

環境放射能安全研究成果報告書

(昭和61年度～平成2年度)

1992年2月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

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。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technology Management section Tokai Works Power Reactor and Nuclear
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)1992

公開資料
PNC TN8410 92-022
1992年 2月

環境放射能安全研究成果報告書
(昭和61年度～平成2年度)

新谷 貞夫

要旨

東海事業所安全管理部環境安全課では、再処理施設周辺環境中における各種放射能の挙動及びその影響を把握し、施設周辺住民の健康の確保、環境の保全等安全の確認に関する技術及び知見を一層充実する観点から、環境放射能安全研究を実施してきている。

本報告書は、昭和61年度から平成2年度に当課において実施した環境放射能安全研究のうち、10テーマの成果を取りまとめたものである。

安全管理部環境安全課

COMMERCIAL PROPRIETARY
PNC TN8410 92-022
Feb. 1992

SUMMARY REPORT ON THE ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY
RESEARCH AT PNC TOKAI WORKS

1986 - 1990

Sadao Araya

ABSTRACT

The environmental radioactivity research at PNC Tokai works has been intended to improve the radiation monitoring and the radiation dose assessment methods for Tokai reprocessing plant.

This report summarizes the results of ten themes of research performed at Environmental Protection Section of Health and Safety Division from 1986 to 1990.

— 目 次 —

1.環境試料中炭素-14の測定法に関する研究	----- 1
渡辺 均、圓尾好宏、篠原邦彦	
2.環境試料中テクネチウム-99の測定法に関する研究	----- 9
森田重光、住谷秀一、圓尾好宏、坪 憲、篠原邦彦	
3.環境試料中ネプツニウム-237の測定法に関する研究	----- 17
森田重光、圓尾好宏、坪 憲、篠原邦彦	
4.環境中におけるトリチウムの分布と挙動に関する研究	----- 22
住谷秀一、清水武彦、圓尾好宏、篠原邦彦	
5.環境中ヨウ素-129の分布に関する研究	----- 30
清水武彦、吉田美香、圓尾好宏、篠原邦彦	
6.環境中プルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動に関する研究	----- 34
渡辺 均、森澤正人、圓尾好宏、篠原邦彦	
7.環境中におけるヨウ素の移行に関する研究	----- 43
清水武彦、吉田美香、圓尾好宏、篠原邦彦	
8.大気放出放射性物質の沈着・再浮遊に関する研究	----- 46
並木 篤、清水武彦、圓尾好宏、篠原邦彦	
9.放射性物質の海洋放出に伴う被ばく線量評価法に関する研究	----- 50
住谷秀一、圓尾好宏、篠原邦彦	
10.再処理施設平常運転時被ばく線量評価法に関する研究	----- 57
叶野 豊、飛田和則、篠原邦彦	

1. 環境試料中炭素-14の測定法に関する研究

安全管理部環境安全課
渡辺 均、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

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

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

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

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

II. 研究成果

1. ^{14}C 測定法の検討

(1) 試料の採取前処理法

(i) 大気中 CO_2 の捕集法

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

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

(ii) 精米、葉菜、牛乳の前処理法

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

(2)測定法の検討

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

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

(i)簡易測定法

(a)試料調製

図-2に、簡易測定法における測定試料調製のための CO_2 吸収装置を示す。

測定試料の調製は、試料の CaCO_3 24gをフラスコに入れ、窒素ガスを流しながら HClO_4 を滴下し、 CaCO_3 を分解して CO_2 を生成させた。

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

(b)測定

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

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

(ii)ベンゼン合成法

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

(a)ベンゼン合成操作

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

(b)測定

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

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

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

2. 水準調査結果

(1)大気中CO₂の測定結果

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

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

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

(2)葉菜の測定結果

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

(3)牛乳の測定結果

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

(4)精米の測定

(i)精米の経年変化

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

(ii)精米の広域調査

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

3. 考察

- (1) 簡易測定法は、測定試料の調製に要する時間が1試料当たり1時間程度ですみ、迅速な測定法といえる。しかし、その測定精度は環境中の¹⁴Cのレベルを測定するのには有効であるが、環境中における微小変動を的確に把握する目的にはさらに精度を高める必要がある。
- (2) ベンゼン合成法は、試料の調製に約1.5日程度の時間が掛かるが、その検出感度については現在の¹⁴Cのレベルに対し3桁以下であり、また、変動係数が1%以下と高い再現性が得られていることから、環境中での¹⁴Cの挙動評価を行うための

手法として極めて有効な方法であることが確認された。

- (3) 環境中¹⁴Cの水準調査として、大気中CO₂、葉菜、牛乳について、東海村、勝田市、那珂町で調査を行ったが、試料の種類、採取地に係わらず現在の¹⁴Cのレベルとしては約16 dpm/g・炭素であった。

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

III.まとめ

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

- (1) 環境モニタリング手法として開発した簡易測定法は、操作が簡便で試料調製時間も短くてすむが、その測定精度は環境レベルの変動を把握するには適さないことが分かった。
- (2) 精密測定法として導入したベンゼン合成法は、その測定精度の高さから環境中の¹⁴Cの挙動評価を行う上で、極めて有効な方法であることを確認した。
- (3) 水準調査を行った環境試料中の¹⁴Cのレベルは、大気中CO₂、精米、葉菜、牛乳とも、約16dpm/g・炭素であった。

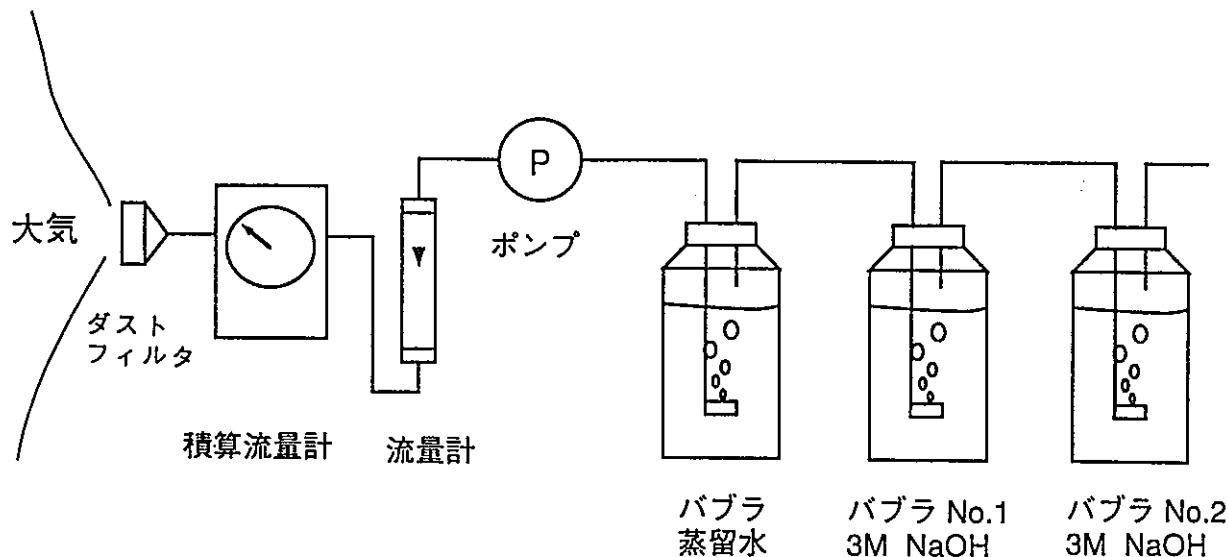


図-1 大気中CO₂捕集装置

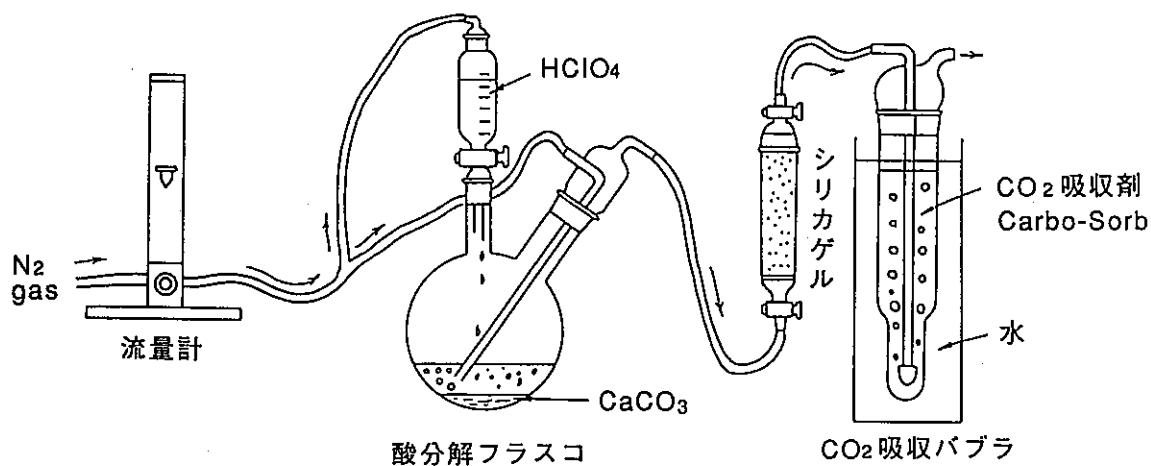


図-2 CO₂吸収装置(簡易測定法)

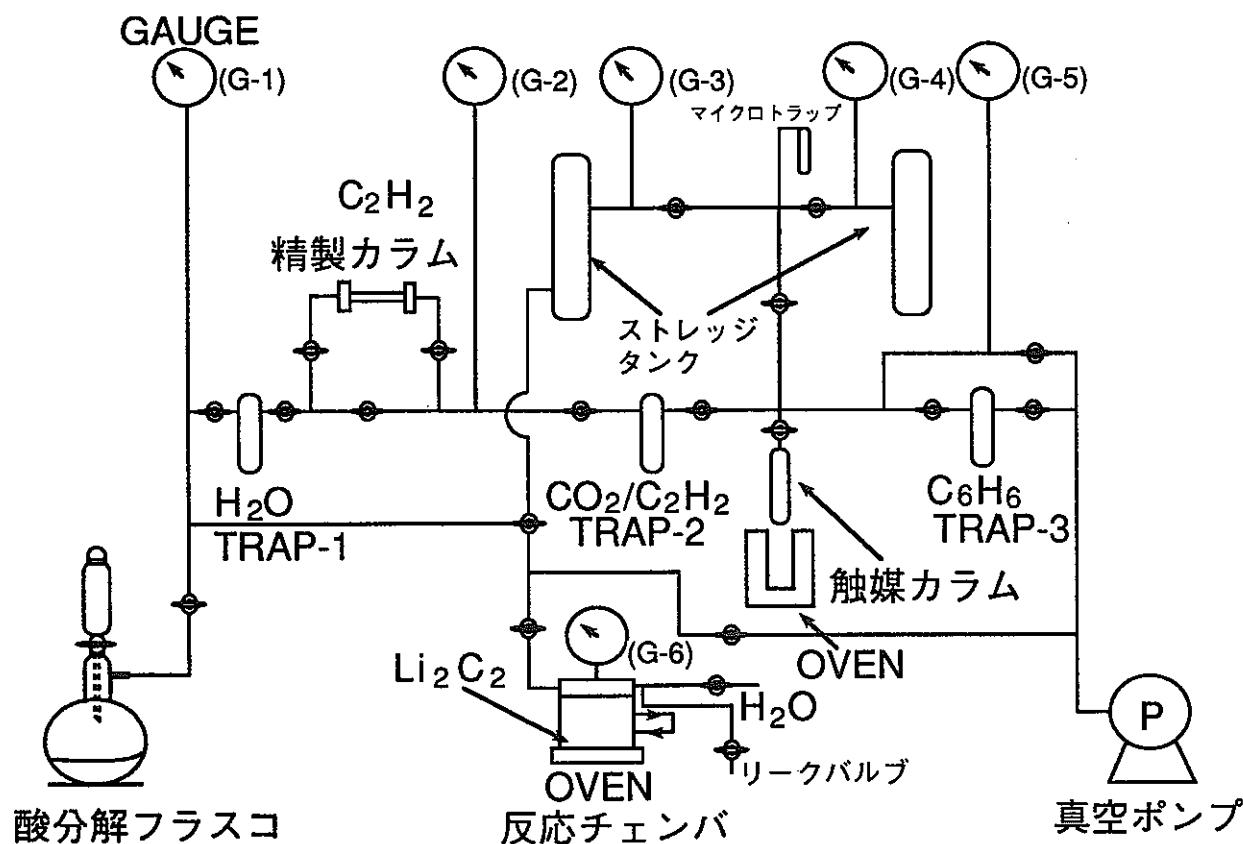
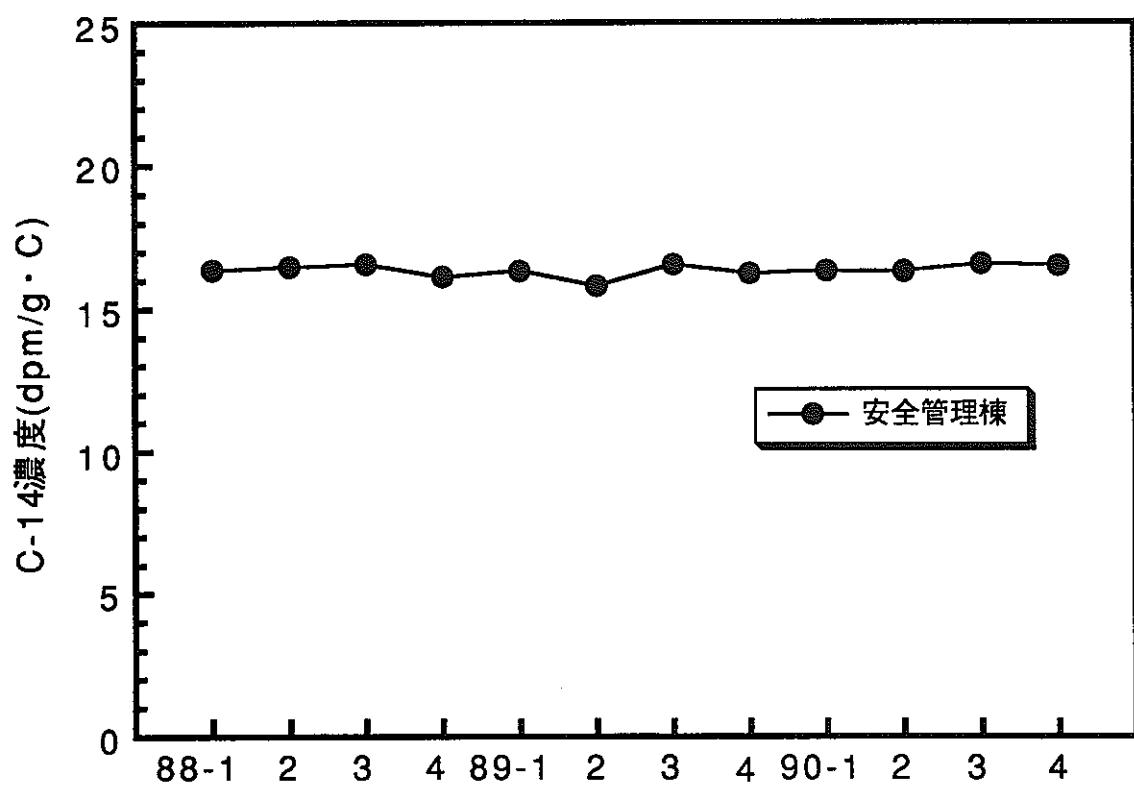


