

平成13年度

環境試料中のプルトニウム調査(Ⅲ)報告書

平成14年3月

福島県原子力センター

## はじめに

福島県内に原子力発電所が設置され31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、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、衛生公害研究所（現：衛生研究所）に環境放射能分析棟が整備されました。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、 $\alpha$ 線や $\beta$ 線を放出する放射性物質の分析を行うとともに、環境放射能及びその評価に係わる調査研究を行ってきました。平成13年4月には、県の組織改編が行われ、環境放射能分析棟は原子力センター福島支所として衛生研究所から独立し、より一層の業務の充実を図っているところです。

近年、県民の間には、東京電力㈱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ます。そこで、平成11年度から3カ年計画で環境試料中のプルトニウム濃度の調査を開始し、県内におけるプルトニウムのバックグラウンドレベル等についての知見を得ることとしました。調査最終年度である今年度は、湖底やダム底の沈積物及びその周辺の陸土を対象として、環境中におけるプルトニウムの動態について調査を行い、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や動態の理解に役立つことを願うところです。

調査に当たり、試料採取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、並びに試料採取にご協力いただいた各機関に深く感謝申し上げる次第です。

平成14年 3月

福島県原子力センター所長

石 井 輝 雄





## 目 次

	(頁)
1 調査目的 .....	1
2 調査方法 .....	1
(1) 調査対象 .....	1
(2) 調査地点 .....	2
(3) 試料採取期間 .....	4
(4) 試料採取方法 .....	4
3 分析方法 .....	4
(1) 試料調製 .....	4
(2) プルトニウム .....	5
(3) $\gamma$ 線放出核種 .....	5
(4) 水分、強熱減量 .....	5
(5) 結合形態別プルトニウム .....	5
(6) 結合形態別セシウム-137 .....	7
4 調査結果 .....	7
(1) プルトニウムの検出状況 .....	7
(2) $\gamma$ 線放出核種の検出状況 .....	11
(3) 各分析項目間の相関 .....	14
① Pu-238とPu-239+240	
② Pu-239+240及びCs-137と有機物	
③ Pu-239+240とCs-137	
(4) 結合形態別プルトニウム .....	18
(5) 結合形態別セシウム-137 .....	23
(6) 結合形態別プルトニウム・セシウム-137と強熱減量 .....	25
5 まとめ .....	27
[参考文献] .....	30
[資料-1] .....	31
[資料-2] .....	33





## 1 調査目的

プルトニウムは、長半減期の $\alpha$ 線放射体であり、大気圏内核実験等の影響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、平成8年度から7種類、平成12年度から8種類の環境試料についてモニタリング調査を実施している。

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の実施が予定されている。

これらのことから、平成11年度から3カ年計画で、環境中のプルトニウム濃度のバックグラウンドレベルを把握するとともに、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の資料を得ることを目的に調査を開始した。平成11年度は、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た結果、土試料、貝類、藻類、降下物からプルトニウムが検出され、なかでも土試料に広く蓄積されていることが分かった<sup>1)</sup>。これをうけて平成12年度は、県内各地から採取した湖沼底沈積物（以下「湖底沈積物」という）とダム貯水池底沈積物（以下「ダム底沈積物」という）及び陸土についてプルトニウム濃度の調査を行った。その結果、ダム底沈積物と陸土については、試料中のプルトニウム濃度と強熱減量が相関を示したことからプルトニウムの蓄積過程における有機物の寄与がうかがわれた<sup>2)</sup>。一方、湖底沈積物では、試料中のプルトニウム濃度と強熱減量は相関を示さず、プルトニウムの蓄積過程における有機物の寄与については明らかにならなかった。これらのことから、平成13年度は少数の湖沼・ダムを選定し、その沈積物及び周辺の陸土中に蓄積されたプルトニウムと有機物の関係について詳しく調査することによって、プルトニウムの蓄積機構を推定することを目的とした。

## 2 調査方法

### (1) 調査対象

調査対象は、平成12年度に行った調査の結果、沈積物中のプルトニウム濃度が比較的高かった湖沼及びダムの中から選定するものとした。湖沼は、沈積物中の有機物量が多い湖沼として尾瀬沼、有機物量が少ない湖沼として沼沢沼を選定した。ダム貯水池は、その形状により貯水池内におけるプルトニウムの沈積の状況を把握しやすいと思われたことから、四時ダムを選定した。（図-1）なお、選定した湖沼及びダムの諸元は表-1に示した<sup>3) 4) 5)</sup>。

表-1 調査した湖沼及びダムの緒元

名称	所在地	種類	面積 (km <sup>2</sup> )	貯水量 (千m <sup>3</sup> )	最大水深 (m)	平均水深 (m)	流域面積 (km <sup>2</sup> )	標高 (m)	水質 (H12年度平均) (mg/l)		
									COD	全窒素	全りん
尾瀬沼	南会津郡 桧枝岐村	火山性 堰止湖	1.84	6,600	9.5	4.1	18.4	1,665	3.8	0.20	0.011
沼沢沼	大沼郡 金山町	カルデ ラ湖	3.10	193,800	95.0	62.4	8.9	474	1.7	0.21	0.004

名称	所在地	型式	湛水 開始年	堤頂標高 (m)	堤長 (m)	堤頂幅員 (m)
四 時 ダ ム	いわき市川部町	ロックフィルダム	1984	125.5	300	10
	堤体積 (m <sup>3</sup> )	流域面積 (km <sup>2</sup> )	満水面積 (m <sup>2</sup> )	満水位標高 (m)	最大水深 (m)	総貯水量 (千m <sup>3</sup> )
	2,512	95.6	0.48	119.5	66.5	12,100

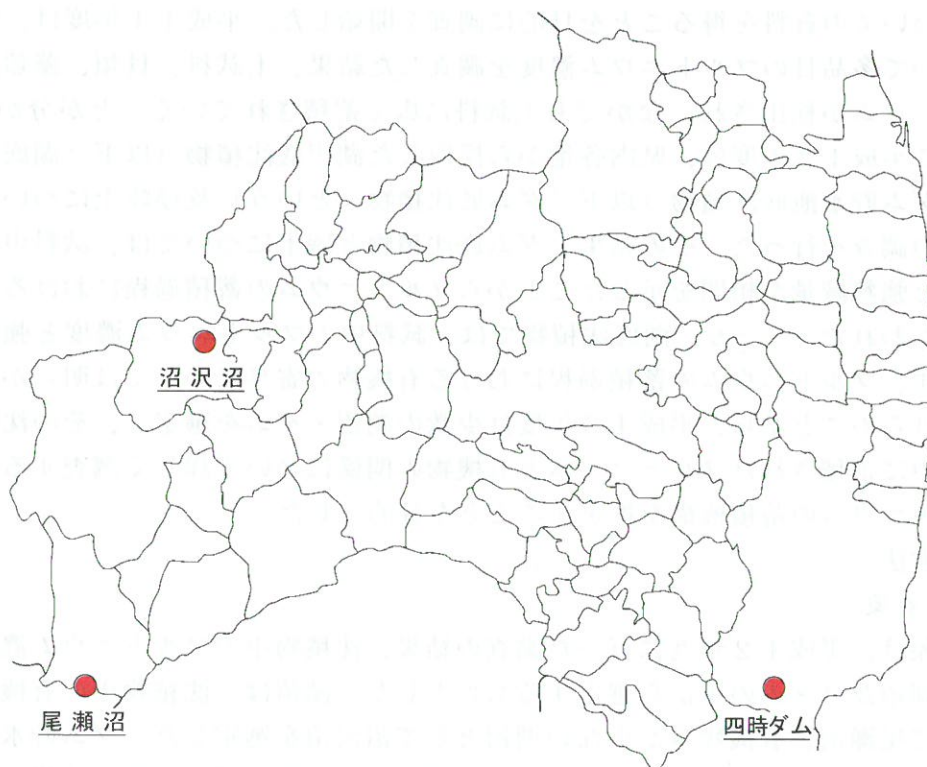


図-1 調査対象

(2) 調査地点

尾瀬沼における調査地点を図-2に示す。沈積物の採取地点については、地点1を湖心部、地点2を尾瀬沼に流入する河川のうち最大の流量を持つ大江川の河口付近、地点3を東京電力の発電用取水口付近、地点4を流入河川である沼尻川の河口付近に設定した。陸土の採取地点については、地点5を大江川が流下する大江湿原の上流部、地点6を下流部に設定した。

沼沢沼における調査地点を図-3に示す。沈積物の採取地点については、地点1を湖心部、地点2を湖に流入河川である前ノ沢川の河口付近、地点3を東北電力の発電用の取水口付近、地点4を湖の北西部に設定した。陸土の採取地点については、地点5を地点2の岸部、地点6を地点4の岸部に設定した。



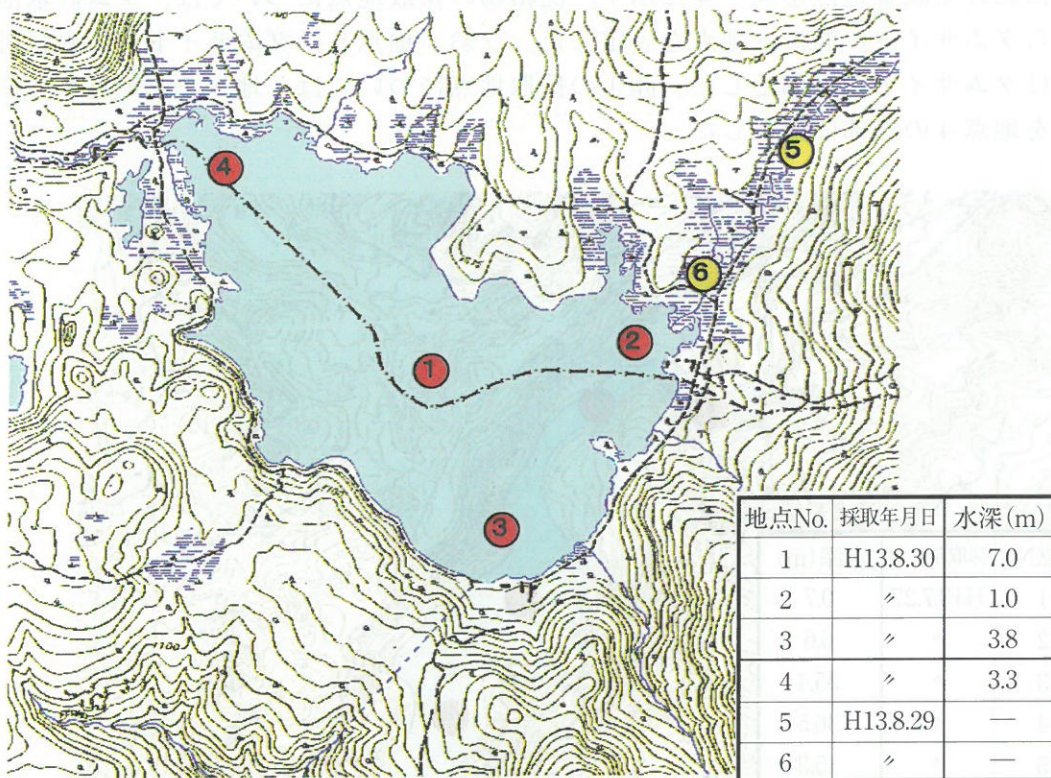


図-2 尾瀬沼の調査地点

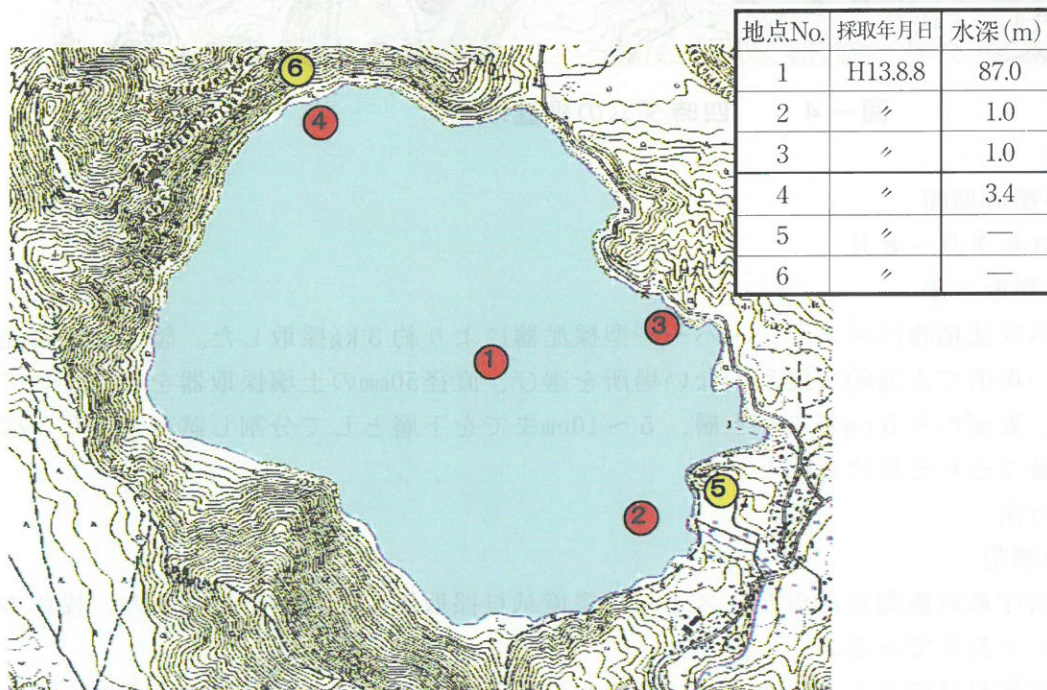


図-3 沼沢沼の調査地点



四時ダムにおける調査地点を図-4に示す。沈積物の採取地点については、ダム貯水池の上流部からダムサイトの間には6地点を設定した。なお、地点5はダムサイトの放水口付近、地点6はダムサイトの奥部とした。陸地の採取地点については、地点7を地点1の岸部、地点8を地点4の岸部に設定した。

