## 放射能環境動態・影響評価 ネットワーク共同研究拠点(ERAN)

FY2024 Final Report

【若手/Young 共同研究】

#### 若手共同研究 (日本国内機関所属)

採択No.	研究代表者名	所属機関	職名・学年	課題名	受入研究者	受入機関	共同研究者
Y-24-01	佐藤 ひかる	福島大学大学院卒	会社員	福島第一原発事故後の地下水中のH-3を用いた海洋へ の放射性物質の流出解析	恩田 裕一津旨 大輔	CRiES	
Y-24-02	榊原 厚一	信州大学	助教	山地源流域湧水の放射性ラドン濃度の降雨時におけ る挙動	恩田 裕一 辻村 真貴	CRiES	廣田 昌大 平松 翼
Y-24-03	Zandvakili Zahra	高知大学	2nd year Ph.D student	Oxygen, hydrogen, carbon and sulfur isotopes measurement of hot spring waters in the earthquake swarm region	丸岡 照幸山中 勤	CRIES	
Y-24-04	三浦 輝	電力中央研究所	主任研究員	加速器質量分析法を用いたヨウ素129の海洋動態解明	笹 公和 坂口 綾	CRIES	松中 哲也
Y-24-05	Mundo Jose Rodrigo	金沢大学	Collaborative researcher	オホーツク海南部域における129Iの分布特性と増加 要因の解析	笹 公和 坂口 綾	CRiES	松中 哲也 松村 万寿美
Y-24-06	徳永 紘平	日本原子力研究開発機構	研究員	鉄鉱物の化学状態の変化に伴う人形峠センター(旧ウラン鉱床)堆積物中のウラン及びヒ素の移行素過程の解明	山﨑 信哉 坂口 綾	CRiES	
Y-24-07	角間 海七渡	京都大学	博士後期課程3年	福島の昆虫群集における放射性セシウムの分布と高 濃度放射性セシウム含有粒子が及ぼす影響	和田 敏裕	IER	村上 正志 二瓶 直登 辰野 宇大 佐山 葉 大手 信人
Y-24-08	Cai Yu	東京大学	D3	Elucidation of the spatial distribution and seasonal variation of 210Pb around Japan	平尾 茂一	IER	山澤 弘実 飯本 武志 Li Hanting
Y-24-09	JIN Qianhao	東京大学	2nd Grade for ph.D student	Radon escape speed from water to the air and modification of measurement technique.	山口 克彦	IER	迫田 晃弘 飯本 武志
Y-24-10	小池 弘美	東京大学	特任助教(予定)	自然起源放射性物質の評価目的に応じた各種測定方 法に関する研究	床次 眞司	IREM	飯本 武志 Guh Changting 三浦 竜一
Y-24-11	山下 琢磨	東北大学	助教	電子スピン共鳴法によるニホンザルの被ばく線量推定	三浦 富智	IREM	高橋 温 岡 壽崇 鈴木 正敏 木野 康志
Y-24-12	Pitakchaianan Chonlada	大阪産業大学	D1	Tritium Concentrations in Precipitation Collected at Osaka, Japan	赤田 尚史	IREM	
Y-24-13	Kosinarkaranun Kanyanan	大阪産業大学	D1	The behavior of cosmogenic 7Be, 22Na, and 210Pb in the surface air over Osaka, Japan, and the exploration of aerosol size distributions with their major chemical compositions associated with 7Be and 210Pb.	赤田 尚史	IREM	
Y-24-14	Jokam Nenkam Therese Line Laure	富山大学	2nd year Ph.D student	Distribution of radioactive materials in freshwater and transport dynamic from land to the coastal ocean	田副 博文	IREM	Oktaviani Ade S Khatun Mst. Tania 勝田 裕大
Y-24-15	大塚 進平	富山大学	博士後期課程・2年	富山深海長谷における近年の堆積環境変化に関する 研究	田副 博文	IREM	張 勁 Michael Julian Haryanto 遠藤 真樹 三神 崇重
Y-24-16	Hasan Md Mahamudul	東京大学	Researcher	Development of effective countermeasures for radon exposure: dynamics assessment and parameter investigation of Asian dwelling factors and human lifestyle	大森 康孝	IREM	飯本 武志
Y-24-17	古川 理央	産業技術総合研究所	主任研究員	比例計数管を用いたラドン濃度絶対測定の精度評価	大森 康孝	IREM	原野 英樹
Y-24-18	西野 圭佑	電力中央研究所	研究員	河川水の物理化学状態が駆動する懸濁土砂粒子の凝 集に関する数値実験	中西 貴宏 舟木 泰智	JAEA	吉川 裕
Y-24-19	小林 雅俊	名古屋大学	特任助教	宇宙暗黒物質探索に向けた環境トリチウムバックグ ラウンドの測定	柿内 秀樹	IES	山下 雅樹

#### 福島第一原発事故後の地下水中の H-3 を用いた海洋への放射性物質の流 出解析

研究代表者:佐藤 ひかる

受入研究者: 恩田 裕一・津旨 大輔

#### 1. 成果

東京電力福島第一原子力発電所(以下、福島第一原発)からの事故由来の Cs-137 直接流出 は汚染水対策の1つである海側遮水壁が設置された2015年以降減少したものの、その後も海 洋への流出は継続している。さらに流出口の1つとなっている福島第一原発港湾内の海水中の Cs-137 濃度では夏季(8 月~10 月)に濃度が上昇する季節変動がみられるようになった。し かし、季節変動の要因と主要な流出源が未だに明らかになっていない。そこで本研究では、港 湾内の海水中 Cs-137 濃度が K 排水路の流出口で最も高く、K 排水路水の濃度が海水と同様に 季節変動があることに着目し、K 排水路中の Cs-137 濃度の形成要因を明らかにすることとし た。K 排水路水は、35m盤と呼ばれる敷地内の高台からの湧水と、雨水からなる表面流からな る。無降雨時にも K 排水路には湧水と考えられる流入が一定量存在する。また、K 排水路水の 特徴として定常時に H-3 濃度が約 100Bg(2021 年時点)と高く、降雨時に減少する。K 排水 路水中の高濃度 H-3 は、35m 盤に配置されたタンクエリアからの H-3 漏えいに伴う地下水へ の流入によるものだと考えられる。本研究では、この H-3 をトレーサーとして使用し、K 排水 路水の Cs-137 濃度の形成要因を流域水文学的解析によって明らかにした。解析は福島第一原 発の公表データおよび東京電力からデータ提供されたもの(排水路・地下水 H-3、Cs-137 濃 度、気象データ)を使用した。まず、End-Members Mixing-Analysis (EMMA)法を使用し、 湧水 (基底流) の H-3 濃度をエンドメンバーとし K 排水路水を基底流と表面流に分離した。 し かし、この 2 成分だけでは実測の Cs-137 濃度を再現することができず、降雨時には流出の速 い成分と遅い成分を再現する必要があった。そのため、実効雨量法にてさらに表面流を2種類 に分離した。1 つ目は、降雨時に表層を伝って流入する「表層流出」、2 つ目は降雨時に建屋の 屋根を伝って流入する「屋根排水」と仮定した。これらの3成分とCs-137の流量および濃度 関係から、K排水路の Cs-137 濃度の季節変動と流出源について以下の結果を得た。基底流に ついては、敷地内の気温との相関があることが分かった。本研究では、温度係数が 0.047 であ り Nakanishi and Sakuma (2019) で報告された係数 (0.040-0.097) の範囲内であった。基底 流の Cs-137 濃度は 8 月に最も高くなり約 10 Bq/L となる。表面流については、降水量の多く なる 9 月や 10 月に濃度が高くなり、比較的濃度の高い(約 20-30Bq/L)Cs-137 が流入して いると推測された。このように、基底流と表面流では異なる濃度上昇の要因があることが示唆 された。K 排水路の Cs-濃度は「屋根排水」(約 50%)、「表層流出」(30%)、基底流(20%)で 構成され、「屋根排水」が主要な流出源であるため継続的な除染が有効であると考えられる。ま た、地下水中の高濃度 H-3 は敷地の水文学的解析に活用できる可能性があるため、有効性につ いて引き続き検討していく。

