

GSJ におけるエアロゾル中放射性核種の 2013 年観測と再飛散に関する検討

金井 豊

Yutaka Kanai (2014) Observation of radionuclides transported with aerosols at the GSJ in 2013 and investigation of their re-suspension, *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol.65(11/12), p.145-155, 10 figs, 2 tables.

Abstract: In order to obtain the geochemical knowledge of material cycle as a tracer and to contribute the concern of inhabitant about safety after the accident of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP), the aerosol observation at the Geological Survey of Japan, AIST (GSJ) was continued and the new data in 2013 are reported in this paper. The Cs radioisotopes in aerosols increased a little in March 2013, then decreased from April. Those in 2012 also decreased in April, when the southerly wind often blew instead of northerly wind and rainy day increased. These facts suggest the change of weather conditions is one of controlling factors. The re-suspension of deposited particles by strong wind was thought to be more important mechanism after 2012 than the transport from the FDNPP. The Cs-137 concentration and Cs-137/Pb-210 ratio were thought to be useful parameters suggesting the re-suspension.

Keywords: Aerosol, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Cs-134, Cs-137, Pb-210, Be-7, Geological Survey of Japan, Observation in 2013, Weather condition, Re-suspension

要 旨

物質循環のトレーサーとしての地球科学的知見を得ると同時に、福島第一原子力発電所事故後の地域住民の不安感の払拭にも貢献するため、産業技術総合研究所地質調査総合センター (GSJ) においてエアロゾル中の放射性核種の観測を 2013 年も継続して行った。前報告(本誌, vol.63(3/4) p.107-118, 及び vol.64(5/6), p.139-150)に引き続き 2013 年 1 月から 2013 年 12 月までの観測データを報告する。放射性 Cs 同位体のエアロゾル濃度は、2013 年は 3 月頃に幾分高まったが、4 月以降は幾分低下傾向を示した。2012 年も同様に 4 月頃より低下しており、北よりの風から南よりの風になり降雨の日が多くなった気象条件の変化が変動因子の一つと考えられた。2012 年以降は原発からの影響よりも観測点周辺に沈積した粒子の再飛散と移動による影響因子が相対的に重要と考えられ、Cs-137 濃度と Cs-137/Pb-210 比との関係が再飛散を示唆する有効なパラメータの一つとなる可能性があると考えられた。

1. はじめに

東北地方太平洋沖地震(2011 年 3 月 11 日 14 時 46 分, M 9.0)とその後の大津波によって起きた東京電力株式会社

福島第一原子力発電所 (FDNPP) の事故は、これまでにない環境放射能汚染をもたらし、ヨウ素-131 (I-131) やセシウム-137 (Cs-137) などの大量の人工放射性核種が環境中に放出された(例えば、内閣官房内閣広報室, 2011; 経済産業省, 2011)。GSJ では、事故後の放射性核種のモニタリングとして、また環境中の放射性核種の動態を解明する研究の一環として、事故後 20 日経過した 3 月末から大気中エアロゾル中の放射性核種の観測を継続し、これまで 2011 年、2012 年の観測結果をそれぞれ報告してきた (Kanai, 2012; 金井, 2012a; 2012b; 2013; 金井ほか, 2013)。

前報においては、エアロゾル中の人工放射性核種濃度は発生源での放出量変化やサンプリング期間中の雨量・風向などの気象条件によって変動すると考えて検討してその影響を明らかにし (金井, 2012a)、さらに、濃度の変動要因をより明らかにするため、後方流跡線解析の適用を試みた (金井, 2013; 金井ほか, 2013)。

本報告では、金井ほか (2013) 以降も継続して行ったエアロゾル中放射性核種の観測について、2013 年の結果を報告すると共に、事故後の大放出がある程度取まってからの観測結果に対して、一度堆積したダストが再浮遊して飛散する可能性とその解明に関する検討結果を報告する。

第1表 GSJにおける2013年のエアロゾル採取日とエアロゾル中の放射性核種の濃度。核種濃度の誤差は放射線の計数誤差による。

Table 1 Aerosol sampling dates and radioactive nuclide concentrations in aerosols collected at the GSJ in 2013. Errors of concentration are calculated from statistic counting errors.

