

## 海洋における放射性物質の 動態

廣瀬勝己

#### 上智大学理工学部

埼玉大学地圏科学研究センター

hirose45037@mail2.accsnet.ne.jp

## 講義の内容

- 海洋科学研究に、どのような放射性核 種が取り上げられたか。
- 日本における海洋放射能研究の歴史
- 海洋の物理的循環のトレーサー
- 海洋の生物地球化学的トレーサー
- 福島事故に付いて

## 海洋の物質の動態の研究で取り上げられた放射性核種

• 天然の放射性核種

ウラン、トリウム系列核種

<sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>234</sup>Th, <sup>228</sup>Th, <sup>210</sup>Pb, <sup>40</sup>K, <sup>226</sup>Ra 自然界で生成する放射性核種 <sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C, <sup>7</sup>Be, <sup>10</sup>Be

• 人工の放射性核種

大気圈(水圈)核実験起源放射性核種

<sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, plutonium isotopes, <sup>241</sup>Am, (<sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C) その他 (再処理廃液、原子力艦廃液、原子炉事故など) <sup>60</sup>Co, <sup>129</sup>I, <sup>110m</sup>Ag, <sup>134</sup>Cs, <sup>99</sup>Tc

## Chemical properties of elements in the ocean

- Conservative : vertically no change, good correlation with salinity. (longer oceanic residence time: >10<sup>5</sup> years)
  Cs (2.2 nmol/kg), K(10.2 mmol/kg), U(13 nmol/kg)
  Dissolved form: Cs<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>4-</sup>
- Slight surface depression (longer oceanic residence time: >10<sup>6</sup> years)

Sr(90 µmol/kg), Ca(10.2 mmol/kg)

Dissolved form: Sr<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>

• No-conservative (plutonium isotopes, <sup>241</sup>Am) (short oceanic residence time: 10<sup>3</sup>-10<sup>4</sup> years)

Nutrient-type: Ag(0.5-35 pmol/kg), I (0.2-0.5 µmol/kg) Surface depression: Co(0.01-0.1 nmol/kg)

# Tracers of metal cycling in the ocean

• Radionuclides reflect behaviors of corresponding stable elements.

<sup>137</sup>Cs  $\rightarrow$  Cs, <sup>90</sup>Sr  $\rightarrow$  Sr, <sup>60</sup>Co  $\rightarrow$  Co

- Advection and diffusion processes  $\rightarrow$  <sup>137</sup>Cs, <sup>3</sup>H
- Mineralization and dissolution  $\rightarrow$  SrSO<sub>4</sub>, CaCO<sub>3</sub>
- Biogeochemical processes; biological uptake (organic complexation), sinking of biogenic particle, and remineralization in deep water due to bacterial decomposition → Th isotopes, Pu isotopes, <sup>241</sup>Am

Cs – clay mineral interaction in coastal water Cs – organic matter interaction

<sup>137</sup>Cs: 1Bq/kg =1.37x10<sup>9</sup>n/kg=2.28 fmol/kg <sup>90</sup>Sr: 1Bq/kg =1.31x10<sup>9</sup>n/kg=2.2 fmol/kg

### 日本における海洋放射能研究

#### 項目

1954 ビキニ環礁の水爆実験

2.28 Bravo test (15 Mt: 1 MtはTNTで10<sup>6</sup>トン) 1960年代 大規模大気圏核実験によるグローバルフォールアウト 1970年代 主に英国等による放射性廃棄物の海洋投棄 再処理施設などから液体状放射性物質の海洋放出 1993年 ロシア(旧ソ連)による放射性廃棄物の海洋投棄公表 海洋放射能の国際協同調査

2011年 福島事故による海洋放射能汚染

ビキニ環礁における核実験による周辺海域の放射能汚染

2000 cpm/L ≈ 440 Bq/L 440 kBq m<sup>-3</sup>





Fig. 14a. The distribution of radioactivity in sea water on the vertical section perpendicular to the North Equatorial Current along the lines 150 km west of Bikini Atoll (Unit: cpm/1).





Fig. 14c. Along the lines 1,300 km west of Bikini Atoll (Unit: cpm/1).

Fig. 14b. Along the lines 570 km west of Bikini Atoll (Unit: cpm/1).

