

動燃における安全研究の成果
(昭和61年度～平成2年度)
(環境放射能分野)

技 術 資 料		
開示区分	レポート No.	受 領 日
T	N1410 92-035	1995.9.28

この資料は技術管理室保存資料です
閲覧には技術資料閲覧票が必要です
動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室

1992年4月

動力炉・核燃料開発事業団

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)1995

動燃事業団における安全研究の成果
(昭和61年度～平成2年度)
(環境放射能分野)

安全研究委員会

要 旨

環境放射能分野の安全研究は、(1) 環境線量に関する研究、(2) 環境から人への放射性物質の移行に関する研究、(3) 線量算定モデル及び国民の被ばくの算定に関する研究、(4) 安全評価研究の4分野で構成されている。

本報告書は、平成2年度までの環境放射能分野にかかわる安全研究の5年間の成果について、「動燃における安全研究の成果(昭和61年度～平成2年度)(環境放射能分野)」として、とりまとめを行ったものである。

目 次

はじめに	1
環境放射能分野の安全研究成果の概要	2
① 生活環境におけるラドン、トロンとその娘核種の静的動的分布に関する研究	4
② 環境中ヨウ素-129の分布に関する研究	11
③ 環境中におけるヨウ素の移行に関する研究	15
④ 大気放出放射性物質の沈着・再浮遊に関する研究	18
⑤ 環境中プルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動に関する研究	22
⑥ 環境試料中ネプツニウム-237の測定法に関する研究	31
⑦ 海洋における放射性物質の移行に関する研究	36
-海洋における放射性物質移行モデルの検討-	
⑧ 放射性物質の海洋放出に伴う被ばく線量評価法に関する研究	43
⑨ 環境中におけるトリチウムの分布と挙動に関する研究	50
⑩ 再処理施設平常運転時被ばく線量評価手法に関する研究	58
⑪ 線量評価に必要なパラメータの改善に関する研究	61
⑫ 放射性物質移行に係るダイナミックモデルの開発	67
⑬ 環境試料中テクネチウム-99 の測定法に関する研究	75
⑭ 環境試料中炭素-14 の測定法に関する研究	83
⑮ 環境モニタリングシステムに関する研究開発	91
-環境モニタリングの最適化に関する研究-	
⑯ 廃棄物処分に起因する環境放射線影響解析手法の開発	98

はじめに

動燃事業团における安全研究は、昭和61年3月25日に定めた「安全研究の基本方針」に基づき、プロジェクトの開発と密接なかかわりを持ちつつ推進されてきており、現在も引き続き「安全研究基本計画（平成3年度～平成7年度）」（平成3年3月策定）に基づき実施されている。一方、これら事業团の安全研究は、原子力安全委员会の定める「安全研究年次計画」にも登録されている。

本報告書は、「安全研究の基本方針」に定めた研究の昭和61年度～平成2年度までの5年間の成果について、集約・とりまとめを行ったものである。

環境放射能分野の安全研究は、

- (1) 環境線量に関する研究
- (2) 環境から人への放射性物質の移行に関する研究
- (3) 線量算定モデル及び国民の被ばく線量の算定に関する研究
- (4) 安全評価研究

の4分野で構成されている。本報告書は、「動燃における安全研究の成果（昭和61年度～平成2年度）（環境放射能分野）」とし、研究成果の概要と個別研究課題ごとの詳細報告とで構成した。

環境放射能分野の安全研究成果の概要

(1) 環境線量に関する研究

生活環境における天然放射性核種であるラドン・トロンの研究として、環境中のラドン濃度測定について、時間変化、広域分布に関する知見が得られた。またラドン標準校正チェンバーを試作し、特性試験を開始した。

環境放射線（能）測定技術の研究開発として、環境試料中テクネチウム (^{99}Tc) の測定方法の開発及び、環境試料中炭素 (^{14}C) 測定法の実施した。その結果、環境試料中 ^{99}Tc の調査については、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) の導入により従来の放射能測定法と比べ10倍以上高い検出感度が得られた。また、環境試料中 ^{14}C 測定法の実施については、ベンゼン合成法を実用化し環境中における ^{14}C の水準調査を実施した。

環境中における種々の放射性核種の分布と挙動に関する研究として、ヨウ素 (^{129}I) の再処理施設周辺の土壌等環境試料の濃度水準及び分布状況、環境中プルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動、ネプツニウム (^{237}Np) の分布と挙動に関して調査研究した。ヨウ素 (^{129}I) の土壌等環境試料中の濃度水準及び分布状況の調査では、大気から葉菜等農作物への ^{129}I 等の移行に関するパラメータの試算評価も実施した。環境中プルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動の評価研究としては、各種の環境試料中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am 濃度について水準調査を実施するとともに、これまでに得られたデータの統計解析を行った。

海洋関係については、海水から海産物への濃縮係数を算出し、再処理施設操業前モニタリングと同等の結果であることを確認した。さらに軟ベータ核種であり、従来測定が困難であった環境試料中の ^{241}Pu の測定方法を液体シンチレーション・スペクトル法の応用により確立し、水準調査を実施した。 ^{237}Np の分布と挙動に関しては、少量の試料を効率的に利用するため、 ^{99}Tc 及び $^{239,240}\text{Pu}$ との系統分析法を開発し、また ICP-MS の導入により検出感度を向上させたことにより、環境試料中の ^{237}Np の定量が可能となり、重要な環境評価パラメータとなる濃縮係数や移行係数を求めることが可能となった。

(2) 環境から人への放射性物質の移行に関する研究

放射性物質の大気拡散及び沈着に関する研究として、粒径別エアロゾル中の ^{129}I 、 ^{127}I の分布状況の調査及び開発した放射性降下物採取装置により乾性及び湿性状態で降下する ^{129}I を弁別捕集し沈着速度を求めた。環境中におけるトリチウムの移行に関する研究として、大気中のトリチウムを化学形態別(HIO,HT)に捕集し、それぞれの水準調査を実施し季節変動等についての知見を得た。

海洋における放射性物質の移行に関する研究として、フォールアウト核種により海水から海産物への濃縮係数及び海岸砂の汚染係数を求め、再処理工場の安全評価に反映した。

(3) 線量算定モデル及び国民の被ばく線量の算定に関する研究

再処理施設平常運転時被ばく線量計算手法の開発として、線量評価上必要な各種パラメータの整備を継続して行うとともに、大気及び海洋評価用として開発、整備した各種計算コード(KR85G,ORIONII,CORAL)の有効性について確認した。

線量評価に必要なパラメータの改善に関する研究として、これまで調査してきた沈着速度、農作物への移行率、海産生物への濃縮係数等の整理・取りまとめを行った結果、フィールドデータを基にした現実的なパラメータが得られた。

放射性物質移行に関するダイナミックモデルの開発として、放射性物質移行に関する動的評価モデルについて、主として評価結果に及ぼす因子の調査等を実施した。

環境モニタリングシステムに関する研究開発として、環境モニタリングにおける最適化を考える上で考慮すべき地域の社会的条件、自然環境条件等について、より現実的なパラメータを整備し、従来実施してきた再処理施設周辺環境モニタリング計画を見直した。

(4) 安全評価研究

廃棄物処分に起因する環境放射線影響解析手法の開発として、これまでに開発を進めてきた地層処分安全評価体系のうち、わが国の深部の地下水の地球化学特性の分類とモデル化、モデル化された地下水と人工バリア材との相互作用のモデル化及びそのモデルで決定された人工バリア内地下水の地球化学特性に基づく核種溶解度の算出のような、地球化学に関連する研究を進めた。

生活環境におけるラドン、トロンとその娘核種の静的動的分布に関する研究

人形・安全管理課 伊藤 公雄
古田 定昭

I. 研究の概要

1. 研究目的

生活環境におけるラドン、トロンとその娘核種の特性と挙動を把握するため、低レベルラドン濃度測定法を実用化し、分布状態、挙動に関する知見を得る。

2. 研究内容

昭和61年度から大気中ラドン濃度測定を対象に、静電捕集によるTLD型モニタとCNフィルム型モニタを採用し、環境中で測定を実施してきた。平成元年度から本格的に測定を実施したが、CNフィルムの仕様変更にもなう感度の低下により、測定結果の信頼性に問題が生じたが、平成2年度では両モニタとも良好な測定が実施できた。同時に、短期間のラドン及び娘核種の連続測定を実施し、日変動等を観測した。

また、これらの測定を行うラドン測定モニタの校正手法の確立を目的として、ラドン標準校正チェンバーを試作し、特性試験を開始した。

II. 研究成果

1. 測定

(1) 測定装置

大気中ラドン濃度測定法として、実用化に適した測定方法の調査を行い、長期間の詳細モニタリングを目的として静電型のラドンモニタを採用した。これは、積分型の測定器で測定に動力を必要としないパッシブ型の測定器に分類される。容器の内部に自然換気により侵入したラドンが、崩壊後(Po-218)プラスに帯電していることを利用して電極に捕集することにより検出感度を大幅に改良している。本研究では最終的に放射線の検出素子としてTLDとCN(硝酸セルロース)フィルムを用いた測定器を採用した。図-1にそれぞれの測定器の外観を示す。また、短期的な変動を調査することを目的として連続測定器も製作した。

(a) TLD型ラドンモニタ

TLD型ラドンモニタは内容積が約7ℓのステンレスの容器を用いており、上部のBNCコネクタを介し約-1000Vの電圧を外部電池ボックスから印加している。検出素子の構成は図-2に示すように局部被ばく管理用の指リングで使用されているディスク状のTLD素子(CaSO₄(Tm):商品名UD-100M8)を使用し、アルミニウム捕集電極上の娘核種からのα線、β線を測定するものである。この時γ線と一部のβ線の寄与を差し引くための素子を2枚目に重ね、さらに測定精度を上げるためこの素子を背中合わせにして2組使用している。素子の感度はCo-60 γ線照射により1個毎の素子について補正している。

(b) CN型ラドンモニタ

CN型ラドンモニタは、約-300Vの電圧を捕集電極に印加し、検出素子としては硝酸セル

ローズ（CN）フィルムを用いている。検出部の構造は、図-2に示すように捕集電極表面上に集められたPo-218からの α 線だけを検出するように感度を調節してある。フィルムは測定終了後、NaOH溶液でエッチングし、ピットの数を集計することによりラドン濃度を算出した。

(c) 連続測定器

静電捕集の原理と検出器にZnSシンチレータを用いて連続モニタを製作し、事業所周辺で連続測定を開始した。

(2) 測定条件

(a) 測定場所

測定場所として人形峠事業所を中心とした居住地区とし、対照地区として日本海から瀬戸内海までの広範囲な地点を選定した。測定場所は、地区を代表する公民館や神社等の庭で1.2~1.5mの高さに、測定器収納箱を設置し、TLD型モニタにより測定を実施した。また、同時にCN型モニタによる測定も平成2年度から本格的に実施した。

(b) 測定期間

TLD型モニタによる3ヶ月毎の測定を平成元年度第1四半期から開始した。CN型モニタについては元年度第2四半期から開始したがCNフィルムの仕様変更により測定感度が大幅に変化したためデータとして採用できたのは平成2年度からであった。

(3) 標準校正

アジア・オーストラリア地域のOECD/NEAによる国際校正基準機関はオーストラリア放射線研究所（ARL）である。昭和62年にOECD/NEA非加盟国を含めた太平洋地区国際比較校正が行われた。これは参加機関がラドン封入容器をARLに送付し、ARLで封入し、返送されたラドンを各参加機関が測定するものである。これに対して事業所で基準測定器として使用しているガス封入型電離箱検出器を用いて参加し、表-1に示すように、基準値と良く一致する結果を得た。また、国内においても同様な比較校正を行った。これらの標準校正によりGrabサンプリングによるラドン濃度の校正が確認できたが、他のモニタを校正するためには安定したラドンを供給する校正場が必要である。

2. 測定結果

(1) モニタによる差

平成2年度におけるTLD型モニタとCN型モニタを用いた測定結果の相関関係を図-3に示す。これよりTLD型モニタはCN型の2倍程度大きな値を示していることがわかる。両モニタともラドンガスを用いた校正ではよく一致しているが、野外環境では図に示すように明確な差がみられた。このようにモニタによる差が測定に大きな影響を与えるため、ラドン校正用のチェンバーを試作し、校正手法の開発を主目的とした平成3年度以降の研究への課題とした。その中で、環境中にはトリウム系列のトロン存在するため、換気率によるトロンの寄与による影響等についても調査を進める予定である。なお、ラドン濃度は、後述するラドン標準校正チェンバーを用いて今後値付けするため、現時点では相対値として示した。

また、それぞれ複数のモニタを使用して同時測定を行い、感度のばらつきを調査した。それぞれのモニタの平均値を1と規格化した時のばらつきを図-4に示す。これより標準偏差はTLD型では0.164、CN型では0.075となり、TLD型ではCN型の約2倍のばらつきが生じて

いる。これは、一般にCaSO₄素子自体は感度が良いことが知られているが、本研究で用いているディスク状のタイプは指リング用であるため感度はあまり良くない。また、計算過程で2枚の素子の差を求めていることも誤差が大きくなった原因と思われる。

(2) 野外環境測定結果

野外環境における測定は鳥取県から岡山県にかけて神社や公民館等の居住地区で実施した。平成元年度から2年度までに得られたラドン濃度の変化を相対濃度として図-5に示す。平成2年度第4四半期において極端に高い値が観測されているのは、積雪によるものである。これは、事業所周辺の平成3年の1月から3月にかけての積雪量が最大1.5m程度となり、積雪によりモニタ収納箱が埋没し、雪が地表を覆うカバーとなりラドンが集められ、高濃度が観測されたものと考えられる。なお、この値は集計結果からは除外した。また、第3四半期にやや濃度が高い傾向が見られる。一般に季節変動として太平洋側では冬に濃度が高く²⁾、逆に日本海側では夏に高い³⁾という報告があるが、人形峠周辺がどのパターンに入るかの検討は、今後のデータの蓄積が必要である。

また、連続測定器を用いてラドン濃度の日変化を調査した。その結果の代表例を図-6に示す。これは1ヶ月分の連続測定結果を24時間毎にプロットしたものであるが、昼間低く、夜間から明け方にかけて高いという一般的な傾向が観測されている。

(3) 広域分布

広域分布に関して、2年間分のラドン濃度平均値として代表的な値を図-7に示した。ラドン濃度は内陸部で高くなる傾向が確認された。同様な結果は報告されているが¹⁾、今後は地質や測定場所の代表性、気象条件等について調査が必要である。

3. ラドン標準校正チェンバーの試作

2種類のモニタで差がみられたように、ラドン測定では種々の自然環境条件に対するモニタの影響を調査することが必要である。そのため、長期間安定したラドン濃度を保ち、かつ、自然界のように濃度変化、気温湿度変化に対するラドンモニタの標準校正を目的として、校正用のチェンバーの基本部分を試作した。その外観を図-8に、仕様概要を以下に示す。平成3年度から本設備を用いた校正手法の開発を計画している。

内容量：約8 m³

材 質：ステンレス

形 状：円筒形

設定濃度：～300 Bq/m³

4. まとめ

環境中ラドン濃度の測定法の実用化を行うことができたが、モニタによる差がみられるように、校正手法の確立が今後の課題である。そのため、平成3年度以降は「環境中ラドン濃度の測定及び測定評価手法の確立に関する研究」としてラドン標準校正チェンバーを使用した校正手法の確立を実施する。

また、分布調査については内陸部においてラドン濃度が高い傾向にあることが確認された。今後は地質の影響、気象条件の影響等についても詳細調査を進める必要がある。

謝 辞

早稲田大学理工学部黒沢教授、並びに、名古屋大学工学部池辺教授をはじめ、同研究室の下、飯田先生には、本研究の遂行に当たり御指導頂き、ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1)ラドン・トロン測定研究専門委員会、ラドンとラドン娘核種測定の共同比較、保健物理, 25, 373-384 1990
- 2)小林定喜、完倉孝子編、生活環境におけるラドン濃度とそのリスク、放医研環境セミナーシリーズ No. 15, 1989
- 3)岡部茂、大気中ラドン族と環境放射能、日本原子力学会ラドン族調査研究委員会、1985

表-1 国際校正の結果

単位: Bq/m ³		
実施時期	ARL基準値	動燃測定値
1987年 9月	4430±30	4300±430

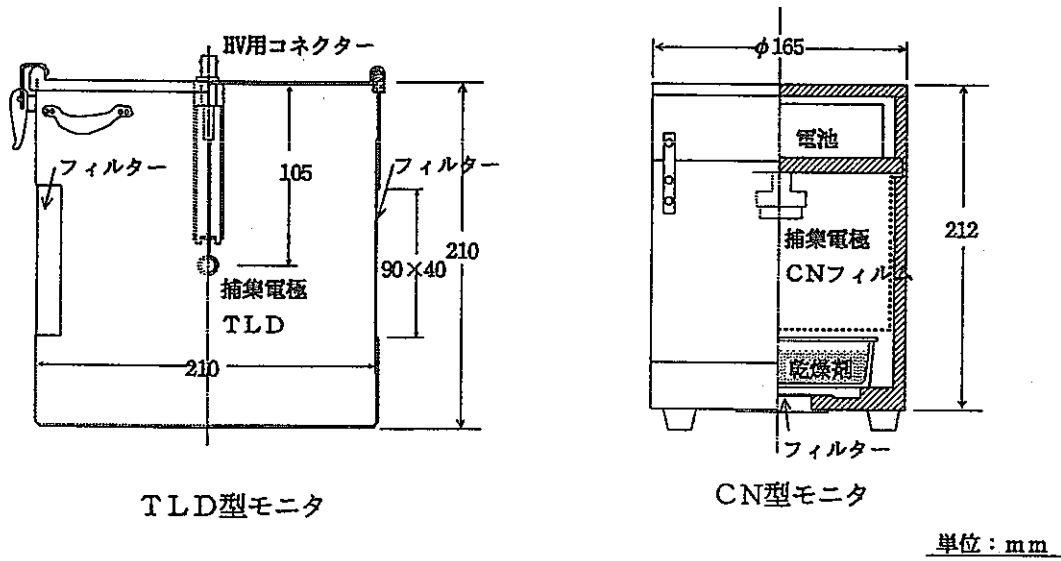


図-1 本研究に用いた積算型ラドンモニタ

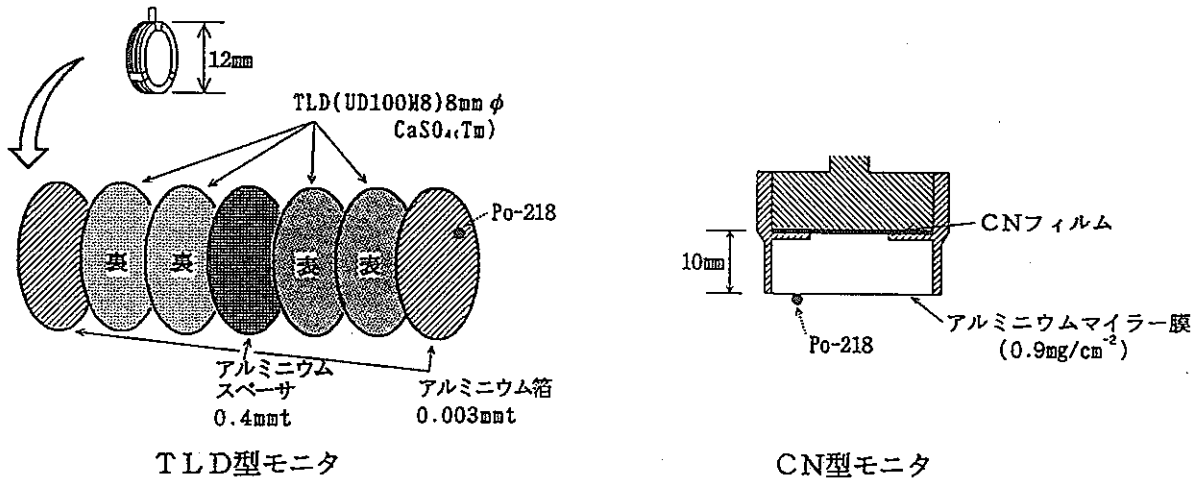


図-2 捕集電極の構造

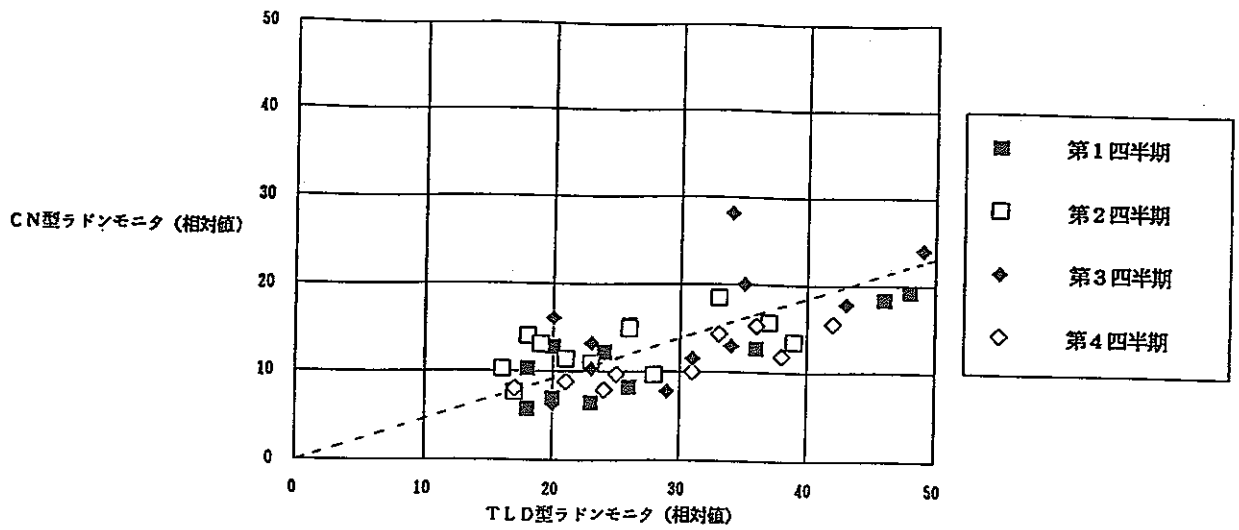


図-3 TLD型、CN型ラドンモニタ測定結果相関図

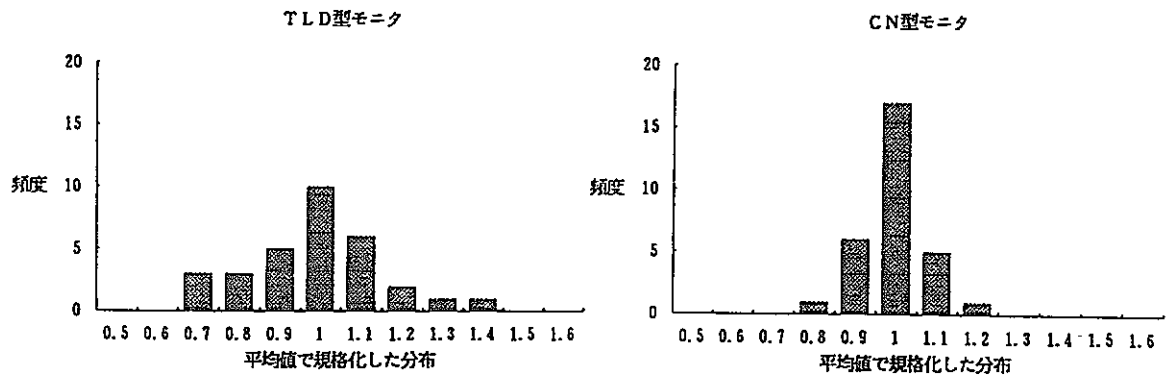


図-4 TLD型、CN型モニタの測定値の分布

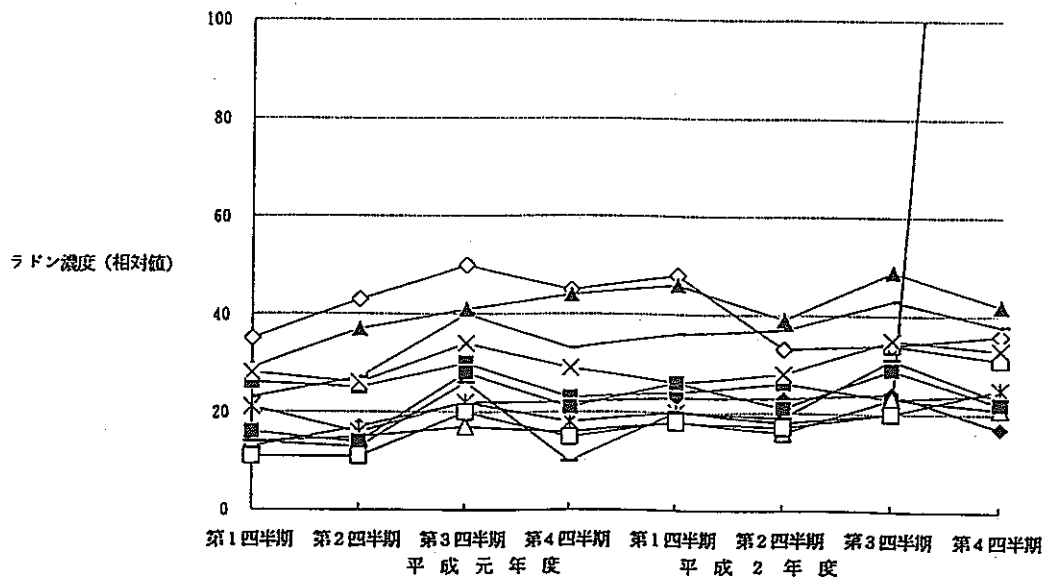


図-5 TLD型ラドンモニタ測定結果

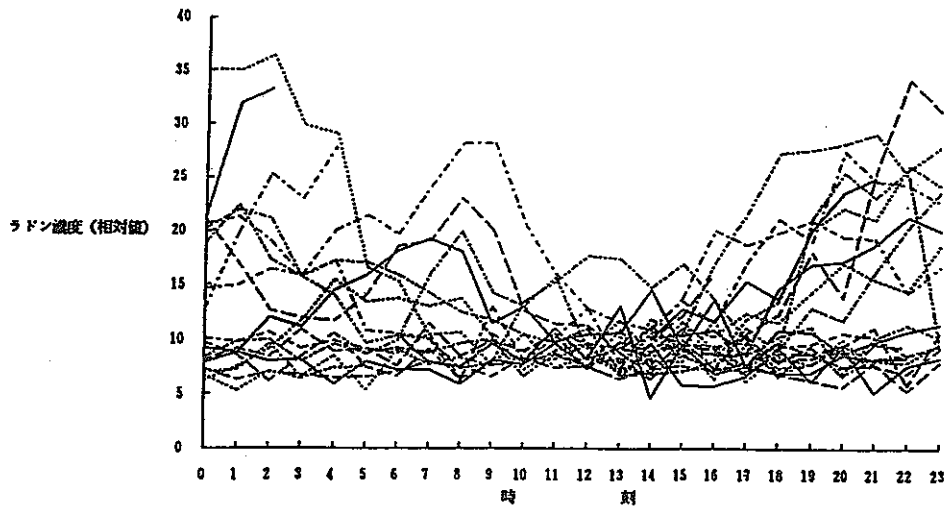


図-6 連続ラドン測定によるラドン濃度の日変化

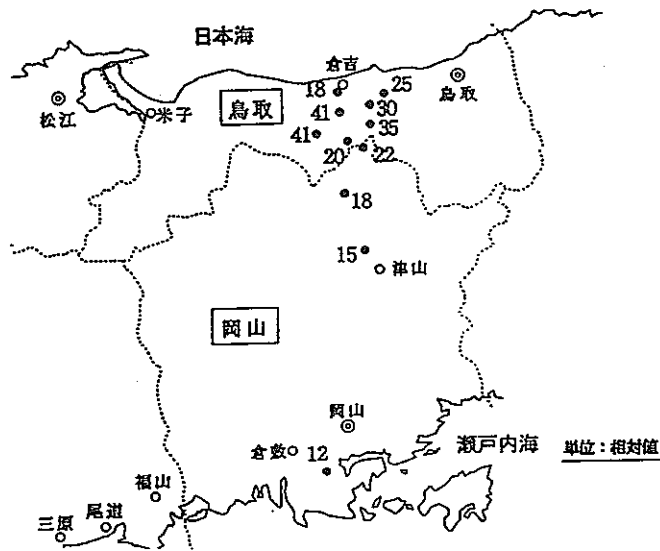


図-7 事業所周辺におけるラドン濃度の広域分布

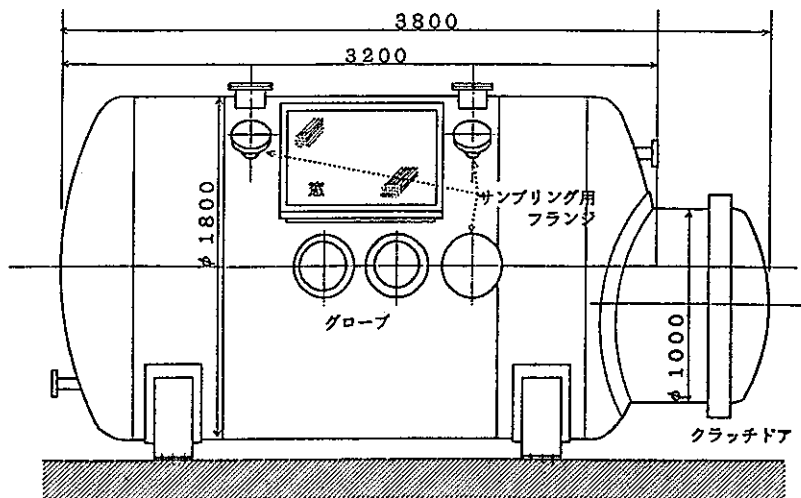


図-8 ラドン標準校正チェンバー外観図

環境中ヨウ素-129の分布に関する研究

安全管理部環境安全課

清水武彦、吉田美香、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

原子力施設から環境へ放出される放射性物質のうち、 ^{129}I は半減期 1.6×10^7 年と極めて長寿命の核種である。また、ヨウ素は環境中での挙動が複雑であること、人体の必須元素であることなどから、その分布と挙動を知ることが極めて重要である。

^{129}I は低エネルギーでかつ放出率の小さい γ 線放出を伴う軟 β 核種であることから、通常の方法・測定方法では環境レベルまでの定量が困難である。従って、これに適した方法の開発と環境における分布状況を調査することを本研究の目的とし、次のような研究を実施した。

(1) 土壌中の ^{129}I 濃度レベルの把握

^{129}I 濃度レベルを把握するために、すでに分析法を確立している土壌中の長期的な水準調査を行なう。

(2) 大気及び農作物中 ^{129}I 分析手法の開発

大気及び農作物中 ^{129}I の分析法を開発し、環境中の濃度レベルを把握するとともに、長期的な水準調査を行なう。

II. 研究成果

1. 土壌中の ^{129}I 濃度レベルの把握(1) 表土及び畑土中の ^{129}I 濃度レベルの把握

表土及び畑土について ^{129}I 濃度レベルを調査したところ、 $10^2 \sim 10^3 \text{Bq/kg}$ ・乾の濃度レベルにあった。測定開始以降現在まで、 ^{129}I 濃度の増加傾向は見られていない。 ^{129}I の長期的な蓄積傾向を見ていく場合には、土壌中の濃度レベルを継続して調査していく必要がある。

なお、本測定結果は、中性子放射化分析法による高感度測定を行ったことにより検出できたものであり、通常の放射化学分析法では、検出できないレベルである。

(2) 水田土中の ^{129}I 濃度レベルの把握

水田土については、 10^3Bq/kg ・乾レベルであった。しかしながら、測定データ数が3件と少なく、詳細に解析するまでには至らなかった。

2. 大気及び農作物中 ^{129}I 分析手法の開発(1) 大気中 ^{129}I 分析手法の開発

図-1に大気捕集装置の概略図を示す。このサンブラは、ダストフィルタ (HE-40T) とTEDA添着チャコールカートリッジ3段から構成されている。また、採取したエアースンプルの中性子放射化分析法による ^{129}I 分析フローシートを図-2

に示す。

(2) 精米中 ^{129}I 分析手法開発

精米中 ^{129}I 分析法については、粉碎した精米試料を大気試料と同様な処理を行う中性子放射化分析法を検討した。供試量を1 kgとした場合、有意な分析値は認められなかった。

さらに、検出感度を向上させるため中性子放射化後に測定上の妨害となる核種 (^{82}Br) の除去等の改善が必要である。

(3) 葉菜中 ^{129}I 分析手法の開発

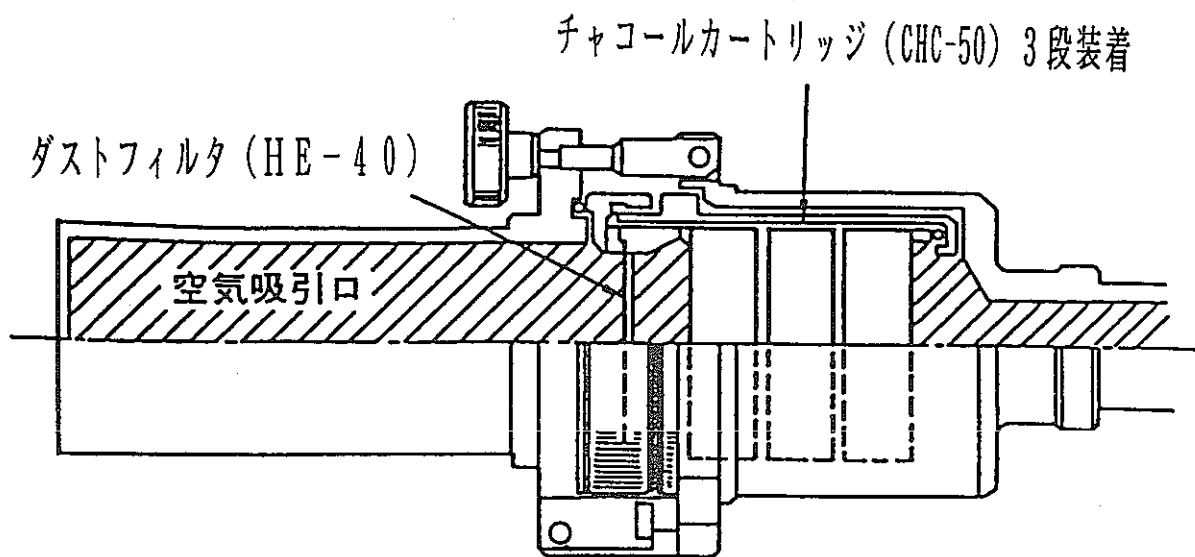
葉菜中の ^{129}I 分析法については、採取した試料を 110°C で乾燥・粉碎後、大気試料と同様な処理を行う中性子放射化分析法について検討した。

葉菜中の ^{129}I 濃度レベルを調査したところ、 $10^3 \sim 10^4 \text{ Bq/kg}$ ・生であった。

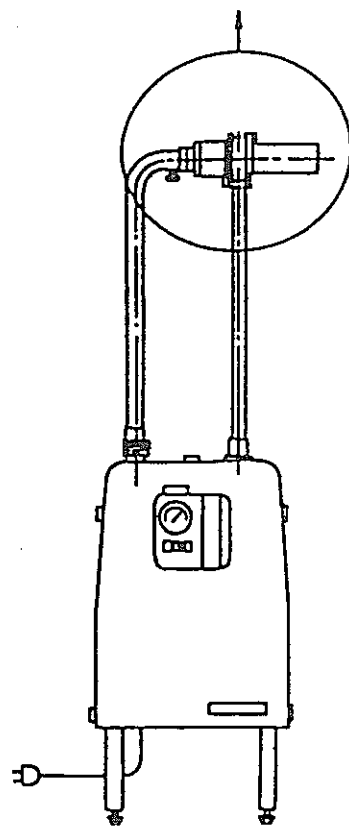
本分析法は、試料採取量を1 kgと多量に処理したこと及び中性子放射化分析法による高感度測定を行ったことにより検出できたものであり、通常の放射化学分析法では、検出できないレベルである。

III. 参考資料

- 1) 武石 稔、並木 篤、石田順一郎、岩井 誠；環境試料中の ^{127}I および ^{129}I の中性子放射化分析法、保健物理、22、39～45、1987.
- 2) H.KATAGIRI, O.NARITA, A.YAMATO and M.KINOSHITA; Low Level Measurements of ^{129}I in Environmental Samples , Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 138, 187-192, 1990.

