

[領域] 放射能

[領域代表者] 小村和久

[領域研究成果]

環境における物質輸送を解析する手段として固有の物理的半減期を持つ放射性核種の利用は時間軸を与える貴重なトレーサーとして有効である。放射能領域では、極低レベル放射能測定技術の開発、環境中に極微量存在する宇宙線誘導核種を含む天然放射性核種及び大気圏核爆発実験等によって環境中に大規模放出された人工放射性核種  $^{137}\text{Cs}$  をトレーサーに用いることにより環日本海域における物質輸送とその特長を研究した。なお、尾小屋地下測定室は近い将来全国共同利用微弱放射能測定拠点として開放する予定である。

#### 極低レベル放射能測定を目的とする尾小屋地下測定室の整備

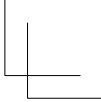
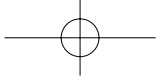
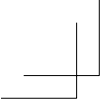
文科省特別教育研究経費や受託研究費等の取得により旧尾小屋鉱山跡トンネル内設置の地下測定室に COE プログラム実施期間中に 6 台の超低バックグラウンド Ge 検出器を増設した。尾小屋地下測定は、同軸型 Ge 検出器 1 台、井戸型 Ge 検出器 9 台、平板型 Ge 検出器 6 台の総数 16 台となり、極低バックグラウンド Ge 検出器の設置台数においては、世界一の地下測定室となった。遮蔽材として旧金沢城の鉛瓦を融解して製造した古い鉛ブロックを用いる事により、地上設置の検出器より 1~2 桁バックグラウンド計数を低減する事ができ、環境中の微量放射性核種の時間的・空間的変動を従来より 1 桁以上高い分解能で解析する事ができた。

#### 大気中放射性核種を利用する大気団の輸送・混合の解析

16 台の極低バックグラウンド Ge 検出器を用いる事によって複数地点で 1~3 時間間隔で採取した大気中放射性核種の高分解能同時観測が可能となった。サンプリング地点として研究室のある辰口町和気（現能美市和気町）、鉛直方向への輸送・混合の解析を目的として海拔 640m の獅子吼高原、大気団の水平方向の輸送を解する事を目的に析輪島沖 50km に位置する舳倉島を選び、2003 年 4 月から連続観測を実施した。測定核種は天然の  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Po}$ 、 $^{212}\text{Pb}$  及び宇宙線誘導核種  $^7\text{Be}$  である。これらの大気中放射性核種の変動がラドンのそれに匹敵するほど大きいこと、台風や前線通過時には特異な変動をする事など多くの知見を得た。

#### ラジウム同位体 $^{226}\text{Ra}$ 及び $^{228}\text{Ra}$ を利用する日本海沿岸および日本海盆における海水の輸送・混合の研究

海水中のラジウム同位体濃度は極めて低いために、従来は 200L 以上の海水を用いなければ測定不可能であった。尾小屋地下測定室の利用により、僅か 20L の海水試料で従来より高い精度でラジウム同位体を測定

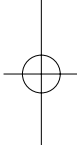
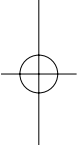


することが可能になった。本研究では能登半島を中心に、対馬、島根、新潟を経て青森に至る本州の日本海沿岸域及び日本海盆におけるラジウム同位体及び核爆発実験由来の人工放射性核種  $^{137}\text{Cs}$  を測定し、日本海におけるラジウム同位体の変動に季節変動がある事を、太平洋その他の海域と比較して鉛直方向への混合・拡散計数が極めて高い事を明らかにした。

#### 水中短寿命宇宙線誘導核種を用いる物質の輸送の研究

1950-60年代に雨水中の存在が明らかされた半減期1~20時間の短寿命宇宙線誘導核種 ( $^{38}\text{Cl}$ ,  $^{39}\text{Cl}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{24}\text{Mg}$ ) は数時間から数日レベルで起る大気物質の地表への降下・輸送を解析する手法として極めて有効である。しかしこれらの核種濃度は極めて低いので、測定はもとよりトレーサーとしての利用は不可能であった。本研究では、多量の雨水の迅速採取、イオン交換法による迅速化学分離、尾小屋地下測定室での極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定により短寿命宇宙線誘導核種の同時測定に世界で初めて成功した。解析モデルの構築を今後の課題として取り組む予定である。

