

平成 11 年 度

環境試料中のプルトニウム調査報告書

平成 12 年 2 月

福島県衛生公害研究所

はじめに

福島県内に原子力発電所が設置され29年になります。これまで「福島県原子力センター」で行ってきた原子力発電所周辺の環境放射能の監視測定結果では、海外での核実験による影響等を除き、環境中の放射能レベルは十分に低いことが確認されており、地域住民の健康と安全を確保するうえで問題は生じていません。

しかし、放射能、放射線あるいは原子力発電に関する不安が必ずしも解消されていない現状から、環境放射能の監視測定に万全を期するため、平成7年度、当研究所に環境放射能分析棟を整備いたしました。

この分析棟では、従来「原子力センター」で行ってきた監視測定対象に加え、肉、卵、果物などの日常食品や地域特産品の放射能分析、 α 線や β 線を放出する放射性物質の分析を行うとともに、調査研究を行うこととしています。

一方、県民の間には、福島第一原子力発電所におけるプルサーマル導入計画などを契機として、原子力発電についての関心が高まっていることから、当研究所の平成11年度事業として、多品目の環境試料に関するプルトニウム濃度の調査を実施してきました。

この調査は、20品目、52試料を対象として、分析の一部(20試料)を財団法人日本分析センターに委託して行い、当研究所での放射能分析結果とあわせ本書に述べるような結果が得られました。これらの結果を基に、県内におけるプルトニウムのバックグラウンドレベルの理解に役立つことを願うところです。

調査に当たり、関係機関である原子力センターには特段の御協力をいただくとともに、試料採取の一部を受託していただいた財団法人福島県保健衛生協会およびプルトニウム分析の一部を受託していただいた財団法人日本分析センターともども関係各位に深く感謝申し上げます。

平成12年2月

福島県衛生公害研究所長

加 藤 一 夫

目 次

	(頁)
1 調 査 目 的	1
2 調 査 方 法	1
(1) 調 査 対 象	1
(2) 試料採取地点	3
(3) 調 査 項 目	5
3 分 析 方 法	5
(1) 試 料 調 製	5
(2) プルトニウムの化学分離	6
(3) プルトニウムの測定方法	7
(4) γ 線放出核種測定の試料調製	7
(5) γ 線放出核種の測定方法	8
(6) 強熱減量の測定方法	8
4 調 査 結 果	8
(1) 多品目の環境試料中のプルトニウム及び γ 線放出核種濃度	8
ア Pu-239+240の検出状況	9
イ Pu-238の検出状況	14
ウ Pu-238とPu-239+240の比	14
エ γ 線放出核種の検出状況	15
オ Pu-239+240とCs-137との比	15
カ Pu-239+240と強熱減量との関係	16
(2) ほんだわらのプルトニウム濃度の経年変化	18
(3) モニタリング対象試料のプルトニウム調査結果	19
ア プルトニウムの検出状況	19
イ γ 線放出核種の検出状況	24
ウ Pu-239+240とCs-137との比	24
エ Pu-239+240と強熱減量との関係	26
オ 強熱減量とPu-239+240/Cs-137との関係	29
5 ま と め	30
(1) 多品目の環境試料中のプルトニウム及び γ 線放出核種濃度	30
(2) ほんだわらのプルトニウム濃度の経年変化	32
(3) モニタリング対象試料のプルトニウム調査	32
(4) 今後のプルトニウム調査	33
[参 考 文 献]	34
[語 句 説 明]	35

1 調査目的

プルトニウムは、長半減期の α 線放射体であり、大気圏内核実験の影響等により環境中に広く分布し、線量評価を行う上で重要な核種である。このため本県では、福島県原子力発電所周辺環境放射能測定計画に基づき、降下物など6種類の環境試料について平成8年度からモニタリングを実施している。

一方、国では最近のエネルギー事情から、ウランとプルトニウムの混合酸化物燃料(MOX燃料)を軽水炉で燃焼するプルサーマル計画を採用することとし、本県の原子力発電所においても当計画が実施される予定である。

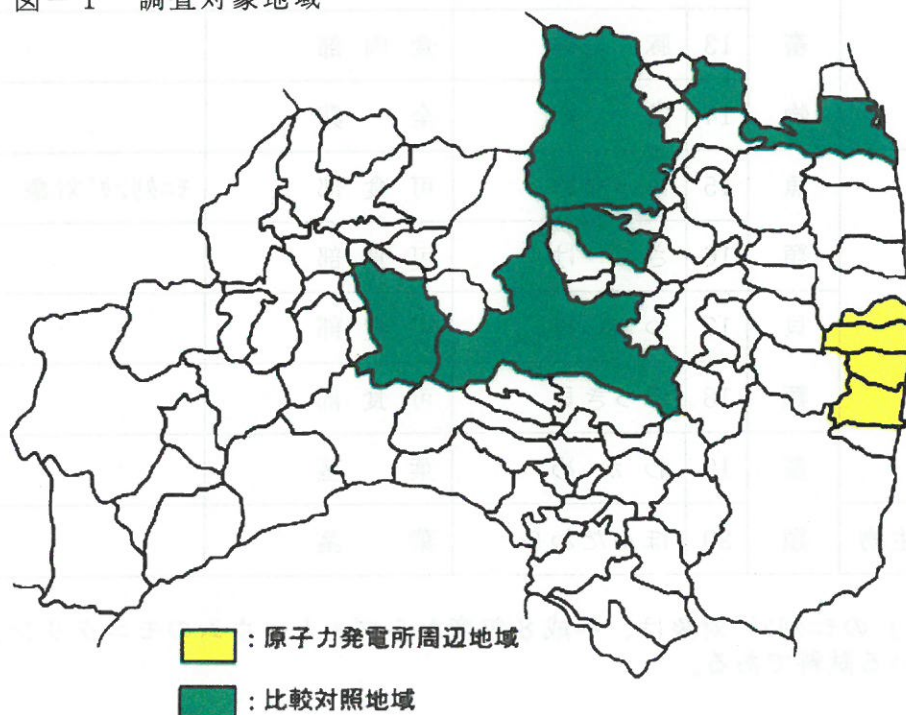
これらのことから、県内の広い範囲において、多品目のプルトニウム濃度を調査し、そのバックグラウンドレベルを把握することは重要である。このため、モニタリング対象となっていない湖底沈積物等の多品目の環境試料について、本年度から3カ年計画でプルトニウムの濃度を調査するとともに、プルトニウムの環境動態に影響を与える基礎的項目等について調査し、基礎資料を得ることを目的とした。

2 調査方法

(1) 調査対象

調査対象地域は、図-1に示したように原子力発電所が立地している双葉町、大熊町、富岡町、楡葉町及び請戸漁港(浪江町)、久之浜漁港(いわき市)を原子力発電所周辺地域とし、その測定結果の評価解析の参考に資するため、県北地区(福島市、梁川町)、郡山市、二本松市、会津若松市及び相馬市を比較対照地域として調査を実施した。

図-1 調査対象地域



調査対象とした環境試料は、放射性核種の分布・蓄積状況の把握や核実験等による寄与を把握する上で参考となるものとし、モニタリング対象となっている試料を含め表－１に示した２０試料とした。

表－１ 調査対象の環境試料

区 分	試料区分	試 料 名	種類または部位	備 考
降 下 物	降下物	1 降 下 物	雨水ちり	モニタリング対象
陸 土	土 試 料	2 陸 土	表 土	モニタリング対象
湖底沈積物		3 湖底沈積物	湖 底 土	
ダム底沈積物		4 ダム底沈積物	ダム底土	
海底沈積物		5 海底沈積物	海砂又は海底土	モニタリング対象
陸 水	水試料	6 上 水	蛇 口 水	
海 水		7 海 水	表 面 水	
農畜産物	農 産 物	8 米	精白米	モニタリング対象
		9 ほうれん草	葉 茎	モニタリング対象
		10 大 根	根 部	
		11 ばれいしょ	塊 茎	
	畜 畜 物	12 牛 乳	原 乳	
		13 豚 肉	食 肉 部	
		14 鶏 卵	全 卵	
水 産 物	魚 類	15 あいなめ	可 食 部	モニタリング対象
		16 さ け	可 食 部	
	貝 類	17 つ ぶ 貝	可 食 部	
		18 ほっき貝	可 食 部	
	藻 類	19 わ か め	葉 茎	
		20 ほんだわら	葉 茎	

(注) 「備考」のモニタリング対象は、平成８年度からプルトニウムのモニタリングをしている試料である。

(2) 試料採取地点

環境試料は、原子力発電所周辺地域及び比較対照地域から、表－２に示した地点より試料を採取又は購入した。

表－２ 試料の採取・購入地点

試料名	地点の名称	採取又は購入地点	地域区分
降下物	1 富岡	富岡町本町	周辺地域
	2 大野	大熊町大字下野上	
	3 福島市	福島市方木田	対照地域
陸土	1 楢葉町波倉	楢葉町大字波倉	周辺地域
	2 大熊町夫沢	大熊町大字夫沢	
	3 福島市	福島市荒井	対照地域
湖底沈積物	1 猪苗代湖（湖心）	猪苗代湖 湖心付近	対照地域
	2 猪苗代湖（長瀬川）	猪苗代湖 長瀬川流入付近	
ダム底沈積物	1 坂下ダム	大熊町坂下ダム 中央部	周辺地域
	2 岳ダム	二本松市岳ダム 中央部	対照地域
海底沈積物	1 第一（発）沖合	第一（発）放水口沖合 2 km 付近	周辺地域
	2 第二（発）沖合	第二（発）放水口沖合 2 km 付近	
	3 相馬市松川浦	相馬市松川浦沖	対照地域
上水	1 大熊町	大熊町大字下野上	周辺地域
	2 福島市	福島市方木田	対照地域
海水	1 第一（発）南放水口	第一（発）南放水口付近	周辺地域
	2 第二（発）南放水口	第二（発）南放水口付近	
	3 相馬市松川浦	相馬市松川浦沖	対照地域
米	1 富岡町本岡	富岡町大字本岡	周辺地域
	2 双葉町郡山	双葉町大字郡山	
	3 福島市	福島市内	対照地域

（注）「地域区分」は、周辺地域は原子力発電所周辺地域を、対照地域は比較対照地域を表す。

試料名	地点の名称		採取又は購入地点	地域区分
ほうれん草	1	富岡町小良ヶ浜	富岡町大字小良ヶ浜	周辺地域
	2	双葉町郡山	双葉町大字郡山	周辺地域
	3	福島市	福島市内	対照地域
大根	1	富岡町本岡	富岡町大字本岡	周辺地域
	2	双葉町郡山	双葉町大字郡山	
	3	郡山市	郡山市内	対照地域
ばれいしょ	1	大熊町	大熊町大字夫沢	周辺地域
	2	福島市	福島市内	対照地域
牛乳	1	楢葉町井出	楢葉町大字井出	周辺地域
	2	大熊町下野上	大熊町大字下野上	
	3	福島市	福島市内	対照地域
豚肉	1	第二（発）周辺	富岡町小良ヶ浜	周辺地域
	2	県北地区	梁川町内	対照地域
鶏卵	1	第二（発）周辺	富岡町上手岡	周辺地域
	2	県北地区	福島市内	対照地域
あいなめ	1	請戸漁港	浪江町請戸漁港	周辺地域
	2	久之浜漁港	いわき市久之浜漁港	
	3	相馬漁港	相馬市相馬漁港	対照地域
さけ	1	泉田川	浪江町泉田川	周辺地域
	2	熊川	大熊町熊川	
	3	木戸川	楢葉町木戸川	
つぶ貝	1	請戸漁港	浪江町請戸漁港	周辺地域
	2	相馬漁港	相馬市相馬漁港	対照地域
ほっき貝	1	請戸漁港	浪江町請戸漁港	周辺地域

