

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26740012

研究課題名(和文)人為的活動起源トリウムの雲粒核形成メカニズムの解明

研究課題名(英文)Effect of anthropogenic thorium on formation of cloud nuclei

研究代表者

大久保 綾子 (Okubo, Ayako)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核不拡散・核セキュリティ総合支援センター・研究職

研究者番号：70415412

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：降水試料中の微量金属元素濃度およびトリウム同位体を測定し、人為的活動起源のトリウムの雲粒核形成に関する影響を調べた。降水試料のトリウム同位体比($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$)は、平均的な地殻中の値にくらべて5-6桁高く、工業過程によるウランとトリウムの分別の影響が考えられた。また、トリウム同位体比が、溶存態と粒子態で大きく異なったことは、降水試料中のトリウムが複数の起源を持ち、降水中での溶け易さに違いがあったことを示している。

研究成果の概要(英文)：To elucidate the effect of anthropogenic thorium on formation of cloud nuclei, the concentration of trace metals and thorium isotopes in rainfall sample were measured. Thorium isotope ratios ($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$) were 5-6 order of magnitude higher than the average thorium isotopes ratio in crust, fractionation of uranium and thorium in industrial process was supposed. Thorium isotope ratios were clearly different between dissolved form and particulate form, indicating thorium in rainfall sample has several origins and which have different property of dissolution in the sample.

研究分野：地球化学

キーワード：雲粒核 トリウム同位体 人為的影響 降水試料

1. 研究開始当初の背景

雲は太陽光を反射・散乱するため、地球の熱収支をコントロールする。一方で、雲の形成とそれに続く降水現象には、凝結核（雲粒核）として働くエアロゾルの存在が必要である。さらに、エアロゾルへの水蒸気の凝結が雲の生成に留まらず、降水をもたらすまで発達するのは、雲粒核として働くエアロゾルの化学組成に影響される。この点に注目して、近年エアロゾルの化学成分や吸湿特性に関する研究が行われるようになった。

研究代表者らは近年、降水中のトリウムを含む微量金属元素の観測結果から、トリウムが雲粒核の形成に関与している可能性を指摘した (okubo et al., 2013)。具体的には、太平洋沿岸の3観測地点（北海道、岩手、沖縄）で春季に採取した降水試料の微量金属元素フラックスの内、トリウムについては、降水フラックスとの間に高い相関が見られた（各観測点の相関係数；北海道：0.92、岩手：0.98、沖縄：0.99）。また、因子解析の結果、トリウムについては、アルミニウムや鉄などの土壌粒子とは異なる起源の存在が示された。これらの結果は、人為的活動起源のトリウムを含むエアロゾルが雲粒核として働き、水蒸気を凝結させて降水にまで発展したことを示唆している。つまり、人為的活動起源のトリウムを含むエアロゾルは、レインアウト（雲粒核として除去）によって大気中から除去されていると考えられる。前述の先行研究で行った降水試料の因子解析では、トリウムについて土壌粒子以外の起源（＝人為的活動起源）の存在が示されたものの、起源の特定には至っていない。

現在のところ、工業的には、トリウムは利用価値が無い不要な放射性元素として扱われている。特に、高機能材料の用途で需要が高いレアアース鉱物とトリウム鉱物が共存する機会が多いため、レアアース鉱物の精製過程で発生する大量のトリウム（放射性廃棄物）の処分方法が大きな問題となっている。レアアース鉱物の最大の産出国である中国の採掘現場では、露頭に酸溶液を流すことでレアアースを溶かし出す方法もとられており、採掘の過程でトリウムが環境中へ放出される可能性は十分に考えられる。また、現場における酸溶解法を用いた方法は、カザフスタンのウラン鉱採取場でも用いられている。

一方で、工業過程に伴い、鉱物中のトリウムとウランが分別された場合、トリウム・フラクション中とウラン・フラクション中のトリウム同位体比（ $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ）は、時間の経過とともに、その差異が大きくなっていくことが考えられる。つまり、ウラン・フラクション中では、時間の経過に伴い、親核種の ^{234}U から子孫核種の ^{230}Th が生成され増加していくが、トリウム壊変系

