

TSUBAME 共同利用 平成 25 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 福島原発事故由来の硫黄放射性同位体モデルを用いた硫酸塩エアロゾルの動態の解明

英文: A study of sulfate aerosol dynamics by using a global transport model including the radioactive ^{35}S emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

利用課題責任者 吉川 知里

First name Surname Chisato Yoshikawa

所属 独立行政法人海洋研究開発機構

Affiliation Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

URL <http://www.jamstec.go.jp/rigc/j/ebcrp/>

邦文抄録

本研究では、福島原発事故により放出された硫黄放射性同位体 (^{35}S) の循環を導入した、全球 3 次元大気輸送モデルを開発し、 ^{35}S のモデルと観測との比較から、福島原発事故により放出された ^{35}S の放出量の見積もりと硫酸塩エアロゾルの動態についての考察を行った。本研究のモデルでは、2011 年 3 月 23 日から 4 月 1 日の期間の福島原発からの ^{35}S の放出量は約 $1000 \times 10^{13} \text{ atoms s}^{-1}$ であり、4 月下旬には数 1/1000 まで減少したと見積もられた。また、福島県内の観測値とモデルの大気中濃度、沈着量との比較から、福島県内に沈着した ^{35}S の約半数が再飛散していた可能性が示唆された。

英文抄録

A global transport model including the radioactive ^{35}S emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant was developed. By comparison between model sensitivity experiments and observed ^{35}S concentrations, the ^{35}S emission fluxes were estimated and the sulfate aerosol dynamics was analyzed. The estimated ^{35}S emission flux is approximately $1000 \times 10^{13} \text{ atoms s}^{-1}$ in March, 2011 and decreases by 1000 by the end of April, 2011. The relationship between ^{35}S observed concentrations in Fukushima and simulated ^{35}S concentrations and deposition fluxes suggested that the amount of re-entrainment of ^{35}S is a half of ^{35}S deposition flux.

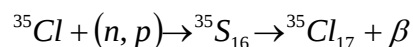
Keywords: 福島原発事故、硫黄放射性同位体、硫酸塩エアロゾル、SPRINTARS、CCSR/NIES AGCM

背景と目的

2011 年 3 月 11 日にマグニチュード 9.0 の東北地方太平洋沖地震が発生し、東京電力福島第一原子力発電所が緊急停止した。すぐに非常用ディーゼル発電機が起動したが、この地震で発生した津波によって非常用ディーゼル発電機は海水に浸かって故障し、電気設備、ポンプ、燃料タンク、非常用バッテリーなどの設備も損傷・流出してしまったため、原子炉内部が十分冷却されず、中性子や核分裂生成物が大気中に放出された(原子力災害対策本部, 2011)。

Priyadarshi et al. (2011)は、東日本大震災から 8 日後にカリフォルニア大学スクリプス海洋研究所 (117.25° W , 32.87° N , La Jolla)で高濃度の硫黄放射性同位体(^{35}S)からなる硫酸塩エアロゾル($1501 \text{ atoms m}^{-3}$)および二酸化硫黄(120 atoms m^{-3})を観測した。大気中の硫酸塩エアロゾルと二酸化硫黄の自然起源の ^{35}S 存在量は、それぞれ $180 \sim 475 \text{ atoms m}^{-3}$ 、 $30 \sim 40$

atoms m^{-3} である。このため、La Jolla で観測された高濃度の ^{35}S は、福島原発に海水を注入した際に、海水中的の ^{35}Cl が中性子を捕獲したことによって生成したものであると考えられている(下式)。



そしてこの生成した ^{35}S は、大気化学反応により数秒で二酸化硫黄($^{35}\text{SO}_2$)に酸化され、その後、硫酸塩エアロゾル($^{35}\text{SO}_4^{2-}$)への酸化や、乾性・湿性沈着、放射性崩壊(半減期: 87 日)を起こしながら La Jolla まで輸送されたと考えられている(Priyadarshi et al., 2011)。

Danielache et al. (2012)は、Takemura et al. (2000, 2002, 2005)が開発した SPRINTARS に硫黄放射性同位体の崩壊過程を組み込むことによって、 ^{35}S はの輸送過程及び福島原発からの ^{35}S と中性子の放出量を見積もった。本研究では、Danielache et al. (2012)以降、新たに観測結果が公開されたことを受け(Priyadarshi et al.

