

本資料は 20年 6月 6日 付けで登録区分、
変更する。

[技術情報室]

環境放射能調査研究成果発表会報告

(第32,33,34,35回)

— 環境安全管理に係る発表 —

1995年4月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

今

社 内 資 料

PNC ~~BN~~8450 95-004

1 9 9 5 年 4 月



環境放射能調査研究成果発表会報告
(第32,33,34,35回)

—環境安全管理に係る発表—

実施責任者 飛田 和則**
報告者 片桐 裕実*
住谷 秀一*
森田 重光*
森澤 正人*
植頭 康裕*

要 旨

本報告書は、放射線医学総合研究所講堂（千葉）で開催された環境放射能調査研究成果発表会の第32回、第33回、第34回及び第35回研究成果発表会において、安全管理部環境安全課から発表した研究報告をとりまとめたものである。

第32回研究成果発表会は、平成2年11月28日に開催され、「環境試料中Pm-147及びSm-151分析法の開発」について報告した。

第33回研究成果発表会は、平成3年11月27日に開催され、「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」について報告した。

第34回研究成果発表会は、平成4年12月9日に開催され、「環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査」について報告した。

第35回研究成果発表会は、平成5年12月1日に開催され、「 α/β 弁別測定を用いた²⁴¹Pu定量法」について報告した。

今後とも、これらについて検討を継続する予定であり、また関連する環境安全研究を進めていくなかで、参考にされたい。

なお、第35回研究成果発表会において、特別講演として「ノルウェー及びロシアによるバレンツ海及びカムチャツカ海における環境影響調査」について報告した。

* ; 東海事業所安全管理部環境安全課

** ; 大洗工学センター 安全管理部放射線管理課

目 次

第32回研究成果発表会（平成2年11月28日）

論文番号 (48)

- 環境試料中Pm-147及びSm-151分析法の開発 1
○住谷 秀一

第33回研究成果発表会（平成3年11月27日）

論文番号 I-18

- 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 1 6
○森田 重光、清水 武彦、篠原 邦彦、桜井 直行

第34回研究成果発表会（平成4年12月9日）

論文番号 IV-5

- 環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査 3 0
○森澤 正人、渡辺 均、鈴木 猛、飛田 和則、倉林 美積

第35回研究成果発表会（平成5年12月1日）

論文番号 VI-6

- α/β 弁別測定を用いた²⁴¹Pu定量法 4 3
○植頭 康裕、清水 武彦、吉崎 裕一、飛田 和則

論文番号 (I)

- ルウェー及びロシアによるバレンツ海及びカラ海における環境影響調査 6 2
○片桐 裕実

第32回研究成果発表会
(平成2年11月28日)

論文番号 (48)

環境試料中Pm-147及びSm-151分析法の開発

○住谷 秀一

環境試料中 Pm-147 及び Sm-151 分析法の開発

動燃東海事業所

住谷 秀一

1. 緒言

近年、原子力利用に伴う長期的な環境影響評価の観点から、長半減期の軟ベータ核種についても環境中での挙動を把握することが話題となって来ている。

のことから、①半減期が比較的長い核種であること②使用済燃料中のインベントリーが比較的大きいこと③生物試料に濃縮されやすいこと等を考慮し、Pm-147及びSm-151の分析手法の開発、環境中でのバックグラウンドレベルの把握及び移行係数の評価についての研究を進めている。

本報では、これらのうち、Pm-147及びSm-151の分析手法について検討した結果を報告する。

2. 調査研究の概要

サマリウム、プロメチウム等の希土類元素は、その化学的挙動が類似しているため、環境放射能分析に通常用いている溶媒抽出法やイオン交換法では分離が難しい。このため、分離能を高め迅速に希土類元素を単離することを目的として、高速液体クロマトグラフ装置（HPLC）を用いた分析手法の検討を行うこととし、(1) HPLCにおけるPm-147及びSm-151の分離条件の検討、(2)環境試料への適用について検討した。

(1) HPLCにおけるPm-147及びSm-151の分離条件の検討

安定Sm及びNd（分析回収率補正用）を主に用い、①試料の濃縮カラムへのフィード条件、②溶離条件を検討した。フィード条件については、濃縮速度、酸濃度及び溶液量に対する濃縮カラムからの安定Sm及びNdの溶出率との関係について検討した。また、溶離条件については、溶離液に乳酸-水酸化ナトリウム系溶液を用い、Sm、Pm、Ndの分離条件、除染係数、保持時間の再現性等について検討した。

(2) 環境試料への適用

環境試料中Am分析法を応用し、Sm等の希土類元素を精製・分離した。その後、HPLCによりSm、Pm、Ndを分離し、Pm及びSmを液体シンチレーションカウンタにより定量し、また、NdをICP発光分析装置により分析回収率を求めた（図1）。

3. 結語

(1) HPLCにおけるPm-147及びSm-151の分離条件の検討

① 試料の濃縮カラムへのフィード条件の検討

濃縮速度、酸濃度及び溶液量に対する濃縮カラムからの安定 Sm及びNdの溶出率との関係について検討した結果、濃縮速度 5 ml/min、酸濃度 0.1N、溶液量 300 mlの条件においても安定 Sm及びNdの溶出は見られなかった。

② 分離条件の検討

HPLCにおけるSm、Pm、Ndの分離は、溶離開始 pHを約3.5にしたpHグラディエント法により良好な分離ができた。この溶離条件における除染係数はPm及びSmフラクションにおいて250以上であり、保持時間の再現性については変動係数として2%以下と良好な結果が得られた。

(2) 環境試料への適用

HPLCによる分離前までの工程における Sm及びNdの分析回収率はそれぞれ約90%であり、Sm/Nd比は1であることから、NdによりPm及びSmの分析回収率を補正することは妥当であることが分かった。また、全分析工程における繰り返し分析精度は、変動係数として約10%程度であり、分析回収率は約80%であった。

ここで開発した分析法は、環境試料への適用が可能であることが分かった。

なお、本法の検出下限値は、測定時間500分において、約10 mBq/サンプルである。

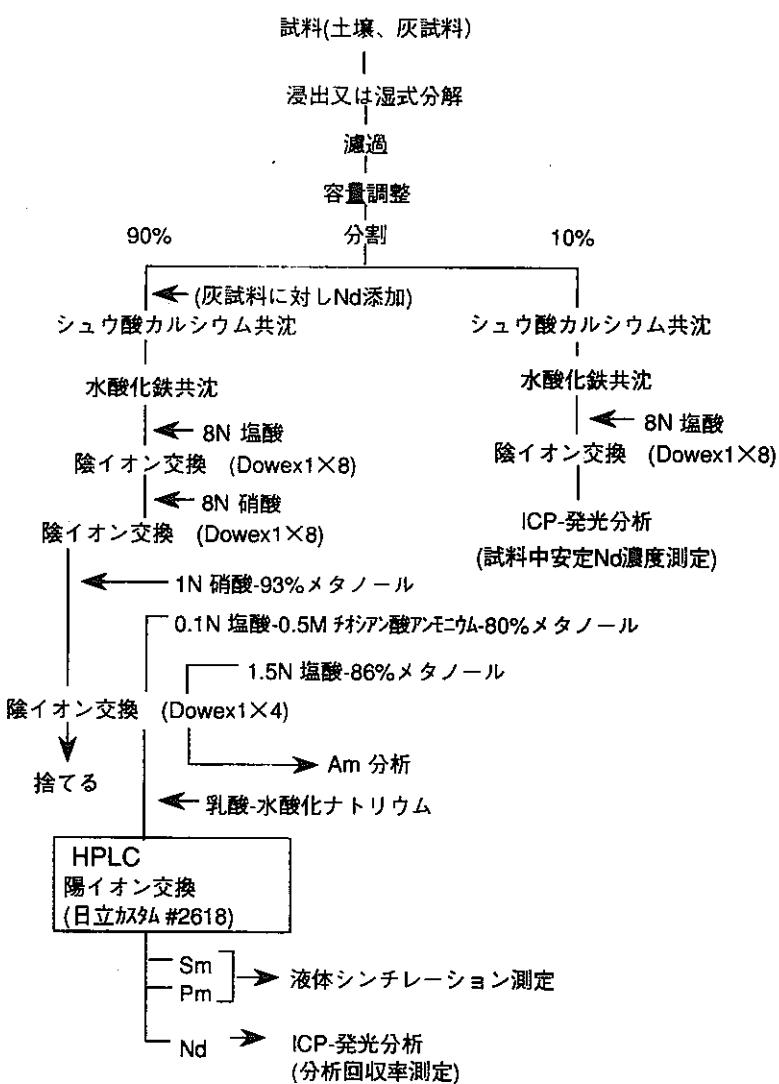


図1 環境試料中Pm-147及びSm-151分析フロー

環境試料中Pm-147及びSm-151 分析法の開発

動力炉・核燃料開発事業団

住谷 秀一

〔解説〕

環境試料中Pm-147及びSm-151分析法の開発について、これまでの検討結果を報告する。

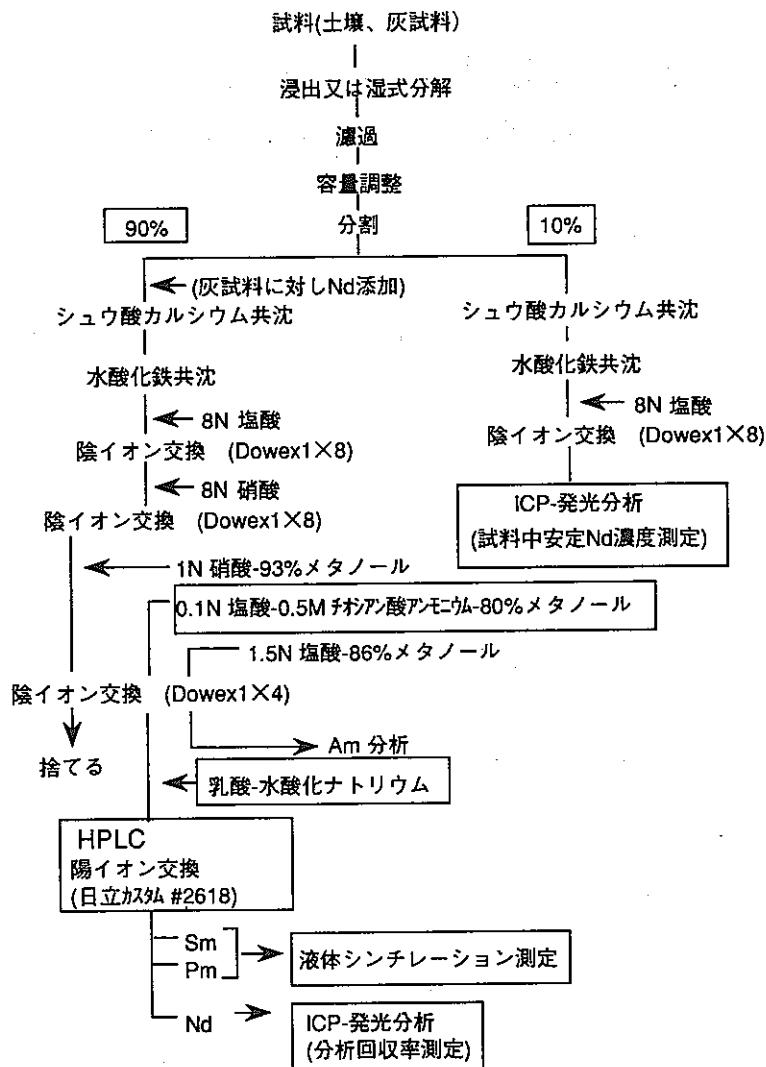
Pm-147及びSm-151の核的性質及び核分裂収率

核種	半減期 (y)	β 線最大 エネルギー (keV)	生成反応	核分裂収率 (%)		使用済燃料中放射能 (Bq/t)
				U-235	Pu-239	
Pm-147	2.62	225	(n,f) 146Nd(n, γ) 147Nd(β)	2.26	1.95	4.8PBq/t
Sm-151	91	76.4	(n,f) 150Sm(n, γ) 151Pm(β)	0.42	0.77	13TBq/t

[解説]

Pm-147及びSm-151は、半減期がそれぞれ2.6年、93年で、 β 線の最大エネルギーが、225keV, 76.4keVの純 β 放出核種である。そして、これらの核種は、主に核分裂により生成され、それらの核分裂収率は半減期が1年以上の核種の中では比較的高い値を示している。しかし、これらの核種は希土類元素に属しているため、化学的性質が類似しており、かつ純軟 β 線放出核種であることから、環境試料を対象とした分析例はほとんど報告されていない。

以上のことから、原子力施設周辺の環境影響評価をより現実的に行う観点から、環境試料中のPm-147及びSm-151の分析法の開発について検討した。



環境試料中Pm-147及びSm-151分析フロー

[解説]

これは今回検討した環境試料中のPm-147 及びSm-151の分析フローである。

この分析法の特徴としては、分析回収率の補正に安定Ndを用い、Am分析法を応用して希土類元素として精製した後、高速液体クロマトグラフ装置HPLCを用いて、各々の元素を分離するところにある。

プロメチウム、サマリウム等の希土類元素は、その化学的挙動が類似しているため、通常行っている溶媒抽出法やイオン交換法では分離が困難である。

このため、分離能を高め迅速に希土類元素を単離することを目的として、HPLCを用いた分析手法の検討を行うこととした。

まず、試料を浸出又は湿式分解した後、試料を2つに分割する。一方はPm-147 及びSm-151の分析に、他方は試料中の安定Ndの分析に用いる。

その後、シュウ酸カルシウム及び水酸化鉄沈殿を生成させ妨害元素を粗分離し、塩酸系及び硝酸系での陰イオン交換により希土類元素を精製する。

次に、アルコール系での陰イオン交換により更に精製を行い、0.1M塩酸-0.5Mチオシアニン酸アンモニウム-80%メタノールで希土類元素を溶離する。

溶離した試料は、乾固後、HPLCによりPm, Sm及びNdを分離し、Pm, Smを液体シンチレーションカウンタで測定し、NdをICP発光分析装置により定量して分析回収率を求めるものである。

HPLC分離工程前までの安定Sm、Ndの 化学収率及びSm/Nd比

Run No.	化学収率(%)		Sm/Nd 比
	Sm	Nd	
1	91.4	91.4	1.00
2	91.5	89.5	1.02
3	83.5	83.2	1.00

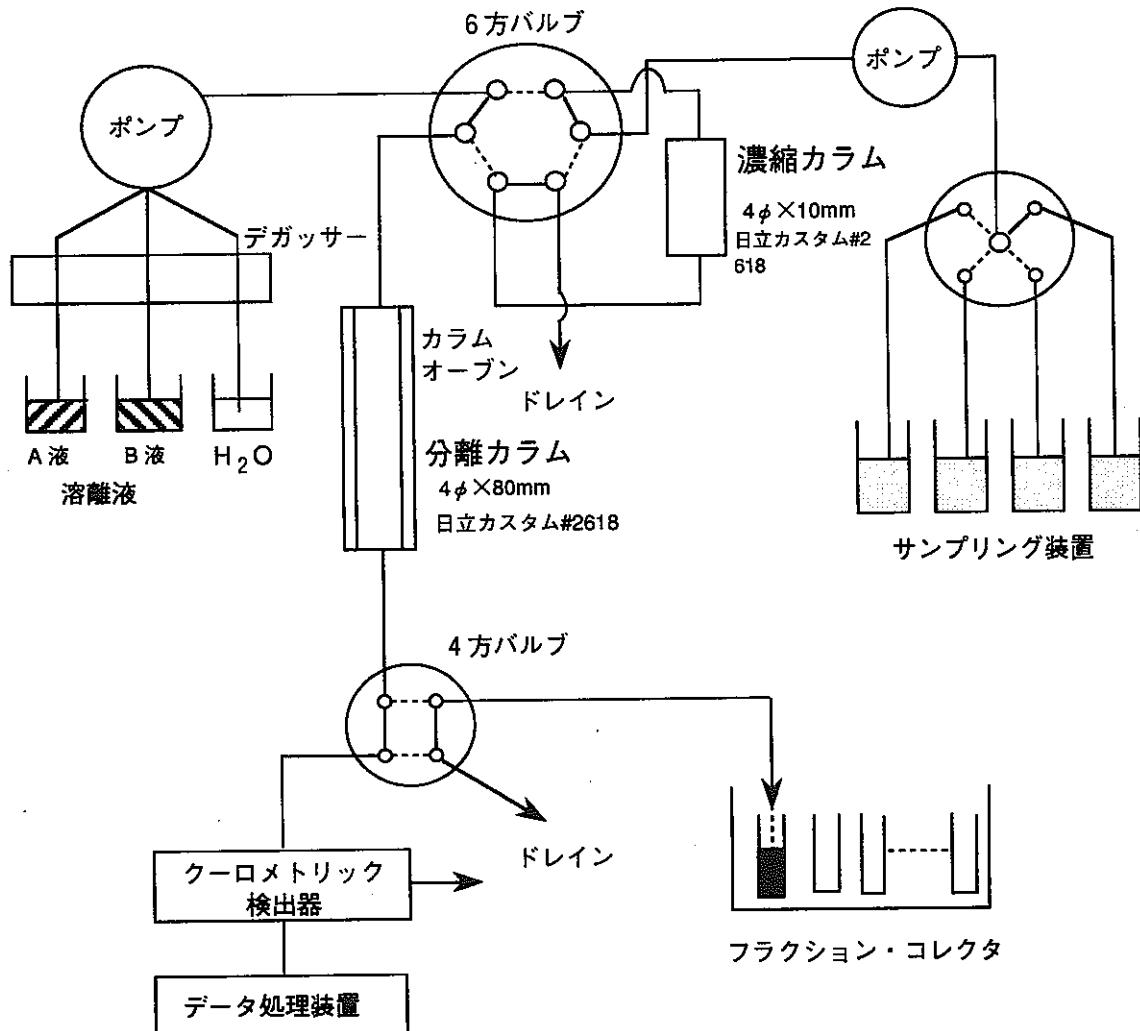
[解説]

環境試料への適用にあたっては、先ずHPLCにかける前までの分析工程において、SmとNdの分析回収率とNdによる分析回収率の補正の妥当性について検討を行い、その後HPLCにおける分離条件の検討を行った。

まず、HPLCにかける前までの分析工程において、SmとNdの分析回収率とNdによる分析回収率の補正の妥当性について検討した結果を示す。

その結果、安定SmとNdの化学収率は約90%であり、Sm/Nd比はほぼ1であった。

以上のことから、HPLCによる分離工程前までにおいて、SmとNdの化学収率は高く、SmとNdは同一挙動を示し、NdによりSmの分析回収率を補正することが妥当であることが分かった。