#### 降下物中の放射性核種をトレーサーとする日本海域の物質輸送の研究



日本海を隔てた大陸からの汚染物質や黄砂を含む土壌起源物質の長距離輸送の解析を目標として、水盤により採取した降下物に含まれる宇宙線誘導核種 ( $^7\text{Be}$ ,  $^{35}\text{S}$ ) 天放射性核種 ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) 及び人工放射性核種 ( $^{137}\text{Cs}$ ) をトレーサーとして用いる研究を行なった。測定には研究室のある石川県辰口町（現能美市）において10数年余にわたって毎月採取した降下物のほか、石垣島から稚内に至る日本海沿岸の全国11地点と韓国の太田で毎月採取した降下物を用いた（辰口以外は気象研究所の協力により入手）。長期、広範囲にわたる観測によって、起源の異なる核種降下量に「冬高夏低」という共通の季節変動が存在すること、これが日本海沿岸域の最大の特長であることを明らかにした。また太陽活動の11年周期に伴う宇宙線誘導核種  $^7\text{Be}$  の濃度変化（活動期に低く、静穏期に高い）を明瞭に捉えることに成功した。

[研究課題]環境中の極微量放射性核種の高解像度変動解析

[事業推進担当者]小村和久

[目的]

環境中に存在する放射性核種は、地球化学、大気化学、海洋化学、気象学等の研究におけるトレーサーとして有用である。しかし、一般に濃度が低いためトレーサー利用は濃度の高い核種に限られていた。水深 270m 相当の旧尾小屋銅鉍山のトンネル内に設置した 16 台の超低バックグラウンド放射線検出器の使用により、これまで測定が不可能あるいは困難であった極微量の放射性核種の高精度測定が可能になった。本研究は、地下測定室を利用し、以下の 3 つの研究課題に取り組む。中でも大気中の放射性核種濃度の変動の高解像度解析 (1~3 時間間隔) に力を入れ、新しい知見を得ると共に、極微量放射性核種のトレーサー利用に道を拓くことを目指す。

- (1) 辰口 (能美市)、海拔 640m の獅子吼高原 (白山市)、能登半島沖 50km に位置する舩倉島 (輪島市) の 3 地点 (図 1) をモニタリング拠点とし、大気中の  $^{210}\text{Pb}$  (半減期 22.3 年)、 $^{210}\text{Po}$  (138 日)、 $^{212}\text{Pb}$  (10.6 時間) 及び宇宙線誘導放射性核種  $^7\text{Be}$  (53.3 日) の同時高解像度観測を行い、気象変化や大気の輸送・混合等による変動について研究する。また、通常の測定では検出不可能な濃度にある人工放射性核種  $^{137}\text{Cs}$  (30.2 年) 及び宇宙線誘導核種  $^{22}\text{Na}$  (2.60 年) の季節変動について観測する。
- (2) 能登半島を中心とする日本海沿岸域の表層海水及び日本海盆地域の海水中のラジウム同位体  $^{226}\text{Ra}$  (1600 年) 及び  $^{228}\text{Ra}$  (5.75 年) 濃度と  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  同位体比の精密測定を行い、日本海における海水の循環・混合の特徴を明らかにする。
- (3) 降水中に存在する極微量短寿命宇宙線誘導核種を測定し、大気化学・水文学、気象研究におけるトレーサー利用の道を拓く。

[研究成果]

