて海洋に移行する経路も存在し(長尾, 2015)、沿岸においては堆積物中にその影響が認められる海域も存在する(独立行政法人海上技術安全研究所, 2015)。原子力事故においてはこのように様々な経路により海洋へと放射性物質がもたらされるため、それによる放射性核種の挙動は複雑なものとなる。

我が国には多くの原子力施設が存在する。特に青森県六ヶ所村には日本原燃株式会社の核燃料再 処理工場が所在し、その運転に伴い海洋を含めた環境中に放射性核種が放出される。海洋における 複雑な放射性核種の挙動について明らかにすることは、福島第一原子力発電所事故の影響の評価だ けでなく、このような原子力施設の操業による海洋環境への影響を評価する上でも重要なものであ る。

海洋での放射性核種の挙動解明には多くの観測データが必要であり、特に沿岸海域においては、 潮流や河川からの流入、海底の状況など局所的な現象の影響による変化が大きいため、時間的、空 間的に分解能の高い観測が必要である。放射性核種についてそれを実現する方法としては、現場に おいて連続的なッ線データを取得する、in-situッ線スペクトロメトリーが挙げられる。定点に設置 したシステムでの連続観測では時間的に、船舶等でシステムを曳航しての観測では空間的に連続し たデータが得られる。

海水を対象とした in-situ y 線計測システムとしては、原子力発電所の放水ロモニター等の例があ るが、これらは放水路あるいは港湾内の監視のためのものであり、海洋での放射性核種の挙動に関 わるような大きなスケールでの変動を把握できるものではない。沖合に設置したブイに搭載した事 例としては、エーゲ海での観測例があり、降水により大気中の²²²Rnの娘核種(²¹⁴Pb、²¹⁴Bi)が海 表面に沈着しy線計数率が上昇することや、チェルノブイリ事故に由来する¹³⁷Cs が検出されたこ となどが報告されている(Tsabaris & Ballas, 2005; Tsabaris et al., 2008)。しかしながら、長期的 な観測の実施や取得データを解析していくために必要な、自然の変動についての解析や人工射性核 種の識別の手法についての検討が十分とは言えず、気象や海況に起因する変動の特徴も日本周辺と は異なる可能性がある。 海底を対象とした in-situ y 線計測システムとしては、海底鉱物資源の探査用に曳航式海底ガンマ 線測定システムが整備され、当初はトリウムの露頭やウランのリン酸塩堆積物を探索に使用された が、後にはアイリッシュ海の海底調査などの海底放射能汚染調査に使用されている (Jones, 2001)。 このような海底を曳航するタイプのシステムは、福島第一原子力発電所周辺海域の調査にも適用さ れている (Thornton et al., 2013)。但し、主な目的は海底における放射性核種の分布の傾向の把握 であったため、計測精度に関する検討は十分とは言えない。

1.2 本研究の目的

時間的または空間的に連続したデータが取得可能な in-situ y 線スペクトロメトリーを用い、海洋 環境において放射性核種の挙動に関するデータの取得を確実かつ高い信頼性で実施できるよう、実 際の海洋環境で取得したデータを元にデータ取得手法およびデータ解析手法について検討し、適切 な手法を構築することを目的とする。また、in-situ y 線スペクトロメトリーで検知される y 線放出 核種濃度の変動が、海洋における y 線放出核種の動態の全体像とどのように対応するかの把握のた め、複数の海流の影響を受ける下北半島から三陸海岸の沿岸・沖合の海域(図 1-1 および図 1-2) に おける福島第一原子力発電所事故に由来する ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の濃度変化とその要因について明らかに する。



1.3 本論文の構成

第2章では連続的なデータ取得が可能な放射線センサを搭載した海洋観測ブイで、解析に足る精度・信頼性のデータを取得するための基礎として、海洋環境での自然変動によるγ線計測テータの変化の特徴について整理するとともに、2011年の福島第一原子力発電所事故の後のデータを元に、 海水中の人工放射性核種濃度変動の弁別手法について検討する。

第3章では海洋観測ブイで得られる連続的なγ線データの、海洋における物質の挙動解明への応 用として、天然放射性核種をトレーサとして用いた海洋表層付近における混合・拡散現象の解析へ の適用を試みる。

第4章では、海底の放射性核種の分布を把握するための手法として in-situ γ 線測定について、実際に海底で取得されるデータを元に効率的な観測・データ解析手法についてとりまとめる。

第5章では、福島第一原子力発電所事故後の下北半島および三陸沿岸における¹³⁴Cs、¹³⁷Csの変動について、海水試料の分析結果に第1章のデータで得られた知見も併せ解析する。

【第1章の参考文献】

Buesseler, K. O., 2014. Fukushima and Ocean Radioactivity, Oceanography, 27(1), 92-105.

Hirose, K., 2012. 2011 Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: summary of regional radioactive deposition monitoring results. J. Environ. Radioactivity, 111, 13-17.

- Honda, M., Aono, T., Aoyama, M., Hamajima, Y., Kawakami, H., Kitamura, M., Masumoto, Y., Miyazawa, Y., Takigawa., M. and Saino, T., 2012. Dispersion of artificial caesium-134 and -137 in the western North Pacific one month after the Fukushima accident. *Geochem. J.* 46, e1-e9.
- Jones, D. G., 2001. Development and application of marine gamma-ray measurements: a review, *J. Environ. Radioactivity*, **53**, 313-333.
- Rosa, A. L., Isoda, Y., Uehara, K., Aiki, T., 2007. Seasonal variations of water system distribution and flow patterns in the Southern sea area of Hokkaido, *J. Oceanogr.* **63**, 573-588.
- Thornton, B., Ohnishi, S., Ura, T., Odano, N. and Fujita, T., 2013. Continuous measurement of radionuclide distribution off Fukushima using a towed sea-bed gamma ray spectrometer, *Deep-Sea Res. I*, **79**, 10-19.
- Tsabaris, C., Ballas, D., 2005. On line gamma-ray spectrometry at open sea. Appl. Radiat. Isot. 62, 83-89.
- Tsabaris, C., Bagatelas, C., Dakladas, T., Papadopoulos, C. T., Vlastou, R. and Chronis, G. T., 2008. An autonomous in situ detection system for radioactivity measurements in the marine

environment. Appl. Radiat. Isot. 66, 1419-1426.

- Tsumune, D., Tsubono, T., Aoyama, M, Hirose, K., 2012. Distribution of oceanic ¹³⁷Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. *J. Environ. Radioactivity*, **111**, 100-108.
- 独立行政法人海上技術安全研究所,2015. 平成 26 年度放射性物質測定調査委託費(海域における放射性物質の分布状況の把握等に関する調査研究) 事業 成果報告書, https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/11000/10925/view.html.
- 長尾誠也, 2015. 福島第一原子力発電所事故後の河川水系における放射性セシウムの移行特性, 地 *球化学*, 49, 217-226.

第2章 海洋表層における in-situ γ 線測定のための基礎的検討および 福島第一原発事故事例を事例としたデータ解析

2.1 はじめに

海洋における環境放射線観測において、海上にγ線検出器を設置して計測する手法は、連 続的にデータが取得できるとともに、検出器の感度が許すならば、短い時間での変化も把握 できるというメリットがある。このようなシステムを用いた環境計測において、自然による 変動の特徴とその影響の程度について把握しておくことは、計測の精度を高めるとともに、 通常とは異なる変動の検知やその現象を解析する上で重要である。沖合に設置したブイに y線検出器を搭載した事例としては、エーゲ海での観測例があり、降水による 222Rn 娘核種 (²¹⁴Pb、²¹⁴Bi) 濃度の上昇や、チェルノブイリ事故に由来する ¹³⁷Cs の検出などが報告さ れている(Tsabaris & Ballas, 2005; Tsabaris et al., 2008)。一方で、長期的な観測の実施 や取得データの解析に必要な、自然の変動についての解析や人工射性核種の識別の手法に ついての検討が十分ではないことに加え、気象や海況に起因する変動の特徴も日本周辺と は異なる可能性がある。我が国における海洋での連続的な環境放射線観測の基礎とするた め、青森県六ヶ所村沖合に設置した海洋観測ブイにおける水中y線計測データを元にして、 自然の要因による変動の特徴とその範囲について解析するとともに、2011 年夏季に六ヶ所 村沖合で採水試料の分析により確認された、東京電力福島第一原子力発電所事故の影響に よる¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の変化(Kofuji & Inoue, 2013)をテストケースとして、海洋表層に おける y 線連続観測データからの人工放射性核種の寄与を高感度に弁別する手法について 検討する。

2.2 データ取得方法

(1) 観測システム

水中γ線データは、青森県六ヶ所村沖に設置した海洋観測ブイ(以下、係留式ブイと称す) によって取得した(図 2-1、2-2)。この係留式ブイは、(公財)日本海洋科学振興財団が青森 県から受託して実施する「六ヶ所村沖合海洋放射能等調査」事業において設置・運用してい るものであり、日本原燃株式会社の核燃料再処理工場の海洋放出口周辺において、水温・塩 分、流向流速、風向風速、水中γ線の連続的な観測を行っている(Shima, 2016)。係留式ブ イは海洋放出口(岸から約2km、水深約44m地点)から約700mの距離に位置しており、 2003年、2005年、2007年にそれぞれBuoy-A、Buoy-B、Buoy-Cを設置し、以後2012年 8月まではBuoy-A, B, C の3基、それ以後はBuoy-A, B の2基で観測を実施している(表 2-1)。係留式ブイの外観を図2-2に示す。水中放射線センサ(NaI(TI)検出器)は各ブイの 水深4mあるいは2.2m位置に設置されており(表2-1)、γ線スペクトルを5分毎に取得 している。係留式ブイの観測データは無線を通じて陸上のサーバーに送信されており、リア ルタイムでの状況確認が可能である。



図 2-1 海洋観測ブイ(係留式ブイ)設置位置(Buoy-A, B, C)および海岸付近の降水量観 測位置



図 2-2 係留式ブイ概観 (Buoy-A)

期間	Buoy-A	Buoy-B	Buoy-C
2007年10月~2012年8月	4 m	4 m	4 m
2012年9月~2014年9月	2.2 m	4 m	*
2014年9月~2016年9月	2.2 m	4 m	
2016年10月~	2.2 m	2.2 m	

表 2-1 各ブイの水中放射線センサ設置深度

※2012 年 8 月に Buoy-C 撤去

(2) 水中放射線センサ

係留式ブイに搭載の水中放射線センサの諸元を表 2・2 に示す。センサは、3 インチ φ 球形 NaI(TI)シンチレータ および 512 ch の MCA (マルチチャンネルアナライザ)等が樹脂製 耐圧容器に収められた構造となっている。このセンサは、計測時における宇宙線強度の指標 とするため、MCA のエネルギー範囲(概ね 0-3.5 MeV)を超えたパルスを 512 ch にカウ ントする機能を持つ。このセンサにおける、水中に均一に分布する放射性核種からの直接 γ 線に対する光電ピークの計数効率は、⁸⁵S (514 keV)、¹³⁷Cs (662 keV)、⁶⁰Co (1173, 1332 keV)および ⁴⁰K (1461 keV)を添加した水槽(容量 1.1 m³)での計測によって求めた(小 藤ら, 2005)。さらに、センサ構成材料に含まれる天然放射性核種(U、Th 系列核種および ⁴⁰K など)によるバックグラウンドを地下測定室における鉛遮蔽内での計測により求めた (小藤ら, 2005)。

ガンマ線検出部分	3インチ φ 球形 NaI(Tl)シンチレータ
MCA 分解能	512 ch (0-約 3.5 MeV)
	※MCAの設定レンジを超える高エネルギーの
	パルスは 512 ch にカウントする。
耐圧容器	デルリン樹脂製(10 mm 厚), 耐圧 100 m
寸法・重量	168 φ×480 mm, 7.5 kg(空中), 1.0 kg(水中)
データ出力方式	RS-232C

表 2-2 係留式ブイ搭載水中放射線センサ諸元

(3) データ処理方法

γ線のエネルギーに対する検出器のゲインは、たとえ温度補償回路を持つ検出器であっても温度によって僅かに変動することに加え、長期の使用によるシフトも発生する。図 2-2 は係留式ブイでの長期のγ線スペクトルデータにおける ⁴⁰K (1461 keV) ピーク中心チャ ンネルの変化を水温とともに示したものである。40K ピーク中心チャンネルは水温変化によって 0.5-0.6 ch/C程度シフトしているほか、2 年半で徐々に低チャンネル側にシフトしている。このような状況下で長期的に安定した計測データを得るため、海水中に普遍的に存在する 40K ピークでの 1 点校正によりチャンネルからエネルギーへの換算を計測毎に行っている。なお、積分時間 5 分の 1 計測データでは 40K ピーク中心を正確に求めるにはカウントが不十分であるため、チャンネルからエネルギーへの換算係数は、図 2-4 のように対象時刻データを中心とした積算スペクトルを用いて算出している。図 2-5 に係留式ブイにおいて水温が急変した場合の 40K ピーク中心チャンネルを示す。2 月 16 日 0-18 時の水温が安定した状態 (7.9-8.1°C)では、γ線データの積分時間が長いほど 40K ピーク中心は安定している。一方、18:40 にみられた約 4°Cの水温急変時には、積分時間 5-6 時間の場合で応答にやや遅れがある。このような係留式ブイにおける観測事例から、40K ピーク中心チャンネルのサーチでは積分時間を4 時間としている。



図 2-3 長期海洋観測における水中放射線センサの 40K ピーク中心チャンネルと水温の変化 (Buoy-B)



図 2-4 水中放射線センサデータのエネルギー変換処理



2.3 通常時における放射線レベルの変動要因およびその特徴

原子力施設等の影響以外の自然変動としては、降水による影響、塩分変化による影響、宇 宙線の変化による影響、および、生物付着による影響が確認されている。これらの変動要因 ごとにその状況について記す。なお、計測データは、水中の放射性核種濃度(Bq/L)に換算 したもの以外は、エネルギー領域毎の計数率(cps:counts per second)で表す。 (1) 降水による影響

係留式ブイ水中放射線センサの 0.1-3.0 MeV 計数率の変化を降水量とともに図 2-6 に示 す。0.1-3.0 MeV 領域計数率は降水に応答して上昇する。降水有りの場合、降水無しの場 合の積算スペクトルと、それらの差分スペクトルを図 2-7 に示す。差分スペクトルには ²¹⁴Pb および ²¹⁴Bi のピークがみられ、地上に設置されたモニタリングステーションでの状況と同 様に、海洋においても、降水時に大気から海表面に ²²²Rn 娘核種の ²¹⁴Pb、²¹⁴Bi がもたらさ れることにより、計数率が上昇することが確認される。



図 2-7 降水時および非降水時の水中放射線センサのy線スペクトルおよびその差

我が国において海中で降水由来の²¹⁴Pb、²¹⁴Bi を測定した例としては、福井県丹生湾での 報告がある(小村ら,1980)。そこでは、降水由来のU及びTh系列核種の寄与は、水深1.5 mでは表面(0.2 m)の約1/20と、深度とともに指数関数的に減少しており、これら核種 が海水のごく浅い部分に混合されないまま分布していることが報告されている。これに対 し、六ケ所村沖では水深4mでも降水の影響を受けており、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi が壊変消滅するよ りも短い時間スケールで4m以深まで混合されていると考えられる。なお、係留式ブイで の観測では、個々の降水イベントに対する降水量と計数率上昇幅があまり良く対応してい ない。これは、地上での観測においては計数率の上昇幅に関係するファクターとして、降水 中²¹⁴Pb、²¹⁴Bi 濃度、降雨強度、降雨の継続時間が挙げられるが、係留式ブイでの観測では それらに加えて海表面での混合・希釈の影響があり、その影響が気象・海象によって異なる ためと推測される。