当時は核種分析はできなかった。

#### 海洋放射能調査 (1954年5月から7月, 俊鶻丸 航海)

#### 気象研究所で観測された<sup>137</sup>Cs and <sup>239,240</sup>Pu降下量の時間変化I



Year

## 降下量の観測値、地表の沈着量、海洋の存在量に基づいて評価された、1970年1月時点で10度メッシュごとの<sup>137</sup>Cs降下量



## 大気圏実験により北太平洋に降 下した<sup>137</sup>Csの総量

・1970年時点の北太平洋の <sup>137</sup>Csの総量 290 PBq (=10<sup>15</sup> Bq)

2000年代初頭の北太平洋の<sup>137</sup>Csの総量(観測値から推定)
85 PBq
(放射壊変のみでは約145PBq)

Estimated by Aoyama



西部北太平洋亜熱帯循環表面水の<sup>137</sup>Cs濃度の時間変動 (Aoyama, M., Hirose, K., *TheScientificWorldJOURNAL*, **4**, 200-215, 2004 and update)

#### Sellafield (英国)核燃料再処理工場から放射性廃液のアイリッシュ海 への放出の歴史



Figure 1. Marine discharges of caesium-137 from Sellafield, 1953-2008

<sup>137</sup>Csの年間最大放出は1975年にあった (5.23 PBq)。 (<sup>137</sup>Cs日最大放出: 20TBq)

Box	Year	Date	Latitude	Longitude	<sup>137</sup> Cs (Bq m <sup>-3</sup> )	Depth (m)	MRIREFNO <sup>b</sup>
1	1957	26-Sep	42,00	158.00	$115 \pm 11$	0	Miyake1961
2	1959	11-Sep	39.57	144.13	$78 \pm 15$	0	Miyake1961
3	1966	21-Jan	29.88	239.97	$70 \pm 8.5$	0	Folsom1968
4	19.58	7-Nov	24.99	134.98	$122 \pm 15$	0	Miyake1961
5	1980	l-Mar	16.73	190.48	$47 \pm 0.47$	0	Noshkin1999
6	1978	26-Apr	-1.32	145.46	$10 \pm 3.0$	0	Domanov1984 <sup>a</sup>
7	1978	24-Feb	-4.07	276.73	$6.7 \pm 2.0$	0	Domanov1984 <sup>a</sup>
8	1978	22-Apr	-7.31	158.26	$8.5 \pm 2.6$	0	Domanov1984 <sup>a</sup>
9	1978	2-Apr	-11.51	231.89	$21 \pm 6.4$	0	Domanov1984 <sup>a</sup>
10	1966	8-Nov	-38.12	178.90	$12 \pm 6.7$	0	Folsom1968
11	1966	13-Mar	-28.58	258.48	$10 \pm 1.5$	0	Folsom1968
12	1966	28-Aug	-41.32	227.73	$10 \pm 3.3$	0	Folsom1968
13	1962	6-Jan	-67.15	67.78	$6.3 \pm 0.4$	0	Nagaya 1964
14	1964	1-May	41.18	137.02	$26 \pm 1.5$	0	Nagaya 1970
15	1960	4-Nov	-9.48	113.42	$9.3 \pm 2.8$	0	Folsom1968 <sup>a</sup>
16	1960	27-Oct	-11.97	115.43	$10 \pm 3.1$	0	Folsom1968 <sup>a</sup>
17	1966	17-Nov	-55.97	175.67	$17 \pm 5.2$	0	Folsom1968
18	1981	15-Jul	70.00	17.50	$77 \pm 23$	3	Casso 1984 <sup>a</sup>
19	1979	31-Aug	62,00	4.00	$135 \pm 41$	0	Kautsky1987 <sup>a</sup>
20	1986	9-May	54.35	11.07	$2410 \pm 506$	0	DHIG9997
21	1980	15-Jul	51.73	0.88	$36,304 \pm 36$	0	MAFF9999
22	1974	20-Nov	54.43	356.42	$204,314 \pm 61,294$	3	MAFF99999 <sup>a</sup>
23	1974	13-Dec	50.50	1.00	$287 \pm 86$	0	MAFF99999 <sup>a</sup>
24	1967	24-Jul	58.57	356.22	$1,409 \pm 423$	0	MAFF99999 <sup>a</sup>
25	1986	22-Sep	41.41	29.32	$360 \pm 2.8$	2	Busseler1991
26	1986	1-May	43.52	16.45	$245 \pm 19.2$	0	Franic1993
27	1980	10-Aug	33.12	288.56	$31 \pm 0.34$	2	Cochran1987
28	1978	13-Feb	13.18	296.92	$21 \pm 6.2$	0	Domanov1984 <sup>a</sup>
29	1961	2-Aug	-40.65	304.03	$5.4 \pm 0.35$	0	Broecker1968
30	1966	14-Mar	48.50	153.67	$18 \pm 1.1$	0	Folsom1968
31	1968	15-Jul	30.90	129.00	$10 \pm 2.2$	0	Saruhashi 1975
32	1966	22-Jun	20,20	115.32	$16 \pm 0.74$	0	Folsom1968
33	1966	16-Feb	54.67	175.00	$23 \pm 5.6$	0	Folsom1968

Table 1 The maximum "Cs concentration in each box, including the sampling latitude, longitude, and the year of occurrence

<sup>a</sup> 30% was used as the standard deviation, because measurement err or was not included in the reference. <sup>b</sup> MRIREFNO is reference of the data and listed in Table S4a and b (ESI).

