

2015.1.31(土)
大気環境中部支部
新潟大学

放射性核種を用いた 日本海域における大気-海洋間の 物質動態研究

長尾誠也、井上睦夫

金沢大学環日本海域環境研究センター
低レベル放射能実験施設

1

発表の内容

- ・放射性核種を用いた物質動態研究
- ・放射性核種によるエアロゾルの輸送研究
- ・PCB,PAH類の動態解析のための活用
- ・放射性核種を用いた海洋での物質動態への適用

2

物質動態研究に放射性核種を用いる利点

- ・壊変する元素により化学的性質が異なる
元素による特徴の違い
酸化還元環境の影響評価
- ・半減期により研究対象とする現象を選択
- ・現象に時間スケールを導入

3

トレーサーとして利用される放射性核種

- ^3H : 浅層地下水の移行
- ^{14}C : 深層地下水の移行, 海水流動, 有機物の動態
- ^{90}Sr : 溶存成分の移行
- ^{137}Cs : 懸濁粒子の移行
- ^{210}Pb : 沈降粒子、エアロゾル粒子の挙動
- Th同位体(^{228}Th , ^{230}Th , ^{232}Th , ^{234}Th)
- U同位体(^{234}U , ^{238}U)
沈降粒子の挙動、地下水流動
酸化還元環境の物質移行の評価

4

天然放射性核種の壊変

ウラン系列

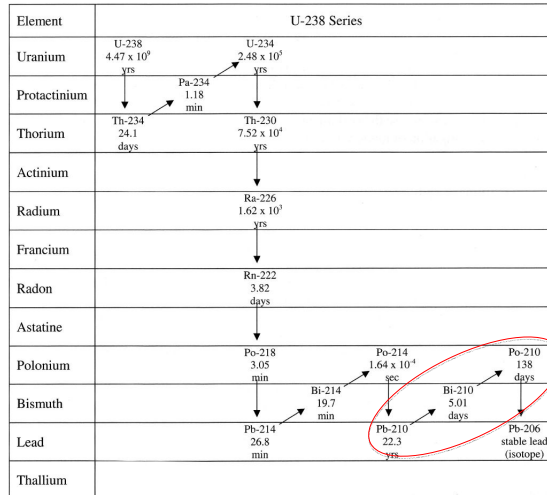


Fig. 1.1. Decay series chain for arrival at ²¹⁰Pb from ²³⁸U. Note that the half-lives from ²²⁶Ra through to ²¹⁰Pb are so short in comparison to that for ²¹⁰Pb that one can effectively consider ²²⁶Ra as the original parent of ²¹⁰Pb.

(Sedimentary Processes Quantification Using Radionuclides., 2003)

5

大気エアロゾル中のPb-210, Bi-210, Po-210

Table 1. Monthly mean concentrations and deposition rates of Pb-210 and Be-7 and ratios of Bi-210/Pb-210 and Po-210/Pb-210

Month	Rainfall (mm/month)	Number of samples (Samples/days)	Pb-210		Be-7		Bi-210/Pb-210**	Po-210/Pb-210**
			(Bq/l)*	(Bq/m ² /month)	(Bq/l)*	(Bq/m ² /month)		
(1990)								
Jan.	70	13/20	0.47	32.4	—	—	0.417 ± 0.057	0.0515 ± 0.0287
Feb.	48	8/28	0.60	28.8	—	—	0.513 ± 0.068	0.0477 ± 0.0159
Mar.	32	10/31	0.70	22.4	—	—	0.492 ± 0.082	0.0715 ± 0.0478
Apr.	99	11/30	0.16	15.5	—	—	0.492 ± 0.093	0.1047 ± 0.0508
May	27	6/31	0.24	6.7	—	—	0.412 ± 0.082	0.0652 ± 0.0190
Jun.	88	7/30	0.16	13.7	—	—	0.377 ± 0.122	0.0540 ± 0.0132
Jul.	232	12/31	0.10	23.8	1.2	278	0.470 ± 0.124	0.0881 ± 0.0686
Aug.	220	11/31	0.14	31.2	1.3	280	0.460 ± 0.110	0.0710 ± 0.0487
Sep.	281	17/30	0.09	24.5	1.3	377	0.439 ± 0.052	0.0615 ± 0.0297
Oct.	117	9/31	0.13	15.4	1.5	171	0.506 ± 0.117	0.0512 ± 0.0300
Nov.	158	17/30	0.25	39.3	2.2	347	0.452 ± 0.107	0.0375 ± 0.0174
Dec.	88	14/31	0.57	50.5	8.7	761	0.440 ± 0.094	0.0207 ± 0.0078
(1991)								
Jan.	60	15/31	0.34	20.5	3.2	193	0.472 ± 0.084	0.0276 ± 0.0198
Feb.	84	14/28	0.24	20.5	1.9	160	0.522 ± 0.061	0.0480 ± 0.0378
Mar.	34	11/31	0.70	23.6	7.4	250	0.580 ± 0.125	0.1016 ± 0.0313
Apr.	59	10/30	0.24	14.3	3.0	176	0.556 ± 0.122	0.1036 ± 0.0293
May	14	4/31	0.21	2.9	4.7	65	0.371 ± 0.043	0.0937 ± 0.0392
Jun.	38	7/30	0.15	6.0	1.5	58	0.449 ± 0.109	0.0721 ± 0.0457