#### 山地源流域湧水の放射性ラドン濃度の降雨時における挙動

研究代表者:榊原 厚一

受入研究者: 恩田 裕一・辻村 真貴

共同研究者:廣田 昌大・平松 翼

#### 1. 成果

山地森林の水資源涵養機能の評価や洪水・土砂災害の予測のためには、源流域における降雨時 の流出発生過程を解明することが重要である。特に、基盤岩地下水の動態は降雨流出過程にお いて重要な役割を果たすと考えられるが,基盤岩地下水の流出を直接的に評価する手法は限ら れており、岩盤地下水の流出を明確に示した実測データも少ない。本研究では、花崗岩質の基 盤岩を有する源流域において、地下水中の Rn-222 濃度の特性を明らかにし、基盤岩地下水流 出の解明における Rn-222 のトレーサーとしての有効性を評価することを目的とした. 研究対 象地において地下水・土壌水ポテンシャルをモニタリングし、地下水および湧水の定期採取を 行った、また、液体シンチレーションカウンター法により水の Rn-222 濃度を、水同位体比分 析器により水の酸素・水素安定同位体比を,イオンクロマトグラフ法にて主要溶存イオン濃度 を分析した、湧水中の Rn-222 濃度は、21.8 ± 4.34 Bg/L であり、湧水量が比較的小さいとき に濃度が高くなる傾向が見られた。一方、地下水中の主要溶存イオン濃度および酸素・水素安 定同位体比の値は、深度や採水日による変動がほとんど見られなかった。Rn-222 濃度は、尾 根の 20 m 井戸では、75.09 Bg/L であったが、岩盤の風化や破砕が進んだ浅い地下水では低く、 湧水に最も近い地表下 0.5 m の井戸では 17.53 Bq/L であった。この結果は、風化や破砕によ る地中の空隙の増加や、大気とのガス交換の促進が Rn-222 濃度に影響を与えていることを示 唆する. 花崗岩質の源流域において, Rn-222 は, 主要溶存イオンや酸素・水素安定同位体比 では明確に区別できない基盤岩地下水の流出を一次的に示すことができると考えられる。また、 降雨流出時の基盤岩地下水の動態を解明するためのトレーサーとして有用である可能性があ る。本研究では、花崗岩質の源流域において地下水および湧水の Rn-222 濃度を測定し、その 特性を明らかにした.得られた結果は,基盤岩地下水流出の評価に Rn-222 が有効なトレーサ 一となる可能性を示唆しており、降雨時の水循環解析への応用が期待される。今後は、降雨イ ベントごとの Rn-222 濃度変動をとらえ、より精度の高い基盤岩地下水の動態解析を進める予 定である.

## Oxygen, hydrogen, carbon and sulfur isotopes measurement of hot spring waters in the earthquake swarm region

研究代表者:Zandvakili Zahra

受入研究者: 丸岡 照幸・山中 勤

#### 1. 成果

The involvement of deep-seated fluids in fault behavior and earthquake generation is well established. However, understanding the origin and time-series variability of these fluids remains limited. Geophysical methods like seismic tomography and electromagnetic surveys provide insights into fluid distribution but are not suited for identifying temporal changes or fluid origins. Geochemical studies, particularly isotopic analyses, offer powerful tools for tracing the sources of fluids and assessing their contributions before seismic events.

This study focused on monitoring Li and Sr isotopic compositions in groundwater samples from Hokkaido, where the 2018 Eastern Iburi earthquake (M6.7) occurred. Previous work by Sano et al. (2020) identified pre-seismic anomalies in hydrogen, oxygen, and carbon isotopic values, suggesting CO<sub>2</sub> influx into groundwater near the epicenter. Using the same samples, we aimed to determine whether deep-seated fluids contributed to these geochemical changes by analyzing Li and Sr isotopes, which are reliable indicators of deep-seated fluid origin.

The isotopic analyses were conducted using MC-ICP-MS and TIMS after a two-step purification process in a clean laboratory at the Kochi Core Center. Our results showed a significant decrease in the Na/K ratio coinciding with the isotopic changes reported by Sano et al. (2020). While a reduction in Na/K can imply deep-seated fluid involvement, our Li and Sr isotope data revealed no evidence of deep-seated fluid migration associated with the Na/K decrease.

These findings suggest that the observed Na/K ratio drop can be explained by the influx of  $CO_2$ , supporting the theory of  $CO_2$  migration from an injection site proposed by Sano et al. (2020). The absence of corresponding changes in Li and Sr isotopes further corroborates that  $CO_2$  migration occurred without significant contribution of water transported from deeper crustal levels.

This study provides additional geochemical evidence that enhances the understanding of pre-seismic fluid behavior and highlights the need for integrating isotopic and elemental analyses to investigate complex subsurface fluid dynamics related to earthquake precursors.

#### 加速器質量分析法を用いたヨウ素 129 の海洋動態解明

研究代表者:三浦 輝

受入研究者: 笹 公和・坂口 綾

共同研究者:松中 哲也

#### 1. 成果

【背景】東京電力による ALPS 処理水の海洋放出が 2023 年 8 月から開始された。処理水には告示濃度以下であるが、放射性ヨウ素(129I、半減期 1570 万年)が含まれる。129I は藻類への濃縮係数が高く、被ばく影響を考慮する上で重要な核種である。本研究では、処理水海洋放出による 129I の濃度上昇がどの程度かを明らかにすることを目的とした。これは、日本国民や諸外国に対して処理水海洋放出の安全性を示すことに貢献する。また、今後稼働が予定されている青森県六ケ所村の核燃料再処理工場からも 129I が放出されるため、129I の海洋における拡散挙動を理解は重要である。129I は環境省などの ALPS 処理水モニタリング対象核種になっているが、ICP-MS を用いた分析が行われており、検出ができていない。

【方法】海水試料の広域でのサンプリングは、 $22 \pm 10$  月、 $23 \pm 3$  月に行った。1F 近傍でのサンプリングは  $23 \pm 4$  月から  $24 \pm 7$  月まで 6 度行った。試料前処理は金沢大学 LLRL 施設で行い、AgI 沈殿とした。本研究では 129I が低濃度であることが予測されるため、AMS による分析を採用し、筑波大学で行った。

【結果】2022年10月の広域サンプル分析の結果、1Fに最も近い地点のみ10-6 Bq/L程 度の高濃度を示し、1F から離れた地点では 10-8 Bg/L(1F 事故前の濃度レベル)であっ た。 このことは、1F 敷地付近から放射性核種を含む水の漏洩が継続していることを示唆し た。処理水放出前、1F 近傍において地点によって 129I に濃度差が見られ、前述した敷地 付近からの漏洩が示唆された。処理水放出中のサンプル(23 年 10 月 11 日)でも、地点 によって濃度差が見られ、最大では 10-5 Bq/L 程度であった。 処理水放出完了から 4 日後 のサンプル(23 年 10 月 27 日)では低濃度を想定したが、全地点で高濃度であった。こ れらの濃度について、観測結果のみで解釈することが困難であるため、電中研所有のモデ ルによる海洋拡散シミュレーションを行い、観測結果と比較した。処理水放出中(23年10 月 11 日)について、観測では 1F から南側の地点で高濃度の結果が得られ、シミュレーシ ョンの結果から処理水由来の海水が南側へと流れたことが分かり、観測結果の傾向と一致 した。処理水放出完了から 4 日後(23 年 10 月 27 日)ではシミュレーションにより処理 水由来の高濃度海水が 1F 近傍に滞留していたことが分かり、観測結果の傾向と一致した。 観測結果とシミュレーションから予測される濃度レベルは概ね一致した。処理水放出の前 後の観測結果を比較して、明確な濃度上昇は見られなかった。1F 敷地付近からの継続的な 漏洩の影響が、処理水放出の影響と比較して無視できないレベルであることが示唆され、 敷地付近からの漏洩量、漏洩源を明らかにする必要があると考えられる。今後、1291 の形

態別分析、3H や 137Cs 等、他核種の分析結果も合わせた議論、藻類の 129I 濃度分析など を行う予定である。

#### オホーツク海南部域における 1291 の分布特性と増加要因の解析

研究代表者:Mundo Jose Rodrigo

受入研究者: 笹 公和・坂口 綾

共同研究者:松中 哲也・松村 万寿美

#### 1. 成果

Fed by the Soya Warm current (high salinity) and the East Sakhalin Current (cold and low salinity), surface water of the southern Okhotsk can be grouped into Coastal and Offshore areas.