図 2-5 の差分スペクトルにおける 352 keV および 609 keV ピーク面積から、²¹⁴Bi/²¹⁴Pb 放射能比は約 1.4、また、0.1-3.0 MeV 領域の計数率 1cps の増加に対する ²¹⁴Pb および ²¹⁴Bi 濃度の増加はそれぞれ 0.3 Bq/L および 0.4 Bq/L と見積もられた。降水中の ²¹⁴Bi/²¹⁴Pb 放射能比は 0.5-1.5 (Rangarajan et al., 1985; 坂上ら, 2003 など) という値が報告されて いる。図 2-5 に示す降水時のγ線スペクトルは多数の降雨についての平均であるにも関わ らず、その ²¹⁴Bi/²¹⁴Pb 放射能比(約 1.4) は降水中の ²¹⁴Bi/²¹⁴Pb 放射能比の範囲の上限に 近い値となっている。これについては、²¹⁴Bi (半減期: 19.9 分) には海面への沈着後の ²¹⁴Pb (半減期: 26.8 分) からの成長を考慮すれば妥当な値と考えられる。

降水中の²¹⁴Pb および²¹⁴Bi 濃度が数百-数千 Bq/L であるのに対し(Nishikawa et al., 1985; 早川, 1993; 坂上ら, 2003 など)、係留ブイで観測された降水時の海中での²¹⁴Pb お よび²¹⁴Bi 濃度は数 Bq/L 以下であり、降水は、水中放射線センサが位置する 4 m 深に到達 するまでに数千倍以上に希釈されていることを示している。

(2) 塩分変化

2.2(2)水中放射線センサに記した ⁴⁰K 添加水槽での計測によって求められた、水中に均一 に分散する ⁴⁰K に対する水中放射線センサの γ 線スペクトルを図 2-8 に示す。0.1-3.0 MeV 領域計数率と海水中の塩分に対応する K 濃度および ⁴⁰K の同位体存在比から、水中放射線 センサの 0.1-3.0 MeV 領域計数率の変化は、塩分 1 あたり 0.055 cps と計算される。図 2-9 に示すように、係留式ブイでの観測においても、塩分の変化幅に対応した 0.1-3.0 MeV 領域計数率の変化が確認されている。



図 2-8 水中に溶存する ⁴⁰K に対する水中放射線センサのγ線スペクトル ※水槽実験(小藤ら,2005)の結果を塩分 34 での ⁴⁰K 濃度(12.3 Bq/L)に換算



図 2-9 塩分(Buoy-A、1.5m 深、1 時間平均値)と水中放射線センサ(Buoy-A、2.2m 深) 0.1-3.0 MeV 領域計数率(1 時間平均値)の変化

(3) 宇宙線

地上での NaI(TI)検出器を用いた計測の場合、宇宙線(大気上層で生成する二次宇宙線) に起因するカウントは、高エネルギー領域だけでなく 3.0 MeV 以下を含めた広いエネルギ ー領域に及ぶ(長岡ら,1988)。係留式ブイと同じ3インチ (NaI(TI)検出器を搭載したシス テムを用いて海面下数 m から 110 m までの深度で計測を行った場合の、深度とエネルギー 領域ごとの計数率の関係を図 2-10 に示す(小藤ら,2005)。深度増加によって宇宙線の強度 の指標である 3.0 MeV 以上領域の計数率が指数関数的に減少するだけでなく、0.1-3.0 MeV 計数率も 40 m 程度までは減少し、それ以深ではほぼ一定の値となるという変化を示 す。これは、40 m 程度以浅での計測では、宇宙線の影響が無視できないことを示している。



図 2-10 3インチ φ NaI(TI)検出器を搭載したシステムを用いた海中の γ 線計測における深 度とエネルギー領域ごとの計数率(積分時間 1 分)の関係(小藤ほか, 2005)

地上における宇宙線レベルの変動要因としては、気圧変化、高層大気の温度効果、太陽活動の影響が挙げられる(小玉,1986)。図 2-11、2-12 および 2-13 は、それぞれ気圧変化、高層大気の温度変化および太陽活動の変化に対応した水中放射線センサの 3.0 MeV 以上領域の計数率の変化を示したものである。係留式ブイでも地上モニタリングステーションでの観測(藤波ら,2004)と同様に宇宙線に由来する計数率が変化することが確認できる。この変動は 0.1-3.0 MeV 領域にも影響するため、水中の放射性核種計測を高感度で行うためには、適切な宇宙線寄与の補正が必要である。図 2-14 は、図 2-13 に示した宇宙線寄与の低い期間(2003 年 10 月 26-27 日)と高い期間(2003 年 11 月 12-15 日)の差である。誤差は大きいものの、これを係留式ブイの 4m 深での宇宙線寄与スペクトルと考えることができる。図 2-14 のスペクトルは、Urabe ら(1981)および長岡ら(1988)などによる地上レベルでの宇宙線寄与スペクトルよりも 500 keV 以下の低エネルギー領域における計数率増加の傾きが大きなものとなっている。この原因としてはセンサ周辺の海水による散乱の影響が考えられる。



図 2-11 水中放射線センサ(Buoy-B) 3 MeV 以上領域計数率(1時間平均値)と海面気圧 (八戸:1時間毎)^{*}の変動

※気象庁ホームページ:http://www.data.jma.go.jp/risk/obsdl/index.php



図 2-12 水中放射線センサ(Buoy-B) 3 MeV 以上領域計数率(日平均値)と高層大気の気 温(秋田および札幌上空における 100 hPa 気圧面:1日毎)*の変動 ※気象庁ホームページ:http://www.data.jma.go.jp/risk/obsdl/index.php



※による宇宙線強度との比較

※Oulu(フィンランド)中性子宇宙線モニター:http://cosmicrays.oulu.fi/



 図 2-14 係留式ブイ水中放射線センサ(Buoy-A, 4m 深)での宇宙線寄与スペクトル
※図 2-13 に示した宇宙線寄与の低い期間(2003/10/26-10/27)と高い期間 (2003/11/12-11/15)のγ線スペクトルの差をとり、3.0 MeV 以上計数率 1 cps の場合に規格化した。なお、γ線スペクトルの積算において、降水の寄与がみられ る期間は除外した。

(4) 生物付着

係留式ブイ水中放射線センサ表面に付着した生物(海藻、甲殻類、貝類など)を回収して Ge半導体検出器で測定した結果では、U系列核種の²³⁴Th(半減期:24.1d)および^{234m}Pa (半減期:1.175 m)、Th系列核種の²¹²Pb(半減期:10.64 h)および²⁰⁸Tl(半減期:1.175 m)、7Be(半減期:53.3 d)、および⁴⁰K(半減期:1.28×10⁹ y)が検出された(図 2-15)。 水中放射線センサではセンサ表面への生物付着(海藻、甲殻類、貝類など)が増加した際に 計数率のベースラインの増加がみられる(図 2-16)。これは、海水中で安定に溶存する天然 放射性核種である U および Ra 同位体の子孫核種のうち、海水への溶解度の低い Th 同位体 および降水等により海面に供給される 7Be が、付着生物の表面に吸着する、あるいは生物 中に取り込まれる等によって水中放射線センサの表面付近に濃縮するためと考えられる。 生物付着の増加は、単純にベースラインの計数率を増大させるだけでなく、天然以外の放射 性核種についても吸着あるいは取り込みによりセンサ表面に濃縮することで、 y 線計測デ ータから海水中の放射性核種濃度を計算する際にジオメトリーに起因する過大評価を招く 可能性がある。y 線計測データに対する生物付着の影響については、付着箇所や時期による 生物種の違いがあるため補正は困難である。そのため、センサ表面に生物付着防止のための 処理を施すとともに、定期的な清掃を行い、生物付着が y 線計測に影響を及ぼさないよう保 つことが必要である。係留式ブイ搭載の水中放射線センサは、2010年以後は生物の幼生や 萌芽の付着防止のため、約 1 ヶ月毎に清掃と耐圧容器表面へのシリコングリースの塗布を 行っている。このような管理により、2010年以後は生物付着による計数率のベースライン 上昇はほぼみられなくなっている。



図 2-15 Ge 半導体検出器による回収した水中放射線センサ付着物のγ線スペクトル ※Ge 検出器のバックグラウンドは差し引き済み



図 2-16 センサ清掃前後での水中放射線センサ 0.1-3.0 MeV 領域の計数率の変化(積分 時間 5 分)

水中放射線センサの 3.0 MeV 以下の領域の計数率は、原子力施設等の人工的な影響の無い状態においては、概ね検出器自身に含まれる放射性物質(40K および U、Th 系列核種)の影響、海水中の 40K および宇宙線によるものをベースラインとして、降水等による大気から海面への短寿命天然放射性核種(主として 214Pb および 214Bi)の供給による一時的な上昇を示す。なお、変動幅は小さいが、塩分や宇宙線レベルの変化などによる影響も存在する。 水中放射線センサの 0.1-3.0 MeV 領域計数率の変動を要因ごとに表 2-3 にまとめる。

表 2-3 係留式ブイの水中放射線センサにおける 0.1-3.0 MeV 領域計数率の変動要因およ び変動幅

現象	計数率の変化		要因	計数率への影響割合
降水	降水時に計数	天然	大気から海表面への 222Rn 娘核	²¹⁴ Bi 1 Bq/L (²¹⁴ Pb=0.7 Bq/L) あた
	率増加		種(²¹⁴ Pb、 ²¹⁴ Bi)の供給	$\emptyset 2.2 \mathrm{cps}^{st 1}$
				(0.1-0.9 MeV 領域:2.0 cps,
				0.9-3.0 MeV 領域:0.2 cps)
生物付着※	付着増加によ		²³⁴ Th、 ²²⁸ Th およびその娘核種	付着状況により異なる(過去の最
	り計数率増加		(^{234m} Pa、 ²¹² Pb、 ²⁰⁸ Tl)、 ⁷ Be 等	大上昇幅は 0.6cps) ^{※2}
			の付着	
塩分変化	塩分に比例し		40K濃度変化	塩分1あたり0.055cps変化 ^{※3}
	て計数率増減			(0.1-0.9 MeV 領域:0.045 cps,
				0.9-3.0 MeV 領域:0.009 6cps)
宇宙線	宇宙線のレベ		気圧、太陽活動、高層大気温度	3.0 MeV 以上領域計数率 1.0 cps あ
	ルに比例して			たり 1.0 cps 変化 ^{※4}
	計数率増減			(0.1-0.9 MeV 領域:0.99 cps,
				0.9-3.0 MeV 領域:0.014 cps)
その他γ線放出	濃度に比例し	人工	原子力施設事故による漏洩等	¹³⁷ Cs 1 Bq/L あたり 1.2 cps ^{※3}
核種濃度の増加	て計数率増加			

※1:図2-7より。

※2:2010年以後は影響をほぼ無視できる状況に保たれている。

※3:40Kを添加した水槽での試験(小藤ら,2005)による。

※4:図2-14より。

2.4 人工放射性核種の濃度変動把握のためのデータ解析手法の検討

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災により発生した東京電力株式会社福島第一原子力発電 所事故によって多くの人工放射性核種が環境中に放出され、海洋においても広範囲でその 影響が検出された(Aoyama et al., 2013 など)。青森県太平洋沿岸においては、2011 年 5 -6月に事故の影響による数 mBq/L の¹³⁴Cs、¹³⁷Cs が海水で検出され(Inoue et al., 2012)、 7-8月には最大で数十 mBq/L にまで上昇した(Kofuji & Inoue, 2013)。なお、この濃度 は 7-8月の福島第一原発付近の海水中濃度よりも 2-3桁、茨城県沿岸の濃度と比較して も約1桁低いものである(Aoyama et al., 2012)。このときの係留式ブイのデータを元に、 水中 γ 線連続計測データからの ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度変動の識別方法について検討した。

図 2-17 に 2011 年 7 月 20 日-8 月 31 日のエネルギー領域毎の計数率、塩分および降水 量の変化を示す。降水に由来する ²¹⁴Pb および ²¹⁴Bi による計数率の上昇は、図 2-7 の降水・ 非降水時の差分スペクトルのように 2.5 MeV 程度までの広いエネルギー領域で計測される。 しかしながら、図 2-17 では、2011 年 7 月下旬から 8 月にかけて、0.9 MeV 以下の領域の みでの計数率上昇が複数回みられ、特に、8 月 5 日および 8 月 10 日-14 日は降水が無いに もかかわらず 0.1-0.9 MeV 領域計数率の上昇がみられている。そのため、少なくともこの 両期間の計数率の上昇は降水由来 ²¹⁴Pb、²¹⁴Bi 以外の影響によるものと考えられる。図 2-18 に、0.1-0.9 MeV 領域計数率が上昇した期間 (期間 A) とベースラインの期間 (期間 B) のそれぞれのデータを積算したスペクトルを示す。期間 A のスペクトルには期間 B と比較 して ¹³⁴Cs の 605 keV、796 keV および ¹³⁷Cs の 662 keV の γ線エネルギーに相当する部分 に計数率の上昇がみられることから、期間 A の計数率上昇は、海水中の ¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs 濃度の増加によるものと考えられる。



※赤破線囲みは、降水が無く 0.1-0.9 MeV 領域計数率の上昇している部分。青破線囲 みは、0.1-0.9 MeV 領域のみで計数率が上昇し、0.9-3.0 MeV には変化がみられない 部分。



図 2-18 0.1-0.9 MeV 領域計数率上昇期間(期間 A)と非上昇期間(期間 B)の積算γ線 スペクトルの比較(Buoy-B)

福島第一原発事故により環境中に放出された 134Cs/137Cs 放射能比は、2011 年 3 月 11 日 に壊変補正するとほぼ1となる(Hirose, 2012 など)。ここから、2011 年 8 月上旬におけ る ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比=0.9 として、ES5 コード(Hirayama et al., 2005) でのモンテカル ロシミュレーションにより、海水中に溶存する134Cs+137Csに対する係留式ブイ水中放射線 センサの計数効率を求めると(図 2-19)、 ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs=1 Bq/L に対する 0.1-0.9 MeV 領 域の計数率上昇は 2.3 cps となる。この値を用い、降水の影響の無い 8 月 4-15 日の間の 0.1-0.9 MeV 領域計数率の上昇を¹³⁴Cs⁺¹³⁷Cs 濃度に換算した結果を、水温・塩分および 流向流速データとともに図 2-20 に示す。¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度は 8 月 9 日 11 時に最大となった 後に一旦低下し、8 月 10 日深夜から 8 月 11 日朝にかけて再び上昇している。図 2-21 に、 係留式ブイでの流向流速データを用い、8月9日11時を起点とした進行ベクトルを示す。 進行ベクトルの軌跡では、8月9日11時に Buoy-B付近を通過した水は一旦北に移動した 後、8 月 10 日深夜から 8 月 11 日朝にかけて再び Buoy-B 付近を通過したと考えられる。8 月9日11時と8月10日深夜から8月11日朝にかけての水温、塩分がほぼ同程度である ことと併せて考えると、8月9日から8月11日にかけて水中放射線センサデータにみられ た変化は、¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度が 0.2 Bq/L 程度の水塊が係留式ブイ付近を行き来する状況をと らえたものである可能性が高い。



図 2-19 モンテカルロシミュレーションプログラム EGS5 (Hirayama et al., 2005) によ る水中の¹³⁴Cs+¹³⁷Csに対する水中放射線センサ(4 m 深)のγ線スペクトル*(左) および計算におけるセンサ配置(右)

※検出器の光学系および電子回路等の影響は考慮していない。



図 2-20 水中放射線センサデータから換算した ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度 (Buoy-B, 1 時間平均値)、 水温・塩分 (Buoy-B, 5 m深, 5 分毎)、および流向流速 (Buoy-A, 6.5 m 深, 5 分 毎)



- 図 2-21 係留式ブイ流向流速データ (Buoy-A, 6.5 m 深) を用いた進行ベクトルによる 2011 年 8 月 9 日 11 時-11 日 9 時の流下位置の推定
 - ※原点は Buoy-B 位置、点線は進行ベクトルの軌跡、●は 6 時間毎の流下位置を示 す。

¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度として 0.1-0.2 Bq/L 上昇の場合、図 2-18 の γ 線スペクトルから明らか なように、¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs の γ 線の光電ピーク面積から濃度を算出することは困難であ る。そのため、低い ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度の算出は、散乱領域も含めたスペクトル全体のデータ から行う必要がある。係留式ブイ水中放射線センサにおいて付着物対策を実施した 2010 年 1 月以後の 0.1-3.0 MeV 領域の計数率(1 日平均値)の変化を図 2-22 に示す。降水の寄与 による上昇の他、宇宙線や塩分の変化の影響と考えられる季節的な変動がみられており、 ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度変化を推定するためには、ここから自然による変動を弁別しその影響を差 し引いていくこととなる。



