

平成 21 年 5 月 18 日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2008

課題番号：19540458

研究課題名（和文） 短寿命宇宙線誘導核種をトレーサーとする水文科学研究

研究課題名（英文） Measurement of short-lived cosmogenic radionuclides in rain and land waters and application for hydrology

研究代表者

井上 睦夫（INOUE MUTSUO）

金沢大学・環日本海域環境研究センター・助教

研究者番号：60283090

研究成果の概要：

陸水および降水における、様々な起源、半減期をもつ放射性核種濃度はその循環にともない、徐々に変化していく。本研究では、簡便な化学分離法および低バックグラウンド $\gamma$ 線測定を利用する、陸水試料における複数の核種濃度の同時測定法を確立した。さらには、石川県西部の手取川流域を主な研究フィールドとし、降水、地下水、河川水におけるこれら放射性核種の分布を求め、本水圏における陸水の循環メカニズムおよびその時間軸に関する知見を得た。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2008 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・気象・海洋物理・陸水学

キーワード：ガンマ線測定、宇宙線誘導核種、陸水、降水、物質循環

### 1. 研究開始当初の背景

大気の上層では、宇宙線と大気中の窒素、酸素、アルゴン等との核反応によって絶えず宇宙線誘導核種と呼ばれる放射性核種が生成し、降水や大気浮遊塵とともに地表にもたらされる。これらのうち $^3\text{H}$ 、 $^7\text{Be}$ および $^{14}\text{C}$ 等は測定が容易なため、降水試料を中心に、膨大な測定データがある。これに対し、主と

して降水中に存在する半減期 1 日以下の短寿命宇宙線誘導核種は、生成量が極めて小さいため通常のガンマ ( $\gamma$ ) 線測定では検出が困難であり、1950-60 年代の発見以来、国内外において測定報告もほとんどなく、応用研究については皆無である。

地表にもたらされた降水は地下水、河川水の

供給源となり、その後も循環を続ける。比較的半減期の長い  $^{22}\text{Na}$  (半減期 2.6 年)、 $^7\text{Be}$  (5.3 日) は、 $^3\text{H}$  (12.4 年) 同様、地表あるいは地下水へと移行し、若い地下水などの滞留時間の算出のトレーサーとなりうる。さらに地下水における岩石起源やフォールアウト起源の放射性核種は、地下水の流動環境に関する知見を含んでいよう。その一方で、放射性核種は、陸水中には基本的に極めて微量にしか存在しておらず、その測定は困難とされており、これら放射性核種のデータの蓄積は、他の元素、同位体比に比べ、著しく少ない。より詳細な陸水循環の解明には、できるだけ多くの核種からのアプローチがのぞまれる。

申請者らは、世界トップレベルの極低バックグラウンドγ線測定の適用と目的核種の化学分離法を確立により、降水試料を用いた予備実験で、 $^{22}\text{Na}$ 、 $^7\text{Be}$  の他、半減期 1 日以内の複数の短寿命核種 ( $^{18}\text{F}$ 、 $^{24}\text{Na}$ 、 $^{28}\text{Mg}$ 、 $^{38}\text{S}$ 、 $^{38}\text{Cl}$ 、 $^{39}\text{Cl}$ ) を、さらには深層海水、湖水などにおける微量放射性核種 (例えば  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{22}\text{Na}$ ) の検出に成功してきた。

本研究では、従来の水文科学の分野でこれまでに適用例のない宇宙線誘導核種を中心とした微弱放射性核種をトレーサーとし、水圏における物質循環の解明を試みる。

## 2. 研究の目的

### 1) 降水中の短寿命宇宙線誘導核種の測定

半減期の短い宇宙線誘導核種はそれぞれ半減期の 2-3 倍の時間内に起こった輸送、混合などの情報を持つ。降水中の短半減期核種 ( $^{18}\text{F}$ 、 $^{24}\text{Na}$ 、 $^{28}\text{Mg}$ 、 $^{34}\text{mCl}$ 、 $^{38}\text{S}$ 、 $^{38}\text{Cl}$ 、 $^{39}\text{Cl}$ ) をトレーサーとした研究例は皆無である。第一段階として、大気上層での生成から降雨による地表への落下に至る過程のモデリングを目的に、降水試料における短寿命宇宙線誘導核種の測定法の確立を試みる。

### 2) 涵養時の目的核種の挙動の解明

$^7\text{Be}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  は、涵養時に土壌への吸着による降水からの除去の寄与が大きいと推測される。降水/土壌相互作用のシミュレーション実験を行うことにより、これら核種の涵養時の挙動を探る。