No.*	Start		Stop		Volume (m ³)	Activity (Bq / m ³)			
	Y / M / D	H : M	Y / M / D	H : M		Cs-134	Cs-137	Be-7	Pb-210
						605 keV	662 keV	478 keV	46.5 keV
98	2012/12/26	10:45	2013/1/10	11:01	21616	1.6E-05 ± 1E-06	2.7E-05 ± 2E-06	3.2E-03 ± 3E-05	5.4E-04 ± 4E-05
99	2013/1/10	11:03	2013/1/23	15:28	18985	2.6E-05 ± 1E-06	4.7E-05 ± 2E-06	3.6E-03 ± 4E-05	6.4E-04 ± 3E-05
100	2013/1/23	15:30	2013/2/7	10:12	21282	2.1E-05 ± 1E-06	3.8E-05 ± 2E-06	3.7E-03 ± 4E-05	6.5E-04 ± 4E-05
101	2013/2/7	10:14	2013/2/20	14:57	19003	2.6E-05 ± 1E-06	4.4E-05 ± 1E-06	4.1E-03 ± 3E-05	8.2E-04 ± 3E-05
102	2013/2/20	14:58	2013/3/6	12:03	19985	2.0E-05 ± 1E-06	3.9E-05 ± 2E-06	5.2E-03 ± 5E-05	7.1E-04 ± 4E-05
103	2013/3/6	12:05	2013/3/11	11:50	7185	5.0E-05 ± 2E-06	9.2E-05 ± 2E-06	8.1E-03 ± 4E-05	1.1E-03 ± 3E-05
104	2013/3/11	11:52	2013/3/18	10:15	9983	5.4E-05 ± 3E-06	8.8E-05 ± 4E-06	9.0E-03 ± 8E-05	1.1E-03 ± 9E-05
105	2013/3/18	10:18	2013/3/26	10:17	11519	2.9E-05 ± 1E-06	5.6E-05 ± 2E-06	8.2E-03 ± 5E-05	1.1E-03 ± 4E-05
106	2013/3/26	10:19	2013/4/8	10:20	18721	8.2E-06 ± 9E-07	1.7E-05 ± 1E-06	2.9E-03 ± 3E-05	5.6E-04 ± 2E-05
107	2013/4/8	10:23	2013/4/19	15:09	16126	2.0E-05 ± 1E-06	3.7E-05 ± 1E-06	7.3E-03 ± 4E-05	7.9E-04 ± 3E-05
108	2013/4/19	15:13	2013/5/1	11:05	17032	1.3E-05 ± 1E-06	2.1E-05 ± 2E-06	5.7E-03 ± 6E-05	6.7E-04 ± 4E-05
109	2013/5/1	11:07	2013/5/15	16:25	20478	1.4E-05 ± 1E-06	2.6E-05 ± 1E-06	3.0E-03 ± 3E-05	3.7E-04 ± 3E-05
110	2013/5/15	16:28	2013/5/29	9:58	19770	1.6E-05 ± 1E-06	3.3E-05 ± 1E-06	3.6E-03 ± 3E-05	4.6E-04 ± 2E-05
111	2013/5/29	10:00	2013/6/12	11:52	20272	1.3E-05 ± 9E-07	2.3E-05 ± 1E-06	5.8E-03 ± 3E-05	6.9E-04 ± 3E-05
112	2013/6/12	11:53	2013/6/26	9:45	20032	8.3E-06 ± 8E-07	1.7E-05 ± 1E-06	3.1E-03 ± 3E-05	4.5E-04 ± 2E-05
113	2013/6/26	10:00	2013/7/10	14:42	20442	1.1E-05 ± 1E-06	1.7E-05 ± 2E-06	3.2E-03 ± 3E-05	4.4E-04 ± 3E-05
114	2013/7/10	14:44	2013/7/19	11:26	12762	1.5E-05 ± 1E-06	3.1E-05 ± 3E-06	3.3E-03 ± 4E-05	6.4E-04 ± 5E-05
115	2013/7/19	11:28	2013/8/1	17:08	19060	1.2E-05 ± 8E-07	2.2E-05 ± 1E-06	2.4E-03 ± 3E-05	4.8E-04 ± 2E-05
116	2013/8/1	17:10	2013/8/14	10:27	18317	1.2E-05 ± 1E-06	2.4E-05 ± 2E-06	2.6E-03 ± 3E-05	1.0E-03 ± 4E-05
117a	2013/8/14	10:29	2013/8/28	11:53	20244 1)	1.1E-05 ± 9E-07	2.0E-05 ± 1E-06	3.7E-03 ± 3E-05	9.6E-04 ± 3E-05
117b	2013/8/14	11:56	2013/8/28	11:57	20161 1)	1.2E-05 ± 7E-07	2.4E-05 ± 1E-06	4.5E-03 ± 3E-05	1.2E-03 ± 2E-05
118a	2013/8/28	11:55	2013/9/11	14:05	20290 1)	8.2E-06 ± 9E-07	1.6E-05 ± 1E-06	2.8E-03 ± 3E-05	5.6E-04 ± 3E-05
118b	2013/8/28	12:14	2013/9/11	14:08	20274 1)	9.9E-06 ± 6E-07	2.1E-05 ± 9E-07	3.4E-03 ± 2E-05	5.7E-04 ± 2E-05
119	2013/9/11	14:07	2013/9/25	10:42	19955	6.5E-06 ± 1E-06	1.6E-05 ± 1E-06	5.0E-03 ± 4E-05	6.2E-04 ± 3E-05
120	2013/9/25	10:44	2013/10/10	14:43	21325 2)	1.1E-05 ± 9E-07	2.6E-05 ± 1E-06	4.3E-03 ± 4E-05	4.6E-04 ± 2E-05
121	2013/10/10	14:44	2013/10/22	13:21	16528 3)	8.6E-06 ± 8E-07	1.4E-05 ± 1E-06	2.6E-03 ± 2E-05	4.5E-04 ± 2E-05
122	2013/10/22	13:23	2013/11/6	13:51	21628	7.1E-06 ± 6E-07	1.5E-05 ± 1E-06	4.7E-03 ± 3E-05	8.1E-04 ± 2E-05
123	2013/11/6	13:52	2013/11/20	10:17	19945	8.6E-06 ± 8E-07	1.4E-05 ± 1E-06	4.3E-03 ± 3E-05	7.3E-04 ± 2E-05
124	2013/11/20	10:20	2013/12/4	13:20	20340	9.7E-06 ± 8E-07	2.1E-05 ± 1E-06	3.7E-03 ± 3E-05	6.0E-04 ± 2E-05
125	2013/12/4	13:21	2013/12/16	11:45	17184	1.3E-05 ± 7E-07	3.1E-05 ± 1E-06	3.4E-03 ± 2E-05	5.3E-04 ± 2E-05
126	2013/12/16	11:47	2013/12/26	10:38	14331	8.9E-06 ± 8E-07	1.9E-05 ± 1E-06	2.5E-03 ± 2E-05	3.4E-04 ± 2E-05

* "No." continues from Tables in the previous reports (Kanai, 2012a; Kanai et al., 2013)

- 1) Two samples were taken nearly at the same time using two HV samplers
- 2) HV sampler stopped during electric power failure on 6 October
- 3) HV sampler stopped during electric power failure on 20 October

2. 試料と実験装置

試料採取や測定に用いた手法・装置等は、前報(Kanai, 2012; 金井, 2012a; 2012b; 2013; 金井ほか, 2013)と同様であるため、簡単な記述にとどめる。ポリフロンフィルター (ADVANTEC製PF040; 約25 cm × 20 cm × 0.95 mm厚) を、GSJ第7事業所7-8棟の屋上(地上14 m)に設置されたハイボリュームエアサンプラー (HV-1000F, Shibata Scientific Co., Ltd.) にセットし、試料採取時間を2週間前後に設定して採取した。各試料の採取開始時間、

終了時間、採取空気量などを第1表の左欄に示した。なお、8月から9月にかけて2回のサンプリング時に、予備のサンプラーもほぼ同時間稼働させてエアロゾルを採取し、採取・測定における再現性のチェックを行った(試料No.117a,bとNo.118a,b)。

エアロゾルを採取したフィルターは、1/16のサイズに折りたたんでポリエチレン袋に封入し、更にポリエチレン容器に入れて放射能測定に供した。放射能測定は、井戸型Ge半導体検出器を備えたMCA7600システム(金井, 2012a)を使用し、概ね1日から4日間測定した。2013

No.		Cs-134	Cs-137	Be-7	Pb-210	Average of deviation
117	Average (Bq/m ³)	1.1E-05	2.2E-05	4.1E-03	1.1E-03	11.3%
	Deviation	8.2%	10.7%	13.1%	13.3%	
118	Average (Bq/m ³)	9.1E-06	1.9E-05	3.1E-03	5.7E-04	11.4%
	Deviation	13.0%	18.7%	12.4%	1.6%	
Average of deviation		10.6%	14.7%	12.8%	7.5%	
±		3.4%	5.6%	0.5%	8.2%	
Overall average			11.4%			
±			4.9%			

第2表 観測における再現性チェック
Table 2 Reproducibility of observations of radioactive nuclides in aerosols.

