

線測定手法による海洋環境における放射性核種動態研究

著者	小藤 久毅
著者別表示	Kofuji Hisaki
雑誌名	博士論文要旨Abstract
学位授与番号	13301乙第2110号
学位名	博士（理学）
学位授与年月日	2019-09-26
URL	http://hdl.handle.net/2297/00056517



題名： γ 線測定手法による海洋環境における放射性核種動態研究
Study on dynamics of radionuclides in marine environment by gamma-ray spectrometry

金沢大学大学院自然科学研究科

小藤 久毅

Abstract

I examined the system operation and data analysis method for *in-situ* γ -ray systems with NaI(Tl) scintillation detector for measurements of radiocesium (^{134}Cs and ^{137}Cs) concentrations with high sensitivity in marine environments. In contrast to periodic radiocesium monitoring by seawater sampling, the short time scale variations were clarified by *in-situ* γ -ray system on the mooring buoy. In-situ gamma-ray system on mooring buoy was also applied to assess vertical mixing near sea surface using natural radionuclide (^{214}Pb and ^{214}Bi). For *in-situ* γ -ray system on the seabed, I applied a simple and rapid method to examine the distributions of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP)-derived radiocesium concentrations in sediments using data with short integration times ($\sim 1\text{min}$). In addition, radiocesium concentrations in seawater samples collected from coast and offshore of the Shimokita Peninsula and the Sanriku Coast, 100–450 km north of the FDNPP in 2011–2013 were measured by conventional γ -ray spectrometry. Temporal variations of radiocesium concentrations in the surface water were ascribed to the inflow from offshore along with the Tsugaru Warm Current gyre, and the vertical distributions indicated the distribution of the water affected by Tsugaru Warm Current in surface layer at the time of the accident and the transport path of radiocesium in seawater after the accident.

海洋環境における迅速・簡便な放射性セシウム濃度の測定のため、NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いた *in-situ* γ 線スペクトロメトリーシステムの研究を行った。*in-situ* γ 線スペクトロメトリーシステムでは、定点での連続観測であるいは船舶等で曳航しながらの観測により、時間的または空間的に連続したデータが得られる。*In-situ* γ 線スペクトロメトリーによる観測を確実かつ高い信頼性で実施できるよう、実際の海洋環境で取得したデータを元にデータ取得手法およびデータ解析手法について検討した。また、 γ 線放出核種の海洋における動態について明らかにするため、下北半島から三陸海岸の沿岸・沖合の海域における観測および海水試料の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 分析をおこなった。福島第一原子力発電所事故に由来する ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の濃度の時空間分布は、当該海域における海水循環に重要な知見をもたらした。

