



4. 環境監視に係わる技術小論

(5) 環境中PuおよびAmの挙動に関する研究

森澤 正人 渡辺 均
 圓尾 好宏 篠原 邦彦
 東海事業所安全管理部

資料番号：81-22

4. Development of Technology on Environmental Monitoring
 (5) Study on the Behavior of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the Environment

Masato Morisawa Hitoshi Watanabe
 Yoshihiro Maruo Kunihiro Shinohara
 (Health and Safety Division, Tokai Works.)

東海事業所周辺の環境中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の挙動について、1979年から1990年までに得られた降下物、表上、海水、海産生物、海岸砂および海底土のフィールドデータを基に検討した。表土中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、その蓄積量の約80%以上が、表層下5 cmまでに存在していることが確認できた。海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、ほぼ一定のレベルで推移していることが観察できた。表土および海水中の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は、それぞれ0.23~0.38および0.18~0.35であり、他の地域で測定された放射能比とほぼ一致した結果が得られた。また環境線量評価パラメータとして、海産生物への濃縮係数、海岸砂への汚染係数等を算出した。

1. はじめに

$^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am 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 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、主に大気圏内核実験によるフォールアウトおよび ^{241}Pu の β^- 壊変により生成したものである。P.W.Kreyらによると、環境中の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ （以下Am/Puと略す）放射能比は、1974年に0.22であったが、2037年に0.42に達すると報告されている¹⁾。また、 ^{241}Am は、放射性廃棄物の処理・処分に係る線量当量評価上注目されている長半減期の α 線放出核種である ^{237}Np の親核種でもある。

以上のことから、環境試料中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の分析法を開発し、環境中での水準および挙動を調査してきた。本稿では、1979年から1990年に得られた東海村周辺地域における測定結果を基に、 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の環境中の挙動について検討するとともに、環境線量評価に用いるパラメータについても算出した。

2. 環境試料中 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am 分析法

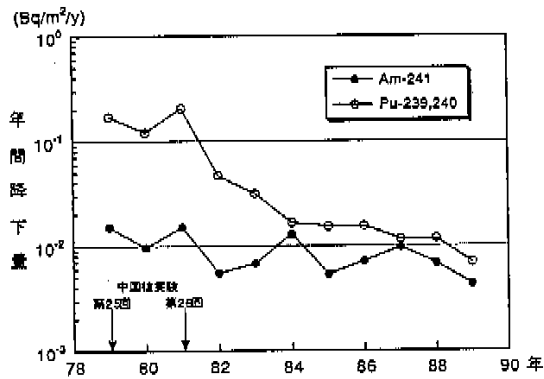
土壌、生物、水試料等の形態の異なる各種環境試料は、前処理を行った後に分析した。試料の前処理法としては、土壌試料の場合、乾燥した後、2 mm以下の粒子を分級し分析試料とした。海産生物および農畜産物については、十分に乾燥後、灰化し分析試料とした。水試料は、水酸化鉄共沈により回収し分析試料として用いた。分析試料には、回収率補正のためPu分析では ^{236}Pu または ^{242}Pu 、また、Am分析では ^{243}Am または ^{244}Cm を添加した。分析試料は、硝酸により試料中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am を浸出した後、PuおよびAmを陰イオン交換法により分離・精製し、ステンレス板に電着した。電着したPuおよびAm試料は、シリコン半導体検出器により定量した^{2),3)}。

3. 結果と考察

3.1 陸上環境試料

(1) 降下物

大気中に存在するフォールアウトPuの化学形態は、主に水に不溶性の酸化プルトニウム(PuO_2)粒

図-1 降下物中 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の年間降下量

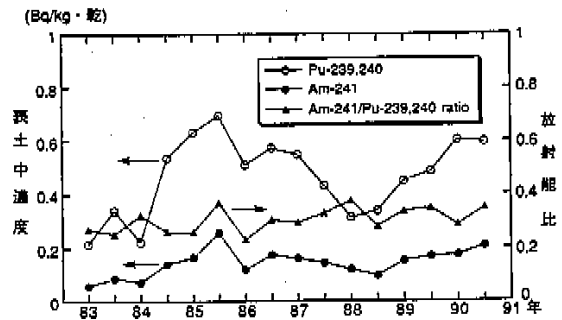
子であり、単独の粒子として存在するより大気中に存在しているエアロゾルに吸着・付着した形で存在している⁴⁾。