年に観測された主な放射性核種は、半減期の長いセシウム-134 (Cs-134; 半減期: 2.06年)とセシウム-137 (Cs-137; 30.2年), 天然放射性核種のベリリウム-7 (Be-7; 53.3日)とウラン系列・トリウム系列の娘核種に過ぎない。これらのうち、地球化学的に有用なCs-134, Cs-137, Be-7, 鉛-210 (Pb-210; 22.3年)について、それぞれ605 keV, 662 keV, 478 keV, 46.5 keVのピークを崩壊補正して、サンプリングの開始時間における空気中核種濃度 (Bq/m³)として定量した。

3. 結果と考察

3.1 2013年におけるエアロゾル中の人工放射性核種の観測結果

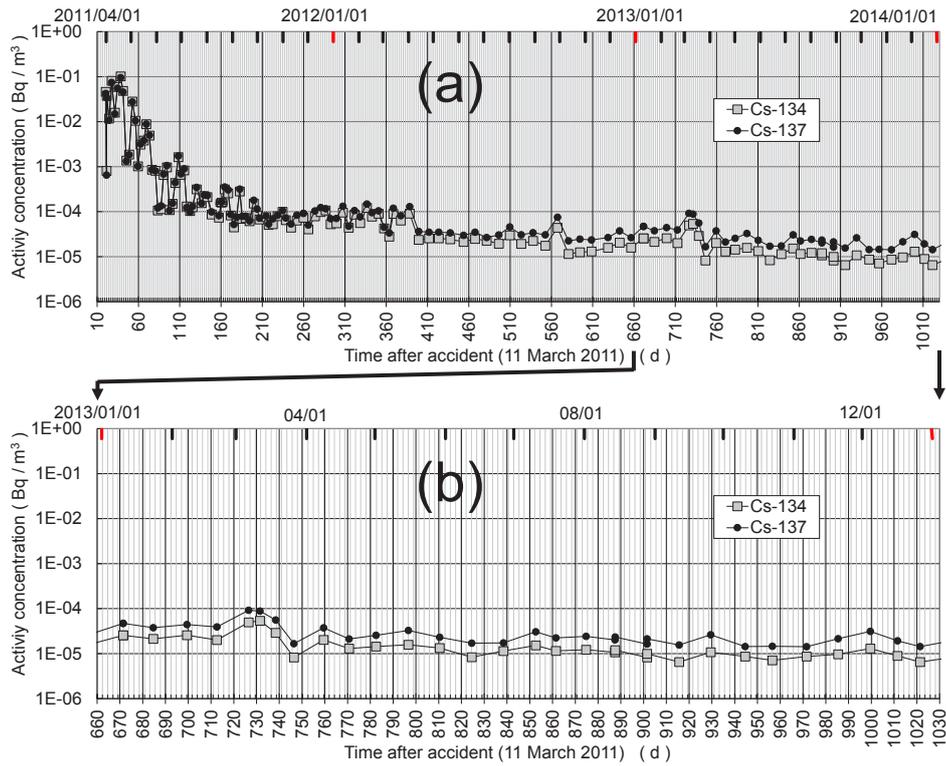
はじめに、観測データの再現性について述べる。2013年8月-9月のバックグラウンドに近い低濃度時における、ほぼ同時期に採取した2試料(2台の装置を使用して、1回目は試料No.117aとNo.117b, 2回目はNo.118aとNo.118b)の観測結果は、核種によって、また回によってばらつきの度合いが異なっており、4核種の2観測期間における各装置間の相対偏差は、1.6%から19%までの広がりを見せた(第2表参照)。また、全体の8回の対比では、平均で(11±5)%の再現性であり、標準線源における不確かさでも±3~6%程度(k=2)が一般的であることから(山田・中村, 2005), バックグラウンド濃度レベルのサンプリングから計測までを含めた実試料での結果としては、この再現性はほぼ妥当な数値と考えられる。

2013年1月から12月末までのGSJにおける放射性セシウム同位体の観測結果を、第1表中欄および第1図に示す。2011年と2012年の観測結果は金井(2012a)と金井ほか(2013)でそれぞれ報告済みであり、第1図(a)では、2011年からの観測結果をまとめて表示している。放射性セシウム同位体の濃度は、2011年の4月頃から比べると10月頃には3桁ほど低下して10⁴ Bq/m³前後の濃度レベルを保ちながらその後は変化してきたが、2012年の4月中旬あたりから約半分のレベルに低下した。2013年は3

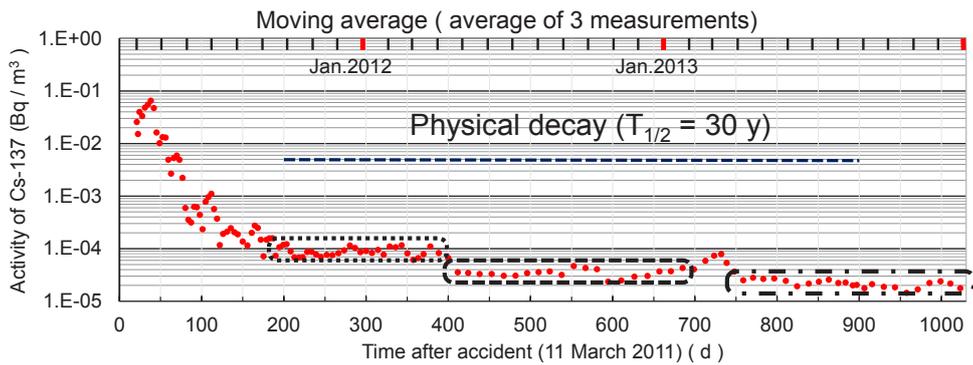
月頃に高まったが、その後は変動を有するものの、4月以降は幾分低下傾向が認められている。

この様子をもう少し明らかにするために、Cs-137についての3回の観測値を平均して移動平均をとった変化図を第2図に示した。この図から、時間に伴う連続的な減少ではなく、2011年の秋頃からと2012年、2013年の春頃から、それぞれ段階的に低下している様子が明らかである。これは、半減期が30年というCs-137の放射壊変による減少では説明できない(第2図の直線は物理的半減期による減衰の速度を示す)。FDNPPでの放出量は、2011年12月に6×10⁷ Bq/hであったが、2012年の9月には1×10⁷ Bq/hと下がり、その後も安定状態であることから2013年12月の評価でも1×10⁷ Bq/hの放射性物質の放出としている(経済産業省, 2011; 東京電力株式会社, 2012; 原子力規制委員会, 2013)。しかし、放出量が減少したとはいえFDNPPから継続して放出されている状況下では、増加することはあってもこのように大きく減少することは説明できない。