* The mean concentrations are obtained by dividing the total deposition by the total rainfall.

** The standard deviations of daily values are attached to the mean values.

Tokieda et al. (1996)

B-i210/Pb-210とPo-210/Pb-210との放射能濃度比に違い
→成層圏からのPb-210の寄与が関与

6

つくばにおける硫酸イオンと⁷Beの沈着量

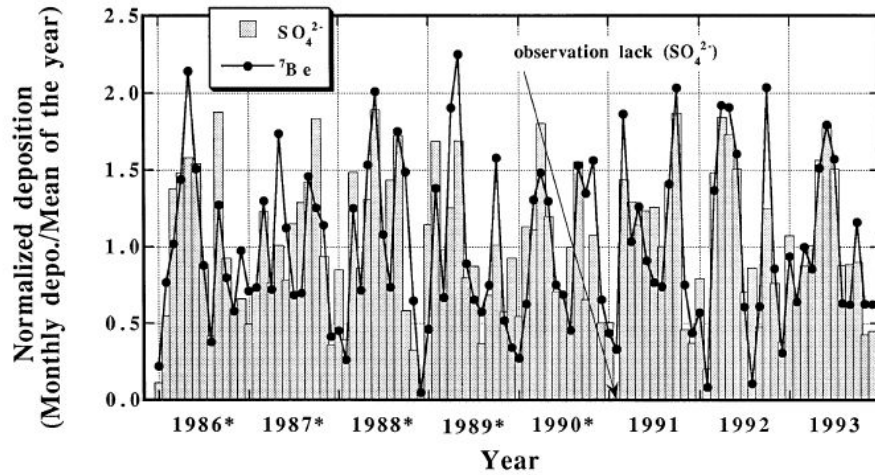
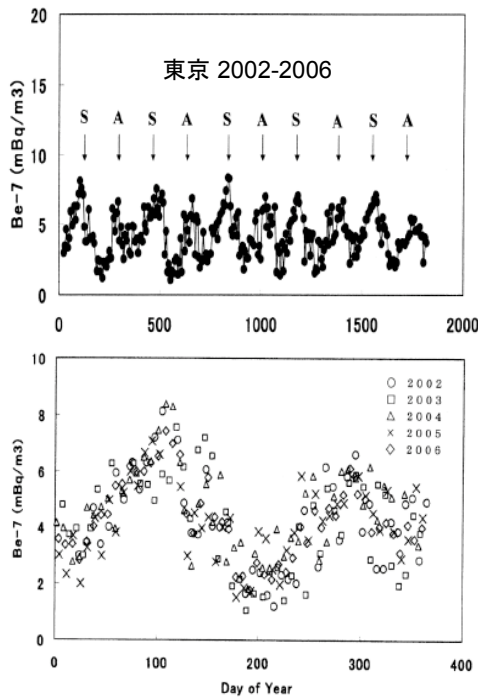


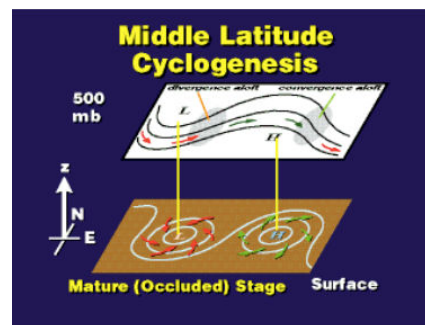
Figure 1. Seasonal variation in ⁷Be and SO₄²⁻ depositions observed in Tsukuba during 1986-1993 (*SO₄²⁻ data are from Okamoto *et al.*, 1992).

