

平成 30 年 6 月 1 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K00520

研究課題名(和文) 福島県沖生物中の微弱放射性銀/セシウム比精密定量法開発と移行過程解明への応用

研究課題名(英文) development of low level radiosilver and cesium ratio measurement of biosamples in fukushima open sea and application to elucidation of transition process

研究代表者

浜島 靖典 (HAMAJIMA, Yasunori)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・准教授

研究者番号：60172970

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：サム効果を持つ放射性元素の精密定量法の開発：HPGeで9核種混合標準線源と放射性銀の標準線源の計数効率を測定し、全効率曲線をエネルギーの関数として求め、サム効果のある核種のピーク効率推定法を開発した。サム効果のある放射性銀の本推定法と実測値はほぼ一致し、有効性が実証された。由来と生態系への移行・蓄積の原因の解明：海生生物試料、海水・懸濁物・海底土を採取し前処理後、極微弱放射線測定を行った。放射性セシウムは全試料から検出され、極微弱放射性銀は一部の生物試料、海底土の有機物分画部分から検出したが、他からは検出されなかった。放射性銀の海生生物への移行は有機物分画部分の摂取によると推定された。

研究成果の概要(英文)：I Development of precise quantification method of radioactive nuclides with coincidence summing effect: We measured the efficiency of 9 nuclides mixed standard source and standard radioactive Ag source in HPGe. We find the total efficiency curve as a function of energy, have developed a method for estimating peak efficiency of all nuclides with summing. Our method for radioactive Ag with summing almost agrees with the measured value, and its effectiveness has been demonstrated.

II Origin of radioactive silver and cause of transition and accumulation to the ecosystems: We collected marine biological samples, sea water, sediments, submarine soil, and measured extremely low activity after pretreatment. Radioactive cesium was detected from all samples, and weak radioactive Ag was observed from a part of biological samples and organic fraction of the seabed soil, but it was not detected from others. Transfer of radioactive Ag to marine organisms was due to ingestion of organic fraction.

研究分野：核・放射化学，微弱放射線測定

キーワード：極微弱放射線測定 放射性銀 放射性セシウム 海生生物 井戸型HPGe サム効果 計数効率

1. 研究開始当初の背景

サム効果を持つ放射性元素の精密定量法の開発

本研究の対象とする Ag-110m 及び Cs-134 は複雑な壊変様式を持つガンマ線放出核種で、複数のガンマ線が同時に計測されるサム効果により見かけの測定値が低下する。測定値から濃度（ベクレル）を算出するには、測定器ごとに複雑な計数効率のサム効果の補正が必要である。この補正を行うには、様々なエネルギー範囲でピーク・トータル比(以下 P/T 比と記載)を求める必要がある。しかし、P/T 比を求めるための放射性核種は、民間検査機関を含む金沢大学尾小屋地下実験施設のような放射線管理区域を持たない多くの環境放射能測定機関では使用できないためサム効果の補正が出来ない。

福島第一原子力発電所（F1NPP）事故に由来するサム効果補正の必要な Ag-110m、Cs-134 等のガンマ線放出核種は、測定データがあるにもかかわらず放射能濃度として報告されていない。これらの中には被ばく評価、食物連鎖など、極めて重要な放射性核種が含まれる。本研究によりこれら複雑な壊変様式を持つ核種の濃度算出方法が確立すれば、自他ともに、多くの結果の公表にも繋がる。

対象とする生物及び海水中の放射性物質の濃度が低いため、高計数効率の井戸型検出器の使用が望まれるが、この検出器は本方法による精密測定法の開発が必要不可欠となる。

由来と生態系への移行・蓄積の原因の解明

現在では、海水中の放射性セシウム濃度が平常値程度まで低下している。また放射性銀濃度は原発事故以来海中では検出されない中で、魚類が捕食する一部の海生生物に銀・セシウム濃度の高いものが見られる。

Ag-110m は半減期が 250 日と短いため減衰し、Cs-137 の 1/20 以下となっているため海生生物中の濃度を正確に測定可能な施設は、尾小屋地下実験研究施設のみである。

また、F1NPP 事故以来海中には Ag-110m は検出されないが、本研究で移行解明の対象とする寿命約 1 年の生物に Ag-110m が取り込まれていることを、最近、ガンマ線測定により発見した。そこで Ag-110m を銀/セシウム比として求め、銀の由来、移行及び蓄積過程の解明は、一部の魚類が依然として放射能濃度低下が見られない原因の解明につながるかと期待される。

2. 研究の目的

我々は平成 26 年 7 月採取の福島県沖生物中の放射性セシウムを測定中に、同海域ではこれまで測定されなかった F1NPP 事故由来の放射性銀 Ag-110m を発見した。しかもこの生物の寿命は約 1 年とされている。海水中に存在しない放射性銀がなぜ最近取り込まれたのか？ 由来はどこか？