HPLC 装置の構成概念図

[解説]

これは今回使用した高速液体クロマトグラフ装置（HPLC）の概念図で、2台の定量高圧ポンプ、濃縮カラム、分析用カラム、クロマトメトリック検出器、データ処理装置、フラクションコレクタから構成されている。

濃縮カラム、分析用カラムには、粒形11.5マイクロメートルの陽イオン交換樹脂を用いた。

試料中の希土類元素の分離方法は、まず既知元素をサンプリング装置から濃縮カラムに濃縮を行い、溶離・分離し、クロマトメトリック検出器で溶出時間を求める。

次に、試料を同様に濃縮溶離・分離を行い、溶出してくる元素を先に求めた溶出時間ごとに分割・分取した。

フィード条件の違いによる安定Sm及び
Ndの濃縮カラムからの溶出率

フィード条件	溶出率 (%)		
	Sm	Nd	
流速 (ml/min)	0.5 1.0 2.0 3.0 5.0	<0.1 <0.1 <0.1 <0.1 <0.1	<0.1 <0.1 <0.1 <0.1 <0.1
酸濃度(硝酸) (N)	0.01 0.05 0.1 1 3 8	<0.1 <0.1 <0.1 51.4 97.3 100	<0.1 <0.1 <0.1 38.4 100 100
液量 (ml)	50 100 300	<0.1 <0.1 <0.1	<0.1 <0.1 <0.1

[解説]

HPLCで環境試料中のPm,Sm及びNdを分離するには、まず濃縮カラムへのこれらの元素の濃縮が必要となる。

この表は濃縮カラムへの試料のフィード条件の違いによる安定Sm及びNdのカラムからの溶出率を示したものである。

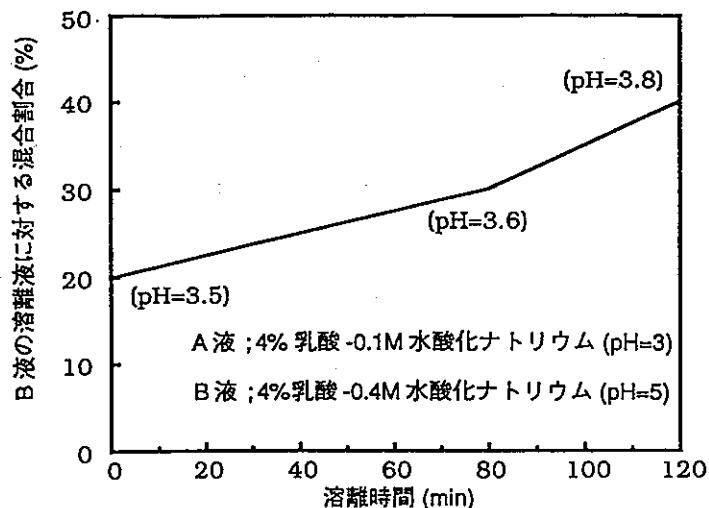
フィード条件としては、流速、酸濃度及び液量について調査した。

その結果、流速については、0.5ml/minから5.0ml/minまで変化させても溶出率はSm及びNdとともに0.1%未満とカラムからの溶出は見られなかった。

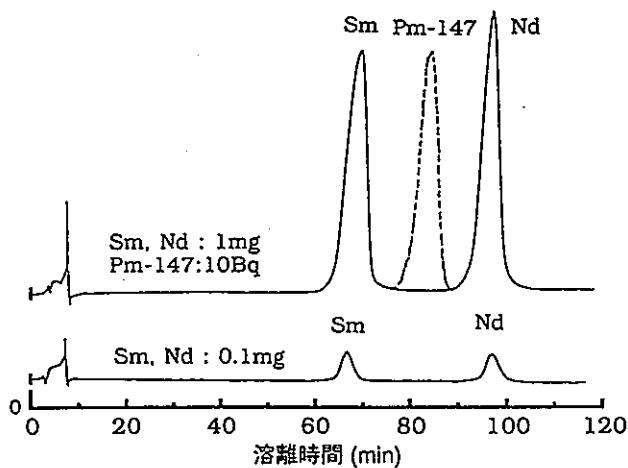
酸濃度については、0.01Nから8Nまで変化させたところ、1N以上になるとSm及びNdの溶出が見られた。このことから、酸濃度については、希釈又は中和といった方法で0.1N以下に調製することが必要になる。

液量については、流速については、5.0ml/min、酸濃度0.1Nで、50mlから300mlまで変化させたがSm及びNdともにカラムからの溶出は見られなかった。

以上のことから、試料を濃縮カラムへフィードする際には、試料の酸濃度を0.1N以下に調製することが非常に重要になることが分かった。



HPLCによる Sm, Pm 及び Nd 分離における
溶離液のグラディエントパターン



HPLC 分離における Sm, Pm 及び Nd の溶離曲線

HPLC 分離における Sm, Pm 及び Nd の溶離液の
グラディエントパターン並びに溶離曲線

[解説]

これは、今回検討した溶離パターン及びその溶離パターンにおける Sm, Pm 及び Nd の溶離曲線を示したものである。

HPLC を用いた希土類元素の分離方法として乳酸 - 水酸化ナトリウム系での pH グラジェント法を用いた。

溶離液は、2種類の pH の異なる 4% 乳酸溶液を用い、混合比を変えて溶離するもので、A液として、4% 乳酸 - 0.1M 水酸化ナトリウム系 pH は約 3 に調整したもの、B液としては、4% 乳酸 - 0.4M 水酸化ナトリウムで pH は約 5 のものを用いた。

溶離パターンは、最初 B液が 20% で、80分後に 30%、120分後に 40% になるように変化させた。

これは、上の溶離パターンでの安定 Sm 及び Nd の溶離曲線で、下側が Sm 及び Nd を各 0.1mg 添加した場合で、上側が Sm 及び Nd を各 1mg 添加した場合のものである。

図より、添加量を変化させても、Sm 及び Nd は十分に分離できるとともに、Pm-147 を用いた分離状況の確認試験においても、Sm 及び Nd との分離ができることが確認できた。

HPLC分離における安定Sm及びNdの保持時間

安定Sm及びNdの添加量 (mg)	保持時間 (分)	
	Sm	Nd
0.10	69.5	100.2
0.50	71.3	100.0
0.75	71.9	100.1
1.00	71.5	99.5
平均 ± 1 σ	71.1 ± 1.01	100.0 ± 0.31
変動係数 (C.V.) (%)	1.4	0.31

[解説]

これはSm及びNdの濃縮量を0.1mgから1mgに変えて溶離した場合のSm及びNdの保持時間を調査した結果を示したものである。

その結果、添加量を変化させても保持時間はほぼ一定で、変動係数としては、2%以下と良好な結果が得られた。

**HPLC分離における安定Sm及びNd
の回収率の再現性**

Run No.	回収率 (%)	
	Sm	Nd
1	92.7	100
2	92.3	102
3	97.1	102
4	94.7	-
5	95.9	100
平均±1σ	94.5±2.05	101±1.2
変動係数 (C.V.) (%)	2.2	1.2

〔解説〕

この表はHPLC分離における安定Sm及びNdの回収率の再現性を調査した結果を示したものである。

再現性については、Sm及びNdともに変動係数として、それぞれ約2%、約1%であり、また回収率としてもほぼ100%であった。

HPLC分離における Eu,Sm,Pm-147 及びNdの除染係数

採取フラクション	除 染 係 数			
	Eu	Sm	Pm-147	Nd
Smフラクション	250	-	>700	-
Pm-147 フラクション	-	450	-	370

[解説]

この表はHPLC分離におけるSm及びPmフラクション中の妨害元素の影響を除染係数として示したものである。

Smフラクションについては、その前後に溶離されるEuとPmについて、Pmフラクションについては、SmとNdについて調査した。

その結果、除染係数として250以上が得られ、これまで分離が困難とされていた希土類元素の分離としては十分満足のいく値が得られた。

**海底土試料におけるSm-151及びPm-147濃度
安定Nd の分析回収率の再現性**

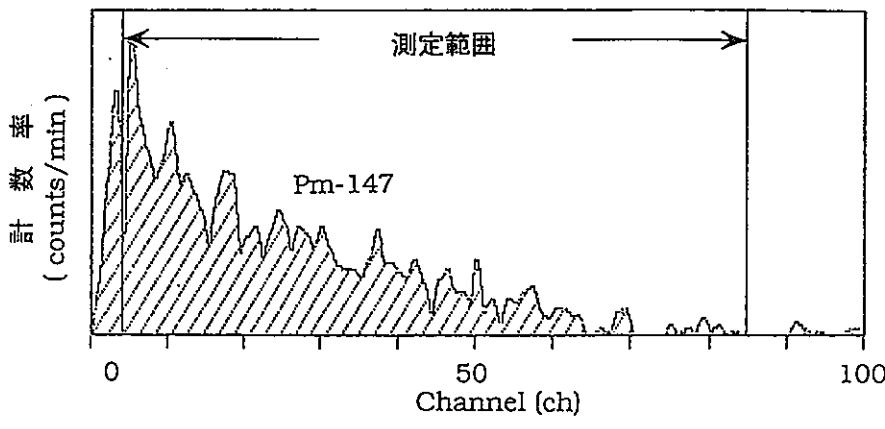
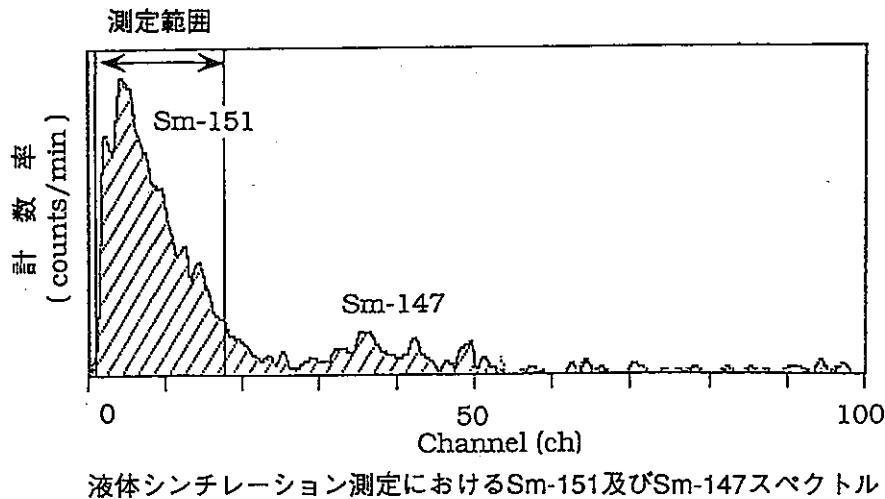
Run No.	濃度 (Bq/kg · dry)		分析回収率(%)
	Sm-151	Pm-147	
1	1.08±0.10	N.D.	91.9
2	1.21±0.12	N.D.	76.4
3	1.03±0.10	N.D.	95.7
4	0.959±0.10	N.D.	87.0
5	1.17±0.11	N.D.	81.3
平均±1σ (標準偏差)	1.09±0.11	-	86.5±7.80
変動係数(C.V.) (%)	9.4	-	9.0

[解説]

この表は海底土におけるSm-151及びPm-147濃度並びに安定Ndを用いた分析回収率の再現性について調査した結果を示したものである。

表より、Sm-151濃度は平均 1.1 ± 0.1 Bq/kg乾で、変動係数として9.4%、また分析回収率については、平均 87 ± 8 %、変動係数として9.4%が得られた。

Pm-147については、実試料の海底土においてはすべて検出下限値未満であったが、追加試験として、海底土にPm-147を添加して同様に分析した結果、変動係数としてSm-151と同様に約9%であることを確認した。



液体シンチレーション測定における
Pm-147及びSm-151スペクトル

[解説]

この図は、Sm-151及びPm-147を液体シンチレーションカウンタで測定した際のスペクトルを示したものである。

液体シンチレーション測定における測定条件及び計数効率については、Pm-147線源及びSm-151の β 線の最大エネルギーとほぼ同一のNi-63を用いて実施した。

尚、Sm-151の測定条件については、天然放射能であるSm-147の α 線の影響を考慮した。

その結果、Sm-151及びPm-147の検出下限値は500分の測定で約0.01Bq/サンプルであった。

ま　と　め

1. 本分析法は、環境レベルのPm-147及びSm-151を定量するに十分な感度及び再現性を有していることが分かった。
2. 本分析法により、環境試料中のPm-147及びSm-151を他の希土類元素を始めとする妨害元素等から分離・精製することができた。
3. 本分析法におけるPm-147及びSm-151の検出下限値は、測定時間500分において、約0.01Bq/サンプルであった。

〔解説〕

以上をまとめると

本分析法は、環境試料を対象とした低レベルのPm-147及びSm-151の分析として、十分な感度と再現性を有する。

また、本分析法におけるPm-147及びSm-151の検出下限値は500分の測定で約0.01Bq/サンプルであった。

今後は、環境中でのバックグラウンドレベルを調査していく予定である。

第33回研究成果発表会
(平成3年11月27日)

論文番号 I-18

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

○森田 重光、清水 武彦、篠原 邦彦、桜井 直行

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

動力炉・核燃料開発事業団
○森田 重光、清水 武彦、
篠原 邦彦、桜井 直行

1. 緒言

テクネチウム-99(⁹⁹Tc)は半減期が 2.1×10^5 年と長く、また、核分裂収率も約 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、環境試料中の濃度は極めて低く、また、純ベータ放射体であるため、既に開発が進められている放射能測定法を用いた場合、試料の調製が煩雑である上、測定にも数日から数週間と長時間を要するという問題点があった。

そこで、本研究ではこれらの問題点を改善するとともに、検出感度の飛躍的な向上を目指し、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)を用いた⁹⁹Tcの高感度定量法を検討した。

また、環境試料中の⁹⁹Tc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、⁹⁹Tcと同様に環境影響評価上重要な核種であると考えられている、プルトニウム-239, 240(^{239, 240}Pu)及びネプツニウム-237(²³⁷Np)との系統分析法を検討した。

本発表では、誘導結合プラズマ質量分析法を用いたこれら長半減期放射性核種の系統分析法について報告するとともに、実試料として、土壤試料を深さ 30cmまでコア状に採取し、土壤中での垂直移行について調査したので、その結果も合わせて報告する。

2. 調査研究の概要

(1) 測定試料

青森県、茨城県、福井県において各 2 試料ずつ表層土を採取し分析に供した。

また、東海村近辺の土壤をコアサンプラーを用いて深さ 30cmまで採取し、5 cm刻みで 6 層に分け、垂直分布調査用の試料とした。

(2) 分析方法

土壤試料を乾燥、灰化した後、酸抽出、鉄共沈法、溶媒抽出法、陰イオン交換法を組み合わせた分離・精製法(図 1)でテクネチウム、ネプツニウム、プルトニウムフラクションに分離し、得られた各フラクションを、誘導結合プラズマ質量分析装置(横河電機製 PMS-2000)で測定した。なお、本実験で用いた試薬は、すべて精密分析用、または、超精密分析用(多摩化学工業製 TAMAPURE-AA-SUPER)である。

(3) 検出下限値

従来から行われている放射能分析法と比べ、検出下限値は 1/10 ~ 1/10000 に向上した。各放射性核種の検出下限値を表 1 に示す。

3. 結語

本分析法を用いることにより、供試料量を従来の 1.5kgから 300g に減少させることができた。また、検出下限値の飛躍的な向上及び分析時間の短縮を図ることができた。

今後は、土壤以外の試料の分析法を開発し、分析件数を増やしてテクネチウム及びネプツニウムの水準調査を行う予定である。

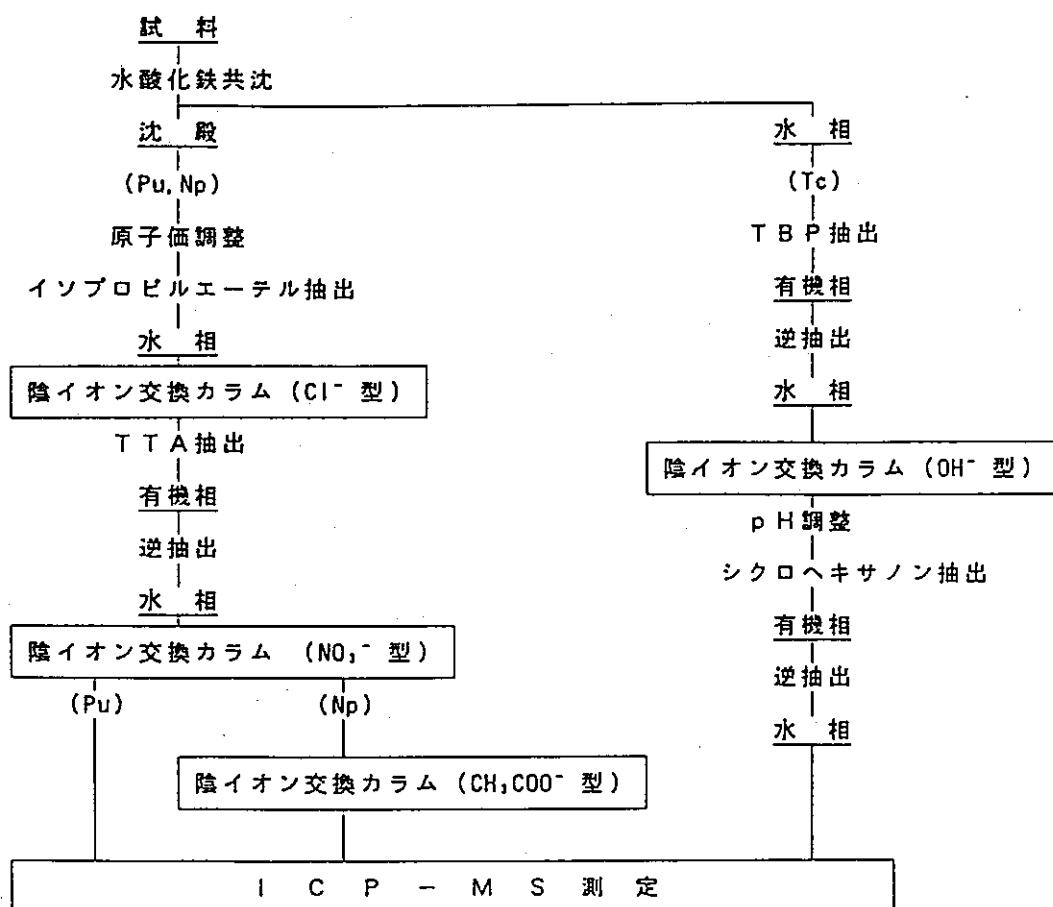
図 1 環境試料中の⁹⁹Tc, ²³⁷Np及び^{239, 240}Puの系統分析法