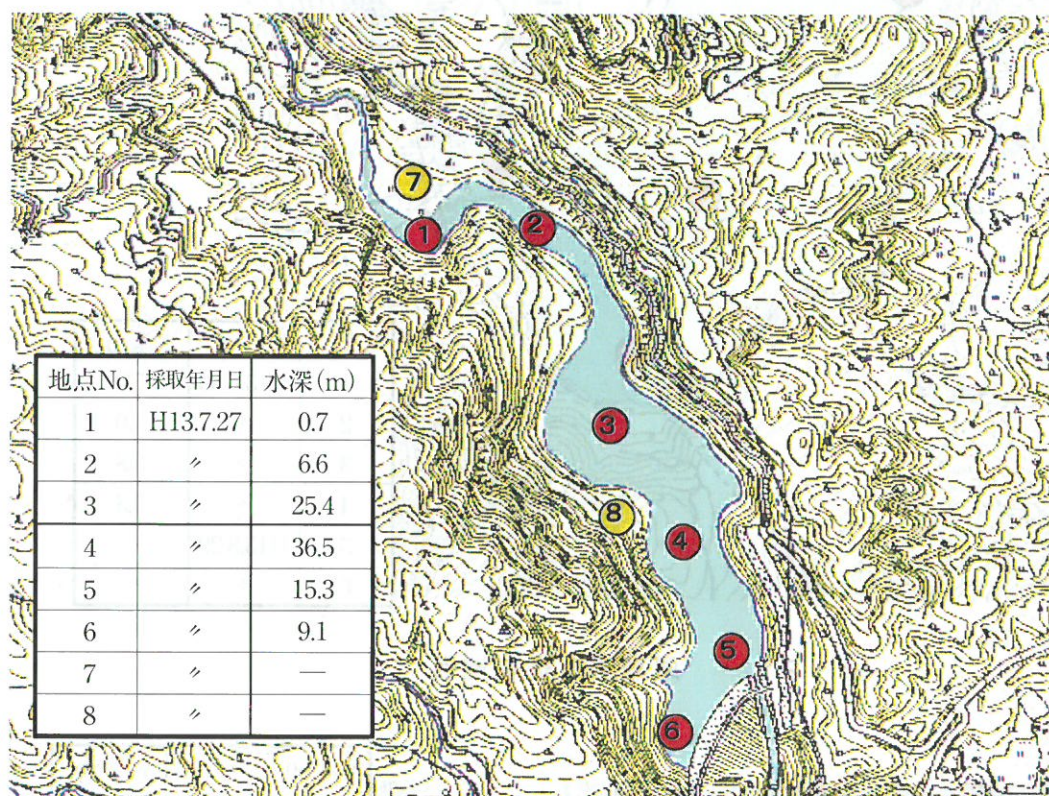


図-4 四時ダムの調査地点

### (3) 試料採取期間

平成13年7月～8月

### (4) 試料採取方法

湖・ダム底沈積物はエクマン・バージ型採泥器により約3kg採取した。陸地は、水面下に没しない場所で人為的な攪乱のない場所を選び、直径50mmの土壌採取器を用いてコア状に採取し、表面から5cmまでを上層、5～10cmまでを下層として分割し試料とした。採取量は湿重量でそれぞれ約2kgとした。

## 3 分析方法

### (1) 試料調整

科学技術庁放射能測定法シリーズ16「環境試料採取法」<sup>6)</sup>に準じて行った。操作の概略は以下のとおりである。

採取した試料はほうろく引きまたはステンレス製のバットに広げ、標準土色帖を用いて湿土の土色を判定し重量を測定する。105℃の乾燥器に入れ十分に乾燥し、放冷後、乾土の土色の判定と重量測定を行う。磁性乳鉢で軽く磨砕し、2mmのふるいでふるい分け、植物根や石礫等を取り除き乾燥細土重量を測定する。十分混合して分析試料とする。なお、

乾燥細土率は次式によって算出した。

$$\text{乾燥細土率 (\%)} = \text{乾燥細土重量 (g)} / \text{湿土重量 (g)} \times 100$$

また、形態別プルトニウム濃度測定用の試料は、採取した湿試料約200gを100ml容の蓋付きプラスチック容器に計り取り、分析に供するまでの間-40℃の冷凍庫で保存した。

#### (2) プルトニウム (Pu)

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」<sup>7)</sup>に準じて行った。操作の概略は以下のとおりである。

試料50gを分取し、500℃の電気炉で加熱処理後、分析試料にPu-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する。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する。放冷後ろ過し、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、蒸発乾固する。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する。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80,000秒測定する。測定試料のPu-238及びPu-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。

#### (3) γ線放出核種

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」<sup>8)</sup>及び同シリーズ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」<sup>9)</sup>に準じて行った。

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、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の人工放射性核種とした。このうちCr-51, Mn-54, Co-58, Fe-59, Co-60は原子力発電所の原子炉冷却系の成分が中性子照射を受けて生じる放射性核種であり、Zr-95, Nb-95, Ru-106, Cs-134, Cs-137, Ce-144は核実験や原子炉内で起こる核分裂によって生じる放射性核種である。

#### (4) 水分・強熱減量

「底質調査方法」<sup>10)</sup>(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ぼに入れ、105℃の乾燥器で2時間乾燥後、デシケータ中で放冷し質量を測定し、減量から水分を算出する。さらに電気炉を用いて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、減量から強熱減量を算出する。

#### (5) 結合形態別プルトニウム

A. Tessierらの分別溶出分離法<sup>11)</sup>に従い、試料中のプルトニウムを5つのフラクション(F1:可溶態、F2:炭酸塩結合態、F3:鉄マンガン酸化物結合態、F4:有機物結合態、F5:ケイ酸塩母材結合態)に分画した。フローチャートを図-5に示す。得られ



た F 1 ~ F 4 の溶出液にはトレーサーとして約 1 dpm の Pu-242 を添加した。このうち F 3 と F 4 については加熱濃縮後、塩酸 (1 + 1) 約 500 ml に溶解し、0.45  $\mu$  m のメンブランフィルターを用いてろ過した。続いて、F 1 ~ F 4 に約 200 mg の鉄 (Fe<sup>2+</sup>) を添加し、アンモニア水で pH 9 とし得られた水酸化鉄の沈殿を遠心分離し、硝酸 (3 + 2) で溶解後 (2) にしたがってカラム分離と測定を行い、湿重量あたりのプルトニウム濃度を求めた。(図 - 6) なお、F 5 についてはフッ化水素酸によるケイ酸塩の分解が必要なため分析を割愛し、次式によってプルトニウム濃度を算出した。

$$F 1 \sim F 4 \text{ の Pu 濃度 (Bq/kg 乾)} = F 1 \sim F 4 \text{ の Pu 濃度 (Bq/kg 湿)} \times 100 / \text{乾燥細土率 (\%)}$$

$$F 5 \text{ の Pu 濃度 (Bq/kg 乾)} = \text{乾燥細土の Pu 濃度 (Bq/kg 乾)} - F 1 \sim F 4 \text{ の Pu 濃度 (Bq/kg 乾) の和}$$