試料名	地点の名称		採取又は購入地点	地域区分
ほっき貝	2	磯部漁港	相馬市磯部漁港	対照地域
わかめ	1	第一（発）海域	東京電力(株)福島第一原子力発電所海域	周辺地域
	2	第二（発）海域	東京電力(株)福島第二原子力発電所海域	
	3	松川浦	相馬市地先海域	対照地域
ほんだわら	1	第一（発）海域	東京電力(株)福島第一原子力発電所海域	周辺地域
	2	第二（発）海域	東京電力(株)福島第二原子力発電所海域	
	3	松川浦	相馬市地先海域	対照地域

(3) 調査項目

調査項目は、プルトニウム濃度（P u -239+240、P u -238）及び γ 線放出核種濃度を測定した。

また、土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物及び海底沈積物）についてはプルトニウム濃度との相関を見るため強熱減量（有機物含量）を測定した。

3 分析方法

(1) 試料調製

科学技術庁放射能測定法シリーズ16「環境試料採取法」（昭和58年）に準じて行った。操作の概略は以下のとおりである。

ア 降下物

大型水盤に受けた1か月分の降下物をビーカーに入れ加熱濃縮した後、 γ 線測定用のU-8容器に移し、乾燥器で濃縮したものを12か月分混合して分析試料とした。

イ 陸 土

土壌採取器により地表面から深さ10cm程度を採取し、105℃で乾燥後、2mmのふるいで篩い分け、植物根、石礫等を取り除いたものを十分混合して分析試料とした。

ウ 湖底沈積物、ダム底沈積物

エクマン・バージ型採泥器により底土を採取し、105℃で乾燥後、2mmのふるいで篩い分け、植物根、石礫等を取り除いたものを十分混合して分析試料とした。

エ 陸 水

蛇口水を数分間放水し、配水管など内部に停滞している水を流し出した後、必要量採水し、試料水 1 ℓ に付き塩酸を 1 ml の割合で添加した。

オ 海 水

バケツで表面水を採水、または水中ポンプを用いて海水を大型容器に揚水し、そこから必要量採水し、試料水 1 ℓ に付き塩酸を 1 ml の割合で添加した。

カ 海底沈積物

円筒型ドレッジ式採泥器により海底土を採取し、105℃で乾燥後、2mmのふるいで篩い分け、石礫等の異物を取り除いたものを十分混合して分析試料とした。

キ 農畜産物、水産物、指標海洋生物

それぞれの試料について、次に示した方法により目的部位を取り分け、磁製皿に移し、105℃に調節した熱風乾燥器中で乾燥した後、電気炉に入れ450℃で灰化した。灰を0.35mmのふるいに通し、ふるい下をよく混合して分析試料とした。

なお過去（1年以上前）の灰試料を使用する場合は、105℃に調節した熱風乾燥器中で乾燥したものを分析試料とした。

米 : 精白米をそのまま使用

ほうれん草 : 水洗いし脱水した後、根を取り除いたものを目的部位とした。

大 根 : 茎部を取り除き、水洗いし水分をふき取り、皮をむいたものを目的部位とした。

ばれいしょ : 水洗いした後、水分をふき取り、皮をむいたものを目的部位とした。

牛 乳 : 原乳を磁製皿に移し、ガスコンロで加熱濃縮した。

豚 肉 : 食肉部を目的部位とした。

鶏 卵 : 殻を取り除いたものを目的部位とした。

あいなめ、さけ : 内臓や骨等を取り除いた可食部を目的部位とした。

わかめ : 水道水で洗い、砂などを取り除き脱水したものを目的部位とした。

つぶ貝、ほっき貝 : 殻及び内臓を取り除いた可食部を目的部位とした。

ほんだわら : 水道水で洗い、砂などを取り除き脱水したものを目的部位とした。

(2) プルトニウムの化学分離

科学技術庁放射能測定法シリーズ12「プルトニウム分析法」（平成2年改訂）に

準じて行った。操作の概略は以下のとおりである。

ア 降下物

分析試料に P u -242収率補正用トレーサーを一定量添加し、硝酸を加えて加熱抽出した。残留物をろ別後、ろ液を蒸発濃縮して、硝酸(3+2)及び過酸化水素水を加えて加熱した。放冷後ろ過を行い、ろ液を陰イオン交換樹脂カラムに通した後、硝酸(3+2)、塩酸(5+1)で順次洗浄後、ヨウ化アンモニウム-塩酸溶液でプルトニウムを溶離し、蒸発乾固した。これに硝酸及び過塩素酸を加えて再び蒸発乾固し、硫酸(1+9)で溶解後、pHを調整し、プルトニウムをステンレス板上に電着して測定試料とした。

イ 土試料

陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物の土試料は、分析試料から50gを分取し、500℃の電気炉で加熱処理後、P u -242収率補正用トレーサーを一定量添加し、硝酸を加えて加熱抽出した。その後の操作は降下物と同様に行った。

ウ 水試料

陸水、海水の水試料は、分析試料から100ℓを分取し、P u -242収率補正用トレーサー及び鉄(Ⅲ)担体を一定量添加した。アンモニア水で塩基性として水酸化鉄沈殿を生成し、一夜放置した。デカンテーション後、沈殿を遠心分離した。沈殿を硝酸に溶解し、蒸発濃縮して硝酸(3+2)及び過酸化水素水を加え、加熱した。その後の操作は降下物と同様に行った。

エ 灰試料

農畜産物、水産物及び指標海洋生物の灰試料は、分析試料から生1kg相当の灰を分取し、P u -242収率補正用トレーサーを一定量添加し、硝酸及び過酸化水素水を加えて加熱分解した。分解後、加熱濃縮した試料溶液に硝酸(3+2)及び過酸化水素水を加え加熱した。その後の操作は降下物と同様に行った。

(3) プルトニウムの測定方法

シリコン半導体検出器を用い、測定試料の α 線スペクトルを原則として80,000秒測定した。

測定試料のP u -238及びP u -239+240の正味計数率を求め、収率補正用トレーサーの計数率との比較、分析供試量等からそれぞれの放射能濃度を算出した。

(4) γ 線放出核種測定の試料調製

科学技術庁放射能測定法シリーズ13「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機

器分析のための試料の前処理法」(昭和57年)に準じて行った。

操作の概略は、以下のとおりである。

ア 土試料及び灰試料

陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物の土試料及び農畜産物、水産物及び指標海洋生物の灰試料は、分析試料を試料詰め具を用いてU-8容器に詰め測定試料とした。

イ 陸水

試料水20ℓをビーカーに入れ蒸発濃縮し、U-8容器に移し、乾燥器で水分がなくなるまで濃縮したものを測定試料とした。

ウ 海水

海水の測定試料の調整法には、リンモリブデン酸アンモニウム-二酸化マンガン吸着法採用した。操作の概略は、試料水30ℓにリンモリブデン酸アンモニウムを加え放置し沈殿を捕集した後、上澄み液に二酸化マンガン粉末を加え放置し沈殿を捕集する。それぞれの沈殿をU-8容器に入れ乾燥機で乾燥後十分混合し、測定試料とした。

(5) γ 線放出核種の測定方法

科学技術庁放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(平成4年3訂)に準じ、ゲルマニウム半導体検出器を用い、測定試料の γ 線スペクトルを原則として80,000秒測定した。

測定対象核種は、Cr-51, Mn-54, Co-58, Fe-59, Co-60, Zr-95, Nb-95, Ru-106, Cs-134, Cs-137, Ce-144とした。

(6) 強熱減量の測定方法

「底質調査方法」(昭和63年9月8日付け環水管第127号 環境庁水質保全局長通知)に準じて行った。操作の概略は以下のとおりである。

分析試料を磁器製のるつぽに入れ、電気炉を用いて600℃で2時間強熱した後、デシケータ中で放冷し質量を測定、恒量に達するまで強熱-放冷-秤量を繰り返した。

4 調査結果

(1) 多品目の環境試料中のプルトニウム及び γ 線放出核種濃度

プルトニウム濃度(Pu-239+240, Pu-238)及び γ 線放出核種濃度の測定結果は表-3に示した。プルトニウムが検出された土試料、海水、藻類については、その濃度分布を図-2~4に示した。

また、検出されたプルトニウム濃度のレベルを比較するために、他の機関で測定したプルトニウム濃度を表-4に示した。

ア Pu-239+240の検出状況

- ① Pu-239+240は、降下物、土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物）、海水、藻類（わかめ、ほんだわら）及び貝類（つぶ貝、ほっき貝）から検出された。
- ② 上水、農産物（米、ほうれん草、大根、ばれいしょ）、畜産物（牛乳、豚肉、鶏卵）、魚類（あいなめ、さけ）からプルトニウムは検出されなかった。
- ③ プルトニウムの検出状況及び検出された濃度は、原子力発電所周辺地域と比較対照地域との間に差は見られなかった。
- ④ 降下物のPu-239+240は、検出下限値以下（以下、「LTD」と記載）～0.0003 MBq/km²・月の範囲であり、他の機関で実施した測定値の範囲内であった。
- ⑤ 陸土は、0.029～0.51 Bq/kg乾の範囲であり、他の機関の測定値の範囲内であった。
- ⑥ 湖底沈積物は、猪苗代湖湖心において2.3 Bq/kg乾、河川流入付近で0.12 Bq/kg乾であった。湖心の測定値は、今回測定した環境試料の中で最も高い値であり、プルトニウムの蓄積が高いことがわかった。
- ⑦ ダム底沈積物は、0.31～0.49 Bq/kg乾の範囲であった。
- ⑧ 海水は、LTD～0.020 mBq/lの範囲であり、他の機関が実施した測定値の範囲内であった。
- ⑨ 海底沈積物は、0.41～0.49 Bq/kg乾の範囲であり、他の機関が測定した範囲内であった。
- ⑩ つぶ貝は、0.0030～0.0033 Bq/kg生、ほっき貝は0.0009～0.0014 Bq/kg生の範囲であった。
- ⑪ わかめとほんだわらは同じ藻類であるが、ほんだわらのPu-239+240濃度はわかめより1桁高い数値を示し、生物試料（農畜産物、水産物）のうちでも最も高い数値であった。
- ⑫ 貝類、藻類からはプルトニウムが検出されたが、セシウムは検出されなかった。これはPu-239+240の濃縮係数が貝類で200前後、藻類の濃縮係数が400前後であるのに対し、Cs-137の濃縮係数は、貝類で10前後、藻類で30前後であり、Pu-239+240の方が濃縮しやすいためと考えられる。
- ⑬ Pu-239+240の検出状況から濃縮係数が高い藻類や貝類のプルトニウム濃度をモニタリングすることは、プルトニウムが検出下限値以下となることが多い現在、プルトニウムの蓄積状況を把握する上で有用なことと考えられる。