陸上のモニタリングステーションにおける空間 γ 線計測では、降水による ²¹⁴Pb および ²¹⁴Bi の寄与がある中から人工放射性核種の影響を弁別する方法として、主に ²¹⁴Bi によっ てレベルが変動する 1.6-2.5 MeV 領域(SCA(Bi)領域)の計数率を用いて、降水の寄与を 差し引く SCA 法が用いられている(Kimura et al., 1997 など)。しかしながら、海中の場 合、陸上での空間 γ 線計測と異なり、周辺の水による吸収・散乱のため直接 γ 線の計数効率 が低く、降水寄与スペクトル(図 2-7)における 1.6-2.5 MeV 領域の計数率は、²¹⁴Bi=1 Bq/L の場合で約 0.05 cps と低い。そのため、SCA(Bi) 領域の計数誤差は大きく、これを用 いて 0.1-0.9 MeV 領域計数率から降水寄与の差し引きを行うと、大きな誤差が伝播する。

この問題を低減するには、降水の寄与を評価するためのエネルギーウインドウを散乱領 域も含めて可能な限り広く設定する方法が考えられる。図 2-7 に示した降水による ²¹⁴Pb お よび ²¹⁴Bi の γ 線スペクトルにおいて、エネルギー領域を 0.9-3 MeV に拡大することで ²¹⁴Bi=1 Bq/L あたりの計数率は約 0.2 cps となり 0.1-3.0 MeV 領域に対する割合も約 9% にまで増加する。これにより、計数誤差に由来する差し引きでの誤差は約半分になると考え られる。なお、海洋表層での in-situ γ 線データ解析においては、海水中の ⁴⁰K 濃度変化と 宇宙線寄与の変化についても考慮する必要がある。そこで、係留式ブイ搭載の塩分センサによる塩分の計測値および水中放射線センサの 3.0 MeV 以上領域の計数率を元に、表 2-3 に示す係数を用いて 0.1-0.9 MeV および 0.9-3.0 MeV 領域の計数率を補正した。

福島第一原発事故の影響のない 2010 年 1 月-2011 年 2 月、および、係留式ブイ付近の 採水試料で¹³⁴Cs 濃度が 1 mBq/L 未満にまで低下し(Kofuji & Inoue, 2013)、現場 y 線計 測においては福島第一原発事故起源の¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の影響が無視できると考えられる 2011 年 12 月-2012 年 3 月までのデータについて、塩分および宇宙線寄与についての補正後の 0.1-0.9 MeV 領域と 0.9-3.0 MeV 領域の計数率の関係を図 2-23 にプロットした。このプ ロットの回帰直線は、各ブイの水中放射線センサにおける降水由来核種によるエネルギー 領域毎の計数率の上昇の関係とベースラインの計数率である海水中の⁴⁰K、宇宙線、検出器 バックグラウンドの寄与の合計を示すものである。



平均値)*の関係(データ期間:2010年1月-2011年2月および2011年12月-2012年3月)

※塩分および宇宙線寄与変動は補正済み

図 2・23 の回帰式を用いて 2010 年 1 月-2012 年 3 月の 0.1-0.9 MeV 領域計数率から、 降水、40K、宇宙線寄与、検出器バックグラウンドの寄与の合計を差し引き、¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃 度に換算した結果を図 2・24 に示す。また、2011 年 6-9 月の結果について、採水試料の分 析結果(Kofuji & Inoue, 2013)と図 2・25 に比較する。なお、降水寄与の差し引きにより誤 差が拡大するため、水中放射線センサデータは図 2・18 の場合よりも長い 1 日平均値を使用 した。採水試料はある地点での瞬間的な値であるのに対し水中放射線センサデータは 1 日 の平均であるため、個別データでは採水試料と水中放射線センサデータで数十 mBq/L の違 いがみられる場合があるが、7 月下旬から 8 月前半に濃度が上昇する傾向は両者で一致して おり、水中放射線センサデータは、実際の海水中の ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度変動を反映していると 考えられる。また、水中放射線センサデータから換算した ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度には、7 月 27-29 日、8 月 2-4 日、8 月 9-11 日の 3 回の上昇という採水試料の分析では把握できない変 動が捉えられている。 この手法により抽出する自然要因以外の変動は、降水や太陽活動など多くの現象の影響 を受けるため、in-situ γ 線測定での計数誤差から検出下限値を評価することは困難である。 そこで、採水試料の分析結から 2010 年 1 月 - 2011 年 2 月および 2011 年 12 月 - 2012 年 3 月の期間は in-situ γ 線測定において福島原発事故の影響が無視できるものと判断し、こ の期間のデータのばらつきから検出下限値を推定した。福島原発事故の影響が無視できる 期間の自然変動差し引き後の 0.1 - 0.9 MeV 領域計数率の標準偏差の 3 倍 (3 σ) を検出下 限値とすると、その値は Buoy-A、B および C のいずれにおいても 0.1 cps であった。この 計数率を ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度に換算すると検出下限値は 0.05 Bq/L となる。Buoy-A および B における 2011 年 7 月下旬から 8 月前半にかけての変動は 0.1 cps を超えており、福島原発 事故の影響が有意に検出されたと判断される。

このように、ブイを用いた in-situ γ 線測定は、海洋環境における原子力事故由来の人工 放射性核種の動態解析のための有効なデータが取得できる方法と言える。



※Buoy-Cの2011年6-9月は水中放射線センサ修理のため欠測



図 2-25 水中放射線センサデータ(1日平均値)からの(¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)濃度換算値と採水試料 の分析結果(Kofuji & Inoue, 2013)の比較

2.5 まとめ

ブイを用いた海洋表層での in-situ y 線測定を、海洋環境に放出された人工放射性核種の 動態解析に利用するための基礎検討として、海洋観測ブイにおける長期的な観測データを 元に、計測データの変動の特徴とその範囲について取りまとめた。それを元に、低計数率で 散乱線の影響が大きいという特徴を持つ海水中での計測データから、福島第一原子力発電 所事故に由来する ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度変動を高感度で弁別する方法について検討した。水中 放射線センサデータから推定した結果では、採水試料の分析では把握できない複数回の濃 度上昇と低下の状況が捉えられており、ブイを用いた in-situ y 線測定が、海洋環境におけ る原子力事故由来の人工放射性核種の動態解析に有効であることが確認された。

【第2章の参考文献】

- Aoyama, M., Tsumune, D., Uematsu, M., Kondo, F., Hamajima, Y., 2012. Temporal variation of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activities in surface water at stations along the coastline near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident site, Japan. *Geochem. J.*, 46, 321-320.
- Aoyama, M., Uematsu, M., Tsumune, D., Hamajima, Y., 2013. Surface pathway of radioactive plume of TEPCO Fukushima NPP1 released ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs. *Biogeosciences*, **10**, 3067-3078.
- Hirayama, H., Namito, Y., Bielajew, A. F., Wilderman, S. J., Nelson, W. R., 2005. The

EGS5 Code System. SLAC-R-730 and KEK Report 2005-8.

- Hirose, K., 2012. 2011 Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: summary of regional radioactive deposition monitoring results. J. Environ. Radioactivity, 111, 13-17.
- Inoue, M., Kofuji, H., Hamajima, Y., Nagao, S., Yoshida, K. and Yamamoto, M., 2012. ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activities in coastal seawater along Northern Sanriku and Tsugaru Strait, northeastern Japan, after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity*, **111**, 116-119.
- Kimura, H., Fukuta, K., Satoh, N., Tanabe, H., Yoshikawa, O., 1997. Monitoring of environmental radiation and radionuclides around nuclear fuel cycle facilities from 1989 to 1995. J. Radioanal. Nucl. Chem. 226, 211-215.
- Kofuji, H., Inoue, M., 2013. Temporal variations in ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs concentrations in seawater along the Shimokita Peninsula and the northern Sanriku coast in northeastern Japan, one year after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J. Environ. Radioactivity, **124**, 239-245.
- Nishikawa, T., Aoki, M. and Okabe, S., 1985. Time variation of ²²²Rn progeny concentration in rain water, *Health Phys.*, **49**, 1284-1289.
- Rangarajan, C., Eapen, C. D., 1985. Some observations on the concentrations of shortlived decay products of Radon and Thoron in the Monsoon Rains of Bombay, India. J. Geopys. Res. 90, 8155-8159.
- Shima, S., 2016. Studies & Activities in Japan Marine Science Foundation. Jpn, J. Health Phys. 51, 251-253.
- Tsabaris, C., Ballas, D., 2005. On line gamma-ray spectrometry at open sea. Appl. Radiat. Isot. 62, 83-89.
- Tsabaris, C., Bagatelas, C., Dakladas, T., Papadopoulos, C. T., Vlastou, R. and Chronis, G. T., 2008. An autonomous in situ detection system for radioactivity measurements in the marine environment. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 1419-1426.
- Urabe, I., Katsurayama, K., 1981. Ground level cosmic ray energy spectrum in the energy range 0 to 4 MeV -Ovserved whith spherical NaI(Tl) spectrometer. *Radiation Protection Dosimetry*, 1, 183-189.
- 小玉正弘, 1986. 地球大気圏内における宇宙放射線場, 実験物理学講座 25 宇宙放射線(第 1版) 西村純 責任編集, 共立出版
- 小藤久毅, 賀佐信一, 河村日佐男, 渡部輝久, 小村和久, 2005. 水中用 NaI(Tl)検出器の特性. Proceedings of the Sixth Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2005-4, Tsukuba, Japan.
- 小村和久,塚本政樹,阪上正信,1980.放射線検出器の遮蔽・トンネルおよび海水中での放

射線測定. 京大原子炉実験所報告, KURRI-TR188.

- 坂上央存, 丸田文之, 藤巻広司, 殿内重政, 2003. Ge 半導体検出器による雨雪中の放射性核 種濃度測定(1)-2003 年1月-, 新潟県放射線監視センター年報, 1, 50-55.
- 長岡鋭, 斎藤公明, 森内茂, 1988. 7.5cm φ 球形 NaI(Tl)シンチレーション検出器による地上 レベルにおける 5MeV 以下の宇宙線スペクトル. 保健物理, 23, 201-207.
- 早川博信,1993. 自然放射線場における人工放射性核種を実時間に弁別・評価するための基礎研究. 金沢大学博士論文
- 藤波直人,渡辺哲也,荒木智徳,水本美佳,筒井豪毅,2004. 環境放射線モニタに認められ た太陽フレアの影響. 保健物理,39,215-219.

第3章 天然放射性核種をトレーサとした海表面付近における鉛直混合解析

3.1 はじめに

海洋表層では風や波浪などの影響によって短時間で大きな鉛直混合が生じる場合がある。この現 象は、大気から海表面に沈着した放射性核種が、どの程度の時間で鉛直的に希釈・混合されるかに 影響する。海上のブイにおける in-situ y 線計測手法の応用として、降水等で大気から海表面に供給 される短寿命天然放射性核種(²¹⁴Pb、²¹⁴Bi)をトレーサとした、海洋表層付近での混合現象につい てのデータ取得について検討した。

3.2 データ取得手法

第2章2.2(1)に示した係留式ブイ (Buoy-B)の深度約1mと約4mの位置に3インチ ϕ NaI(TI) 検出器 (小藤ら,2005)を設置し、上下2層における水中 γ 線の同時計測 (積算時間5分)を2011 年6月30日-11月18日に実施した。解析に使用する気象・海象データとして、降水量は、ブイ に直近の海岸 (ブイからの距離約3.1km、図2·1参照)での観測データ、表層付近の水温データは、 ブイの深度1-3mに設置した水温計によるデータ、風データは、Buoy-A (Buoy-Bの約1.3km 北)に設置した風向風速センサ (海面からの高さ約4.7m)による10分平均風速および風向、波浪 データは国土交通省港湾局による全国海洋波浪情報 (ナウファス)のむつ小川原港の速報データ (20 分観測による有義波高および有義周期)を使用した。海水中の214Pbおよび214Biに対する水中放射 線センサの計数効率は、モンテカルロシミュレーションプログラム EGS5 (Hirayama et al., 2005) によってセンサの形状およびブイ浮体との位置関係を設定して計算し、0.1-3.0 MeV 領域の計数 率について、降水が無い場合のベースラインからの上昇分を214Pb+214Bi 濃度に換算した。なお、換 算は、第2章の2.3(1)の結果から、214Bi /214Pb 放射能比 =1.4 として行った。

3.3 結果および考察

(1) 気象・海象と海水中の²¹⁴Pb、²¹⁴Bi 濃度変化

1mおよび4m深センサの0.1-3.0 MeV領域計数率(積分時間5分)の時間変化を、降水量と ともに図3-1に示す。1m深センサは4m深センサよりも宇宙線の寄与が大きいため、ベースライ ンの計数率がやや高く、また、降水時の計数率上昇も全般的に1m深センサの方が大きいという特 徴がみられた。降水イベントごとに見ると、1m深センサのみでしか計数率が上昇がみられない場 合がある一方、1m、4mの双方で計数率が上昇した場合もあり、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi がどの深度までもた らされるかは、気象・海象条件によって異なると考えられる。



雨量計の最小計測単位が 0.5 mm であることにより、降水量が観測されないにも関わらず 1 m 深 センサで降水寄与による計数率上昇がみられた場合があったため、降水の有無の判断は、1 m 深セ ンサの計数率上昇を元に行った。1 m 深センサの 0.1-3.0 MeV 領域計数率が観測期間の全データ の中央値よりも 2 σ を超えて高い場合、そのデータは降水による寄与があったものとし、降水の寄 与がみられるデータの間隔が 2 時間未満は同一の降水イベント、それ以上に空いた場合は別の降水 イベントとした。ただし、7 月 26 日-8 月 12 日のデータについては、福島第一原発事故の影響と 考えられる天然放射性核種以外の影響がみられたため (2.4 参照) 解析対象から除外した。設置期間 中に 60 回の降水イベントがみられた。

降水イベント時における、深度別の²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度および気象・海象データの例を図 3·2(a)-(c) に示す。また、表層付近での成層の有無の参考として Buoy-B の深度 1 m および 3 m に設置した水 温計による水温データも同時に示す。図 3·2(a)は²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度上昇がほぼ 1 m 深センサのみで 生じた場合の例である。この場合、風速は 1-5 m/s 程度と小さく、深度によって水温に 0.1-0.4℃ の差が生じている。図 3·2(b)は 1 m、4 m 深センサの双方で²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度が上昇する例であり、 このときの風速は 5-12 m/s 程度と比較的大きく、また、深度による水温の差はない。図 3·3(c)は、 降水イベントの途中で上下センサの²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度比が大きく変化する場合である。8 月 18 日の 例では、当初は²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度が上下で同程度であったが、風速が小さくなると 1 m 深センサの 濃度が上昇し 4 m 深センサは低下している。逆に、9 月 17 日では、当初は 1 m 深センサのみで ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度が上昇していたが、風速が大きくなると上下の²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度が同程度になった。 9月17日は、当初は深度によって水温に0.1-0.4℃の差があったが、風速が強くなると差はみられなくなった。このように、降水時の²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度上昇が1m深センサのみでみられるか、1m、4m深センサの双方でみられるかは風速に対応しており、風が強くなると数十分程度の時間スケールで深度による²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度の差が小さくなることが観測された。それに対して波浪については、比較的波高の高い場合でも1m深でしか²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度が上昇しない場合や(8月18日)、波高が低いにもかかわらず1m、4m深の双方で上昇するという場合がみられ、²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度の 深度差との関係はあまり明確ではない。



図 3-2(a) 降水イベント時の²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度、降水量、風速、波浪、深度別水温および水温勾配 の時間変化(1m 深のみで大きく²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度が上昇する場合)



図 3-2(c) 降水イベント時の²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度、降水量、風速、波浪、深度別水温および水温勾配 の時間変化(降水イベント中に上下層の²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度比が大きく変化する場合)
深度別の ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度と風速との関係について検討するため、降水イベント時の 1 m、4 m 深 センサでの ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度を、計測時の風速毎に区分してプロットしたものを図 3-3 に示す。風速 <2 m/s の場合、ほぼ 1 m 深センサのみで ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度上昇がみられるが、2-4 m/s になると、 4 m 深センサでも濃度が上昇する場合がみられた。さらに、風速>8 m/s になると、1 m、4 m 深セ ンサの ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度は、降雨強度に関係なくほぼ一定の比(0.6-0.7)となった。