Igarashi *et al.* (1998)

7



東京における⁷Beの放射能濃度の変動



Yoshimori (2008)

8

つくばにおける¹³⁷Csの沈着頻度とダストイベント

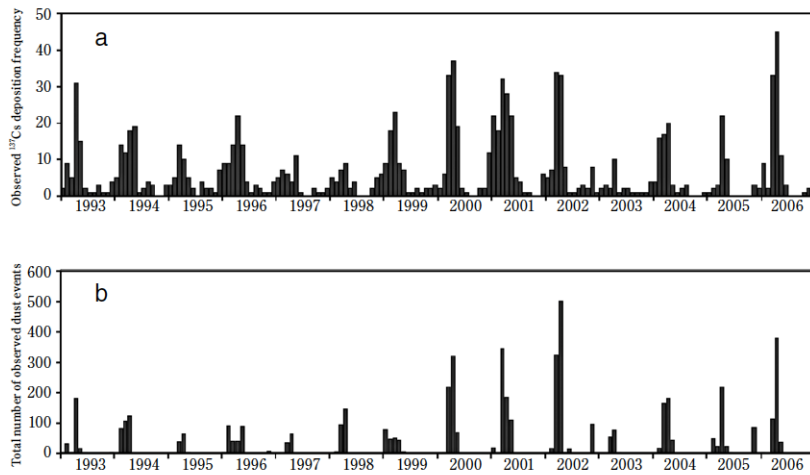
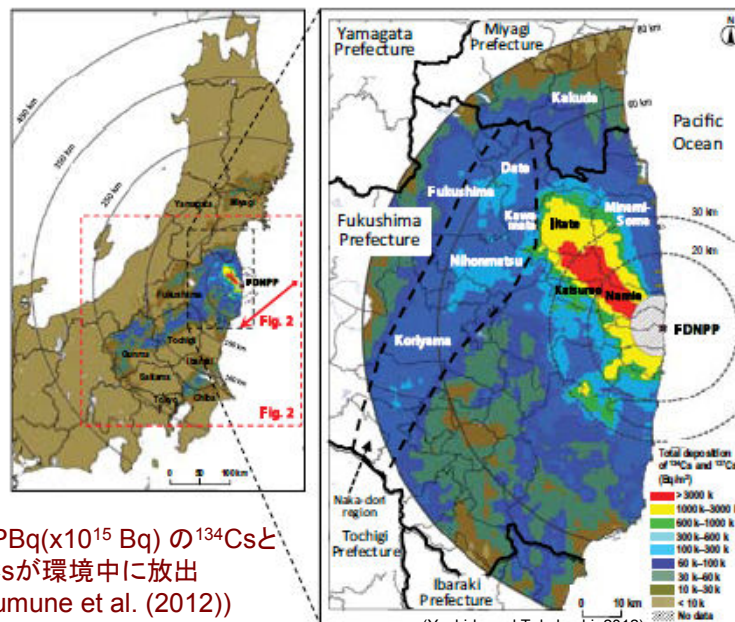


Fig. 1. Monthly frequency distributions of ¹³⁷Cs deposition (a) and observed dust events (b) in Japan. The ¹³⁷Cs deposition frequency is defined as the number of monitoring stations observing significant ¹³⁷Cs deposition each month at 47 sites in Japan, as determined from radiochemical analysis data in the MEXT database (Japan Chemical Analysis Center, 2009). Total number of observed dust events is defined as total number of days when 85 stations observe Asian dust for one month (Japan Meteorological Agency, 2008).

Fujiwara, 2010

9

表層土壌に沈着した¹³⁴Csと¹³⁷Cs蓄積量

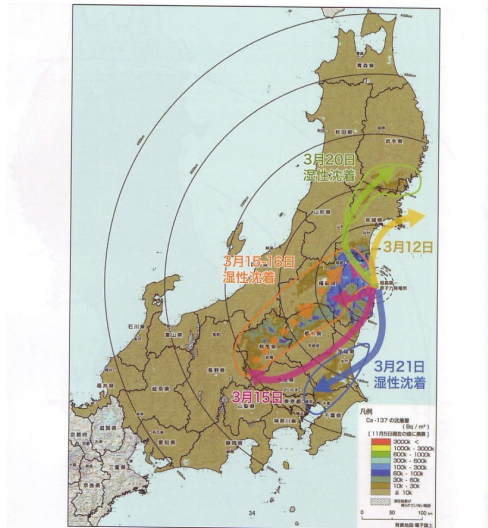


15 PBq($\times 10^{15}$ Bq) の¹³⁴Csと¹³⁷Csが環境中に放出
(Tsumune et al. (2012))

(Yoshida and Takahashi, 2012)

