

2012年7月31日

風に乗って長い距離を運ばれる放射性セシウムの存在形態

- 大気中の輸送担体を解明 -

環境管理技術研究部門
大気環境評価研究グループ
主任研究員 兼保 直樹

ポイント

- ・ 茨城県つくば市で放射性セシウムを含む大気エアロゾルの粒径分布を 2011 年 4 月より測定
- ・ 放射性セシウムは、硫酸塩エアロゾルに含まれた状態で大気中を輸送された可能性が高い
- ・ 放射性物質の拡散・沈着モデルの改善に資することで、実態解明の進展に期待

概要

独立行政法人 産業技術総合研究所【理事長 野間口 有】(以下「産総研」という)環境管理技術研究部門【研究部門長 田尾 博明】大気環境評価研究グループ 兼保 直樹 主任研究員は、国立大学法人 東京海洋大学【学長 岡本 信明】海洋環境学科 環境システム学講座 大橋 英雄 教授ら、名古屋市環境科学調査センター 環境科学室 池盛 文数 研究員と共同で、福島第1原子力発電所事故後に放射性セシウムを含む大気エアロゾルの粒径分布を測定し、大気中で放射性セシウムを輸送しているもの(担体)が硫酸塩エアロゾルである可能性が高いことを見出した。

事故により大気中に放出された放射性セシウムの大気中での存在形態を調べるため、産総研つくばセンターにおいて、2011年4月28日より大気エアロゾルをサイズ別に分級して捕集し、放射性セシウム ^{134}Cs や ^{137}Cs を含む粒子の粒径分布と大気エアロゾルの主要成分の粒径分布を測定した(図1)。両者の比較により、放射性セシウムは硫酸塩エアロゾル中に含まれた状態で大気中を輸送されている可能性が高いことが分かった。これにより、今後の物質輸送モデルによる放射性物質の輸送計算の精度向上が図られ、今回の原子力発電所事故による放射性物質の輸送・拡散・地表面への沈着の実態解明がより進展することが期待される。

本成果は *Environmental Science and Technology* 46(11), 5720-5726 (2012)に掲載された。

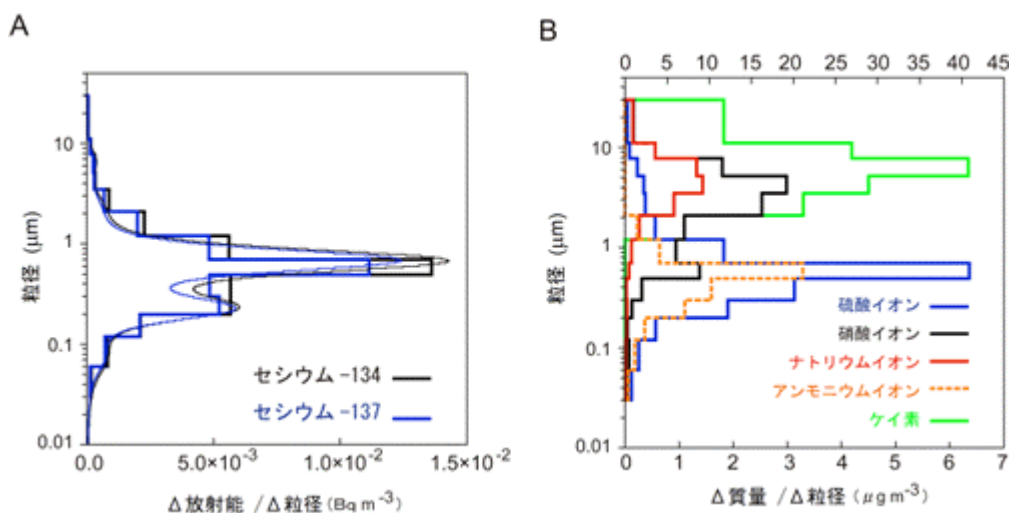


図1 茨城県つくば市における(A)2011年4月28日~5月12日の放射性セシウムを含む粒子の粒径分布
滑らかな曲線は計算により本来の粒径分布を復元したものの。(B)同期間の大気エアロゾル主要成分ごとの粒径分布(ケイ素のみ上軸)。 は微小な変化量を表す。

