

環境放射能安全研究の成果 (平成3年度～平成7年度)

技術資料		
開示区分	レポートNo.	受領日
T	N1410 97-006	1997.2.5.

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

平成9年2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 Evaluatin and Patent Office, Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku,
Tokyo 107, Japan

©1997 動力炉・核燃料開発事業団

(Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

公開資料

PNC TN1410 97-006

平成 9 年 2 月

環境放射能安全研究の成果 (平成 3 年度～平成 7 年度)

編集；安全部安全研究課

要 旨

動燃事業団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」及び「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、プロジェクトの開発と密接なかかわりを持ちつつ推進してきており、現在も引き続き「安全研究基本計画（平成8年度～平成12年度）」（平成8年3月策定）に基づき実施している。なお、これら事業団の安全研究は、一部の自主研究項目を除き、原子力安全委員会の定める「安全研究年次計画」にも登録されている。

環境放射能分野の安全研究は、

- (1) 放射性核種の分布及び挙動評価に関する研究
- (2) モニタリング手法に関する研究
- (3) 線量算定モデル及び線量評価に関する研究

の3分野で構成している。

本報告書は、安全研究基本計画（平成3年度～平成7年度）に基づき実施した平成7年度までの環境放射能分野における安全研究（12件）の5年間の成果について、取りまとめたものである。

なお、このほか①動力炉、②核燃料施設等、③廃棄物処分の各分野についても別冊として、取りまとめている。

目 次

(1) 放射性核種の分布及び挙動評価に関する研究	
① 大気放出放射性物質の沈着・再浮遊に関する研究（環1－1）	1
② 気体状放射性物質の環境中での挙動に関する研究（環1－2）	9
③ 環境におけるヨウ素の挙動に関する研究（環1－3）	19
④ 超ウラン元素の環境中での挙動に関する研究（環1－4）	25
⑤ 長半減期軟ベータ放射性核種の環境影響評価に関する研究（環1－5）	31
⑥ 放射性物質の物理・化学形態に関する調査研究（環1－6）	41
⑦ ナトリウム・エアロゾルの環境中における挙動と影響についての研究 (環1－7)	49
⑧ 湖沼系における放射性核種の挙動研究（環1－8）	53
(2) モニタリング手法に関する研究	
⑨ 環境中ラドン濃度の測定及び評価手法の確立に関する研究（環2－1）	63
(3) 線量算定モデル及び線量評価に関する研究	
⑩ ダイナミックエコロジカルモデルに関する研究（環3－1）	71
⑪ 地質と環境放射線の関連性に関する研究（環3－2）	81
⑫ 放射性核種地中移行に関する安全評価研究（環3－3）	89

大気放出放射性物質の沈着・再浮遊に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 中野政尚

I. 研究の概要

原子力施設周辺住民の被ばく線量評価及び環境影響評価に資するため、大気中に放出される放射性物質の沈着及び再浮遊現象についての移行パラメータを取得すると共に、放射性核種の大気環境での動態を評価することを目的とする。

1. 沈着に関する研究

放射性物質の沈着についての移行パラメータの取得及び動態の評価として、大気及び土壌中より素-129(I-129)濃度のフィールドデータを取得し、これらの値から沈着速度（土壌中濃度を用いた算出を行っていることから、降水による寄与も含む）の評価を行った。沈着速度とは、着目物質への沈着率($Bq/m^2/s$)を大気中濃度(Bq/m^3)で除した値であり、速度の次元をもつ。また、大気中に放出される放射性物質の乾性及び湿性による沈着の違いを評価するため、湿性（降水時）及び乾性（無降水時）の降下物を弁別して捕集する装置を製作し、弁別して採取した降下物中のI-129濃度と採取期間中の大気中濃度から乾性及び湿性時の沈着速度を評価した。

2. 再浮遊に関する研究

放射性物質の再浮遊についての移行パラメータの取得及び動態の評価を行うため、土壌に多量に含まれるAl及びFe並びに浮遊じん中のAl及びFeの濃度を用いて再浮遊係数を試算した。

一方、環境影響評価を行う上で、再浮遊を評価する重要度の高いPu-239,240について、過去の表土及び降下物のフィールドデータについて整理し、浮遊じん中Pu-239,240の起源はほとんどが土壌によるものであることを明らかにした。また、これらの情報を基に耕作土、浮遊じん中のPu-239,240濃度から、定常的な状態での再浮遊係数を試算した。

さらに、ハイボリュームエアサンプラを用いて浮遊じん中Pu-239,240を測定し、季節変動を調査すると共に再浮遊係数を試算した。

II. 研究成果

1. 沈着に関する研究

東海再処理工場主排気筒からの距離が異なる4地点における畑土中のI-129のフィールドデータ及び操業以来の放出実績に基づく大気拡散計算により、求められた大気中I-129濃度から、乾性及び湿性沈着の寄与を含む沈着速度を求めた。計算結果を表-1に示す。土壌中I-129濃度から求めた沈着速度は0.69から0.87(cm/s)の範囲にあり、採取地点による違いは無くほぼ一定であった。なお、平均値としては 0.76 ± 0.19 (cm/s)であった。

一般的に、降水洗浄係数による方法により湿性沈着を仮定して評価した場合、放出源に近いほど見かけの沈着速度は大きくなることが予想されるが、表-1の結果ではそのような傾向は見られておらず、長期間の沈着を評価する場合には、従来から線量評価に用いている沈着速度である

1 (cm/s)に降水による影響が含まれているとする評価の考え方は妥当であることが確認された。

また、大気中に放出される放射性物質の乾性及び湿性による沈着の違いを評価するため、湿性（降水時）及び乾性（無降水時）の降下物を弁別して捕集する装置を製作し、弁別して採取した降下物中のI-129濃度と採取期間中の大気中濃度から乾性及び湿性時の沈着速度を評価した。図-1に製作した降下物弁別捕集装置を示す。

同装置を用いて乾性及び湿性条件を分けて採取した降下物中I-129の分析は中性子放射化分析法を用いた。図-2に降下物試料の分析フローを示す。

沈着速度は、降下物中I-129濃度を採取時間、採取面積で除すことにより得られる沈着率と採取期間中の放出量と気象条件から計算される大気中濃度を用いて算出した。

$$\text{沈着速度}(\text{m/s}) = \frac{\text{降下物中 I-129 濃度}(\text{Bq})}{\text{採取時間}(\text{s}) \times \text{採取面積}(\text{m}^2) \times \text{大気中 I-129 濃度}(\text{Bq/m}^3)}$$

これらの結果から乾性沈着速度として0.34(cm/s)が、また、湿性沈着速度として4.6(cm/s)が得られた。よう素に対する乾性沈着速度は有機よう素が0.001~0.01(cm/s)、元素状で0.08~8.0(cm/s)と報告されており⁽⁴⁾、また、評価に用いられた典型としては1.0(cm/s)が報告されている⁽⁵⁾。今回評価されたフィールドデータからの乾性沈着速度試算値はこれらと同等な値であった。

降下物弁別捕集装置によって得られた乾性及び湿性沈着速度を土壤中I-129濃度から求めた沈着速度（降雨の時期含む）と比較するため、平成3年度から平成7年度までの東海地区におけるI-129の平均的な沈着速度を算出した。乾性及び湿性沈着速度を平成3年度から平成7年度までの（無）降水時間（降水4,316時間、無降水39,514時間）で加重平均を取る方法で算出したところ、平成3年度から平成7年度までの平均的な沈着速度は0.76(cm/s)となり、その内、湿性沈着の占める割合は約60%であった。この平均的な沈着速度は、I-129の土壤中濃度から算出された0.76cm/sと一致した。これら値は、現在の安全評価に用いられているパラメータ値1(cm/s)と大差がないことを確認した。

2. 再浮遊に関する研究

東海村の耕作土20地点におけるAl及びFe含有率を調査した結果、Alについては6.9%、Feについては5.7%ほぼ一定であることが分かった。これらの結果と、同地域の浮遊じん中のAl及びFeの濃度（茨城県公害技術センターによる⁽⁶⁾）を用いてAl及びFeの再浮遊係数を試算した。試算式を以下に示す。なお、試算にあたっては耕作土の密度は1.4(g乾/cm³)、有効深度は1(cm)とした。

$$\text{再浮遊係数}(\text{m}^{-1}) = \frac{\text{浮遊じん中の Al 及び Fe 濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^3)}{\text{耕作土单位面積当たりの Al 及び Fe 濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^2)}$$

$$\begin{aligned} & \text{耕作土单位面積当たりの Al 及び Fe 濃度}(\mu\text{g}/\text{m}^2) \\ &= \text{耕作土の Al 及び Fe 濃度}(\mu\text{g/kg乾}) \times \text{耕作土密度}(\text{kg乾}/\text{m}^3) \times \text{有効深度}(\text{m}) \end{aligned}$$

計算の結果、再浮遊係数としてはAlで(3.2~5.2)×10⁻⁹(m⁻¹)、Feで(4.6~5.5)×10⁻⁹(m⁻¹)が得られた。

つぎに、環境影響評価を行う上で再浮遊を評価するために重要度の高いと考えられるPu-239, 240について、過去の表土及び降下物のフィールドデータを整理した。結果を図-3に示す。こ

の結果から分かるように現在の浮遊じん中Pu-239,240はほぼ一定であり、その起源は主に土壤からの再浮遊によるものであると考えられる。

そこで、フィールドデータとして得られている耕作土及び浮遊じん中のPu-239,240濃度から、定常的な状態におけるそれぞれの再浮遊係数を試算した。結果を表-2に示す。再浮遊係数の範囲としては、Pu-239,240で 8.6×10^{-10} から 3.1×10^{-9} (m^{-1})が得られた。

Anspaughら⁽⁷⁾は再浮遊係数について多くの調査結果から評価し、

- (1)地表汚染後最初の10週間においては再浮遊粒子の空気中濃度は、ほぼ5週間の半減期で減少
- (2)続く30週間は、半減期はほぼ約2倍の10週間
- (3)再浮遊係数の初期値は 10^{-4} (m^{-1})
- (4)17年後に 10^{-9} (m^{-1})となる

等の経験則から、再浮遊係数を地表汚染からの経過関数として与えている。

一方、E.K.Garcerの報告によれば⁽⁸⁾、1986年における事故後約4ヶ月の Chernobyl 地域での再浮遊係数の評価値は 10^{-8} から 10^{-7} (m^{-1})の範囲であったとしており、汚染直後の値は Anspaugh らの調査結果のように高めの結果となっている。また、今回評価した Pu-239,240 濃度からの再浮遊係数(約 10^{-9})は、その起源として 1960~70 年代の大気圏核実験のものであると考えられることから、長期間経過した場合の値とされている約 10^{-9} (m^{-1})に近い結果となったものと考えられる。

さらに、浮遊じん中 Pu-239,240 濃度の季節変動を調査した。その結果を図-4に示す。単位重量あたりの浮遊じん中 Pu-239,240 濃度分布は、採取時期が夏季(4月~9月)と冬季(10月~3月)で異なり、それぞれの幾何平均値は夏季で 0.093(Bq/kg乾)、冬季で 0.15(Bq/kg乾)であった。なお、浮遊じん中の Fe 及び Al 濃度を測定したところ、夏季の浮遊じんは海岸砂(Pu-239,240 濃度が低い)と、また、冬季のそれは畑土壤(Pu-239,240 濃度が高い)とほぼ一致した。このことから年間季節変動の原因是、夏季は海側からの風が、また、冬季は陸側からの風が卓越しているためであると推測される。

また、上野らによる再浮遊の研究⁽⁹⁾では、東海地区の畑土中及び降下物中安定セシウム濃度が測定されている。降下物中安定セシウム濃度は経年変化が見られないため、土壤からの再浮遊が起源であるといわれている。これらの値を、沈着速度 0.01(cm/s)、畑土密度 1.4(g/cm³)、有効深度 1(cm)を仮定して再浮遊係数に換算すると再浮遊係数 1×10^{-8} (m^{-1})が得られる。

今回得られた Fe, Al, Pu-239,240 等の再浮遊係数は上野らのデータから換算して得られた安定セシウムの再浮遊係数とほぼ一致していることがわかる。このことより、平衡状態にあるような安定した状態では、再浮遊からの被ばく線量の寄与は小さく、無視できる程度であるという結果が得られた。

3. まとめ

- (1) 土壤中 I-129 濃度から求めた沈着速度は、0.69~0.87(cm/s)であり、採取地点による違いは無くほぼ一定であった。平均値は 0.76 ± 0.19 (cm/s)であり、線量評価に用いている沈着速度 1(cm/s)は降水による影響を含んでいるとする評価の考え方が妥当であることを確認した。
- (2) 降下物弁別装置を用いて乾性及び湿性沈着速度を求めたところ、乾性が 0.34(cm/s)、湿性が 4.6(cm/s)となり、平成 3 年度から平成 7 年度の平均的な沈着速度としては 0.76(cm/s)が求められた。その内、湿性沈着の占める割合は約 60% であった。安全評価では沈着速度は 1(cm/s)とされており、フィールドデータからの試算値は安全評価で用いられている値と同等であった。

- (3) 浮遊じん中Fe,Al,Pu濃度から再浮遊係数を試算したところ、Alで $(3.2\sim 5.2)\times 10^{-9}$ (m⁻¹)、Feで $(4.6\sim 5.5)\times 10^{-9}$ (m⁻¹)、また、Puで 8.6×10^{-10} から 3.1×10^{-9} (m⁻¹)となった。これらの値は、Anspaughらが導き出した経過関数に則したものであることを確認した。
- (4) 浮遊じん中Pu-239,240濃度の季節変動を調査した結果、夏季は海岸砂が、また、冬季は畑土が起源となっていることが示唆された。

主要レポート

- (1)清水武彦、吉田美香、環境中ヨウ素の挙動に関する研究、動燃技報 No.81 (1992)
- (2)清水武彦、吉田美香、環境線量当量評価に用いるヨウ素移行パラメータに関する研究、日本保健物理学会第27回研究発表会要旨集 (1992)
- (3)森田重光、清水武彦、環境中プルトニウムの濃度レベル及び再浮遊係数について、日本保健物理学年会第30回研究発表会要旨集 (1995)

参考文献

- (4)Sehmel, G. A., "Deposition and Resuspension" in Atmosphere Science and Power Production, Edit. by D.Randerson,DOE/TIC-27601 (1984)
- (5)NCRP; Radiological Assessment: Predicting the Transport, Bioaccumulation, and Uptake by Man of Radionuclides Released to the Environment, NCRP Report No.76 (1983)
- (6)茨城県公害技術センタ一年報 (1990~1994)
- (7)Anspaugh, L.R., Shinn, J.H., Health Physics, 29 (1975)
- (8)Garcer, E. K., Air Concentrations of Radionuclides in the Vicinity of Chernobyl and the Effects of Resuspension, J. Aerosol Sci., Vol.25, No.5 (1994)
- (9)上野隆、天野光、東海村における降下物の放射化分析とCs-137の降下量に占める再浮遊の評価、保健物理, 29 (1994)
- (10)P.N.Johnston, J. Aerosol Sci., Vol.25, No.5 (1994)
- (11)H.Mueller and G.Proehl, ECOSYS-87: A Dynamic Model for Assessing Radiological Consequences of Nuclear Accidents, Health Physics Vol.64 No.3 (1993)

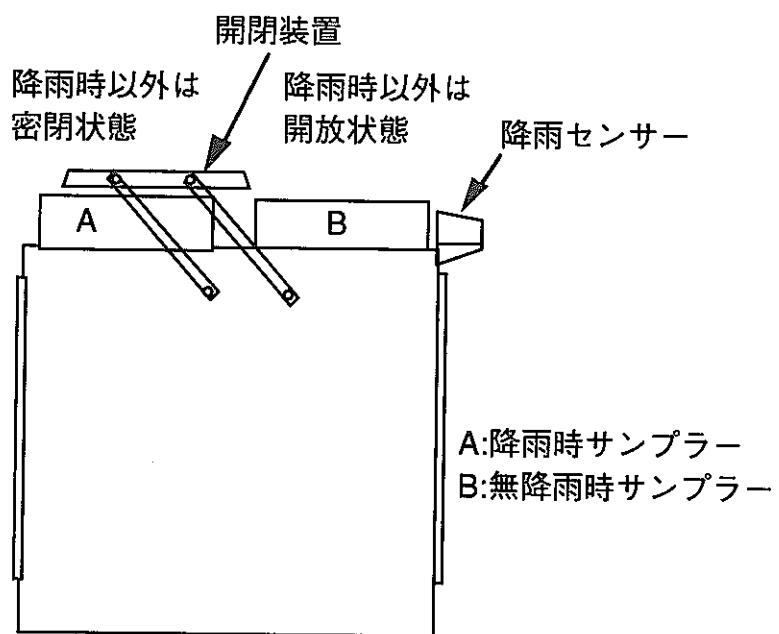


図-1 湿性及び乾性降下物弁別補集装置

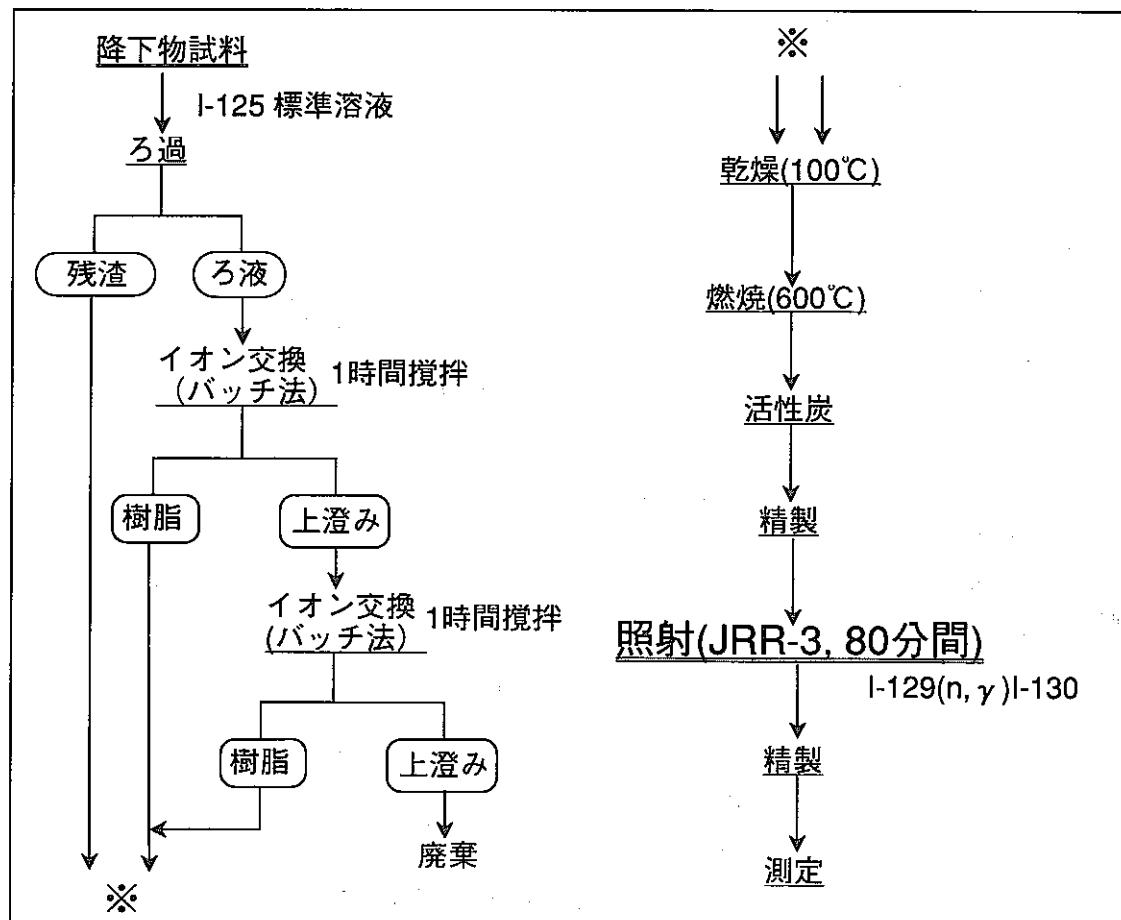


図-2 降下物試料の分析フロー

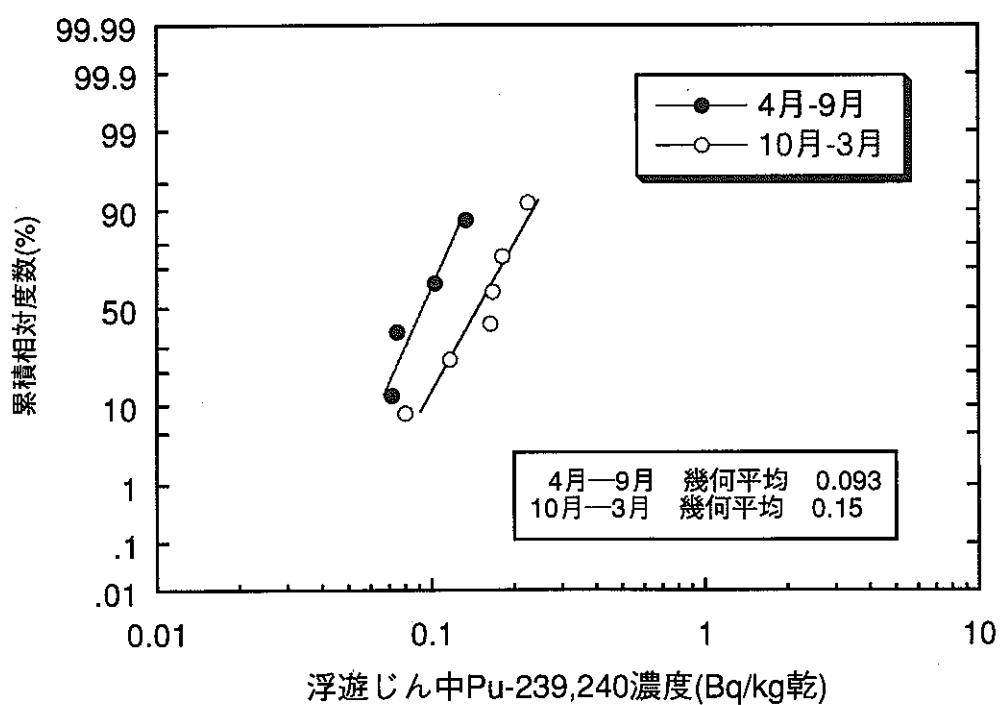
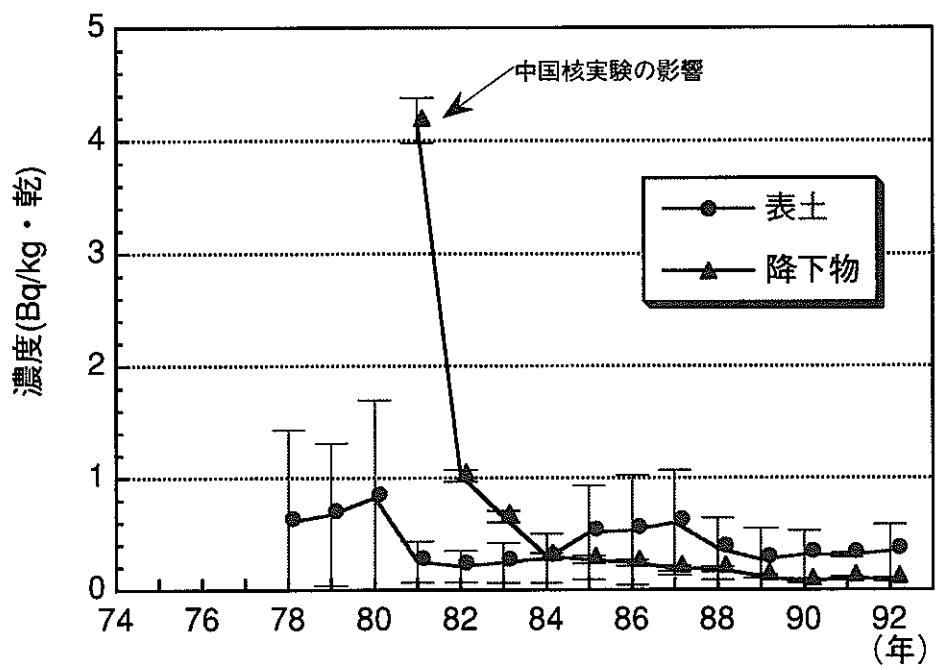


図-4 単位重量あたりの浮遊じん中Pu-239,240濃度分布の季節変動

表-1 土壤中よう素-129から求めた沈着速度

採取地点	沈着速度(cm/s)
地点 1	0.69±0.25
地点 2	0.77±0.08
地点 3	0.87±0.17
地点 4	0.72±0.17
全体(平均)	0.76±0.19

表-2 再浮遊係数一覧

	再浮遊係数(m ⁻¹)		
	最小値	最大値	幾何平均値
アルミニウム	3.2×10^{-9}	5.2×10^{-9}	
鉄	4.6×10^{-9}	5.5×10^{-9}	
Pu-239,240	8.6×10^{-10}	3.1×10^{-9}	1.9×10^{-9}
E.K.Garcer ⁽⁸⁾	$10^{-8} \sim 10^{-7}$		
P.N.Johnston et al. ⁽¹⁰⁾	2.0×10^{-11}	2.4×10^{-8}	4.0×10^{-10}
ECOSYS-87 ⁽¹¹⁾ (Nielsen,Linsley)	2.5×10^{-8}	5.0×10^{-8}	

環1-2

気体状放射性物質の環境中の挙動に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 渡辺 均

I. 研究の概要

核燃料サイクル施設から大気中に放出されるトリチウム($H-3$)、炭素-14($C-14$)、希ガス($Kr-85$)等の気体状放射性物質は、その半減期が10.7年($Kr-85$)、12.3年($H-3$)及び5,730年($C-14$)と長く、環境中において長期にわたり広域的な挙動をとることが予測される。このため、これら核種は公衆の被ばく線量当量を評価する上で重要な核種である。

本研究では、気体状放射性物質のモニタリング手法を確立するとともに、環境中の濃度水準を把握し、濃度変化から核種の移行・挙動を解明することによって、環境影響評価に資することを目的とする。

1. $H-3$ の環境中での移行に係る研究

$H-3$ については、大気中の水蒸気トリチウム(HTO)及びガス状トリチウム(HT)の化学形態別に濃度水準を把握するとともに、植物中 $H-3$ (組織自由水:FWT、組織結合水:OBT)及び土壤水分中 $H-3$ (土壤中 $H-3$)濃度を測定し、これらの濃度変化により大気から植物、土壤から植物等への移行、また、環境中での $H-3$ の変動要因の解析を行った。

なお、植物及び土壤中 $H-3$ の測定の際に妨害となる、試料に多量に含まれる有機物中の炭素($C-14$ を含む)について、試料水中から除くための精製法について検討を行った。

2. $C-14$ の測定法とパラメータに係る研究

$C-14$ については、環境試料中 $C-14$ の測定法として年代測定法等で用いられているベンゼン合成法による精密測定法を確立するとともに、各種環境試料中の $C-14$ の濃度水準を把握した。

また、線量当量評価に係るパラメータとして、日本各地の水稻米を対象にしたバックグラウンド調査及び精米中の炭素量等の調査を実施した。さらに、大気中に放出された $C-14$ が海洋環境系に入り海産生物に取り込まれ、後に食物として摂取されることから、海水中 $C-14$ の測定法及び海水、海産生物中の炭素量を測定し、海洋環境における $C-14$ の濃縮係数について調査した。

3. 大気中放射性希ガスの測定に係る研究

大気中の放射性希ガス濃度を評価することを目的に、大気中の Kr ガスを捕集分離するための装置を試作し、大気中 $Kr-85$ の捕集、分離精製、測定法について検討を行った。

II. 研究成果

1. $H-3$ の環境中での移行調査

(1) 大気中 $H-3$ の移行調査

大気中 $H-3$ の捕集は、図-1に示す捕集装置を用い、1週間の連続サンプリングしたものを持ち、試料として調査を実施した。捕集装置については、冬季の乾燥期に HTO の捕集に伴ってサンプリング流量が増加することにより、 HT の捕集におけるキャリアガス(H_2)濃度が希釈されること

から、これによるHTの捕集効率の低下を抑えるための改良を行った。

西12km以遠の那珂町で1991年から1995年までの5年間にわたり実施した大気中H-3の調査結果[HTO, HT(Bq/ℓ, Bq/m³・空気), 湿分(g/m³・空気)]について、月間幾何平均を図-2に、また、大気中HTO及びHT(Bq/m³・空気)の年間幾何平均を図-3に示す。図-2から、大気中HTO濃度は 3.2×10^{-3} ～ 3.4×10^{-2} (Bq/m³・空気)の範囲で大気中湿分の多くなる夏季に濃度が高くなる傾向を示したが、HT濃度については、 2.3×10^{-2} ～ 6.0×10^{-2} (Bq/m³・空気)の範囲で、各年をとおしてほぼ一定のレベルであり顕著な季節変動は見られなかった。また、図-3の各年の大気中HTO及びHT濃度(Bq/m³・空気)の年幾何平均値では、HTに顕著な減少傾向が見られたが、HTOについては僅かな減少傾向が見られる程度であった。

(2)植物への移行調査

大気中に放出されたH-3が植物等へ移行する経路としては、大気から植物の葉を経由して取り込まれる経路と土壤から植物の根を経由して取り込まれる2つの経路に大別される。このため、土壤中H-3濃度と植物中FWT及びOBT濃度を測定し、その濃度比較から検討を行った。なお、調査に先だって、植物及び土壤中H-3の測定の際に妨害となる、試料水に多量に含まれる有機物中C-14の除去法の検討を行い、試料水に過マンガン酸カリウムを加えて還流を行うことにより、有機物が分解除去できることを確認した。

調査結果を図-4に示す。葉菜及び土壤中H-3の濃度傾向は、OBTは土壤濃度に対し1.1倍の割合で推移したが、FWTは土壤濃度に対し0.3～1.7倍とその変動はOBTに比べ大きかった。

葉菜中H-3の挙動は、FWTはOBTに比較し交換速度が速いと報告されており⁽³⁾、短期的な影響としては、土壤以外の因子が考えられることから、大気及び土壤からの葉菜への短期的な移行調査として、葉菜(白菜)中FWT、大気中HTO及び土壤(畑土)中H-3の測定を一組とした調査を実施した。白菜中のFWT濃度に対する大気中HTO濃度との相関関係について図-5に示す。白菜のFWT濃度と大気中HTO濃度の相関は0.75と正の相関を示したが、白菜のFWT濃度と畑土中H-3濃度とでは0.17と相関関係は見られなかった。この結果から、葉菜中FWT濃度は土壤中H-3濃度の影響よりは、むしろ大気中HTO濃度に影響されることが示唆された。

2. C-14に係る研究

(1)測定法の確立

C-14の測定法としては、これまでに種々の方法が報告されているが、環境試料中に含まれる低レベルのC-14の精密な測定法として、ベンゼン合成法を用いたモニタリング手法の確立を図った。図-6にベンゼン合成法の工程を示す。本法による検出下限は、供試量炭素約2.5g、液体シンチレーションカウンタの計数効率を60%、バックグラウンド0.8cpm、測定時間500分とした場合、約 2×10^{-3} (Bq/g・炭素)である。

(2)大気中のC-14濃度

ひたちなか市及び那珂町で実施した大気中のC-14濃度の測定結果を図-7に示す。両地点の大気中のC-14濃度は0.25～0.27(Bq/g・炭素)の僅かな変動を示しているが、両地点の3年間の幾何平均値はそれぞれ0.26(Bq/g・炭素)と同レベルであった。また、両地点において僅かではあるが6、7月の夏期に高く、12～2月の冬期から春にかけて低くなる変動傾向が見られた。この理由としては、大気中CO₂が生物圏と交換する場合、交換する過程で安定同位体比が変化する同位体分別効果(Fractionation)⁽⁴⁾によるものであると考えられる。これは、大気中のCO₂濃度が植物の活発な光合成により1ppm減少することにより、¹²CO₂に対し¹³CO₂が0.05%増加

する⁽⁴⁾ことを意味し、 $^{14}\text{CO}_2$ では $^{13}\text{CO}_2$ より大きな割合で増加するものと考えられる。

(3) 大気から植物への移行

大気中に放出されたC-14は、光合成により植物中に取り込まれることから、大気から植物へのC-14の移行について調査を行った。調査は、大気中のC-14濃度及び植物（セイタカアワダチソウ等の雑草）の成長部分の葉を採取し、C-14濃度での比較測定を行った。調査結果を図-8に示す。大気中のC-14濃度の変動と植物中の濃度変化はほぼ一致した傾向を示した。この調査結果により、大気から植物へのC-14の移行割合（雑草／大気）を求めるとき、 $0.96 \pm 0.017(-)$ と一定の割合で移行することが確認できた。この移行割合は、木越ら⁽⁵⁾の調査における大気（対流圏）と陸上生物の割合と同様の結果であり、同位体分別効果による濃度差と言える。

(4) 線量当量評価のためのパラメータ調査

C-14に係る公衆の実効線量当量を評価する上で、日本国民の主食である米は、その大部分が炭水化物であり、1日当たりの食物摂取量としても多いことから線量当量評価上重要な対象と言える。米からのC-14の摂取量を評価する上で精米中の炭素割合は、線量当量評価上の重要なパラメータになっており、そこで、表-1に示すように精米中の炭素量の実測を行った。その結果、再処理施設の安全審査で用いられている米の炭素割合0.41とほぼ同等の値である0.39が得られた。また、C-14は天然に存在する核種であるが、施設からの寄与分を実測評価するには、現在の環境レベル（バックグラウンド）を把握しておく必要がある。このため、日本各地の水稻米を対象に広域調査を実施した。調査は、1990年（12道県19試料）及び1994年（28道府県50試料）の2回行った。調査の結果、1990年の濃度範囲は0.256～0.280(Bq/g・炭素)で、幾何平均は0.263(Bq/g・炭素)であり、また、1994年の濃度範囲は0.235～0.269(Bq/g・炭素)、幾何平均は0.249(Bq/g・炭素)であった。この調査では、特に地域的な変動傾向は見られなかった。

また、海産物摂取による線量評価を考慮した場合におけるパラメータの検討として、海水中の溶存炭素量及び海産生物中炭素量の測定を行った。炭素量の測定は、海水中溶存炭素量については燃焼・赤外線法（TOC計）、海産生物中炭素量は乾式燃焼法（CHNコーダー法）により定量し海水から海産物へのC-14の濃縮係数を試算した。その結果、有機溶存炭素を用いて濃縮係数を求めたところ、成魚、甲殻類、軟体類が 2×10^4 、海藻が 1×10^4 という値が得られた。これらの値は、IAEA TECH.REP.247⁽⁶⁾と同等の値であった。

(5) 海水中C-14の濃度測定

環境中のC-14の移行挙動を解析する場合、環境中における炭素の循環・輸送という観点から、植物による炭素の固定及び海洋への移行・交換等を考慮する必要がある。大気から海洋への移行を解析するためには、海水中のC-14濃度を求めることが必要であり、図-9の海水中溶存炭素捕集装置を試作し捕集条件について検討を行った。海水中には $2.8 \mu\text{g/l}$ の炭素⁽⁷⁾が含まれていることから、ベンゼン合成法での供試量を確保できる海水量として1試料当たり200lを用いた。溶存炭素の捕集は、試料海水に硫酸を添加してpHを約1に調整した後、捕集装置内の空気を循環させることによって、海水中の溶存炭素を CO_2 として脱気し、水酸化ナトリウムを入れたバブラーに捕集した。溶存炭素の捕集時間については検討の結果、全捕集量を100%とした場合、図-10に示すように約10時間バーリングすることによりほぼ100%捕集できることが分かった。

本法により捕集した、表層海水中のC-14濃度を測定したところ、その濃度範囲は0.26～0.27(Bq/g・炭素)であり大気中の濃度とほぼ同様のレベルであった。

3. 大気中放射性希ガスの測定に係る研究

大気中の放射性希ガス濃度を測定評価することを目的に、大気中Krガスを測定するため図-11の捕集分離装置を試作した。本装置の構成は、空気試料(500ℓ)中に含まれる水分及びCO₂を除去するためのモレキュラーシーブトラップ、Krガスを捕集しその他大部分の窒素・酸素を除去するための活性炭トラップ、さらに窒素・酸素を除くための活性炭カラムと最終的にクロマト分離を行うモレキュラーシーブカラム、TCDガスクロマトグラフィー、シリカゲルを入れたバイアルビンから構成されている。図-12測定試料調製までの分析工程を示す。本測定法では、供試量として空気500ℓを用い、回収率94%，計数効率94%，バックグラウンド15cpm，測定時間250分で測定を行った場合の検出下限は、0.02(Bq/m³・空気)であり、現在のレベル1(Bq/m³・空気)⁽⁸⁾を測定するには十分な精度での測定を可能にした。