降下物は、0.5m²の水盤により1カ月間連続採取したものを試料として測定した。1979年～1989年の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の年間降下量の経年変化を図-1に示す。 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の年間降下量は、1989年現在、それぞれ、 $7.0 \times 10^{-3} \text{ Bq/m}^2/\text{年}$ 、 $4.3 \times 10^{-3} \text{ Bq/m}^2/\text{年}$ であった。1970年代後半の $^{239,240}\text{Pu}$ の年間降下量は、1940年～1960年代にかけて行われた大気圏内核実験のフォールアウトの影響を顕著に示した。その後、 $^{239,240}\text{Pu}$ の年間降下量は、減少傾向にあり、1984年以降はほぼ一定に推移している。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。これは、大気圏内核実験によるフォールアウト中の ^{241}Pu の壊変により ^{241}Am が生成することによるものと考えられる。

(2) 表土

表土中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、深さ5cmまでの表層土壌を東海村周辺5地点で採取した試料について分析した。表土の $^{239,240}\text{Pu}$ ならびに ^{241}Am の濃度の経年変化およびAm/Pu放射能比の一例を図-2に示す。 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の濃度は、 $^{239,240}\text{Pu}$ で $2.1 \times 10^{-1} \sim 7.0 \times 10^{-1} \text{ Bq/kg} \cdot \text{乾}$ 、 ^{241}Am で $5.8 \times 10^{-2} \sim 2.6 \times 10^{-1} \text{ Bq/kg} \cdot \text{乾}$ と大きな変動が見られた。これは、表土中での水平分布パターンが、均一でないことを示している。Am/Pu放射能比は、0.23～0.38で平均0.30であり、山本らが報告した福井県・三方地方のデータ⁵⁾と一致した。このAm/Pu放射能比では、 ^{241}Pu の壊変による ^{241}Am の生成と考えられるわずかな上昇傾向が観察された。

また、土壌コア(1991年11月：採取)中の $^{239,240}\text{Pu}$

図-2 表土中 $^{239,240}\text{Pu}$ ・ ^{241}Am の濃度および放射能比の経年変化

および ^{241}Am の0～30cm深さまでの深度分布を調査した。この結果、土壌中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の蓄積量の80%以上は、表層下5cmまでに検出されることが分かった。Am/Pu放射能比については、有意に検出された0～5cm、5～10cmの土壌においては、ともに0.35と一致した値となった。以上のことから、土壌中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、表層下0～10cmまでに固定され、深さ方向への移動については、挙動が類似しているものと考えられる。

3.2 海洋環境試料

(1) 海水

$^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、海水中では主として懸濁物質に吸着した状態やコロイド状態で存在しているとの報告⁶⁾がある。本研究では、海水中に存在する $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の全量を評価する観点から未濾過海水を試料として用いた。

海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am については、1982年～1990年の年平均濃度の経年変化を図-3に示す。海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度範囲は、 8.2×10^{-6}

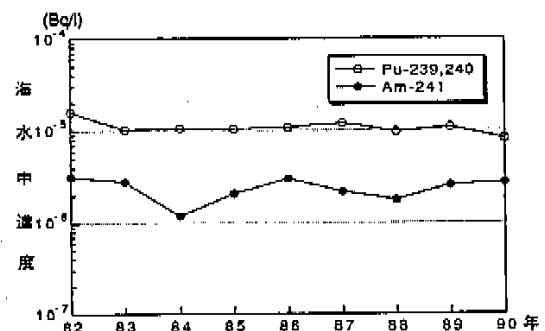
図-3 海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am 濃度の経年変化