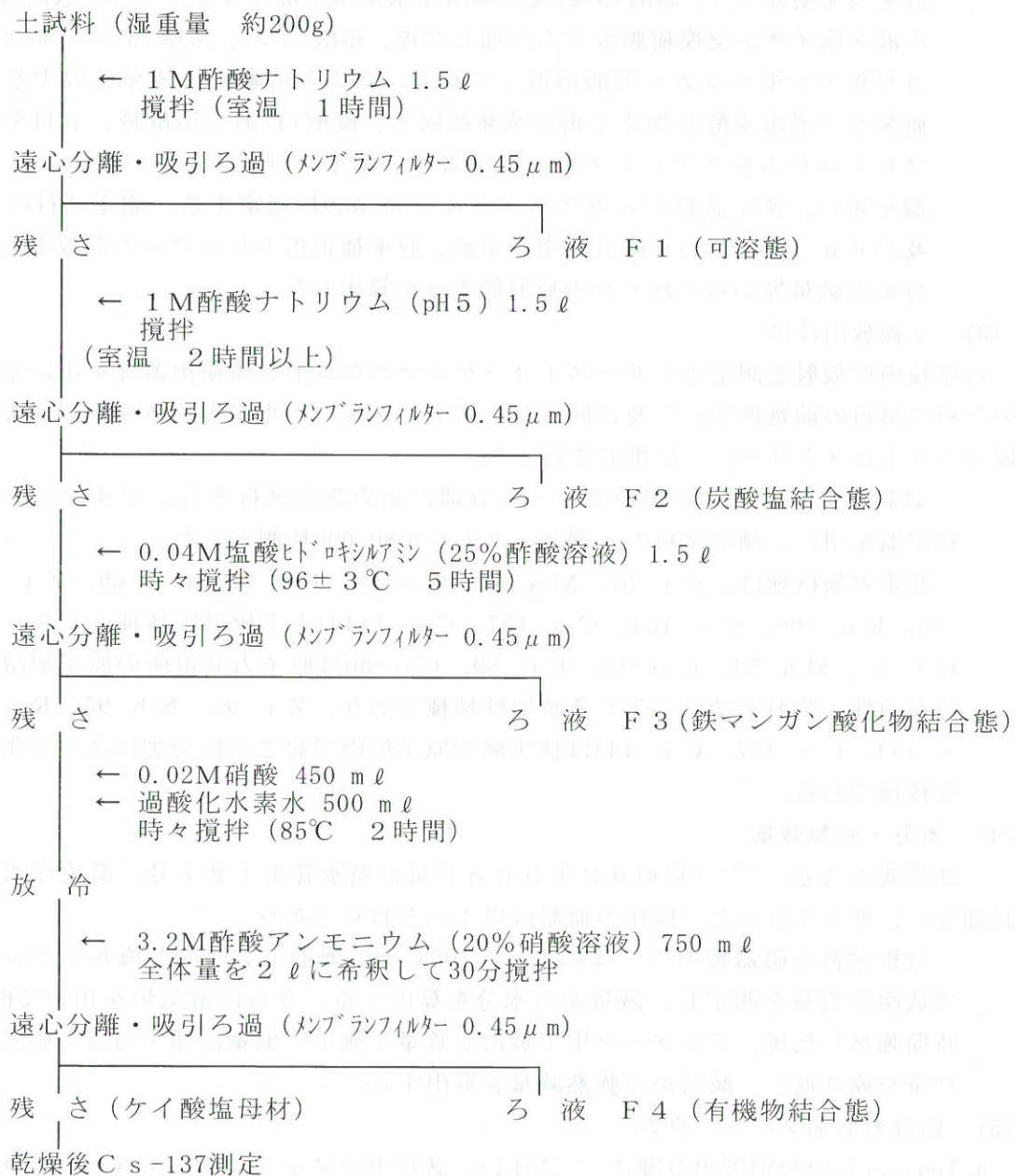


図 - 5 結合形態別 Pu 分離法

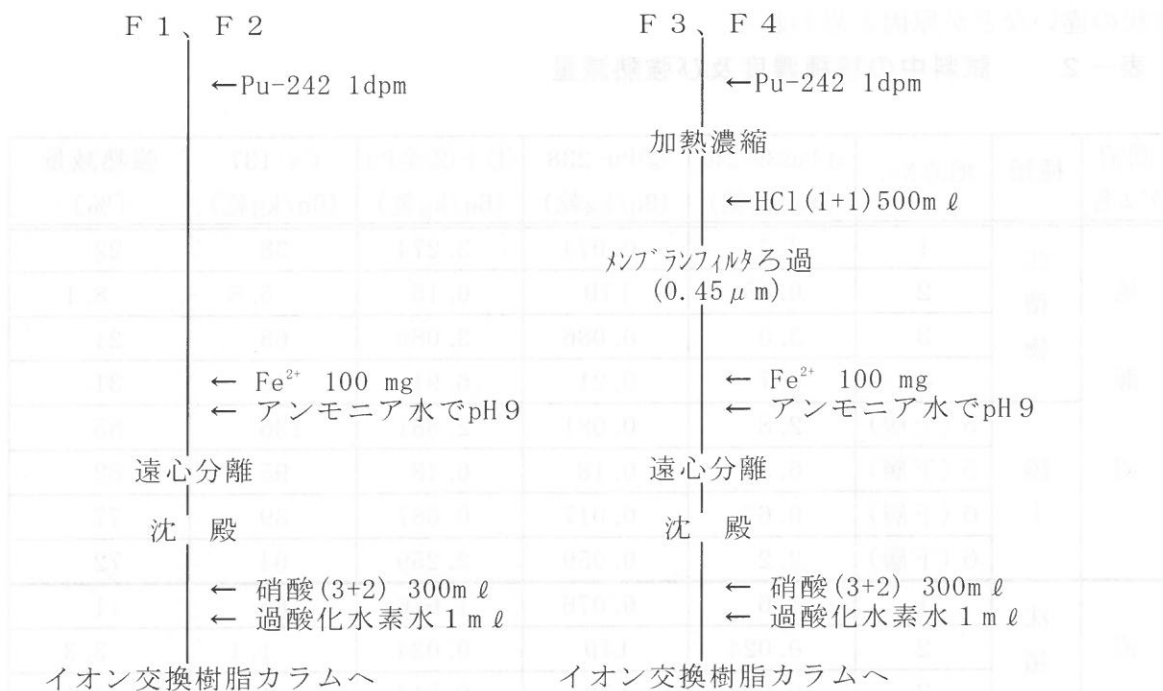


図-6 フラクシオン溶液の前処理法

(6) 結合形態別セシウム-137 (Cs-137)

すべての試料について、(5)の操作後の残さを105°Cで乾燥しU-8容器に詰め、ゲルマニウム半導体検出器を用いてγ線スペクトルを測定し、F5のCs-137濃度を求めた。また、巻末資料-2の図-42の方法によりF1のCs-137濃度を求めた。加えて、尾瀬沼地点3、4及び沼沢沼地点1、四時ダム地点3の湿試料については、(5)の操作を行って得られたF1~F4の抽出液にリンモリブデン酸アンモニウム10gを添加、攪拌後、ろ過してCs-137を捕集し、ゲルマニウム半導体検出器を用いてF1~F4のCs-137濃度を求めた。

4 調査結果

(1) Puの検出状況

試料のPu測定結果を表-2に示す。Puはすべての試料から検出された。沈積物のPu-238+239+240(以下Puと略す)濃度は、尾瀬沼の地点4が6.91Bq/kg乾と最も高く、全国の湖底沈積物の調査結果<sup>1,2)</sup>と比較しても高い値であった。また、陸土のPu濃度は、尾瀬沼の湿原土が6.48Bq/kg乾と最も高く、これも全国の陸土及び山土の調査結果<sup>1,2)</sup>と比較すると高い値であった。沼沢沼、四時ダムの沈積物のPu濃度は0.05~1.68Bq/kg乾、陸土のPu濃度は0.24~1.24Bq/kg乾であり、全国の調査結果<sup>1,2)</sup>と比較して特に高い値ではなかった。

① 尾瀬沼

尾瀬沼とその周辺のPu濃度分布を図-7に示す。沈積物では、中心部の地点1(3.27Bq/kg乾)に比べて、地点2は0.15Bq/kg乾と低かった。しかし、地点3(3.09Bq/kg乾)は地点1と同程度、地点4(6.91Bq/kg乾)は地点1よりかなり高く、特異な湖内分布が見られた。これは、尾瀬沼の全体的に水深が浅いという地形的な特徴や各地点の沈積物の

性状の違いなどが原因と思われる。

表－２ 試料中の核種濃度及び強熱減量

湖沼 ダム名	種類	地点No.	①Pu239+240 (Bq/kg乾)	②Pu-238 (Bq/kg乾)	①+②全Pu (Bq/kg乾)	Cs-137 (Bq/kg乾)	強熱減量 (%)
尾 瀬 沼	沈 積 物	1	3.2	0.074	3.274	38	22
		2	0.15	LTD	0.15	5.8	8.1
		3	3.0	0.086	3.086	65	21
		4	6.7	0.21	6.91	46	31
	陸 土	5(上層)	2.8	0.081	2.881	136	85
		5(下層)	6.3	0.18	6.48	95	82
		6(下層)	0.67	0.017	0.687	39	77
		6(下層)	2.2	0.059	2.259	64	72
沼 沢 沼	沈 積 物	1	1.6	0.076	1.676	65	11
		2	0.024	LTD	0.024	1.1	3.3
		3	0.014	LTD	0.014	1.0	4.1
		4	0.056	LTD	0.056	0.76	1.2
	陸 土	5(上層)	0.24	LTD	0.24	9.8	7.7
		5(下層)	0.29	LTD	0.29	9.7	7.4
		6(下層)	0.91	0.028	0.938	19	3.3
		6(下層)	0.30	LTD	0.30	7.7	2.6
四 時 ダ ム	沈 積 物	1	0.050	LTD	0.050	2.9	4.9
		2	0.19	LTD	0.19	6.2	14
		3	0.27	0.012	0.282	9.0	16
		4	0.32	0.015	0.335	8.6	17
		5	0.26	LTD	0.26	7.8	17
		6	0.67	0.017	0.687	23	19
	陸 土	7(上層)	0.49	LTD	0.49	16	6.6
		7(下層)	0.51	0.024	0.534	17	6.7
		8(上層)	1.2	0.037	1.237	40	28
		8(下層)	1.1	0.024	1.124	32	25

陸土中のPu濃度は、地点5の上層で2.88Bq/kg乾、下層で6.48Bq/kg乾、地点6の上層で0.68Bq/kg乾、下層で2.26Bq/kg乾であり、地点5の方が地点6よりも高く、両地点とも上層に比べて下層の方が2～3倍高かった。採取した試料は、そのほとんどが枯死した植物体であったことと、昨年度の調査で、陸土中のPuの蓄積に有機物が寄与していると推測されたことから、植物体中の有機物がPuの蓄積に寄与したと思われる。また、湿原には保水効果があることから、水中から植物へのPu吸収・蓄積が促進されたとも考えられる。河川水中のPu濃度は、周囲の湿原植物によるPuの吸収・蓄積によって、下流部ほ



ど低くなると考えられ、その結果地点5と6のPu濃度の差が現れたとも考えられる。

現在、環境中に存在するPuのほとんどは、1940年代の半ばから1960年代にかけて行われた核実験によって生成され、地上に降下したフォールアウトであるとされている<sup>13)</sup>。また、尾瀬ヶ原の泥炭の堆積速度は1年間に0.7~0.8mmとされており<sup>14)</sup>、今回陸土を採取した大江湿原での堆積速度も同程度と考えられる。よって、今回陸土を採取した地点では、核実験由来のPuが蓄積された層の上に、新たに約3~4cmの泥炭が堆積したものと考えられ、その結果、上層よりも下層中のPu濃度が高くなったものと思われる。