最大<sup>137</sup>Cs濃度は1974年にアイリッシュ海で観測された(200 kBq m<sup>-3</sup>)

Inomata et al. J. Environ. Monit., 11, 116-125 (2009)

## 日韓露日本海協同調査

• 発端

1993年にロシア政府により、放射性廃棄物の日本海等への投棄の実態が明らかにされた。また、海洋投棄が実施された。

海産物の放射能汚染の懸念⇒海洋調査が必要
問題点:放射性物質の投棄海域がロシアの経済水域であった.

⇒ロシアとの協同調査が不可欠である。

結果の信頼性を担保するためには国際機関 (IAEA海洋環境研究所)の参加が不可欠で ある。



expedition in the north central East Sea/Japan Sea.

#### 第2回日韓露協同調査(オホーツク海、太平洋など)



Fig. 1. Radioactive waste dumping areas  $(\Box)$ , sampling sites  $(\bullet)$  and background sampling sites  $(\bigcirc)$  with cruising chart in Far-Eastern Seas.

#### Vertical distribution of <sup>137</sup>Cs Concentration in radioactivity dumping areas in the Sea of Japan

Vertical distribution of plutonium Concentration in radioactivity dumping areas in the Sea of Japan



Fig. 2. Vertical profile of <sup>137</sup>Cs at the site N2 (●). The <sup>137</sup>Cs concentrations in bottom waters (►) were al: plotted.

and in the water columns of the central East Sea/Japan Sea (Miyao et al., 1997) (◊, ■), were also plotted.

Hirose et al., J. Environ.Radioact., 43, 1-13 (1999) Ikeuchi et al., Sci. Total Environ., 237/238, 201-212 (1999)

## 海洋の物理的循環のトレーサー

- 海洋の物理的測定(海流の流向・流速、 水温、塩分など)で分からない、長期に わたる循環を知るためには、水と同じ動 きをする放射性物質が有効である。
- この目的のためには、海水中の保存性 分としての挙動を示す放射性核種であ る必要がある。例:<sup>137</sup>Cs,<sup>3</sup>H



#### Water collection on board



#### Seawater sampling: Large-volume sampling (more than 100 L)

#### Injection of 100 L GoFlow Type sampler





Water sampling using a Rosette Multi-bottle sampler

To collect water samples of each 20 liters from 36 different depth layers





#### Formation of bottom water In the North Atlantic

Figure 10. Tritium concentrations along the north-south GEOSECS section in the western Atlantic. (a) Measurements made in 1972. (b) The model of *Maier-Reimer and Hasselmann* [1987]. (c) The model of *Heinze et al.* [1998]. **Direct evidence using tritium data for throughflow from the Pacific into the Indian Ocean.** R.A. Fine, Nature, 315, 478 (1985).



Fig. 1 Map of tritium (TU) at t surface of the Indian Occan decr corrected to 74-01-01. Data were o lected as part of the GEOSECS pi gram and analysed by Ostlund a Brescher<sup>10</sup>. •, Station locations.



Fig. 2 Map of tritium (TU) at 200 m in the Indian Ocean decay-corrected to 74-01-01. Data were collected as part of the GEOSECS program and analysed by Ostlund and Brescher<sup>10</sup> (1982). •, Station locations.

$$1 \text{ Sv} (\text{Sverdrup}) = 10^6 \text{ m}^3 \text{s}^{-1}$$

**Temporally integrated estimate of the Indonesian throughflow using tritium** Jean-Baptiste et. al., Geopys. Res. Lett., 31,L21310



Figure 1. Location of the hydrographic stations and schematic diagram of major currents: NEC: North Equatorial Current, SEC: South Equatorial Current, NECC: North Equatorial CounterCurrent, MC: Mindanao Current.



Figure 2. Tritium vertical profiles at the entrance line WOCE P4) and the exit (solid line JADE-89) Indonesian Seas (2-sigma error between 0.01 and 0.0





Figure 3. Estimate of the tritium inventory change (decaycorrected to 1981) at the entrance of the Indonesian Seas between the start of the tritium injection and the year 1989 (in % of the 1989 value).

#### Tracer use of <sup>14</sup>C

Plate 5.8.17 (see p. 444) Near-bottom radiocarbon distribution where bottom depth is at least 3500 m. Both WOCE and GEOSECS data were used in preparing this objective map. The flow of Circumpolar Deep Water northward along the western Pacific island arch system and then clockwise north of the equator is strongly implied.

0°



J. Candela, "Meduterranean Water and Global Circulation", *Ocean circulation & climate*, Vol. 77 of International Geophysics Series, Eds G. Siedler, J. Church, J. Gould, Acdemic Print, Spain, 2001.

北太平洋のそれぞれの海域の表面水の<sup>137</sup>Cs濃度の時間変動



#### 南太平洋のそれぞれの海域の表面水の<sup>137</sup>Cs濃度の時間変動



#### 世界の海洋における表面水中の of <sup>137</sup>Csの滞留半減時間 (2006 Revised)

Effective half-life±1o\*



Data in Red: This study

+: IAEA, Worldwide marine radioactivity studies (WOMARS) Radionuclide levels in oceans and seas, IAEA-TECDOC-1439, 104, 2005.
++: Povinec et al., <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs and <sup>239,240</sup>Pu concentration surface water time series in the Pacific and Indian Oceans - WOMARS results, Journal of Environmental Radioactivity 81 (1), 63-87, 2005.