4. まとめ

(1) 大気中HTO, HTについては、大気中H-3捕集装置の改良を行い、安定した捕集を可能にするとともに大気中の濃度水準を把握した。また、葉菜、土壤中H-3の前処理法を確立し、大気から葉菜、土壤から葉菜へのH-3の移行について検討を行い、葉菜中H-3濃度は土壤中よりも大気中H-3濃度が支配的であったことを確認した。

研究成果の内、大気中H-3の測定法については、化学形態別(HTO, HT)測定法として確立することができた。また、大気から葉菜、土壤から葉菜へのH-3の移行に係る調査結果は、環境影響評価における核種の移行挙動の基礎的データとして反映できると考える。

(2) 環境試料中の低濃度のC-14の測定法として、ベンゼン合成法による精密測定法を用いたモニタリング手法を確立した。また、ベンゼン合成法による各種環境試料中C-14濃度の水準を把握するとともに、大気から植物、海洋への移行、パラメータ等について知見を得た。

C-14における研究成果については、ベンゼン合成法によるモニタリング手法として科学技術庁放射能測定法シリーズの策定に貢献することができた。また、大気から植物等への移行、パラメータについては、施設の安全評価及び環境影響評価における基礎データとして反映できると考える。

(3) 大気中放射性希ガス(Kr-85)を対象とした調査では、大気中のクリプトンを捕集分離する装置を試作し、バックグラウンドレベルの測定を可能にした。

Kr-85を対象とした研究成果は、地球環境レベルでの長期的なモニタリングの一手法として貢献できるものと考える。

主要レポート

(1) 渡辺 均、片桐 裕実、環境試料中の炭素-14分析法及びそのレベル、日本保健物理学会第26回研究発表会要旨 (1991)

(2) 渡辺 均、住谷 秀一、環境試料中¹⁴C測定法の開発、動燃技報No.81、放射線防護特集 (1992)

参考文献

(3) 新井 清彦、トリチウムの植物への取り込みと挙動、放医研環境セミナーシリーズ、環境と人体におけるトリチウム研究の諸問題、P156-166 (1983)

(4) 青木 周司、二酸化炭素のゆくえについて、天気Vol.41, No.10, P65-71、日本気象学会 (1994)

(5) 木越 邦彦、自然状態での放射性炭素の分布と経年変化、放医研環境セミナーシリーズ、人間環境と自然放射線、P136-140 (1978)

- (6) TECHNICAL REPORTS SERIES No.247, Sediment kds and Concentration factors for Radio-nuclides in the Marine Environment, IAEA, VIENNA (1985)
- (7) 大竹 千代子編, 海水の成分, 日本環境図譜, P86 (1978)
- (8) 五十嵐 康人, 宮尾 孝, 最近の日本の大気中⁸⁵Kr濃度, 第37回環境放射能調査研究成果論文抄録集(平成6年度), P21-22, 科学技術庁 (1995)

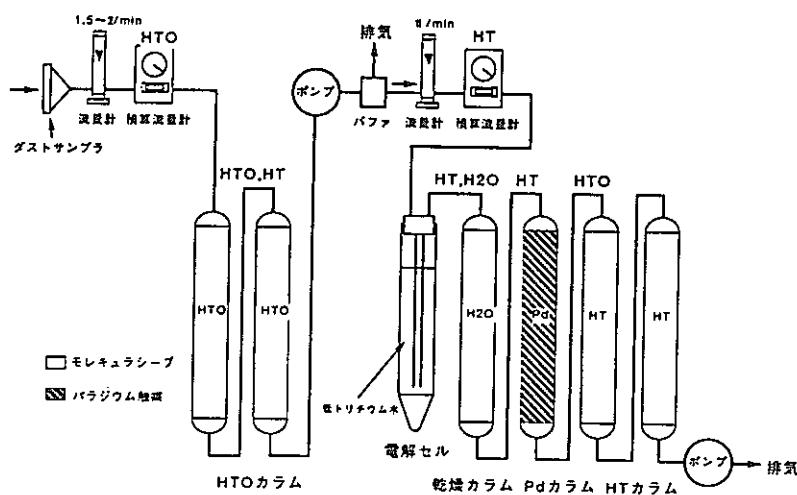


図-1 大気中H-3捕集装置系統図（冬季）

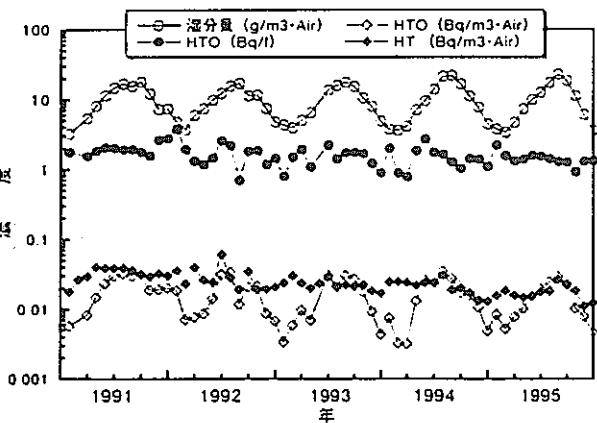


図-2 大気中HTO, HT及び湿分量の経年変化

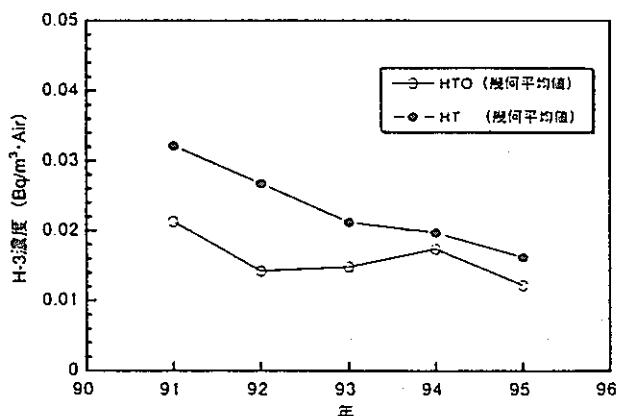


図-3 大気中HTO, HTの経年変化

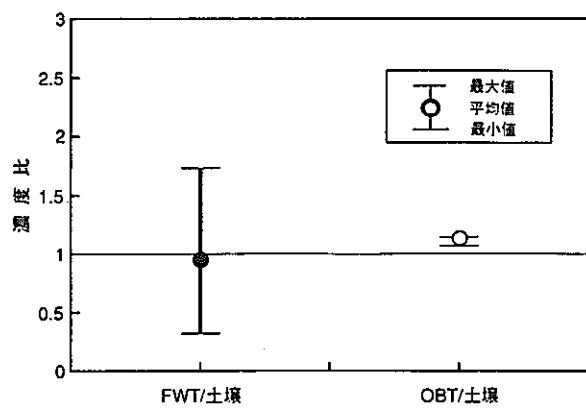


図-4 土壤中H-3に対する葉菜中H-3の濃度比

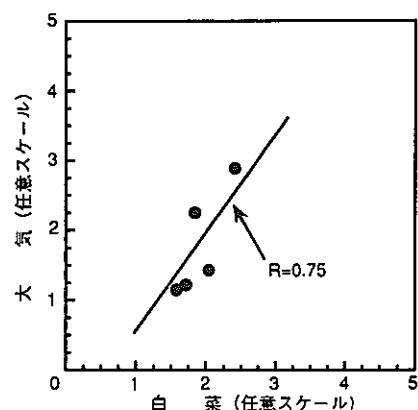


図-5 大気中H-3に対する白菜中H-3濃度の相関

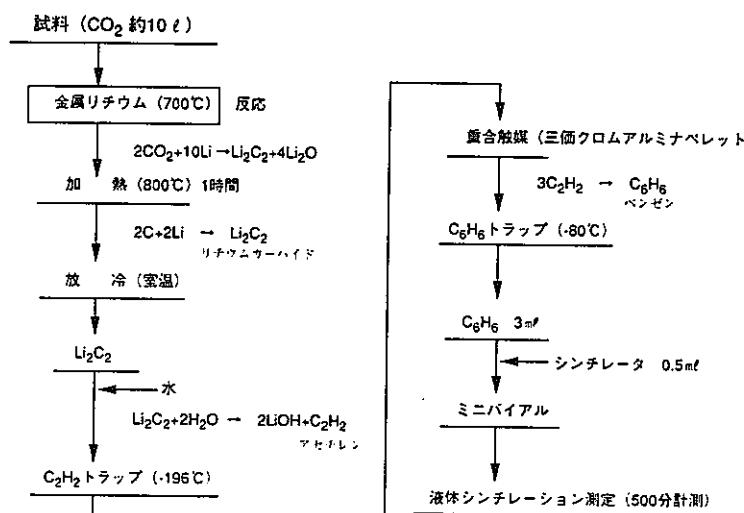


図-6 ベンゼン合成工程

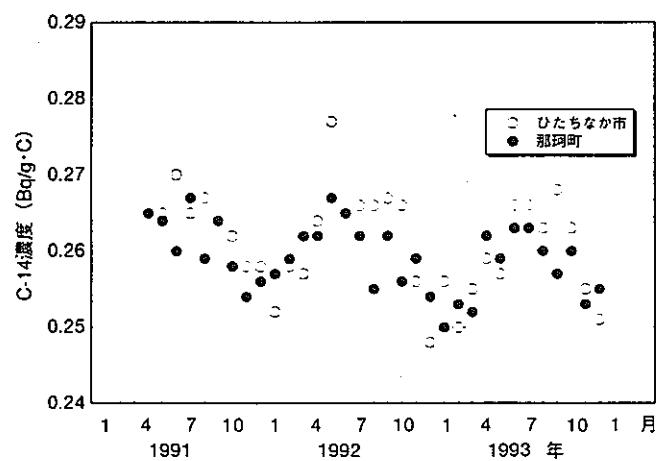


図-7 大気CO₂中C-14濃度の経年変化

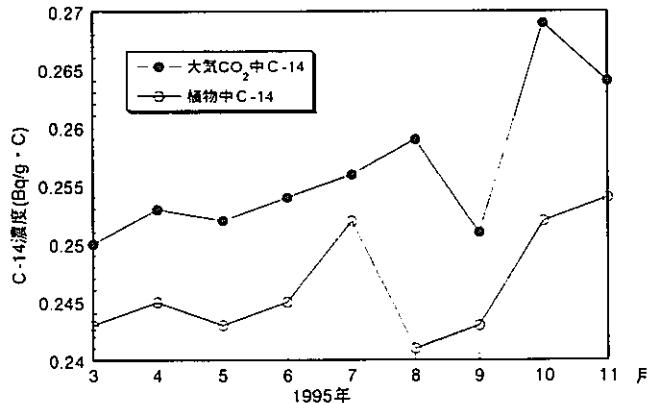


図-8 大気CO₂中C-14濃度と植物中C-14濃度変動

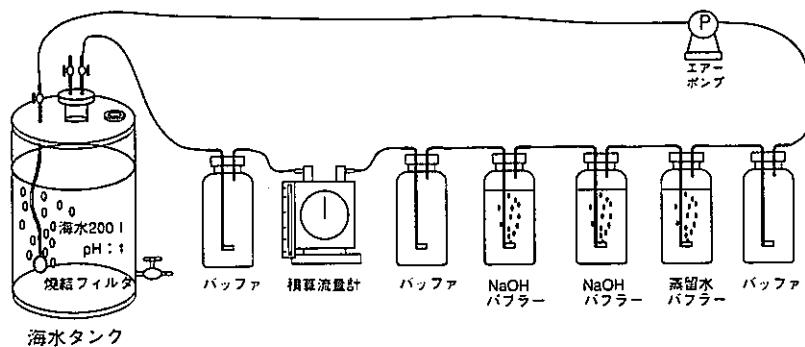


図-9 海水中溶存炭素の捕集装置

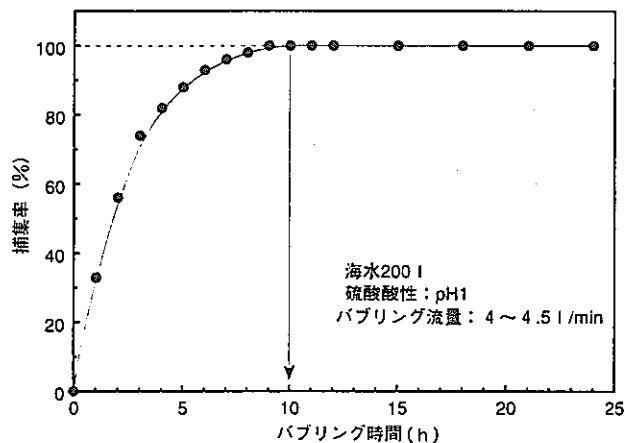


図-10 海水中溶存炭素の捕集（脱気）

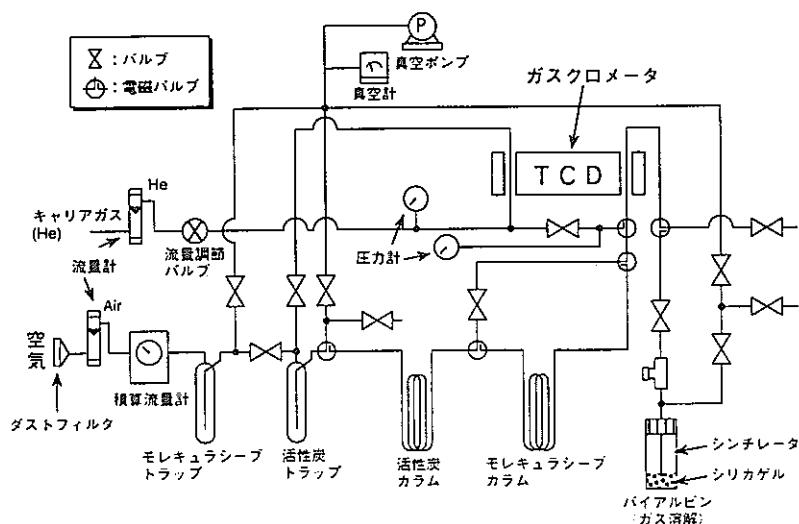


図-11 大気中クリプトン捕集・分離装置

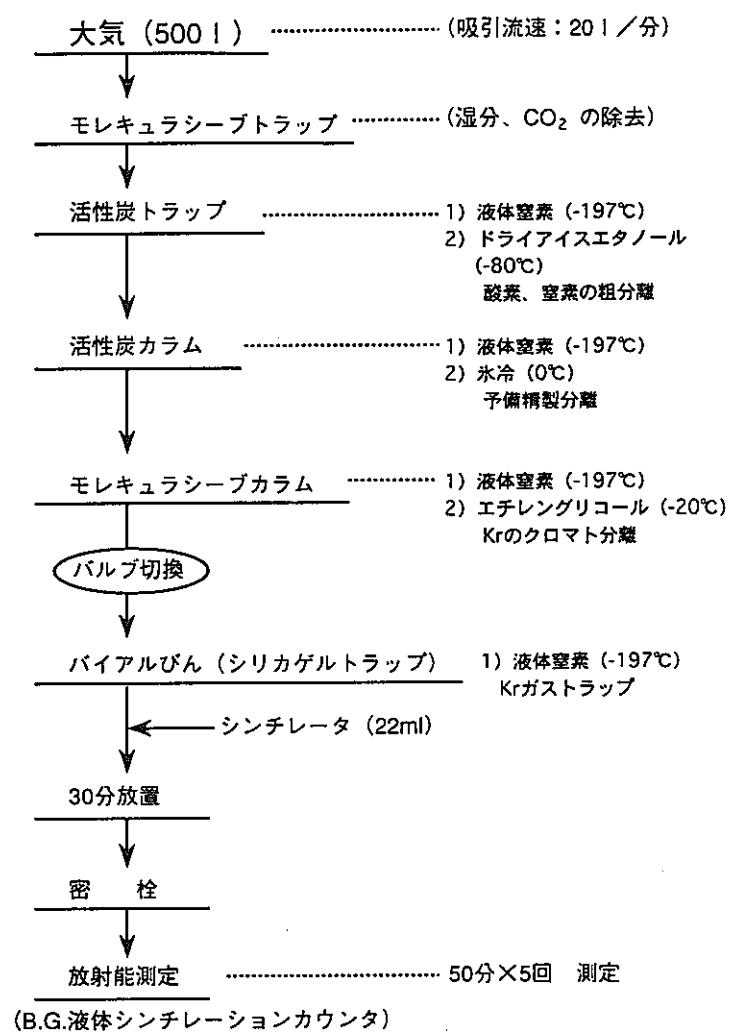


図-12 大気中クリプトン分離工程

表-1 精米中炭素割合

No	採取地点	kg・炭素/kg・精米
1	北海道上川	0.394
2	青森県六ヶ所村	0.385
3	新潟県西山町	0.381
4	福井県敦賀市	0.387
5	福島県富岡町	0.405
6	群馬県沼田町 (1)	0.389
7	群馬県沼田町 (2)	0.388
8	茨城県那珂町	0.390
9	茨城県勝田市 (1)	0.402
10	茨城県勝田市 (2)	0.393
11	鳥取県東郷町	0.393
12	鹿児島県	0.383
平 均		0.391 ± 0.0072
変動係数 (%)		1.8

環境におけるヨウ素の挙動に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 吉田美香

清水武彦

中野政尚

I. 研究の概要

ヨウ素-129 (I-129) は、天然には上層大気中における宇宙線とキセノンとの相互作用などにより生成されるほか、人工的には核実験や原子力発電などにより生成される。このように生成された I-129 の半減期は 1600 万年と極めて長いことから、I-129 は長期的な観点に立った環境影響評価を行う必要がある重要な核種の一つである。

大気中へ放出された核種 (I-129 等) から一般公衆が受ける実効線量当量の評価においては、呼吸経路及び食物摂取経路 (葉菜、牛乳、米) を評価することが必要であるが、線量当量の寄与を考慮すると、後者の経路の評価が重要となる。大気から植物等への陸上環境中における移行経路としては、図-1 に示すように大気から植物等へ直接沈着したものが可食部へ移行する経路と、一端土壤へ沈着したものが根を通して可食部へ移行する経路の二つの経路を考慮する必要がある。

現在、安全評価においては、基本的には米国 NRC Regulatory Guide³⁾ に示される評価式及びパラメータを用いた安全側の評価が行われてきているが、日本の環境に適したパラメータを用いてより現実的な評価をすることが重要である。一般的に、これらの移行パラメータは、トレーサ実験から得られる値とフィールドデータから得られる値とでは異なることが知られており、トレーサ実験で得られる値をそのままフィールドに適応できないことがある。このため、本研究においては、各種環境試料中の I-129 濃度のフィールドデータから移行パラメータを整理し、環境影響評価に資することを目的として以下の検討を実施した。

1. I-129 の移行に係わる各種環境試料 (大気、葉菜、土壤) 中濃度の評価
2. 1. のフィールドデータを基にした移行パラメータの整理・評価

II. 研究成果

1. I-129 の移行に係わる各種環境試料 (大気、葉菜、土壤) 中濃度の評価

環境試料 (大気、葉菜、土壤) 中の極めて低い I-129 濃度の評価方法としては、高感度に定量できる中性子放射化分析法^{4), 5)} を用いることとした。図-2 に環境試料中 I-129 の定量法を示す。環境試料を燃焼してヨウ素を分離し、溶媒抽出で精製後試料を中性子照射した。中性子照射にて I-129 は (n, γ) 反応で I-130 (半減期 12.4 時間) に変換するため、この生成した I-130 から放出される γ 線をゲルマニウム半導体検出器で測定し定量した。同様に、安定同位体である I-127 は ($n, 2n$) 反応で I-126 に変換するため、生成した I-126 から放出される γ 線を測定し定量した。

大気中の I-129 濃度については、葉菜等の栽培期間に合わせた同時サンプリングを全ての試料について行うことは極めて困難である。このため、大気中の I-129 濃度は、栽培期間に合わせた時期の放出量に基づく拡散計算結果を用いることとした。この妥当性を評価するため、再処理施

設の運転に合わせて捕集し、その分析結果と気象条件等を考慮した計算結果の相関評価を行った。結果を図-3に示す。このように実測値と計算値は比較的良く一致することから、大気からの直接沈着パラメータを評価する際の大気中濃度は基本的に拡散計算結果を用いることとした。

2. フィールドデータに基づく移行パラメータの算出

原子力施設の運転に伴って環境中に放出されるI-129により周辺公衆が受ける線量当量は、Regulatory Guideに示される以下の評価モデルによって算出される。

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

ここで、Cは植物中I-129濃度、χは大気中I-129濃度、Vgは沈着速度、rは植物に直接付着したI-129の可食部への移行率、λ_EはI-129の有効除染係数、t_eは植物表面への沈着期間、Bは根部から吸収されたI-129の可食部への移行係数、λはI-129の放射性崩壊定数、t_bはI-129の地表面への沈着継続時間、Yは植物の栽培密度、Pは植物を栽培する土壤の実効面密度である。

この式は、植物への二通りの移行経路を考慮している。その一つは、I-129が大気から植物の茎葉部、開花中の花部及び成熟途上の子実部等に直接付着し、捕捉されて可食部に取り込まれる経路である。また、もう一方は、大気から土壤に沈着したI-129が根部から吸収され、可食部に取り込まれる経路である。ここで、式(1)において、r及びBは、評価結果を大きく左右する重要度の高いパラメータであることから、フィールドデータに基づいた現実的な係数を得る必要がある。このため、濃度水準調査の結果を用いて、r及びBについて求めた。

(1) 大気から植物等への移行パラメータの算出

フィールドデータに基づいた大気から植物への移行係数の算出は、以下の式(2)から求められる。

$$\text{大気から植物への移行係数} = \frac{(\text{植物中濃度}) - (\text{土壤からの寄与濃度})}{(\text{大気中濃度})} \quad (2)$$

しかし、フィールドデータを用いて移行係数を求める場合、植物への大気寄与濃度と土壤寄与濃度を区別することが困難である。このため、算出に当たっては、植物中のI-129濃度の全量が大気から移行したと仮定した。

大気から葉菜への移行係数の算出結果を図-4に示す。移行係数の幾何平均値として、 1.6×10^6 (Bq/g・生 / Bq/g・cm³) が得られた。この移行係数をC/χとし、式(1)にRegulatory GuideでのパラメータVg=86400cm/d、λ_E=0.0495/d、t_e=60d、Y=0.23g/cm³を代入してrを求めたところ0.2となった。この算出した値は、現在の評価に用いているr(0.2)と良く一致し、フィールドデータの信頼性向上に資することができた。

(2) 土壤から植物等への移行係数の算出

土壤からの葉菜へのヨウ素の移行係数をフィールドデータを基に(4)式を用いて試算した。

$$B = \frac{\text{植物中 (I-129中又は安定ヨウ素) 濃度}}{\text{土壤中 (I-129又は安定ヨウ素) 濃度}} \quad (4)$$

大気からの移行割合の評価と同様に、フィールドデータを用いていることから大気寄与分と土壤寄与分を区別することはできない。このため、拡散計算上大気経路の寄与が極めて小さい

と考えられる地点において葉菜を採取し、葉菜中 I -129濃度の全量が土壤から移行したと仮定した。また、耕作土試料は、採取した葉菜の近傍地点で採取した試料を用いた。その結果、図-5に示すように、移行係数の幾何平均値として0.012が得られた。この値は、現在、国際的に線量評価で用いている移行係数値(0.02)³⁾と比較すると同レベルであることが確認できた。

一方、安定ヨウ素のデータに基づく移行係数として、幾何平均値0.0026が得られた。この値は、前述のI -129から求めた移行係数を約1桁下回る値であった。

また、精米中 I -129を分析した結果、精米中 I -129濃度は極めて低いため有意な値は得られなかった。このため、移行係数の試算には、測定の検出下限値を精米中 I -129濃度として用い、米と同時に採取した水田土中 I -129濃度を用いて試算した。その結果、I -129の土壤から精米への移行係数は0.007未満となった。また、安定ヨウ素の移行係数について試算した結果、移行係数は0.0007であった。

放射性物質の土壤から植物への移行は、土壤から水相へ可溶する部分（可給態）が関与すると考えられる。ヨウ素の土壤から水への溶出率は、安定ヨウ素に比べI-129が5～10倍ほど高いことが報告されており⁶⁾⁷⁾、土壤から溶出したヨウ素を基に算出した移行係数に比べ土壤中全ヨウ素濃度を基に算出した移行係数が約1桁高いことが分かっている。このため、安定ヨウ素については、土壤マトリックス内に留まっている部分、つまり、実質的な移行に関与しない部分を含むことに起因するものと思われる。また、I -129については、環境中に供給されてからの時間が短いため、比較的移行しやすい可給態で存在するものと思われる。このように、土壤から植物へのI -129及び安定ヨウ素の移行係数に差異が生じる要因としては、土壤環境中における存在形態に相違があることが推察された。

3. まとめ

- (1) 大気から葉菜への移行係数は、幾何平均値として、 1.6×10^6 (Bq/g・生/Bq/g・cm³) が得られ、移行率rとしては0.2であった。
- (2) 土壤から葉菜への移行係数は、幾何平均値として0.012が得られた。この値は、現在、国際的に線量評価で用いている移行係数(0.02)と同レベルであることが確認できた。
- (3) 土壤から植物へのI -129及び安定ヨウ素の移行係数は、その間に約1桁の差異を生じた。この要因として、土壤環境中における存在形態の相違が影響しているものと推察された。

主要レポート

- (1) 清水武彦, 環境中ヨウ素の挙動に関する研究 動燃技報No. 81 1992年
- (2) 清水武彦, 環境線量当量評価に用いるヨウ素移行パラメータに関する研究 日本保健物理学会第27回研究発表会要旨集 1992年

参考文献

- (3) U. S. Nuclear Regulatory Commission, Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR 50, Appendix I, Regulatory Guide, 1. 109(1977)
- (4) 武石稔, 並木篤, 環境中試料中のI -127及びI -129の中性子放射化分析法 保健物理 22(1987)
- (5) H. Katagiri, O. Narita, Low Level Measurements of ¹²⁹I in Environmental samples, J. Radioanal. Nucl. Chem., 138(1990)
- (6) K. Schmitz & D. C. Aumann, Why are the Soil-to-Pasture Transfer Factor, as Determined by

- Field Measurements, for ^{127}I Lower than for ^{129}I ?, J. Environ. Radioactivity, 24(1994)
- (7) K. Schmitz & D. C. Aumann, A Study on The Association of Two iodine Isotopes, of Natural ^{127}I and of The Fission Product ^{129}I , with Soil Components Using A Sequential Extraction Procedure, J. Radioanal. Nucl. Chem., 198, 1(1995)

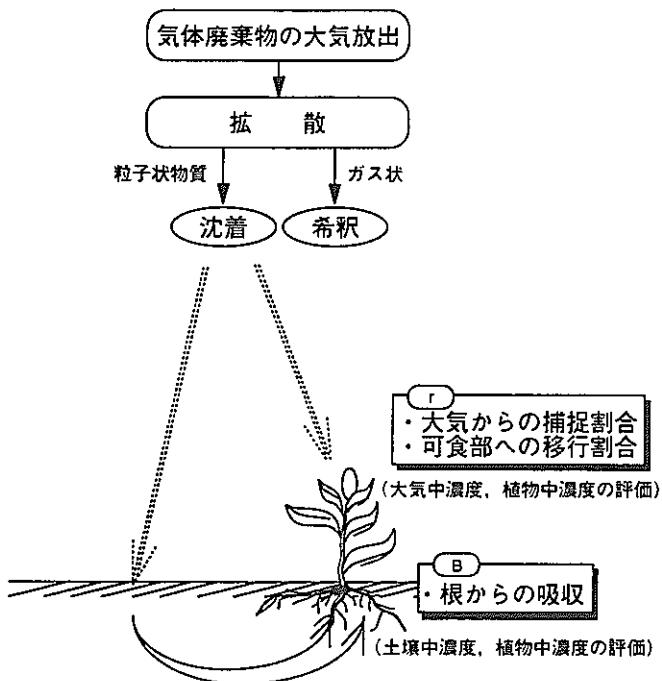


図-1 大気から植物への移行経路

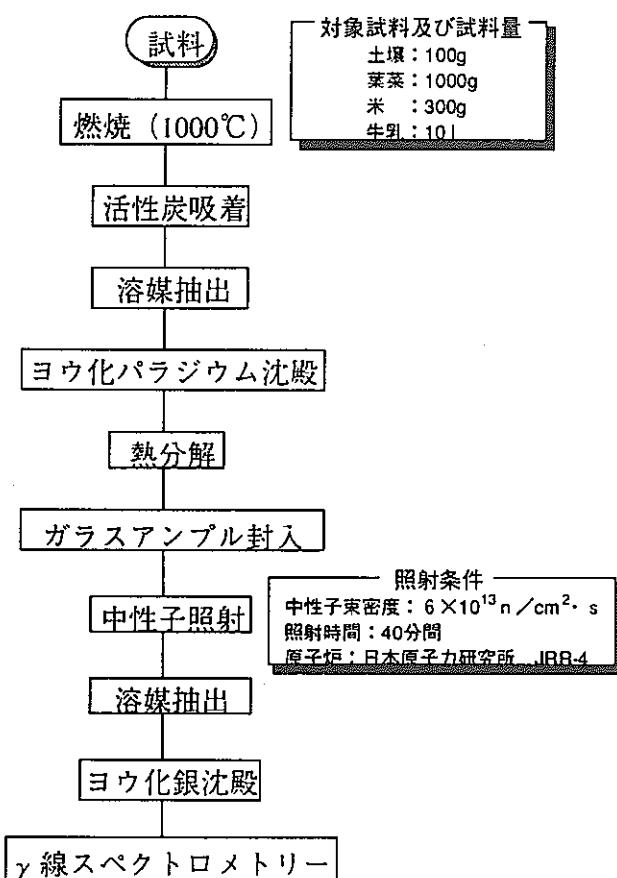


図-2 環境試料中 I-129 分析法

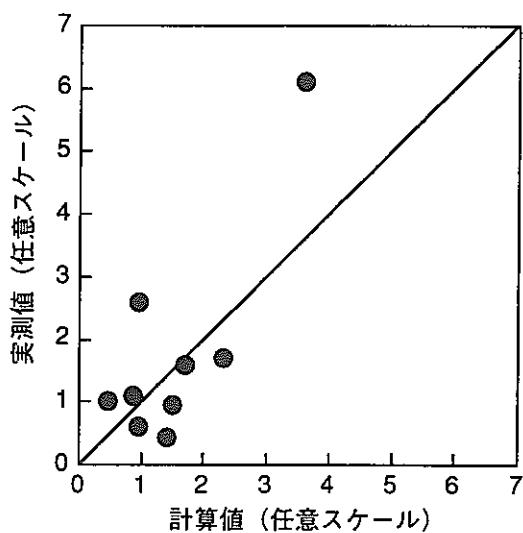


図-3 大気中 I-129 の実測値と計算値の比較

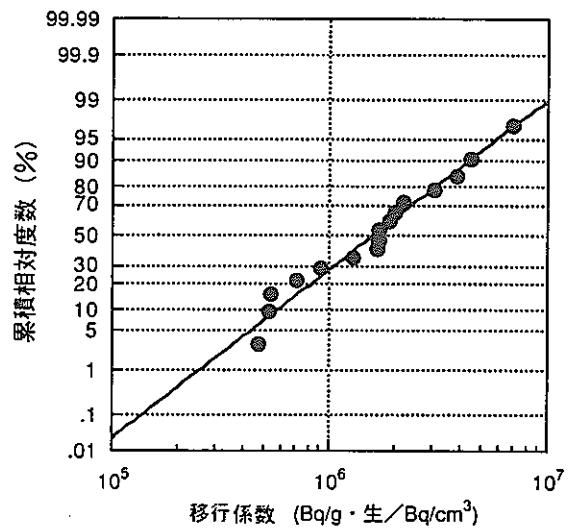


図-4 I-129 の大気から葉菜への移行係数

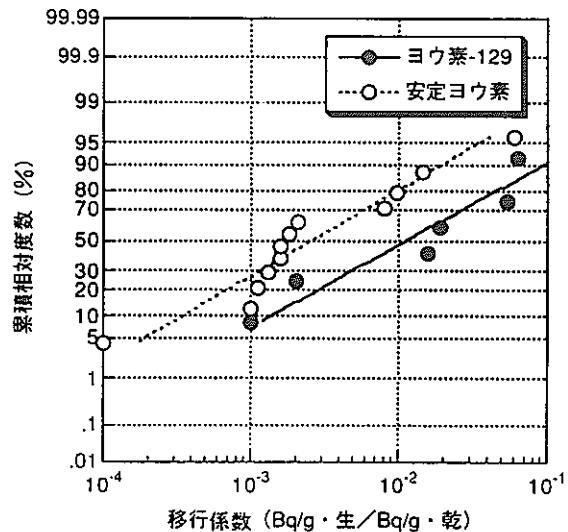


図-5 土壤から葉菜への移行係数

超ウラン元素の環境中の挙動に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 森田重光

I. 研究の概要

ネプツニウム-237、プルトニウム-239,240等の超ウラン元素は、核燃料サイクルに係る環境影響評価上重要な核種であるが、フォールアウトレベルの定量は困難であるため、これまで環境中における移行挙動はほとんど解明されていない。そこで、これら核種の高感度定量法を開発し、フィールドデータを取得するとともに、トレーサ試験を行い、環境中における移行挙動を解明した。以下に具体的な研究内容を示す。

1. 高感度分析法の開発

環境中における濃度が極めて低いため、従来の放射能測定法による定量は困難であったネプツニウム-237(Np-237)の定量法及びプルトニウム-239,240(Pu-239,240)の同位体比測定法への誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)の適用について検討した。また、植物試料等、一部環境試料は ICP-MSでも測定が不可能であることから、さらに感度を向上させるため、試料導入系を改造し、検出感度の向上を図った。

2. 環境中における移行挙動の調査

(1) 土壌環境中における超ウラン元素の移行挙動

表層土壌中のNp-237及びPu-239,240濃度を測定し、土壌環境中における濃度水準を調査するとともに、コア状土壌試料を採取し、これら核種の鉛直方向への挙動を解析した。

また、環境中における挙動が解明されていないNp-237について、土壌の性状と核種濃度との相関解析及びトレーサ試験の結果より、土壌粒子への収着機構を解明した。

(2) 植物への超ウラン元素の移行挙動

フィールドデータを基に、Np-237及びPu-239,240の土壌から植物への移行係数を試算した。

II. 研究成果

1. 高感度分析法の開発

(1) 質量分析法によるネプツニウム-237の定量法の開発

環境試料中のNp-237定量法への質量分析法の適用検討として、妨害元素の除去及び実試料定量における各種マトリクス元素の除去法について検討した。

土壤を酸浸出した溶液をICP-MSで測定し、Np-237を測定する際に妨害となる元素を調べたところ、土壤試料に大量に含まれるウラン-238(U-238)が妨害となることがわかったため、除染係数試験を行った。その結果、TTA(4,4,4-trifluoro-1-(2-thienyl)-1,3-butanedion)キシリソ抽出法と酢酸系の陰イオン交換法を組み合わせることが有効で、環境試料を定量するために必要と推測される 10^6 以上の除染係数を得られることがわかった⁽¹⁾⁽²⁾⁽¹⁶⁾。

また、環境試料中には、ナトリウム、カリウム等のマトリクス元素が高濃度含まれており、

そのままTTA抽出することはできない。そこでマトリクス元素の除去法を検討した結果、有機マトリクスは灰化法で、また、無機マトリクスは陰イオン交換法で除去できることがわかった。開発した定量法を図-1に示す。検出下限値は従来の α 線スペクトロメトリ法の約1/100,000である $4.7 \times 10^{-6} \text{ mBq/ml}$ とすることができた。

(2) プルトニウム-239, 240の定量法及び同位体比測定法の開発

Pu-239, 240を定量する際に妨害となる元素も、Np-237を定量する場合と同様にU-238であることがわかったため、TTA抽出法と酢酸系のイオン交換法にて除去することとした。Np-237との分離については、試料溶液を硝酸系の陰イオン交換カラムに吸着させたのち、Pu-239, 240はヨウ化水素酸で、Np-237はフッ化水素酸で溶離する方法を開発した。

また、同位体比測定法の検討として、標準溶液を用いて質量測定に係るパラメータの最適化を図った。その結果、質量滞在時間(Dwell time)を短くし、掃機回数(Times of Scan)を増やすことにより精度を上げることができることがわかり、100mBq/ml以上濃度であれば、3% (RSD)以下の誤差で測定できるようになった。