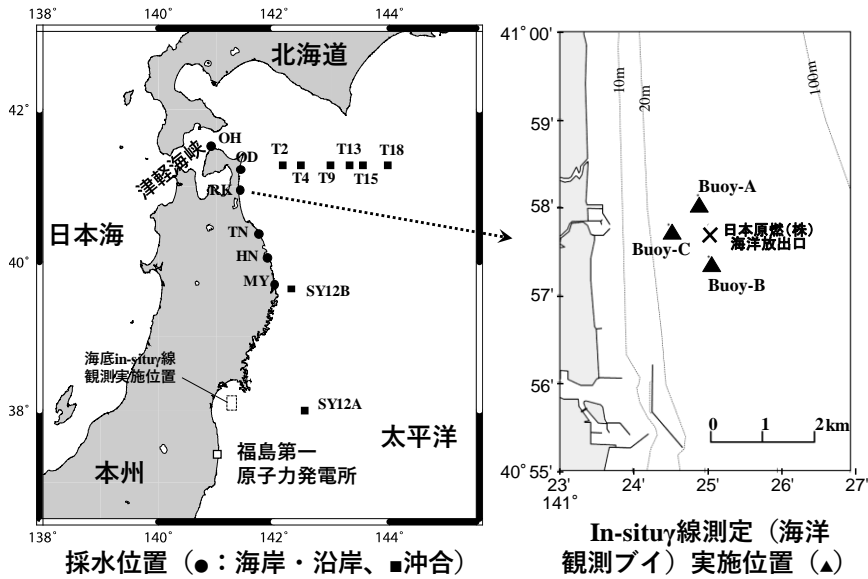


図1 観測実施位置

(1) 海水中の放射性核種の in-situ γ 線測定の基礎的検討および福島第一原発事故事例を用いたデータ解析手法の検討

放射線センサを搭載した海洋観測ブイ (図1右) における in-situ γ 線スペクトロメトリーで、解析に足る精度・信頼性のデータを取得するための基礎として、海洋環境での長期の観測データを元に降雨、塩分、宇宙線等の自然変動による γ 線計測データの変化の特徴について整理した。さらに、その基礎情報を元に、海水中での γ 線計測データから、自然変動寄与を差し引き福島第一原子力発電所事故に由来する ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の濃度変化を高感度で弁別する方法について検討した。水中放射線センサデータから推定した ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 変化には、採水試料の分析では把握できない複数回の濃度上昇と低下の状況が捉えられており (図2)、ブイを用いた in-situ γ 線測定が、海洋環境における原子力事故由来の人工放射性核種の動態解析に有効であることが確認された。

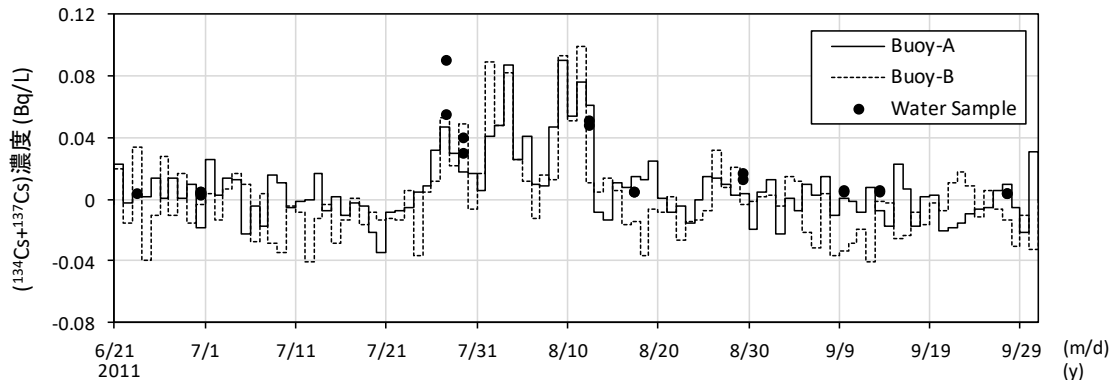


図2 水中放射線センサデータから換算した $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 濃度と採水試料の分析結果の比較

(2) 天然放射性核種をトレーサとした海表面付近における鉛直混合解析

海洋観測ブイによる in-situ γ 線データの海洋における物質の挙動解明への応用として、降水中に含まれる短寿命天然放射性核種 (^{214}Pb 、 ^{214}Bi) をトレーサとして用いた海洋表層付近における鉛直的な混合・拡散現象の解析への適用を試みた。

鉛直 2 層 (1、4 m 深) に設置した NaI(Tl) 検出器では、風速 $< 2 \text{ m/s}$ の場合は $^{214}\text{Pb} + ^{214}\text{Bi}$ 濃度上昇がほぼ 1 m 深センサに限られ、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の下方への広がり確認されなかった。一方、風速 $> 8 \text{ m/s}$ になると、 $^{214}\text{Pb} + ^{214}\text{Bi}$ 濃度の 4 m/1 m の比は、降雨強度に関係なく一定の値 (0.6–0.7) に近づいた。1 次元での拡散を仮定して見かけの鉛直拡散係数を推定すると、 $^{214}\text{Pb} + ^{214}\text{Bi}$ 濃度の 4 m/1 m での比の風速による変化は、見かけの鉛直拡散係数として $10^1 \text{ cm}^2/\text{s}$ 以下から $10^3 \text{ cm}^2/\text{s}$ 程度に相当すると見積もられた。降水イベント中に風速が急変した際の事例から、この見かけの鉛直拡散係数の変化が短時間で生じることが分かった。