表 1 各分析法における検出下限値の比較

分析法	検出下限値 (mBq/ml)
[⁹⁹ Tc]	
ガスフローカウンティング法	1.0 - 5.0
液体シンチレーションカウンティング法	25 - 30
中性子放射化分析法	300 - 5000
I C P - M S	1.9 × 10 ⁻⁴
[²³⁷ Np]	
α線スペクトロメトリ	0.08 - 0.2
中性子放射化分析法	0.10 - 0.4
I C P - M S	8.2 × 10 ⁻⁶
[^{239, 240} Pu]	
α線スペクトロメトリ	0.2 - 0.5
I C P - M S	1.2 × 10 ⁻³

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

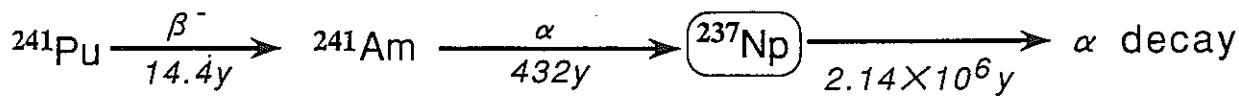
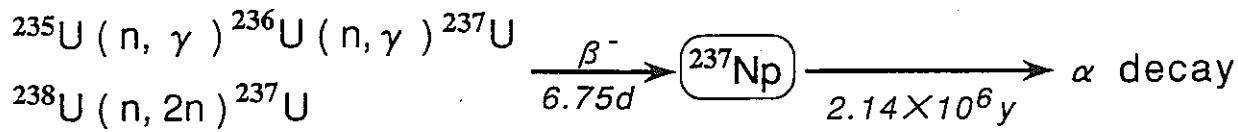
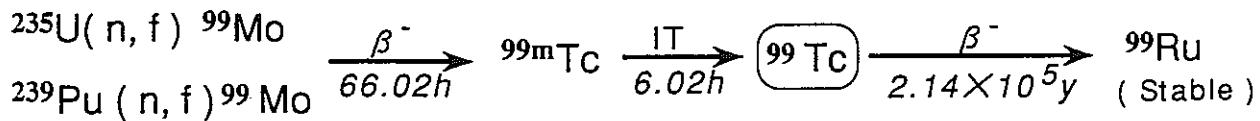
動燃事業団

○森田 重光、清水 武彦、篠原 邦彦、桜井 直行

[解説]

動燃事業団では、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）を導入し、従来の放射能測定法では定量が困難であった長半減期放射性核種の定量法の開発を進めている。

本発表では、テクネチウム-99 及びプルトニウム-239, 240並びにネプツニウム-237の定量法について説明するとともに、本分析手法を用いた環境試料の定量結果についても報告する。



99 Tc及び 237 Npの崩壊図

[解説]

今回対象とした核種は、いずれも半減期が長く、環境影響評価上重要な核種である。

このうち、テクネチウム-99 は、ウラン-235やプルトニウム-239の核分裂によって約 6 %という高い核分裂収率で生成される純ベータ線放出核種であり、半減期も約21万年と長く、廃棄物処分等で注目されている核種である。

また、ネプツニウム-237は原子炉内反応で生成されるほか、核実験で生成されたプルトニウム-241からもアメリシウム-241を経て生成される α 線放出核種で、この核種も半減期が約 210万年と長く、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、これら核種の環境中における濃度は極めて低く、また、 α 線や軟ベータ線を放出する核種であるため、定量が困難であった。

そこで、近年、超高感度な金属元素測定装置として開発されたICP-MSの、環境試料中長半減期放射性核種定量への応用について検討することにした。

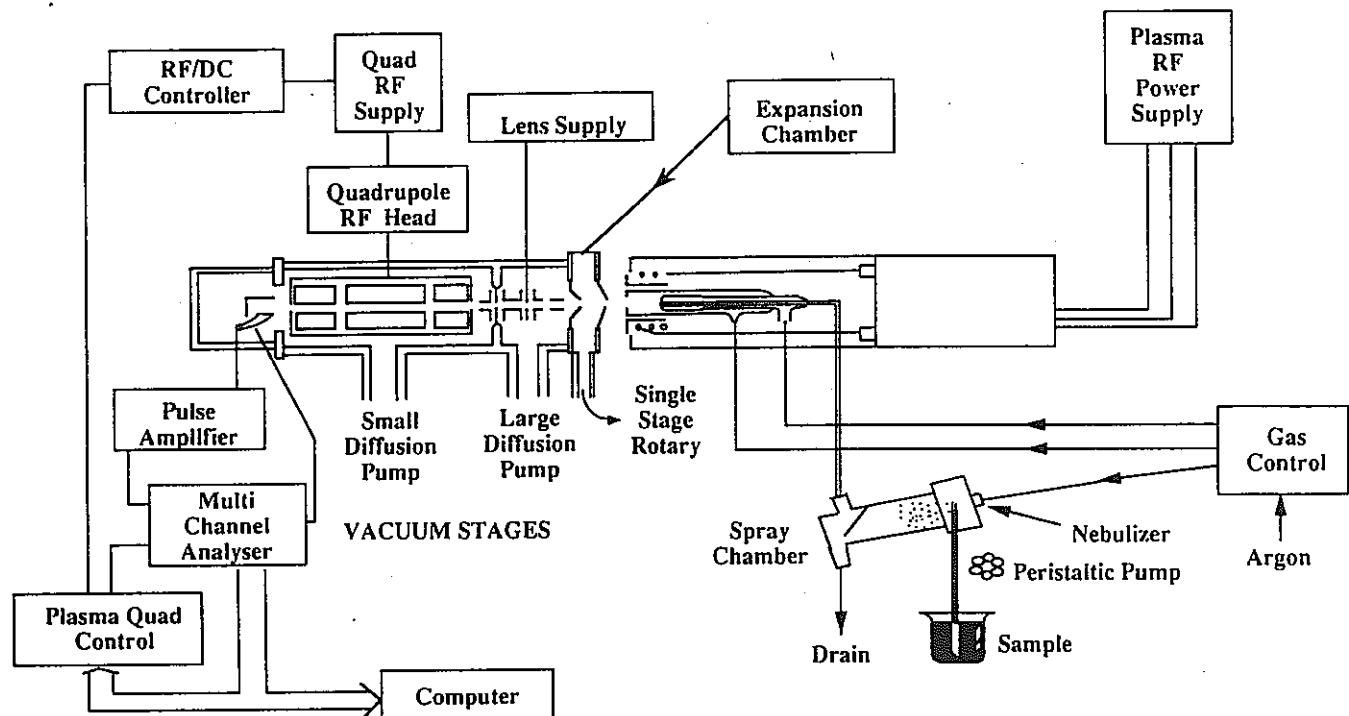
研究目標

1. 誘導結合プラズマ質量分析装置を用いた長半減期放射性核種の高感度定量法の開発
2. 環境試料中Tc-99及びNp-237並びにPu-239,240の系統分析法の開発
3. 環境試料中長半減期放射性核種の濃度水準調査

[解説]

これが、本研究の目的である。

まず、第一番目としてはICP-MSの適用研究。そして、第二番目としてテクネチウム-99及びプルトニウム-239, 240並びにネプツニウム-237の系統分析法の開発。そして、第三番目として開発した分析法を用いて実環境試料の分析を行った。



ICP-MSの構造図

[解説]

これが、ICP-MSの構造図である。

溶液化された試料は、ペルスタルティックポンプで吸引され、ネブライザで霧状にされる。霧状にされた試料は、プラズマに導入されるが、このプラズマの温度は10,000°C以上であるため、試料中の金属元素は効率よくイオン化される。イオン化された元素は、イオンレンズで電気的に集束され、四重極型のマスフィルタで質量ごとに弁別され、エレクトロンマルチプライヤという検出器でパルスカウントされる。

ICP-MSの特徴

1. 検出下限が非常に低い

各元素の検出下限値は ppq～ppt オーダー

2. 測定時間が短い

通常1試料につき数分で測定が完了

3. 多元素を同時に定量できる

質量数1～260の元素の同時定量が可能

4. ダイナミックレンジが広い

5. 放射能比の測定が可能

放射能測定法では弁別が困難である核種の放射能比を測定できる

6. 半定量が可能

検量線を作成しなくても定量が可能

[解説]

これが、ICP-MSの特徴である。

まず、第一に検出下限値が極めて低いということで、多くの元素の検出下限値が、 ppq から ppt である。

また、測定時間が極めて短く、1試料につき、数秒で測定が完了する。ちなみに、従来の放射能測定法でテクネチウム-99 やネプツニウム-237を測定すると、数時間から数日を必要としていた。

その他にも、多元素を同時に定量できる。ダイナミックレンジが 6 衡以上と広い。検量線を作成しなくとも半定量が可能など多くの利点を有している。

各種分析法による長半減期放射性核種の検出下限値

[核種] 分析法	検出下限値 (mBq)
[Tc-99]	
ガスフロー測定法	1.3 - 5.0
液体シンチレーション測定法	25 - 30
ICP-MS	2.1X10⁻³
[Th-232]	
ICP-AES	0.08 - 1.2
中性子放射化分析法	1.0X10 ⁻³
ICP-MS	8.9X10⁻⁷
[Np-237]	
中性子放射化分析法	0.08 - 0.2
α 線スペクトロメトリ	0.2
ICP-MS	4.7X10⁻⁶

[解説]

これが、標準溶液を用いて各核種の検出下限値を求めた結果である。

ICP-MSと従来の放射能測定法を比較してあるが、ICP-MSを用いることにより、従来の放射能測定法に比べ、1/100 ~1/10,000程度向上させられることが判明した。

ICP-MSで定量する際の問題点

目的元素と同一または近傍の質量数に同位体を持つ妨害元素が存在すると、ピークが重なってしまい定量できなくなる

Tc-99を定量する場合 → Ru-99の除去

Np-237を定量する場合 → U-238の除去

[解説]

しかし、このように優れた利点を持つICP-MSにも問題点がある。それは、目的元素と同一または近傍の質量数に同位体を持つ元素が存在すると、ピークが重なってしまい定量できなくなるという、いわゆるスペクトル干渉である。

例えば、テクネチウム-99を測定する場合は、同一質量数に安定同位体を持つルテニウムが、また、ネプツニウム-237を測定する際は、隣の質量数に同位体を持つウランが妨害となる。

$$\text{除染係数} = \frac{\text{添加した放射性物質の濃度}}{\text{分離操作後の溶液中の放射性物質の濃度}}$$

各種分離法によるRu-106の除染係数とTc-95mの回収率

分離方法	Ru-106の除染係数	Tc-95mの回収率 (%)
陰イオン交換法 (NO ₃ ⁻)	220	91.0
溶媒抽出法		
TIOA - 1M HNO ₃	11.1	95.5
TBP - 0.1M HNO ₃	34.9	90.8
C ₆ H ₁₀ O - 1M HNO ₃ *	74.6	71.4
C ₆ H ₁₀ O - 1M K ₂ CO ₃ *	1.9×10 ⁵	80.0
供沈法 (TPAC)	27.1	65.5

*抽出前に酸化

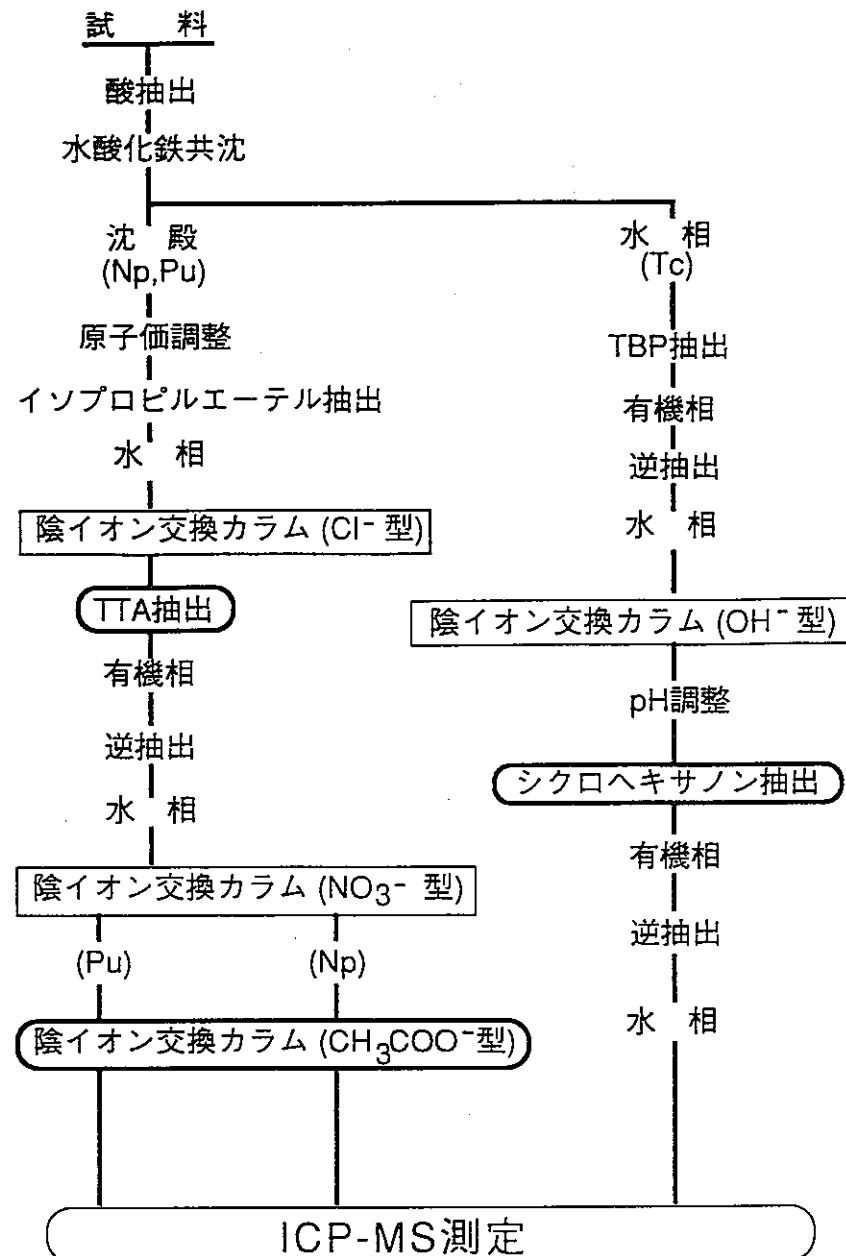
[解説]

そこで、除染係数試験を行い、妨害元素の除去法を検討した。

これは、テクネチウム-99を測定する際妨害となるルテニウムの除去について検討した結果である。

テクネチウム-99は、イオン交換法、アミン、ケトン等の有機溶媒による抽出、テトラフェニルアルソニウム塩による共沈で単離できるので、それらの方法を用いた。

その結果、1規定炭酸カリウム溶液からシクロヘキサンで抽出すると、1.9×10⁵という高い除染係数が得られることが判明したため、このシクロヘキサン抽出法でテクネチウム-99を単離することにした。



Tc及びNp並びにPuの系統分析法

[解説]

同様に、ネプツニウム-237およびプルトニウム-239, 240についても、除染係数試験を行い、妨害となるウランの除去法を検討し、上図に示す系統分析法を開発した。

この系統分析法を開発することにより、分析時間は従来の約 1/2に短縮でき、また、供試量も約 1/3に減量化できた。

表層土中の核種濃度及び強熱減量

試 料	濃 度 (Bq/kg,dry)			強熱減量 (%)
	Tc-99	Np-237	Pu-239,240	
関東 - A	(1.8±0.06)×10 ⁻¹	(8.0±0.20)×10 ⁻³	2.6±0.22	16
関東 - B	(1.0±0.03)×10 ⁻¹	(3.3±0.10)×10 ⁻³	(6.0±0.54)×10 ⁻¹	11
関東 - C	(1.3±0.03)×10 ⁻¹	(4.3±0.12)×10 ⁻³	(9.0±0.63)×10 ⁻¹	12
東北 - A	(1.3±0.04)×10 ⁻¹	(5.0±0.15)×10 ⁻³	(5.8±0.56)×10 ⁻¹	18
東北 - B	(1.0±0.04)×10 ⁻¹	(4.2±0.10)×10 ⁻³	(3.0±0.27)×10 ⁻¹	15
東北 - C	(8.1±0.02)×10 ⁻²	(3.7±0.08)×10 ⁻³	(2.2±0.17)×10 ⁻¹	10

[解説]

開発した測定法を用いて、表層土中の3核種の濃度を定量した。

各核種の濃度レベルは、テクネチウム-99は $8.1 \times 10^{-2} \sim 1.8 \times 10^{-1}$ 、ネプツニウム-237は $3.3 \times 10^{-3} \sim 8.0 \times 10^{-3}$ 、プルトニウム-239, 240は $2.2 \times 10^{-1} \sim 2.6$ の範囲であった。

長半減期放射性核種の深度分布

深度 (cm)	濃 度 (Bq/kg,dry)			
	Tc-99	Cs-137	Np-237	Pu-239,240
0 - 5	1.8×10^{-1}	—	8.0×10^{-3}	2.6
	1.8×10^{-1}	1.2×10^2	8.0×10^{-3}	2.6
5 - 10	1.3×10^{-1}	—	1.1×10^{-3}	5.2×10^{-1}
	1.3×10^{-1}	2.8×10	N.D.	5.3×10^{-1}
10 - 15	7.2×10^{-3}	—	2.7×10^{-4}	1.6×10^{-2}
	N.D.	1.5	N.D.	N.D.
15 - 20	2.4×10^{-3}	—	7.3×10^{-5}	2.1×10^{-3}
	N.D.	5.0×10^{-1}	N.D.	N.D.
20 - 30	1.4×10^{-3}	—	3.1×10^{-5}	1.6×10^{-3}
	N.D.	4.4×10^{-1}	N.D.	N.D.