### 3) 核種分布からみた陸水循環の解明

比較的長寿命の宇宙線誘導核種に関しては、 $^3\text{H}$  が地下水滞留時間の見積りに利用されてきた。しかし核実験起源の  $^3\text{H}$  の寄与が大きいなど不確定要素も大きい。降水と地下水の  $^{22}\text{Na}$  濃度比による、地下水の滞留時間の測定法を確立し、火山地下水の滞留時間を算出する。また  $^{22}\text{Na}$  より半減期が短く、降水に多量に存在する  $^7\text{Be}$  を、短い (<1 年) 滞留時間のみならず、流動系における降水混入程度の指標とする。

## 3. 研究の方法

### 1) 試料

石川県西部手取川流域を、主要な研究フィールドとした。降水、地下水および河川水試料の採取地点を、Fig. 1 に示す。中流、平野地下水 (*M-GW*、*L-GW*) を 200-400 L、河川水 (*Rv*) 100 L、降水 (*Pr*) 10-50 L、さらには沿岸海水 (*MN*) 20 L を採取した。

降水に関しては、申請者所属施設の屋上に、鉄パイプとポリエチレンシートなどで製作した採取面積 20 m<sup>2</sup> 程度の降水採取装置を設置した。

### 2) 化学処理と 線測定

目的核種を、以下の2つのいずれかの手法で濃集した。

**バッチ法:** 0.5 μm カートリッジフィルターでのろ過後、イオン交換樹脂によるバッチ法にて、目的核種を吸着分離した。なお本研究では、複数

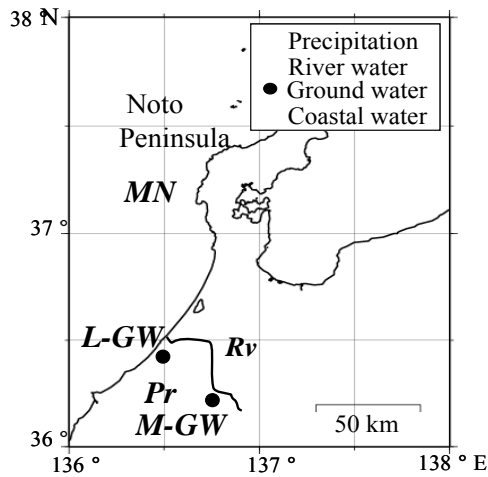


Fig. 1 Sampling locations for water samples

の陽イオンおよび陰イオン交換樹脂の中から、迅速に高い回収率が得られる Powdex-PCH、-PAO を選定した (15 g/20 L 加えて 15 分間攪拌)。各核種の回収率は、バッチ処理の 2 回繰り返し、または電気伝導度により見積もった。

**共沈法:** 陸水試料に塩化セシウム 0.26 g/20 L、AMP 4 g/20 L を加え、 $^{137}\text{Cs}$  を AMP/Cs 沈殿として共沈回収した。上澄み液に、ラジウム汚染の少ないバリウムキャリア ( $^{226}\text{Ra}$ , 0.7 mBq/g-Ba ;  $^{228}\text{Ra}$ , 0.2 mBq/g-Ba) 480 mg/20 L を加え、 $\text{BaSO}_4$  沈殿としてラジウムを共沈回収した。さらに鉄キャリア 800 mg/20 L を加え、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$  を沈殿させ、 $^7\text{Be}$  を回収した。

簡便なバッチ法は、山中など交通の便が悪い地点での多量の地下水の処理にも適用可能であり、さらに短寿命核種の迅速な回収にも適している。共沈法は妨害核種の  $^{40}\text{K}$  の測定試料への混入を防げ、検出限界の低減がもたらされる。

降水、陸水における本研究の目的核種は、著しく微量であることから、通常の  $\gamma$  線測定では検出が不可能である。測定は、尾小屋地下測定室内に設置したゲルマニウム検出器を使用した低バックグラウンド  $\gamma$  線測定を適用

した。 $^3\text{H}$  は、 $\sim 2\text{L}$  を使用し、電解濃縮処理した後、 $\beta$  計測をおこなった。

### 降水/土壌-吸着シミュレーション実験

屋内で約 2 年間 (13 半減期以上) 保管した表層土壌を実験に用いた ( $^7\text{Be}$  は採取時の約 0.01 % 程度まで減少)。降水試料は、先述の採取装置を使用し、実験開始直前に捕集し、直ちに  $0.5\ \mu\text{m}$  のフィルターでろ過したものを用いた。降水試料を土壌試料に加え、振とうしたのち  $0.45\ \mu\text{m}$  メンブレンフィルターでろ過した。振とう時間は 1 時間に設定し、様々な土砂濃度で実験を進めた。土壌を固相の、ろ液にバッチ法を適用し、沈殿した Powdex 樹脂を液相の試料とした。固相および液相の核種濃度から、分配係数  $K_d$  を求めた。

