

ISET-R A02-3 (海洋) 班 若手育成研修プログラム
『海水中の放射性セシウムの分析および海洋地球研究船「みらい」・
最先端海洋観測機器・むつ科学技術館見学』
研修レポート

東海大学海洋学部海洋生物学科西川研究室

加藤 春佳

【目的】

ISET-R 若手育成研修会では、各研究班での実習経験を通して放射能環境動態研究を担う若手研究者の素質向上とともに、科研費新学術領域研究「放射能環境動態」の発展促進を目的とする。今回参加した海洋班では、外洋を含む海洋及び海洋底にどの程度、放射性物質が散布しているか、その物理、化学、生物過程を細密に調査し、モデル化を図ることを目的とする。

【研修概要】

(1) 日時

2015年10月29日(木) 15:00～10月30日(金) 17:00

(2) 場所

- ・ 国立研究開発法人 海洋研究開発機構 (JAMSTEC) むつ研究所
- ・ むつ科学技術館

(3) 講師

熊本 雄一郎様 (JAMSTEC)

本多 牧生様 (JAMSTEC)

山田 正俊様 (弘前大学)

(4) 研修内容

- ① 実習：海水中放射性セシウム分析のためのリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) による前処理、測定用試料の調整およびガンマ測定とデータ解析法
- ② 見学：世界最大級の海洋地球研究船「みらい」、海洋研究開発機構むつ研究所、「むつ科学技術館」見学
- ③ 講義：最新の海洋における環境放射能調査について

(5) 参加者

12名



熊本さん (JAMSTEC)

福田さん(明治大)小池さん,浅野さん,水谷さん,杉浦さん(名古屋大)越智さん(明治大)三角さん(電中研)三浦さん(東京大)
藤井さん(明治大)芳賀さん,加藤(東海大)山田さん(弘前大)本多さん(JAMSTAC)田中さん(京都大)

(6) 研修日程

第1日目：10月29日（木）

14：50 オリエンテーション（むつ研究所 研究交流棟 2F 大会議室）

自己紹介・今後の予定の確認等

15：30－17：00 実習1：AMP 攪拌（試料分析棟 1F 試料前処理施設）

実習指導：千葉さん，すみませんもう一人の方のお名前を忘れてしまいました（MWJ）

18：30 懇親会（どんどこどん）

第2日目：10月30日（金）

9：00－10：45 実習2：AMP 濾過（試料分析棟 1F 試料前処理施設）

11：00－12：00 海洋地球研究船「みらい」・むつ研究所施設見学

案内解説：本多さん

12：00－14：00 昼食（研究交流棟 1F 食堂）むつ科学技術館見学

14：00－15：00 講義（研究交流棟 2F 大会議室）

15：00－17：00 実習3：AMP 回収とガンマ線計測（試料分析棟 1F 試料前処理室）

17：00 解散

【見学】

海洋地球研究船「みらい」



停泊中の「みらい」



ブリッジからの景色



後部操舵室



後部甲板



36 本掛け採水器



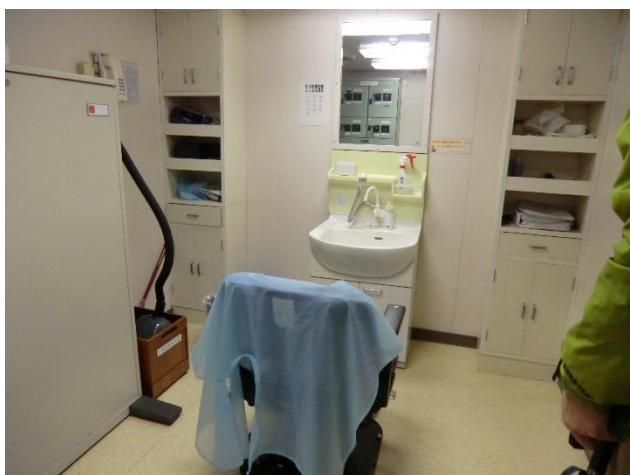
係留系機材等倉庫
原子力船「むつ」の原子炉があった場所



ドライラボ



ドップラーレーダー



理髪室



トレーニングルーム



トライトンブイ



ARGO フロート



原子炉室



むつ科学技術館から見た「みらい」

これまでの大学生活で、東海大学所有の実習調査船「望星丸」や東北海洋生態系調査船「新青丸」等の調査船に乗船してきましたが、みらいは船体自体の大きさはもちろんですが、後部甲板の広さやラボの設備等にもとても驚き、調査船よりも研究船の名がとてもよく似合う船であると感じました。また、むつ科学技術館では「みらい」が原子力船「むつ」時代に使用していた原子炉室が展示されており、日本の原子力に関する技術や福島第一原子力発電所の事故について改めて考えさせられました。