2013)、計算期間を、2011 年 3 月 11 日から 7 月 22 日まで延長して行い、①福島原発からの ^{35}S と中性子の放出量の見積もり、②福島原発事故由来の ^{35}S の濃度の収束過程、③福島県内の二次飛散量について考察を行った。

概要

本課題では、平成 25-26 年度(2013-2014 年度) 新学術領域研究(研究領域提案型)公募研究の研究課題「福島原発事故由来の硫黄放射性同位体モデルを用いた硫酸塩エアロゾルの動態の解明」の一環として、TSUBAME を用いて、硫黄放射性同位体(^{35}S)の循環を導入した全球・領域 3 次元大気輸送モデルを開発し、福島原発事故により放出された放射性セシウムの輸送媒体としての硫酸塩エアロゾルの動態の解明を行った。

結果および考察

本研究では、Danielache et al. (2012)のモデルを用いて以下の 2 種類の実験を行った。

感度実験 A: 福島原発が存在する $56 \text{ km} \times 56 \text{ km}$ の大きさのグリッドから ^{35}S を 1.43×10^{10} 、 1.43×10^{13} 、 1.43×10^{15} 、 $1.43 \times 10^{20} \text{ atoms s}^{-1}$ の 4 種類の一定量で、2011 年 3 月 14 日 12 時から 2011 年 7 月 22 日まで放出させた実験

感度実験 B: $1.43 \times 10^{15} \text{ atoms s}^{-1}$ の一定量で 2011 年 3 月 14 日 12 時から 2011 年 3 月 31 日まで放出させた後放出を停止させて 2011 年 7 月 22 日まで計算した実験

①福島原発からの ^{35}S と中性子の放出量の見積もり

図 1 に、日本国内で観測された硫酸塩エアロゾルの ^{35}S 濃度を示した。2011 年 3 月下旬から 4 月上旬にかけて関東地方で観測された ^{35}S の濃度は最大で $61,402 \text{ atoms m}^{-3}$ であり、自然起源(数 100 atoms m^{-3})と比較して有意に高い濃度を示した。また、2011 年 7 月から 8 月にかけて福島県内で観測された ^{35}S の濃度は最大で $100,000 \text{ atoms m}^{-3}$ であり、非常に高い濃度を示した。

本研究では、関東地方の観測値と感度実験 A の結果を比較することにより、2011 年 3 月下旬から 4 月下旬の福島原発からの ^{35}S 放出量と中性子放出量を見積もった(図 2)。この結果から、福島原発からの ^{35}S 放出量と中性子放出量は、3 月下旬の約 $1000 \times 10^{13} \text{ atoms s}^{-1}$ と

約 $100 \times 10^{14} \text{ neutrons m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ から、4 月下旬の約 $1 \times 10^{13} \text{ atoms s}^{-1}$ と約 $0.1 \times 10^{14} \text{ neutrons m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ へ、数 1/1000 まで減少していたと見積もられた。

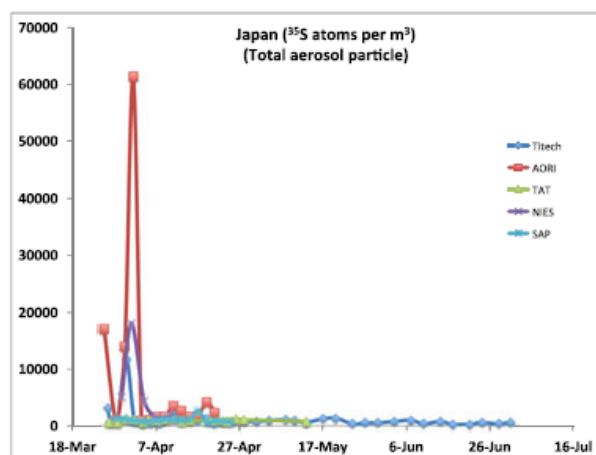


図 1: 東工大 (35.52° N , 139.48° E)、東大大気海洋研 (35.90° N , 139.94° E)、国環研 (36.05° N , 140.12° E)、農工大 (35.68° N , 139.48° E)、札総研 (43.08° N , 141.34° E)における硫酸塩エアロゾルの ^{35}S 濃度の観測値(Priyadarshi et al., 2013)。