表-3 環境試料中のプルトニウム及びセシウム-137濃度

試料名	地点の名称	採取年月日	単位	Pu-239+240	Pu-238	Cs-137
降下物	1 富岡	H 11. 4. 1	MBq/km ² ・月	0. 0 0 0 2	LTD	
	2 大野	H 11. 4. 1		0. 0 0 0 3	LTD	
	3 福島市	H 11. 4. 1		LTD	LTD	
陸 土	1 楮葉町波倉	H 11. 6. 14	Bq/kg乾	0. 0 9 5	LTD	4. 9
	2 大熊町夫沢	H 11. 6. 14		0. 0 2 9	LTD	1. 1
	3 福島市	H 11. 6. 23		0. 5 1	LTD	1 9
湖底沈積物	1 猪苗代湖(湖心) ※	H 11. 8. 20	Bq/kg乾	2. 3	0. 0 6 4	6 9
	2 猪苗代湖(長瀬川)※	H 11. 8. 20		0. 1 2	LTD	5. 2
ダム底沈積物	1 坂下ダム ※	H 11. 8. 17	Bq/kg乾	0. 3 1	LTD	9. 3
	2 岳ダム ※	H 11. 8. 17		0. 4 9	0. 0 1 2	1 1
海底沈積物	1 第一(発)沖合	H 11. 5. 26	Bq/kg乾	0. 4 4	LTD	LTD
	2 第二(発)沖合	H 11. 5. 31		0. 4 9	LTD	LTD
	3 相馬市松川浦	H 11. 7. 26		0. 4 1	0. 0 2 1	1. 8
上 水	1 大熊町 ※	H 11. 7. 13	Bq/ℓ	LTD	LTD	LTD
	2 福島市 ※	H 11. 7. 13		LTD	LTD	LTD
海 水	1 第一(発)南放水口※	H 11. 7. 27	mBq/ℓ	LTD	LTD	2. 2
	第一(発)南放水口	H 11. 10. 12		0. 0 1 1	LTD	LTD
	2 第二(発)南放水口※	H 11. 7. 29		0. 0 2 0	LTD	1. 6
	第二(発)南放水口	H 11. 10. 14		0. 0 0 7 9	LTD	LTD
	3 相馬市松川浦 ※	H 11. 7. 26		LTD	LTD	2. 6
米	1 富岡町本岡	H 11. 11. 8	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
	2 双葉町郡山	H 11. 11. 11		LTD	LTD	LTD
	3 福島市	H 11. 11. 26		LTD	LTD	LTD
ほうれん草	1 富岡町小良ヶ浜	H 11. 11. 24	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
	2 双葉町郡山	H 11. 11. 29		LTD	LTD	LTD

(注) 1 測定結果は、計数値が計数誤差の3倍を超えるものについてプルトニウムは小数第4位、セシウムについては小数第3位を限度とする有効数字2桁とし、それ以下(検出下限値以下)のものについては「LTD」と表記した。以下、同じ。

2 「地点の名称」に※印を付したものは、プルトニウム分析を財団法人日本分析センターに委託した試料である。

試料名	地点の名称	採取年月日	単位	Pu-239+240	Pu-238	Cs-137
ほうれん草	3 福島市	H 11. 11. 16		LTD	LTD	LTD
大 根	1 富岡町本岡	H 11. 6. 14	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
	2 双葉町郡山	H 11. 6. 16		LTD	LTD	LTD
	3 郡山市	H 11. 6. 10		LTD	LTD	LTD
ばれいしょ	1 大熊町 ※	H 11. 7. 12	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
	2 福島市 ※	H 11. 7. 5		LTD	LTD	LTD
牛 乳	1 楮葉町井出	H 11. 7. 21	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
	2 大熊町下野上	H 11. 7. 22		LTD	LTD	LTD
	3 福島市	H 11. 7. 22		LTD	LTD	LTD
豚 肉	1 第二（発）周辺 ※	H 11. 9. 9	Bq/kg生	LTD	LTD	0. 09
	2 県北地区 ※	H 11. 9. 16		LTD	LTD	0. 08
鶏 卵	1 第一（発）周辺	H 11. 9. 9	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
	2 県北地区	H 11. 9. 16		LTD	LTD	LTD
あいなめ	1 請戸漁港	H 11. 5. 21	Bq/kg生	LTD	LTD	0. 16
	2 久之浜漁港	H 11. 5. 20		LTD	LTD	0. 13
	3 相馬漁港	H 11. 5. 7		LTD	LTD	0. 19
さ け	1 泉 田 川	H 11. 10. 13	Bq/kg生	LTD	LTD	0. 08
	2 熊 川	H 11. 10. 13		LTD	LTD	0. 07
	3 木 戸 川	H 11. 10. 13		LTD	LTD	0. 06
つ ぶ 貝	1 請戸漁港 ※	H 11. 7. 13	Bq/kg生	0. 0033	LTD	LTD
	2 相馬漁港 ※	H 11. 7. 21		0. 0030	LTD	LTD
ほっき貝	1 請戸漁港 ※	H 11. 4. 1	Bq/kg生	0. 0014	LTD	LTD
	2 磯部漁港 ※	H 11. 4. 1		0. 0009	LTD	LTD
わ か め	1 第一（発）海域	H 11. 5. 11	Bq/kg生	0. 0015	LTD	LTD
	2 第二（発）海域	H 11. 5. 13		0. 0009	LTD	LTD
	3 松川浦	H 11. 4. 27		0. 0013	LTD	LTD
ほんだわら	1 第一（発）海域 ※	H 11. 7. 7	Bq/kg生	0. 014	LTD	LTD
	2 第二（発）海域 ※	H 11. 7. 8		0. 032	LTD	LTD
	3 松川浦 ※	H 11. 7. 28		0. 014	LTD	LTD

表－４ 他の機関で測定したプルトニウム濃度

試料名	単位	Pu-239+240	Pu-238
降下物	MBq/km ² ・月	LTD ～ 0.29	LTD～0.0096
陸土	Bq/kg乾	LTD ～ 6.7	LTD ～ 0.3
湖底沈積物	Bq/kg乾	0.43 ～ 8.0	0.030～0.14
ダム底沈積物	Bq/kg乾	/	/
海底沈積物	Bq/kg乾	LTD ～ 4.4	LTD ～ 0.17
上水	Bq/ℓ	/	/
海水	mBq/ℓ	LTD ～ 0.12	LTD
米	Bq/kg生	LTD	LTD
ほうれん草	Bq/kg生	LTD ～0.0037	LTD
大根	Bq/kg生	LTD	/
ばれいしょ	Bq/kg生	LTD	/
牛乳	Bq/kg生	/	/
豚肉	Bq/kg生	/	/
鶏卵	Bq/kg生	/	/
あいなめ	Bq/kg生	LTD	/
さけ	Bq/kg生	/	/
つぶ貝	Bq/kg生	/	/
ほっき貝	Bq/kg生	LTD ～ 0.013	/
わかめ	Bq/kg生	LTD ～ 0.024	LTD
ほんだわら	Bq/kg生	LTD ～ 0.19	LTD ～0.0024

注) 1 財団法人日本分析センターが科学技術庁の委託事業により構築したデータベースの検索結果を基に作成した。

2 「/」は、測定データがないことを意味する。

3 測定結果は、小数第4位を限度とする有効数字2桁で表記した。

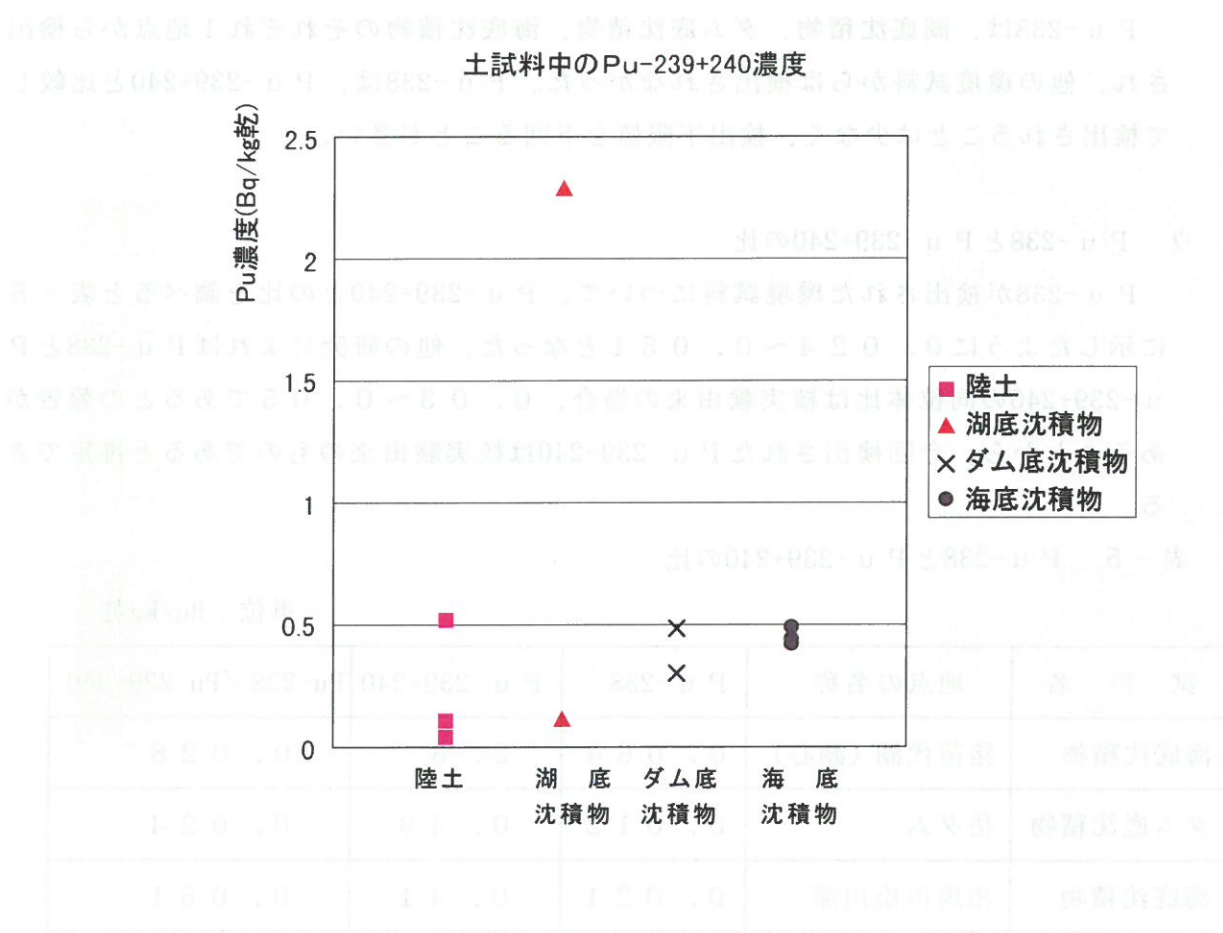
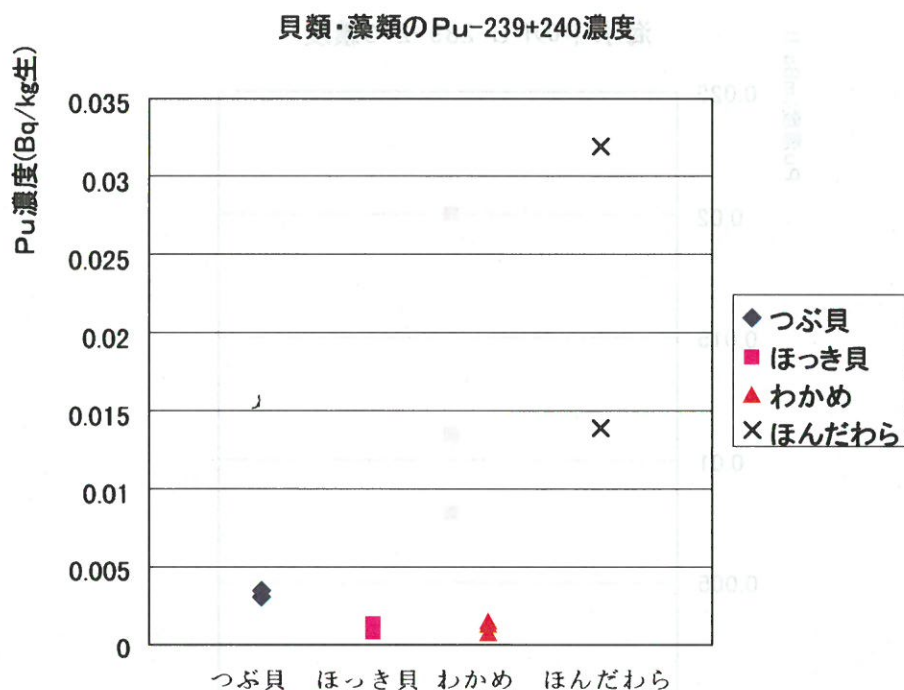