(3) 検出感度の向上化

ICP-MSの検出感度Eの算出式と各ファクタのおおよその値を以下に示す。

$$E = f_s \times f_i \times f_p \times f_t$$

f_s ; 試料溶液のプラズマへの導入効率 10^{-2}

f_i ; プラズマ中における元素のイオン化効率 1

f_p ; プラズマから質量分析計内への透過効率 $10^{-2} \sim 10^{-1}$

f_t ; 質量分析計内におけるイオンの透過効率 $10^{-4} \sim 10^{-3}$

つまり、 10^6 から 10^8 個の原子がICP-MSに導入されれば1カウントされるわけである。これらのファクタのうち f_i , f_p , f_t を向上させるためには質量分析計内を改造する必要があることから、 f_s を向上させる方法について検討した。以下に検討した各種のプラズマへの試料導入法について示す。

(a) 脱溶媒法

同軸型ネブライザにて試料を霧状にし、直接プラズマ中に導入する従来型の f_s は約1%と極めて低かった。そこで、試料溶液を微細な霧状にした後に、温熱管及び冷却管に通して脱溶媒する導入系に改造し、検出感度の向上を図った。その結果、試料を微細な霧状にすることにより、試料の導入効率が約7倍向上し、検出感度も7倍向上した。また、脱溶媒することにより酸化物イオンや水素化物イオン等の妨害イオンの発生を防ぐことができ、スペクトル干渉を減らすことができた。本法は揮発性の高い有機溶媒の導入にも活用できるため、抽出法を多用する環境試料分析に有効であると考える。

(b) 電熱気化法

グラファイトポート内に滴下した試料を高電圧をかけて高温にすることにより原子化し、プラズマ中へ導入する方法について検討した。本改造により、試料の導入効率は約80倍向上したが、ポートの容量が $25 \mu l$ と小さいため、検出感度の向上は約8倍であった。環境試料分析に応用するためには試料溶液の濃縮等の前処理が必要となるが、最終的な試料溶液量を $25 \mu l$ にできれば、感度を約80倍向上させることができるため、植物試料等の低濃度試料の分析に応用できるものと思われる。

2. 環境中における移行挙動の調査

(1) 土壤環境中における超ウラン元素の移行挙動

(a) 表層土壤環境中における濃度水準

茨城県、青森県、福井県にて表層土壤を採取し、Np-237及びPu-239,240濃度を測定した。結果を表-1に示す。

福井県奥越牧場のレベルが他の地域に比べ若干高い傾向がみられるが、この理由としては、土壤が有機質に富む森林土壤であること、また、日本海側のフォールアウト量が多い地域であることが影響しているものと考えられる。

(b) 鉛直分布

電動コアサンプラーを用いて、深度50cmまでのコア状土壤試料を採取し、超ウラン元素の鉛直方向への分布を調査した。結果を図-2に示す。

Pu-239,240は土壤への収着能が高いと考えられており、本研究にて得られた成果も一致するものであった。

また、トレーサ試験から求めたNp-237の分配係数は、Pu-239,240及びAm-241のそれに比べて小さい値であるため、移行速度は若干速いと考えられていたが、表層下10cmまでの層に90%以上が保持されていた。Np-237はフミン酸等の有機質と錯体を形成しやすいため⁽¹⁷⁾、土壤中の有機質と結合して保持されているものと推測された。

(c) 土壌の性状と核種濃度との相関解析

土壤の物理的性状（3相比率、粒径分布等）及び化学的性状（陰・陽イオン容量、活性鉄・アルミニウム濃度、炭素濃度、窒素濃度等）について分析測定し、核種濃度との相関を解析した。

その結果、Np-237及びPu-239,240濃度と有機質含量の指標である強熱減量との間に高い相関(0.8以上)が認められた。図-3にNp-237と強熱減量との相関を示す。この結果からも、Np-237及びPu-239,240が有機質と錯体を形成していることが示唆された。

(d) バッチ試験

理論上、移行速度が速いと考えられていたにもかかわらず、表層付近に保持されていたNp-237について、トレーサを用いたバッチ試験を行い、土壤粒子への収着因子を調査した。結果を表-2に示す。

核種濃度と有機質の含量との間に相関が認められたが、微生物活性の関与はTc-99の場合ほど顕著でないことが確認された。

(2) 植物への超ウラン元素の移行挙動

線量評価上重要なパラメータである土壤から植物への移行係数を、フィールドデータ（畑土及び葉菜中濃度）を基に試算した。

葉菜中Np-237濃度は、電熱気化装置を接続したICP-MSでの測定においてもすべて検出下限値以下であったことから、検出下限値を用いて移行パラメータを試算したところ 2×10^{-3} 以下であることが確認できた。また、Pu-239,240については、 1.2×10^{-4} と安全審査で用いられた 2.5×10^{-4} と同レベルの値であることが確認できた。

3. まとめ

- (1) ICP-MSを用いた環境試料中Np-237及びPu-239,240の高感度定量法を開発した結果、検出下限値を、従来の放射能測定法の約1/10から1/100,000にまで向上させることができた。
- (2) ICP-MSを用いたPu-239,240の同位体比測定法を開発した結果、約3%の誤差で測定できるよ

うになった。

- (3) ICP-MSの試料導入系を改造することにより、検出感度を約7から8倍向上させることができた。
- (4) 表層土壤中におけるNp-237及びPu-239,240の濃度水準を把握した。
- (5) コア状土壤試料の分析結果から、Np-237及びPu-239,240は表層下10cmまでの層に保持されていることがわかった。Np-237は分配係数が小さいことから考えて、土壤表層に含まれている有機質と錯体を形成しているものと推測された。
- (6) 土壤の性状と核種濃度との相関を調査した結果、有機炭素濃度とNp-237及びPu-239,240濃度との間に高い相関が認められた。この結果からも、これら核種が有機質と錯体を形成していることが推測された。
- (7) Np-237の土壤粒子への収着因子を調べるためにバッチ試験を行ったところ、有機質含量との間に相関が認められた。
- (8) Np-237の移行係数をフィールドデータを基に試算したところ、 2×10^{-3} 以下であることがわかった。
- (9) Pu-239,240の移行係数をフィールドデータを基に試算したところ、 1.2×10^{-4} と安全審査で用いられた 2.5×10^{-4} と同レベルの値であることが確認できた。

主要レポート

- (1) 森田重光, 篠原邦彦, 誘導結合プラズマ質量分析法を用いた長半減期放射性核種の定量, 第33回環境放射能調査研究成果発表会要旨集 (1991)
- (2) 森田重光, 清水武彦, 誘導結合プラズマ質量分析法を用いた長半減期放射性核種の定量, 動燃技報 No.81, 放射線防護技術特集 (1991)
- (3) Sumiya, S., Morita, S., Determination of Technetium-99 and Neptunium-237 in Environmental Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Proceedings of 4th International Conference on Low Level Measurements of Actinides and Long-lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples (1992)
- (4) 森田重光, 渡辺 均, 地中における放射性核種の移行調査, 日本原子力学会93年会要旨集
- (5) 今泉謙二, 森田重光, 環境試料中Tc-99 及びNp-237の水準調査について, 第27回日本保健物理学会研究発表会要旨集 (1992)
- (6) Sumiya, S., Morita, S., Determination of Technetium-99 and Neptunium-237 in Environmental Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, Vol. 177, No.1 (1993)
- (7) 森田重光, 渡辺 均, 長半減期放射性核種の土壤環境中における挙動について, 日本保健物理学会第29回研究発表会要旨集 (1993)
- (8) 森田重光, 渡辺 均, 長半減期放射性核種の土壤環境中における移行挙動について, 原子力基盤技術中間報告書 (1994)
- (9) Morita, S., Watanabe, H., Study on distribution and behavior of long-lived radionuclides in surface soil environment., Int. Workshop Improv. Environ. Transfer Models (1995)
- (10) 片桐裕実, 森田重光, 長半減期放射性核種の表層土壤環境における分布と挙動, 汚染物質の環境挙動予測に関する局地規模詳細モデルならびにその移行パラメータに関する研究 (1995)

- (11)森田重光, 渡辺 均, 土壤環境中における長半減期核種の移行挙動について, 京都大学原子炉実験所シンポジウム (1995)
- (12)中野政尚, 渡辺 均, 海洋環境における人工及び天然放射性核種の挙動, 日本保健物理学会第31回発表会 (1995)
- (13)石黒秀治, 片桐裕実, 長半減期放射性核種の土壤環境中における移行挙動について, 原子力基盤技術中間報告 (1995)
- (14)片桐裕実, 森田重光, 土壤-植物系での放射性核種の挙動に関する研究, 原子力工業 8月号 (1995)
- (15)森田重光, 渡辺 均, 放射性核種の土壤環境中における分布と挙動, 日本原子力学会春の大会 (1995)

参考文献

- (16)Date, A. R., and Gray, A. L., Applications of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Pub. by Blackie (1989)
- (17)Hursthouse, A. S., Baxter, M. S., Transfer of Sellafield-derived Np-237 to and within the terrestrial environment, J. Environ. Radioactivity, 14 (1991)

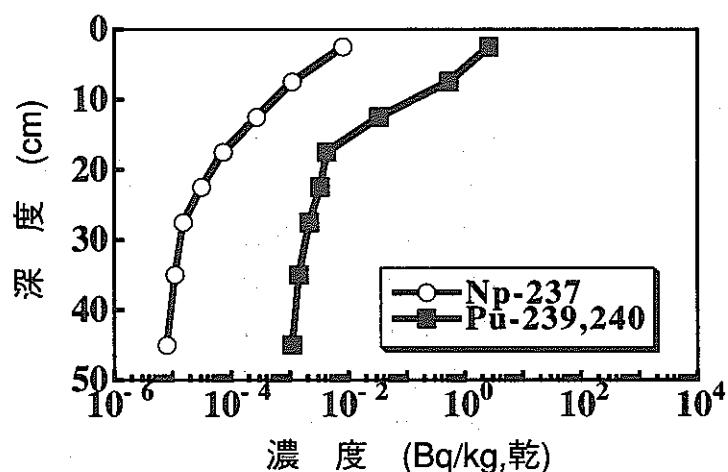
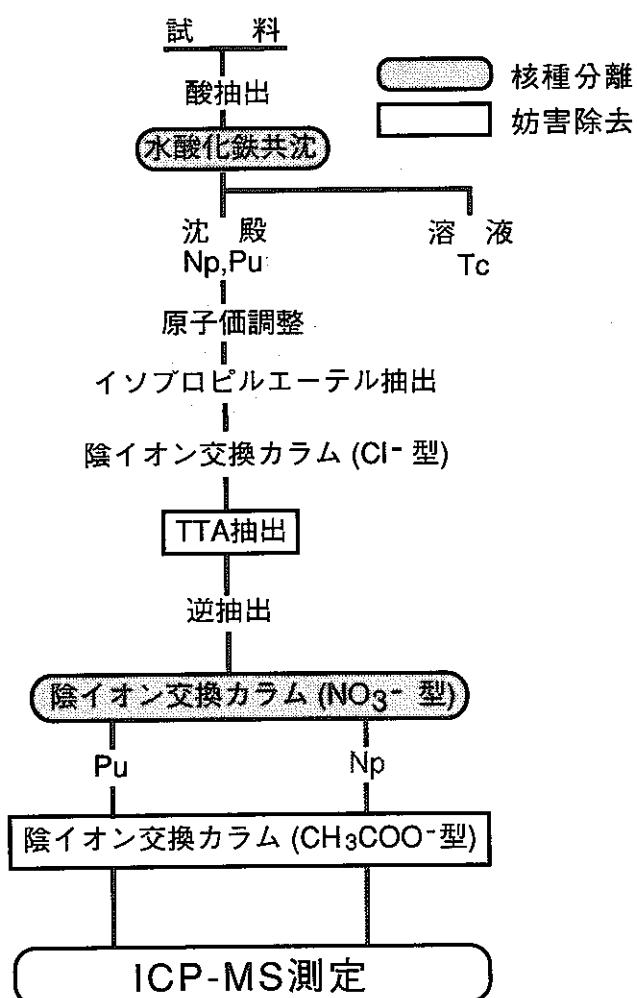
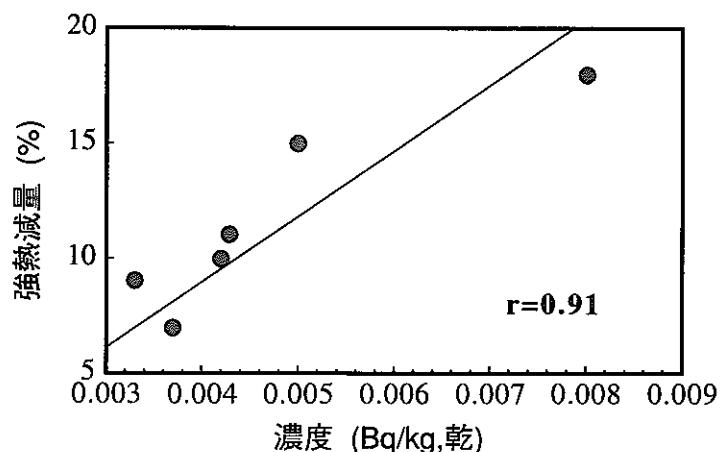


図-2 Np-237及びPu-239, 240の深度分布



水平分布試料中Np-237濃度と強熱減量の相関

図-1 ICP-MSを用いたNp-237及びPu-239, 240分析法

図-3 Np-237と強熱減量との相関

表-1 表層土壤中のNp-237及びPu-239,240濃度

採取地点	濃度 (Bq/kg,乾)	
	Np-237	Pu-239,240
青森県六ヶ所村A	(3.7±0.08)×10 ⁻³	(2.2±0.17)×10 ⁻¹
青森県六ヶ所村B	(4.2±0.10)×10 ⁻³	(3.0±0.27)×10 ⁻¹
青森県六ヶ所村C	(5.0±0.15)×10 ⁻³	(5.8±0.56)×10 ⁻¹
茨城県水戸市	(8.0±0.20)×10 ⁻³	2.6±0.22
茨城県ひたちなか市	(3.3±0.10)×10 ⁻³	(6.0±0.54)×10 ⁻¹
茨城県東海村	(4.3±0.12)×10 ⁻³	(9.0±0.63)×10 ⁻¹
福井県福井市A	(9.5±0.48)×10 ⁻³	(9.0±0.87)×10 ⁻¹
福井県福井市B	(1.9±0.03)×10 ⁻²	3.7±0.27
福井県福井市C	(2.1±0.03)×10 ⁻²	4.4±0.32

表-2 Np-237の土壤への吸着特性を調べるバッヂ試験結果

土壤種類	液 性	吸着割合	有機物	生物活性	備 考
表層土壤	蒸留水	100	○	○	0-5cm
中層土壤	蒸留水	84	△	△	20-30cm
表層土壤	蒸留水	81	○	×	ナトクリープ処理
表層土壤	+酸化剤	76	○	×	酸化的雰囲気
表層土壤	+還元剤	84	○	×	還元的雰囲気

○;大 △;中 ×;小

長半減期軟ベータ放射性核種の環境影響評価に関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 森田重光

吉田美香

I. 研究の概要

軟 β 線放出核種であるニッケル-63、セレン-79、テクネチウム-99、プロメチウム-147は、半減期が比較的長く、また、特にテクネチウム-99は核分裂収率が6%と高いため、核燃料サイクルに係る環境影響評価上重要な核種である。しかし、これら核種が放出する軟ベータ線は測定が困難であるため、環境中における挙動に関する研究はほとんど行われていない。

そこで、本研究では、これら核種の高感度定量法を開発し、フィールドデータを取得するとともに、トレーサ試験を行い、環境中における移行挙動を解析した。以下に具体的な研究内容を示す。

1. 高感度定量法の開発

(1)質量分析法によるテクネチウム-99の定量法の開発

テクネチウム-99(Tc-99)の放出する放射線は低エネルギー β 線であるため、従来の放射能測定法では定量が困難であった。そこで、長半減期核種の定量に有効であると考えられる、誘導結合プラズマ質量分析法(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry:ICP-MS)を用いた定量法について検討した。

(2)質量分析法によるセレン-79の定量法の開発

セレン-79(Se-79)は半減期が約6万年と長いため、質量分析法による定量が可能であると考えられる。しかし、ICP-MSは質量数79の領域にプラズマガスであるアルゴン由來の妨害ピークが生じてしまい定量できない。そこで、プラズマガスに窒素を用いるマイクロ波導入プラズマ質量分析法(Microwave Induced Plasma Mass Spectrometry:MIP-MS)を用いた定量法について検討した。

(3)ニッケル-63の定量法の開発

原子炉構成材中に存在するニッケル-62(Ni-62)は、核分裂によって生成する中性子と(n,γ)反応し、ニッケル-63(Ni-63)を生成する。このNi-63は半減期が93年と比較的長いため、廃棄物処分に係る環境影響評価上重要な核種の一つである。そこで、液体シンチレーション測定法を用いたNi-63の分析法について検討した。

(4)プロメチウム-147、サマリウム-151の定量法の開発

プロメチウム-147(Pm-147)及びサマリウム-151(Sm-151)は半減期がそれぞれ2.6年及び91年の純 β 線放出核種である。これら核種の核分裂収率はPm-147が約2%、また、Sm-151が約0.5%と半減期が1年以上の核種としては比較的高い⁽¹⁸⁾。

しかし、これらの核種は、純軟 β 核種であるため、妨害元素共存下での放射能測定は困難であり、また、Pm及びSm等の希土類元素は、その化学挙動が類似しているため分離・精製が困難であるという問題点があった。そこで、高速液体クロマトグラフ(High Performance Liquid Chromatograph:HPLC)を用いた分離法及び液体シンチレーションカウンタ(Liquid Scintila

-tion Counter:LSC)による測定法について検討した。

2. 環境中における移行挙動

(1)Tc-99の土壤環境中における移行挙動

Tc-99は測定が困難であるため、環境中における濃度水準が明らかにされていない。そこで、表層土壤を採取し、土壤環境中における濃度水準を調査するとともに、コア状土壤試料を採取し、鉛直方向への移行挙動を解析した。

また、土壤の性状と核種濃度との相関解析及びトレーサ試験の結果より、土壤粒子への収着機構を検討した。

(2)Tc-99の植物への移行挙動

トレーサ試験の結果から、Tc-99は移行係数が大きいと言われている。そこで、畑土及び葉菜のフィールドデータを基に、実フィールドにおける移行係数を試算した。

(3)Pm-147及びSm-151の土壤環境中における移行挙動

開発した分析法を環境試料に適用し、土壤中Pm-147及びSm-151の移行挙動を調査した。

II. 研究成果

1. 高感度定量法の開発

(1)質量分析法によるテクネチウム-99の定量法の開発

(a) ICP-MSの検出感度

Tc-99のICP-MS測定法による検出感度について、標準溶液を用いて検討した。各種分析法のTc-99の検出下限値を表-1に示す。この結果、ICP-MSを用いた測定法は、従来の放射能測定法よりも100倍以上感度が良いことがわかった。

(b) 妨害元素の除去法

ICP-MSを用いた測定法の場合、目的核種と同一質量数に同位体を持つ核種（同重体）が大きく妨害する⁽¹⁹⁾ ⁽²⁰⁾。そこで、土壤を酸浸出した溶液をICP-MSで測定し、Tc-99を測定する際に妨害となる元素を調べた。その結果、土壤試料に大量に含まれる安定ルテニウムのうちルテニウム-99(Ru-99)が妨害となることがわかったため、Ru-106をトレーサとした除染係数試験を行い、除去法を検討した。除染係数試験の結果を表-2に示す。シクロヘキサン抽出法、または、キレートイオン交換法を用ることにより、環境試料を分析するために必要な10³以上の除染係数が得ることに成功した。

(c) 環境試料中Tc-99定量法の開発

土壤試料を対象に検討を行った。一般的に、土壤を酸浸出した溶液中には、ナトリウム、カリウム等のマトリクス元素が高濃度含まれており、そのままキレートイオン交換カラムに通すことはできない。そこで、マトリクス元素の除去法を検討した結果、有機マトリクスは灰化法で、また、無機マトリクスは陰イオン交換法で除去できることがわかった。開発した定量法を図-1に示す。本分析法の検出下限値は $1 \times 10^{-2} \text{ mBq/kg}$,乾と従来の放射能測定法の約1/100であり、分析時間も約1/2とすることことができた。

(2)質量分析法によるセレン-79の定量法の開発

(a) 妨害元素の除去法

土壤を酸浸出した溶液をMIP-MSで測定し、Se-79を測定する際に妨害となる元素を調べたところ、土壤試料に大量に含まれる安定臭素のうち、臭素-79(Br-79)が妨害となることがわ

かったため、安定臭素を用いた除染係数試験を行い、除去法を検討した。

その結果、四塩化炭素抽出法を用いることにより、 10^3 程度の除染係数が得られることがわかった。しかし、四塩化炭素は、製造禁止となるため、現在、代替抽出法の検討を進めている。

(b) 定量法の開発

環境試料を酸抽出の後、イオン交換法でマトリクス元素を除去し、四塩化炭素抽出法で妨害元素を除去する定量法を開発した。本定量法の検出下限値は約 $0.16\text{Bq}/\text{ml}$ であり、従来のLSC測定法に比べ約1/2とすることことができ、また、分析時間も約1/2とすることことができた。

(3)ニッケル-63の定量法の開発

一般的に用いられている環境試料中の微量元素の精製法は、水酸化第二鉄等を用いた共沈分離である。通常、多くの金属イオンはこの共沈法により中性からアルカリ性溶液中で沈殿する性質を持っており、Ni(II)イオンもこの性質を持つ金属の一つである。しかし、Ni(II)イオンは、過剰量のアンモニアイオンが共存する溶液中では錯体を形成し、沈殿しない性質を持ち合わせている。そこで、Ni-63測定の妨害となる多くの金属元素からNiイオンを精製するために、後者の性質を利用した精製法を検討した。また、水酸化第二鉄沈殿法のみでは分離できない妨害元素については、ジメチルグリオキシム(Dimethylglyoxime:DMG)を用いたNi-DMG共沈法⁽²¹⁾ ⁽²⁴⁾について検討した。この共沈法は、通常、Ni-DMG共沈後クロロホルム抽出によりNiを精製するが、作業の簡略化及び安全化を図るために、Ni-DMG共沈後イオン交換にて精製する方法を検討した。

なお、本開発は、排水試料の分析を目標としたため、それに含まれる可能性があるコバルト、ストロンチウム、マンガン、ロジウム等の妨害元素を含む模擬試料を用いて試験した。

検討の結果、Niは水酸化第二鉄沈殿法において回収率80%以上であり、マンガン及びロジウムからほぼ完全に分離できた。Ni-DMG共沈法においては、Niの回収率は80%以上であり、ストロンチウム、マンガン、モリブデン及びアンチモンからほぼ完全に分離できた。また、イオン交換法によるNiの回収率は高く、コバルト及び鉄から精製することができた。Niはこれらの精製法を一連化した分析法により、妨害元素から精製できることがわかった。

さらに、水酸化第二鉄沈殿法、Ni-DMG共沈法及びイオン交換法の一連の分析操作において、高回収率を担保するため、ろ過材の検討を行った。その結果、5 Aろ紙からミリポアフィルタに変更することで、90%以上の高効率で妨害元素から精製することができた。精製したNi-63はLSCで測定することとし、図-2に示す分析法を確立した。

(4)Pm-147及びSm-151の定量法の開発

(a) 妨害元素の調査

環境試料を対象としたPm及びSmの分離を行う際、Pm及びSmの隣接元素であるユーロピウム(Eu)及びネオジム(Nd)が妨害となるものと考えられる。そこで、妨害元素を多量に含有すると考えられる土壌試料について調査したところ、Euは0.40～0.95ppm、Ndは5.5～15ppmであり、土壌試料100gを用いた場合、Ndは平均で約1mg、最大で1.5mgに達することがわかった。

これらの結果から、分離法の検討に供する模擬試料の各元素量は1mgとし、また、Ndについては、2mg 含有する模擬試料についても検討した。

(b) 分離・精製法の開発

希土類元素からPm及びSmを迅速かつ効率的に単離するためには、半連続的な分離法が必要

となるため、HPLCを用いた単離について検討した。HPLCの概略図を図-3に示す。HPLCでの分離において、環境試料中のPm及びSm濃度は極低濃度であるため、分離開始前に試料を濃縮する必要がある。そこで、試料をプレカラムで濃縮し、Pm及びSmの溶出が最小限になる濃縮条件を調査した。その結果、濃縮速度1ml/分、硝酸濃度0.1N、溶液量10mlにおいて、Pm及びSmの溶出率は0.01%未満であることが分かったため、これらの条件を濃縮条件とした。また、プレカラムで濃縮した試料を溶離するために、溶離液としてランタノイド元素の分離に有効であるとされる α -ヒドロキシイソ酪酸(Hydroxyisobutyric acid: HIBA)⁽²⁵⁾⁻⁽²⁸⁾を用いた陽イオン交換法⁽²⁹⁾⁻⁽³¹⁾について、溶離液の濃度及び液性並びにHPLCにおける溶離条件を検討した。検討項目としては、保持時間の再現性、Pm及びSmの回収率、除染係数である。検討の結果、溶離は図-4に示すように0.2M-HIBAのpH4.6及びpH4.8を用いた段階溶離法により、不純物の混入を最小限に抑え、迅速にPm及びSmを高回収率で溶離できることがわかった。また、この溶離法は、100gの土壤に2mgのNdが含まれる場合でも、Pmの分離には影響を受けないことがわかった。

(c) 定量法の開発

HPLCにおける分離以前の環境試料の精製及びPm, Smの分離は、アメリシウム分析法を応用し、Pm-147及びSm-151は液体シンチレーションカウンタで測定することにした⁽³²⁾。開発した環境試料中Pm-147及びSm-151分析法を図-5に示す。なお、分析回収率は、分析工程の最初と最後に、それぞれ一部の溶液を分取し、溶液中のサマリウム(Sm-147)をICP-MSで測定し、濃度比較によって求めることにした。

開発した分析法の検出下限値は、土壤試料200g用い500分間測定した場合、約0.1Bq/kg・乾であった⁽³³⁾。

2. 環境中における移行挙動

(1) Tc-99の土壤環境中における移行挙動

(a) 表層土壤環境中における濃度水準

茨城県、青森県、福井県にて表層土壤を採取し、Tc-99濃度を測定した。結果を表-3に示す。福井県奥越牧場のレベルが他の地域に比べ若干高い傾向がみられるが、この理由としては、土壤が有機質に富む森林土壤であること、また、日本海側のフォールアウト量が多い地域であることが影響しているものと考えられる。

また、セシウム-137(Cs-137)濃度との放射能比(Tc-99/Cs-137)は約10⁻³であり、日本におけるTc-99の起源である核実験の核分裂収率から試算した理論値である約10⁻⁴より高い値であった。この理由としては、爆弾の種類による核反応の違いや、爆弾の被覆材に含まれるモリブデンの放射化による生成が考えられる。

(b) 鉛直分布

電動コアサンプラを用いて、深度50cmまでのコア状土壤試料を採取し、Tc-99の鉛直方向への挙動を解析した。結果を図-6に示す。

Tc-99は、一般環境中では TCO_4^- の陰イオンの化学形をとるため、水分とともに移行し、その移行速度は速いと考えられているが⁽³⁴⁾、表層下10cmまでに90%以上が保持されていた。

この理由としては、土壤表層付近に含まれている有機酸や微生物による、不動形の TCO_4^- への化学形の変換や有機物質との錯体形成等が考えられる。

(c) 土壌の性状と核種濃度との相関解析

土壌の物理的性状（3相比率、粒径分布等）及び化学的性状（陰・陽イオン容量、活性鉄・アルミニウム濃度、炭素濃度、窒素濃度等）について分析測定し、核種濃度との相関を解析した。その結果、Tc-99濃度と有機炭素濃度との間に高い相関(0.8以上)が認められた。この結果からも、Tc-99の保持に有機質が関与していることが示唆された。

(d) バッチ試験

理論上、移行速度が速いと考えられていたにもかかわらず、表層付近に保持されていたTc-99について、トレーサ用いたバッチ試験を行い、土壌粒子への収着因子を調査した。その結果を表-4に示す。有機質の含量が高くなるにつれ収着割合が高くなる傾向が認められた。また、微生物の活性度が高い場合は収着割合が高く、低い場合は収着割合も低くなる傾向が認められた。以上の結果からも、Tc-99は土壌表層付近に含まれている有機質や微生物によって、表層付近に収着されているものと推測された。

(2) Tc-99の植物への移行挙動

線量評価上重要なパラメータである土壌から植物への移行係数を、フィールドデータ（畑土及び葉菜中濃度）を基に試算した。

その結果、葉菜中濃度は検出下限値以下であったが、ICP-MSによる定量法を開発したことにより、従来の放射能測定法に比べ1/100程度にすることができたため、実環境中における移行係数は 2×10^{-3} 以下であることがわかった。

植物が取り込みやすい7価のTcトレーサ用いた試験の結果から、Tc-99の移行係数は $10^{-2} \sim 10^2$ と、他の核種と比べて高いと言われてきたが、実環境中においては土壌粒子に収着して植物が取り込めない状態になっているものと考えられる。

(3) Pm-147及びSm-151の土壌環境中における移行挙動

表層土壌中のPm-147及びSm-151の濃度水準を調査した結果、Pm-147は $0.14 \sim 0.47 \text{Bq/kg} \cdot \text{乾}$ の濃度範囲であり、Sm-151は $0.87 \sim 4.0 \text{Bq/kg} \cdot \text{乾}$ の濃度範囲であった。

また、Pm-147及びSm-151の深度分布を、コア状土壌試料を用いて調査した。その結果を図-7に示す。Pm-147については、表層下5cm以下の層の試料は検出下限値未満であったため、表層付近に大部分が保持されているものと推察される。また、Sm-151については、Cs-137、Pu-239,240及びAm-241と同様に挙動し、指數関数的に減少していることがわかった⁽³⁵⁾。

3.まとめ

- (1) ICP-MSを用いたTc-99の定量法を開発し、検出下限値を従来の放射能測定法の約1/100に、また、分析時間を約1/2にすることができた。
- (2) MIP-MSを用いたSe-79の定量法を開発し、検出下限値を従来の放射能測定法の約1/2に、また、分析時間を1/2にすることができた。
- (3) Ni-63の定量法の開発として、DMG共沈法による精製法を確立した結果、水試料の定量が可能となった。
- (4) Pm-147及び-151の定量法の開発として、HPLCを用いた精製法を確立した結果、土壌試料の定量が可能となった。
- (5) Tc-99の地中環境における移行速度は速いと考えられていたが、実環境においては、表層付近に保持されていることがわかった。
- (6) 土壌の性状とTc-99濃度との相関を解析した結果、Tc-99の保持には有機炭素が関与している

ことがわかった。

- (7) トレーサ試験の結果、Tc-99の土壤粒子への収着には、有機炭素や微生物活性が関与していることがわかった。
- (8) Tc-99の移行係数は高いと考えられていたが、実環境試料の分析結果から試算したところ、 2×10^{-3} 以下と他の核種と同等な値であった。
- (9) コア状土壤試料を分析した結果、Pm-147は表層下 5 cmに保持されていることが示唆される結果が得られた。また、Sm-151はセシウム-137やプルトニウム-239, 240, アメリシウム-241に類似した挙動をとることがわかった。

主要レポート

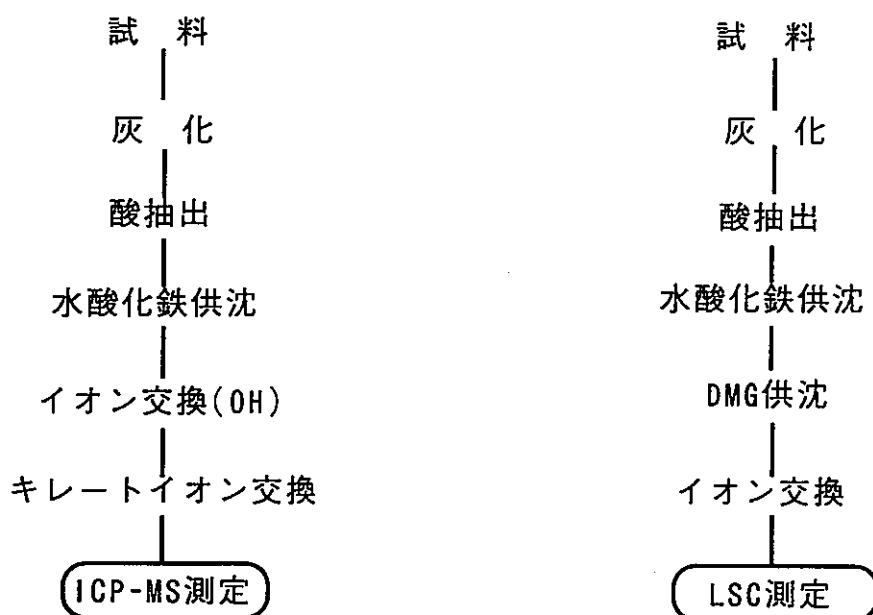
- (1) 森田重光, 飛田和則, 誘導結合プラズマ質量分析法を用いた長半減期放射性核種の定量, 第33回環境放射能調査研究成果発表会要旨集 (1991)
- (2) 森田重光, 篠原邦彦, 誘導結合プラズマ質量分析法を用いた長半減期放射性核種の定量, 動燃技報, No.81, 放射線防護技術特集 (1992)
- (3) 住谷秀一, 吉田 美香, 環境試料中Pm-147およびSm-151分析法の開発, 動燃技報 No.81, 放射線防護技術特集 (1992)
- (4) 森田重光, 今泉謙二, 環境試料中Tc-99 及びNp-237の水準調査について, 第27回日本保健物理学会研究発表会要旨集 (1992)
- (5) Morita, S., Tobita, K., Determination of Technetium-99 by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, Proceedings of Topical Symposium on the Behavior and Utilization of Technetium '93 (1993)
- (6) 森田重光, 飛田和則, 地中における放射性核種の移行調査, 日本原子力学会93年会要旨集 (1993)
- (7) Morita, S., Tobita, K., Determination of Technetium-99 in environmental samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry., Radiochimica. Acta., 63 (1993)
- (8) Sumiya, S., Morita, S., Determination of Technetium-99 and Neptunium-237 in environmental samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, Vol. 177, No.1 (1994)
- (9) 森田重光, 清水武彦, 長半減期放射性核種の土壤環境中における挙動について, 日本保健物理学会第29回研究発表会要旨集 (1994)
- (10) 吉田美香, 住谷秀一, 高速液体クロマトグラフィによる環境試料中Pm-147及びSm-151の迅速分離法の開発 (1994)
- (11) Yoshida, M., Sumiya, S., A Rapid Separation Method for Determination of Samarium-151 and Promethium-147 in Environmental Samples with High Performance Liquid Chromatography, 5th Int. Conf. Low-level Measurements of Actinides and Long-lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples (1994)
- (12) 片桐裕実, 森田重光, 長半減期放射性核種の土壤環境中における移行挙動について, 原子力基盤技術中間報告書 (1994)
- (13) Morita, S., Watanabe, H., Study on behavior of Technetium-99 in soil environment, Proceedings of ICRP (1995)
- (14) Morita, S., Watanabe, H., Study on distribution and behavior of long-lived radionuclides

in surface soil environment., Int. Workshop Improv. Environ. Transfer Models (1995)

- (15)片桐裕実, 森田重光, 長半減期放射性核種の表層土壤環境における分布と挙動, 移行パラメータシンポジウム (1995)
- (16)森田重光, 渡辺 均, 土壤環境中における長半減期核種の移行挙動について, 京都大学原子炉実験所シンポジウム (1995)
- (17)森田重光, 渡辺 均, 放射性核種の土壤環境中における分布と挙動, 日本原子力学会春の大会 (1996)