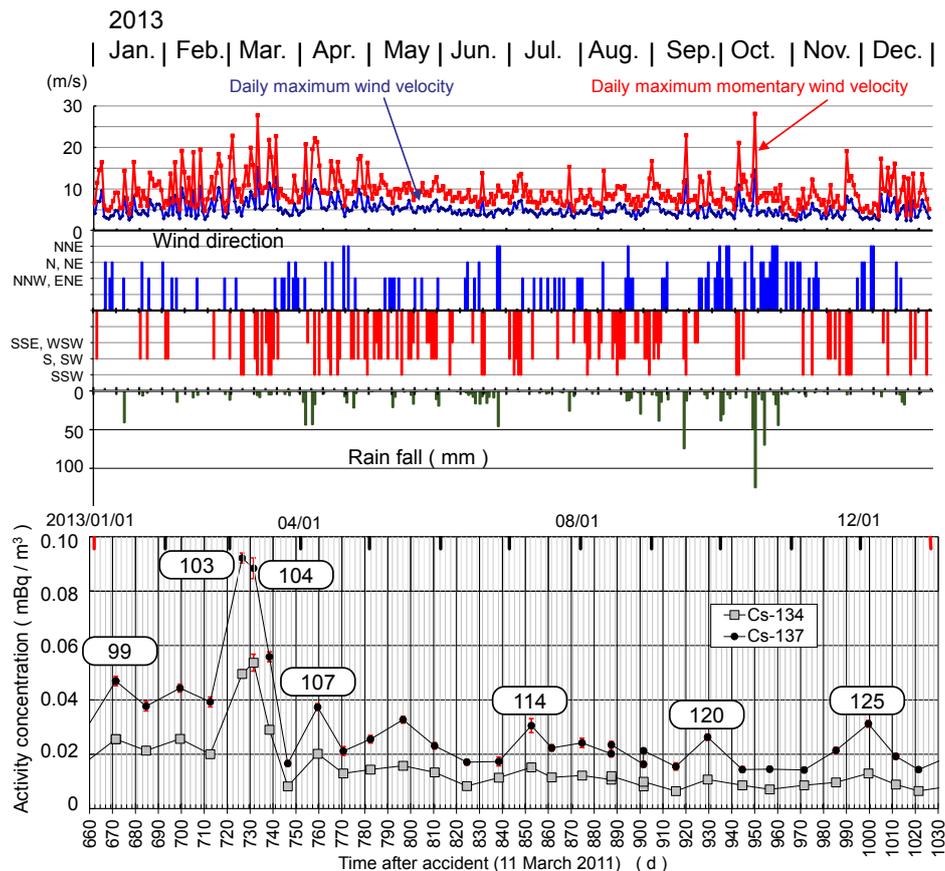
前報告(金井ほか, 2013)では、2012年春頃の段階的な減少は、4月以降の北よりの風から南よりの風が変わって多雨となった気候条件の変化により、FDNPPを經由した高濃度の空気塊の到来が少なく、また降雨の影響で空気中濃度が低濃度となったためと説明された。第3図には、2013年の放射性セシウム同位体の濃度変化と日々の気象条件(つくば(館野)における降雨量, 最大風向, 最大風速, 最大瞬間風速など)の変化(気象庁, 2014a)を示した。「最大瞬間風速」は瞬間風速(3秒間平均)の最大値で、「最大風速」は平均風速(10分間)の最大値である。第3図から示されるように、2013年春頃の減少もそのような南よりの風の日の増加という気象条件の変化と同期しており、観測された濃度変化に影響を与えた因子の一つと考えられる。また、濃度の高まりが観測されたNo.114やNo.120は、北よりの風が優位な時期の試料であるが、2013年は2011年に比べるとFDNPPからの放出濃度はかなり減少しており、風向による影響は以前よりも少なくなっていると考えられる。



第1図 GSJにおけるエアロゾル中の人工放射性核種(Cs-134, Cs-137)の濃度変化。(a)2011年4月～2013年12月
 (b)2013年1月～2013年12月
 Fig. 1 Temporal concentration of artificial radionuclides (Cs-134, Cs-137) collected at the GSJ. (a)From April 2011 to December 2013, (b) From January 2013 to December 2013



第2図 Cs-137における3回観測値を用いた移動平均の時間変化。
 Fig. 2 Moving average concentration of Cs-137 using 3 measurement data.



第3図 GSJにおける2013年に観測された放射性Cs同位体の濃度変化とつくば(館野)における気象変化。

Fig. 3 Variations of radioactive Cs isotopes in aerosols collected at the GSJ in 2013 and weather condition in Tsukuba (Tateno).

一方、その間の8月には、FDNPPから北西方向の相馬市、南相馬市などで当時の観測値の6倍から数10倍以上の高濃度のエアロゾルが報告されており(朝日新聞, 2014; 河北新報, 2014), これはFDNPPにおける8月12日および8月19日における作業員の身体汚染をもたらした3号機原子炉建屋の上部がれき撤去作業に伴うがれきの飛散(東京電力株式会社, 2013; 原子力規制委員会, 2014)によるものと考えられている。しかし、本研究の観測地点であるGSJは地理的に北西ではなく南南西方向にあり、また、サンプリングは2週間平均であるためにわずかな数時間の事象変動は検出困難ということもあり、第3図では大きな変動は見られておらず、GSJでの観測結果に影響はほとんど無かったものと考えられる。

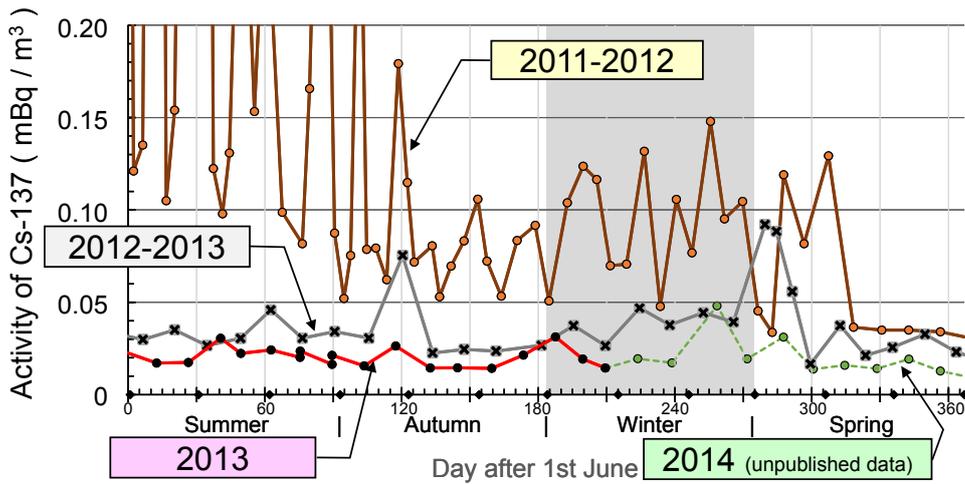
第4図は、6-8月を夏季、9-11月を秋季、12-2月を冬季、3-5月を春季として季節ごとの変動を示したものである(一部に未公表データを使用)。これを見ると、Cs-137は北よりの季節風が卓越する冬季にかけて増加し、北よりの季節風の影響を受けている傾向が2011年、2012年とあったことを伺わせている。しかし、前述したようにその影響は次第に小さくなっており、2013年～2014年は