Previously, we found that 129I was carried southward by the ESC. Likewise, in the surface waters, 129I (Offshore > Coastal) linearly correlated with salinity year after year (R2 > 0.7). From the samples collected between 2017 and 2022, it was shown that the highest 129I/127I ratios and 129I activities were found in the offshore area of the Okhotsk Sea, the same area with the lowest temperature and salinity. Annual 129I emissions for the period 2013-2022 are presented for three of the main nuclear waste reprocessing plants in the world. Although the La Hague presented a weak rising trend, other atmospheric releases and liquid discharge were constant or downward.

From a regional perspective, the largest ratios and concentrations of 129I were found in the southern Okhotsk Sea due to the southern transport of the ESC. To a lower degree, the Oyashio Current also generates a southern flux, visible southeast of Hokkaido. The Japan Sea, although at similar latitudes, is an area fed by the Tsushima Warm Current, which has lower ratios and concentrations of 129I. The oceanographic currents were characterized by salinity and temperature.

Summer samples taken in the southern Okhotsk Sea and at the subarctic gyre of the Japan Sea show an increasing trend during the 2017-2022 period. Specifically, the linear regression of the 129I/127I ratios for the southern Okhotsk Sea had a slope of 9.12 x10-12. The counterclockwise circulation of the Okhotsk Sea and Amur River discharges are not the main reasons for the increase due to the regional behavior of the phenomenon. Since an increase in 129I annual release is also unlikely, the main hypothesis to explain the increase in 129I would be differences in atmospheric transport patterns.

#### 2. 論文

なし

### 鉄鉱物の化学状態の変化に伴う人形峠センター(旧ウラン鉱床)堆積物中のウラン及びヒ素の移行素過程の解明

研究代表者:徳永 紘平

受入研究者:山﨑 信哉・坂口 綾

#### 1. 成果

原子力機構人形峠環境技術センター(人形峠センター)には旧ウラン鉱床等があるため、 (i)浅い地下水(坑水)にウラン(U)やヒ素(As)等が溶存し移動しているとともに、(ii)天然 の浄化作用により坑水中の U 等を除去するための堆積場では、坑水に多量に含まれる鉄 (Fe)イオンが酸化することで生成する(水)酸化鉄に U 等が吸着・共沈し堆積している。 申請者(徳永)らは、主に吸着・脱離実験や放射光 X 線吸収端微細構造(XAFS)解析を用い て、環境試料中での元素の分子レベルの情報を引き出し、より本質的な化学的情報に基づ いて人形峠センターにおける元素循環の素過程や環境影響を検討している。これまでに、 人形峠センターの表層環境において堆積物中に多く含まれる鉄鉱物が U や As の挙動に大 きな影響を与えることを示す分析結果が得られた。具体的には、堆積場の表層において、 鉄は主にフェリハイドライト(FellIOOH·nH2O)、ゲーサイト(α-FellIOOH)、シデライト (FellCO3)、マグネタイト(FellFellI2O4)の化学種として存在しており、各鉄鉱物に対して U や As が強く吸着していることが分かった。一方で、鉄鉱物は土壌の酸化還元電位(Eh) や酸性度(pH)に応じて化学状態が変化するため、鉄鉱物に一度固定された元素がそのまま の状態で保持され続けるとは限らない。人形峠センターで採取した最表層堆積物コア試料 (0~1m 深さ)においても、堆積物の部位により Eh と pH が異なるとともに U や As 濃度が 変化しており、鉄鉱物の化学状態の変化に応じて U 等の結合挙動が変化している可能性が ある。そこで本研究では、人形峠センターの堆積環境におけるU等元素の挙動を明らかに するために、鉄鉱物への U 等元素の結合状態や局所構造を、特に Eh の変化の観点から検

本年度は、堆積場で採取した最表層堆積物コア試料中の鉄鉱物に対する U 等元素の挙動を、放射光 XAFS による元素の化学種解析と室内での逐次抽出実験により検討した。放射光を用いた XAFS 解析により、表層(Eh 400~500 mV)に存在する鉄は主に 3 価の鉄鉱物(フェリハイドライト、ゲーサイト)であるのに対し、堆積物の Eh が大きく低下する中層以深(Eh -30~300mV)では 2 価鉄を含む鉄鉱物(シデライト、マグネタイト)も存在することが確認された。同様に U は表層では U(VI)のみで存在するのに対し、中層以深では U(IV)が Eh に応じて割合を変えて確認された。逐次抽出実験により、堆積物中の鉄鉱物に結合する U を逐次的に抽出したところ、U は表層では主にフェリハイドライトに、中層以深では主にシデライトに結合していたことが分かった。さらに、メカニズムは未検討であるが、シデライトは嫌気的な水質条件において U(VI)を U(IV)に還元させることにより、他の鉄鉱物よりも多くの U を吸着することも、本研究の室内実験より示された。この現象が実際

の人形峠センターの堆積環境においても確認され、堆積物中に含まれるシデライトが還元的な環境での U の挙動を大きく支配している可能性が示唆される。この天然の堆積環境にて、U が U(IV)/U(VI)の両方の価数で鉱物に吸着する環境は非常に珍しく、環境中で価数に応じて挙動が変化する放射性核種の動態研究として、基礎と応用の両面で重要な研究となることが期待される。

#### 福島の昆虫群集における放射性セシウムの分布と高濃度放射性セシウム 含有粒子が及ぼす影響

研究代表者:角間 海七渡

受入研究者:和田 敏裕

共同研究者:村上 正志・二瓶 直登・辰野 宇大・佐山 葉・大手 信人

#### 1. 成果

2011 年の福島第一原子力発電所事故以降、福島周辺地域に生息する昆虫類に放射性セシウム が移行していることが確認されている。昆虫類に取り込まれた放射性セシウムは食物網を介し て魚類や爬虫類など高次生物へと取り込まれる可能性があり、その濃度を把握することは生態 系におけるリスク評価のために重要である。本研究では、昆虫群集における個体レベルでの放 射性セシウム濃度の変動や、生息場所と関連した放射性セシウム存在分布を把握することを目 的とした。加えて、昆虫体内に含まれる高濃度放射性セシウム含有粒子を検出することのでき る手法を用いて、粒子の存在が放射性セシウム濃度のばらつきに及ぼす影響を解明することを 目指した。本研究では福島県内の森林域から河川下流の生活圏にかけて複数の調査サイトを設 定し、各サイトにおいて地表徘徊性昆虫、飛翔性昆虫および水生昆虫をピットフォールトラッ プ、衝突板トラップ、サーバーネットを用いて採取した。採取された昆虫は種同定を行い、イ メージングプレートを用いたオートラジオグラフィー法により一粒子当たりの放射性セシウ ム含有量が一定以上である高濃度放射性セシウム含有粒子が体内に含まれているか個体ごと に識別した。また、試料全体の放射能をゲルマニウム検出器により測定し、昆虫群集における 放射性セシウム分布を分析した。結果として、摂食による陸生昆虫への高濃度放射性セシウム 含有粒子の取り込みとみられる事例が確認された。また、昆虫群集における放射性セシウム分 布には個体ごとの食性の特徴が影響していると考えられた。本研究の成果により、昆虫群集に おける高濃度放射性セシウム含有粒子の検出率や、生物種や生息場所による検出率の変動、あ るいは試料全体の放射性セシウム濃度に対する高濃度放射性セシウム含有粒子の寄与率に関 して、先駆的な情報を提供することが期待される。今後は識別された粒子に対して走査型電子 顕微鏡での観察を実施する。