社会的背景

福島第1原子力発電所の事故後、大気エアロゾル中の放射性物質の測定は各地で実施され、多くの結果が公表されている。また、大気中に放出された放射性物質の輸送・拡散・地表面への沈着の状況は、さまざまな研究機関によって物質輸送モデルにより計算されている。しかし、放射性物質の地表面への沈着量の計算結果は、文部科学省が航空機により実施した広域観測によって得られた沈着量分布を良好に再現できない場合がある。

今回の事故による広域的な放射能汚染のメカニズムの解明、特に、特定の地域での沈着量が多いなどの原因を明らかにするには、モデルによる気流や降水の再現性の向上だけでなく、輸送される放射性物質そのものの特性(特に沈着に関与する特性)の解明が不可欠である。しかし、大気中を輸送される放射性物質の粒径や存在形態についてはほとんど分かっておらず、これまでは粒径を仮定した仮想的な粒子(直径0.4 μmから20 μmまでモデルによって異なる)により輸送・拡散過程が計算されていた。

今回の事故による放射性セシウムの大気中での輸送の実態を明らかにすることにより、物質輸送モデルによる放射性セシウムの輸送計算の精度向上が図られ、放射性セシウムの輸送・拡散・地表面への沈着の実態解明がより進展すると期待される。

研究の経緯

産総研では、大気汚染防止のため、大気中の微粒子の拡散・輸送・変質などの動態の研究を進めてきた。原子力発電所の事故により放出された放射性物質の大気中での存在形態については、ほとんど研究された例がなかったが、産総研つくばセンターが発生源に比較的近い場所に位置することから、これまで蓄積してきた大気汚染物質の動態に関する研究成果を適用して、放射性セシウムの存在形態を解明することにした。

研究の内容

2011年4月28日より茨城県つくば市にある産総研つくばセンターにおいて、エアロゾルを13段階の粒径に分級し吸引捕集した。2011年4月28日～5月12日に捕集した大気エアロゾルに含まれる¹³⁷Csや¹³⁴Csの放射線量を測定し、これらの粒子の粒径分布を測定した。この結果、¹³⁷Csを含む粒子と¹³⁴Csを含む粒子の粒径分布はほぼ同じで、大部分が空気動力学径(以下「粒径」という)2 μm以下の微小粒子領域に存在し、0.2 - 0.3 μmと0.5 - 0.7 μmに極大値を持つ二峰性の特徴的な分布を示した。(図1A)

測定された放射性セシウムの質量は1m³の空気中に数フェムトグラム (fg = 1 × 10⁻¹⁵g)程度ときわめて微量であり、放射性セシウム単独では図1Aの粒径分布の粒子は形成できず、大気中に比較的豊富に存在する何らかの大気エアロゾル成分の粒子に付着するか含まれた状態で浮遊していたと考えられた。そこで、主要成分の粒子の粒径分布を調べ、放射性セシウムを含む粒子の粒径分布と比較して放射性セシウムの輸送担体を推定した。

輸送担体としては、雨などにより地表に沈着した放射性セシウムが土壌粒子に付着し、風により土埃として再飛散することや、事故地点が海岸にあるため海面の泡の飛沫が起源となる海塩粒子に付着する可能性も想定される。しかし、土壌粒子(図1B 緑、ケイ素が指標)や海塩粒子(図1B 赤、ナトリウムが指標)は大部分が粒径2 μm以上の粗大粒子領域に存在し、放射性セシウムを含む粒子の粒径分布とは全く異なっているため、これらは放射性セシウムの輸送担体とは考えられない。一方、硫酸塩エアロゾルの粒径分布は(図1B 青、硫酸イオンが指標)放射性セシウムを含む粒子の粒径分布とほぼ同じで、多くの粒子が微小粒子領域に存在している。