この問題解明のため、本研究では福島県沖生物中の微弱放射性銀/セシウム比精密定量法開発と移行過程解明への応用を目的とする。本研究は、複雑な壊変様式のために定量困難な放射性元素（特に銀・セシウム）の精密定量法を開発し、海水から生態系への動的な振る舞いについて調べ、由来と生態系への移行・蓄積の原因を解明する。さらにこの原因の解明は、これを捕食する魚類の放射能濃度が依然として低下しない原因解明の糸口になる期待される。

3. 研究の方法

サム効果を持つ放射性元素の精密定量法の開発

市販の密封放射線源を購入し、0 から 2MeV のエネルギー範囲で全効率を測定、サム効果のある複雑な壊変様式を持つ核種のガンマ線の計数効率を推定した。精密測定のための全効率曲線及びピーク効率曲線の解析プログラム、サム効果補正手法を開発した。

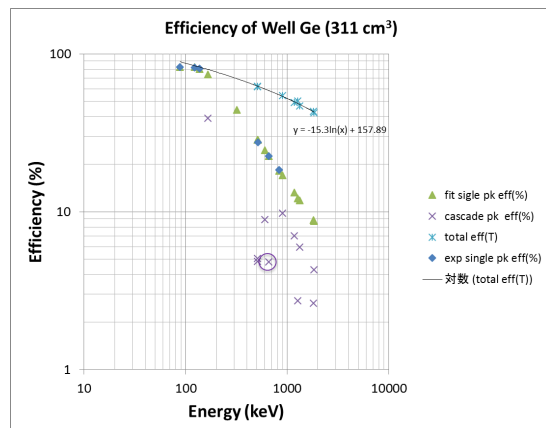
由来と生態系への移行・蓄積の原因の解明

福島県沖で魚類の捕食生物の採取、分画処理を行い、尾小屋地下実験施設の井戸型半導体検出器を用い、Ag-110m、Cs-134、s-137 を測定。サム効果補正を行って Ag-110m/Cs-134 比、Ag-110m/Cs-137 比を精密に測定した。採取時期と位置、部位、年齢等と放射能比の相関を求め、放射性銀・セシウムの由来、最終的には魚類への移行蓄積過程の解明を試みた。

4. 研究成果

サム効果を持つ放射性元素の精密定量法の開発

9 核種混合放射能標準ガンマ体積線源を用い、0 から 2MeV のエネルギー範囲で、測定に使用する HPGe の計数効率を測定した（下図）。9 核種の中で、典型的なサム効果の認められる

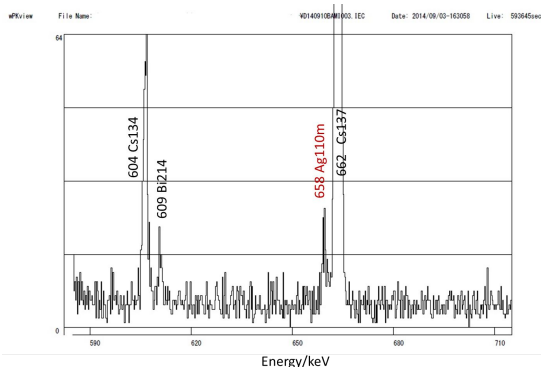


標準核種のピーク効率を測定し（図の上から 3 番目以下の × で示した点）、サム効果の無い核種の計数効率（図の上から 2 番目の ○ の点の列）との関係から全効率曲線（図の一番上のデータ列と実線）をエネルギーの関数として求めた。一般に、全効率曲線がエネルギー

の関数として求まると、サム効果のある複雑な壊変様式を持つ全ての核種のガンマ線の計数効率が推定可能となる。この結果を用い、本研究目的のサム効果のある放射性銀のピーク効率推定法を開発した。一方、放射性銀の放射能実測のため、標準放射性銀の体積線源を購入し、そのピーク効率を求めた。放射性銀の 658keV ピークの効率はサム効果の無い場合の 21% となり (図中の 点), 本研究で開発したピーク効率推定法で求めた放射性銀の計数効率と放射性銀の体積線源から求めた実測値はほぼ一致した。本法による計数効率推定方法は、充分実用的であることが実証された。

由来と生態系への移行・蓄積の原因の解明

海生生物試料を採取し前処理後、極微弱放射線測定を行った。平成 25 年度は、放射性セシウムはどの試料からも検出された。また一部の生物試料から極微弱放射性銀 Ag-110m も検出した (下図の赤で示したピークが Ag-110m の実測例。2 本の大きなピークは放



射性セシウムのピーク)。この時点でも Ag-110m は極微量であった。放射性銀の移行解明のため、主に海水・懸濁物・海底土中の放射性銀の放射能測定を行った。試料中には放射性セシウムが大量に含まれ、一方、放射性銀は極微量であるため高度な放射性セシウム除去の前処理が必要であった。平成 25 年度は海底土の有機物分画部分から極微弱放射性銀を観測したが、海水、及び、海底土の無機物分画部分からは放射性銀は検出されなかった。以降の年度は、放射性銀はいずれの試料からも検出されなかった。放射性銀の海生生物への移行は、海水、及び、海底土の無機物分画部分からではなく、有機物分画部分の摂取によるものと推定された。