図 - 4



イ Pu-238の検出状況

Pu-238は、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物のそれぞれ1地点から検出され、他の環境試料からは検出されなかった。Pu-238は、Pu-239+240と比較して検出されることは少なく、検出下限値を下回ることが多い。

ウ Pu-238とPu-239+240の比

Pu-238が検出された環境試料について、Pu-239+240との比を調べると表-5に示したように0.024~0.051となった。他の研究によればPu-238とPu-239+240の同位体比は核実験由来の場合、0.03~0.05であるとの報告があることから、今回検出されたPu-239+240は核実験由来のものであると推定できる。

表-5 Pu-238とPu-239+240の比

単位: Bq/kg 乾

試料名	地点の名称	Pu-238	Pu-239+240	Pu-238/Pu-239+240
海底沈積物	猪苗代湖(湖心)	0.064	2.3	0.028
ダム底沈積物	岳ダム	0.012	0.49	0.024
海底沈積物	相馬市松川浦	0.021	0.41	0.051

エ γ線放出核種の検出状況

- ① 人工のγ線放出核種は、土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物）、海水、豚肉、魚類（あいなめ、さけ）からCs-137が検出された。

その他のγ線放出核種については、検出されなかった。

- ② 上水、農産物（米、ほうれん草、大根、ばれいしょ）、牛乳、鶏卵、貝類（つぶ貝、ほっき貝）及び藻類（わかめ、ほんだわら）から、Cs-137等の人工のγ線放出核種は検出されなかった。

- ③ Cs-137の検出状況及び検出された濃度は、原子力発電所周辺地域と比較対象地域との間に差は見られなかった。

- ④ 今回測定した環境試料のうち湖底沈積物のCs-137がPu-239+240と同じく最も高く、67Bq/kg乾であった。

- ⑤ Pu、Csのどちらも検出されたものは、海水とフォールアウト堆積性のある土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物）であった。

- ⑥ 豚肉、あいなめ、さけについては、セシウムが検出されたがプルトニウムは検出されなかった。これは、濃縮係数（あいなめ、さけ）または移行係数（豚肉）がセシウムとプルトニウムとで異なること、分析対象とした部位が可食部（主に筋肉部）であり、Csが主として筋肉部に存在するのに対し、Puは骨や肝臓に存在しやすいといった核種の生物学的性質によるものと考えられる。

オ Pu-239+240とCs-137の比

環境中のプルトニウムの起源を推定する場合、Pu-239+240とCs-137との比または、Pu-239+240とSr-90との比について検討されている。プルトニウム濃度及びγ線放出核種濃度の測定結果のうちPu-239+240とCs-137のどちらも検出されている試料について、それらの比及び相関について検討した。

- ① Pu-239+240とCs-137の比は表-6に示したように、陸土が0.019～0.027、湖底沈積物が0.023～0.033、ダム底沈積物が0.033～0.045であった。試料数が少ないものの、陸土に比較して、湖底沈積物及びダム底沈積物のPu-239+240/Cs-137比が若干高い値を示した。

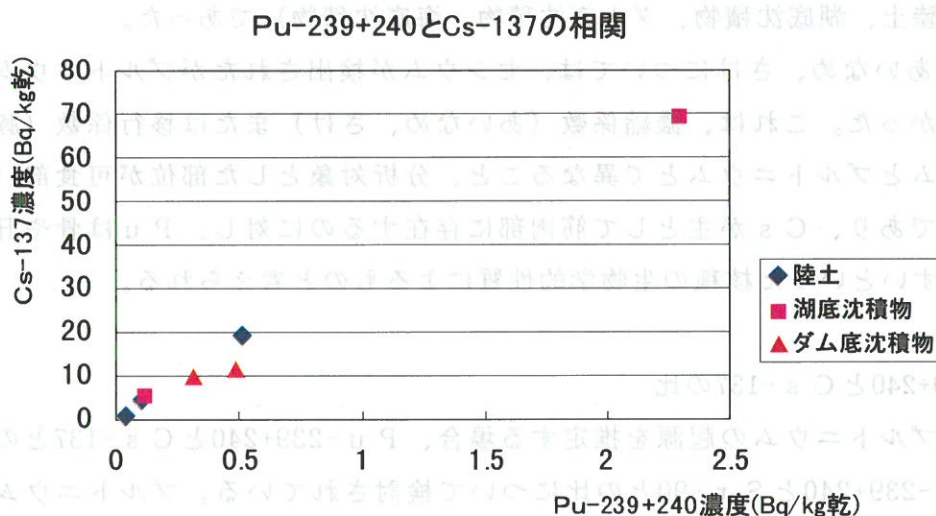
表-6 Pu-239+240とCs-137の比

試料名	地点の名称		Pu-239+240/Cs-137
陸土	1	楢葉町波倉	0.019
	2	大熊町夫沢	0.026

試料名	地点の名称		Pu-239+240/Cs-137
陸土	3	福島市	0.027
湖底沈積物	1	猪苗代湖（湖心）	0.033
	2	猪苗代湖（長瀬川）	0.023
ダム底沈積物	1	坂下ダム	0.033
	2	岳ダム	0.045

- ② Cs-137とPu-239+240の相関は、図-5に示したように、相関が見られるが、試料数が少ないため、今後試料数を増やして調査・検討する必要がある。

図-5



- ③ 海水及び海底沈積物は、Cs-137が検出されないことが多いため、Pu-239+240/Cs-137比を得ることができないこともあり、またPu-239+240とCs-137比との相関も見られなかった。

カ Pu-239+240と強熱減量との関係

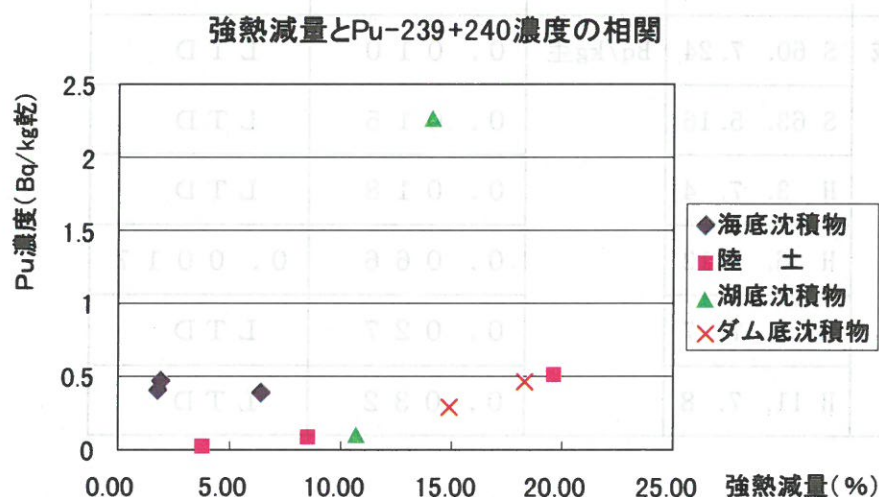
Pu-239+240は、強熱減量（有機物含量）及び比表面積に対して正の相関があるとの報告があるため、土試料についての強熱減量とPu-239+240との関係について検討し、その結果を表-7に、相関図を図-6に示した。

表-7 土試料の強熱減量とPu-239+240濃度

試料名	地点の名称		強熱減量(%)	Pu-239+240(Bq/kg乾)
陸土	1	楢葉町波倉	8.56	0.095

試料名	地点の名称		強熱減量(%)	Pu-239+240(Bq/kg乾)
陸 土	2	大熊町夫沢	3.85	0.029
	3	福島市	19.73	0.51
湖底沈積物	1	猪苗代湖(湖心)	14.12	2.3
	2	猪苗代湖(長瀬川)	10.77	0.12
ダム底沈積物	1	坂下ダム	14.91	0.31
	2	岳ダム	18.37	0.49
海底沈積物	1	第一(発)沖合	1.81	0.44
	2	第二(発)沖合	1.89	0.49
	3	相馬市松川浦	6.38	0.41

図-6



陸土は、強熱減量（有機物含量）が多いほどPu-239+240の濃度が高くなる傾向が見られるが、海底沈積物、湖底沈積物、ダム底沈積物には強熱減量とプルトニウム濃度に相関は見られなかった。これは、海底沈積物等の底質の場合、強熱減量のうち有機物の占める割合が異なり、強熱減量が必ずしも有機物量の目安とはならないためと考えられる。

(2) ほんだわらのプルトニウム濃度の経年変化

多品目の環境試料中のプルトニウム調査から、P u-239+240は、濃縮係数の高い藻類に検出されることから、ほんだわらを用いてP u-239+240濃度の経年変化を調査した。