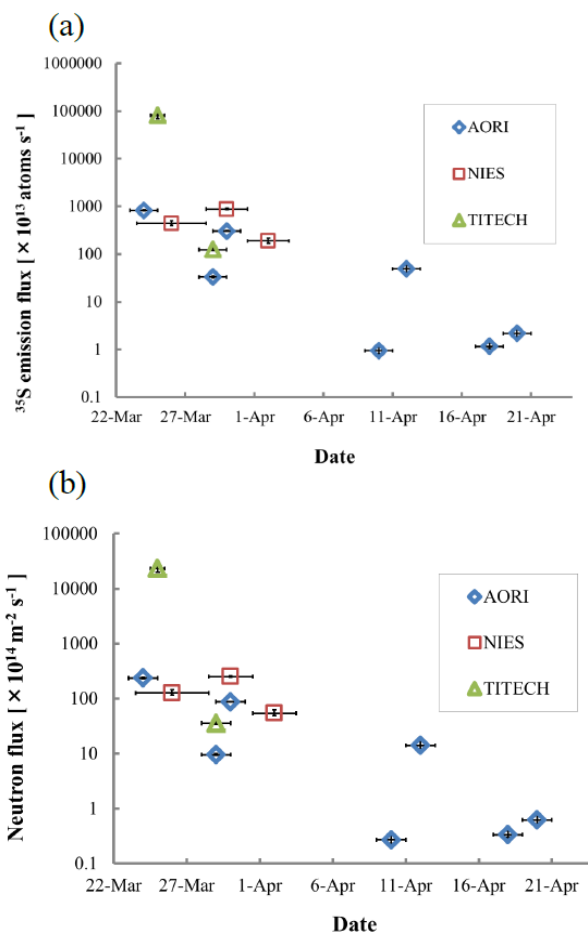


図 2: モデルによる 2011 年 3 月下旬から 4 月下旬の (a) 福島原発からの ^{35}S 放出量と (b) 中性子放出量の見積もり。

②福島原発事故由来の³⁵S の濃度の収束過程

図2から、2011 年 4 月以降の³⁵S の放出量は非常に小さいことと本研究で行った実験の中でもっとも現実に近いケースが 1.43×10^{15} atoms s⁻¹ であるから、本研究では感度実験 B を行い、2011 年 3 月に放出された福島原発事故由来の³⁵S の濃度の収束過程について考察を行った。その結果、3 月 16 日ころ福島原発事故由来の³⁵S を含む気塊が La Jolla に到達し、3 月下旬には北半球全域へ広がり、5 月下旬には自然起源の³⁵S 濃度以下までその濃度が減少していたことが示唆された。

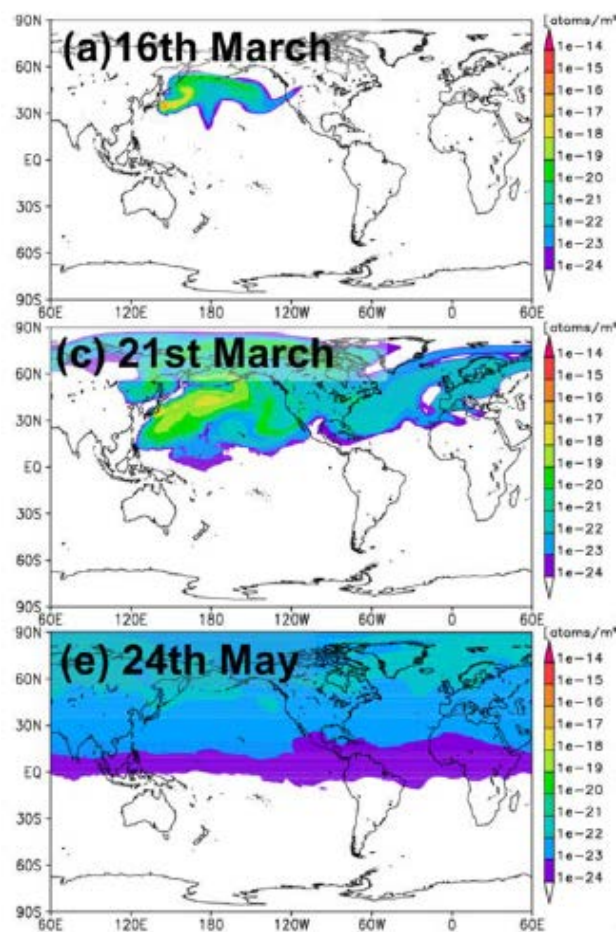


図3: 感度実験Bによる(a)2011 年 3 月 16 日、(b) 2011 年 3 月 21 日、(c) 2011 年 5 月 24 日における硫酸エアロゾルの³⁵S の鉛直積算濃度。