図-3 ベンゼン合成装置系統図

図-4 大気 CO_2 中のC-14濃度

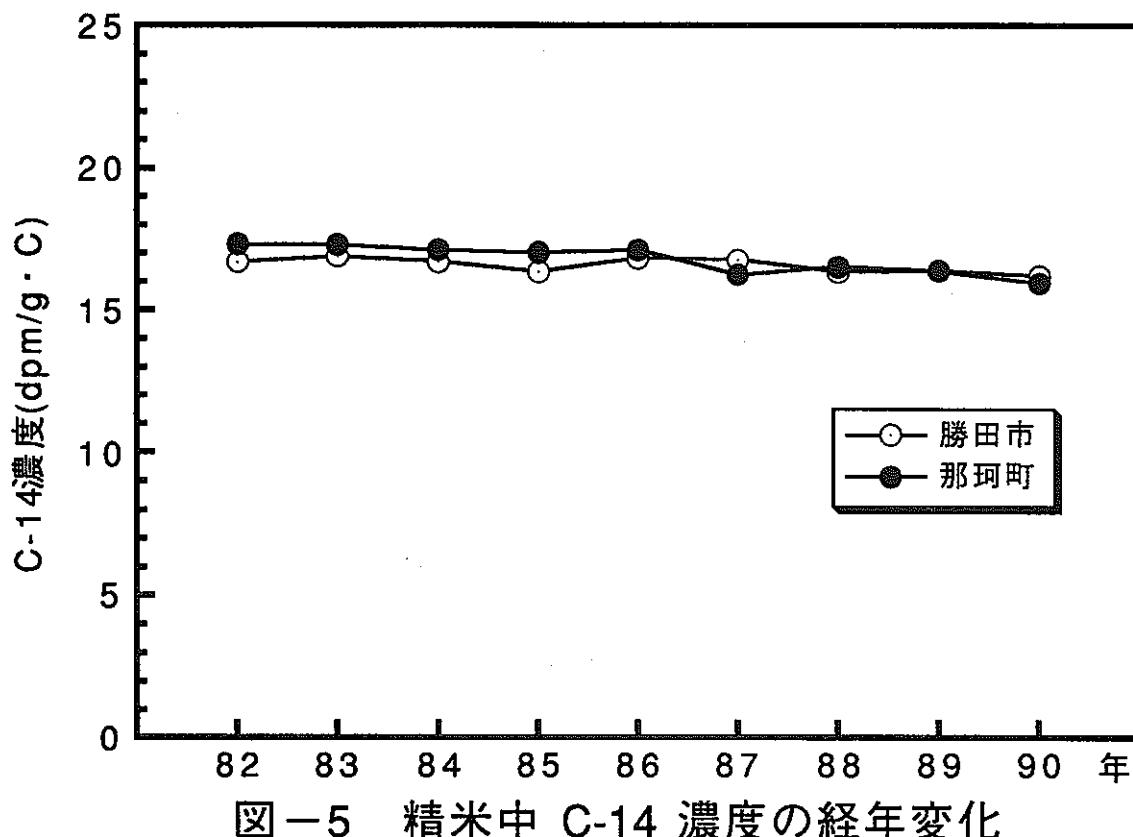


図-5 精米中 C-14 濃度の経年変化

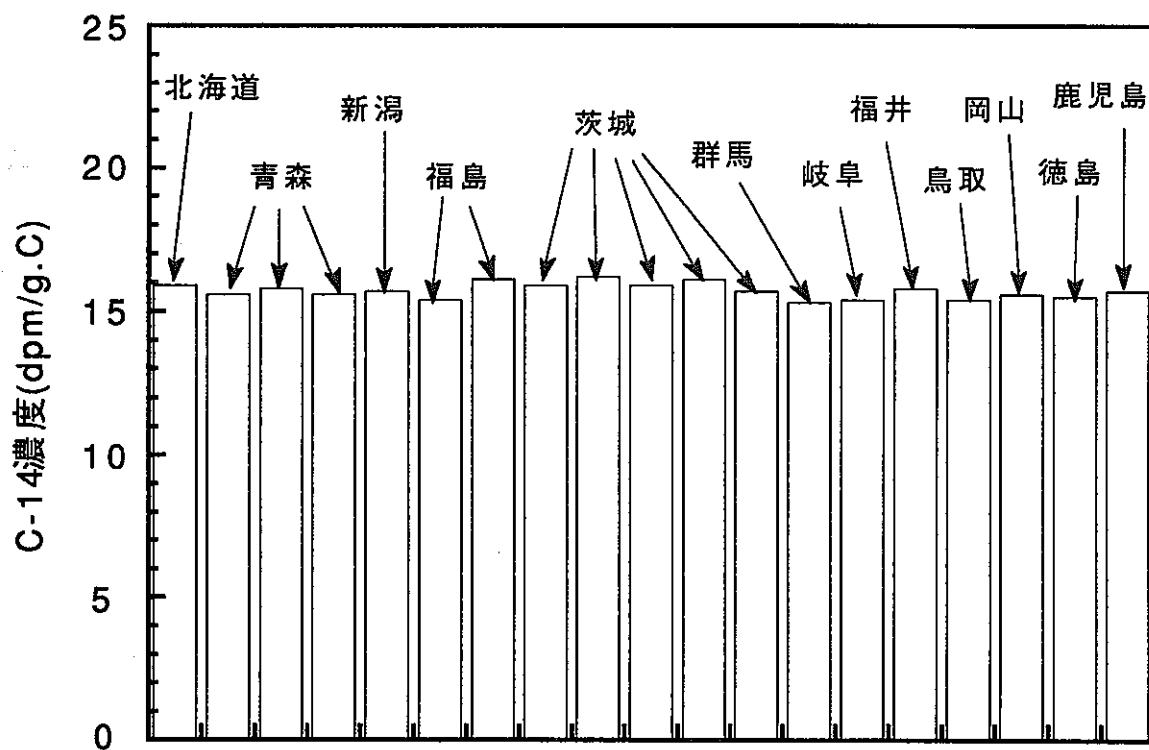


図-6 1990産日本各地の精米中 C-14濃度

表-1 葉菜中 C-14 測定結果 (ベンゼン合成法)

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

表-2 牛乳中 C-14 測定結果 (ベンゼン合成法)

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

2. 環境試料中テクネチウム-99の測定法に関する研究

安全管理部環境安全課

森田重光、住谷秀一、圓尾好宏、坪 憲、篠原邦彦

I. 研究内容

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

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

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

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

II. 研究成果

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

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

(1) 海藻及び土壤試料の乾燥条件

試料として海藻（アラメ）10gをビーカに取り、トレーサとして ^{95m}Tc を既知量添加した後、温度を変えて乾燥し、乾燥後、 ^{95m}Tc が放出する γ 線をGe半導体検出器で測定し、回収率を求めた。

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

(2) 灰化条件

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

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

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

なお、灰化温度及び灰化時間を最適化する実験を行った結果、550°Cで20時

間灰化すれば、損失を最小限にできることが判明した。

(3) 妨害核種の除去

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

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

(4) 電着時間

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

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

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

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

海水中の⁹⁹Tcを定量するに当たって、以下の予備実験を行った。

(1) ⁹⁹Tcの前濃縮法

海水中の⁹⁹TcはTcO⁴⁻の化学形で存在することから、陰イオン交換樹脂に吸着することが知られている。そこで、海水500lに^{95m}Tcを添加した模擬試料を調製し、陰イオン交換樹脂への捕集効率を検討した。

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

(2) 妨害核種の除去

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

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

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

3. 低バックグラウンドガスフローカウンタを用いた実試料の定量

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

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

よって、このレベルが日本近海におけるバックグラウンドであると考えられる。

4. 液体シンチレーションカウンタを用いた定量法の開発

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

このため、液体シンチレーションカウンタを用いた定量法を検討した。

(1) 測定試料の調製

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

(2) 測定条件の設定

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

5. 誘導結合プラズマ質量分析計を用いた定量法の開発

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

このため、ICP-MSを用いた⁹⁹Tc 定量法の開発を検討した。

(1) 測定試料の調製

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

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

ICP-MSを用いた環境試料中の⁹⁹Tc の定量法を図-3に示す。

(2) 検出下限値

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

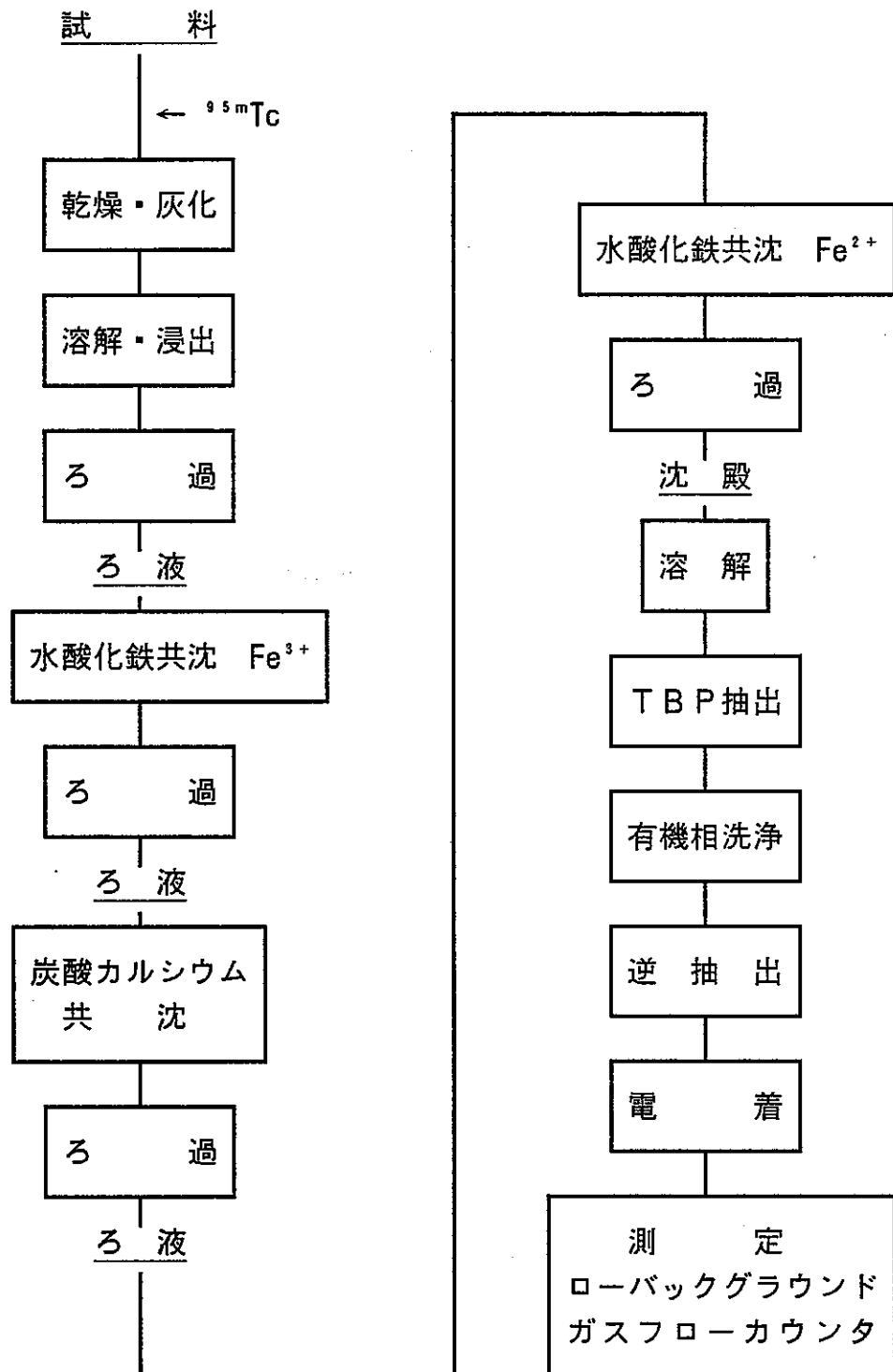
III. まとめ

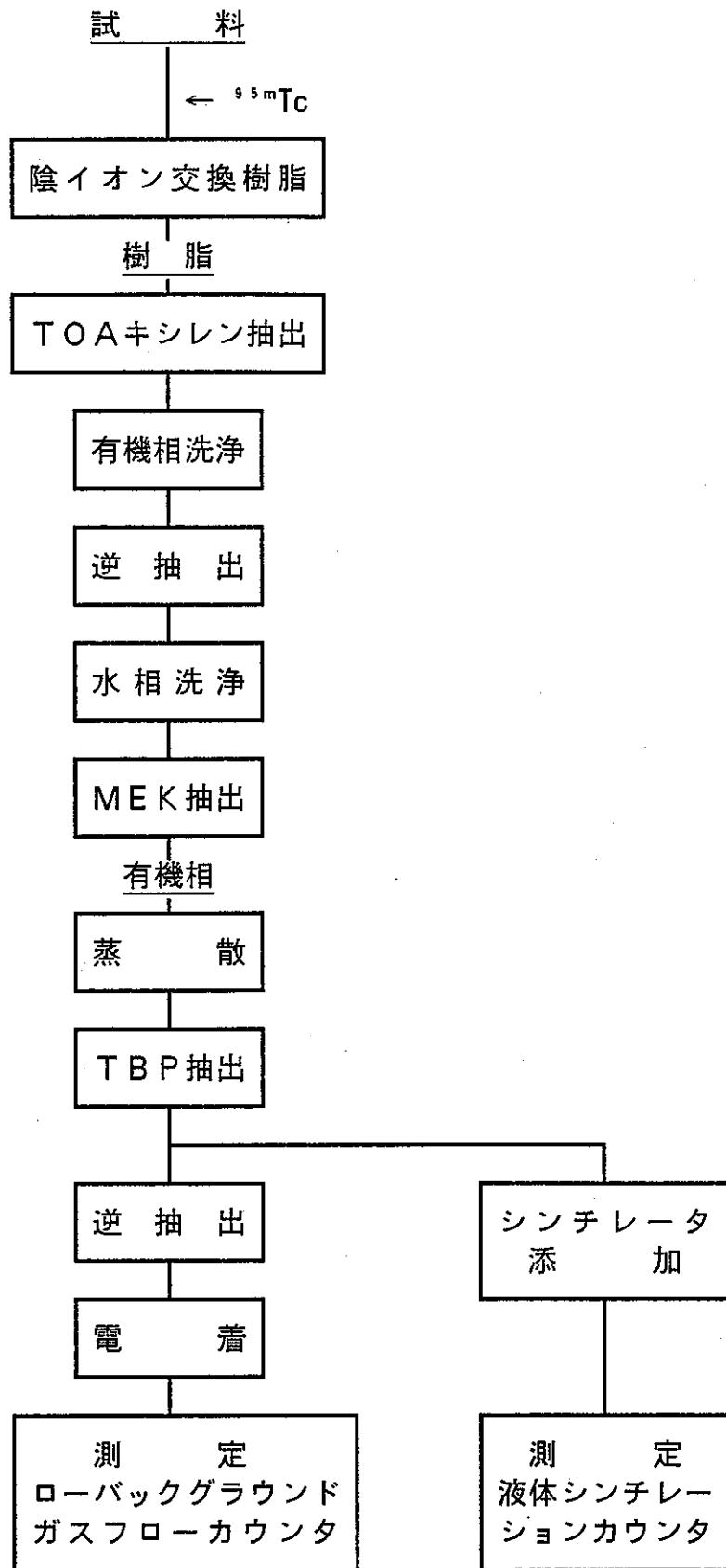
1. 試料の前処理法、妨害核種の分離法、分離後の処理法（電着法）及び低バックグラウンドガスフローカウンタによる測定をそれぞれ検討した結果、海藻や海水等の環境試料中の⁹⁹Tcを高感度に定量することが可能となった。
2. 海水と海藻について、実試料中の⁹⁹Tc濃度を定量した結果、いずれの定量も既に報告されている値と一致しており、この値が日本近海におけるバックグラウンドレベルであると考えられた。
3. 液体シンチレーションカウンタを用いた定量法の開発を行った結果、マトリックス元素の少ない海水や排水試料の測定は可能であったが、マトリックス元素を多量に含んでいる海藻や土壤試料の測定は、クエンチングが生じ不可能であった。
4. ICP-MSで⁹⁹Tcを定量する際妨害となる⁹⁹Ruの除去法を検討した結果、10⁵以上の除染係数が得られる分離・精製法を開発した。本定量法は、従来の放射能測定法と比べ検出感度は10倍以上向上し、また測定時間も1/10,000程度に短縮された。