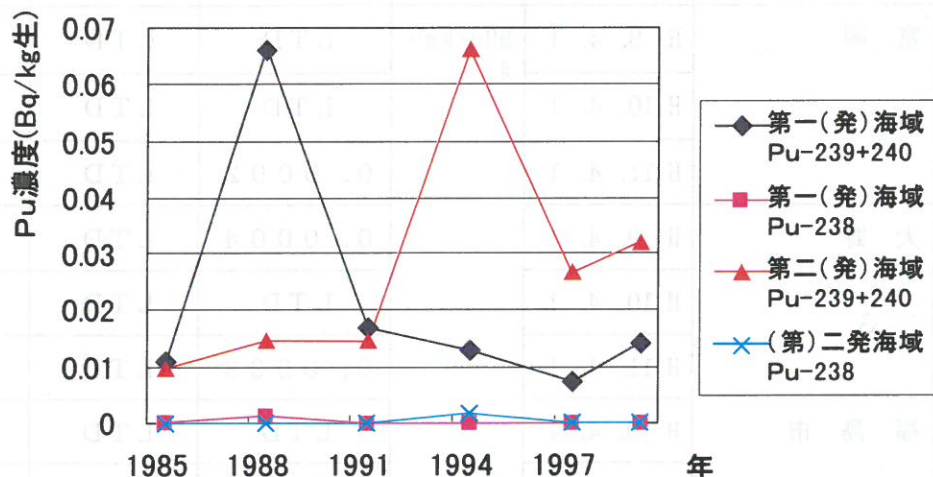
ほんだわらは、原子力センターに保管してあった第一（発）海域及び第二（発）海域の試料のうち昭和60年から3年おきのものを使用し、プルトニウム濃度を測定した。その結果は、表-8及び図-7に示した。

表-8 ほんだわらのプルトニウム濃度の経年変化

地 点 の 名 称	採取年月日	単 位	P u -239+240	P u -238
第一（発）海域	S 60. 7. 23	Bq/kg生	0. 0 1 1	L T D
	S 63. 5. 17		0. 0 6 6	0. 0 0 1 0
	H 3. 7. 5		0. 0 1 7	L T D
	H 6. 7. 7		0. 0 1 3	L T D
	H 9. 7. 9		0. 0 0 7 6	L T D
	H 11. 7. 7		0. 0 0 1 4	L T D
第二（発）海域	S 60. 7. 24	Bq/kg生	0. 0 1 0	L T D
	S 63. 5. 16		0. 0 1 5	L T D
	H 3. 7. 4		0. 0 1 8	L T D
	H 6. 7. 12		0. 0 6 6	0. 0 0 1 7
	H 9. 7. 7		0. 0 2 7	L T D
	H 11. 7. 8		0. 0 3 2	L T D

図－7

ほんだわらのプルトニウム濃度の経年変化



- ① 第一（発）海域、第二（発）海域におけるP u -239+240濃度の最大値はどちらも0.66 Bq/kg生であったが、プルトニウム濃度の経年変化に関連はみられず0.0076～0.66 Bq/kg生の範囲で変動していた。
- ② P u -238は、検出下限値を下回っていることが多いが、P u -239+240濃度が高いときに、検出された。

(3) モニタリング対象試料のプルトニウム調査結果

プルトニウムについては、「福島県原子力発電所周辺環境放射能測定基本計画」に基づき、平成8年度から測定を開始しており、現在までの測定結果について、検討を加えた。

モニタリング対象となっている6試料のプルトニウム濃度（P u -239+240、P u -238）及びγ線放出核種濃度の測定結果を表－9に示した。

ア プルトニウムの検出状況

- ① P u -239+240が検出されたのは、降下物及びプルトニウム堆積性の土試料（陸土、海底沈積物）の試料からであり、米、ほうれん草、あいなめの生物試料からは検出されなかった。
- ② プルトニウムの検出状況及び検出された濃度は、原子力発電所周辺地域と比較対照地域との間に差は見られなかった。
- ③ 降下物は、LTD～0.0004 MBq/km²・月の範囲であった。
- ④ 陸土のプルトニウムは、0.029～0.55 Bq/kg乾の範囲であった。各地点におけるプルトニウム濃度の経年変化を図－8に示したが、ほぼ横這いで推移していた。

表-9 平成8年度からのプルトニウム濃度の経年変化

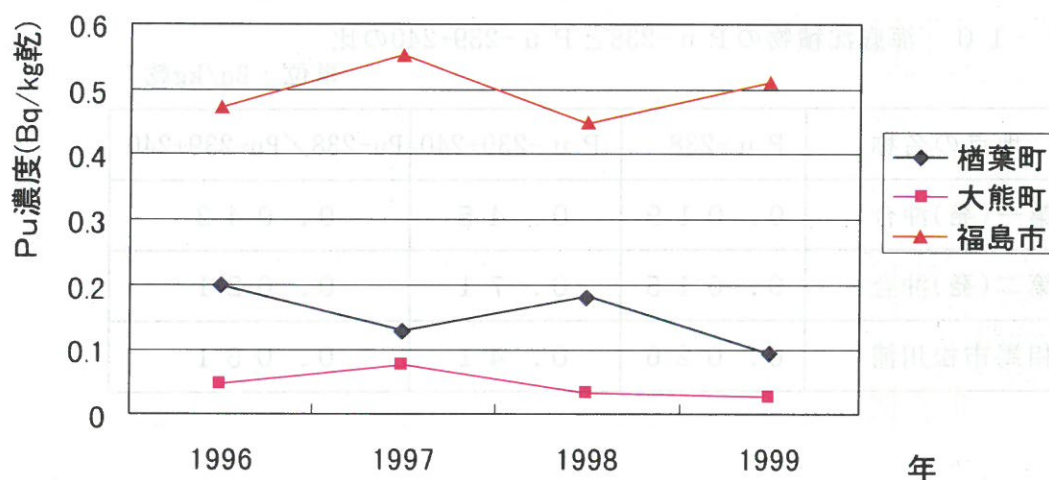
試料名	地点の名称	採取年月日	単位	Pu-239+240	Pu-238	Cs-137
降下物	1 富岡	H 9. 4. 1	MBq/km ² ・月	LTD	LTD	
		H 10. 4. 1		LTD	LTD	
		H 11. 4. 1		0. 0002	LTD	
	2 大野	H 9. 4. 1		0. 0004	LTD	
		H 10. 4. 1		LTD	LTD	
		H 11. 4. 1		0. 0003	LTD	
	3 福島市	H 9. 4. 1		LTD	LTD	
		H 10. 4. 1		LTD	LTD	
		H 11. 4. 1		LTD	LTD	
陸 土	1 楡葉町波倉	H 8. 6. 11	Bq/kg乾	0. 20	LTD	10
		H 9. 6. 16		0. 13	LTD	5. 5
		H 10. 6. 11		0. 18	LTD	5. 9
		H 11. 6. 14		0. 095	LTD	4. 9
	2 大熊町夫沢	H 8. 6. 11		0. 047	LTD	1. 6
		H 9. 6. 10		0. 076	LTD	2. 5
		H 10. 6. 11		0. 034	LTD	1. 9
		H 11. 6. 14		0. 029	LTD	1. 1
	3 福島市	H 8. 6. 14		0. 47	LTD	18
		H 9. 6. 17		0. 55	LTD	27
		H 10. 6. 18		0. 45	LTD	20
		H 11. 6. 23		0. 51	LTD	19
海底沈積物	1 第一(発)沖合	H 8. 6. 6	Bq/kg乾	0. 45	0. 019	0. 51
		H 9. 6. 12		0. 47	LTD	LTD
		H 10. 6. 5		0. 36	LTD	LTD
		H 11. 5. 26		0. 44	LTD	LTD
	2 第二(発)沖合	H 8. 6. 7		0. 71	0. 015	0. 63

試料名	地点の名称	採取年月日	単位	Pu-239+240	Pu-238	Cs-137
海底沈積物	2 第二(発)沖合	H 9. 6. 6	Bq/kg乾	0. 4 5	LTD	LTD
		H 10. 6. 8		0. 4 7	LTD	LTD
		H 11. 5. 31		0. 4 9	LTD	LTD
	3 相馬市松川浦	H 8. 7. 24		0. 4 2	LTD	1. 5
		H 9. 7. 31		0. 3 5	LTD	LTD
		H 10. 7. 29		0. 4 3	LTD	0. 9 9
		H 11. 7. 26		0. 4 1	0. 0 2 1	1. 8
米	1 富岡町本岡	H 8. 11. 7	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
		H 9. 11. 10		LTD	LTD	LTD
		H 10. 11. 9		LTD	LTD	LTD
		H 11. 11. 8		LTD	LTD	LTD
	2 双葉町郡山	H 8. 11. 7		LTD	LTD	0. 0 3
		H 9. 11. 11		LTD	LTD	LTD
		H 10. 11. 10		LTD	LTD	LTD
		H 11. 11. 11		LTD	LTD	LTD
	3 福島市	H 8. 11. 12		LTD	LTD	LTD
		H 9. 11. 17		LTD	LTD	LTD
		H 10. 11. 30		LTD	LTD	LTD
		H 11. 11. 26		LTD	LTD	LTD
ほうれん草	1 富岡町小良ヶ浜	H 8. 11. 11	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
		H 9. 11. 27		LTD	LTD	LTD
		H 10. 11. 24		LTD	LTD	LTD
		H 11. 11. 24		LTD	LTD	LTD
	2 双葉町郡山	H 8. 10. 15		LTD	LTD	LTD
		H 9. 11. 27		LTD	LTD	LTD
		H 10. 11. 25		LTD	LTD	LTD
		H 11. 11. 29		LTD	LTD	LTD

試料名	地点の名称			採取年月日	単位	Pu-239+240	Pu-238	Cs-137
ほうれん草	3	福島市		H 8. 9. 19	Bq/kg生	LTD	LTD	LTD
				H 9. 11. 11		LTD	LTD	LTD
				H 10. 11. 9		LTD	LTD	LTD
				H 11. 11. 16		LTD	LTD	LTD
あいなめ	1	請戸漁港		H 8. 5. 16	Bq/kg生	LTD	LTD	0. 16
				H 9. 5. 13		LTD	LTD	0. 20
				H 10. 5. 13		LTD	LTD	0. 18
				H 11. 5. 21		LTD	LTD	0. 16
	2	久之浜漁港		H 8. 5. 8	Bq/kg生	LTD	LTD	0. 16
				H 9. 5. 15		LTD	LTD	0. 15
				H 10. 5. 18		LTD	LTD	0. 17
				H 11. 5. 20		LTD	LTD	0. 13
	3	相馬漁港		H 8. 5. 10		LTD	LTD	0. 13
				H 9. 5. 1		LTD	LTD	0. 22
				H 10. 5. 11		LTD	LTD	0. 16
				H 11. 5. 7		LTD	LTD	0. 19