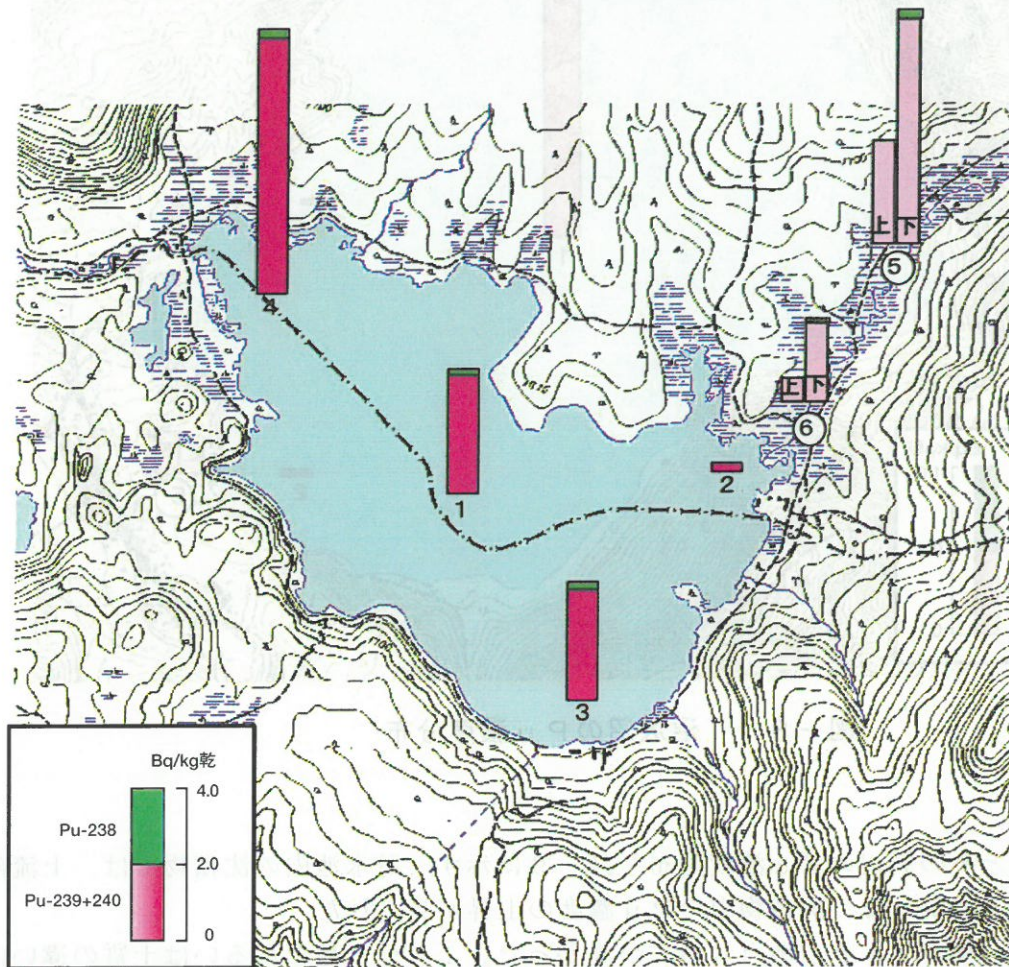


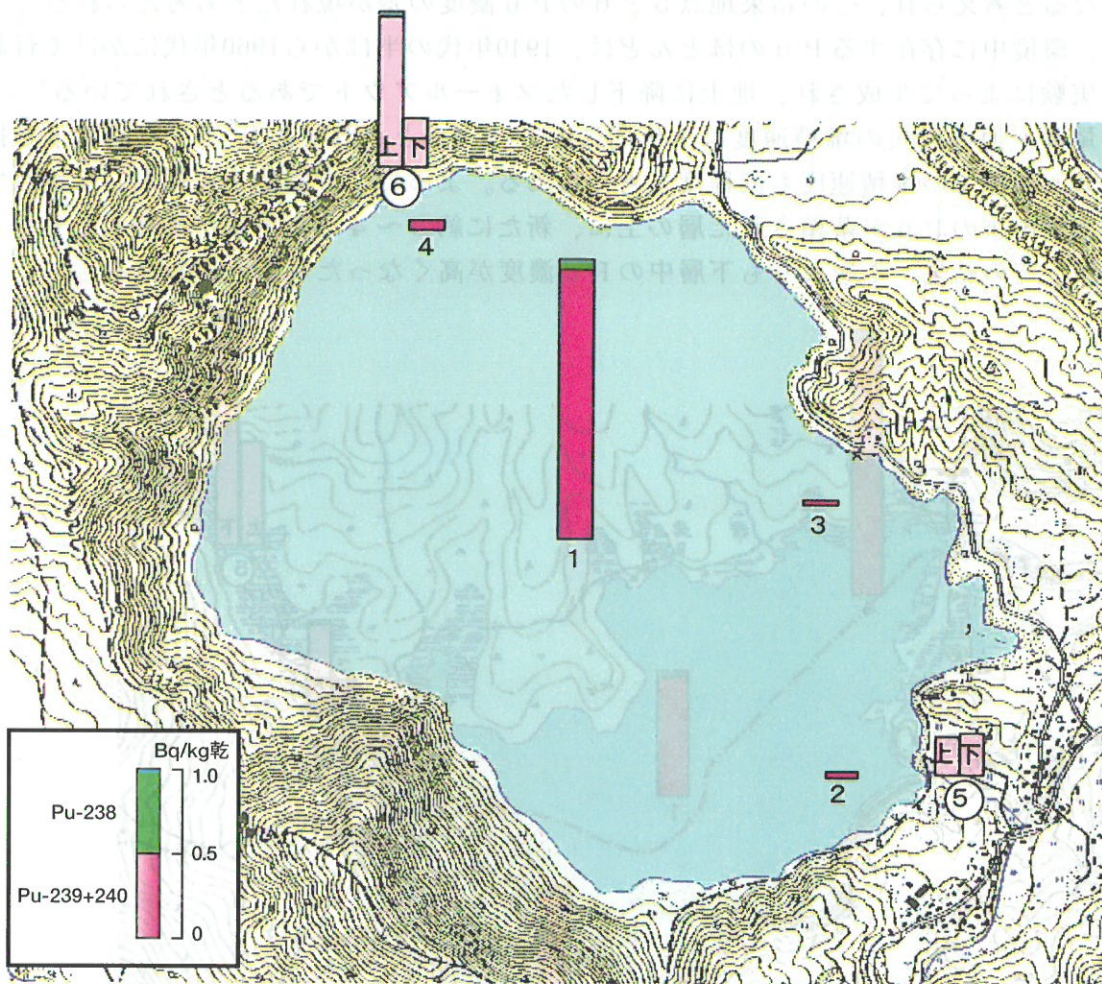
図-7 尾瀬沼のPu濃度分布

## ② 沼沢沼

沼沢沼とその周辺のPu濃度分布を図-8に示す。沈積物では、中心部の地点1で1.68 Bq/kg乾であったが、その他の地点では0.014~0.056Bq/kg乾と低かった。沼沢沼では、中心部で高く周辺部で低い濃度分布をしていると考えられる。

陸土では、地点5の方が地点6よりも高かった。地形あるいは土質の違いによるものと思われる。また地点6では上層の方が下層よりも高かったが、地点5では同程度であった。昨年度の調査で、山岳地の陸土では最大でPuの54%が表面から5cm以下の層に移行していることが明らかになっており、その結果に合致していた。





図－8 沼沢沼のP u濃度分布

### ③ 四時ダム

四時ダムとその周辺のP u濃度分布を図－9に示す。貯水池内の沈積物では、上流部からダムサイトにかけて、沈積物中のP u濃度の上昇が見られた。

陸土では、地点7よりも地点8の方が高かった。これは、地形あるいは土質の違いによるものと思われる。また、両地点とも上層・下層の濃度は同程度であり、昨年の結果と一致した。

四時ダムは1984年に湛水を開始していることから、1940年代の半ばから1960年代にかけて行われた核実験によってもたらされたP uが直接ダム貯水池に流入したとは考えにくい。よって、P uは結合態として河川水とともにダム貯水池へ流入し、徐々に沈降した後、最終的にダムによって堰き止められ、ダムサイトの底部に沈積したと思われる。ダムサイトの地点5は地点6よりも沈積物中のP u濃度が低い、地点5は放水口に近いため、P uの一部が沈降せずにダム外へ流出したためと思われる。



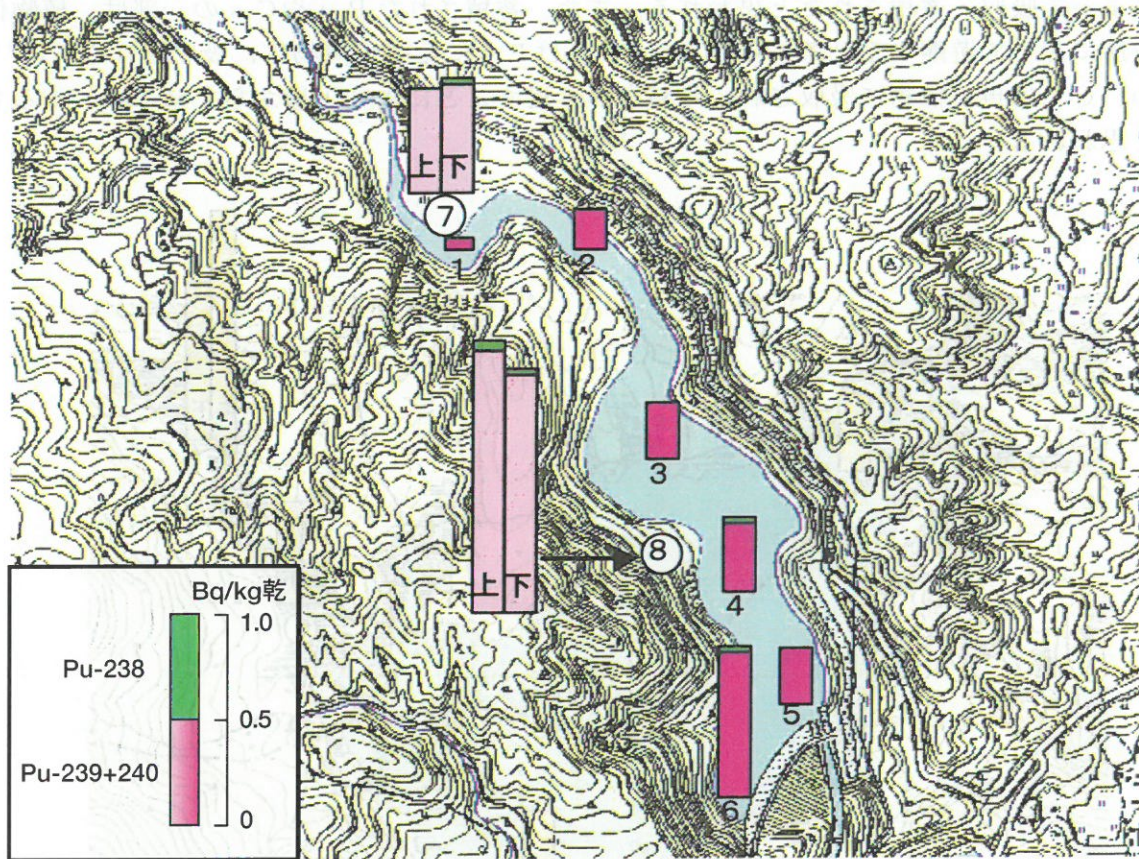


図-9 四時ダムのPu濃度分布

(2)  $\gamma$ 線放出核種の検出状況

人工の $\gamma$ 線放出核種のうち今回検出されたのは、 $Cs-137$ だけであり、他の核種は検出されなかった。 $Cs-137$ の測定結果を表一に示す。沈積物の $Cs-137$ 濃度は、尾瀬沼の地点3と沼沢沼の地点1が65Bq/kg乾と最も高く、全国の調査結果<sup>12)</sup>と比較するとかなり高い値であった。陸土では、尾瀬沼の地点5の上層が136Bq/kg乾と最も高く、これも全国の調査結果<sup>12)</sup>と比較して高い値であった。

① 尾瀬沼

尾瀬沼とその周辺の $Cs-137$ 濃度分布を図-10に示す。尾瀬沼の湖底沈積物の $Cs-137$ 濃度は、Puの分布と似ており、湖心部の地点1(38Bq/kg乾)よりも周辺部の地点3(65Bq/kg乾)と地点4(46Bq/kg乾)の方が高かった。しかし、地点3においてはPu濃度は地点1と同程度であったのに対し、 $Cs-137$ 濃度は地点1の約1.7倍であった。一方、地点4においてはPu濃度は地点1の約2倍であったのに対し、 $Cs-137$ 濃度は約1.2倍であった。このことから、尾瀬沼では、PuとCsの挙動に違いがあると思われる。

陸土では、地点5の上層で136Bq/kg乾、下層で95Bq/kg乾、地点6の上層で39Bq/kg乾、下層で64Bq/kg乾であり、Puと同様に、地点5の方が地点6よりも高かった。しかし、地点5の $Cs-137$ 濃度はPuと異なり下層よりも上層の方が高く、地点6でも上層と下層の $Cs-137$ 濃度の差はPuの差ほど大きくなかった。昨年度の調査で、陸土中の $Cs-137$ の蓄積にも土壌中の有機物が寄与していると推測されたことから、CsもPuと同様に植



物によって吸収・蓄積されたと思われる。また、蓄積されたPuやCsの一部は、植物体の分解に伴って遊離すると考えられるが、CsはPuに比べて植物体に吸収されやすい<sup>15)</sup>ため、Csは再び植物に吸収され、堆積を繰り返すことにより下層から上層に移行するものと思われる。

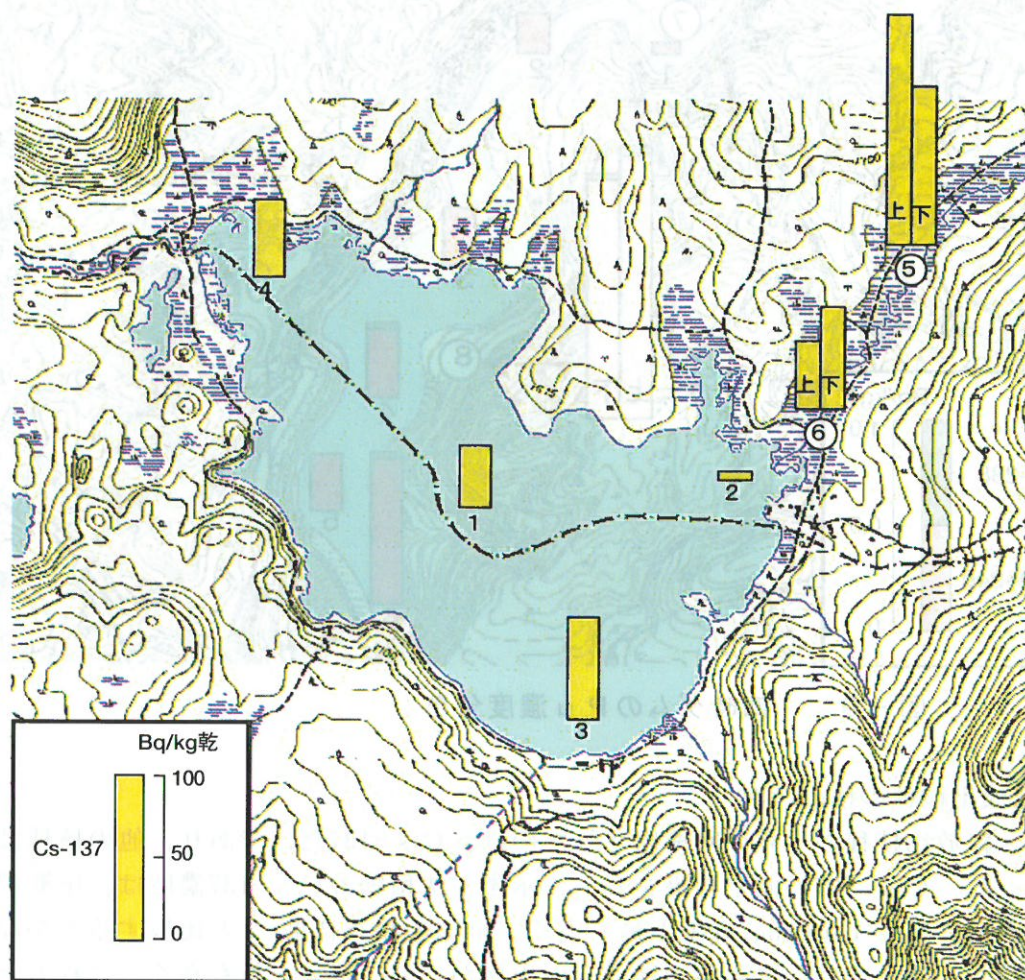


図-10 尾瀬沼のCs-137濃度分布

## ② 沼沢沼

沼沢沼とその周辺のCs-137濃度分布を図-11に示す。沼沢沼の湖底沈積物のCs-137の濃度分布は、Puの濃度分布と非常によく似ていた。湖心部の地点1で65Bq/kg乾であったが、その他の地点では0.76~1.1Bq/kg乾と低く、Cs-137もPuと同様に、湖心部で高く周辺部で低い濃度分布をしていた。湖心と周辺部の濃度比は、Puで0.008~0.033、Cs-137で0.012~0.017とほぼ同程度であることから、沼沢沼ではPuとCsの挙動に大きな違いはないものと考えられる。