#### 太平洋の<sup>137</sup>Csインベントリーの時間変化 (放射壊変は2003年に補正、インベントリー:単位 面積当りの水柱の総量)



## 福島事故以前の太平洋における <sup>137</sup>Cs濃度の空間分布



Fig. S1. 3-D <sup>137</sup>Cs in the Pacific Ocean before Fukushima accident in 2011

Aoyama et al., Geophys. Res. Lett., 35, L01604 (2008)

#### 世界の海流の概略と観測線



#### 南太平洋(30S)の海水中<sup>137</sup>Cs 濃度の鉛直断面



<sup>137</sup>Cs Bq m<sup>-3</sup>

2003-2004年みらいの航海で得られた。

Aoyama et al., Prog. Oceangr., 89, 7-16 (2011) Povinec et al., Prog. Oceangr., 89, 17-30 (2011)

#### 世界の海洋の熱塩循環:海洋のコンベアーベルト



熱塩循環:海水の密度変化により駆動される世界規模の海水の流れ.海水の密度は水温と塩分により決まる.

気候変動(温暖化) → 海洋表層温度及び淡水化の増大 → 深層水形成の低下 → 海洋コンベアーベルトの停止 → 気候変動へフィードバック

## 放射性セシウムの太平洋における 輸送の可能な経路(最新の知見)



Fig. S2 Possible pathway of <sup>137</sup>Cs in the Pacific Ocean

Nakano et al., J. Geophys. Res., 115, C06015 (2010)

## **Biogeochemical Processes**

- To know export flux and mineralization processes in the twilight zone.
- To formulate biogeochemical processes for modeling.
- $\Rightarrow$ Future work



**Figure 7** Conceptual diagram depicting components of the 'biological pump'.  $CO_2$  is taken up by phytoplankton and organic matter is produced. As this organic matter is processed through the marine food web, fecal pellets or aggregates are produced, a portion of which sink from the surface waters to depth (1). As organic matter is processed through the food web, DOC is also produced. DOC is removed from the surface waters to depth via physical mixing of the water by convective overturn (2). DOC and DIC are also actively transported to depth by vertically migrating organisms such as copepods that feed in surface waters and excrete and respire the consumed organic carbon at depth (3).

### Plutonium as a biogeochemical tracer: Research on plutonium in the ocean until the 1980s

- Level of <sup>239,240</sup>Pu concentrations in the oceanic waters
- Global distribution of <sup>239,240</sup>Pu concentrations in seawater
- Vertical distribution of <sup>239,240</sup>Pu concentrations in the open ocean water column
- Inventory of <sup>239,240</sup>Pu in the water column
- <sup>239,240</sup>Pu in sediment trap samples
- Chemical speciation of <sup>239,240</sup>Pu in seawater
## Geographical distribution of <sup>239,240</sup>Pu concentrations in surface water





#### Surface <sup>239,240</sup>Pu concentrations in the ocean in 2000



Hirose and Aoyama, J. Environ. Radioactivity, 69, 53-60 (2003))

#### **North Pacific**

6000



#### **South Pacific**

Vertical profiles of <sup>239</sup>Pu in the South Pacific (mBq m<sup>-3</sup>)



Hirose et al., Prog. Oceanogr., 89, 101-107 (2011)



Fig. 9. 239,240 Pu inventories in Pacific water columns (mCi/km<sup>2</sup>), 1973-74 GEOSECS stations.

Bowen et al., Eartn Plant Sci. Lett., 49, 411-434 (1980)

# Plutonium in sediment trap samples

 Detection of plutonium in deep sediment trap samples

Livingston and Anderson, Nature, 303, 228-230 (1983)

- Verification of rapid sinking processes
- Estimation of residence time of plutonium in surface waters using sediment trap data

Fowler et al., Deep-Sea Res., 30, 1221-1233 (1983)

# Speciation of plutonium in seawater

- Plutonium have several valence states in natural waters. ⇒ Pu(III), Pu(IV), Pu(V), Pu(VI)
- Complexation of plutonium with ligands depends on the valence state. Pu(III), Pu(IV) ⇒strong complex; Pu(V), Pu(VI) ⇒ weak complex
- Chemical form of plutonium in seawater Dissolved form ⇒ Pu(V, VI) Particulate form ⇒ Pu(III, IV)

Nelson et al., Earth Planet. Sci. Lett. 68, 422 (1984)





The particulate metal concentrations correlate with the concentration of the strong organic ligand in PM.