図 3-3 1m および 4m 深での ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度と風速の関係

(2) 見かけの鉛直拡散係数推定の検討

表層付近での鉛直混合による²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度変化の現象が一次元での鉛直拡散式に従うものと 仮定して、降水イベント時の見かけの鉛直拡散係数がどの程度になるか検討を行った。水中の ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度変化は、一次元の鉛直拡散方程式に放射壊変による減少及び大気からの供給を加え て、表 3-4 の式(3.1)で表される。



図 3-4 鉛直拡散を仮定した降水由来短寿命放射性核種の深度分布形成モデル

大気からの ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 供給速度 Pおよび見かけの鉛直拡散係数 $k \, c$ 一定とし、 $\Delta z = 50 \, cm$ 、 $\Delta t = 0.01 \, sec$ での差分法により C(z, b c算出した。結果を図 3-5 に示す。なお z の最大値は係留式ブイ設置位置の水深(43 m)とし、海面および海底の境界は反射壁として取り扱っている。大気からの ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 供給速度は、本観測における降水イベント期間の平均降雨強度(1.4 mm/h)および早川(1993)による福井県での 1977~1985 年の降水中の平均濃度(1.7 Bq/mL)から、0.66 Bq/cm²/s と仮定した。但し、²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 供給速度は、このモデルの場合は 4 m/1 m 比には影響しない。

図 3-5 より、降り始めから数十分の時間スケールで 4 m/1 m 比が 0.6-0.7 となる場合の見かけ の拡散係数は、 10^2-10^3 cm²/s と考えられる。また、降水毎の $^{214}Pb+^{214}Bi$ 濃度や沈着フラックス の違いがあるため不確かさは大きいが、本観測で使用した放射線センサの測定感度では、1 m、4 m 深での $^{214}Pb+^{214}Bi$ 濃度比が 0.1 程度の場合までは 1 m、4 m 深の双方のセンサで濃度上昇が確認 できている。この値が計測可能な最小の濃度比とすると、この場合の見かけの拡散係数は図 3-5 から 10^1 cm²/s 程度と考えられる。なお、1 m 深センサのみでしか濃度上昇がない場合は、見かけの 拡散係数はこれよりも小さいと考えられる。

この観測では降水由来の²¹⁴Pb、²¹⁴Biをトレーサとして利用しているため、得られたデータは降水時という限定した気象条件下でのものであり、²¹⁴Pb、²¹⁴Biも海水よりも密度の低い雨水でもたらされてはいるが、海表面近くでは風によって数十分という短時間で、見かけの拡散係数が2桁程度変化していることが示された。



図 3-5 一次元鉛直拡散による降り始めからの1m深(a)と4m深(b)での214Pb+214Bi濃度、および 1mと4m深での濃度比の時間変化(c)(降り始めから、降雨強度=1.4mm/h^{×1}、降水中 214Pb+214Bi濃度=1.7Bq/mL^{×2}で一定と仮定して計算) ※1:本観測における降水イベント中の平均降雨強度 ※2:早川(1993)による1977~1985年の降水中平均濃度(於福井県)

3.4 まとめ

係留式ブイにおける深度別の連続的な γ 線測定により、降水中に含まれる短寿命天然放射性核種 (²¹⁴Pb、²¹⁴Bi)をトレーサとした海洋表層数 mにおける鉛直混合についての解析を行った。風速 < 2 m/s の場合は²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度上昇ほぼ 1 m 深センサに限られ、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi の下方への広が りは確認されなかった。風速>8 m/s になると、²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度の 4 m /1 m での比は降雨強度に 関係なく一定の値 (0.6~0.7) に近づいた。1 次元での拡散を仮定した見かけの鉛直拡散係数を推定 すると、²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度の 4 m/1 m での比の風速による変化は、見かけの鉛直拡散係数として 10¹ cm²/s 以下から 10³ cm²/s 程度と見積もられた。また、降水イベント中に風速が急変した際の事例か ら、この見かけの鉛直拡散係数の変化が短時間で生じることが分かった。本研究の事例は降水時と いう限定された条件のものではあるが、大気からの沈着により海洋へともたらされた放射性核種の 濃度とその時間変化を推定する上で、このような気象による鉛直混合状況の変化は重要な要素と考 えられる。 【第3章の参考文献】

- Hirayama, H., Namito, Y., Bielajew, A. F., Wilderman, S. J. and Nelson, W. R., 2005. The EGS5 Code System. SLAC-R-730 and KEK Report 2005-8.
- 小藤久毅,賀佐信一,河村日佐男,渡部輝久,小村和久,2005.水中用 NaI(TI)検出器の特性. Proceedings of the Sixth Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2005-4, Tsukuba, Japan.
- 国土交通省,全国海洋波浪情報(ナウファス),https://nowphas.mlit.go.jp/
- 早川博信, 1993. 自然放射線場における人工放射性核種を実時間に弁別・評価するための基礎研究. 金沢大学博士論文.

第4章 海底における人工放射性核種濃度水平分布調査における効率的手法の検討

4.1 はじめに

福島第一原子力発電所事故によって¹³¹I および¹³⁴Cs、¹³⁷Cs を中心とした大量の放射性 核種が環境中に放出された。放射性核種は太平洋に拡散・希釈され、事故から1年後には海 水中の¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度は数一数十 mBq/L にまで低下している(Oikawa et al.,, 2013)。 その一方、海底については、濃度低下は遅く、福島県および隣接する宮城県、茨城県におい ては事故以前よりも濃度が数桁高い状態が続いている(Kusakabe et al., 2013)。さらに、 海底堆積物中の放射性セシウムは空間的に不均一に分布しており、その分布は時間的に変 化することが報告されている(Otosaka & Kobayashi, 2013)。このような原子力発電所事 故による放射性核種放出の挙動を把握するためには、初期から海底土中の放射性核種分布 を詳細に調査しておく必要がある。

海底の放射性物質を測定する方法として、耐水圧容器に入れたγ線検出器で海底を直接 計測する in-situγ線スペクトロメトリーがある。この方法は空間的に連続なデータが得ら れることから、分布を把握する目的に適した方法であることが知られており、福島第一原子 力発電所周辺海域の調査にも適用されている(Thornton et al., 2013)。堆積物および海水 によるγ線の減衰および散乱が非常に複雑であるため、測定における精度およびデータの 安定性についての議論が不可欠であるが、これまでのところ、主な目的は海底における放射 性核種の分布の傾向の把握であったため、計測精度に関する検討は十分とは言えない。

本研究では、福島第一原発事故の影響がみられる海域において水中 y 線測定システムを 用いた試験を実施し、事故による海底の放射能汚染の分布把握調査(マッピング調査)を実 施する上での問題点を抽出し、その対策およびデータ解析手法を含めて調査を効率的に実 施するための手法について検討することを目的とする。

4.2 データ取得手法

(1) 試験システム

海底の放射能汚染の分布把握には海底を曳航しながらγ線計測を行うシステムが有効で あると考えられる。しかし、海底におけるγ線測定での精度について検討する上では、定点 における比較的長時間のγ線データが必要となる。この場合、センサと海底の位置関係が保 たれた状態で長時間の計測を行うことになるが、曳航システムは船とケーブルでつながっ ているため、曳航体の位置を固定するためには船の位置も定点に保つ必要があり、通常の小 型船舶の場合は船から複数の錨を打つ(錨が一つの場合船が錨を中心に振れ回る)などの対 処が必要である。このような作業を複数地点で行うと、何度も投錨・抜錨が必要であるため 作業効率が著しく低下する。そこで、海上試験には、海底に着底させた曳航体を船で引き摺 りながら移動して計測を行い、海底からのγ線の空間分布データを取得する「海底曳航シス テム」に加え、海底に設置してその地点における長時間のγ線データを取得する「海底設置 システム」の2種類のシステムを使用した(図4-1)。



図 4-1 試験システムイメージ: (a) 海底設置システム (b) 海底曳航システム

海底設置システムのブロックダイヤグラムおよび外観を図 4・2 に示す。同システムはデ ルリン樹脂製耐圧容器に格納された 3 インチ φ 球形 NaI(TI)検出器、データロガーおよび電 源(リチウム電池)を搭載する。計測した γ 線スペクトルデータはデータロガーのマイクロ SD カードに1分間隔で記録される。また試験時には、海底と NaI(TI)検出器の状況を記録 するため、メモリ式の水中ビデオカメラおよびライト(データはカメラ内のマイクロ SD カ ードに記録)を取り付けて動画撮影を行った。システムの重量は、鉄製のフレームおよび姿 勢安定用の鉛錘も含めて約 16 kg であり、船の操縦を除き 1~2 人で設置・揚収が可能であ る。



図 4-2 海底設置システム 左図:システムのブロックダイヤグラム、右図:システム外観

海底曳航システムの外観およびブロックダイヤグラムをそれぞれ図 4-3 に示す。同シス テムは、デルリン樹脂製耐圧容器に格納された3インチ¢球形 NaI(TI)検出器、塩分・水温・ 深度センサおよび水中ビデオカメラ(前方撮影用、下面撮影用各1台)およびライトをステ ンレス製フレームに取り付けたものである。曳航ケーブルにより船上からシステムへの給 電が行われるとともに、センサおよびビデオカメラの映像が同ケーブルを通じて船上に送 られ、船上でリアルタイムに計測データや海底の映像の確認が可能である。NaI(TI)検出器 のデータは PC で受信され、計数率の時間変化や現在のγ線スペクトルが画面上に表示され るとともに、設定時間間隔毎にγ線スペクトルデータとして記録される。曳航体の重量は約 25 kg (姿勢安定のための鉛錘を含む)であり、船の操縦を除き3人程度で投入・揚収が可 能である。



図 4-3 海底曳航システム 左図:システムのブロックダイヤグラム、右図:システム外観

(2) 海上試験

福島第一原発事故の影響がみられる海域のうち、調査船の傭船等の試験実施上の利便性 の点から、宮城県仙台湾で試験を実施することとした。試験海域を図4-4に示す。安全のた め、フェリー航路、港湾区域、共同漁業権水域および漁礁設置地点などを避けた沖合の水深 35-40mの位置に試験海域を設けた。更に底質が異なる場合の計測データや運用時の状況 の違いを確認するため、試験海域は底質が泥砂混合(Site A)の海域と砂(Site B)の海域 の2箇所とした。

海上試験は、2013年9月6日、7日に実施した。水中γ線測定システムの検出限界を調べるために、各サイトにおいて海底係留システムを用いて約2時間の連続的なγ線データを取得した。また、海底における放射性核種の空間分布把握手法検討のため、各サイトにおいて海底曳航システムを300-400 m 程度の距離を約1ノットで曳航する試験を行った。

両システムとも 1 分毎のスペクトルデータを保存した。試験海域におけるシステムの曳航 コースおよび設置座標を図 4-5 に示す。更に、γ線の計数効率を計算する上での情報とする ため、錘付きプラスチックカップで海底を引きずり、堆積物を採取した。また、海底曳航シ ステムによる追加的な試験を 2014 年 7 月 29 日、30 日に実施した。



図 4-4 試験海域 (Site A: 泥砂混合、Site B: 砂)



図 4-5 試験海域における海底曳航システムの曳航コースおよび海底設置システムの設置 座標

(3) 計数効率

 γ 線データから放射性核種濃度への変換に必要な、堆積物中の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs および ^{40}K 、 U系列核種、Th系列核種による NaI(TI)検出器の応答関数は、EGS5 コード(Hirayama et al, 2005) によるモンテカルロシミュレーションにより計算した。計算におけるセンサ・海水・堆積物の配置を図 4-6 に示す。堆積物の密度および含水率は、Site A および Site B で 採取した堆積物試料の値を用い、化学組成については Thornton ら(2013)が海底γ線スペ クトロメトリーデータ解析に用いた値を使用した。



図 4-6 EGS5 コード(Hirayama et al., 2005)を用いたモンテカルロシミュレーション計算**1におけるセンサ・海水・堆積物の配置と放射性核種の鉛直分布設定**2
※1:NaI(Tl)シンチレータを中心とした 1.5 m×1.5 m 領域について計算した。
※2:1³⁴Cs および ¹³⁷Cs は堆積物表層に一定濃度で分布、あるいは堆積物中の深度とともに指数関数的に減少すると仮定した。天然放射性核種である ⁴⁰K および U、Th 系列核種は、堆積物全層に一定濃度で分布すると仮定した。

4.3 結果および考察

(1) 堆積物中の鉛直分布および堆積物との距離の影響

堆積物の表面から一定深度まで一定濃度で 137 Cs 存在すると仮定した場合の 662 keV γ 線に対する計数効率、および NaI(Tl)検出器で計測される計数率から 137 Cs 濃度への変換係数が、 137 Cs の分布厚さによってどう変化するかを図 4-7 に示す。 γ 線が堆積物自身により吸収されるため、 137 Cs 存在層が厚くなるにつれて光電ピークの計数効率、散乱線を含めた全計数効率ともに低くなり、計数率から算出される 137 Cs 濃度はある程度の分布厚さ以上では一定となる。662keV ピーク面積からの濃度は 5 cm 程度、全計数率からの濃度は 8 cm 程度以上の厚さではほぼ一定である。

堆積物中で¹³⁷Cs が指数関数的に分布すると仮定した場合の計数効率および計数率・¹³⁷Cs 濃度変換係数の関係を図 4-8 に示す。堆積物中の深度 Z (cm)での濃度 A(Z) (Bq/cm³)は、鉛 直分布パラメータβを用いて次式ように表される(文部科学省, 2008)。

 $A(Z) = A_0 \cdot \exp(-Z / \beta)$

Ao は堆積物表面における濃度である。 β は通常は積算重量深度(g/cm²)で与えるが、ここで は便宜上長さ(cm)としている。662 keV ピーク面積からの濃度は β =5 cm 程度、全計数率 からの濃度は β =8 cm 程度以上ではほぼ一定である。

これらのことから、海底 in situ γ 線データの解析において堆積物中の ¹³⁷Cs 分布として 考慮する必要があるのは、662 keV ピーク面積を用いる場合で 5-6 cm 程度、全計数率を 用いる場合で 8-10 cm 程度までの厚さと言える。また、¹³⁷Cs の分布が表面から 4 cm 程 度以下の場合、均一な分布か指数関数的分布かで、計算される ¹³⁷Cs 濃度の差が大きいが、 それよりも深くまで分布する場合にはあまり違いはみられない。



図 4-7 ¹³⁷Cs が堆積物*1 表層に一定濃度で分布すると仮定した場合の計数効率および計 数率・¹³⁷Cs 濃度変換係数

左図:662 keV 光電ピークを使用、右図:散乱線を含めた全計数を使用 ※密度および含水率は Site A で採取した堆積物試料(泥砂混合)の値(湿潤密度:1.5 g/cm³、含水率:37%)を使用した。



図 4·8 ¹³⁷Cs が堆積物中^{**1}で指数関数的に分布^{**2}すると仮定した場合の計数効率および計 数率・¹³⁷Cs 濃度変換係数

左図:662 keV 光電ピークを使用、右図:散乱線を含めた全計数を使用

- ※1: 堆積物の空隙率および密度は仙台湾海上試験の St.A で採取した堆積物試料(泥 砂混合)の値(湿潤密度: 1.5 g/cm³、含水率: 37%)を使用した。
- ※2: 深度方向の広がりは鉛直分布パラメータβ(文部科学省,2008)で与えた。通 常βは積算重量深度(g/cm²)であるが、ここでは長さ(cm)を用いた。

検出器と堆積物の距離と計数率から¹³⁷Cs 濃度への変換係数の関係を図 4-9 に示す。海上 試験において、海底曳航システムに取り付けた水中ビデオカメラからの画像(図 4-9)では、 海底の起伏や泥質の海底への海底曳航システムの脚部の沈み込みにより、検出器と堆積物 表面との間の距離は数 cm 変化することが確認された。実際にみられた距離の変化に対し、 計数率から¹³⁷Cs 濃度への変換係数は約3倍変化することとなる。また、堆積物中の¹³⁷Cs の分布厚さ変化に対して、図 4-9 の例では約2倍変化することとなる。