- (1) 大気中放射性核種の濃度 : (a)  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Po}$  及び  $^7\text{Be}$  濃度がラドンに匹敵する短時間 (1~数時間) で変動することを初めて明らかにした。変動は、各核種の半減期、生成起源、大気中滞留時間に依存するほか、大気団の遠距離輸送や混合・希釈における濃度変化で説明できた。(b) 寒冷前線あるいは台風接近時に  $^{210}\text{Pb}$  及び  $^7\text{Be}$  濃度が著しく低下することが明らかになった。これは核種濃度の低い海洋性気団の遠距離輸送、降雨による地表への落下の重畳で説明される。 $^7\text{Be}$  の方が変動は大きく、通常の濃度レベルの 1/10 以下にもなる一方、 $^{210}\text{Pb}$  は 1/3 程度であった。(c) 半減期 10.6 時間の  $^{212}\text{Pb}$  は海拔高度の高い獅子吼高原および陸地面積の小さい舩倉島 (<1km<sup>2</sup>) で辰口の約 1/2~1/4 の濃度レベルにあり、変動パターンには位相差がみられることが分かった。前線通過時の舩倉島及び降雪時の獅子吼高原では平地にある辰口より  $^{212}\text{Pb}$  濃度が 1~2 桁低くなることから、大気の近距離輸送と鉛直混合の情報を得た。(d) これに対して半減期の長い  $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  濃度及びその季節変動は、3 地点で大きな違いがなく、地域を覆う大気団の核種濃度を反映していることが分かった。(e) 人工放射性核種  $^{137}\text{Cs}$  (30.2 年) 及び宇宙線誘導核種  $^{22}\text{Na}$  (2.60 年) の濃度が 0.1~1 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  の範囲にあり、春に高く夏の極小値を経て秋から冬にかけて増加する季節変動をすることが明らかになった。
- (2) 日本海海水中のラジウム同位体 : (a) 日本海沿岸海水の  $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{226}\text{Ra}$  濃度及び  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  同位体比は、黄海及び東シナ海を経由して日本海に流入する対馬暖流と日本海に流入する黒潮の分流の相対的な寄与に依存して変化することが分かった。(b) 日本海

盆で採取した海水中の  $^{228}\text{Ra}$  の深度分布から、海水の鉛直混合拡散係数  $5\sim 6\text{cm}^2/\text{s}$  を得た。この値は太平洋その他の海域の  $\sim 1\text{cm}^2/\text{s}$  よりもずっと大きく、日本海海水では鉛直混合が活発なことが分かった。日本海への放射性廃棄物投棄の影響が懸念される。

- (3) **雨水中の短寿命宇宙線誘導核種**：屋上を利用した多量の雨水の迅速採取（5分から1時間で50L採取）、イオン交換法による迅速化学分離（20分で2000倍濃縮）、尾小屋地下測定室での極低バックグラウンド放射能測定（雨水採取後90分で測定開始）により、短寿命宇宙線誘導核種  $^{38}\text{Cl}$ （38分）、 $^{39}\text{Cl}$ （56分）、 $^{18}\text{F}$ （110分）、 $^{38}\text{S}$ （178分）、 $^{24}\text{Na}$ （14.96時間）、 $^{28}\text{Mg}$ （20.9時間）及び  $^7\text{Be}$ 、 $^{22}\text{Na}$  の7核種の同時検出に初めて成功した。(b)雨水中の宇宙線誘導核種の濃度(atom/L)は核種間で4桁以上の差があることが分かった。酸素及び窒素から生成する  $^7\text{Be}$  は  $10^7\text{atom/L}$  と極めて多いが、アルゴン(大気中濃度1%)から生成する宇宙線誘導核種は濃度が低く、最も多い  $^{22}\text{Na}$  で約  $10^4\text{atom/L}$ 、半減期1日以下の短寿命核種の殆どは  $10^2\sim 10^3\text{atom/L}$  の範囲にあることが明らかになった。これらの情報から雲の生成高度、雨滴の滞留時間、雨水による物質輸送 (scavenging) のについての知見が得られると期待している。本研究は可能性を見出した段階であり、今後のさらに発展させるべく努力をする予定である。