表-1 海水中および海産生物中の^{239,240}Puの濃度

試料名	サンプル数	濃度(Bq/l or Bq/kg・生)	
		範 囲	平 均
海 水	74	$4.3 \times 10^{-6} \sim 2.7 \times 10^{-5}$	1.2×10^{-5}
シラス	91	$4.5 \times 10^{-5} \sim 9.0 \times 10^{-4}$	3.5×10^{-4}
成 魚	65	$4.5 \times 10^{-5} \sim 4.2 \times 10^{-4}$	1.5×10^{-4}
褐藻類	184	$7.8 \times 10^{-4} \sim 1.1 \times 10^{-2}$	4.6×10^{-2}
貝 類	109	$3.2 \times 10^{-4} \sim 7.3 \times 10^{-3}$	2.0×10^{-2}
頭足類	64	$8.3 \times 10^{-5} \sim 3.5 \times 10^{-3}$	6.6×10^{-4}
甲殻類	71	$9.1 \times 10^{-4} \sim 7.4 \times 10^{-2}$	3.4×10^{-2}

$\sim 1.6 \times 10^{-5}$ Bq/l, ²⁴¹Amの濃度範囲は、 $1.2 \times 10^{-6} \sim 3.2 \times 10^{-6}$ Bq/lでほぼ一定に推移している。Am/Pu放射能比は、0.18~0.35の範囲であり、三宅らの報告²⁾とほぼ一致し、検出された^{239,240}Puおよび²⁴¹Amは、フォールアウトに起因するものであると考えられる。なお、調査期間における海水中の^{239,240}Puおよび²⁴¹Amの濃度範囲は、表-1および表-2に示したとおり、 $4.3 \times 10^{-6} \sim 2.7 \times 10^{-5}$ Bq/l, $5.0 \times 10^{-7} \sim 9.9 \times 10^{-6}$ Bq/lであった。

(2) 海産生物

海産生物試料としては、シラス（シラス、小女子）、成魚（ヒラメ、カレイ）、褐藻類（ワカメ、ヒジキ、カジメ）、貝類（コタマ貝）、頭足類（イカ、タコ）および甲殻類（カニ、エビ）について分析測定した。海産生物中の^{239,240}Pu濃度は、 $4.5 \times 10^{-5} \sim 1.1 \times 10^{-2}$ Bq/kg・生で、海産生物中の²⁴¹Am濃度は、 $2.6 \times 10^{-5} \sim 5.7 \times 10^{-3}$ Bq/kg・生であった。海水中および海産生物中の濃度範囲およびその平均値を表-1および表-2に示す。

4. 環境線量評価に用いるパラメータ

海洋における公衆の線量当量評価に寄与する経路としては、海産生物の摂取による内部被ばくおよび海岸砂からの外部被ばく等が考えられる。これらの経路の線量当量評価に必要なパラメータとしては、内部被ばくに関しては、海水から海産生物の濃縮係数、外部被ばくに関しては、海水から海岸砂への汚染係数である。施設周辺環境の実フィールドデータを基に濃縮係数および汚染係数を算出した。また、海水中での拡散評価に必要な海水と海底土との分配係数についても算出した。濃縮係数・汚染係数・分配係数を求めるに当たっては、海産生物、海岸砂、海底土中の^{239,240}Puおよび²⁴¹Am濃度と平衡に達していると仮定し、以下の式により算出した。

表-2 海水中および海産生物中の²⁴¹Amの濃度

試料名	サンプル数	濃度(Bq/l or Bq/kg・生)	
		範 囲	平 均
海 水	80	$5.0 \times 10^{-7} \sim 9.9 \times 10^{-6}$	2.5×10^{-6}
シラス	78	$2.7 \times 10^{-5} \sim 7.2 \times 10^{-4}$	1.9×10^{-4}
成 魚	77	$2.6 \times 10^{-5} \sim 3.0 \times 10^{-4}$	1.0×10^{-4}
褐藻類	164	$1.0 \times 10^{-4} \sim 5.2 \times 10^{-2}$	6.9×10^{-2}
貝 類	102	$1.0 \times 10^{-3} \sim 5.7 \times 10^{-2}$	2.5×10^{-2}
頭足類	61	$1.0 \times 10^{-4} \sim 1.8 \times 10^{-2}$	4.6×10^{-3}
甲殻類	67	$3.8 \times 10^{-4} \sim 3.8 \times 10^{-2}$	1.5×10^{-2}