10

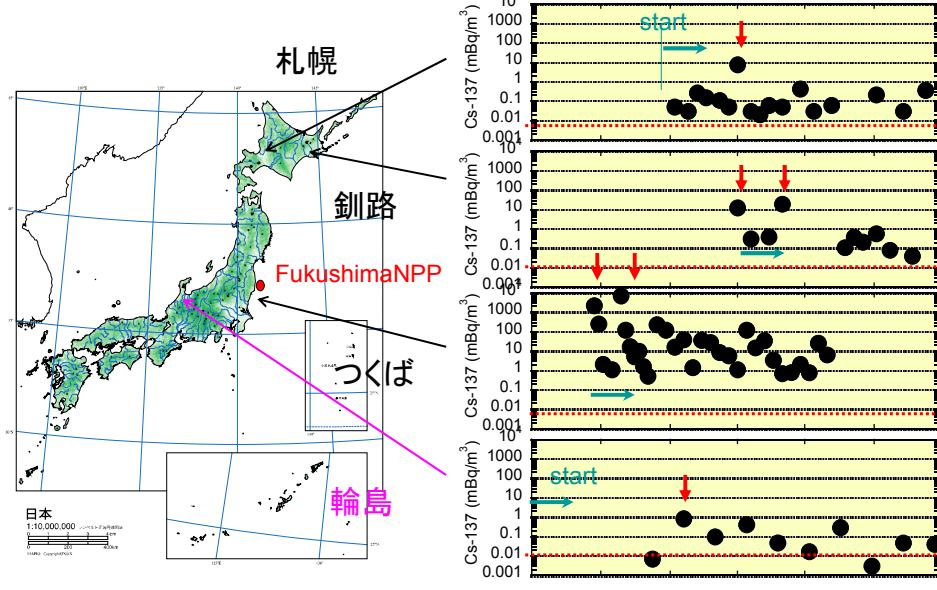
放射性物質の輸送経路と沈着過程



口絵2 放射性物質の輸送経路と沈着過程の概略 (JAEA 公開ワークショップで参加者の議論により作成した図)。マップは文部科学省航空機モニタリングによる¹³⁷Csの沈着量分布を示す。(本文図3.3参照)

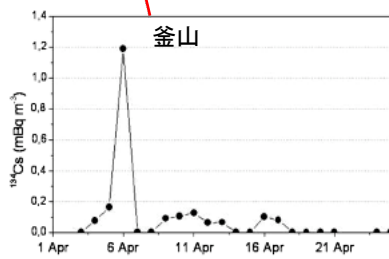
(原発事故環境汚染: 福島第一原発事故の地球科学的側面、東京大学出版, 2014)

福島原発事故後の大気エアロゾルの放射性セシウム



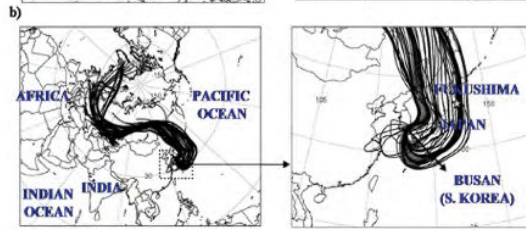
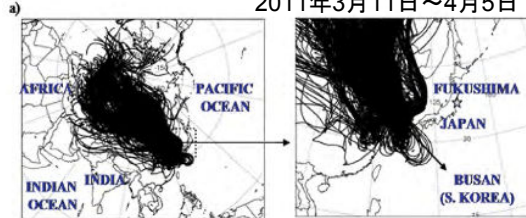
風向による放射性セシウムの輸送経路の変動