陸土では、地点5の方が地点6よりも高かった。地形あるいは土質の違いによるものと思われる。また地点6では上層の方が下層よりも高かったが、地点5では同程度であった。昨年度の調査で、山岳地の陸土では最大でCs-137の49%が表面から5cm以下の層に移行していることが明らかになっており、その結果に合致していた。陸土のCs-137の濃度分



布もP uの濃度分布とよく似ていることから、沼沢沼周辺でのP uとC s-137の挙動は類似していると思われる。

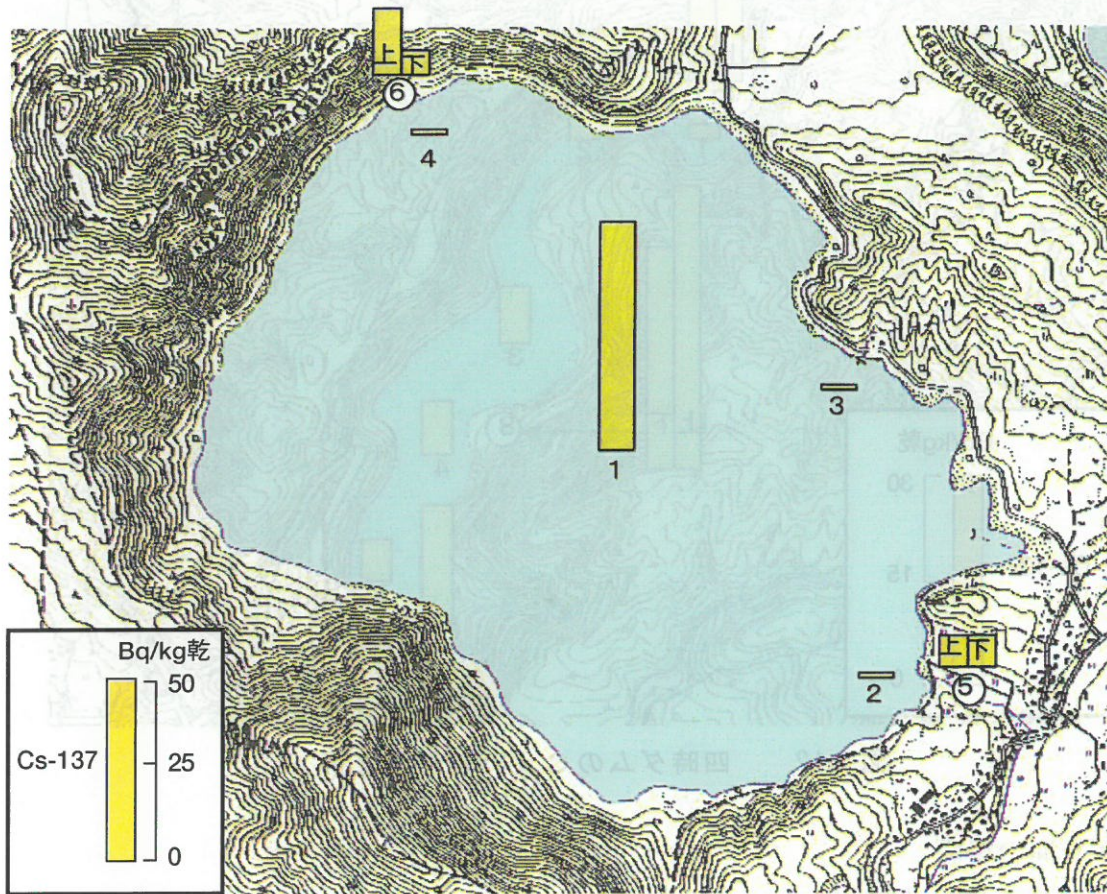


図-11 沼沢沼のC s-137濃度分布

### ③ 四時ダム

四時ダムとその周辺のC s-137濃度分布を図-12に示す。四時ダムのダム底沈積物のC s-137の濃度分布は、P uの濃度分布と非常に似ており、上流からダムサイトにかけて徐々に濃度が上昇し、地点6で最高値(23Bq/kg乾)を示した。各地点と地点6との濃度比は、P uで0.07~0.49、C s-137で0.13~0.39とほぼ同じであることから、ダム貯水池内でのP uとC sの挙動は類似していると考えられる。C s-137の主な放出源は過去の核実験であることから、C s-137のダム貯水池への流入・沈積の機構はP uと同じであると考えられる。よって、C s-137も土壌粒子として流入し沈積したものと思われる。

陸土のC s-137も、地点7よりも地点8の方が高く、上層と下層の濃度が同程度であるなど、P uの分布とよく似ていた。



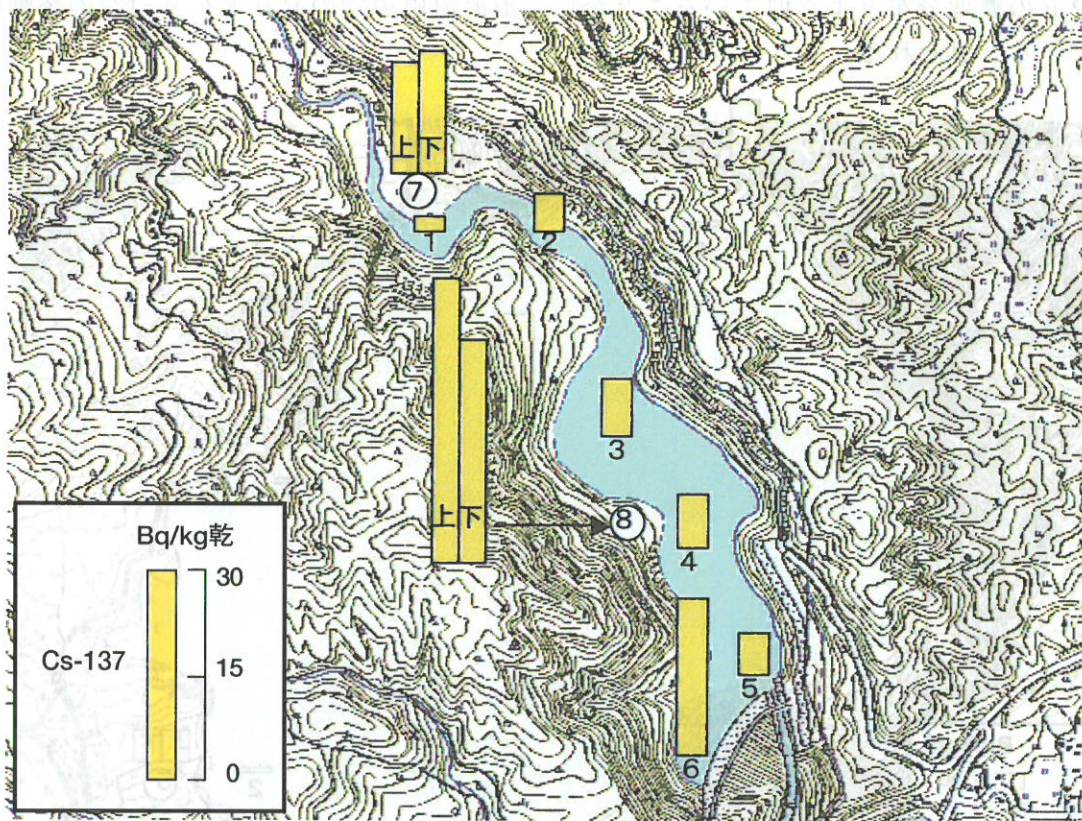


図-12 四時ダムのCs-137濃度分布

(3) 各項目間の相関

① Pu-238とPu-239+240

今回の調査試料のうちPu-238が検出された試料について、Pu-238とPu-239+240の相関を求めたところ、図-13、14に示すように、沈積物、陸土ともに高い相関を示した。また、Pu-238/Pu-239+240の比は0.022~0.048となり（表-3）、核実験由来の同士の値（0.03~0.05）<sup>16)</sup>とほぼ同程度であった。試料中のPuは核実験由来のものであると推定できる。

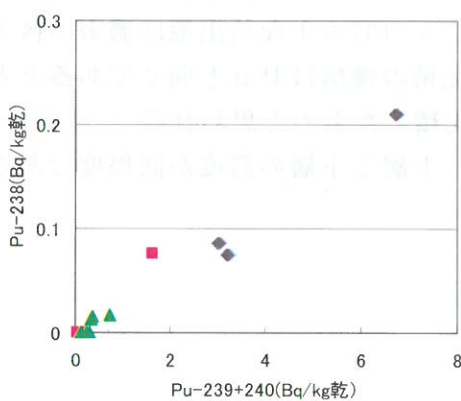


図-13 Pu-238とPu-239+240の相関(沈積物)

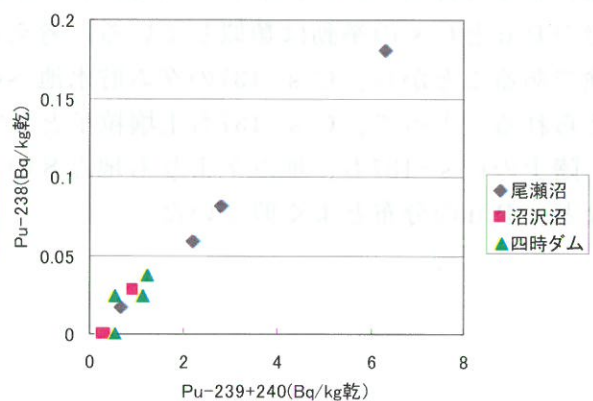


図-14 Pu-238とPu-239+240の相関(陸土)



表-3 Pu-238/Pu239+240 及び Pu-230+240/Cs-137

湖沼 ダム名	種類	地点No.	Pu-238/ Pu239+240	平均値	Pu239+240 /Cs-137	平均値	
尾 瀬 沼	沈 積 物	1	0.023	0.028	0.084	0.076	
		2	—		0.026		
		3	0.029		0.046		
		4	0.031		0.146		
	陸 土	5 (上層)	0.029	0.028	0.021	0.035	
		5 (下層)	0.029		0.066		
		6 (上層)	0.025		0.017		
		6 (下層)	0.027		0.034		
沼 沢 沼	沈 積 物	1	0.048	0.048	0.025	0.034	
		2	—		0.022		
		3	—		0.014		
		4	—		0.074		
	陸 土	5 (上層)	—	0.031	0.024	0.035	
		5 (下層)	—		0.030		
		6 (上層)	0.031		0.048		
		6 (下層)	—		0.039		
四 時 ダ ム	沈 積 物	1	—	0.039	0.017	0.030	
		2	—		0.031		
		3	0.044		0.030		
		4	0.047		0.037		
		5	—		0.033		
		6	0.025		0.029		
	陸 土	7 (上層)	—	0.033	0.031	0.031	
		7 (下層)	0.047		0.030		
		8 (上層)	0.031		0.030		
		8 (下層)	0.022		0.034		
	沈 積 物	最 小 値		0.023		0.014	
		最 大 値		0.048		0.146	
陸 土	最 小 値		0.022		0.017		
	最 大 値		0.047		0.066		

② Pu及びCs-137と有機物

昨年度の調査では、陸土及びダム底沈積物中のPu及びCs-137濃度は強熱減量と相関を示したが、湖底沈積物では相関を示さなかった。今回の試料についてPu及びCs-137

濃度と強熱減量との相関を求めたところ、図-15~18に示すように、陸土とダム底沈積物で昨年度と同様に相関を示した。一方、湖底沈積物においても各湖沼ごとに高い相関を示した。このことは、異なる湖沼から採取した沈積物間には、Pu及びCs-137濃度と強熱減量との相関がないが、同一湖沼から採取した複数の沈積物間には相関があることを示している。これは、両核種の湖内への流入量や生物生産などが湖沼ごとに異なることから、沈積物中の両核種の濃度と有機物量との比が必ずしも一定ではないと考えられ、湖沼でも両核種の沈積に有機物が寄与していると思われた。