これまでの研究により硫酸塩エアロゾルでは、硫酸塩が大気中で雲粒または霧粒に取り込まれ、さらに二酸化イオウ(気体)と反応して、より大きいエアロゾルが形成され、その結果として二峰に粒径分布が分かれる場合があることが知られている。放射性セシウムを含む粒子の微小粒子領域での二峰性の粒径分布は、この

ような硫酸塩エアロゾルの挙動により生じる粒径分布と一致する。

これらの結果から、放射性セシウムが付着した土壌粒子の再飛散による大気中の放射性セシウム量は 2011 年 4 月末～5 月中旬の時点では少ない、また、放出された放射性セシウムを大気中で長距離を輸送する担体は硫酸塩エアロゾルである可能性が大きい、との結論を得た。土壌粒子に付着した放射性セシウムが大気中で少なかった原因としては、この期間はある程度の頻度で降水があったことから地表面近くの土壌の水分量が比較的多い状態が続き、強い風が吹いても土壌粒子の飛散そのものが起きにくかった可能性が考えられる。

これまでの研究では原子炉(軽水炉)の事故により放射性セシウムが大気中に放出される際の化学形態としてはヨウ化セシウム (CsI) または水酸化セシウム (CsOH) が想定されており、今回の結論と合わせて考えると、放射性セシウムの輸送・沈着過程の概略は、図 2 に示すものと考えられる。

つまり、事故で放出された放射性セシウムを含む初期粒子(水酸化セシウムやヨウ化セシウムが想定されている)は、何らかの機構により硫酸塩エアロゾルの形成初期に取り込まれ、気体状の硫酸の凝縮・粒子相互の凝集を経て大気中での寿命が長い粒径 $0.1 \sim 2 \mu\text{m}$ 程度のサイズ(微小粒子領域)に成長、長い距離を輸送される。放射性セシウムを含む硫酸塩エアロゾルは乾性沈着、または落下中の雨・雪と衝突することにより地表に到達し、硫酸塩エアロゾルを核として雲粒・霧粒が形成された状態では重力沈降により地表に沈着する。さらに、このような雲から降水が生じると雪・雨に含まれた状態で大量に地表面に落下する、と考えられる。