[] ICP-MS N.D. ; 検出下限値以下
[] 放射能測定法

[解説]

また、深さ30cmまでコア状に土壤試料を採取し、5cm刻みで6層に分け、それぞれの層の核種濃度を定量した。

なお、各試料とも、放射能測定法とICP-MSで定量しているが、いずれも良く一致し、また、放射能測定法で定量できなかった深層の低濃度試料もICP-MSを用いれば定量できることが確認できた。

まとめ

- 1.誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)を用いた長半減期放射性核種の高感度定量法を開発した

従来の放射能測定法と比べ検出下限値は1/10～1/10000に向上
測定時間は1/300～1/10000に短縮

- 2.環境試料中Tc-99及びNp-237並びにPu-239,240の系統分析法を開発した

供試量を約1/3に減量

- 3.環境試料中各種長半減期放射性核種の濃度水準を調査した

Tcの移行速度は速いと考えられていたが、大部分が表層に保持されていた

[解説]

成果をまとめると上記のようになる。

第34回研究成果発表会
(平成4年12月9日)

論文番号 IV-5

環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査

○森澤 正人、渡辺 均、鈴木 猛、
飛田 和則、倉林 美積

環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 安全管理部
森澤正人、渡辺 均、鈴木 猛、飛田和則、倉林美積

1.緒 言

プルトニウム($^{239}, ^{240}\text{Pu}$)及びアメリシウム(^{241}Am)等のアクチニド核種は、長半減期の α 線放出核種であり核燃料サイクルにおける環境影響評価上重要な核種である。

現在、環境中で検出される $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am は、主として大気圏内核爆発実験に起因するフォールアウトの影響によるものである。比較的短半減期な β 線放出核種である ^{241}Pu ($T_{1/2}=1.44 \times 10^6$ 年)から生成される ^{241}Am は、さらに長半減期の α 線放出核種である ^{237}Np ($T_{1/2}=2.14 \times 10^6$ 年)に壊変することから、 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ と同様に長期的な観点に立った環境調査が必要である。このため、各種環境試料中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の測定調査を行いデータの蓄積を図ってきた。

本報告では、1979年から1990年までの東海村周辺環境における $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度水準について述べる。

2.調査研究の概要

(1)対象試料

各種環境試料(降下物、表土、海水)は、東海村施設周辺における定常モニタリングで採取したものである。

(2)分析・測定法

各種環境試料は、それぞれの試料に合った前処理を行った後に分析に供した。試料中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の分析は、それぞれトレーサとして ^{236}Pu 又は ^{242}Pu 並びに ^{243}Am 又は ^{244}Cm を添加した後、硝酸で浸出し、イオン交換法により系統的に分離精製してステンレス板上に電着した。電着したPu及びAmは、表面障壁型シリコン半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリーにより定量した。

(3)水準調査結果

a)降下物

1979年～1989年までの降下物中 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の年間降下量を図1に示す。

1970年代後半の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の年間降下量は、大気圏内核爆発実験のフォールアウトの影響を残しつつ減少傾向にあり、1984年以降はほぼ横這い状態になっている。

一方、 ^{241}Am の年間降下量は、 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ のような顕著な減少傾向は観察されなかった。

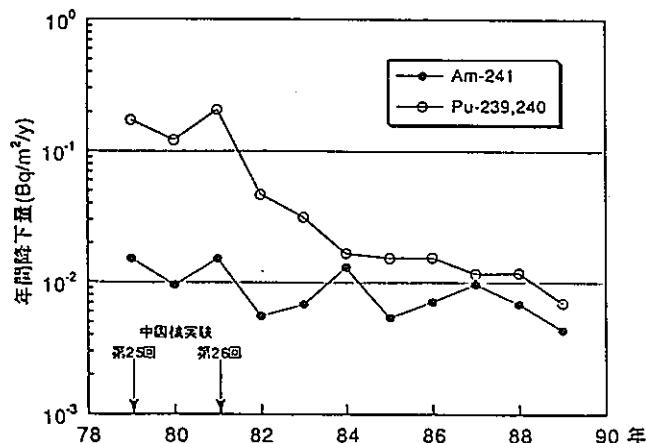


図1 降下物中のPu-239, 240及びAm-241の年間降下量

b)表 土

1983年～1990年までの表土中 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度並びに $^{241}\text{Am}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 放射能比(Am/Pu 放射能比と略す)を図2に示す。

表土中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度は、採取場所の表土中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の分布の不均一性を反映して、大きな変動が見られたが、 Am/Pu 放射能比については0.23～0.38の範囲で、平均0.30であり、他の地点のデータ¹⁾と同レベルであった。

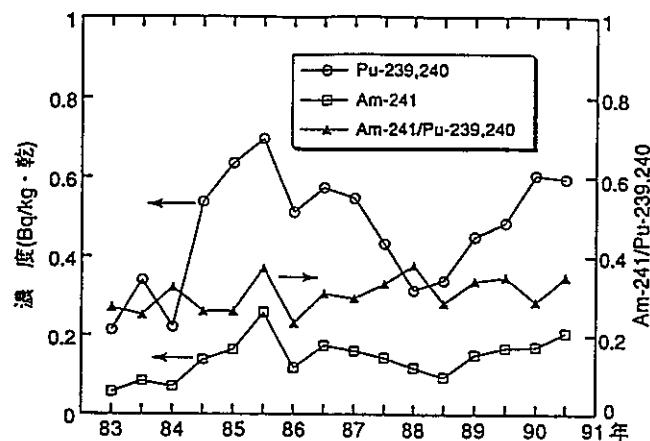


図2 表土中のPu-239, 240及びAm-241濃度の経年変化並びに放射能比

c)海 水

1982年～1990年までの海水中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の年平均濃度の経年変化を図3に示す。

海水中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度はほぼ一定に推移している。

また、 Am/Pu 放射能比は0.18～0.35の範囲であり、他の地点のデータ²⁾と同レベルであった。

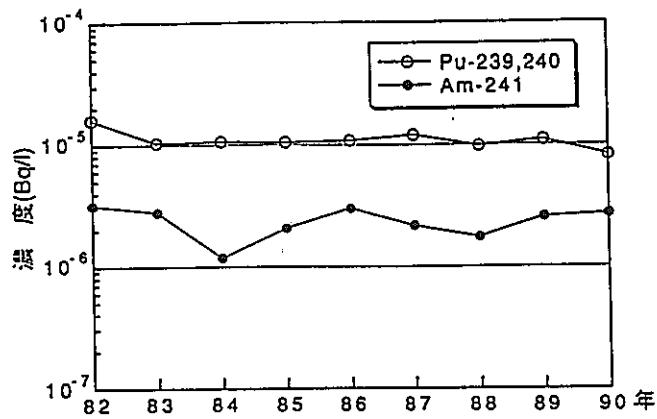


図3 海水中のPu-239, 240及びAm-241濃度の経年変化

3.結 言

各種環境試料中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am を継続的に分析・測定することにより、フォールアウトの影響であることが分かった。今後は、引き続き環境中 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am のデータの蓄積を図るとともに、これら核種の環境中での挙動について調査する。

参考文献

- 1)M. Yamamoto, et al., Radiochimica Acta., 51(1990)85
- 2)Y. Miyake, et al., Proc. 6th ICRR, Tokyo, May13～19, (1979)940

環境中Pu及びAmの濃度水準に関する調査

○森澤正人，渡辺 均，鈴木 猛，飛田和則，倉林美積

[解説]

目的

動燃・東海事業所では、核燃料再処理工場及びプルトニウム燃料工場等の核燃料取扱施設がある。再処理工場は、1977年のホット試験から1992年3月までに600 tを越える使用済燃料を処理してきており、プルトニウム燃料工場では、1000体を越える燃料集合体を製造してきている。

環境安全課では、これらの施設の運転に伴う環境モニタリングの一環として、各種環境試料中のPu-239,240のモニタリングを実施してきた。Pu-239,240等のアクチニド核種は、長半減期の α 線放出核種であり、核燃料サイクルにおける環境影響評価上重要な核種である。また、プルトニウム中のPu-241から生成するAm-241についても、その半減期が432年と長く、更に、長半減期のNp-237に壊変することから、環境影響評価上注目すべき核種である。

そこで、環境試料中のAm-241分析法を開発するとともに、10年前から定常的に、Puとの系統分析を実施してきた。

本報告では、施設の運転に係るモニタリングとして実施している、Pu-239,240の調査結果及び環境中の挙動に係る調査研究として実施しているPu-239,240とAm-241の各種環境試料の調査結果を報告する。

報告順序

1. 測定対象試料

2. 分析法の概要

3. 調査結果

(1) 陸上環境

降下物，表層土壤

(2) 海洋環境

海水，海底土，褐藻類

[解説]

報告順序

本報告では、

- (1) 測定対象については、現在、環境安全課で実施しているPuの定常モニタリング試料及び拳動に係る調査研究として実施しているPu-239,240・Am-241の試料について報告する。
- (2) 環境試料分析法の概要について
- (3) 各種環境試料中の調査結果については
　　陸上環境試料として、降下物，表層土壤について
　　海洋環境試料としては、海水，海底土，褐藻類について
報告する。

年間の測定対象

	試料種類	供 試 量	試 料 数(件)
空 気 中	浮遊塵	$1 \times 10^4 \text{ m}^3$	30
陸 上	降下物	0.5m ² の水盤	12
	葉 菜	生約 3 kg	12
	畑 土	50 g	12
	表 土	50 g	10
	精 米	生約 3 kg	3
海 洋	海 水	100 ℥	15
	海岸水	100 ℥	15
	海底土	50 g	20
	海岸砂	50 g	15
	海産物	生約 1 kg	70
総 試 料 数			214

〔解説〕

測定対象

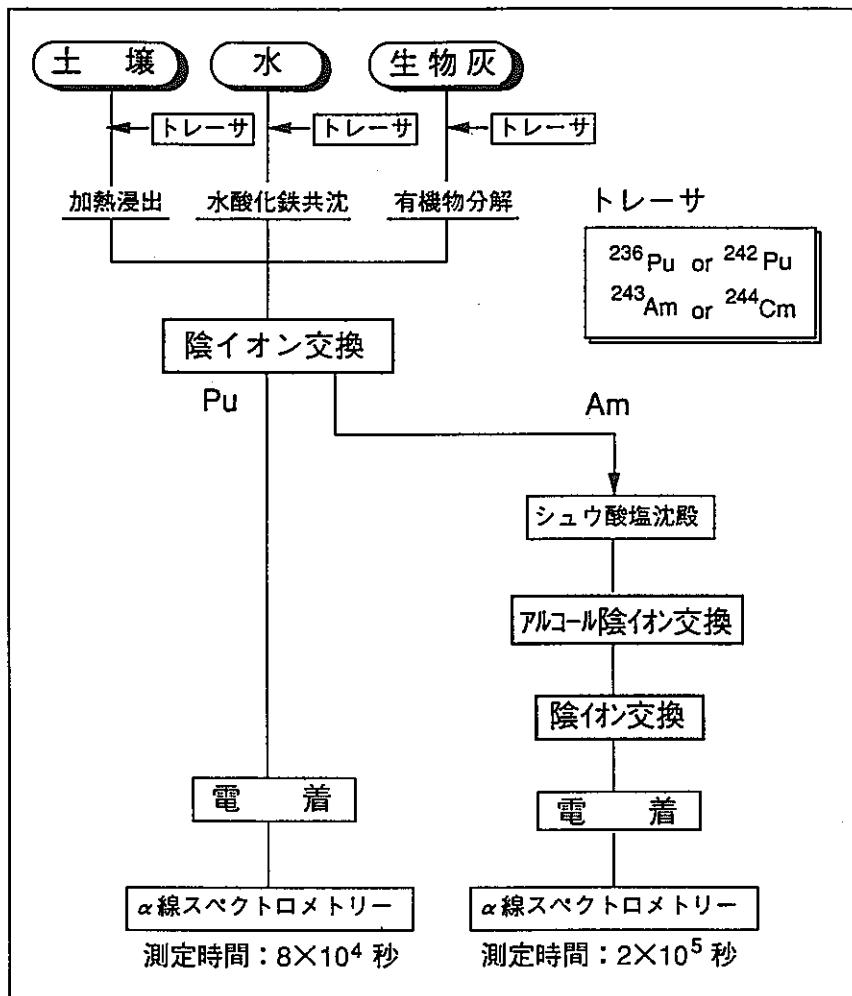
測定対象試料については、Pu-239,240とAm-241の系統分析を実施している。

空気中試料、浮遊塵は、ダストサンプラーにより、連続サンプリングしたフィルターを測定試料として分析している。

陸上環境試料の降下物については、事業所敷地内に設置した0.5m²の水盤により1カ月間の試料を分析測定したものである。表土については、表層下5cmまでの土を採取し、乾燥後、篩にかけ直径2mm以下のものを試料とし、50gを用い分析している。

また、海洋環境試料の海水については、海水100ℓを試料として分析し、海底土については、表土と同様に処理し分析している。海産物については、魚介類、褐藻類等について測定している。褐藻類については、根を除いた部分を可食部として、灰化し、生重量換算で約1kgに相当する灰約20gを分析している。

これらの環境試料の年間処理件数については、Pu,Amについて、約200件あまりの分析測定を実施している。



環境試料中Pu-239,240及びAm-241分析法

〔解説〕

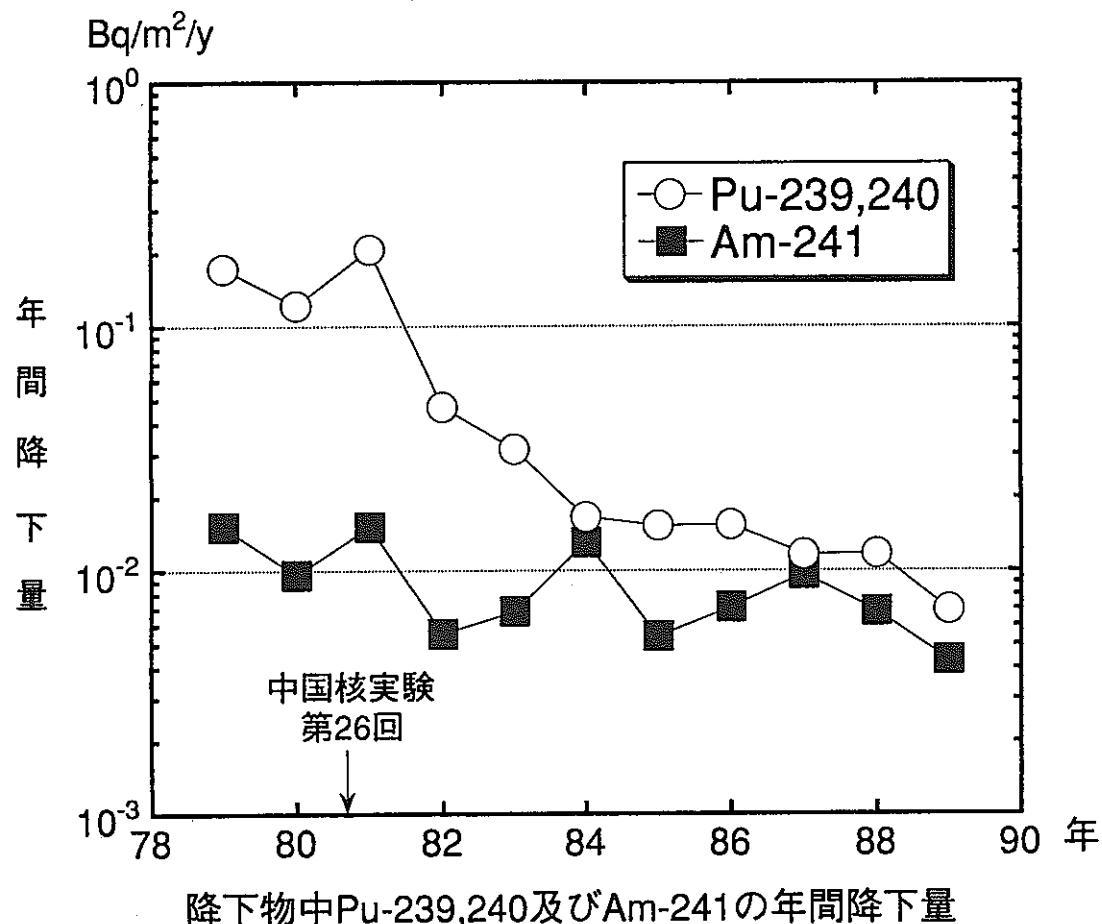
分析方法

測定対象としては、土壤試料、水試料、生物灰試料であり、試料には、回収率補正用トレーサを添加し、分析を実施している。

各種環境試料は、トレーサ添加後、土壤試料では、硝酸により加熱浸出し、水試料は、水酸化鉄共沈捕集法により、また、灰試料については、硝酸により有機物を分解し、分析を実施している。

試料の浸出、回収、分解後、陰イオン交換法によりAm-241の分離及びPu-239,240を精製する。精製したPuは、ステンレス板上に電着し、 α 線スペクトロメータにより、 8×10^4 秒測定し、定量を実施している。

また、Amについては、Puと分離後、シュウ酸塩共沈法により妨害金属を除去後、アルコール陰イオン交換法により、Amを精製し、その後、更に、陰イオン交換法により、Thを分離後、電着し、 α 線スペクトロメータにより 2×10^5 秒測定を行い、定量を実施している。



[解説]