## Elucidation of the spatial distribution and seasonal variation of 210Pb around Japan

研究代表者:Cai Yu

受入研究者:平尾 茂一

共同研究者:山澤 弘実・飯本 武志・Li Hanting

#### 1. 成果

210Pb, a decay product of radon-222 (222Rn), provides unique insights into large-scale atmospheric circulation, regional pollutant transport, and deposition mechanisms. Moreover, 210Pb deposition is critical in assessing radiation exposure risks, especially internal exposure via oral ingestion in regions like Japan. This dissertation investigates the atmospheric concentration, transport, and deposition of 210Pb, with a particular focus on Japan and its surrounding regions.

Motivation and Objectives

Prior research has established a strong link between 210Pb deposition and topographical features. Quantify the distribution of 210Pb deposition across the Northern Hemisphere and analyze its transport pathways under various climatic conditions. However, comparisons between modeled and observed data frequently reveal a systematic underestimation. Therefore, this study aims to investigate the seasonal and spatial variability of 210Pb deposition in Asia and its influence on Japanese regions, particularly in relation to the East Asian monsoon system.

#### Methodology

The study employed a combination of meteorological (WRF) and atmospheric transport models (HIRAT) to simulate 210Pb transport and deposition from 2012 to 2015. Simulations were conducted at spatial resolutions of 48 km. Observational data from monitoring stations across Asia and Japan were used to validate the model and identify areas for improvement.

#### Findings and Contributions

In Asia, the annual average 210Pb deposition flux was approximately 17.2 Bq m<sup>-2</sup> month<sup>-1</sup>, with significant seasonal and spatial variability. Winter deposition was highest along the Sea of Japan coast, the eastern coast of Vietnam, and Siberia, while regions such as southern China and the Bay of Bengal exhibited lower deposition. Summer deposition patterns shifted, with the Bay of Bengal and the western coast of the Philippines experiencing elevated levels, while deposition along the Sea of Japan and Siberia decreased.

In Japan, seasonal variations in 210Pb deposition were strongly influenced by the East

Asian monsoon system. During winter, the Siberian High and East Asian troughs drove strong northwesterly winds that transported 210Pb-enriched air masses from eastern Siberia and the Kazakhstan-Xinjiang border to Japan, resulting in heavy deposition along the Sea of Japan coast. In summer, southerly and westerly winds transported air masses rich in 210Pb from southern China, contributing to elevated deposition in Kyushu.

These findings underscore the complex interplay between atmospheric circulation, precipitation, and topography in shaping regional deposition patterns.

This study advances the understanding of 210Pb behavior by providing detailed insights into its spatial and temporal deposition patterns across the Asia. The findings clarify seasonal variations, transport pathways, and the influence of climatic factors, contributing to more reliable atmospheric models.

#### 2. 論文

Cai, Y.; Yamazawa, H.; Iimoto, T.

Long-range transport model analysis on seasonal and spatial variations of 210Pb deposition across Asia

Journal of Environmental Radioactivity, Volume 280, December 2024, 107563 https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2024.107563

## Radon escape speed from water to the air and modification of measurement technique.

研究代表者: JIN Qianhao

受入研究者:山口 克彦

共同研究者: 迫田 晃弘・飯本 武志

#### 1. 成果

Radon, as a noble gas with water-soluble properties, can be generated in, transported through, and exhaled from soil and water into the atmosphere. However, quantifying the escape speed of radon from water surfaces remains challenging due to the lack of feasible direct measurement methods, particularly for in-situ continuous monitoring.

This study aims to develop and optimize an accumulation chamber method for in-situ measurement of radon escape rate from water to the atmosphere. Concurrently with measuring radon accumulation in the chamber, radon levels in water were recorded as a critical factor influencing escape velocity.

During this fiscal year, we evaluated the performance of four detectors for measuring aqueous radon, including RAD7 (Durridge Co.), AlphaGUARD PQ2000 (Saphymo Co.), scintillation cell with AB-7 (Pylon Electronics Co.), comparing with Liquid Scintillation Counting (LSC; LB-5, Aloka Co.) as reference method. A radon-rich water sample was serially diluted to create a concentration gradient (1833 to 0.3 Bq/L). Each detector measured radon via a bubbling system. The regression factor(k) between readings of the detector and reference method (LSC) has been calculated.

As result, AlphaGUARD (kAG= $0.0698\pm0.0008$ ,R2=0.993) and scintillation cell (kLC= $0.1132\pm0.0009$ ,R2=0.998) exhibited strong linear correlations with LSC across all concentrations.

RAD7 performed well (kRAD7= $0.1017\pm0.002$ , R2=0.998) but only at concentrations >10 Bq/L, consistent with its manual. The derived linear relationships (AlphaGUARD or scintillation cell vs. LSC) can serve as conversion factors for field-based in-situ measurements of radon concentration in water.

#### 自然起源放射性物質の評価目的に応じた各種測定方法に関する研究

研究代表者:小池 弘美

受入研究者:床次 眞司

共同研究者:飯本 武志・Guh Changting・三浦 竜一

#### 1. 成果

放射線・放射性物質を利用することを目的としない人間活動の結果として、自然に存在する物質の比放射能が意図せず濃縮され、比較的高くなることがある。それらが放射性物質であるとは認知されずに身のまわりに存在し、突然放射性物質として認知され、自治体などの放射線に馴染みの無いグループが対応に苦慮する状況にある。自然起源放射性物質(NORM)の物理的・化学的特性が放射能測定に与える影響について、物量や放射能のばらつきといった性状に鑑み、その評価を行った。特に、今回は試料調整およびジオメトリ、さらに自己吸収の影響に着目し、それぞれの要因が測定結果に及ぼす程度を検討した。試料調整およびジオメトリによる検出効率の変動に関しては、試料の不均一性と形状の影響を考察した。前者については、文献調査により、U8 容器封入時、縦方向の偏在で低エネルギー側のピークが最大3.88 倍、高エネルギー側のピークが2.75 倍過大評価される可能性が確認された。後者については、配管内に物質がリング状に付着した状態をモデル化し、内部に空洞がない標準化されたピーク効率曲線と比較すると、低エネルギー側のピークでは約5~7%の検出効率の上昇が確認された。

自己吸収の影響に関しては、硫酸バリウムを含む場合に低エネルギー域でのピーク効率の低下が顕著であった。硫酸バリウムを 80 mol%含む場合、試料を U8 容器に封入し Ge 半導体検出器で測定したモデルで、88 keV で 51%、122 keV で 26%のピーク効率の低下が計算により評価された。さらに、実際に小学校で使用されていた手作りゴールポストを構成する配管内部に高放射能を有する堆積物が付着していたケースについて分析を行った。この事例では、堆積物がいつ頃から存在していたかを推定するために、Pb-210(γ線 46.5 keV)の比放射能を算出する必要があった。試料の構成成分が不明で粉砕等の前処理も困難であったため、比較的粒径が小さいものを U8 容器に封入し Ge 半導体検出器を用いて測定を実施した。その結果、原子力規制庁が定める「放射能測定法シリーズ」に従った方法では、自己吸収による補正を行った場合に比べ、放射能が約半分に過小評価されることが示された。本事例ではその後、堆積物の由来を明らかにするために年代推定を行ったが、自己吸収補正を行わずに評価した場合には約 16 年、補正を適用すると約 60 年という大きな差が生じた。関係者への聞き取り調査と照合した結果、補正後の推定値が実態に合致していることが確認された。