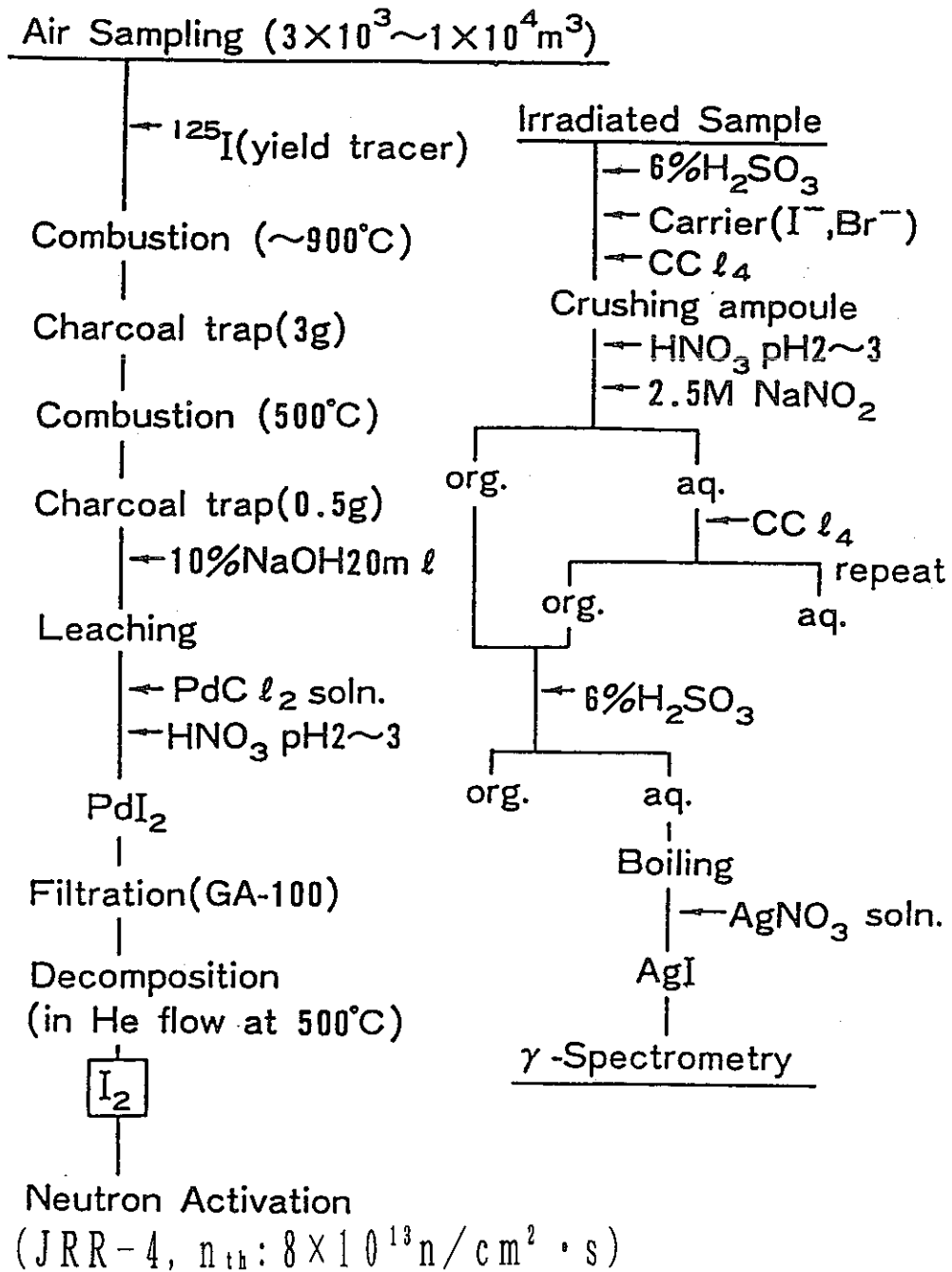


フィルタ・ホルダー断面図



ダストサンプラ正面図

図 - 1 大気中ヨウ素捕集装置



Flow Diagram of ^{129}I Analysis in Atmosphere

図-2 大気中ヨウ素分析法 (中性子放射化分析)

環境中におけるヨウ素の移行に関する研究

安全管理部環境安全課

清水武彦、吉田美香、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

原子力施設から環境へ放出された放射性核種により一般公衆が受ける線量当量については、施設からの放出量、放射性核種の環境中での挙動等を考慮した評価モデルにより計算する。

この内、大気中に放出された放射性核種が農作物に取り込まれ、これを経口摂取する経路の評価モデルについては、大気中から直接植物体葉茎部、開花中の花部、成熟途上中の子実部等に付着し捕捉されて可食部へ取り込まれる経路及び大気から一旦土壤に沈着した放射性物質が根部から吸収されて可食部へ取り込まれる経路を考慮する必要がある。

これを計算式で表わすと、次のようになる。

$$C = \chi \cdot V_g \left[\frac{r (1 - \exp(-\lambda_E \cdot t_e))}{Y \cdot \lambda_E} + \frac{B (1 - \exp(-\lambda \cdot t_b))}{P \cdot \lambda} \right]$$

ここで、

- C : 植物中放射性核種濃度 (Bq/g・生)
- χ : 大気中放射性核種濃度 (Bq/cm³)
- V_g : 沈着速度(cm/d)
- r : 植物上に直接沈着した放射性核種の可食部への移行率
- B : 土壤中の放射性核種が根を通して植物可食部へ移行する割合(Bq/g 生/Bq/g・乾)
- Y : 植物の栽培密度(g/cm²)
- P : 植物を栽培する土壤の実効面密度(g・乾/cm²)
- λ_E : ヨウ素の有効除去係数 (1/d)
- λ : 放射性核種の放射性崩壊定数 (1/d)
- t_b : 放射性核種の地表面への沈着継続時間 (d)
- t_e : 植物表面への沈着期間 (d)

現在用いられている評価モデルの中で、特に r は評価結果を大きく左右するパラメータであることから現実的な値を用いる必要がある。このため、より現実的な線量当量評価を行う観点から、フィールドデータを基にした放射性気体廃棄物の大気放出に係る移行パラメータについての調査研究が必要である。

本稿は、大気放出された¹²⁹Iの線量当量評価上重要な経路である牧草、精米及び葉

葉に関する移行パラメータのうち、 r についての調査研究結果を取りまとめたものである。また、同時に移行パラメータに影響を及ぼすと考えられる放射性ヨウ素の大気中での化学形を調査するための検討結果についてもまとめている。

II. 研究成果

1. 大気中から米、葉菜及び牧草への移行に係るパラメータ (r)

中性子放射化分析法による ^{129}I の各種試料についての測定法を確立し、その測定値を用いて ^{129}I の環境における移行に関する研究を実施した。

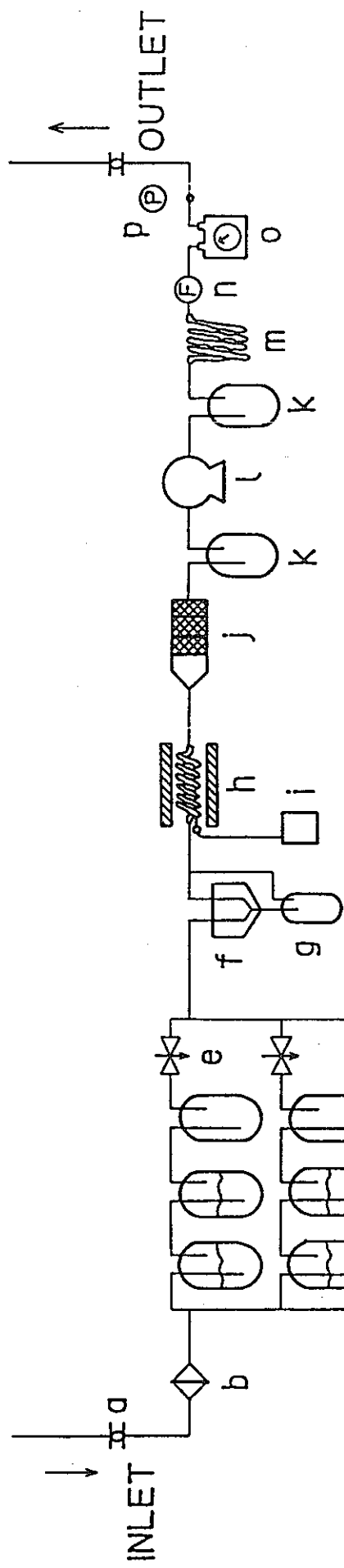
本研究により得られた、大気中からの直接沈着による可食部への移行率 (r) は、米については、0.0088、葉菜について0.17及び牧草について0.26という結果が得られた。植物上に直接沈着した放射性核種のうち、可食部へ移行する割合についての実験データは少なく、特に、我国の主食である米についてのデータは非常に少ないのが現状であり、ここで得られた結果は貴重なものである。

2. 大気中ヨウ素の化学形態評価

気体状の放射性ヨウ素の化学形としては、大別して、無機形と有機形に分けられる。無機形には I 、 I_2 、 I^- 、 IO^- 、 IO_3^- 及び IO_4^- などが考えられる。

有機形ヨウ素(CH_3I が主体といわれる)は、大気中に放出されたのち、紫外線などの作用で分解し、無機形ヨウ素になるといわれているが、そのメカニズムは、分解生成物及び安定度等については不明な点が多い。また、ヨウ素の沈着速度は、化学形態によって左右されるため、大気中に放出されたヨウ素の化学形態を調査することは、移行パラメータを求める上で重要となる。そのため、有機ヨウ素と無機ヨウ素を弁別捕集できる装置を考案製作した。

本装置は、大気中の ^{129}I の絶対量が少ないため、これに代えて安定ヨウ素を用いて評価するための装置である。捕集装置の概略図を図-1に示す。本装置は、捕集1段目にダストフィルタ(HE-40T)、2段目にアルカリスクラバ、3段目にTEDA添着活性炭を装着したものである。ダストフィルタは、大気中のエアロゾルに付着した粒子状の浮遊ヨウ素を捕集する。粒子状ヨウ素と考えられる化学形は I^- 、 IO^- 、 IO_3^- 、 IO_4^- の塩及び分子状ヨウ素(I_2)である。アルカリスクラバ(2N水酸化ナトリウム溶液)に捕集される化学形は I^- 、 IO_3^- 、 IO_4^- の塩、揮発性の次亜ヨウ素酸(HIO)及び分子状ヨウ素(I_2)と考えられる。また、TEDA添着活性炭には、ヨウ化メチル及び他の有機形ヨウ素が捕集される。今後は、本装置を活用することにより、大気中の化学形態を把握するとともに移行パラメータへの化学形の影響を解明する予定である。



IODINE SPECIES SAMPLER (Alkaline Scrubbing Method)

- | | |
|--|--|
| <ul style="list-style-type: none"> a : Ball Valve b : Dust Filter (HE40T) c : Bubbler (2M NaOH) d : Buffer e : Needle Valve f : Dehumidification Unit g : Drain Tank h : Heater (Mantle heater & Glass tube) i : Temp. Controller | <ul style="list-style-type: none"> J : Activated Chacoal Cartridge k : Surge Tank l : Vacuum Pump m : Air Cooler n : Flow Meter o : Integral Flow Meter p : Manometer |
|--|--|

图-1 大气中化学形态别捕集装置

大気放出放射性物質の沈着・再浮遊に関する研究

安全管理部環境安全課

並木 篤、清水武彦、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

長半減期核種の大気放出に伴う環境影響の評価においては、大気中での挙動等様々な不確定要因を定量的に評価することが必要である。

本研究では、このうち沈着・再浮遊に着目して以下の研究を実施した。

- (1)カスケード分級サンプラにより、空气中放射性物質の粒子径分布の調査を実施する。
- (2)乾性及び湿性沈着した ^{129}I を弁別捕集するため、降下物採取装置を開発する。
- (3)乾性及び湿性沈着速度に関して調査する。

II. 研究成果

1. 空气中放射性物質の粒子径分布の調査

(1)分析及び測定方法

試料の捕集は、東海事業所内の安全管理棟の屋上（地上約 7m）で、Andersen サンプラ（東京ダイレック、流量：200 l/min）を用いて行った。各捕集段（7段）及びバックアップ部にテフロンフィルタを用いた。捕集期間は、およそ3日おきにフィルタを交換し、約40,000m³を通気した。

同一試料を ^{129}I 及び ^{127}I 分析用に分け、 ^{129}I 分析用試料は日本原子力研究所 JRR-4 炉（中性子束 $8 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）で40分間照射し、また ^{127}I 分析用試料は立教大学 TRIGAII 型炉（ $1.5 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ）で5分間照射し、中性子放射化分析法により定量した。

(2)結果及び考察

粒径別大気エアロゾル中 ^{129}I 及び ^{127}I を分析するに当たり、検出下限値を考慮して捕集段1、2及び3、4をそれぞれ合わせて2試料とし、全部で6試料を分析した。粒径別大気エアロゾルの ^{129}I 及び ^{127}I の分析結果を表-1に示す。一般に大気エアロゾルは $2 \mu\text{m}$ を境に2山型の分布を示し、 $2 \mu\text{m}$ 以上の粗大粒子と $2 \mu\text{m}$ 以下の微小粒子に分けられる。測定の結果 ^{129}I 及び ^{127}I はともに $2 \mu\text{m}$ 以下の微小粒子に存在し、 ^{129}I の空気力学的放射能中央径（AMAD）は $0.4 \mu\text{m}$ であった。また、 $2 \mu\text{m}$ 以上の粗大粒子中の ^{129}I 及び ^{127}I は土壌粒子の舞い上がりであると推測された。

チェルノブイリ原子力発電所事故の際、大気中に放出された ^{131}I の大気エアロゾル中の粒度分布も微小粒子側が多いとの報告¹²⁾があり、本研究の ^{129}I と同様の結果となった。

2. 乾性及び湿性沈着した¹²⁹Iを弁別捕集するための降下物採取装置の開発

再処理工場から環境中に放出された¹²⁹Iの農作物への移行経路は、沈着と経根吸収に大別され、また沈着の仕方によって乾性沈着及び湿性沈着に分けられる³⁾。そのため、一般公衆に対する被ばく線量評価を行う場合、これらのパラメータを求めることが重要であり乾性及び湿性沈着¹²⁹Iを弁別捕集するために図-1に示すような降下物採取装置を開発した。

3. 乾性及び湿性沈着速度に関する調査

(1) 捕集及び分析方法

(i) ¹²⁹Iの捕集方法について

乾性及び湿性沈着条件下での¹²⁹Iの捕集は、本調査研究の目的として開発した「放射性降下物採取装置」を用いて行った(図-1参照)。本装置は晴天時にはAの屋根が閉じてBの屋根が開き、Bの水盤により乾性沈着する¹²⁹Iを捕集する。また、雨天時は雨水をセンサーが感知することによって晴天時の逆動作となり、Aの水盤により湿性沈着する¹²⁹Iを捕集する。

水盤にはあらかじめ水(蒸留水)を約10 l入れ、さらに捕集期間中の¹²⁹Iの揮発を防ぐため5%-Na₂SO₃溶液を加えた。また、乾性沈着試料の場合、期間中に蒸発してしまうことから定期的に水を補充して水盤には常に水を張った状態を維持し、湿性沈着試料においては雨水が水盤から溢れないよう定期的に回収した。

(ii) 分析方法について

乾性及び湿性沈着した¹²⁹Iは、全量をろ過(フィルタ:5C)し、ろ液と残渣に分け、ろ液はDowex 1×8の陰イオン交換樹脂を加えてヨウ素を樹脂に吸着し、乾燥(約70℃)等の前処理を行った後、中性子放射化分析法により定量した。また、ろ紙については、乾燥後はろ液と同様な方法により行った。

(2) 結果及び考察

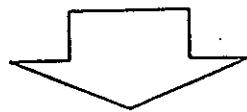
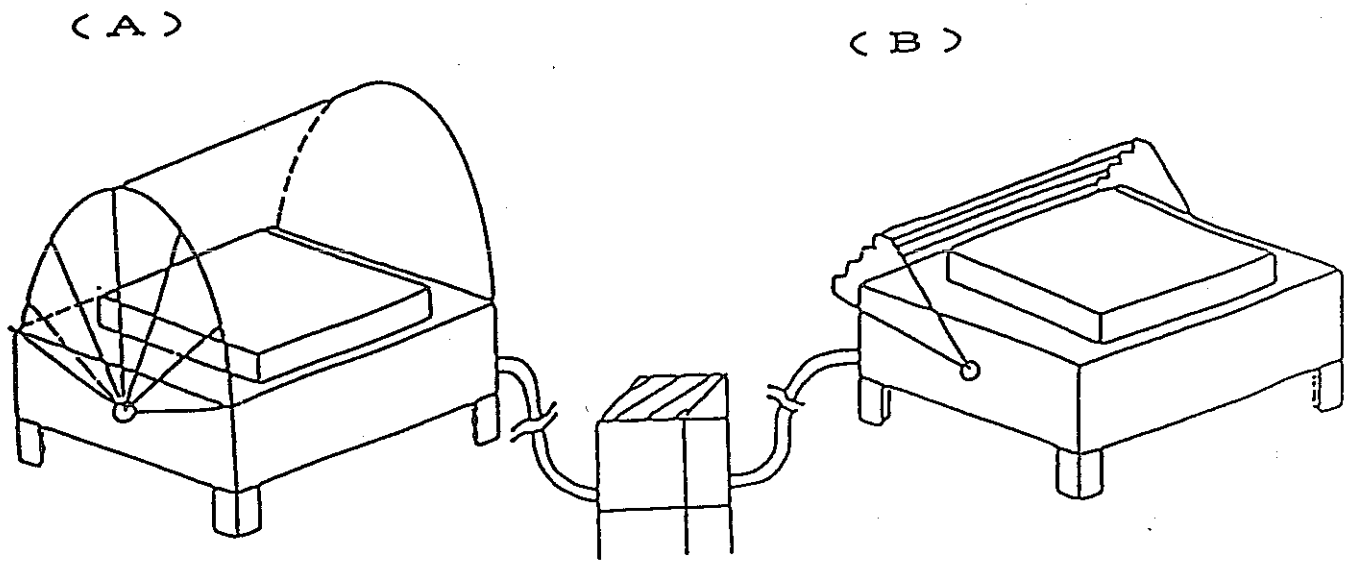
本研究により得られた、¹²⁹Iの乾性及び湿性沈着速度を表-2に示す。

この結果から、乾性沈着速度は0.063(cm/s)、湿性沈着速度は0.23(cm/s)であり、両者を含む沈着速度としては0.29(cm/s)が得られた。ここでは、湿性沈着速度が乾性沈着速度と比較して大きめの値となったが、さまざまな環境要因が関係することから、今後継続してデータを蓄積していくことが必要である。

III. 参考資料

- 1) E.A.Bondietti and J.N.Brantley; Characteristics of Chernobyl Radioactivity in Tennessee, Nature 322,313-314.,1986.
- 2) F.P. Brauer,H.G. Rieck Jr and R.L.Hooper; Particulate and Gaseous Atmospheric Iodine Concentrations, IAEA-SM-181/6,351-366,1984.
- 3) Y.Muramatsu and Y.Ohmomo; Iodine-129 and Iodine-127 in Environmental Samples Collected from Tokai-mura/Ibaraki,Japan.Sci.Total Envir,48,33-43, 1986.

① 晴天時



② 雨天時

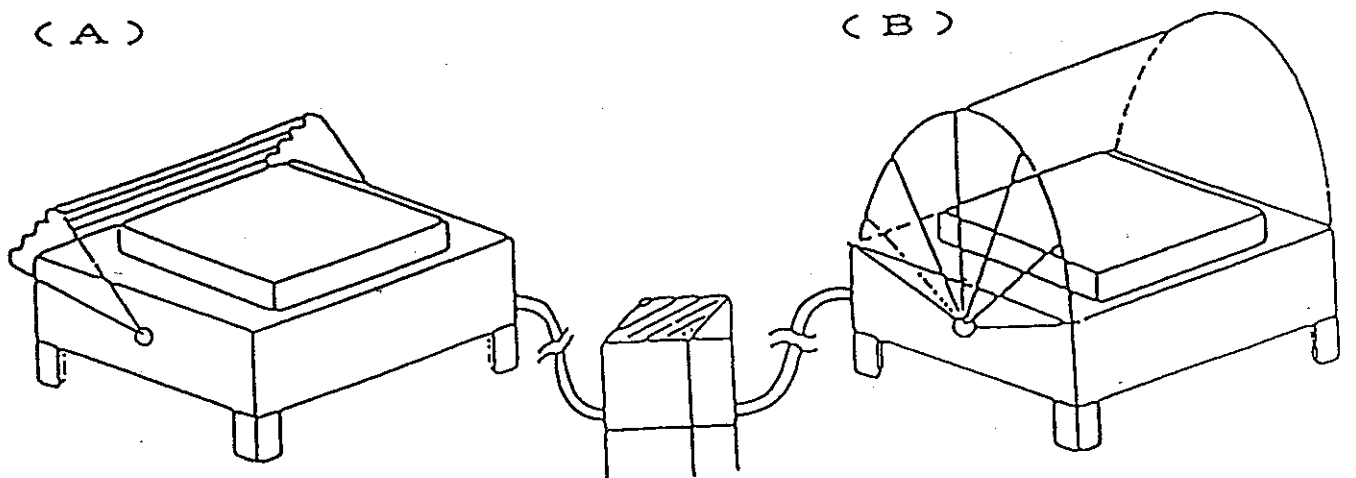


図-1 放射性降下物採取装置動作シーケンス

表—1. 粒径別の大気エアロゾルの¹²⁹I及び¹²⁷I濃度分布

捕集段	50%捕集粒径 (μm)	¹²⁹ I (nBq/m ³)	¹²⁷ I (ng/m ³)
0	7.0	0.4±0.2	0.52±0.01
1	4.7	D.L.	0.41±0.01
2	3.3	(1,2段混合)	(1,2段混合)
3	2.1	D.L.	0.58±0.01
4	1.1	(3,4段混合)	(3,4段混合)
5	0.65	2.2±1.9	0.65±0.01
6	0.43	1.5±0.4	0.47±0.01
バックアップ部		4.8±0.7	1.6 ±0.02

D.L. : 検出下限未満

表—2. ¹²⁹Iの沈着速度

調査期間	降雨量 (mm)	期間内の ¹²⁹ I沈着密度(Bq/m ²)		沈着速度(cm/s)	
		乾性沈着	湿性沈着	乾性沈着	湿性沈着
1989/9/25 ~12/5	218.1	$\times 10^3$ (3.2±0.20)	$\times 10^2$ (1.2±0.07)	$\times 10^2$ (6.3±0.40)	$\times 10^1$ (2.3±0.01)

環境中プルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動に関する研究

安全管理部環境安全課

渡辺 均、森澤正人、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

東海村周辺地域の陸上及び海洋環境中におけるプルトニウム及びアメリシウムの濃度水準を調査し、公衆の線量当量評価の基礎データに資するための研究を実施した。

(1)環境試料中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am を系統的に分析し、その濃度水準を調査するとともに土壌中から農作物への移行、また、海水中から海底土及び海産物への移行・濃縮等について検討する。

(2)環境試料中の ^{241}Pu の分析方法を確立するとともに、水準調査を実施する。

II. 研究成果

1. $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の水準調査

$^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の測定は、東海事業所標準分析作業法（周辺環境管理編）¹⁾に基づき実施した。

(1)陸上環境

陸上環境試料としては、地表大気中塵埃、降下物、土壌（表土、畑土）、及び農作物（葉菜）について、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am を系統的に分析し、その水準について調査した。

(i) 大気塵埃の測定は、事業所内外の7地点において3ヶ月毎のコンポジット試料として測定した。1986年から1990年までの間の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の測定結果からは、標準偏差の3倍以上の有意な測定値は全く見られなかった。このため、測定結果のうち標準偏差以上の測定値を用いて、各年の空气中平均濃度を算出した。 $^{239,240}\text{Pu}$ の年間平均空气中濃度は、 $(1.1\sim 1.5)\times 10^{-14}\text{Bq/cm}^3$ の範囲であり、また、 ^{241}Am の年間平均空气中濃度の範囲は、 $8.9\times 10^{-15}\sim 1.6\times 10^{-14}\text{Bq/cm}^3$ であった。

(ii) 降下物については、1986年から1990年までの安全管理棟屋上で1ヵ月間連続して採取した試料について測定した。各月の測定結果は、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度及び ^{241}Am 濃度とも有意な測定結果は少なかったが、調査期間の $^{239,240}\text{Pu}$ の降下量は $(1.3\sim 2.6)\times 10^3\text{Bq/m}^2/\text{月}$ の範囲であり、平均値は $1.9\times 10^3\text{Bq/m}^2/\text{月}$ であった。また、 ^{241}Am の降下量は $6.7\times 10^4\sim 1.3\times 10^3\text{Bq/m}^2/\text{月}$ の範囲であり、平均値は $9.4\times 10^4\text{Bq/m}^2/\text{月}$ であった。 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の降下量の平均値を用いてAm/Puの放射能比を算出すると、その値は0.49であった。

(iii) 表土については、東海事業所内外5地点で6ヵ月毎に調査した。測定結果は、採取地点の土質の違いによるバラツキ又は同一地点でも採取場所の状態による分布のバラツキが見られた。勝田市東石川において採取した表土について、

$^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の測定結果及びAm/Puの放射能比の経年変化を図-1に示す。 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の範囲は、 $0.21\sim 0.70\text{Bq/kg}$ ・乾土の範囲にあり、また、 ^{241}Am 濃度は、 $5.8\times 10^2\sim 0.26\text{Bq/kg}$ ・乾土の範囲で、それぞれの平均値でのAm/Puの放射能比は0.30であった。

- (iv) 畑土については、東海村、勝田市及び那珂町の3地点で葉菜と同時に採取し、測定した。測定結果は、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度では、 $(1.1\sim 2.4)\times 10^1\text{Bq/kg}$ ・乾土の範囲で、平均値は、 $1.7\times 10^1\text{Bq/kg}$ ・乾土であり、また ^{241}Am 濃度では、 $(3.9\sim 7.9)\times 10^2\text{Bq/kg}$ ・乾土の範囲で、平均値は $5.6\times 10^2\text{Bq/kg}$ ・乾土であった。それぞれの平均値からAm/Puの放射能比を見ると0.30であった。また、表土中濃度データの対数正規確率プロットを取ると、図-2に示すように図の分布状況から対数正規だと見なすことが妥当であることがわかった。
- (v) 葉菜については、東海村、勝田市及び那珂町の3地点で3か月毎に採取し測定した。調査結果は、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の両核種ともその測定値が標準偏差の3倍以上の有意と認められるデータは全く見られなかった。このため、測定値が標準偏差以上の測定値を用いたデータにより、図-3の対数正規確率プロットを作成した。葉菜中の全量が土壌から移行したと仮定し、図-3の50%値と、畑土の平均 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度からの移行係数を算出すると 4×10^4 であった。同様に、 ^{241}Am について移行係数を求めると 8×10^4 であった。

(2) 海洋環境

海洋環境試料としては、海水、海底土、海岸砂及び海産物（シラス、成魚、海藻、貝類、頭足類、甲殻類）について調査した。

海産物の $^{239,240}\text{Pu}$ については、1980年からの測定結果を基に、また ^{241}Am については、1982年からの測定結果を基にデータを処理した。それぞれの核種濃度測定結果の対数正規確率プロットは、図-4、図-5に示すようになった。また、海底土については、1980年からの $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の測定結果を基にデータを整理した。その結果についても、図-6のような結果が得られた。

2. 移行調査

- (1) 陸上環境での移行調査では、土壌試料を除き試料中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度が極めて低く、現在の測定レベルを考慮すると現状の α 線スペクトロメトリ法による測定方法では、有意な測定結果を得るのは困難であった。特に、葉菜類での移行係数を求めるに当たっては、分析操作上(供試量を増やす又は測定時間を増やす等)では対応できないことが確認された。したがって、これらの移行係数を精度良く求めるには、 ^{237}Np も含めたアクチニド核種の検出感度の高い分析法又は測定方法の検討が必要であることが分かった。
- (2) 海洋に放出された放射性物質に起因する公衆の線量当量に寄与する移行経路としては、海産物の摂取による内部被ばく及び海岸砂、漁網等からの外部被ばくが設定される。これらの経路の内、最も線量当量寄与の大きい海産物からの内部被ばくについては、海水から海産物への濃縮係数が重要なパラメータと考えられる。このため、これまでに環境監視データとして得られた各核種のデータを基に、算

出した海産物の濃縮係数を表-1に示す。

3. 環境試料中の ^{241}Pu の水準調査

環境中の ^{241}Pu は、大部分のものが過去の大気圏内核実験により生成されたものであり、その放射エネルギーとしてはプルトニウム同位体中最も多い核種である。また、 ^{241}Pu はアクチニド元素のうち環境中での挙動が注目されている ^{241}Am と ^{237}Np の親核種であることから、線量当量評価上も重要である。

(1) ^{241}Pu の分析法

従来の ^{241}Pu の測定法は、試料中のプルトニウムを分離・精製し、 α 線スペクトロメトリにより $^{239,240}\text{Pu}$ 等の測定をしたのち、測定試料を数年間放置して、 ^{241}Pu から成長した ^{241}Am の放射能を測定することにより算出する方法が取られていた²⁾。しかしながら、この方法は ^{241}Am の成長を待つ必要があることから、迅速性に欠ける欠点を持っていた。この欠点を補う測定方法として、本研究では α 線計測による回収率補正法及び ^{241}Pu の β 線(最大エネルギー21keV)を、液体シンチレーションカウンタを用いて他のプルトニウムの α 線と弁別して測定する方法を確立した³⁾。土壤中 ^{241}Pu の分析手順を図-7に示す。

本測定法での検出下限値は、土壤については供試量200gを用い、測定時間500分、計数効率35%、バックグラウンド計数3.5cpm、分析回収率を60%とした場合、0.2Bq/kg・乾土であった。また、本測定法による同一試料の10回の繰り返し分析結果の変動計数は6.3%であった。

(2)水準調査

土質の異なる土壤についての $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Pu の測定結果を表-2に示すが、 ^{241}Pu の濃度範囲は、0.57~4.6 Bq/kg・乾土であった。 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は、3.3~4.4の範囲にあり、平均は3.8であった。また、繰り返し測定に使用した土壤の ^{241}Pu 濃度は1.6 Bq/kg・乾土であり、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は3.6~4.4の範囲で平均は3.8であった。今回の調査から求めた土壤中 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は、日本の他の研究機関が1986年及び1988年に行った湖底土の調査結果から求めた放射能比の範囲3.5~4.5、平均値3.7と良く一致した結果であった⁴⁾。

III. まとめ

今回、環境中のプルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動に関する研究の成果として、以下のような点が上げられる。

1. 陸上環境試料での調査では、土壤試料を除きそのレベルが極めて低く、葉菜等においては土壤からの移行係数を求めるには、現状の α 線スペクトロメトリではその検出感度から有意な測定結果を得るのは困難であり、 ^{237}Np も含めたアクチニド核種の検出感度の高い分析法又は測定方法の検討が必要であることを確認した。
2. 表土及び畑土の測定結果から、 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比を求めた結果は0.30であったが、これは他の研究機関が調査したフォールアウト起源の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比0.29~0.35と良く一致した結果であった⁴⁾。

3. 海洋環境試料の調査では、環境監視データを基に濃縮係数を算出した。
4. 本研究で開発した環境試料中 ^{241}Pu の測定法は、従来の測定法と異なり直接 ^{241}Pu を測定することから、短時間で定量することが可能となった。また、本測定法による水準調査結果から求めた $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は、他の研究機関と同様の結果であった⁴⁾。

IV. 参考文献

- 1) 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所標準分析作業法 周辺環境監視編、PNC TN8520 89-004、1989.
- 2) E.Holm; Determination of ^{241}Pu in Environmental Samples by a Radiochemical Procedure, *Environment International*, 14, 363-365, 1988.
- 3) 住谷 秀一、林 直美、片桐 裕実、成田 脩；環境試料中の ^{241}Pu 測定法の開発、*動燃技報* No.66-9、1988.
- 4) M.Yamamoto, Y.Yamauchi, K.Chatani, S.Igarashi, K.Komura and K.Ueno; Fallout ^{237}Np , Pu Isotopes and ^{241}Am in Lake and Sea Sediments from the Coastal Area of the Sea of Japan, *Radiochimica Acta* 51, 85-95, 1990.