更に小さく、それほど顕著ではない。

2013年の観測結果の特徴の一つとして、3月に高濃度の観測日(試料No.103-105)があったことが上げられる。No.103の観測期間の3月10日は、最大瞬間風速が20 m/s(風向はW; 以下同様)の強風が吹き荒れて視界が遮られるような気象状況で、気象上は「煙霧」とされている。煙霧の定義は「乾いた微粒子により視程が10km未満となっている状態」とされ(気象庁, 2014b), 微粒子が舞い上げられて空气中に漂っていることになる。また、No.104とNo.105の観測期間に当たる13日には最大瞬間風速が28 m/s(SSW)にもなり、18日(22 m/s, SSW), 21日(23 m/s, NW)も強風であった。このような強風は、西よりや南よりの風であることから、FDNPPからの放出物を運んできたというよりは、観測地点周辺の微細な粉塵を巻き上げて高濃度となったと考えられる。このような再飛散に関することは、章を改めて検討する。

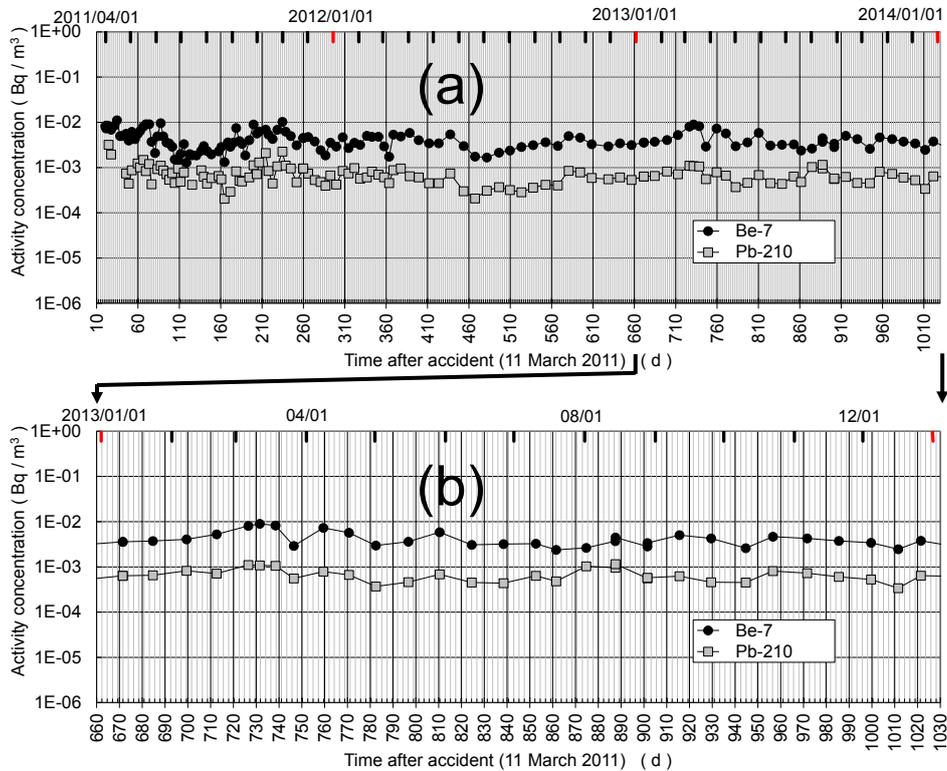
3.2 エアロゾル中の天然放射性核種の2013年変動

エアロゾル中の天然放射性核種であるPb-210とBe-7の観測結果を、第1表右欄および第5図に示す。Pb-210は0.3

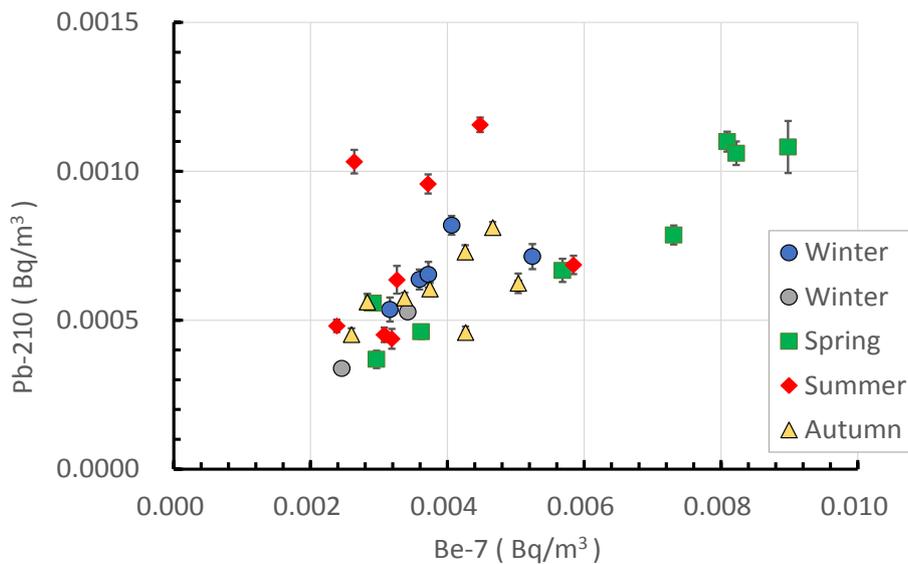


第4図 季節ごとのエアロゾル中Cs-137濃度の変動. 夏：6-8月，秋：9-11月，冬：12-2月，春：3-5月.

Fig. 4 Seasonal variations of Cs-137 concentrations. Summer: from June to August, Autumn: from September to November, Winter: from December to February, Spring: from March to May.



第5図 GSJにおけるエアロゾル中のBe-7, Pb-210の濃度変化. (a)2011年4月～2013年12月 (b)2013年1月～2013年12月
 Fig. 5 Temporal concentration of Be-7 and Pb-210 collected at the GSJ. (a)From April 2011 to December 2013, (b) From January 2013 to December 2013



第6図 2013年における季節ごとのBe-7とPb-210濃度の関係.

Fig.6 Seasonal correlation between Be-7 and Pb-210 in aerosols collected at the GSJ in 2013.

— 1.2 mBq/m³ (平均0.7 mBq/m³), Be-7は2.4—9.0 mBq/m³ (平均4.3 mBq/m³)の範囲にあり, 昨年よりも幾分高めに変動したが(2012年の平均は, Pb-210:0.6 mBq/m³, Be-7:3.6 mBq/m³), 2011年ほどではなかった(2011年の平均は, Pb-210:0.9 mBq/m³, Be-7:4.8 mBq/m³). また, 年内変動については, 2011年は短時間で時間分解能の高い観測結果であったのに対し, 2012年と2013年は約2週間 にわたる観測結果であったことから日々の変動が平均化され, 相対変動も2011年は53%~62%であったのに対し, 2012年と2013年は32%~41%と低下した。

両者は, 起源が異なるにもかかわらず高い相関係数(R=0.66: n=31)を示し, 3月から5月までを春季, 6月から8月までを夏季, 9月から11月までを秋季, 12月から2月を冬季として2013年の測定結果を分類して図示すると, 第6図に示したように, 春季に高く冬季に低下した試料が多いという季節変動パターンが示された。しかし, 2011年のように春季・秋季に高く夏季・冬季に低下するという明確なパターンは確認できなかった。