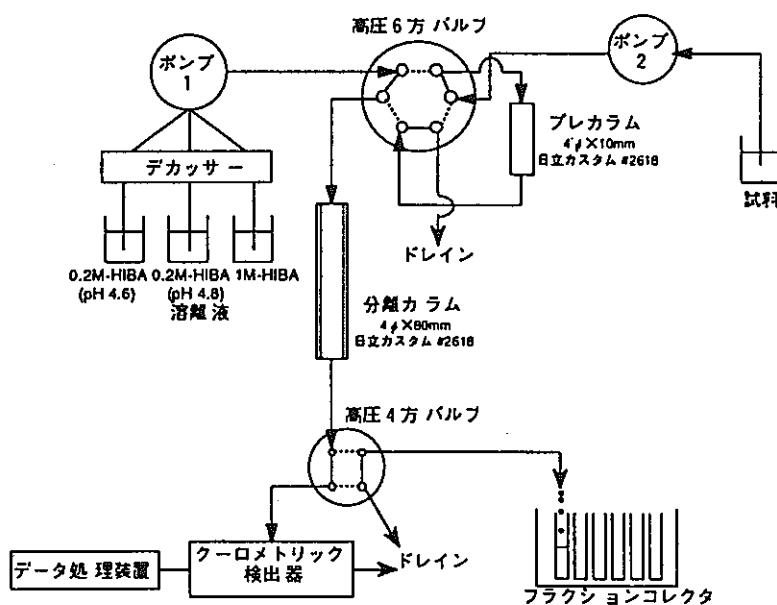
参考文献

- (18)吾勝永子, 核分裂生成物の化学, JAERI-M7873(1978)
- (19)五十嵐康人, 白石久二雄, 環境放射能分野への誘導結合プラズマ質量分析法の応用, RADIOISOTOPES, 40, 42 (1991)
- (20)Date, A. R., Gray, A. L., Applications of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Pub. by Blackie (1989)
- (21)本島健次, 橋谷 博, ウラン中の微量ニッケルの定量, 日本原子力学会誌 (1961)
- (22)Holm, E., Oregioni, B., Ni-63: Radiochemical separation and measurement with anion implanted silicon detector, J. Radioanal. Nucl. Chem., 138(1990)
- (23)Yonezawa, C., Sagawa, T., Rapid determination of specific activity of nickel-63 J. Radioanal. Nucl. Chem., 78 (1983)
- (24)Kaye, J. H., Staebin, R.S., Measurement of Ni-63 in highly radioactive hanford waste by liquid scintillation counting, J. Radioanal. Nucl. Chem. Vol.180 No.2 (1994)
- (25)Deelstra, H., Verbeek, F., The separation of the lanthanides and yttrium by cation exchange elution with ammonium α -Hydroxyisobutyrate and lactate, J. Chromatog., 17 (1965)
- (26)Maoliang, LI., Yongxiang, LI., Ion exchange separation of light rare earths by gradient elution, Nucl. Chem., 123, No.2 (1988)
- (27)Cassidy, R. M., Chauvel, C., Modern liquid chromatographic techniques for the separation of Nd and Sr for isotopic analyses, Chem. Geology, 74 (1989)
- (28)Campbel, D. O., Rapid rare earth separation by pressurized ion exchange chromatography, J. Inorg. Nucl. Chem., 35 (1973)
- (29)Story, J. N., Fritz, J. S., Forced-flow chromatography of the lanthanides with continuous in-stream detector, Talanta, 21(1974)
- (30)Gerome, S. M., An improved method for the analysis of promethium-147, Sci. Total Environ., 70(1988)
- (31)高田芳矩, 有川喜次郎, 希土類元素の迅速陽イオン交換クロマトグラフィー, 分析化学, 24(1975)
- (32)Desmet, G., Myttenaere, C., Technetium in the Environment, Pub. by ELSEVIER APPLIED SCIENCE PUBLISHERS (1986)



図－1 環境試料中のTc-99分析法

図－2 環境試料中のNi-63分析法



図－3 高速液体クロマトグラフ装置の概略図

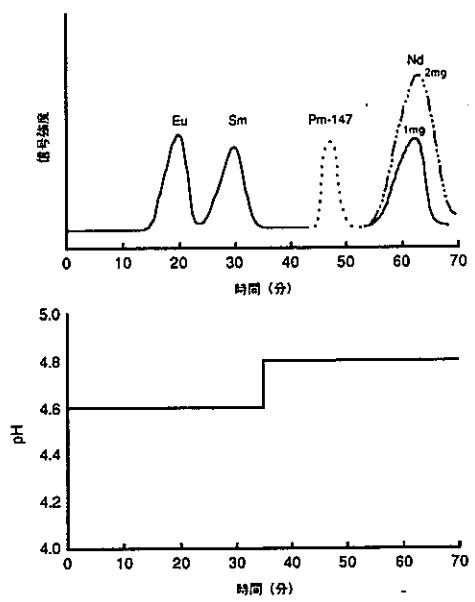


図-4 0.1M-HIBAのpH段階パターン
及び各元素の溶離曲線

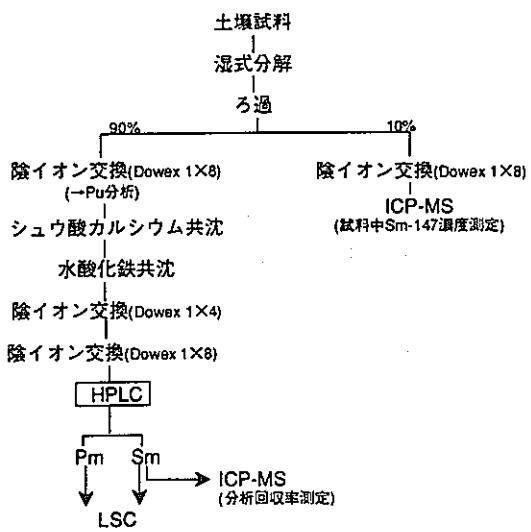


図-5 環境試料中Pm-147及びSm-151分析法

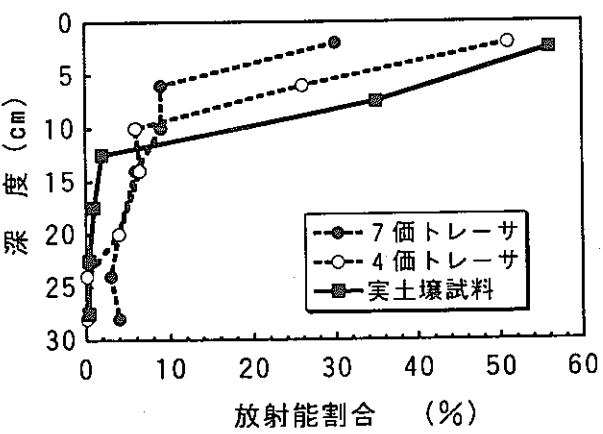


図-6 Tc-99の実環境中における深度分布
とトレーサ試験の結果

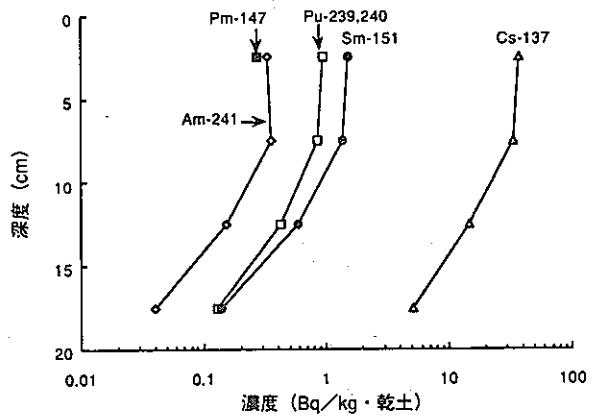


図-7 Pm-147及びSm-151の深度分布

表-1 Tc-99の検出下限値

測定法	検出下限値 (mBq)
ガスフロー測定法	1.0
液体シンチレーション測定法	2.5×10
中性子放射化分析法	3.0×10^2 *
ICP-MS (同軸グライド)	5.0×10^{-2}
ICP-MS (超音波グライド)	2.1×10^{-3}

表-2 Ruの除染係数とTcの回収率

分離法	除染係数 (-)	回収率 (%)
エレトロン交換	1.1×10^5	97
T I O A 抽出	1.1×10	96
T B P 抽出	3.5×10	91
シリカゲル抽出	1.9×10^5	80
T P A C 共沈	2.7×10	66

*:筑波大学における研究

表-3 表層土壤中のTc-99濃度

採取地点	濃 度 (Bq/kg,乾)	土壤種
青森県六ヶ所村A	$(8.1 \pm 0.02) \times 10^{-2}$	灰色低地土
青森県六ヶ所村B	$(1.0 \pm 0.04) \times 10^{-1}$	褐色森林土
青森県六ヶ所村C	$(1.3 \pm 0.04) \times 10^{-1}$	褐色森林土
茨城県水戸市	$(1.8 \pm 0.06) \times 10^{-1}$	褐色低地土
茨城県ひたちなか市	$(1.0 \pm 0.03) \times 10^{-1}$	黒ぼく土
茨城県東海村	$(1.3 \pm 0.03) \times 10^{-1}$	黒ぼく土
福井県福井市A	$(1.9 \pm 0.09) \times 10^{-1}$	黒ぼく土
福井県福井市B	$(4.2 \pm 0.05) \times 10^{-1}$	褐色森林土
福井県福井市C	$(5.8 \pm 0.09) \times 10^{-1}$	褐色森林土

表-4 Tc-95mのバッチ試験結果

土壤種類	液 性	吸着割合	有機物	生物活性	備 考
表層土壤	蒸留水	100	○	○	0-5cm
中層土壤	蒸留水	71	△	△	20-30cm
表層土壤	蒸留水	12	○	×	オートクレーブ処理
表層土壤	+酸化剤	10	○	×	酸化的雰囲気
表層土壤	+還元剤	99	○	×	還元的雰囲気
烟 土	蒸留水	71	○	○	0-5cm

○;大 △;中 ×;小

放射性物質の物理・化学形態に関する調査研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 住谷秀一

森田重光

I. 研究の概要

大気圏内核実験や原子力施設等から環境中に放出された放射性核種は、環境中において種々の物理・化学形態をとり、それぞれ形態別に異なった挙動をとる。しかし、形態別の存在割合や環境中における移行挙動は複雑であるため、未だ解明されていない点も多い。

そこで本研究では、長半減期の α 線放射性核種であり、大気圏内核実験の影響等により環境中に広く分布するプルトニウム-239,240 (Pu-239,240) 及びアメリシウム-241 (Am-241)、また、天然放射性核種としてカリウム-40(K-40)、鉛-210(Pb-210)、ポロニウム-210(Po-210)、ラジウム-226(Ra-226)、ウラン-238(U-238)を対象核種とし、茨城県東海村周辺沿岸の海水中における物理形態について基礎実験を行うとともに、海洋環境試料の物理形態弁別法及び物理・化学形態が移行、濃縮等に及ぼす影響に関する情報収集を行った。

本研究の具体的な研究内容を以下に示す。

1. 海水中Pu-239,240, Am-241及び天然放射性核種の物理形態調査

海水中のPu-239,240, Am-241等の濃度は、物理形態の違いにより変動すると言われており、存在形態としては、溶存態、コロイド態、粒子態の3態に分けられることから、これら3態の弁別法について検討した。

さらに、検討した手法を用いて東海村沿岸の表層海水を採取し、物理形態の分布状況を調査するとともに、海底土及び海産物中濃度を測定し、移行に及ぼす物理形態の影響について解析した。

2. 化学形態に係る基礎調査

Pu-239,240はⅢ価からⅥ価の酸化状態をとるため、環境中で複雑に挙動しているものと考えられる。しかし、現在の環境中におけるPu-239,240の濃度レベルは極めて低く、化学形態別に弁別すると有意に検出することは困難である。そこで、化学形態が環境移行に及ぼす影響について文献等より調査した。

II. 研究成果

1. 海水中Pu-239,240及びAm-241等の物理形態調査

(1)物理形態弁別法の開発

海水中における物質の存在形態は、溶存態($<0.002\mu\text{m}$)、コロイド態($0.002\sim0.2\mu\text{m}$)、粒子態($>0.2\mu\text{m}$)の3態に分けられる⁽³⁾。そこで、この3態の弁別法について検討した。弁別法としては、精密ろ過法、限外ろ過法、逆浸透法等があるが、調査の結果、実海水試料のように塩類濃度が高く、数百リットルを迅速に処理する必要がある場合は、限外ろ過法が適していることがわかった。図-1に限外ろ過法による物理形態弁別の概念を示す。 $0.45\mu\text{m}$ 及び $0.22\mu\text{m}$ のメンブランフィルタにより捕集されたものを粒子態、限外ろ過法（分画分子量1万）により捕集さ

れたものをコロイド態、限外ろ紙を通過したものを溶存態とした。検討に用いた限外ろ過装置はミリボア社製ペリコンカセットで、タンジェンシャルフロー方式であるため目詰まりが起こりにくく、一度に数百リットルの試料を処理することができた。

なお、形態別に捕集した試料は、東海事業所標準分析作業法（周辺環境管理編）⁽⁴⁾に基づき、Pu-239,240は硝酸系イオン交換法で、また、Am-241はシウ酸カルシウム共沈及び鉛酸-メタノール系イオン交換で精製した後、 α 線スペクトロメータで測定した。

(2) 海水中Pu-239,240及びAm-241の物理形態調査

東海村沿岸表層海水の物理形態別の分布状況調査結果を表-1に示す。Pu-239,240については、粒子態が11~35%（平均19%）、コロイド態が検出下限値未満、溶存態が63~84%（平均78%）であった。一方、Am-241については、粒子態が50~59%（平均55%）、コロイド態が検出下限値未満、そして、溶存態が37~38%（平均38%）であった。従って、東海村沿岸においては、Pu-239,240は溶存態>粒子態>コロイド態の傾向を、Am-241は粒子態>溶存態>コロイド態の傾向を示すことがわかった。

これまで報告されている粒子態のPu-239,240及びAm-241の存在割合を表-2に示す^{(5)~(12)}。海域によって値が異なるが、Pu-239,240で4~40%、また、Am-241で30~90%が粒子態であり、今回の実験結果はこの範囲に含まれている。

また、海水から海水中懸濁物質への吸着の度合いを示すパラメータである分配係数を調べたところ、Pu-239,240で $(2.6\sim3.8)\times10^4$ 、Am-241で $(2.3\sim4.0)\times10^5$ であり、他の海域における調査の結果^{(12)~(14)}とほぼ一致した（表-3）。

(3) 海水、海底土中のPu-239,240及びAm-241濃度と天然放射性核種濃度との相関

海水、海底土中のPu-239,240、Am-241濃度と天然放射性核種濃度を測定し、相関を調査した。その結果、海水中においては、Am-241濃度とPb-210濃度との間に高い相関が認められた。この理由としては、Pu-239,240は海水中では主に溶存態で存在するが、Am-241とPb-210は粒子態で存在するためであると考えられる。

また、海底土中においては、図-2に示すようにPu-239,240及びAm-241濃度とPb-210濃度との間に高い相関が認められた。この理由としては、Am-241及びPb-210は主に粒子態で存在するため、また、Pu-239,240も約20%が粒子態で存在するためであると考えられる。

(4) 海産生物中における分布と物理形態が移行に及ぼす影響

貝類、シラス等の海産生物中のPu-239,240及びAm-241濃度と天然放射性核種濃度を測定し、濃縮係数を試算した。結果を表-4に示す。

濃縮係数は、Po-210>Am-241>Pb-210>Pu-239,240>Ra-226>U-238となり、海水中で粒子態で存在しているものは大きく、溶存態で存在しているものは小さいという傾向が認められた。この理由としては、海産生物がプランクトン等の粒子態の物質を摂取するためであると考えられる。

また、1982年から1994年までに採取した、シラス、成魚、貝類、褐藻のAm-241/Pu-239,240放射能比を調査したところ、図-3に示すように、貝類>成魚>シラス>褐藻の傾向を示すことがわかった。表-5は本研究にて分析した海水の物理形態別Am-241/Pu-239,240放射能比であるが、貝類や魚類等の放射能比は粒子態に近く、褐藻の放射能比は溶存態に近いことがわかる。この結果からも、プランクトン類を摂取している生物は粒子態のものを摂取しやすく、また、海水から栄養を摂取している海藻類は溶存態のものを摂取しやすいという傾向が確認され

た。

2. 海水中Pu-239,240の化学形態調査

(1)Pu-239,240の化学形態が環境移行に及ぼす影響に関する基礎調査

(a)海水中における存在形態

英國セラフィールドに面したアイリッシュ海におけるPu(III, IV)とPu(V, VI)の存在形態を調べたところ、Pu(III, IV)は粒子態に、Pu(V, VI)は溶存態に多いという結果が得られている⁽¹⁵⁾⁻⁽¹⁷⁾。

また、大気圏内核実験に伴うフォールアウト量が多かった1979年から1980年にモナコ沖及び東海沖にて化学形態の弁別実験を行った結果（表-6）、モナコ沖においては、Pu(III, IV)とPu(V, VI)の存在割合は約50%ずつであったが、東海沖においては、約80%がPu(V, VI)であった⁽¹⁶⁾。

(b)海産生物による取り込み

プルトニウムトレーサーを用いた取り込み、排泄実験が行われた。プランクトン、ヒラメ、ハマグリ、多毛虫を用いた実験の結果、海水や海底土からのPu(III, IV)とPu(V, VI)の取り込み及び排泄速度に有意な差は認められなかった⁽¹⁸⁾。このことから、Puの海産生物への移行挙動に対する化学形態の影響は、少ないと考えられる。

3.まとめ

- (1) 限外ろ過法による物理形態弁別法を開発し、実海水試料の弁別定量を可能とした。
- (2) 東海村沿岸の海水について物理形態別に弁別したところ、Pu-239,240は主に溶存態で、また、Am-241は粒子態で存在していることがわかった。
- (3) Pu-239,240及びAm-241濃度と天然放射性核種濃度との相関を調べたところ、海水中においてはAm-241とPb-210との間に、また、海底土中においてはPu-239,240及びAm-241とPb-210との間に相関が認められた。この理由としては、Am-241及びPb-210の大部分が粒子態で存在するのに対し、Pu-239,240が粒子態で存在する割合は20%であるためであると考えられる。
- (4) 海産生物による濃縮係数を調べたところ、粒子態で存在している核種は高く、溶存態で存在している核種は低い傾向が認められた。これは、海産生物が粒子態の物質を摂取するためであると考えられる。
- (5) 文献調査の結果、アイリッシュ海においては、酸化形Puは粒子態に、また、還元形Puは溶存態に多いことがわかった。また、化学形態は、海産生物による取り込みや排泄にはほぼ関与しないことがわかった。

主要レポート

- (1) 住谷秀一、渡辺 均、沿岸におけるPu-239,240及びAm-241の分布と挙動、第23回放医研環境セミナー報文集 (1996)
- (2) 中野政尚、渡辺 均、海洋環境における人工及び天然放射性核種の挙動、日本保健物理学会第31回発表会 (1996)

参考文献

- (3) Robertson, D.E., Influence of the physico-chemical forms of radionuclides and stable tracer elements in seawater in relation to uptake by marine biosphere, In marine radio-ecology NEA., 21-84 (1971)

- (4) 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所標準分析作業法 周辺環境管理編 (1994)
- (5) Livingston, H.D. and Bowen, V.T., Windscale effluent in the waters and sediments of the Minch, Nature, Vol.269, 586-588 (1977)
- (6) Nevissi, A. and Schell, W.R., Distribution of Plutonium and Americium in Bikini atoll lagoon, Health Physics, Vol.28, 539-547 (1975)
- (7) Wahlgren, M.A. and Marshall, J.S., The behavior of Plutonium and other long-lived radionuclides in Lake Michigan, Biological transport, Seasonal cycling and residence times in the water column, In impact of nuclear releases into the aquatic environment, IAEA-SM-185/25, 227-243 (1975)
- (8) Hetherington, J.A. and Harvey B.R., Uptake of radioactivity by marine sediments and implications for monitoring metal pollutants, Mar. Pollut. Bull., Vol.9, 102-106 (1978)
- (9) Mitchell, P.I., Studies on the speciation of Plutonium and Americium in the Western Irish Sea, Radionuclides in the Study of Marine Processes, Elsevier Applied Science, London, 37-51 (1991)
- (10) Holm, E., Particulate Plutonium and Americium in Mediterranean surface waters, Oceanol. Acta, Vol.3, 157-160 (1980)
- (11) Molero, J., Particulate distribution of Plutonium and Americium in surface waters from the Spanish Mediterranean Coast, J. Environ. Radioact., Vol.28, No.3, 271-283 (1995)
- (12) Kershaw, P.J., Apparent distribution coefficients of transuranium elements in UK coastal waters, Application of distribution coefficients to radiological assessment Models, Elsevier Applied Science, 277-287 (1986)
- (13) Pillai, K.W. and Mathew, E., Plutonium in the aquatic environment, its behavior, distribution and significance, Transuranium Uuclides in the Environment, IAEA-SM-185 /25, 25 (1975)
- (14) Martin, J.M. and Thomas A.J., Origins, Concentrations and distributions of artificial radionuclides discharged by the Rhone River to Mediterranean Sea, J. Environ. Radioact., Vol.11, 105-139 (1990)
- (15) Nelson, D.M. and Lovett, Oxidation state of Plutonium in Irish Sea, Natuer, Vol.276, 599-601 (1978)
- (16) 大和愛司, 海水中プルトニウムの酸化状態, 第8回放医研環境セミナーシリーズ (1982)
- (17) Murray, C.N. and Fukai, R., Adsorption-desorption characteristics of Plutonium and Americium with sediment particles in the estuarine environment, Impact of Nuclear Releases into the aquatic environment, IAEA-SM-185/25, 179-192 (1975)
- (18) Fisher, N.S., Bjerregaard, P., Interractions of marine plankton with transuranic elements, Biokinetics of Neptunium, Plutonium, Americium and Californium in Phytoplankton, Limnol. Oceanogr., Vol.28, 432-447 (1983)

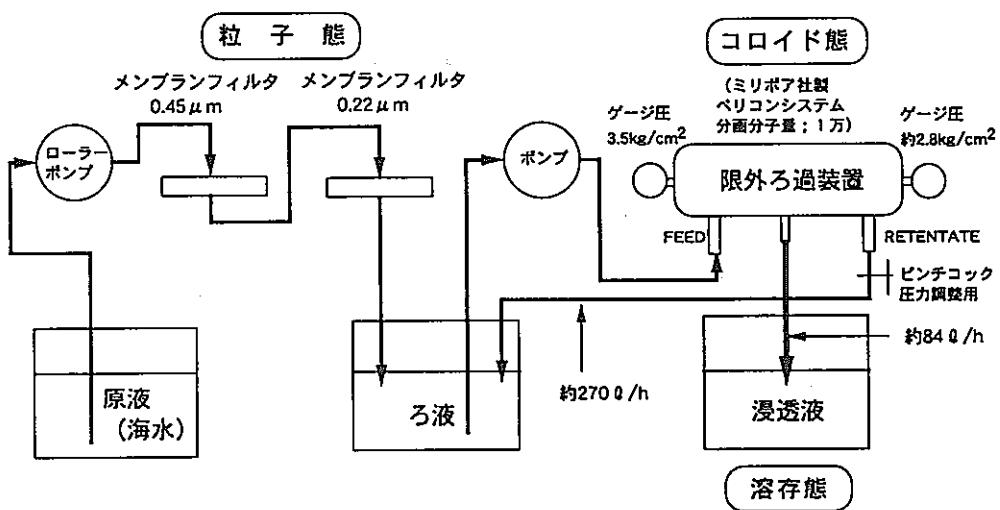


図-1 限外ろ過法による物理形態弁別の概念

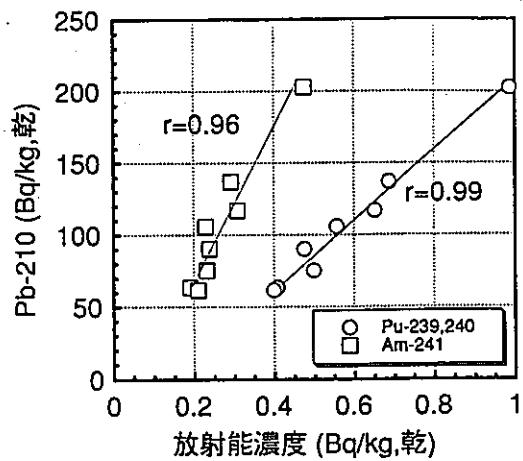


図-2 海底土中Pu-239,240及びAm-241濃度とPb-210濃度との相関

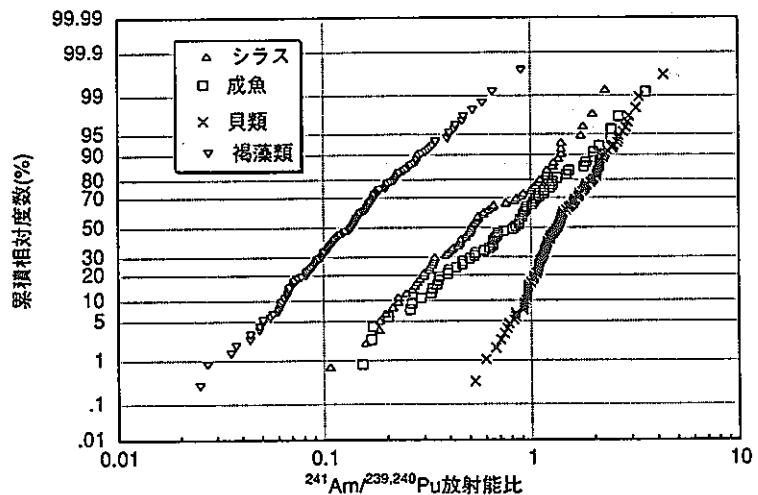


図-3 東海村沿岸海産生物中のAm-241/Pu-239,240放射能比の対数確率正規分布

表-1 東海村沿岸海水中におけるPu-239,240及びAm-241の存在形態

物理形態	粒 径	相対割合 (%)	
		Pu-239,240	Am-241
粒子態	>0.45	11 - 35	50 - 59
粒子態	0.22 - 0.45	<5	<7
コロイド態	0.002-0.22	<4	<7
溶存態	<0.002	63 - 84	37 - 38

表-2 表層水中における粒子態の割合

採取地域	粒子態 (%)	
	Pu-239,240	Am-241
日本 環礁	40	90
ミクロン湖	5 - 40	—
アイリッシュ 海東	36	80
アイリッシュ 海西	36	52
地中海	4 - 15	30 - 60
茨城県沖	11 - 35	50 - 59

表-3 懸濁粒子と海水間の分配係数

採取地域	分配係数 (ℓ / kg)	
	Pu-239,240	Am-241
北海	6×10^5	2.8×10^6
アイリッシュ 海東	8×10^4	4×10^5
アイリッシュ 海西	4×10^5	3×10^6
ボンベイ湾	$(0.5-1.5) \times 10^5$	—
ローヌ 川河口	$<6 \times 10^5$	$<1 \times 10^6$
地中海	1.2×10^5	9×10^5
茨城県沖	$(2.6-3.8) \times 10^4$	$(2.3-4.0) \times 10^5$

表-4 海産生物による濃縮係数

	Pu-239,240	Am-241	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210
貝 類	160	1,500	2.8	14	550	38,000
シラス	30	150	0.65	6.2	200	46,000

表-5 東海村沿岸海水における粒子態及び溶存態の
Am-241/Pu-239, 240放射能比

試料No.	Am-241/Pu-239, 240放射能比		粒子態/溶存態
	粒子態	溶存態	
東海村沿岸A	1.4 ± 0.23	0.13 ± 0.02	11± 2
東海村沿岸B	0.70± 0.13	0.08 ± 0.01	9± 2
地中海沿岸	0.4 - 1.2	0.041 - 0.12	4 - 14

表-6 沿岸海水中のフォールアウトPu-239, 240の酸化状態

試料No.	Pu-239, 240濃度 ($\mu\text{Bq}/\ell$)		V + VI / 全Pu (%)
	III + IV	V + VI	
東海村沿岸A	8.1± 2.4	20.4± 7.4	71
東海村沿岸B	2.3± 2.1	12.2± 5.6	85
モナコ沿岸A	27.4± 3.7	27.8± 3.7	50
モナコ沿岸B	12.6± 2.2	18.5± 3.0	60

ナトリウム・エアロゾルの環境中における挙動と影響についての研究

平成3年度～平成4年度

大洗・安全管理部・放射線安全課 安藤秀樹

野村紀男

I. 研究の概要

本研究は高速炉の冷却材として利用しているナトリウムがエアロゾルとして環境中に拡散した場合の空気中の挙動及び地表に沈降した場合の影響を詳細に評価することを目的とする。環境中に放出されたナトリウム・エアロゾルは、空気中の酸素、湿分あるいは炭酸ガスと反応して種々の化学形のエアロゾルに変化するとともに、湿度及び温度の影響を受けて粒径成長する。ナトリウム・エアロゾルは、この様な化学的、物理的な変化をしながら空気中に拡散し、地表へ沈降し、動植物に至る。

本研究では関連する国内外の文献を調査し、ナトリウム・エアロゾルの環境中挙動と影響について検討を行い、詳細な評価手法確立のために必要な実験計画をとりまとめた。

なお、本研究は、平成4年度に緊急性・重要性の観点から、実験計画のとりまとめをもって中止した。

II. 研究成果

1. ナトリウム・エアロゾルの環境中挙動と影響に関する調査

国内外の関連する文献を調査した。

(1) ナトリウム・エアロゾルの空気中挙動

空気中に放出されたナトリウムの基本的な化学的变化は次のとおりである。空気中の酸素と反応し Na_2O 、 Na_2O_x が生成する。 Na_2O 、 Na_2O_x は空気中の水蒸気と反応し NaOH が生成する。 NaOH は空気中の炭酸ガスと反応し Na_2CO_3 、 NaHCO_3 が生成する。また、これらのエアロゾルは雰囲気の湿度、温度等の影響により粒子径が成長する等の物理的な変化を伴う。化学的変化を測定した実験として、静穏な気象条件のもとに加熱したナトリウムを大気中に放出し風下で化学組成を測定した例¹⁾があった。粒子径の成長変化を測定した実験としては、相対湿度をパラメータとして金属ナトリウム微粒子についてチェンバー内で測定した例²⁾、密閉チェンバー内でナトリウムを燃焼させ測定した例³⁾、60m のテストループでの酸化ナトリウム発生後の測定例⁴⁾があった。

(2) ナトリウム・エアロゾルの大気中拡散モデル

大気中に放出された汚染物質の拡散については実験室レベルから野外環境レベルまで理論的にも実験的にも多くの研究が行われているが、ナトリウム・エアロゾルへの適用例は見られなかった。

(3) ナトリウム化合物の地表沈降後の移行挙動

ナトリウム・エアロゾルは地表に沈降した後、土壤中へ拡散、移行する。

原子力施設の廃棄物中に存在する Co , Ni , Sr , Cs , Eu 等の金属物質を対象とした野外トレ

一サ実験例、分配係数（土壤／水中）の測定報告は数多く見られたが、ナトリウム化合物を対象とした実験例は極めて少なかった。

(4). ナトリウム化合物の植物への影響

ナトリウム・エアロゾルは地表に沈降した後、ナトリウム金属元素とアルカリ物質との2面性をもった化学的な影響を動植物に与える。ナトリウムの移行経路としては動物の呼吸による吸入、植物の根や葉部からの吸収による葉部及び根幹へ蓄積がある。動物の場合には食物連鎖による体内取り込みがある。また、アルカリ物質の影響としてはナトリウム化合物の陰イオンであるOH基の作用がある。

ナトリウム化合物の植物に対する影響に関してはNaClについて多くの研究報告があったが、NaOH及び Na_2CO_3 についての報告は見られなかった。

2. ナトリウム・エアロゾルの環境中挙動と影響に関する検討

(1). 移行経路に関する検討

図-1に、環境中に放出されたナトリウム・エアロゾルの挙動を分類し、その移行経路を示す。短期的に影響があると考えられる主な経路は、大気からの直接吸入及び土壤への沈着であり、これに植物を通しての食物摂取が加わる。長期的には全移行経路に分散し特定はできない。なお、影響度は時間の経過とともに小さくなる傾向にある。従って、短期に影響ができる移行経路が重要であり、環境中でのナトリウム・エアロゾルの変化、大気拡散挙動、植物への移行（土壤経由を含む）を把握する必要がある。

(2). 文献調査結果に基づく検討

(a). ナトリウム・エアロゾルの大気中挙動評価

ナトリウム・エアロゾルは大気拡散中に化学形態が変化し、粒径成長する。従って、より詳細な評価を行うためには従来の大気拡散モデルに粒径成長を考慮した重力沈降及び降雨による影響を組み込み、解析コードを検証する必要がある。

(b). 地表沈降後の挙動評価

ナトリウムに近い挙動を持っていると考えられるCsのデータが参考となるが、より詳細な評価を行うためにはナトリウム化合物の土壤中の移行挙動を把握する必要がある。

(c). ナトリウム化合物の植物への影響

ナトリウムの植物への移行を明らかにするため、稻、葉菜、根菜の代表的な作物についてナトリウムの移行係数を把握する必要がある。また、アルカリ障害度も調査する必要がある。

3. 詳細な環境影響評価手法確立のための実験計画（図-1参照）

(1). 環境中でのナトリウム・エアロゾルの変化に関する実験

チャンバ内でナトリウム・エアロゾルを発生させ、空気中の湿度等をパラメータとして、粒径成長及び化学形態の変化を測定する。

(2). 大気中におけるナトリウム・エアロゾルの拡散挙動に関する実験

沈着速度の評価のため、チャンバ内でナトリウム・エアロゾルを発生させ、空気中の湿度等をパラメータとして、空気中濃度と沈着密度を測定する。

重力及び降雨による沈降を考慮したモデルを検証するため、ナトリウム・エアロゾル（あるいは模擬物質）を用いて風洞実験を行う。

(3). 地中の移行挙動に関する実験

土壤用のカラムにナトリウム化合物を散布し、土壤の種類、含有水分等をパラメータとして、ナトリウムの分布を測定する。

(4). ナトリウム化合物の植物への移行・影響に関する実験

稲、葉菜、根菜の代表的な作物を栽培し、ナトリウム化合物を散布し、可食部を中心にナトリウムの移行係数を調査する。また、アルカリ障害度を把握するために育成状態を観察する。

4. 結言

(1). ナトリウム・エアロゾルの詳細な環境影響評価手法確立のためには、空気中での化学反応等による粒径成長過程、降雨の影響を明らかにし、これらを大気拡散モデルに組み込む必要がある。また、地表沈降後の地中及び植物への移行挙動も把握する必要がある。

(2). アルカリ物質としての植物への影響も合わせて調査する必要がある。

(3). 上記(1)及び(2)に関し、必要な実験計画をとりまとめた。

参考文献

- (1). R.P.Johnson, and C.T.Nelson, "Interim test report for the characterization of released particle test conducted at INEL DURING FY 1979," DOE/SF/74028-T10, 1979
- (2). M.Murata, M.Maritomi, Y.Yoshida and K.Kokubo, "Behavior of sodium aerosolin atmosphere," J, Mucl. Sci. and Technol., Vol. 11, No. 2, p. 65-71, 1974
- (3). A.R.Sundararajan, D.S.Mitoragotori, and S.R.M.Rao, "Effect of Relative Humidity on Growth of Sodium Oxide Aerosols," J, Mucl. Sci. and Technol., Vol. 19, No. 2, p. 151-157, 1982
- (4). M.Cherdron, S.Jordan, and W.Lindner, "Sodium fire Particles-chemical transformation and properties," Liquid metal enginnering and technology, p.287-290, 1984