韓国におけるエアロゾル中の放射性セシウム



後方流跡線解析

2011年3月11日~4月5日

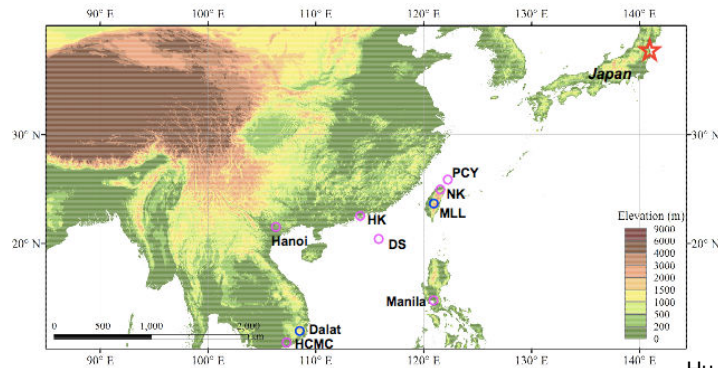


2011年4月6-7日

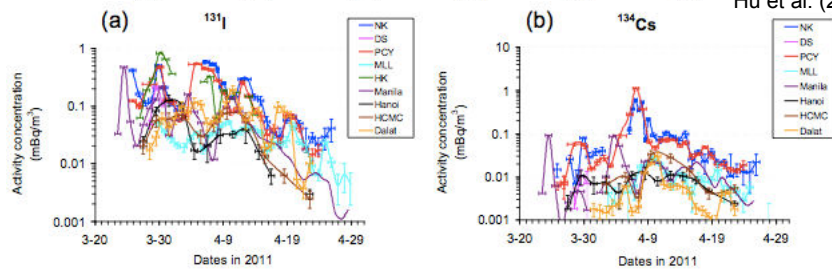
Hong et al. (2012)

13

東南アジアにおけるエアロゾル中の放射性核種

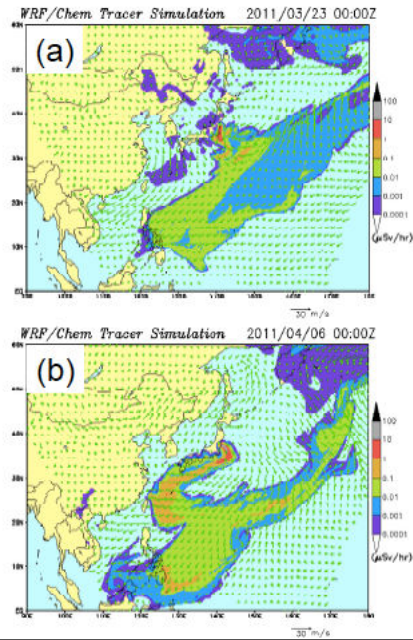


Hu et al. (2013)



14

空気塊の移動シミュレーション



Hu et al. (2013)

15

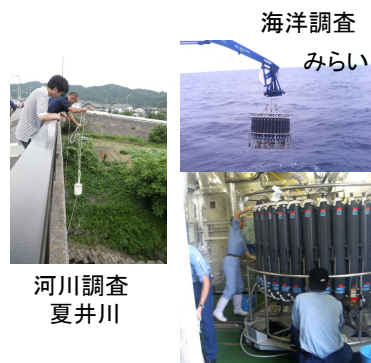
調査と分析方法

河川水, 海水
10~20kg

AMP/Cs
(リンモリブデン酸
アンモニウム)

^{134}Cs , ^{137}Cs 放射能

低バックグラウンドGe検出器
低レベル放射能実験施設: 金沢大学

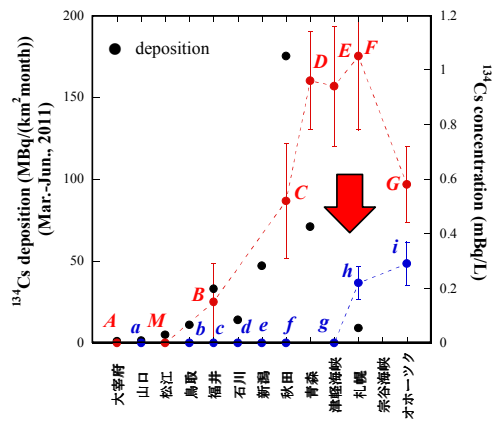
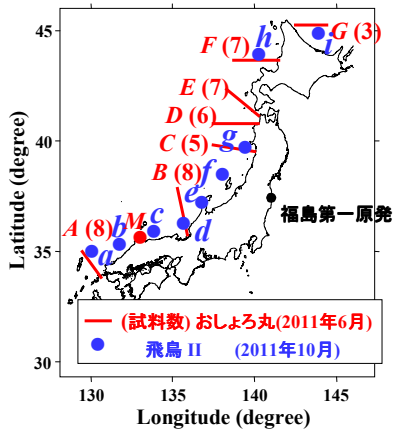