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{海産物中の}^{239,240}\text{Puおよび}^{241}\text{Am濃度(Bq/kg・生)}}{\text{未濾過海水中の}^{239,240}\text{Puおよび}^{241}\text{Am濃度(Bq/l)}}$$

$$\text{汚染係数} = \frac{\text{海岸砂中の}^{239,240}\text{Puおよび}^{241}\text{Am濃度(Bq/kg・乾)}}{\text{未濾過海水中の}^{239,240}\text{Puおよび}^{241}\text{Am濃度(Bq/l)}}$$

$$\text{分配係数} = \frac{\text{海底土中の}^{239,240}\text{Puおよび}^{241}\text{Am濃度(Bq/kg・乾)}}{\text{未濾過海水中の}^{239,240}\text{Puおよび}^{241}\text{Am濃度(Bq/l)}}$$

4.1 濃縮係数

^{239,240}Puおよび²⁴¹Amの海水から海産生物への濃縮係数は、シラス、成魚、褐藻類、貝類、頭足類、甲殻類の各生物種ごとに調査した。得られた結果および文献値を表-3および表-4に示す。^{239,240}Puおよび²⁴¹Amの濃縮係数は、 $1 \times 10 \sim 4 \times 10^2$, $4 \times 10 \sim 1 \times 10^3$ の範囲であった。^{239,240}Puおよび²⁴¹Amの濃縮係数を比較すると、²⁴¹Amの方が、^{239,240}Puより大きい傾向であった。これは、²⁴¹Amが、海産生物において、^{239,240}Puと比較して、濃縮され易いことを示しているものと考えられる。

文献値と比較すると、成魚の濃縮係数については、Coughtreyらのデータ以外の文献値は、比較的一致したものであった。これは、Coughtreyらが、海産生物および淡水産生物の内臓も含めた濃縮係数を評価しているためと考えられる。

海藻の濃縮係数については、事業団は褐藻のデー

表-3 Puの海産生物への濃縮係数

	Tompson et al. (1)	IAEA T.R. No.247 (10)	Coughtrey et al. (12)	PNC
シラス	—	—	—	3×10
成 魚	3	4×10	98	1×10
海藻類	1×10^2	2×10^2	—	—
紅 藻				4×10^2
褐 藻				2×10^2
貝 類	2×10^2 (無脊椎動物)	3×10^2	3×10^2	6×10
頭足類		5×10		3×10^2
甲殻類		3×10^2		3×10^2

表-4 Amの海産生物への濃縮係数

	Tompson et al. (1)	IAEA T.R. No.247 (10)	Coughtrey et al. (12)	PNC
シラス	—	—	—	7×10
成魚	2.5×10	5×10	1.6×10^2	4×10
海藻類 紅藻 褐藻	5×10^2	8×10^2	2.9×10^2	— 3×10^2
軟体類 頭足類	1×10^3 (無脊椎動物)	2×10^4 1×10^2	2.9×10^2	1×10^3 2×10^2
甲殻類	—	5×10^2	3.6×10^2	6×10^2

タを用いて評価している。Tompsonらのデータは、Amのような3価のアクチニドは、希土類元素と同じであると仮定し、希土類元素の濃縮係数を用いて評価している¹¹⁾。また、IAEAおよびCoughtreyらは、海藻として濃縮係数が大きいといわれているヒバマタ類を中心に用いているため⁸⁾、高めの濃縮係数であったものと考えられる。また、Pu、Amのように海水中で主として懸濁物に吸着した形態やコロイド状態で存在する元素の海藻による濃縮は、主として藻体表面の粘液質への表面吸着によるものと考えられている^{9), 10)}。したがって、海藻の濃縮係数は、海藻採取法および海藻の形態等により、大きく変動するものと考えられている¹⁰⁾。

貝類の濃縮係数については、Tompsonらは無脊椎動物、IAEAは頭足類を除く軟体類、Coughtreyらは軟体類として評価している。事業団の調査したデータのみが、貝類と特定したものであるが、IAEAのデータを除くと、比較的一致したものであると考えられる。IAEAの濃縮係数との違いは、生物種の違いによるものと考えられる。