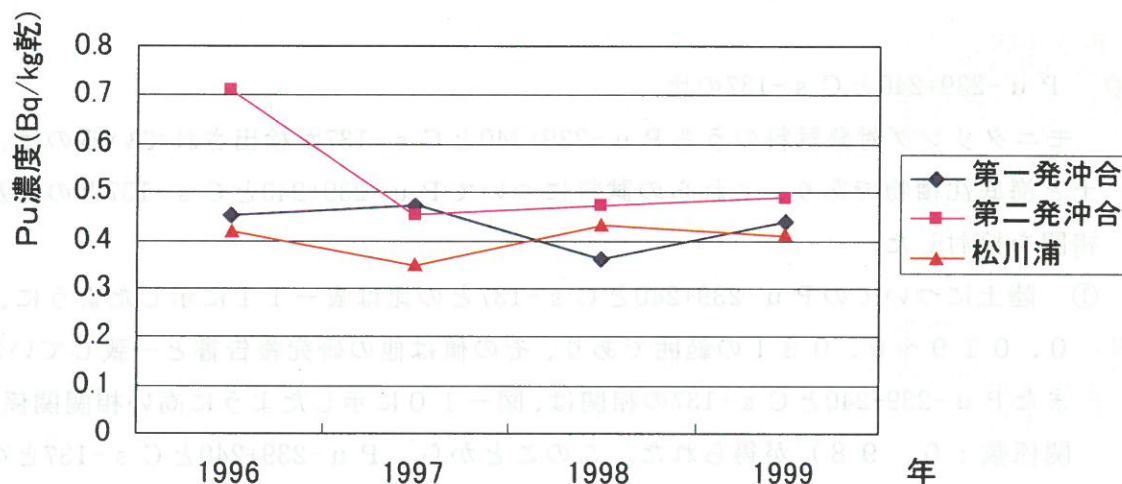
図－8

陸土のPu-239+240濃度の経年変化



図－9

海底沈積物のPu-239+240濃度の経年変化



⑤ 海底沈積物のPu-239+240濃度は、0.35～0.71 Bq/kg乾の範囲であった。

各地点におけるPu-239+240濃度の経年変化を図－9に示したが、陸土と同様に横這いで推移していた。

⑥ Pu-238が検出されたのは、海底沈積物のみであり、他の試料からは検出されなかった。

⑦ 海底沈積物のうちPu-238が検出された試料についてPu-238とPu-239+240の同位体比を検討したところ、表－10に示したように0.021～0.51

であった。P u -238とP u -239+240の比を用いて環境中のプルトニウムの起源を推定することは、P u -238濃度が検出下限値以下となることが多いため困難となっており、別の核種との比について検討する必要がある。

表－１０ 海底沈積物のP u -238とP u -239+240の比

単位：Bq/kg乾

地点の名称	P u -238	P u -239+240	Pu-238/Pu-239+240
第一(発)沖合	0.019	0.45	0.042
第二(発)沖合	0.015	0.71	0.021
相馬市松川浦	0.026	0.41	0.051

イ γ線放出核種の検出状況

人工のγ線放出核種として、陸土、海底沈積物、米、あいなめからC s -137が検出されが、全て過去の測定値の範囲内であった。

その他のγ線放出核種については、検出されなかった。

ウ P u -239+240とC s -137の比

モニタリング対象試料のうちP u -239+240とC s -137が検出されているのは、陸土と海底沈積物であり、これらの試料についてP u -239+240とC s -137との比及び相関を検討した。

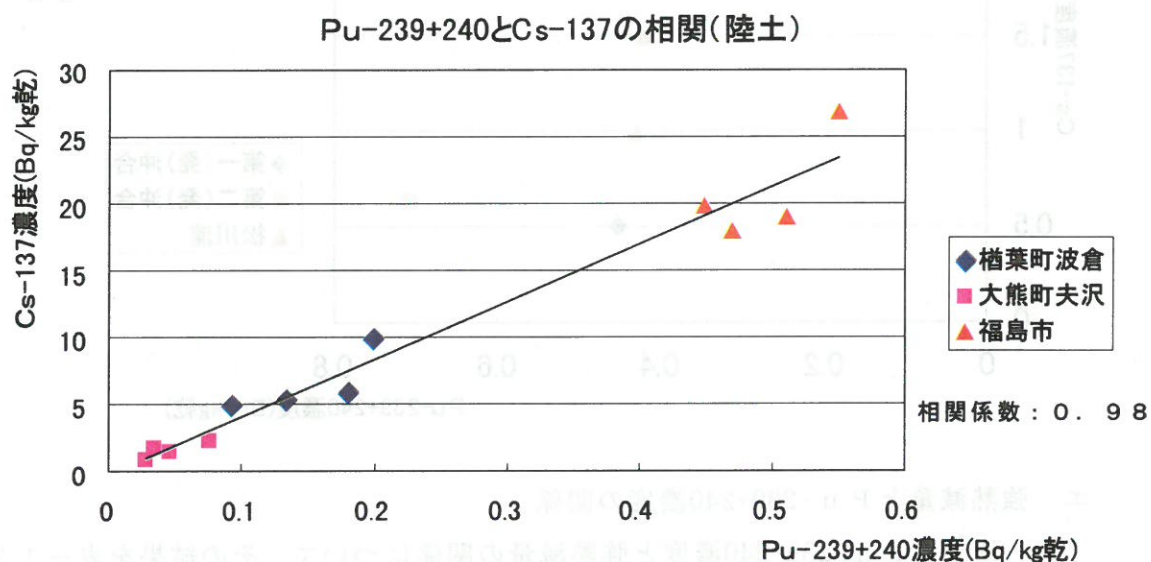
- ① 陸土についてのP u -239+240とC s -137との比は表－１１に示したように、0.019～0.031の範囲であり、その値は他の研究報告書と一致していた。またP u -239+240とC s -137の相関は、図－１０に示したように高い相関関係(相関係数：0.98)が得られた。このことから、P u -239+240とC s -137との比はプルトニウムの起源を探る上で有力な情報となることが示唆された。

表－１１ 陸土のP u -239+240とC s -137の比

地点の名称	採取年月日	P u -239+240 (Bq/kg 乾)	C s -137 (Bq/kg 乾)	Pu-239+240/Cs-137
檜葉町波倉	H 8. 6.11	0.20	1.0	0.020
	H 9. 6.16	0.13	5.5	0.024
	H 10. 6.11	0.18	5.9	0.031
	H 11. 6.14	0.095	4.9	0.019

地点の名称	採取年月日	Pu-239+240 (Bq/kg 乾)	Cs-137 (Bq/kg 乾)	Pu-239+240/Cs-137
大熊町 夫沢	H 8. 6.11	0.047	1.6	0.029
	H 9. 6.10	0.076	2.5	0.030
	H 10. 6.11	0.034	1.9	0.018
	H 11. 6.14	0.029	1.1	0.026
福島市	H 8. 6.14	0.47	18	0.026
	H 9. 6.17	0.55	27	0.020
	H 10. 6.18	0.45	20	0.023
	H 11. 6.23	0.51	19	0.027

図-10

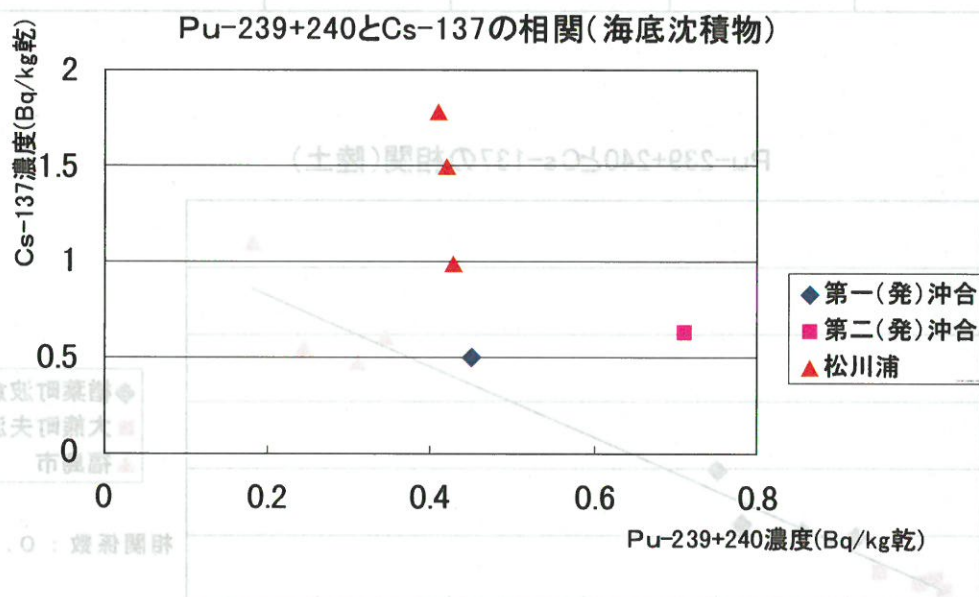


- ② 海底沈積物についてのPu-239+240とCs-137との比は表-12に示したように0.23～1.13の範囲で、陸土に比べてばらつきが大きい。また図-11に示したように、相関は見られなかった。海底沈積物の場合、Pu-239+240は検出されるもののCs-137が検出されず、Pu-239+240/Cs-137比を算出することができないこともある。またその比は、ばらつきが多く陸土のように利用できないことがわかった。

表－１２ 海底沈積物の P u -239+240と C s -137の比

地点の名称	採取年月日	P u -239+240 (Bq/kg 乾)	C s -137 (Bq/kg 乾)	Pu-239+240/Cs-137
第一（発）沖合	H 8. 6. 6	0. 4 5	0. 5 1	0. 8 8
第二（発）沖合	H 8. 6. 7	0. 7 1	0. 6 3	1. 1 3
相馬市松川浦	H 8. 7.24	0. 4 2	1. 5	0. 2 8
	H 10. 7.29	0. 4 3	0. 9 9	0. 4 3
	H 11. 7.26	0. 4 1	1. 8	0. 2 3

図－１１



エ 強熱減量と P u -239+240濃度の関係

- ① 陸土の P u -239+240濃度と強熱減量の関係について、その結果を表－１３に、
相関図を図－１２に示した。

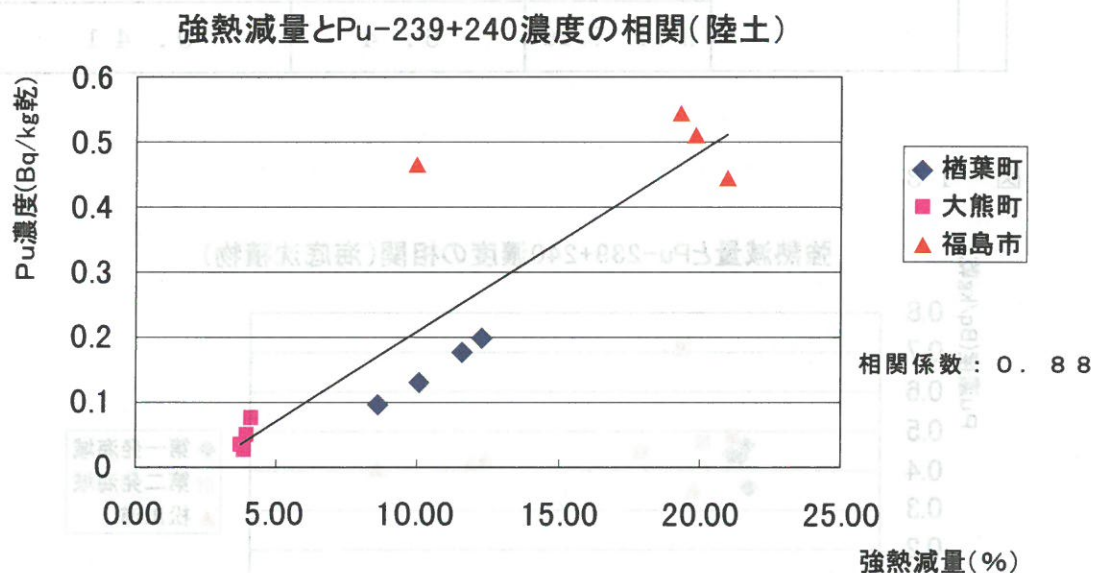
陸土の場合は、強熱減量（有機物含量）が多いと P u -239+240濃度が増加する傾向が見られた。