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

IV. 参考文献

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

図 - 1 海藻中 ^{99}mTc の分析法

図 - 2 海水中⁹⁹Tcの分析法

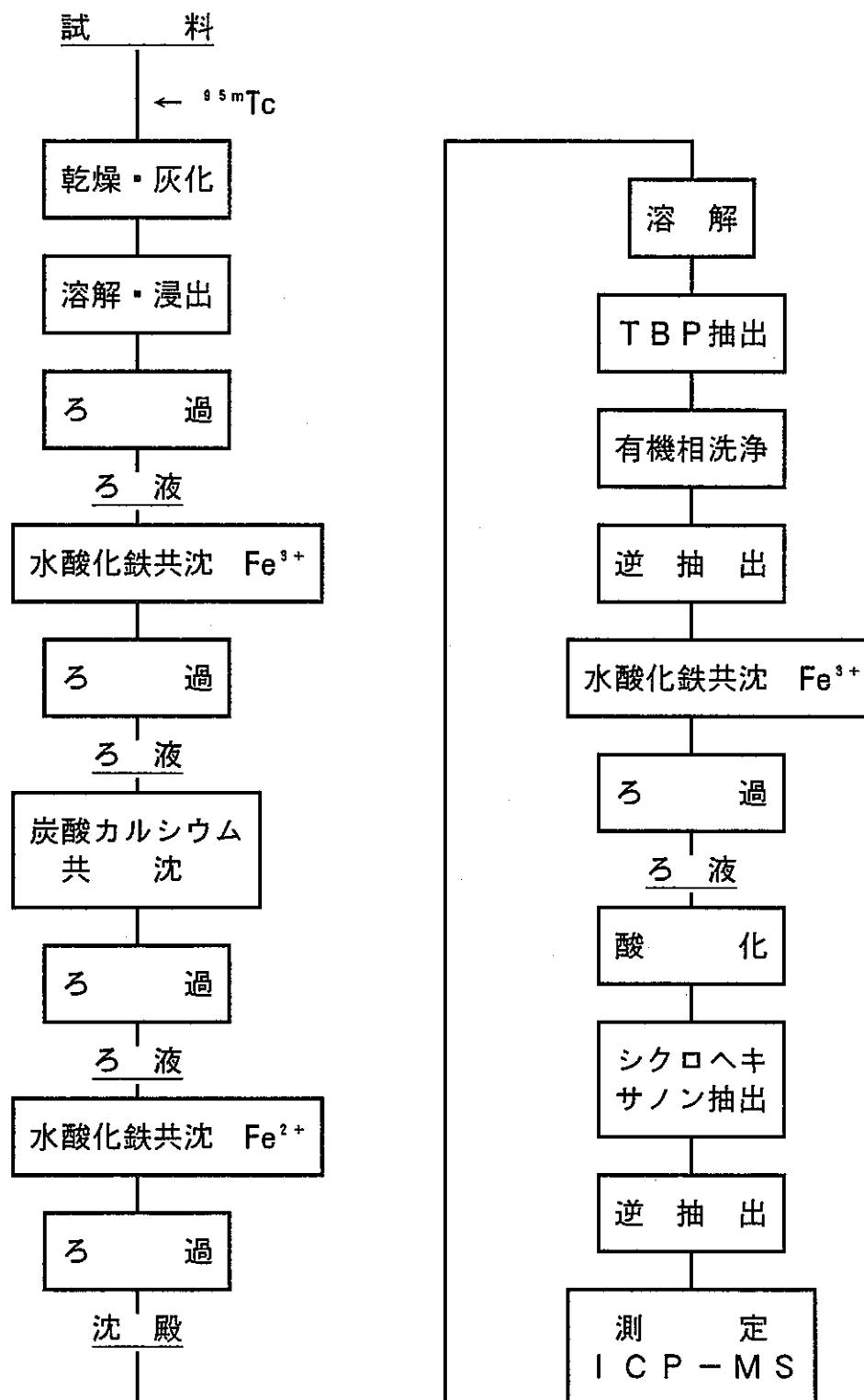


図 - 3 I C P - M S を用いた
環境試料中 ^{99}mTc の分析法

表—1. 海藻中の⁹⁹Tc濃度

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

表—2. 海水中の⁹⁹Tc濃度

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

N.D.：検出下限未満

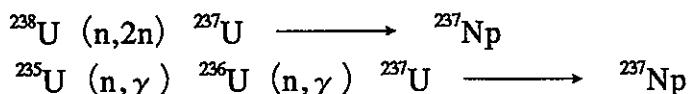
3. 環境試料中ネプツニウム-237の測定法に関する研究

安全管理部環境安全課

森田重光、圓尾好宏、坪 憲、篠原邦彦

I. 研究内容

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



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

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

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

II. 研究成果

1. α 線スペクトロメトリによる定量

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

このため、以下に示す検討を行い、妨害核種を除去した。

(1) 環境試料の前処理

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

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

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

(2) 回収率トレーサーの検討

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

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

(3) 妨害核種の除去

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

そこで、Uを効率よく除去するため、以下の方法について検討した。

(i) 陰イオン交換法

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

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

(ii) 溶媒抽出法

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

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

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

2. 系統分析法の開発

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

(1) ^{99}Tc の分離

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

このため、水酸化鉄共沈法による ^{99}Tc の分離法を検討した。

(2) $^{239,240}\text{Pu}$ の分離

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

以上の結果から、図-2に示す系統分析法を開発した。なお、本法で定量した場合の ^{237}Np の検出下限値は、水試料10l、回収率80%、測定時間20万秒の場合 $4.5 \times 10^{-8}\text{Bq}$ であった。

3. 誘導結合プラズマ質量分析法による定量

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

高く、さらに、測定時間が短いという優れた特徴を持つ分析法である。

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

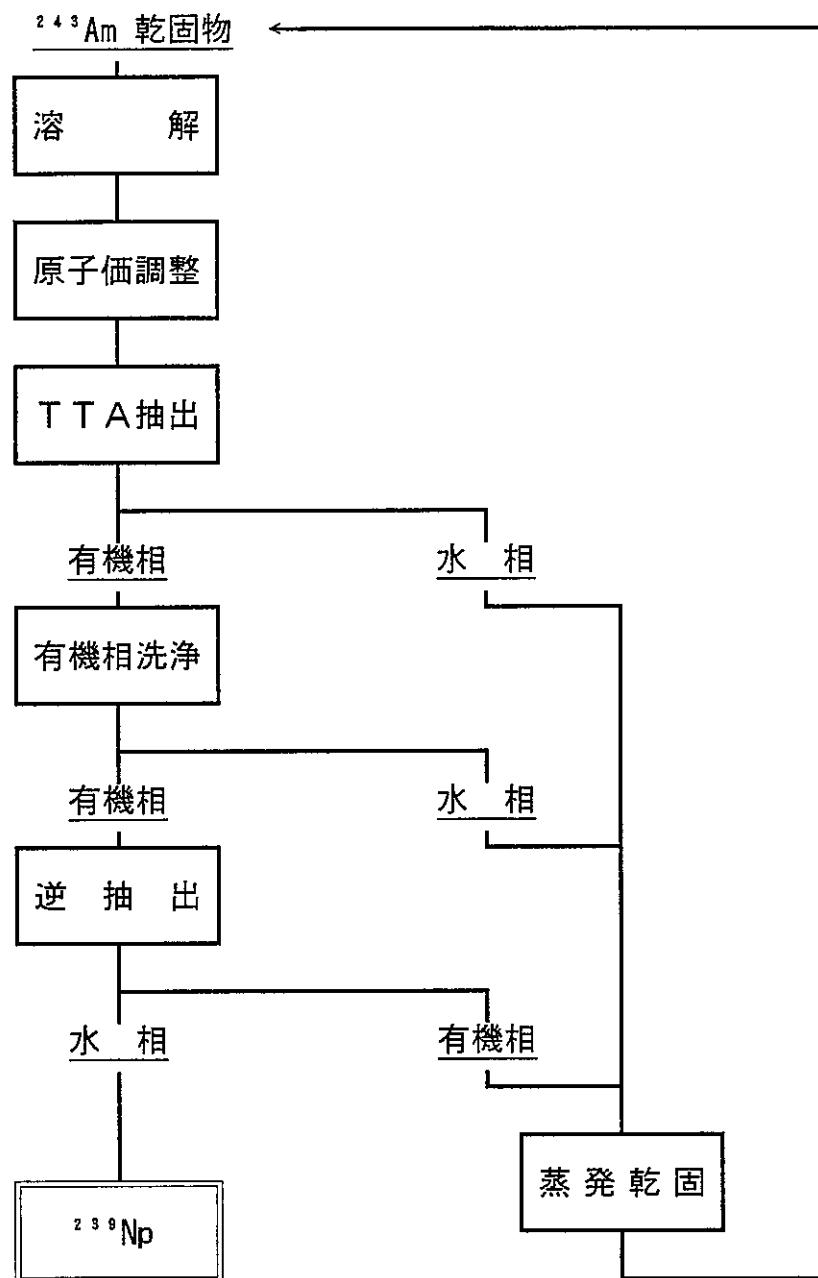
妨害核種の除去法は「 α 線スペクトロメトリを用いた定量法」に準じるが、さらにUを除去するために、酢酸系の陰イオン交換カラムを2段とした。

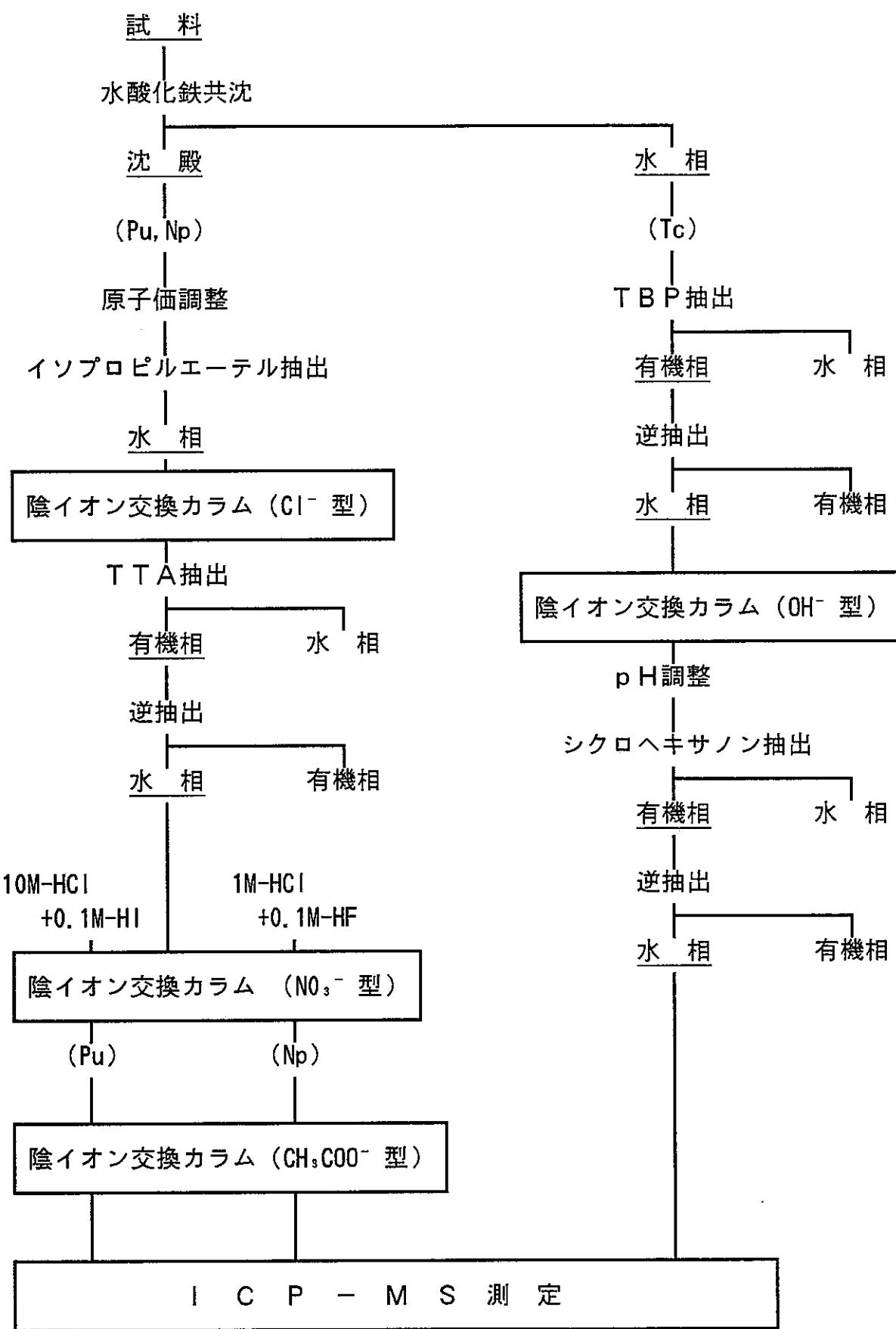
人工海水に²³⁷Npを添加した模擬試料を調製し、分析した結果、検出感度は従来の放射能測定法と比べ10倍以上向上し、検出下限値は、水試料 1 l、回収率80%、測定時間20秒の場合、 3.9×10^9 Bqであった。

III. まとめ

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

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

図 - 1 ^{239}Np の分離・精製法

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

4. 環境中におけるトリチウムの分布と挙動に関する研究

安全管理部環境安全課

住谷秀一、清水武彦、圓尾好宏、篠原 邦彦

I. 研究の概要

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

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

II. 研究成果

1. 大気中トリチウム (HTO、HT) の挙動

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

(1)水蒸気状トリチウム (HTO) の挙動

東海事業所敷地内1点 (ST-1) 及び敷地外1点 (ST-3) における大気中HTO濃度の経年変化を図-1に示す。図から大気中HTO濃度は、両地点とも夏期の多湿時期に高く、冬期の乾燥時期に低くなる傾向を示し、大気中湿分の影響を強く受けていることが分かる。その変動範囲は、6.3～110mBq/m³であった。また、HTO濃度を大気水分で見ると、図-2に示すとおり大気中HTO濃度変化のような明瞭な季節的な変動傾向は見られず、その変動範囲は、1.3～7.9Bq/lであった。

年間の大気中及び大気水分中HTO濃度は、図-3及び図-4に示すとおり、それぞれ約40mBq/m³及び約4Bq/lで、調査期間を通じてほぼ一定であった。

(2)ガス状トリチウム (HT) の挙動

HTOの挙動調査と同地点において測定した大気中HT濃度の経年変化を図-5に示す。HT濃度は、HTO濃度のような季節的な変動傾向は見られず、その変動範囲は23～89mBq/m³であった。また、HTの年平均値の経年変化については、図-6に示すように約50mBq/m³の水準にあり、HTO濃度の年平均値よりも若干高めであり、わずかながら経年的な減少傾向が認められた。この傾向は、他の研究機関による調査結果と同様であった¹⁾。