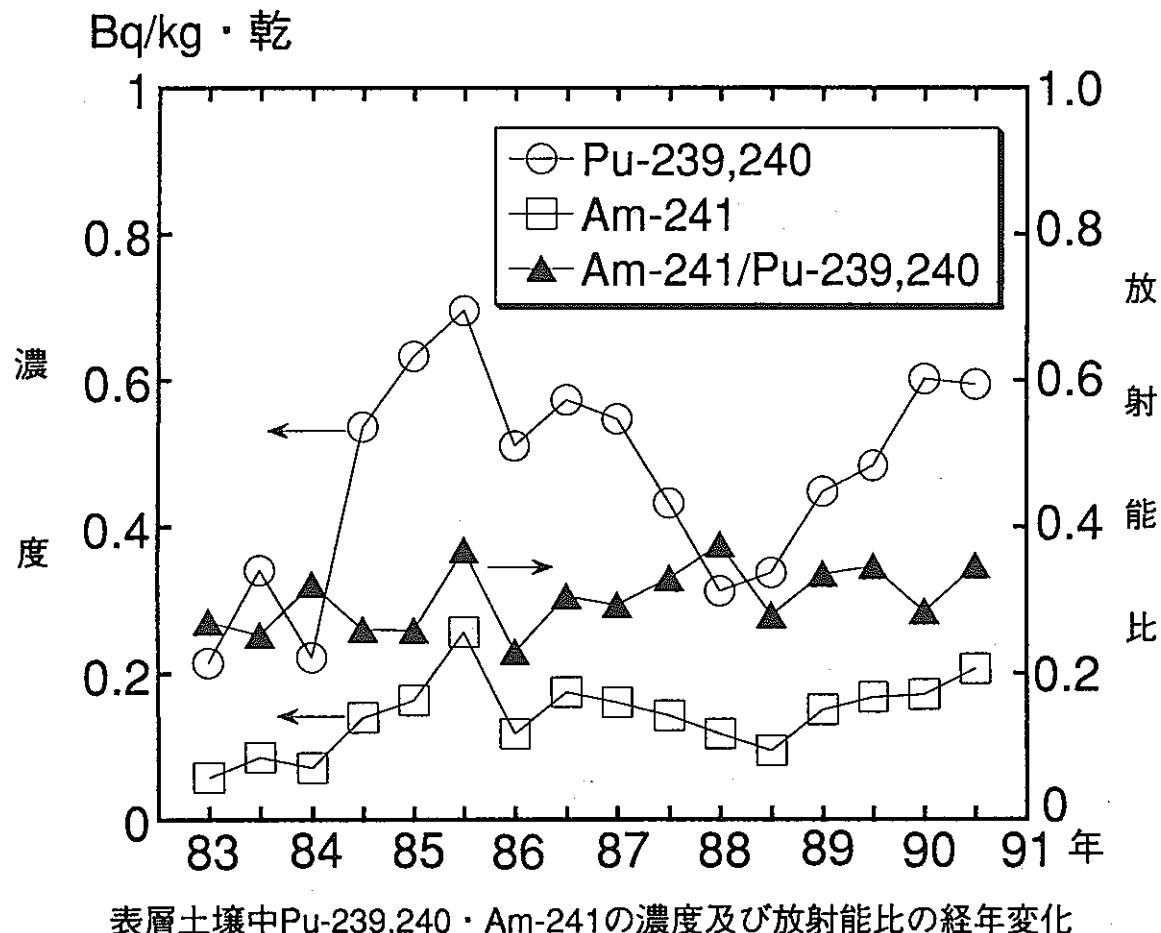
調査結果

調査データの整理方法としては、測定上の誤差、標準偏差 1σ 以上のデータを用い解析した。

降下物

Puの年間降下量は、過去に行われた大規模な大気圏内核実験の影響を残しながら、1984年まで顕著な減少傾向が観察されている。1981年には、第26回、中国核実験の影響と考えられるピークが検出され、1984年以降については、減少傾向が観察されているが、測定精度からすると、ほぼ一定に推移しているものと考えられる。Puの1989年の年間降下量は、 $7 \times 10^{-3} \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{y}$ のレベルである。

一方、Amの年間降下量については、Puのような顕著な減少傾向は観察されていない、1989年の年間降下量は、 $4 \times 10^{-3} \text{ Bq}/\text{m}^2/\text{y}$ のレベルにある。

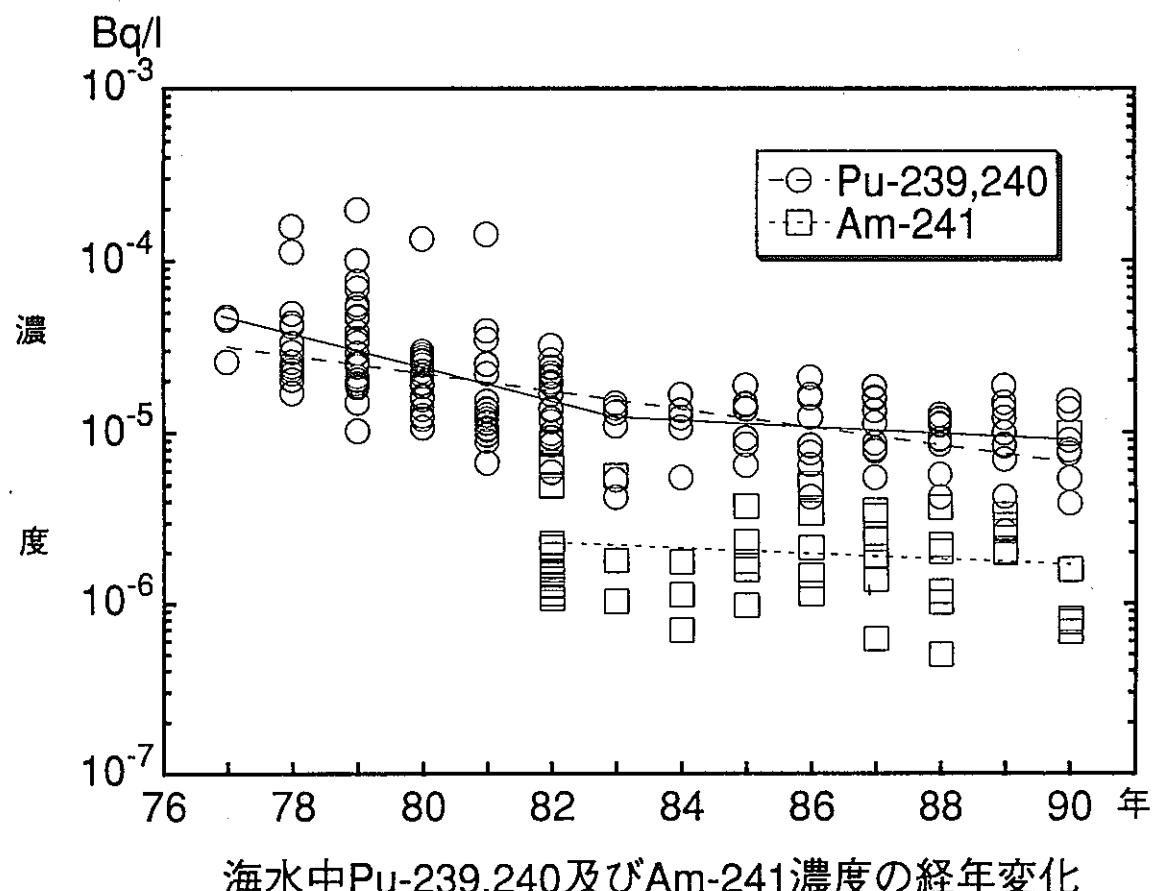


[解説]

表土

表層土壤中のPuの濃度は、0.22～0.70 Bq/kg・乾土の範囲である。Amの濃度範囲は、0.058～0.26 Bq/kg・乾土であり、表層土壤試料を採取する際のサンプリング誤差による、濃度の大きな変動と考えられる。

各年のAm-241/Pu-239,240放射能比（以下、Am/Pu放射能比と略す）については、0.23～0.38の範囲であり、平均で0.30とほぼ一定のレベルで推移している。



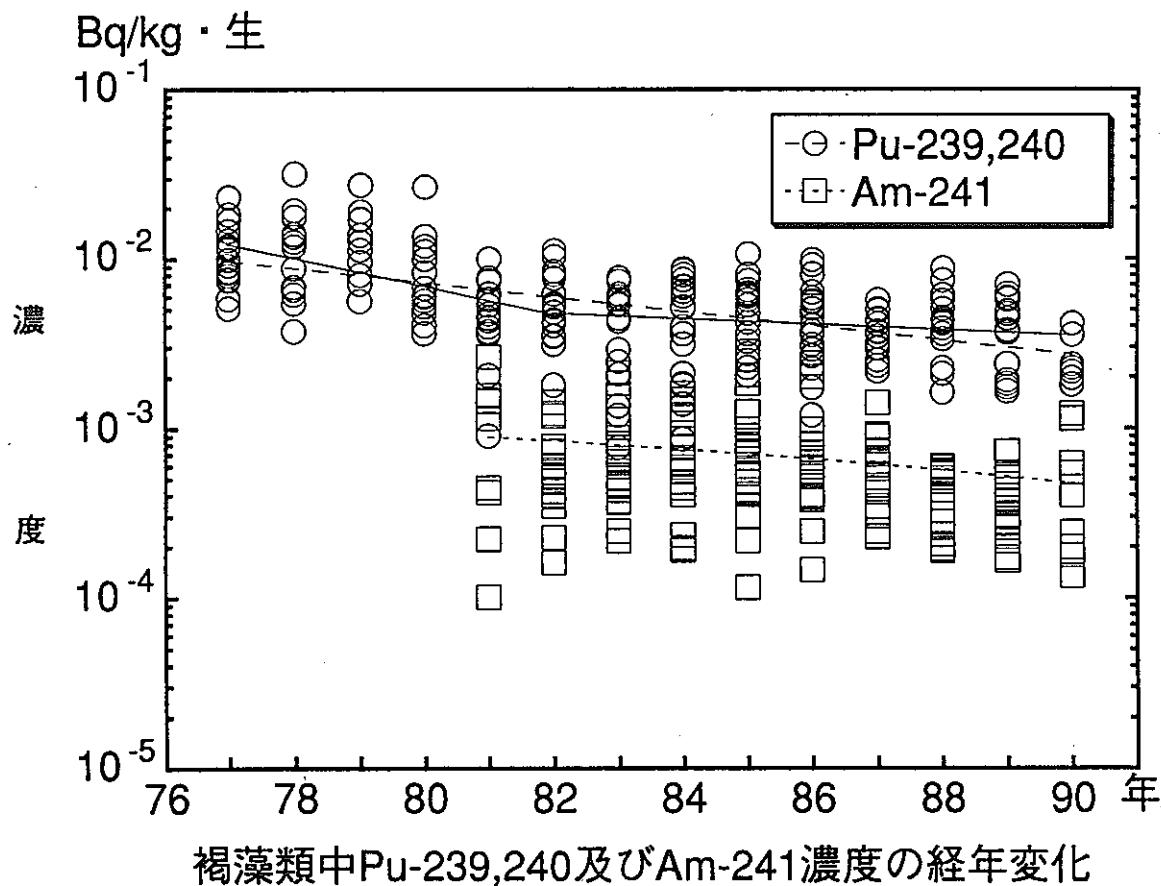
[解説]

海 水

海水中のPuの濃度は、 $3.7 \times 10^{-6} \sim 2.0 \times 10^{-4}$ Bq/l の範囲であり、1977年～1990年までの期間では、全体として、直線的な減少傾向が観察されている。また、降下物の経年変化において、顕著な減少傾向が観察された1977年～1980年代前半まで、海水中のPuの濃度も同様な減少傾向が観察された。1983年以降については、ほぼ一定に推移している。

一方、海水中のAm-241の濃度については、 $5.0 \times 10^{-7} \sim 9.9 \times 10^{-6}$ Bq/l の範囲であり、Puと同様に、ほぼ一定に推移している。

また、Am/Pu 放射能比については、1982年～1990年までのデータを基に算出した結果、0.18～0.35の範囲であった。



[解説]

褐藻類

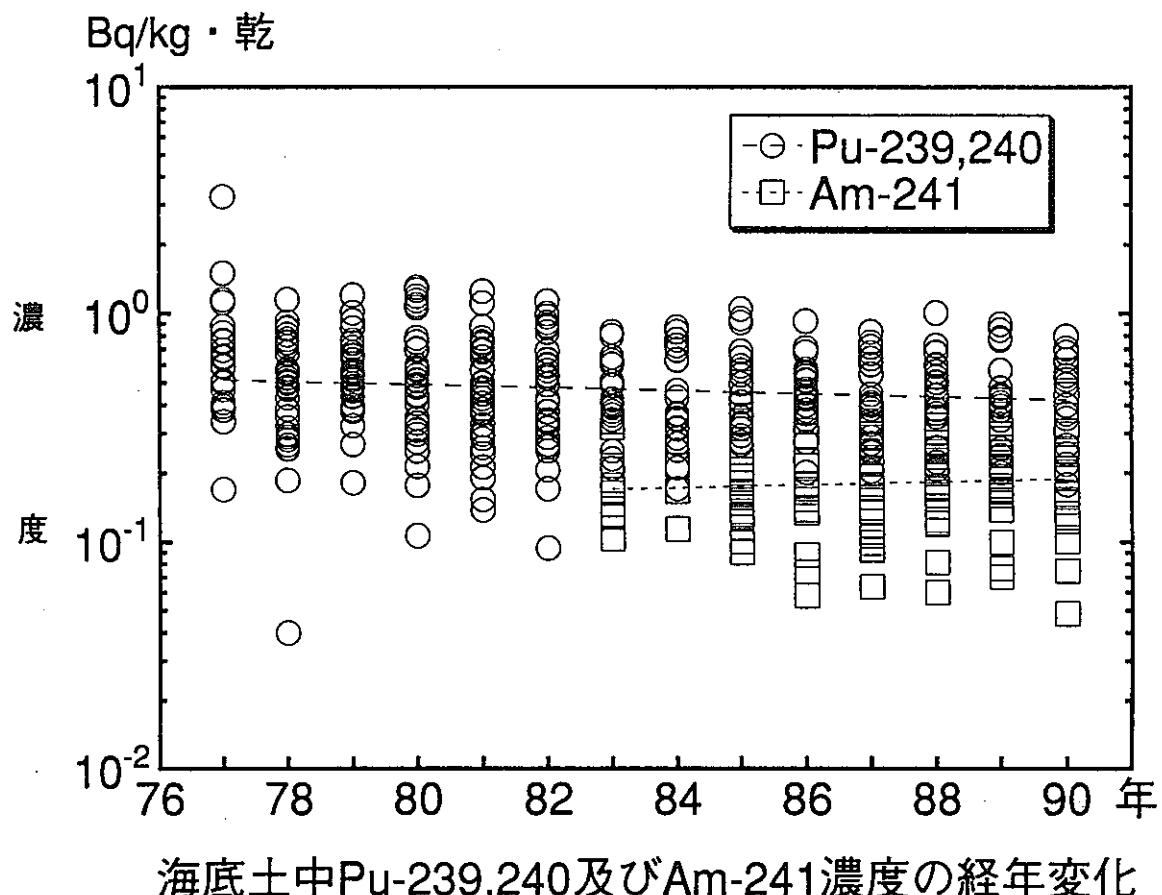
海産物としては、ワカメ、ヒジキ、カジメなどの褐藻類について、PuとAmの系統分析を実施し、1977年～1990年までの各年の濃度変化を示した。

褐藻類中のPuの濃度は、 $7.8 \times 10^{-4} \sim 3.2 \times 10^{-2}$ Bq/kg · 生の範囲であり、全体の濃度傾向としては、海水と同様な減少傾向を示している。また、褐藻類についても、海水と同様に、1977年～1980年代前半までは、僅かな減少傾向が観察され、1982年以降は、ほぼ一定に推移している。

Amについては、 $1.0 \times 10^{-4} \sim 5.2 \times 10^{-3}$ Bq/kg · 生の範囲であり、Puと同様に、ほぼ一定に推移している。

そして、褐藻類中のPu,Amの濃度傾向と海水中の濃度傾向が、ほぼ一致した傾向を示している。

また、海水中のPu,Amの濃度と褐藻類中濃度が、平衡に達していると仮定して、1981年～1990年までのデータを基に、褐藻類の濃縮係数を算出した結果、Puでは、約400、Amでは、約300であった。



[解説]

海底土

海底土中のPu及びAmについては、1977年～1990年の各年の濃度変化を上図に示す。

海底土中のPuの濃度範囲は、 $4.0 \times 10^{-2} \sim 3.3$ Bq/kg・乾の範囲であり、1977年～1990年まで、ほぼ一定に推移している。一方、Amの濃度範囲は、 $4.8 \times 10^{-2} \sim 5.6 \times 10^{-1}$ Bq/kg・乾の範囲にあり、フォールアウト中のPu-241から生成したと考えられる僅かな増加傾向が観察された。

また、Am/Pu 放射能比については、1983年～1990年までのデータを用い算出したところ、平均では、0.40であった。

また、海水中のPu,Am濃度と海底土中の濃度が、平衡に達していると仮定して、1983年～1990年までのデータを基に、海水から海底土への分配係数は、Puでは、約 4×10^4 、Amでは、約 9×10^4 であった。

- (1) 環境試料中Pu-239,240及びAm-241の濃度水準を把握し試料中Pu-239,240及びAm-241の変動傾向を確認することができた。
- (2) 環境試料中のPu-239,240及びAm-241が、フォールアウトに起因したものであることが確認できた。

[解説]

まとめ

- (1) 1977年～1990年までに調査した環境試料について、濃度水準を把握したことにより、試料それぞれの変動傾向を確認することができた。
- (2) これまでの調査から、Am/Pu の放射能比は、表土については、0.23～0.38の範囲で、平均0.30となり、金沢大学・山本らの研究報告とほぼ一致した結果であったことから、調査対象とした環境試料中Pu及びAmは、フォールアウトに起因したものであることが確認できた。
- (3) 環境試料それぞれの変動傾向及び環境試料中の放射能比からは、施設寄与の影響と考えられるような測定値、または、特異な傾向については、観察されなかった。

質疑応答

質問-1 Puの降下物については、80年代前半までの急激な減少傾向に比べて、80年代半ばからは、ほぼ一定に推移しているように見えますが、この結果をどのように考えますか。（気象研究所 広瀬）

応答-1 Puの降下物は、84年以降、検出下限値前後で推移しています。また、降下物のサンプラーは、地上から約15mの位置に設置しているため、表層土壌からの再浮遊による影響も考えられます。

質疑-2 海水中のPu,Amの濃度の減少傾向と比べて、海底土中の核種濃度の減少傾向が、若干異なっているように見えますが、これは、降下物が、近年減少している上に、海水表層に降下した核種が沈降し、海底に堆積しているためと考えてよろしいでしょうか。

（金沢大学 低レベル放射線研究所 山本）

応答-2 全く、その通りだと考えております。

質問-3 海水中の核種濃度の経年変化のグラフにおいて示された各年のデータは、大きな変動が、あるように見られますが、全て同一ポイントで採取したデータを示したものでしょうか。

応答-3 海水の各年のデータは、東海沖海域において採取した海水全てのデータを示したものです。

第35回研究成果発表会
(平成5年12月1日)

論文番号 VI-6

α / β 分別測定を用いた²⁴¹Pu定量法

○植頭 康裕、清水 武彦、吉崎 裕一、飛田 和則

α/β 弁別測定を用いた ^{241}Pu 定量法

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所
植頭康裕、清水武彦、吉崎裕一、飛田和則

1. 緒言

^{241}Pu は、半減期が14.4年と他のPu同位体に比べ比較的短く、軟 β 線放出核種（ β 線最大エネルギー：21keV）であり、環境中にも過去の大気圏内核実験からの累積として存在し、その放射能量はPu同位体中最も大きい。

また、 ^{241}Pu は β 壊変の後、アクチニド元素の中で環境中における挙動が注目されている ^{241}Am となるため、線量当量評価上重要な核種に位置づけられる。