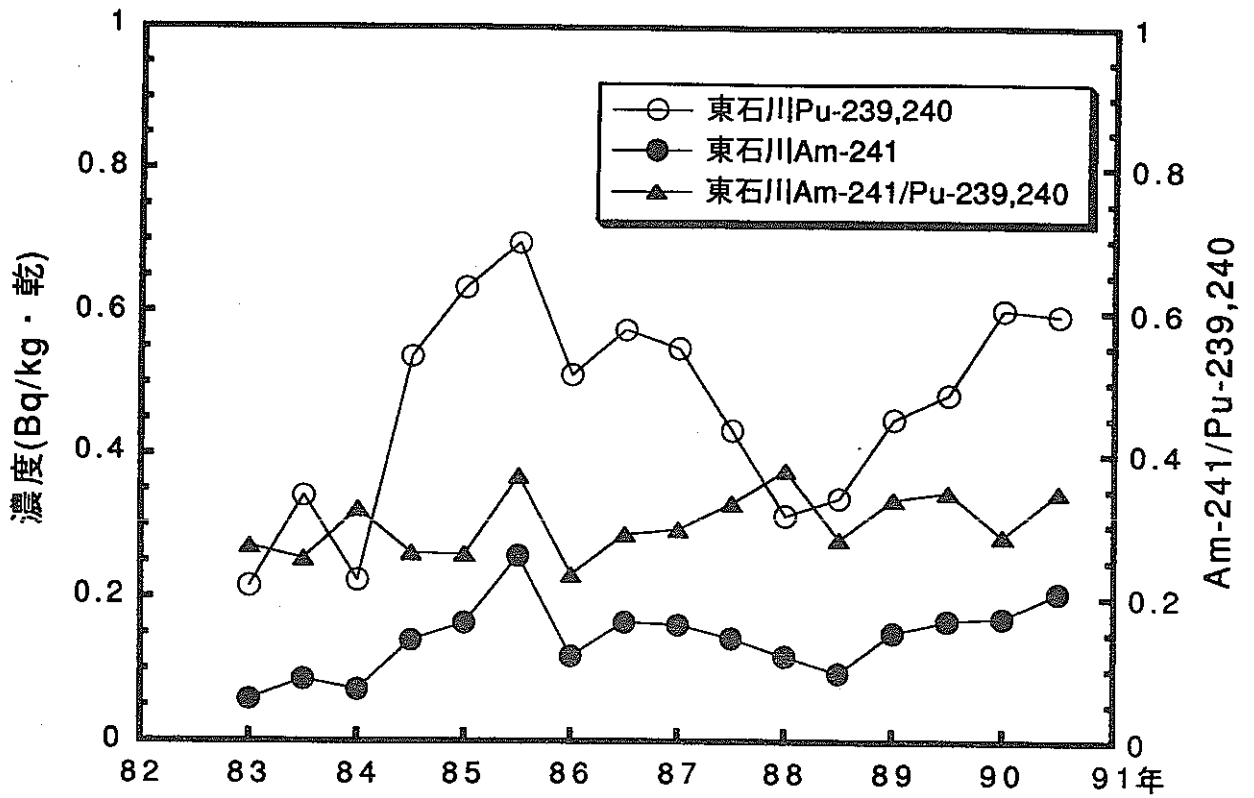


図-1 表土中Pu-239,240 及びAm-241の濃度と放射能比の経年変化

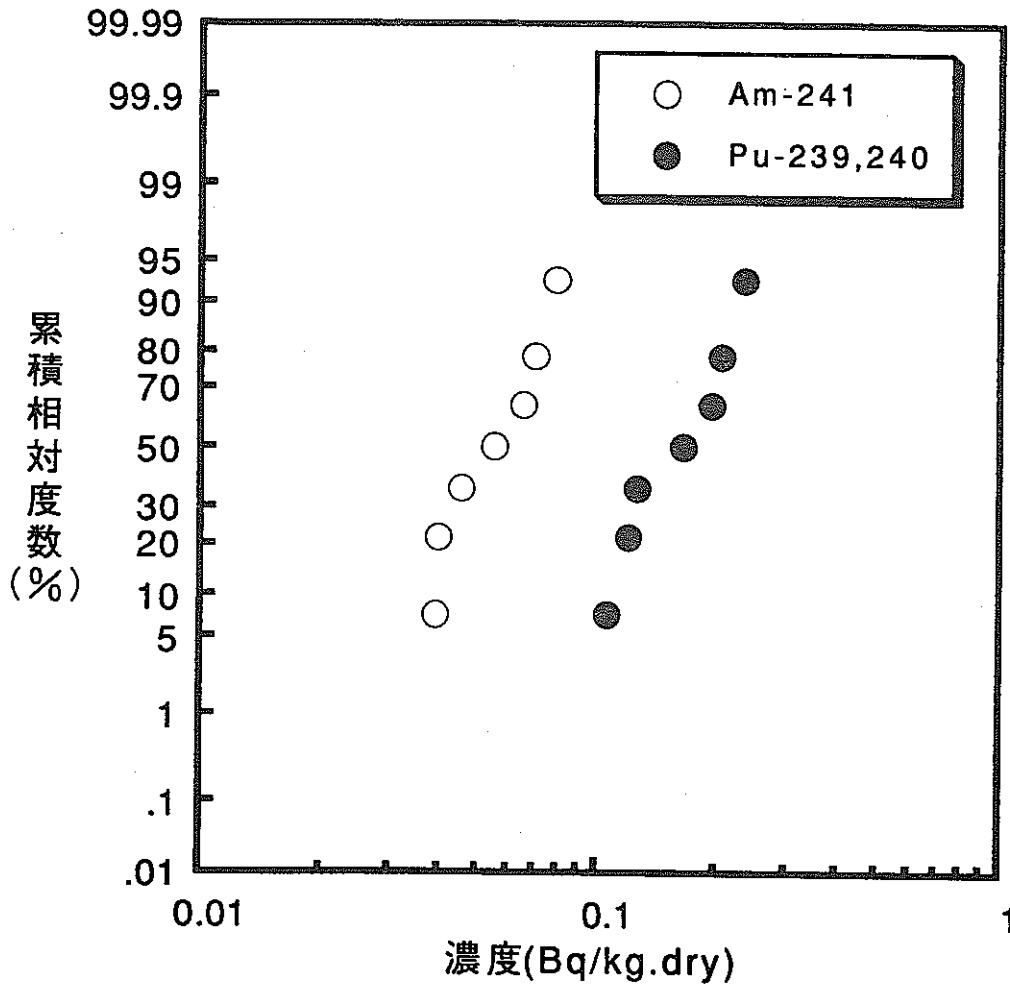


図-2 畑土中Pu-239,240 及びAm-241の対数正規確率プロット

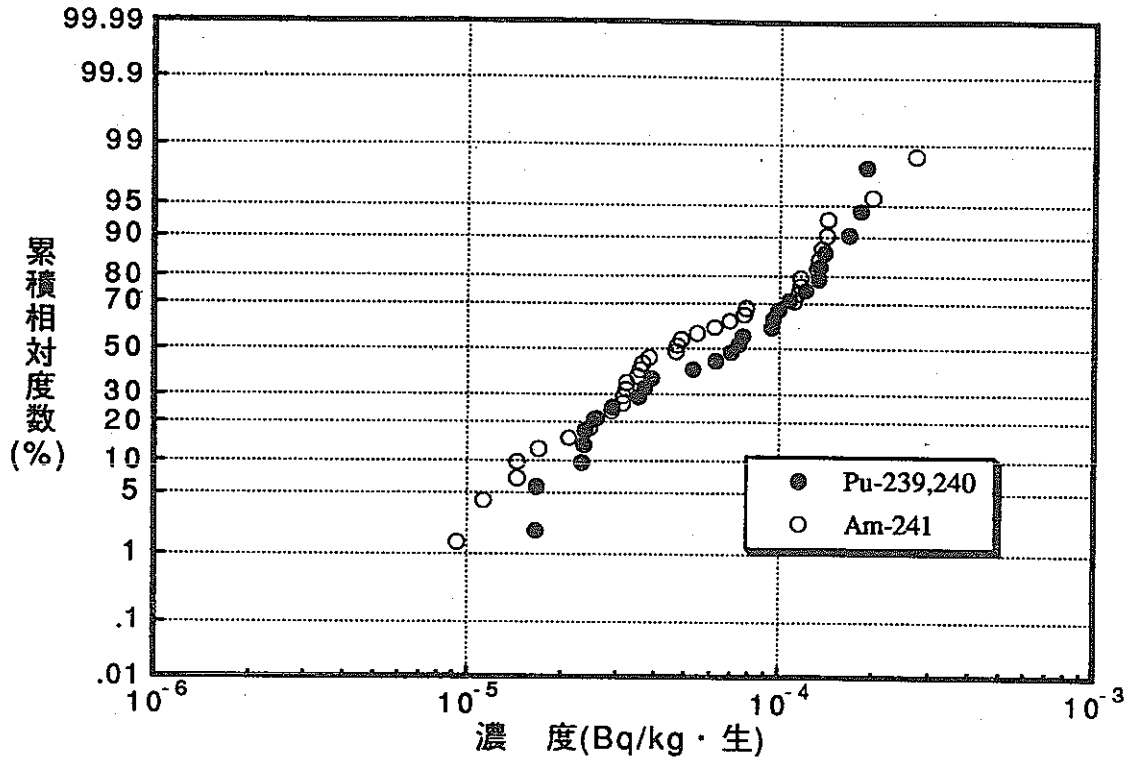


図-3 葉菜中Pu-239,240及びAm-241の対数正規確率プロット

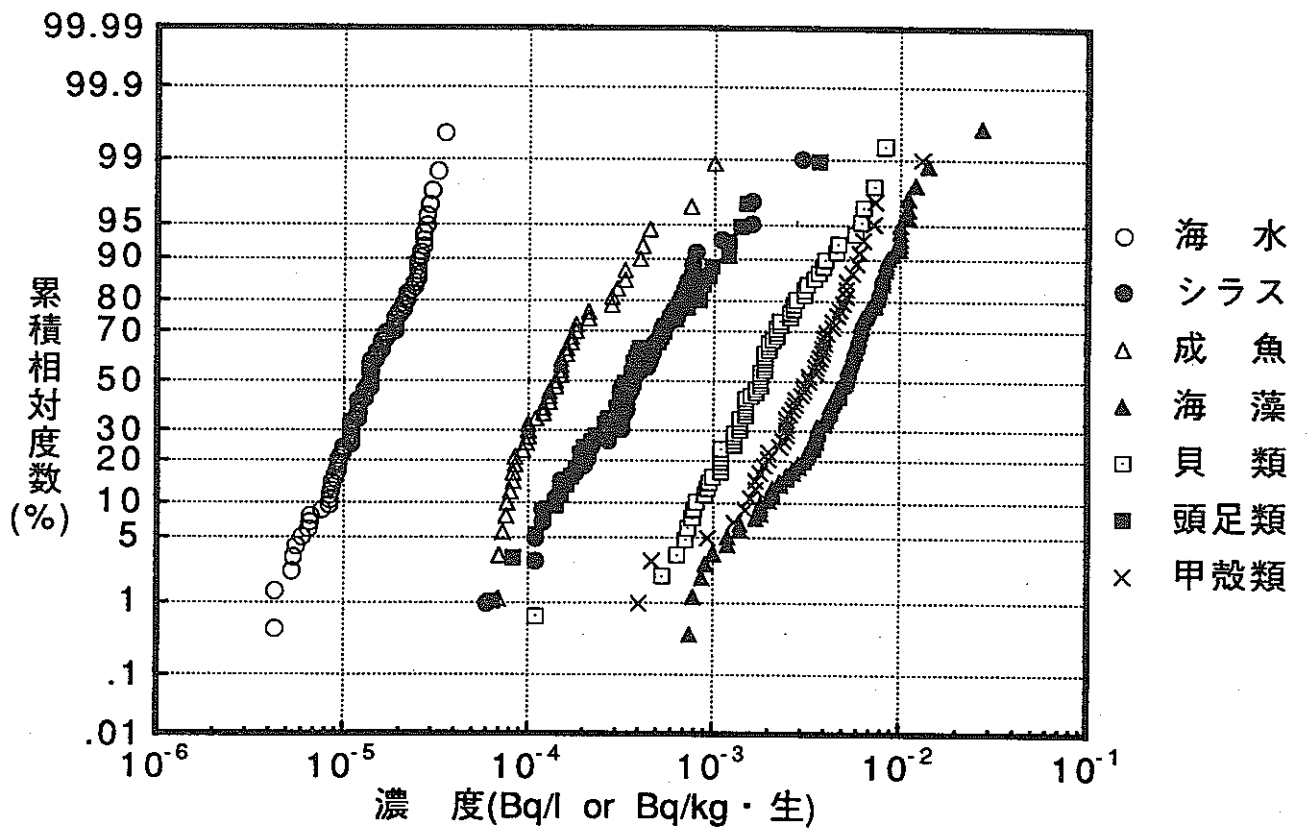


図-4 海洋環境中Pu-239,240濃度の対数正規確率プロット

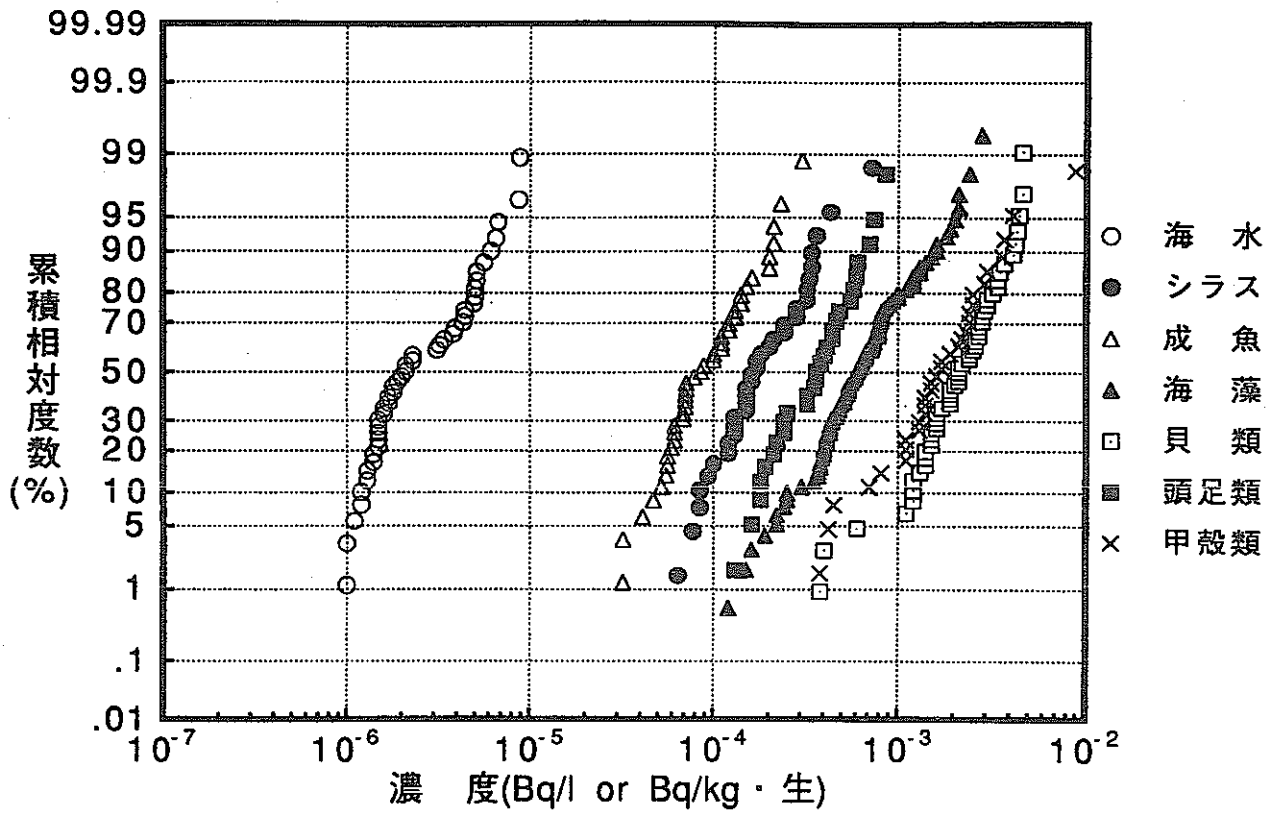


図-5 海洋環境中Am-241濃度の対数正規確率プロット

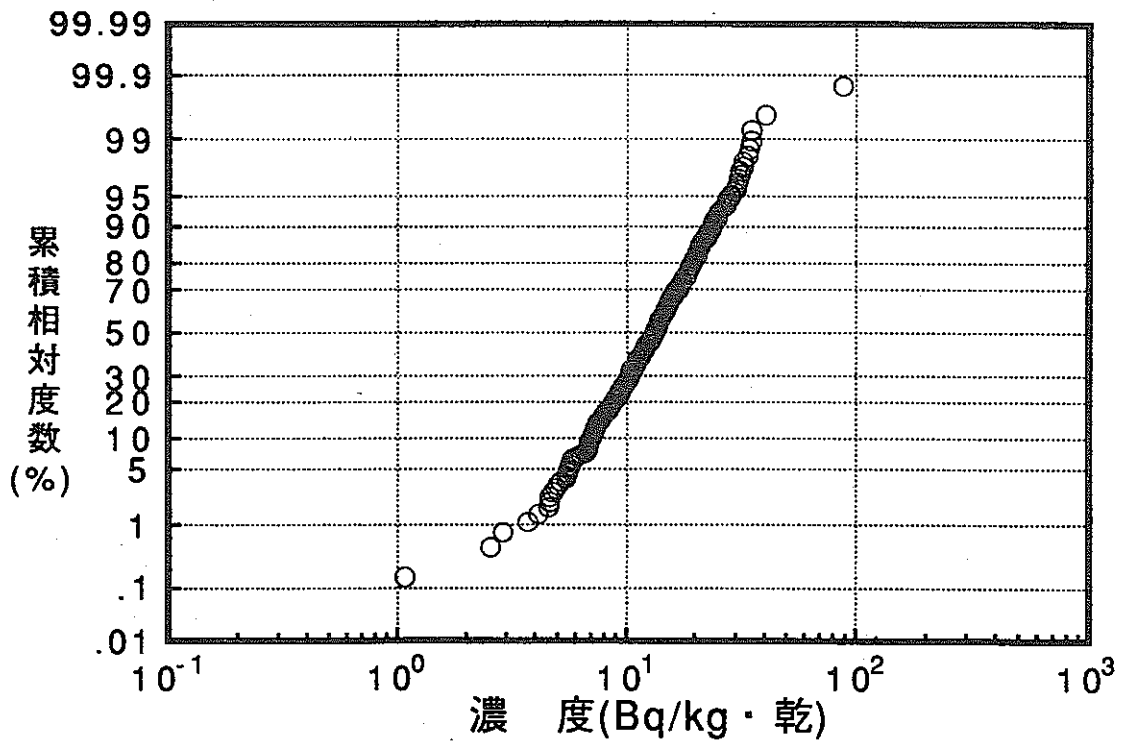


図-6 海底土中Pu-239,240濃度の対数正規確率プロット

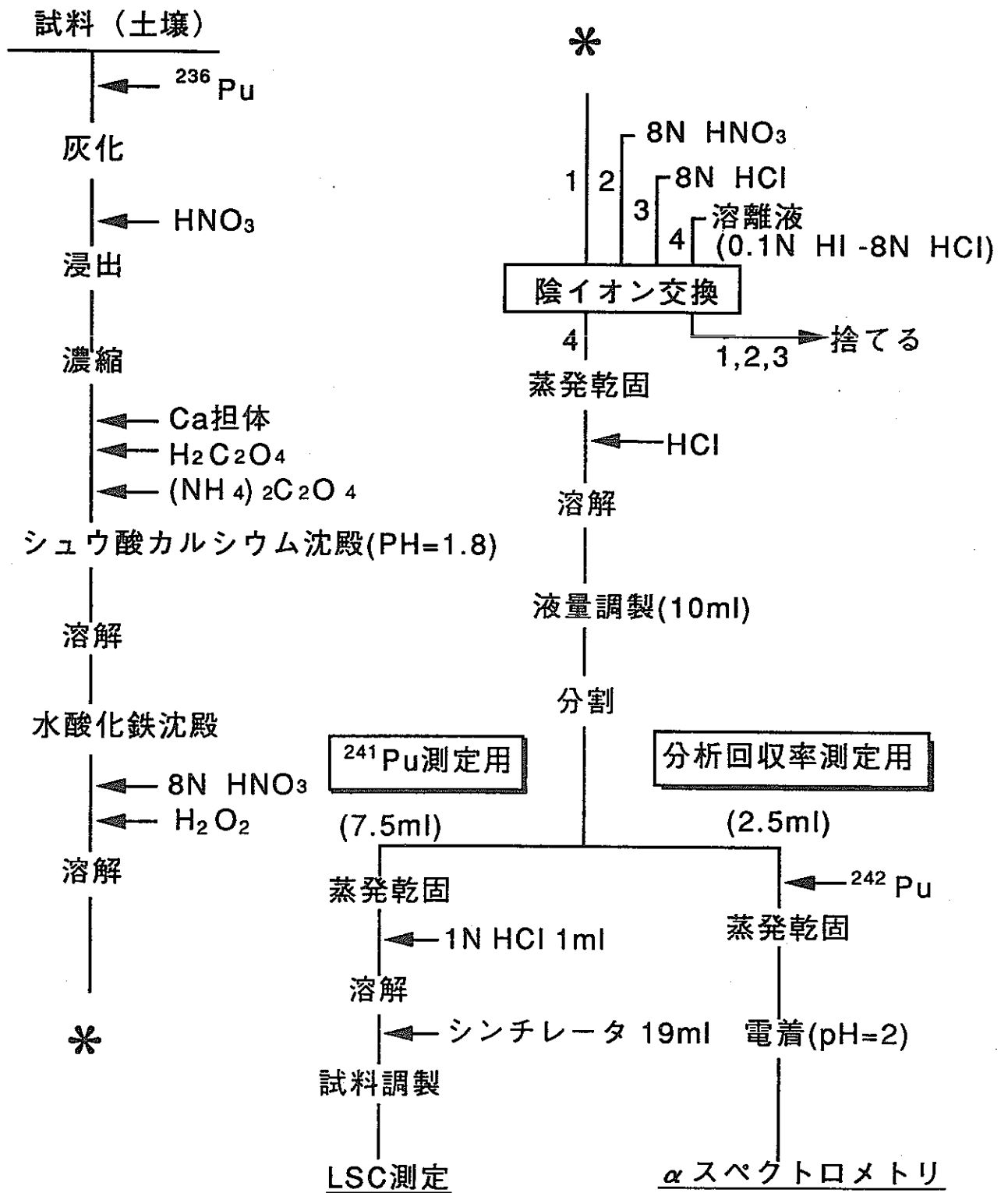


図-7 土壤中Pu-241の分析手順

表-1 海産生物の濃縮係数

	濃 縮 係 数 (Bq/g/Bq/cm ³)					
	シラス	成 魚	褐 藻	貝 類	頭足類	甲殻類
P u	33 (100)	13 (100)	360 (3000)	150 (200)	35 (200)	240 (400)
A m	68	35	250	740	130	650

注) () は安全審査に用いられた値

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{海産生物中濃度 (Bq/g)}}{\text{海水中濃度 (Bq/cm}^3\text{)}}$$

表-2 東海村周辺の土壌中プルトニウム濃度及び

²⁴¹Pu/^{239,240}Pu放射能比

採取場所	採取年月	^{239,240} Pu濃度 (Bq/kg・乾土)	²⁴¹ Pu濃度 (Bq/kg・乾土)	²⁴¹ Pu/ ^{239,240} Pu 放射能比
A	1985/11	1.3 ± 0.1	4.6 ± 0.1	3.5
B	1985/11	0.2 ± 0.02	0.64 ± 0.09	3.3
C	1986/ 1	0.15 ± 0.01	0.57 ± 0.09	3.8
D	1985/11	0.15 ± 0.01	0.6 ± 0.08	4.1
E	1986/11	0.86 ± 0.03	2.9 ± 0.1	3.4
F	1986/11	0.47 ± 0.02	2.1 ± 0.1	4.4
G	1986/11	0.18 ± 0.02	0.75 ± 0.09	4.3
平 均				3.8

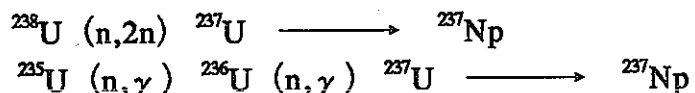
環境試料中ネプツニウム-237の測定法に関する研究

安全管理部環境安全課

森田重光、圓尾好宏、坏 憲、篠原邦彦

I. 研究内容

ネプツニウム-237 (^{237}Np)は原子炉において、以下の反応によって生成される。



この ^{237}Np の半減期は 2.1×10^6 年と極めて長く、高レベル放射性廃棄物の地層処分に係る環境影響評価を行う上で重要な核種であるが、環境中における濃度は極めて低く、測定が困難であるため研究例は少ない。

そこで、本研究では、 α 線スペクトロメトリ及び誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)を用いた高感度分析法を検討し、検出下限値の向上及び分析時間の短縮を図った。

また、環境試料中の ^{237}Np を定量するためには、多量の試料が必要となるので、 ^{99}Tc や $^{239,240}\text{Pu}$ との系統分析法を検討した。

II. 研究成果

1. α 線スペクトロメトリによる定量

^{237}Np は α 放射体であり、 α 線スペクトロメトリによる定量が可能であるが、 ^{237}Np と同じエネルギーの α 線を放出する妨害核種が存在するとピークが重なり、弁別が不可能になる。

このため、以下に示す検討を行い、妨害核種を除去した。

(1) 環境試料の前処理

環境試料中の ^{237}Np を、効率良く濃縮する方法を検討した。その結果、水酸化鉄共沈を生成させた後に、イソプロピルエーテルで鉄を除去すると効率よく濃縮できることが判明した。

この前処理法の場合、 ^{237}Np の原子価調整(IV価)が不十分であると、鉄と共に ^{237}Np がイソプロピルエーテル相へ移行し、回収率が著しく低下する。そこで、原子価をIV価に調整する方法を検討した。

その結果、還元剤としてスルファミン酸第1鉄を用いると、100%近くIV価に還元調整できることが判明した。

(2) 回収率トレーサの検討

γ 線を放出し、かつ回収率トレーサとして適当な半減期を持つNpの同位体を調べたところ、 ^{239}Np ($T_{1/2}: 2.35\text{d}$)が最適であることが判明した。 ^{239}Np は ^{243}Am が

α 壊変し生成される。そこで、 ^{243}Am からミルキングして利用することにした。 ^{239}Np の分離・精製法を図-1に示す。

(3) 妨害核種の除去

^{237}Np を α 線スペクトロメトリで定量する際妨害となる核種はウラン(U)である。

そこで、Uを効率よく除去するため、以下の方法について検討した。

(i) 陰イオン交換法

硝酸系、塩酸系、酢酸系など種々の溶液系でのNpとUの樹脂への吸着特性を検討した。

その結果、酢酸溶液系に調整した試料溶液を陰イオン交換樹脂に通すと、Npは交換基と反応を起こさず通過するが、Uは高効率で交換基と反応を起こし溶出してこないことがわかった。

(ii) 溶媒抽出法

種々の溶媒を用いてUを除去する方法を検討したところ、IV価のNpは、TTAキシレンによって抽出されるが、Uはほとんど抽出されないことがわかった。除染係数は 1×10^4 であった。

以上の検討から、陰イオン交換法及びTTAキシレン抽出法を組み合わせた定量法を開発した。

この分析法におけるUの除染係数は 10^6 以上であり、Uの影響を除去することが可能になった。

2. 系統分析法の開発

環境試料中の ^{237}Np を定量するためには、多量の試料が必要となるので、限られた試料を有効に利用するために、 ^{99}Tc や $^{239,240}\text{Pu}$ との系統分析法を検討した。

(1) ^{99}Tc の分離

水酸化鉄共沈法を用いると、Npを含む多くの核種は沈澱するが、 ^{99}Tc は水相に残存する。

このため、水酸化鉄共沈法による ^{99}Tc の分離法を検討した。

(2) $^{239,240}\text{Pu}$ の分離

硝酸系陰イオン交換樹脂に試料溶液を通した後、10M-HCl+0.1M-HI混合溶液を溶離液としてカラムに通すと $^{239,240}\text{Pu}$ が溶出し、1M-HCl+0.1M-HF混合溶液を溶離液として通すと ^{237}Np が溶出する。このため、 $^{239,240}\text{Pu}$ の分離は陰イオン交換法で行うことにした。

以上の結果から、図-2に示す系統分析法を開発した。なお、本法で定量した場合の ^{237}Np の検出下限値は、水試料10l、回収率80%、測定時間20万秒の場合 $4.5 \times 10^6 \text{Bq}$ であった。

3. 誘導結合プラズマ質量分析法による定量

誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)は、検出感度、分解能、精度等がいずれも

高く、さらに、測定時間が短いという優れた特徴を持つ分析法である。

特に、高質量領域では検出感度が極めて高く、半減期が 1×10^4 年以上の核種は、放射能測定法よりもよい検出下限値が得られると試算される。そこで、ICP-MSによる定量を検討した。

妨害核種の除去法は「 α 線スペクトロメトリを用いた定量法」に準じるが、さらにUを除去するために、酢酸系の陰イオン交換カラムを2段とした。

人工海水に ^{237}Np を添加した模擬試料を調製し、分析した結果、検出感度は従来の放射能測定法と比べ10倍以上向上し、検出下限値は、水試料1 l、回収率80%、測定時間20秒の場合、 $3.9 \times 10^9 \text{Bq}$ であった。

III. まとめ

環境中での ^{237}Np の挙動を把握するためには、高感度な定量法の開発が必要であり、本研究により、その定量法が確立された。その概要を以下に示す。

1. ^{237}Np を α 線スペクトロメトリを用いて定量する際、妨害となるUの除去法について検討した。その結果、TTA抽出法及び酢酸系の陰イオン交換法を組み合わせることにより、 10^6 という高い除染係数が得られることが判明し、定量が可能となった。
2. 限られた試料を有効に利用するために、 ^{99}Tc や $^{239,240}\text{Pu}$ との系統分析法を検討した。その結果、 ^{99}Tc は水酸化鉄共沈法を、また、 $^{239,240}\text{Pu}$ は陰イオン交換法を用いると効率良く ^{237}Np から分離できることが判明した。
3. ICP-MSによる定量法を検討した。その結果、従来の放射能測定法と比べ、検出感度は10倍以上向上し、また測定時間も1/10,000程度に短縮できた。

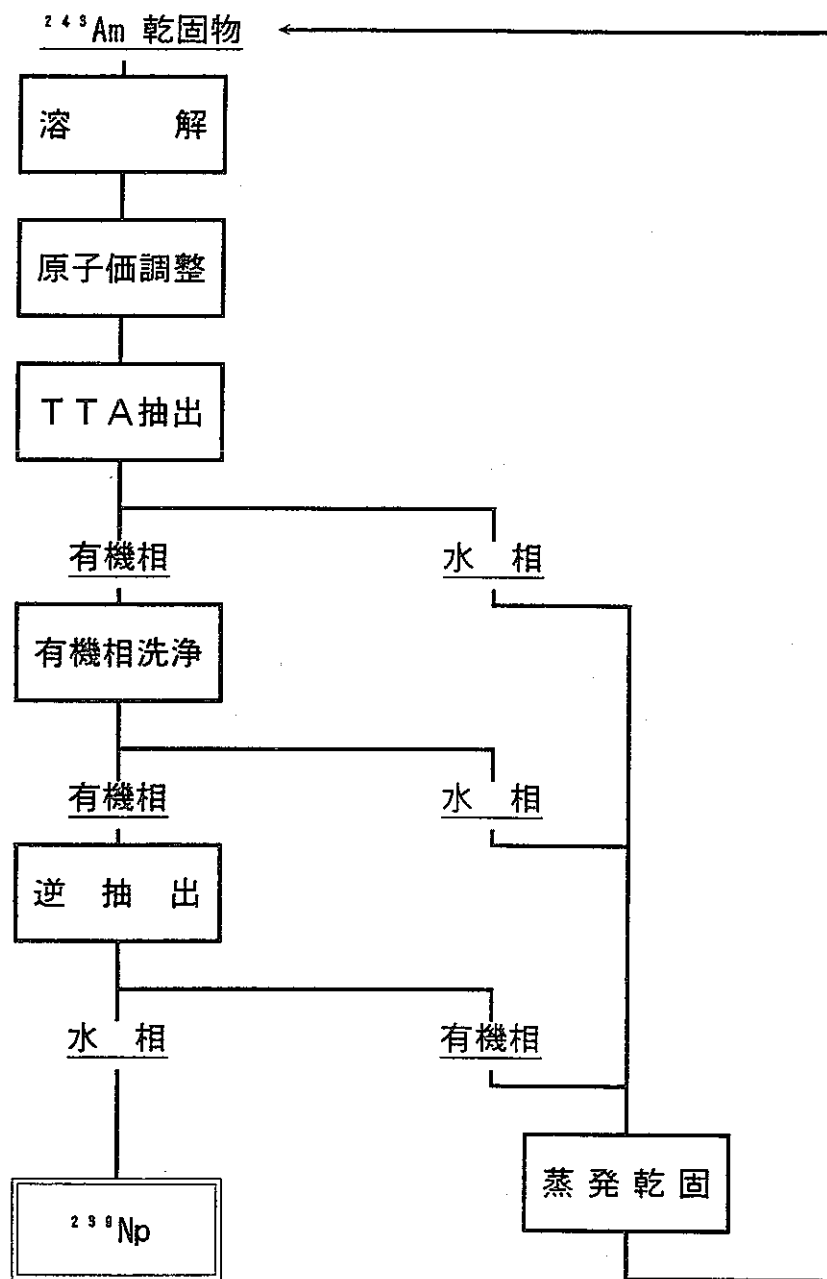


図 - 1 ^{239}Np の分離・精製法

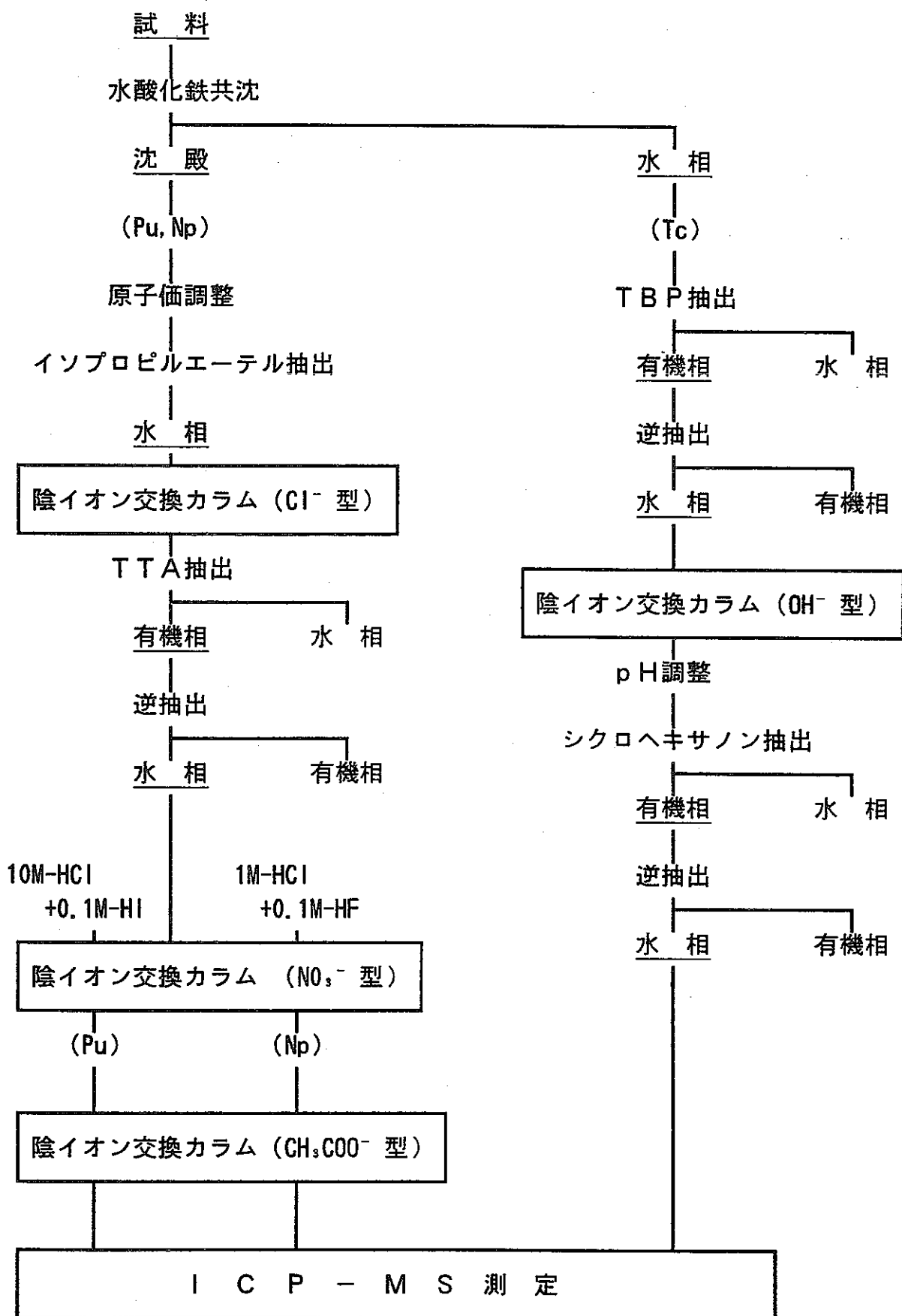


図 - 2 環境試料中 ^{99}Tc , $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{237}Np の系統分析法

海洋における放射性物質の移行に関する研究 —海洋における放射性物質移行モデルの検討—

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所安全管理部環境安全課

叶野 豊、飛田和則、篠原邦彦

I. 研究の概要

原子力施設から海洋へ放出された放射性物質に起因する被ばく線量の評価に際しては、海水中での拡散を評価することはもとより、施設固有の長寿命放射性物質の海底土への移行/蓄積を考慮する必要がある。このため、拡散過程での海水中に浮遊した堆積物や海底土との吸着/脱離の相互作用を考慮した放射性物質の移行の評価が可能なモデルを整備する必要がある。

モデル化に当たっては、米国バテル研究所で開発された移行・蓄積モデルFETRAをもとに波浪モデルLO3D、流れ場モデルCAFE-1を組み合わせ、海洋環境に対応できるモデルを整備した。

また、簡易評価法としてボックスモデルMARINRADについて検討した。

II. 研究成果

1. FETRA-PNC

米国バテル研究所において開発されたFETRA¹⁾は、流れについてはプログラム内で扱っていないため、他モデルから入力する必要がある。開放系の水域である海洋の放射性物質の移行を考えた場合、海域の流れ、波、風のような動的な外力から大きな影響を受けるため、波浪モデルLO3D、流れ場モデルCAFE-1及び移行解析モデルFETRAの3つの基本モデルから構成されるFETRA-PNC^{2), 3)}を整備した。図-1にFETRA-PNCの構成を示す。このFETRA-PNCの各モデルは以下のとおりである。

(1)波浪モデル LO3D

このモデルは、風向、風速、水深に基づき、波の屈折、碎波、振幅等波浪による沿岸海域で放射性物質の拡散、堆積物の攪乱等を解析するものである。

深海域においては、海底に勾配がついていたり、大小の凹凸があっても波に影響を及ぼすことは考えられないが、浅海域においては、海底勾配、あるいは砂粒子自身や砂礫などによる海底の凹凸によって波が変形することが考えられる。また、沿岸域における碎波時には堆積物を輸送するエネルギーとして影響する。

実際の波は多数の成分波が重合した不規則波であるが、LO3Dでは不規則波を単一の有義波で代表させ、規則波として取り扱っている。

(2)流れ場モデル CAFE-1

このモデルは非定常粘性流体の流れを解析するものであり、風による吹送流、潮汐による水位変動、コリオリの力等を含んでおり、定常流として恒流を入力す

ることもできる。

基本的考え方は、沿岸域では、波の波長は水の深さに比べて十分大きいと仮定し、上下方向の運動は小さいとする。各変量は垂直方向に平均化した量に変換し、二次元流れ場の連続の式と運動量保存式を導出し、これを基本式としている。本モデルでは有限要素方程式に基づき各計算接点における海域の流れを計算し、この結果がF E T R Aに反映される。

(3)移行・蓄積モデル F E T R A

放射性物質の移行・蓄積モデルF E T R Aは、3つのサブモデルから成っている。サブモデル毎に入力すべきパラメータは異なるが、放射性物質の放出率、海水中浮遊物あるいは海底土との吸着/脱離等を考慮して計算している。

各サブモデルのメカニズムは以下のとおりである。

(i)砂、シルト等の海洋中に浮遊している堆積物の移行サブモデル

- (a)海底体積物の移流・拡散
- (b)沈殿と凝集
- (c)海底への沈降と海底からの脱離
- (d) sedimentの流入と混合

(ii)海水中に溶存している放射性物質の移行サブモデル

- (a)放射性物質の移流・拡散
- (b)浮遊物との吸着・脱離
- (c)放射性崩壊等による減衰
- (d)放射性物質の流入と混合

(iii)両者の相互作用を考慮したサブモデル

- (a)放射性物質の移流、拡散
- (b)海水中浮遊堆積物あるいは海底土との吸着・脱離
- (c)放射性崩壊等による減衰
- (d)海底土への沈降と海底土からの脱離
- (e)放射性物質の流入と混合

2. MARINRAD

海洋放出に伴う評価モデルとして非定常解析モデルF E T R A - P N Cの整備と並行して簡易評価モデルのMARINRAD⁴⁾について検討した。

このモデルは放射性物質の海洋放出に伴う海洋中での移行、被ばく経路への移行及びそれらの摂取等による被ばく線量を計算するためのボックスモデルであり、汚染あるいは被ばくの程度の概略を把握するものである。

MARINRADは、図-2に示すように海洋移行モデル及び食物連鎖モデル並びに被ばく評価モデルの3つのサブモデルから構成されている。海洋移行モデルは、海水およびsediment間の移行をボックスモデルにより解析し、食物連鎖モデルについても同様に生物濃縮を解析するものである。被ばく評価経路としては、海産生物の摂取、塩分を除去した後の飲料水の摂取、海岸砂からの被ばく等を対象としている。

MARINRADでは、海洋を海水と海底土のコンパートメントに分けて取り扱う。各コンパートメント内では一様に混合されていると仮定し、各コンパートメント間の放射性物質の移行は物質収支を計算することにより求められる。

3. 計算結果の比較

FETRA-PNCの有限要素（六接点三角要素）とMARINRADコンパートメントを図-3に、また各々の計算結果の比較を図-4に示す。海水中放射性物質濃度の計算結果を比較したところ、初期濃度の立ち上がりは異なるが、日数の経過に従って、同じコンパートメントの濃度は近い値になる。また、海底土中放射性物質濃度の計算結果の比較もほぼ同様の傾向を示している。

このことから、長期的な影響評価においては、簡易モデルによっても解析可能なことがわかった。

4. まとめ

FETRA-PNCを整備したことにより、海域における非定常流を解析することができ、海水中放射性物質の移行解析が可能となった。また、簡易評価モデルMARINRADもケーススタディの際に必要なオーダーの評価には有効であることが確認できた。

これらの評価コードは、今後の環境安全設計に十分適用できると考える。

III.参考文献

- 1) Yasuo Onishi, F.L.Thompson ; Mathematical Simulation of Sediment and Radionuclide Transport in Coastal Water ; NUREG/CR-2424 (1984)
- 2) 浅野智宏 ; 「海洋における放射性物質移行モデルの検討」 ; 動燃技報No.56 (1985年12月)
- 3) 浅野智宏、篠原邦彦、岡 努、岩井 誠 ; 「海洋における放射性物質移行モデルの検討」 ; 日本保健物理学会第20回研究発表会要旨集 (1985年 5月)
- 4) User's Guide to MARINRAD ; Model for Assessing the Consequences of Release of Radioactive Material into the Ocean ; SAND-83-7104 (1984)