2. 植物中トリチウムの分析測定法の開発及び水準調査

(1)植物中トリチウムの分析測定法の開発

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

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

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

(2)植物中トリチウムの水準調査

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

また、TFWT濃度は、周辺環境の大気及び土壤水中のトリチウム濃度並びに相

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

III. 参考文献

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

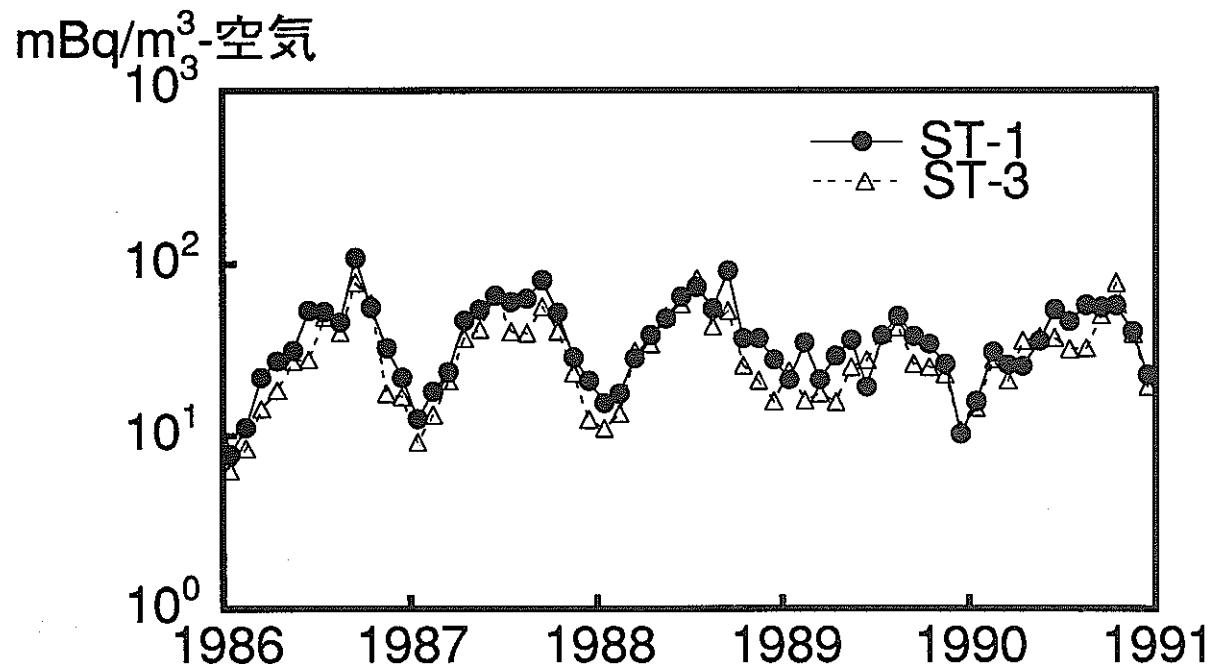


図-1 大気中HTO濃度の経年変化

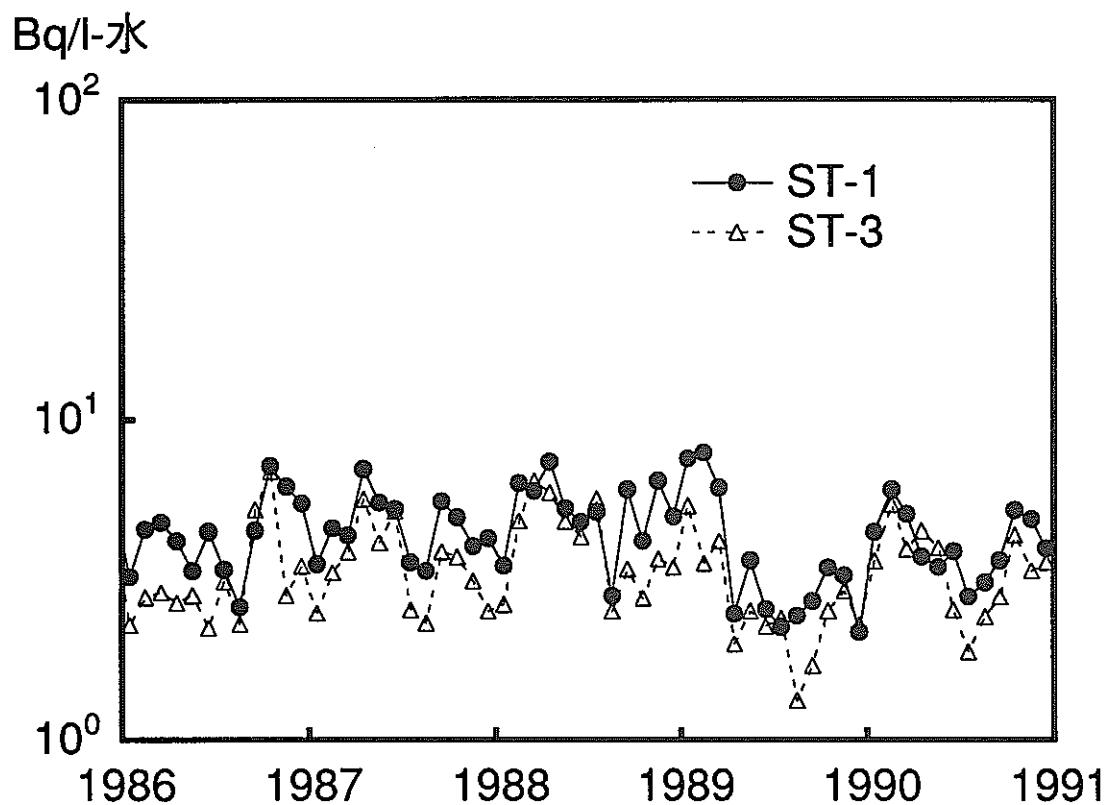


図-2 大気水分中トリチウム濃度の経年変化

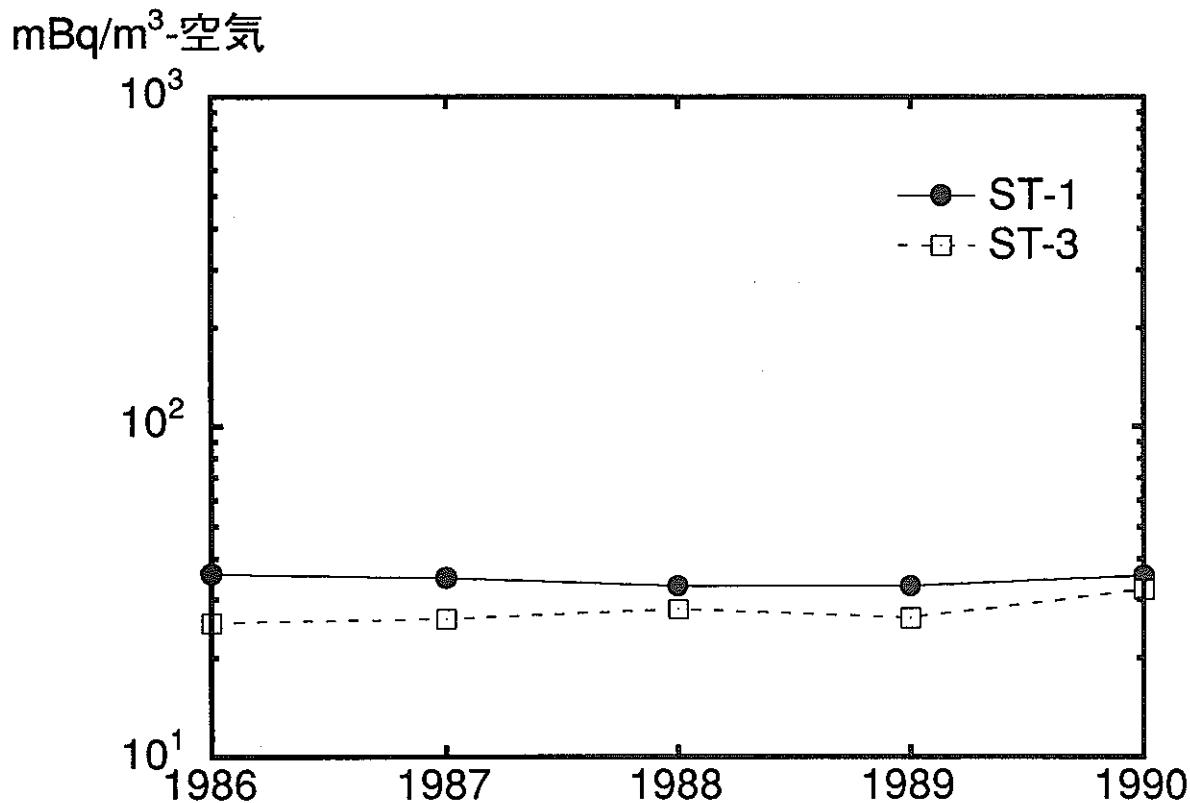


図-3 大気中HTO濃度の年平均値の経年変化

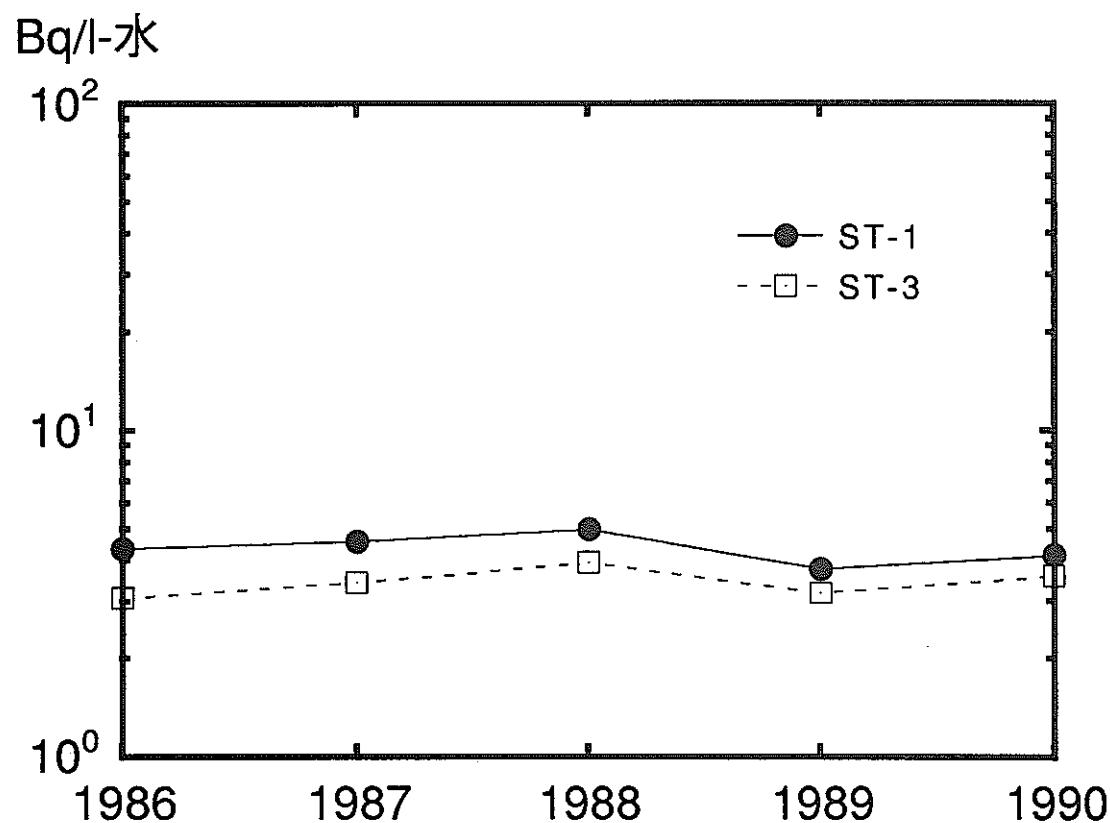


図-4 大気水分中トリチウム濃度の年平均値の経年変化

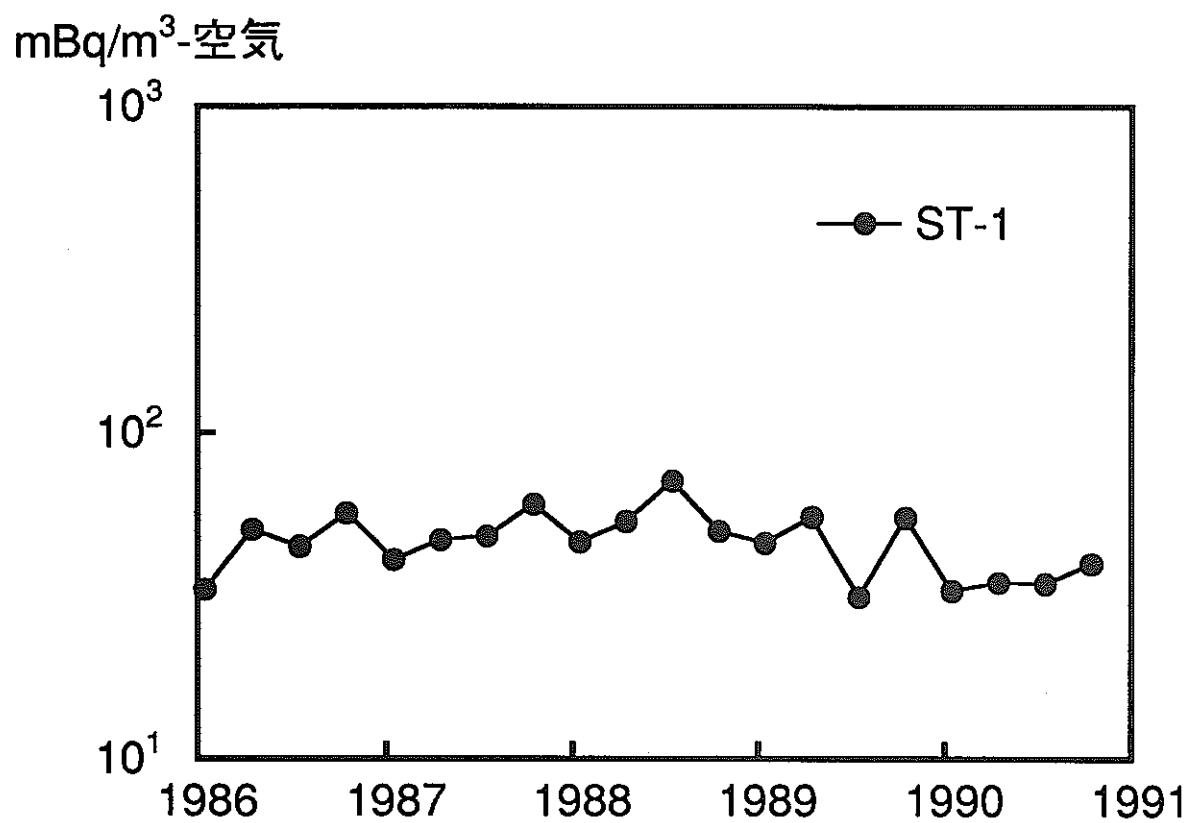


図-5 大気中HT濃度の経年変化

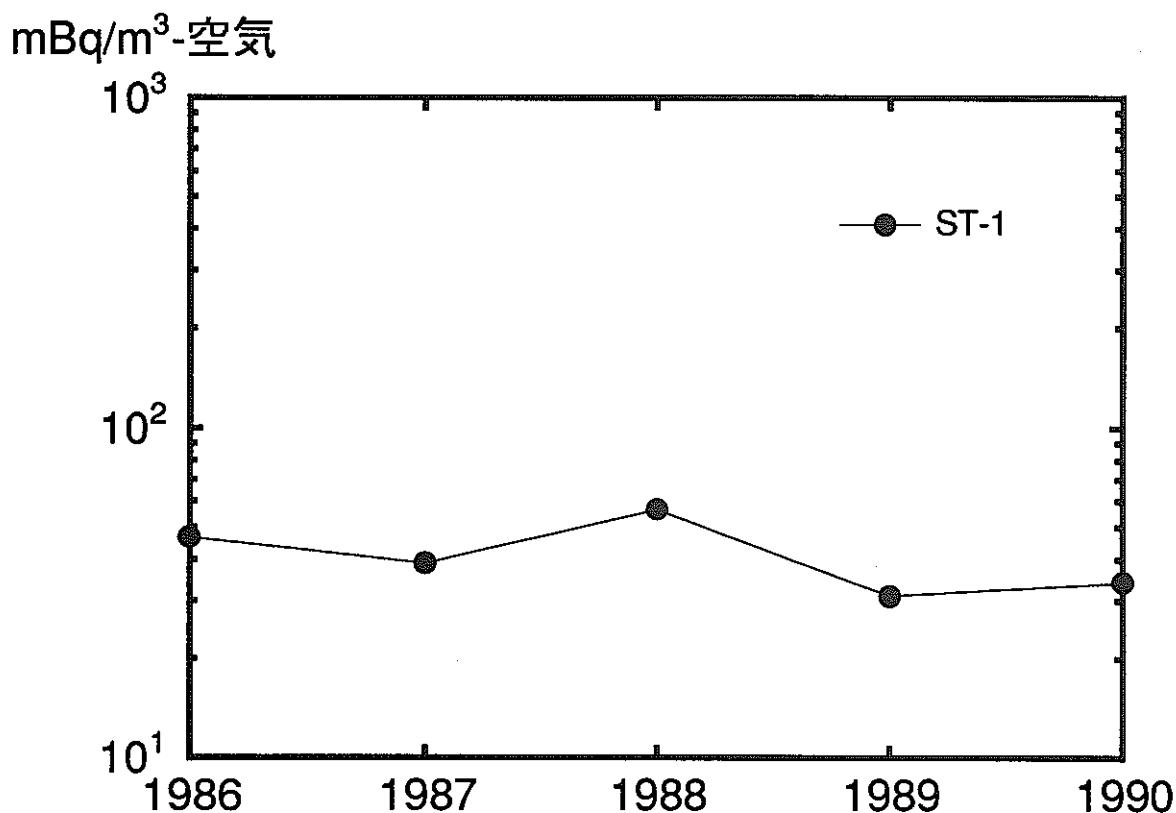


図-6 大気中HT濃度の年平均値の経年変化

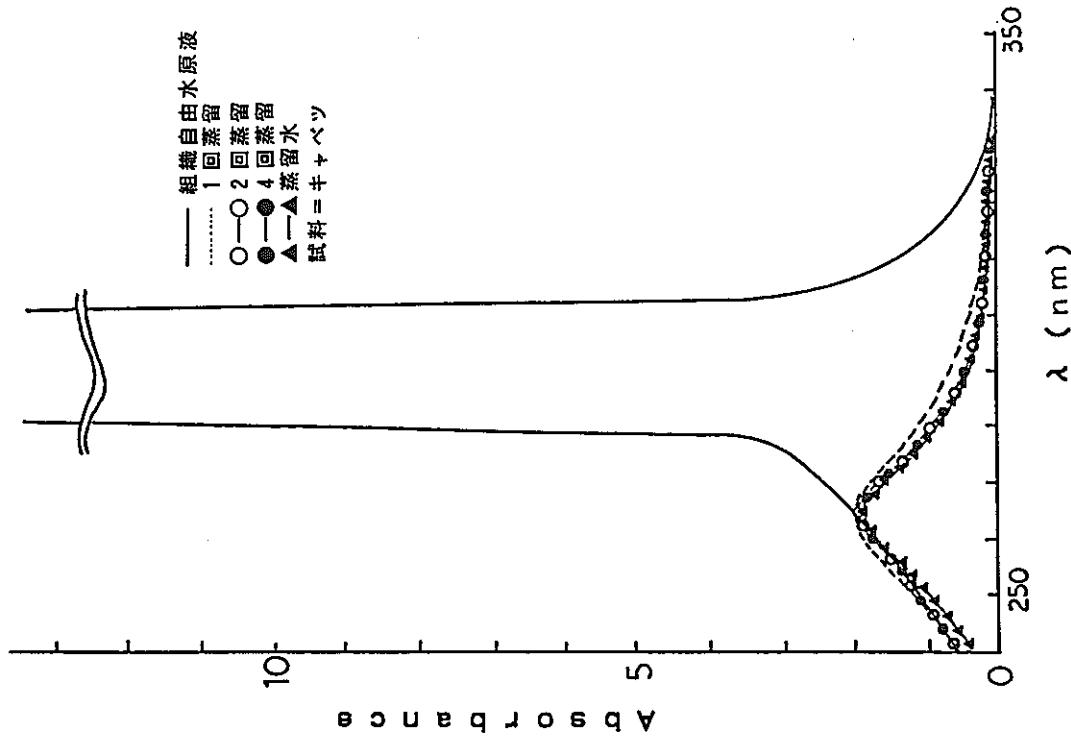


図-7 組織自由水の精製水の紫外吸収スペクトル

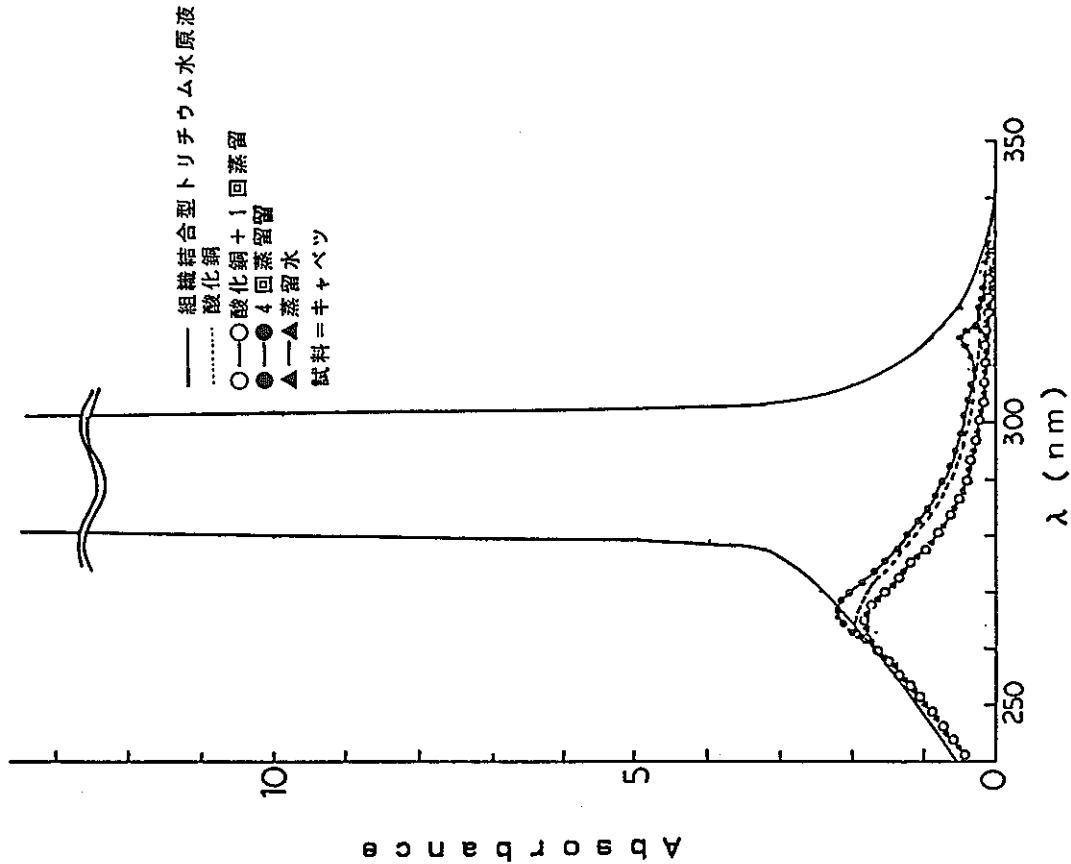


図-8 組織結合水の精製水の紫外吸収スペクトル

表-1 使用酸素純度及び使用量と組織結合型
トリチウム濃度との関係

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

表-2 植物中トリチウム濃度

試 料	対 象 トリチウム	データ数	濃度範囲 (Bq/l)	平均値 (Bq/l)
松 葉	TFWT 注1)	10	2.1~5.6	3.6
	TBT 注2)	3	4.6~5.4	5.1
葉 菜	TFWT 注1)	14	1.3~3.8	2.8
	TBT 注2)	6	1.5~5.0	2.9

注1) TFWTは、組織自由水トリチウムを示す。

注2) TBTは、組織結合型トリチウムを示す。