表－１３ 陸土の強熱減量と P u -239+240濃度

地点の名称	採取年月日	強熱減量(%)	P u -239+240(Bq/kg乾)
1 楢葉町波倉	H 8. 6.11	1 2. 2	0. 2 0
	H 9. 6.16	1 0. 0	0. 1 3

地点の名称		採取年月日	強熱減量(%)	Pu-239+240(Bq/kg乾)
1	栢葉町波倉	H 10. 6.11	11. 5	0. 18
		H 11. 6.14	8. 6	0. 095
2	大熊町夫沢	H 8. 6.11	4. 0	0. 047
		H 9. 6.10	4. 1	0. 076
		H 10. 6.11	3. 7	0. 034
		H 11. 6.14	3. 9	0. 029
3	福島市	H 8. 6.14	9. 9	0. 47
		H 9. 6.17	19. 1	0. 55
		H 10. 6.18	20. 8	0. 45
		H 11. 6.23	19. 8	0. 51

図-12



- ② 海底沈積物のPu-239+240濃度と強熱減量の関係について、その結果を表-14に、相関図を図-13に示した。

海底沈積物の強熱減量は、陸土に比べて少なかった。また海底沈積物の場合、強熱減量の多少とPu-239+240濃度に相関は見られず、強熱減量に関わらずPu-239+240濃度は0.4Bq/kg乾前後の値となっていた。

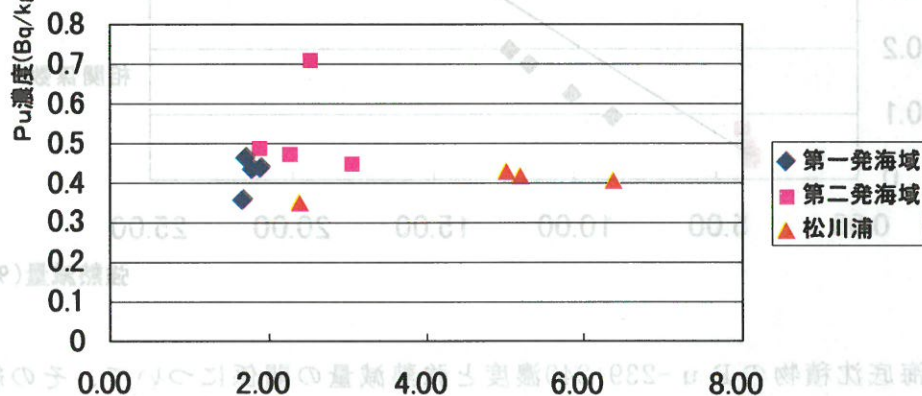
表-14 海底沈積物の強熱減量とPu-239+240濃度

地点の名称		採取年月日	強熱減量(%)	Pu-239+240(Bq/kg乾)
1	第一(発)沖合	H 8. 6. 6	1. 9	0. 4 5
		H 9. 6.12	1. 8	0. 4 7
		H 10. 6. 5	1. 7	0. 3 6
		H 11. 5.26	1. 8	0. 4 4
2	第二(発)沖合	H 8. 6. 7	2. 5	0. 7 1
		H 9. 6. 6	3. 1	0. 4 5
		H 10. 6. 8	2. 3	0. 4 7
		H 11. 5.31	1. 9	0. 4 9
3	相馬市松川浦	H 8. 7.24	5. 2	0. 4 2
		H 9. 7.31	2. 4	0. 3 5
		H 10. 7.29	5. 0	0. 4 3
		H 11. 7.26	6. 4	0. 4 1

図-13

第一(発)沖合
第二(発)沖合
相馬市松川浦

強熱減量とPu-239+240濃度の相関(海底沈積物)



オ 強熱減量と $Pu-239+240/Cs-137$ 比の関係

$Pu-239+240/Cs-137$ 比は、有機物含量が高いと少し高い値を示すとの報告があるため、強熱減量と $Pu-239+240/Cs-137$ 比との関係について検討した。

- ① 陸土の強熱減量と $Pu-239+240/Cs-137$ 比との相関図を図－14に示した。
陸土の場合は、強熱減量に関わらず $Pu-239+240/Cs-137$ 比は 0.2～0.3 の範囲に分布している。
- ② 湖底及びダム底沈積物については、図－15に示したように強熱減量が高いほど $Pu-239+240/Cs-137$ 比が高くなる傾向がみられた。
- ③ 海底沈積物については、図－16に示したように、強熱減量との相関は見られなかった。

図－14

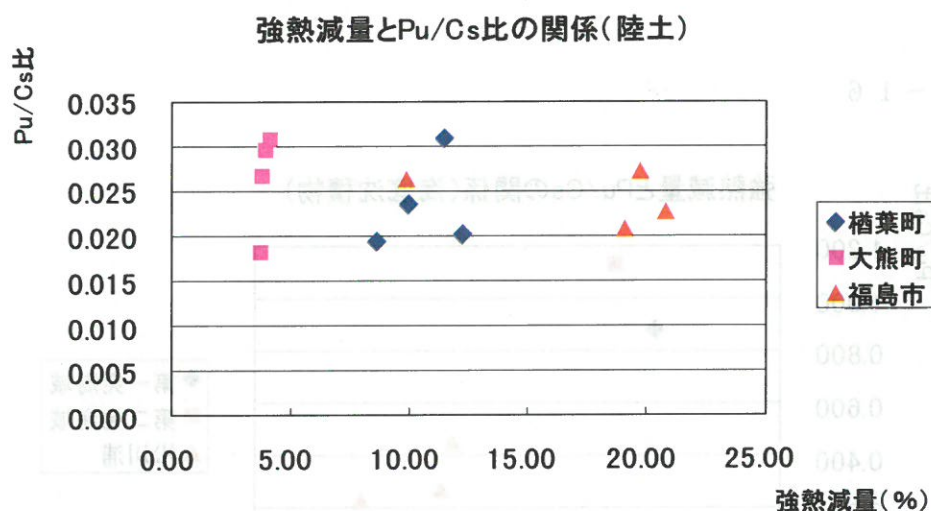


図 - 1 5

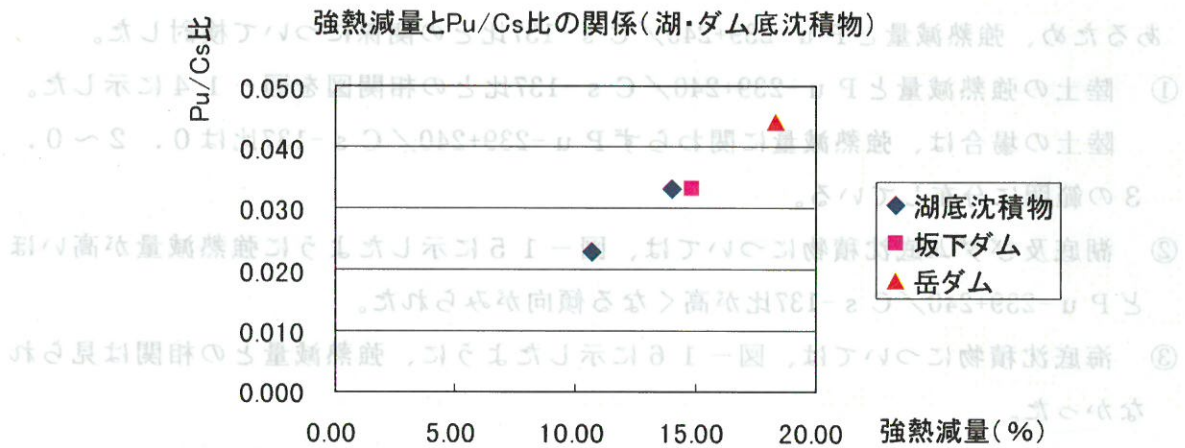
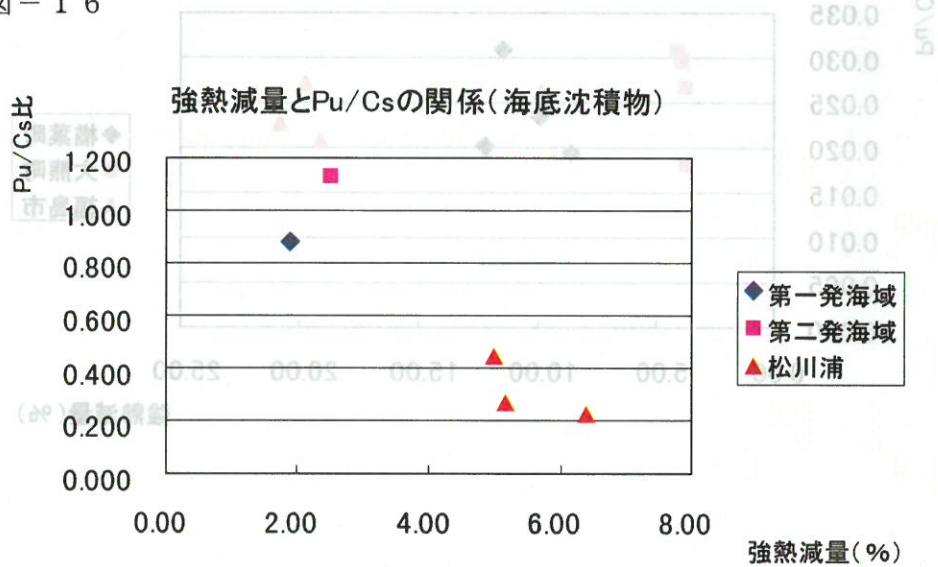


図 - 1 6



5 まとめ

(1) 多品目の環境試料中のプルトニウム及びγ線放出核種濃度

ア Pu-239+240の検出状況

- ① Pu-239+240は、降下物、土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物）、海水、藻類（わかめ、ほんだわら）及び貝類（つぶ貝、ほっき貝）から検出され、上水、農産物（米、ほうれん草、大根、ばれいしょ）、畜産物（牛乳、豚肉、鶏卵）、魚類（あいなめ、さけ）からは検出されなかった。

- ② 今回測定した環境試料の中で湖底沈積物のP u -239+240濃度が最も高かった。
- ③ 検出されたP u -239+240の濃度は、他の機関が実施した測定値の範囲内であった。
- ④ プルトニウムの検出状況及び検出された濃度は、原子力発電所周辺地域と比較対照地域との間に差は見られなかった。
- ⑤ ほんだわらが生物試料の中でP u -239+240濃度が最も高く、他の試料より1桁高かった。

イ P u -238の検出状況

P u -238は、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物から検出されたが検出数は少なかった。それ以外の環境試料からは検出されなかった。

ウ P u -238とP u -239+240の比

P u -238とP u -239+240の同位体比を求めることによりP u -239+240の起源を推測できる可能性が示唆されるが、P u -238は検出下限値を下回ることが多くなっている。

