

放射性微粒子が海底土中の¹³⁷Cs濃度に及ぼす影響に関する予察的研究

はじめに

2011年3月の東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所(以下、東電福島第一原発)事故により放出された放射性セシウムの一部は高濃度放射性セシウム含有微粒子(以下、放射性微粒子)として飛散しました。放射性微粒子は陸域を中心に様々な環境中で検出され、近年、その放射能、化学組成、生成過程等が盛んに研究されています(Chen et al., 2019)。しかしながら、海洋環境に存在する放射性微粒子についての研究は非常に少なく、海底土中の¹³⁷Cs濃度に及ぼす影響についてこれまでに定量化した例がありませんでした。Ikenoue et al. (2018)では、この問題についてオートラジオグラフィ(放射線でフィルムを感光させ、放射能の高い部分を特定する写真撮影法)という放射能を可視化する手法をもとに予察的研究を試みました。以下にその内容を紹介します。

海底土の性状の違いに因らない¹³⁷Cs濃度のばらつき

海生研は、原子力規制庁の委託を受けて、全国にある原子力発電所等の周辺海域を対象とした海洋放射能モニタリング調査を行っています。海底土中の¹³⁷Cs濃度は東電福島第一原発事故後に周辺の海域で大きく上昇したものの、その後は多くの測点で減少傾向がみられました。東電福島第一原発事故から時間が経過した現在、海底土中の¹³⁷Cs濃度の分布は性状(粒径や有機物含有量など)の違いに起因する溶出・脱着や海底土の再懸濁と水平移動によって変動していることがこれまでの研究から分かってきました(Kusakabe et al., 2017)。しかしながら、モニタリング結果の中には¹³⁷Cs濃度に明確な減少傾向がみられず、散発的に大きな上昇がみられる測点もしばしば存在します。例えば、北緯36.42度、東経140.85度の測点では、図1のように2012年と2013年の間には3.6倍の上昇、2015年と2016年の間に

は1.5倍の上昇が見られました。さらに、同一観測点において同時にまたは連続して採取し、よく混合した海底土試料でさえも、それらを分割した際には¹³⁷Cs濃度に大きなばらつきが見られることがありました。このような¹³⁷Cs濃度のばらつきは海底土の性状の違いでは説明できないものでした。

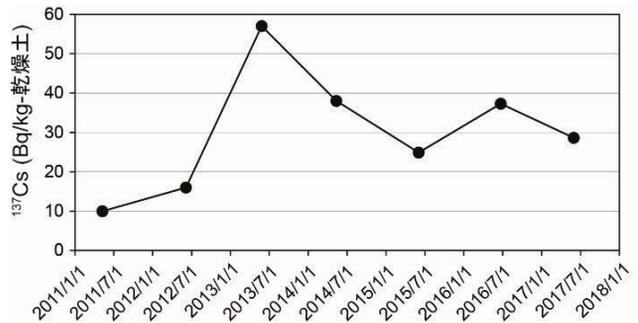


図1 海底土表層 (0-3 cm) 中の¹³⁷Cs濃度の経年変化

オートラジオグラフィを用いた海底土試料からの放射性微粒子の取り出しと¹³⁷Cs濃度の変化

2017年5月30日に上記の試料と同一観測点で別途採取した海底土表層 (0-1.5 cm) の¹³⁷Cs濃度は72Bq/kg-乾燥土でした。この試料をビニール袋に詰めてオートラジオグラフィ画像を撮ると2つの黒点が観察されました(図2)。海底土試料の中で相対的に放射能の高い部分が黒い点で表現され、放射能は黒点のサイズと黒色の濃度に比例します。

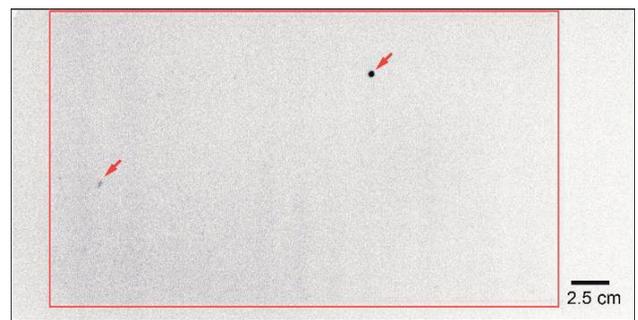


図2 採取した海底土表層 (0-1.5 cm) のオートラジオグラフィの結果。赤線で囲まれた部分は試料の位置、赤矢印は黒点の位置を表す。

この2つの黒点部分に存在する放射性微粒子を図3に示した工程で取り除きました。まず、オートラジオグラフィーの結果を実物大に印刷し、黒点部分に穴を空けたうえで試料に重ね合わせ、マーカーペン等で印を付けます。印を付けた部分のビニールを熱したニクロム線で切り取り、その下に存在する放射性微粒子を取り除きました。