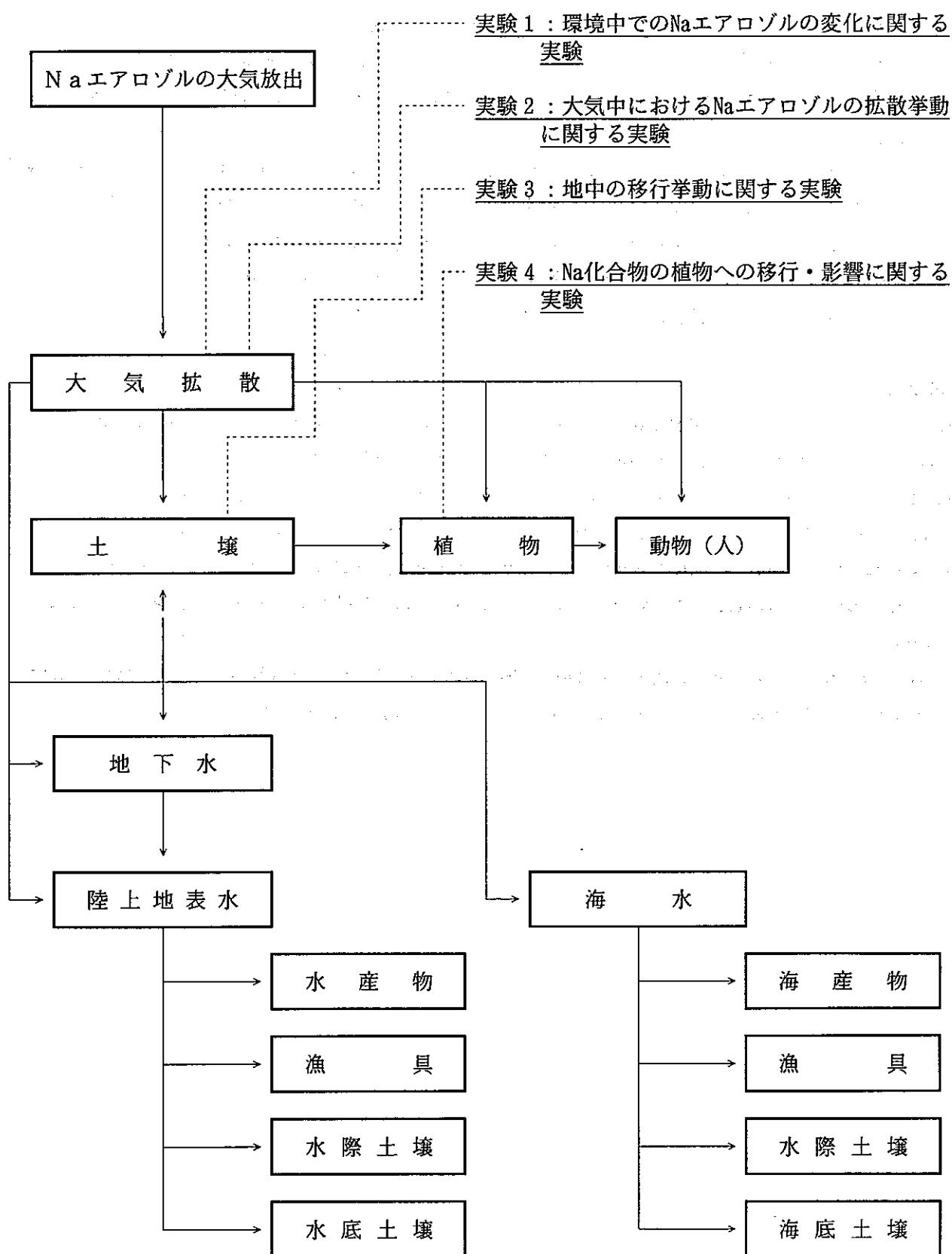


図-1 ナトリウムエアロゾルの移行経路と実験項目

湖沼系における放射性核種の挙動研究

平成5年度～平成7年度

大洗・安全管理部・安全対策課 武石 稔

圓尾 好宏

I. 研究の概要

大気からの放射性核種の降下量が増大するなどの緊急時には、湖沼系に限らず広範囲にわたる環境試料中の放射性核種の分析・測定と時間的、空間的な変動の把握が重要となる。また、その際、降雨等の気象条件等を考慮した連続的なモニタリングを実施することが望ましいが、環境試料の分析には多くの時間を必要とする（特に、 α 線放出核種や純 β 線放出核種は分析に数週間を要する）ため、その実施は困難である。このため、核種の変動を予測し適切な時期にモニタリングを実施することにより環境試料中の実際の核種濃度の変動を把握することが重要となる。特に、湖沼系は流域に沈着した物質をその閉鎖性に応じて集積する傾向があるので、湖沼環境試料中の放射性物質濃度はその周囲の環境に比べ相対的に高くなる可能性があり重要である。

本研究は、原子力施設災害時の放射性物質異常放出に伴う湖沼環境試料中の放射性物質濃度を予測するため湖沼系における放射性核種の動的移行モデルを開発することを目的とするものである。過去の大気圏内核実験や Chernobyl 原子力発電所事故時の実湖沼環境における、主として ^{137}Cs 等のフォールアウト核種の移行挙動を観測し、この観測データに基づき動的移行モデルを研究した。対象とした湖沼は、茨城県中部太平洋沿岸に位置する汽水湖（湖面積9.35km²）の涸沼（ひぬま）である。モデル開発は、①涸沼での実環境調査及び国内外の文献調査、②モデル基本構造の検討、③それを受けたモデルの計算コード化、及び④コードを用いた検討計算を実施した。

II. 研究成果

1. 涸沼における実湖沼環境調査

Chernobyl 原子力発電所事故の経年変動の把握を目的として、涸沼において湖底堆積物、湖沼生息魚介類中の放射性核種の分析等の調査を、1990年を除く1986年8月から毎年、1995年まで実施した。試料採取場所を図-1に示す。

湖水中の ^{137}Cs 濃度は検出限界（約2 Bq/m³）未満であった。これに対して、湖水中の ^{90}Sr は、4~7 Bq/m³ の濃度分布を示した（図-2）。湖水中の放射性核種濃度は湖水の流動状況により変化するので、その変動原因を特定することは難しいが、図-2から上流部から中央部にかけて濃度が高く下流側が低い傾向にあるように見える。また、1987年、1988年において上流、中央部の ^{90}Sr の濃度分布が異なっているにもかかわらず下流部側の濃度分布が近似している。これは、下流部側の流路幅が狭く流動状況が類似している等により濃度分布を近似させているものと考えられる。

^{90}Sr と ^{137}Cs の陸上土壤中濃度は、ほぼ同レベルであることが知られている。また、海水中の両者の濃度も、 ^{90}Sr と ^{137}Cs は、大洗沿岸海水中で両者ともに2~4 Bq/m³ と同レベルであった。湖水中の ^{137}Cs 濃度は通常の供試量を用いる分析では検出限界未満であり極めて低い濃度であったが、多量の湖水を処理して得た湖水中 ^{137}Cs 濃度の分布を図-3に示す。また、湖水中の浮遊

固体物質(SS)濃度(図-4)及び塩素量の分布(図-5)を示す。三者を比較すると¹³⁷Cs濃度の分布は、表層部が下流側にいくほど高くなるのに対して、底層部は中央部が高くなるというSS濃度の分布に近く、湖水中¹³⁷Csの大部分がSSに吸着していることが示唆された。また、図-6に湖底堆積物中の⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、²³⁹、²⁴⁰Pu濃度の経年変化を示す。¹³⁷Csと²³⁹、²⁴⁰Puは変動傾向が近似しているのに対して⁹⁰Srは異なっていた。⁹⁰Sr及び²³⁹、²⁴⁰Pu濃度と¹³⁷Cs濃度の相関をとると図-7に示すとおり²³⁹、²⁴⁰Pu濃度と¹³⁷Cs濃度は良い相関を示した。これらのことから湖水中の⁹⁰Srは湖水に溶解し易く、¹³⁷Cs、²³⁹、²⁴⁰Puは不溶解性で固体物質に吸着していると考えられた。

湖底堆積物中の¹³⁷Cs濃度の涸沼各水域における経年変化を降雨量とともに図-8に示す。1991年の極めて降雨が多かった翌年の1992年の涸沼大橋における¹³⁷Cs濃度は増加し、下流部(B)が減少していることが分かる。この他、各年の水域毎の濃度変動を降雨量との関係で詳細に解析した結果(動燃技報No.97,82(1996)参照)、¹³⁷Csは降雨時に流域から涸沼上流部に供給され中央部、下流部に移行していくと考えられた。また、降雨時には湖水の流出量も増加するので下流部での湖底からの¹³⁷Csの再浮遊が活発となり、湖沼からの排出も促進される。この結果、降雨は涸沼への¹³⁷Csの流入と流出を同時に起こさせることができた。このため大気からのフォールアウト核種¹³⁷Csの降下量が減少した現在の涸沼中央部での濃度は、ほぼ一定で平衡状態にあると考えられた。

2. モデル開発結果

(1) 移行モデルの構築

本移行モデルは、緊急時環境モニタリングの実施に当たっての採取量、頻度等の計画立案及び測定値の評価を支援することを目標の一つとしている。将来的には α 線核種等分析に時間を要する核種について、環境モニタリングを補完することを目標とする。この観点から、降雨等短期的な影響が大きい環境因子については考慮するが取扱を容易にすることを念頭に置いて、水域内の3次元流動等の微細構造は避け、本モデルをコンパートメントモデルで構築することとした。しかし、モデルの簡易化は、空間及び時間精度の低下をもたらすと予想される。これができる限り軽減するため、実際の湖沼の観測結果から重要性の高い環境因子の選択とパラメータの決定を行うように努めた。

涸沼の流域は水田等の耕作地と台地で全体として平坦な地形といえる。上流側に砂州があり一部くびれているが、中央部は比較的単純な形状を有する。下流部は湖沼がロート状に徐々に狭まり流出河川となる。このような地理的条件に基づき湖水及び堆積物を上流部、中央部、下流部に区分した。なお、涸沼全域は下流部の一部を除き水深は2~3mと浅く、表層水と底層水で夏期に水温の差も観測されず混合が十分であると推察されたため、湖水については深度方向には区分しないことにした。一方、堆積物は、湖水の流動の影響を受けやすい表層と受けにくい深層の2つのコンパートメントに区分した。なお、流域は單一コンパートメントで表した。コンパートメント間の核種の移行速度定数は、①流域及び湖面への直接沈着、②流域からの流達、③流域土壤中の放射性崩壊、④流域土壤から深層への地中移行、⑤湖水中の沈降、⑥湖水中での放射性崩壊、⑦堆積物から湖水への再浮遊及び掃流、⑧堆積物中の放射性崩壊、⑨表層堆積物から深層への地中移行、⑩海の干満に伴う湖水の流出及び逆流(以下、遡上流という)、等を考慮して定めた。また、魚類中核種については、摂取経路をエラ及び経口に、排泄過程を短期成分と長期成分に区分して表した。

以上の点を考慮し図-9に示すコンパートメント間の収支を次式に示す。

$$(dS_f/dt) = r_f A_{eff} - f_d S_f - \lambda_{R1} S_f - \lambda_{R2} S_f \quad (①\text{流域土壤中のCs-137の収支})$$

$$(dL_{(i)}/dt) = r_f A_{(i)} + f_d S_f - k_e(i, i+1) - Psd_{(i)} + Esd_{(i)} - \lambda L_{(i)} \quad (②\text{湖水 } i \text{ 水域のCs-137の収支})$$

$$(f_d(i \neq 1) = 0) \quad (③\text{表層湖底堆積物 } i \text{ のCs-137の収支})$$

$$(dS_{dL(i)}/dt) = Psd_{(i)} - Esd_{(i)} + q_{B(i-1, 1)} - q_{B(i, 1+1)} - \lambda_{R2} S_{dL(i)} - \lambda S_{dL(i)} \quad (④\text{深層湖底堆積物 } i \text{ のCs-137の収支})$$

$$(dF_{fish}/dt) = U_f + R_p - E_{f1} - E_{f2} - \lambda F_{fish} \quad (⑤\text{魚中のCs-137の収支})$$

ここで、各記号の意味は以下のとおりである。

A_{eff} : 有効流域面積(km^2)

$A_{(i)}$: 流水域*i*の面積(km^2)

$Esd_{(i)}$: 湖底*i*からの再浮遊フラックス(Bq/y)

f_d : Cs-137の流達係数(1/y)

$k_e(i, i+1)$: Cs-137の湖水*i*から*i+1*への移行フラックス(Bq/y)

$L_{(i)}$: 湖水*i*のCs-137量(Bq)

$Psd_{(i)}$: 流水域*i*からのCs-137の湖底沈着フラックス(Bq/y)

$q_{B(i-1, 1)}, q_{B(i, 1+1)}$: Cs-137の堆積物*i*から*i+1*及び*i-1*から*i*への掃流フラックス(Bq/y)

r_f : Cs-137の年降下量(Bq/ km^2 /y)

S_f : 流域のCs-137の量(Bq)

$S_{dL(i)}, S_{dD(i)}$: 表層及び深層湖底堆積物*i*のCs-137量

λ : Cs-137の崩壊定数(1/y)

λ_{R1} : 流域土壤の地中移行定数(1/y)

λ_{R2} : 表層堆積物の地中移行定数(1/y)

U_f : 魚体のCs-137の経口移行フラックス(Bq/y)

R_p : 魚体のCs-137のエラ移行フラックス(Bq/y)

E_{f1}, E_{f2} : Cs-137の魚体からの短期及び長期排泄フラックス(Bq/y)

F_{fish} : 魚体中Cs-137量(Bq)

(2) モデル基本構造の検討

① 流域からの放射性核種の流入

流域から湖沼への放射性核種の流達係数(f_d)を汚濁物質の流達に関する $f_d = kc \cdot Q^b$ 式

(Q : 流域からの流入水量, kc, b : 比例換算定数)で, Q をピーク流出に関する「合理式」で表した。また、流域から湖沼への流達は、流入河川の長さに依存した湖沼到達時間の遅れを考慮した。

② 湖水中放射性核種の不溶解性成分の湖底への沈降

湖水中放射性核種の不溶解性成分の湖底沈降は、浮遊固体物質(SS)の湖底沈降に関する式を参考に $Psdss = Cw \cdot Vl \cdot Rss \cdot Vg/z$

($Psdss$: 放射性核種の湖底沈着フラックス, Cw : 湖水中放射性核種濃度, Vl : 湖沼体積,

Rss : 不溶解性成分核種濃度の全濃度に対する比, Vg : 沈降速度, z : 水深)で表した。

③ 底泥の舞い上がりに伴う放射性核種の不溶解性成分の再浮遊

湖沼湖底は、黒色の極めて微細な底泥が堆積している。そこで、湖底からの放射性核種の

不溶解性成分の再浮遊は、底泥の舞い上がりに関する式を参考に

$$E_{sd} = C_{sd1} \cdot A \cdot a_1 \{(\tau b / \tau ce) - 1\}^{br}$$

(E_{sd} : 放射性核種の舞い上がりフラックス, C_{sd1} : 湖底堆積物中放射性核種濃度, A : 湖底面積, a_1 : 単位面積当たりの舞い上がり速度, τb : 流れが底面に及ぼす剪断力, τce : 限界掃流力, br : 係数) で表した。また、底泥の1回の舞い上がりは発生から1時間程度で収束することが知られているので再浮遊継続時間を任意に設定できるようにした。

(3) 計算コードの構築及びモデルの検討計算

上記(2)の①～③を構築したモデルに組み込み、降雨強度、 b, Vg, a_1 等のパラメータを変動させ、湖水中 ^{137}Cs 濃度の変動を解析し、モデルの応答特性を検討した。

① 降雨時における流域からの放射性核種の流入

湖水中濃度がほぼ一定に推移するように ^{137}Cs の日降下量を一定($5 \times 10^5 \text{ Bq}/\text{km}^2$)に設定し、ほぼ安定した計算開始30日後に200mm/dの降雨を発生させた。その時の湖沼各位置における湖水中 ^{137}Cs 濃度の変動を図-10に示す。降雨中は、湖面への直接降水の影響で濃度が一次的に低下するが、その後流域から湖沼への流入により、特に上流部での濃度が上昇した。また、流域からの流達式 $fd = kc Q^b$ の b 値を1.0～3.0に変化させ、1986年3月から10月までの ^{137}Cs の日降下量及び日降雨強度(R24)の観測値を入力し湖水中 ^{137}Cs の全平均濃度(C_{wt})を計算した。その結果を図-11に示す。198mm/dの降雨が観測された8月1日には b 値が大きいほど流域からの流達量が増え湖水中 ^{137}Cs 濃度が上昇した。これらの解析から流域から湖沼への移行に及ぼす降雨の効果がモデル上に表現できることが分かった。

② 湖水中の不溶解性放射性核種の湖底への沈降

湖底への不溶解性放射性核種の沈降速度(Vg)を変化させ、1986年3月から10月までの ^{137}Cs の日降下量及び日降雨強度(R24)の観測値を入力し C_{wt} を計算した。その結果を図-12に示す。 C_{wt} は、 Vg が小さくなる程高くなった。特に、 Vg が小さいほど濃度上昇後の減少に時間が掛る傾向等が表現できた。

③ 底泥の舞い上がりに伴う不溶解性放射性核種の再浮遊

^{137}Cs の日降下量を一定($5 \times 10^5 \text{ Bq}/\text{km}^2$)とし、計算開始30日目に200mm/dの降雨を発生させ単位面積当たりの底泥舞い上がり速度(a_1)を変化させたときの下流部湖水中 ^{137}Cs (C_{w3})の変動を計算した。計算結果を図-13に示す。 a_1 が $0.0018 \text{ g}/\text{m}^2/\text{s}$ 及び $0.018 \text{ g}/\text{m}^2/\text{s}$ では、降雨に伴う C_{w3} の上昇は見られず逆に降雨による希釈効果により濃度が低下した。 $0.18 \text{ g}/\text{m}^2/\text{s}$ では、湖面降水と流域からの流入の両者に起因する湖水流量率の増加に伴う C_{w3} の二度の上昇が計算された。この二度目の上昇は、流域に降った雨水が湖沼に到達するまでの時間的遅れによるものと考えられる。

3. 結言

湖沼環境試料中の放射性核種濃度の予測モデルを構築するため、湖沼水、湖底堆積物等中のフォールアウト核種の放射能水準、流域の降雨量等の実湖沼環境調査を実施し、核種移行関係するパラメータの種類及びその特性について評価・検討した。この結果に基づき、モデルの構築については、降雨の影響について、(1)流域からの放射性核種の流入、(2)湖水中の放射性核種の不溶解性成分の湖底への沈降、(3)底泥の舞い上がりに伴う不溶解性成分の再浮遊等について検討し、降雨時に想定される湖水中濃度の変動を表現できるモデルの基本的な構造がほぼ確定した。

主要レポート

- (1) 武石, 中島, 篠原; 湖沼系におけるフォールアウト核種の挙動に関する調査(Ⅱ),
日本保健物理学会28回研究発表会要旨集, 20(1993)
- (2) 武石, 川村, 中島; 潤沼におけるフォールアウト核種の移行挙動研究(Ⅰ),
保健物理, 28, 283~289(1993)
- (3) 武石, 中島, 篠原; 湖沼系におけるフォールアウト核種の挙動に関する調査(Ⅱ),
PNC TN9410 93-073(1993)
- (4) 武石, 佐藤, 篠原; 湖底堆積物吸着放射性核種の再浮遊に係る研究,
日本保健物理学会29回研究発表会要旨集, 19(1994)
- (5) 武石, 佐藤, 篠原; 湖底堆積物吸着放射性核種の再浮遊に係る研究,
PNC TN9410 94-075(1994)
- (6) 武石, 篠原; 湖沼系におけるフォールアウト核種の動的移行モデルに関する研究,
日本保健物理学会30回研究発表会要旨集, 92(1995)
- (7) 武石, 篠原, 中島; 湖沼系におけるフォールアウト核種の動的移行モデルに関する研究,
保健物理(投稿中, 1995)
- (8) 武石, 篠原; 湖沼系におけるフォールアウト核種の動的移行モデルに関する研究,
PNC TN9410 95-053(1995)
- (9) 武石, 篠原, 中島; 湖沼系におけるフォールアウト核種の動的移行モデルに関する研究,
PNC TN9410 95-174(1995)
- (10) 武石, 中島, 渡辺; 潤沼におけるフォールアウト核種の移行挙動研究,
PNC TN9410 96-001(1996)
- (11) 武石, 中島, 渡辺; 潤沼におけるフォールアウト核種の移行挙動研究,
動燃技報, No.97, 82~86(1996)

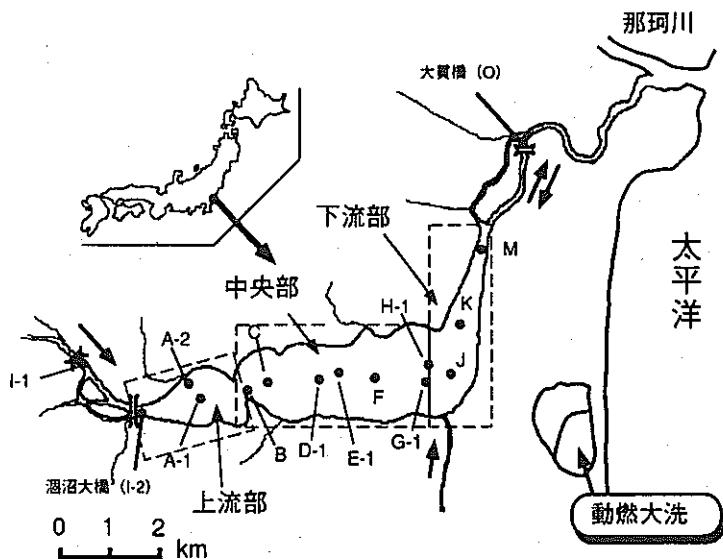


図-1 潟沼の形状及び湖底堆積物採取地点

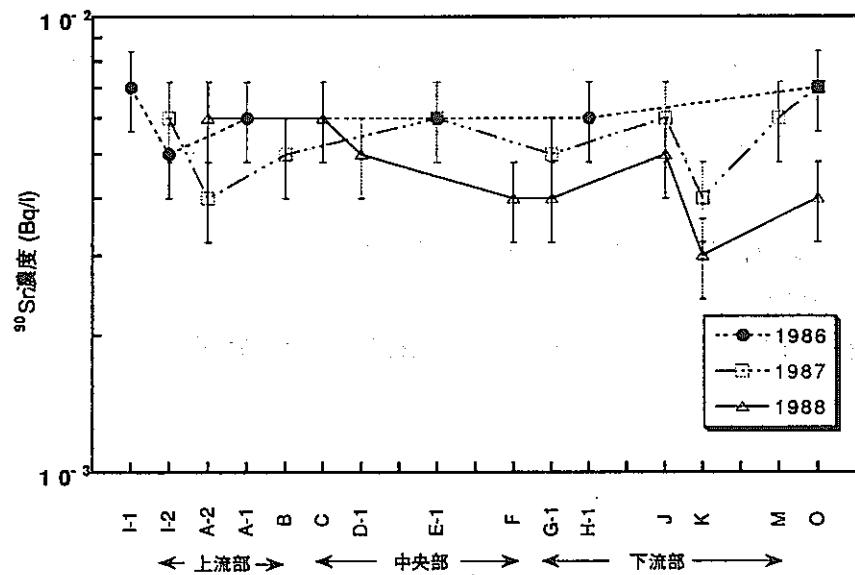


図-2 湖水中⁹⁰Sr濃度分布測定結果

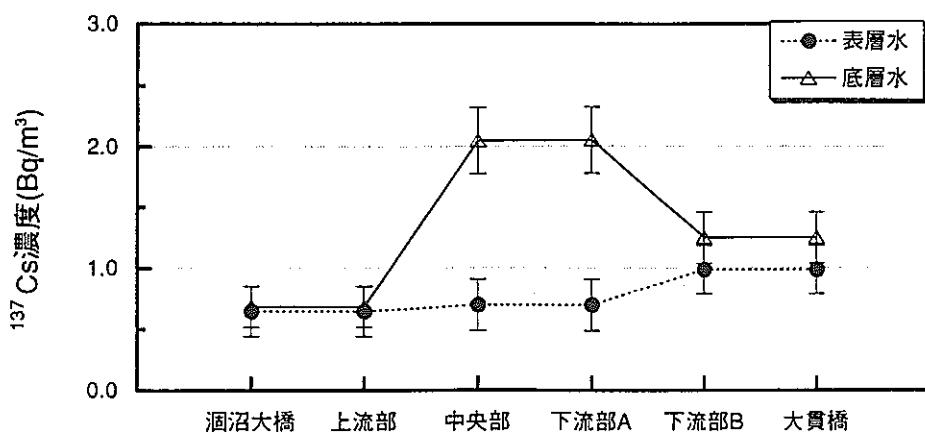


図-3 湖水中¹³⁷Cs濃度分布測定結果（1992年）

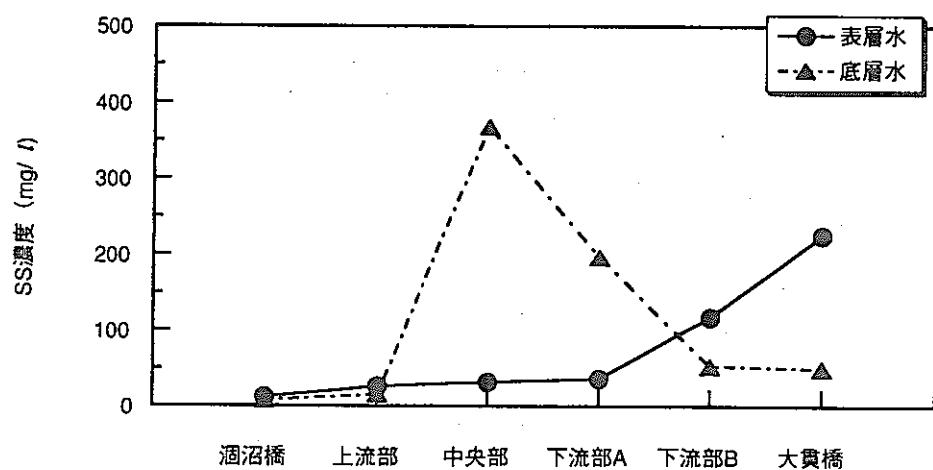


図-4 湖水中浮遊固体物質（SS）濃度の測定結果

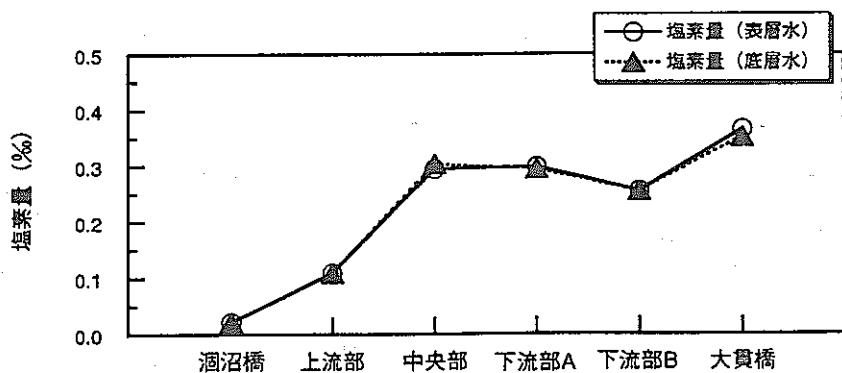


図-5 湖水中塩素量の分布

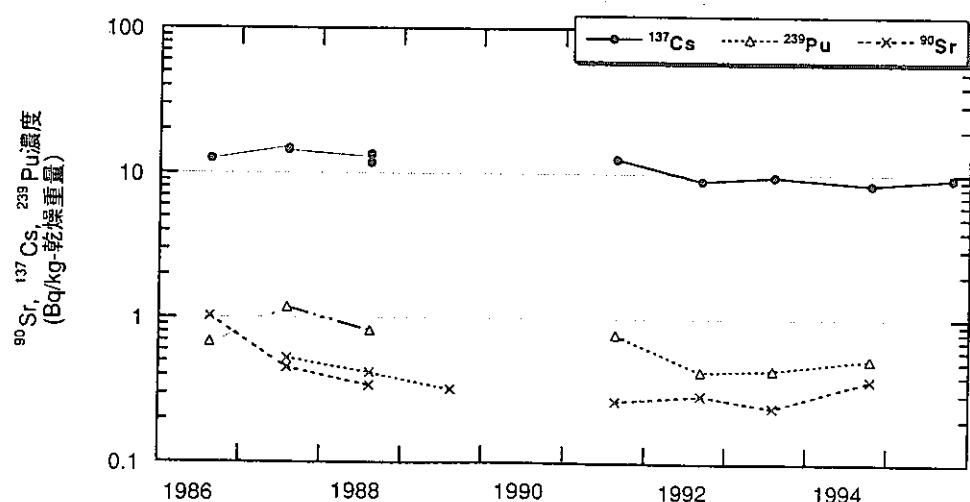


図-6 堆積物中 ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の推移

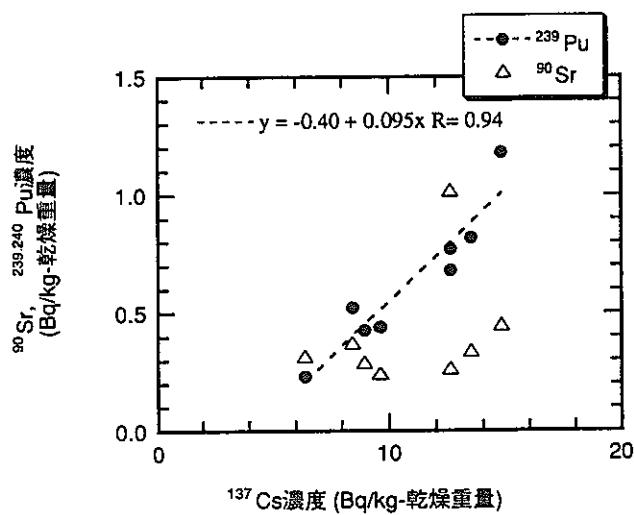


図-7 潟沼湖底堆積物中の ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度と ^{137}Cs 濃度との関係
(1986年～1994年)

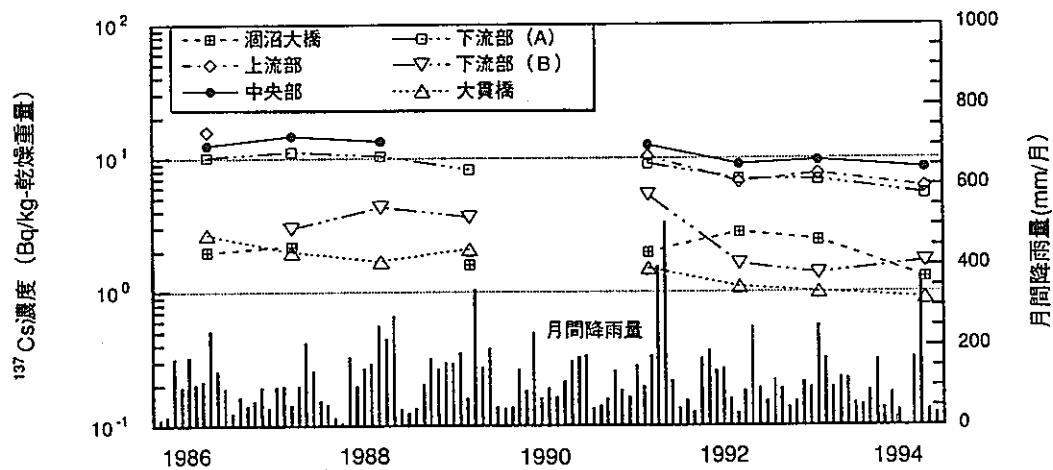


図-8 潟沼湖底堆積物中の ^{137}Cs 濃度の推移

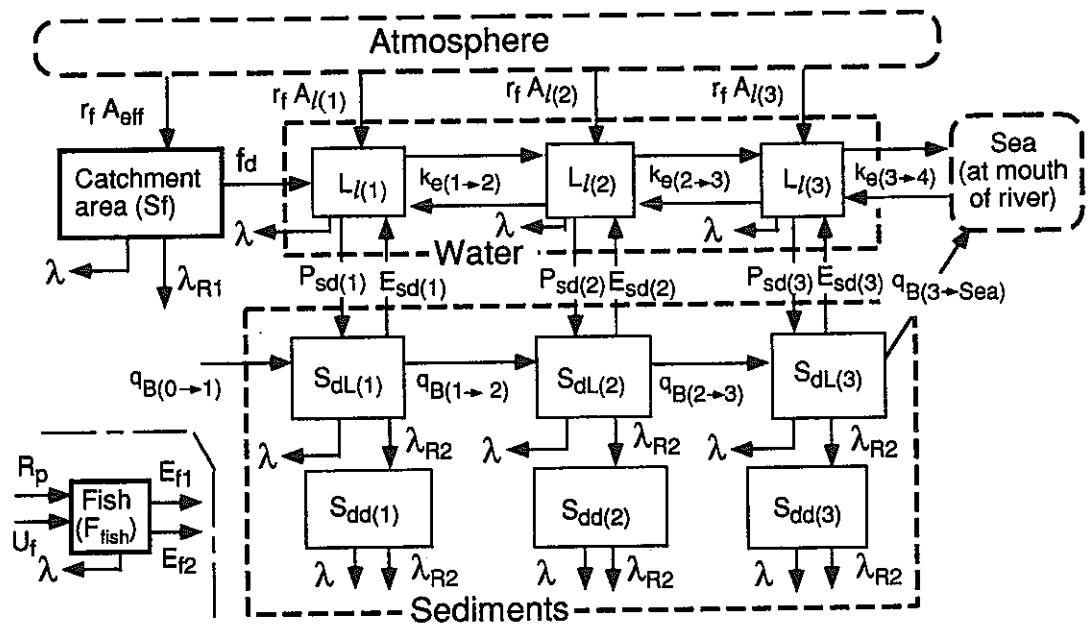


図-9 フォールアウト核種の移行モデル

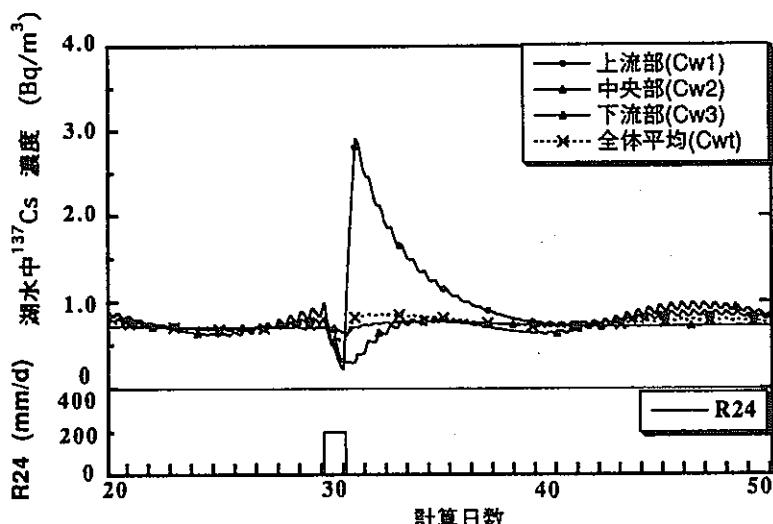


図-10 降雨強度(R24)が湖水中 ^{137}Cs 濃度に及ぼす影響

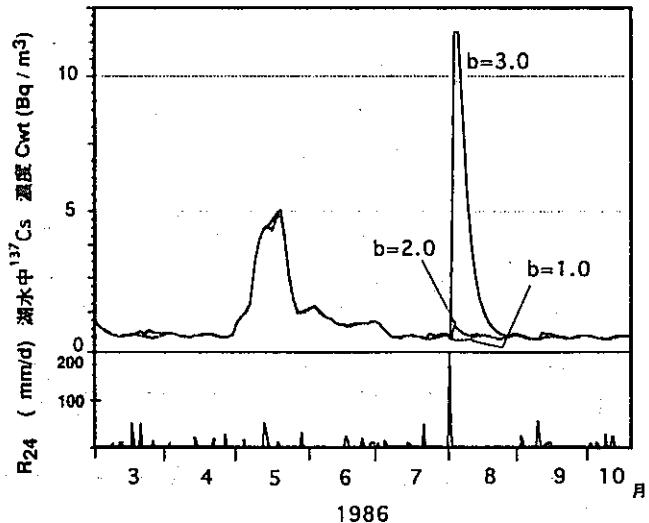


図-11 流域からの流達式 ($fd = kcQ^b$) における b が
湖水中 ^{137}Cs 濃度に及ぼす影響

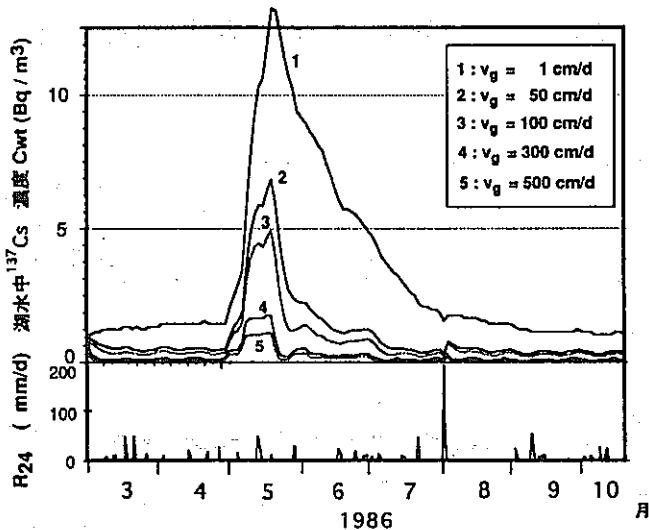


図-12 湖水中不溶解性 ^{137}Cs の沈降速度(v_g)が
湖水中 ^{137}Cs 濃度に及ぼす影響

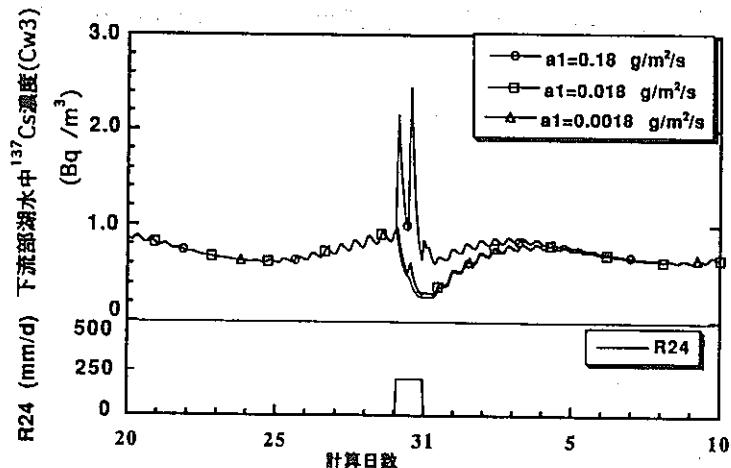


図-13 底泥の巻き上げ速度(a_1)が下流部湖水中 ^{137}Cs 濃度に及ぼす影響

環2-1

環境中ラドン濃度の測定及び評価手法の確立に関する研究

平成3年度～平成7年度

人形・安全管理課 中島裕治、古田定昭
伊藤公雄、石森有

I. 研究の概要

本研究は、環境中Rn-222（以下ラドン）の挙動解析を目的とし、環境中のラドン濃度測定、評価手法の確立に関するものである。内容としては、測定器の校正手法に関する研究、捨石堆積場から発生するラドンの影響評価上必要となる各種パラメータの測定技術・手法に関する研究及び挙動評価に関する研究として、拡散評価手法の検討と人形峠事業所周辺での静電捕集型測定器による大気中ラドン濃度測定を行った。

