福島第一原子力発電所事故に伴う海底土広域測定手法

海上・港湾・航空技術研究所 海上技術安全研究所 大西 世紀, 鎌田 創, 浅見 光史

環境中に放出された放射性セシウムは、大半の海域における海水中での濃度が検出限界未満になった後も、海底土中には残存しており、現在原子力規制庁事業によって海底土のモニタリングが実施されている。モニタリングでは採泥と曳航調査により、海底土の性状、放射性セシウムの鉛直分布および広域分布が測定されている。これまでの調査により、放射性セシウムは地形に応じて分布しており、また、海底土からの海水への溶出は限定的であることがわかっている。

KEYWORDS: *Radioactive cesium, Marine sediment, Towed spectrometer, NaI (TI) scintillation detector, Dissolution test*

I. 海底土中の放射性セシウム

2011 年 3 月の東日本大震災により福島第一原子力発電所事故が発生し、環境中に多量の放射性セシウムが放出された。現在の海水中における放射性セシウム濃度は、原子力発電所港内を除く大半の海域で検出限界未満になっている¹⁾が、海底土粒子への吸着により、海底土中には未だ放射性セシウムが残っている。吸着と溶出が等しくなった平衡状態では、海水と海底土における濃度比は一定になり、以下で定義される分配係数 (Distribution coefficient) で表される。

$$\text{分配係数} = \frac{\text{堆積物の放射性物質濃度 (Bq/kg)}}{\text{海水中の放射性物質濃度 (Bq/kg)}}$$

海底土のセシウム分配係数の推奨値は、IAEA レポート²⁾では外洋で 2×10^3 となっており、長期的には、海底土における濃度は、海水中での 2,000 倍程度になると考えられる。

放射性セシウムの分布状況把握のため、陸上では航空機等を用いた調査³⁾が行われている。一方、海域においても同様の分布把握のためのモニタリングが実施されており、以下では公開されている報告書^{4, 5)}を元に、曳航式スペクトロメータと採泥サンプルによる、放射性セシウム広域測定の手法およびその結果について解説する。

II. 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

原子力規制庁事業「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」では、平成 25～27 年度にかけて、東北沿岸海域における放射性セシウムの分布状況を把握し、環境への中長期的な影響予測を目指した調査を実施してきた。この調査研究では、船舶曳航式スペクトロメータを用いた広域の分布測定と、曳航調査の定量化および海底土性状の調査のためのサンプル採泥が行われている。

1. 曳航式スペクトロメータによる広域調査

(1) 検出器および測定手法

福島沿岸海域での曳航調査には、曳航式スペクトロメータ RESQ (Radiometric Environment Survey and Quantification) システム⁶⁾が用いられている。図 1 に概要を示す RESQ システムは、NaI (TI) 検出器、制御回路、電池、錘、圧力計、温度計、加速度計、ソナーにより構成されている。水中ケーブルで結線された各機器は、水密容器に格納され、海底からの衝撃や摩擦による損傷を

図1 曳航式スペクトロメータ RESQ システム概要
(図は文献⁷⁾より転載)

Monitoring method for radioactive cesium in marine sediment after Fukushima NPP1 accident : Seiki Ohnishi, So Kamada, Mitsufumi Asami.

(2018 年 11 月 27 日 受理)

防ぐために全体をゴム製のホースで覆われている。NaI (Tl) 検出器で測定されたガンマ線スペクトルデータは、制御回路内のロガーに保存され、RESQ システム全体を船上に揚収した後、シリアルケーブルで接続された PC へと回収される。

放射性セシウム濃度の定量化には、光電ピーク計数率 (^{134}Cs :796, 802keV, ^{137}Cs :662keV) が用いられる。光電ピークは、比較的波高の大きな信号で形成され、衝撃等によるノイズが混入しにくい。このため曳航時に機械的振動が伴う曳航式スペクトロメータの解析では、この部分を利用している。さらに、海底土は比較的原子番号の小さい元素で構成されており、数百 keV 光子との相互作用では、コンプトン散乱が支配的となるため、質量減弱係数が物質に依存しない。このように海底土の元素組成を考慮する必要がないことも、光電ピーク計数率を用いる利点であり、RESQ システムの解析では、深さを cm ではなく重量深度(深度×密度 単位: g/cm^2)で表すことで、海底土の組成に依存しない検出器応答を用いている。

光電ピーク計数率から放射性セシウム濃度への換算には、下記の換算係数が用いられる。

$$C(\beta, L) = \frac{\frac{1}{L} \int_0^L f(\zeta) d\zeta}{\int_0^\infty f(\zeta) R(\beta, \zeta) d\zeta} \quad (1)$$