## Plutonium exists Pu(IV) complex in marine particulates.

*Hirose, Sci. Total Environ., 173/174, 195 (1995) Hirose and Aoyama,* Anal. Bioanal. Chem. **372**, 418 (2002)

Hirose et al., Deep-Sea Res II, 50, 2679 (2003) Hirose, TheScientificWorldJOURNAL, 4, 67 (2004)

# Trend of Ocean Plutonium since 1990

 Analysis of temporal variation of plutonium concentration in seawater

Surface

Vertical distribution

- Construction of database of plutonium concentrations in seawater
- Reproduction of plutonium distribution in the ocean due to OGCM model





Fig. 7. Apparent half-residence times of <sup>239,240</sup>Pu in surface waters of each Pacific Box. The BGC half-residence times are represented by values in parenthesis.

Hirose and Aoyama, represented by value Deep-Sea Res. II, 50, 2675-2700 (2003) Aoyama and Hirose, TheScientificWorldJOURNAL, 4, 200-215 (2004)

## Reproduction of vertical distribution of plutonium by a simple scavenging model.

## To predict increasing depth of Pu maximum layer.



Figure 1. Time series of calculated <sup>239,240</sup>Pu concentrations in each layer.

Figure 2. Comparison of observed and calculated 239,240Pu profile in the North Pacific [3]. (Sampling location: 30°48'N, 123°35'W; sampling date: August 1985).

#### Temporal variations of vertical profiles of <sup>239,240</sup>Pu in the North Pa





#### Reproduction of vertical profiles of plutonium from OGCM model



Fig. 16. The comparison between the vertical distribution of the observed concentration of <sup>239,240</sup>Pu in the 1970s, 1980s and 1990s near the Japan area (20°N-40°N, 130°E-160°E, without the Japan sea) and calculated results (31°N, 148°E) in the years of 1973, 1983 and 1993. Points show observations, the black line shows calculated results by annual mean field.

Tsumune et al., J. Environ. Radioactivity, 69, 61-84 (2003)

## Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

- Six nuclear reactors exist in this area.
- Explosions due to hydrogen release occurred in outer housing of the first and third reactors. Explosions of the No.1 and No.3 reactors happened on 12 and 14 March, respectively. Explosion due to incomplete cooling of spent fuel pool in the No.4 reactor happened on 15 March.
- As a result of meltdown of nuclear fuels, large amounts of radioactivity have been released in the atmosphere, which stated on 12 March 2011.



#### Detection of high radioactivity in seawater



Radionuclide concentrations in coastal seawater near Nuclear reactors collected in March 21.

(Tokyo Electric Co.)



First results (Sampling date: March 24)

(Data: MEXT web site)

131	<sup>137</sup> Cs
24.9	16.4
30.0	11.2
76.8	24.1
37.3	18.2
54.7	12.7
42.0	12.8
29.0	15.3
39.4	15.2
Unit: kBq m <sup>-3</sup>	



## Radioactivity emitted from Fukushima Daiichi NPP

 Total amount of radioactivity emitted in the atmosphere from No. 1, No. 2, and No. 3 reactors. (Major radioactivity emission occurred in15-16, March 2011.)

640 PBq (Radioactive noble gases, Radioiodine, Radiocesium and others)

> 131 160 PBq (Chernobyl: 1800 PBq) <sup>137</sup>Cs

15 PBq (Chernobyl: 86 PBq)

(Japanese government report)

 $1 PBq = 10^{15} Bq$ 

## What kinds of radionuclides were released in atmosphere?

1. Major radionuclides:

Radioactive noble gases133Xe (half life: 5.25d)Radioiodine131I (half life: 8.04d)132Te-132I (half life: 78h)Radiocesium137Cs (half life: 30y)134Cs (half life: 2.06y)

2. Minor radionuclides:

Radioactive noble gas $^{85}$ Kr (half life: 10.7y)Radiosrontium $^{90}$ Sr (half life: 28.8y) beta emitter $^{89}$ Sr (half life: 50.5 d)other gamma emitters(140Ba-140La (12.8d), 129mTe(33.5d) others)alpha emitters :plutonium isotopes



Results of model simulation: Higher radioactive Deposition occurred In the northern North Pacific.

Takemura et al., Sora 2011

Figure 1. SPRINTARS simulation for March (a) 18, (b) 21 and (c) 24 of near-surface mass concentration of particles emitted continuously from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant since 1200 UTC, March 14. The concentration indicated is relative to that within a few tens kilometers around the power plant. Each range of color contours corresponds to one order of magnitude.