【講義】

山田先生「海洋における放射能調査—プルトニウム—」
環境への放出

1. 大気圏核実験

東京における年間降下量 1963年最大値→1962年に実験が多く行われた

2. 長崎原爆

プルトニウム爆弾（広島原爆はウラン爆弾）

3. 衛星（ANSP-9A）打ち上げ失敗による大気圏拡散

4. 核兵器搭載爆撃機の空中衝突事故

B-82爆撃機とKC-135空中給油機が衝突

4個の核兵器が落下，うち2個は回収

5. 再処理施設からの放出

6. チェルノブイリ原子炉事故

1986年4月26日 1:23

*福島原発事故後、堆積物・海水共に事故前と有意差なし

本多さん「海洋における粒状態セシウムの環境動態」

- ・マリンスノーに付着したセシウム (134, 137) を測定
0.1–1%がマリンスノーに付着し沈降. その他は海水中に溶解
 - ・セシウムの存在地は海洋 (堆積物 : 水 = 2 : 8), 河川 (堆積物 : 水 = 8 : 2) と異なる
- 福島沖堆積物中のセシウム除去に向けて
- ・再溶出→拡散, 移動
 - ・生物攪乱→希釈
 - ・再懸濁→水平輸送

熊本さん「溶存対放射性セシウムの北太平洋への拡がり」

2000年代 北太平洋表層の放射性セシウム : 1.5 Bq/m³

汚染水や原爆による拡散

14–21 PBq

事故前に存在したセシウムの 20–30%が事故により付加された

【実習】

海水中放射性セシウム測定のための試料前処理とガンマ線計測

試料

海水試料 20 L 1207 関根浜 (0 dbar) : 2012年5月15日

むつ研究所内岸壁よりポンプ採水にて採取

試料 ID : #0330

作業者 : 1班 浅野, 小池, 福田, 加藤

方法

事前① pH調整

海水試料 (20 Kg) に特級濃硝酸を 40 ml 加え, pH1–2 に調整

事前② AMPプレ乾燥

リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を数日間クリーン乾燥機内で常温 (25°C) 乾燥

事前③ 室温馴致

海水試料を処理開始の1週間程度前までに室温下 (20–25°C) で保管

- ・ロンテナ確認, バケツ風袋測定, 試料移動, スターラーセットを行ったのち, pH調整 (pH1.6 ±0.01, 水温 20–25°C) であることを確認
- *実習ではここまでの作業がすでに行われた状態で作業開始
- *作業方法とともに実測値も記載
- *実習のため, 本来望ましい作業工程・時間とは異なる箇所もある

- ① 塩化セシウム 0.34 g を添加（写真 1）し，4 分間攪拌
- ② pH1.6±0.01，水温 20–25℃であることを確認
- ③ AMP4.01 g を量り取り，攪拌バケツ内の海水試料に添加（写真 2）

