



環境におけるPu同位体及びAmの濃度の経年変化について

藤田 博喜 渡辺 均 武石 稔

東海事業所 放射線安全部

Annual Variation of Concentrations of Pu Isotopes and Am in Surface Soil

Hiroki FUJITA Hitoshi WATABE Minoru TAKEISHI

Radiation Protection Division, Tokai Works

サイクル機構東海事業所では、事業所周辺の環境モニタリングの一環として、環境試料中のPu同位体(^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu)や ^{241}Am 濃度の測定及び調査を実施してきた。

これまでの環境モニタリングにより得られた表土中のPu同位体及び ^{241}Am 濃度の水準及びPuの同位体比($^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比等)を求めた。さらに、Pu同位体及び ^{241}Am 濃度の深度分布について表層から5 cm毎に土壤試料を採取し調査を行った。

モニタリングにより得られた表層5 cmにおけるPu同位体(^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$)及び ^{241}Am 濃度の水準は、1980年以降大きな変化は見られず、一定の水準にあることが分かった。これらの濃度は全国的な表土中のPu同位体及び ^{241}Am 濃度と同レベルであった。

また、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 等の放射能比は、0.019～0.068と、過去の大気圏内核実験によるフォールアウトの放射能比と同じであり、フォールアウト起源であると推定された。

Pu同位体と ^{241}Am 濃度の深度分布は、両核種間に差はなくほぼ同様の分布を示したことから、鉛直移動挙動がPu, Amで類似していると示唆された。

Radioactivity levels of Pu isotopes (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu) and ^{241}Am in surface soil were researched with determined activity ratios of ^{238}Pu to $^{239,240}\text{Pu}$ during environmental monitoring in JNC Tokai Works. Furthermore, the radioactivity levels of Pu isotopes and ^{241}Am radioactivity were obtained on vertical profile per 5cm of soil.

Pu isotopes and ^{241}Am concentration levels were similar to those since 1980 without drastic change in surface soil. These concentrations were within the range of radioactivity in another region.

It was estimated that Pu isotopes determined by this research, were not originated from Reprocessing plants but from fallout of nuclear weapon tests by calculated radioactivity ratios of ^{238}Pu to $^{239,240}\text{Pu}$ and so on.

Pu isotopes and ^{241}Am concentrations were decreased in the same way without deference on each nuclide in the vertical profiles.

キーワード

Pu同位体, 同位体, 環境モニタリング, 放射能比, 濃度水準, 深度分布, フォールアウト, 核実験

Pu Isotopes, Isotope, Environmental Monitoring, Activity Ratio, Concentration Level, Vertical Profile, Fallout, Nuclear Weapon Test



藤田 博喜

環境監視課分析チーム所属
研究員
施設周辺環境モニタリング
及び環境試料中の放射性物質の分析・測定法の開発業務に従事



渡辺 均

環境監視課分析チームリーダー
副主任研究員
施設周辺環境モニタリング
及び放出管理業務に従事



武石 稔

環境監視課長
施設周辺環境モニタリング
及び放出管理業務に従事

1. はじめに

東海事業所では、1970年代から核燃料サイクル施設（再処理施設等）の設置に伴う茨城県環境監視計画及び再処理施設保安規定に基づき、大気塵埃、葉菜、表土、海水、海底土、魚介類中の $^{239,240}\text{Pu}$ *濃度を調査している。これら試料については、 $^{239,240}\text{Pu}$ の他に ^{238}Pu を測定するとともに、さらに ^{241}Pu 、 ^{241}Am 濃度についても分析法の開発¹⁾²⁾³⁾を含め、長期的な濃度水準の把握のためのモニタリングを独自に実施してきている。

また、過去の大気圏内核実験のPu同位体比と原子力発電所の使用済燃料から回収されたPu同位体比は大きく異なる。そこで、環境試料中のPuの成因を推定するために、Pu放射能比（ $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比等）についても着目している。

本報告では、核燃料サイクル施設の設置に伴うこれまでの環境モニタリング（施設からの異常放出の有無を判別するための短期的モニタリング及び再処理施設の稼働による長期間の放出による環境への放射性核種の蓄積を把握するための長期的モニタリング）により得られた表土中の ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Pu 及び ^{241}Am 濃度の水準を把握することを目的にこれら核種の経年変化を調査した。また、ここで得られた各核種の起源が過去の大気圏内核実験によるものであるのか施設の運転に伴うものであるのかを判別するために、Pu同位体比を求める代わりにPu放射能比（ $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比等）を求めた。さらに、Pu同位体及びAmの深度分布による土壤中の移行挙動を把握するためにPu同位体及び ^{241}Am 濃度を表層から5 cmごとに土壤試料を採取し調査を行ったので、この結果についても報告する。