図1 大気中放射性核種のモニタリング地点。

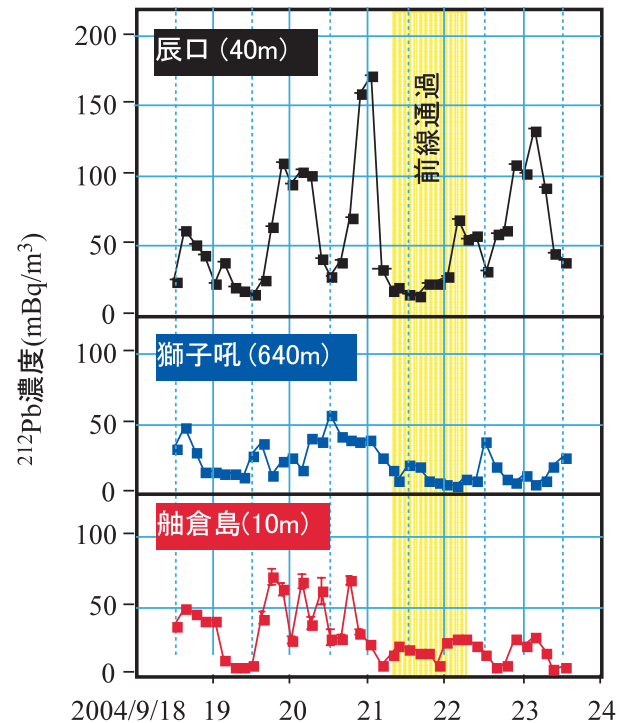


図2 辰口、獅子吼高原、舩倉島の3地点で同時観測した  $^{212}\text{Pb}$  の濃度変化。

発表論文

- K. Komura et al.: Levels of airborne radionuclides at Hegura Island, Japan. "Radionuclides in the Environment", Intern. Conf. on Isotopes in Environmental Studies, 2004. 25-29 Oct. Monaco. 554-561 (2006).  
M. Inoue et al.: Seasonal and spatial variations of  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio in coastal water of the Sea of Japan: implications for water circulation pattern in coastal areas. J. Environ. Radioactivity, 89, 138-149 (2006).  
K. Komura et al.: Measurements of short-lived cosmogenic nuclides in rain samples. J. Radioanal. Nucl. Chem. 269 (3), 511-516 (2006).

[研究課題] 放射性核種  ${}^7\text{Be}$ ,  ${}^{35}\text{S}$ ,  ${}^{40}\text{K}$ ,  ${}^{137}\text{Cs}$  及び  ${}^{210}\text{Pb}$  降下量の長期・広域観測 - 日本海沿岸地域の特徴と輸送  
 [事業推進担当者] 山本 政 儀

[目的]

我が国は、極東アジアの中緯度に位置するため、偏西風が卓越し、風上側のアジア大陸から日本海を經由して自然・人為起源物質が日本列島さらに北太平洋に輸送される。人為起源物質のエロゾルによる気候変動の影響については、定量的な議論を行うための研究が精力的に進められている。最近、自然起源の風送ダスト（黄砂）についてもその放射強制力による気候変動や海洋表層のプランクトン等の一次生産への影響評価、さらに大気中汚染物質のスカベンジャー等の面から実態把握と輸送モデルによる研究が重要視されている。

大気中には、種々の放射性核種、宇宙線起源の  ${}^{35}\text{S}$ ,  ${}^7\text{Be}$ ,  ${}^{10}\text{Be}$ ,  ${}^{22}\text{Na}$ , や陸起源の  ${}^{222}\text{Rn}$ ,  ${}^{210}\text{Pb}$  ( ${}^{210}\text{Po}$ ), U や Th 同位体,  ${}^{40}\text{K}$  さらに大気圏核実験起源の  ${}^{90}\text{Sr}$ ,  ${}^{137}\text{Cs}$ ,  ${}^{239,240}\text{Pu}$  などが存在している (Fig. 1)。

これらの放射性核種は、一定の物理的半減期で減少することに加え、供給源や供給量がよく把握されているために、大気の循環と混合過程、気団の移動、エロゾルの挙動、汚染物の輸送や除去過程研究等の追跡子(トレーサー)として多用されている。特に、下部成層圏や上部対流圏で生成する  ${}^7\text{Be}$  や地上から散逸する  ${}^{222}\text{Rn}$  ガスの壊変で生成する放射性核種  ${}^{210}\text{Pb}$  は、サブミクロンオーダーのエロゾルに吸着・付着するため大気中のエロゾル挙動解明の有用なトレーサーになる。黄砂の主成分のイライトはその層状構造の間に K を取り込んだ粘土鉱物であり、その意味で K、ひいてはその同位体の放射性  ${}^{40}\text{K}$  は黄砂降下量の指標になる。また、 ${}^{137}\text{Cs}$  は、1960年代の大気圏核実験からの放射性降下物であり、1980年代までにその殆どが地上に降下沈積し、現在大気中に見出せる  ${}^{137}\text{Cs}$  は地上表層土壌からの再浮游による。それ故、この核種も土壌起源の指標として見なせる。