ここで、 C : 換算係数 ($\text{Bq}^{-1} \text{kg s}^{-1}$)、 β : 検出器の沈み量 (g cm^{-2})、 L : 混合長 (g cm^{-2})、 f : 放射性セシウムの鉛直分布 (g cm^{-2})、 R : 検出器応答関数 ($\text{Bq cm}^2 \text{s}^{-1}$)、 ζ : 海底土内深さ (g cm^{-2}) である。式(1)の分母は、鉛直分布と検出器応答の積を積分したもので、鉛直分布 f に対して想定される計数率を表し、分子は求める深さまでの平均濃度に対応する。曳航測定で最終的に求められる値は、「ある深さまでの表層平均放射性セシウム濃度」であり、混合長はその表層の深さを決める。事故直後から文部科学省等によって行われている既往の採泥サンプル調査では、海底土表層 3cm 平均の放射性セシウム濃度を測定している例が多いことから、混合長 L には 3cm に対応した重量深度が採用されている。この係数 C を光電ピーク計数率に乗じることで表層平均濃度が求められる。応答関数 R は検出器固有の値であるため、事前に放射線輸送計算によりデータベース化される。また、鉛直分布 f は、曳航測定と並行して行う採泥サンプル調査によって取得される。

式(1)によると、換算係数を求めるためには、放射性セシウムの鉛直分布が必要であり、曳航測線上の任意の点で換算係数を直接に求めることは不可能である。また、陸上では、放射性降下物の土壤中鉛直分布はほぼ指数分

布に従うことがわかっている⁸⁾が、海中では海流による表層の海底土の移動があることから、後述するように、指数分布で近似することはできない。そこで曳航調査では並行して必ず柱状採泥が行われる。まず複数の地点で海底土を柱状採泥し、その鉛直分布から採泥点での換算係数を求める。次に得られた複数の換算係数に重み付けをし、補間を用いて測線上の任意の点での換算係数を得ている。

(2) 福島沿岸海域における曳航測定結果

原子力規制庁調査事業では、福島沿岸海域を中心に、年度ごとに 600~900km の曳航調査測線を設定し、RESQ システムにより放射性セシウム広域分布を測定している。代表例として、図 2 に平成 27 年度 ^{137}Cs 測定結果を示す。

福島沿岸海域での分布の特徴を見ると、福島第一原子力発電所からその南側を中心に沿岸近傍で高い値を示す一方、5km 沖から北東には岩盤の露出した海域が広がるため、西から東へ行くに従い放射性セシウム濃度は小さくなる。さらに東側では、海底土が粒径の小さなシルト質になるため、再度濃度が大きくなる傾向にある。平成 26~27 年度間の差分による、同測線の海底土中 ^{137}Cs 増減の分布を示したものが図 3 である。

図では ^{137}Cs が前年度よりも 25Bq/kg 以上減少した海域を背景色よりも明るい色で、25Bq/kg 以上増加した海

図2 福島第一原子力発電所近傍の ^{137}Cs 分布および代表的な採泥地点

図3 福島第一原子力発電所近傍の平成26～27年度にかけた ^{137}Cs 分布変化(背景色は $\pm 25\text{Bq/kg}$ と同色)

図4 ^{137}Cs 増減ヒストグラム

域を暗い色で描画している。大半の点では変化量が $\pm 25\text{Bq/kg}$ 未満であるため、背景色と同色となっている。これを度数分布表で定量的に示したものが図4であり、90%以上の測点で変化量は $\pm 25\text{Bq/kg}$ 未満であることが確認される。

図2では、沿岸付近を中心に特異的に放射性セシウム濃度が大きくなっている分布(アノマリー)が散見される。沿岸付近は、放射性物質の吸着量が小さいと考えられる岩礁帯であることから、どのような場所にアノマリーが出現するかを見るため、測線101(図2中左下起点の南北測線)の一部を抜粋し、深度(右軸)と濃度(左軸)を重ねて図5として表示した。測線の25kmおよび32km付近で高濃度を示す地点が存在しており、これらは窪み地形の位置に形成されている。この点以外にも局所的に 500Bq/kg 程度の濃度を示す地点がみられるが、

図5 測線101に沿った深度および ^{137}Cs 濃度分布(P2～TM2は図2中に示す採泥サンプル)