5. 環境中ヨウ素-129 の分布に関する研究

安全管理部環境安全課

清水武彦、吉田美香、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

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

(1) 土壤中の¹²⁹I濃度レベルの把握

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

(2) 大気及び農作物中¹²⁹I分析手法の開発

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

II. 研究成果

1. 土壤中の¹²⁹I濃度レベルの把握

(1) 表土及び畳土中の¹²⁹I濃度レベルの把握

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

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

(2) 水田土中の¹²⁹I濃度レベルの把握

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

2. 大気及び農作物中¹²⁹I分析手法の開発

(1) 大気中¹²⁹I分析手法の開発

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

に示す。

(2)精米中¹²⁹I分析手法開発

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

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

(3)葉菜中¹²⁹I分析手法の開発

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

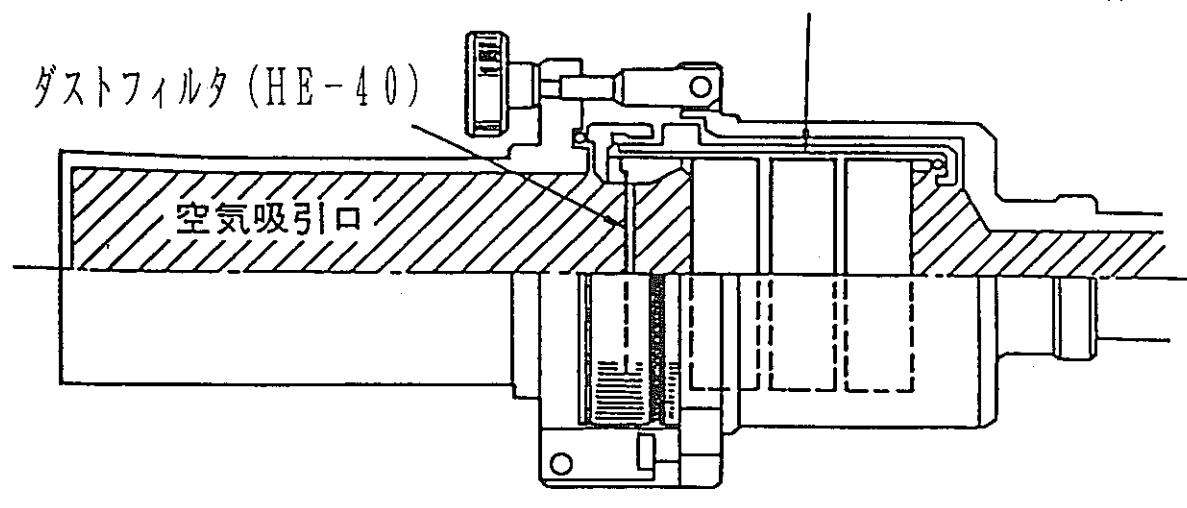
葉菜中の¹²⁹I濃度レベルを調査したところ、 $10^{-3} \sim 10^{-4}$ Bq/kg・生であった。

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

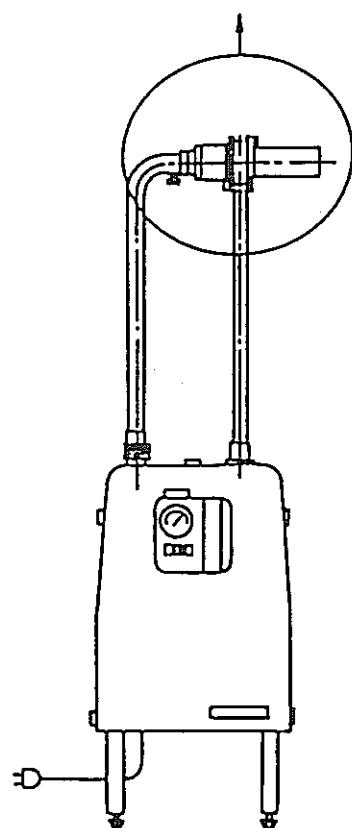
III.参考資料

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

チャコールカートリッジ (CHC-50) 3段装着



フィルタ・ホルダー断面図



ダストサンプラ正面図

図-1 大気中ヨウ素捕集装置

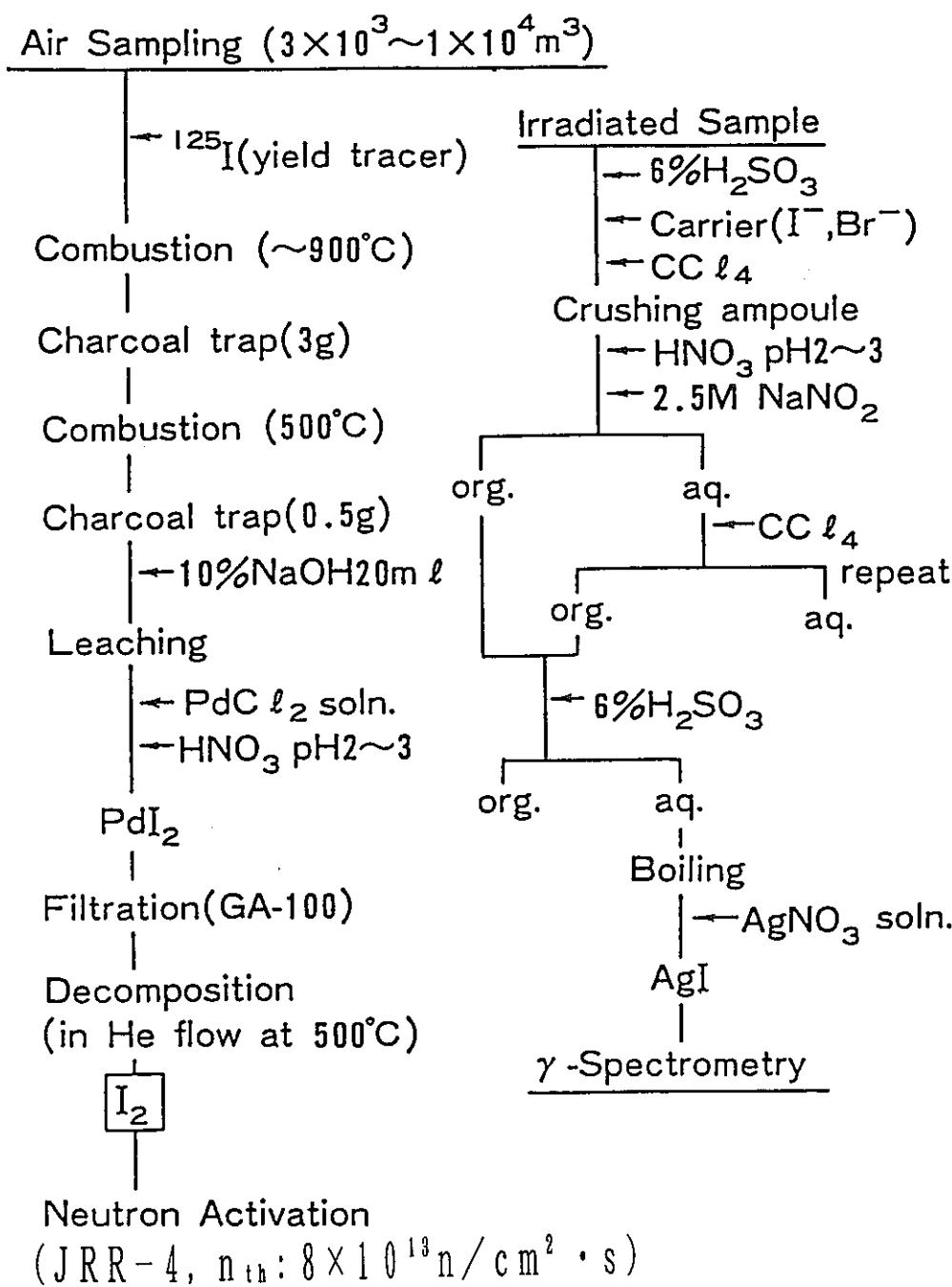
Flow Diagram of ^{129}I Analysis in Atmosphere