Total amount of the Fukushima-derived radionuclides injected into ocean via atmosphere

- First approximation : a half amount of total atmospheric release was injected into ocean.
   <sup>137</sup>Cs: 7.5 PBq (JAEA)
- 2. Estimation of IRSN <sup>137</sup>Cs: 10 PBq
- Estimation from marine observed data by Aoyama

<sup>137</sup>Cs: 10-13 PBq

Direct release of radioactive contaminated water from the Fukushima Daiichi NPP 1.concentration in contaminated water: 5.2 TBq m<sup>-3</sup> of <sup>131</sup>I flow out period (4/1-6): estimation of total release (137Cs 220TBq/day)(TEPCO): 2.7 PBq <sup>131</sup>I 0.9 PBq <sup>137</sup>Cs 2. First estimation by IRSN total release of <sup>137</sup>Cs 2.5 PBg 3. Estimation from <sup>137</sup>Cs concentrations in seawater and ocean model(Tsumune et al., 2012) Total release of <sup>137</sup>Cs 3.5 PBq

# Direct release of radioactive contaminated water from the Fukushima Daiichi NPP II

- Estimation of direct release of <sup>137</sup>Cs: (Kawamura et al., J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1349–1356 (2011))
  - 3.58 PBq
- Second estimation of IRSN: 27 PBq
- Estimation of JCOPE: 14.8 PBq
- Estimation of Sirocco: 4.2 PBq

•

• Estimation of NOAA: 3.6 PBq

(Masumoto et al., Elements 8, 207–212 (2012))

#### 2<sup>nd</sup> Estimation of direct release <sup>137</sup>Cs by IRSN









Fig. 6 Evolution of quantities of <sup>137</sup>Cs in seawater at more than 5km from the coast.

## 福島第一発電所近傍観測結果



南放水口および5-6放水口近傍の137Cs濃度



 3月26日以降、<sup>131</sup>I/<sup>137</sup>Cs比が約8日 間の半減期曲線と一致すること、 濃度も増加を示すことから、港湾 内から外洋への漏洩は3月26日に 開始したことが推察される。

- 3月26日以前に観測された濃度は、
   <sup>131</sup>I/<sup>137</sup>Cs比のばらつきが大きいことから、大気を経由した降雨などによるフォールアウトの影響と考えられる。
- 4月6日以降、濃度が著しく減少することから、漏洩が大幅に減少し始めたことが推察される。
- 4月23日より濃度の減少は弱まり、
   限度濃度(9.E+4Bq/m<sup>3</sup>)程度の値となる。

Tsumune et al., J. Environ. Radioact., 111, 100-108 (2012)

南放水口および5-6放水口近傍の<sup>131</sup>I/<sup>137</sup>Cs比

#### 沿岸高解像度モデル

- 領域海洋モデル(Regional Ocean Modeling system, ROMS)
- 水平1km x 1km、鉛直20層、250m水深までを考慮
- 気象庁の観測結果を境界条件とした大気モデル(NuWFAS)の 結果により駆動
- 潮汐を考慮
- 境界条件は、気候値で駆動した北太平洋モデルの結果
- 再現期間(3月26日-5月1日)
- 放出条件:発電所からの漏洩のみを考慮

#### 設定した<sup>137</sup>Csと<sup>131</sup>Iの漏洩率(Bq/day)

•3月26日から4月6日まで一定の漏洩率(1Bq/s)と仮定し、シミュレーションを行った。

- •その結果に対し、3月26日から4月6日までにおいて、漏洩を設定したメッシュ(1km×1km×10m)の平均濃度が、漏洩場所近傍である南放水口および5-6放水口近傍の<sup>137</sup>Csの平均濃度(1.2×10<sup>7</sup> Bq/m<sup>3</sup>)となるように、倍率(2.55×10<sup>9</sup>)を掛けた。4月6日以降も港湾内に残留した<sup>137</sup>Csの放出が、減少しながら継続していることが想定される。4月6日以降は、南放水口および5-6放水口近傍の<sup>137</sup>Csの濃度減少に会わせて漏洩率を指数関数的に減少させ、4月25日以降は一定とした。
- ・また、<sup>131</sup>Iの漏洩率は、3月26日時点での<sup>131</sup>I/<sup>137</sup>Cs比を6.9として、<sup>131</sup>Iの
   半減期(8.04日)を考慮し、<sup>137</sup>Csの設定値からの比で設定した。

総漏洩量は以下のとおり見積もられる。

・3月26日から4月6日までの<sup>137</sup>Csの漏洩量:2.6PBq
・3月26日から4月6日までの<sup>131</sup>Iの漏洩量:11.9PBq
・3月26日から5月1日までの<sup>137</sup>Csの漏洩量:3.5PBq
・3月26日から5月1日までの<sup>131</sup>Iの漏洩量:13.5PBq

### 放出条件の設定



#### 設定した<sup>137</sup>Csと<sup>131</sup>Iの漏洩率(Bq/day)

 ・3月26日から4月6日まで一定の漏洩率(1Bq/s)と仮定し、シミュレーション を行った。その結果に対し、3月26日から4月6日までにおいて、漏洩を設定 したメッシュ(1km×1km×10m)の平均濃度が、漏洩場所近傍である南放水口 および5-6放水口近傍の<sup>137</sup>Csの平均濃度(1.2×10<sup>7</sup> Bq/m<sup>3</sup>)となるように、倍 率(2.55×10<sup>9</sup>)を掛けた。