## 4. 研究成果

### 1) 降水中の極短寿命核種の測定

半減期が短く濃度が極めて低い宇宙線誘導核種を測定するため、多量の降水の短時間採取 (降水採取装置の作製)、迅速化学分離 (バッチ法の確立)、極低バックグラウンド  $\gamma$  線測定という 3 つの条件はクリアした。今後、本手法もとに、生成から降雨による地表への落下に至る過程のモデリング、特に雨滴の生成高度、滞留時間、雨滴による物質輸送を解析する。今後、様々なデータの蓄積に期待される。

### 2) 涵養時の核種の挙動

室内実験の土砂濃度と吸着態の放射性核種の割合をプロットした (Fig. 2)。 $^7\text{Be}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  いずれも、土砂濃度 10 g/L 程度で 98% 以上が粒子に吸着された。 $^7\text{Be}$  の  $K_d$  は、 $6.6 \times 10^3 \sim 1 \times 10^4$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  は、 $K_d = \sim 10^4 \sim 10^5$  であった。これら核種は、涵養時、土壌粒子に著しく吸着されやすいことを示す。

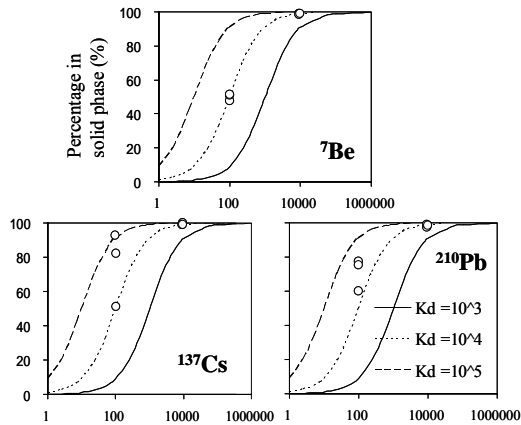


Fig. 2 Percentage of radionuclides in particulate form after batch experiment

### 3) 核種の分布とその知見

石川県手取川流域における、降水から地下水、河川水を経て沿岸海水にいたる各放射性核種の濃度を Fig. 3 にまとめた。各核種の特徴を反映した、降水、河川水、中腹・平野地下水、沿岸海水という降水から海水にいたる陸水試料の履歴を反映する濃度変化がみられた。

#### ①宇宙線生成核種、<sup>3</sup>H、<sup>7</sup>Be、<sup>22</sup>Na

<sup>7</sup>Be の大部分は、涵養時に表面土壤に吸着される ( $K_d = \sim 1 \times 10^4$ )。山間中腹部地下水 (*M-GW*) で、微弱であるが <sup>7</sup>Be ( $\sim 0.1$  mBq/L) に、微量の降水の寄与がみられた。

<sup>22</sup>Na (半減期 2.6 年) は、降水以外では検出限界以下であった。γ線測定条件から、<sup>22</sup>Na の検出限界はそれぞれ、3 mBq ( $\sim 0.01$  mBq/L) 程度と計算される。中腹地下水の <sup>22</sup>Na 濃度は、現在の降水 (0.2 mBq/L ; 2005 年平均値) の 5%以下にすぎない。<sup>22</sup>Na が、涵養後も地下水と行動を共にすると仮定した場合、中腹地下水の平均滞留時間は、>10 年と見積もられる。河川水 (*Rv*)、地下水 (*M-GW*) では、<sup>7</sup>Be、<sup>22</sup>Na は、降水 (*Pr*) より明らかに低濃度であったが、<sup>3</sup>H には濃度差はみられない ( $\sim 0.5$  Bq/L) など、浅層移動の若い年齢が反映された。<sup>3</sup>H-<sup>22</sup>Na の矛盾は、大きい地下水リザーバーに

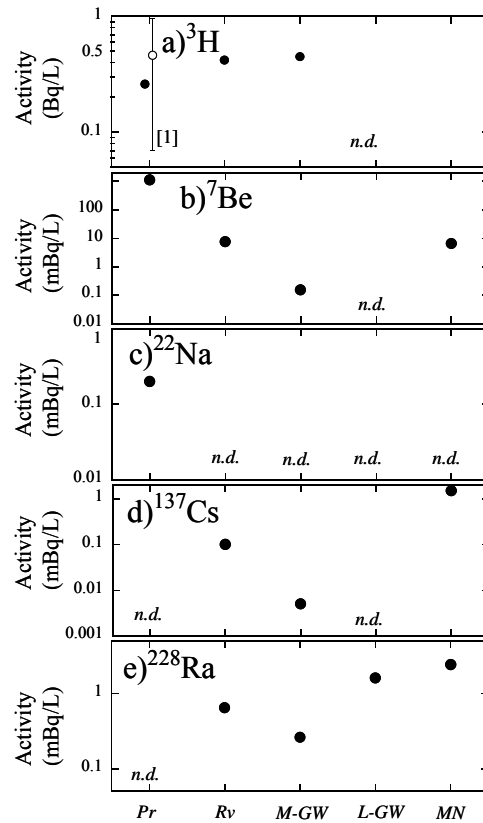


Fig. 3 Distributions of <sup>3</sup>H, <sup>7</sup>Be, <sup>22</sup>Na, <sup>137</sup>Cs, and <sup>228</sup>Ra in Tedori Basin. Data [1] is from Kasahara et al. (2007). "n.d." denotes "not detected".