極低バックグラウンドGe検出器
尾小屋地下実験施設



16

福島原発事故由来放射性セシウムの濃度変動

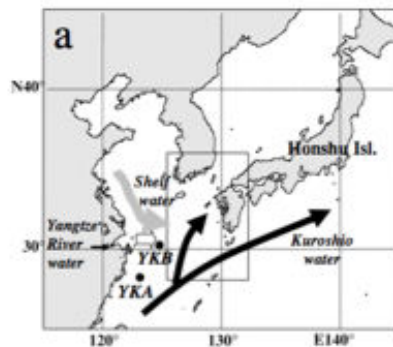


Inoue et al. (2012)

約4カ月間で放射能濃度が減少
→海流による水平輸送の効果示唆

17

日本海の海流と東シナ海からの寄与



Inoue et al., 2006



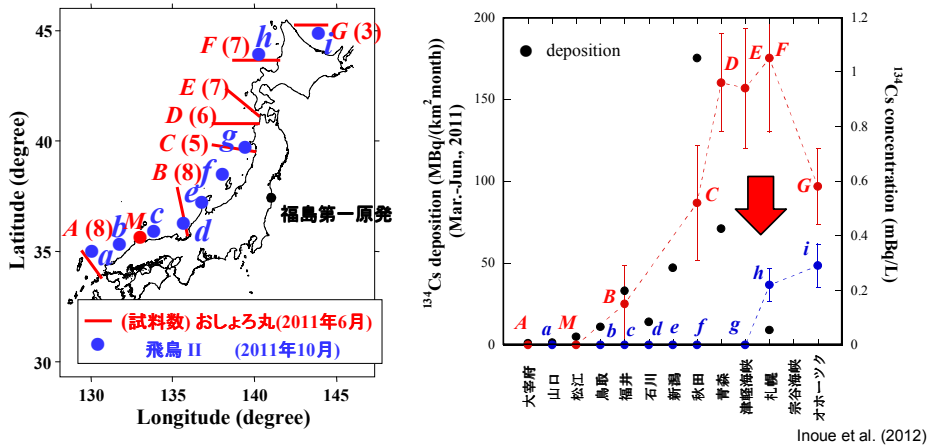
図2 日本海の表層海流

代表的なもののみを模式的に表しています。
赤線が暖流、青線は寒流を示しており、
暖流と寒流が接するあたりが北緯40度付近となります。

荒巻,2007

18

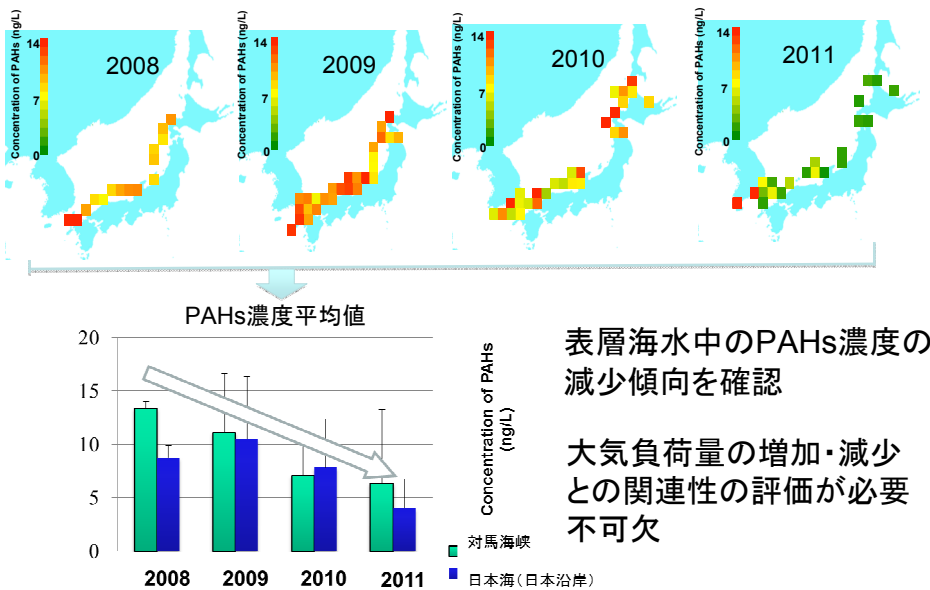
福島原発事故由来放射性セシウム濃度の変動



約4カ月間で放射能濃度が減少
→海流による水平輸送の効果示唆

19

金沢大学による海水中のPAHs濃度の時系列変動研究



20

トレーサーとして利用される放射性核種

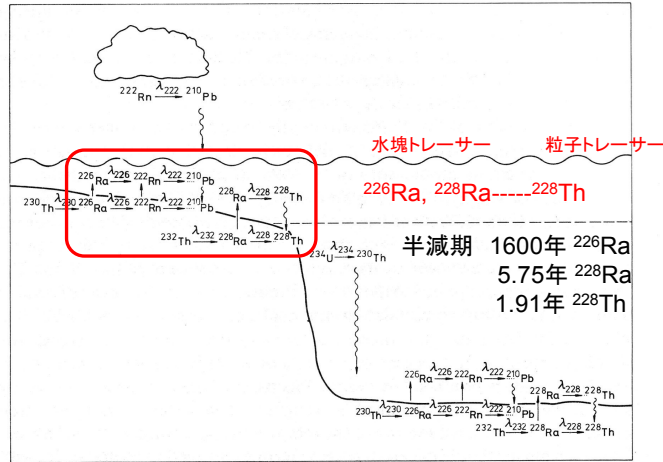
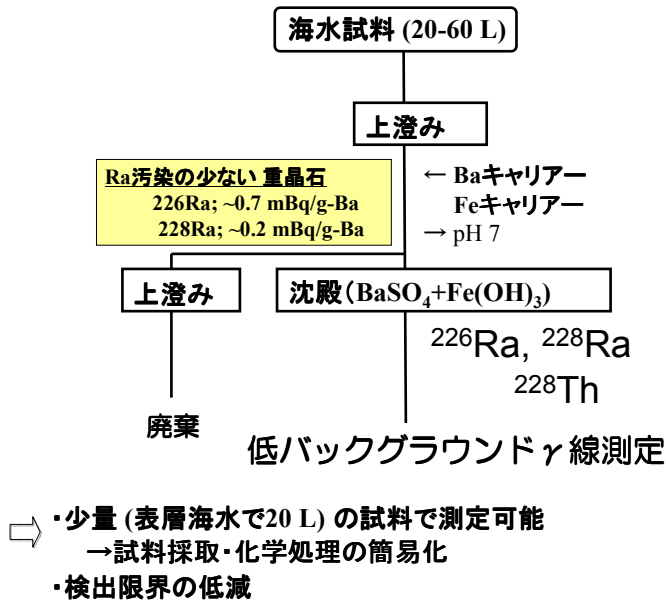


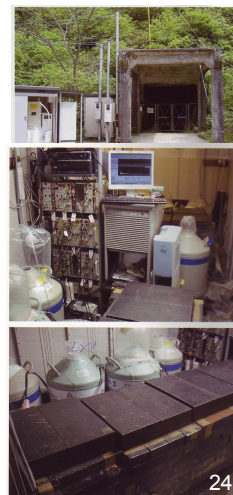