図-2 大気中ヨウ素分析法（中性子放射化分析）

6. 環境中プルトニウム及びアメリシウムの分布と挙動に関する研究

安全管理部環境安全課

渡辺 均、森澤正人、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

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

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

II. 研究成果

1. ^{239,240}Pu及び²⁴¹Amの水準調査

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

(1)陸上環境

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

(i) 大気塵埃の測定は、事業所内外の7地点において3ヶ月毎のコンポジット試料として測定した。1986年から1990年までの間の^{239,240}Pu及び²⁴¹Amの測定結果からは、標準偏差の3倍以上の有意な測定値は全く見られなかった。このため、測定結果のうち標準偏差以上の測定値を用いて、各年の空気中平均濃度を算出した。^{239,240}Puの年間平均空気中濃度は、 $(1.1 \sim 1.5) \times 10^{-14}$ Bq/cm³の範囲であり、また、²⁴¹Amの年間平均空気中濃度の範囲は、 $8.9 \times 10^{-15} \sim 1.6 \times 10^{-14}$ Bq/cm³であった。

(ii) 降下物については、1986年から1990年までの安全管理棟屋上で1ヵ月間連続して採取した試料について測定した。各月の測定結果は、^{239,240}Pu濃度及び²⁴¹Am濃度とも有意な測定結果は少なかったが、調査期間の^{239,240}Puの降下量は $(1.3 \sim 2.6) \times 10^{-3}$ Bq/m²/月の範囲であり、平均値は 1.9×10^{-3} Bq/m²/月であった。また、²⁴¹Amの降下量は $6.7 \times 10^{-4} \sim 1.3 \times 10^{-3}$ Bq/m²/月の範囲であり、平均値は 9.4×10^{-4} Bq/m²/月であった。^{239,240}Pu及び²⁴¹Amの降下量の平均値を用いてAm/Puの放射能比を算出すると、その値は0.49であった。