物質の特性が測定条件等に適切に反映されない場合、NORM に関する情報の正確な整理 や評価が困難となる。標準方法と認知される測定方法や条件を検討なく NORM に適用す る場合も散見されるが、実態を的確に評価する上で、物質の性状を踏まえた適切な測定と 補正処理が不可欠である。また、これまでに報告されたデータは、特定の目的に基づいて 測定されたものであり、計測に誤りがない限り数値としては信頼できる。しかし、異なる 目的で取得されたデータを同列に扱うことには注意が必要である。たとえば、環境バック グラウンドの平均値を示すデータと、高線量地域を選択的に測定したデータとを同一の基 準で比較すれば、地域の実態を誤って理解するおそれがある。加えて、公表論文の測定条 件のみでは、物質が適切に測定されているか判断できない場合があることにも留意すべき である。

#### 電子スピン共鳴法によるニホンザルの被ばく線量推定

研究代表者:山下 琢磨

受入研究者:三浦 富智

共同研究者:高橋 温・岡 壽崇・鈴木 正敏・木野 康志・林 哲平

#### 1. 成果

本研究では、「電子スピン共鳴法によるニホンザルの被ばく線量推定」として、ESR スペクトルの解析方法の改良を行った。野生動物各個体の被ばく線量を評価する上で、歯のエナメル質に放射線によって誘起する炭酸ラジカル量が良い指標となりうる。炭酸ラジカル量は電子スピン共鳴法(ESR)によって定量できるが、福島第一原子力発電所事故に関係する線量領域では生来のラジカルによる ESR 信号が無視できず、被ばく線量推定の精度に影響する。個体間・歯種間のエナメル質の化学的均一性なども検討の余地がある。

今年度は、ESR スペクトルの解析方法として、焼き鈍し法を用いた最適化を実装した多成分分解コードを整備した。現在、歯の ESR スペクトルの解析に用いることができるソフトウェアは限られており、トリアージなど緊急性の高い被ばくを想定して作成されているため、解析時間が短く、多数のパラメータを探索する上で課題があった。本研究では、低吸収線量(100 mGy 前後)の試料の ESR スペクトルを解析するために、探索範囲を広げるとともに、Mn マーカーによる磁場の較正や炭酸ラジカルスペクトルの解析式を導入することで、不要な変数を減らす工夫を行った。一般に利用しやすいように、解析から可視化まで1つのコードで完結するように設計し、OS 依存性をなくすために R 言語を用いて実装した(将来的には python 等の他言語にも書き換え可能である)。

作成したコードの妥当性を検証するため、害獣駆除された野生ニホンザルの歯を用いて実験を行った。歯を砕き、重液分離によってエナメル質と象牙質を分け、エナメル質を洗浄・乾燥後、マイクロチューブに封入し、試料とした。60Co線源を用いて試料にガンマ線を照射し、東北大学のESR装置(JES-X320)で測定し、ESRスペクトルを得た。実測のスペクトルと有機ラジカル成分の強度が類似する模擬スペクトルを生成し、多成分分解コードの解析精度の検証を行った。その結果、単純にESRスペクトルのフィッティングを行うより、ESRスペクトルの微分形も評価対象に加えることで精度向上できることが示された。今年度の研究では他に、ESR測定装置の各種制御パラメータ(変調幅や掃引時間、マイクロ波パワーなど)の最適化も行った。マイクロ波パワーの増大によりS/N比を向上できる見込みが立ったため、次年度これに注力する。

得られた成果は EPR Biodose2024 にてポスター発表を行い、プロシーディングスを投稿した。

#### Tritium Concentrations in Precipitation Collected at Osaka, Japan

研究代表者:Pitakchaianan Chonlada

受入研究者:赤田 尚史

#### 1. 成果

This research aims to establish another efficiency laboratory for low-level tritium measurement at Osaka Sangyo University, Daito, Osaka, Japan (34.71 N, 135.64 E) and obtain a better understanding of tritium behaviors in environmental water. Also, study the seasonal variation, regional distribution of tritium activity concentration, and meteorological factors for each region that affect the tritium concentration. In addition, to estimate the recent tritium concentration in precipitation, the effects of latitudes and longitudes, and seasonal variation trends in Japan. Nowadays, the levels of tritium in the atmosphere are those of natural origin before the nuclear test. Nuclear power stations, nuclear-reprocessing plants, and fusion facilities are observed as further occurrence sources. Then, to appraise the influence of nuclear facilities and long-distance transport from the continent where the tritium level is relatively high, it is necessary to investigate background levels of tritium. In the future, in the fusion reactor which becomes an occurrence source. It is important to control the release of tritium into the environment from these facilities. Thus, a local radioactive impact may be observed in the vicinity of nuclear facilities, where the tritium activity concentration might be over the natural level. The monthly precipitation samples were collected at the rooftop of the 16th building (altitude is 31m) of Osaka Sangyo University from January 2020 to December 2023. pH (B-211, Horiba, Kyoto, Japan) and electrical conductivity (EC) (E-771, Horiba) were measured. Tritium enrichment apparatus by electrolysis using solid polymer electrolytic film has been applied to this research. 500 mL of the sample were purified until electrical conductivity was less than 30  $\mu$ S cm-1. During electrolytic enrichment 500 mL water samples were enriched until 10 mL of final volume. Electrolysis was carried out for 2 days with an electrolytic current of 30 A. For tritium measurement, the final volume of enriched water samples was mixed homogenously with 10 mL of liquid scintillation cocktail (Ultima Gold LLT; PerkinElmer) in a 20 mL polyethylene scintillation vial. The tritium measurements were performed by using a low background liquid scintillation counter (Hitachi AccuFLEX LSC-LB7). The cocktails were kept cold and dark at a low temperature (10  $\circ$  C) for 5 days and purge the radon gas in the measurement chamber with Ultra-pure nitrogen gas (15mL/min) to avoid strange scintillation caused by chemiluminescence and photoluminescence. Each sample was measured for 100 minutes, 10 repeated, and 3 cycles which in a total measurement time of 3,000 minutes. Monthly precipitation amount ranged from 17 to 415 mm and was high in summer and low in winter.

Annual precipitation amounts in 2020, 2021, 2022, and 2023 were 1526, 2019, 1247, and 1600 mm, with the arithmetic mean value of 1598 mm. The pH data ranged from 5.0 to 6.5, and about 67% of the samples were in the range of acid rain with the pH < 6.0. The EC ranged from 3 to 33  $\mu$ S cm-1. There was no clear seasonal trend for either pH or EC. The tritium concentration in the monthly precipitation ranged from 0.22 to 0.51 Bq L-1 and was high in spring and low in summer. Annual tritium concentrations (arithmetic mean standard deviation) in 2020, 2021, 2022, and 2023 were 0.35  $\pm$  0.10, 0.34  $\pm$  0.07, 0.32  $\pm$  0.07, and 0.34  $\pm$  0.15 Bq L-1.

#### 2. 論文

Monitoring of tritium concentrations in tap water and rainwater collected in Thailand. https://doi.org/10.1093/rpd/ncae159

# The behavior of cosmogenic 7Be, 22Na, and 210Pb in the surface air over Osaka, Japan, and the exploration of aerosol size distributions with their major chemical compositions associated with 7Be and 210Pb.