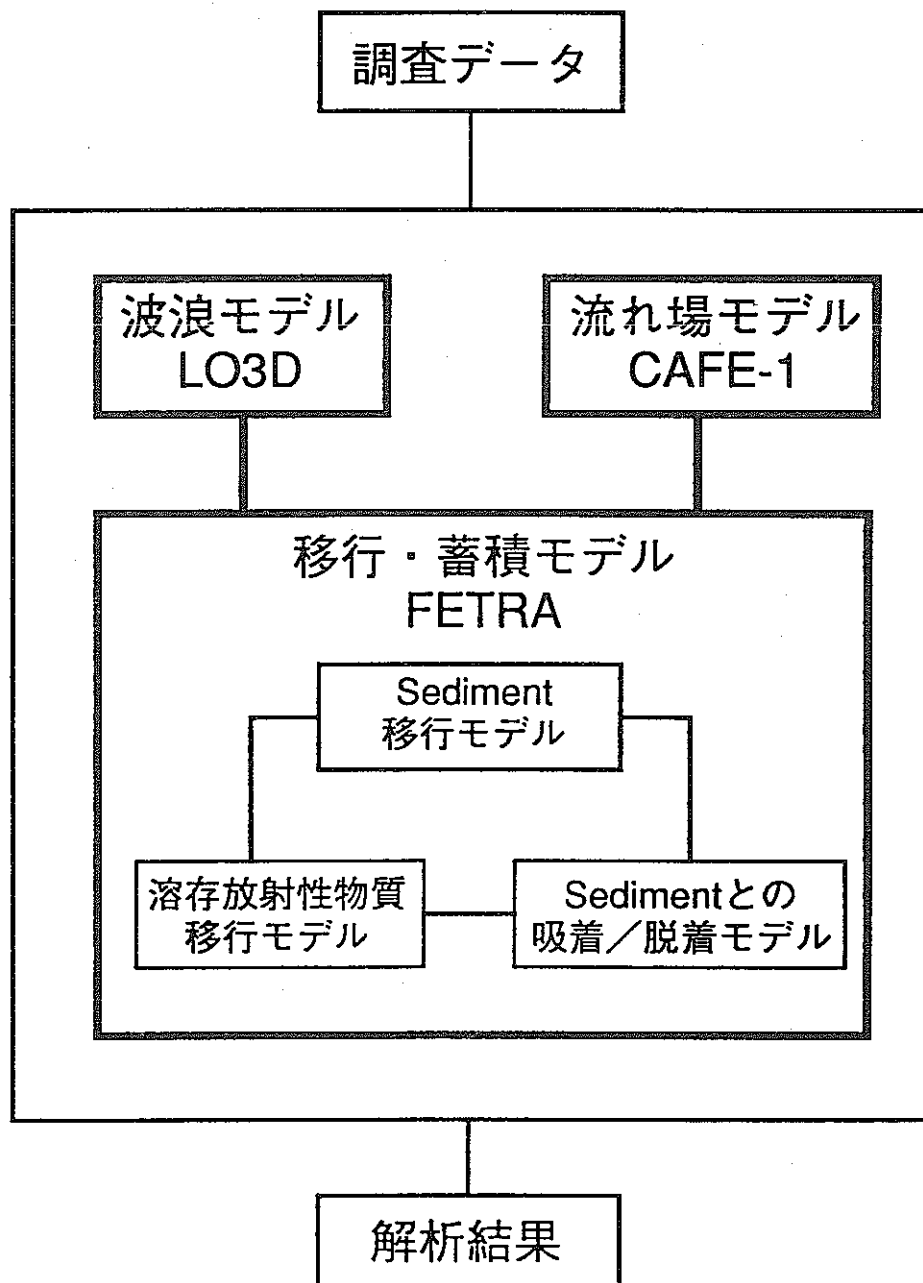


図-1 FETRA-PNCの構成

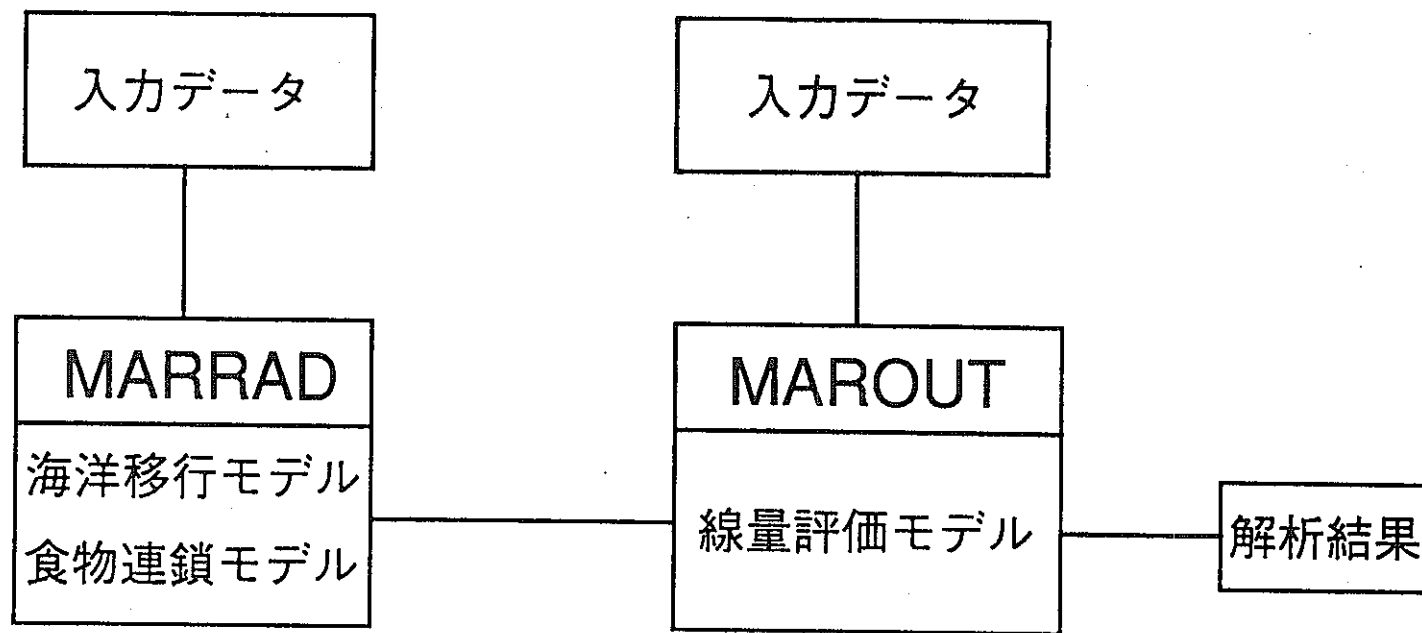


図-2 MARINRADの構成

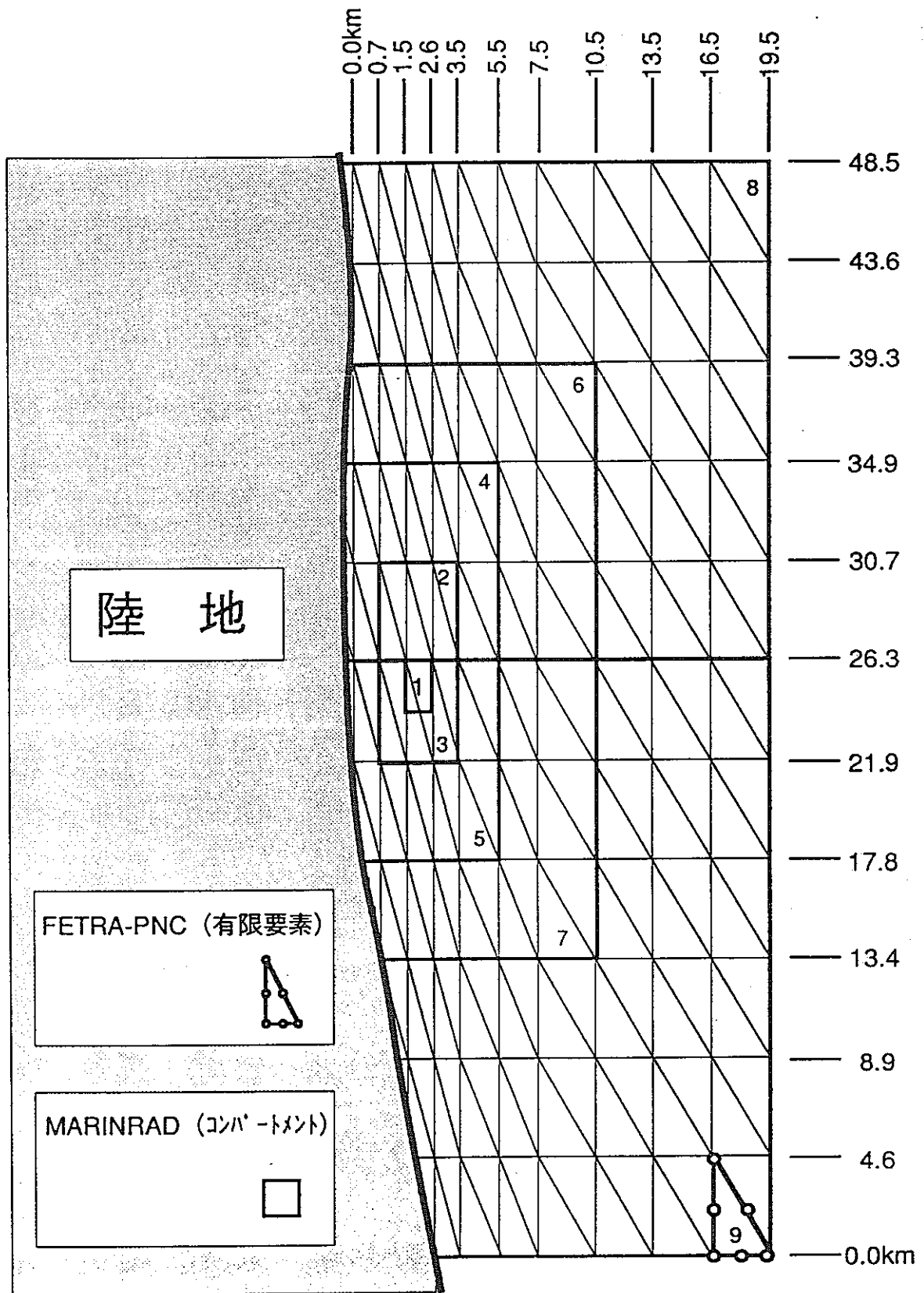


図-3 FETRA-PNCの有限要素と
MARINRADのコンパートメント

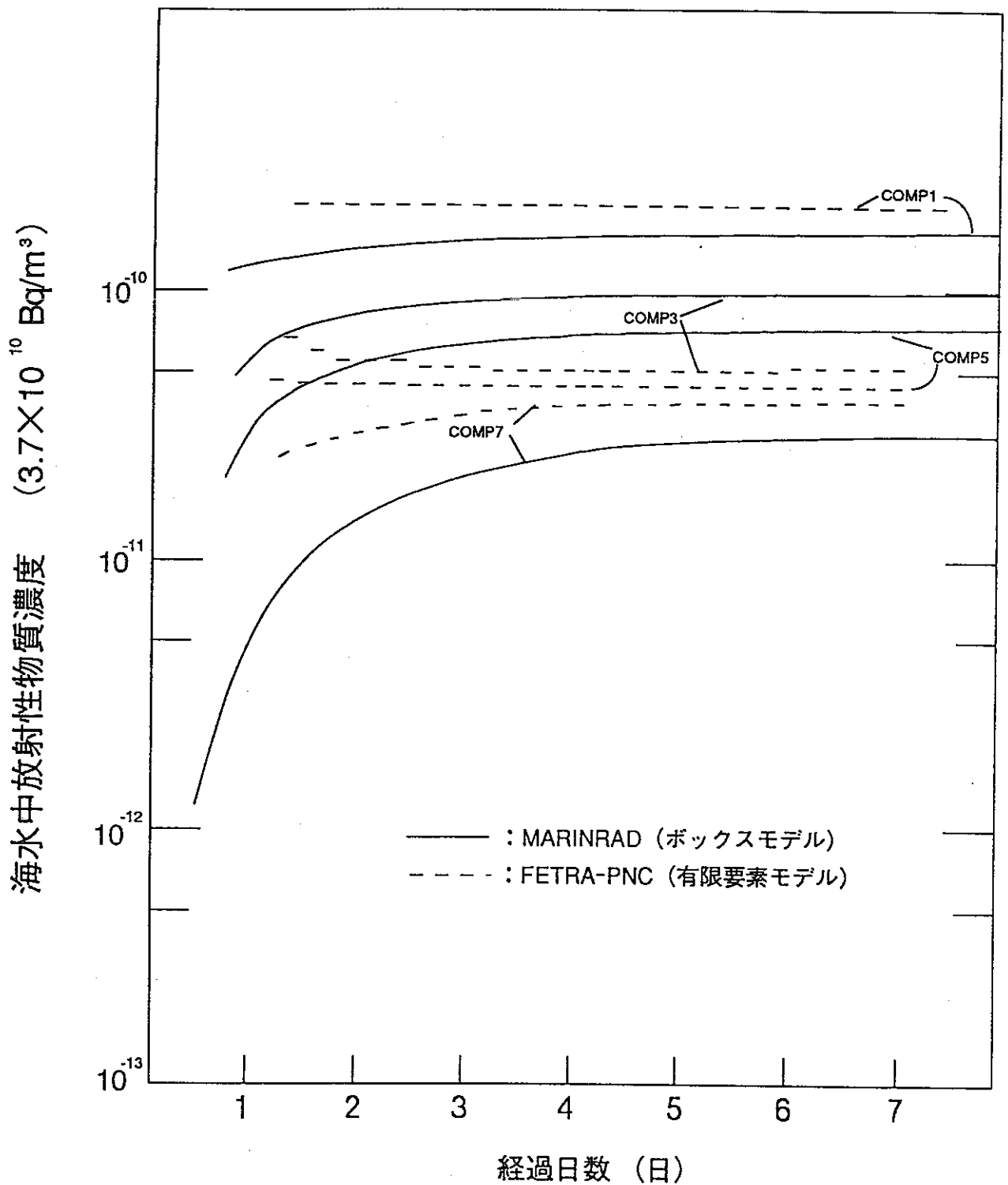


図-4 FETRA-PNCとMARINRADとの
海水中放射性物質の計算結果の比較

放射性物質の海洋放出に伴う被ばく線量評価法に関する研究

安全管理部環境安全課

住谷秀一、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

海洋に放出された放射性物質は、海水による希釈・拡散の後、海産生物に移行し、その後食物連鎖を経由して人に摂取される可能性がある。このため、一般公衆の線量当量評価の観点から、海洋環境中での放射性物質の挙動を把握することが必要である。

本研究では、東海村周辺海域で採取した海産生物（シラス、成魚、海藻、貝類、頭足類、甲殻類）を対象とし、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 等の放射性核種の濃縮係数及び東海村周辺の世帯を対象とした海産物の消費実態に関して、実測データを中心として調査した。

II. 研究成果

1. 海産生物の濃縮係数の調査

再処理施設からの海洋放出放射能に起因する線量当量評価において、重要なパラメータの一つである海産生物の濃縮係数について調査した。

海産生物の濃縮係数は、操業前モニタリングにおいて東海村沖合の海域で採取した海産物の測定結果から計算し、施設周辺の環境条件に特有なパラメータとして評価に用いてきた。今回、操業前モニタリング結果も含め、それ以降の海水及び海産生物中放射性物質濃度の測定結果を総合的に整理し、海産生物の濃縮係数について再調査した。

(1) 調査方法

海洋中に放出された放射性物質は、海水及び海産生物、懸濁物質、海底土、海岸砂等に移行・分配される。

ここでは、フォールアウト核種である ^{90}Sr 、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 、 ^{106}Ru 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am を対象に、1972年から1986年までの海水及び海産生物の分析データから濃縮係数を算出した。

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{海産生物（可食部）中の核種濃度の平均値（Bq/kg生）}}{\text{海水中の核種濃度の平均値（Bq/l）}}$$

(2) 調査結果及び評価

(i) 海水及び海産生物中放射性物質の濃度

調査期間内における海水及び海産生物中放射性物質の濃度を、表-1及び表-2に示す¹⁾。また、海水及び海産生物中 ^{137}Cs 濃度の対数正規確率プロット及

び海藻中¹³⁷Cs濃度の経年変化を図-1及び図-2に示す。図-1の分布状況から海水及び海産生物中¹³⁷Csの濃度データは、対数正規だと見なすことが妥当であると考えられる。また、図-2から海藻中¹³⁷Cs濃度は減少傾向にあることが分かった。これらの傾向は、他の核種及び試料においても同様の傾向を示すことを確認した。

(ii)海産生物の濃縮係数

海水及び海産生物中の平均核種濃度を基に算出した海産生物の濃縮係数を表-3に示す¹⁾。また、これまで線量当量評価に用いてきた濃縮係数及び他の研究機関による報告値²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾との比較を表-4に示す。本研究で得られた海産生物の濃縮係数において、これまで評価に用いてきた値と比較して大きな値が得られたものは、成魚、貝類、頭足類のSr及びシラス、貝類、紅藻のCsであるが、いずれもファクター2以下の違いであった。他の濃縮係数については、いずれも従来値に比べ小さい値が得られた。しかし、濃縮係数の算出に用いたデータの変動範囲を考慮すると、これまで用いてきた値を線量当量評価に用いることに特に問題はないものと考えられる。また、今回の調査により、これまでまとめられていなかったAmの濃縮係数についてもフィールドデータを基に算出することができた。

2. 海産物の消費実態調査

(1)調査方法

放射性液体廃棄物の海洋放出に起因する周辺公衆の線量当量を評価するには、対象となる地域の実態調査を実施することが重要となる。このため、放射線医学総合研究所那珂湊支所の協力により、大洗及び那珂湊の漁業者のうちでも特に海産物を多く摂取すると考えられる漁業世帯及び海産物摂取の態様が平均的であると考えられる東海村の非漁業世帯を対象として消費実態調査を実施した。

(2)調査結果及び評価

調査結果を図-3に示す。漁業世帯の海産物の純摂取量は、過去の漁業世帯を対象とした調査結果と比較して増加の傾向が見られたが、カツオ、マグロ等の回遊魚の摂取量の増加によるものであり、線量当量評価上は考慮の対象ではなく、評価の対象となる海域で漁獲された海産物の消費量は、むしろ減少傾向にあることが分かった⁶⁾。また、非漁業世帯では、約120g/日/人であり、厚生省による統計調査の結果⁷⁾とほぼ同程度の値となっていることが分かった。

以上のことから、線量当量評価に用いる海産物の摂取量としては、これまで安全評価に用いてきた値(260g/日)を変更する必要はないものと考えられる。

III. 参考文献

- 1) Naomi Hayashi, Yoshihiro Maruo, Hiromi Katagiri and Kunihiko Shinohara; Study on the Behavior of Radionuclides in Marine Environment under the Monitoring Program of the Tokai Reprocessing Plant, Proceedings of RECOD '91, 1991.
- 2) U.S. Nuclear Regulatory Commission; Regulatory Guide 1.109, Rev.1, Calculation of

Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I, 1977.

- 3) P.J.Coughtrey et.al.; Radionuclides Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystem Vol.1~Vol.6, Commission of the European Communities, A.A.BALKEMA/ROTTERDAM/BOSTON, 1983~1985.
- 4) 原子力安全委員会；発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針、平成元年3月改訂
- 5) IAEA; Sediment Kds and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment, IAEA TECHNICAL REPORTS SERIES No.247, VIENNA, 1985.
- 6) 住谷みさ子、黒沢陽子、大桃洋一郎；茨城県沿岸原子力施設周辺住民の食品消費実態調査、日本放射線影響学会第30回大会講演要旨集、昭和62年11月.
- 7) 厚生省保健医療局健康増進栄養課編；平成元年度版 国民栄養の現状、平成元年3月.

表 - 1 海水中放射性物質濃度

核種	データ数	濃 度 (Bq / ℓ)			
		範	囲	算術平均	幾何平均
Sr-90	273	2.7 E-3	~ 3.3 E-2	8.5 E-3	7.4 E-3
Zr-95	73	3.7 E-4	~ 1.3 E-2	2.8 E-3	2.0 E-3
Nb-95	64	3.7 E-4	~ 6.3 E-2	5.6 E-3	3.4 E-3
Zr/Nb-95 *	62	7.4 E-4	~ 6.7 E-2	7.4 E-3	5.2 E-3
Ru-106	211	2.7 E-4	~ 6.3 E-2	2.3 E-3	1.5 E-3
Cs-137	268	2.5 E-3	~ 5.6 E-2	9.6 E-3	8.5 E-3
Ce-144	185	1.1 E-4	~ 1.0 E-2	1.7 E-3	1.1 E-3
Pu-239, 240	109	4.3 E-6	~ 3.5 E-5	1.5 E-5	1.4 E-5
Am-241	45	1.0 E-6	~ 8.8 E-6	3.1 E-6	2.5 E-6

* Zr/Nb-95 は、Zr-95及びNb-95 濃度の合計値を示す。

** 採取期間 : Zr-95, Nb-95 ; 1972 ~ 1977
 Sr-90, Ru-106, Cs-137及び Ce-144; 1972~1982
 Pu-239, 240; 1980~1986, Am-241; 1982~1986

表-2 海産生物中放射性物質濃度

海産生物 核種	データ数	濃 度 (Bq / kg・生)		
		範 囲	算術平均	幾何平均
シラス				
Sr-90	71	6.7 E-3 ~ 2.5 E-1	3.4 E-2	2.6 E-2
Zr/Nb-95	12	2.2 E-2 ~ 3.6 E-1	1.9 E-1	1.5 E-1
Ru-106	52	8.1 E-3 ~ 3.4 E-1	4.8 E-2	3.1 E-2
Cs-137	87	8.1 E-2 ~ 7.8 E-1	2.4 E-1	2.2 E-1
Ce-144	59	9.3 E-3 ~ 2.7 E-1	5.6 E-2	3.6 E-2
Pu-239, 240	51	6.0 E-5 ~ 3.0 E-3	5.0 E-4	3.8 E-4
Am-241	34	6.4 E-5 ~ 7.2 E-4	2.1 E-4	1.8 E-4
成魚				
Sr-90	72	6.7 E-3 ~ 1.3 E-1	2.9 E-2	2.3 E-2
Zr/Nb-95	11	3.0 E-2 ~ 5.9 E-1	2.2 E-1	1.4 E-1
Ru-106	43	5.9 E-3 ~ 8.1 E-2	2.0 E-2	1.6 E-2
Cs-137	96	4.4 E-2 ~ 5.6 E-1	2.6 E-1	2.4 E-1
Ce-144	11	5.9 E-3 ~ 6.3 E-2	2.9 E-2	2.1 E-2
Pu-239, 240	45	6.9 E-5 ~ 1.0 E-3	2.0 E-4	1.6 E-4
Am-241	41	3.2 E-5 ~ 3.0 E-4	1.1 E-4	9.1 E-5
褐藻				
Sr-90	64	2.6 E-2 ~ 3.4 E-1	1.3 E-1	1.1 E-1
Zr/Nb-95	17	5.6 E-2 ~ 2.2	6.7 E-1	4.4 E-1
Ru-106	69	3.7 E-3 ~ 1.8	2.7 E-1	1.6 E-1
Cs-137	59	4.4 E-2 ~ 7.4 E-1	2.8 E-1	2.3 E-1
Ce-144	59	2.1 E-2 ~ 1.6	2.1 E-1	1.3 E-1
Pu-239, 240	128	7.8 E-4 ~ 2.7 E-2	5.4 E-3	4.6 E-3
Am-241	87	1.2 E-4 ~ 2.8 E-3	7.6 E-4	6.2 E-4
貝類				
Sr-90	59	5.9 E-3 ~ 2.6 E-1	4.4 E-2	3.3 E-2
Zr/Nb-95	8	4.4 E-2 ~ 6.3 E-1	2.7 E-1	2.1 E-1
Ru-106	85	1.8 E-2 ~ 1.3	3.3 E-1	2.5 E-1
Cs-137	75	2.2 E-2 ~ 7.4 E-1	1.0 E-1	8.5 E-2
Ce-144	91	3.0 E-2 ~ 3.2	4.4 E-1	2.9 E-1
Pu-239, 240	74	1.1 E-4 ~ 8.3 E-3	2.2 E-3	1.8 E-3
Am-241	53	3.8 E-4 ~ 4.6 E-3	2.3 E-3	2.1 E-3
頭足類				
Sr-90	42	6.7 E-3 ~ 1.3 E-1	2.8 E-2	2.1 E-2
Zr/Nb-95	3	7.0 E-2 ~ 5.2 E-1	3.7 E-1	2.6 E-1
Ru-106	34	8.5 E-3 ~ 8.5 E-2	2.8 E-2	2.3 E-2
Cs-137	61	1.4 E-2 ~ 2.3 E-1	9.3 E-2	7.8 E-2
Ce-144	39	9.6 E-3 ~ 1.3 E-1	3.7 E-2	3.0 E-2
Pu-239, 240	48	6.4 E-5 ~ 3.7 E-3	5.3 E-4	3.7 E-4
Am-241	29	1.3 E-4 ~ 8.5 E-4	3.9 E-4	3.5 E-4
甲殻類				
Sr-90	55	5.2 E-2 ~ 5.2 E-1	1.9 E-1	1.6 E-1
Zr/Nb-95	5	7.8 E-2 ~ 5.6 E-1	2.3 E-1	1.9 E-1
Ru-106	49	2.1 E-3 ~ 1.4	2.6 E-1	1.5 E-1
Cs-137	34	1.0 E-2 ~ 2.8 E-1	1.3 E-1	1.1 E-1
Ce-144	50	1.1 E-2 ~ 5.6 E-1	1.5 E-1	1.0 E-1
Pu-239, 240	51	4.0 E-4 ~ 1.3 E-2	3.6 E-3	3.0 E-3
Am-241	32	3.8 E-4 ~ 8.8 E-3	2.0 E-3	1.6 E-3

*採取期間 : Zr-95/Nb-95; 1972 ~ 1977
 Sr-90, Ru-106, Cs-137 及びCe-144; 1972 ~ 1982
 Pu-239, 240; 1980 ~ 1986, Am-241; 1982 ~ 1986

表-3 海産生物の濃縮係数

海産生物		濃縮係数						
		Sr	Zr/Nb	Ru	Cs	Ce	Pu	Am
シラス	算術平均値	4.0	26	21	25	33	33	68
	幾何平均値	3.5	29	21	26	33	27	72
成魚	算術平均値	3.4	30	8.7	27	17	13	35
	幾何平均値	3.1	27	11	28	19	11	36
褐藻	算術平均値	15	91	120	29	120	360	250
	幾何平均値	15	85	110	27	120	330	250
貝類	算術平均値	5.2	36	140	10	260	150	740
	幾何平均値	4.5	40	170	10	260	130	840
頭足類	算術平均値	3.3	50	12	9.7	22	35	130
	幾何平均値	2.8	50	15	9.2	27	26	140
甲殻類	算術平均値	22	31	110	14	88	240	650
	幾何平均値	22	37	100	13	91	210	640

表-4 セシウムの濃縮係数

元素	海産生物	施設操業 前の調査 結果	線量当量 評価に用 いた濃縮 係数	今回調査 した濃縮 係数	U.S.NRC R.G. 1.109 1977年	軽水炉評 価指針 1989年	CEC 1983年	IAEA 1985年	
Cs	魚	シラス	17	20	25				
		成魚	22	30	27	40	30	70 (20~1000)	100 (10~300)
	海藻	褐藻	20	30	29	50 (For Comment 版の値)	20	(乾重量換 算;700)	50 (30~100)
		紅藻	12	10	—				
	軟体類	貝類	6.8	9	10	25	20	20 (20~200)	30 (10~50)
		頭足類	10	10	9.7				10
	甲殻類		11	20	14			20 (20~50)	30 (10~50)

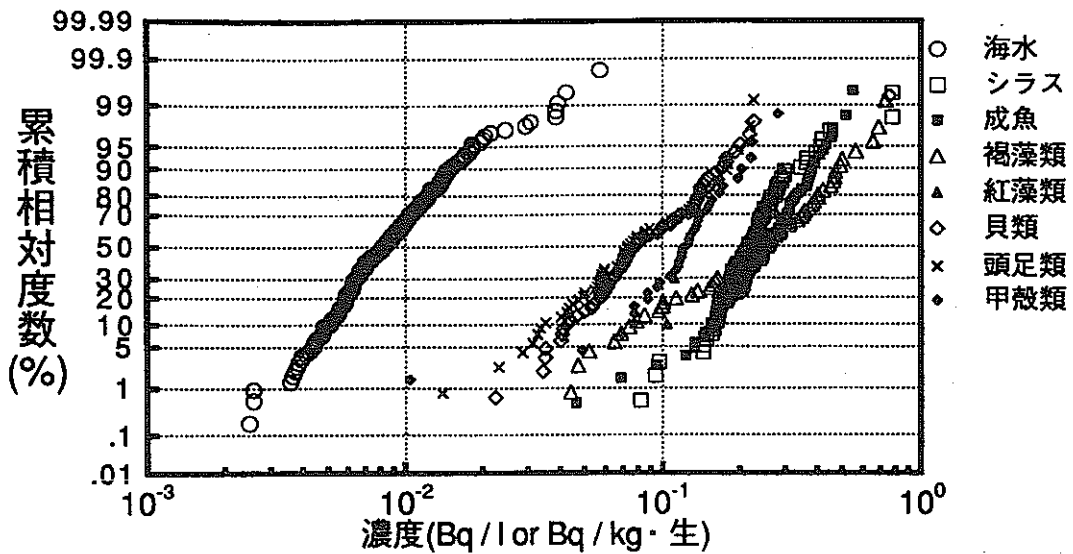


図-1 海洋環境試料中Cs-137濃度測定結果の対数正規確率プロット

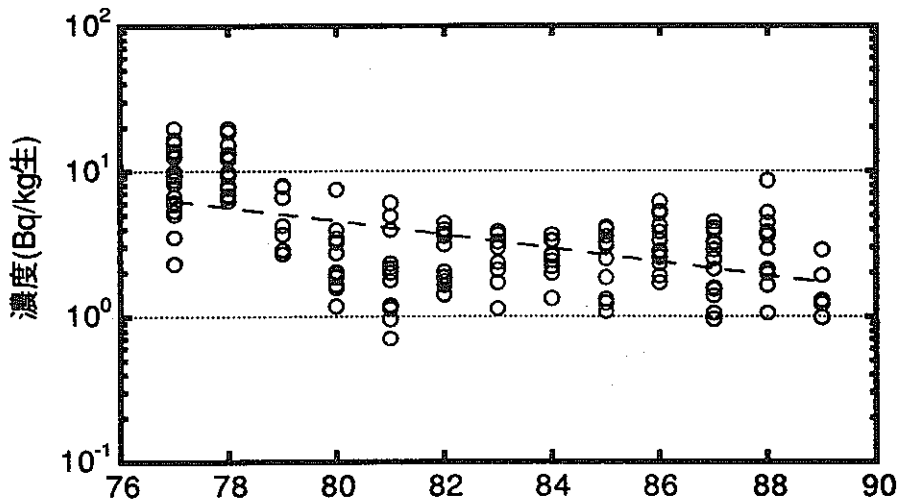


図-2 海藻中Cs-137濃度の経年変化

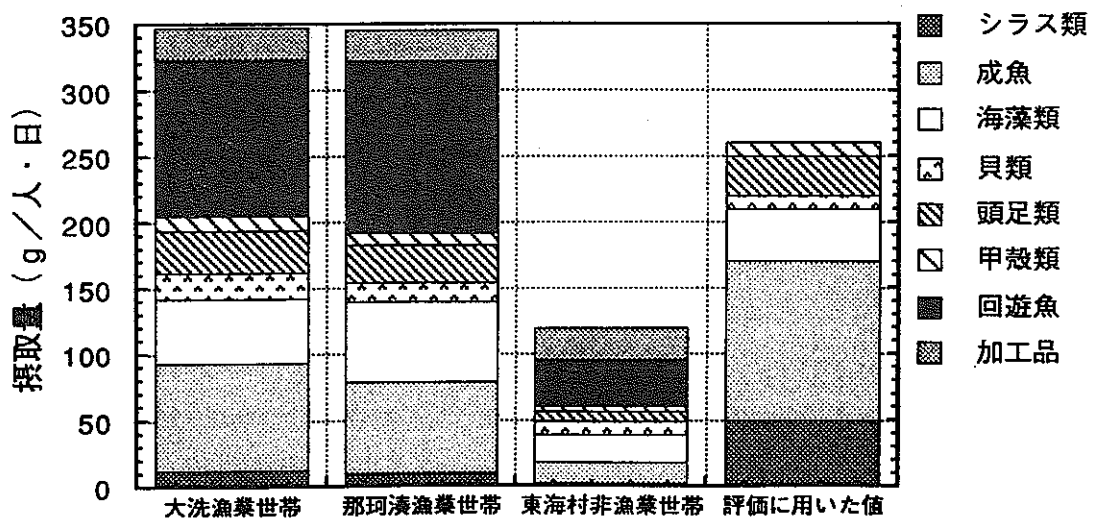


図-3 最近の消費実態調査による摂取量と評価に用いた摂取量の比較

環境中におけるトリチウムの分布と挙動に関する研究

安全管理部環境安全課

住谷秀一、清水武彦、圓尾好宏、篠原 邦彦

I. 研究の概要

環境中のトリチウム濃度を調査し、線量当量評価の基礎データを得るため、環境中におけるトリチウムの分布と挙動に関する以下の研究を実施した。

- (1)大気中のトリチウムを化学形（HTO、HT）ごとに捕集し、大気中トリチウム濃度の水準調査を行う。
- (2)植物（松葉、葉菜）中トリチウムの分析測定法を開発し、植物中トリチウム濃度の水準調査を行う。

II. 研究成果

1. 大気中トリチウム（HTO、HT）の挙動

東海事業所周辺地域（事業所敷地内1点及び敷地外1点）において、水蒸気状トリチウム（HTO）及び水素ガス状トリチウム（HT）の水準調査を行い、大気中トリチウム（HTO、HT）の挙動について調査した。

(1)水蒸気状トリチウム（HTO）の挙動

東海事業所敷地内1点（ST-1）及び敷地外1点（ST-3）における大気中HTO濃度の経年変化を図-1に示す。図から大気中HTO濃度は、両地点とも夏期の多湿時期に高く、冬期の乾燥時期に低くなる傾向を示し、大気中湿分の影響を強く受けていることが分かる。その変動範囲は、 $6.3\sim 110\text{mBq/m}^3$ であった。また、HTO濃度を大気水分で見ると、図-2に示すとおり大気中HTO濃度変化のような明瞭な季節的な変動傾向は見られず、その変動範囲は、 $1.3\sim 7.9\text{Bq/l}$ であった。

年間の大気中及び大気水分中HTO濃度は、図-3及び図-4に示すとおり、それぞれ約 40mBq/m^3 及び約 4Bq/l で、調査期間を通じてほぼ一定であった。

(2)ガス状トリチウム（HT）の挙動

HTOの挙動調査と同地点において測定した大気中HT濃度の経年変化を図-5に示す。HT濃度は、HTO濃度のような季節的な変動傾向は見られず、その変動範囲は $23\sim 89\text{mBq/m}^3$ であった。また、HTの年平均値の経年変化については、図-6に示すように約 50mBq/m^3 の水準にあり、HTO濃度の年平均値よりも若干高めであり、わずかながら経年的な減少傾向が認められた。この傾向は、他の研究機関による調査結果と同様であった¹⁾。

2. 植物中トリチウムの分析測定法の開発及び水準調査

(1)植物中トリチウムの分析測定法の開発

植物中のトリチウムは、水の形態で存在する組織自由水 (TFWT) と有機物の形態で存在する組織結合型トリチウム (TBT) とに大別される。

TFWTは、試料の熱変性を避けるため真空凍結乾燥法を用いて捕集した。捕集した水は低沸点の有機物を含むため、酸化剤を添加して蒸留・精製後、液体シンチレーションカウンタで定量した。捕集水の精製における不純物の影響についての検討結果を図-7に示す。図から過酸化ナトリウムを酸化剤とした蒸留を2回以上行うことにより蒸留水と同様の紫外吸収スペクトルを示すことから、TFWTの精製は、酸化剤を添加して2回以上蒸留することとした。

TBTは、真空凍結乾燥後水分を除去し、その後酸素気流中で燃焼し、発生した水分をコールドトラップした。捕集した試料水は、TFWTと同様に酸化剤を添加して蒸留・精製して、液体シンチレーションカウンタで定量した。捕集水の精製における不純物の影響についての検討結果を図-8に示す。図からTBTの精製は、過酸化ナトリウムを酸化剤とした蒸留を4回又は650℃に加熱した酸化触媒 (酸化銅) への通気でも不十分であり、酸化触媒への通気及び過酸化ナトリウムを酸化剤とした蒸留の併用が有効であることが分かった。しかし、TBTを捕集するための試料の燃焼において、使用する酸素中の不純物であるメタン状トリチウムが影響し、定量値が高めになるとの報告²⁾があることから、試料の燃焼において使用する酸素純度及び酸素使用量について検討した。その結果、表-1に示すように一般に用いられている酸素 (純度: 98%以上) を約700 l使用し試料を燃焼した場合のTBT濃度は、高純度酸素 (純度: 99.99%以上) を約700 l使用した場合又は一般酸素約80 lを使用した場合のTBT濃度より1.5~2倍高めになることを確認し、TBTの捕集における試料の燃焼においては、高純度酸素を使用するか又は酸素使用量の少ないプラズマ灰化燃焼法を用いることが必要であることが分かった。

(2)植物中トリチウムの水準調査

植物中トリチウムの水準調査の対象試料としては、年間を通して試料採取が容易な松葉及び線量当量評価の対象となる葉菜について水準調査を実施した。その結果を表-2に示す。松葉中のTFWT濃度は、2.1~5.6Bq/lで、平均3.6Bq/lであり、葉菜中のTFWT濃度は、1.3~3.8Bq/lで、平均2.8Bq/lであった。また、松葉中のTBT濃度は、4.6~5.4Bq/lで、平均5.1Bq/lであり、葉菜中のTBT濃度は、1.5~5.0Bq/lで、平均2.9Bq/lであった。TFWT濃度に対するTBT濃度の比は、松葉で1.5~2.0 (平均1.7)、葉菜で0.9~1.3 (平均1.2) となり、TBT濃度の方が若干高めの値を示した。TFWT濃度とTBT濃度との比については、他の研究機関でも調査されており、TBT濃度の方が若干高めの値を示したとの報告³⁾があるが、一方では逆にTFWT濃度の方が高めの値を示したとの報告⁴⁾もなされている。今回調査した結果では、TBTの捕集時の試料燃焼に用いる酸素中の不純物の影響により分析件数が少ないこと及び分析値の測定誤差を考慮すると、TBT濃度がTFWT濃度より高い値を示すとは言い切れず、今後さらにデータの収集を図るとともに高感度の測定法の検討が必要と考えられる。

また、TFWT濃度は、周辺環境の大気及び土壌水中のトリチウム濃度並びに相

対湿度に依存し、相対湿度が低い場合には土壌からの寄与が支配的であり、相対湿度が高い場合には大気からの寄与が支配的であると報告されている⁵⁾。しかし、今回調査した松葉中のTFWT濃度は、同時期の大気及び土壌水中トリチウム濃度より若干低い傾向を示しており、松の根域水中トリチウムが表層土壌水中トリチウム濃度より低いことによると考えられる⁶⁾。

III. 参考文献

- 1) 岡井富雄、高島良生；福岡における大気中トリチウムの化学形態別濃度測定、昭和63年度文部省化学研究費補助金 核融合特別研究 環境トリチウムの変動測定とその解析、1989.
- 2) 岡井富雄、高島良生；酸素ボンベガス中に不純物として含まれるメタン状トリチウムの測定、第32回放射化学討論会 講演予稿集、1988.
- 3) 百島則幸、加治俊夫、高島良生；環境トリチウムの動態解明、昭和62年度文部省化学研究費補助金 核融合特別研究 環境トリチウムの変動測定とその解析、1988.
- 4) 井上義和、宮本霧子、岩倉哲夫；原子力施設周辺のトリチウム測定とその解析、昭和63年度文部省化学研究費補助金 核融合特別研究 環境トリチウムの変動測定とその解析、1989.
- 5) 天野 光、笠井 篤；大気放出トリチウムの環境中移行挙動、昭和63年度文部省化学研究費補助金 核融合特別研究 環境トリチウムの変動測定とその解析、1989.
- 6) 片桐裕実、渡辺 均、住谷秀一、成田 脩；環境中でのトリチウムの挙動について、昭和63年度文部省化学研究費補助金 核融合特別研究 環境トリチウムの変動測定とその解析、1989.