Fig. 15.1. Schematic diagram showing oceanic cycles of selected members of the U and Th decay series. Solid horizontal arrows correspond to radioactive decay characterized by a rate constant. Solid vertical arrows denote fluxes across the sediment-water interface and wavy vertical arrows represent removal from the atmosphere (for ^{210}Pb) or oceans through chemical scavenging and particle settling. (After Cochran 1980a.)

(Uranium Series Disequilibrium, 1982) 23

実験方法



尾小屋地下実験施設



24

- ⇒ 少量 (表層海水で20 L) の試料で測定可能
- 試料採取・化学処理の簡易化
- ・検出限界の低減

極低バックグラウンドGe計測システム

金沢大学 環日本海域環境研究センター 尾小屋地下実験施設

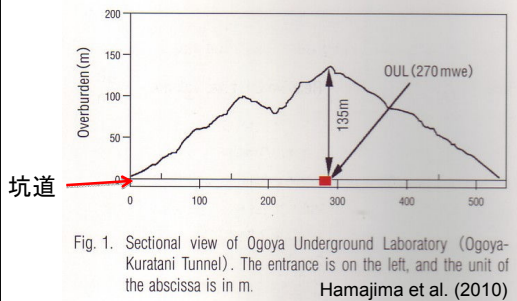


Fig. 1. Sectional view of Ogoya Underground Laboratory (Ogoya-Kuratani Tunnel). The entrance is on the left, and the unit of the abscissa is in m. Hamajima et al. (2010)