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

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

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

(2) 海洋環境

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

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

2. 移行調査

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

出した海産物の濃縮係数を表-1に示す。

3. 環境試料中の ^{241}Pu の水準調査

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

(1) ^{241}Pu の分析法

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

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

(2) 水準調査

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

III. まとめ

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

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

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

IV. 参考文献

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

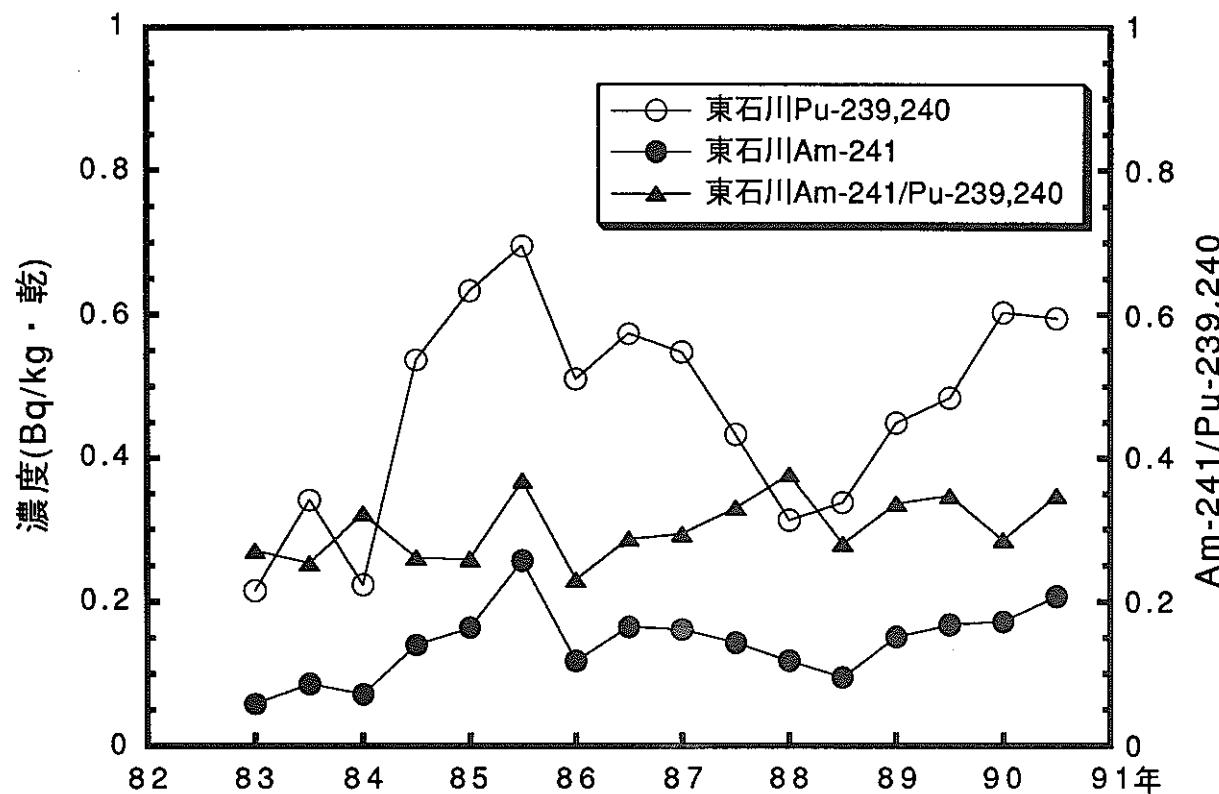


図-1 表土中Pu-239,240 及びAm-241の濃度と放射能比の経年変化

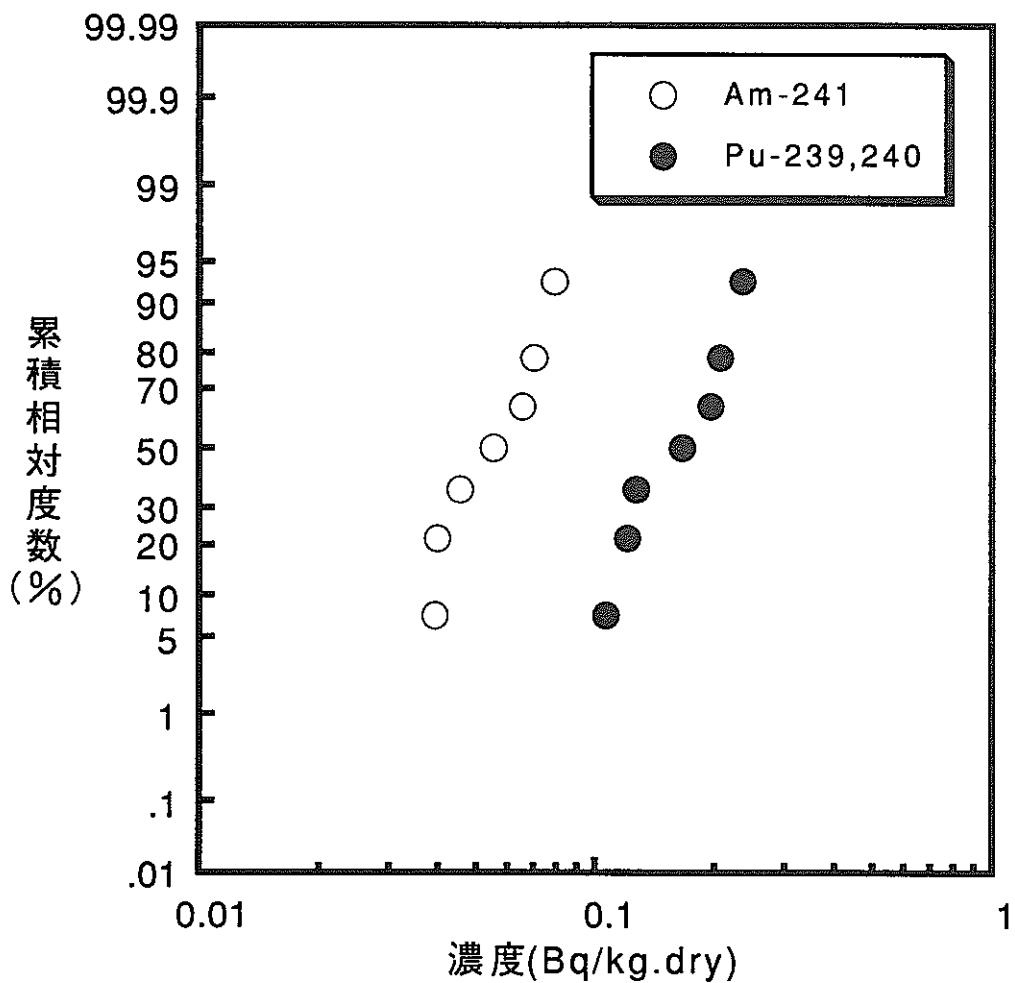


図-2 畜土中Pu-239,240 及びAm-241の対数正規確率プロット

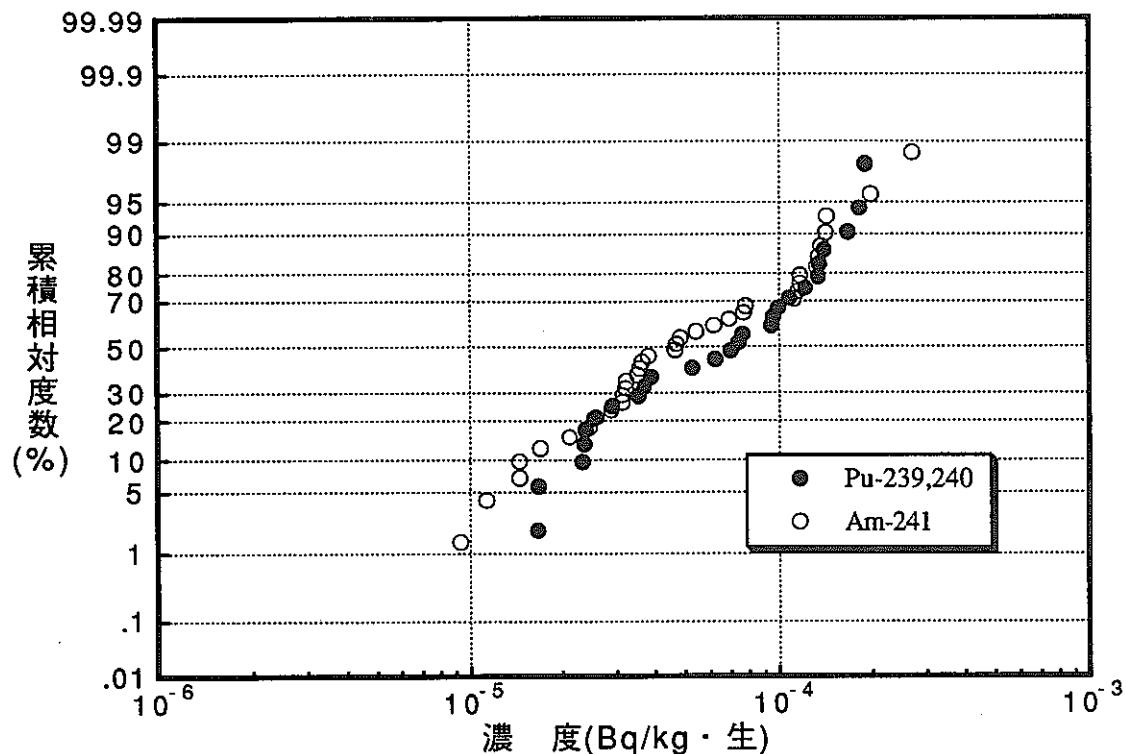


図-3 葉菜中Pu-239,240及びAm-241の対数正規確率プロット

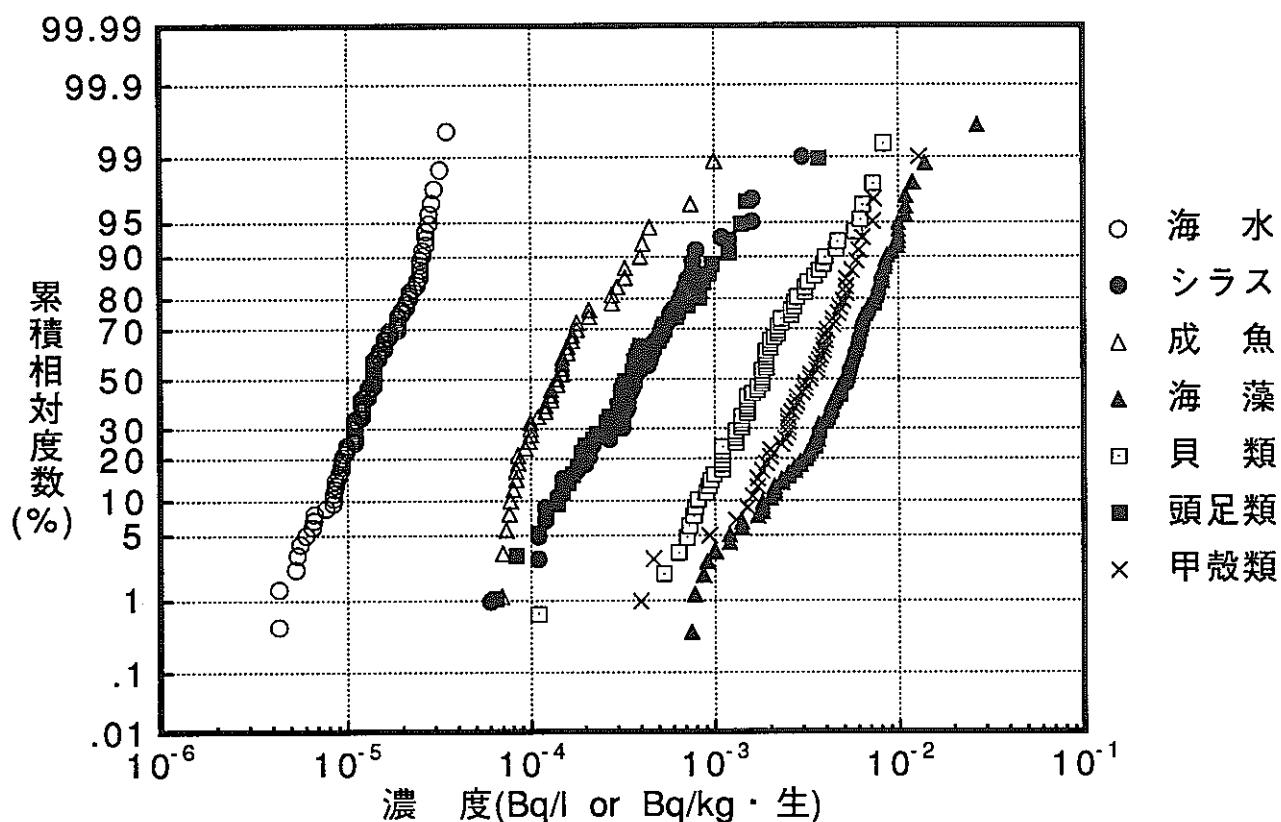


図-4 海洋環境中Pu-239,240濃度の対数正規確率プロット

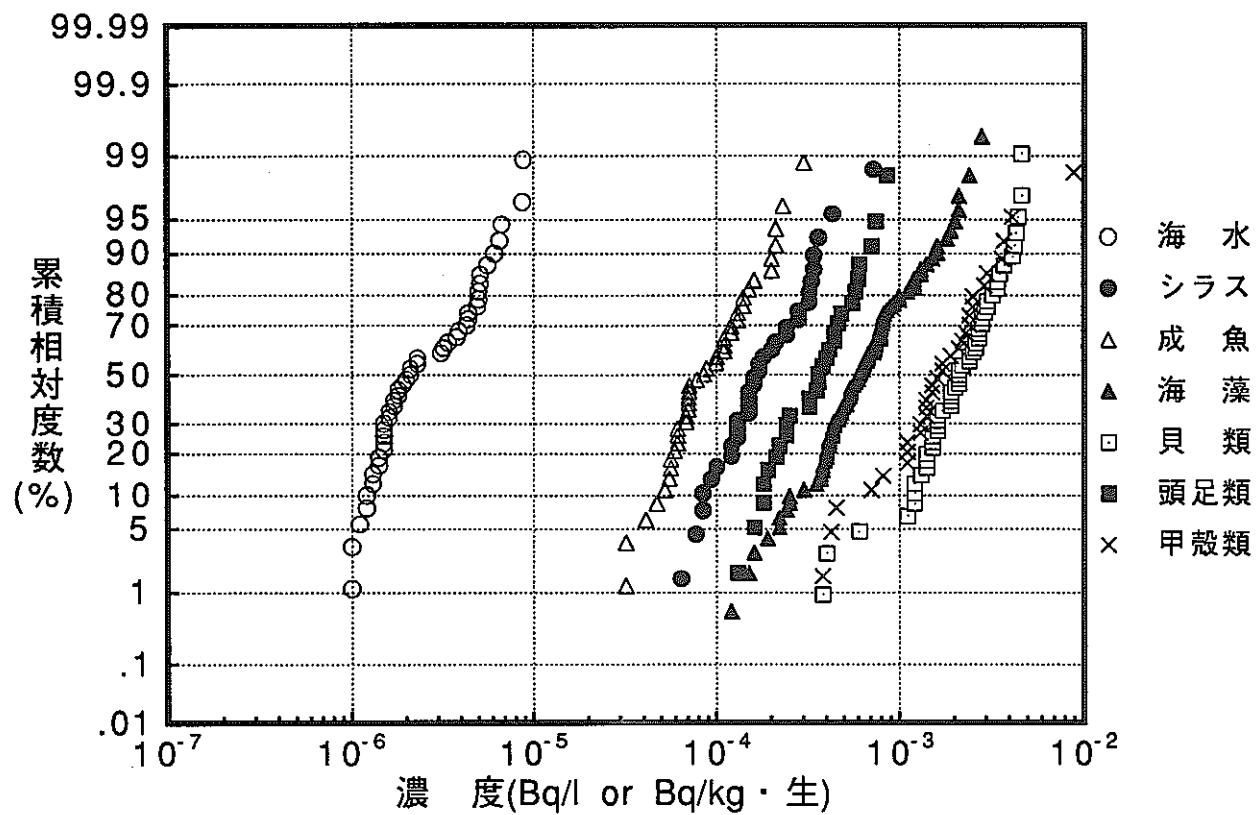


図-5 海洋環境中Am-241濃度の対数正規確率プロット

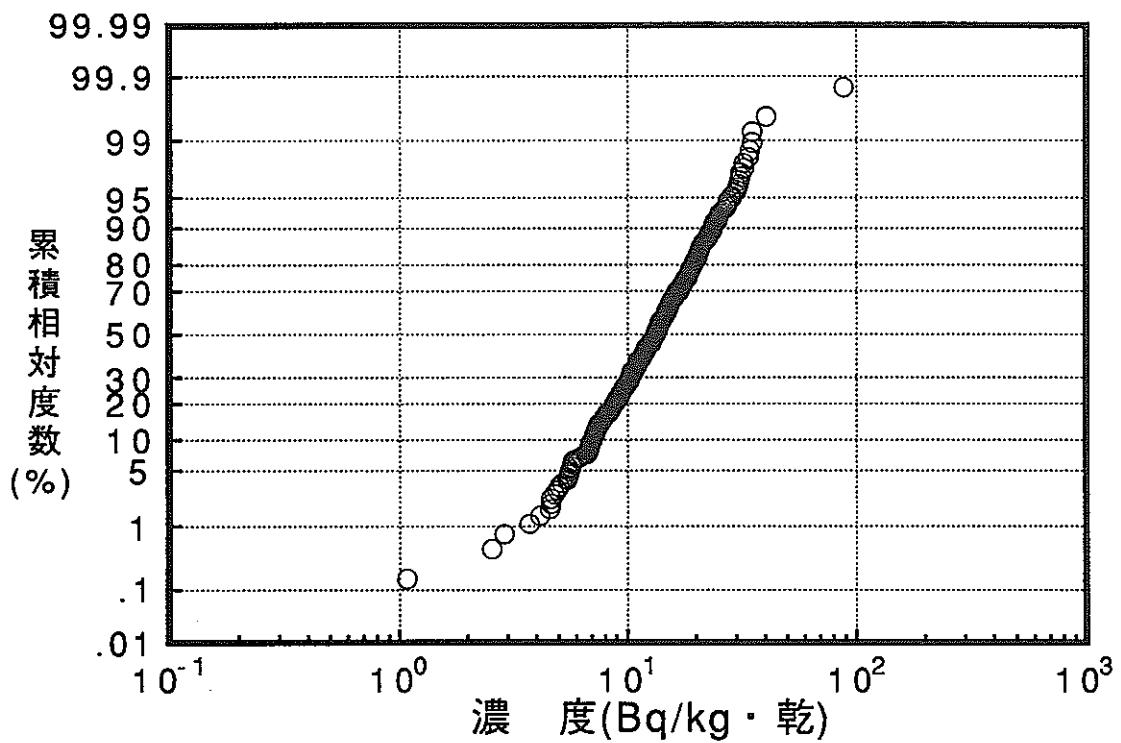


図-6 海底土中Pu-239,240濃度の対数正規確率プロット

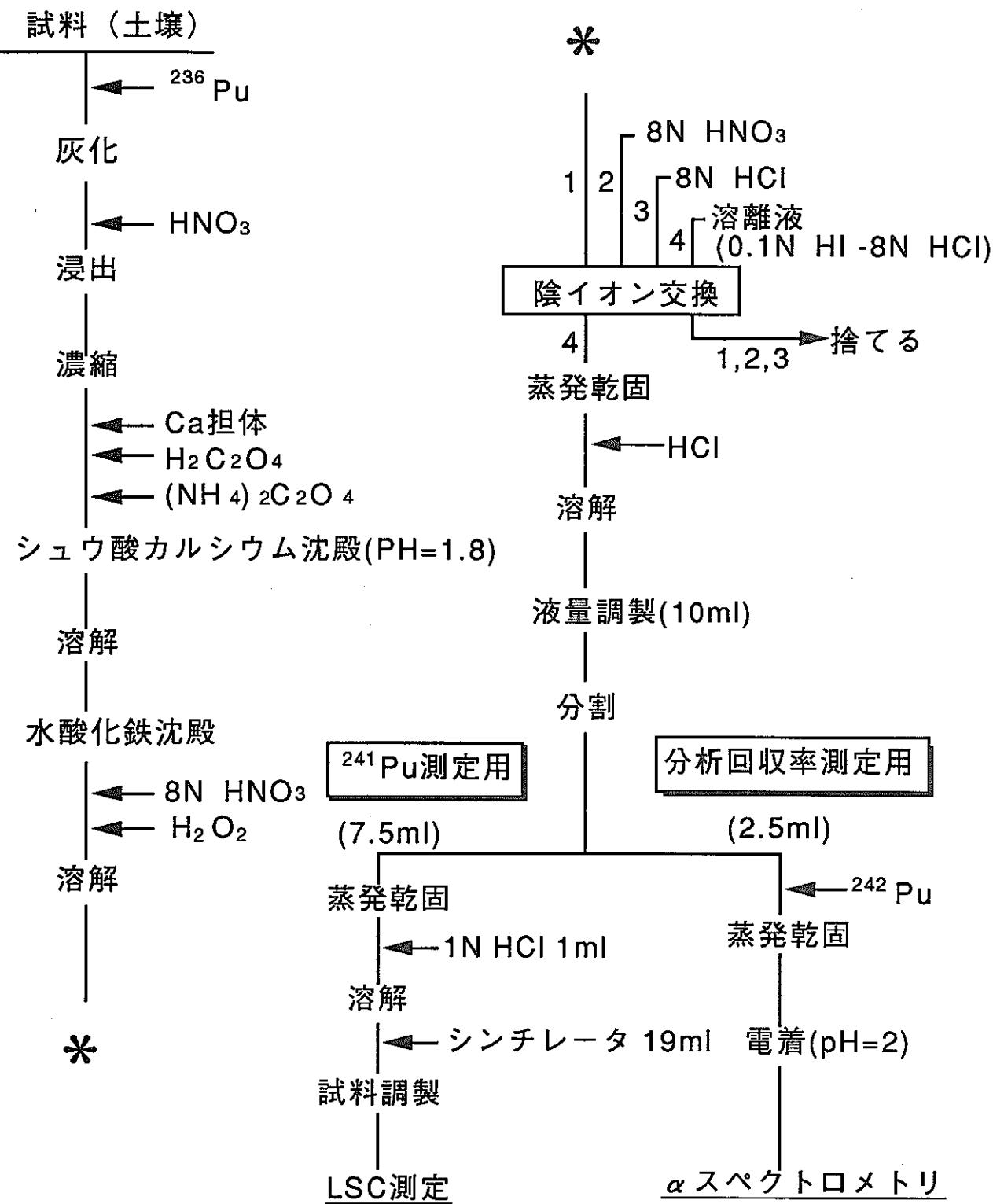


図-7 土壤中Pu-241の分析手順

表-1 海産生物の濃縮係数

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

注) () は安全審査に用いられた値

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

表-2 東海村周辺の土壤中プルトニウム濃度及び

 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比

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

7. 環境中におけるヨウ素の移行に関する研究

安全管理部環境安全課

清水武彦、吉田美香、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

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

これを計算式で表わすと、次のようになる。

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

ここで、

C : 植物中放射性核種濃度 (Bq/g・生)

χ : 大気中放射性核種濃度 (Bq/cm³)

V_g : 沈着速度(cm/d)

r : 植物上に直接沈着した放射性核種の可食部への移行率

B : 土壤中の放射性核種が根を通して植物可食部へ移行する割合(Bq/g 生/Bq/g・乾)

Y : 植物の栽培密度(g/cm²)

P : 植物を栽培する土壤の実効面密度(g・乾/cm²)

λ_E : ヨウ素の有効除去係数 (1/d)

λ : 放射性核種の放射性崩壊定数 (1/d)

t_b : 放射性核種の地表面への沈着継続時間 (d)

t_e : 植物表面への沈着期間 (d)

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

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

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

II. 研究成果

1. 大気中から米、葉菜及び牧草への移行に係るパラメータ (r)

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

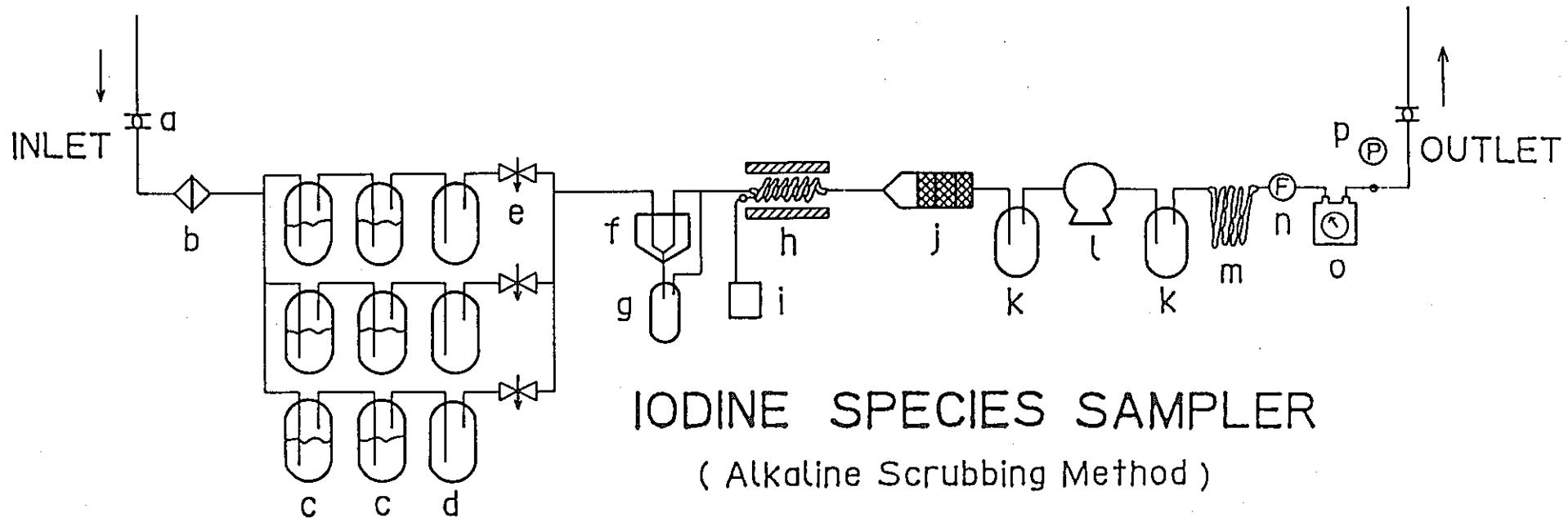
本研究により得られた、大気中からの直接沈着による可食部への移行率 (r) は、米については、0.0088、葉菜について0.17及び牧草について0.26という結果が得られた。植物上に直接沈着した放射性核種のうち、可食部へ移行する割合についての実験データは少なく、特に、我国の主食である米についてのデータは非常に少ないのが現状であり、ここで得られた結果は貴重なものである。

2. 大気中ヨウ素の化学形態評価

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

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

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



a : Ball Valve

j : Activated Charcoal Cartridge

b : Dust Filter (HE40T)

k : Surge Tank

c : Bubbler (2M NaOH)

l : Vacuum Pump

d : Buffer

m : Air Cooler

e : Needle Valve

n : Flow Meter

f : Dehumidification Unit

o : Integral Flow Meter

g : Drain Tank

p : Manometer

h : Heater (Mantle heater & Glass tube)

i : Temp. Controller

図 - 1 大気中化学形態別捕集装置

8. 大気放出放射性物質の沈着・再浮遊に関する研究

安全管理部環境安全課

並木 篤、清水武彦、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

本研究では、このうち沈着・再浮遊に着目して以下の研究を実施した。

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

II. 研究成果

1. 空気中放射性物質の粒子径分布の調査

(1)分析及び測定方法

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

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

(2)結果及び考察

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

切尔ノブイリ原子力発電所事故の際、大気中に放出された ^{131}I の大気エアロゾル中の粒度分布も微小粒子側が多いとの報告¹⁾²⁾があり、本研究の ^{129}I と同様の結果となった。

2. 乾性及び湿性沈着した¹²⁹Iを弁別捕集するための降下物採取装置の開発

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

3. 乾性及び湿性沈着速度に関する調査

(1) 捕集及び分析方法

(i) ¹²⁹Iの捕集方法について

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

水盤にはあらかじめ水（蒸留水）を約1l入れ、さらに捕集期間中の¹²⁹Iの揮発を防ぐため5%Na₂SO₃溶液を加えた。また、乾性沈着試料の場合、期間中に蒸発してしまうことから定期的に水を補充して水盤には常に水を張った状態を維持し、湿性沈着試料においては雨水が水盤から溢れないよう定期的に回収した。