mBq/m³-空気
10³

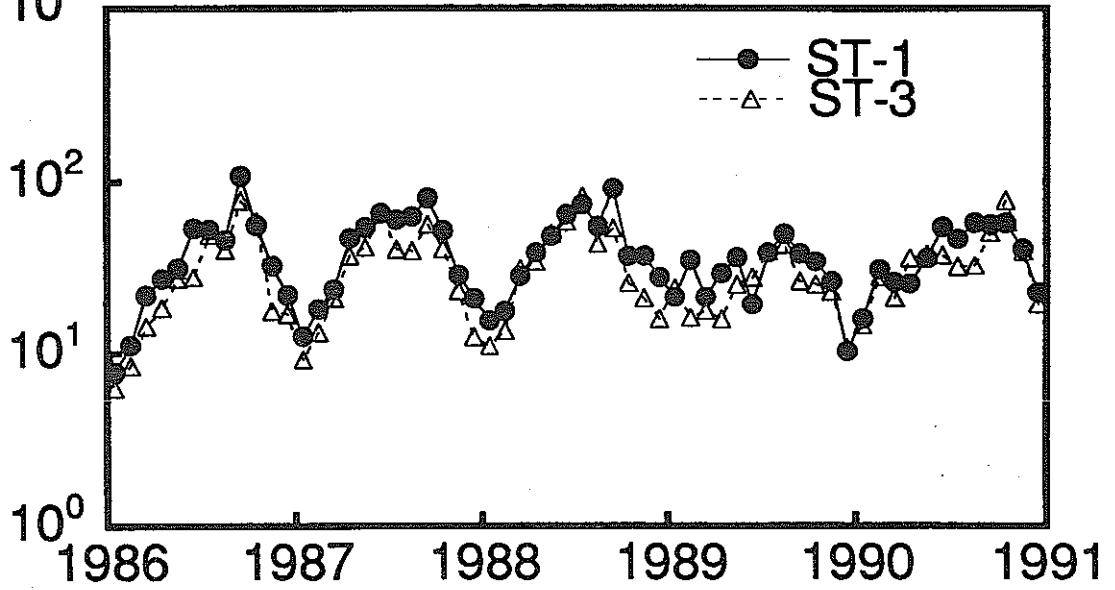


図-1 大気中HTO濃度の経年変化

Bq/l-水
10²

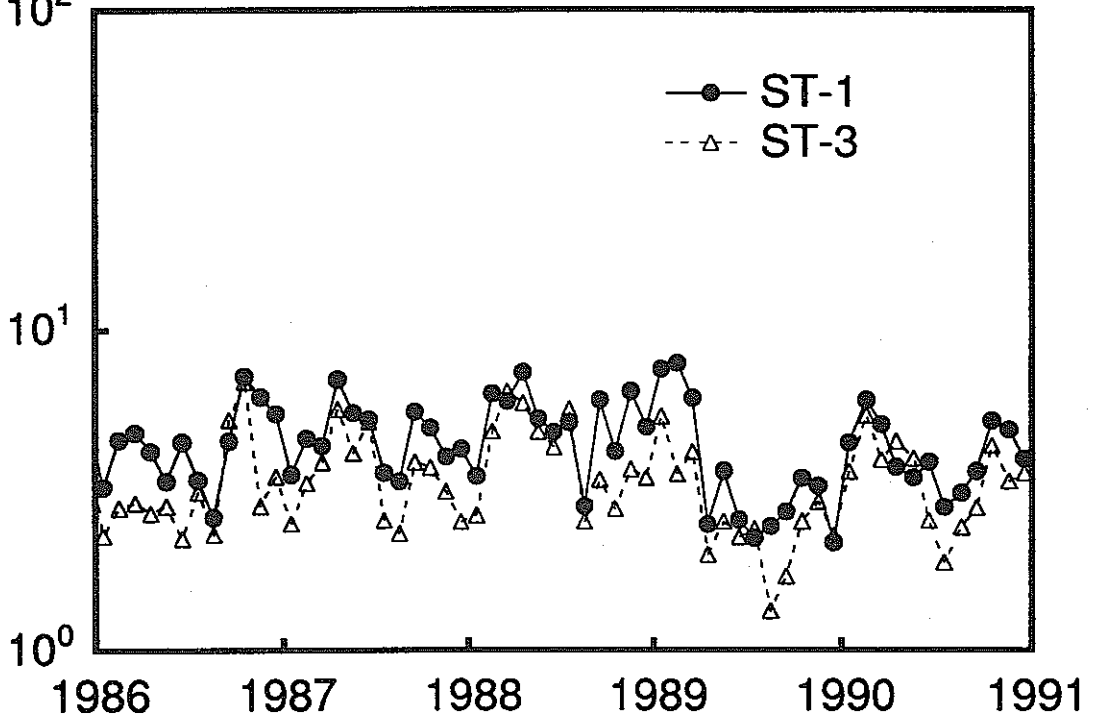


図-2 大気水分中トリチウム濃度の経年変化

mBq/m³-空気

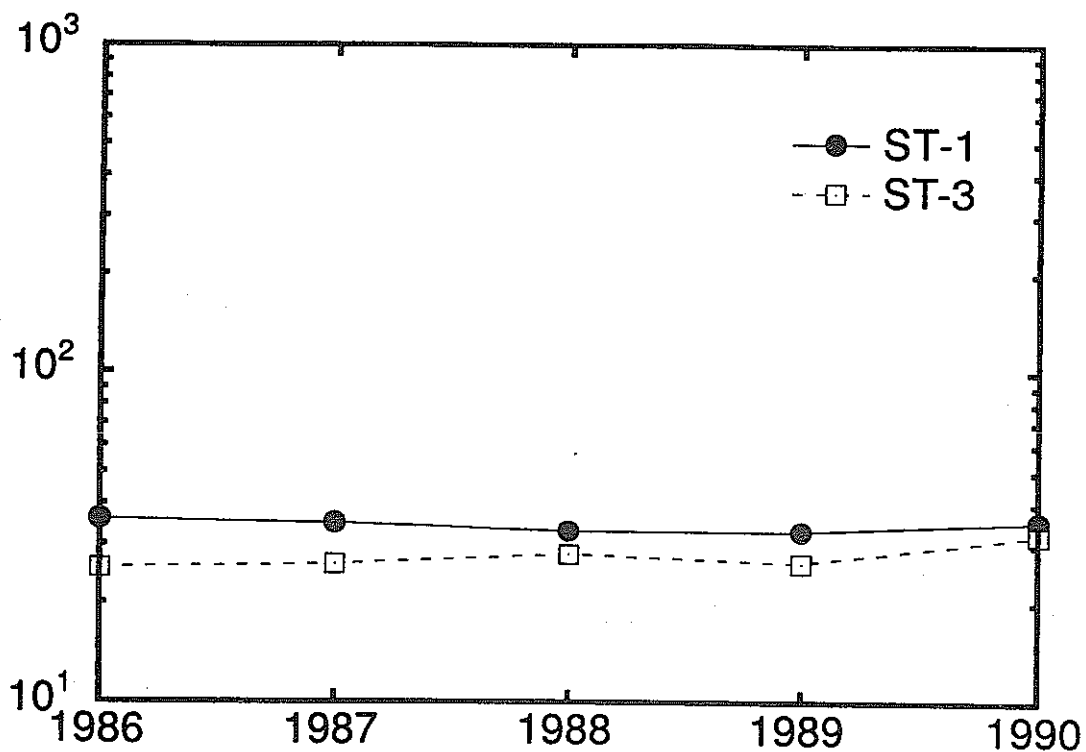


図-3 大気中HTO濃度の年平均値の経年変化

Bq/l-水

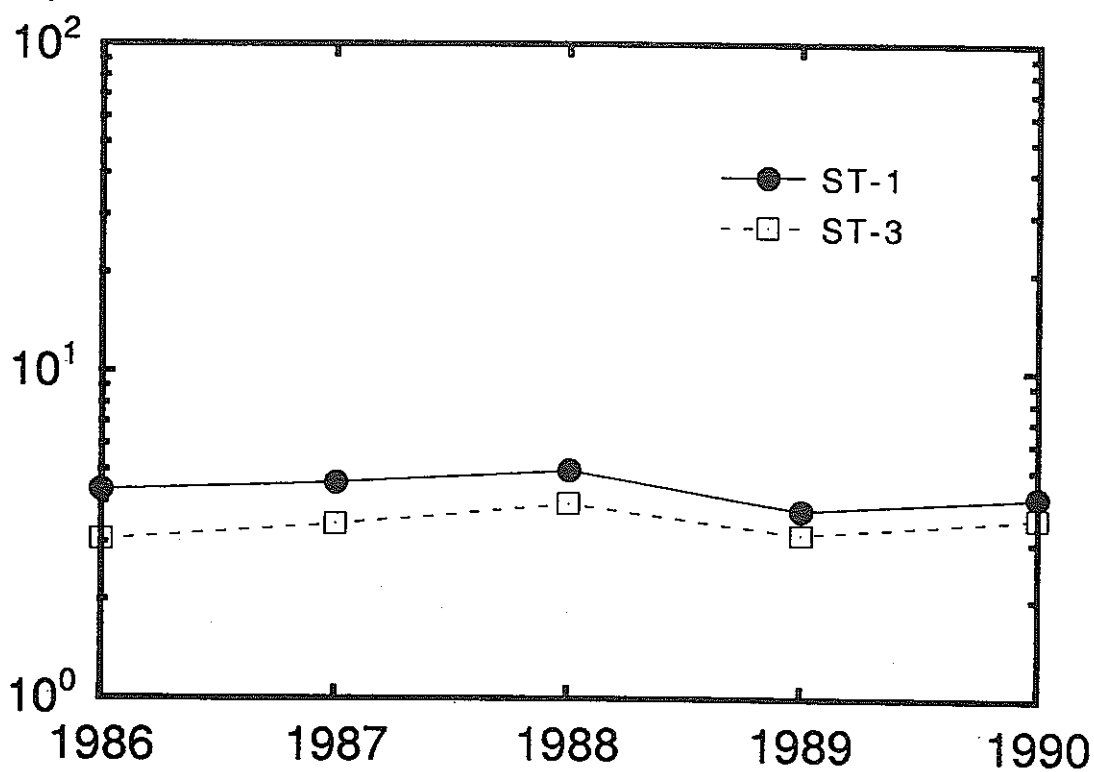


図-4 大気水分中トリチウム濃度の年平均値の経年変化

mBq/m³-空気

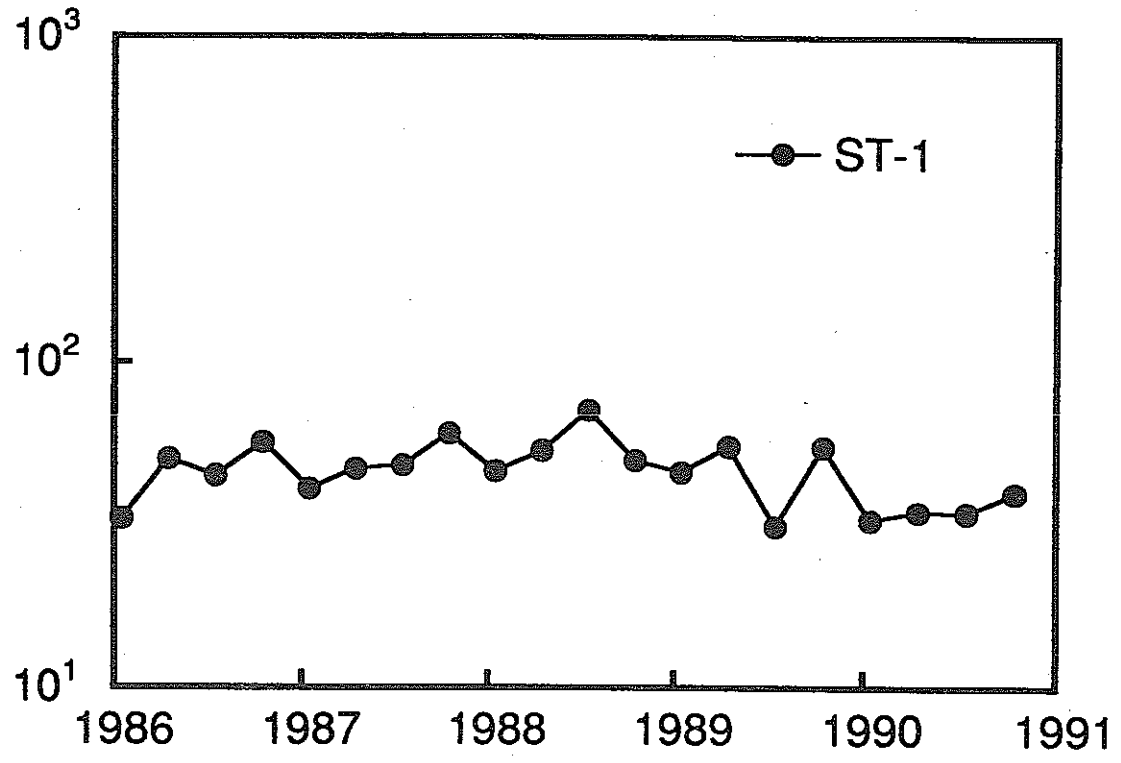


図-5 大気中HT濃度の経年変化

mBq/m³-空気

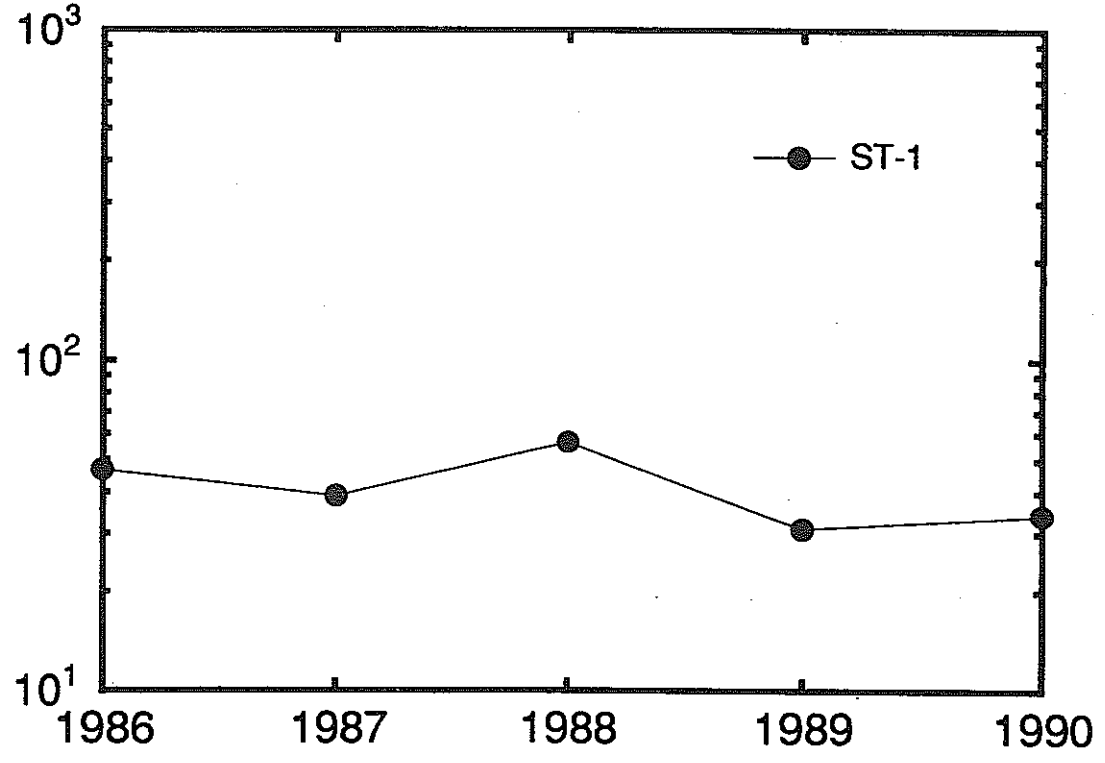


図-6 大気中HT濃度の年平均値の経年変化

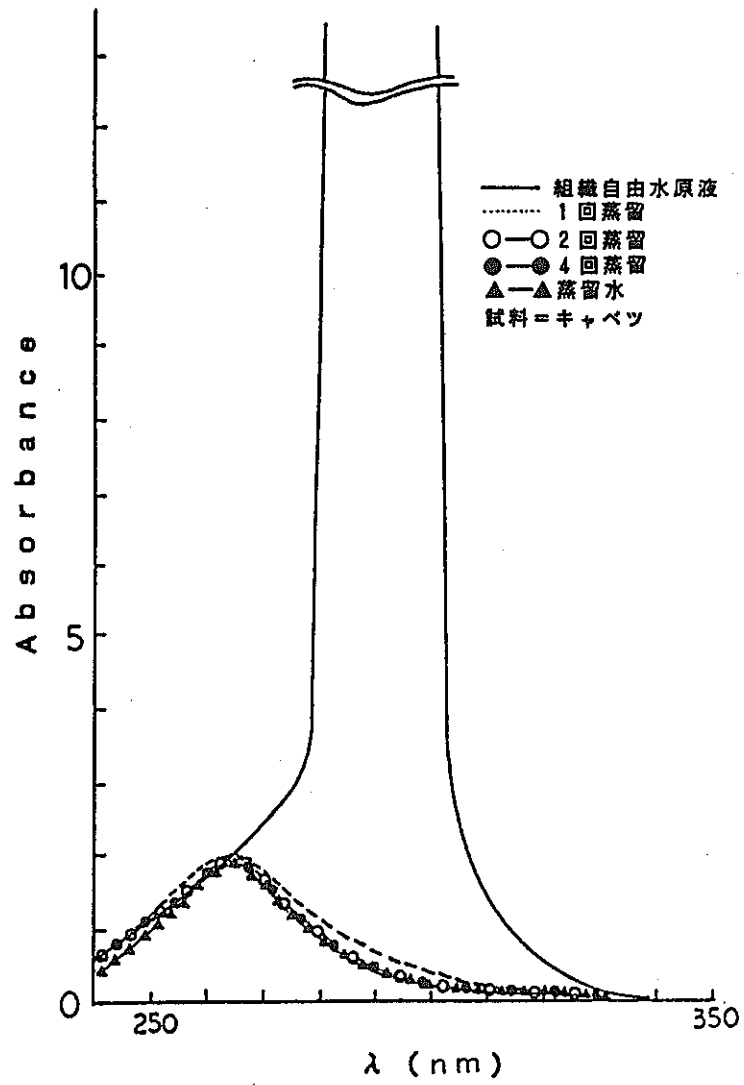


図-7 組織自由水の精製水の紫外吸収スペクトル

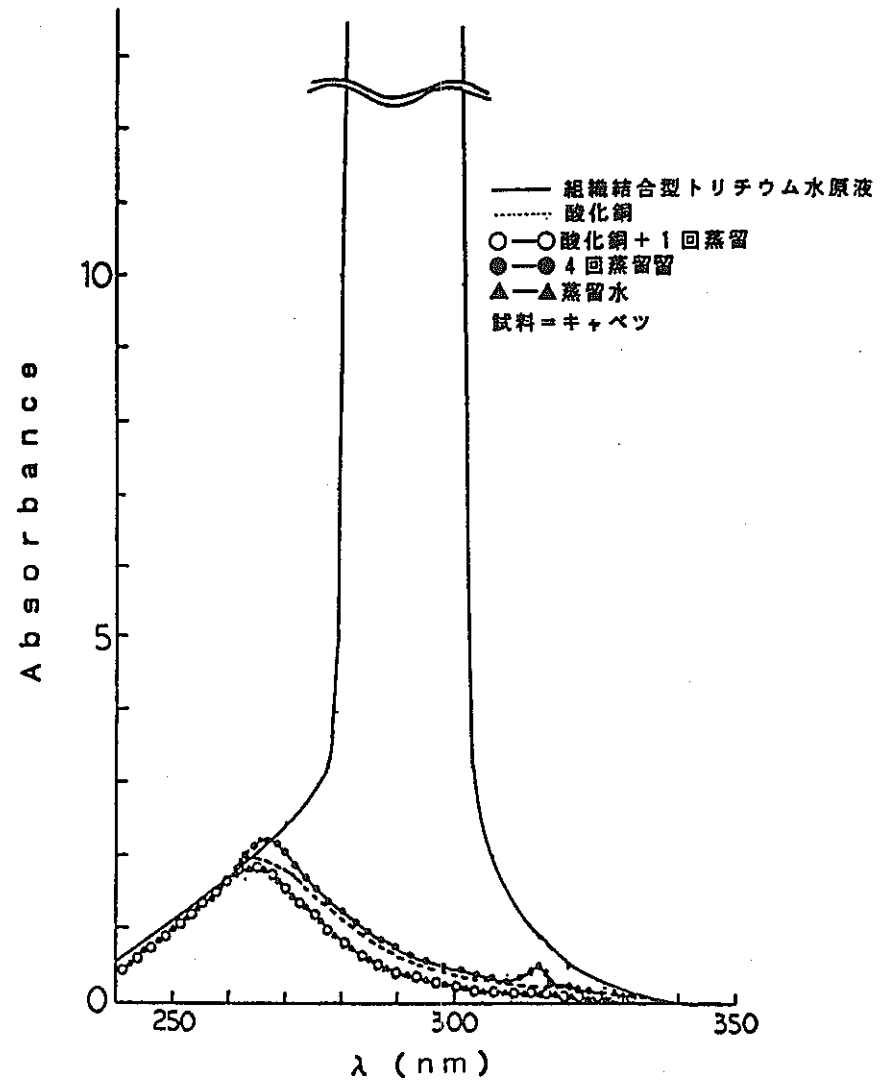


図-8 組織結合水の精製水の紫外吸収スペクトル

表-1 使用酸素純度及び使用量と組織結合型
トリチウム濃度との関係

		酸素純度及び使用量		
		一般(98%以上) 720 l	高純度(99.99%以上) 720 l	一般(98%以上) 80 l
濃度 (Bq/l)	ケース-1 (松葉)	11.2±0.8	5.2±0.9	5.4±0.8
	ケース-2 (松葉)	9.3±0.8	6.8±0.8	6.3±0.8
	ケース-3 (葉菜)	4.6±0.8	2.2±0.7	2.6±1.1

表-2 植物中トリチウム濃度

試料	対象 トリチウム	データ数	濃度範囲 (Bq/l)	平均値 (Bq/l)
松葉	注1) TFWT	10	2.1~5.6	3.6
	注2) TBT	3	4.6~5.4	5.1
葉菜	注1) TFWT	14	1.3~3.8	2.8
	注2) TBT	6	1.5~5.0	2.9

注1) TFWTは、組織自由水トリチウムを示す。

注2) TBTは、組織結合型トリチウムを示す。

再処理施設平常運転時被ばく線量評価手法に関する研究

安全管理部環境安全課

叶野 豊、飛田和則、篠原邦彦

I. 研究の概要

再処理施設の平常運転に伴い、大気及び海洋に放出される放射性物質に起因する一般公衆の線量当量を評価するための計算コードを開発・整備することが本研究の目的である。計算コードの開発にあたっては、線量評価上必要な各種パラメータの整備と計算コードのシステム化を行い、大気拡散、地表沈着、食物移行等の各種経路別における線量当量の算出、評価が実行可能なものとした。開発・整備した計算コードは、以下の通りである。

- (1) 再処理施設の平常運転に伴い大気放出される ^{85}Kr に起因するクラウドガンマ被ばく線量当量を算出、評価するための計算コード：KR85G
- (2) 原子力施設からの放射性物質の大気放出に起因する環境中濃度及び線量当量を算出、評価するための計算コード：ORION II
- (3) 再処理施設からの放射性物質の海洋放出に起因する線量当量を算出、評価するための計算コード：CORAL

II. 研究成果

本研究において開発・整備した、計算コードの概要を以下に示す。

(1) KR85G

KR85Gは、排気筒から放出される ^{85}Kr の放射性雲からのガンマ線に起因する線量当量の算出に用いる計算コードとして開発した。クラウドガンマ線量は、一般的に3次元空間の数値積分により計算されるが、計算速度の向上のため、KR85Gでは点減衰核積分法により所定の条件で計算した空気吸収線量率をテーブル値としてデータファイル化し、任意の条件の線量率は内挿により求めることとした。線量当量は、空気吸収線量率の計算結果に基づき、年間の線量当量を算出する。

KR85Gは、東海再処理施設への適用を目的として開発したコードであるため、計算に必要な気象条件及び放出源情報は、通常は東海事業所の気象データ処理用の計算コードCONTEにより統計処理したデータを用いる方式とした。

(2) ORION II

ORION IIは、大気中に放出される放射性物質の空气中濃度、地表面沈着濃度、食物中濃度及び一般公衆への内部被ばく線量当量等を評価するために開発した計算コードである。

放射性物質の大気中における拡散は、ガウス型拡散式を基本として計算し、拡散過程における減衰補正としては、重力沈着、乾性沈着、降水洗浄及び放射性崩壊を考慮している。食物の可食部への移行は、葉面等への直接沈着及び経根吸収により

生ずるものとし、これらを人または家畜が摂取する場合には、放射性減衰、市場希釈等を考慮する。また、沈着後の再浮遊による空气中濃度の上昇及び環境中における娘核種の生成についても考慮することができる。線量当量は、公衆個人の線量として与えられ、内部被ばく経路として、吸入及び経口摂取を、外部被ばく経路として、浸漬線量及び地表面沈着からの外部被ばく線量当量を計算する。

ORION IIは、最大10施設からの重畳効果を、最大限30核種、10摂取経路について、1回の実行で評価することができる。評価対象となる施設、核種、食物等は限定せず、広範な適用が可能である。

(3) CORAL

CORALは、海洋へ放出される放射性物質に起因する一般公衆の外部及び内部被ばく線量当量を算出、評価するために開発した計算コードである。

液体廃棄物の放出後の海洋における拡散は、東海沖における染料拡散実験結果等を基に作られた実験式により計算し、評価地点の海水中の放射性物質濃度を求め、海産生物への移行、漁具等への移行などを考慮して、線量当量を算出、評価している。

評価対象核種は、 ^3H 、 ^{89}Sr 、 ^{90}Sr 、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Ru 、 ^{129}I 、 ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{141}Ce 、 ^{144}Ce 、 $\text{Pu}(\alpha)$ である。また、摂取経路は、内部被ばくについては、シラス、成魚、褐ソウ、紅ソウ、貝類、甲殻類、頭足類の経口摂取を、また外部被ばくについては、漁網、船体、海岸砂、海面、海水中からの線量当量を評価する。

III. まとめ

再処理施設の平常運転時の環境被ばく評価コードとして、KR85G、ORION II及びCORALを開発・整備した。

計算コードの開発に際して、線量評価上必要な各種パラメータと計算コードを整備し、大気拡散、地表沈着、食物移行等における各種経路別における線量当量の評価を可能とした。

その結果、計算コードを運用する上で効率化が図れ、再処理施設の平常運転時の周辺環境における線量当量の評価に際し、有効に機能することを確認するとともに安全審査等に適用を図り、その有効性を確認した。図-1にこれらの計算コードを用いて評価した再処理施設からの放出放射性物質による線量評価結果を示す。

IV. 参考資料

- 1) 篠原邦彦、浅野智宏、成田 脩；ORION II：原子力施設からの放射性物質の大気放出に起因する環境中濃度及び被ばく線量を評価するための計算コード、PNCT N8410 87-17、1987。
- 2) 北原義久、成田 脩、浅野智宏、岸本洋一郎、龍口 清；再処理工場の平常運転に伴い大気放出される ^{85}Kr に起因するクラウド・ガンマ被ばく線量計算プログラム：KR85G、PNCT841-81-44、1981。

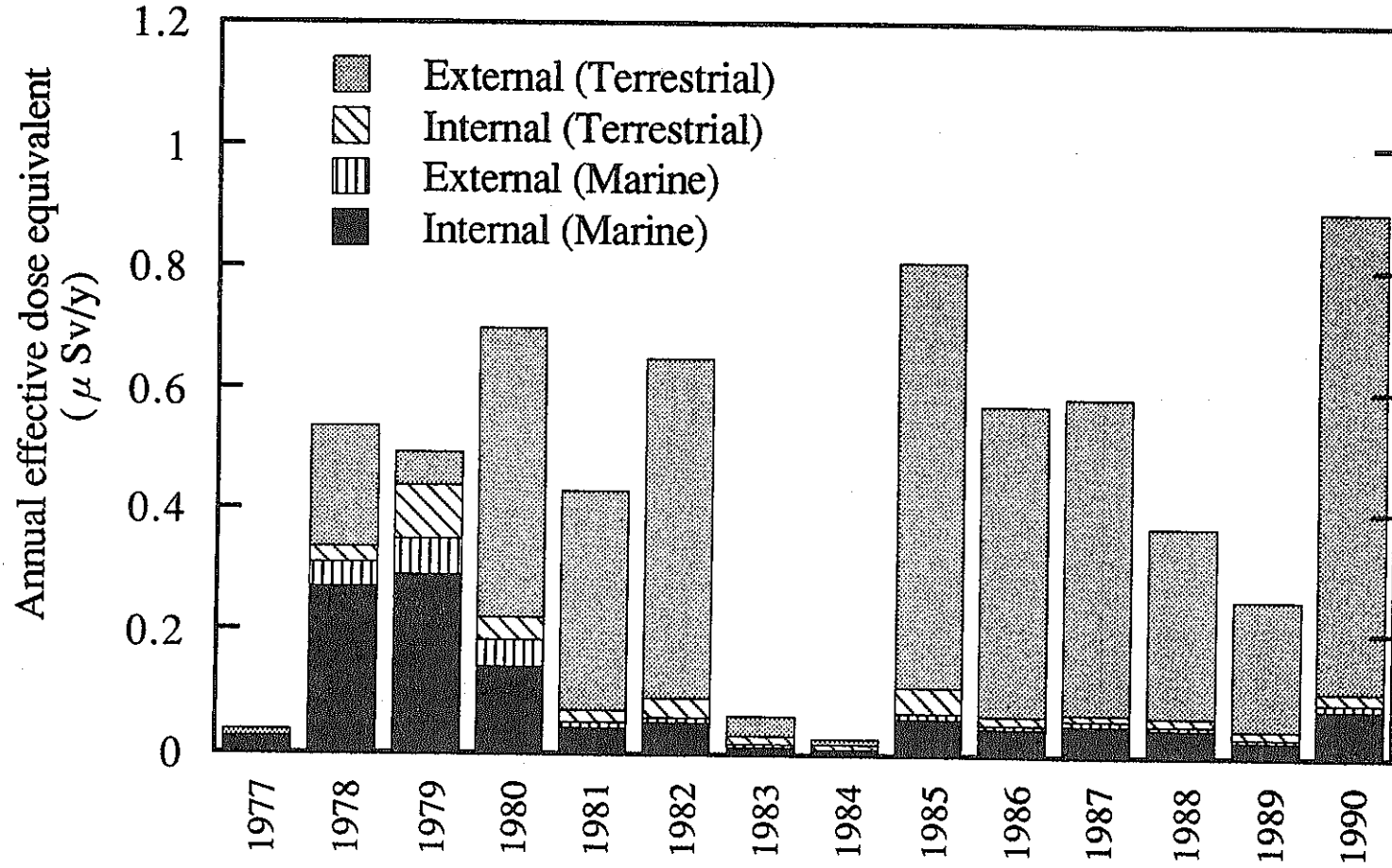


図1 再処理施設からの放出に伴う実効線量当量評価結果

線量評価に必要なパラメータの改善に関する研究

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所安全管理部環境安全課

住谷秀一、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

原子力施設から放出される放射性物質に起因する施設周辺公衆の線量当量評価のためには、解析モデルを整備するとともに、同モデルで使用する適切なパラメータを整備することが必要である。

このことから、本研究では、環境モニタリング及び安全研究から得られるデータを基に、再処理施設周辺の環境条件に合った線量評価に必要なパラメータの設定に関し検討した。

検討内容としては、(1)放射性物質の地表面沈着率、(2)放射性物質の農作物への移行、(3)放射性物質の海産生物及び海岸砂への移行について実施した。

II. 研究成果

1. 放射性物質の地表面沈着

東海再処理施設周辺環境において採取した土壌中のヨウ素-129濃度及び放出量等をもとに計算した土壌中濃度から、放射性ヨウ素の沈着速度を検討した。

(1) 土壌中ヨウ素-129濃度の測定

土壌は、東海再処理施設周辺の4地点の畑から採取し、中性子放射化分析法によりヨウ素-129濃度を定量した。

沈着速度の計算には、昭和57年から昭和62年までのデータを用いた。

(2) 計算による土壌中ヨウ素-129濃度の算出

再処理施設の運転以来のヨウ素-129放出量及び気象データを用いて、上記4地点における測定値に相当する期間の土壌中濃度を計算により求めた。

放射性ヨウ素の沈着速度を Vg とすると、土壌中放射性ヨウ素-129濃度は、(イ) 式で計算できる。

$$Cs = Vg \cdot \chi \cdot (1 - \exp(-\lambda \cdot t) / (\lambda \cdot P)) \quad \text{----- (イ)}$$

ここで、

Cs : 土壌中ヨウ素-129濃度 (Bq/g)

Vg : 沈着速度 (cm/s)、1 cm/s と仮定

χ : 地表面付近の大気中ヨウ素-129濃度 (Bq/cm³)

λ : 土壌からの減衰係数 (1/s)、ここでは物理的半減期のみを考慮

t : 沈着期間(s)

P : 土壌の実効面密度 (g/cm²)

沈着期間は、対応する測定値の採取期日に応じて設定した。

ヨウ素-129は、長半減期核種であるため、(イ) 式は (ロ) 式で近似した。

$$Cs = Vg \cdot \chi \cdot t / P \quad \text{----- (ロ)}$$

(3)沈着速度の評価

測定結果から得られた土壤中ヨウ素-129濃度は、沈着速度を除き計算式と同じ条件であると仮定すると、測定値に対応する計算値との比較により沈着速度を評価できる。計算では沈着速度を1 cm/sとしているため、測定値からの沈着速度は(ハ)式により評価できる。

$$V_g = C_s (\text{測定値}) / C_s (\text{計算値}) \text{ ----- (ハ)}$$

表-1に、得られた沈着速度を示す。

得られた沈着速度は、フィールドでの採取試料を基に評価した値であり、乾性及び湿性沈着の両方を含むものである。表から各地点での沈着速度はほぼ一定であり、平均沈着速度は、 0.76 ± 0.19 cm/sであることが分かった¹⁾。

また、チェルノブイル原子力発電所事故の際に実施した特別調査結果を基に、降水期間も含めたヨウ素-131の牧草への沈着速度を調査した結果からは、平均値として 0.69 ± 0.58 cm/sが得られた²⁾。

さらに、平成元年に調査したヨウ素-129の乾性及び湿性沈着速度は、それぞれ 0.063 cm/s、 0.23 cm/sであり、両者を含む沈着速度として 0.29 cm/sが得られた。

以上の結果から、放射性ヨウ素の沈着速度としてこれまで線量当量評価に用いてきた1 cm/sは、妥当な値であることが確認できた。

2.放射性物質の農作物への移行

ヨウ素-129を対象核種として、東海再処理施設周辺環境において採取した農作物中濃度及び放出量から計算した大気中濃度から、放射性ヨウ素の大気からの直接沈着による農作物可食部への移行率について検討した。

(1)ヨウ素-129濃度の測定

フィールドデータを基にした大気からの直接沈着割合を評価するに当たって、大気、葉菜及び精米中のヨウ素-129濃度を中性子放射化分析法により定量した。

(2)移行割合の算出

大気中から植物へ移行する割合は、以下の式に基づいて計算した。

$$\text{大気中から葉菜等へ移行する割合} = \frac{\text{葉菜等のヨウ素-129濃度 (Bq/g生)}}{\text{大気中ヨウ素-129濃度 (Bq/cm}^3\text{)}}$$

フィールドデータを基にしていることから、直接沈着経路及び土壌経路からの移行を弁別することは困難である。したがって、大気からの直接沈着による可食部への移行率の算出に当たっては、葉菜等のヨウ素-129は全量が大気から移行したと仮定した。なお、計算モデルによる評価では、直接沈着経路が可食部へ移行するヨウ素-129の90%以上を占めることが分かっている。また、大気中濃度については、実測値と大気試料の採取期間における気象観測データを考慮した拡散計算によって得られた結果がよく一致することから、各々の対象試料に応じた栽培期間について拡散計算から算出した値を用いた。

表-2 に得られた葉菜及び精米についてのヨウ素-129の大気中から葉菜等への移行割合を示す。なお、精米については、現在の分析法では測定上有意な値が検出されていないことから検出下限値を用いて算出した。

得られたヨウ素-129の大気中から葉菜等への移行割合は、米国NRCのRegulatory Guide 1.109³⁾ に示されている大気中からの直接沈着による植物可食部への移行率 (r) に換算すると、葉菜で0.2以下、精米で0.01以下になり^{1)、4)}、Regulatory Guide 1.109で示されている値 (葉菜: 1.0、牧草: 1.0) よりも約1桁程度小さいことが分かった。

これらのデータは、フィールドデータであることから、実際の気象状況等を反映しており、降雨の効果も含んでいるものと考えられる。このことから、これまで用いてきた米国NRCのRegulatory Guide 1.109等を参考としたパラメータは、かなりの安全裕度を持った値であることが分かった。

3.放射性物質の海産生物及び海岸砂への移行

再処理施設の安全評価のうち、施設からの海洋放出放射能に起因する線量当量評価に必要なパラメータとして、内部被ばくに係る海産生物の濃縮係数及び外部被ばくに係る海岸砂の汚染係数が重要なパラメータとしてあげられる。

これらのパラメータは、東海周辺海域で測定された操業前モニタリングの結果から計算し、従来から施設周辺の環境条件特有なパラメータとして評価に用いてきたが、今回、操業前モニタリングも含めた過去のモニタリング結果について検討し再調査した。

(1)パラメータの算出方法

海洋中に放出された放射性物質は、海水及び海産生物、懸濁物質、海底土、海岸砂等の間で分配される。

ここでは、再処理施設の安全評価に必要な核種として、Sr-90, Zr-95, Nb-95, Ru-106, Cs-137, Ce-144, Pu-239,240及びAm-241を対象に1972年から1986年までの海水、海産生物、海岸砂、海底土の分析データから、平衡状態を仮定して次式に従い、濃縮係数及び汚染係数を算出した。

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{海産生物 (可食部) 中の核種濃度の平均値 (Bq/kg生)}}{\text{海水中の核種濃度の平均値 (Bq/l)}}$$

$$\text{汚染係数} = \frac{\text{海岸砂中の核種濃度の平均値 (Bq/kg乾)}}{\text{海水中の核種濃度の平均値 (Bq/l)}}$$

(2)算出結果及び評価

海水、海産生物及び海岸砂中の平均核種濃度を基に算出した海産生物の濃縮係数及び海岸砂の汚染係数を表-3及び表-4に示す⁵⁾。

得られた海産生物の濃縮係数において、これまで用いてきた値を越えたものとしては、成魚、貝類、頭足類のSr及びシラス、貝類、紅藻のCsであるが、いずれ

もファクター2以下の差であった。他の濃縮係数については、いずれも従来値に比べ小さい値が得られた。しかし、各々の濃縮係数の変動範囲を考慮すると、これまで用いてきた値とほぼ同程度と考えられ、これまで用いてきた値を線量当量評価に用いることは妥当と考えられる。また、今回の調査により、これまで濃縮係数としてまとめられていなかったAmについてもフィールドデータを基に算出することができた。

一方、海岸砂の汚染係数については、Sr-90がこれまで用いてきた値の1.4倍となったが、他の核種については、従来値に比べ小さい値が得られた。しかし、各々の汚染係数の変動範囲を考慮し、かつ安全側に線量当量を評価する観点からみると、これまで用いてきた値を線量当量評価に用いることは妥当と考えられる。

III. 参考文献

- 1) 篠原邦彦 "環境線量当量評価に用いる環境パラメータ設定の一例について" 動燃技法No.77
- 2) 木下 睦 他 "ソ連チェルノブイル原子力発電所事故に伴う特別環境放射能調査" PNCT N8420 86-10
- 3) U.S.Nuclear Regulatory Commission, "Caluculation of annual dose to man from routine release of reactor effluents for the purpose of evaluating comliance with 10 CFR, Part 50, Appendix I", Washington, DC: U.S.Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 1.109, Rev.1,1977
- 4) Kunihiro Shinohara, Tomohiro Asano, "Environmental Dose Assessment for Low-level Padioactive Effluents Discharged from Tokai Reprocessing Plant", Health Physics, Vol.62, No.1, 1992
- 5) Naomi Hayashi, Yoshihiro Maruo, Hiromi Katagiri, Kunihiro Shinohara "Study on the Behavior of Radionuclides in Marine Environment under the Monitoring Program of the Tokai Reprocessing Plant", Proceeding of The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, RECOD '91, Sendai, Japan, Vol. 1, pp 247-252(1991)

表-1 土壤中ヨウ素-129測定値から求めた沈着速度

採取地点	沈着速度 (cm/s)
A地点	0.69±0.25
B地点	0.77±0.08
C地点	0.87±0.17
D地点	0.72±0.17
平均	0.76±0.19

表-2 ヨウ素-129の大気中から葉菜等への
移行割合の試算結果

試料	範囲	データ数	平均値
葉菜	$4.7 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^6$	9	1.2×10^6
精米	$< 4.1 \times 10^4 \sim < 2.0 \times 10^6$	6	$< 3.8 \times 10^5$

単位： $\frac{(\text{Bq/g生})}{(\text{Bq/cm}^3)}$

表-3 海産生物の濃縮係数

海産生物	濃縮係数						
	Sr	Zr/Nb	Ru	Cs	Ce	Pu	Am
シラス	4.0	26	21	25	33	33	68
成魚	3.4	30	8.7	27	17	13	35
褐藻	15	91	120	29	120	360	250
貝類	5.2	36	140	10	260	150	740
頭足類	3.3	50	12	9.7	22	35	130
甲殻類	22	31	110	14	88	240	650

表-4 海岸砂の汚染係数

核種	汚染係数
Sr-90	14
Zr-95	500
Nb-95	140
Ru-106	180
Cs-137	81
Ce-144	370

放射性物質移行に係るダイナミックモデルの開発

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所安全管理部環境安全課

圓尾好宏、住谷秀一、篠原邦彦

I. 研究の概要

平常時の線量当量評価においては、通常その評価期間は1年間と長く、ソースタームについても年間を通じて連続的な放出であるとしている。このため評価に用いるパラメータは、年間を通じて平均的な値を設定しており、一つのパラメータについて一つの値を用いることが一般的である。

1986年4月下旬、ソ連チェルノブイル原子力発電所事故が発生したが、発生の時期が夏期あるいは冬期であった場合には、その影響の程度が異なったことは十分に予想される。このように、原子力発電所等の事故により環境中へ放射性物質が放出された場合に、放出が起こる時期が異なることによって生じる人へ影響の変化を評価することが重要となる。

このため、原子力施設等の事故時に環境へ放出される放射性物質の移行について、時間的及び空間的パラメータを含む動的な評価を行うためのモデル（ダイナミックモデル）を開発することを目的に、以下の研究を実施した。

1. 動的評価において考慮しなければならない要因を明確にする。
2. 既存のモデルを比較検討し動的評価の現状を調査するとともに、動的評価に用いるパラメータについて検討する。