研究代表者:Kosinarkaranun Kanyanan

受入研究者:赤田 尚史

共同研究者:

#### 1. 成果

Air pollution issue is a significant global issue. 7Be and 210Pb are the radionuclides serve as tracers for understanding aerosol behavior. The activity ratio of 7Be to 22Na is used as tracer of stratosphere-troposphere vertical exchange in global aerosol radionuclide monitoring networks. This study aims to understand the behavior of 7Be, 22Na, and 210Pb, as well as chemical composition attached by 7Be and 210Pb, throughout the year in Osaka, Japan. It also aims to prevent the air pollution from the particulate matter in the aerosols. [Method] Aerosol samples were collected using a high-volume air sampler (HV-1000R, Sibata) and a low-pressure cascade impactor (LP-20, Tokyo Dylec Corp.) that classifies aerosols into 12 sizes (0.06–13  $\mu$ m). Monthly rainwater deposition samples were collected using a 0.18 m<sup>2</sup> open bucket (total deposition) and a 0.07 m<sup>2</sup> dust fall sampler (wet deposition), then filtered, evaporated on Advantec No. 1 filters (300 mm), and stored in U8 containers. Sampling was conducted on the rooftop of Building No.16, Osaka Sangyo University (34.71° N, 135.64° E). Activity concentrations of <sup>7</sup>Be, <sup>210</sup>Pb, and <sup>22</sup>Na were measured using an HPGe detector (GX2018, Canberra). Water-soluble ions (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub>-, Cl-) in aerosols were analyzed by ion chromatography (DIONEX ICS-1100). [Result] The activity concentration of 7Be peaks in spring and autumn at Hirosaki and Osaka. In contrast, the activity concentration of 210Pb peaks in spring and autumn in Osaka, whereas in Hirosaki, it peaks in autumn and winter. The activity concentration of 22Na in Osaka ranges from 0.01 to 2.34  $\mu$  Bq/m3, while in Athens, it ranges from 1.03 to 2.72  $\mu$  Bq/m3. Unlike in Osaka, the data from Athen were not discontinuous due to lower detection limit. The total deposition rate of 22Na in Osaka shows the highest concentration in spring and autumn. However, in August, the total deposition rate of 22Na was undetectable because the values were lower than detection limit. In Fukui, the deposition rate of 22Na exhibits larger peaks in winter and lower values in summer. Throughout the year, the relationship between the size distribution of 7Be and 210Pbcarrying aerosols and major chemical composition of aerosols suggested that SO42 –

is a potential medium for 7Be and 210Pb. The 7Be/210Pb ratio serves as an indicator of air mass origins, including stratospheric intrusions, upper tropospheric influences, and boundary layer air masses. The 7Be/210Pb ratio in Finland is higher than in Osaka. In Finland, the 7Be/210Pb ratio increases with aerosol particle diameter due to enhanced 7Be input from the stratosphere, where 7Be attaches to growing fine aerosols, while 210Pb is more abundant in smaller particles. In Osaka, the ratio increases in fine particles but decreases for particles larger than 2 µm due to local 210Pb emissions and resuspension of coarse aerosols, including radon emissions from the land surface. 7Be/210Pb ratio peaks at different particle sizes in Osaka ( $< 1 \mu m$ ) and Finland ( $> 1 \mu m$ ) μm) due to air mass origin, seasonal variations, meteorological conditions. [References] [1] Kheamsiri, K., Modibo, O. B., Hadi, B. S. W., Kuwata, H., Yamada, R., Kranrod, C., and Akata, N. Atmospheric concentrations of <sup>7</sup>Be and <sup>210</sup>Pb in weekly aerosols at Hirosaki, a heavy snowfall area in Japan. Radiation Protection Dosimetry. 200, 1782–1786 (2024). [2] Tokuyama, H. and Igarashi, S. Seasonal Variation in the Environmental Background Level of Cosmic-Ray-Produced 22Na at Fukui City, Japan. Journal of Environmental Radioactivity. 38, 147-161 (1998). [3] Savva, M. I., Karangelos, D. J., & Anagnostakis, M. J. Determination of <sup>7</sup>Be and <sup>22</sup>Na activity in air and rainwater samples by gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes. 134, 466-469 (2018). [4] Paatero, J., Ioannidou, A., Ikonen, J. and Lehto, J. Aerosol particle size distribution of atmospheric lead-210 in northern Finland. J. Environ. Radioact. 172, 10-14 (2017).

#### 2. 論文

Not yet

## Distribution of radioactive materials in freshwater and transport dynamic from land to the coastal ocean

研究代表者: Jokam Nenkam Therese Line Laure

受入研究者:田副 博文

共同研究者:Oktaviani Ade S·Khatun Mst. Tania·勝田 裕大

#### 1. 成果

#### 1.Introduction

The radionuclide 137Cs, a byproduct of nuclear accidents, is commonly found in topsoil and frequently detected in groundwater (Bugai et al., 2022). This nuclear fallout can disperse due to atmospheric currents, leading to environmental contamination far from the original explosion site. Research has demonstrated that 137Cs were detected in groundwater decades after nuclear accidents (Onda et al., 2020). Following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, groundwater contamination by radionuclides was anticipated, leading to numerous studies to assess their vertical migration within the soil profile. It has been observed that 137Cs exhibit high sorption to geological materials and low mobility in the subsurface environment, resulting in their tendency to remain relatively stationary rather than migrating continuously into groundwater. This situation highlights the urgent need to monitor 137Cs levels in groundwater and to and to clarify to clarify the mechanisms involved in its occurrence into groundwater.

#### 2.Methods

#### 2.1.Study area

The Kurobe River Alluvial Fan (KRAF), located 60 km west of the FDNPP in Toyama Prefecture along the Sea of Japan, was chosen to monitor environmental radioactivity and investigate the mechanisms by which 137Cs from global nuclear fallout reaches groundwater. The KRAF was selected due to: (1) its abundance and multi-aquifer of groundwater resources; and (2) its short distance and steep terrain from the mountainous area (~3000 m altitude) to the coastal area. These characteristics facilitate a rapid response to environmental changes and global warming, making KRAF an ideal site for evaluating the dynamics of water transportation and the movement of dissolved solutes such as 137Cs.

#### 2.2. Field Sampling and Analysis:

Sample Collection: In February 2024, groundwater and surface water samples from 20 points across the KRAF aquifer were collected.

Field Measurements: In-situ parameters, including water temperature, pH, oxidation-

reduction potential (ORP), and electrical conductivity (EC) were measured at each sampling point.

#### 2.3. Laboratory Analysis:

Bicarbonate was measured in an unfiltered sample (within 6 h following the sampling) by titration with HCl. Major ions were measured by IC and ICP-OES. Water-stable isotopes ( $\delta$  2H-H2O and  $\delta$  18O-H2O) were analysed using a Picarro L2130-I analyser. 137Cs were measured on 20L of sample using KNiFC-PAN resin in a well-type HPGe detector as described by Hegedűs et al. (2020).

#### 2.4. Ongoing analysis

137Cs, 143Nd/ 144Nd, and 87Sr/ 86Sr analyses are ongoing to fully address the hydrogeological processes and clarify the mechanisms of 137Cs in groundwater.

#### 3. Preliminary results

As of now, six samples have been analysed, and none have detected 137Cs. The minimum detectable activity concentration (MDC) ranged from 0.15 to 0.62 mBq/L, depending on the counting time, which varied between 1 and 9 days. In comparison, the concentration of 137Cs in Japanese river water is approximately 1 mBq/L, which is higher than the levels found in our samples. This suggests that 137Cs have been removed from the water through interactions with mineral particles in the soil.

#### 4.Future work

The research will continue 137Cs in the remaining samples, as well as measurements of 143Nd/ 144Nd, and 87Sr/ 86Sr concentrations in surface and groundwater. The anticipated outcomes aim to clarify the hydrogeological processes and the mechanisms by which 137Cs interact with groundwater.