(ii) 分析方法について

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

(2) 結果及び考察

本研究により得られた、¹²⁹Iの乾性及び湿性沈着速度を表-2に示す。

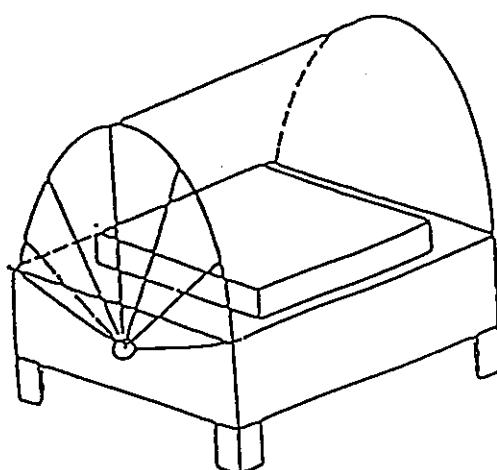
この結果から、乾性沈着速度は0.063(cm/s)、湿性沈着速度は0.23(cm/s)であり、両者を含む沈着速度としては0.29(cm/s)が得られた。ここでは、湿性沈着速度が乾性沈着速度と比較して大きめの値となったが、さまざまな環境要因が関係することから、今後継続してデータを蓄積していくことが必要である。

III. 参考資料

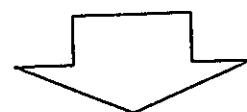
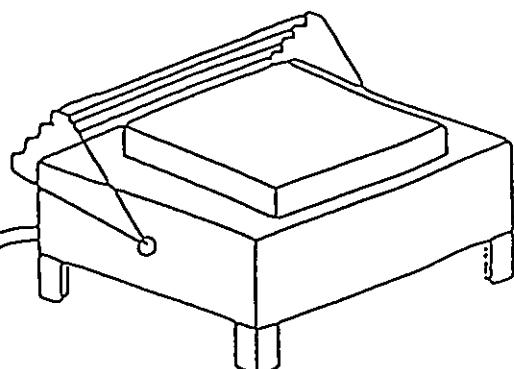
- 1) E.A.Bondietti and J.N.Brantley; Characteristics of Chernobyl Radioactivity in Tennessee, Nature 322,313-314.,1986.
- 2) F.P. Brauer,H.G. Rieck Jr and R.L.Hooper; Particulate and Gaseous Atmospheric Iodine Concentrations, IAEA-SM-181/6,351-366,1984.
- 3) Y.Muramatsu and Y.Ohmomo; Iodine-129 and Iodine-127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

① 晴天時

(A)

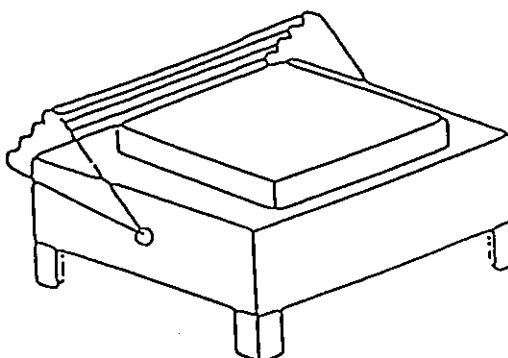


(B)



② 雨天時

(A)



(B)

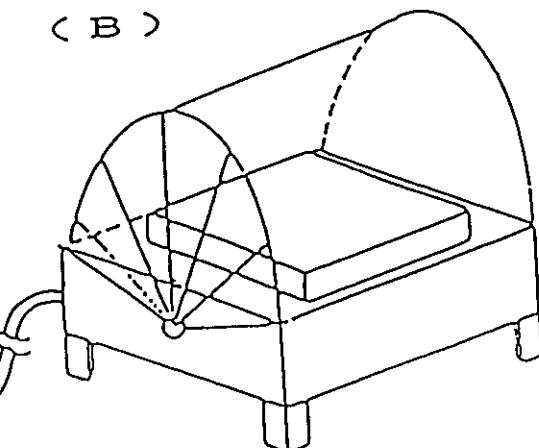


図-1 放射性降下物採取装置動作シーケンス

表一1. 粒径別の大気エアロゾルの¹²⁹I及び¹²⁷I濃度分布

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

D.L. : 検出下限未満

表一2. ¹²⁹Iの沈着速度

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

9. 放射性物質の海洋放出に伴う被ばく線量評価法に関する研究

安全管理部環境安全課
住谷秀一、圓尾好宏、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

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

II. 研究成果

1. 海産生物の濃縮係数の調査

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

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

(1) 調査方法

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

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

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

(2) 調査結果及び評価

(i) 海水及び海産生物中放射性物質の濃度

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

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

(ii) 海産生物の濃縮係数

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

2. 海産物の消費実態調査

(1) 調査方法

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

(2) 調査結果及び評価

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

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

III. 参考文献

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

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

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

表 - 1 海水中放射性物質濃度

核種	データ数	濃 度 (Bq / ℓ)					
		範 囲	算術平均			幾何平均	
Sr-90	273	2.7 E-3	~	3.3 E-2	8.5 E-3	7.4 E-3	
Zr-95	73	3.7 E-4	~	1.3 E-2	8.2 E-3	2.0 E-3	
Nb-95	64	3.7 E-4	~	6.3 E-2	6.6 E-3	3.4 E-3	
Zr/Nb-95 *	62	7.4 E-4	~	6.7 E-2	7.4 E-3	5.2 E-3	
Ru-106	211	2.7 E-4	~	6.3 E-2	2.9 E-3	1.5 E-3	
Cs-137	268	2.5 E-3	~	5.6 E-2	9.1 E-3	8.1 E-3	
Ce-144	185	1.1 E-4	~	1.0 E-2	7.1 E-3	1.1 E-3	
Pu-239, 240	109	4.3 E-6	~	3.5 E-5	1.5 E-5	1.4 E-5	
Am-241	45	1.0 E-6	~	8.8 E-6	3.1 E-6	2.5 E-6	

* Zr/Nb-95 は、Zr-95及びNb-95 濃度の合計値を示す。

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

表 - 2 海產生物中放射性物質濃度

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

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

表-3 海産生物の濃縮係数

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

表-4 セシウムの濃縮係数

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

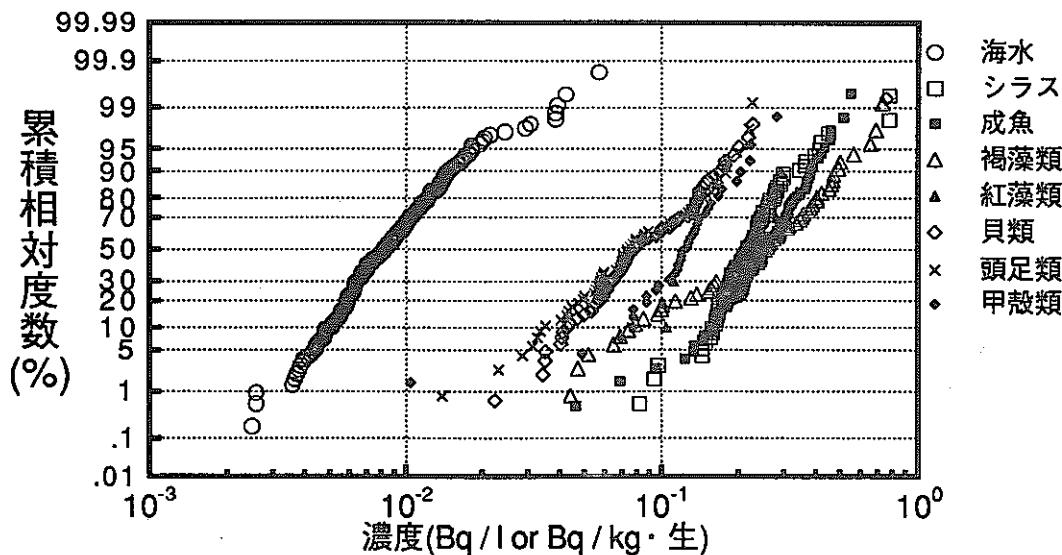


図-1 海洋環境試料中 Cs-137 濃度測定
結果の対数正規確率プロット

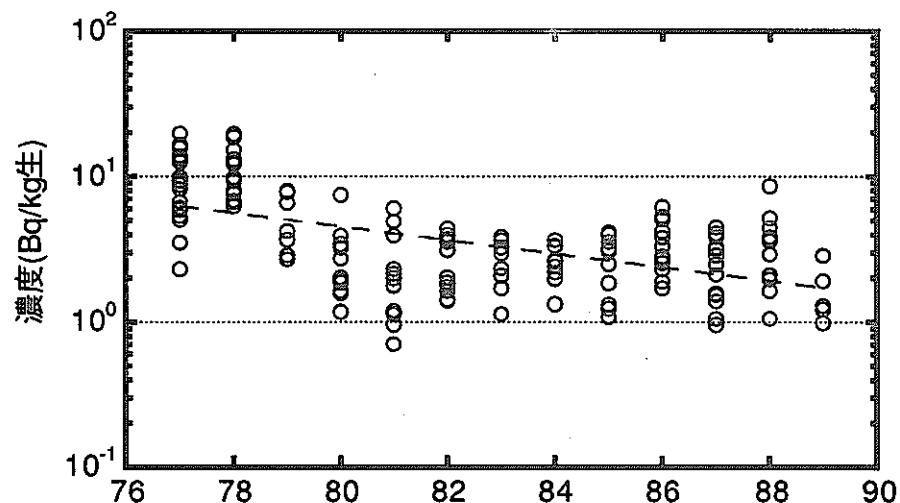


図-2 海藻中 Cs-137 濃度の経年変化

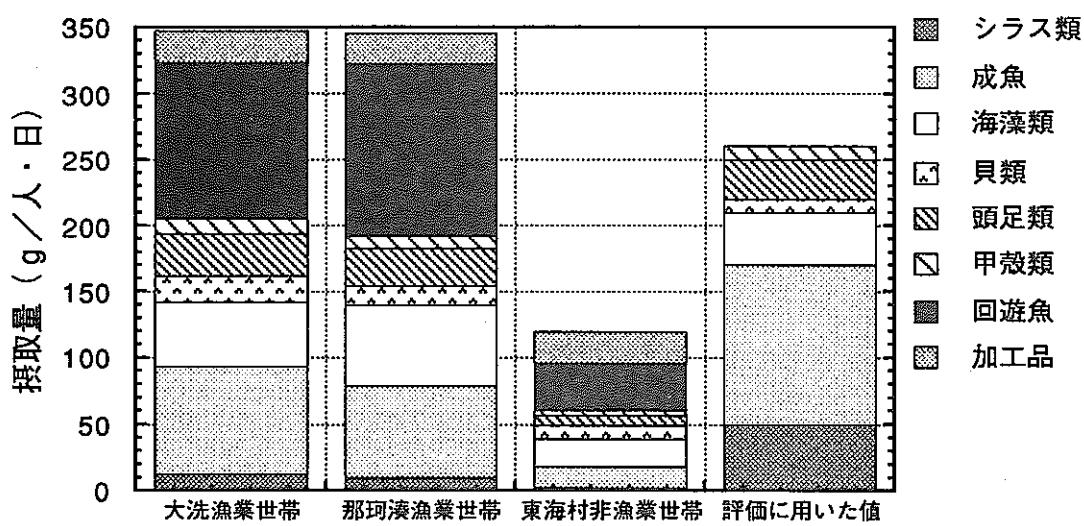


図-3 最近の消費実態調査による摂取量と
評価に用いた摂取量の比較

10. 再処理施設平常運転時被ばく線量評価手法に関する研究

安全管理部環境安全課

叶野 豊、飛田和則、篠原邦彦

I. 研究の概要

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

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

II. 研究成果

本研究において開発・整備した、計算コードの概要を以下に示す。

(1) KR85G

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

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

(2) ORION II

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

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

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

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

(3) CORAL

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

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

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

III. まとめ

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

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

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

IV. 参考資料

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

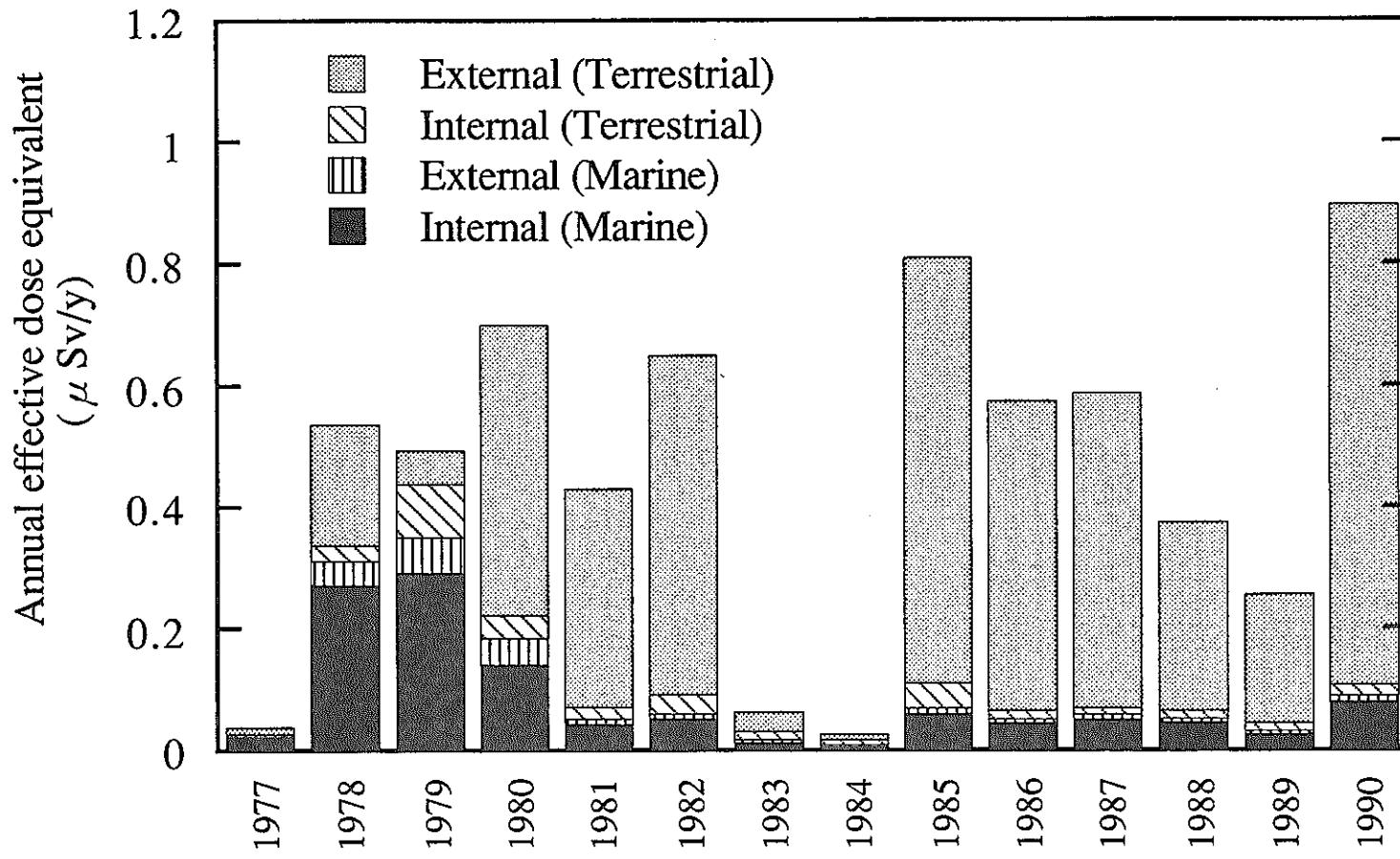


図 1 再処理施設からの放出に伴う実効線量当量評価結果