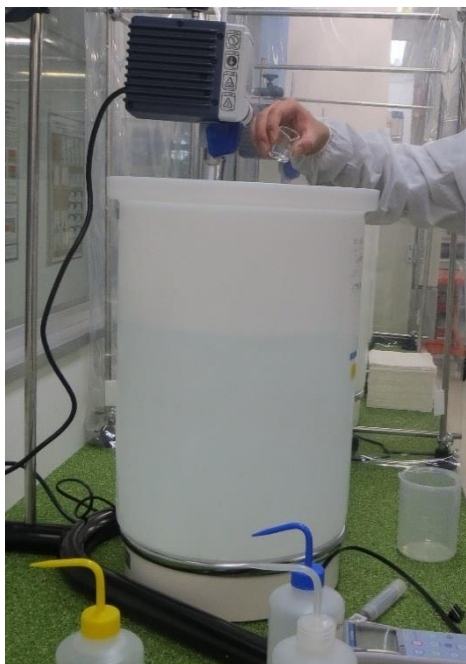


写真 1

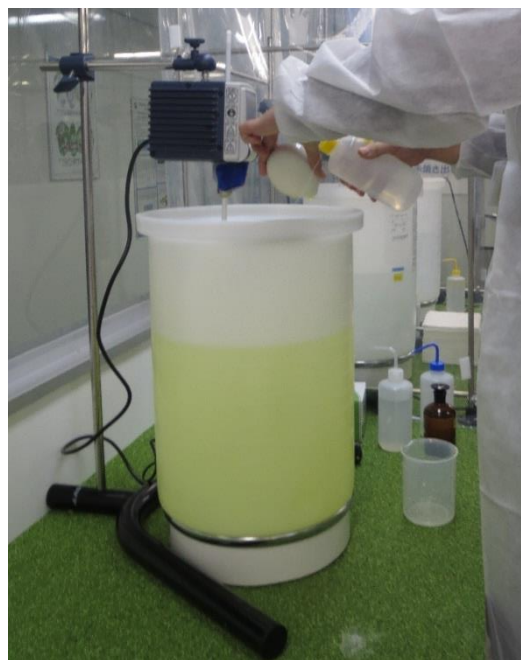


写真 2

- ④ 69 分間の攪拌ののち，上澄み液が澄むまで 16 時間静置
- ⑤ ポリピーカーを用いて上澄み液を掬いあげ，濾紙をセットしたフブナー漏斗で吸引濾過を行う（写真 3）

バケツ内の試料残量が少なくなったら，よく攪拌し濾過を続ける．さらに少なくなったら別容器に試料を移し，バケツ内壁面に付着している AMP/Cs 沈殿をヘラで集め，別容器に移す（写真 4）．この作業を AMP/Cs 沈殿（黄色）が確認できなくなるまで繰り返す，濾過を行う．

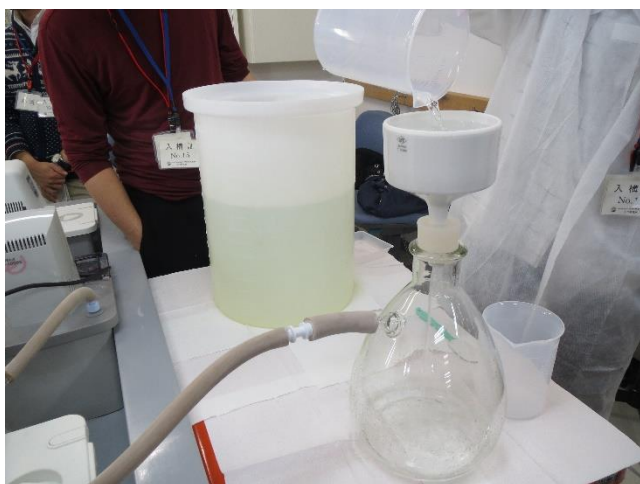


写真 3



写真 4

⑥ 濾紙上の AMP/Cs 沈殿をフブナー漏斗に載せたまま乾燥させる (写真 5)

乾燥温度：70℃ 乾燥時間 10：42－15：12 (330 分間)

*クリーン乾燥機にて室温 25℃で 1 週間－10 日間かけて乾燥させるのが望ましい



写真 5

⑦ フブナー漏斗から濾紙をピンセットで取り出し、アルミトレイ上の薬包紙に載せ重量を測定 (写真 6)

フブナー漏斗，濾紙に付着した AMP/Cs 沈殿を工業用綿棒を用いて薬包紙上に回収 (写真 7)

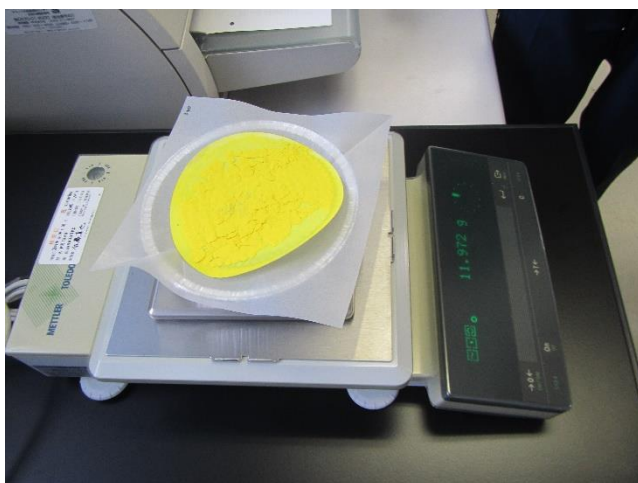


写真 6



写真 7

⑧ 沈殿回収量 (濾紙) を理論回収量で除して，回収率 (濾紙) を計算

$$\begin{aligned}\text{回収率 (濾紙)} &= \text{沈殿回収量 (濾紙)} / \text{理論回収量} \times 100 \\ &= 3.216 \text{ (g)} / 4.281 \text{ (g)} \times 100 \\ &= \underline{75.12\%}\end{aligned}$$