検出器と堆積物の距離の変動から生じる不確かさは、水中カメラ等の映像からある程度 補正することができる。海底にレーザーポインタなどを照射することで、映像のフレームご とに画像解析を行い、より確実に距離の変化を把握することができる(図 4·10)。その一方、 堆積物中の¹³⁷Csの鉛直分布については、高濃度に汚染された海底の場合は、γ線スペクト ルのピーク/コンプトン比から推定できる場合がある(日本原子力研究開発機構, 2014)。し かしながら、海上試験を実施した仙台湾における¹³⁷Cs 濃度(数十一数百 Bq/kg·dry)場合 は、堆積物中の¹³⁷Csの鉛直分布について把握するには堆積物コア試料を採取して分析する 必要がある。



図 4-9 検出器と堆積物の距離(D)と計数率・¹³⁷Cs 濃度変換係数の関係 ※¹³⁷Cs は堆積物中表面から一定深度(3、5、10 cm)まで均一に分布すると仮定



図 4-10 海底曳航システムの NaI(TI)検出器と海底の位置関係の変化 ※下段写真は海底との距離把握のためにレーザーポインタを照射したもの。海底との距離 が近くなると 2 つの赤光点間の距離が離れ、海底から離れると赤光点間の距離が近づく。

(2) 検出限界

海底係留システムによる、検出器と海底との位置関係を固定した状態で取得した長時間 測定データを元に、検出限界と繰り返し計測誤差について検討した。図 4-11 に Site A およ び B における海底係留システムでの γ 線スペクトルを、地下測定室において鉛シールドで 計測した検出器バックグラウンド(小藤ら, 2005)とともに示す。堆積物中の¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs の濃度は、それぞれ 796 keV+802 keV および 662 keV の γ 線の光電ピークカウント から、Site A では 0.09 および 0.14 Bq/cm³、Site B では 0.03 Bq/cm³ および検出限界以下

(<0.05 Bq/cm³) と計算された。ここでは、底質の上部 5 cm に ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs が均一に分 布していると仮定し、水中画像から検出器と海底の距離を求めて γ 線の係数効率を補正し た。両地点の堆積物の体積密度および含水率から、¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs の濃度は、Site A で は 90 および 150 Bq/kg-dry、Site B では 30 Bq/kg-dry および検出限界以下(<50 Bq/kgdry)と換算される。これらは、採取した堆積物の γ 線測定により調べられたデータ(数~ 数百 Bq/kg·dry)の範囲内である。長時間取得したデータを元に、一定の積分時間での繰り 返し測定データを作成し、積分時間と繰り返し計測における標準偏差の関係を図 4-12 に示 す。標準偏差の3倍(3 σ)を検出限界とすると、¹³⁴Cs および¹³⁷Cs を検出するために必 要な積分時間は、Site A では両核種とも3分、Site B では¹³⁴Cs は 45 分、¹³⁷Cs は3 時間 と見積もられた。このデータを元にして 100 Bq/kg·dry の¹³⁴Cs および¹³⁷Cs の検出に必要 な積分時間を見積ると、それぞれ3分および4分であった。海底を曳航しながら¹³⁴Cs およ び¹³⁷Cs 濃度を測定する場合、空間的な分解能は、曳航速度×必要積分時間で決定される。 γ 線の光電ピークカウントで¹³⁴Cs および¹³⁷Cs 濃度を求める場合、検出限界を 100 Bq/kgdry、曳航速度を1 ノットに設定すると、海底汚染マッピングで可能な空間分解能は、¹³⁴Cs および¹³⁷Cs それぞれについて、90 m および 120 m となる。



図 4-11 海底設置システムによる y 線スペクトル (積分時間 3600 sec)



図 4-12 積分時間と繰り返し計測でのばらつきの相対標準偏差(1σ)の関係:光電ピー クカウントから¹³⁴Cs、¹³⁷Cs濃度を算出する場合

(3) 効率的なデータ解析手法

福島第一原発事故由来の γ 線放出核種は ¹³¹I および ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs が殆どであり、事故後 数ヶ月以上経過した後は、ほぼ ¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs のみとなっている。海水中の ¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs 濃度は事故の後比較的短期間で低下している(Oikawa et al., 2013)。さらに、海中の 浅部での計測では宇宙線の影響が無視できないが、数十 m 以深では海水中の ⁴⁰K からのカ ウントに対し無視できる程度に減少する(小藤ら, 2005)。これらのことから、海底 in-situ γ 線測定データ解析においては、天然放射性核種(⁴⁰K、U 系列核種および Th 系列核種) と ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs のみを考慮して解析すれば良いこととなる。なお、事故由来の ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放 射能比は 2011 年 3 月 11 日に壊変補正するとほぼ 1 となるため(Hirose, 2012 など)、測定 日における ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比は事故からの経過日数から推定できる。また、海水中の ⁴⁰K 濃度は海底と比べて非常に低いため、海水中の ⁴⁰K 濃度変化が海底での γ 線計測スペクト ルに与える影響は無視している。

海底 in-situ γ 線測定システムにより得られる γ 線スペクトルにおけるエネルギー領域ご との計数率 (u_1, u_2, u_3, u_4) は以下の様に表すことができる。

(領域 1: 0.45–0.9MeV) $u_1 = f_{Cs}C_{Cs1} + f_K C_{K1} + f_U C_{U1} + f_{Th} C_{Th1}$ (領域 2: 0.9–1.6MeV) $u_2 = f_{Cs}C_{Cs2} + f_K C_{K2} + f_U C_{U2} + f_{Th} C_{Th2}$ (領域 3: 1.6–2.3MeV) $u_3 = f_U C_{U3} + f_{Th} C_{Th3}$ (領域 4: 2.3–3.0MeV) $u_4 = f_{Th} C_{Th4}$

*Ccs*₁ ~ *Ccs*₂, *Ck*₁~*Ck*₂, *Cu*₁~*Cu*₃, *Cth*₁~*Cth*₄ : 単位濃度の ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs、 ⁴⁰K、U 系列核種お よび Th 系列核種の領域 1-4 それぞれでの計

数率

fcs, fk, fu, fTh: ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs、⁴⁰K、U系列核種およびTh系列核種の濃度

単位濃度の ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs、⁴⁰K、U 系列核種および Th 系列核種それぞれについて NaI(TI)検 出器で計測される γ 線スペクトルをモンテカルロシミュレーションにより計算しておくこ とで、海底での γ 線計測スペクトルから 4×4 マトリックス法により、各成分の濃度が算出 できる。Site A および B それぞれにおいて海底係留システムによる 1 分毎に保存した約 2 時間の計測データを積算して測定時間 1 分から 30 分のデータを作成し、それぞれの積分時 間のデータセットに対してこの方法を用いて ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度を計算した。同一の約 2 時間 データから作成した各積分時間のデータセットについて、算出される ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度の標 準偏差(1 σ)を求めた結果を図 4-13 に示す。この図から、 3 σ を検出限界とすると ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 検出に必要な積分時間は、Site A および B においてそれぞれ 1 分および 5 分と 見積もられる。これは、光電ピークのみを用いる場合に比べ、1/3 程度の時間で濃度が判別 できるものであり、海底曳航調査において、より高い空間分解能で ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 分布が把 握できる。Site A および B での積分時間をそれぞれ 1 分および 5 分に設定し、4×4 マトリ ックス法により海底曳航システムデータから ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度を算出した結果を図 14 に示 す。300 m 余りの短い距離における濃度変化が示されており、この解析法が高い空間分解 能で分布把握調査を行う上で有効と考えられる。



図 4-13 積分時間と繰り返し計測でのばらつきの相対標準偏差(1σ)の関係:γ線スペク トル全体を用いた 4×4 マトリックス法により¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度を算出する場合



 図 4-14 4×4マトリックス法による海底堆積物中の¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度算出結果 (海底曳航システムによる計測)
Site A: 1分毎の積分データから算出、Site B: 5分毎の積分データから算出

4.4 まとめ

海底の人工放射性核種濃度分布の把握を効率的に行う上での基礎として、福島第一原発 事故の影響がみられる海域において水中γ線測定システムを用いた試験を実施し、測定に おける精度およびデータの安定性について検討した。詳細な分布を把握するための方法の 検討として、福島第一原発事故で放出された放射性核種の特徴を踏まえて最小限の成分を 仮定し、散乱線を含めたγ線スペクトル全体のデータを用いた解析を行うことで、光電ピー クカウントから濃度を算出する通常の手法に比べ、1/3 程度の積分時間のデータで ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度が算出できることが確認できた。

【第4章の参考文献】

- Hirayama, H., Namito, Y., Bielajew, A. F., Wilderman, S. J., Nelson, W. R., 2005. The EGS5 Code System. SLAC-R-730 and KEK Report 2005-8.
- Hirose, K., 2012. 2011 Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: summary of regional radioactive deposition monitoring results. *J. Environ. Radioactivity*, **111**, 13-17.
- Kofuji, H., 2015. In situ measurement of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in seabed using underwater γ -spectrometry system: application in surveys following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **303**, 1575-1579.
- Kusakabe, M., Oikawa, S., Tanaka, H., Misonoo, J., 2013. Spatiotemporal distributions of Fukushima-derived radionuclides in nearby marine surface sediments. *Biogeosciences*, **10**, 5019-5030.
- Oikawa, S., Takata H., Watabe, T., Misonoo, J., Kusakabe, M., 2013. Distribution of the Fukushima-derived radionuclides in seawater in the Pacific off the coast of Miyagi. Fukushima, and Ibaraki Prefectures, Japan, *Biogeosciences*, **10**, 5031-5047.
- Otosaka, S., Kobayashi, T., 2013. Sedimentation and remobilization of radiocesium in the coastal area of Ibaraki, 70 km south of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. *Environ. Monitor. Assess.*, **185**, 7, 5419-5433.
- Thornton, B., Ohnishi, S., Ura, T., Odano, N., Fujita, T., 2013. Continuous measurement of radionuclide distribution off Fukushima using a towed sea-bed gamma ray spectrometer. *Deep-Sea Res.* I, **79**, 10-19.
- 小藤久毅, 賀佐信一, 河村日佐男, 渡部輝久, 小村和久, 2005. 水中用 NaI(Tl)検出器の特性. Proceedings of the Sixth Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2005-4, Tsukuba, Japan.
- 文部科学省, 2008. 放射能測定法シリーズ 33, ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法, 平成 20 年 3 月.
- 日本原子力研究開発機構, 2014. 水底の in-situ 放射線分布測定手法の開発, JAEA-Research-2014-005.

第5章 下北半島及び三陸沿岸海域における放射性セシウム濃度変動

5.1 はじめに

福島第一原子力発電所事故により大量の放射性核種が環境中に放出され、海洋では北西太平洋の 広範囲において海水中の放射性セシウム(¹³⁴Cs、¹³⁷Cs)濃度の上昇が確認された。第2章で述べた 青森県六ヶ所村沿岸でのin-situy線スペクトロメトリーでも¹³⁴Cs、¹³⁷Cs濃度の上昇が検知された が、この濃度変動が、海洋における¹³⁴Cs、¹³⁷Cs動態の全体像とどのように対応するか把握するこ とは、in-situy線スペクトロメトリーの結果の妥当性の検証のための重要なデータとなる。また、 青森県下北半島沖および三陸海岸沖は、日本海を北上する対馬暖流の一部が津軽海峡を経て津軽海 峡から太平洋に流出する津軽暖流、千島列島から北海道沿岸に沿って流入する亜寒帯循環系に属す る親潮、本州の太平洋側に沿って東進し本州から離岸した黒潮続流域から分離した暖水渦の三つの 異なる水塊が共存し、複雑な水塊構造をとる海域であり、同時に豊かな漁場も形成している。その ため、この海域における福島第一原子力発電所事故由来の放射性核の種動態を明らかにすることは 海洋環境に対する事故の影響を評価する上でも重要である。

本研究では、当該海域における事故由来の¹³⁴Cs、¹³⁷Csの海洋での挙動を明らかにすることを目的とし、下北半島から三陸海岸にかけての海岸・沿岸における事故直後からの経時変化を調査した。 また、¹³⁴Cs、¹³⁷Csの鉛直的な移行過程を明らかにするため、¹³⁴Cs、¹³⁷Csの鉛直分布と水塊分布あるいは天然放射性核種の分布との関連を調べた。

5.2 試料および方法

(1) 海水試料

本研究における海水試料の採取地点を図 5·1 に示す。(a)は海岸または沿岸表層での採水試料であ り、地点 OH、OD、TN、HN、MY では港湾の防波堤からロープ付バケツを用いて表層から約 20 -70 Lを採取し、RK は海岸から約 2 km 沖合(第 2 章および第 3 章で示した海洋観測ブイ付近) において水中ポンプを用いて水深 0-39 m から約 40-80 Lを採取した(Kofuji & Inoue, 2013)。 (b)は 2012 年 7 月の蒼鷹丸(国立研究開発法人水産研究・教育機構 水産総合研究所)航海での採水 であり、SY-A および SY-B においてロゼット式採水器により水深 5-1000 m から各試料約 60 L 採 取した(Inoue et al, 2014)。(c)は 2012 年 7 月の青森県東方沖測線観測における採水試料であり、 T2-T18 の各点においてバンドーン型採水器により水深 25-500 m から各試料約 100 L 採取した

(賀佐ら, 2017)。(a)、(b)、(c)の全ての試料について採水時に約 200 mL を海水瓶に分取し、実験 室に持ち帰った後にサリノメータ(Guildline Instruments 製 8400B)にて塩分を測定した。 γ 線 放出核種(Cs および Ra 同位体)分析用試料(20-100 L)は、ろ過せずにポリエチレン容器に移 し、試料水 20 L あたり濃硝酸 20 mL を添加して常温保存した。なお、観測(b)では CTD センサ (Seabird 製 SBE9plus)にて、観測(c)では投棄型水温塩分計(鶴見精機製 XCTD)にて、採水地



図 5-1 試料採取地点(●:採水地点、●○:水温塩分観測地点)

- (a) 海岸・沿岸表層試料(2011年5月-2012年3月**)(Kofuji & Inoue, 2013) ※RKは2011年5月-2013年3月に採取。
- (b) 蒼鷹丸調査航海試料(2012年7月)(Inoue et al., 2014)
- (c) 青森県東方沖測線観測試料(2012年7月)(賀佐ら, 2017)

(2) 分析法

全ての試料は、Aoyama ら (2000)の方法に従い、安定 Cs⁺キャリアを添加した後にリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 共沈法によって海水から ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs を回収した。観測(b)試料については、リンモリブデン酸アンモニウムの回収後に Ra 汚染の極めて少ない Ba²⁺キャリアを添加し、BaSO₄共沈法により海水から Ra 同位体を回収した (Inoue & Komura, 2007a)。回収したリンモリブデン酸アンモニウムおよび BaSO₄は、地上レベルの実験室の Ge 半導体検出器 (SEIKO EG&G ORTEC 製 GEM-25185-P) または尾小屋地下測定室の Ge 半導体検出器 (Hamajima & Komura, 2004) で γ 線を測定し、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs および²²⁶Ra、²²⁸Ra を定量した。

5.3 結果および考察

(1) 沿岸表層海水における¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度変動

観測(a)の海岸・沿岸表層試料の134Cs、137Cs分析結果を表5-1に示す。2011年5月には津軽海峡内であるOHを含めた全ての地点で1.1-2.8mBq/Lの134Csが検出された。短半減期の134Csは 福島第一原発事故以前にはチェルノブイリ事故直後(Aoyama & Hirose, 1995)を除いて日本周辺 海域では検出されていなかったものであり、事故直後の広範囲での134Cs検出は、福島第一原発か ら大気中へと放出された放射性核種のフォールアウトが海洋にもたらされた影響と考えられる (Inoue et al, 2012a)。2011年5月-2012年3月の134Cs、137Cs濃度の経時変化を図5-2に示 す。地点OHにでは時間とともに指数関数的に濃度が低下し、2012年3月には134Csは検出限界 以下(<0.03mBq/L)となり、太平洋側に面した地点(OD、RK、TN、HN、MY)では、5-6月 はOHと同様の減少傾向を示した。この減少の要因としては、5月以後は大気からの134Cs、137Cs 降下量が大幅に低下して(青森県, 2012)海面への新たな供給が激減した状況において、海域での 水平方向あるいは鉛直方向への拡散による影響、さらには、太平洋に比べて相対的に134Cs、137Cs 濃度が低い日本海の水(Inoue et al, 2012b)が津軽海峡を経て、太平洋側の採水地点周辺の海域に 供給されたことが考えられる(Kofuji & Inoue, 2013)。