II. 研究成果

1. 動的評価において考慮しなければならない要因の検討¹⁾

(1) 沈着プロセス、表面汚染

(i) 放出量及び核種組成

時間依存性を持つ事故放出における放出量及び放出核種の組成を把握することは、大気及び水圏への評価に直接影響を及ぼすため、事故の初期状態において最も重要な要因となる。

放出後できるだけ正確にかつ速やかに放出量・核種組成を決定するために、サイト内外における測定あるいは、理論的な推定方法が必要となる。

(ii) 大気拡散・移動過程

局所的 (<10km)、地域的 (~100km) あるいはそれ以上の地域における放出開始から放出終了以後の期間の気象条件 (風及び降雨の状態) が、放出された放射性物質の大気中の移動及び沈着を決定する。

(iii) 乾性沈着

乾燥状態においてエアロゾル及びガス状の放射性物質の種々の表面への沈着は、空気の乱れ、風速、地表の粗度、植物の葉面積、温度及び日照などの要因に依存する。

(iv)湿性沈着

湿性沈着(雨、雪及び霧)は、局所的に高濃度な汚染を生じさせる。降雨の形態及び強度は、気候、地形及び季節に強く依存する。

(v)その他

屋内退避などの防護措置は遮蔽及びフィルター効果により、放射性プルームが通過する間など放出後短期間に受ける影響を大幅に減少させることができる。この措置は特に屋外での活動が活発な夏期において重要となる。

(1)自然及び農業環境等における核種移行

(i)農業及び畜産環境

事故後放出された放射性物質の環境中の移行は、人が被ばくする重要なメカニズムである。人への被ばく経路である農・畜産物が事故放出時にあるかないかによって、評価結果は大きく異なる。畜産物の場合、飼料の種類(貯蔵飼料の割合)などによっても大きく異なる。

このように、年間のどの時期に事故が発生するかに強く依存する。

(ii)自然環境

事故発生時における放射性物質の時空間的な沈着の分布は、地表水・地下水によるランオフ及び地下水-土壌間の核種交換速度などに影響される。これらの水量及び流量率は、季節により異なる。

(iii)その他

植物への放射性物質の初期沈着の程度及び可食部への移行の割合は、植物の成育段階により異なる。また、年1回の収穫か1回以上の収穫植物かあるいはその収穫時期によっても大きく異なる。これらは、季節に依存する。

(3)生活習慣及び社会経済的活動

夏期等のリゾート地の人口増加及び事故時における人の挙動は、評価に影響する。また、事故時にリゾート地からどのように退避させるか、防護対策上の問題となる。

(4)考察及びまとめ

放射性物質の移行に関する動的評価について、主として評価結果に及ぼす季節の影響を調査し要因の概観が明らかとなった。季節影響は、定性的には年間のうちのどの時期・季節に事故放出が起こるかによって、人への影響が異なることを示している²⁾(図-1, 図-2参照)。季節によってその影響が顕著な被ばく経路がある場合、人への影響を緩和するためにとられる防護対策のうち適切な対策を事前に決定しておくためにも動的な評価を行うことが有効となる。

この季節的な要因(季節、天候及び気候)は、平常時の線量当量の評価において考慮される評価経路のそれぞれのパラメータと密接な関係を持つものであり、ダイナミックモデルの開発においても考慮しなければならない要因である。

2. 既存モデルの比較検討及び動的評価に用いるパラメータの検討

原子力施設から大気中への事故放出における食物連鎖中の汚染を評価するダイナ

ミックモデルFOOD-MARCと ECOSYSについて比較検討した³⁾。FOOD-MARCは英国NRPBで、ECOSYSはドイツGSFで独自に開発されたモデルであり、それぞれの国の農業の実態及び食習慣等を反映し開発されている。両モデルの比較検討結果の概要を以下に示す。

(1) 評価対象の農産物及び核種

FOOD-MARCでは、根菜類を評価せず、ECOSYSで対象としていない牛・羊のレバーを評価している。表-1に両モデルの評価対象の農産物を示す。

核種は、Sr-89/90, Ru-106, I-129/131/133, Cs-134/137 及びPu-239である。

(2) 食物連鎖中の核種移行プロセス

両モデルは同様である。図-3に食物連鎖中の核種移行プロセスを示す。

(3) 土壌中濃度の計算

土壌深層へのリーチングを評価するために用いるデータは、FOOD-MARCよりECOSYSの方が現実的である。FOOD-MARCではすべての核種に対してPuの測定値を一律に使用するのに対し、ECOSYSでは各核種に対して特有な値を使用している。

(4) 植物中濃度の計算

経根経路による植物中濃度の計算は、両モデルで同様である。Sr及びCsに対する植物/土壌濃度比が異なるが、これは考慮している土質(密度)の相違によるものである。

再浮遊経路による植物中濃度の計算において、ECOSYSでは植物重量の一定の割合として植物上へ付着する土壌の量を評価している。FOOD-MARCでも同様であるがさらに、時間依存の再浮遊ファクターを考慮して再浮遊した土壌粒子の沈着量を評価している。

(5) 家畜が摂取する飼料の種類及び量

FOOD-MARCではすべての家畜に対して牧草を飼料とするが、ECOSYSでは乳牛にのみ牧草を、肉牛には混合飼料(牧草、麦、とうもろこし)を、豚にはじゃがいも及び麦を与えている。

表-2に飼料の種類及び量の比較を示す。また、両モデルでは、飼料の摂取と同時に飼料の乾燥重量の4%の土壌を摂取するとしている。さらに、牧草の成長による季節変動を考慮し、放牧期間の5月から10月は新鮮な牧草を戸外で摂取し、冬期は前の夏に収穫し貯蔵した牧草を飼料とする。FOOD-MARCでは、再浮遊した土壌粒子の吸入摂取(呼吸率は、牛及び羊に対してそれぞれ $5.4\text{m}^3/\text{h}$, $0.36\text{m}^3/\text{h}$)によるPuの摂取を考慮している。

FOOD-MARC及びECOSYSにより飼料中のSr-90, Cs-137 についての50年間の時間積分濃度の計算結果の比較を表-3に示す。

(5) 考察及びまとめ

(i) 原子力施設から事故放出の影響評価を行うため、FOOD-MARC及びECOSYSを適用することは可能と思われるが、国情に即した農業実態及び食習慣に係る情報が不可欠である。

- (ii) より適切な評価のためモデルで使用されている核種移行プロセスの中で改善が可能なものがある。
- (a) 農産物の外部汚染の評価に係る再浮遊過程の評価は概算されている。文献値が少ないこともあり今後の研究が待たれる。本移行過程は、特にアクチニド核種に対し重要である。
- (b) 経根吸収の計算に用いるデータは、ほとんど溶解性の化学形トレーサー実験に基づいている。事故放出された核種の環境中での化学形は、不溶解性あるいは低溶解性の粒子と結合していると考えられる。同様なことが葉面吸収についてもいえる。このことから両モデルによる予測値は、上限値を示す可能性がある。化学形に関する知見は、食物連鎖における核種移行のより現実的なモデリングに必要なものである。
- (c) 食物連鎖における核種移行のより現実的なモデリングに必要な他の改善点は、大気からの沈着過程の評価である。大気から土壌あるいは植物への沈着は、大気拡散と食物連鎖との接点であり、特に、天候の状況、植物の成育密度、植物の生態学及び化学形の関数としてエアロゾルの沈着についての研究が必要である。

IV. 参考文献

1. "The Influence of Seasonal Conditions on the Radiological Consequences of a Nuclear accident". Proceedings of an NEA workshop, Paris 21-23 Sep. 1988
2. Simmonds, J.R.: "The Influence of the Season of the Year on the Transfer of Radionuclides To Terrestrial Foods Following an Accidental Release to the Atmosphere" NRPB-M121, February 1985.
3. Prohl, G., Friedland, W. & Paretzke, H.G.: "Intercomparison of the Terrestrial Food Chain Models FOOD-MARC and ECOSYS" GSF-Bericht 18/86, December 1985

表-1 FOOD-MARC 及びECOSYSで評価されている家畜飼料及び食物

Puroducts	FOOD-MARC	ECOSYS
animal feedstuffs	pasture grass	pasture grass garain potatoes maize
plant food products	grain	grain potatoes root vegetables leafy vegetables other vegetables
animal food products	milk beef sheep liver of beef liver of sheep	milk beef pork

表-2 FOOD-MARC 及びECOSYSにおける家畜に与える飼料量

Species	Feedstuff	Daily feeding rates (kg/d)	
		FOOD-MARC	ECOSYS
milk cow	pasture grass	60	60
beef cattle	pasture grass	60	15
	maize	--	12.5
	grain	--	2.0
sheep	pasture grass	7.5	--
pig	grain	--	1.5
	potatoes	--	4

表-3 FOOD-MARC 及びECOSYSによる飼料量の50年間時間積分濃度の比較

Foodstuff	FOOD-MARC		ECOSYS	
	winter	summer	winter	summer
(Sr-90, Bq/kg)				
grain	4.6 E-3	7.6 E-3	6.1 E-3	3.1 E-2
potatoes			4.0 E-3	4.3 E-3
milk	3.1 E-3	5.6 E-3	2.3 E-3	9.3 E-3
beef	6.6 E-4	1.2 E-3	1.5 E-4	5.2 E-4
grass	-----	-----	2.5 E-2	1.0 E-1
(Cs-137, Bq/kg)				
grain	5.8 E-4	5.9 E-2	3.3 E-3	1.5 E-1
potatoes			3.3 E-3	2.5 E-2
milk	2.7 E-3	2.0 E-2	6.6 E-3	4.2 E-2
beef	9.9 E-3	7.1 E-2	4.6 E-3	3.4 E-2
grass	-----	-----	1.4 E-2	9.0 E-2

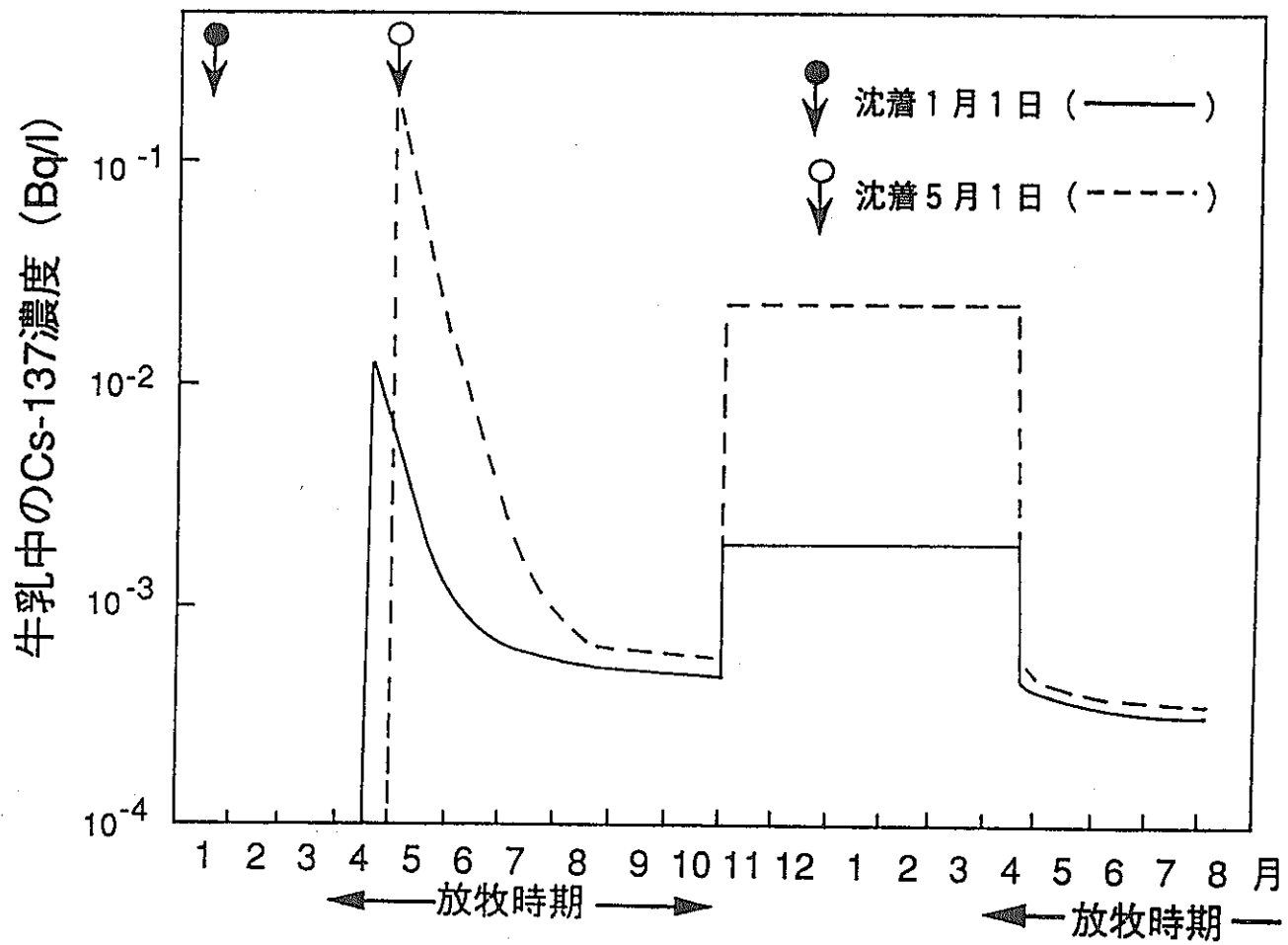


図-1 2つの異なる時期に発生した事故放出後の時間の関数としての牛乳中Cs-137濃度

(NRPB, M121)

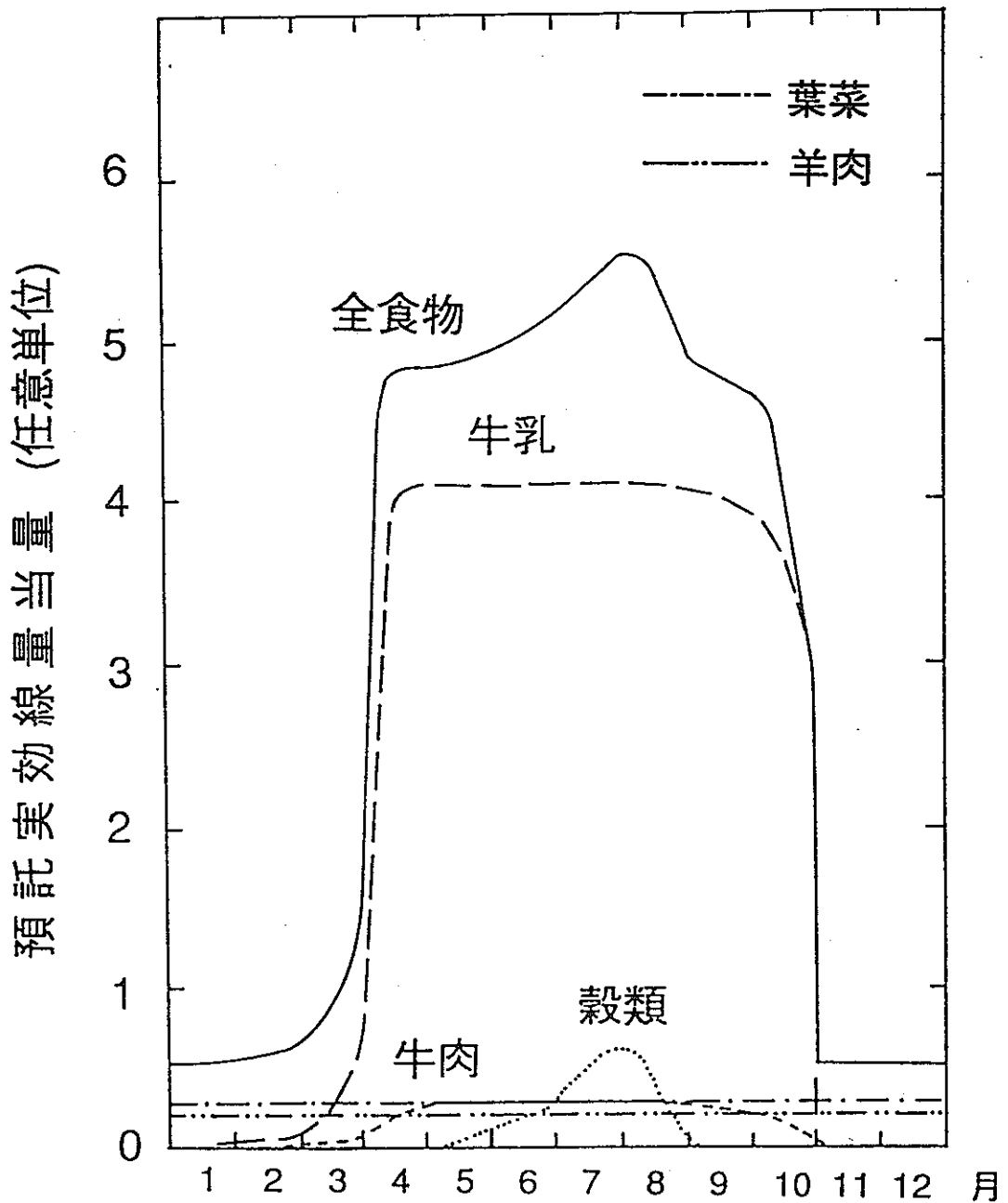


図-2 異なる時期に発生した大気への事故放出後の1年間の食物摂取による預託実効線量当量 (NRPB, M121)

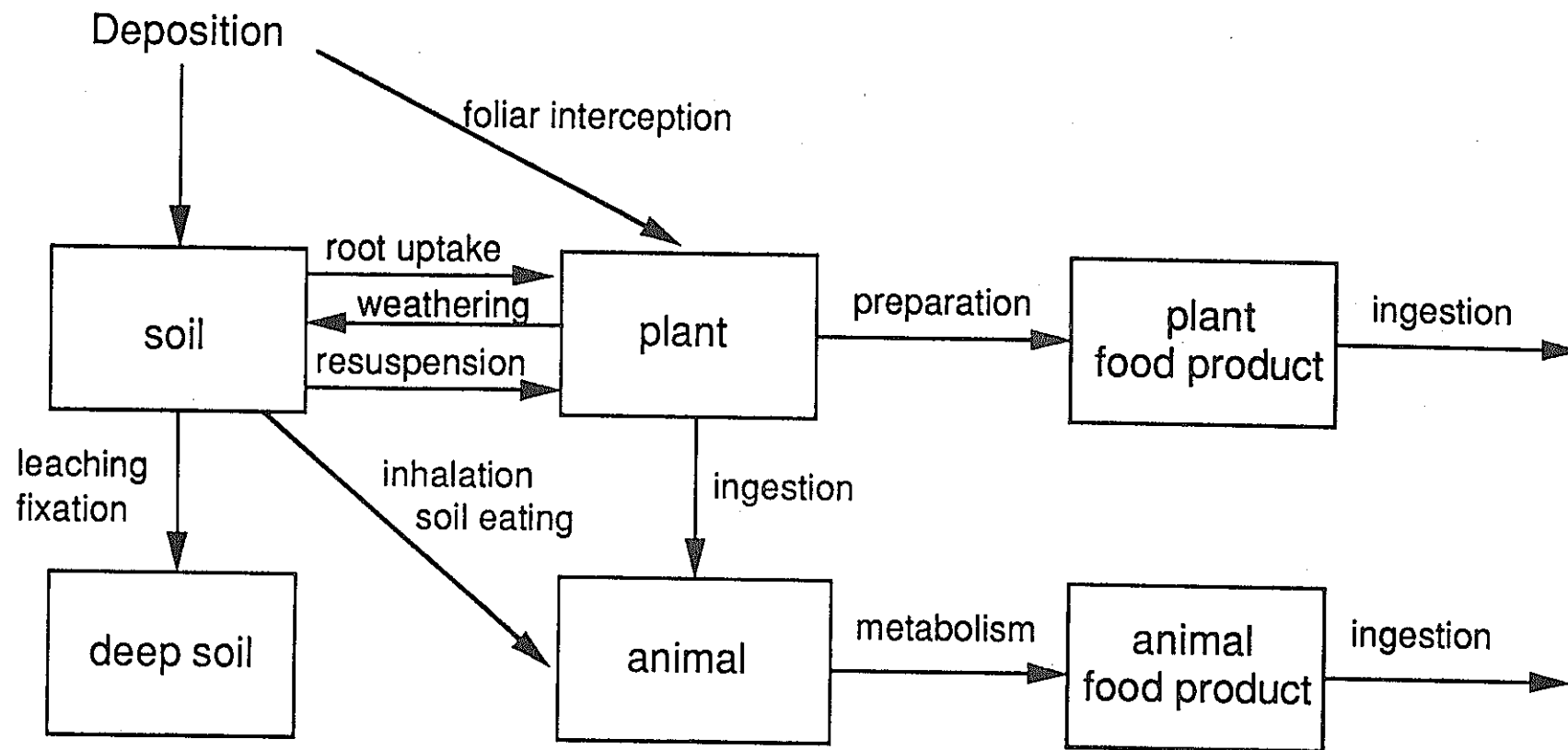


図-3 FOOD-MARC及びECOSYSにおける食物連鎖中の移行過程

環境試料中テクネチウム-99の測定法に関する研究

安全管理部環境安全課

森田重光、住谷秀一、圓尾好宏、坪 憲、篠原邦彦

I. 研究内容

テクネチウムには質量数92～107の放射性同位体が存在し、安定同位体の存在しない元素である。この中で、特にテクネチウム-99 (^{99}Tc)は ^{235}U や ^{239}Pu などの核分裂によって約6%という高い収率で生成される。

^{99}Tc の半減期は 2.14×10^5 年と極めて長く、核燃料サイクル施設に係る環境影響評価を行う上で重要な核種であるが、環境中における濃度は極めて低く、また、軟 β 放射体であるため測定が困難であった。

そこで、本研究では、低バックグラウンドガスフローカウンタ及び液体シンチレーションカウンタを用いた環境試料中の ^{99}Tc の定量法を開発し、環境試料中の濃度水準調査を行った。

また、誘導結合プラズマ質量分析計を用いた高感度分析法についても検討し、検出下限値の向上及び分析時間の短縮を図った。

II. 研究成果

1. 低バックグラウンドガスフローカウンタを用いた海藻及び土壌中 ^{99}Tc の定量法の開発

海藻及び土壌等の環境試料中の ^{99}Tc を定量するに当たって、以下の予備実験を行った。

(1) 海藻及び土壌試料の乾燥条件

試料として海藻（アラメ）10gをビーカーに取り、トレーサとして $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を既知量添加した後、温度を変えて乾燥し、乾燥後、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ が放出する γ 線をGe半導体検出器で測定し、回収率を求めた。

その結果、乾燥温度による回収率の差異は認められなかったため、乾燥温度は一般環境試料と同様に、105℃で行うこととした。

(2) 灰化条件

^{99}Tc は非常に揮発し易い核種であるため、乾燥させた試料を前処理を行わずに灰化すると損失するおそれがある。そこで、灰化前に塩酸またはアンモニア水等の還元性溶液で処理を行い、回収率の向上を試みた。

その結果、塩酸処理、アンモニア水処理のいずれかの処理を行った場合と、処理を行わなかった場合と比べ、10%以上回収率が向上することが確認された。

しかし、塩酸処理を行うと、塩酸ヒュームにより電気炉が腐食されるおそれがあるため、灰化前処理は、アンモニア水で行うこととした。

なお、灰化温度及び灰化時間を最適化する実験を行った結果、550℃で20時

間灰化すれば、損失を最小限にできることが判明した。

(3) 妨害核種の除去

環境試料中の⁹⁹Tcを定量する際、ルテニウム(Ru)をはじめとするマトリックス核種の存在が妨害となる、そこで、⁵⁴Mn、¹⁰⁶Ru、¹³³Ba、²⁴¹Amを添加した模擬試料を用いて、様々な分離・精製法による除染係数(D.F.)を求めた。

その結果、水酸化鉄共沈法、炭酸カルシウム共沈法及びTBP抽出法を組み合わせると、 $10^3 \sim 10^4$ 程度の除染係数が得られることが判明した。

(4) 電着時間

低バックグラウンドガスフローカウンタで測定する場合、試料を1インチのステンレス板上に電着しなければならないため、電着電流及び電着時間を検討し、電着効率の向上を図った。

その結果、0.3Aで5時間電着すると90%以上の電着効率を得られることが判明した。

以上の予備実験の結果から、図-1に示す分析法を開発した。なお、分析全工程における回収率は、海藻試料の場合47~60%であった。

2. 低バックグラウンドガスフローカウンタを用いた海水中⁹⁹Tcの定量法の開発

海水中の⁹⁹Tcを定量するに当たって、以下の予備実験を行った。

(1) ⁹⁹Tcの前濃縮法

海水中の⁹⁹Tcは TcO_4^- の化学形で存在することから、陰イオン交換樹脂に吸着することが知られている。そこで、海水500lに^{99m}Tcを添加した模擬試料を調製し、陰イオン交換樹脂への捕集効率を検討した。

その結果、流速500ml/minになるように加圧し、フィルタ(セルロースろ紙: 孔径10 μ m)に通した後に、陰イオン交換樹脂に通すと、約96%という高い効率で捕集できることが確認された。

(2) 妨害核種の除去

海水5lにウラン、トリウムその他、安定元素であるストロンチウム、バリウム、ルテニウム、ルテニウム及びマンガンを添加した模擬試料を調製して、種々の分離・精製法による除染係数を求めた。

その結果、トリオクチルアミン(TOA)抽出法とメチルエチルケトン(MEK)抽出法を組み合わせると、 $10^3 \sim 10^4$ 程度の除染係数が得られることが判明した。

以上の予備実験の結果から、図-2に示す分析法を開発した。なお、分析全工程における回収率は56~83%であった。

3. 低バックグラウンドガスフローカウンタを用いた実試料の定量

海藻中の⁹⁹Tc濃度を表-1に示す。得られた定量値は、採取場所及び海藻の種類によって1桁程度の差が見られるが、いずれの値も他研究機関で測定されている報告値^{1),2)}と同レベルであった。

海水中の ^{99}Tc 濃度を表-2に示す。茨城県東海沖、東京湾中央部、九十九里沖で採取した海水中の ^{99}Tc 濃度は検出下限値($2.5 \times 10^5 \text{ Bq/l}$)未満、茨城県日立沖で採取した海水中の ^{99}Tc 濃度は $3.7 \times 10^5 \sim 4.8 \times 10^5 \text{ Bq/l}$ であり、他研究機関で測定された若狭湾及び九州地方の海水の結果³⁾と同レベルである。

よって、このレベルが日本近海におけるバックグラウンドであると考えられる。

4. 液体シンチレーションカウンタを用いた定量法の開発

液体シンチレーション測定法は、 4π 計数が可能であり高い計数効率を得ることができる。また、低バックグラウンドガスフローカウンタを用いる場合のように電着する必要がないので回収率を向上させることが可能である。

このため、液体シンチレーションカウンタを用いた定量法を検討した。

(1) 測定試料の調製

低バックグラウンドガスフローカウンタを用いた海藻及び土壌中 ^{99}Tc の定量法に準じて妨害核種を除去し、TBP抽出工程で得られたTBP溶液30mlにカクテルシンチレータ70mlを加え、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ(Aloka LSC-LB1)で測定した。

(2) 測定条件の設定

微弱な放射能を測定する場合は、計数誤差が最小限になるように測定条件を設定しなければならない。そこでFOM(Figure of merit)値が最大になるような、チャンネル、ゲイン及びディスクリミネータ値を求めた。その結果、チャンネルC、ゲイン0.5、下限ディスクリミネータ100、上限ディスクリミネータ750のとき最適条件になることが判明した。

5. 誘導結合プラズマ質量分析計を用いた定量法の開発

誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)は、検出感度、分解能、精度が高く、短時間で測定できる非常に優れた微量分析法である。

このため、ICP-MSを用いた ^{99}Tc 定量法の開発を検討した。

(1) 測定試料の調製

ICP-MSで定量する際は ^{99}Tc と同重体である ^{99}Ru を完全に除去する必要がある。そこで、 ^{106}Ru を用いて種々の分離・精製法によるRuの除染係数を求めた。

その結果、炭酸カリウムアルカリ性溶液からシクロヘキサノンにより抽出を行うと $10^4 \sim 10^5$ の高い除染係数が得られることが判明した。

ICP-MSを用いた環境試料中の ^{99}Tc の定量法を図-3に示す。

(2) 検出下限値

人工海水に ^{99}Tc 及び ^{106}Ru を添加した模擬試料を調製し、分析した結果、 ^{99}Tc の回収率は41~83%、 ^{106}Ru の除染係数は約 10^5 、検出下限値は、海水試料1lを用い、10秒間測定した場合 $1.5 \times 10^6 \text{ Bq}$ であった。ICP-MSを検出器として用いることにより、従来の放射能測定法と比べ検出感度は10倍以上向上し、また測定時間も1/10,000程度に短縮できた。

III. まとめ

1. 試料の前処理法、妨害核種の分離法、分離後の処理法（電着法）及び低バックグラウンドガスフローカウンタによる測定をそれぞれ検討した結果、海藻や海水等の環境試料中の⁹⁹Tcを高感度に定量することが可能となった。
2. 海水と海藻について、実試料中の⁹⁹Tc濃度を定量した結果、いずれの定量も既に報告されている値と一致しており、この値が日本近海におけるバックグラウンドレベルであると考えられた。
3. 液体シンチレーションカウンタを用いた定量法の開発を行った結果、マトリックス元素の少ない海水や排水試料の測定は可能であったが、マトリックス元素を多量に含んでいる海藻や土壌試料の測定は、クエンチングが生じ不可能であった。
4. ICP-MSで⁹⁹Tcを定量する際妨害となる⁹⁹Ruの除去法を検討した結果、 10^5 以上の除染係数が得られる分離・精製法を開発した。本定量法は、従来の放射能測定法と比べ検出感度は10倍以上向上し、また測定時間も1/10,000程度に短縮された。

以上の結果から、環境試料中の⁹⁹Tcの測定は、ICP-MSが最も適していることが分かった。

IV. 参考文献

- 1) 馬田敏幸、松岡信明、白石直典；環境試料中のテクネチウム-99、第32回放射化学討論会要旨集、1988.
- 2) 平野茂樹、松葉満江、鎌田 博；海水及び海藻中の⁹⁹Tc濃度、第31回日本放射線影響学会要旨集、1988.
- 3) 馬田敏幸、松岡信明、白石直典；海水中の⁹⁹Tc濃度、第30回環境放射能調査研究成果論文抄録集、1988.

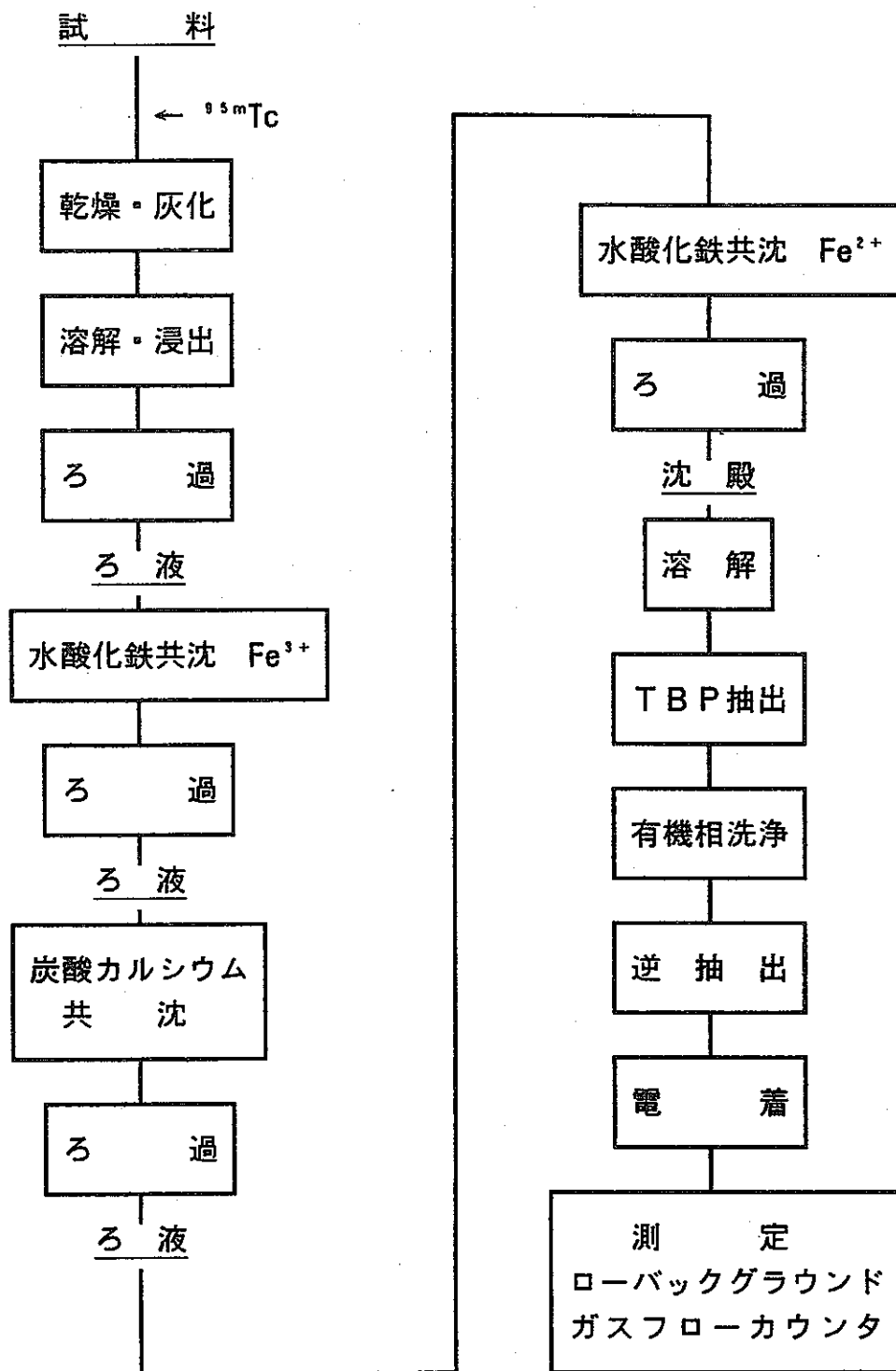


図 - 1 海藻中 ^{99m}Tc の分析法

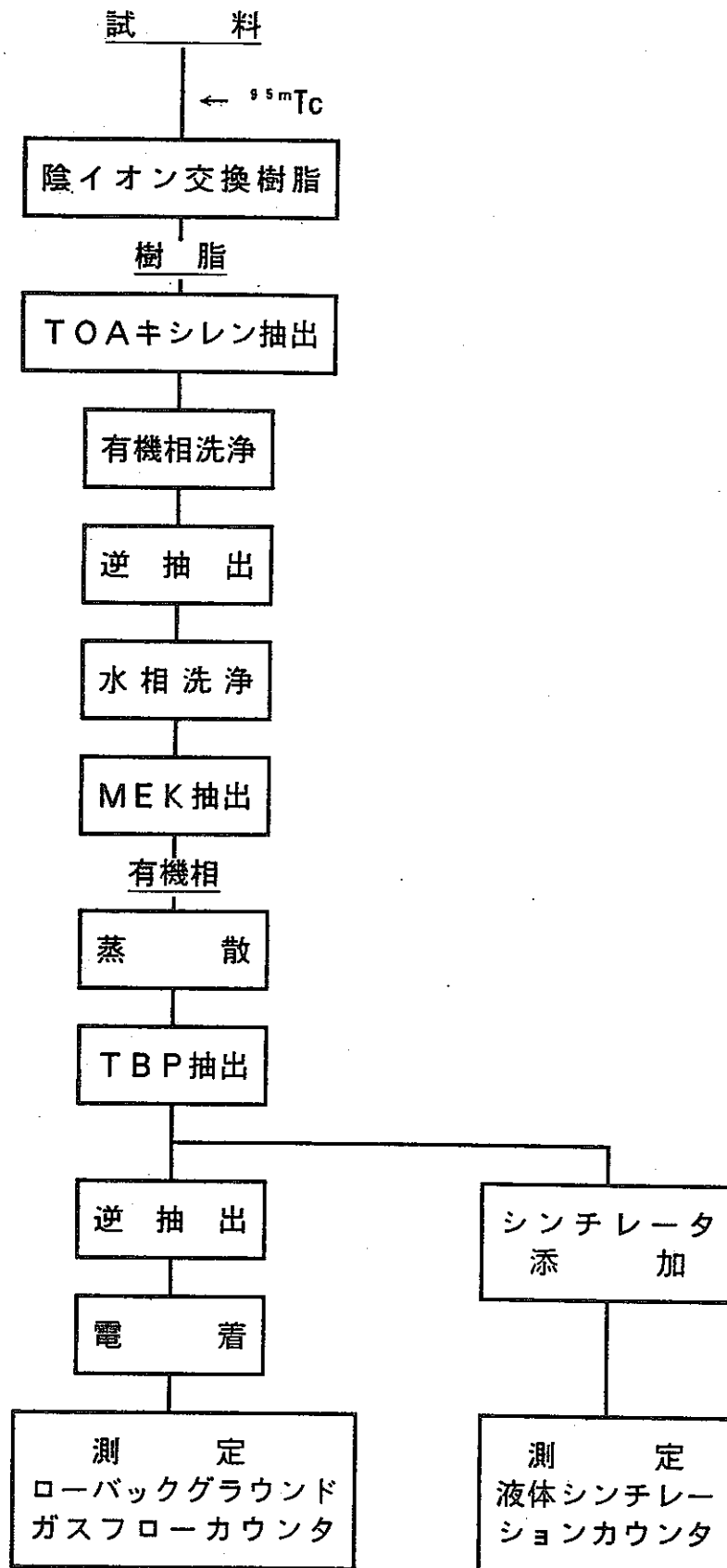


図 - 2 海水中 ^{99m}Tc の分析法

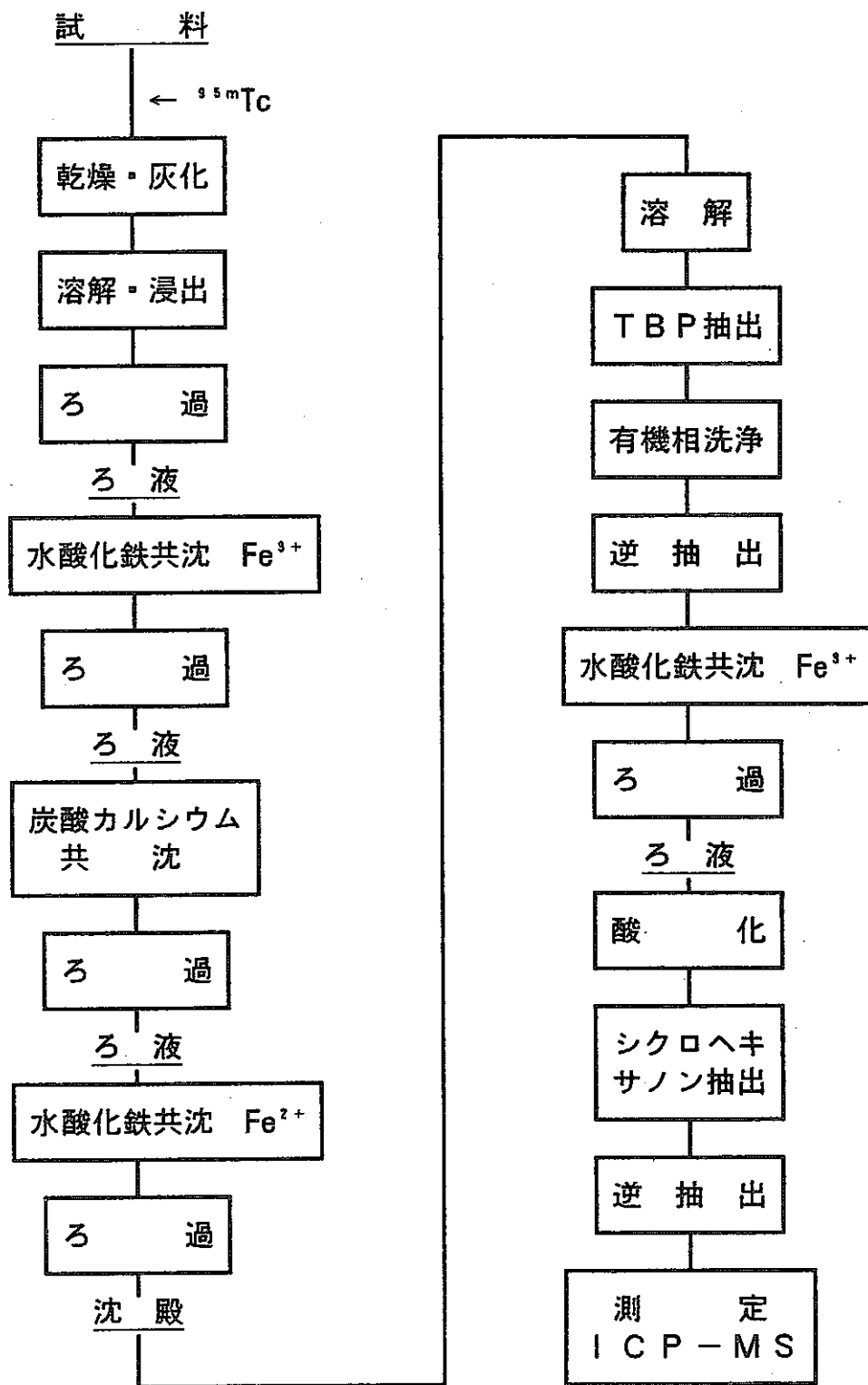


図 - 3 ICP-MSを用いた環境試料中^{99m}Tcの分析法

表—1. 海藻中の⁹⁹Tc濃度

試料名	採取場所	採取年月	⁹⁹ Tc濃度(Bq/kg・生)
ワカメ	茨城県	1988年6月	0.017±0.003
アラメ	茨城県	1988年8月	0.061±0.011
アラメ	茨城県	1988年6月	0.13 ±0.018
チガイソ	青森県	1988年8月	0.035±0.012
ホンダワラ	福井県	1988年8月	0.11 ±0.011
ホンダワラ	北海道	1988年9月	0.037±0.004
コンブ	北海道	1988年9月	0.26 ±0.033

表—2. 海水中の⁹⁹Tc濃度

採取場所	採取年月	⁹⁹ Tc濃度(μBq/l)
茨城県日立沖	1988年 8月	48±16
茨城県日立沖	1988年 9月	37±10
茨城県東海沖	1988年 9月	N.D.
東京湾中央部	1988年12月	N.D.
九十九里沖	1988年12月	N.D.