よる <sup>22</sup>Na の急激な希釈、涵養、流動過程における <sup>22</sup>Na の土壤への除去、または <sup>3</sup>H-<sup>22</sup>Na の半減期の差を反映していると考えられる。

#### ②フォールアウト核種、<sup>137</sup>Cs

<sup>137</sup>Cs は、かつての核実験や 1986 年チェルノブイリ原子力発電所事故により生成、大気中に放出されたフォールアウト核種で、地下水の浸透・流動過程における粘土鉱物とのイオン交換反応 ( $K_d = 10^4$ - $10^5$ ) により、その大部分は表層土壤中に保持されている。それを反映し、地下水では低濃度であった。

#### ③天然核種、ラジウム同位体

陸水に含まれるラジウム同位体 (例えば <sup>228</sup>Ra) は、涵養後に周囲の岩石を供給源とし、その濃度はその履歴を反映する。中腹地下水 (*M-GW*) の低い <sup>228</sup>Ra 濃度は、周囲の岩石から

の寄与が小さく、滞留時間の短い浅層地下水の特徴を反映している。手取川さらに海岸線に近く湧出する平野部地下水 (L-GW) の  $^{228}\text{Ra}$  濃度は、中腹地下水 (M-GW) に比べ、移動過程における周囲からの溶出を反映し上昇する。平野部地下水 (L-GW) の  $^3\text{H}$ 、 $^7\text{Be}$  が検出限界以下であることから、M-GW に比べ長い滞留時間が推測される。

以上のように、本研究で確立された簡便な同時測定法により得られた複数の核種分布は陸水の履歴書として使用できることが明らかになった。

参考文献:[1] 笠原ほか (2007) 新潟県放射線監視センター年報 5, 28-34

## 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 4 件)

①井上睦夫、小藤久毅、中野佑介、浜島靖典、山本政儀：手取川流域の降水、地下水、河川水における  $^3\text{H}$ 、 $^7\text{Be}$ 、 $^{22}\text{Na}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  および Ra 同位体の分布。環日本海域環境研究センター年報 20 年度版、受理済み、2009、査読無

②福山泰治郎、井上睦夫、山本政儀、恩田裕一：森林斜面の表面流における  $^7\text{Be}$  の分配係数 - 現地観測と室内吸着実験。環日本海域環境研究センター年報 20 年度版、受理済み、2009、査読無

③Nakano, Y., Inoue, M., Komura, K.: A simple coprecipitation method combined with low-background  $\gamma$ -spectrometry: Determination of  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and radium and thorium isotopes in small-volume coastal water samples. *Journal of Oceanography* 64, 713-717, 2008、査読有

④中野佑介、井上睦夫、小村和久：降水に含

まれる短寿命宇宙線生成核種の測定法。環日本海域環境研究センター年報 19 年度版、83-84、2008、査読無

[学会発表] (計 4 件)

①福山泰治郎、山本政儀、井上睦夫、恩田裕一、水垣滋、成沢知広：放射性核種 Be-7 (ベリリウム 7) の表土トレーサーとしての適用性の検討。

第 120 回日本森林学会大会、2009/3/27、京都

②井上睦夫、中野佑介、福山泰治郎、小藤久毅、横田喜一郎、浜島靖典： $^3\text{H}$ 、 $^7\text{Be}$ 、 $^{22}\text{Na}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  および Ra 同位体をトレーサーとした水圏における水循環---手取川流域を例にとり---。日本陸水学会第 73 回大会、2008/10/11、北海道

③井上睦夫、中野佑介、福山泰治郎、小藤久毅、浜島靖典：手取川流域の降水、地下水、河川水における  $^3\text{H}$ 、 $^7\text{Be}$ 、 $^{22}\text{Na}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  および Ra 同位体の分布。第 52 回放射化学討論会、2008/9/25、広島

④中野佑介、井上睦夫、皆川昌幸、小村和久：極低バックグラウンド  $\gamma$  線測定法を利用した海水試料の多核種同時測定法の確立と日本海海水への適用。日本地球化学会年会、2007/9/19、岡山

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

井上 睦夫 (INOUE MUTSUO)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・助教

研究者番号：60283090

(2) 研究分担者

小村 和久 (KOMURA KAZUHISA)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・名誉教授

研究者番号：00110601