この ^{241}Pu 測定は、その β 線エネルギーが低いことから、低エネルギー β 線の計数効率が高い液体シンチレーションカウンタ（LSC）が用いられる。Pu分析法としては回収率補正に α 線を放出する ^{242}Pu をトレーサとして用いているが、LSCの測定では α 線の分解能が悪く、トレーサとPu (α) 同位体を弁別することができないため全Pu (α) の放射能として測定することになる。

しかし、LSCは α 線と β 線の弁別が可能なこと、また α 線に対する計数効率が100%であるなど利点もある。そこでLSC測定を行う前にSi半導体検出器（SSD）にて全Pu (α) の放射能を求め、次にLSCで ^{241}Pu / 全Pu (α) の放射能比を算出する。この比にSSDで求めた全Pu (α) 放射能を乗じることによって ^{241}Pu を定量する方法について検討した。

LSC測定においては、 α 線領域には β 線由來のバックグラウンドが多く存在するという欠点があるが、 α 線のパルス減衰時間は β 線に対し長いため（図1）、この特性を利用した α/β 弁別測定により β 線由來のバックグラウンドの低減化及び測定に適したシンチレータの選定並びに環境試料への適用法について検討した。

2. 調査研究の概要

LSC測定では、 α 線の計数効率が約100%得られる特徴を有する。 ^{241}Pu の放出する β 線と他のPu同位体が放出する α 線との波高弁別の例（概念）を図2に示す。この方法では α 線領域に約9cpmのバックグラウンドが存在している。

そこでパルスの減衰時間の差を利用して α/β

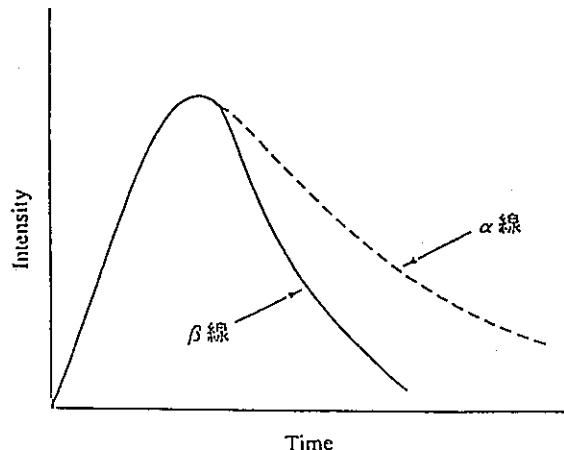
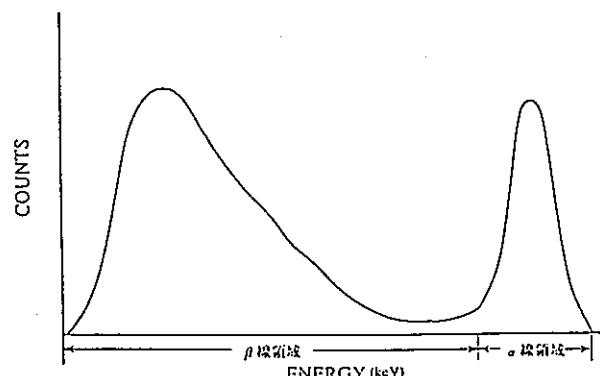


図1 減衰時間の差によるタイムスペクトル

図2 α/β の波高弁別の例

の弁別を行い、 α 線測定領域のバックグラウンドを減少させる方法について検討した。

^{241}Pu の分析・測定フローを図3に示す。本法では分析工程の回収率を求めるためトレーサとして既知量の ^{242}Pu を添加し、陰イオン交換法を用いて精製し、電着した後SSDによる α スペクトロメトリにより放射能を求める。

測定後の電着試料は、科学技術庁放射能測定法に従い、硝酸と過酸化水素水によって剥離し、その溶液を陰イオン交換法を用いることにより精製し溶液の調整を行い、シンチレータと混合した後、LSCにおいて α/β 弁別測定を行う。

様々なシンチレータにおける α 線領域への β 線の混入（スピルオーバー）や β 線の計数効率の比較結果を表1に示す。以上の結果、スピルオーバー比較ではナフタレンがベースであるシンチレータAやBが良好な結果を示している。

また、 β 線の計数効率の比較では、 ^{241}Pu の最大エネルギーに近い ^3H を用いて測定を行った結果、キシレンベースであるCやDの効率が良いことがわかる。

そこで計数効率の最も良いDにおいて α 線と β 線の弁別性を良くするため、ナフタレンを添加（0.1g/mlキシレン）、 α 線領域に含まれる β 線由来のバックグラウンドを低下させた（D'）。

図4にDとD'のスピルオーバーを示す。

3. 結語

本法はSSDとLSCでの α/β 弁別法を用い、さらに測定に適したシンチレータを選定することで α 線領域におけるバックグラウンドが、これまでの9cpmから0.2cpmへと大幅に低減することができ、LSC測定時の $\text{Pu}(\alpha)$ の測定精度の向上が図られた。

土壤試料へ本法を適用した場合には、供試料200g、効率45%、回収率65%の条件とした場合約 $1 \times 10^{-1}\text{Bq/kg}$ の検出限界が得られ、現在の環境中の濃度レベルを把握することが可能である。

今後は、環境試料への適用を図り、 ^{241}Pu のデータの蓄積を図る。

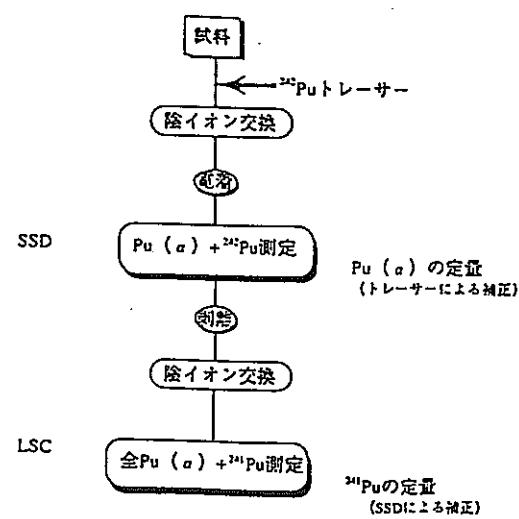


図3 α/β 弁別法を用いた ^{241}Pu の分析フロー

表1 シンチレータ試験の結果

Scintillator	Spillover (%)		Background (cpm)		Efficiency ^3H (%)
	α	β	α	β	
ナフタレンベース	A	4.28	3.64	0.4	30.7
	B	3.18	3.84	0.6	42.1
キシレンベース	C	11.82	12.35	2.8	45.5
	D	12.00	12.38	0.4	47.6
	D'	4.90	6.42	0.2	46.9

* D'はDにナフタレンを添加したもの

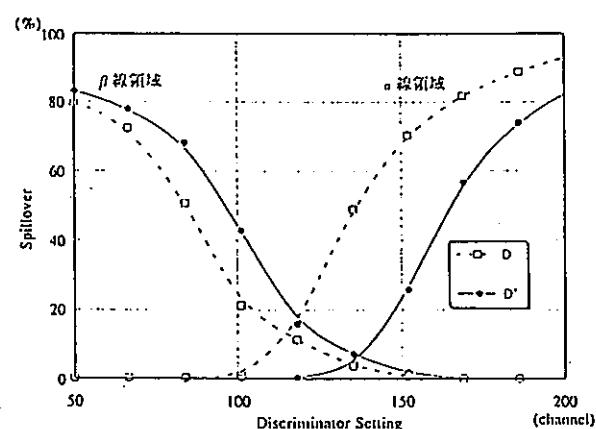


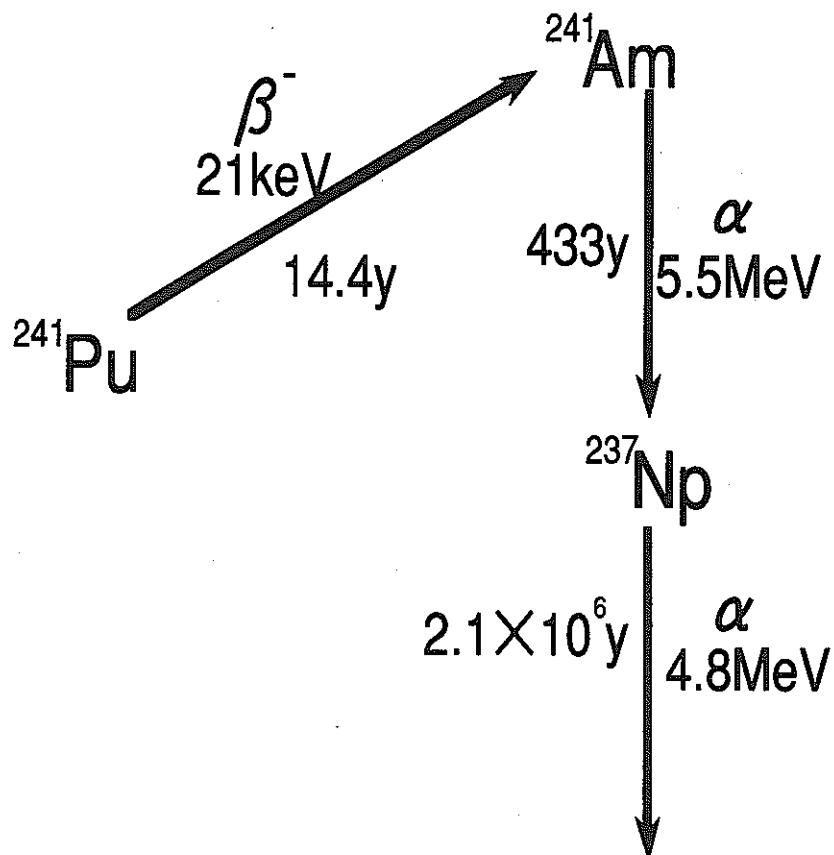
図4 DとD'におけるスピルオーバー

α / β 弁別測定を用いた ^{241}Pu 定量法

動燃・東海 ○植頭康裕、清水武彦、
吉崎裕一、飛田和則

[解説]

液体シンチレーションカウンタにおける α / β 弁別を用いた ^{241}Pu の定量法について、これまでの検討結果を報告する。



[解説]

Pu同位体である ^{241}Pu は、 β 壊変を行った後、432年という長い半減期を持つ ^{241}Am に壊変し、さらに α 壊変によって ^{241}Am は、 2.1×10^6 年という半減期を持つ ^{237}Np に壊変する。これら娘核種は、長時間にわたって α 線を出し続けるため、環境影響評価上重要な核種であり、その親核種である ^{241}Pu も同様に重要な核種である。

以上のことから、環境影響評価上重要な ^{241}Pu を精度よく測定するために、液体シンチレーションカウンタで測定を行った後に、 α / β 弁別を行う本法を検討した。

^{241}Pu の定量における特徴

β 線最大エネルギーが21keVと低く、液体シンチレーションカウンタを用いる

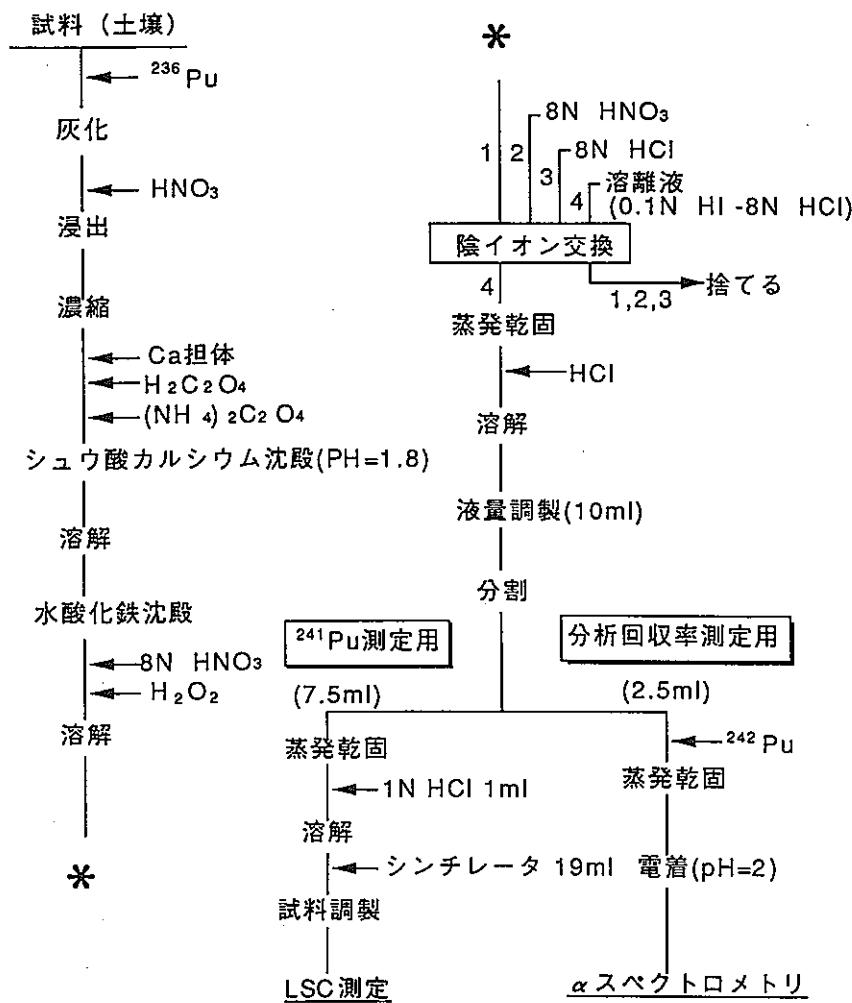
液体シンチレーションカウンタでは、 α 線の分解能が悪いため、分析回収率補正方法に様々な方法が用いられる

[解説]

^{241}Pu の定量上の特徴は、 ^{241}Pu はPu同位体の中で唯一 β 核種であり、その最大エネルギーは、約21keVと低いため測定には液体シンチレーションカウンタが用いられる。

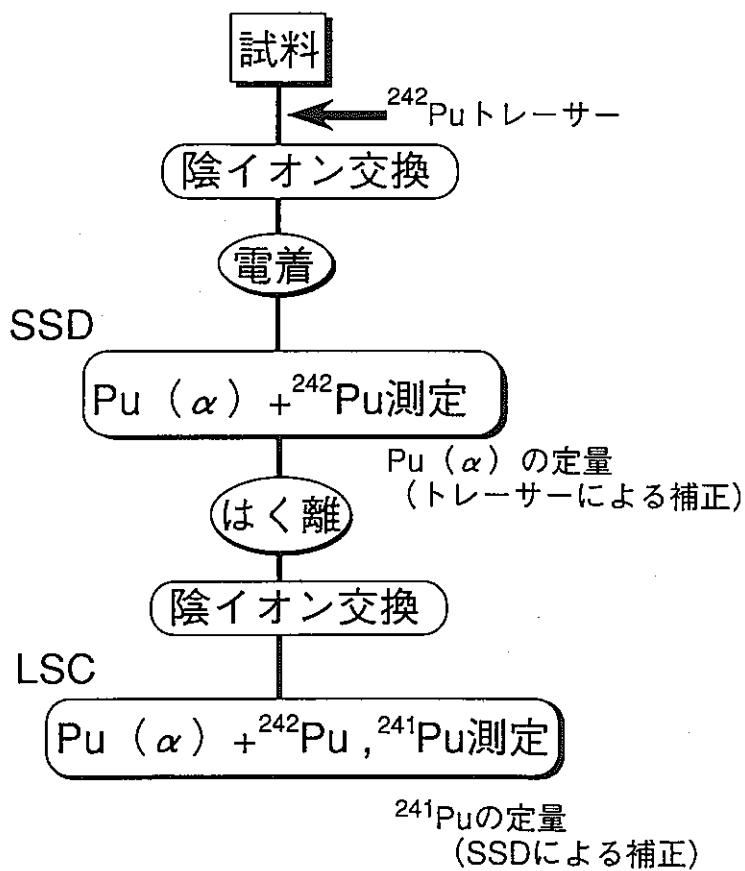
しかし試料中に他のPu同位体が存在する場合、液体シンチレーションカウンタでは、エネルギー分解能が悪いため、他の測定器を用いる必要がある。

さらに回収率補正を行なうためには、他のPu同位体を添加する必要があり、その評価も同様で他の測定器を用いる必要がある。

土壤及び海底土中 ^{241}Pu の分析手順

[解説]

これは、動燃東海の住谷がかつて報告した環境試料中の ^{241}Pu 分析法のフローである。ここではトレーサーとして α 核種である ^{236}Pu を用いるため、その測定には、シリコン半導体検出器が必要である。そこで試料電着による補正を行なうために、電着試料に ^{242}Pu を添加するのが特徴である。



α/β 弁別法を用いた ^{241}Pu の定量フロー

[解説]

これは、 α/β 弁別を用いた ^{241}Pu の定量法を模式的に表したものである。試料を陰イオン交換樹脂を通し精製した後に、全試料を電着してシリコン半導体検出器(SSD)にて $\text{Pu}(\alpha)$ を測定する。さらに電着試料を剥離して陰イオン交換樹脂に通し、液体シンチレーションカウンタ(LSC)にて、 ^{241}Pu と $\text{Pu}(\alpha)$ を同時に測定する。この時に得られる $\text{Pu}(\alpha)$ LSCと先に測定した $\text{Pu}(\alpha)$ SSDの比と ^{241}Pu LSCから以下のような式が導かれ、結果的に ^{241}Pu の放射能が求めることができる。

$$\frac{1}{\frac{\text{Pu}(\alpha) \text{ LSC}}{\text{Pu}(\alpha) \text{ SSD}}} \times {}^{241}\text{PuLSC} = {}^{241}\text{Pu}$$

目 的

これまでの分割測定法の見直しを行ない、
液体シンチレーションカウンタにおける回
収率補正法を確立する

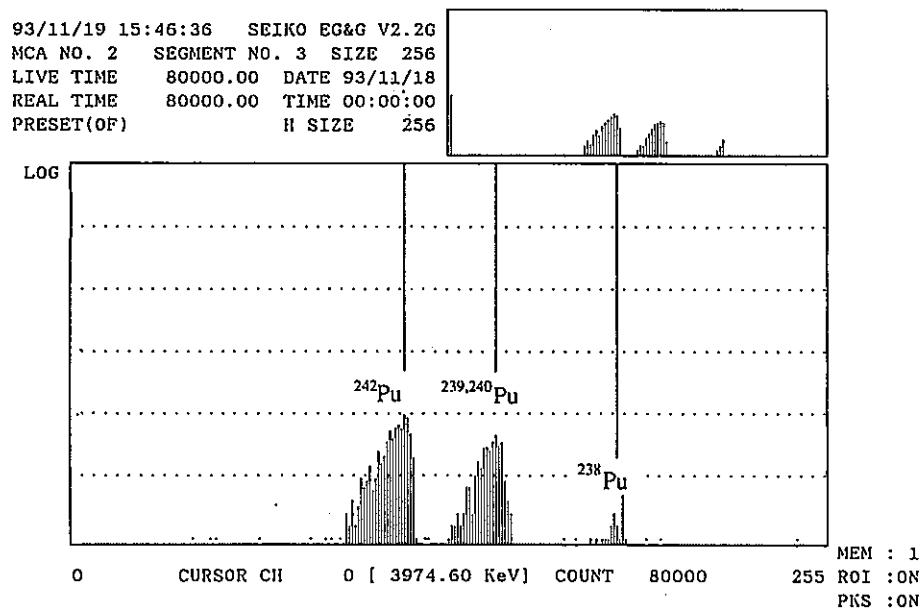
検討内容

1. α 領域のバックグラウンドの低減化
2. シンチレータの選定と最適条件の設定
3. 測定方法の確認

[解説]