列の起点である ^{232}Th は新たに生成されないため、トリウム同位体比（ $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ）は、鉱物中の値より大きくなっていく。一方、ウランが除かれたトリウム・フラクション中では、親核種 ^{234}U の壊変による ^{230}Th の新たな供給が断たれるため、トリウム同位体比（ $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ）は、鉱物中の値よりも小さくなっていく。このように、二つのトリウム同位体（ ^{230}Th ・ ^{232}Th ）は異なる壊変系列に属し、工業過程において、トリウムとウランが分別された場合、各フラクション中のトリウム同位体比が大きく異なっていく点、他の同位体には無い特徴である。

2. 研究の目的

雲の形成と、それに続く降水現象は、地球の熱収支および水循環をコントロールする主要な過程である。研究代表者らは最近、降水中の微量金属元素の観測結果から、人為的活動起源のトリウムが、雲粒核の形成に関与している可能性を見出した。そこで本研究では、降水試料とエアロゾル試料中の微量金属元素濃度およびトリウム同位体を調べることで、人為的活動起源のトリウムの雲粒核形成に関する季節性の把握とメカニズムの解明を目指す。

3. 研究の方法

降水試料を採取し、溶存態・粒子態フラクションの以下の項目について分析・解析を行った。また、分析方法についても検討実験を実施した。

- (1) トリウム濃度とトリウム同位体比
- (2) 土壌粒子の主要元素濃度（アルミニウム・鉄・チタン・マンガン）
- (3) 人為的活動起源の元素濃度（鉛・カドミウム・バナジウム）
- (4) 後方流跡線解析による空気塊の起源推定

降水サンプラー（ポリエチレン製ロートとテフロンチューブで構成し、塩ビ製の保護筒内に設置）を作成し、日本原子力研究開発機構（茨城県の太平洋沿岸から約1キロメートル内陸に位置する）の研究棟（4階）屋上で降水試料のサンプリングを行った。採取した降水試料は直ちに濾過し、溶存態フラクション試料と粒子態フラクション試料に分離して保存した。降水試料のサンプリングでは、観測点付近の大気中に含まれるエアロゾルが降水に取り込まれて除去される“ウォッシュアウト”による影響が少ない降水試料を得るために、雨が降り始めてから数時間経過した後にサンプリングを開始した。一方で、経時変化を調べるために、降り始めからの時間ごとの降水試料の採取も行った。エアロゾル試料はハイボリュームエアサンプラーを用いて採取した。観測は、原子力研究開発機構の研究棟の屋上でを行い、観測期間について、後方流跡線解析による空気塊の起源推定を行った。

4. 研究成果

(1) 分析方法

粒子態試料の分解：粒子態試料は、濾過に用いたポリカーボネートフィルターと共に酸分解を行った。分解方法について、(1) アンモニアを用いてフィルターを断片化した後に硝酸+フッ化水素酸で分解する方法と(2) 硝酸+フッ化水素酸のみで分解する方法を比較した。(1)については、試料を入れたテフロンジャーをホットプレート上で加温するだけで分解が行えたが、揮発性が低く除去されづらい、アンモニアと硝酸の反応物が生成された。(2)については、ホットプレート上での加熱酸分解のみでは、フィルターを十分に分解することは出来なかったが、ステンレス製の分解ジャーを用いたところ、フィルター・粒子試料共に分解することができた。

微量金属元素の濃縮：溶存態フラクション中に低濃度で存在する微量金属元素をICP-MSで測定するために、キレート樹脂カラムによる濃縮方法の検討実験を行った。

トリウム同位体測定のための分離精製：溶存態フラクションのトリウム同位体の濃度は低濃度であることが予想されたため、キレート樹脂およびイオン交換樹脂を用いた分離精製方法を比較した。キレート樹脂を用いた方法では、回収率が50%と低かったが、イオン交換樹脂を用いた方法は90%以上の回収率で安定していた。8M硝酸カラムに吸着する元素は主にトリウムとウランであるが(他にネプツニウム・プルトニウムも吸着するが、存在度が小さい)、ウランは、通常の5倍にあたる多量の8M硝酸をカラムに通すことで除去できた。20CVの8M硝酸を通液させた後のウランの除去率は 10^{-6} であった。