2011 年 7-8 月には太平洋側の採水地点(OD, RK, TN, HN, MY)において、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度 が、どちらも数十 mBq/L と 6 月の濃度の数十倍に上昇し、その後、2011 年 11 月には 2011 年 5-6 月にみられていた減少傾向に戻った(Kofuji & Inoue, 2013)。なお、この 2011 年 7-8 月の濃度 は、同時期の福島第一原発付近の濃度よりも 2-3 桁、茨城県沿岸の濃度と比較しても約 1 桁低い レベルであった(Aoyama et al., 2012)。

2011 年 7-8 月の大気からの ¹³⁴Cs、 ¹³⁷Cs 降下量は、青森県の場合、3-6 月よりも 1-2 桁低下 しているため(青森県, 2012)、海水中濃度上昇の原因としては考えられない。河川水等による陸域 からの ¹³⁴Cs、 ¹³⁷Cs 流出は、海水の ¹³⁴Cs、 ¹³⁷Cs 濃度が上昇した際に塩分の低下が殆どみられない ことから原因としては考えにくい。そのため、海洋における海水の循環によって、比較的 ¹³⁴Cs、 ¹³⁷Cs 濃度の高い水塊が下北半島太平洋岸から三陸海岸周辺に移動してきたと考えられる。 津軽海峡から太平洋に流出する津軽暖流の流路は季節によって変化する。冬から春は沿岸モード と呼ばれる岸に沿った流れのパターン、夏から秋は津軽海峡から東側の沖合に張り出し、時計回り の渦を形成する渦モードと呼ばれる流れのパターンを示す (Conlon, 1982)。青森県太平洋側沖合に おける 2002 年の初夏から夏にかけての流れの観測例(島, 2009)を図 5·3 に示す。6月は沿岸モー ドの流れであったが、7月には津軽暖流が渦を形成し始め、8月にはその渦が拡大している。7月に は時計回りの渦の南東側に沖合から沿岸に向かう流れが現れており、津軽暖流の渦が形成される過 程で生じる、渦の縁に沿った流れによって沖合に分布する水塊の一部が岸近くにまでもたらされた 可能性がある。2011 年 7 月には、北緯 40-41 度、東経 144 度付近において 49-57 mBq/L の ¹³⁴Cs および 60-71 mBq/L の ¹³⁷Cs 濃度が観測されている (Kaeriyama et al., 2013)。太平洋側の採水 地点 (OD, RK, TN, HN, MY)における 2011 年 7-8 月の ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度上昇は、この沖合の水 塊の一部が岸近くにもたらされたことを示唆するものである。なお、第 2 章の 2.4 で述べた六ヶ所 村沿岸における水中 γ 線センサによる連続的な観測データでは、¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度の上昇が、2011 年 7月 27-29 日、8月 2-4 日、8月 9-11 日の 3 回確認された。このことは、沖合の水は幾つか のパッチに分かれて断続的に引き込まれた可能性を示している。

図 5-4 に、RK における 2011 年 5 月-2013 年 3 月の ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の変化を示す。2012 年 6 月末-8 月初めに、¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs 濃度がそれぞれ 0.6-0.9 mBq/L および 2.1-2.8 mBq/L と なっており、6 月初めに比べて、それぞれ 0.5-0.8 mBq/L および 0.6-1.3 mBq/L の濃度上昇がみ られる。2012 年 7 月に北緯 41 度 16 分において東西方向の側線で実施した観測(c)における表層試 料の結果(表 5-3)では、東経 142 度 10-30分では ¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs 濃度はそれぞれ n.d.-0.1 mBq/L および 1.1 mBq/L であるが、より沖合の東経 143 度-144 度では、それぞれ 0.6-1.0 mBq/L および 2.2-2.8 mBq/L となっており、6 月末-8 月初めに RK でみられた ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度にほぼ 等しい。2年続けてみられた同様の傾向は、津軽暖流の渦が形成される時期には、沖合から沿岸へ の水の引き込みが高い頻度で発生することを示唆している。

Sampling	Loc	ation	Depth	Sampling	Salinity	Concentation	on (mBq/L)
site	Ν	E	(m)	(m, d, y)		¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
OH^a	41°31.9'	140°54.2'	0	May 11, 2011	33.27	1.41 ± 0.25	$3.29 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.18$
			0	May 22, 2011	33.06	$1.35 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.18$	$2.94 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.14$
			0	Jun. 3, 2011	33.54	0.85 \pm 0.14	2.54 ± 0.13
			0	Jun. 11, 2011	33.33	0.97 ± 0.14	2.18 ± 0.13
			0	Jun. 17, 2011	33.71	0.47 ± 0.10	2.11 ± 0.10
			0	Jun. 25, 2011	33.33	0.49 ± 0.06	1.90 ± 0.12
			0	Jul. 10, 2011	32.80	0.40 ± 0.10	1.89 ± 0.12
			0	Jul. 19, 2011	33.26	0.29 ± 0.06	1.62 ± 0.07
			0	Aug. 4, 2011	33.59	0.24 ± 0.05	1.66 ± 0.06
			0	Aug. 21, 2011	33.32	0.35 ± 0.07	1.88 ± 0.08
			0	Sep. 4, 2011	33.65	0.16 ± 0.04	1.61 ± 0.07
			0	Sep. 25, 2011	33.02 22.74	0.19 ± 0.03	1.75 ± 0.07
			0	Nov. 3, 2011	32.74	0.07 ± 0.02	1.41 ± 0.04 1.52 ± 0.05
			0	$D_{ec} = 30, 2011$	33.32 33.78	0.09 ± 0.02 0.06 ± 0.01	1.33 ± 0.03 1.48 ± 0.04
			0	Jan 28 2012	33.95	0.06 ± 0.01	1.43 ± 0.04 1.44 ± 0.04
			0	Mar 5 2012	33.69	0.00 ± 0.01	1.44 ± 0.04 1.51 ± 0.05
OD ⁴	41°13 4'	141°24 4'	0	May 22, 2012	33.58	1.05 + 0.14	2.55 ± 0.13
OD^{-}	10.1	<i>2</i>	0	Jun. 5. 2011	33.54	1.03 ± 0.15	2.43 ± 0.14
			0	Jun. 18. 2011	33.60	0.80 ± 0.06	2.10 ± 0.11
			0	Jul. 17, 2011	33.11	0.50 ± 0.08	2.00 ± 0.10
			0	Aug. 21, 2011	33.44	3.49 ± 0.19	5.82 ± 0.23
			0	Oct. 9, 2011	33.22	$4.88 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.17$	$6.95 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.17$
			0	Nov. 3, 2011	33.66	1.12 ± 0.17	2.65 ± 0.15
			0	Dec. 10, 2011	32.67	0.15 \pm 0.02	1.67 ± 0.08
			0	Jan. 28, 2012	33.59	0.37 \pm 0.04	1.79 ± 0.06
			0	Mar. 5, 2012	33.52	$0.27 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.05$	1.60 ± 0.07
TN^{a}	40°25.2'	141°42.8'	0	May 7, 2011	33.62	$2.58 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.30$	3.89 ± 0.20
			0	May 21, 2011	32.71	2.36 ± 0.26	3.63 ± 0.18
			0	Jun. 4, 2011	33.45	1.14 ± 0.10	2.52 ± 0.09
			0	Jun. 19, 2011	33.22	1.07 ± 0.13	2.85 ± 0.16
			0	Jul. 16, 2011	33.05	1.23 ± 0.15	2.44 ± 0.13
			0	Aug. 20, 2011	33.41	17.5 ± 0.64	20.3 ± 0.38
			0	Oct. 1, 2011	32.59	5.05 ± 0.29	6.70 ± 0.19
			0	Oct. 29, 2011	32.99	1.31 ± 0.15	3.12 ± 0.13
			0	Dec. 10, 2011	33.80	0.56 ± 0.07	1.98 ± 0.08
			0	Feb. 5, 2012 Mar. 17, 2012	22.00	0.37 ± 0.03	1.90 ± 0.00
	40°03 4'	141°51 2'	0	May 7 2011	24 59	1.78 ± 0.16	1.08 ± 0.07 2.72 + 0.17
HN-a"	40 05.4	141 51.2	0	May 21 2011	24.57	1.70 ± 0.10 1.68 + 0.14	2.72 ± 0.17 2.73 + 0.17
UNT La	40°03.1'	141°51.9'	0	May 21, 2011	28.56	1.47 ± 0.16	2.79 ± 0.13
HIN-D			0	Jun. 4. 2011	31,41	1.30 ± 0.17	2.67 ± 0.16
			0	Jun. 19, 2011	32.67	1.10 ± 0.17	2.55 ± 0.15
			0	Jul. 16, 2011	33.07	1.02 ± 0.14	2.54 ± 0.14
			0	Aug. 20, 2011	32.70	32.3 ± 0.75	37.1 ± 0.51
			0	Oct. 1, 2011	31.29	$4.78 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.24$	$6.33 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.17$
			0	Oct. 29, 2011	33.52	0.83 ± 0.09	$2.56 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.12$
			0	Feb. 5, 2012	33.28	$0.76 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.10$	$2.35 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.10$
			0	Mar. 17, 2012	33.18	$0.39 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.05$	$1.70~\pm~0.06$
MY-a ^a	39°38.8'	141°58.2'	0	May 7, 2011	23.98	2.78 ± 0.25	3.68 ± 0.16
			0	May 21, 2011	25.36	2.37 ± 0.22	3.48 ± 0.16
			0	Jun. 4, 2011	24.66	1.86 ± 0.16	2.91 ± 0.12
			0	Jun. 19, 2011	33.18	1.51 ± 0.14	2.99 ± 0.12
			0	Jul. 16, 2011	29.98	3.12 ± 0.16	4.64 ± 0.20
	200 10 21	1 410 50 5	0	Aug. 20, 2011	25.82	33.0 ± 0.59	38.2 ± 0.63
MY-b	39°40.3'	141°58.8'	0	Jun. 19, 2011	33.40	1.12 ± 0.16	2.68 ± 0.15
			0	Jul. 16, 2011	33.26	2.61 ± 0.14	4.75 ± 0.17
			0	Aug. 20, 2011	31.10	$3/.4 \pm 0.92$	42.2 ± 0.53
			0	Oct. 1, 2011	33.29 33.61	9.43 ± 0.33	11.3 ± 0.22 2.57 ± 0.15
			0	Eeb 5 2012	33.01	0.55 ± 0.10 0.74 ± 0.00	2.57 ± 0.15 2.30 ± 0.00
			0	Mar 17 2012	33 19	0.74 ± 0.09 0.48 + 0.07	1.75 ± 0.09

表 5-1 観測(a):海岸・沿岸表層海水試料中の¹³⁴Cs および¹³⁷Cs 濃度(RK 試料以外)

Analytical error is based on 1σ of counting statistics.

Concentrations were decay-corrected based on sampling date.

"n.d." denotes "not detected"(<~0.03 mBq/L for 60 L of sample under present analytical conditions).

Sampling	Loc	ation	Depth	Sampling	Salinity	Water	Concentation	on (mBq/L)
site	Ν	Е	(m)	(m/d/y)	(PSU)	(°C)	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
RK	40°57.4'	141°25.0'	0	May. 11, 2011	33.67	9.81	1.26 ± 0.24	2.72 ± 0.17
	40°57.4'	141°25.1'	0	Jun. 7, 2011	33.56	11.94	0.94 \pm 0.19	$2.15 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.15$
	40°58.1'	141°24.9'	0	Jun. 23, 2011	33.64	15.37	1.12 ± 0.19	2.46 ± 0.15
	40°57.3'	141°25.2'	1	Jun. 30, 2011	33.66	14.31	1.35 ± 0.20	3.02 ± 0.20
	40°57.3'	141°25.2'	4	Jun. 30, 2011	33.68	13.94	1.11 ± 0.21	2.55 ± 0.17
	40°57.3'	141°25.2'	9	Jun. 30, 2011	33.62	13.30	1.58 ± 0.20	2.94 ± 0.15
	40°57.3'	141°25.2'	19	Jun. 30, 2011	33.75	13.29	0.81 \pm 0.18	2.44 ± 0.15
	40°57.3'	141°25.2'	39	Jun. 30, 2011	33.78	12.84	0.71 ± 0.18	1.85 ± 0.16
	40°58.2'	141°24.8'	0	Jul. 27, 2011	33.35	20.88	26.6 ± 1.11	28.2 ± 0.74
	40°58.2'	141°24.8'	9	Jul. 27, 2011	33.53	18.13	43.0 ± 1.28	47.0 ± 0.82
	40°57.4'	141°25.0'	0	Jul. 29, 2011	33.30	20.14	18.2 ± 0.86	21.5 ± 0.61
	40°57.4'	141°25.0'	10	Jul. 29, 2011	33.55	18.27	13.9 ± 0.78	16.5 ± 0.54
	40°58.1'	141°24.9'	0	Aug. 12, 2011	33.53	20.50	23.0 ± 0.98	24.5 ± 0.69
	40°58.1'	141°24.9'	10	Aug. 12, 2011	33.57	19.57	24.7 ± 1.08	26.7 ± 0.65
	40°57.3'	141°25.0'	0	Aug. 17, 2011	33.67	20.72	1.65 ± 0.24	3.21 ± 0.17
	40°57.3'	141°25.0'	10	Aug. 17, 2011	33.67	20.66	1.84 ± 0.23	3.33 ± 0.20
	40°58.2'	141°24.8'	0	Aug. 29, 2011	32.46	22.70	7.24 ± 0.42	9.11 ± 0.31
	40°58.2'	141°24.8	10	Aug. 29, 2011	33.43	21.64	5.48 ± 0.38	6.96 ± 0.28
	40°58.1'	141°24.9'	0	Sep. 9, 2011	33.60	22.50	1.43 ± 0.22	3.04 ± 0.19
	40°58.1'	141°24.9'	10	Sep. 9, 2011	33.59	21.72	2.22 ± 0.25	3.77 ± 0.22
	40°57.5'	141°25.0'	0	Sep. 13, 2011	32.60	21.73	1.80 ± 0.23	3.54 ± 0.21
	40°57.5'	141°25.0	10	Sep. 13, 2011	33.56	22.05	1.62 ± 0.23	3.36 ± 0.19
	40°58.2'	141°24.9'	0	Sep. 27, 2011	32.74	20.93	1.28 ± 0.23	2.86 ± 0.20
	40°58.2'	141°24.9'	10	Sep. 27, 2011	33.57	20.49	1.25 ± 0.25	2.90 ± 0.17
	40°57.4'	141°25.1	0	Oct. 19, 2011	33.60	17.86	2.00 ± 0.24	3.32 ± 0.19
	40°57.4'	141°25.1'	10	Oct. 19, 2011	33.60	17.86	2.03 ± 0.25	3.46 ± 0.16
	40°57.5'	141°25.0'	0	Nov. 18, 2011	33.77	15.71	0.60 ± 0.11	2.11 ± 0.09
	40°57.5'	141°25.0	10	Nov. 18, 2011	33.77	15.71	0.62 ± 0.12	2.09 ± 0.11
	40°57.3'	141°25.1'	0	Dec. 2, 2011	33.86	13.66	0.31 ± 0.09	1.86 ± 0.10
	40°57.3	141°25.1	10	Dec. 2, 2011	33.85	13.69	0.36 ± 0.09	1.82 ± 0.06
	40°57.4	141°25.1	0	Dec. 21, 2011	33.88	11.09	0.45 ± 0.06	1.94 ± 0.06
	40°57.4	141°25.1	0	Jan. 17, 2012	33.93	9.11	0.24 ± 0.06	1.62 ± 0.06
	40°57.4	141°25.1	0	Jan. 27, 2012	33.61	7.13	$0.6/\pm 0.10$	2.04 ± 0.09
	40°57.4	141°25.1	9	Jan. 27, 2012	33.61	7.14 5.66	0.59 ± 0.11	1.94 ± 0.09
	40-57.4	141-25.1	0	Mar. 16, 2012	33.59	5.00	0.22 ± 0.06	1.65 ± 0.08
	40-57.4	141-25.1	10	Mar. 16, 2012	33.59	5.11	0.38 ± 0.08	1.82 ± 0.10
	40-57.4	141-25.0	0	May. 9, 2012	33.39	10.50	0.08 ± 0.01	1.46 ± 0.04
	40-57.4	141°25.0	10	May. 9, 2012	33.38 22.49	9.39	0.09 ± 0.02	1.53 ± 0.05
	40 37.4 40°57 4'	141 25.0	10	Jun. 1, 2012	22.64	12.57	0.13 ± 0.02	1.51 ± 0.00
	40 37.4 40°57 3'	141 25.0	10	Juli. 1, 2012	22 72	11.20	0.09 ± 0.02	1.03 ± 0.07
	40 37.3 10°57 2'	141 23.1 1/1025 11	0	Jun 28 2012	33.13	13.91	0.73 ± 0.08 0.58 + 0.08	2.00 ± 0.10 2.07 + 0.10
	40°58 2'	141 25.1	9	$A_{\rm Hg} = 6,2012$	33.00	21.58	0.38 ± 0.08	2.07 ± 0.10 2.70 ± 0.00
	40 58.2 40°58 2'	141 24.9 141°24 0'	10	Aug. 6, 2012	33.40	10.12	0.88 ± 0.05 0.59 ± 0.05	2.79 ± 0.09 2.32 ± 0.10
	40°57.4'	141°25 0'	0	Δμg 27 2012	33.92	24 29	0.05 ± 0.03	1.52 ± 0.10 1.57 ± 0.06
	40°57.4'	141 25.0	10	Aug. 27, 2012	33.03	27.60	0.03 ± 0.02 0.07 + 0.01	1.37 ± 0.00 1.36 ± 0.05
	40°57.4'	141°25.0'	0	Sep 13 2012	33.59	22.00	0.07 ± 0.01 0.12 ± 0.02	1.50 ± 0.05 1.56 ± 0.06
	40°57.4'	141°25.0'	10	Sep. 13, 2012 Sep. 13, 2012	33.79	24.90	0.12 ± 0.02 0.09 ± 0.02	1.30 ± 0.00 1.33 ± 0.05
	40°57 3'	141°25 1'	0	Oct 16 2012	33.64	20.86	0.07 ± 0.02 0.11 + 0.01	1.53 ± 0.05 1.53 ± 0.06
	40°57 3'	141°25 1'	11	Oct 16 2012	33 64	20.87	0.07 + 0.02	1.61 ± 0.06
	40°57 4'	141°25 1'	0	Nov 14 2012	33 53	16 41	0.05 + 0.01	1.38 + 0.04
	40°57 4'	141°25 1'	9	Nov. 14 2012	33.55	16.57	0.08 + 0.01	1.49 + 0.05
	40°57 5'	141°25 0'	ó	Dec 13 2012	33.84	12.40	0.33 + 0.02	1.66 ± 0.05
	40°57 5'	141°25 0'	10	Dec. 13, 2012	33.84	12.36	0.28 + 0.02	1.73 + 0.05
	40°57 5'	141°25 0'	0	Jan 31 2013	33.90	8 76	0.06 + 0.01	1.35 ± 0.04
	40°57 5'	141°25 0'	10	Jan 31 2013	33.90	8 76	0.05 ± 0.01	1.00 ± 0.04 1.42 ± 0.03
	40°58 2'	141°24 9'	0	Mar. 13 2013	33.19	6.32	0.08 + 0.01	1.38 + 0.04
	40°58.2'	141°24.9'	10	Mar. 13, 2013	33.78	6.59	0.08 ± 0.01	1.49 ± 0.03