これまで行なわれてきた分割法では、入手の困難なPuトレーサを2種類使用していた。これらを踏まえ分割せずに回収率を求める方法を検討する。

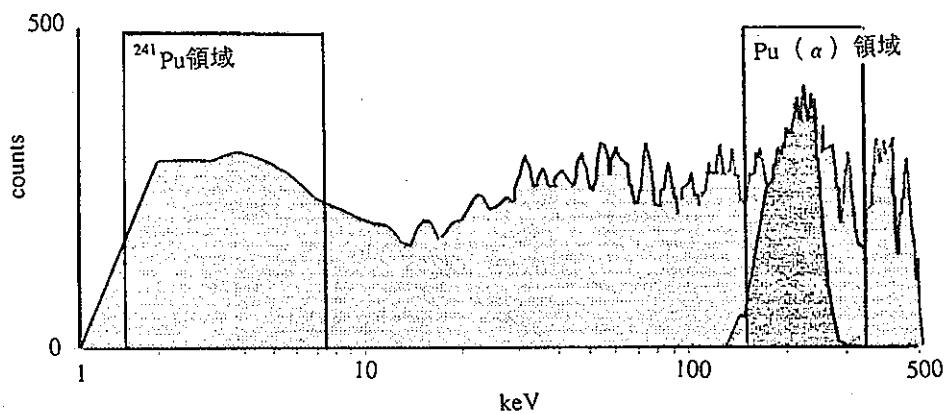
さらにLSC測定における α 領域のバックグラウンドを下げ、測定に関する諸条件の最適化を行ない、測定結果を確認することとした。



SSDでのPu同位体のスペクトル

〔解説〕

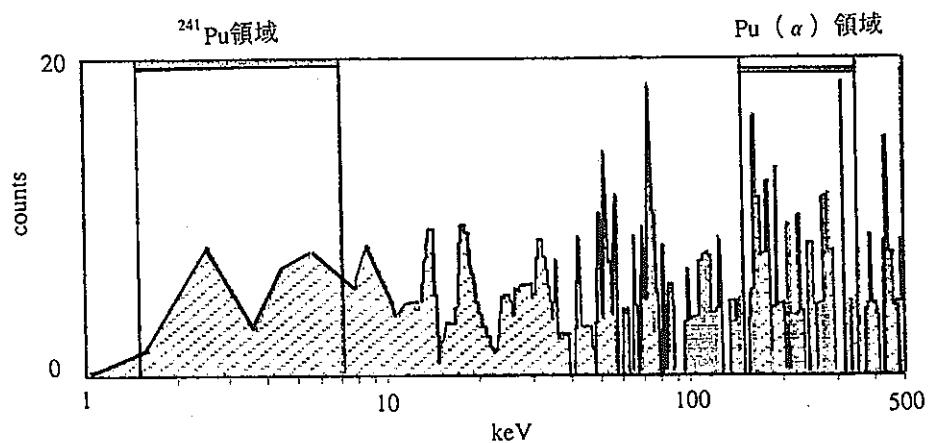
これは、SSDにおけるPu同位体のスペクトル図である。このようにPuの同位体は、低エネルギーから ^{242}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{238}Pu が示される。



α 線と β 線の波高弁別例

[解説]

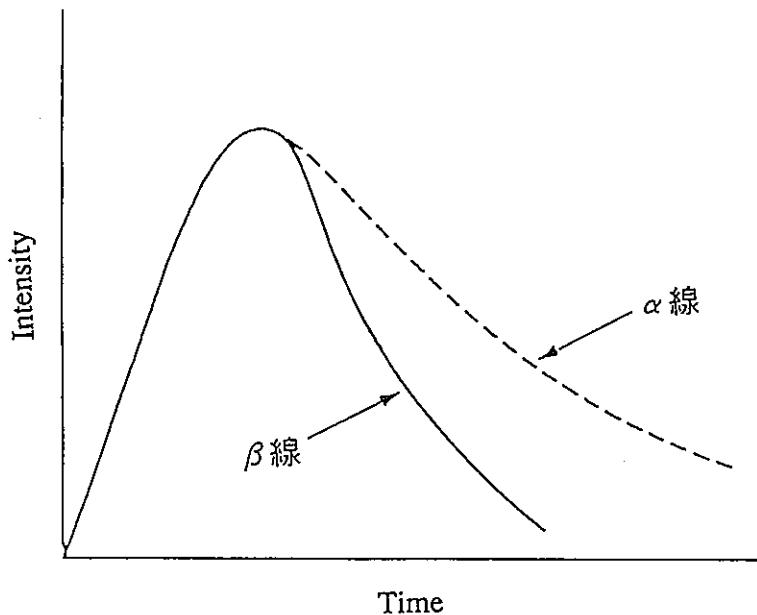
これは、LSCにおけるPu同位体のスペクトル図である。LSCでは、エネルギー分解能が悪いために α 線は全 α 放射能として計測される。



LSCでのB.G.スペクトル

[解説]

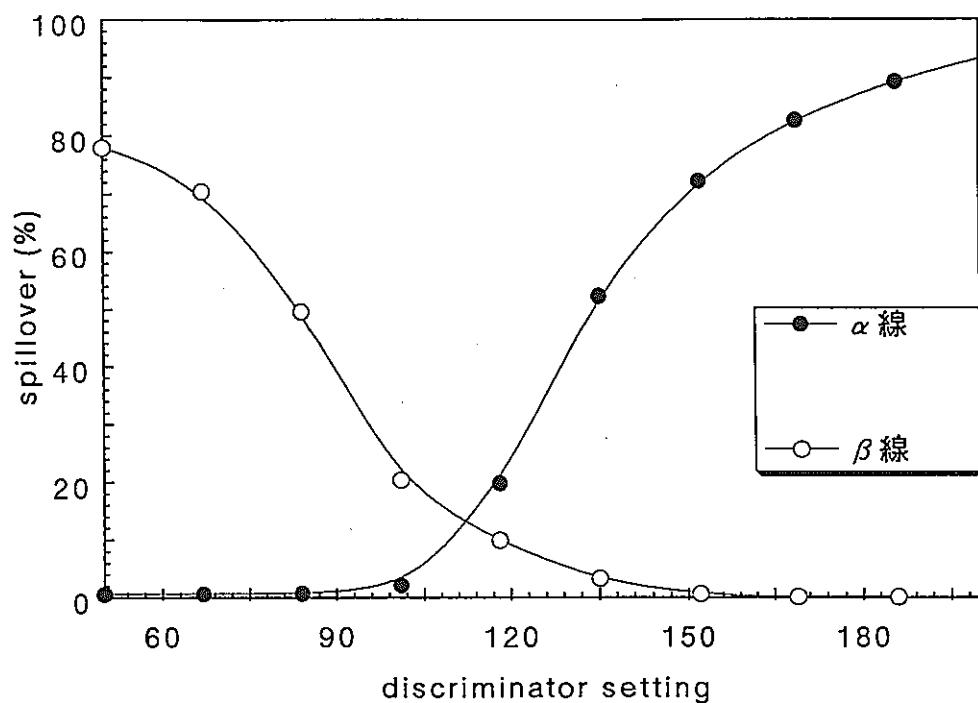
これはLSCにおけるB.G.スペクトルを示したものである。ここで、150～350keVがPu (α) 領域である。この領域には約9cpmのバックグラウンドが存在する。



減衰時間の差によるタイムスペクトル

[解説]

これは、ライズタイムを一定と考えた場合の減衰時間である。ここでは、 β 線に比べ α 線はゆっくり減衰することが分かる。そこで、これまでの波高弁別に加え、この減衰時間の差を利用することによって α 線領域のバックグラウンドを低減化させることとした。



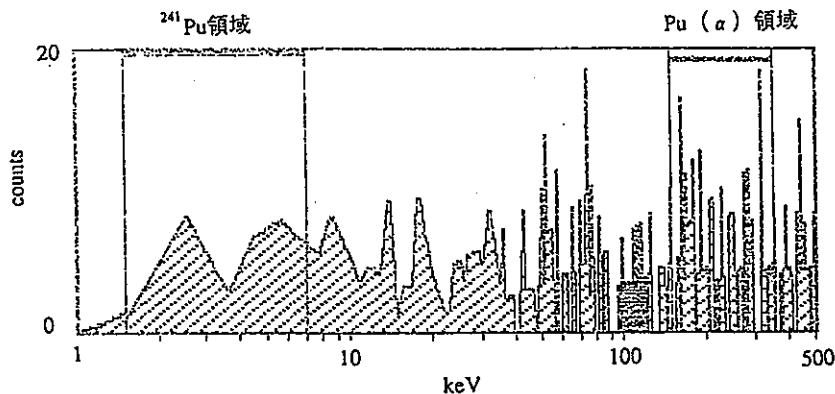
α線とβ線のスpillオーバー図

[解説]

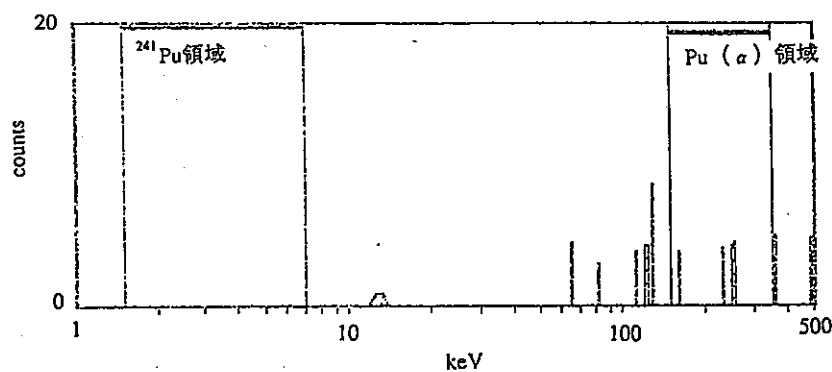
これは、先の α 線が β 線に比べ減衰時間が遅い性質を利用して、弁別を行なった結果である。横軸は、 α 線と β 線を弁別するのに必要な時間的ファクターであり、縦軸はス庇ルオーバーと呼ばれるもので、 α 線が β 線としてまた β 線が α 線として計測される割合を示したものである。

白丸は α 線と計測される β 線、黒丸は β 線と計測される α 線の割合である。

(1) α / β 弁別を行なわない場合



(2) α / β 弁別を行なった場合



LSCでのB.G.スペクトル

[解説]

これは、LSCでのバックグラウンドのスペクトルを示したものである。

(1) は、波高弁別のみを施した場合である。この場合Pu (α) 領域に約 9 cpm もバックグラウンドが存在する。

(2) は、波高弁別を行ない、さらに先の α / β 弁別法を用いたものである。スペクトルからも分かるように、バックグラウンドが低下し、約 0.1 cpm になった。

最適レンジにおけるシンチレータ試験の結果 (1)

Scintillator		Spillover (%)		Background (cpm)		Efficiency ³ H (%)	figure of merit※3	
		α	β	α ※1	β ※2		α	β
ナフタレン	A	4.28	3.64	0.3	4.6	20.9	3.1×10^4	95
	B	3.18	3.84	0.1	5.1	31.5	9.4×10^4	190
キシレン	C	11.82	12.35	0.3	4.3	32.0	2.6×10^4	240
	D	12.00	12.38	0.2	3.4	35.4	3.9×10^4	370

※1 150~350keV

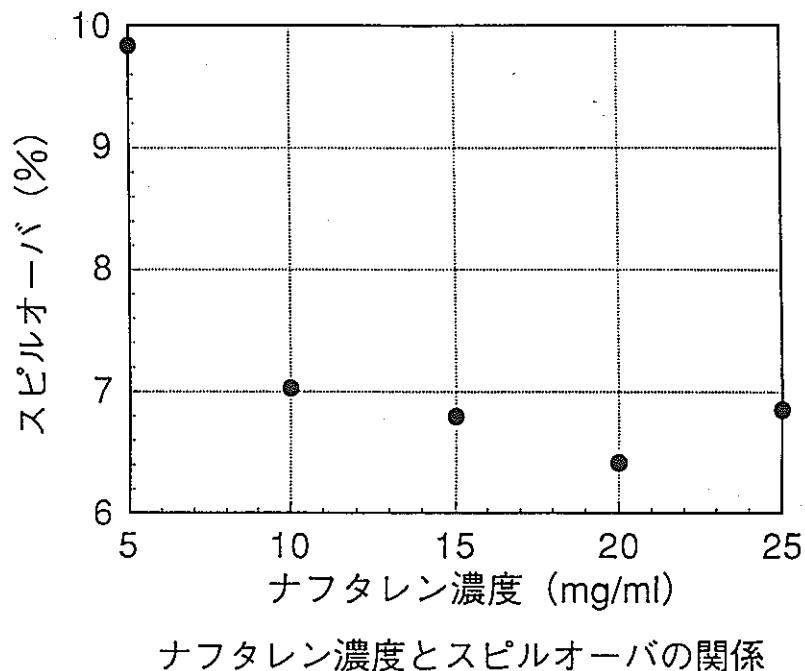
※2 A、C、Dは1.5~7.0keV
Bは1.5~7.5keV※3 FOM=E²/B.G.

[解説]

これは、各シンチレータで標準試料を測定し、その際のデータを示したものである。標準試料には²⁴¹Puと最大エネルギーの近い³Hを用いた。また α 線の測定領域は150~350keV、 β 線の測定領域は最適エリアよりA、C、Dは1.5~7.0keV、Bは1.5~7.5keVとした。またFigure of merit（性能指数）は、FOM=E²/B.G.にて計算した。

AとBはナフタレンベースのシンチレータ。CとDはキシレンベースのシンチレータである。ナフタレンベースのシンチレータは、スピルオーバーが低くこの点においては性能が良いが、³Hの効率が低い傾向がある。そのため β でのFOMが低い。またキシレンベースのシンチレータは、スピルオーバーが高く α と β の弁別がよくできていないが、³Hの効率が高い傾向がある。

そこでキシレンベースのシンチレータで最も性能の良かったDに波長シフターであるナフタレンを添加することにした。



[解説]

これは、Dのシンチレータに波長シフターであるナフタレンを添加した際のスピルオーバを示したものである。ナフタレンの濃度が20mg/mlの時に最もスピルオーバが小さく、その後は濃度クエンチングが生じてしまうために今回は20mg/mlを採用することとした。

最適レンジにおけるシンチレータ試験の結果 (2)

Scintillator		Spillover (%)		Background (cpm)		Efficiency ³ H (%)	figure of merit ≈3	
		α	β	α ≈1	β ≈2		α	β
ナフタレン	A	4.28	3.64	0.3	4.6	20.9	3.1×10^4	95
	B	3.18	3.84	0.1	5.1	31.5	9.4×10^4	190
キシレン	C	11.82	12.35	0.3	4.3	32.0	2.6×10^4	240
	D	12.00	12.38	0.2	3.4	35.4	3.9×10^4	370
	D' ≈4	4.90	6.42	0.1	4.0	34.6	9.0×10^4	300

※1 150~350keV

※2 A、C、D、D'は1.5~7.0keV、Bは1.5~7.5keV

※3 FOM=E²/B.G.