N.D. : 検出下限未満

環境試料中炭素-14の測定法に関する研究

安全管理部環境安全課

渡辺 均、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

環境中に存在する炭素-14 (^{14}C) は、天然に存在するもののほか大気圏内核爆発実験及び原子力発電等により人工的に生成されるものから成る。

現在では大気圏内核爆発実験が中止されており、今後も将来に渡り中止されるならば、人工的な放出源としては原子力施設が注目される。

環境中に放出された ^{14}C は安定炭素と同様の挙動を取ると考えられ、光合成によって植物に取り込まれ、食物として人体に摂取される。現在の ^{14}C 濃度は、線量当量評価上問題となるレベルではないが、炭素は人体の主要な構成要素であり、また ^{14}C の半減期が5,730年と長いことから、 ^{14}C は長期的な環境影響を評価する上で重要な核種である。

したがって、環境試料中 ^{14}C 濃度の測定法を確立し、原子力施設周辺環境モニタリングに反映させるため以下の研究を実施した。

- (1) 環境試料（大気中 CO_2 、葉菜、牛乳、精米等）の捕集方法又は前処理法を検討する。
- (2) 環境モニタリング手法としての環境試料中の ^{14}C の測定法について検討し、 ^{14}C 濃度の水準調査を行う。
- (3) 環境中における ^{14}C の挙動を詳細に把握する観点から、 ^{14}C の精密測定法について検討し、データを蓄積する。

II. 研究成果

1. ^{14}C 測定法の検討

(1) 試料の採取前処理法

(i) 大気中 CO_2 の捕集法

大気中の CO_2 の捕集法としては、図-1に示す捕集装置により空気を1~3 l/分の流速で吸引し、3M-NaOH溶液に CO_2 を捕集した。捕集は、1週間から1ヵ月間行った。

NaOH溶液に捕集した CO_2 は、カルシウムと反応させ CaCO_3 の形で固定した。

(ii) 精米、葉菜、牛乳の前処理法

精米、葉菜及び牛乳については、 ^{14}C の測定試料調製の前処理として燃焼又は燃焼ガス中の CO_2 を3M-NaOH溶液に捕集したのち、カルシウムと反応させ CaCO_3 の形で固定した。水分の多い試料を燃焼するに当たっては乾燥が必要となるが、葉菜は105℃乾燥、また牛乳については凍結乾燥により乾燥処理を行った。

(2)測定法の検討

^{14}C の測定方法については、現在、比例計数管による気体計数法、液体シンチレーション測定法、特殊な方法として加速器質量分析計を用いた測定法が報告されている。これら測定法のうち、環境モニタリングの観点から測定器の操作性及び安定性の良い、液体シンチレーションカウンタを用いた測定方法について検討した。

測定試料の調製法としては、簡便な操作で調製が可能な CO_2 吸収法（簡易測定法）及び高精度で測定が可能なベンゼン合成法について検討した。

(i)簡易測定法

(a)試料調製

図-2に、簡易測定法における測定試料調製のための CO_2 吸収装置を示す。測定試料の調製は、試料の CaCO_3 24gをフラスコに入れ、窒素ガスを流しながら HClO_4 を滴下し、 CaCO_3 を分解して CO_2 を生成させた。

CO_2 は、ガス中の水分を除いたのち CO_2 吸収剤50mlに吸収させた。

(b)測定

試料の測定は、 CO_2 吸収剤と液体シンチレータ50mlを混合したのち、測定に供する炭素量をできるだけ多くするため、100 ml用低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタで50分間10回繰り返し測定した。

簡易測定法における測定性能は、バックグラウンド:16cpm、計数効率:72%、測定時間:500分、供試量:2.5g・炭素の場合、検出下限値は0.43dpm/g・炭素であった。また、同一試料について10回の繰り返し分析測定を行ったがその変動係数は1.9%であった。

(ii)ベンゼン合成法

試料の炭素からベンゼンを合成して測定する方法の有意性としては、純粋なベンゼンの形で測定に供することができることから、液体シンチレーション測定においてクエンチングの影響による計数効率の変動が無く、また、試料の取扱い及び供試量の定量が容易であることから高い精度での測定が可能である。

(a)ベンゼン合成操作

ベンゼン合成操作は、図-3のベンゼン合成装置で試料燃焼ガス又は CaCO_3 を酸で分解し生成した CO_2 を試料として導入し、1試料当たり約10lの CO_2 を用いた。試料の CO_2 は、620℃の溶融金属リチウムと反応させ、リチウムカーバイドを生成させた。放冷後、リチウムカーバイドに水を加えて C_2H_2 を生成させ、生成した C_2H_2 をベンゼン重合触媒（三価クロムアルミナペレット）により重合し C_6H_6 を合成した。

(b)測定

合成により得られたベンゼン3mlをミニバイアルに取り、これに液体シンチレータ0.5mlを加えて混合したのち、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタで1,000分間測定した。

ベンゼン合成法での測定性能は、バックグラウンド:0.9cpm、計数効率:67%、測定時間:1,000分、供試量:2.5g・炭素の場合、検出下限値は

0.08dpm/g・炭素であった。また、同一試料について10回の繰り返し分析測定を行ったが、その変動係数は0.85%であり高い再現性が得られた。

2. 水準調査結果

(1)大気中CO₂の測定結果

図-4に、動燃東海事業所内(安全管理棟屋上)で採取した1988年第1四半期(1月~3月)から1990年第4四半期(10月~12月)までの3年間の大気CO₂中の¹⁴C濃度の測定結果(3カ月平均)を示す。

測定結果のうち、1988年から1990年第1四半期までのデータについては簡易測定法により、それ以後は、ベンゼン合成法による測定結果を示している。

3年間の調査結果からは、簡易測定法における測定上のデータのバラツキはあるものの、そのレベルは約16dpm/g・炭素であった。

(2)葉菜の測定結果

表-1に1990年から1991年1月にかけて東海村、勝田市、那珂町で採取したホウレン草、キャベツについて測定した結果を示す。そのレベルは採取地、試料の種類に係わらず約16dpm/g・炭素であった。

(3)牛乳の測定結果

表-2に、1989年5月から1990年10月までの間に勝田市及び那珂町で搾乳した牛乳中の¹⁴C濃度の測定結果を示す。測定結果は、両地点とも約16dpm/g・炭素であった。

(4)精米の測定

(i)精米の経年変化

図-5に動燃東海で採取し保存していた勝田市及び那珂町の1982年から1990年産の精米について測定した結果を示す。測定結果は、両地点とも同レベルで推移し、現在のレベルは約16dpm/g・炭素であった。

(ii)精米の広域調査

図-6に1990年に生産された日本各地の水稲米を対象に、現在の環境中¹⁴Cのバックグラウンドレベルを把握するための広域調査結果を示す。調査は、北海道から九州までの1道11県の19試料について実施した。調査結果は、各地の測定結果とも約16dpm/g・炭素のレベルであった。

3. 考 察

(1) 簡易測定法は、測定試料の調製に要する時間が1試料当たり1時間程度ですみ、迅速な測定法といえる。しかし、その測定精度は環境中の¹⁴Cのレベルを測定するには有効であるが、環境中における微小変動を的確に把握する目的にはさらに精度を高める必要がある。

(2) ベンゼン合成法は、試料の調製に約1.5日程度の時間が掛かるが、その検出感度については現在の¹⁴Cのレベルに対し3桁以下であり、また、変動係数が1%以下と高い再現性が得られていることから、環境中での¹⁴Cの挙動評価を行うための

手法として極めて有効な方法であることが確認された。

- (3) 環境中 ^{14}C の水準調査として、大気中 CO_2 、葉菜、牛乳について、東海村、勝田市、那珂町で調査を行ったが、試料の種類、採取地に係わらず現在の ^{14}C のレベルとしては約16 dpm/g・炭素であった。

精米の経年変化については、1982年から1990年の間に若干の減少傾向が見られるようであるが、現在のレベルは約16 dpm/g・炭素と他の試料と同様の結果であった。また、1990年産の日本各地の水稻米（精米）を対象に調査を行った結果では、各地の測定結果に有意な差は見られず、地域的な変動傾向も見られないことから、現在の環境中 ^{14}C のバックグラウンドレベルとしては、約16dpm/g・炭素であると考えられる。

III.まとめ

今回の環境試料中 ^{14}C 測定法の開発に関する研究成果として、以下のことが確認できた。

- (1) 環境モニタリング手法として開発した簡易測定法は、操作が簡便で試料調製時間も短くてすむが、その測定精度は環境レベルの変動を把握するには適さないことが分かった。
- (2) 精密測定法として導入したベンゼン合成法は、その測定精度の高さから環境中での ^{14}C の挙動評価を行う上で、極めて有効な方法であることを確認した。
- (3) 水準調査を行った環境試料中の ^{14}C のレベルは、大気中 CO_2 、精米、葉菜、牛乳とも、約16dpm/g・炭素であった。

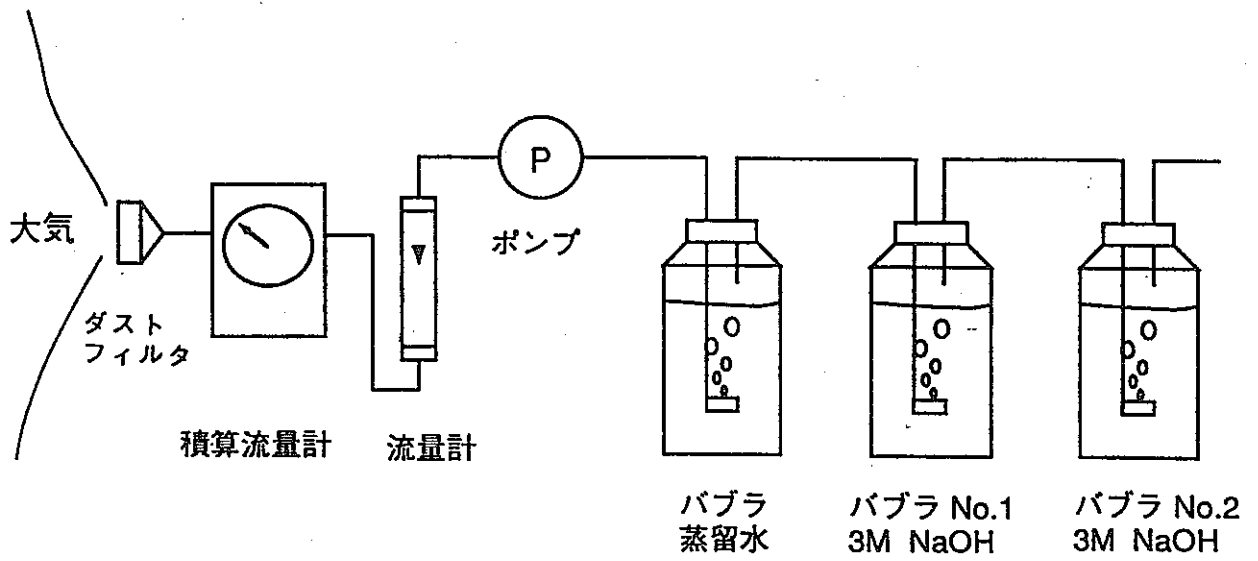


図-1 大気中CO₂捕集装置

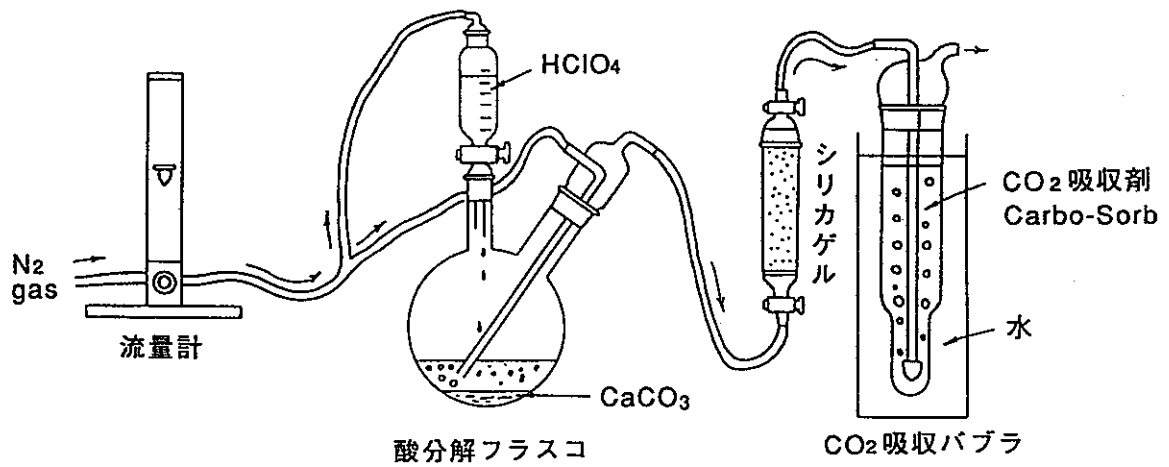


図-2 CO₂吸収装置(簡易測定法)

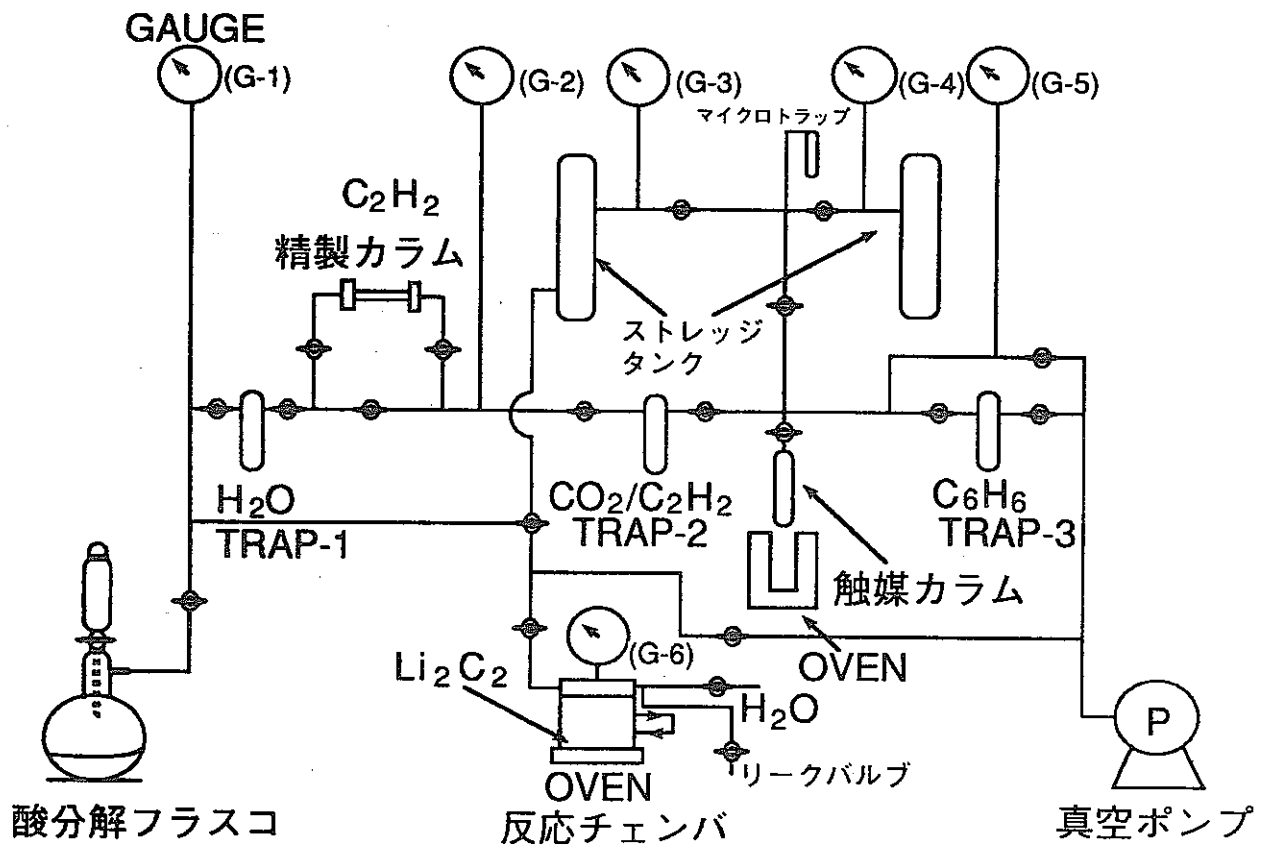


図-3 ベンゼン合成装置系統図

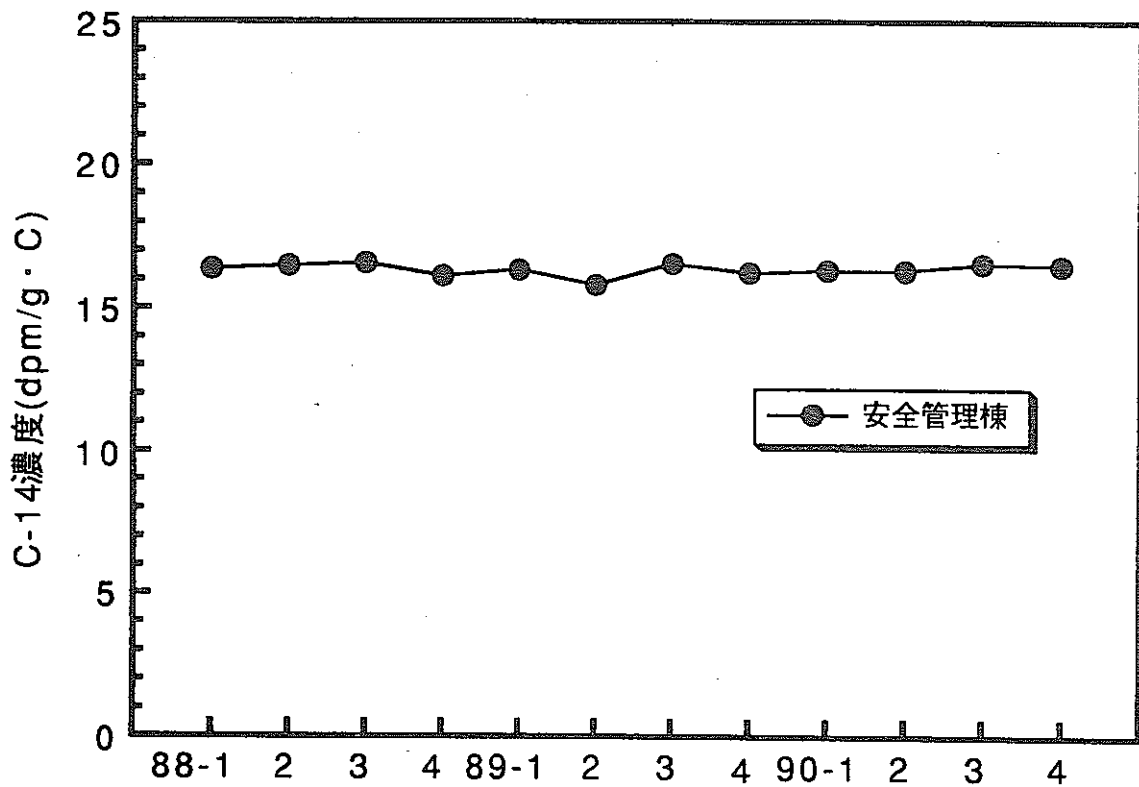


図-4 大気CO₂中のC-14濃度

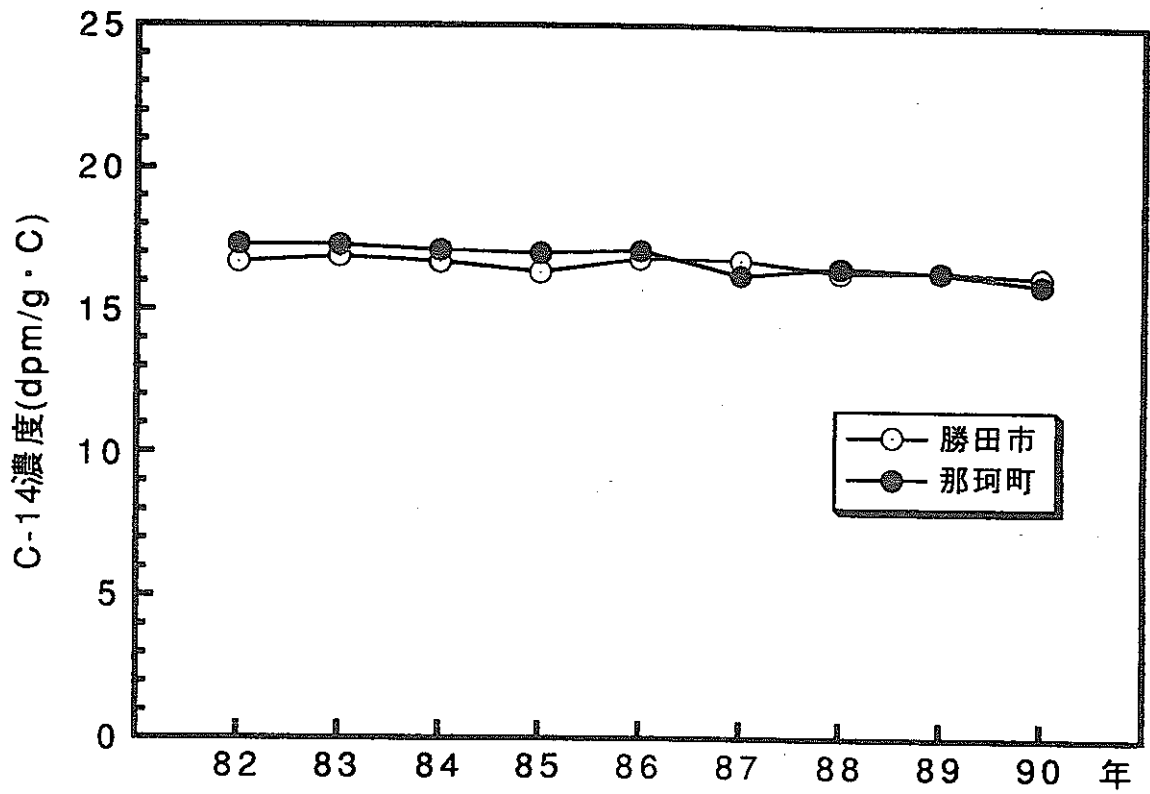


図-5 精米中 C-14 濃度の経年変化

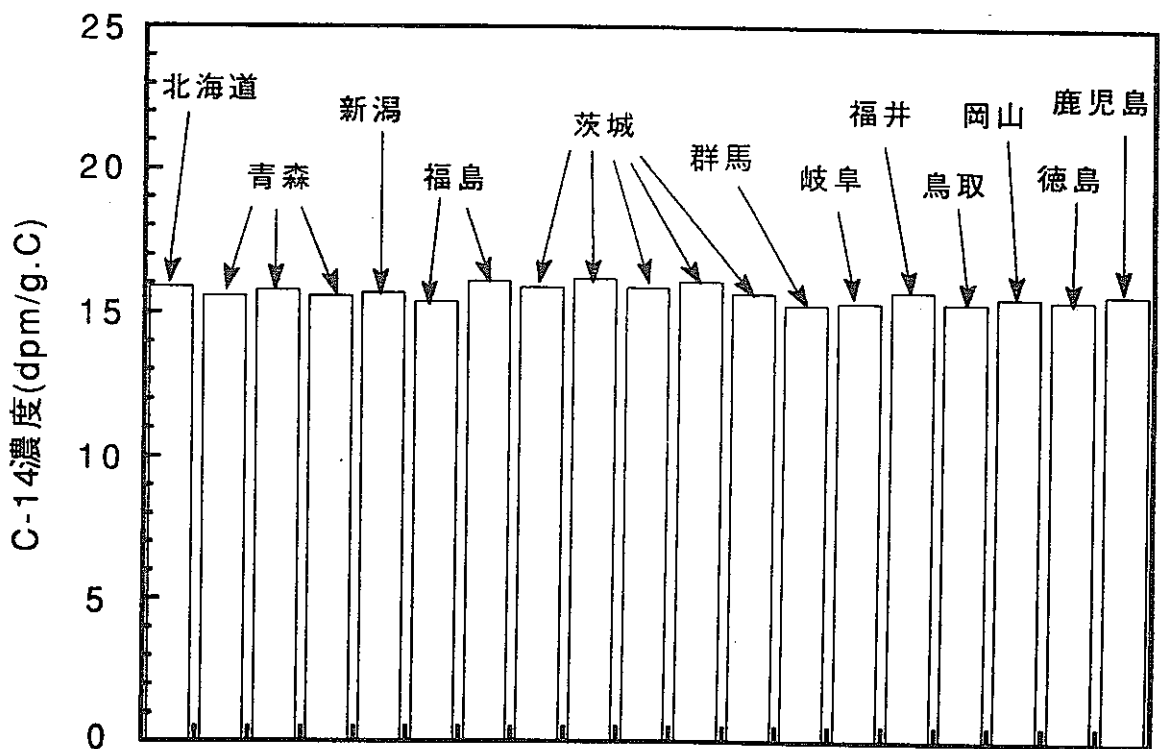


図-6 1990産日本各地の精米中 C-14濃度

表一 葉菜中 C-14 測定結果 (ベンゼン合成法)

種類	採取	場所	測定値(dpm/g.C)	平均値(dpm/g.C)
ホウレン草	1990年		16.0±0.1	
キャベツ	1990年	東海村	15.7±0.1	16.0
キャベツ	1991年		16.2±0.1	
キャベツ	1990年		16.2±0.1	
キャベツ	1990年	勝田市	15.9±0.1	15.9
ホウレン草	1991年		15.6±0.1	
キャベツ	1990年		15.0±0.1	
キャベツ	1990年	那珂町	16.1±0.1	15.4
ホウレン草	1991年		15.3±0.1	

表二 牛乳中 C-14 測定結果 (ベンゼン合成法)

種類	採取	場所	測定値(dpm/g.C)	平均値(dpm/g.C)
牛乳	1989年		15.9±0.1	
〃	1990年	勝田市	15.1±0.1	15.6
〃	1990年		15.9±0.1	
〃	1990年		15.6±0.1	
牛乳	1989年		15.8±0.1	
〃	1990年	那珂町	15.7±0.1	15.8
〃	1990年		15.8±0.1	

環境モニタリングシステムに関する研究開発 —環境モニタリングの最適化に関する研究—

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所安全管理部環境安全課

住谷秀一、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

環境モニタリングの具体的目標は、「環境放射線モニタリングに関する指針」¹⁾において、(1)公衆の線量当量を推定、評価すること、(2)環境における放射性物質の蓄積状況を把握すること、(3)原子力施設からの予期しない放射性物質の放出による周辺環境への影響の評価に資するとともに、平常時のモニタリングを強化するか否かの判断に資すること、とされている。これらの目標を達成するためには、施設周辺の気象・海象等の環境条件、人口密集地・食品摂取状況等の社会的条件、経済的条件等を考慮し、対象施設に最適なモニタリング計画を策定する必要がある。

以上のことから、本研究では、(1)線量当量評価に用いるパラメータ、(2)従来のモニタリング項目、(3)新規核種のモニタリングについて、モニタリング計画の最適化（適合化）の観点から検討した。

II. 研究成果

1. 線量当量評価に用いるパラメータ

原子力施設から環境中へ放出される放射性物質に起因する一般公衆の線量当量の評価において、評価に用いる各種パラメータの有効性を調査することは、線量当量評価の最適化の重要な因子である。このため、施設周辺に特有なパラメータを求めするために、これまでに得られた分析結果をデータベース化し、またそれらを図表化及び統計処理するためのアプリケーションソフトを導入し、以下のパラメータの有効性について検討した。

(1)海産生物の濃縮係数及び海岸砂の汚染係数

施設から海洋へ放出される放射性物質に起因する線量当量評価上重要なパラメータとして、内部被ばくに係る海産生物の濃縮係数及び外部被ばくに係る海岸砂の汚染係数があげられる。

これらのパラメータは、東海周辺海域で測定された操業前モニタリングの結果から計算し、従来から施設周辺の環境条件に特有なパラメータとして評価に用いてきたが、本研究において、操業前モニタリング以降のデータも含めて再調査した。

海洋中に放出された放射性物質は、海水及び海産生物、懸濁物質、海底土、海岸砂等の間で分配される。再処理施設の安全評価に必要な核種として、Sr-90, Zr-95, Nb-95, Ru-106, Cs-137, Ce-144, Pu-239,240 及び Am-241 を対象に海水、海産生物、海岸砂、海底土の分析データから、平衡状態を仮定して濃縮係数及び汚染係

数を算出した。

海水、海産生物及び海岸砂中の平均核種濃度を基に算出した海産生物の濃縮係数及び海岸砂の汚染係数を表-1及び表-2に示す²⁾。

得られた海産生物の濃縮係数において、これまで用いてきた値を超えるものとしては、成魚、貝類、頭足類のSr及びシラス、貝類、紅藻のCsがあるが、いずれもファクター2以下の差であった。他の濃縮係数については、いずれも従来値に比べ小さい値が得られた。しかし、各々の濃縮係数算出に用いた測定データの変動範囲を考慮すると、従来線量当量評価に用いてきた値を変更する必要性は見出せなかった。

一方、海岸砂の汚染係数については、Sr-90がこれまで用いてきた値の1.4倍となったが、他の核種については、従来値に比べ小さい値が得られた。しかし、各々の汚染係数算出に用いた測定データの変動範囲を考慮すると、これまで用いてきた値を線量当量評価に用いることは妥当と考えられる。

(2)農畜産物への移行

I-129を対象核種として、東海再処理施設周辺環境において採取した農畜産物中濃度及び放出量から計算した大気中濃度から、放射性ヨウ素の大気から植物上への直接沈着による可食部への移行割合について検討した。

I-129濃度の測定は、大気、葉菜及び精米を中性子放射化分析法により定量した。また、大気中から植物へ移行する割合は、以下の式に基づいて計算した。

$$\text{大気中から葉菜等へ移行する割合} = \frac{\text{葉菜等のヨウ素-129濃度 (Bq/g生)}}{\text{大気中ヨウ素-129濃度 (Bq/cm}^3\text{)}}$$

フィールドデータを基にしていることから、直接沈着経路及び土壌経路からの移行を弁別することは困難である。したがって、大気からの直接沈着による可食部への移行割合の算出に当たっては、葉菜等のI-129は全量が大気から移行したと仮定した。なお、計算モデルによる評価では、直接沈着経路が可食部へ移行するI-129の90%以上を占めることが分かっている。

また、大気中濃度については、実測値と大気試料の採取期間の気象観測データを用いた拡散計算によって得られた結果がよく一致することから、各々の対象農産物に応じた栽培期間について拡散計算から算出した値を用いた。

表-3に得られた葉菜及び精米についての大気中から葉菜等への移行割合を示す。なお、精米については、現在の分析法では測定上有意な値が検出されていないことから、検出下限値を用いて算出した。

得られたヨウ素-129の大気中から葉菜等への移行割合は、米国NRCのRegulatory Guide 1.109³⁾に示されている大気中からの直接沈着による植物可食部への移行率(r)に換算すると、葉菜で0.2以下、精米で0.01以下になり^{4)、5)}、Regulatory Guide 1.109で示されている値(葉菜:1.0、牧草:1.0)よりも約1桁程度小さいことが分かった。

これらのデータは、フィールドデータであることから、実際の気象状況等を反映しており、降雨の効果も含んでいるものと考えられる。このことから、これまで用いてきた米国NRCのRegulatory Guide 1.109等を参考としたパラメータは、かなりの安全裕度を持った値であることが分かった。

2. 従来のモニタリング項目

これまで定常のモニタリングを補足する観点から、環境における放射性物質の蓄積状況を把握するため、東海沖30点において隔年ごとに海底土中の Sr-90, Cs-137, Pu-239,240 について調査してきた。これまでの調査結果を図-1に示す。図から海底土中の Sr-90, Cs-137, Pu-239,240濃度は、蓄積傾向は見られず、むしろ減少傾向にあることが分かった。また、定常のモニタリングにおいても、同海域で海底土中の Sr-90, Cs-137, Pu-239,240について調査しており、同様の傾向を示している。

以上のことから、これまで海洋環境における放射性物質の蓄積状況を把握する観点で実施してきた海底土中の Sr-90, Cs-137, Pu-239,240の広域調査を省略しても定常のモニタリングにより十分監視できることが分かった。

3. 新規核種のモニタリング

新規核種として炭素-14を対象に、環境モニタリングの最適化について検討した。大気放出に起因する公衆の線量当量評価結果を図-2に示す。図から農畜産物摂取による炭素-14からの線量寄与が大きく、炭素-14は、環境モニタリングの対象核種として重要な核種であることが分かる。農畜産物摂取経路別の炭素-14による実効線量当量の評価結果を図-3に示す。図から炭素-14の環境モニタリングの採取対象試料としては、米を対象とすれば線量当量評価上問題ないことが分かる。採取地点については、これまでと同様に、監視対象区域として最多出現風向の風下方向である南西方向を対象に、集落があり、かつ対象試料を生産している照沼、長砂地区とし、比較対照区域として施設の西約10km点とした。また、採取頻度については、米の収穫上、年1回とした。

以上の調査結果は、再処理施設周辺環境放射線モニタリング計画の見直しに反映した。

III. 参考文献

- 1) 原子力安全委員会 "環境放射線モニタリングに関する指針" 平成元年3月
- 2) Naomi Hayashi, Yoshihiro Maruo, Hiromi Katagiri, Kunihiro Shinohara
"Study on the Behavior of Radionuclides in Marine Environment under the Monitoring Program of the Tokai Reprocessing Plant", Proceeding of The Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, RECOD '91, Sendai, Japan, Vol. 1, pp 247-252(1991)
- 3) U.S. Nuclear Regulatory Commission, "Calculation of annual dose to man from routine release of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR, Part 50,

Appendix I", Washington, DC: U.S.Nuclear Regulatory Commission, Regulatory Guide 1.109, Rev.1,1977

- 4) 篠原邦彦 " 環境線量当量評価に用いる環境パラメータ設定の一例について"
動燃技法No.77
- 5) Kunihiro Shinohara, Tomohiro Asano, "Environmental Dose Assessment for Low-level Radioactive Effluents Discharged from Tokai Reprocessing Plant", Health Physics, Vol.62, No.1, 1992

表-1 海産生物の濃縮係数

海産生物	濃縮係数						
	Sr	Zr/Nb	Ru	Cs	Ce	Pu	Am
シラス	4.0	26	21	25	33	33	68
成魚	3.4	30	8.7	27	17	13	35
褐藻	15	91	120	29	120	360	250
貝類	5.2	36	140	10	260	150	740
頭足類	3.3	50	12	9.7	22	35	130
甲殻類	22	31	110	14	88	240	650

表-2 海岸砂の汚染係数

核 種	汚染係数
Sr-90	14
Zr-95	500
Nb-95	140
Ru-106	180
Cs-137	81
Ce-144	370

表-3 ヨウ素-129の大気中から葉菜等への移行割合の試算結果

試 料	範 囲	データ数	平均値
葉 菜	$4.7 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^6$	9	1.2×10^6
精 米	$< 4.1 \times 10^4 \sim < 2.0 \times 10^6$	6	$< 3.8 \times 10^5$