2. 調査方法

表土は、表層から5 cm深さまでの土壌を採取し植物の根茎や落ち葉を除去後、105℃で4日以上乾燥した。その後、ふるい分けし2 mm以下を試料とした。試料中Pu同位体（ ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Pu ）及び ^{241}Am の分析は、それぞれ分析回収率補正用トレーサーとして ^{242}Pu と ^{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Pu又はAmをそれぞれ分離精製して、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。測定終了後、少量の硝酸と過酸化水素水によりPu成分をステンレス板からはく離し、陰イオン交換法を用いて再度試料中Puの精製を行った後、液体シンチレーションカウンタ（Packard 2,550 TR/AB）にて ^{241}Pu を定量した。なお、 ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の定常の環境モニタリングにおける分析作業での供試量は50 g、 ^{241}Pu 測定を含む系統分析は200 gの土壤試料を用いた。

深度分布については、表層から5 cmごとに40 cmまで試料を採取し、上記と同様に前処理を行い、化学分析後、定量を行った。この分析における供試量は、200 gとした。

3. 調査結果

1) 経年変化

表土中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の経年変化を図1に、同じく表土中の ^{241}Am 濃度の経年変化を図2に示す。 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の経年変化については、採取地点における分布のばらつきを考慮すると各地点ごとにほぼ一定の水準にあり、黒ボク土においては0.11～2.9 (Bq/kg・乾)、砂質土においては0.023～0.61 (Bq/kg・乾)であった。 ^{241}Am 濃度の経年変化

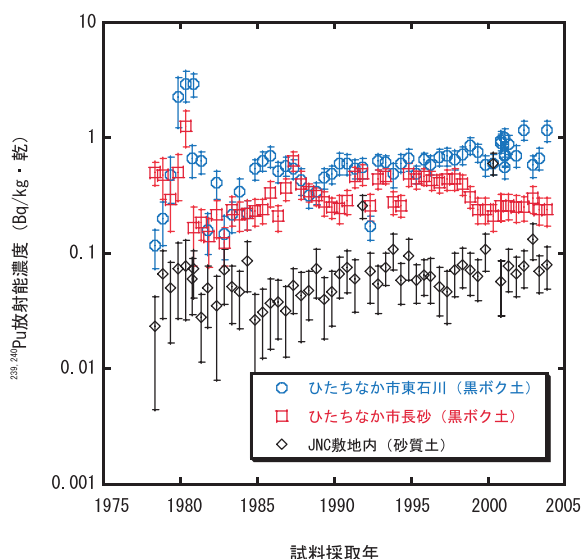


図1 表土中 $^{239,240}\text{Pu}$ 放射能濃度の経年変化（1978年～2003年）
（誤差については、測定における標準偏差の3倍である。）

* $^{239,240}\text{Pu}$ は、 ^{239}Pu と ^{240}Pu の合算値を示す。α線スペクトロメトリーにおいては、上記の2核種がエネルギー的に弁別できないため、合計値としての評価となる。

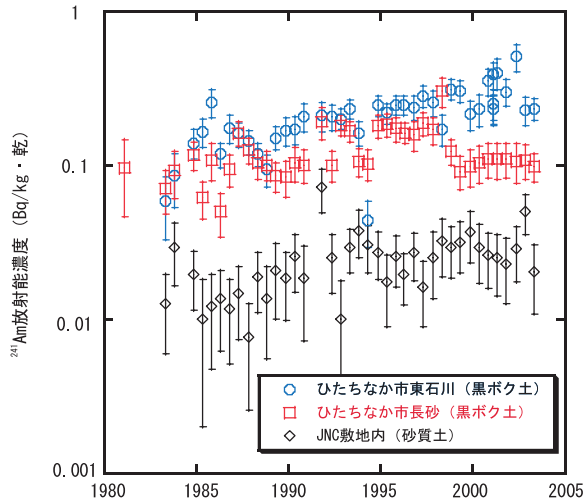


図2 表土中 ^{241}Am 放射能濃度の経年変化(1981年～2003年)
(誤差については、測定における標準偏差の3倍である。)