※4 D'はDにナフタレンを添加したもの

[解説]

これは、最適レンジにおける各性能を示したものであるが、Dのシンチレータに濃度が20mg/mlになるようにナフタレンを添加したものがD'である。

D'はDに比べスピルオーバも小さく、また α 領域のバックグラウンドも0.1cpmと減少された。そのため、 α 領域のFOMも大きくなった。

さらに³Hの計数効率もそれほど低下していないために、 β 線領域におけるFOMも大きい。その結果、今回の実験にはD'を用いることとする。

繰り返し分析結果

試料No.	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg乾)	^{241}Pu (Bq/kg乾)
1	$1.6 \times 10^{-1} \pm 1.9 \times 10^{-2}$	$8.5 \times 10^{-1} \pm 1.1 \times 10^{-1}$
2	$1.6 \times 10^{-1} \pm 1.0 \times 10^{-2}$	$7.0 \times 10^{-1} \pm 7.0 \times 10^{-2}$
3	$1.4 \times 10^{-1} \pm 8.7 \times 10^{-3}$	$6.7 \times 10^{-1} \pm 5.8 \times 10^{-2}$
4	$1.4 \times 10^{-1} \pm 1.0 \times 10^{-2}$	$7.0 \times 10^{-1} \pm 8.8 \times 10^{-2}$
平均	1.5×10^{-1}	7.0×10^{-1}
標準偏差	1.1×10^{-2}	1.1×10^{-1}
変動係数	7.1%	16%

[解説]

これは、環境試料中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Pu の濃度を示したものである。試料数は4つで行った。その結果、 $^{239,240}\text{Pu}$ の放射能濃度の平均は 1.5×10^{-1} で、標準偏差は 1.1×10^{-2} であり、変動係数は7.1%であった。また、 ^{241}Pu の放射能濃度の平均は、 7.0×10^{-1} で、標準偏差は 1.1×10^{-1} であり、変動係数は16%であった。

まとめ

1. α/β 弁別測定を用いることによりL.S.C.測定における α 領域のバックグラウンドの低減化が図れた
2. ナフタレンを添加することにより、 α/β の弁別がより大きなものとなった

[解説]

今回は、液体シンチレーションカウンタでの測定データを、パルスの減衰時間から α 線と β 線に弁別を行なうことによって、 α 線領域のバックグラウンドが大幅に減少させることができた。

また波長シフターであるナフタレンをシンチレータに添加することにより、 α 線と β 線の弁別が大きくなり、その結果スピルオーバーも減少した。

第35回研究成果発表会
(平成5年12月1日)

論文番号 (I)

ノルウェー及びロシアによるバレンツ海及びカラ海における
環境影響調査

○片桐 裕実

I. ノルウェー及びロシアによるバレンツ海及びカラ海における環境影響調査

-----「極地域における環境放射能に関する国際会議」に参加して-----

動力炉・核燃料開発事業団

片桐 裕実

1. はじめに

1993年8月23日から27日の5日間に亘って、ノルウェーのキルケヌにおいて開催された第1回の「極地域における環境放射能に関する国際会議」に参加する機会が得られた。

会議は、北極及び南極での放射性物質の挙動に関する研究報告の場として開催されたが、その背景の一つには、本年4月に明らかにされたロシアによる放射性廃棄物の海洋投棄による環境影響問題がある。

会議には、IAEA、CEC等の国際機関を含む19ヶ国から約130名（内、ロシアからは環境庁、海軍等から約20名）の専門家が参加し、活発な議論が行われた。

全体的には、極地域を「フィールド」とした物質の移行メカニズム解明を目的とした極めて学術的な国際会議であり、ロシアによる放射性廃棄物の海洋投棄問題に関する報告は約2割程度であったが、関連報告に対する議論の様子から極めて高い関心事でることが伺えた。

本報告では、1992年にノルウェー及びロシア両政府によって実施された「バレンツ海及びカラ海における現状調査」を中心に、北極圏の汚染の現状、海洋投棄問題についての関係国の取り組み等についてその概要を報告する。

2. 北極圏の環境（放出源及びインベントリ）

極地域（南極も含め）はその特徴として、極低温気候のエコシステム（少ない降雨量、汚染物質の長期に亘る大気圏への滞留、土壤中有機物質の大量貯蔵環境等）がある。特に北極圏は、各種の汚染物質（重金属、オイル、化学物質等）の問題が深刻な状況にあり、既に、関係する国（カナダ、ギリス、アメリカ、ノルウェー等）によるArctic Monitoring and Assessment Programが進められており、北極圏環境防護戦略が議論されようとしている。放射性物質による汚染及びそれからのリスクについても、その中で議論されるべき重要なテーマであることが認識されている。

このような環境である北極海への放射性物質の汚染源としては、表-1のようなSourceが現在明らかになっている。

表-1 北極圏への放射性物質の汚染源と推定インベントリ

ソース	インベントリ (PBq)	
	Cs-137	Sr-90
①グローバルフォールアウト	4.1	2.6
②セラフィールド再処理施設	10 - 15	1 - 2
③核施設からの河川放出	1 - 5	1 - 5
④グローバルフォールアウトの河川搬送	0.5	1.5
⑤ Chernobyl事故	1 - 5	0

現段階では、前述のようなSourceが主であると考えられているが、この他に潜在的なSourceとして、沈没した原子力潜水艦（コムソモレツ）からの影響 (^{137}Cs , ^{90}Sr 共に約3PBq), サハリン沖で紛失した熱電気発電器に内蔵されていた ^{90}Sr （約15PBq）等が挙げられる。

ルウェー及びロシアによる共同調査に関する報告書の中では、投棄された放射性廃棄物の中でも、液体廃棄物のみが海水に直接影響を及ぼすSourceであるが、その量は0.8PBqと小さく、その他のSourceからの放出量と比較しても僅か5%程度であるとしている。しかし、固体廃棄物の格納用容器の健全性にも関係するが、長期的な観点からは原子炉の投棄による影響が海洋汚染の一つの潜在的なsourcesとなるとしている。

3. バレンツ海、カラ海における環境影響調査

1992年の調査は8/14~9/10にかけて、13のサンプリングポイント（バレンツ海：2地点、カラ海：11地点）で実施された。しかし、固体廃棄物の海洋投棄の行われたNovaya Semlyaの東海岸についての調査は、ロシア側の許可が得られなかつたため実施されていない。

（図-1参照）

調査は、海水、海底土及び生物試料中に含まれる ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{129}I , ^{238}Pu , $^{239/240}\text{Pu}$, ^{241}Am を対象として実施された。なお、分析はルウェー、ロシア両国その他、IAEAモニタリング研究所、スウェーデンのルンド大学、デンマークのリンゴ国立研究所、フランスのCNRS等で実施された。

採取方法及び前処理方法の概要を以下に示す。

①海水試料

試料採取には、多試料採取装置を搭載したCTDゾンデを用い、水温、塩分の鉛直分布の情報を基に採取地点が決定された。基本的には、表層、中層及び海底の3層で採取を実施した。なお、水深は20m~300m（平均約150m）である。

3層で採取された海水はそれぞれ1,000Lのタンクに入れられ、テッキ上の濾過処理システム（1μm以下の懸濁物用フィルタ、Cs-sorbentのコーティングフィルタ及び $\text{Cu}_2\text{Fe}(\text{CN})_6$ のコーティングフィルタからなる。）での処理が行われた。

②海底土試料

内径59mm重力コア採取装置、30cm×30cmの有効面積を有するボックスコア採取装置等を用いてコア試料を対象とした。

③生物試料

餌として魚やエビを入れた5つの網をそれぞれの採取地点におよそ12時間設置して捕獲されるものを試料とした。なお、採取された生物試料は主にAmphipodesと（節足動物）Ophiuridae（棘皮動物）であった。

4. 調査結果の概要

表層水中の ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の濃度分布を図-2及び図-3に、また、代表的な地点での鉛直分布を図-4に示す。

さらに、0~10cmの土壤試料中の ^{137}Cs 及び $^{239/240}\text{Pu}$ の濃度分布を図-5及び図-6に、

また、代表的な地点での鉛直分布を図-7に示す。

全体の結果をまとめると以下のようになる。

- ①海水中の ^{137}Cs , ^{90}Sr 及び $^{239/240}\text{Pu}$ 濃度は、それぞれ、 $3.3\text{--}20.4\text{Bq}/\text{m}^3$, $3.0\text{--}12.1\text{Bq}/\text{m}^3$ 及び $1.8\text{--}11.5\text{mBq}/\text{m}^3$ であった。
- ② ^{137}Cs , ^{99}Tc 及び ^{129}I については塩分濃度との相関が大きく、Ob川及びYenisey川の影響を受ける考えられる低い塩分濃度のところでは低くなっている。逆に ^{90}Sr については、河川による搬送の影響を受けたと考えられ、低い塩分濃度のところで高くなっている。
- ③ $^{239/240}\text{Pu}$ について見ると、深度が増すに従って濃度が高くなる傾向がある。海底付近で濃度の高い理由として、土壤からの懸濁物の影響と考えられる。
- ④ ^{134}Cs と ^{137}Cs の同位体比（0.019~0.034と比較的一定）からすると、セラフィールド再処理施設からの ^{134}Cs は無視出来ると考えられる。（セラフィールドの同比は0.08） ^{134}Cs の供給源を Chernobyl のみとすると、カラ海の ^{137}Cs の約30%が Chernobyl からのフォールアウトの影響を受けている。
- ⑤海底土表層10cmの試料の $^{239/240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の同位体比は平均で0.026と、グローバルフォールアウトの比（0.02~0.03）と同等であることから、その影響と考えられる。しかし、一部（St-1,5）のポイントでは、同比が他の地点の比の約2倍となっている。
- ⑥パレツ海の採取地点（St-12）は極めて特異的な地点で、他の地点と比較すると ^{137}Cs で約3倍、 $^{239/240}\text{Pu}$ で約10倍高い結果となっている。
- ⑦St-1,3,7の表層土壤中の ^{241}Pu と $^{239/240}\text{Pu}$ の同位体比を見ると、St-7を除いてグローバルフォールアウトの影響と考えられるが、St-7については同比が高いことから、その他のSourceを考える必要がある。
- ⑧生物試料については、濃度分布が見られるような結果は得られなかった。カラ海入り口に当たるSt-12で捕れた中に ^{60}Co が検出された。但し、これについても、検出限界に近いレベルであり、海洋投棄の影響と断言する状況には無い。

5. 調査結果の結論

過去に実施されたカラ海における環境試料の分析結果及び今回の調査結果を基に、次のように現状を結論付けている。

- ①現在のパレツ、カラ海における放射性物質による汚染は、主にグローバルフォールアウト及びセラフィールド再処理施設からの放出に因るものであると考えられ、一部に、河川による搬送と Chernobyl 事故のフォールアウトの寄与が見られる。しかし、特異的に $^{239/240}\text{Pu}$ のレベルが高いカラ海入り口については原因は解からない。
- ②環境及び人体への影響は、現在の汚染状況（バルチック海、黒海におけるレベルより低い）からすると問題無いレベルである。
- ③現状のレベルからすると、放射性物質の海洋投棄の影響は見られていないと考えられる。しかし、今回の調査対象地域から外さざるを得なかつた投棄された地点の近傍の局所的な影響についての結論は出せない。

6. 今後の計画

今回の調査結果を受け、調査の在り方について以下のようにあるべきとしている。

- ① 海洋投棄の影響をきちんと評価するために、Novaya Semlyyaの東海岸に位置する湾及びNovaya Semlyya海溝等の実際の投棄場所に配慮して調査計画を組むことが重要である。
- ② 1993年の調査としては、実際に放射性廃棄物が投棄された場所、特に、使用済燃料を含む原子炉の海洋投棄場所において実施する必要がある。なお、これらの調査は、IAEA等の国際機関等の参加の下に実施すべきであるとしている。なお、現在、IAEAはIASAP (International Arctic Seas Assessment Project) を計画しており、4年間で影響評価の結論を取り纏めることとしている。

7. 終わりに

今回の会議に参加して、特に、ロシアによる放射性廃棄物の海洋投棄問題について次の印象を持った。

- ① 放射性廃棄物の海洋投棄問題に関する調査は始まったばかりであるが、調査計画の立案及び結果の評価に必要な基礎的なデータ（廃棄物の種類、量、形状等）の公開が必要不可欠である。
- ② ロシア国内の研究機関が実施していると思われるいくつかの調査（放射能調査の他、海象、気象等）の積極的な公開と共に、ロシア国内での第三者を含めた形による研究体制の整備の必要性がある。

また、その他の研究報告に関しては、フォールアウト及び核施設から放出される放射性物質を地球科学的な観点からトレーサとして利用し、かなり広い範囲のフィールドを対象とした物質移行に関する研究が進められている印象を受けた。

以上

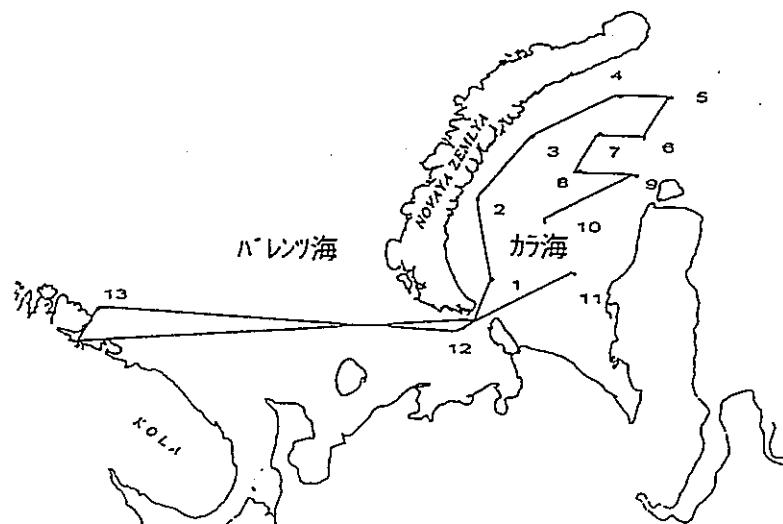


図-1 バレンツ海及びカラ海での調査地点（1992年）

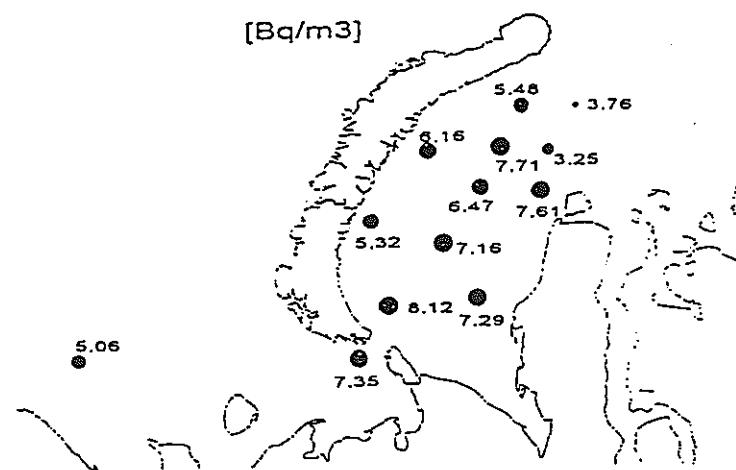


図-2 表層海水中の ^{137}Cs 濃度

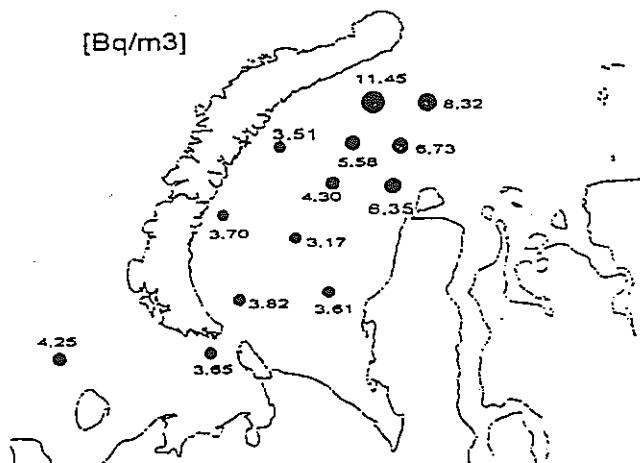


図-3 表層海水中の ^{90}Sr 濃度

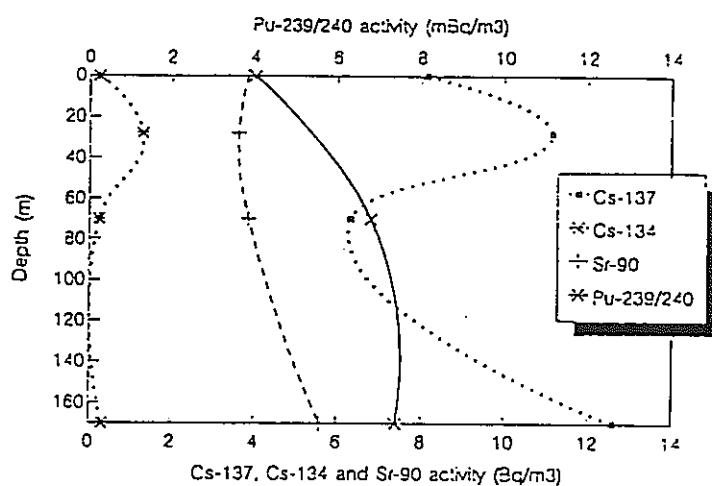


図-4 St-1における海水中の ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr 及び $^{239/240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布

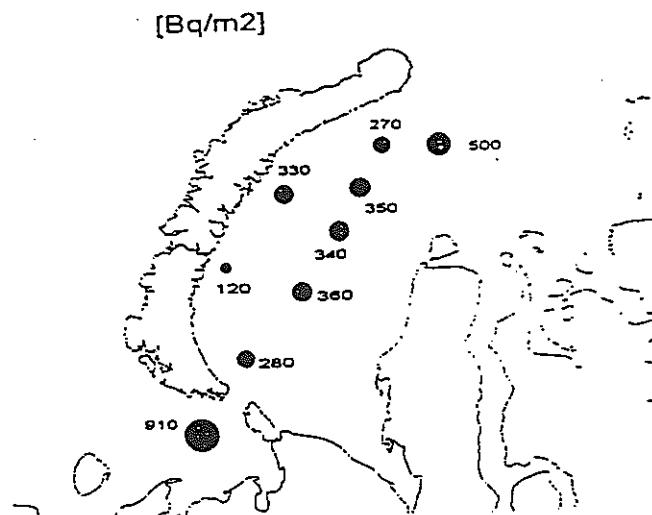


図-5 表層 (0~10cm) の海底土中の ^{137}Cs 濃度

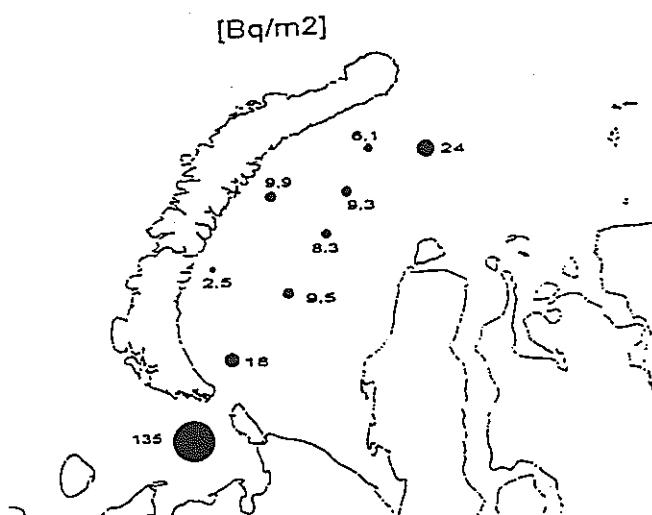


図-6 表層 (0~10cm) の海底土中の $^{239/240}\text{Pu}$ 濃度

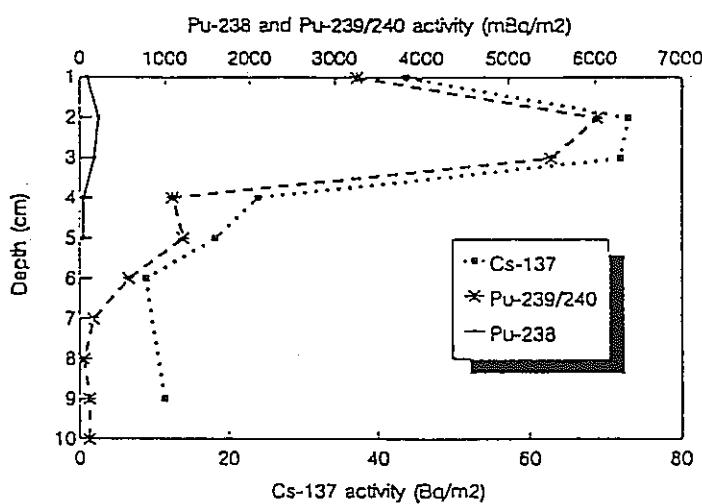


図-7 St-1における海底土中の ^{137}Cs , ^{238}Pu 及び $^{239/240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布