これら増加地点の大半は地形の起伏に対応していることが示されている。

2. 採泥サンプル調査

(1) 福島沿岸域採泥サンプル調査

曳航式スペクトロメータは、海底土表層でガンマ線スペクトルを測定しているため、これに放射性セシウムの鉛直分布情報を含めるためには、採泥サンプル調査が必要となる。福島沿岸海域では、年度ごとに90点程度の採泥点を曳航測線上に設定し、マルチコアサンプラの投入による採泥を行っている。得られた柱状サンプルを鉛直方向に分割して、高純度ゲルマニウム検出器で測定することによって、放射性セシウムの鉛直分布を取得している。一例としてA1N、K3採泥点での ^{137}Cs 鉛直分布を図6に示す。

表1 人工海水への ^{137}Cs 溶出率(報告書⁴⁾より転載)

	測点	含水率	^{137}Cs 濃度 (Bq/kg)	溶出率 (2回平均)
原発沖	A1N	20%	34	5.3%
	I1	32%	93	1.3%
	K3	32%	340	1.4%
	L1	17%	34	10.3%
新田川 河口沖	ND1	21%	200	2.8%
	ND4	80%	22	2.6%
	ND5	19%	2.7	14.4%
	ND10	42%	220	1.5%
	ND16	36%	40	1.2%

図6 平成27年度採泥サンプルにおける ^{137}Cs 鉛直分布例

図7 溶出回数による海底土中残存¹³⁷Cs 放射能濃度の変化 (報告書⁴⁾より転載)

図6のように、陸上における土壌中の鉛直分布とは異なり、海底土内の鉛直分布は指数関数的に分布しない。この鉛直分布を式(1)に代入して換算係数が算出されている。

(2) 溶出試験

曳航測定の定量化に加えて、放射性セシウムの移行挙動把握のための海底土の物理化学的特性調査が行われている。具体的には河川からの流入と海底土からの溶出による影響を検証するため、放射性セシウム濃度、有機物特性分析、X線回折等が行われている⁴⁾。以下に、溶出試験結果について述べる。

溶出試験では、平成26年から27年にかけて福島第一原子力発電所近傍や新田川沖等で採取された海底土に対して、25℃2日間の振とう後の人工海水への放射性セシウム溶出量が測定されている。測定には金沢大学尾小屋地下実験施設の極低レベルGe半導体検出器が用いられた。

溶出試験結果では、溶出率は採泥サンプルに依存し、1%から15%程度というばらつきが見られた。さらに最大溶出量を見積もるために、表層海底土(H23.11.1採取, ¹³⁷Cs:790Bq/kg-dry)を用いて、連続溶出試験を行った結果が図7である。

この連続溶出試験結果は、固液比が1:40と大きく、前述の溶出試験と直接比較することはできない。また実海域よりも溶出しやすい条件であることに留意する必要がある。しかしながら、図6によると、溶出試験を繰り返すたびに、溶出率は低下していき、飽和する傾向にあることが示されている。

III. まとめ

東北沿岸海域で実施されている海底土内の放射性セシウム分布の状況把握のためのモニタリング状況についてまとめた。放射性セシウムは、海底土の性質および地形に応じて分布することが明らかにされている。溶出試験の結果では、放射性セシウムは比較的強く海底土に吸着され、溶出量は飽和する可能性が示唆されている。

－ 参考文献 －

- 1) 原子力規制庁, 福島第一原子力発電所近傍の海水のモニタリング, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/278/list-1.html>.
- 2) IAEA, 2004, Technical Report Series 422.
- 3) 原子力規制庁, 航空機モニタリング結果, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/191/list-1.html>
- 4) 平成26年度放射性物質調査委託費 事業報告書成果報告書, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/11000/10925/view.html>
- 5) 平成27年度放射性物質調査委託費 事業報告書成果報告書, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/13000/12079/view.html>
- 6) Blair Thornton, *et al.*, Deep-Sea Res. Part I: Oceanogr. Res. Pap. 79 (2013) 10.
- 7) 大西世紀他, 海上技術安全研究所第18巻第2号, 海上技術安全研究所 (2018) 195-210.
- 8) IAEA, 2003, IAEA-TECDOC-1363.

著者紹介

大西世紀 (おおにし・せいき)

海上技術安全研究所

(専門分野/関心分野)放射線遮蔽, 放射線計測, コード開発

鎌田 創 (かまだ・そう)

海上技術安全研究所

(専門分野/関心分野)放射線検出器, 核データ

浅見光史 (あさみ・みつふみ)

海上技術安全研究所

(専門分野/関心分野)大気海洋環境変動予測, 放射線挙動