1. 校正手法に関する研究としては、平成2年度に基本ループを製作したラドン基準校正設備に温度・湿度をコントロールするための空調設備を設置し、ラドン測定器に対し種々の試験を行うことが可能なものとした。また、本設備により、静電捕集型ラドン測定器の校正試験を行い、測定器校正を定常化・マニュアル化した⁽²⁾。また、国内外で実施されるラドンに関する比較較正実験に参加し、測定値の信頼性向上に努めた^(4, 11)。
2. 測定技術の開発に関する研究としては、屋外のラドンのはほとんどは土壤から散逸・拡散したものであり、ラドン散逸量は発生源情報としてその影響を評価する場合重要であるため、ラドン散逸量自動測定装置を開発した⁽⁸⁾。また、ラドンは短半減期の娘核種（Po-218, Pb-214, Bi-214（Po-214）、以下ラドン娘核種とする）をもち、被ばく評価上はラドン娘核種が重要といわれている。このため、ラドン娘核種連続測定器、ラドン娘核種粒径分布測定器を開発した^(7, 9)。
3. 挙動評価に関する研究としては、簡易モデルによる捨石堆積場ラドン拡散評価を行い、敷地境界外で1mSv/年以下であることが推定された。模擬ガスによる拡散実験を実施し、堆積場寄与分の推定を試みた。また、人形峠事業所周辺での大気中ラドン濃度の測定を継続して実施し、この地域が従来の国内平均値と比較してラドン濃度が高い地域であること、季節変動としては夏期に高い傾向があることがわかった。地形・地質の影響により特異的に高い濃度を示す地区も確認した⁽¹⁾。

II. 研究成果

1. ラドン校正手法の開発

(1) ラドン濃度基準校正設備

図-1及び表-1にラドン濃度基準校正設備の外観と主な仕様を示す。本設備はチェンバ本体とプロアを含めたガスループ系及び空調設備から構成されている。チェンバ本体は、内容積が約7.5 m³の円筒横置型で多数の測定器を同時に校正するのに充分な容積をもっている。チェンバの漏洩率は0.1vol%/h以下であり、ラドンの半減期に比べて無視できる。チェンバ内のラドン濃度分布を測定したところ、±10%以内であり、測定誤差を考慮すると、ラドン濃度は均一になっていると考えられる。温度、湿度についても安定した場が得られていることを確認した。また、人

形峠事業所は海拔約700 mに位置しているため、大気圧が10%程度低い（約700mmHg）。空気中の α 線の飛程を利用したラドン測定器では大気圧の影響を受けることもあり得るため、1気圧まで加圧できる構造とした⁽¹⁾。

(2) 静電捕集型ラドン測定器の校正

現在、人形峠事業所では主として静電捕集型ラドン測定器を用いてラドン測定を実施しており、その校正方法について検討した。校正は、基本的にはラドン基準校正設備本体チャンバ内に被校正器をセットし、一定量のラドンを封入した後、1気圧に加圧して一定期間密封・放置して行うが、通常の測定では1～3カ月の長期間に渡る測定を短期間で校正するために検討する点が多い。使用している静電捕集型測定器は、自然換気でラドンを測定器内に導いているが、その換気率は、0.75 h⁻¹であり、ラドンの崩壊による減衰（崩壊定数：0.0075 h⁻¹）は無視でき、ラドン濃度は測定器内外でほぼ一致しているとみなすことができる。一方、本測定器は、測定器内で生成したラドン娘核種を静電場により捕集して測定するもので、その捕集効率は測定器内の湿度、エアロゾル濃度に依存しているが、測定開始直後は測定器内の除湿が不十分で、かつ、エアロゾルも測定器内に浮遊していると考えられ、一時的に捕集効率が低下していると考えられる。以上のことから、一時的な捕集効率の低下が無視できる4～5日間で校正を実施するものとした。なお、校正中は定期的にチャンバ内のラドン濃度をガス封入型電離箱（以下、電離箱）によって測定し、値付けの基準とする。

(3) 他機関との比較較正実験

近年、ラドンについては様々な大学等の研究機関で研究されているが、国内にはラドン測定の標準が存在しないことから、同時比較測定を行ってデータの信頼性を確保している。平成7年11月には米国環境測定研究所（EML）で比較較正実験が実施された。図-2に結果の一部を示す。

EMLは過去にOECD/NEAが主体となって実施した「ラドン国際相互比較」⁽¹²⁾の際に基準機関のひとつとして選ばれており、今回の実験ではEMLを基準として日本国内の機関と比較検討した。図-2(a)には電離箱あるいはシンチレーションセルによるラドン濃度のサンプリング測定結果を示す。我が国はEMLと比較してやや低い傾向が見られたが、その差はわずかであった。人形峠事業所は標準測定器として利用している電離箱で参加し、EMLおよび国内他機関と5%以内でよく一致している。また、同図(b)には静電捕集型ラドン測定器のような積分測定によるラドン濃度測定結果を示す。電離箱による測定結果と同様、人形峠事業所のデータはよく一致している。このような比較較正実験は、国内でもたびたび実施されており、人形峠事業所も、積極的に参加し、測定値の信頼性の確保・向上を図ってきた⁽²⁾。

2. 測定技術の開発

(1) ラドン娘核種の連続測定

ラドンによる被ばく評価上、重要なのはラドンそのものではなくラドン娘核種であり、大気中のラドン娘核種の挙動を把握するため、ラドン娘核種連続測定器を製作した。図-3に測定器のブロック図を示す。ロール式フィルタにより1時間毎にラドン娘核種をサンプリングし、サンプリング後、サンプラー部を真空にしてシリコン半導体検出器により α 線スペクトル測定を行う。また、低濃度まで測定するため、サンプリング流量を80 l/minとした。これらの動作は全て制御され、測定データも保存される^(6, 7)。図-4に測定例として1週間の平衡等価ラドン濃度^{*1}の測定結果を示す。このように夜間濃度が上昇し、昼間低下する日変動、1日毎の濃度変化が測定できるようになった。

*1 平衡等価ラドン濃度：各娘核種がPb-210に崩壊するまでに放出する α 線エネルギーをポテンシャル α エネルギー(PAE)と定義し、PAEで表したラドン娘核種濃度をポテンシャル α エネルギー濃度(PAEC)とする。測定されたPAECがラドンとラドン娘核種が放射平衡にある場合のPAECに等しい場合のラドン濃度を平衡等価ラドン濃度と定義する。実際には、個別のラドン娘核種濃度にPAEで重み付けした定数を乗じた後、合計して平衡等価ラドン濃度を求めている。

(2)ラドン散逸量の自動測定

屋外大気中のラドンは、そのほとんどが地面から散逸したものであり、ラドン散逸量（単位時間、単位面積当たりに発生するラドン量）は発生源情報として重要である。従来より、サンプリング測定によりデータの蓄積を図っているが、サンプリング測定では、雨の降っていない昼間のデータに限られていた。このため、ラドン散逸量を自動的に測定し、その日変動、季節変動等を把握するため、自動測定装置を開発した。図-5に測定装置のブロック図を示す。ラドン蓄積容器（ハット）を6時間毎に測定地表面にかぶせ、30分間地表面から散逸するラドンを蓄積した後、ハット内のラドンをシンチレーションセルにサンプリングする。ラドンとその娘核種が放射平衡に達する2.5時間後にシンチレーションセルを測定し、ラドン散逸量を求める。これらの動作は全て制御され、測定データも保存される⁽⁸⁾。図-6に測定例として2週間のラドン散逸量の測定結果を示す。このように、降雨によりラドン散逸量が急減し、降雨終了後徐々に降雨前のレベルに復帰していく様子が測定できるようになった。

(3)ラドン娘核種粒径分布の測定

ラドン娘核種は、生成直後には単体の金属粒子であるが、大気中のエアロゾル（大気中に浮遊しているダスト、塵等の総称）に付着して、ラドン娘核種エアロゾルとして大気中に存在している。このラドン娘核種エアロゾルの粒径分布は、肺への被ばく評価、大気中での挙動評価等の際に重要なパラメータとなる。このため、屋外で使用可能な可搬型の測定器を試作した。図-7に測定器のブロック図を示す。スクリーンメッシュ型の拡散バッテリー方式で、サンプリングと同時に α 線測定が可能なオンライン型とし、検出器にはシリコン半導体検出器を採用した。メッシュ枚数の異なる7種の拡散バッテリーにより拡散バッテリーの透過率を測定し、その測定結果から逐次近似法によりラドン娘核種粒径分布を求めることができる⁽⁹⁾。

3. 大気中ラドンの挙動評価

ラドンは自然界に広く分布する天然放射性核種のひとつであるため、施設影響という観点から捨石堆積場からのラドンの影響評価には、計算による拡散評価が有効である。また、捨石堆積場周辺と対照地域でのラドン濃度と計算による拡散評価結果と比較検討することも重要である。計算と実測による結果を検討して、捨石堆積場の影響をより正確に評価する手法を確立することを目的としている。

(1)簡易モデルによる拡散評価と模擬ガスによる拡散実験

捨石堆積場のラドン拡散評価について、堆積場をメッシュに区切り、各メッシュの中心からラドンが発生するとモデル化して、汎用のブルームモデル、パフモデルを用いて評価した。その結果、敷地境界で1mSv/年以下であることが推定された。また、方面堆積場をモデル堆積場として、堆積場から模擬ガス(SF₆)を発生させ、堆積場から発生するラドンの寄与分の推定を試みた。その結果、方面堆積場の敷地境界付近で、夜間から早朝にかけての山風発生時で、早朝の拡散状況

の悪い時期でラドン濃度9.6Bq/m³、平衡等価濃度1.6Bq/m³と推定された。この状態が仮に1年間継続したとしても、被ばく線量当量は0.18mSv/年であり、前述の1mSv/年以下を裏付ける結果が得られた。今後、これらの拡散実験で得られたデータをもとに地形及びバックグラウンドのラドンを考慮した高度な拡散評価モデルを検討する。

(2)人形峠事業所周辺のラドン濃度

静電捕集型ラドン測定器により人形峠事業所周辺のラドン濃度を測定している。表-2に平成3年度から7年度までの各年度の平均値と5年間の平均値を示す。この5年間では、平成4、5年度にやや濃度が低くなっているが、平均ラドン濃度は、倉吉市菅原を除いて、10~20Bq/m³であることがわかる。この値は、放射線医学総合研究所が実施した国内のラドン濃度調査⁽¹³⁾で得られた全国平均値である5Bq/m³よりも高く、人形峠周辺に広がる花崗岩地質によるものと考えられる。同表にあるように、倉吉市菅原では、平均で47Bq/m³という他地区と比較してやや高いラドン濃度が観測された。この測定点の近傍で測定点を追加して測定したところ、表-3に示すように、民家が点在する谷筋では比較的ラドン濃度が低く30~50Bq/m³であるのに対して、狭い枝沢や山林中のラドン濃度は60Bq/m³以上に高くなる傾向がみられる。菅原地区では、地質的な影響と周辺の地形・植生が相互に影響して高いラドン濃度が出現していると考えられる⁽³⁾。

4.まとめ

- (1) ラドン基準校正設備に温度・湿度をコントロールするための空調設備を設置し、ラドン測定器の種々の試験を行うことが可能なものとした。また、本設備により、静電捕集型ラドン測定器の校正試験を行い、測定器校正を定常化・マニュアル化した。また、国内外で実施されるラドンに関する比較較正実験に参加し、測定値の信頼性向上に努めた。
- (2) ラドン散逸量は発生源情報としてその影響を評価する場合重要であり、ラドン散逸量自動測定装置を開発した。また、被ばく評価上はラドン娘核種が重要であるため、ラドン娘核種連続測定器、ラドン娘核種粒径分布測定器を開発した。
- (3) 簡易モデルによる捨石堆積場ラドン拡散評価を行い、敷地境界外で1mSv/年以下であることが推定された。模擬ガスによる拡散実験を実施し、堆積場寄与分の推定を試みた。また、人形峠事業所周辺での大気中ラドン濃度の測定を継続して実施し、この地域が従来の国内平均値と比較してラドン濃度が高い地域であること、季節変動としては夏期に高い傾向があることがわかった。地形・地質の影響により特異的に高い濃度を示す地区も確認した。

主要レポート

- (1) 古田、伊藤、松尾、「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」放射線防護技術特集 動燃技報 No.81(1992.3)
- (2) 伊藤、古田、松尾、「ラドン校正設備の製作」日本保健物理学会第27回研究発表会(1992.6)
- (3) 古田、伊藤、松尾、「人形峠周辺におけるラドン濃度」日本保健物理学会第27回研究発表会(1992.6)
- (4) 古田、「国際放射線防護ワークショップおよびラドン娘核種比較測定に参加して」日本保健物理学会誌, 28, 93 ~ 95 (1993)
- (5) 伊藤、「保健物理シンポジウム「ラドンの健康影響について」に参加して」日本保健物理学会誌, 28, 459~460(1993)

- (6) 伊藤、古田、石森、鹿志村、「ラドン娘核種連続測定器の開発」日本保健物理学会第29回研究発表会(1994.5)
- (7) 古田、石森、伊藤、「ラドン娘核種連続測定器の開発」動燃技報No.93 (1995.3)
- (8) 石森、伊藤、古田、「ラドン散逸量自動測定装置の開発」日本保健物理学会第31回研究発表会(1996.5)
- (9) 伊藤、古田、中島、「ラドン娘核種粒径分布の測定」動燃技報 No.98(1996.6)
- (10) F.Steinhausler, K.Ito, et al, 「On the validity of past radon-exposure reconstruction: person exposure- vs. dwelling exposure-assessment」 6th Int. Symp. on Natural Radiation Environment
- (11) ラドン較正グループ(黒沢、下、飯田、山崎、古田、他)「EMLにおけるラドン較正実験(1)~(4)」日本保健物理学会第31回研究発表会(1996.5)

参考文献

- (12) OECD/NEA「International Intercalibration and Intercomparison of Radon, Thoron and Daughters Measuring Equipment Part 1 Radon Measurement」(1986)
- (13) 阿部、他「屋内・外のラドン等の全国測定」放医研環境セミナーシリーズNo.15 「生活環境におけるラドン濃度とそのリスク」 pp.79-88 (1989)

表-1 ラドン標準較正チャンバの主な仕様

項目	内 容
型 式	円筒横置型
材 質	ステンレス
容 積	7.5 m ³
漏 洩 率	0.1vol%/h 以下
耐 圧	チャンバ内を 0.2気圧加圧可能
付属設備	温度、湿度、気圧モニター、ガスループ（プロア、流量計含む）

表-2 人形峠事業所周辺のラドン濃度 [Bq/m³]

測定場所	平成3年	平成4年	平成5年	平成6年	平成7年	平均
三朝町丹戸	17	12	11	17	19	15
三朝町山田	19	14	16	23	21	19
三朝町穴鳴	12	10	10	17	15	13
東郷町麻畑	10	9	11	15	11	11
東郷町方面	14	9	15	19	15	14
東郷町川上	9	10	7	13	10	10
倉吉市菅原	51	32	39	58	56	47
倉吉市円谷	22	16	18	28	23	21
倉吉市広瀬	22	18	17	29	25	22
倉吉市福吉	10	8	9	13	11	10
上斎原村中津河A	22	11	11	29	30	21
上斎原村中津河B	12	8	8	12	16	11
上斎原村恩原	10	5	6	10	12	9
上斎原村人形峠	8	7	4	10	14	9

表-3 倉吉市菅原地区でのラドン濃度測定結果 [Bq/m³]

測定場所	平成3年	平成4年	平成5年	平成6年	平成7年	平均
民家(A) 隣竹林	—	16	23	47	43	32
民家(B) 前	—	12	19	38	28	24
民家(C) 裏山	—	43	39	67	58	52
杉林中	—	15	20	47	—	27
枝沢(A) 奥	—	46	51	106	88	73
枝沢(B) 分岐点	—	30	39	102	106	69
枝沢(C) 林道行止	—	25	31	86	98	60

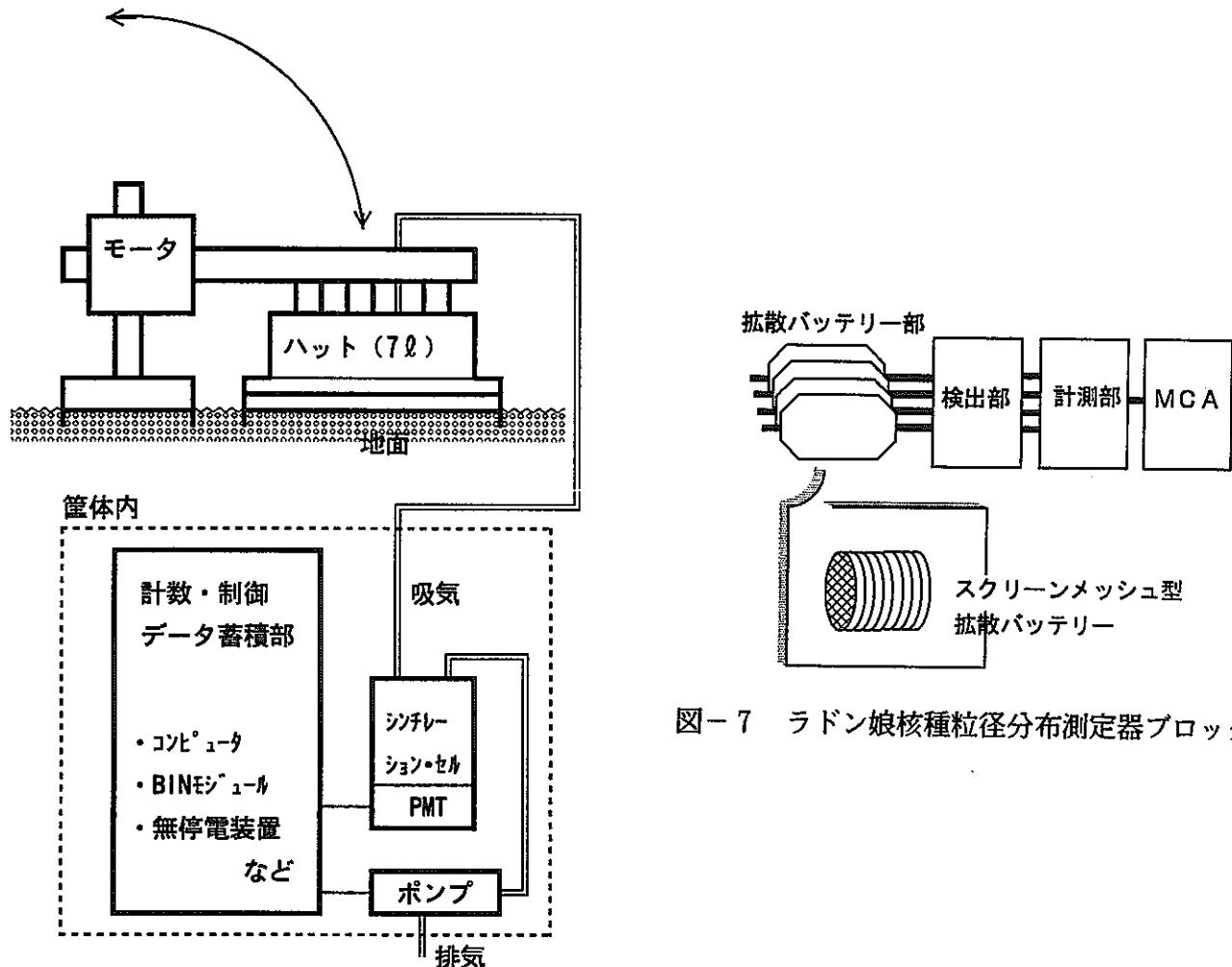


図-7 ラドン核種粒径分布測定器ブロック図

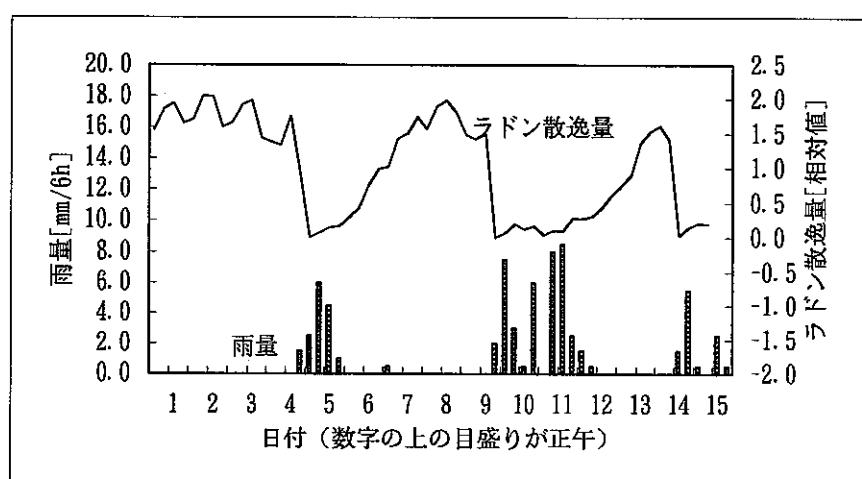


図-6 ラドン散逸量自動測定結果

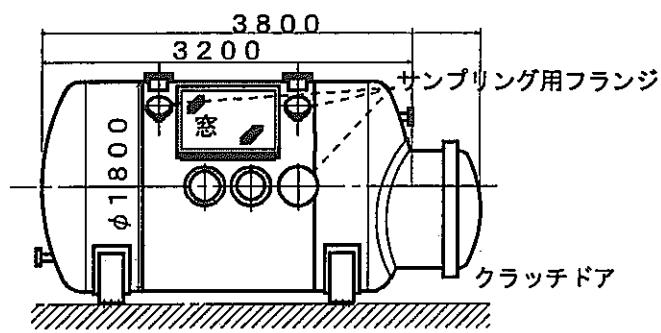
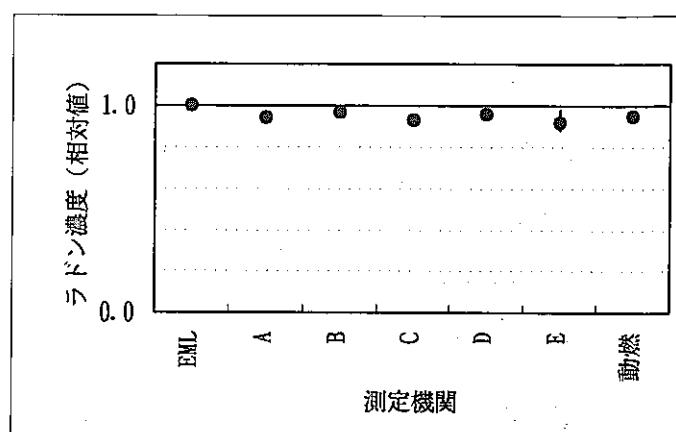


図-1 ラドン濃度基準校正設備本体チェンバ外観図



(a) サンプリング測定結果

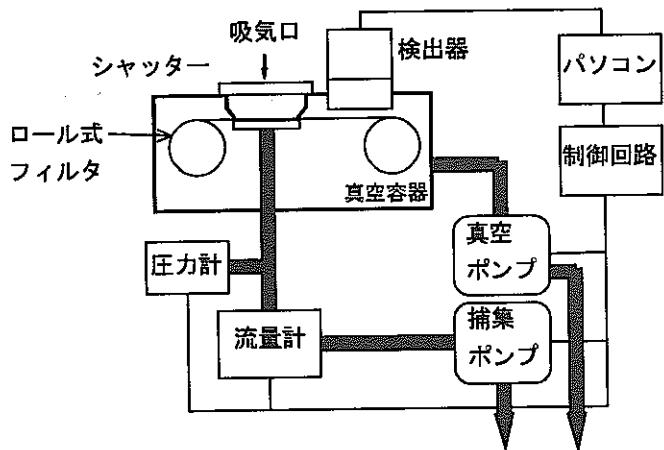
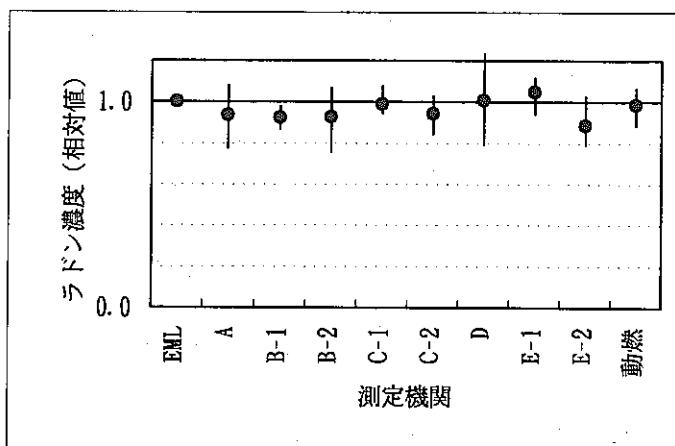


図-3 ラドン娘核種連続測定器ブロック図



(b) 積分測定結果

図-2 EMLでの比較実験結果
(誤差棒は最大、最小を示す)

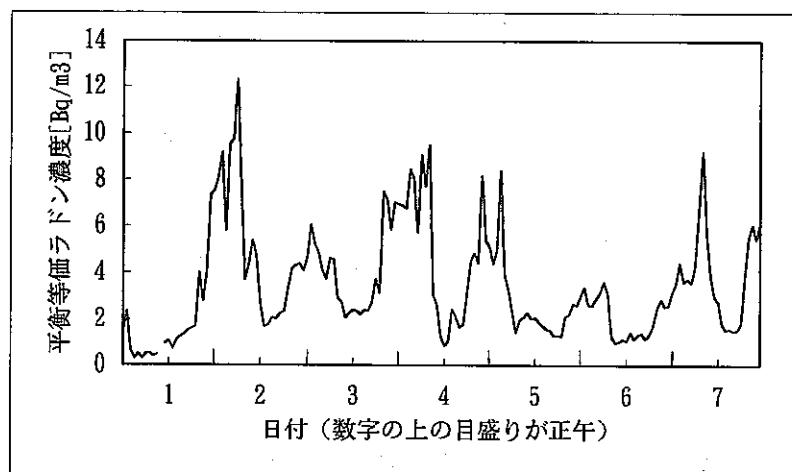


図-4 ラドン娘核種連続測定結果

ダイナミックエコロジカルモデルに関する研究

平成3年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 植頭康裕

片桐裕実

I. 研究の概要

切尔ノブイル原子力発電所事故のように環境への放射性物質の放出が短期間で終了した場合、放出された放射性物質の環境での移行は、その移行経路における植物の成育状況等に大きく左右される。このような植生環境の異なる（季節の違い等）条件での放射性物質の移行は、平常時の評価の様に平衡状態を仮定したモデルで評価することは、困難であることから、事故時の放射性物質の環境における移行挙動について、時間的・空間的な評価解析を行える計算モデルコードを開発し、より精緻な線量評価手法確立に資することを目的とする。

1. ダイナミックモデルの構築及び検証

事故時の環境影響評価モデル開発は、切尔ノブイル事故以降ヨーロッパを中心に進められて来ている⁽³⁾、⁽⁴⁾、⁽⁵⁾ことから、これらの情報を収集・整理し、日本のフィールドの特徴を取り込んだモデル構築を行った。モデルとしては、葉菜等への適用モデルと、アジアの特徴である水稻栽培環境を考慮したモデルの検討を進めた。

その結果、葉菜モデルについてはコード化し、切尔ノブイル事故時のデータを用いた検証を行なった。また、水稻モデルについては日本の水稻栽培における複雑な水管理を念頭に置いたモデルの概念検討を行った。

2. 動的移行パラメータの取得

動的解析モデルに用いる各種の時間依存パラメータについては、ほとんど得られていない状況にあることから、移行経路としても寄与の大きいと考えられる大気からの直接沈着経路に着目し、植物の成長段階の違いによる放射性物質の可食部への移行割合の変化について調査した。具体的には、人工栽培環境で生育させたほうれん草に放射性物質（Cs-137及びI-125）を成長段階毎に添加させたものを試料として用い、可食部への移行割合について評価した。

II. 研究成果

1. ダイナミックモデルの構築

(1) 葉菜モデルの構造

原子力施設の事故時に大気中へ放出される放射性物質の陸上生態系での移行は、基本的には、図-1に示すように平常時における移行経路と同様に考えることができる。事故時において考慮すべきことは、時間的变化をできる限り評価し、食物の摂取制限等の防災対策に反映させることにある。従って、平常時の評価に用いられているような各コンパートメントの放射性物質のやり取りを平衡状態を考慮した移行比（一定値）として取り扱うこととは異なり、コンパートメント内の放射性物質の時間的变化を一次微分方程式で表現し、連立一次微分方程式を解くことで各コンパートメントの濃度が得られる。各コンパートメントにおける放射性核種の量は、一般的に次のように表せられる。

$$\frac{dQ}{dt} = \sum_{i=1}^n R_{in, i} - \sum_{j=1}^m R_{out, j}$$

ここで、

- Q : コンパートメント中の放射性核種の量
 $R_{in, i}$: コンパートメントに入る*i*番目の移行率
 $R_{out, j}$: コンパートメントから減る*j*番目の移行率

である。

本モデルにおける放射性物質の移行経路は植物・土壤・家畜に大別され、各コンパートメント間ではウェザリング、腐敗、再浮遊、浸透、経根吸収等の物理現象を考慮した（図-1 参照）。また、食物連鎖をより現実的なものにするため、農産物の耕作期間、家畜の飼料内容の時間変化等、ダイナミックに扱えるものは極力時間変化を考慮してモデルの計算コード化を実施した。

(2) テストラン

本計算コードのテストランとして、沈着時期の相違による牧草中のCs-137濃度の変化について調査した。

沈着時期としては、2月、5月、8月、11月の4ケースとし、各月の1日から10日まで沈着量を1Bq/m²/日で一定に沈着すると仮定し、また、牧草の栽培密度については、月毎の栽培密度が全国平均として5月から10月まで一定であり、その他の月はゼロという調査結果を用いた。結果を図-2に示す。2月時沈着の場合は、牧草の栽培密度が生じる5月までは大気から牧草への直接沈着はゼロになり、栽培密度がある5月から10月においては再浮遊及び経根吸収による濃度上昇が見られたが、非常に低く、図ではほぼゼロの値を示している。また、8月以降は牧草の老化による土壤への還元が始まることから、5月と8月時沈着の場合とでは濃度および減少傾向が異なった結果が得られている。なお、11月時沈着の場合は、牧草の栽培密度がないことから、大気から牧草への直接沈着はゼロになっている。

一方、本モデルの妥当性を検討するため、チェルノブイル事故時の環境モニタリング結果として顕著な濃度変化を示した牧草中Cs-137の濃度と本モデルを用いた計算結果との比較を実施した。この時期における東海村周辺の大気中Cs-137濃度及び降雨量の調査結果を整理すると、図-3に示すように、大気中濃度は日ごとに大きく変動し、また降雨としては5月14日に多量の降雨があったことがわかる。

これらのフィールドデータを基に、計算に用いる沈着量は、5/3から5/29までに検出された大気中Cs-137濃度とフィールドデータから算出した降雨を含めた沈着速度を用いて算出することとした。このようにして得られた単位面積当たりの沈着量及び沈着日を用いて計算値と実フィールドでの濃度変化との比較結果を図-4に示す。

(3) 水稲モデルの概念

水稲の成長過程、水管理及び水田土壤の状況を踏まえ、図-5に示すように、1年間を非耕作期（10～4月）、湛水初期（しづかき期から活着期）（4～5月）、茎葉部生长期（分けつ期を中心とする湛水中期）（5～8月）、出穂開花期（出穂期）（8～9月）、糊熟期（9～10月）の5つに分けることができる。各時期における移行経路の概要を以下に示す。

① 非耕作期（10月～4月）

この時期の水田は渴水状態であり、水稲は存在しないことから、水田土壤への移行経路は、

(イ) 大気から土壤表層への乾性沈着及び湿性沈着、(ロ) 土壤表層から深層への浸透のみとなる。また、水稻の刈り取りにおいて、モミ以外の部位は水田に還元されることから、この経路についても考慮する。

② 滞水初期（しきかき期から活着期）（4～5月）

この時期の水田は滞水状態であるが、水稻は存在しないことから、水田表水に関する移行経路は（イ）大気から水田表水への乾性沈着及び湿性沈着、（ロ）土壤から水田表水への脱着、（ハ）水田表水の交換に伴う流入と流出（深層への浸透）のみとなる。

③ 茎葉部成長期（分けつ期を中心とする滞水中期）（5～8月）

この時期は田植えによって本田に移植された稻が活着した後、成長している期間であり、出穂開花期以前であるためモミはまだ出現していない時期であり、移行経路は以下のようになる。

[水田表水]

- (イ) 大気から水田表水への乾性沈着及び湿性沈着
- (ロ) 土壤から水田表水への脱離及び水田表水から土壤への収着
- (ハ) 水田表水の交換に伴う流入と流出
- (二) 水田表水の深層への浸透
- (ホ) 稲からのウェザリング等による水田表水への移行

[作土層]

- (イ) 土壤から水田表水への脱離及び水田表水から土壤への収着
- (ロ) 経根吸収による茎葉への移行
- (ハ) 茎葉からのウェザリング等による作土層への移行

[水稻茎葉部（外部）]

- (イ) 大気から茎葉への乾性沈着及び湿性沈着
- (ロ) 茎葉からのウェザリング等による水田表水（又は作土層）への移行
- (ハ) 経根吸収による茎葉への移行

④ 出穂開花期（出穂期）（8～9月）

この時期は稻茎葉の成長が止り、出穂期となり、米粒が成長する。出穂開花期としては、湛水時期と落水後の2つの時期を対象とする。移行経路は以下のようになる。

[水田表水]

- (イ) 大気から水田表水への乾性沈着及び湿性沈着
- (ロ) 土壤から水田表水への脱離及び水田表水から土壤への収着
- (ハ) 水田表水の交換に伴う流入と流出
- (二) 水田表水の深層への浸透
- (ホ) 稲からのウェザリング等による水田表水への移行

[作土層]

- (イ) 土壤から水田表水への脱離及び水田表水から土壤への収着
- (ロ) 経根吸収による茎葉への移行
- (ハ) 茎葉からのウェザリング等による作土層への移行

[水稻茎葉部（外部）]

- (イ) 大気から茎葉への乾性沈着及び湿性沈着
 - (ロ) 茎葉からのウェザリング等による水田表水（又は作土層）への移行
 - (ハ) 経根吸収による茎葉への移行
- (二) 茎葉部からモミ部への転流

[モミ部]

- (イ) 茎葉部からモミ部への転流

⑤ 糊熟期（9～10月）

この時期は水田は落水して渴水状態であり、経根吸収はほぼ停止し、モミ内部で玄米が成長する時期である。

このため、出穂開花期（出穂期）における落水時期のモデルをそのまま適用する。モデルの概念を図-6に示す。

2. 動的移行パラメータの取得

(1) 成長段階の一定期間毎の取り込み割合の変化に関する調査

葉菜の成長段階を考慮した移行パラメータを取得するために、ほうれん草の播種2週目から1週毎に葉表面に一定量の溶液トレーサを添加し、翌週に採取した試料を流水で洗浄した後、可食部に残存する放射能量と添加量から移行割合の変化を比較した。成長段階の重量を変化と成長段階における移行割合の違いを図-7に示す。この結果から、Cs-137については成長を反映しており、時期によっては1/2が残存するという結果が得られた。