③福島県内の³⁵S を含む硫酸塩エアロゾルの二次飛散

図4に 2011 年 7 月から 9 月にかけて行われた福島県内における³⁵S 濃度の観測結果を示した。本研究の見積もりや、東工大の 2011 年 3 月から 6 月の観測結果からは、福島原発からの³⁵S の放出量は、2011 年 4 月以降は非常に小さいことが示唆されている。しかし、福島県内における硫酸エアロゾルの³⁵S 濃度は、2011 年

3 月の関東地方の観測値よりもさらに高い値を示した (Priyadarshi et al., 2013)。これらのことから、福島県内で観測された高濃度な硫酸エアロゾルの³⁵S は、地表面に一度沈着した硫酸塩エアロゾルが二次飛散している可能性が示唆された。

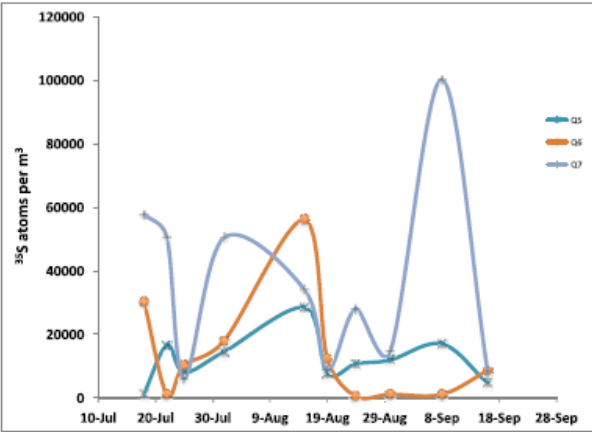


図4: 福島県内杉林、山木屋小学校、畑 (37.40° N, 140.36° E) における硫酸塩エアロゾルの³⁵S 濃度の観測値 (Priyadarshi et al., 2013)。

そこで、本研究では、感度実験 B の結果を用いて、福島県内への³⁵S の総沈着量を計算して、沈着後から観測日までの放射崩壊量を引いた量と観測値との比較から、沈着量に対する二次飛散の割合を推定した。この結果、³⁵S を含む硫酸塩エアロゾル が一度地表面へ沈着した後、再度飛散して大気中に存在していた割合は、2011 年 7 月において杉林では 47%、小学校では 41%、畑 では 43%であると見積もられた。

表1: 2011 年 7 月の福島県内の³⁵S を含む硫酸塩エアロゾルの沈着量に対する二次飛散の割合。

Site	Observed term	Observed ³⁵ SO ₄ ²⁻ activity (x 10 ⁴ atoms/m ³)	Total deposition amount that takes into account the radiative decay (x 10 ⁴ atoms/m ³)	Re-suspension ratio (%)
Cedar forest	9-18 July 2011	9.22	19.8	47
School ground	9-13 July 2011	9.61	23.4	41
Agriculture field	9-22 July 2011	6.95	16.2	43

Observed ³⁵SO₄²⁻ activities were quoted from Priyadarshi et al. (2013)

まとめ、今後の課題

本研究では、2011 年 3 月 23 日から 4 月 1 日の期間の福島原発からの³⁵S の放出量は約 1000×10^{13} atoms s⁻¹ と大きく、4 月下旬には数 1/1000 まで減少したと見積もられた。³⁵S は中性子と Cl が存在する環境下で生

成するため、中性子の生成量も ^{35}S の放出量と同様の推移を示したと推測される。

また、本モデルは一次飛散のみが考慮されたモデルであるが、福島県内の観測値との比較から、一度沈着した量の約半分が再飛散している可能性が示唆されたことから、今後二次飛散のプロセスを含めたモデルの開発が必要であると考えられる。

引用文献

Danielache et al. (2012) *Geochemical Journal* 46.4 (2012): 335

Priyadarshi et al. (2011) *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108.35 (2011): 14422–14425

Priyadarshi et al. (2013) *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (2013).

Takemura et al. (2000) *Journal of Geophysical Research* 105.D14 (2000): 17853–17

Takemura et al. (2002) *Journal of Climate* 15.4 (2002): 333–352

Takemura et al. (2005) *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012) 110.D2 (2005).

Watanabe et al. (2010) *J. Climate* 23, 6312–6335.

Kanai et al. (2012) *Journal of environmental radioactivity* 111 (2012): 33–37.

原子力災害対策本部 (2011) 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書 ―東京電力福島原子力発電所の事故について―