については、黒ボク土において $0.044 \sim 0.51$ ($\text{Bq/kg} \cdot \text{乾}$)、砂質土において $0.0076 \sim 0.072$ ($\text{Bq/kg} \cdot \text{乾}$)であった。図1及び図2における測定誤差は、測定における計数誤差のみを考慮し、計数誤差の3倍とした。黒ボク土中のPu同位体及び ^{241}Am の濃度は、砂質土中の濃度と比較していずれも高いものであった。これは、土質による違い(有機物の存在量等)があるものと考えられる。黒ボク土においては、有機物の影響で放射性核種が深さ方向に対して移行速度が遅く、砂質土においては、有機物等が少ないため降雨等の影響で放射性核種が流れやすいことが考えられる。表1に濃度範囲及び小野らが日本国内について文献調査等を行った際の濃度範囲を参照値として示す。これらの測定結果は、試料採取時に半減期補正した放射能濃度である。

これまでのモニタリングで得られたサイクル機構東海事業所周辺のPu同位体及び ^{241}Am 濃度はいずれも全国的な表土中の濃度レベルにあった。

表1 表土中Pu同位体及びAmの放射能濃度範囲

核種	放射能濃度 ($\text{Bq/kg} \cdot \text{乾}$)	文献調査 ($\text{Bq/kg} \cdot \text{乾}$)
^{238}Pu	$1.2 \times 10^{-2} \sim 3.8 \times 10^{-2}$	$7.4 \times 10^{-2} \sim 2.7 \times 10^{-1}$
$^{239,240}\text{Pu}$	$2.3 \times 10^{-2} \sim 2.9$	$8.0 \times 10^{-3} \sim 8.2$
^{241}Pu	$2.0 \sim 6.1$	
^{241}Am	$7.6 \times 10^{-3} \sim 6.8 \times 10^{-1}$	$2.1 \times 10^{-1} \sim 1.0$

2) 放射能比

Pu同位体及び ^{241}Am の放射能比を表2に示す。ここで、示した放射能比は、試料採取時半減期補正した放射能比である。 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は $0.02 \sim 0.07$ 、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は $0.05 \sim 0.8$ であった。 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は、軽水炉の使用済燃料中(燃焼度: $28,000\text{MWd/t}$ 、比出力: 35MW/t 、冷却期間: 180日、濃縮度: 4.0%)では約2.3、核実験によるフォールアウトでは約 $0.03^{1)5)}$ である。本調査で得られた放射能比範囲はフォールアウトの放射能比に近いものであった。このことから、東海事業所周辺に存在するPuは、 ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ の測定上の誤差を考慮すると核実験によるフォールアウト由来であり、原子力施設等の影響は見られないことが分かった。

また、 ^{241}Pu は半減期14.4年の β 放射体で、 ^{241}Am に壊変する。従って、核実験によるフォールアウト起源の ^{241}Pu は、大気圏内核実験が停止された1980年以降減衰してきていると予想される。さらに、 ^{241}Am の半減期は432年と長いことから、 ^{241}Pu の壊変に相応して増加すると予想される。この観点から $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比を求めた。 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比については、1978年～2002年にかけて10から2.4まで減少していた。これらの経年変化は、住谷らが1988年に測定した $4.2^{1)}$ 、植頭らが1996年に測定した $2.3 \sim 2.8^{2)3)}$ と一致した。また、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比が経年変化により減少していること、及びその放射能比が現在は約2.4であり、使用済燃料中の放射能比と比較すると十分小さいことなどから、環境中に存在するPuはフォールアウト由来であることを $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比からも示唆している。 ^{241}Pu は、半減期14.4年で ^{241}Am に壊変することから $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は今後さらに低下するものと考えられる。

表2 Pu同位体及びAmの $^{239,240}\text{Pu}$ に対する放射能比範囲

	放射能比	文献調査	
		フォールアウト ^{*1}	使用済み燃料 ^{*2}
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$0.019 \sim 0.068$	0.025	2.3
$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$2.4 \sim 10^{*3}$	13	99
$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$	$0.048 \sim 0.76$		