放射性銀の半減期は 250 日と短く、これまで必ず検出されていた半減期約 2 年の放射性セシウム 134 さえも検出が困難な状況になっている。このため、今後半減期約 250 日の放射性銀 Ag-110m の検出はさらに極めて困難になるため、より効果的な前処理法、濃縮法の検討が必要となる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 20 件)

1. Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Yayoi Inomata, Yuichiro Kumamoto, Eitarou Oka, Takaki Tsubono, Daisuke Tsumune, Radiocaesium derived from the TEPCO Fukushima accident in the North Pacific Ocean: Surface transport processes until 2017, Journal of environmental radioactivity, 189, 93-102, 2018 (査読あり)
DOI: 10.1016/j.jenvrad.2018.03.014
2. M Aoyama, Y Hamajima, Y Inomata, E Oka, Recirculation of FNPP1-derived radiocaesium observed in winter 2015/2016 in coastal regions of Japan, Applied Radiation and Isotopes 126, 83-87, 2017 (査読あり)
DOI: 10.1016/j.apradiso.2016.12.003
3. M. Aoyama, M. Hult, Y. Hamajima, G. Lutter, G Marissens, H. Stroh, F. Tzika, Tracing radioactivity from Fukushima in the Northern Pacific Ocean, Applied Radiation and Isotopes, 109, 435-440 (2016) (査読あり)
DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.11.103
4. R. Breier, Y. Hamajima, P. P. Povinec, Simulations of background characteristics of HPGe detectors operating underground using the Monte Carlo method, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 307, 1957-1960 (2016) (査読あり)
DOI: 10.1007/s10967-015-4460-3
5. Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Mikael Hult, Mitsuo Uematsu, Eitarou Oka, Daisuke Tsumune, Yuichiro Kumamoto, 134Cs and 137Cs in the North Pacific Ocean derived from the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Japan in March 2011: Part One - Surface pathway and vertical distributions, Journal of Oceanography, 72, 53-65 (2016) (査読あり)
DOI: 10.1007/s10872-015-0335-z
6. Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Yayoi Inomata, Eitarou Oka, Recirculation of FNPP1-derived radiocaesium observed in winter 2015/2016 in coastal regions of Japan, Applied Radiation and Isotopes, 2016 (査読あり)
DOI: 10.1016/j.apradiso.2016.12.003
7. Pavel P. Povinec, Mai K. Pham Jose Busto, Cédric Cerna, Detlev Degering, Yasunori Hamajima, Karol Holý, Mikael Hult, Miroslav Ješkovský, Matthias Köhler, Andrej Kováčik, Matthias

Laubenstein, Pia Loaiza, Fadahat Mamedov, James Mott, Monika Müllerová, Frédérique Perrot, , Fabrice Piquemal, Jean-Louis Reys, Ruben Saakyan, Hardy Simgen, Jaroslav Staniček, Ivan Sýkora, Ivan Štekl, Reference material for natural radionuclides in glass designed for underground experiments, 307, 619-626 (2016), (査読あり)

DOI: 10.1007/s10967-015-4202-6 (2015)

8. Guillaume Lutter, Faidra Tzika, Mikael Hult, Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Gerd Marissens, Heiko Stroh, Measurement of Anthropogenic Radionuclides in Post-Fukushima Pacific Sea Water Samples, Nukleonika, 60(3), 545-550 (2015) (査読あり)

DOI: 10.1515/nuka-2015-0112

〔学会発表〕(計 3 件)

Y. Hamajima, Low-Level Gamma-ray Counting in Ogoya Underground Laboratory, 4th International Conference on Environmental Radioactivity (2017/5)

Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Yayoi Inomata, Yuichiro Kumamoto, Eitarou Oka, Takaki Tsubono, Daisuke Tsumune, Radiocaesium derived FNPP1 accident in the ocean interior of the western North Pacific Ocean through 2016, EGU General Assembly Conference, (2017/4)

Michio Aoyama, Yasunori Hamajima, Yayoi Inomata, Yuichiro Kumamoto, Eitarou Oka, Takaki Tsubono, Daisuke Tsumune, Long term behavior of TEPCO FNPP1 derived radiocaesium in the North Pacific Ocean through the end of 2016: A review, EGU General Assembly Conference, (2017/4)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

取得状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

〔その他〕
ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究代表者

浜島靖典 (HAMAJIMA Yasunori)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・
准教授

研究者番号 : 60172970

(2)研究分担者

青山道夫 (AOYAMA Michio)

福島大学・学内共同利用施設等・特任教授

研究者番号 : 80343896

(3)連携研究者

()

研究者番号 :

(4)研究協力者

()