#### References

Bugai, D., Kireev, S., Hoque, M.A., Kubko, Y., Smith, J., 2022. Natural attenuation processes control groundwater contamination in the Chernobyl exclusion zone: evidence

#### 富山深海長谷における近年の堆積環境変化に関する研究

研究代表者:大塚 進平

受入研究者:田副 博文

共同研究者:張 勁・Michael Julian Haryanto・遠藤 真樹・三神 崇重

#### 1. 成果

令和6年度能登半島地震に伴って発生した複数の海底地すべりは津波の早期到達をもたらした ことが指摘されている(Masuda et al.,2024, Mulia et al.,2024)。また、地震後のカニ籠の消失 や深層水用の取水管切断も地すべりの影響と考えられており、非常に速い移動速度で堆積物が 浅海域から深海域へ運ばれたことが推測される。富山湾南部では、音波探査と水中ドローンに よる観察によって、複数の地すべりの痕跡が発見されているが(Minami et al.,2024)、水中ド ローンでの観察は浅海域に限定されており、北部の深海域における海底の変化は十分に明らか にされていない。そこで、地すべり発生に伴って、富山深海長谷に運搬された堆積物の起源と その過程を定量的に評価するため、地震前に調査済みの地点を対象に、採泥調査を実施した。 試料は、堆積構造を調べるために、X 線 CT スキャンと粒度分析が行われ、堆積物起源を明ら かにするために、元素組成、有機炭素、CN 含有量が測定された。さらに、表層堆積物の堆積 年代決定のため、210Pb, 137Cs の測定が実施された。最も厚いイベント堆積物( $\sim15$ cm)は 能登半島東部で採取され、急速な上方粗粒化とそれに続く緩やかな上方細粒化の粒度分布を示 し、混濁流の堆積を示唆していた。2022年の同地点の調査では確認されていないことから、今 回の地震後に発生したものである可能性が高い。210Pbex と 137Cs 濃度の鉛直分布からは、 タービダイト下部と最表層堆積物との間に、低濃度のギャップ層が確認され、これは斜面崩壊 による古い堆積物の再堆積に関連していると考えられた。 δ13C と TN/TOC に基いた混合モ デルにより計算された異なる有機物起源の寄与率は、タービダイト層内の高い陸起源有機物 (50%以上)の寄与を示しており、崩壊堆積物が、富山深海長谷を経由して、より沿岸側の海域 から運搬されたことが考えられた。加えて、タービダイトの下部の元素組成を解析した結果、 高濃度の Cr および Ni(最大値 195 ppm、134 ppm)が確認された。Cr, Ni は、姫川上流域か ら供給される超塩基性岩類であることが明らかになっており(Ohta et al., 2004)、これらの元 素の濃縮が見られる姫川沖合が地すべり起源である可能性が示唆された。以上の結果は、今回 の地震に伴う津波や漁業被害の実態解明に貢献する重要な知見となる。

# Development of effective countermeasures for radon exposure: dynamics assessment and parameter investigation of Asian dwelling factors and human lifestyle

研究代表者:Hasan Md Mahamudul

受入研究者:大森 康孝 共同研究者:飯本 武志

#### 1. 成果

As of the development of effective countermeasures for the radiological exposure of radon and thoron inhalation, this project focused on the environmental dynamics and systematic parameter investigation in Bangladeshi dwellings, as one of the case studies of the Asian environment. Based on the natural radiation-induced cancer risk and high radiation background area situations in Bangladesh, we performed systematic radon (Rn-222, Rn), thoron (Rn-220, Tn), and natural radiation (gamma radiation) research in 300 Bangladeshi dwellings. Through several environmental surveys from 2019, we aimed to ascertain the preliminary countrywide Rn and Tn exposures pertaining to the Bangladeshi population's internal and external dose calculations. RADUET, a solid-state type nuclear track detector, was used to assess annual Rn and Tn concentrations. In addition, we collected all of the previous long-term Bangladeshi Rn data published by previous peer-reviewed papers for combining with our measured data pertaining to formulating countrywide Rn mapping. Alternatively, Tn study is the first in Bangladesh to formulate the country's baseline research. In the case of background radiation, we employed glass badge-based RPL dosimeter along with RADUET. Apart from the external dose calculation, we applied gamma radiation estimation as one of the tools to understand additionally the Rn and Tn's potentialities for natural radiation exposures in Bangladesh. As of the results, we prepared a novel Rn mapping for Bangladesh1 identified the northern regions and mud-type dwellings with elevated levels of Rn exposures along with the potential environmental factors of lower ventilations and building materials. While combining with our measured Rn levels, Bangladesh's weighted average values 2 were obtained as 113 Bqm-3; which is higher than the WHO's reference levels. Continuously, mud/soil types dwellings that occupy larger Bangladeshi inhabitants; in our research, exhibited higher level of Rn exposures. As the first Tn study in Bangladesh, we estimated the range as 7-1686 Bqm-3 expressing the mud/soil dwellings with the highest potentials along with indoor distant-based spatial distributions of Tn gas in Bangladeshi dwellings. Using the ICRP recommended methodology, the highest Rn and Tn population-based annual effective internal dose is 2 mSvy-1 for Rn and 5 mSvy-1 respectively for Tn for Bangladeshi soil based indoors. Alternatively, the external dose

obtained from long-term gamma radiation estimation is around 1.5mSvy-1. While using our gamma radiation estimation/NORM source identification in understanding the potential source evaluation, we identified that Bangladesh has potential thorium problem and thus Tn sources in the natural environment of soil/sand which transmit through various rivers. Furthermore, building materials contained elevated level of Rn and Tn sources which formulated elevated gamma radiation. Finally, while conducting model room experiments with continuous Rn, Tn estimation, the Bangladeshi population's indoor human activities are obtained significant influential parameters affecting the spatial distributions for Rn, Tn and their dose calculation parameters.

#### 2. 論文

None

#### 比例計数管を用いたラドン濃度絶対測定の精度評価

研究代表者:古川 理央

受入研究者:大森 康孝

共同研究者:原野 英樹

#### 1. 成果

自然放射性ガスのラドン(Rn-222)とその子孫核種は一般公衆の放射線被ばくの大きな要因である。近年のラドン濃度の測定ニーズの高まりの一方、国内では一次標準を起点とした校正のトレーサビリティ体系が整備されておらず、国内で測定値の正しさを担保する事は困難である。国立研究開発法人 産業技術総合研究所(以下、産総研)では、一次標準器としてラドン濃度の絶対測定が可能な多電極比例計数管(Multi-Electrode Proportional Counter: MEPC)を開発し、ラドンの校正システムの確立を目指している。本研究では、開発した MEPC の絶対測定の精度評価を弘前大学被ばく医療総合研究所(以下、IREM)が所有するラドンばく露場で行った。産総研で他の希ガスでの標準供給実績がある通気式電離箱(I-409601、大倉電気株式会社)は、構造が単純な事から安定的に測定が可能である事が期待できる。本年度は上記の通気式電離箱を用い、MEPC で通気式電離箱を校正した場合の校正定数と、モンテカルロシミュレーション PHITS(Sato et al., 2018)及び IREM での測定結果から計算した校正定数とを比較した。MEPC のラドンの計数効率は、先行研究(Furukawa et al., 2023)により、計数管内部で子孫核種が壁面に付着していると仮定した場合 1.9[s^-1 Bq^-1] と求められており、本研究でも計数効率は 1.9[s^-1 Bq^-1]を採用した。

モンテカルロシミュレーション PHITS(Sato et al., 2018)及び IREM での測定結果から、通気式電離箱の校正定数が  $1.24 \times 1016$ [Bq m^-3 A^-1]と求められた。一方 MEPC で校正した場合の校正定数は平均でおよそ  $7 \times 1015$ [Bq m^-3 A^-1]程度と半分ほどであった。さらに、MEPC で校正した値はばらつきが大きく、MEPC で安定な測定結果を得るために測定条件を改善する必要がある事が示唆された。今後は測定条件を改善するとともに、MEPC の最適な測定レンジを明らかにし、計数効率を見なおす必要がある可能性を視野に入れ、さらなるデータの蓄積を目指す。

#### Reference

Sato, T., Iwamoto, Y., Hashimoto, S., Ogawa, T., Furuta, T., Abe, S., Kai, T., Tsai, P.-E., Matsuda, N., Iwase, H., Shigyo, N., Sihver, L., Niita, K. 2018. Features of Particle and Heavy Ion transport code system (PHITS) version 3.02. J. Nucl. Sci. Technol. 55, 684–690.