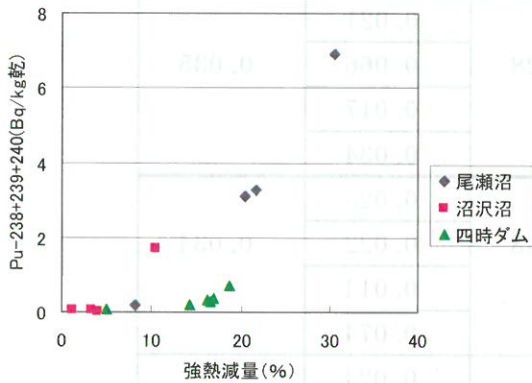


図-15 Pu濃度と強熱減量の相関(沈積物)

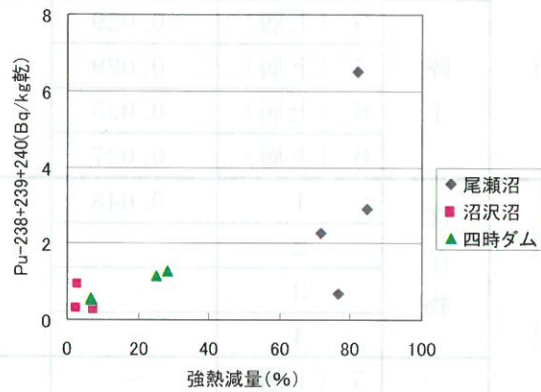


図-16 Pu濃度と強熱減量の相関(陸土)

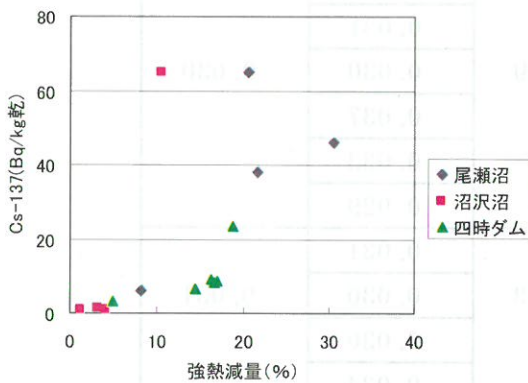


図-17 Cs-137濃度と強熱減量の相関(沈積物)

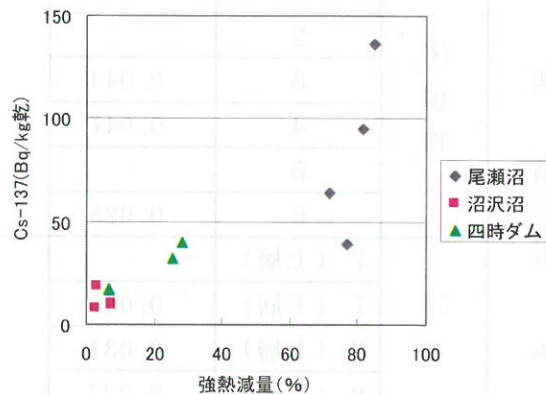


図-18 Cs-137濃度と強熱減量の相関(陸土)

③ Pu-239+240とCs-137

今回の試料についてPu-239+240とCs-137の相関を求めた。その結果、図-19、20に示すように、沈積物、陸土ともに高い相関を示したことから、両核種の起源は同じであると推定される。また、Pu-239+240/Cs-137の比は、沈積物で0.014~0.146、陸土で0.017~0.066であった(表-3)。核実験由来のPu-239+240/Cs-137は、0.02~0.04とされている<sup>17)18)</sup>。今回の試料のほとんどはその範囲に入っており、両核種の起源が核実験であると推定された。尾瀬沼の地点1と地点4の沈積物の両核種の比はその範囲を超えており、Cs-137の蓄積量に対してPuの蓄積量が多いことがわかる。

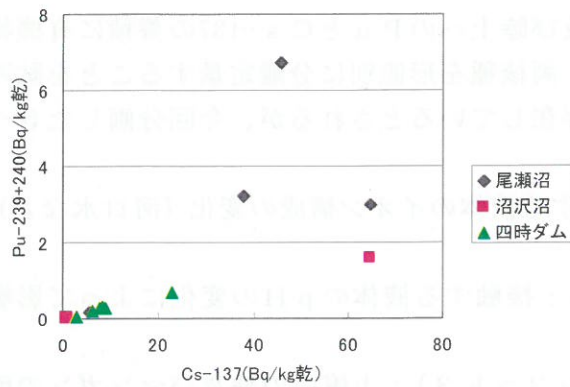


図-19 Pu-239+240とCs-137の相関(沈積物)

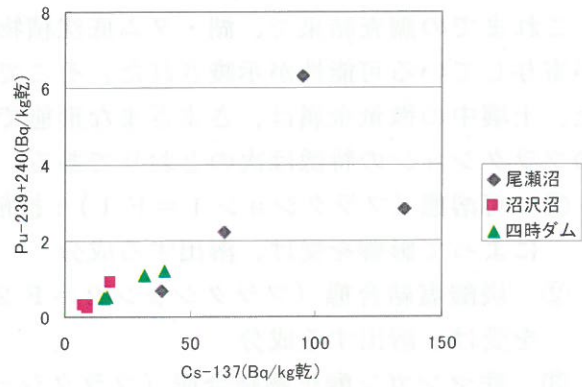


図-20 Pu-239+240とCs-137の相関(陸土)

昨年度の調査では、湖底沈積物においてはPu-239+240/Cs-137濃度比と強熱減量との間には相関が見られたが、陸土では相関が見られなかった。今回の試料についても、両核種の比と強熱減量の相関を見たところ、昨年と同様の傾向が見られた。(図-21、22) このことから、湖沼においてはPuとCs-137の蓄積量の比に有機物が寄与している可能性があると思われた。なお、昨年度調査したダム底沈積物は、Pu-239+240/Cs-137濃度比と強熱減量の間には相関が見られなかったが、今回のダム底沈積物では強熱減量の範囲が小さかったものの相関が見られたことから、湖底沈積物と同様に、Pu-239+240/Cs-137比への有機物の寄与がうかがわれた。

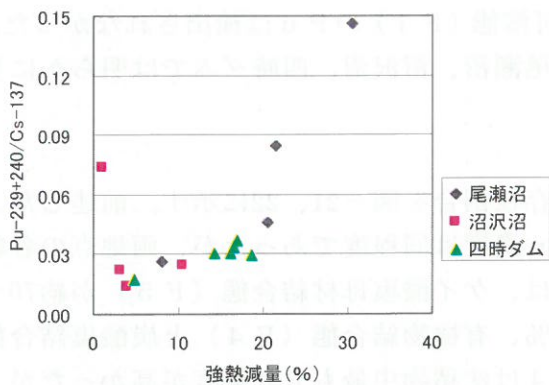


図-21 Pu-239+240/Cs-137と強熱減量の相関(沈積物)

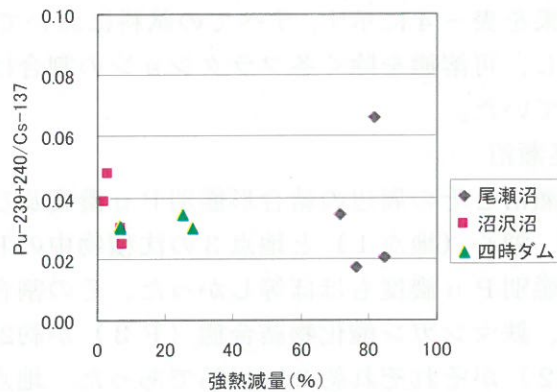


図-22 Pu-239+240/Cs-137と強熱減量の相関(陸土)



### (3) 結合形態別プルトニウム

これまでの調査結果で、湖・ダム底沈積物及び陸土へのPuとCs-137の蓄積に有機物が寄与している可能性が示唆された。そこで、両核種を形態別に分離定量することを試みた。土壌中の微量金属は、さまざまな形態で存在しているとされるが、今回分画した5つのフラクションの特徴は次のとおりである。

- ① 可溶態（フラクション1 = F 1）：接触する液体のイオン構成の変化（河口水など）によって影響を受け、溶出する成分
- ② 炭酸塩結合態（フラクション2 = F 2）：接触する液体のpHの変化によって影響を受け、溶出する成分
- ③ 鉄マンガン酸化物結合態（フラクション3 = F 3）：土壌中の鉄及びマンガンの酸化物は、団塊、結核（中心物に鉱物が固まり付いた石）、粒子の接着物、粒子の被覆物などとして存在する。これらは微量金属とよく結合するが、酸化還元電位が低くなる（還元状態）と結合がきれて溶出する。
- ④ 有機物結合態（フラクション4 = F 4）：土壌中の微量金属は生物体、死骸、鉱物粒子の被覆物などさまざまな形態の有機物と結合している。特にフミン酸やフルボ酸と結合した複合体やコロイドは、生物体内における微量金属の蓄積現象の結果と考えられる。これらの結合体は、酸化状態で分解され、微量金属は可溶性となって放出される。
- ⑤ ケイ酸塩母材結合態（フラクション5 = F 5）：初生鉱物あるいは二次生鉱物の結晶構造に取り込まれており、自然界の一般的な条件では溶出しない成分

結果を表-4に示す。すべての試料において可溶態（F 1）のPuは検出されなかった。しかし、可溶態を除く各フラクションの割合は尾瀬沼、沼沢沼、四時ダムでは明らかに異なっていた。

#### ① 尾瀬沼

尾瀬沼とその周辺の結合形態別Pu濃度及び存在割合を図-21、22に示す。前述したように、湖心（地点1）と地点3の沈積物中のPu濃度は同程度であったが、両地点の各結合形態別Pu濃度もほぼ等しかった。その割合は、ケイ酸塩母材結合態（F 5）が約70～80%、鉄マンガン酸化物結合態（F 3）が約20%、有機物結合態（F 4）と炭酸塩結合態（F 2）がそれぞれ約3～10%であった。地点4は沈積物中最もPu濃度が高かったが、結合形態別Puの存在割合は有機物結合態（F 4）が約60%、鉄マンガン酸化物結合態（F 3）が約20%、炭酸塩結合態（F 2）とケイ酸塩母材結合態（F 5）がそれぞれ約10%で、地点1及び地点3とはまったく異なる組成を示した。

陸土では、地点5・6ともに有機物結合態（F 4）が高く、約70～90%を占めていた。湿原の植物等によって吸収され、有機物に結合した形で蓄積されたものと思われる。また、上層と下層では、その組成に大きな違いは見られなかった。

地点4の沈積物の組成は、地点5・6の陸土のフラクション組成とよく似ていた。これは地点4の試料には多くの枯死した植物体が含まれていたことから、湿原土の流入または水草などによるPuの吸収蓄積がなされたため、地点5・6と同じ傾向を示したものと思われる。

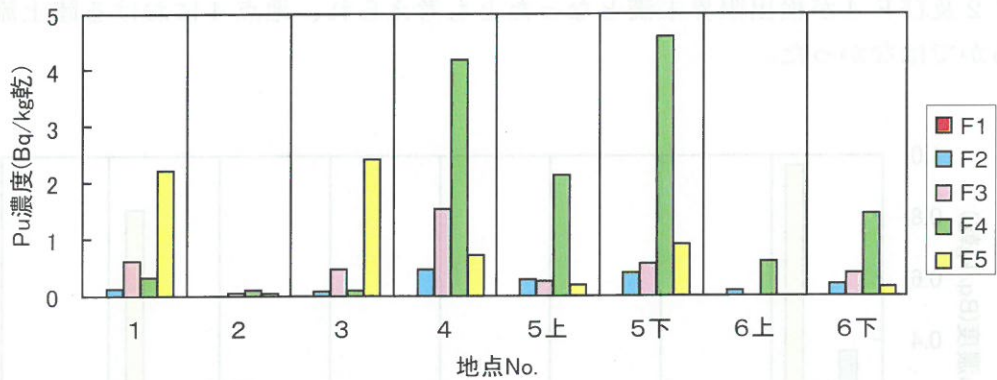


図-23 結合形態別Pu濃度(尾瀬沼)

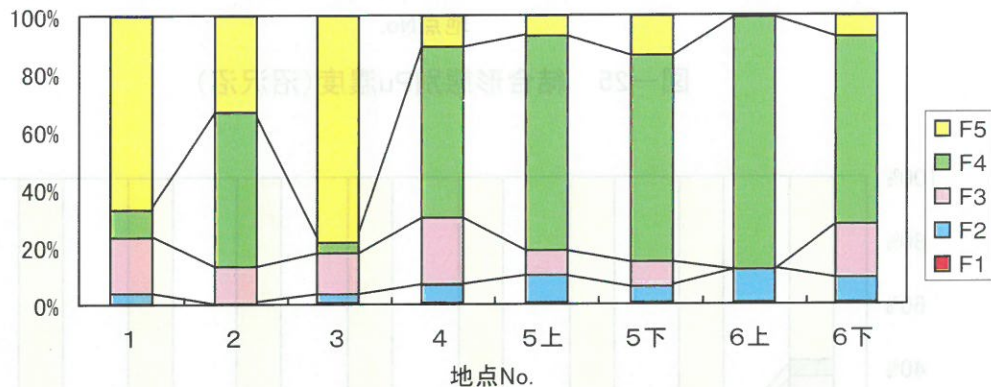


図-24 結合形態別Pu割合(尾瀬沼)