- ⑨ 薬包紙上の AMP/Cs 沈殿をテフロンチューブに移しシリコン栓を閉じて、重量を測定 (写真 8)
- ⑩ 沈殿回収量 (チューブ) を沈殿回収量 (濾紙) で除して、回収率 (チューブ) を計算

$$\begin{aligned} & \underline{\text{沈殿回収量 (チューブ)} / \text{沈殿回収量 (濾紙)} \times 100} \\ & = 3.123 \text{ (g)} / 3.216 \text{ (g)} \times 100 \\ & = 97.38\% \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \underline{\text{回収率 (チューブ)}} & = \underline{\text{回収率 (濾紙)}} \times 0.9739 \\ & = 75.12 \times 0.9739 \\ & = \underline{73.16\%} \end{aligned}$$

- ⑪ テフロンチューブ内の AMP/Cs 沈殿のチューブ底からの高さをノギスで計測
- ⑫ AMP/Cs 沈殿の入ったテフロンチューブをゲルマニウム半導体検出器に 1 週間入れ、放射性セシウムを計測 (写真 9)



写真 8



写真 9

放射性セシウム 137 濃度計算 (Excel File No1 のデータを使用)

- ① 657.75–663.75 keV の総カウント数 (Total Count:TC) を求める
*セシウム 137 のガンマ線エネルギーは 662 keV

$$\text{TC} = \underline{2486}$$

- ② バックグラウンドカウント数 (Background Count:BC) を求める
・ 655.25–657.5 keV と 664.00–666.25 keV (セシウム 137 のピーク両端) の総カウント値をチャンネル数 (20) で割って得られる値を、657.75–663.75 keV 間のバックグラウンドカウント数/チャンネル (Background Count/Channel:BC/C) と仮定

$$\text{BC/C} = 877 / 20$$

$$= \underline{43.85}$$

・ 657.75－663.75 keV 間のチャンネル数である **25** を乗じて BC を算出

$$\begin{aligned} \text{BC} &= 43.85 \times 25 \\ &= \underline{1096.25} \end{aligned}$$

③ 657.75－663.75 keV 間の正味のカウント数 (Net Count:NC) を求める

$$\begin{aligned} \text{NC} &= \text{TC} - \text{BC} \\ &= 2486 - 1096.25 \\ &= \underline{1389.75} \end{aligned}$$

④ 試料 (AMP) に含まれているセシウム 137 の総量 ($\{\text{Cs-137}\}$, counts/second = Bq) を求める

* B は分岐比 (Branching ratio) で **0.851**, T は測定時間 (秒, 表 1 より AMP 試料 1 : **580000** 秒), E は 662 keV 付近における測定効率 (Efficiency) を表す

$$\begin{aligned} E &= a \times H^2 + b \times H + c \\ &= -6.58\text{E-}06 \times 134.56 + -1.06\text{E-}03 \times 11.6 + 1.45\text{E-}01 \\ &= \underline{0.132} \end{aligned}$$

* H はテフロンチューブに詰められた AMP の高さ (**11.6 mm**), a (**-6.58E-06**) b (**-1.06E-03**) c (**1.45E-01**) は各検出器固有の係数 (表 2 より) を表す

$$\begin{aligned} \{\text{Cs-137}\} &= \text{NC} / \text{B} / \text{T} / \text{E} \\ &= 1389.75 / 0.851 / 580000 / 0.132 \\ &= \underline{0.021} \end{aligned}$$