Furukawa, R., Janik, M., Kodaira, S., Manabe, S., Matsumoto, T., Shimodan, C., Sato, Y., Harano, H. 2023. Standardization of Rn-222 concentration using the multi-electrode proportional counter. Appl. Radiat. Isot. DOI: 10.1016/j.apradiso. 111076

#### 河川水の物理化学状態が駆動する懸濁土砂粒子の凝集に関する数値実験

研究代表者:西野 圭佑

受入研究者:中西 貴宏・舟木 泰智

共同研究者:吉川 裕

#### 1. 成果

福島第一原子力発電所事故によって陸域へ放出された放射性セシウムは、河川水中の懸濁粒子に吸着し、粒子態として下流へ運ばれた後、河口域での塩分上昇によって一部が溶存態へと移行し外洋へと拡散されていくとされている(Kakehi et al., 2016). 一方で河口域の乱流混合は粒子の衝突確率を高め、その一部を凝集させる(Ayala et al., 2008)ため、一部の粒子態セシウムは堆積泥にとどまることも知られている(Kubo et al., 2018). この堆積泥からのセシウムの溶出は出水時に限られない継続的なセシウムの供給源となりうる(Otosaka et al., 2020). 本課題は理想化された数値実験を通じて、河口域での混合現象が土砂堆積量にどのように影響するか明らかにすることを最終目標としている. 過年度の採択課題により、懸濁粒子の凝集過程は粒子分布の変質(粒径・粒子数)を通じて粒子による水平的な物質輸送能力を減少させることが分かった. この変化には粒子の凝集確率やフラクタル次元などいくつかのパラメータが影響を及ぼす. 特に沿岸域に特徴的な塩分の空間変化は懸濁粒子の凝集確率を変化させることが先行研究(主に室内水槽実験)により報告されているが、その定量的な議論はあまり進んでいない.

そこで本年度は、前年度までに整備した粒子モデルを用いて先行水槽実験の追試験を行うことで、凝集確率パラメータの塩分依存性の定量評価を試みた。数値実験には電力中央研究所の保有する計算機を用い、室内実験に関する議論を JAEA と行った。室内実験と比較するための数値モデルには Lagrangian cloud モデル(Riechelmann et al., 2012; Nishino and Yoshikawa, 2024)を採用した。比較対象として選定した水槽実験は Ou et al. (2016) および Edzwald et al. (1974)である。これらはともに工業用 kaolinite(懸濁土砂の主な構成物質)試料を用いた水槽実験であり、前者は静水中の沈降に伴う凝集現象を、後者は一定シアで攪拌された水槽内での凝集現象を対象にしたものであり、ともに実験設定が単純である点で検証が容易と判断した。前者は等価な設定の数値実験を行い、結果を比較することである塩分に対応する凝集確率を推定した。後者は主に凝集理論をもちいた解析的な考察に基づき、先行研究により報告された結果を凝集確率へと射影した。2つの比較の結果を結合することにより、ごく低塩分(0 ppt)から高塩分(~18 ppt)にかけての塩分~凝集確率の対応関係を得た。推定された関係は先行研究による定性的な報告と一致する特徴を示した。

今年度の成果として得られた塩分 – 凝集確率関係は、Lagrangian cloud モデルに限らず、ほかの粒子モデルを用いる場合にも凝集表現の基礎となるものである。したがって、今年度の成果として得られた関係を既存の粒子モデルに組み込んで用いることで、沿岸域での

塩分上昇にともなう凝集現象をより高精度に再現できるようになると考えている. この検証は次年度以降の課題である.

#### 2. 論文

Nishino, K. and Yoshikawa, Y. "Numerical simulations on effects of turbulence on the size spectrum of sinking particles in ocean surface boundary layer" Frontiers in Earth Sciences, vol. 12, 2024. DOI: 10.3389/feart.2024.1427564

#### 宇宙暗黒物質探索に向けた環境トリチウムバックグラウンドの測定

研究代表者:小林 雅俊

受入研究者: 柿内 秀樹

共同研究者:山下 雅樹

#### 1. 成果

本研究で我々が取り組むのは、宇宙暗黒物質の探索における環境トリチウムの影響評価、 およびその測定法の開発である。

暗黒物質とは宇宙に存在する未知の質量で、天文学的な観測から水素・ヘリウムなど通常の物質の 5 倍以上の存在が示唆されるものの、未だその正体は明らかになっていない。その暗黒物質の正体を明らかにするために我々が取り組んでいるのが直接探索という手法で、8.6 トンの液化したキセノンガスを用いた検出器をイタリア・グランサッソ研究所に設置し、暗黒物質と通常の物質が衝突する現象の観測を目指している。暗黒物質とキセノン原子の衝突は極稀であることから、直接探索によって暗黒物質を観測するためには背景事象源となる放射性物質の影響を排除することが不可欠となる。

トリチウムは水素や水蒸気などの形で液体キセノンに溶け込んでしまうため、主要な背景事象源の一つとなっている。しかしながらキセノン中の存在量が非常に少ない(10^-25 mol/mol かそれ以下)ことから、トリチウム原子の数を直接的に測定することは困難となっている。そのため、本研究では 1. 環境中のトリチウム/水素比の測定、2.キセノン中の水素/キセノン比の測定という 2 段階を踏むことで間接的に検出器のキセノン中に含まれるトリチウムの測定を目指してきた。

本年度は、主としてキセノン中に含まれる微量水素の測定法の開発に取り組んだ。混合ガスから水素のみを選択的に透過させることのできるパラジウム製の薄膜を用いることで希ガス中の水素ガスを取り出し、残留ガス分析装置によって解析を行った。最終的な目標は10ppt(10^-11)程度のオーダーでの測定であるが、まず原理実証としてアルゴンガスと水素が混合されたキャリブレーションガスを用いた測定を行い、10ppb(10^-8)の混合水素ガスで感度を確認することに成功した。またさらなる低濃度での測定に向け、装置の安定化の主な要因として分析装置の電気的ノイズや装置全体の温度安定性が主な要因となることを突き止めた。今後は本研究の成果を生かしてさらに低い濃度での測定、また最終的には検出器におけるトリチウム量に対して制限をかけていくことを目指す。その際には、昨年度までにの研究による成果であるイタリアの実験サイトおける環境中のトリチウム/水素濃度比の数値を用いる。

またもう一つの取り組みが、環境中にメタンの形で存在するトリチウムの測定である。昨年度までに行った環境中のトリチウム測定では水素分子や水分子の形で存在するトリチウムの測定を行った。これらに加えてメタンに関しての測定を行うため、可燃性のメタンガスボトルを使わない測定法について準備を実施した。

#### 2. 論文

E.Aprile, M.Kobayashi et el (XENON collaboration), First Search for Light Dark Matter in the Neutrino Fog with XENONnT, Phys. Rev. Lett. 134, 111802 (2025)

E.Aprile, M.Kobayashi et el (XENON collaboration), First Indication of Solar B-8 Neutrinos via Coherent Elastic Neutrino-Nucleus Scattering with XENONnT, Phys. Rev. Lett. 133, 191002 (2024)

E.Aprile, M.Kobayashi et el (XENON collaboration), The XENONnT dark matter experiment, Eur. Phys. J. C 84, 784 (2024)