(3) 海底における人工放射性核種濃度水平分布調査における効率的手法の検討

海底の人工放射性核種濃度分布の把握を効率的に行う上での基礎として、宮城県仙台湾において NaI(Tl) 検出器を搭載した海底設置システムおよび海底曳航システムを用いた試験を実施し、測定における精度およびデータの安定性について検討した。

システムに取り付けたカメラ映像では、海底の起伏や泥質の海底へのシステムの沈み込みにより、検出器と堆積物表面との間の距離は数 cm 変化しており、モンテカルロシミュレーションにより、この位置変化で γ 線データから推定される ^{137}Cs 濃度は約 3 倍変化することを確認した。

海底の放射性核種分布を効率的に行うための方法として、福島第一原発事故で放出された放射性核種の特徴を踏まえて最小限の成分、 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 、 ^{40}K 、U 系列核種、Th 系列核種、のみを仮定し、散乱線を含めた γ 線スペクトル全体のデータを用いた解析について検討した。その方法では、光電ピークカウントから濃度を算出する通常的手法に比べ、約 1/3 の積分時間のデータで $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$ 濃度が算出でき、水平分布を高い空間分解能で把握する上で有効であることを確認した。

(4) 下北半島・三陸沿岸における福島第一原発事故由来 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度変化

海岸・沿岸の観測点 OH、OD、RK、TN、HN、MY において継続的に採取した試料では、2011 年 5 月から福島第一原発事故由来の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs がどちらも数 mBq/L で検出されていたが、7–8 月には数十 mBq/L に上昇した (図 3)。相対的に濃度の高い海域から海水の流れによりもたらされたものと考えられ、津軽暖流の渦形成過程における渦の縁に沿った沖合の水の引き込みが示唆された。

また、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の鉛直分布と水塊分布あるいは天然放射性核種の分布との対応についての調査では、 ^{228}Ra 濃度から津軽暖水に由来すると考えられる $26.4 \sigma_t$ の水塊において ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度が高いという結果が得られた。 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度と塩分の関係 (図 4) では、この水塊の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度は単純な隣接する水塊の混合では説明できず、水平方向の貫入のような現象の可能性が考えられた。このような、水塊と ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度分布の関係は、福島第一原発事故発生当時の三陸沖海

域の表層における津軽暖流の影響を受けた水の分布とそのときの表層海水密度、さらに事故後の海中における ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の輸送過程に由来して形成されたものと考えられた。