⑤ セシウム 137 の海水中濃度 ($[\text{Cs-137}]$, mBq/kg) の計算

* Bk は試薬ブランク (mBq), R はセシウムの回収率, W は海水試料の重量 (**20.005 kg**) を表す

〈Bk(mBq) : 試薬ブランクの計算〉

$$\begin{aligned} \text{Bk(mBq)} &= \text{Bk[AMP]}(\text{mBq}) + \text{Bk[CsCl]}(\text{mBq}) \\ \text{Bk[AMP]} &= 0.023 \text{ mBq/g} \times \text{AMP 添加重量(g)} \\ &= 0.023 \times 4.0113 \\ &= \underline{0.09226} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
Bk[\text{CsCl}] &= 0.179 \text{ mBq/g} \times \text{CsCl 添加重量(g)} \\
&= 0.179 \times 0.3418 \\
&= \underline{0.061182} \\
\therefore Bk &= 0.09226 + 0.061182 \\
&= \underline{0.153442}
\end{aligned}$$

〈R(g/g) : セシウム回収率の計算〉

$$\begin{aligned}
\text{回収率 } R(\text{g/g}) &= \text{沈殿回収量[チューブ]}(\text{g}) / [\text{AMP+Cs}] \text{理論回収量}(\text{g}) \\
\text{沈殿回収量[チューブ]}(\text{g}) &= \underline{3.132} \\
[\text{AMP+Cs}] \text{理論回収量}(\text{g}) &= \text{塩化セシウム添加重量(g)} + \text{AMP 添加重量(g)} \\
&= \underline{4.281} \\
\therefore \text{回収率 } R &= 3.132 / 4.281 \\
&= \underline{0.731605}
\end{aligned}$$

〈Cs-137 濃度 (Cs-137 比放射能) の計算〉

$$\begin{aligned}
[\text{Cs-137}] (\text{mBq/kg}) &= (\{\text{Cs-137}\} \times 1000 - Bk \times R) / W / R \\
&= (0.021 \times 1000 - 0.153 \times 0.732) / 20.005 / 0.732 \\
&= \underline{1.43}
\end{aligned}$$

⑥ 減衰補正 (セシウム 137 の半減期 : 30.04year)

$$\begin{aligned}
[\text{減衰補正 Cs-137}](\text{mBq/kg}) &= [\text{Cs-137}] \times (1/2)^{(-t / \text{半減期})} \\
\text{経過時間 } t (\text{year}) &= 2012 \text{ 年 } 5 \text{ 月 } 15 \text{ 日から } 2015 \text{ 年 } 10 \text{ 月 } 30 \text{ 日までの日数}(\text{day}) / 365(\text{day/year}) \\
&= 1264 / 365 = 3.46 \\
[\text{減衰補正 Cs-137}](\text{mBq/kg}) &= 1.43 \times (1/2)^{(-3.46 / 30.04)} \\
&= \underline{1.55}
\end{aligned}$$

⑦ 誤差の計算

$$\begin{aligned}\text{相対誤差 } U(\%) &= \sqrt{TC + BC} / NC \times 100 \\ &= \sqrt{2486 + 1096.25} / 1389.75 \times 100 \\ &= \underline{4.31}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{絶対誤差 } A \times U &= 1.43 \times 0.0431 \\ &= \underline{0.0616}\end{aligned}$$

⑧ 結果

海水試料の Cs-137 濃度 : 1.43 ± 0.0616 mBq/kg

(2012 年 5 月 15 日を基準に減衰補正した Cs-137 は 1.55 mBq/kg)

【まとめ】

本来であれば約半月（試料前処理から放射性セシウム測定まで）ほどかかる作業工程であるが、今回は若手育成のための実習ということもあり、AMP-Cs 沈殿の乾燥を約 70℃の乾燥機内で行った。そのため、濾紙まで完全に乾燥し取り出す際にこぼしてしまったため、私たち 1 班の回収率は 73%（これまでの最高回収率は 98.99%）と低い値となった。

今回算出した 1.43 ± 0.0616 mBq/kg という値について、熊本さんの講義でもあったように 2000 年代の北太平洋表層の放射性セシウムは 1.5 Bq/m³ と今回の計測値とほぼ変わらない値である。よって、今回検出された放射性セシウム 137 の多くが、1960 年代に盛んに行われた大気圏核実験由来のものであると考えられる。

これまで大学で、主に海洋や生物の生態について学んできた私にとって、放射性核種の環境動態は全く学んだことのない分野でした。しかし、今回の実習を通して私の大好きな生き物、そしてそれらが暮らす海の環境について、これまでとは異なる視点から考える機会となりました。また、全く違う分野を学び、研究する方々と出会うきっかけとなり、参加して良かったと心から感じております。ご指導を頂いた、熊本さん、山田さん、本多さんそしてむつ研究所の皆さまに、誠に感謝申し上げます。