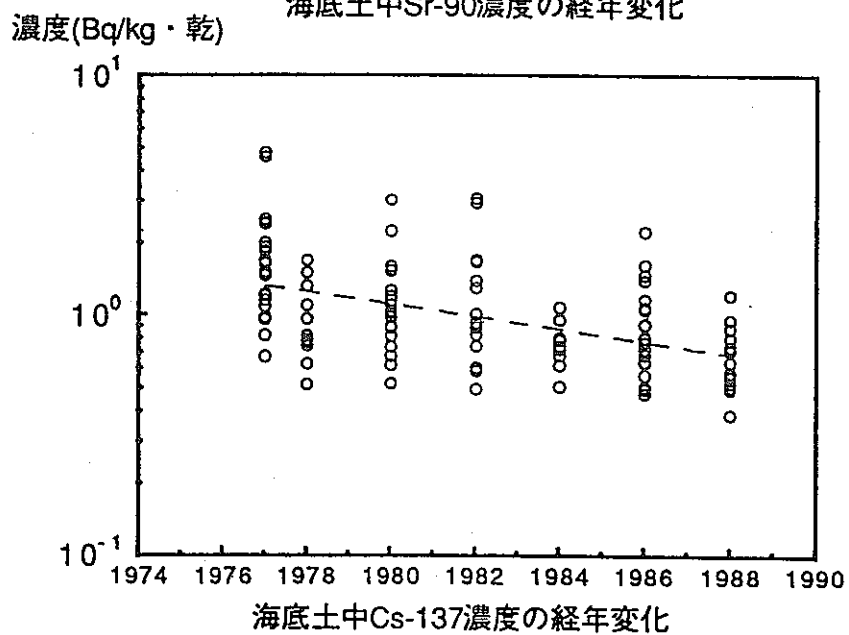
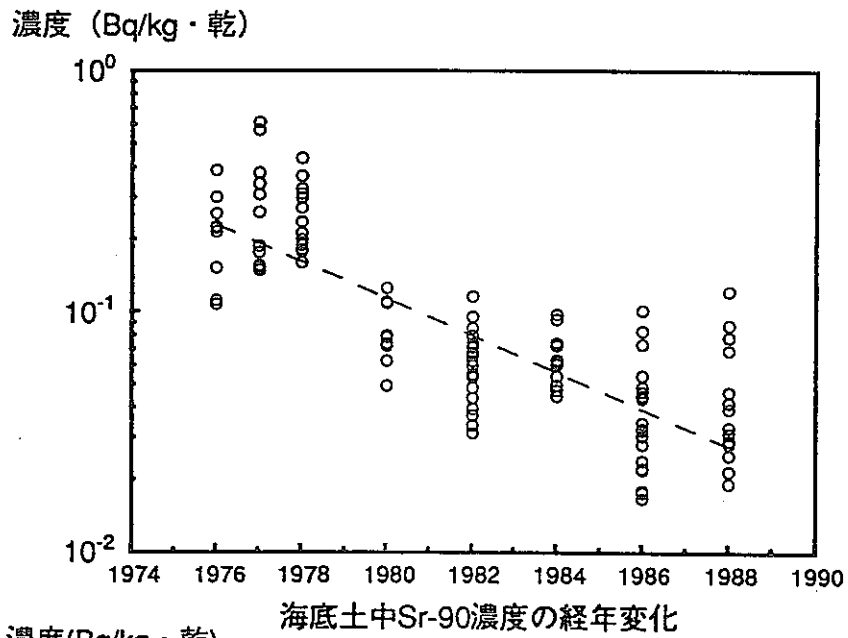
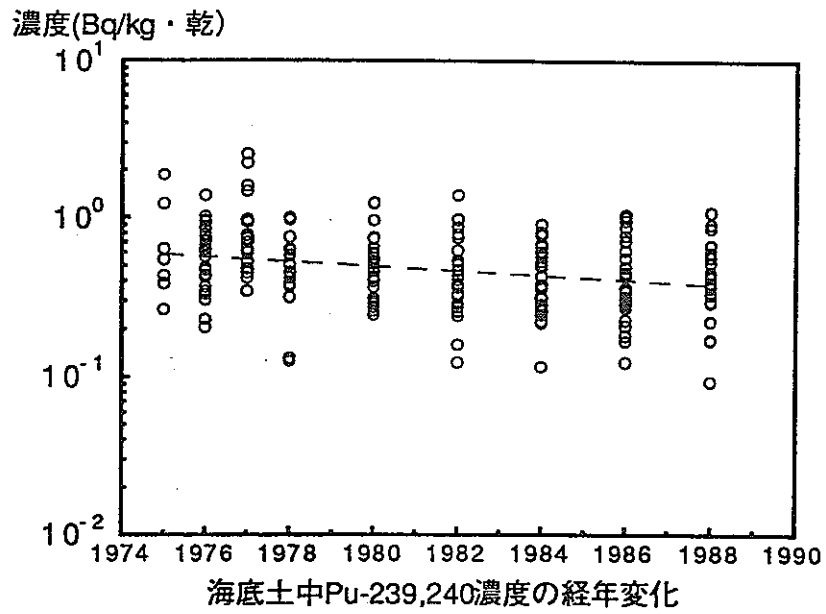
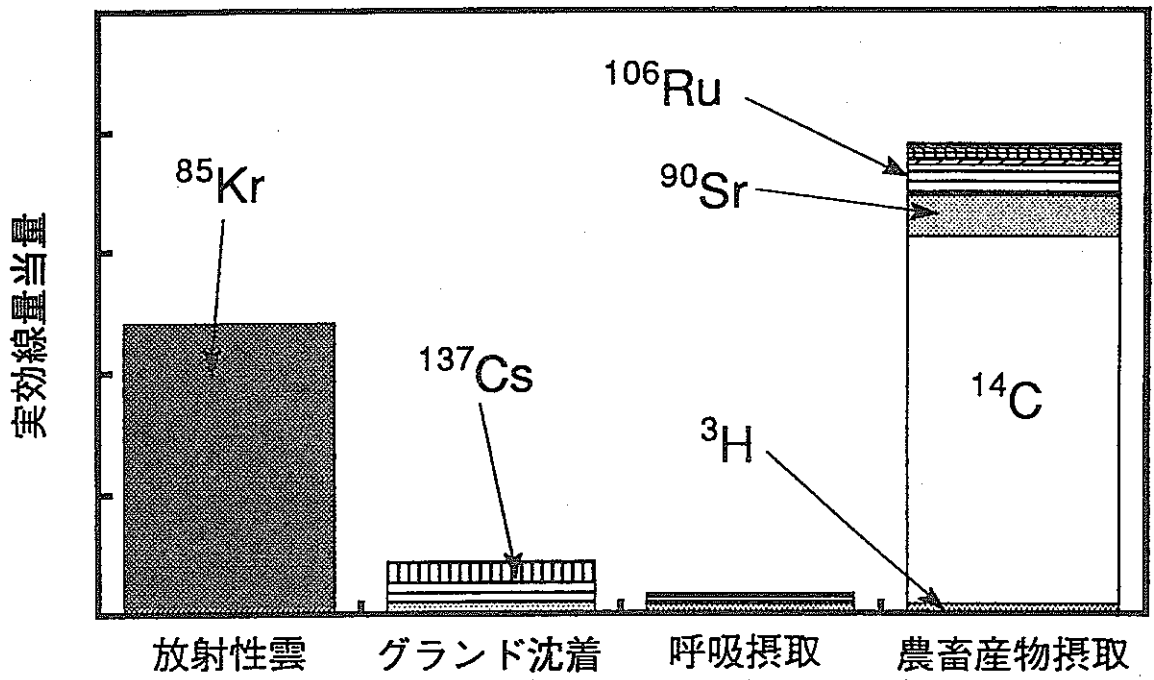


図-1 海底土中Pu-239,240,Sr-90及びCs-137濃度の経年変化



放射線雲 グランド沈着 呼吸摂取 農畜産物摂取
 図-2 東海再処理施設からの大気放出に起因する
 経路別核種別実効線量当量

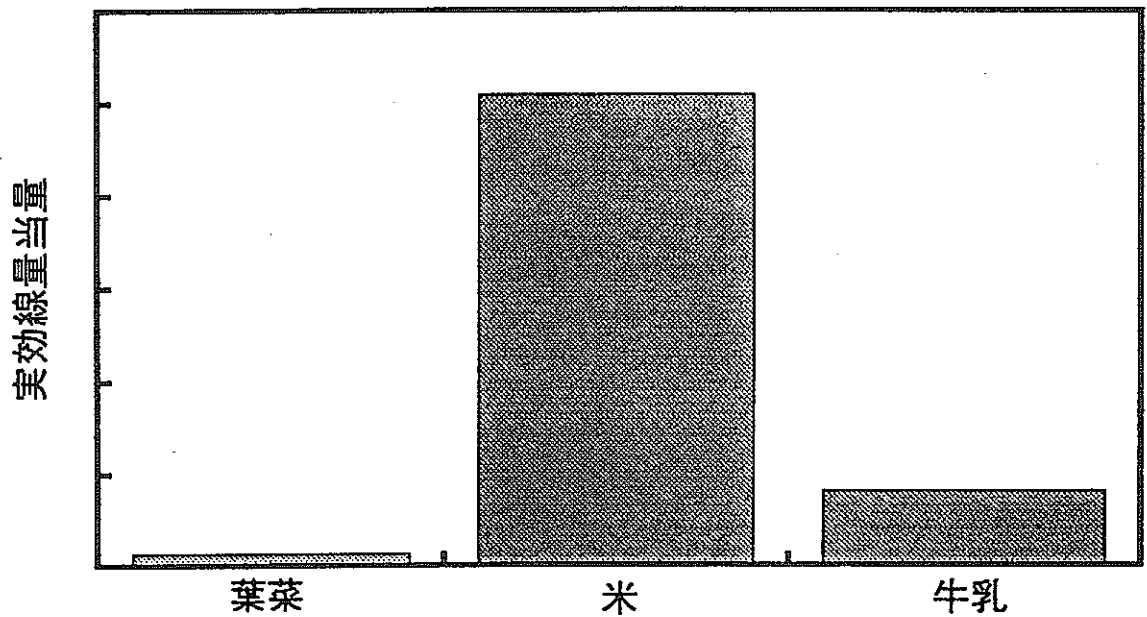


図-3 炭素-14の経口摂取被ばくの農・畜産物経路別
 実効線量当量

廃棄物処分に起因する環境放射線影響解析手法の開発

東海・環境技術開発部 畑中 耕一郎

本社・環境技術開発推進本部 梅木 博之

I. 研究の概要

1. 目的

本研究の目的は、地層処分システムの長期的安全性を評価するため、地下水流動、核種移行及び被ばくに関する個別モデルを組み合わせて、一連の安全評価計算が行えるように統合化を実施すること、及びこの統合化モデルを用いて試算を実施することである。統合化モデルは、ガラス固化体から地下水に溶出した放射性核種が緩衝材、地層中を通過して生物圏に至る、地下水移行シナリオに沿ったものである。各プロセスを記述する個別モデル中には種々のパラメータが含まれており、これらのパラメータの変化が地層中での核種濃度や被ばく量に及ぼす影響についても考察する。また、統合化モデルに組み込まれている個別現象モデルについては、原位置試験データ等との比較によりその妥当性について検討を行った。

2. 方法

ガラス固化体核種インベントリ解析モデル(ORIGEN2¹⁾)、水理解析モデル(FEMWATER²⁾)、緩衝材中の核種移行解析モデル(RELEASE)、地層中の核種移行解析モデル(FEMWASTE-PNC)、被ばく量解析モデルを統合化して全体評価モデルを作成し、地下水移行シナリオに沿って地層処分システムの安全性評価を実施した(括弧内は使用した計算コード名)。計算の流れを図1に示した。また、緩衝材中の核種移行計算に必要な核種の溶解度を決定するにあたり、地下水分類及び、地下水と人工バリア材との相互作用に関するモデル化を行った。

II. 研究成果

1. 統合化モデルの開発

統合化モデルでは、緩衝材中の核種移行に関しては1次元、地層中水理・核種移行計算に

関しては2次元の単純化したモデルを使用している。生物圏に到達した核種による人間の被ばく量の計算においては、地表に地下水とともに流出し希釈された核種を直接人間が摂取すると仮定している。

(1) 水理解析モデル

「FEMWATER」で使用している数値モデルは、直交座標系の2次元領域を対象とした飽和及び不飽和状態の多孔質媒体中の流れを表現しており、ダルシー則と質量保存則から誘導される。式(1.1)にその基本方程式を示す。

$$F \frac{\partial h}{\partial t} = K_{xx} \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + K_{yy} \frac{\partial^2 h}{\partial z^2} \quad (1.1)$$

$$F = \frac{\theta}{n} \alpha + \beta + \frac{d\theta}{dh} \quad (1.2)$$

ここに、 h : 圧力水頭 (L)、 K_{xx} 、 K_{yy} : 不飽和透水係数 (L/T)、

θ : 堆積含水率 (-)、 α : 岩体の圧縮率 (1/L)、 β : 水の圧縮率 (1/L)、

n : 岩体の空隙率、

このモデルを用いた解析結果から、(2)の境界条件となる地下水流速を得ることができる。

(2) 緩衝材中核種移行解析モデル

「RELEASE」で使用している数値モデルは、円筒座標系(r, z)の半径方向1次元領域を対象とした飽和状態の多孔質媒体中の核種移行を表現しており、核種の拡散、遅延、崩壊(3メンバーまで)の現象を考慮して質量保存則から導出される。式(1.3)に緩衝材空隙水中の核種 i の濃度 C_i に関する基本方程式を示す。

$$R d_{Bi} \frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{Bi} \left(\frac{\partial^2 C_i}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) - R d_{Bi} \lambda_i C_i + R d_{Bi-1} \lambda_{i-1} C_{i-1} \quad (1.3)$$

$$R d_{Bi} = 1 + \frac{(1 - \varepsilon_B)}{\varepsilon_B} \rho_B K d_{Bi} \quad (1.4)$$

ここに、 $R d_{Bi}$: 緩衝材中の核種 i の遅延係数 (-)、 D_{Bi} : 核種 i の緩衝材中の拡散係数 (L²/T)、 ε_B : 緩衝材の空隙率 (-)、 ρ_B : 緩衝材の密度 (M/L³)、

$K d_{Bi}$: 核種 i の緩衝材中の分配係数 (L³/M)

ガラス/緩衝材界面では核種溶解度または浸出率、緩衝材/母岩界面では、地下水流速

が境界条件として与えられる。また、解析結果として得られる緩衝材から母岩への核種放出率は、地層中の核種移行解析モデルのソースタームとして用いられる。

(3) 地層中核種移行解析モデル

「FEMWASTE-PNC」で使用している数理モデルは、「FEMWASTE」³⁾のモデルを基本としており、直交座標系2次元領域を対象とした飽和及び不飽和状態の多孔質媒体における核種移行を扱う。核種の移流、分散、遅延、崩壊(3メンバーまで)の現象を考慮して、質量保存則から、式(1.5)に示す基本方程式が得られる。

$$R d_i \frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{xxi} \frac{\partial C_i}{\partial x} + D_{xzi} \frac{\partial C_i}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{xxi} \frac{\partial C_i}{\partial x} + D_{zxi} \frac{\partial C_i}{\partial z} \right) - V_x \frac{\partial C_i}{\partial x} - V_z \frac{\partial C_i}{\partial z} - R d_i \lambda_i C_i + R d_{i-1} \lambda_{i-1} C_{i-1} + Q_i \quad (1.5)$$

ここに、 $R d_i$: 岩体中の核種 i の遅延係数 (-)、 D_{xxi} 、 D_{xzi} 、 D_{zxi} 、 $D_{zz i}$: 岩体中の核種 i の分散係数 (L^2/T)、 V_x 、 V_z : 岩体中の地下水流速 (L/T)、 C_i : 核種 i の濃度 (M/L^3)、 λ_i : 核種 i の崩壊定数 ($1/T$)、 Q_i : 核種 i の湧き出し (M/L^3T)

Q_i は(2)の解析結果から与えられる。ここでの解析結果は、被ばく量解析モデルに用いられる。

(4) 被ばく量解析モデル：被ばく量の計算は、生物圏に放出された核種が希釈され、それを人間が摂取すると仮定して次式により行われる。

$$D_{inr} = T_{outi} \cdot M_{dr} \cdot DCF / V \quad (1.6)$$

ここに、 D_{inr} : 核種 i による線量当量 (Sv/y)、 T_{outi} : 核種 i の生物圏への年間放出率 (Bq/y)、 M_{dr} : 水の年間摂取量 (m^3/y)、 DCF : 換算係数 (Sv/Bq)、 V : 希釈水量 (m^3/y)

2. 統合化モデルを用いた試解析

緩衝材中核種移行計算では、オーバーパックが処分後 1,000年経過時点で破損し、核種の浸出が開始するとした。ガラス固化体からの核種の浸出は、対象とする核種の浸出特性に対

応して、フラックス一定または溶解度固定の境界条件としてガラス固化体と緩衝材の界面に与えた。緩衝材と周辺岩体の界面では、周辺岩体の部分に緩み領域を考え、緩衝材から放出された核種が、瞬時に緩み領域内で混合され運び去られると仮定して境界条件としている。

地層中の水理・核種移行の計算では処分場から放出された核種が、地層中を移行する現象を扱う。モデル地形は、平野部、丘陵部、山岳部から構成した。処分場は山岳部と平野部に位置する場合を考え、深度は 1,000m、面積は 1 km × 4 km、固化体本数は 40,000本を想定した。地層の構造については、風化された表層と深部岩盤からなる 2 層の場合と風化された表層を無視した 1 層の場合とを考えた。水理計算における境界条件は、地表面部分で圧力水頭が 0、他の境界で水の流入流出がないと仮定した。核種移行計算においても同様に、地表面部分で濃度が 0、他の境界で核種の流入流出がないと仮定した。

以上で述べた数理モデルに基づき、予備的な評価計算を行った。地層の構造、処分場の位置、核種の分配係数値の影響に注目して計算を実施した。岩盤としては花崗岩体を、評価核種としては、 $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{U}$ の崩壊系列を選んだ。

図 2 は 2 層の場合の水理計算結果である。透水係数の大きい風化部分の流速が地表面に沿って大きくなっているが、流れの形態は 1 層と比較しても、山岳部を除いて顕著な違いは見られなかった。また、地下水の地表面への流出量に関しては、山岳部と丘陵部の境界付近が最も大きくなる。

図 3 に ^{241}Am 、 ^{237}Np 、 ^{233}U の緩衝材外側からの年間放出量の経時変化を示す。 ^{241}Am は ^{237}Np 、 ^{233}U に比べて分配係数が大きく半減期は小さいため、緩衝材の外側へはほとんど放出されない。 ^{237}Np と ^{233}U は約 1 万年後に定常の放出率に達する。

図 4 は地層中核種移行の計算結果の 1 例として、処分場から放出された ^{237}Np の移行挙動を示している。2 層の場合、核種が地下水の流れに沿って、処分場の深度(1,000m)から厚さ 200 m の風化部分へ到達する移行距離は、1 層の場合と大きな違いはない。また、風化部分での核種の移行距離は比較的短い。そのため、全体的にみると、1 層と 2 層の計算を比較した場合、両者にはそれほど大きな違いは見られなかった。処分場を山岳部に置いた場合と平野部に置いた場合を比較すると、山岳部では流速及びその変化の割合が大きいため、移流分散の影響が大きく現れるのに対し、平野部では小さい。

図 5 は、 ^{237}Np と ^{233}U に起因する年間被ばく量の経時変化の 1 例を示している。1 層と 2 層を比較した場合ほとんど変化は見られなかった。これは、処分場の深度が 1,000m と深

いために、風化部分を考慮しても、それが核種移行に及ぼす影響は小さいためである。山岳部と平野部を比較すると山岳部の方が早い時期に核種が放出されている。これは山岳部のほうが流速が大きいために、核種移行が移流と分散で輸送される場合も大きくなり、平野部に比べて地表面に到達する時間が早くなるためである。 ^{237}Np の分配係数は、 ^{233}U より1桁小さいために ^{237}Np に基づく被ばく量が早い時期に顕著になる。

3. 核種溶解度を設定するためのモデリング

以上の試解析において用いられているパラメータのうち、核種の溶解度は特に重要である。これは、地下水の地球化学的特性に依存しており、種々の地下水条件に応じた溶解度を設定するために、地下水のモデル化と分類、及び地下水と人工バリア材との反応のモデル化による人工バリア内の地下水条件の把握を行った。

(1) 地下水の化学的変遷モデルの作成

地下水の化学的条件を多岐にわたる地質環境の幅としてとらえるため、一般的に適用可能と考えられる理論や経験則に基づく地球化学的変遷プロセスのモデル化を行った。これを適用することにより、地下水のEh、pH、イオン濃度に基づいた類型化について検討した。

地下水の化学的特性のうち、pHや主要なイオン濃度は地下水起源や地下水-岩石反応の進展の程度に依存している。Ehについては深部地下水では、Fe、S、Cに関する酸化還元平衡に対応した低い値になると考えられる。これらを踏まえ、地下水分類へ適用するための化学的変遷モデルの作成にあたっては、まず地下水の起源(天水/海水)を決定した。次に地下水-岩石反応に関してEh、pH、イオン濃度に影響を及ぼすと考えられるプロセスとその反応の生起順序を、原位置での鉱物情報も参照しながら抽出し、地球化学コードPHREEQEによりEh、pH、イオン濃度を計算した。

地球化学計算の結果、地下水に影響を及ぼす主要な地球化学的プロセスは、それぞれ①Eh: Fe、Sを含む鉱物の溶解平衡、有機物による還元反応、還元性初生ガスとの平衡、②pH: 鉱物の風化、③イオン濃度: 起源・鉱物の風化、であった。さらに、これらの因子の組合せにより、地下水の分類として、天水起源については、希薄-還元-高pH、希薄-還元-低pH、海水起源については、濃厚-還元-高pH、濃厚-還元-低pHの4種類が分類された。深部地下水に関するデータは限られているが、地球化学モデルを用いて計算された希薄-還元-高pHの場合の地下水組成は、このモデルに条件に近い原位

置での実測値とほぼ一致した。

(2) 人工バリアシステムと地下水の相互作用に関するモデル化

地層処分の人工バリアシステムに浸入した地下水は人工バリアシステムの構成要素と反応し化学的条件が変化する。(1)のモデル化により類型化された地下水と想定された人工バリアシステムとの反応をモデル化し、人工バリアシステムの化学的緩衝性について検討した。

想定された人工バリアシステムは、ガラス固化体、炭素鋼オーバーパック及びベントナイトの緩衝材から構成される。人工バリアシステムに浸入した地下水はその化学的変遷に従い次の様にモデル化を行った。まず、地下水とベントナイトの反応は、イオン交換、石英及び方解石の平衡を考慮してモデル化した。次に、ベントナイトと反応した地下水がオーバーパックの安定な腐食生成物である磁鉄鉱との平衡を考慮して最終的にガラス表面に到達する地下水をモデル化した。これらのモデルに基づき地球化学コード PHREEQEによる解析を行った。

類型化された4種類の地下水に対して人工バリアシステム中での化学的変化を計算した結果、ガラス固化体表面に到達する地下水組成は、希薄還元地下水の場合はpHは約8～10、Ehは約-290～-430mV、濃厚還元地下水の場合、pHは約7～8、Ehは約-230～-310mVの領域にそれぞれ緩衝されることがわかった。緩衝された地下水に基づき、核種の溶解度を計算した。

4. 原位置試験データに基づく水理・核種移行解析モデルの適合性の検討

地層中の水理・核種移行特性測定技術開発の一環として、動燃とAEC Lとは、共同研究によりカナダホワイトシェル原子力研究所サイトにおける花崗岩岩盤中の割れ目帯を対象とした原位置の水理・トレーサ試験を実施した。得られた原位置試験のデータをもとに、計算コード「FEMWATER」、「FEMWASTE-PNC」、「DIPOLE」を用いて、透水量係数、帯水層幅、縦方向・横方向の分散率を推定し、各コードに使用されている水理・核種移行モデルの適合性について検討を行うとともに、AEC Lで開発した有限要素法による水理・核種計算コード「MOTIF」とのベンチマークを実施した。

パラメータの推定は以下のようにして行った。まず、全ボーリング孔から得られた全水頭、ボーリング孔近傍の透水量係数及び亀裂情報から計算領域全体の透水量係数分布の推定を行

う。次に、この空間分布をもとに2孔間（注水井と揚水井）で行われたトレーサ試験を解析し、縦方向、横方向の分散率を推定する。

透水量係数の空間分布の推定は「MOTIF」コードを用いて行い、 $1.6E-2$ 、 $9.0E-3$ 、 $1.3E-5$ (m^2/s) の3領域に分けられた。この透水量係数を用いて「FEMWATER」、「DIPOLE」、「MOTIF」により計算された揚水井における全水頭の値と観測値の比較を行った結果、3つのコードによる計算結果は互いに良く一致しており、また計算値と観測値も良い一致を示している。図6は「DIPOLE」により、揚水井における破過曲線の計算値を観測値にフィッティングした結果である。縦方向、横方向の分散率の値としてそれぞれ、5.0、0.5(m) が得られた。この図から、破過曲線の立ち上がりの部分に比べて、テールの部分で計算値と観測値との間に差があることがわかる。この原因として考えられる計算に使用する透水係数分布の詳細化、分散係数の考え方について、今後検討する必要がある。

IV. 結 語

以上、地層処分システムの長期的安全性評価を行うために開発したモデル体系とそれを用いた予備的評価結果について概要を示した。ここで示した解析結果はあくまで現在の知見を基に設定したデータを使用した例であることに注意する必要がある。今後はモデルの改良、データベースの整備を進め、より信頼性の高い評価体系を確立する予定である。

参考文献

- 1) Croff, A. G., A USER'S MANUAL FOR THE ORIGEN2 COMPUTER CODE, ORNL/TM-7175, 1980.
- 2) Yeh, G. T., Ward, D. S., FEMWATER : A FINITE-ELEMENT MODEL OF WATER FLOW THROUGH SATURATED-UNSATURATED POROUS MEDIA, ORNL-5567, 1980.
- 3) Yeh, G. T., Ward, D. S., FEMWASTE : A FINITE-ELEMENT MODEL OF WASTE TRANSPORT THROUGH POROUS SATURATED-UNSATURATED POROUS MEDIA, ORNL-5601, 1981.

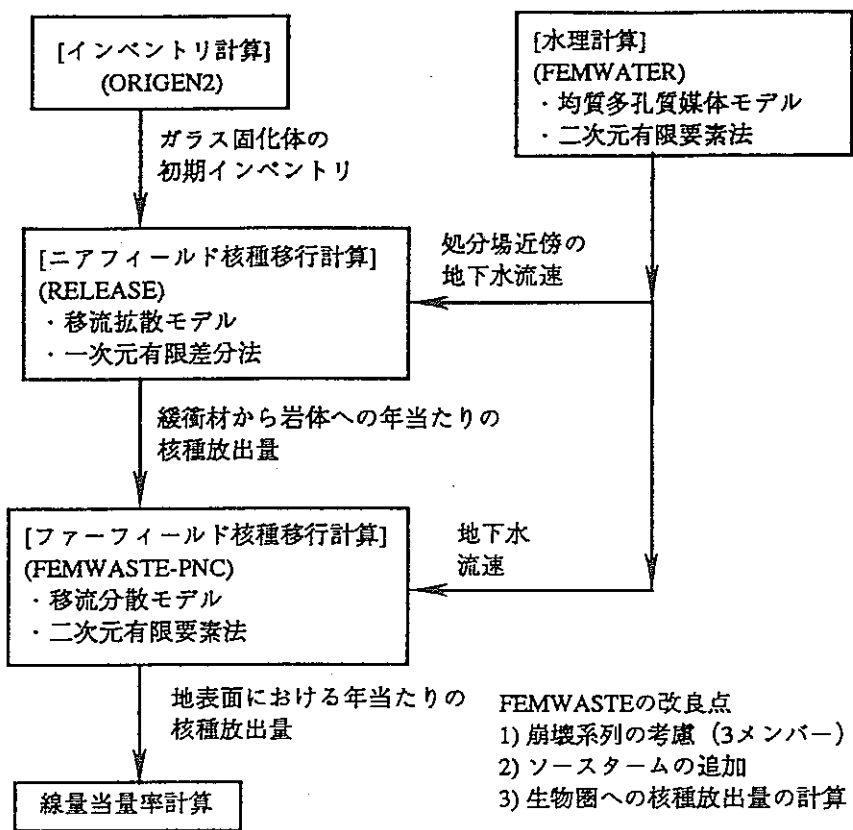


図 1. 地下水移行シナリオに沿った計算の流れ

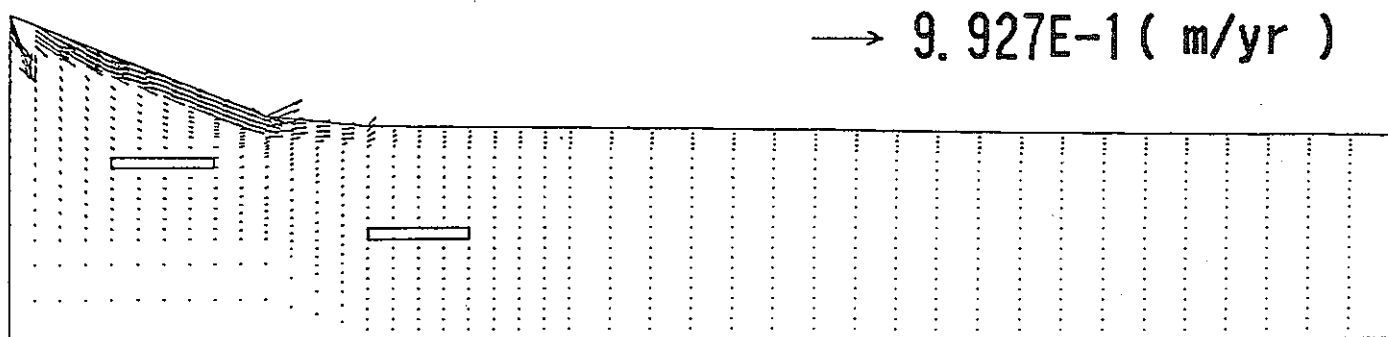


図 2. 流速ベクトル図 (2層の場合)

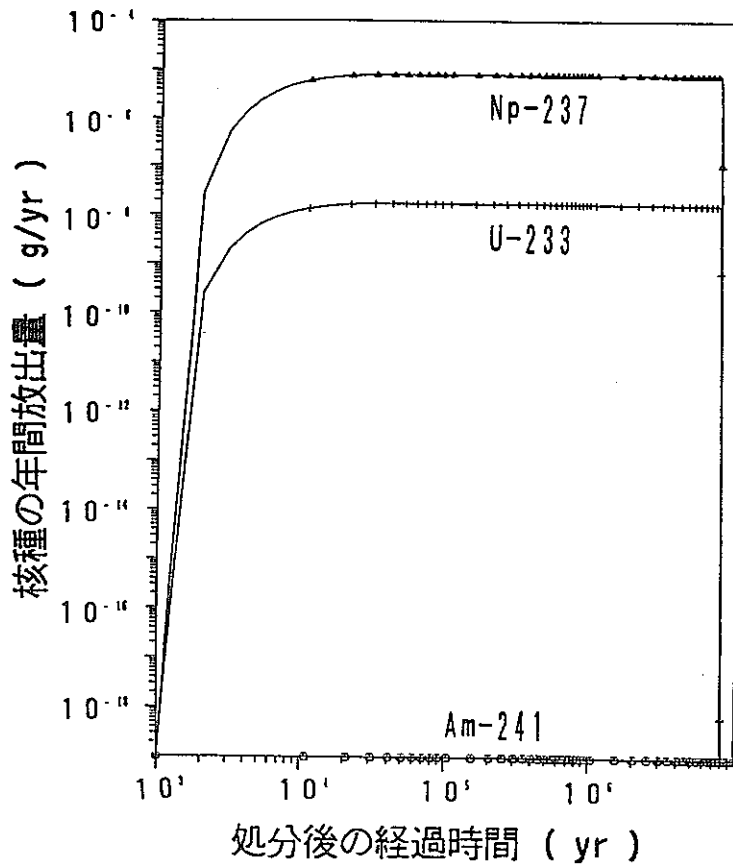


図 3. 緩衝材外側からの核種の年間放出量の経時変化

単位: kg/m³

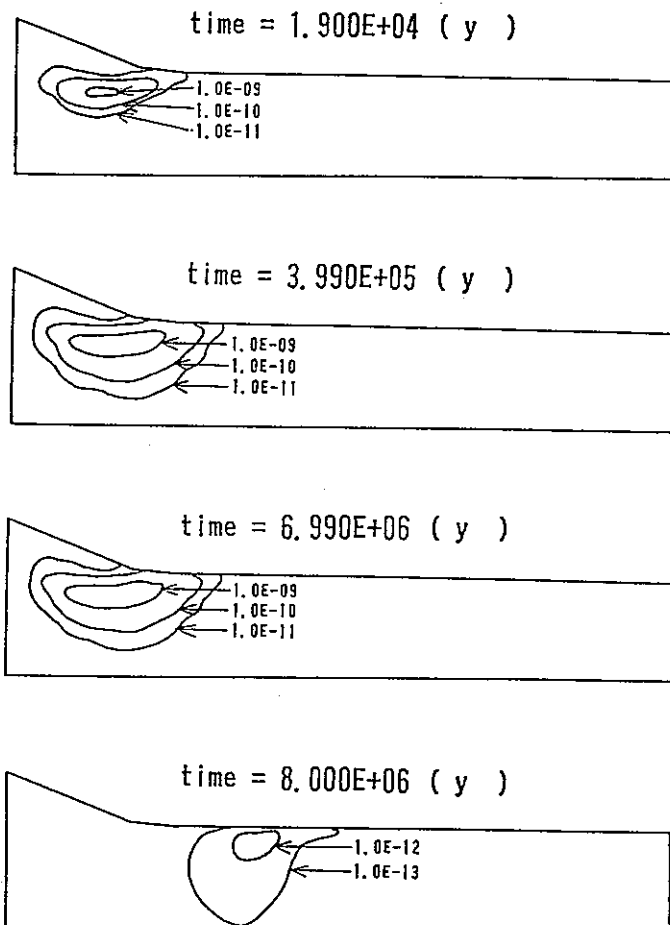


図 4. 核種濃度の経時変化 (2層山岳部, ²³⁷Np)

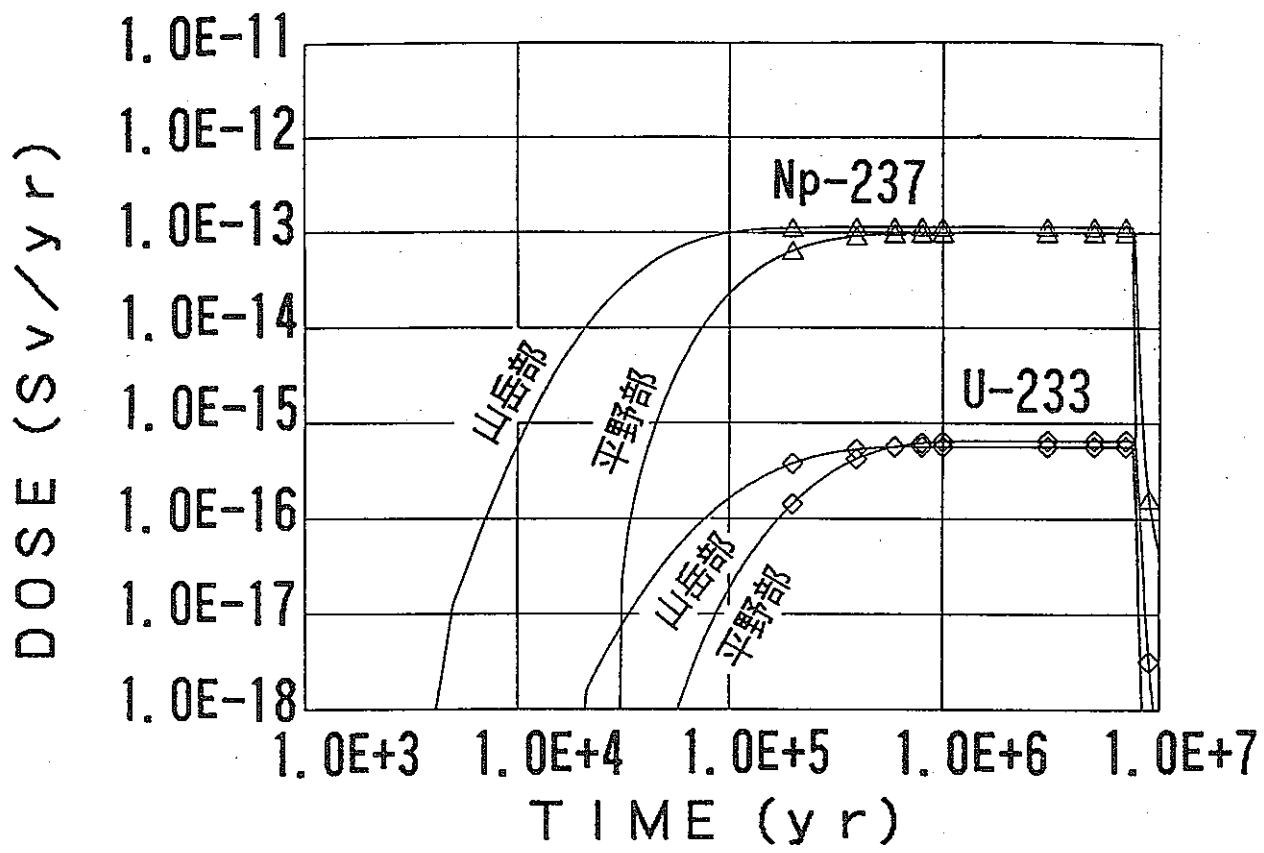


図5. 年間被ばく量の経時変化 (2層)

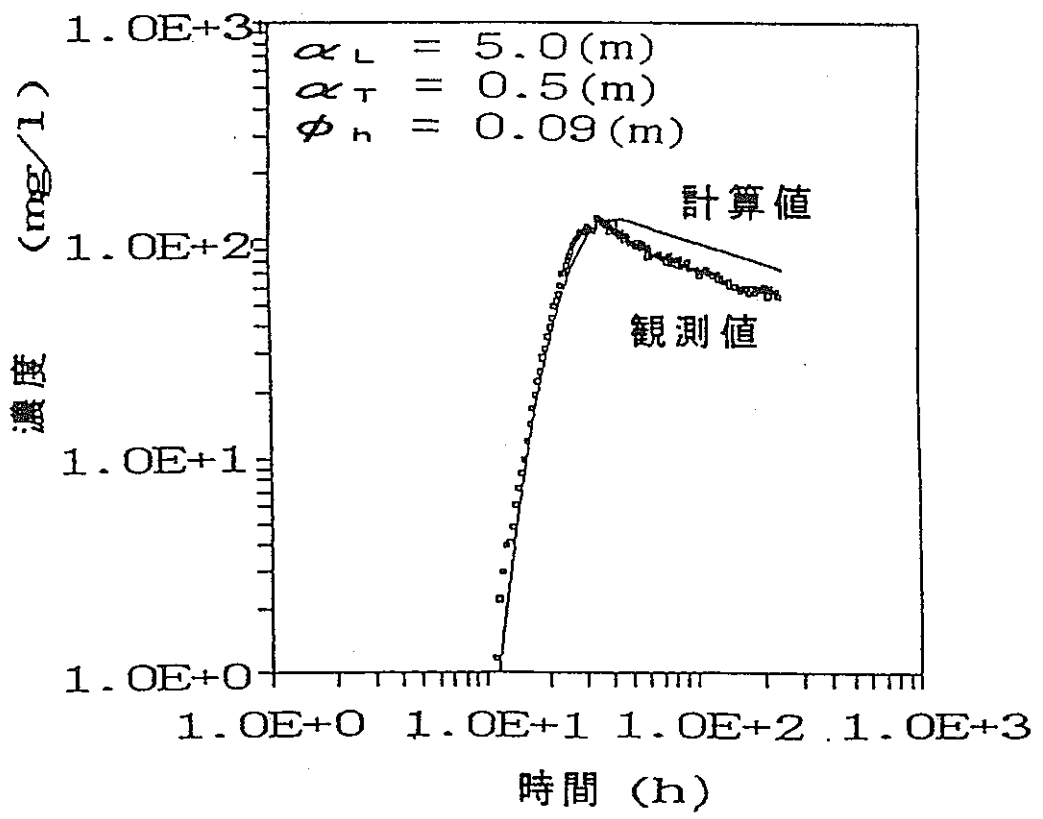


図6. WNI2における破過曲線の計算値と観測地の比較