## ② 沼沢沼

沼沢沼とその周辺の結合形態別Pu濃度及び存在割合を図-23、24に示す。沈積物では、すべての地点でケイ酸塩母材結合態(F5)が高く、約60~100%を占めていた。地点1と地点2では、炭酸塩結合態(F2)が約20%と比較的高い値を示した。また、地点1のみに有機物結合態(F4)が存在しており、生物による吸収・蓄積がおこったものと考えられる。しかし、その割合は5%と小さかった。沼沢沼は貧栄養湖であり、生物生産が少ないためと思われる。

陸土でも、すべての地点でケイ酸塩母材結合態(F5)が高く、約71~89%を占めていた。地点5では、上層下層のPu濃度はほぼ等しかったが、結合形態別Puの割合もほぼ等しく、地表から10cmまでは均一な土質であることがわかる。地点6では、上層のPu濃度が下層の約3倍あったが、その差はケイ酸塩母材結合態(F5)のPuであった。

湖周辺部のPuは、陸土の流入によってもたらされた可能性もあると考えられるため、地点2と地点5の上層、及び地点4と地点6の上層のPu組成を比較した。その結果、地点2には地点5に存在しない炭酸塩結合態(F2)のPuが19%存在していたことから、両地点の土質は異なると考えられ、地点2については陸土の流入の影響は小さいと思われる。また、地点4では、地点6に存在した炭酸塩結合態(F2)と有機物結合態(F4)



が存在せず、両地点の土質が異なるとも思われた。しかし、地点4のPu濃度が低いためにF2及びF4が検出限界未満となったとも考えられ、地点4における陸土流入の影響は明らかではなかった。

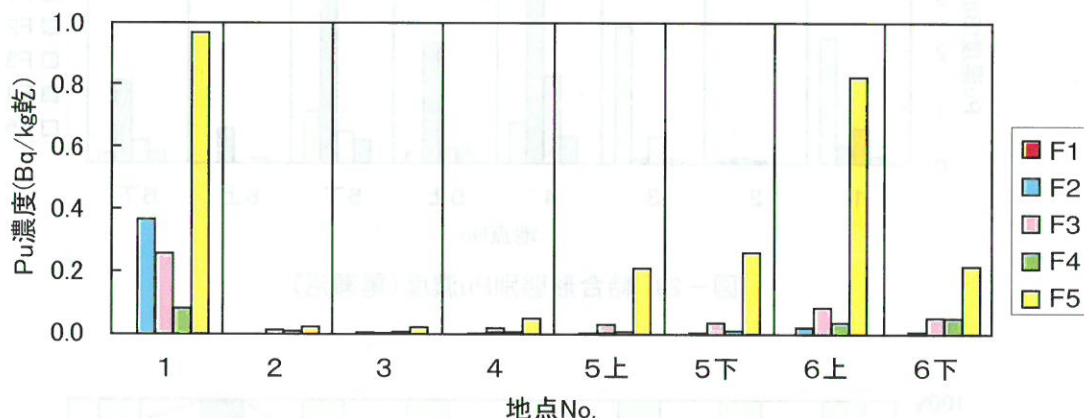


図-25 結合形態別Pu濃度(沼沢沼)

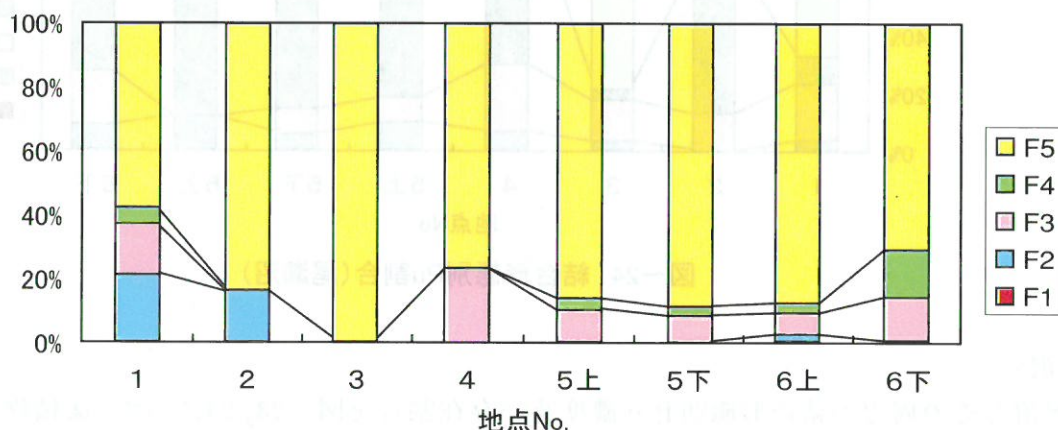


図-26 結合形態別Pu割合(沼沢沼)

### ③ 四時ダム

四時ダムとその周辺の結合形態別Pu濃度及び存在割合を図-25、26に示す。沈積物では、上流から下流にかけて結合形態別Puの割合が変化していた。上流の地点1と地点2ではすべてのPuがケイ酸塩母材結合態(F5)に存在していた。また、ダム貯水池中心部の地点3では、有機物結合態(F4)が68%と高く、ケイ酸塩母材結合態(F5)が10%と低かった。さらに、下流部の地点4と地点5では、炭酸塩結合態(F2)が7~8%、鉄マンガン氧化物結合態(F3)が11~18%、ケイ酸塩母材結合態(F5)が74~82%存在した。地点3及びその上流側と下流側で沈積物の性質が異なっていることが分かる。地点3では有機物結合態のPuが高いが、これは、水中の微生物等によるPuの吸収・蓄積が起こったためと考えられる。地点6でも有機物結合態(F4)が2%存在していた。地点3と地点6は、ダムの構造上、水が滞留しやすい地点であると考えられることから、こ



のことが生物生産をうながし、有機物結合態Puの蓄積を促進したとも考えられる。

陸土では、すべての試料でケイ酸塩母材結合態（F5）Puが高かった。しかし、地点7と地点8ではフラクションの構成に違いが見られた。地点7では上層下層とも、有機物結合態（F4）Puが約20%存在したが、地点8では下層に3%しか存在しなかった。地点7では植物等によるPuの吸収・蓄積がおこったものと考えられる。両地点とも上層・下層のフラクション組成に大きな違いはなかったことから、上層・下層の土質が均一化していると考えられる。

ダム貯水池内のPuは、陸土の流入によってもたらされた可能性もあると考えられるため、地点1と地点7の上層、及び地点4と地点8の上層のPu組成を比較した。その結果、両地点とも沈積物と陸土とのPu組成が異なっており、陸土流入による影響は小さいとも考えられる。しかし、ダム貯水池内では流入した土壌粒子も下流方向へ移動していると考えられることから、陸土によるPuの流入については明らかではなかった。

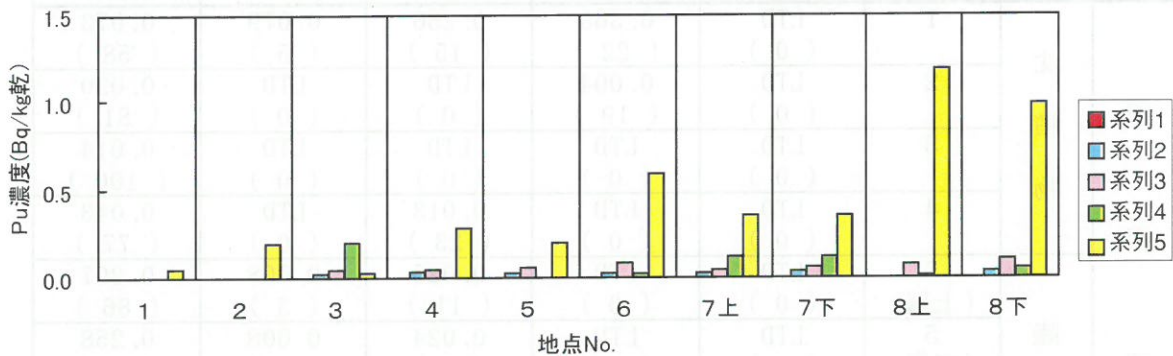


図-27 結合形態別Pu濃度(四時ダム)

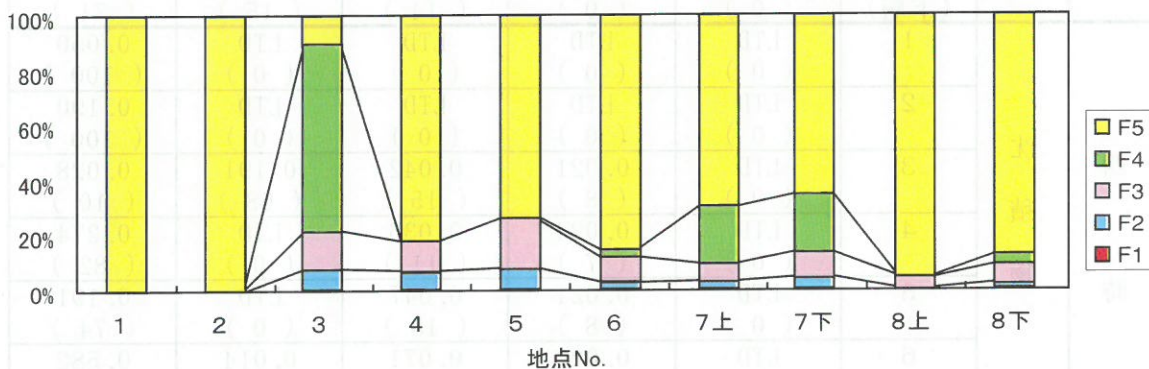


図-28 結合形態別Pu割合(四時ダム)

表-4 形態別P u濃度及び存在割合

上段：濃度(Bq/kg乾) 下段：割合(%)

対象	種類	地点No.	F 1	F 2	F 3	F 4	F 5
尾瀬沼	沈積物	1	LTD ( 0 )	0.121 ( 4 )	0.629 ( 19 )	0.320 ( 10 )	2.20 ( 67 )
		2	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.020 ( 14 )	0.079 ( 52 )	0.051 ( 34 )
		3	LTD ( 0 )	0.097 ( 3 )	0.467 ( 15 )	0.088 ( 3 )	2.44 ( 79 )
		4	LTD ( 0 )	0.465 ( 7 )	1.55 ( 22 )	4.18 ( 61 )	0.713 ( 10 )
	陸土	5 (上層)	LTD ( 0 )	0.294 ( 10 )	0.251 ( 9 )	2.14 ( 74 )	0.199 ( 7 )
		5 (下層)	LTD ( 0 )	0.352 ( 6 )	0.623 ( 9 )	4.60 ( 71 )	0.903 ( 14 )
		6 (上層)	LTD ( 0 )	0.081 ( 12 )	LTD ( 0 )	0.606 ( 88 )	LTD ( 0 )
		6 (下層)	LTD ( 0 )	0.182 ( 9 )	0.428 ( 19 )	1.48 ( 65 )	0.169 ( 7 )
沼沢沼	沈積物	1	LTD ( 0 )	0.368 ( 22 )	0.256 ( 15 )	0.079 ( 5 )	0.973 ( 58 )
		2	LTD ( 0 )	0.004 ( 19 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.020 ( 81 )
		3	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.014 ( 100 )
		4	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.013 ( 23 )	LTD ( 0 )	0.043 ( 77 )
	陸土	5 (上層)	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.025 ( 11 )	0.008 ( 3 )	0.207 ( 86 )
		5 (下層)	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.024 ( 8 )	0.008 ( 3 )	0.258 ( 89 )
		6 (上層)	LTD ( 0 )	0.015 ( 1 )	0.072 ( 8 )	0.025 ( 3 )	0.827 ( 88 )
		6 (下層)	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.042 ( 14 )	0.044 ( 15 )	0.214 ( 71 )
四時ダム	沈積物	1	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.050 ( 100 )
		2	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.190 ( 100 )
		3	LTD ( 0 )	0.021 ( 8 )	0.042 ( 15 )	0.191 ( 68 )	0.028 ( 10 )
		4	LTD ( 0 )	0.024 ( 7 )	0.036 ( 11 )	LTD ( 0 )	0.274 ( 82 )
		5	LTD ( 0 )	0.021 ( 8 )	0.047 ( 18 )	LTD ( 0 )	0.191 ( 74 )
		6	LTD ( 0 )	0.020 ( 3 )	0.071 ( 10 )	0.014 ( 2 )	0.582 ( 85 )
	陸土	7 (上層)	LTD ( 0 )	0.015 ( 3 )	0.032 ( 7 )	0.103 ( 21 )	0.340 ( 69 )
		7 (下層)	LTD ( 0 )	0.024 ( 5 )	0.052 ( 10 )	0.106 ( 20 )	0.351 ( 66 )
	8 (上層)	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	0.056 ( 5 )	LTD ( 0 )	1.18 ( 95 )	
	8 (下層)	LTD ( 0 )	0.023 ( 2 )	0.083 ( 8 )	0.038 ( 3 )	0.981 ( 87 )	