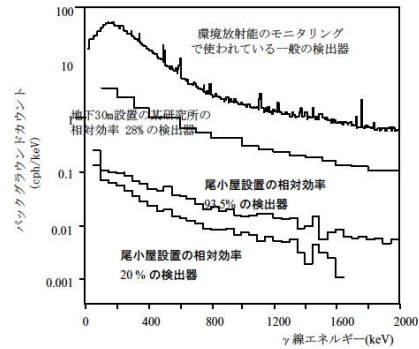


図2 環境放射能測定に使われているγ線検出器のバックグラウンド計数の比較
尾小屋の検出器のバックグラウンドは地上設置の検出器より2桁低い

宇宙線の影響を低減化

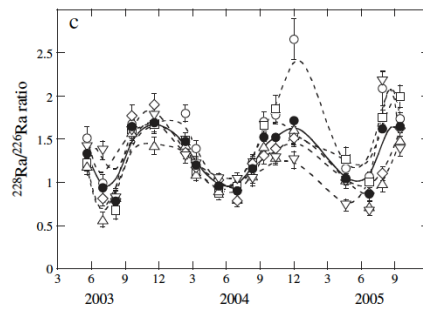
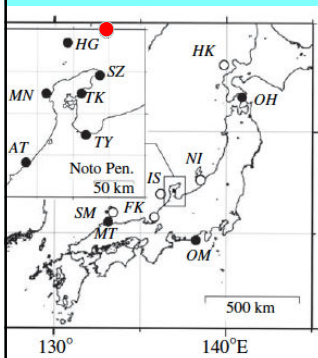
現状把握と今後の移行動態、変動の推移検討のためには極低レベル放射能濃度の測定が重要

河川水20Lで0.3 mBq/L程度まで測定可能

地上設置の検出器に比べて2桁バックグラウンドが低い
(小村, 2006)

25

沿岸域での海水中のRa同位体比の同時観測



Inoue et al. (2006)



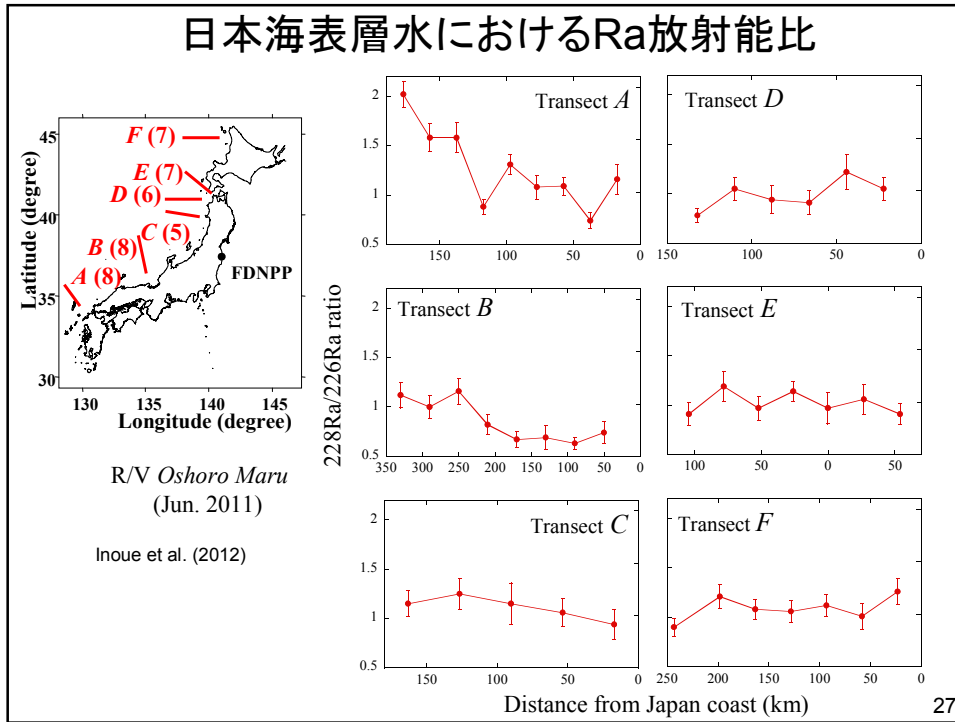
金大臨海実験施設

夏季から秋季にRa同位体比が増加

→東シナ海底層水(大陸棚からのRa-228の供給)の寄与を示唆

26

日本海表層水におけるRa放射能比



$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能濃度比の変動