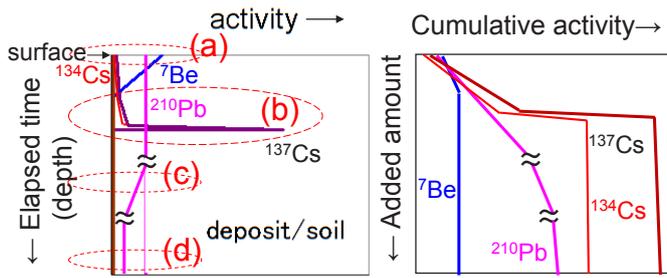
なお, 金井ほか(2013)の論文中144ページの「3.3 2012年におけるエアロゾル中の天然放射性核種」の章で, 「しかし, 平均値で見ると, Pb-210は春季0.64 mBq/m³ > 冬季0.58 mBq/m³ ≒ 秋季0.57 mBq/m³ > 夏季0.30 mBq/m³, Be-7は春季4.1 mBq/m³ > 冬季3.8 mBq/m³ ≒ 秋季3.8 mBq/m³ > 夏季2.3 mBq/m³となっており, 平均として春季に高濃度であったことが確認できる。」とあるべきところ, Pb-210とBe-7が入れ替わって記述されていたため, ここに訂正する。

3.3 再飛散によるエアロゾルの濃度変化

GSJにおいて観測されるエアロゾル中の放射性セシウム濃度の変動要因としては,

- ① 冷温停止状態になったとはいえ未だ続くFDNPPから外部への放出量の変化
- ② FDNPPからの拡散・移流などの輸送経路・プロセスを支配する気象条件
- ③ 観測点周辺などに既に沈積した粒子の再飛散と移動などが考えられる。多量の放射性核種が放出された2011年は, ①や②の要因が大きく寄与していたと考えられるが, 2011年末には事故直後の1/1300万に減少したことから, 2012年以降はその影響の程度は減少し, 代わりに③の因子が相対的に重要となってきたものと考えられる。特に, 前の章で述べた「煙霧」発生や強風時期の濃度増加時, 相馬市, 南相馬市などでの濃度増加の報告例などでは③の因子によるものであろうし, 2012年における試料No.79, No.85, No.92での濃度変化も強風による再飛散の可能性を指摘した(金井ほか, 2013)。

大気に放出された核種を含む空気中のエアロゾルは, 一定速度で拡散と降下を繰り返してその濃度を低下させる。Cs-137についていうと, 過去における大気圏内核実験により増加したが, 1963年の部分的核実験停止条約(PTBT)の発効とともに減少し, その後は中国の核実験やソ連のチェルノブイリ原発事故などで一時的な増大はあったものの, 対流圏, 成層圏における放射性物質はそれぞれ, 30~50日, 1.0~1.2年の停留時間で減少しているとされる(地球化学研究部, 1996; Igarashi *et al.*, 2001; 五十嵐, 2002)。すなわち, 成層圏まで到達しない空气中



- (a) Recent deposit
 ^{210}Pb : 8 Bq/g
 ^7Be : 45 Bq/g
 ^{137}Cs : (Low) Bq/g
- (b) Deposit after the accident
 ^{210}Pb : 8 Bq/g
 ^7Be : ~ 0 Bq/g
 ^{137}Cs : (High) Bq/g
- (c) Deposit before the accident
 ^{210}Pb : < 8 Bq/g
 ^7Be : ~ 0 Bq/g
 ^{137}Cs : ~ 0 Bq/g
- (d) Old deposit or soil
 ^{210}Pb : 0.06 Bq/g (= 5ppm U)
 ^7Be : ~ 0 Bq/g
 ^{137}Cs : ~ 0 Bq/g

第7図 降下堆積物における核種濃度変化と積算濃度変化.

Fig.7 Variations of nuclides activities in fallout deposits and cumulative activities.

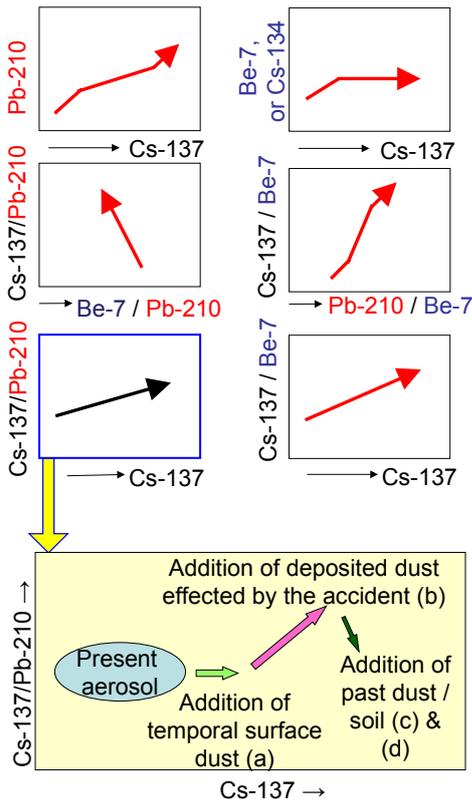
のエアロゾルの場合には30～50日で半減することになる。そうすると、第1図～第3図などで示したCs-137の濃度は1年の間に少なくとも $(1/2)^7 (=1/128)$ と2桁は低下するはずであるが、実際にはそのようにはなっていない。これは、一部には成層圏にまで到達してそこからのゆっくりとした供給があることと、地表面からの再飛散があるためと考えられる。

ここで、沈積した粒子の再飛散であるかどうかを裏付けるパラメータを検討する。飛散している粒子と一度沈積した後に再飛散した粒子との違いは何であろうか。放射性Cs同位体は、原子炉での核反応が止まってからはほぼ同一挙動をすることを考えられるので、半減期($T_{1/2}=2.7$ y)の短いCs-134を含むような最近の粉塵が再浮遊しても、付加された量が増えるだけである。一方、Cs-134が消滅した古い土壌からのCs-137の付加があれば、わずかであろうが過去に降下・堆積したCs-137のみの増加となる。それ以外の核種では、同時測定されるBe-7とPb-210があるが、それぞれの起源ならびに半減期の関係から、想定される粉塵の履歴から第7図のような特徴が抽出される。すなわち、表層の降下・堆積したばかりのダストでは現在飛散しているダストと同様でBe-7(半減期: 53.3日しかないことに注意)が高濃度であるが(第7図の(a)に相当; Be-7は約45 Bq/g, Pb-210は約8 Bq/gと推定される(Kanai, 2013b)), 事故後に降下して時間が経過したダストではBe-7はほとんど観測されず、Pb-210と事故の影響

を受けた高濃度のCs-137が観測されるであろう(第7図の(b)に相当)。事故前に堆積したダストでは、Cs-137濃度も低くPb-210が定常的に観測されるであろう(第7図の(c)に相当)。