(2) 添加時期の違いによる取り込み割合の変化に関する調査

放射性物質の添加時期の違いに伴う収穫時時点での移行割合の違いを評価する観点から、播種2週目から時期をずらして放射性物質を添加し、収穫時に可食部に残っている放射能量と添加量の関係から取り込み割合の変化を評価した。結果を図-8に示す。この図から成長の著しい期間（4～5週目）を境に移行割合が大きく異なり、この時期を過ぎると添加の時期に関らずほぼ一定であることがわかった。また、Cs-137、I-125で核種間の違いは見られなかった。

3. 結言

- (1) 食物連鎖に係るダイナミックモデルとしての葉菜モデルを構築した。これにより原子力施設の事故時の季節変動等を加味した濃度変動を推定することが概ね可能となった。
- (2) 水稻モデルに関しては、水管理を考慮したモデル概念を整理した。
- (3) 葉菜モデルに用いる植物の成育時期を考慮したパラメータの一つである「大気から直接沈着した放射性物質の移行割合」に関する基礎的なデータとして、事故の発生時期（汚染の起こる時期）と植物の成長段階は大きく放射性物質の移行に関係することが分かった。

主要レポート

- (1) 住谷秀一, 片桐裕実, 放射性物質の移行に関するダイナミックモデルの開発, 日本保健物理学会
第29回研究発表会要旨集 (1994)
- (2) 住谷秀一, 片桐裕実, 放射性物質の移行に関するダイナミックモデルの開発, PNC TN8410
94-087 (1994)

参考文献

- (3) Prohl, G., : The dynamic radioecological model ECOSYS-A tool for the management of nuclear accident's consequences, 4th International Sympo. of Radioecology "The impact of nuclear origine accidents on environment", Cadarache, March, 14-19 (1988)
- (4) Whicker, F. W. and Kirchner, T. B., : PATHWAY: A Dynamic Food-chain Model to Predict Radionuclide Ingestion After Fallout Deposition, Health Phys., 52, 717-737 (1987)
- (5) Togawa, O., : Computer Code TERFOC-N to Calculate Doses to Public Using Terrestrial Foodchain Models Improved and Extended for Long-Lived Nucleides, J., Nucl. Sci. Technol. 27[4], 360-374 (1990)

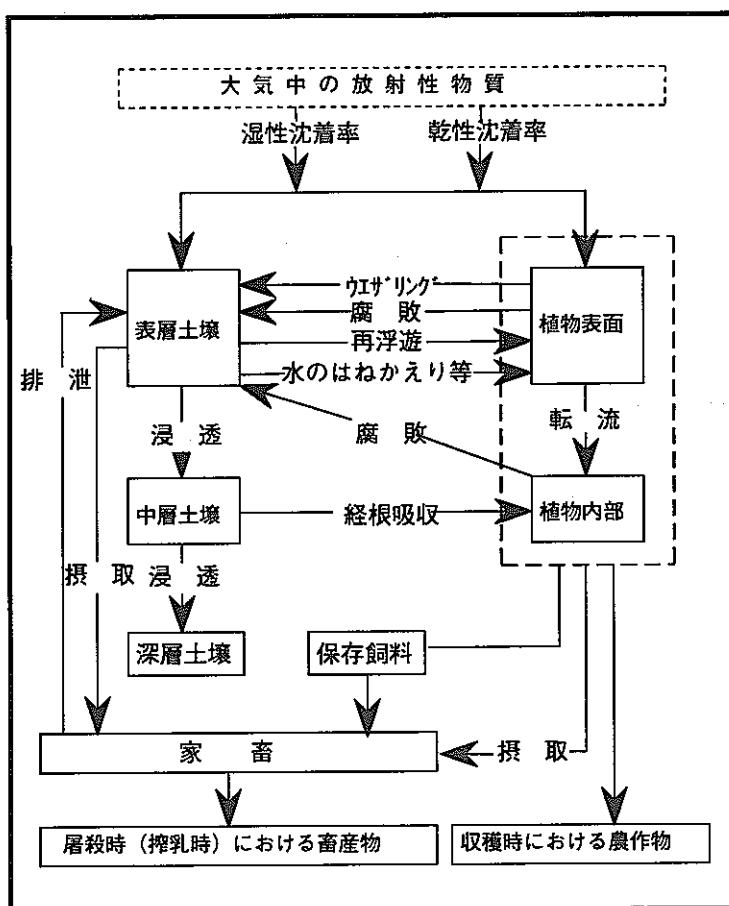


図-1 ダイナミックモデルの構造

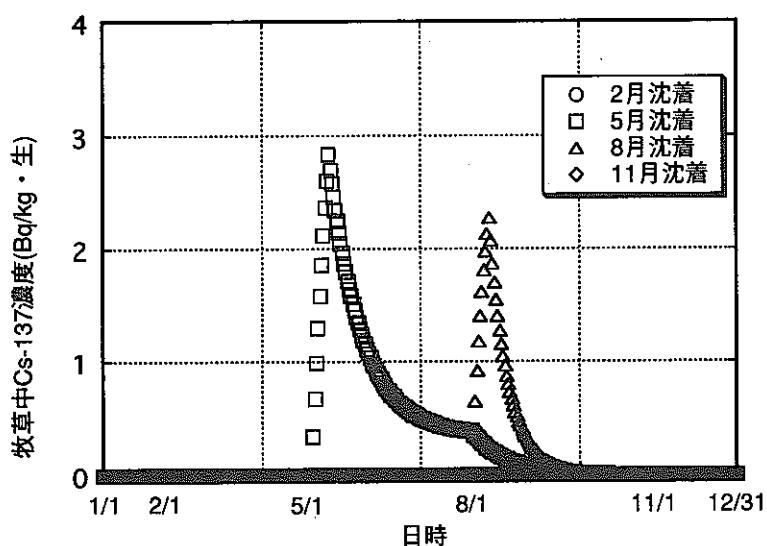


図-2 沈着時期の相違による牧草中Cs-137濃度

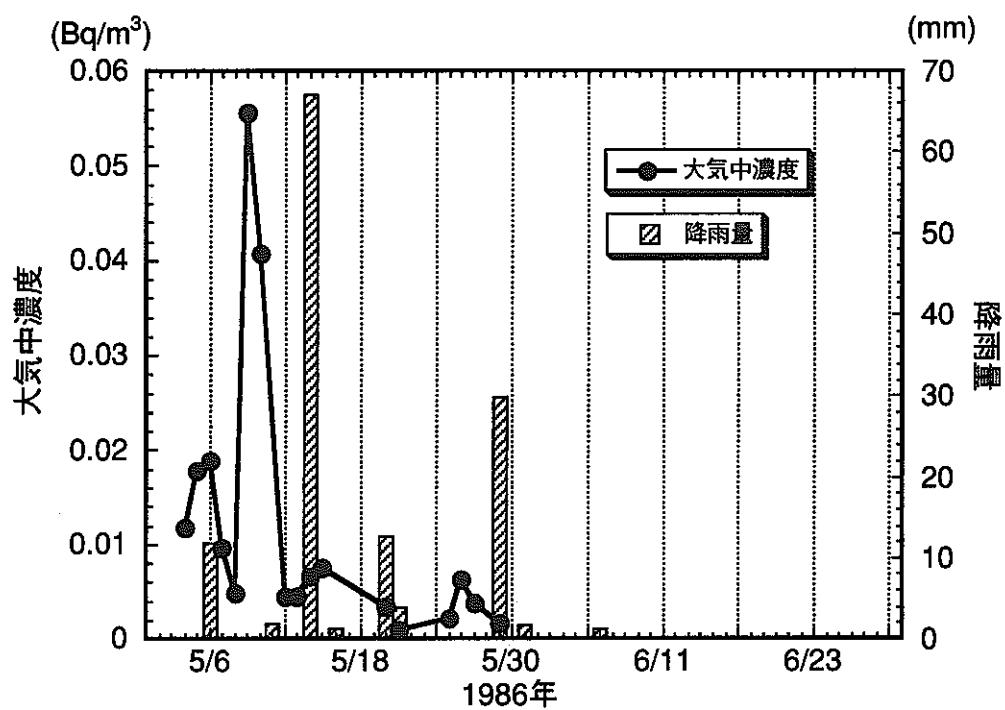


図-3 東海村周辺の大気中Cs-137及び降雨量

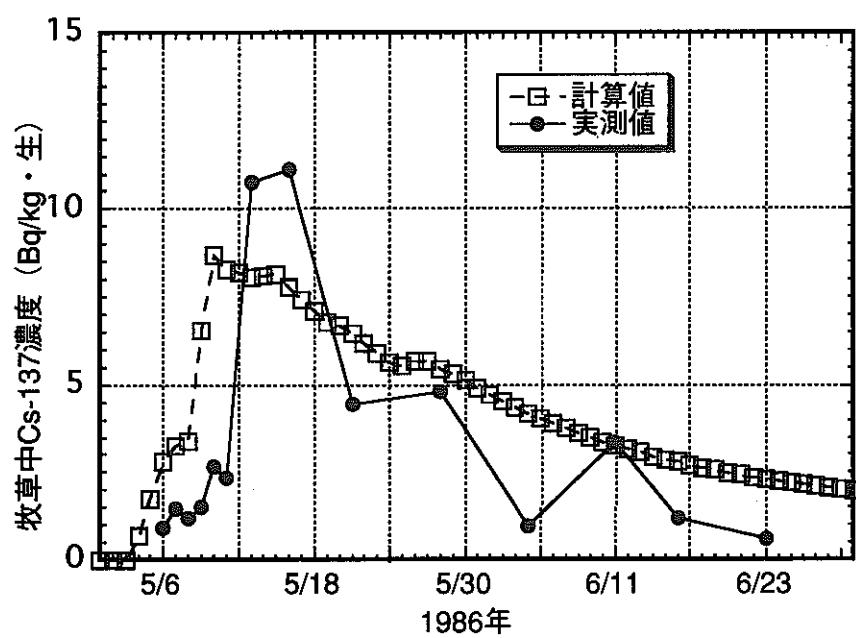


図-4 牧草中Cs-137における計算値と実測値の関係

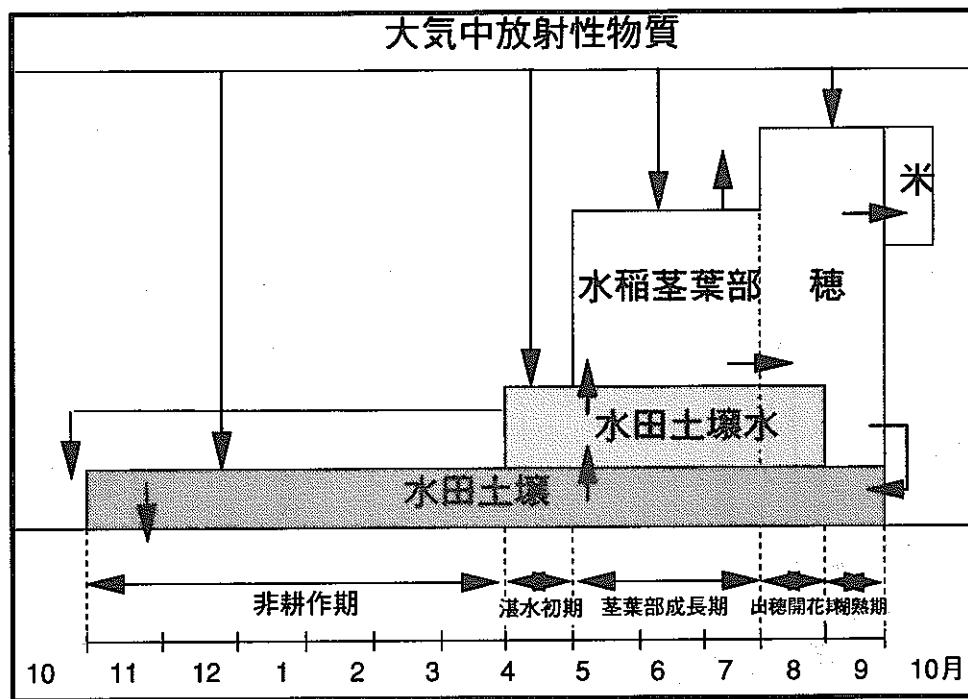


図-5 放射性物質の水稻への移行過程

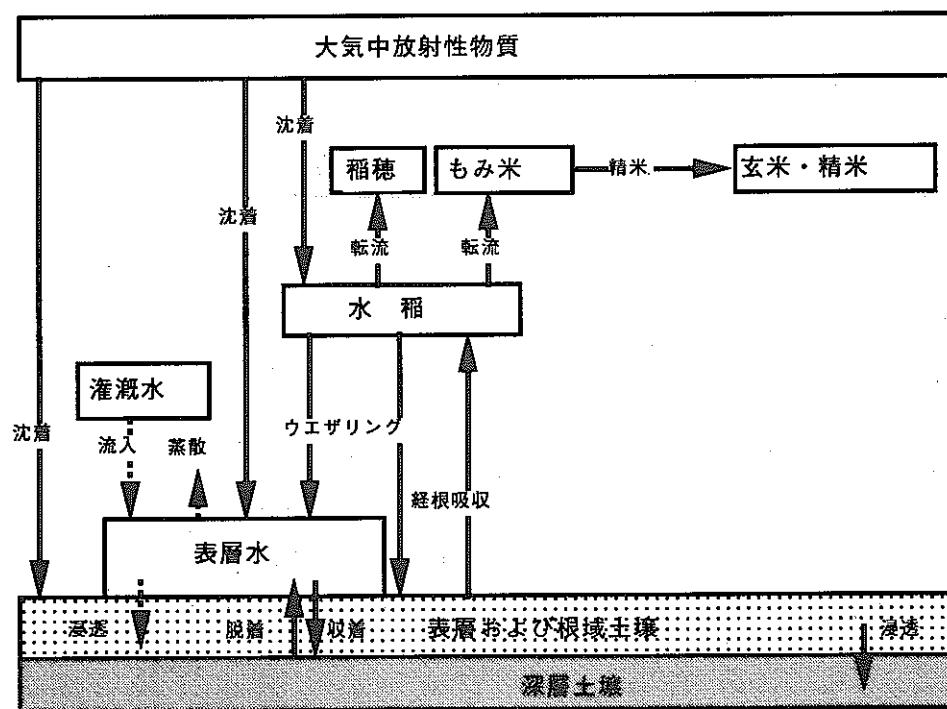


図-6 水稻モデルの概念

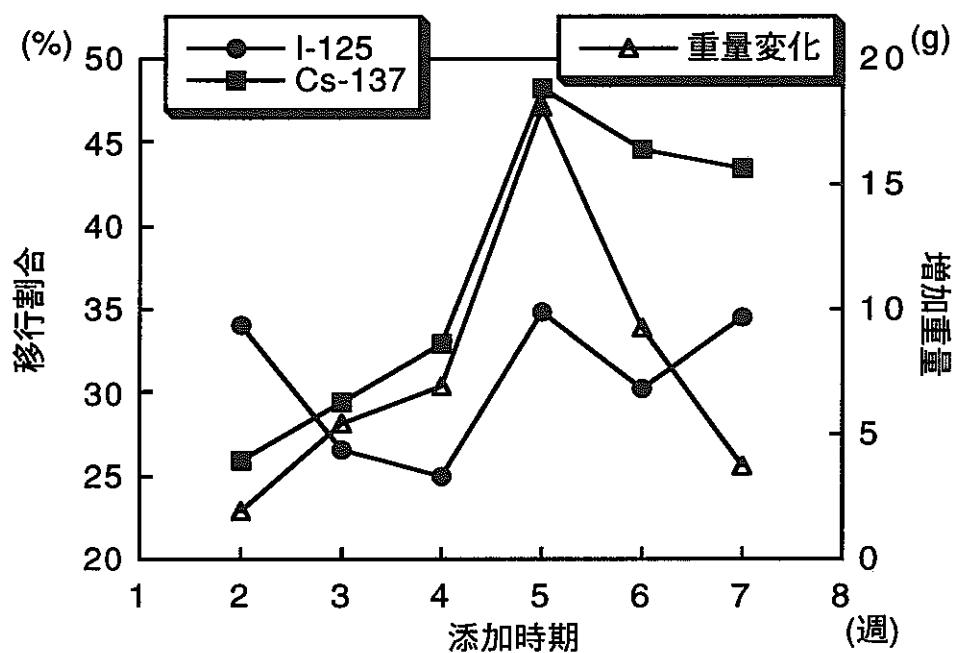


図-7 成長過程の違いと移行割合の関係

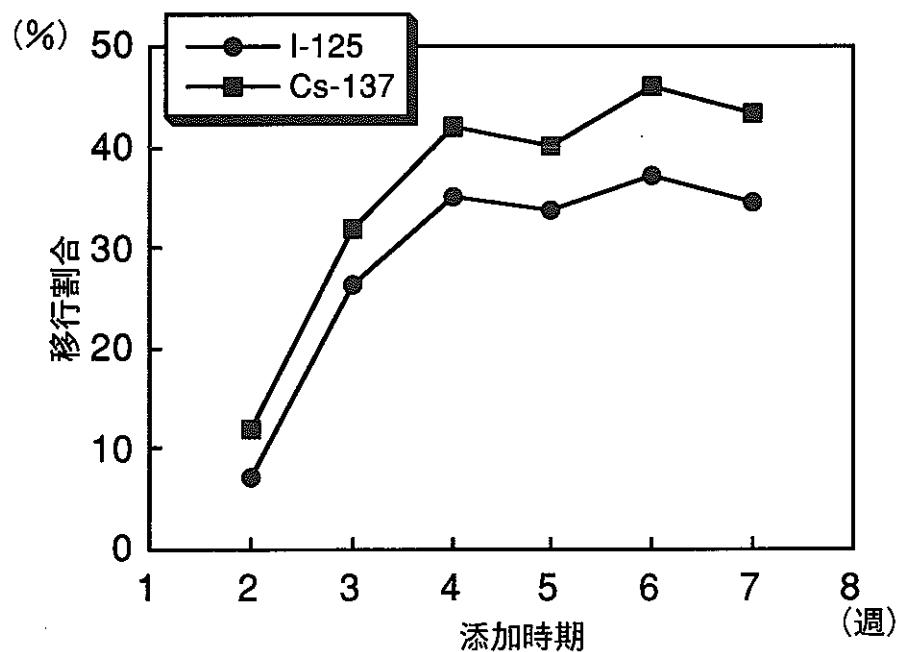


図-8 添加時期の違いにおける移行割合

地質と環境放射線の関連性に関する研究

平成3年度～平成7年度

東濃・技術開発課 永崎 靖志

I. 研究の概要

本研究はバックグラウンド放射線の地域的な変動の大きな要因となっている地質に着目し、放射線レベルとの関連性を調査するとともに、国民線量評価に資することを目的とする。既存の車載型放射線測定装置（カーボーン）による全国踏査データを基に、 γ 線測定データと地質との相関を調査するためのデータベースを作成する。また、現在の生活環境における放射線レベルをカーボーンを用いて測定し、バックグラウンド放射線と地質の関連性について研究する。^{(1) (2)}

1. 地質と環境放射線の関連性に関する文献として、通商産業省工業技術院地質調査所が1949年～1985年までの期間に実施した物理探査調査研究一覧入手し、入力項目等の改良を行いつつ、この文献の要旨入力を実施し、データベースの整備を実施した。
2. 動燃事業団が過去に実施した国内ウラン資源調査探鉱に関わる環境放射線測定データは、図-1に示すとおり、調査面積 122,400km²、走行距離 107,031kmであり、国内の都市部を除くほぼ全域をカバーしている。これら膨大な測定データのうち、測定器の校正等が行われていることが確認されている昭和50年以降の測定データについて国民線量評価に必要な吸収線量率単位（nGy/h）に変換する作業を実施した。また、上記の作業を実施するにあたり既存のカーボーン車のシステム改良として、空気吸収線量率（以下吸収線量率）、1cm線量当量率（ μ Sv/h）及び照射線量率（ μ R/h）の評価が可能な線量計測システムを整備した。
3. 過去の測定データの吸収線量率への換算方法と線量計測システムを用いて、地質と環境放射線の関連性調査のテストケースとして岐阜県東濃地域における解析を実施した。この結果、第四紀堆積岩分布域においては吸収線量率が相対的に低く、また逆に先第三紀花崗岩分布域において吸収線量率が高くなっていることが判明した。

II. 研究成果

1. 地質と環境放射線の関連性に関する文献データベースの整備

(1) 地質調査所物理探査調査研究データ等の収集

環境放射線に係わる調査結果は放射線が人に与える影響を研究する上で非常に貴重な情報資源であり、報告書としてただ蓄積されているだけでは利用の効果が少ないだけでなく、管理上の問題から情報が消滅する危険性がある。従って、その蓄積量、情報の質等を考慮して科学的に管理しなければならない。本研究では地質と環境放射線に関する文献として、国立研究機関として測定データを広く公開するという趣旨のもとに、カーボーン測定データをはじめ多数のデータを逐次整理し公開してきた地質調査所が実施してきた物理探査調査研究一覧（1949年～1985年）等入手し、文献要旨を入力（入力件数 334件）してきた。

国内の各学会で発表される各種論文等においては、その中で地域、実施年、手法、測定器に対して、統一した考えのもとに記載されておらず、特に手法、測定器の区分が分かりにく

いことや、言葉の統一もされていないために、該当項目を漏れなく入力、抽出することができない等の問題が考えられた。このため、本データベースでは図-2に示すとおり、整理番号、地域、実施（発表）年、手法、測定器、著者、題名、雑誌名、備考及び要旨を入力してある。

本データベースの目的は、地図上のある地域における測定データを示す文献の検索として利用可能なシステム構築にある。本研究期間では文献要旨のみ検索可能なシステム整備に終わっているが、最終的には吸収線量率マップ、地質データをコンピュータにより映像化し、表示されたマップ上で文献データ等を出力させるデータベースシステムを構築する必要がある。また将来的にはインターネットの利用を視野にいれたシステムとする必要がある。

なお本文献データベースは Apple社製パーソナルコンピュータ Macintosh及び、CLARIS社製データベースソフト FileMakerIIを使用している。

(2) コンピュータマッピングシステムの概念

吸収線量率マップ作成の目的は吸収線量率等空間線量の測定値を地図上に表示することにより、地域的な変動や地質との関係をわかり易くすることにある。しかし、その方法は対象となる地域の広さ、測定値の代表性、解析の精度等により選択されねばならない。本研究ではまず図-3に示すような一般的なコンピュータマッピングシステムについて検討した。

(a) 地図データ

地図には地名、道路、鉄道、標高等などの様々な情報が書き込まれている。また、地質図等特殊な内容を地形図に書き込んでいる場合もある。地図をコンピュータで扱うには2つの方法がある。その第1は紙の地図をそのままイメージとして扱う方法である。ただし、記載内容の変更はできない。第2は地図の内容を地形、行政境界、道路、地名等の情報を分解し、それぞれを地図データとして扱う方法である。この場合は必要な情報を選択し、位置の座標データをもとに重ね合わせて利用することができる。従って、線量マップ作成においてはイメージと地図データを用途に応じて選択して使用するのが適切である。地図データには白地図、地形図、地質図等のものがある。これらの地図データはある程度の粗さに間引いて準備しておく、目的により使い分ける必要がある。

(b) 統計的な処理

メッシュ図、吸収線量等の等高線表示といった図面が必要な場合は地図システムと呼ばれるプログラム等により地図を作成する必要がある。本研究の場合は吸収線量率と分布状況が複雑に変化する地質との関係を示す必要があるため、統計処理の方法と地図情報として表示する手法について様々な検討が必要となってくる。なお前項に示す様な地図データをもとにいろいろな地図を作成するためワークステーション、デジタイザー、グラフィック出力装置等が必要である。

2. 過去のカーボーン測定データの活用

動燃事業団では前項に示す様に我が国のウラン資源確保を目的とした調査を過去において実施してきた。その調査過程において地質と環境放射線に関連した貴重なデータが蓄積されてきた。本研究ではこの貴重なデータを国民線量評価に資することが可能か検討した。

(1) 線量計測システムの整備

精度の高い γ 線の測定評価を行うためには、 γ 線応答関数の正確な情報が必要となる。通常 NaI(Tl)シンチレーション検出器によって得られる γ 線エネルギー波高分布は、検出器自

信の特性が反映された吸収エネルギー分布であり、真の γ 線エネルギー分布ではない。そのため単色 γ 線による γ 線エネルギー波高分布、すなわち検出器の γ 線スペクトラム（応答関数）を用いて、測定された γ 線エネルギー波高分布を入射 γ 線エネルギー分布に変換することが必要である。このためアンフォールディング法を用いて変換し、最後に線量換算係数を乗じて各々の線量値に変換している。そのフローチャートを図-4に示す。なおNaI(Tl)シンチレーション検出器の応答関数を求めるコードとして、電子、陽電子及び光子の挙動をモンテカルロ計算法により解析する電磁力スケード計算コードEGS-4を用いた。

線量計測システムは、カーボーン車内に積載されているパソコンで取扱うことができる。任意の測定地点での γ 線スペクトルデータと緯度・経度情報を人工衛星信号より同時に取り込むことで、詳細なデータ整理が可能となっている。表-1に任意の地点における線量計測データの出力例を示す。

データは、吸収線量率の他、1cm線量当量率及び照射線量率が表示される。なお、 γ 線のエネルギーは、0.1MeV～3.0MeVの範囲をマルチチャンネルアナライザにより32分割しており、各々のチャンネルでの線束データ、カウント値、逐次法によるアンフォールディングの回数等が表示される。測定時間は線量計測及び位置計測を含めて1地点で約3分程度である。

(2) 吸収線量率への換算

過去のカーボーン測定データは1分間当たりの計数(cpm)で示されている。このままの単位では国民線量評価への応用は出来ない。従って、この計数率単位を吸収線量率へ換算する必要がある。このため、過去にカーボーン測定が行われた場所で、現在に至るまで道路状況等に大きな変化のない測定ルートを、現有のカーボーン車で測定した。測定は動燃事業団の所在地に近く地質的にも先第三紀花崗岩から第四紀堆積岩が分布し、また測定ルートも片側が崖となっている部分や橋を通過する等多様な線源分布となっている、岐阜県御嵩町の全長4.5kmのルートを過去の測定条件をほぼ同じ時速約7～10km程度で走行し、過去のデータと状況変化のない放射線ピーク箇所(13箇所)を抽出し、その関係を検討した。

検討の結果は図-5に示すとおりであり吸収線量率と計数率の相関係数は、0.956となった。この結果過去のカーボーン測定データを吸収線量率とし換算することが可能となった。

(3) 岐阜県東濃地域における評価

上記に示す線量計測システムの整備と過去のカーボーン測定データの吸収線量率の換算方法をもとに、テストケースとして動燃事業団東濃地科学センターの所在地である岐阜県東濃地域における地質と環境放射線の関連性の調査を実施した。⁽³⁾

調査解析に用いた過去のカーボーン測定データは、昭和52年2月7日～同年2月18日に測定された311点を、また線量計測システムデータは平成5年8月19日～同年8月25日と平成6年9月2日～同年9月7日に測定された303点を用いた。カーボーン測定データは各走行データから500m毎に読み取り、10nGy/h刻みとし端数は切上げとした。また線量計測システムデータは1分間の測定データである。これらのデータにおける最低値は42nGy/h、最高値は154nGy/hであった。

図-6に等吸収線量率図を示す。この結果によれば当該地域における地質⁽⁴⁾⁽⁵⁾と吸収線量率の関係は以下のとおりであった。

(a) 土岐市北方～土岐市中央地域に広がる高吸収線量域は土岐花崗岩分布域で70～75nGy/h以上の値を示す。また花崗岩露頭部では90～150nGy/h程度の値を示す。

- (b) 土岐市南方～瀬戸市北方の花崗岩は、伊奈川花崗岩及びこれを貫く苗木花崗岩からなるが、屏風山断層の南方に分布する花崗岩は、苗木花崗岩が伊奈川花崗岩中に多く貫入露出しており、調査地域内で特に高い値（70～75nGy/h）を示すことが判明した。
- (c) 可児夾炭累層、土岐夾炭累層はウランの鉱化作用の及んでいる例外的な部分を除けば50～70nGy/h程度の値を示す。
- (d) 可児層群平牧累層は御嵩町城町南方にかなり広く分布することから、比較的低い値（60～65nGy/h）を示す。
- (e) 瑞浪層群下肥田累層については、土岐市街地及び瀬戸層群分布域に挟まれ、全体として60～65nGy/h程度の低い値を示す。
- (f) 土岐川沿いの沖積層分布域はその上に土岐市、多治見市の市街地を形成しており、60～70nGy/h以上の値を示す。
- (g) 可児層群、瑞浪層群の諸累層は一般に分布が細長く、周囲の他岩石や地層の影響を受けており、全体的な評価は困難である。

東濃地域以外においては岐阜県西濃地域における地質と環境放射線の関連性に関する評価を過去のカーボン測定データを用いて実施している。

3. 結言

- (1) ごく限られた範囲ではあるが、地質調査所等が実施した地質と環境放射線の関連性を示す文献をデータベース化した。
- (2) 地図情報を含めたデータベース構築に必要な事項を検討した。
- (3) 線量計測システムを整備したこと、車の進入できる範囲においては短時間で必要な線量を計測することが可能となった。
- (4) 過去のカーボン測定データをそのままでは使用不可な計数率データから、国民線量評価に必要な吸収線量率単位に換算することが可能となった。
- (5) テストケースとして実施した、東濃地域における地質と環境放射線の関連性を明らかにすることができた。

主要レポート

- (1) Nagasaki, Y., et al., "The Use of Carbone Gamma-ray Data for the Study on Natural Radiation" IAEA Technical Committee Meeting / The Use of Uranium Exploration Date and Techniques in Environmental Studies, November. 1993
- (2) 永崎、坪田、「国内カーボンデータに基づく地質と環境放射線量評価への応用」、資源地質(Resource Geology), 44(3), 147-154, 1994
- (3) 永崎、日本保健物理学会 第30回研究発表会(1995)「岐阜県東濃地域における地質と環境放射線の関連性調査」

参考文献

- (4) 小林孝男、岐阜県可児盆地東部の地質とウラン鉱化作用、鉱山地質第39巻79～94 (1989)
- (5) 糸魚川淳二、瑞浪地域の地質、瑞浪市化石博物館専報第1号 (1980)

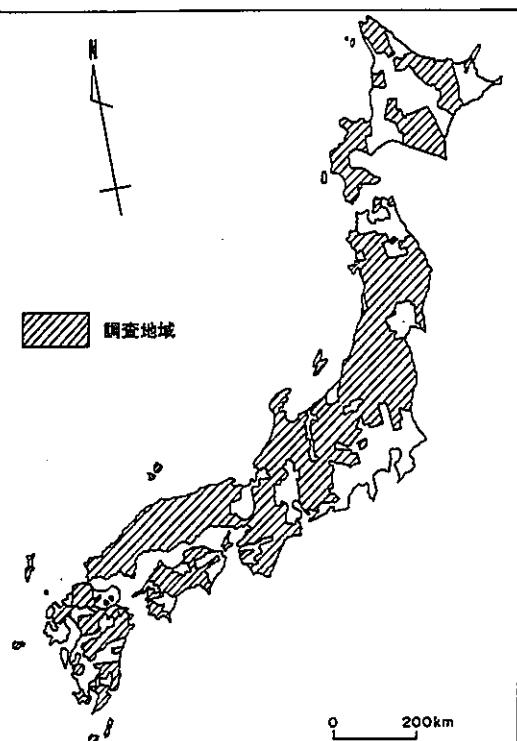


図-1 カーボーン調査地域

地質・放射線関係文献データベース

番号： 115

地域： 新潟県岩船・蒲原・魚沼地方・福島県奥会津地方
実施（発表）年： 昭和35年9月18日～12月21日

手法： 自動車放射能探査

測定器： NaI

著者： 堀川義夫

題名： 羽越奥会津地域放射能探査

雑誌名：

備考：

要旨： 新潟県岩船部・蒲原郡・北魚沼郡地方および福島県奥会津地方の放射能強度分布を明らかにすることことができた。放射能異常地としては次の箇所があげられる。
 1) 岩船郡中東東方の基盤の花崗岩類に不整合に被覆する凝灰質砂岩層が 800～900cps を示し携帯用 S.C. では 0.06m/h である。
 2) 岩船郡関川村女川林道に露出する花崗岩類は 1,000～1,400cps の顕著な異常を示した。
 3) 南会津郡朝日村黒谷川林道の花崗岩類も 1,200cps 程度の異常を示した。
 4) 東蒲原郡三川村三川温泉北方で、花崗岩類を被覆する砂岩疊岩層中に 1,000cps の異常が認められた。

図-2 データベースアウトプット例

<利用形態>

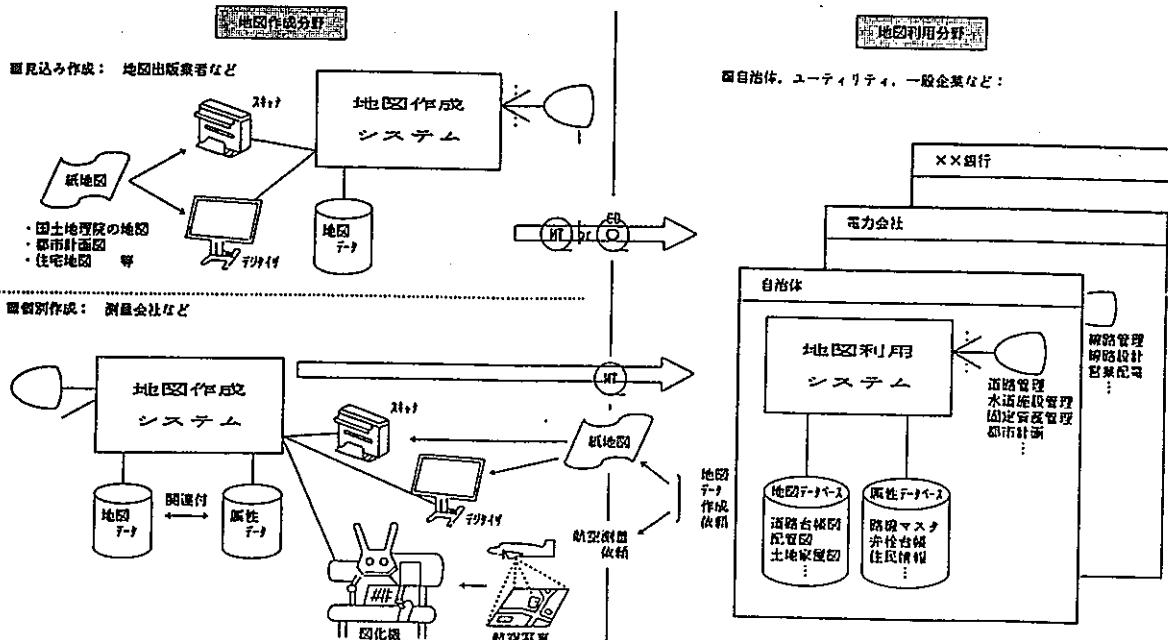


図-3 コンピューターマッピングシステム概念図

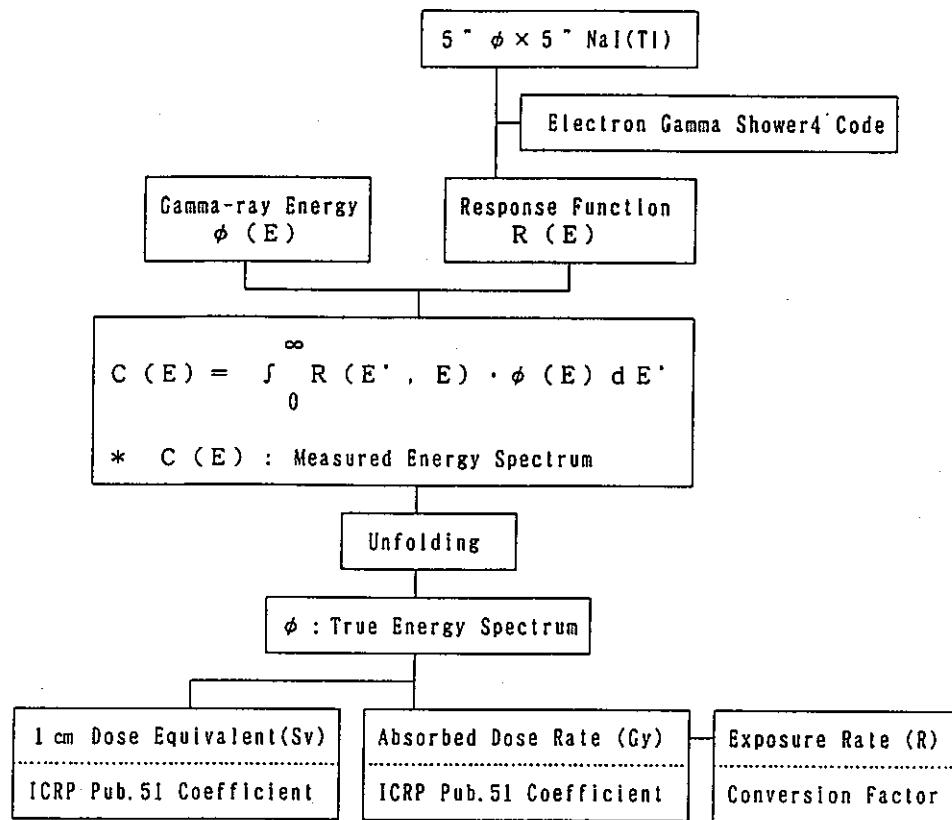


図-4 線量計測システムフローチャート

CH.	UP-ENERGY	FLUX DATA	COUNT DATA	CH.	UP-ENERGY	FLUX DATA	COUNT DATA		
1	9.375D-02	0.0000D+00	0	17	1.594D+00	1.4096D+00	1158		
2	1.875D-01	8.9818D-01	5050	18	1.688D+00	1.0489D-34	209		
3	2.813D-01	2.1856D+00	9126	19	1.781D+00	7.8858D-20	104		
4	3.750D-01	1.3810D+00	5440	20	1.875D+00	1.3154D-01	112		
5	4.688D-01	7.8734D-01	3393	21	1.969D+00	7.2521D-16	71		
6	5.625D-01	4.9263D-01	2265	22	2.063D+00	1.6825D-11	53		
7	6.563D-01	5.8981D-01	1930	23	2.156D+00	3.0719D-07	53		
8	7.500D-01	8.1290D-01	2226	24	2.250D+00	1.9046D-08	76		
9	8.438D-01	6.0968D-03	1322	25	2.344D+00	7.8346D-14	66		
10	9.375D-01	3.8193D-01	751	26	2.438D+00	4.9989D-15	50		
11	1.031D+00	2.3800D-03	720	27	2.531D+00	4.3704D-17	36		
12	1.125D+00	3.3774D-01	643	28	2.625D+00	1.1398D-10	39		
13	1.219D+00	1.2132D-04	555	29	2.719D+00	6.4178D-01	154		
14	1.313D+00	1.2533D-01	503	30	2.813D+00	0.0000D+00	32		
15	1.406D+00	2.0695D-04	332	31	2.906D+00	0.0000D+00	2		
16	1.500D+00	3.2846D-01	351	32	3.000D+00	0.0000D+00	1		
FILE NAME =>> A:A01.DAT									
START DATE : 1992/12/ 4 9:19:11									
MEASURE TIME : 30. TOTAL COUNTS = 36823. ITERATION = 37									
* 測定時間		* 全カウント数		* アンターリングの回数					
DOSE RATE = 1.420-01 micro.Sv/h.				1.20D-01 micro.GY/h. 1.38D+01 micro.R/h					
* 1 cm 線量当量率				* 空気吸収線量率 * 照射線量率					