頭足類については、IAEAのデータと比較すると、ほぼ一致したものであった。また、甲殻類については、事業団ではカニ、小エビの全体を分析したデータを基に評価した濃縮係数であり、IAEAおよびCoughtreyらのデータより高めの値を示した。これは、殻へのPu、Amの濃縮が大きいためと考えられる。

4.2 汚染係数および分配係数

$^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の海水から海岸砂への汚染係数、海水と海底土との分配係数を算出した。 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の汚染係数は、それぞれ、 1×10^4 および 2×10^4 であり、海水と海底土との分配係数は、 4×10^4 および 9×10^4 であった。 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、海水と海底土との分配係数が、海水から海岸砂への汚染係数より高い傾向があった。これは、海底

土が粒子径の小さいシルト等を多く含むこと¹³⁾から、表面積が大きいこと等により、 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am が吸着され易いためと考えられる。

5. まとめ

陸上環境試料として、降下物、表土、海洋環境試料として、海水、海産生物について $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の水準および挙動を調査した。この結果、表土および海水の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は、それぞれ $0.23 \sim 0.38$ および $0.18 \sim 0.35$ であり、他の地域で測定された放射能比とはほぼ一致した結果であった。表土中の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は、 ^{241}Pu の壊変による ^{241}Am の生成と考えられるわずかな上昇傾向が観察された。また、表土中の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am は、表層下5 cmまでに $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am の約80%以上が、存在していることが確認された。

海洋環境試料の分析測定データを基に、海水から海産物への濃縮係数、海水から海岸砂への汚染係数、海水と海底土との分配係数を算出した。濃縮係数については、 ^{241}Am の濃縮係数が、 $^{239,240}\text{Pu}$ の濃縮係数より大きい傾向であった。これは、 ^{241}Am が、海産生物において、 $^{239,240}\text{Pu}$ と比較して、濃縮され易いことを表しているものと考えられる。汚染係数、分配係数については、海水と海底土との分配係数が、海水から海岸砂への汚染係数より大きい傾向であった。これは、海底土の表面積が大きいこと等により、 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am が吸着され易いためと考えられる。

参考文献

- 1) P.W.Krey, E.P.Hardy: Mass Isotopic Composition of Global Fallout Plutonium in soil IAEA-SM-199/39 (1976)
- 2) A.Yamato: An Anion Exchange Method for the Determination of Am-241 and Plutonium in Environmental and Biological Samples, J.Radioanal.chem.75 (1982) 265
- 3) A.Yamato: Full-out Pu-239, Pu-240 and Sr-90 in Surface-air in Ibaraki-prefecture, Japan, Radiol. 30 (1981) 104
- 4) K.Hirose, Y.Sugimura: Plutonium in the surface Air in Japan, Health Phys.46 (1984) 1281
- 5) M.Yamamoto, Y.Yamauchi, K.Chatani: Fallout Np-237, Pu Isotopes and Am-241 in lake and Sea Sediments from the Coastal area of the Sea of Japan, Radiol. 30 (1981) 85
- 6) 周辺公衆被曝評価に関する調査-海城間運バロメーター (1988) 9 政策科学研究所
- 7) Y.Miyake, et al, Proc.6th ICRP, Tokyo, May13-15, (1979) 940
- 8) R.J.Pentreath: Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment (Proc.Symp, Vienna 1980), IAEA, Vienna (1981) 241
- 9) V.F.Hodge, F.L.Hoffman, et al.: Rapid Accumulation of Plutonium and Polonium on Giant Blown Algae, Health Phys.27 (1974) 29
- 10) TECHNICAL REPORT SERIES No.247, Sediment Adsorption and Concentration Factor for Radionuclides in the Marine Environment, IAEA, VIENNA (1985)
- 11) S.E.Tompson, et al. Concentration Factors of Chemical Elements in Edible Aquatic Organisms, UCRL-50564 Rev.1 (1972)
- 12) P.J.Coughtrey, et al., Radionuclides Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystem Vol.4-6: Commission of European Communities, A.A.BALKEMA /ROTTERDAM /BOSTON, (1981-1985)
- 13) 福井県衛生研究所・調査研究報告 (1977) 28