このようなことから、降下・堆積したダストが再飛散してエアロゾルに付加した場合の特徴としては、新しいダストは現在飛散しているダストとはほとんど見分けがつかずに増量となり、事故後のダストまで付加すると、セシウムが特徴的に高濃度となる。事故前のダストではかなり古い土壌だといずれの核種濃度も低く(第7図の(d)に相当)、重量の増加効果の方が大きいかも知れない。従って、高濃度セシウムが一つの再飛散の指標になるだろうが、この他にBe-7、Pb-210の変化も示唆する可能性があり、さらにBe-7/Pb-210比も古いダストの指標となる。Be-7/Pb-210比は、河口域での懸濁物質が底質の再浮遊によることを明らかにするために利用された研究例(Olsen *et al.*, 1989)もある。特に、単独核種のみでは輸送・運搬に関わる気象条件等の影響が直接に出やすいことから、核種間の比をとることでその影響を排除できる可能性がある。

従って、一度降下したダストが地表面から巻き上がってエアロゾルに付加されると仮定すると、Be-7が微増後にほぼ一定となるのを除き、様々なパラメータは概ね付加量の増加とともに第8図に示した矢印の方向に増大する傾向があると推定される。



第8図 再飛散に伴うエアロゾル組成の変化傾向。
Fig. 8 Trends of nuclide compositions in aerosol with re-suspended dust particles.

しかし、Be-7もPb-210もお互いに相関しながらいずれも季節変動を有しており(全体の相関係数 $R=0.69$, $n=113$)、全体的にエアロゾル中でのBe-7/Pb-210比の相対変動は、2011年は40%、2012年は26%、2013年は26%と大きな変動を有する(第9図)ため、仮にPb-210が10%変動してもそれは季節変動の中に隠れてしまい、察知することは困難となる。このため、Be-7/Pb-210比をやめ、半減期の長いPb-210を使用し、Cs-137とCs-137/Pb-210との関係を見ることとした。

3.4 エアロゾルにおけるCs-137濃度とCs-137/Pb-210比との関係

これまでに観測したデータについて、Cs-137とCs-137/Pb-210との関係を見ることで、第8図に示したような傾向が読み取れると考えられる。すなわち、Cs-137-Cs-137/Pb-210図において、現在のダスト・極表層ダストが付加しただけならば右方向に変化し、事故時の高濃度ダストも付加すると右上方向に移動するが、古い土壤などが混じると下方向に変化していく。

これまでのデータを第10図に示した。過去の2011年からのデータも示しているので、全体的には濃度範囲は

広いが、2011年の後半からの低濃度部分での拡大図を第10図(B)に示した。2012年と2013年には低濃度で安定した観測点の集合領域があるが、その集合から幾分右側に位置する観測点もある。2012年の観測したデータでは、4月初めの試料No.79や6月末のNo.85、9月末のNo.92等で観測された高濃度は、強風による近傍からの巻き上げが原因ではないかと推定されたが(金井ほか, 2013)、この図でもグループから上方に外れていることが判る。また、2013年では、試料No.99からNo.105あたりまでは低濃度の観測グループから外れており、No.120やNo.125も幾分はずれている。これらの試料採取時には、最大瞬間風速の大きな日を含んでいることから、周辺域からのダストの巻き上げによる増加の可能性が示唆される。

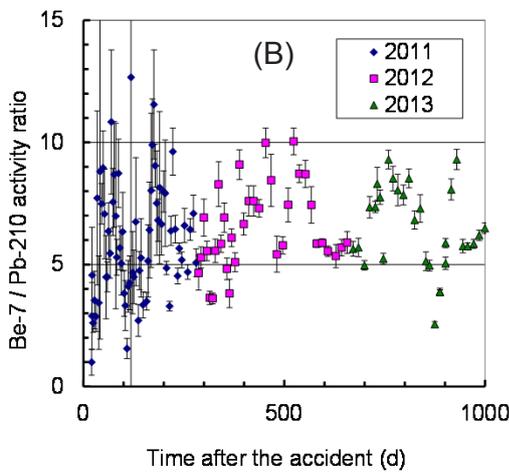
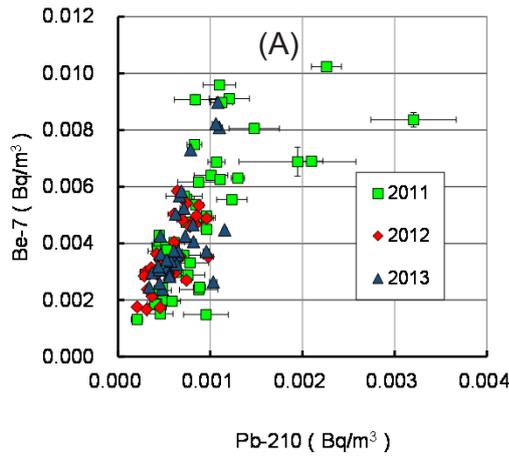
以上のように、第10図のようなCs-137-Cs-137/Pb-210図において、再飛散による高濃度ダストを見分けられる可能性があるが、それは必要条件に過ぎず十分条件とまではならない。様々な因子が組み合わさって複雑であるため、他の様々な情報を加味しながら判断すべきであろう。今後も再飛散が続くことから、より良いパラメータを見出していくことが重要と考えている。

4. まとめ

大気中エアロゾルの放射性核種のモニタリングは、物質循環や環境変動評価のためのトレーサーとして地球科学的に有用であると同時に、FDNPP事故による地域住民の放射能被曝に対する不安感の払拭、万が一の場合の線量評価にも貢献する。このため、2011年以降2013年も大気中のエアロゾルの放射性核種の観測を継続した。

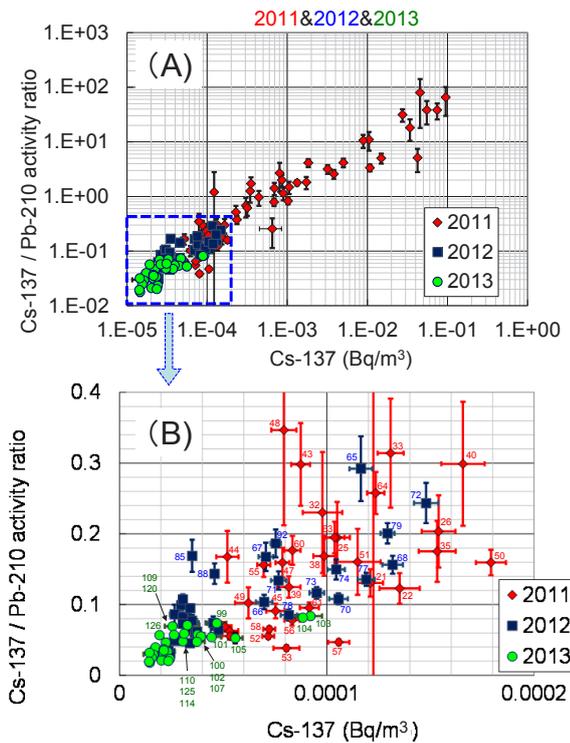
環境中に放出された人工放射性核種のCs-137は、2011年10月あたりから3桁ほど低下して 10^4 Bq/m³前後を推移してきたが、2012年の4月中旬あたりから約半分のレベルに低下し、2013年は3月頃に幾分高まったが、4月以降は幾分低下傾向を示した。春期における濃度低下は、2012年と同様に南よりの風のような気象条件の変化が変動因子の一つと考えられる。また、天然放射性核種であるPb-210とBe-7は、2011年よりも変動幅が幾分小さく春季に高濃度試料が多くなる傾向が見られた。