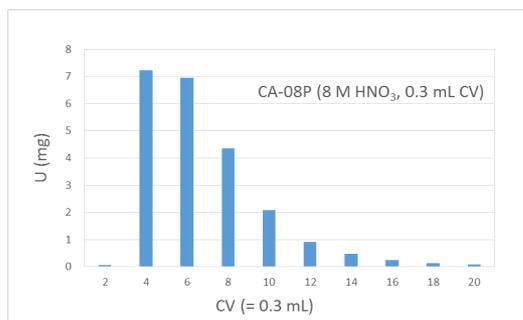


図1 8M硝酸カラムを用いたウランの分離

(2) 解析結果

人為的活動起源トリウムの雲粒核形成に関する季節性と、そのメカニズムを調べるために、降水試料およびエアロゾル試料を採取し、降水試料中の微量金属元素濃度およびトリウム同位体比を分析した。春季および夏季に採取した降水試料の微量金属元素フラックスの内、トリウムについては、降水フラックスとの間に高い相関が

見られた。春季の降雨について、1時間おきに降水試料を採取してトリウム濃度を測定したところ、トリウム濃度の変動は25%の範囲内であった。降雨をもたらす雲の下に存在するエアロゾルが、雨水の降下に伴って除去されるウォッシュアウトによって除去される場合、エアロゾルに含まれていた元素の降水中の濃度は、時間の経過に伴って減少する。観測結果は、トリウム濃度の時間変動が小さく、レインアウトによってトリウムが除去されていることを示した。

因子解析の結果、トリウムについては、アルミニウムや鉄などの土壌粒子とは異なる起源の存在が示された。また、降水試料中の全トリウム濃度に対する溶存態トリウムの割合が比較的高い(20~50%)という観測結果から、溶存態フラクション中のトリウムの起源は、土壌からの溶解よりも工業過程等を経てより溶解しやすい形態であったことが考えられた。これらの結果は、人為的活動起源のトリウムを含むエアロゾルが雲粒核として働き、水蒸気を凝結させて降水にまで発展したことを示唆している。後方流跡線解析による空気塊の起源推定の結果、降雨をもたらした空気塊は、東アジアの広域を通過して日本の東岸へ到達していた。

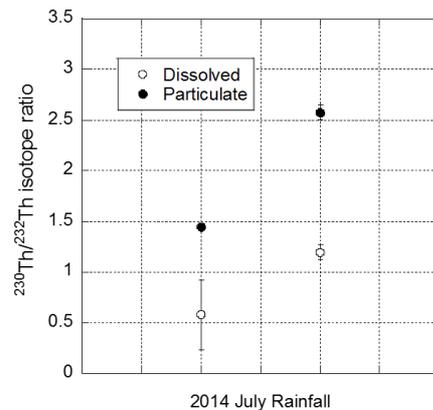


図2 溶存態フラクションおよび粒子態フラクション中の $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 同位体比の結果。平均的な地殻中の値(3.24×10^{-6})に比べて5-6桁大きい。

降水試料中のトリウム同位体比($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$)は、平均的な地殻中の値(3.24×10^{-6} , $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比 = 0.61) (Wedepohl, 1995)に比べて5-6桁大きかった。自然界においてトリウム同位体比($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$)が大きく増加する要因の一つとしては、サンゴなどの生物へのウランの取り込みの結果、ウランとトリウムが分別される場合が考えられる。一方で、人為的な要因としては、鉍物資源の精製過程における分別が知られている。どの程度の厳密さで精製が行われるかによって、分別の度合いも異なってくる。降水試料のトリウム

同位体比 ($^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$) が、溶存態と粒子態で大きく異なっことは、降水試料中のトリウムが複数の起源を持ち、降水中での溶解易さに違いがあったことを示している。また、参考値ではあるが、ウラン同位体比 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) が、溶存態 (0.3) と粒子態 (1.0) の間で異なっていたことも、複数の起源の存在を示唆している。

これまで注目されてこなかった、降水試料中のトリウム同位体比を測定することで、降水中のトリウムは、人為的な活動を含む複数の起源を持つことが示された。二つのトリウム同位体 ($^{230}\text{Th} \cdot ^{232}\text{Th}$) は異なる壊変系列に属し、工業過程において、トリウムとウランが分別された場合、各フラクション中のトリウム同位体比が大きく異なっていく点が、他の同位体には無い特徴である。今後は、ウラン同位体比の変動についても併せて調べることで、より詳細な起源推定が可能になると期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大久保 綾子 (OKUBO, Ayako)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機

構・核不拡散・核セキュリティ総合支援

センター・研究職

研究者番号：70415412