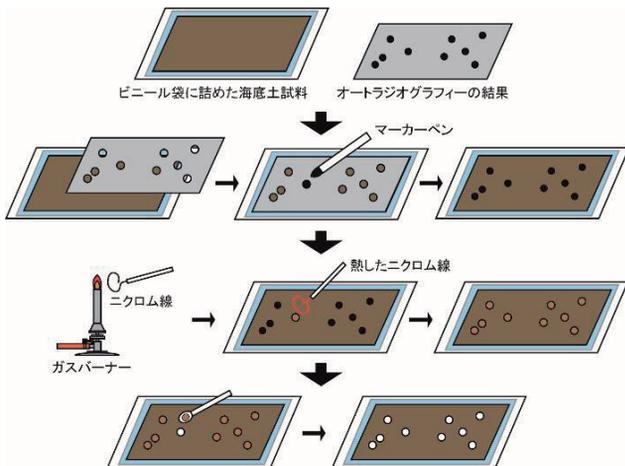


図3 海底土試料から放射性微粒子を取り除く工程

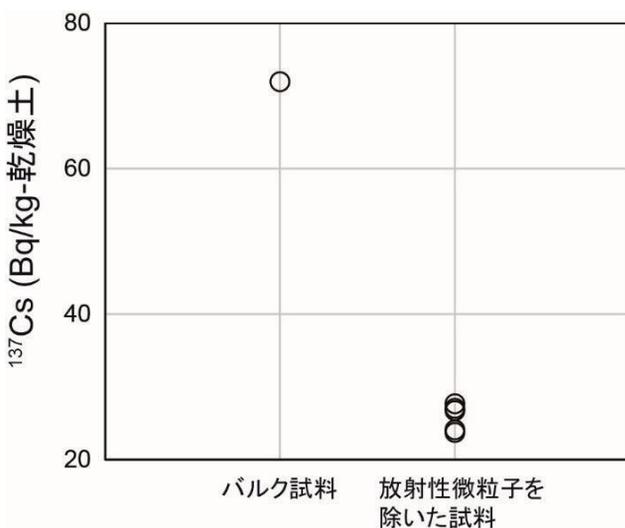


図4 採取した海底土表層(0-1.5 cm)について放射性微粒子の取り除き前後の ^{137}Cs 濃度を比較した結果

海底土試料中に放射性微粒子が含まれないことと放射性微粒子が取り除かれた試料の ^{137}Cs 濃度が一定の値に収まることを確認するために試料を5つに分けて ^{137}Cs 濃度を測定しました。その結果、5つの試料の ^{137}Cs 濃度の平均値と標準偏差は $26 \pm 2\text{Bq/kg}$ -乾燥土でほぼ一定の値に収まりました(図4)。また、

バルク試料の ^{137}Cs 濃度に対して64%もの減少が確認されました。放射性微粒子の重量はバルク試料の重量に対して無視できるほど小さいため、放射性微粒子を除く海底土試料中の ^{137}Cs 存在量は放射性微粒子が取り除かれた海底土試料の ^{137}Cs 濃度の平均値にバルク試料の重量を掛けることで得られます。放射性微粒子に由来する ^{137}Cs の存在量は、バルク試料中の ^{137}Cs 存在量と放射性微粒子を除く試料中の ^{137}Cs 存在量との差として求めることができます。上記の手法では個々の放射性微粒子の放射能を求めることはできませんが、黒点2個分の放射性微粒子に含まれる ^{137}Cs の放射能の総量を5.4Bqと計算できました。同様に ^{134}Cs の放射能も計算すると $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が事故当時の値に換算して、ほぼ1であることから放射性微粒子が東電福島第一原発事故に由来することが分かりました。このように数個の放射性微粒子でも高い放射能を持ち、試料中の ^{137}Cs 存在量の半分以上占める場合があることから、放射性微粒子の存在は、海底土中の ^{137}Cs 濃度の主要な変動要因の一つとして今後も注視していくべきと考えられます。

(中央研究所 海洋環境グループ 池上 隆仁)

参考文献

- Chen, F., Hu, J., Takahashi, Y., Yamada, M., Rahman, M.S. and Yang, G. (2019). Application of synchrotron radiation and other techniques in analysis of radioactive microparticles emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident-A review. *Journal of Environmental Radioactivity*, 196, 29-39.
- Ikenoue, T., Ishii, N., Kusakabe, M. and Takata, H. (2018). Contribution of ^{137}Cs -enriched particles to radiocesium concentrations in seafloor sediment: Reconnaissance experiment. *PLoS ONE*, 13(9), e0204289, <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0204289>.
- Kusakabe, M., Inatomi, N., Takata, H. and Ikenoue, T. (2017). Decline in radiocesium in seafloor sediments off Fukushima and nearby prefectures. *Journal of Oceanography*, 73(5), 529-545.