表 5-2 観測(a):海岸・沿岸表層海水試料中の¹³⁴Cs および¹³⁷Cs 濃度(RK 試料)

Analytical error is based on 1σ of counting statistics.

Concentrations were decay-corrected based on sampling date.





図 5-3 水深 100m における流れ(上図ベクトル)の初夏から夏にかけての変化(2002 年 6 月-8 月) ※島 (2009)の図1を修正



(2) ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の鉛直分布形成過程

観測(b)、(c) による沖合での鉛直多層採水試料の分析結果を表 5-3 および表 5-4 に、 134 Cs、 137 Cs 濃度の鉛直分布を図 5-5 および図 5-6 に示す。水深 0-500 m の範囲における 134 Cs および 137 Cs の 濃度は、それぞれ n.d. -5.5 mBq/L および 0.8 - 9.4 mBq/L の範囲であり、観測(b)、(c)ともに、最 も高い 134 Cs、 137 Cs 濃度は水深約 100 m、26.4 σ tにおいてみられている。

図 5-7 に観測 (b)の ²²⁸Ra 濃度および ²²⁸Ra/²²⁶Ra 放射能比の鉛直分布を示す。日本海では ²²⁸Ra 濃度が太平洋よりも高いため(Kawakami & Kusakabe, 2008)、海水中の ²²⁸Ra 濃度あるいは ²²⁸Ra/²²⁶Ra 放射能比は、日本海の水が津軽海峡を通じて流出した津軽暖流が太平洋の水と混ざり合 う下北半島沖合での水塊のトレーサとして使用することができる(Kofuji & Inoue, 2009)。観測(b) において最も高い ²²⁸Ra 濃度もまた、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs と同じ水深約 100 m、26.4 σ_t においてみられて おり、26.4 σ_t – 26.6 σ_t の範囲では ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs と ²²⁸Ra の双方が高い。²²⁸Ra 濃度に対する ¹³⁴Cs 濃度をプロットすると、両者には相関がみられる(図 5-8)。これは、水塊における津軽暖水の寄与 が高いほど ¹³⁴Cs 濃度も高いことを意味するが、日本海においては 2011 年秋にはほとんどの地点 で ¹³⁴Cs 濃度は検出されなくなっており(Inoue et al., 2012b)、津軽海峡においても ¹³⁴Cs 濃度は れた ¹³⁴Cs のソースがあるとは考えられず、26.4 – 26.6 σ_t の水塊における高い ¹³⁴Cs 濃度形成には 別の過程を考える必要がある。

Hanawa & Mitsudera(1987)の水塊区分に従い、観測 (b)での水温・塩分をT-S ダイヤグラムに プロットした結果を図 5-9 に示す。¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度が最も高い水深約 100 m、26.4 σ_t の水は津軽 暖水に区分される。三陸沖の表層海水の密度は 2-4 月に最も大きな値(~26.5 σ_{θ})をとり、5 月か らは密度が低下していく(Hanawa & Mitsudera, 1987; Oguma et al., 2002; Talley, 1993)。福島 第一原発事故は3月に発生しており、当時は表層海水の密度が最も高い時期であった。このことか ら、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の鉛直分布と ²²⁸Ra 濃度について説明する次のようなシナリオが考えられる。

①2011年3月当時、228Ra 濃度が高く高塩分の性質を持つ、津軽暖水が表層に分布していた。

②そこに、福島第一原発事故に由来する¹³⁴Cs、¹³⁷Cs が、主に大気からのフォールアウトにより 供給された。

③その後季節が進み、表層海水の密度の低下や、他の低密度の水が表面に分布するなどにより、 事故当時の性質を残した 26.5 σ_θ前後の水は水深 100-200 m に分布した。

但し、観測(b)の水深 100 m の ²²⁸Ra 濃度は 0.6-0.8 mBq/L であり、津軽海峡内でみられる濃度 0.9 -2.8 mBq/L (Inoue et al, 2007b) よりも低いため、この水は、津軽海峡からの流出後に太平洋の 水の影響を受けてある程度変質しているものと考えられる。図 5-9 に示す観測(b)での TS ダイヤグ ラムでは、SY12A、SY12B ともに鉛直的に非常に複雑な水塊構造を示している。これは、上記シナ リオの③において、他の水塊への貫入など、非常に複雑な過程があったことを示唆している。

観測(c)を実施した下北半島の沖合海域では、夏季は、高温・高塩分である津軽暖水の下に親潮系の低温・低塩分の水が分布する特徴的な鉛直構造を取る(Rosa et al., 2007)。観測(c)での塩分、水

温、 σ_t の東西断面図を図 5-10 に、T-S ダイヤグラムを図 5-11 に示す。最も西寄りのT2 では水深 300m 弱まで高温・高塩分の津軽暖水が分布するが、T9 より東ではその厚さは 100-150 m 程度と なっている。Hanawa & Mitsudera(1987)の区分ではいずれも津軽暖水に区分されるにもかかわ らず、西寄りの地点に位置し≦26.0 σ_t と相対的に軽いT2 の 1-142m 深およびT4 の 1-132 m 深 では、¹³⁴Cs 濃度が n.d. -0.1 mBq/L と低いのに対し、津軽暖水に区分される水の中でも 26.4 σ_t と 相対的に重いT4 の 211 m 深、T9 の 112 m 深、T13 の 141 m 深、T15 の 128 m 深、T18 の 102 m 深における ¹³⁴Cs 濃度は、1.3-5.5 mBq/L と比較的高い値となっている。このように、区分上は 同じ水塊であっても ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度は異なり、これらは ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の形成過程が異なるも のと考えられる。

この海域に分布する各水塊は、それぞれ特徴的な塩分を持っているため、塩分と放射性物質濃度の関係から水塊同士の影響について識別することが可能と考えられる。塩分と ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の関係を図 5-12 に示す。ここでは、津軽暖水に区分される水を、25.9-26.0 σt と 26.4 σt に分けて示している。親潮系水に区分される 26.6 σt の水と、津軽暖水に分類される水のうち 25.9-26.0 σt のものは、塩分と ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度に直線関係がみられ、この2 つの水塊の混合による塩分と ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の形成が示唆される。しかしながら、密度としては 26.6 σt と 25.9-26.0 σt の間に位置する 26.4 σt の水では塩分と ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の関係が異なっており、26.4 σt の水は単純に上下層に分布する津軽暖水と親潮系水の混合によっては形成されていないことを示している。この原因としては水平方向の貫入のような現象が考えられる。観測(c)でみられた 26.4 σt で ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の高い水(T18-102 m)と、観測(b)でみられた高 ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs で高 ²²⁸Ra の水(SY12A-100 m)は、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度、塩分、σt がほぼ一致することから、同一の起源を持つものと考えられる。T18 と ST12A という離れた 2 点にこの水が分布することは、下北半島から三陸海岸の沖合にかけての中層における広範囲の分布を示している可能性がある。

Sampling	Loc	ation	Depth	Sampling	Water	Salinity		Ū	oncentration (mBq/l	L)	²²⁸ Ra/ ²²⁶ Ri	
site	Z	Е	(m)	date	C) C	(DSU)	ō	^{134}Cs	^{137}Cs	228 Ra	Activity rati	.0
SY12A	37°59'	142°33'	5	Jul. 19, 2012	19.20	33.88	24.11	1.62 + 0.04	3.58 + 0.07	0.46 + 0.06	0.33 ± 0.3	.05
			25	Jul. 19, 2012	14.61	33.68	25.04	1.65 + 0.04	3.71 + 0.07	0.43 + 0.06	0.40 ± 0.0	.07
			50	Jul. 19, 2012	10.93	33.98	26.00	1.67 + 0.04	3.59 + 0.07	0.64 + 0.06	$0.44 \pm 0.$	6
			100	Jul. 19, 2012	8.38	33.98	26.41	5.32 + 0.13	9.21 + 0.20	0.64 + 0.06	0.33 ± 0.33	6
			150	Jul. 19, 2012	7.35	33.88	26.49	3.02 + 0.07	6.03 + 0.12	0.55 + 0.04	$0.26 \pm 0.$	02
			200	Jul. 19, 2012	5.28	33.66	26.58	2.35 + 0.06	4.74 + 0.10	0.51 + 0.03	$0.25 \pm 0.$.03
			300	Jul. 19, 2012	4.25	33.73	26.75	0.56 + 0.03	1.88 + 0.06	0.18 + 0.03	0.07 ± 0.0	01
			500	Jul. 19, 2012	3.62	33.95	26.99	n.d.	0.77 + 0.03	n.d.	1	
			1000	Jul. 19, 2012	3.00	34.36	27.37	n.d.	0.31 + 0.03	n.d.	1	
SY12B	39°39'	142°18'	5	Jul. 21, 2012	17.92	33.60	24.22	1.89 + 0.08	4.25 + 0.14	0.39 + 0.04	$0.32 \pm 0.$	8
			25	Jul. 21, 2012	13.96	33.44	24.99	1.60 + 0.04	3.82 + 0.07	0.41 + 0.05	0.33 ± 0.33	.06
			50	Jul. 21, 2012	10.90	33.72	25.80	1.94 + 0.06	4.36 + 0.10	0.46 + 0.05	$0.36 \pm 0.$.05
			100	Jul. 21, 2012	8.01	33.88	26.39	3.53 + 0.08	6.42 + 0.12	0.80 + 0.06	$0.43 \pm 0.$	8
			150	Jul. 21, 2012	6.23	33.69	26.49	1.79 + 0.04	3.60 + 0.07	0.56 + 0.04	0.30 ± 0.3	.03
			200	Jul. 21, 2012	4.53	33.53	26.57	3.22 + 0.10	6.32 + 0.17	0.58 + 0.04	$0.27 \pm 0.$.03
			300	Jul. 21, 2012	2.52	33.43	26.67	1.00 + 0.02	2.48 + 0.04	0.40 + 0.03	0.15 ± 0.15	.01
The analytic	al error is b	ased on 10 c	of counting	statistics.								
		134~		778	í		•					

観測(b)着鷹丸調査航海による海水試料中の134Cs、137Cs、228Ra 濃度および228Ra/226Ra 放射能比 表 5-3

"n.d." denotes "not detected" ($^{1.34}$ Cs, $\sim 0.03 \text{ mBq/L}$; $^{2.25}$ Ra, $\sim 0.1 \text{ mBq/L}$) under present analytical conditions.

Concentrations are decay-corrected based on sampling date.