本研究は、大陸からの汚染物質の影響が最も懸念される日本海沿岸地域に着目し、 ${}^7\text{Be}$ ,  ${}^{35}\text{S}$ ,  ${}^{210}\text{Pb}$ ,  ${}^{40}\text{K}$  及び  ${}^{137}\text{Cs}$  をトレーサーとして特に日本海側の大陸からの汚染物質(酸性雨も含む)や黄砂を含む土壌起源物質の長距離輸送の実態把握とその結果を長期・短期環境変動解析・予測に役立てることを目的として、(1)石川県辰口町(当実験施設, LLRL)で1991-2006年にかけて降下量の長期観測、(2)韓国・太田(Taejon, Korea Institute of Nuclear Safety (KINS)) 及び石垣から稚内までの全国11地点の共同広域観測(気象研究所)を実施し (Fig. 2)、以下の研究成果を得た。

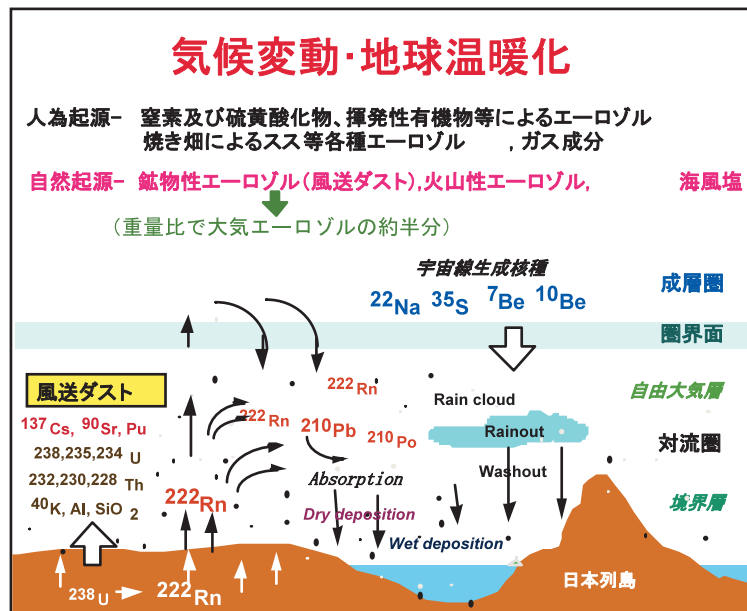


Fig. 1 Useful radioactive tracers used in the fields of atmosphere



Fig. 2 Sampling stations of rainfall.

[研究成果]

石川県辰口及び韓国を含む日本の広域での<sup>210</sup>Pb及び<sup>7</sup>Be降下量の長期・広域観測から、(1)日本海での両核種の降下量は晩秋から春先にかけての冬季間に集中して高く、太平洋高気圧が発達する夏季に低くなる明瞭な一山型の季節変動を示した (Fig. 3)。冬季には、年間降下量の50-70%が降下する。(2)宇宙線核種<sup>35</sup>Sについても同様な結果を得、降下物中の酸性雨の原因の一つであるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>降下量とその降下量が調和的であることが分かった。(3)過去15年間の石川県辰口での<sup>40</sup>Kおよび<sup>137</sup>Cs月間降下量の測定から<sup>40</sup>Kは冬から春先にかけて高く(海風塩の影響も含む)、夏季は<sup>40</sup>K同様に低く、全体として季節変動を示すものの降下量が漸減しつつあった。起源の異なる放射性降下物のこのような冬高夏低の降下現象が日本海沿岸地域の最大の特徴であり、一過性のものではなくて恒常的なものであることが分かった。