2012年以降はFDNPPからの影響の程度は減少し、代わりに観測点周辺に沈積した粒子の再飛散と移動による影響因子が相対的に重要と考えられた。同時に観測されるPb-210とBe-7等との関係を検討したところ、Cs-137とCs-137/Pb-210比との関係図において、再飛散を含むエアロゾル試料の組成が平常時の観測点グループから外れていくことから、これらが再飛散を示唆する有効なパラメータとなる可能性があると考えられた。



第9図 2011年から2013年までのエアロゾル試料中の(A) Pb-210とBe-7の変化と(B) その放射能比. 誤差は放射線の計数誤差を示す.

Fig. 9 Variations of (A) Pb-210 and Be-7 concentrations at the GSJ in 2011-2013 and (B) Be-7/Pb-210 activity ratios. Error bars indicate statistic counting errors.



第10図 Cs-137濃度とCs-137/Pb-210比の関係図. 誤差は放射線の計数誤差を示す.

Fig. 10 Diagram of Cs-137 concentrations and Cs-137/Pb-210 activity ratios in aerosols. Error bars indicate statistic counting errors.

文 献

- 朝日新聞(2014) 50キロ先, 住宅地にも粉じん 福島第一原発がれき撤去. (青木美希2014年7月16日07時33分), <http://www.asahi.com/articles/ASG7H5SVWG7HUUPI00C.html> (2014/10/10)
- 福島第一原発のがれき粉じん, 7回宮城へ 東大など調査. (青木美希 2014年7月31日08時00分), <http://www.asahi.com/articles/ASG7Z01KRG7YUUPI005.html> (2014/10/10)
- 地球化学研究部(1996) 降水・落下塵中の人工放射性核種の分析法及びその地球化学的研究. 気象研究所技術報告, 第36号, 1-34.
- 原子力規制委員会(2013) 被規制者等との面談(沸騰水型軽水炉), 平成25年12月24日, 件名 東京電力福島第一原子力発電所における環境線量低減対策に係る定例会, http://www.nsr.go.jp/disclosure/meeting_operator/BWR/ (2014/10/10)
- 2013年12月24日 環境線量低減対策 原子炉建屋からの追加的放出量の評価結果(平成25年12月), http://www.nsr.go.jp/disclosure/meeting_operator/BWR/data/20131224_07_shiry03.pdf (2014/10/10)
- 原子力規制委員会(2014) 2014年4月 福島第一事故対策に関するもの, 2014年4月30日, 件名 東京電力福島第一原子力発電所における原子炉建屋からのダスト飛散防止対策に係る面談, <http://www.nsr.go.jp/disclosure/meeting/FAM/201404.html> (2014/10/10)
- 免震重要棟前ダスト濃度上昇及び身体汚染者発生に関する原因と対策について 平成25年9月12日 東京電力株式会社, http://www.nsr.go.jp/disclosure/meeting/FAM/data/20140430_06_shiry0.pdf (2014/10/10)
- 五十嵐康人(2002) ^{90}Sr と ^{137}Cs を用いたダスト輸送過程と再飛散. エアロゾル研究, **17**, 252-258.
- Igarashi, Y., Aoyama, M., Hirose, K., Miyao, T. and Yabuki, S. (2001) Is it Possible to use ^{90}Sr and ^{137}Cs as tracers for the aeolian transport? *Water, Air, and Soil Pollution*, **130**, 349-354.
- 河北新報(2014) 福島のニュース, 福島 社会 特集. 福島第1がれき撤去で相馬にも粉じん 昨夏, セシウム6倍 京大調査. (2014年07月17日木曜日), http://www.kahoku.co.jp/tohokunews/201407/20140717_63008.html (2014/10/10)
- Kanai, Y. (2012) Monitoring of aerosols in Tsukuba after Fukushima Nuclear Power Plant incident in 2011. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 33-37.
- 金井 豊(2012a) エアロゾルにより輸送された放射性核種の観測(2011)ー福島第一原子力発電所事故に関連してー. 地質調査研究報告, **63**, 107-118.
- 金井 豊(2012b) エアロゾル中の人工放射性核種に関する観測・測定を試み. *Proceedings of the 13th Workshop on Environmental Radioactivity*, **KEK Proceedings 2012-6**, 108-116.
- 金井 豊(2013) 地質調査総合センターにおけるエアロゾル中放射性核種の継続観測. *Proceedings of the 14th Workshop on Environmental Radioactivity*, **KEK Proceedings 2013-7**, 57-62.
- 金井 豊・土井妙子・榎本和義(2013) GSJにおけるエアロゾル中放射性核種の2012年観測と環境要因の再検討. 地質調査研究報告, **64**, 139-150.
- 経済産業省(2011) 添付2 福島第一原子力発電所における現状の放射性物質の放出量評価及び敷地境界における被ばく線量評価について, <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/111216e.pdf> (2013/4/25)
- 気象庁(2014a) 気象統計情報, 過去の気象データ検索, <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2014/10/10)
- 気象庁(2014b) 氷、霜、霧、雷、日照時間, http://www.jma.go.jp/jma/kishou/known/yougo_hp/kori.html (2014/10/10)
- 内閣官房内閣広報室(2011) VI. 放射性物質の環境への放出. 内閣官房内閣広報室, <http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/pdf/06-kankyo.pdf> (2013/4/25)
- Olsen, C.R., Thein, M., Ingvar L. Larsen, I.L., Lowry, P.D., Mulholland, P.J., Cutshall, N.H., Byrd, J.T. and Windom, H.L. (1989) Plutonium, lead-210, and carbon isotopes in the Savannah estuary: riverborne versus marine sources. *Environmental Science and Technology*, **23**, 1475-1481.
- 東京電力株式会社(2012) 東京電力(株)福島第一原子力発電所1～4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ進捗状況(概要版), http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/m120924_06-j.pdf (2013/4/25)
- 東京電力株式会社(2013) 免震重要棟前ダスト濃度上昇及び身体汚染者発生に関する調査状況について 平成25年8月29日 東京電力株式会社, http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/d130829_06-j.pdf, p.113-133 (2014/10/10)
- 山田崇裕・中村吉秀(2005) 放射能標準体積線源に用いるポリプロピレン製U8容器の検討. *Radioisotopes*, **54**, 105-110.

(受付 : 2014年10月28日 ; 受理 : 2014年12月19日)