•4月6日以降も港湾内に残留した<sup>137</sup>Csの放出が、減少しながら継続していることが想定される。4月6日以降は、南放水口および5-6放水口近傍の<sup>137</sup>Csの濃度減少に会わせて漏洩率を指数関数的に減少させ、4月25日以降は一定とした。

・また、<sup>131</sup>の漏洩率は、3月26日時点での<sup>131</sup>/<sup>137</sup>Cs比を6.9として、<sup>131</sup>の半減期(8.04日)を考慮し、<sup>137</sup>Csの設定値からの比で設定した。
 ・総漏洩量は以下のとおり見積もられる。

- 3月26日から4月6日までの<sup>137</sup>Csの漏洩量: 2.6PBq
- 3月26日から4月6日までの<sup>131</sup>Iの漏洩量:11.9PBq
- 3月26日から5月1日までの<sup>137</sup>Csの漏洩量: 3.5PBq
- 3月26日から5月1日までの<sup>131</sup>Iの漏洩量:13.5PBq



南放水口および5-6放水口近傍の <sup>137</sup>Cs濃度の観測結果と漏洩メッシュ における計算結果の比較

- 観測結果と計算結果はよく一致する。
- 3月26日から4月6日までは一定の漏洩率を 設定しているが、風応力による流動場の変化 による濃度変化(4月3日を中心とした濃度減 少)があり、計算結果はその変化もよく再現し ている。

## 福島第二発電所近傍の計算結果



#### 福島第二発電所前における観測結果と計算結果の比較

•福島第一発電所より、北放水口近傍は南10km、岩沢海岸付近は南16km

•観測結果と計算結果はよい一致を示す。3月26日から4月6日まで漏洩率を一定としても、4月3日に おける濃度の急激な上昇を再現することが出来た。これは風による海流の変化を再現できたためで あると考える。

•4月12日以降は過小評価となっている。4月19日以降には、降雨によるフォールアウトの影響が卓越してきた可能性があるが、4月12日から19日の過小評価については今後の検討課題である。

Total release amounts of radionuclides from the Fukushima NPP

- Total amounts of atmospheric emission <sup>137</sup>Cs: about 12-15 PBq (Aoyama's estimation)
- Direct release as radioactive contaminated water

<sup>137</sup>Cs: about 3.5 PBq (Tsumune's estimation)

Total amounts
 <sup>137</sup>Cs: about15-19 PBq
 IRS

JAEA: 8.4 PBq IRSN: 12.5 PBq

コメント:沿岸堆積物も相当汚染されている可能性が 高い。



137Cs direct ocean discharge <1 to >27 PBq

## Summary of budget of <sup>137</sup>Cs in the North Pacific Ocean

290 ± 30PBq a

3.5 ±0.7 PBq <sup>c</sup>

85 PBq b

69 PBq b

- Global fallout as of 1970
- Observed inventory as of 2002
- Estimated inventory as of 2011
- Fukushima direct discharge
- Fukushima atmospheric deposition 12—15 PBq <sup>d</sup>
- (Chernobyl global release in 1986 85 PBq <sup>e</sup>)

a: Aoyama, M., Hirose, K., Igarashi, Y., *J. ENVIRON. MONITOR.*, **8**, 431-438, 2006 b: Aoyama unpublished data

- c: Tsumune et al., 2011,
- d: this study

e: IAEA, Proceeding of an International Conference, Vienna, 8-12 Apr. 1996

# Radionuclides released in marine environments

• <sup>131</sup>I (half-life: 8.04 d)

Effects of <sup>131</sup>I for marine organisms are not important because of its shorter half life. After three months, a level of <sup>131</sup>I decreases three orders of magnitude lower than initial level.

- <sup>137</sup>Cs (half-life: 30 y): very important
- <sup>134</sup>Cs (half-life: 2.04 y): <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs ratio(=1)
- <sup>90</sup>Sr(half-life: 28 y), <sup>89</sup>Sr(half-life: 50.6 d): <sup>89</sup>Sr/<sup>90</sup>Sr ratio(about 12,initial time); <sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs ratio(0.5-6.5x10<sup>-2</sup>)
- Other radionuclides: <sup>36</sup>Cl,<sup>129</sup>I,<sup>3</sup>H and plutonium (radionuclide compositions in direct release differed from atmospheric emission,)
# Chemical form of released radionuclides in seawater

- <sup>137</sup>Cs, <sup>134</sup>Cs: ionic (dissolved), low affinity with particulate matter. A typical tracer of water mass. (very small portion of <sup>137</sup>Cs may be vertically transported in deep water.) Cs behaviors are similar to alkali metal ions such as potassium.
- <sup>131</sup>I: complicated chemical form (I<sup>-</sup>, IO<sub>3</sub><sup>-</sup>, organic(?))
  Dissolved in seawater as anionic ions.
- <sup>90</sup>Sr, <sup>89</sup>Sr: ionic (dissolved), low affinity with particulate matter.
- Pu: particle reactive; Pu(V): dissolved, carbonate complex ;Pu(IV): particulate, organic complex