注) * は出力されず

表-1 線量計測システム測定結果例

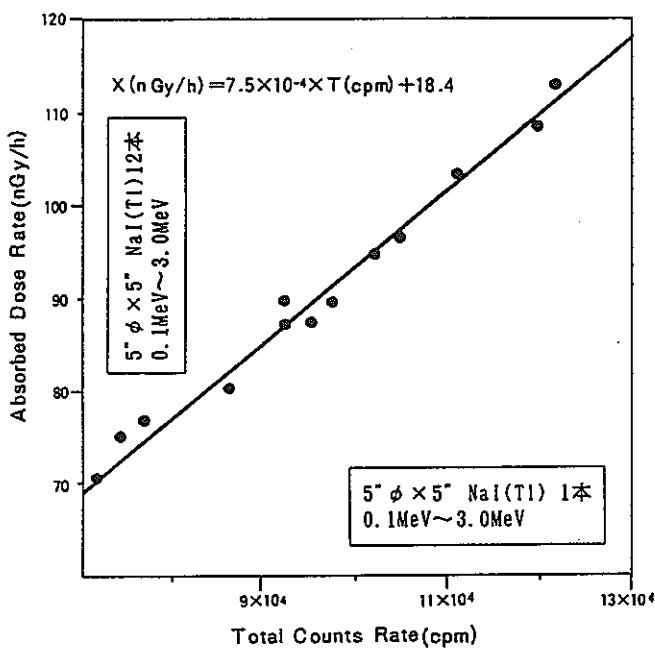


図-5 吸收線量率と計数率との関係

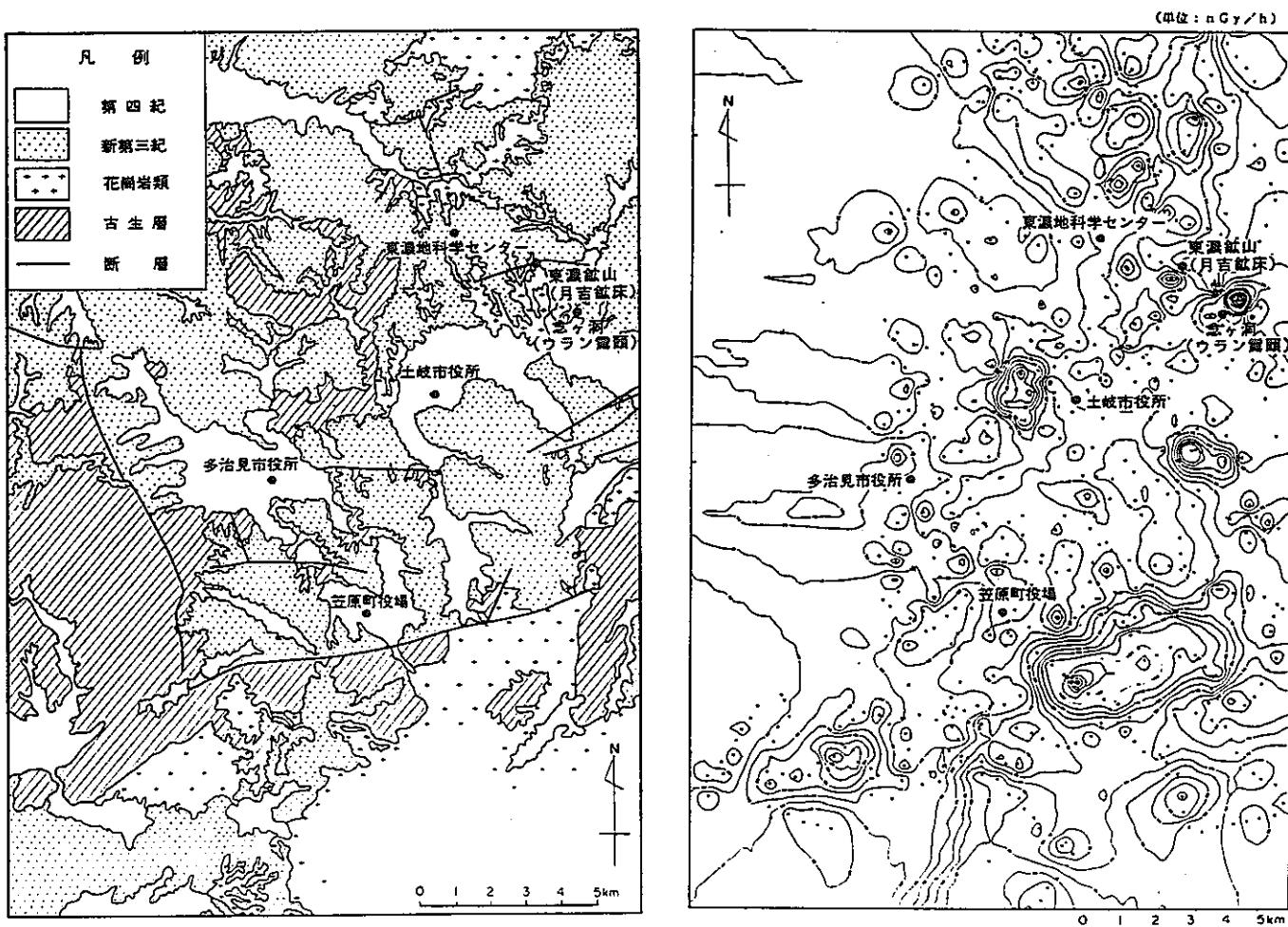


図-6 東濃地域の地質概況（含測定位置）と等吸收線量率分布図

放射性核種の地中移行に関する安全評価研究

平成4年度～平成7年度

東海・安全管理部・環境安全課 森田重光

I. 研究の概要

大気圈内核実験等により環境中に放出された放射性核種の土壤環境中における挙動・評価を行うことは、放射性核種の土壤から植物への移行、地表面からの外部被ばく、また、環境修復等の観点から重要である。しかし、土壤環境中における挙動は、核種の化学形態や土壤の物理・化学的性状の影響を受けるため、極めて複雑である。

そこで本研究では、移行に影響を及ぼす因子を解明するとともに、放射性核種の土壤環境中での移行についてモデル化を行い、安全評価に資することを目的とした。

本研究の具体的な内容を以下に示す。

1. テクネチウム-99(Tc-99)の土壤環境中における移行に影響を及ぼす因子の解明

核燃料サイクルに係る環境影響評価上重要であり、その化学形態によって環境中における挙動が大きく変わると言われているTc-99を対象に、フィールドデータ及びトレーサ試験の結果から、移行に影響を及ぼす因子を解明した。

2. フミン酸の化学的特性

土壤粒子への核種の吸着に大きく関与すると言われているフミン酸の化学的特性を、トレーサ試験の結果を基に解析した。

3. 地中移行モデルの基礎概念

地質媒体に収着された核種の脱離は、主として核種の土壤溶液中の存在形態及び固相との結合機構に支配される動力学的过程である。そこで、放射性核種の移行に関わる諸現象のうち、存在形態と移行速度について文献調査を行い、これらの情報を合わせることにより、地中移行モデルの基礎概念を整理した。

II. 研究成果

1. テクネチウム-99の土壤環境中における移行に影響を及ぼす因子の解明

(1) フィールドデータの解析

Tc-99の鉛直分布を調べたところ、イオン形をとるため移行しやすいという理論に反して表層付近に保持されていた。そこで、土壤の物理・化学的性状と核種濃度との相関を解析し、保持因子を解明した。分析した性状は、物理的性状として、三相分析、粒径分布等、また、化学的性状として、陽・陰イオン交換容量、重金属濃度、無機・有機炭素濃度、窒素濃度等である。

その結果、有機炭素濃度とTc-99濃度との間に高い相関($r=0.8$ 以上)が認められた。有機炭素濃度は土壤中有機物の量を表す指標であることから、Tc-99は土壤中のフミン酸等の有機物と錯体を形成して保持されているものと考えられる。

(2) カラム試験

長さ28cmのコア状表層土壤及び畑土の表面に、4価及び7価に調整したTc-95mを添着した後、蒸留水を毎日60mlずつカラム上部より滴下し、60日間展開した。そして、展開終了後に土壤を4cm刻みに7層に分割し、各層のTc-95m濃度を測定した。図-1に実験の概要を示す。

この実験の結果、表層土壤で約20%、畑土で約30%のTc-95m(7価)がカラム下端より流出してきた。土壤性状を分析した結果、供試した表層土壤及び畑土の化学的性状はほぼ同一であるが、土壤粒子の粒径分布が異なっていた。このことから、7価の化学形で地表面に供給されたTc-99は、初期段階は化学的性状ばかりでなく、物理的性状にも支配されていることが示唆された。

図-2に60日展開した後の表層土壤各層のTc-95mの濃度割合を、また、図-3に畑土各層の濃度割合を示す。表層土壤の場合、4価のTc-95mは表層下8cmまでに約80%が保持されていたが、7価のTc-95mは40%程度しか保持されていなかった。この結果から、Tc-99の保持にはTc-99の化学形が大きく関与していることが示唆された。

(3)バッチ試験

Tc-99の土壤粒子への収着因子を解析するために、図-4に示す要領でバッチ試験を結果を行った。表-1に示す。収着割合は、土壤種類が表層土壤、液性が蒸留水のときを100として規格化している。

土壤種類が中層土壤の場合、表層土壤に比べて有機物含量が約40%減少するため71に低下した。また、オートクレーブ処理を行い、生物活性を無くすると12まで低下した。液性を酸化的状態にするとTcはTcO₄⁻の化学形をとるため、土壤には収着せず10まで低下したが、反対に還元的状態にするとTcはTcO₂の化学形となるため99になった。以上の結果から、Tc-99の保持には土壤中有機物や微生物、Tc-99の化学形が関与しているものと考えられる。

(4)保持機構

以上の解析結果から、Tc-99は以下の機構で土壤に保持されているものと推測された。

- (a) 表層付近に含まれるフミン酸等の有機物と錯体を形成し保持される
- (b) 還元作用を持つ有機酸によって移行しやすい7価から不動形の4価に還元されることにより保持される
- (c) 微生物の選択摂取、または、還元作用によって保持される

2. フミン酸の化学的特性

(1)フミン酸の水素イオン交換容量

フミン酸の水素イオン交換容量は、酸塩基滴定法を用いた。ただし、水酸化ナトリウム溶液の滴下量に対するpHの変化は緩やかで、滴定曲線から水素イオン交換容量を直接決定することは困難であるため、滴定曲線の一次微分曲線のピーク位置から決定することにした(図-5)。

その結果、水素イオン交換容量は、約5meq/gと他の有機酸に比べて高い値であった。なお、いずれのフミン酸もpH=8.2が滴定の終点であった。

(2)Sr-フミン酸錯体の安定度定数とSrの水系における存在形態

Sr-フミン酸錯体の安定度定数をSchubertのイオン交換法により求めた。その結果、1:1錯体に対する安定度定数の対数は20°Cで約2.4、また、1:2錯体に対する安定度定数の対数は同じく20°Cで約4.1となり、両錯体の安定度定数には、金属イオンの脱水和過程が大きく関与していることが判明した。

本実験で得られたSr-フミン酸錯体の安定度定数を用い、Sr濃度を 1×10^{-3} M、フミン酸濃

度を2 ppmと仮定し錯体の形成割合を試算すると、Sr²⁺の全量の2%がフミン酸錯体を形成することになる。従って、地下水等の水系におけるSrはSr²⁺として溶存態で存在するものと推測された。

3. 地中移行モデルの基礎概念

(1) 環境影響評価上注目すべき核種の土壤環境における移行速度

トリチウム(H-3)は、HTOの形態で存在する場合は、土壤水分とともに移行するため、その移動速度は速く、水分の移行速度と同じであると考えられる。

テクネチウム-99(Tc-99)は、酸化的雰囲気下ではTcO₄⁻のイオン形で存在するため、地質媒体への収着性が低く、移行速度は速い。しかし、還元的雰囲気下ではTcO₂という化学形で存在するため、van der waals 力による収着や有機物との共沈反応が起こり移行速度は遅くなる。コア状土壤試料を採取し、Tc-99の鉛直分布を調べたところ、表層下10cmまでに90%以上が保持されていた。このことから、Tc-99はTcO₂の化学形に変換されたか、または、有機質と錯体を形成し、保持されているものと考えられる。

ヨウ素-129(I-129)は、土壤水中では主にI⁻及びIO₃⁻の化学形で存在し、IO₃⁻は収着性が高い⁽¹²⁾。

ストロンチウム-90(Sr-90)の土壤水中における存在形態は、2価の陽イオンであり、土壤への収着はイオン交換性であると考えられる⁽¹³⁾。従って、表層土壤中における移行速度は速く、フィールドデータからも、セシウム-137やプルトニウム-239,240に比べ移動速度が速いことが確認された。

セシウム-137(Cs-137)は、土壤水中では1価の陽イオンとして存在し、イライト等の粘土に特異的に収着されることが知られており⁽¹⁴⁾、また、有機物-粘土複合体への収着も考えられる⁽¹⁵⁾。ほとんどの土壤は粘土成分を含有しているため、Cs-137の移行速度は遅い。

プルトニウム-239,240(Pu-239,240), アメリシウム-241(Am-241)及びネプツニウム-237(Np-237)等のアクチニド系列の元素は、土壤水中で加水分解、酸化還元反応、有機物との結合等の反応を受けやすく、様々な原子価数や物理形態をとる。特に土壤環境における移行挙動に関連して注目されるのは、これらの元素と有機酸との相互作用であり^{(16) (17)}、有機酸は表層付近に多く存在するため、アクチニド系列元素の移行速度は遅いと言える。

(2) 環境影響評価上注目すべき核種の土壤から植物への移行係数

H-3は多くの場合、水の形で環境中に存在するので、雨水、地下水等に含まれ、これらを通して植物に吸収される。この間の移行速度はかなり速く、降水中の濃度が植物中の濃度に反映される場合が多い⁽¹⁸⁾。土壤から植物中への移行係数としてはNRC Regulatory Guide 1-109では4.8、IAEA TECDOC-401では5と報告されている。

Tc-99の移行係数は、その化学形によって大きく異なる。酸化的雰囲気ではイオン形であるため、植物に吸収されやすいが、還元的雰囲気では不溶形となり、移行係数は小さくなる。現在の環境中におけるTc-99濃度は極めて低いため従来の放射能測定法では定量が困難であり、移行係数はトレーサ試験の結果を基に算出されている。その結果、10⁻²～10²と高い値であると考えられていたが⁽¹⁹⁾、誘導結合プラズマ質量分析装置を用いた高感度定量法を用いて取得したフィールドデータから試算したところ、2×10⁻³以下と他の核種と同等であることが確認された。これは、実環境中では7価のTc-99を4価に還元する因子や錯体を形成する因子が関与しているためであると考えられる。

I-129の移行係数は広い範囲に分散している。NUREG/CR⁽²⁰⁾では $2.0 \times 10^{-4} \sim 1.2 \times 10^{-1}$ 、NCRPでは⁽²¹⁾ $2.2 \times 10^{-4} \sim 4.9 \times 10^{-2}$ としている。日本では米が主食であるため、水稻に対する移行係数が重要なパラメータとなる。湛水期間を模したトレーサ試験により移行係数を試算したところ、 $2.0 \times 10^{-3} \sim 3.0 \times 10^{-3}$ であった。

Sr-90の移行係数はNCRPでは $1.6 \times 10^{-3} \sim 1.7 \times 10^0$ としている。Sr-90は土壤粒子に吸着しにくいため、可給態として取り込まれやすいものと考えられる。

Cs-137の移行係数はNCRPでは $1.5 \times 10^{-5} \sim 2.9 \times 10^{-1}$ としている。分散の範囲は広いが、植物種ごとに整理すると、約2桁の範囲に納まる⁽²²⁾。Cs-137はSr-90に比べ土壤粒子への吸着能が高いため、Sr-90に比べ取り込まれにくくと考えられる。

アクチニド系列元素のうち、Pu-239の移行係数はNCRPでは $1.2 \times 10^{-7} \sim 2.0 \times 10^{-2}$ としている。核実験により生成されたPu-239は酸化物が主であるため、不溶性であり、移行係数は小さくなる。

(3)地中移行モデルの概念検討

土壤中における物質の移動は、土壤中の水の移動、特に表層の不飽和土壤中の水の移動に支配されていることから、水移動モデルの基礎的情報を収集し、概念について検討した。一般的に帶水層に達するまでの不飽和土壤中の水の移動は、地表面における蒸発や、植生による蒸散とともに根からの吸水に強く影響される。また、これらの蒸発・蒸散作用は、日射や気温、湿度、風などの大気の状況によって左右されることから、これらを考慮した水移動モデルに必要とされる項目を抽出、整理した。基本的なサブモデルの構成を以下に示す。

(a)土壤系

- ・土壤中の水分移動；Richardsの浸透方程式
- ・土壤中の熱移動；温度移流拡散式

(b)大気－植生系

- ・微気象；風速、気温、水蒸気量
- ・植生からの蒸散
- ・熱の移動；移流拡散式

(c)土壤－大気系

- ・気象；風速、気温、水蒸気量、降水、蒸発
- ・熱の移動；移流拡散式

(d)土壤－植生系

- ・葉系；熱交換、蒸散による水蒸気交換、葉面での熱収支
- ・茎幹系；水ポテンシャル
- ・根系；土壤－根間の浸透現象

このモデルで評価された水の移動に、さらに、物質の移動を評価するモデルを組み込むことによって、目的とする環境中に放出された物質の移動を評価することができる。

物質移動モデルに必要とされる項目と、基本的なサブモデルの構成を以下に示す。また、物質移動モデルの概念を図-6に示す。

(a)土壤系

- ・物質の移動；移流拡散式
- ・土壤と物質の反応；土質の吸着、脱離への影響、物質の化学形

- ・水の移動；水みち
- ・熱の移動；移流拡散式

(b) 土壌－植生系

- ・植物による物質の取り込み；可給態

4. まとめ

- (1) 土壤の性状とTc-99濃度との相関を調べた結果、有機炭素濃度とTc-99濃度との間に高い相関が認められた。この結果から、Tc-99の保持には土壤中有機物が関与しているものと考えられた。
- (2) カラム試験の結果、Tc-99の移行速度にはTc-99の化学形が関与していることが示唆された。また、地表面に沈着した直後は、土壤の粒径分布の影響も受けることがわかった。
- (3) バッチ試験の結果、Tc-99の保持には土壤中有機物、微生物活性、Tc-99の化学形が関与しているものと考えられた。
- (4) フミン酸の水素イオン交換容量の測定法を開発した。実試料を測定した結果、約5 meq/gと他の有機酸に比べて高い値であった。
- (5) Sr-フミン酸錯体の安定度定数を測定したところ、安定度定数には金属イオンの脱水和過程が関与していることがわかった。
- (6) 実試料の安定度定数を測定し、水系における存在形態を調べたところ、Srは溶存態で存在するものと推測された。
- (7) H-3及びSr-90は土壤中における移行速度が速く、Cs-137及びPu-239, 240は遅いことがわかった。また、Tc-99は理論的には移行速度は速いが、実環境中においては遅いことがわかった。
- (8) 土壤への収着能が高いCs-137, Pu-239, 240等の核種は、植物が摂取できないため（非可給態）移行係数が小さくなる傾向が認められた。
- (9) 水移動モデル及び物質移動モデルの概念が構築できた。

主要レポート

- (1) 森田重光、飛田和則、地中における放射性核種の移行調査、日本原子力学会93年会要旨集（1992）
- (2) 今泉謙二、森田重光、環境試料中Tc-99 及びNp-237の水準調査について、第27回日本保健物理学会研究発表会要旨集（1992）
- (3) Morita, S., Tobita, K., Determination of Technetium-99 in environmental samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry., Radiochimica. Acta., 63 (1993)
- (4) 森田重光、飛田和則、長半減期放射性核種の土壤環境中における挙動について、日本保健物理学第29回研究発表会要旨集（1993）
- (5) 森田重光、片桐裕実、長半減期放射性核種の土壤環境中における移行挙動について、原子力基盤技術中間報告書（1994）
- (6) Morita, S., Watanabe, H., Study on distribution and behavior of long-lived radionuclides in surface soil environment., Int. Workshop Improv. Environ. Transfer Models (1995)
- (7) 片桐裕実、森田重光、長半減期放射性核種の表層土壤環境における分布と挙動、移行パラメータシンポジウム（1995）
- (8) 森田重光、渡辺 均、土壤環境中における長半減期核種の移行挙動について、京都大学原子炉実

験所シンポジウム (1995)

- (9) 片桐裕実, 森田重光, 土壤-植物系での放射性核種の挙動に関する研究, 原子力工業 8月号
(1996)
- (10) 森田重光, 渡辺 均, 放射性核種の土壤環境中における分布と挙動, 日本原子力学会春の大会
(1996)
- (11) Morita, S., Watanabe, H., Study on behavior of Technetium-99 in soil environment.,
Proceedings of ICRP (1996)

参考文献

- (12) Couture, R. A., Seitz, M.G., Sorption of anions of iodine by iron oxides and kaoline,
Nucl. Chem. Waste Manage., Vol.4 (1983)
- (13) 福井正美, 桂山幸典, 鮫和砂層内CsおよびSrイオンの吸着モデルに関する研究, 土木学会論文報告集, 第254号 (1976)
- (14) Tamura, T., Jacobs, D.G., Structural implications in cesium sorption, Health Physics,
Vol.2 (1960)
- (15) Thiry, Y., Myttenaere, C., Behavior of radio cesium in forest multilayerd soils,
J. Environ. Radioact., Vol.18 (1993)
- (16) Livens, F. R., Singleton, D. L., Plutonium and americium in soil organic matter,
J. Environ. Radioact., Vol.13 (1991)
- (17) Livens, F. R., Baxter, M. S., Chemical associations of artificial radionuclides in
Cambrian soils, J. Environ. Radioact., Vol.7 (1988)
- (18) 徳山秀樹, 泉昭夫, 福井県敦賀地区における陸上試料中のトリチウム濃度, 第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (1992)
- (19) 渡部輝久, 鎌田 博, テクネチウムのラジオエコロジー, 保健物理, Vol. 20 (1985)
- (20) Thompson, S. E., Soil-to-plant concentration factors for radiological assessments,
NUREG/CR-2975 (1982)
- (21) NCRP Report 76 (1984)
- (22) 内田滋夫, 大桃洋一郎, 土壤から農作物への放射性物質の移行係数, 環境パラメータシリーズ1,
原子力環境整備センター (1988)

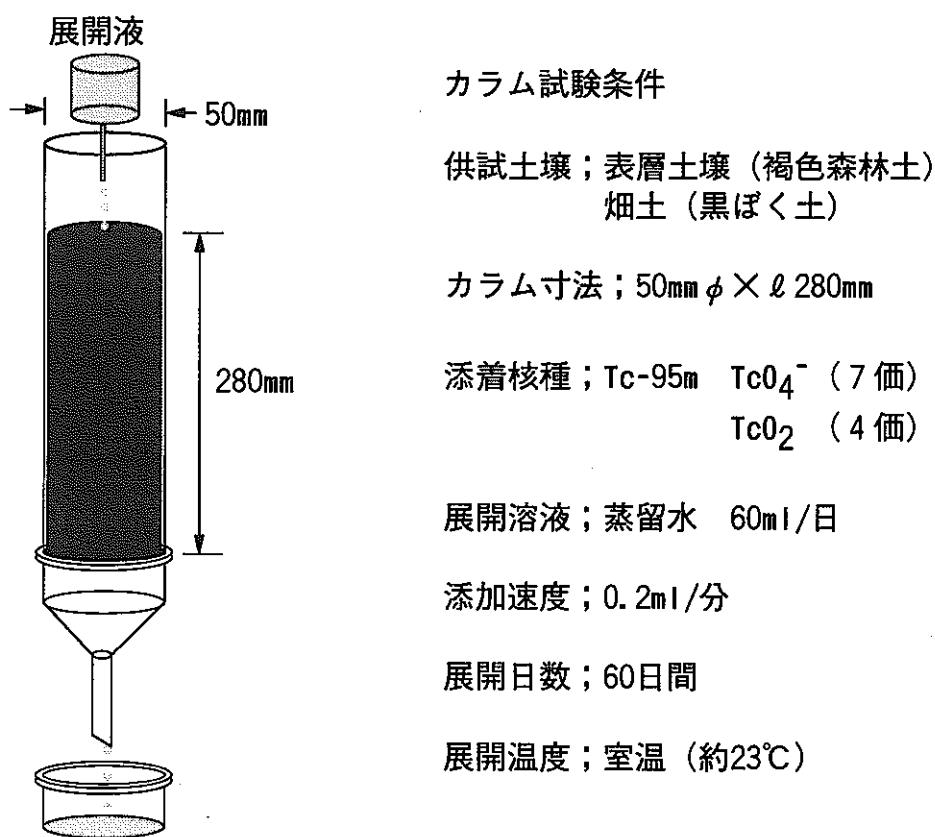


図-1 Tc-95mによるカラム試験の概要

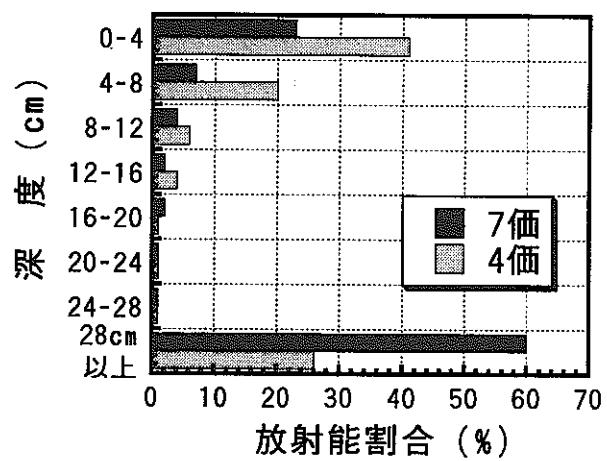
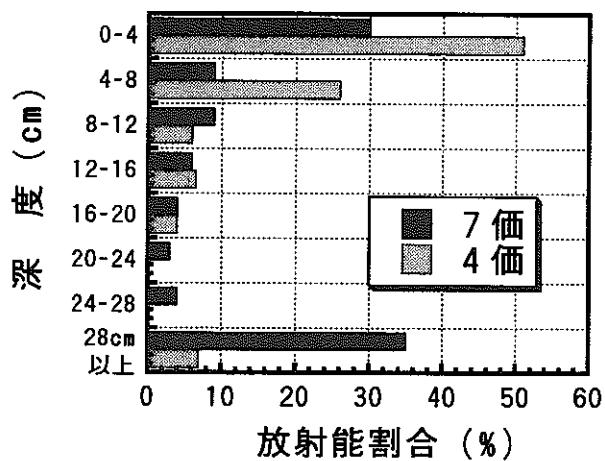
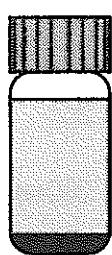


図-2 カラム試験結果 (表層土壤)

図-3 カラム試験結果 (畠土)

バッチ試験条件



添加核種；Tc-95m
 溶液量；30ml
 溶液濃度；0.5Bq/ml
 土壤試料量；2g
 接触時間；20日

土壤種類；表層土(0-5cm)
 中層土(25-30cm)
 煙土(0-5cm)
 表層土(オートクレーブ処理)

液性；蒸留水
 蒸留水+過酸化水素水
 蒸留水+塩酸ヒドロキシルアミン

図-4 Tc-95mによるバッチ試験の概要

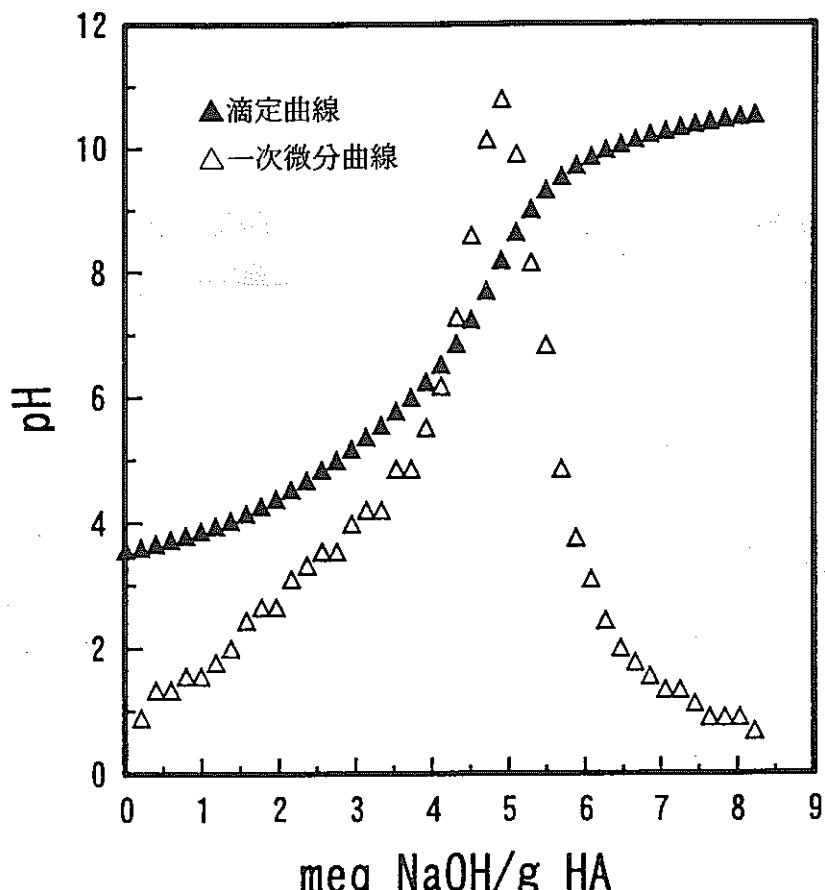


図-5 フミン酸の水素交換容量に対する滴定曲線

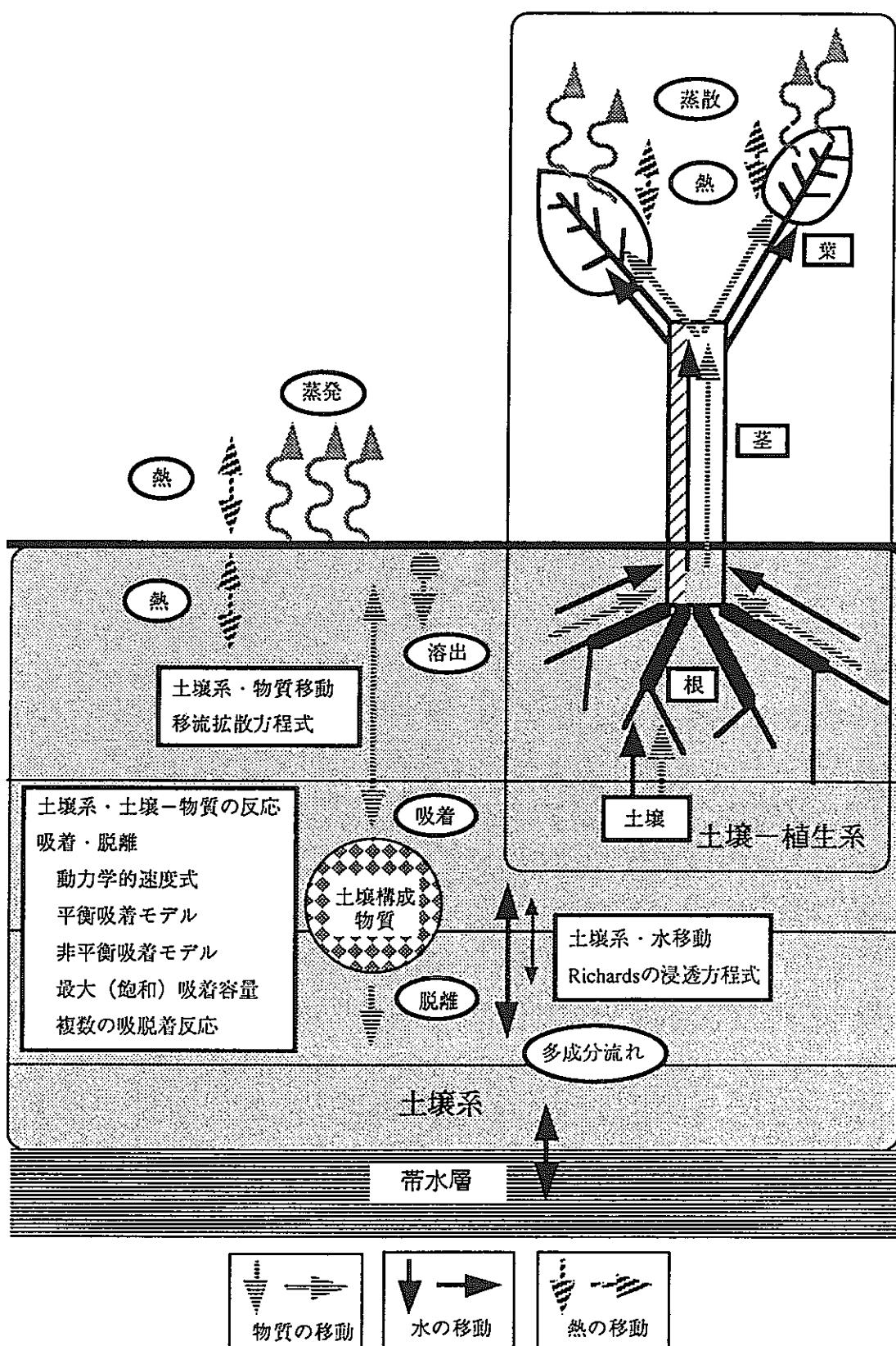


図-6 物質移動モデルの概念

表 - 1 Tc-95mのバッヂ試験結果

土壤種類	Tc原子価	吸着割合
表層土壤(0-5cm)	VII価	100
中層土壤(20-30cm)	VII価	71
表層土壤(オ-トル-ブ処理)	VII価	12
表層土壤(強制酸化)	VII価	10
表層土壤(強制還元)	IV価	99