エ γ線放出核種の検出状況

- ① 人工のγ線放出核種は、土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物）、海水、豚肉、魚類（あいなめ、さけ）からC s -137が検出された。
- ② 上水、農産物（米、ほうれん草、大根、ばれいしょ）、牛乳、鶏卵、貝類（つぶ貝、ほっき貝）及び藻類（わかめ、ほんだわら）から人工のγ線放出核種は検出されなかった。
- ③ C s -137の検出状況及び検出された濃度は、原子力発電所周辺地域と比較対照地域との間に差は見られなかった。
- ④ 今回測定した環境試料の中で湖底沈積物のC s -137濃度がP u -239+240濃度と同様に最も高かった。
- ⑤ P u、C s のどちらも検出されたものは、海水とフォールアウト堆積性の土試料（陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物、海底沈積物）であった。
- ⑥ 貝類、藻類は、プルトニウムが検出されたがセシウムは検出されず、豚肉、あいなめ、さけについては、セシウムが検出されたがプルトニウムは検出されなかった。これは核種の生物学的性質が異なること、試料の種類により濃縮係数や移行係数が異なるためと考えられる。
- ⑦ プルトニウムが検出下限値を下回ることが多い現在、プルトニウムの蓄積状況を把握するために濃縮係数が高い藻類や貝類をモニタリングすることは有用と考

オ Pu-239+240とCs-137の比

エ Pu-239+240とCs-137との間に相関が見られ、その比を用いることが環境中のプルトニウムの起源を推定する上で有力な方法であることが示唆された。Pu-239+240とCs-137のどちらも広く検出されるのは、陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物であるが、陸土に比較して、湖底沈積物及びダム底沈積物のPu-239+240/Cs-137比が若干高い値を示した。

カ Pu-239+240と強熱減量の関係

Pu-239+240と強熱減量（有機物含量）には、陸土に相関が見られたが、海底沈積物、湖底沈積物、ダム底沈積物の底質に相関は見られなかった。

(2) ほんだわらのプルトニウム濃度の経年変化

ア Pu-239+240濃度の経年変化を濃縮係数の高いほんだわらを用いて昭和60年から3年おきの試料を用いて調査した。

① 第一（発）海域、第二（発）海域におけるほんだわらのPu-239+240濃度は、0.0076～0.66Bq/kg生の範囲で変動していた。

② Pu-238は、検出下限値を下回ることが多いが、Pu-239+240濃度が高いときに、検出された。

(3) モニタリング対象試料のプルトニウム調査

平成8年度から現在までの測定結果に基づいて、検討を加えた。

ア プルトニウムの検出状況

① Pu-239+240が検出されたのは、降下物、土試料（陸土、海底沈積物）のプルトニウム堆積性の試料からであり、米、ほうれん草、あいなめの生物試料からは検出されなかった。

② Pu-238が検出されたのは、海底沈積物のみであった。

③ Pu-238とPu-239+240の同位体比は、0.021～0.51であった。

イ γ 線放出核種の検出状況

人工の γ 線放出核種は、陸土、海底沈積物、米、あいなめからCs-137が検出され、その濃度は過去の測定値の範囲内であった。

ウ Pu-239+240とCs-137の比

陸土と海底沈積物についてPu-239+240とCs-137の比及び相関を検討した。

- ① 陸土のPu-239+240とCs-137の比は0.018～0.031の範囲であり、それらの間に高い相関関係（相関係数：0.98）が得られ、プルトニウムの起源を探る上で有力な情報となることが示唆された。
- ② 海底沈積物の場合は、Pu-239+240が検出されてもCs-137が検出されないこともあり、それらの比を算出できない場合もある。またPu-239+240/Cs-137比はばらつきが大きく相関も見られないことから、利用できないことがわかった。

エ Pu-239+240と強熱減量の関係

陸土では強熱減量（有機物含量）が多いと、Pu-239+240濃度が増加する傾向が見られたが、海底沈積物の場合は、強熱減量に関わらずPu-239+240濃度は0.4 Bq/kg乾前後の値となっていた。

オ 強熱減量とPu-239+240/Cs-137の関係

- ① 陸土の場合は、強熱減量に関わらずPu-239+240/Cs-137比は概ね0.2～0.3の範囲に分布していた。
- ② 湖底及びダム底沈積物については、強熱減量が高いほどPu-239+240/Cs-137比が高くなる傾向がみられた。
- ③ 海底沈積物の場合はCs-137が検出されないこともあり、Pu-239+240/Cs-137比は、ばらつきが多かった。

(4) 今後のプルトニウム調査

今回調査した多品目の環境試料のうち、プルトニウムが検出されたのは、土試料、貝類、藻類及び降下物であり、他の試料からは検出されなかった。プルトニウムの起源を推定する上で、Pu-238/Pu-239+240同位体比やPu-239+240/Cs-137比が用いられるが、Pu-238が検出されにくくなってきており、Pu-239+240とCs-137との比を用いることが有効である。Pu-239+240とCs-137のどちらも一般的に検出されるのは、陸土、湖底沈積物、ダム底沈積物であり、特に陸土については、Pu-239+240とCs-137との間に強い相関がみられた。また湖底沈積物についてはプルトニウムの蓄積が高いことから、プルトニウムの分布・蓄積状況の把握や核実験等による寄与を把握する上で陸土及び湖底土（ダム底土）について、今後さらに調査・検討を加えていく必要がある。

[参考文献]

- 1) 科学技術庁：科学技術庁放射能測定法シリーズ16「環境試料採取法」(昭和58年)
- 2) 科学技術庁：科学技術庁放射能測定法シリーズ12「プルトニウム分析法」(平成2年改訂)
- 3) 科学技術庁：科学技術庁放射能測定法シリーズ13「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」(昭和57年)
- 4) 科学技術庁：科学技術庁放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(平成4年3訂)
- 5) 財団法人原子力環境整備センター：環境パラメータシリーズ6 海洋生物への放射性物質の移行，(1996)
- 6) 財団法人原子力環境整備センター：環境パラメータシリーズ5 飼料から畜産物への放射性核種の移行係数，(1995)
- 7) 財団法人日本分析センター：環境放射能分析研修「 α 放射体分析法」，(1996)
- 8) 財団法人日本分析センター：環境放射能分析研修事業「プルトニウム・アメリシウム逐次分析法解説」，(1995)
- 9) 放射線医学総合研究所：放医研環境セミナーシリーズNo.23 長半減期核種の環境動態と線量評価，(1996)
- 10) 日本保健物理学会：第34回研究発表会講演要旨集，(1999)
- 11) 茨城県公害技術センター，茨城県における放射能調査(36報)，(1993)
- 12) 京都大学原子炉実験所：「環境中微量物質動態」専門研究会報告書，(1997)
- 13) M.アイゼンバット著，阪上正信監訳，環境放射能第2版，(1979)，産業図書(株)
- 14) 環境庁水質保全局水質規制課編：改訂版 底質調査方法とその解説，社団法人日本環境分析協会，(1996)
- 15) 福島県原子力発電所安全確保技術連絡会，平成10年度原子力発電所周辺環境放射能測定結果報告書，(1999)

[語句説明]

フォールアウト

放射性降下物のことである。大気圏における核爆発や、原子炉の事故による放射性物質の大気中への放出などが原因になり、核分裂生成物を含む放射性の粒子状物質が大気中（または成層圏中）に飛散し、これが生活環境に降下したもの。

今日、環境中に存在する人工放射性核種の大半は、1950年代から60年代前半にかけて行われた大気圏内核実験によるもので、これらのフォールアウトによる環境および人体への影響を調べるため、わが国では、都道府県を中心に「環境放射能水準調査」が実施されている。

核種

原子または原子核の種類を示すのに用いる用語。普通特定の原子番号 Z 、質量数 A 、中性子数 N ($N = A - Z$) の安定あるいは準安定なエネルギー状態にあるものが一つの核種である。したがって、極端に寿命の短い励起状態あるものは、独立した核種とはいわない。同じ原子番号 Z をもち（すなわち同数の陽子をもち）、異った個数の中性子をもつ二種以上の原子核がある場合、これらを同位元素と呼んでいるが、同位元素の概念が確立されるに従って、それらの一群のもののうちの一つを示す概念としてこの用語ができた。一つの核種でもさまざまな量子力学的状態をとる。現在約1900種の核種が知られており、うち280種が天然の安定核種である。

プルトニウム

原子番号94で、超ウラン元素の一つである。天然には極微量しか存在しない。 $Pu-239$ は $U-238$ の中性子捕獲によって生ずる $U-239$ が、2段の β 崩壊をして生じる。その半減期は 2.4×10^4 年である。これがさらに中性子を捕獲すると順次 $Pu-240$ 、 241 及び 242 などの同位体が生ずる。プルトニウムには15種類の同位体が存在するが、通常問題となるのは質量数236, 238, 239, 240, 241, 242の6種類である。そのほとんどが α 放射体であるが、 $Pu-241$ のみが β 放射体である。現在、超ウラン元素が環境に見いだされている。その大部分は1945年以来行われてきた大気圏内核実験からのフォールアウトによる地球規模的汚染による。環境中に存在する超ウラン元素の大部分はプルトニウム同位体である。 $Pu-241$ の物理的半減期が他のプルトニウム同位体と比較して短いことを考慮すると、プルトニウム同位体の中でも $Pu-239$ 、 $Pu-240$ が最も多い。

プルトニウム分析

環境試料中の α 放射体のプルトニウム濃度を測定する場合、現在のレベルが非常に低い

ので放射化学的にプルトニウムを分離・精製し、シリコン検出器による α 線スペクトロメトリでP u -238とP u -239+240を定量している。その場合、P u -239とP u -240は α 線エネルギーが接近しており弁別不可能なので両者の和P u -239+240として定量される。

プルトニウム同位体の半減期

核 種	半減期 (年)
P u -236	2 . 8 5
P u -238	8 7 . 8
P u -239	2 4 , 1 0 0
P u -240	6 , 5 6 0
P u -241	1 4 . 4
P u -242	3 7 6 , 0 0 0

C s -1 3 7

セシウム137は原子番号55のアルカリ金属元素であるセシウムの同位体のひとつで人工放射性核種である。半減期は、30.2年で β 崩壊してB a -137mとなり、 γ 線(0.662MeV)を放射して安定なB a -137になる。原子力発電所等の液体廃棄物にも含まれているので、周辺環境の被曝評価の対象としても重要な核種である。一方核爆発実験によって生じるフォールアウト中でも重要核種である。体内に蓄積された場合は、代謝による排泄などで70～80日で半減する。

MOX燃料

混合酸化物燃料 (Mixed-Oxide) の略である。プルトニウムを有効に使うため、再処理で回収された酸化プルトニウムと天然ウランまたは同じく再処理で回収された減損酸化ウランと混ぜて作った燃料で、ウラン・プルトニウム混合燃料ともいう。日本では、動燃事業団で開発され、新型転換炉原子炉『ふげん』、高速増殖炉実験炉『常陽』に供給され、将来の新型転換炉、高速増殖炉用燃料として、実証試験に供されていた。天然ウランの有効利用のためには、原子炉の運転にともない副生し、再処理により回収されたプルトニウムを高速増殖炉で使うほうが望ましいが、その実用化が2030年以降になる見通しであるため、その間プルトニウムの有効利用を図るため、軽水炉でMOX燃料を使う計画が進められている。これを、プルサーマル計画という。