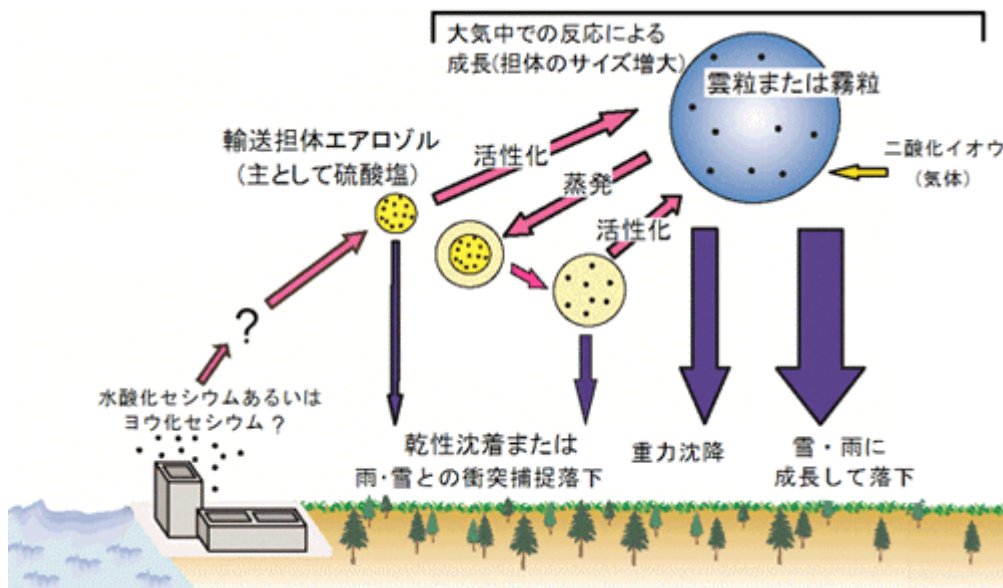


図 2 想定される放射性セシウムの輸送過程・粒径変化および地表面への沈着の概念図

また、今回測定された放射性セシウムを含む粒子の粒径は、事故形態が違ってもかわらず、1986 年のチェルノブイリ原子力発電所事故時に世界各地で測定された放射性セシウムを含む粒子の粒径と大差なかった。このことと、硫酸塩エアロゾルが大気中に広く存在することを考慮すると、チェルノブイリ原子力発電所事故により大気中に放出された放射性セシウムの輸送においても、硫酸塩エアロゾルが主たる輸送担体であった可能性が示唆された。

これまで、物質輸送モデルによる放射性セシウムの輸送・沈着の計算では、仮定に基づいた粒径を用いていたうえ、土壌粒子による再飛散の問題を除いては輸送担体という概念を持たないまま、仮想的な粒子として放射性セシウムを取り扱って大気中を移動させていた。本研究結果から、地表面への直接的な沈着(乾性沈着)に関する速度(沈着速度)をより明確に与えられ、さらに、硫酸塩を核(雲核)にした雲・霧への取り込みについても蓄積されてきた知識を応用することができるため、降水による地表面への沈着(湿性沈着)についても、より正確な理論的取り扱いが可能となる。今回の成果によって、放射性セシウムの地表面への沈着の再現や予測計算の改善が図られることが期待される。

今後の予定

2011年11月まで粒径別の大気エアロゾルの捕集を続け、計8サンプルを取得している。今後は、これらのサンプルを元に、福島第1原子力発電所からの放射性物質の放出量の減少や気象の変化による輸送担体の変化、風による土壌粒子の巻き上げで生じる放射性セシウムの再飛散について解析していく予定である。

用語の説明

大気エアロゾル

大気中を浮遊する微小な粒子。空気動力学粒径 $2\mu\text{m}$ 以下(微小粒子領域)の粒子は、気体状の前駆物質から大気中で二次的に生成される場合が多い。

放射性セシウム

核分裂を起こし、放射線を発するセシウム原子の総称。東京電力福島第1原子力発電所事故では、放出後沈着した半減期の長い ^{134}Cs (半減期約2年間)と ^{137}Cs (半減期約30年間)が、長期間にわたり放射線を発している。

硫酸塩エアロゾル

硫酸塩エアロゾルは主として二酸化イオウ(気体)が大気中で酸化されて粒子化したものであり、地球上どこにでも広く存在する。二酸化イオウは、石炭などのイオウを含む燃料を燃焼した際に発生するほか、火山からの放出、海洋中の植物プランクトンから放出される含イオウ有機ガスが大気中で酸化されて生成するものなど多様な発生源がある。

空気動力学径

大気中を浮遊する粒子はさまざまな形・密度を持っており、その幾何的なサイズを測ることは難しいが、ある粒子が密度 1g cm^{-3} の球形粒子と空気力学的挙動が同じである場合、そのサイズを密度 1g cm^{-3} の球形粒子の直径で代表させて表し、空気動力学径と呼ぶ。

乾性沈着

大気中の微量物質が、降水(雨・雪など)を経由せず、地表面、植生、建物などに直接沈着すること。粒径の大きい粗大粒子領域の粒子は重力落下、粒径の小さい微小粒子領域の粒子は拡散による沈着が支配的なメカニズムとなる。

湿性沈着

大気中の微量物質が、降水(雨・雪など)を経由して、地表面、植生、建物などに沈着すること。上空から落下してくる雨・雪などに衝突・付着して地表面に沈着するものをウォッシュ・アウト(Wash out)、水溶性のエアロゾルが雲の核(雲核)として働き、雲粒に成長することで雲水に取り込まれ、雨・雪などの組成となって落下してくるものをレイン・アウト(Rain out)と呼ぶ。霧の核として霧水に取り込まれ、霧粒として重力落下してくるものは、乾性沈着と湿性沈着の中間的なものといえる。