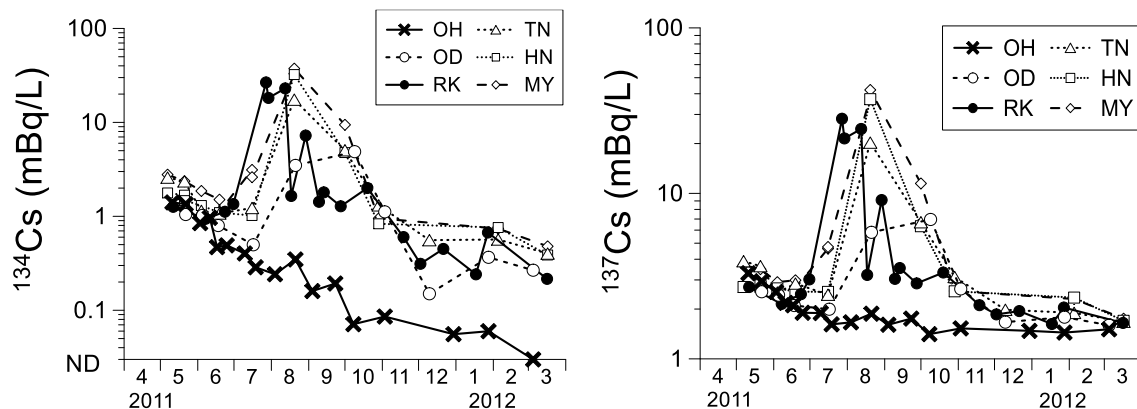


図3 下北半島～三陸海岸における ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度の経時変化

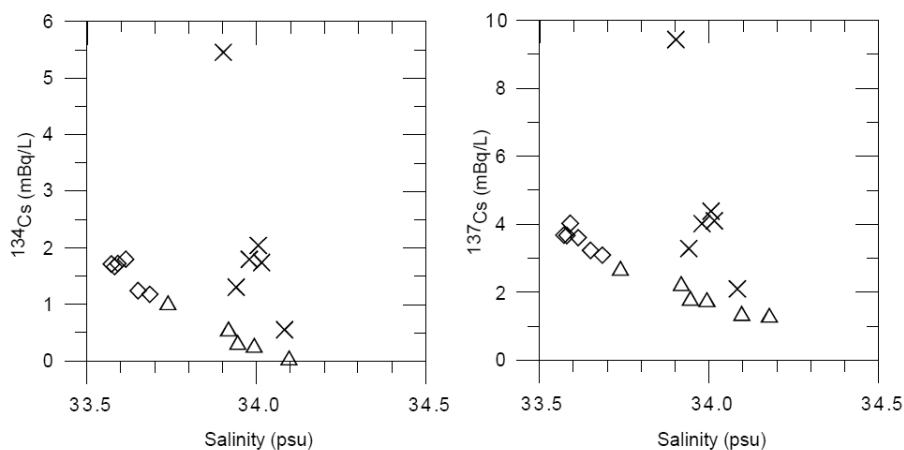


図4 下北半島沖 (T2～T18) での塩分と ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度の関係
 \triangle : 25.9～26.6 σ_t 、 \times : 26.4 σ_t 、 \diamond : 26.6 σ_t

本論文の一部 ((1), (2)および(4)の一部) は、青森県より(公財)日本海洋科学振興財団が受託し実施した「六ヶ所村沖合海洋放射能等調査」による成果である。また、(3)は (一財)新技術振興渡辺記念会からの助成を受け実施したものである。

学位論文審査報告書（乙）

1. 学位論文題目（外国語の場合は和訳を付けること。）

γ線測定手法による海洋環境における放射性核種動態研究

(Study on dynamics of radionuclides in marine environment by gamma-ray spectrometry)

2. 論文提出者 氏名 ふりがな こふじ ひさき 小藤 久毅

3. 審査結果の要旨（600～650字）

標記学位論文を全審査委員が個別に審査した後、各委員による申請者への個別の面談等による予備審査を実施した。その後、口頭発表会を令和元年8月7日に開催し、発表終了後、論文審査委員会において論文を審査した。審査結果を以下に記す。海洋環境において時間的に連続した放射性核種濃度が取得可能な in-situ γ線計測法について、青森県六ヶ所沖の海水での長期観測データを基に降雨・海水の塩分・宇宙線等の自然環境由来の変動要因を検討し、平成23年3月に発生した福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウム濃度変動を高感度に識別できる方法を確立した。また、NaI(Tl)検出器を搭載した海底設置システムおよび海底曳航システムを用いた海洋試験を実施し、海底表層堆積物上の曳航調査時における海底とセンサとの位置関係の補正方法、散乱線を含めたγ線スペクトル全体を用いる解析法の妥当性を検証した。さらに、下北半島から三陸沖の沿岸・沖合海域における海水試料のリンモリブデン酸共沈法による詳細分析結果から、現場γ線観測で計測された平成23年7～8月の放射性セシウム濃度の上昇は津軽暖流の渦形成に伴い沖合の水塊が沿岸域へ流動した結果と推定された。本成果は、現場γ線計測手法が原子力発電所事故時の汚染状況を連続観測する手法として有効であり、事故後の現象理解のためにモニタリングシステムとして運用することの重要性を示している。従って、本博士論文は博士（理学）の学位に値すると判断した。

4. 審査結果 (1) 判定（いずれかに○印） ○合格 ・ 不合格

(2) 授与学位 博士（理学）