日本海側に降下量が多いメカニズムを考察するために韓国・太田、輪島、辰口での同一期間の<sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>Be降下量を比較検討した。韓国・太田での<sup>210</sup>Pb降下量濃度(Bq/L)は、日本の輪島や辰口での濃度とほぼ一致(同一起源)しており、一方、<sup>7</sup>Be降下量濃度(Bq/L)は冬季に韓国・太田で低い。冬季の<sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>Be濃度の違いは、Fig. 4に示す極気団(高濃度<sup>7</sup>Be)、季節風(高濃度<sup>210</sup>Pb)、日本海での積雲・降雪(<sup>7</sup>Be+<sup>210</sup>Pb)に関係する。このような結果も考慮すると、日本海での冬季に降下量の多い原因 (Fig. 4) は、高緯度の濃度の高い<sup>7</sup>Beを含む極気団の流れ、大陸の表層付近(境界層内)での高濃度大気<sup>210</sup>Pbの季節風による日本海への吹き出しに始まる。この冷たい乾燥した空気が対馬海流による暖かい日本海を通過する際に、海面から大量の熱と水蒸気の補給を受け、大気成層に不安定を起こして激しい上昇気流・対流雲(時には上空5km程度まで上昇)を発生させ、日本海沿岸に降雪をもたらす。これに加えて、日本列島の山脈による地形成上昇によっても降雪がもたらされる。降雪粒子は、降雨粒子に比べてエアロゾルをより効率的に補集する。

本研究は、日本海側冬季降下量の増加メカニズムのみならず、環日本海域の将来の気候環境変動予測のデータ・ベースとしても活用が期待でき更なる長期観測を継続している。

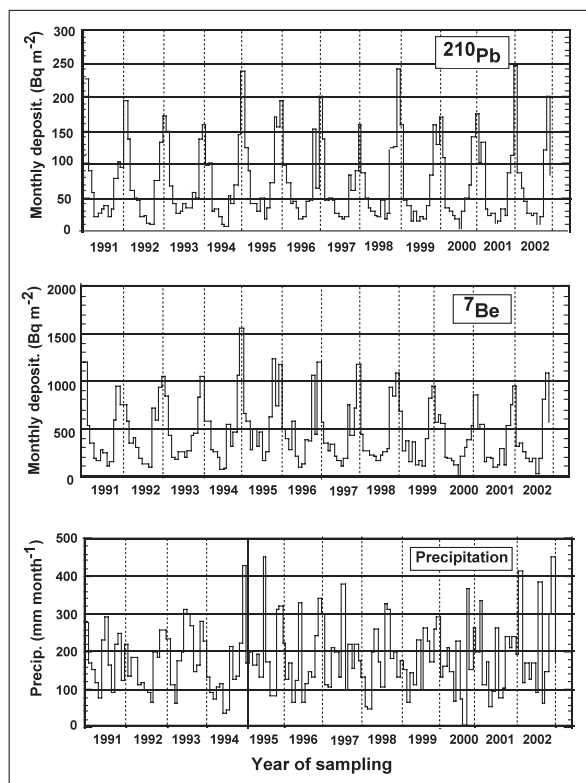


Fig. 3 Monthly depositions of Pb-210 and Be-7, and amount of precipitation observed in Tatsunokuchi, Ishikawa, during 1991-2002.

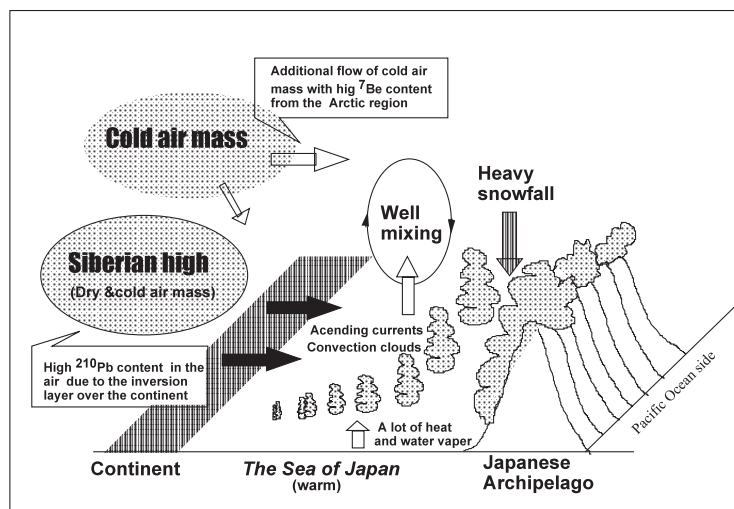


Fig. 4 A general picture of processes leading to high depositions of Pb-210 and Be-7 on the Japanese Sea side of Japan in winter.