<sup>134</sup>Cs (left) and <sup>137</sup>Cs(right) in April-May 2011

NYK ships : Brown MR11-03: light blue , Honda et al., 2011(11:00 today) KT11-06: Blue



Aoyama et al., Biogeosciences, 10, 3067–3078, 2013



Fig. S3 Region of interest A, B, C and D



**Fig S4.** <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs activity in region A: eastern North Pacific Ocean







**Fig S7**. <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs activity in region D: close to the FNPP1 site

### Summary: temporal and spatial distribution of Fukushima radiocaesium

- Fukushima radiocaesium deposited on wide area in the North Pacific Ocean, especially in western part of subarctic gyre and subtropical gyre.
- In the eastern North Pacific Ocean, maximum <sup>134</sup>Cs activity was ca. 10 Bq m<sup>-3</sup> in April/May 2011.
- Detected <sup>134</sup>Cs was Fukushima origin and <sup>137</sup>Cs was Fukushima+ pre-existing bomb origin.

# II. Effects of direct release of cooling water from the Fukushima Daiichi NPP

1. Temporal change of <sup>90</sup>Sr in surface water near reactor site



Povinec et al., Environ. Sci. Technol., 46, 10356-10363 (2012)

#### Effects of Fukushima Daiichi NPP accident Temporal changes of surface <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr



Julian day

# Temporal change of <sup>89</sup>Sr/<sup>90</sup>Sr and <sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs activity ratios in surface water near the reactor site



Initial <sup>89</sup>Sr/<sup>90</sup>Sr ratio (11 March 2011) is calculated to be 11.8.

#### <sup>137</sup>Cs concentrations in surface waters (model simulation)



- 4月6日までは一定量の漏洩が継続した。4月6日において、福島沿岸部にそって、限度濃度(9.E+4(緑))を超える値が広がっている。北向きへの影響は小さい。ただし、沖合方向への拡散は過小評価となっている。
- 4月11日は沖合への拡散が大きくなるが、計算では過小評価である。濃度限度以上の海域面積はほとんど変わらず、濃度限度以下で拡散している。

#### <sup>137</sup>Cs concentrations in surface waters (model simulation)



- 4月23日には、沿岸に沿って南方向に拡散している。すべての海域において濃度限度以下となる。南下した後、銚子沖において黒潮にのり、東に拡散する。ただし、この海域においては境界 条件の影響を強く受けるため、誤差が大きい可能性がある。
- 5月1日は北方向および沖合への拡散が大きくなる。これは、境界条件としての親潮が弱まった 影響と考えられる。すべての海域において濃度限度以下となる。南下した後、銚子沖において 黒潮にのり、東に拡散する。



Tsumune et al., Biogeosci. Discus., 10, 6259-6315 (2013)

Model simulated <sup>137</sup>Cs Concentrations in surface

# Radioecological effects to marine organisms

- <sup>131</sup>I: enriched by sea weeds(since half life of <sup>131</sup>I is short, radioecological effects to marine organisms are low.)
- <sup>137</sup>Cs: concentration factor of marine organisms is relatively low. (<sup>137</sup>Cs is enriched in soft tissue of fish.) Since biological half time of <sup>137</sup>Cs is relatively short, <sup>137</sup>Cs concentrations in marine organisms decrease according to decline of <sup>137</sup>Cs concentrations in seawater. The concentration factor of <sup>137</sup>Cs is 10 -100 for marine organisms.
- <sup>90</sup>Sr: concentration factor of marine organisms is relatively low. (<sup>90</sup>Sr is enriched in bone of fish.)

## Radionuclides in sediments

<sup>137</sup>Cs <sup>134</sup>Cs <sup>89</sup>Sr <sup>90</sup>Sr <sup>239,240</sup>Pu <sup>238</sup>Pu

- Odaka 3km 600 570 140 44 0.43 -
- Iwasawa 3km 1000 970 42 10 0.45 6/2 sampling, unit: Bq/kg TEPCO
- Partition coefficient of <sup>137</sup>Cs between seawater and sediment: 1000 (BG seawater: 1-2 mBq/L, BG sediment: 1-4 Bq/kg)
- Partition coefficient of <sup>90</sup>Sr between seawater and sediment : 100
- Estimation of <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Srconcentration (Bq/L) from their concentration in sediments
- Odaka 3km 0.6 (<sup>137</sup>Cs) 0.44 (<sup>90</sup>Sr) 1.4 (<sup>137</sup>Cs/ <sup>90</sup>Sr)
- Iwasawa 3km 1 0.10 10

### 海洋放射能研究について

- 海洋放射能研究はどのような現象を明らかにすることができたか。海洋放射能研究の特徴はどこにあるのか。
- ・歴史的には長期にわたる観測が日本では行われてきた。これは、日本的特徴であったが、今後も維持されるべきか。
- 残された問題は何か。今後の海洋放射能研究は どうあるべきか。