*1 UNSCEAR 1982, 2000

*2 下記の条件で計算した軽水炉における使用済み燃料中の放射能比 燃焼度: $28,000\text{MWd/t}$ 、比出力: 35MW/t 、冷却期間: 180日、濃縮度: $4\text{wt}\%$

*3 ^{241}Pu については、試料採取時の放射能比である。

3) 深度分布

土壌中の深度分布調査として、ひたちなか市東石川地点（上記モニタリングにおいて、調査している地点のうちの1地点）において、5 cmの深さごとに0～40 cmまで土壌を採取し、 ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Pu 及び ^{241}Am 濃度について深度分布を求めた。その結果を図3に示す。調査の結果、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am は0～15 cmまでの深度に約90%が分布していることが分かった。また、 ^{238}Pu 、 ^{241}Pu 濃度については、それぞれ0～20 cm、0～15 cmまでの深度について測定でき、その分布傾向は $^{239,240}\text{Pu}$ と同様であった。これらの結果から、Pu同位体及び ^{241}Am の土壌中での鉛直移動は、類似していることが分かった。本調査結果は、金沢大学LLRLの報告結果⁶⁾と一致している。

さらに、Pu同位体及び ^{241}Am の $^{239,240}\text{Pu}$ に対する深度別の放射能比を求めた結果、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は0.03、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は2、 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は0.3～0.6であり、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比及び $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は、先

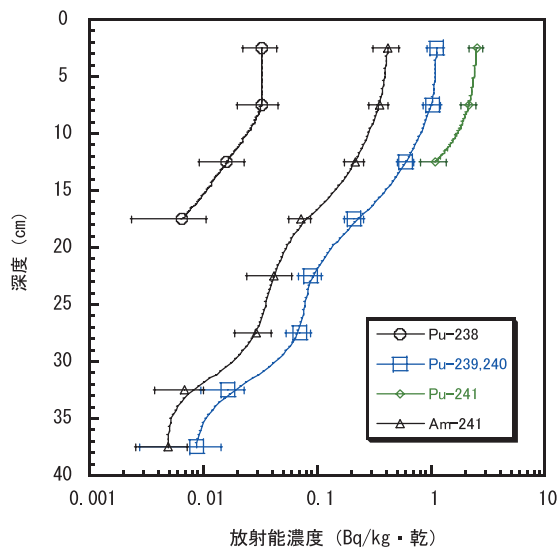


図3 土壌におけるPu同位体及び ^{241}Am 放射能濃度分布
(誤差については、測定における標準偏差の3倍である。)

に調査した表土中のPu同位体の放射能比と同レベルであった。このことから、各深度におけるPuは過去の大気圏内核実験によるフォールアウトとして沈着したものであり、原子力施設等の運転によって新たに供給されたものではないことが示唆された。

4. まとめ

水平分布におけるPu同位体(^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$)濃度の水準は、1980年以降大きな変化は見られなかった。 ^{241}Pu 濃度については減少が見られた。 ^{241}Am 濃度については、先に予想したような顕著な増加は本調査においては見られなかった。これらの濃度は全国的な表土中のPu同位体及び ^{241}Am 濃度と同レベルであった。

$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 等の放射能比から、環境中で検出されるPuは過去の大気圏内核実験によるフォールアウトの影響であると推定された。

Pu同位体と ^{241}Am 濃度の深度分布は、核種間に差はなく鉛直方向に対して同様に減少していた。また、 $^{239,240}\text{Pu}$ は、約90%が表層より0～15 cmまでに吸着しており、鉛直移動がPu、Amで類似していることが示唆された。

参考文献

- 1) 住谷 他：“環境試料中の ^{241}Pu 測定法の開発”，動燃技報，66，92-95（1988）
- 2) 植頭 他：“環境試料中 ^{241}Pu 測定法の開発”，動燃技報，101，75-80（1997）
- 3) Uezu et al.：“DEVELOPMENT OF DETERMINATION METHOD FOR PU-241 IN ENVIRONMENTAL SAMPLES”，The 5th Low Level Counting Conference Using Liquid Scintillation Analysis, 289-297（1996）.
- 4) 松岡 著：“プルトニウムの安全性評価”，日刊工業新聞社，（1993）
- 5) 国連科学委員会報告書 2000年
- 6) “Irish海沿岸堆積物のNp，Pu，Am濃度の深度分布”，低レベル放射能実験施設研究概要・年次報告，LLRL-AR-16, 10-11（1991.4-1992.3）