Sampling	Depth	Location		Sampling date	Salinity	Water Temp	-	Concentration (mBq/L)		
site	(m)	Ν	Е	(m/d/y)	(PSU)	(°C)	o _t -	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	
T2	1	41° 16.0′	$142^\circ\ 10.0'$	Jul. 26, 2012	33.75	18.90	24.09	$0.10 \hspace{0.1 in} \pm \hspace{0.1 in} 0.03$	$1.08 ~\pm~ 0.03$	
	93			Jul. 26, 2012	34.12	13.95	25.52	$0.05 ~\pm~ 0.01$	1.41 ± 0.03	
	142			Jul. 26, 2012	34.10	11.24	26.03	0.06 ± 0.01	1.38 ± 0.03	
	271			Jul. 26, 2012	34.08	9.13	26.38	$0.55 ~\pm~ 0.04$	$2.10 ~\pm~ 0.06$	
	369			Jul. 26, 2012	33.58	4.60	26.59	1.66 ± 0.07	3.67 ± 0.10	
	419			Jul. 26, 2012	33.60	3.79	26.69	$1.03 ~\pm~ 0.06$	$2.36 ~\pm~ 0.08$	
	438			Jul. 26, 2012	33.63	3.67	26.73	$0.73 ~\pm~ 0.04$	1.92 ± 0.05	
	489			Jul. 26, 2012	33.77	3.26	26.88	$0.10 ~\pm~ 0.01$	$0.84 \ \pm \ 0.03$	
T4	1	41° 16.0'	142° 30.0'	Jul. 25, 2012	33.88	18.00	24.42	n.d.	$1.10 ~\pm~ 0.04$	
	62			Jul. 25, 2012	34.11	13.86	25.53	n.d.	1.25 ± 0.03	
	132			Jul. 25, 2012	34.18	12.10	25.93	n.d.	$1.33 ~\pm~ 0.04$	
	211			Jul. 25, 2012	34.02	8.77	26.38	$1.74 \ \pm \ 0.09$	$4.10 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.13$	
	305			Jul. 25, 2012	33.65	5.15	26.59	$1.24 \ \pm \ 0.06$	$3.23 ~\pm~ 0.09$	
	340			Jul. 25, 2012	33.60	3.53	26.72	$0.77 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.05$	$1.94 ~\pm~ 0.06$	
	389			Jul. 25, 2012	33.77	4.33	26.77	$0.19 ~\pm~ 0.03$	$1.29 ~\pm~ 0.04$	
	440			Jul. 25, 2012	33.88	4.14	26.88	n.d.	$0.83 \ \pm \ 0.03$	
T9	1	41° 16.0'	143° 0.1′	Jul. 24, 2012	32.97	15.41	24.32	$0.68 ~\pm~ 0.04$	$2.15 ~\pm~ 0.06$	
	33			Jul. 24, 2012	33.67	12.40	25.48	$0.56 ~\pm~ 0.03$	$2.08 ~\pm~ 0.05$	
	47			Jul. 24, 2012	33.92	10.70	25.99	$0.57 ~\pm~ 0.04$	$2.26~\pm~0.06$	
	112			Jul. 24, 2012	34.01	8.84	26.36	$2.04 ~\pm~ 0.10$	$4.38 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.15$	
	221			Jul. 24, 2012	33.59	4.72	26.59	1.72 ± 0.09	$4.02 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.14$	
	282			Jul. 24, 2012	33.54	3.40	26.68	$0.91 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.05$	$2.13 ~\pm~ 0.08$	
	329			Jul. 24, 2012	33.61	3.08	26.77	$0.23 ~\pm~ 0.03$	1.21 ± 0.04	
	410			Jul. 24, 2012	33.77	3.27	26.88	$0.08 ~\pm~ 0.01$	$0.81 ~\pm~ 0.03$	
T13	1	41° 16.0'	143° 20.2'	Jul. 24, 2012	33.67	17.07	24.47	0.94 ± 0.05	$2.83 ~\pm~ 0.06$	
	25			Jul. 24, 2012	33.68	15.21	24.91	$0.91 \hspace{0.2cm} \pm \hspace{0.2cm} 0.04$	$2.72 ~\pm~ 0.06$	
	57			Jul. 24, 2012	33.94	11.33	25.89	$0.33 ~\pm~ 0.03$	$1.83 ~\pm~ 0.04$	
	141			Jul. 24, 2012	33.98	8.55	26.39	$1.79 ~\pm~ 0.07$	$4.02 ~\pm~ 0.10$	
	231			Jul. 24, 2012	33.69	5.40	26.59	$1.18 ~\pm~ 0.06$	$3.09 ~\pm~ 0.08$	
	265			Jul. 24, 2012	33.69	4.62	26.68	1.33 ± 0.05	2.95 ± 0.07	
	291			Jul. 24, 2012	33.66	3.40	26.78	0.37 ± 0.04	1.33 ± 0.05	
	332			Jul. 24, 2012	33.83	3.75	26.88	0.11 ± 0.01	0.92 ± 0.03	
T15	1	41° 16.0'	143° 35.0'	Jul. 23, 2012	33.50	16.70	24.43	0.59 ± 0.05	2.15 ± 0.07	
	26			Jul. 23, 2012	33.74	12.96	25.43	0.58 ± 0.04	1.68 ± 0.05	
	43			Jul. 23, 2012	33.99	11.20	25.96	0.28 ± 0.04	1.78 ± 0.05	
	128			Jul. 23, 2012	33.94	8.24	26.41	1.30 ± 0.05	3.29 ± 0.07	
	221			Jul. 23, 2012	33.61	4.78	26.60	1.80 ± 0.07	3.61 ± 0.10	
	272			Jul. 23, 2012	33.56	3.43	26.70	0.77 ± 0.05	2.24 ± 0.07	
	320			Jul. 23, 2012	33.67	3.22	26.80	0.20 ± 0.06	0.98 ± 0.08	
	382			Jul. 23, 2012	33.78	3.34	26.88	n.d.	0.79 ± 0.02	
T18	1	41° 16.2′	143° 59.9'	Jul. 23, 2012	33.36	16.30	24.42	0.99 ± 0.07	2.65 ± 0.11	
-	35			Jul. 23. 2012	33.79	12.95	25.47	0.36 ± 0.04	1.81 ± 0.06	
	45			Jul. 23. 2012	33.74	10.33	25.91	1.03 ± 0.05	2.71 ± 0.07	
	61			Jul. 23. 2012	33.77	9.32	26.10	1.21 ± 0.06	3.17 ± 0.10	
	102			Jul. 23, 2012	33.90	7.91	26.43	5.45 + 0.12	9.44 + 0.20	
	212			Jul 23 2012	33 57	4 56	26 59	1.71 ± 0.08	3.68 ± 0.12	
	350			Jul 23 2012	33.66	3 54	26.77	0.34 + 0.04	1.28 ± 0.06	
	442			Jul. 23, 2012	33.92	4.30	26.90	0.05 ± 0.01	0.83 + 0.04	

表 5-4	観測(·) 青森県東	方沖測線観測に	よろ	海水試料中の	^{134}Cs ^{134}Cs	よてド 137 C s	;濃度
1X 0 1	PUININ		$\mathbf{y} = \mathbf{y} = $	$\sim \sim$	1 HH VI I I * /			

The analytical error is based on 1σ of counting statistics.

"n.d." denotes "not detected" ($^{134}Cs, <\!\!0.05 \ mBq/L)$ under present analytical conditions.

Concentrations are decay-corrected based on sampling date.



図 5-5 観測(b)における ¹³⁴Cs および ¹³⁷Cs 濃度の鉛直分布



図 5-6 観測(c)における 134Cs および 137Cs 濃度の鉛直分布



図 5-7 観測(b) における 228 Ra 濃度および 228 Ra/226 Ra 放射能比の鉛直分布



図 5-8 観測(b) における 228Ra 濃度と 134Cs 濃度の関係



図 5-9 観測 (b)での T-S ダイヤグラム ※水塊区分は Hanawa & Mitsudera(1987)による。



図 5-10 観測 (c)の東西断面における塩分、水温および σt の分布







津軽暖水) $\triangle: 25.9 - 26.0 \sigma_t$ 、×: 26.4 σ_t 親潮系水) ◇: 26.6 σ_t

5.4 まとめ

2011年5月から2013年3月にかけて下北半島から三陸海岸にかけての海岸・沿岸において継続的に採取した試料では、夏季に¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の上昇がみられ、津軽暖流の渦形成過程において沖合の水が渦に沿って沿岸に引き込まれる現象が示唆された。また、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の鉛直分布と水塊分布あるいは天然放射性核種の分布との対応についての調査では、水深100mに位置する津軽暖水に由来すると考えられる水塊において¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度が高いという結果が得られた。この水塊は、福島第一原発事故発生当時の三陸沖海域の表層海水密度と、海洋への¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 供給過程に由来して形成されたものと考えられる。

【第5章の参考文献】

- Aoyama, M. and Hirose, K., 1995. The temporal and spatial variation of ¹³⁷Cs concentration in the Western North Pacific and its marginal seas during the period from 1979 to 1988. J. Environ. Radioactivity, 29, 57-74.
- Aoyama, M., Hirose, K., Miyao, T., Igarashi, Y., 2000. Low level ¹³⁷Cs measurements in deep seawater samples. *Appl. Radiat. Isot.* 53, 159-162.
- Aoyama, M., Tsumune, D., Uematsu, M., Kondo, F., Hamajima, Y., 2012. Temporal variation of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activities in surface water at stations along the coastline near the Fukushima

Dai-ichi Nuclear Power Plant accident site, Japan. Geochem. J., 46, 321-320.

- Conlon, D. M., 1982. On the outflow modes of the TsugaruWarm Current. La Mer. 20, 60-64.
- Hamajima, Y., Komura, K., 2004. Background components of Ge detectors in Ogoya underground laboratory. *Appl. Radiat. Isot.* **61**, 179-183.
- Hanawa, K., Mitsudera, H., 1987. Variation of water system distribution in the Sanriku Coastal area. J. Oceanogr. Soc. Jpn. 42, 435-446.
- Inoue, M., Komura, K., 2007a. Determination of radionuclides in chemical reagents by lowbackground y-spectrometry and application of the coprecipitation method to seawater samples. *Radioisotopes*, 56, 77-82.
- Inoue, M., Kofuji, H., Nakano, Y. and Komura, K., 2007b. Seasonal variation in the 228Ra/226Ra ratio of coastal water within the Seaof Japan: Implications for the origin and circulation patterns of the Tsushima Coastal Branch Current, *Mar. Chem.*, **107**, 559-568.
- Inoue, M., Kofuji, H., Hamajima, Y., Nagao, S., Yoshida, K. and Yamamoto, M., 2012a. ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activities in coastal seawater along Northern Sanriku and Tsugaru Strait, northeastern Japan, after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity*, **111**, 116-119.
- Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Fujimoto, K., Yoshida, K., Suzuki, A., Takashiro, H., Hayakawa, K., Hamataka, K., Yoshida, S., Kunugi, M. and Minakawa, M., 2012b. Low levels of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in surface seawaters around the Japanese Archipelago after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in 2011. *Geochem. J.*, **46**, 311-320.
- Inoue, M., Kofuji, H., Fujimoto, K., Furusawa, Y., Yoshida, K., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y. and Minakawa, M., 2014. Delivery mechanism of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in seawater off Sanriku Coast, Japan, following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J. Environ. Radioactivity, **137**, 113-118.
- Kaeriyama H., Ambe, D., Shimizu, Y., Fujimoto, K., Ono. T., Yonezaki, S., Kato, Y., Matsunaga, H., Minami, H., Nakatsuka,S. and Watanabe, T., 2013. Direct observation of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in surface seawater in the western and central North Pacific after the Fukushima Dai ichi nuclear power plant accident. *Biogeosciences*, **10**, 4287-4295.
- Kawakami, H., Kusakabe, M., 2008. Surface water mixing estimated from ²²⁸Ra and ²²⁶Ra in the northwestern North Pacific. J. Environ. Radioactivity, 99, 1335-1340.
- Kofuji, H., Inoue, M., 2009. Distributions of Ra-226, Ra-228 in surface seawater off Shimokita Peninshula, Japan. In: Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences, 98-105.
- Kofuji, H., Inoue, M., 2013. Temporal variations in ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs concentrations in seawater along the Shimokita Peninsula and the northern Sanriku coast in northeastern Japan, one year after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity*,

124, 239-245.

- Oguma, S., Suzuki, T., Nagata, Y., 2002. Seasonal variations in the sea off Sanriku Coast. J. Oceanogr. Jpn. 58, 825-835.
- Rosa, A. L., Isoda, Y., Uehara, K., Aiki, T., 2007. Seasonal variations of water system distribution and flow patterns in the Southern sea area of Hokkaido, *J. Oceanogr.* **63**, 573-588.
- Talley, L.D., 1993. Distribution and formation of north Pacific intermediate water. J. Phys. Oceanogr. 23, 517-537.
- 青森県, 2012. 原子力施設環境放射線調査報告書 平成 23 年度報, https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/files/H23annual_report.pdf
- 賀佐信一,小藤久毅, 久慈智幸, 2017. 青森県尻屋埼東方海域における¹²⁹I及び¹³⁴Cs, ¹³⁷Csの分布. 保健物理, **52**, 171-178.
- 島茂樹, 2009. 青森県周辺における放射性各種の挙動に影響を与える海況について, *放射線科学*, 52, 3, 40-47.

第6章 まとめ

潮流や海底の状況など局所的な現象の影響による変化が大きいと考えられる沿岸海域に おいて、時間的または空間的に連続したデータが取得可能な in-situ y 線スペクトロメトリ ーにより、海洋環境において放射性核種の挙動に関するデータの取得を確実かつ高い信頼 性で実施できるよう、実際の海洋環境で取得したデータを元にデータ取得手法およびデー タ解析手法について検討した。

放射線センサを搭載した海洋観測ブイにおける in-situ y 線スペクトロメトリーで、解析 に足る精度・信頼性のデータを取得するための基礎として、海洋環境での長期の観測データ を元に自然変動による y 線計測テータの変化の特徴について整理した。また、その基礎情報 を元に、低計数率で散乱線の影響が大きいという特徴を持つ海水中での計測データから、福 島第一原子力発電所事故に由来する ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度変動を高感度で弁別する方法につい て検討した。水中放射線センサデータから推定した結果では、現実的に実施可能な採水間隔 での海水試料の分析では把握が困難な、短い時間スケールでの複数回の濃度上昇と低下の 状況が捉えられており、ブイを用いた in-situ y 線測定が、海洋環境における原子力事故由 来の人工放射性核種の動態解析に有効であることが確認された。

海洋観測ブイによる in-situ γ 線データの海洋における物質の挙動解明への応用として、 降水中に含まれる短寿命天然放射性核種(²¹⁴Pb、²¹⁴Bi)をトレーサとして用いた海洋表層 付近における鉛直的な混合・拡散現象の解析への適用を試みた。

係留式ブイにおける深度別の連続的な γ 線測定により、海洋表層数 m における鉛直混合 についての解析を実施した。降水時という限定された条件ではあるが、風速<2 m/s の場合 は ²¹⁴Pb+²¹⁴Bi 濃度上昇ほぼ 1 m 深センサに限られ、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi の下方への広がりは確認 されず、風速>8 m/s になると、少なくとも 4m 深までは ²¹⁴Pb、²¹⁴Bi の寿命よりも十分短 い時間で混合されていた。風による混合の影響を見かけの鉛直拡散係数に換算すると、この 違いは 10¹ cm²/s 以下から 10³ cm²/s 程度であり、この変化が短時間で生じることが分かっ た。大気からの沈着により海洋へともたらされた放射性核種の濃度を推定する上で、このよ うな気象による鉛直混合状況の変化は重要な要素と考えられる。

海底での in-situ y 線スペクトロメトリーとしては、人工放射性核種濃度分布の把握を効率的に行う上での基礎として、福島第一原発事故の影響がみられる海域において水中 y 線測定システムを用いた試験を実施し、測定における精度およびデータの安定性について検討した。詳細な分布を把握するための方法の検討として、福島第一原発事故で放出された放射性核種の特徴を踏まえて最小限の成分を仮定し、散乱線を含めた y 線スペクトル全体のデータを用いた解析について検討した。この方法では、光電ピークカウントから濃度を算出する通常の手法に比べ、約 1/3 の積分時間のデータで ¹³⁴Cs+¹³⁷Cs 濃度が算出でき、水平分布を高い空間分解能で把握する上で有効であることを確認した。

また、γ線放出核種であり、福島第一原子力発電所事故により環境中にもたらされた主な 核種である¹³⁴Cs、¹³⁷Cs について、下北半島から三陸海岸の沿岸・沖合の海域における濃度 変化とその要因について解析した。

海岸・沿岸において継続的に採取した試料では、夏季に ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度の上昇がみら れ、津軽暖流の渦形成過程において沖合の水が渦に沿って沿岸に引き込まれる現象が示唆 された。また、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の鉛直分布と水塊分布あるいは天然放射性核種の分布との対応 についての調査では、水深 100 m に位置する津軽暖水に由来すると考えられる水塊におい て ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度が高いという結果が得られた。この水塊の ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度は単純な 隣接する水塊の混合では説明できず、水平方向の貫入のような現象の可能性が考えられた。 このような、水塊と ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 濃度分布の関係は、福島第一原発事故発生当時の三陸沖海 域の表層における津軽暖流の影響を受けた水の分布とそのときの表層海水密度、さらに事 故後の海中における ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の輸送過程に由来して形成されたものと考えられた。

謝 辞

本研究の遂行にあたり長期に渡って終始ご指導と暖かい激励を頂きました金沢大学環日 本海域環境研究センター 井上睦夫准教授、並びに長尾誠也教授、金沢大学 山本政儀名誉 教授に心より感謝申し上げます。海洋放射線計測についてのご指導および福島第一原子力 発電所事故後の調査について多くのご助言を頂きました故 岡野眞治博士に謹んで感謝申 し上げます。

本研究の機会を与えてくれた公益財団法人日本海洋科学振興財団並びに研究実施に協力 頂きました同財団の職員諸氏に深く感謝致します。放射能測定についてご助言を頂いた金 沢大学環日本海域環境研究センター 濱島靖典准教授に感謝申し上げます。また、環境放射 線計測について、金沢大学 故 小村和久名誉教授より頂きましたご指導がこの研究の基礎 となりました。記して感謝申し上げます。

本論文を構成する、第2章、第3章および第5章の一部は、青森県より公益財団法人日 本海洋科学振興財団が受託し実施した「六ケ所村沖合海洋放射能等調査」による成果である。 また、第4章の海上試験は一般財団法人新技術振興渡辺記念会からの助成(平成24年度上 期および平成25年度下期)により実施したものである。記して謝意を表する。