(5) 結合形態別セシウム-137

沈積物中の結合形態別Puの存在割合に特徴があった、尾瀬沼の地点3・4、沼沢沼の地点1、四時ダムの地点3について、結合形態別Cs-137を測定した。その結果を表-5及び図-27~30に示す。

表-5 沈積物中の形態別Cs-137濃度及び存在割合

対象	地点No.	上段：濃度(Bq/kg乾)					下段：割合(%)				
		F 1	F 2	F 3	F 4	F 5	F 1	F 2	F 3	F 4	F 5
尾瀬沼	3	11 ( 20 )	11 ( 18 )	20 ( 35 )	4.3 ( 7 )	13 ( 20 )					
	4	3.7 ( 9 )	3.2 ( 8 )	12 ( 30 )	3.0 ( 7 )	19 ( 46 )					
沼沢沼	1	7.0 ( 11 )	5.1 ( 8 )	5.8 ( 9 )	5.8 ( 9 )	39 ( 62 )					
四時ダム	3	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	LTD ( 0 )	7.5 ( 100 )					

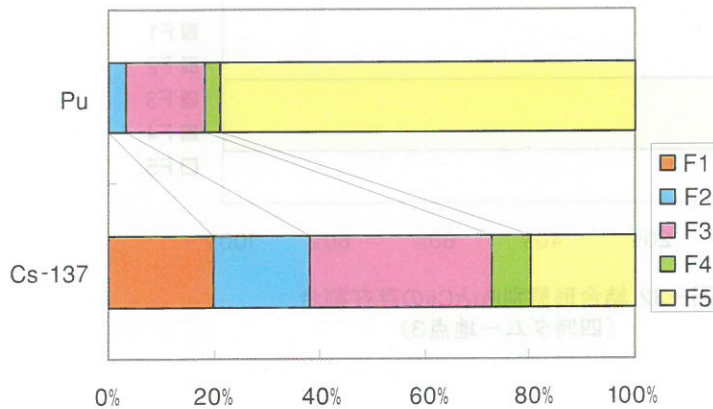


図-29 結合形態別PuとCsの存在割合(尾瀬沼-地点3)

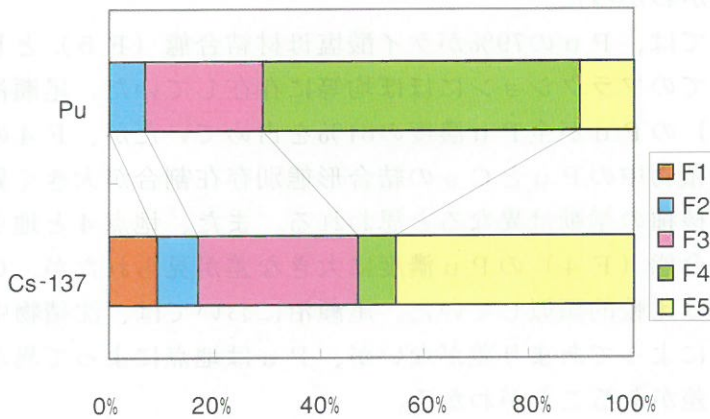


図-30 結合形態別PuとCsの存在割合(尾瀬沼-地点4)



図-31 結合形態別PuとCsの存在割合(沼沢沼-地点1)

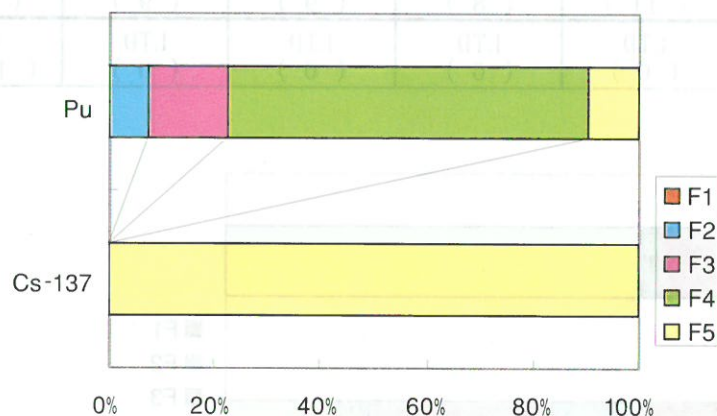


図-32 結合形態別PuとCsの存在割合(四時ダム-地点3)

尾瀬沼の地点3・4、沼沢沼の地点1から、Puでは存在しなかった可溶態(F1)のCs-137が検出された。その割合は全Cs-137の9~20%であり、沈積物中にも可溶態のCs-137が存在することがわかった。

尾瀬沼の地点3においては、Puの79%がケイ酸塩母材結合態(F5)として存在していたが、Cs-137はすべてのフラクションにほぼ均等に存在していた。尾瀬沼の地点4では、有機物結合態(F4)のPuが全Pu濃度の61%を占めていたが、F4のCs-137は7%にすぎなかった。沈積物中のPuとCsの結合形態別存在割合が大きく異なっていることから、尾瀬沼では両核種の挙動は異なると思われる。また、地点4と地点3を比較すると、Puでは有機物結合態(F4)のPu濃度に大きな差が見られたが、Cs-137では両地点の結合形態別割合は比較的類似していた。尾瀬沼においては、沈積物中のCs-137の結合形態別割合は地点によってあまり差がないが、Puは地点によって異なり、特に有機物結合態のPu濃度に差があることがわかる。

一方、沼沢沼の地点1では、Cs-137の可溶態(F1)が検出された他は、PuとCs-137の結合形態別割合に大きな違いは見られなかった。このことは、沼沢沼では、PuとCsの挙動が類似しているとの先の推察に合致するものである。



四時ダム地点3では、有機物結合態(F4)のPuが全Pu濃度の68%を占めていたが、Cs-137のF4は検出されず、すべてケイ酸塩母材結合態(F5)であった。前述したように、沈積物のPuとCs-137の濃度比は、ダム貯水池のどの地点でも一定であることから、ダム貯水池内の両核種の挙動は類似していると推察された。しかし、地点3においては、両核種の形態別割合が大きく異なることから、ダム貯水池内における両核種の挙動は異なっていると考えられる。

沈積物中の有機物結合態(F4)のCs-137の存在割合は、有機物結合態(F4)のPuと比べて同程度かあるいは小さいことから、湖沼・ダム内の有機物はCsよりもPuの沈降に寄与していると思われる。また沈積物中に、可溶態(F1)のPuは存在しないが、F1のCs-137は存在することから、湖沼・ダム内ではCsの方がPuよりも移動しやすいと考えられる。

(6) 結合形態別Pu・Cs-137と強熱減量

前述したように、ダム・湖底沈積物中のPuの蓄積量と有機物量との間には相関が見られることから、Puの蓄積には有機物が寄与している可能性がある。そこで、可溶態(F1)を除く各結合形態別Pu濃度と強熱減量との相関をみた。その結果を図-33~36に示す。沈積物では、F2~F5結合形態のPu濃度が強熱減量と相関を示しており、沈積物中の有機物量は可溶態(F1)を除くすべての結合形態のPuの蓄積に寄与していると考えられる。一方、陸土では、炭酸塩結合態(F2)、鉄マンガン酸化物結合態(F3)、有機物結合態(F4)Pu濃度は強熱減量と相関を示したが、ケイ酸塩母材結合態(F5)Pu濃度は相関を示さなかった。このことから、陸土中の有機物は、F5以外のPu濃度に寄与していると思われる。しかし、図-33~36において沈積物と陸土では回帰曲線の傾きが異なっており、沈積物で大きく、陸土で小さかった。沈積物と陸土では、有機物がPu蓄積に寄与する度合いが異なっており、その度合いは沈積物の方が陸土よりも大きいと考えられる。

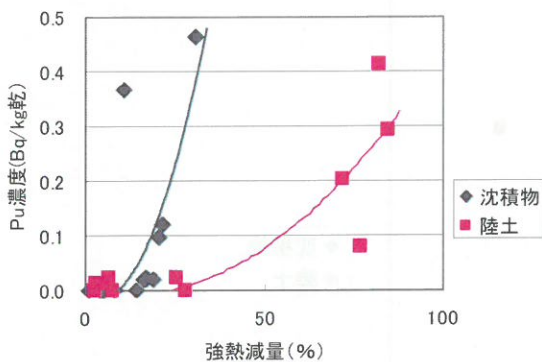


図-33 F2-Puと強熱減量の相関

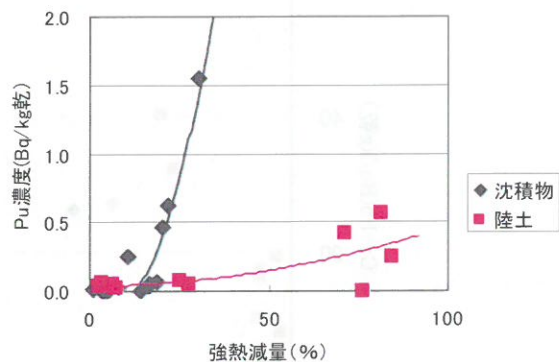


図-34 F3-Puと強熱減量の相関

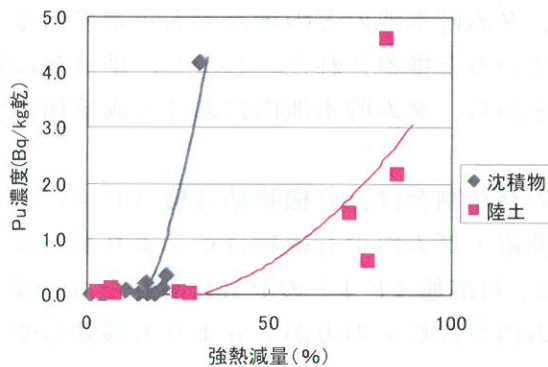


図-35 F4-Puと強熱減量の相関

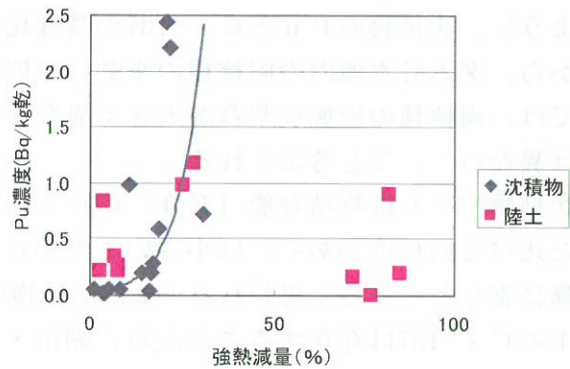


図-36 F5-Puと強熱減量の相関

また、Cs-137についても、ダム・湖底沈積物中の蓄積量と有機物量との間には相関が見られることから、Cs-137の蓄積にも有機物が寄与している可能性がある。そこで、試料中のCs-137濃度と強熱減量との相関をみた。(図-37) その結果、陸土・沈積物ともに有機物量の増加に伴って、Cs-137濃度が上昇し、その上昇の度合いは、沈積物と陸土ではほぼ同じである傾向が見られた。さらに、今回測定した可溶態(F1)とケイ酸塩母材結合態(F5)のCs-137濃度と強熱減量との相関(図-38、39)をみたところ、F1、F5ともに強熱減量と相関を示した。このことから、沈積物と陸土中の有機物は可溶態及びケイ酸塩母材結合態のCs濃度に寄与しており、その寄与の程度は沈積物と陸土で差がないと考えられる。なお、炭酸塩結合態(F2)、鉄マンガン酸化物結合態(F3)、有機物結合態(F4)のCs-137に対する有機物の寄与については、今回は明らかにはできなかった。

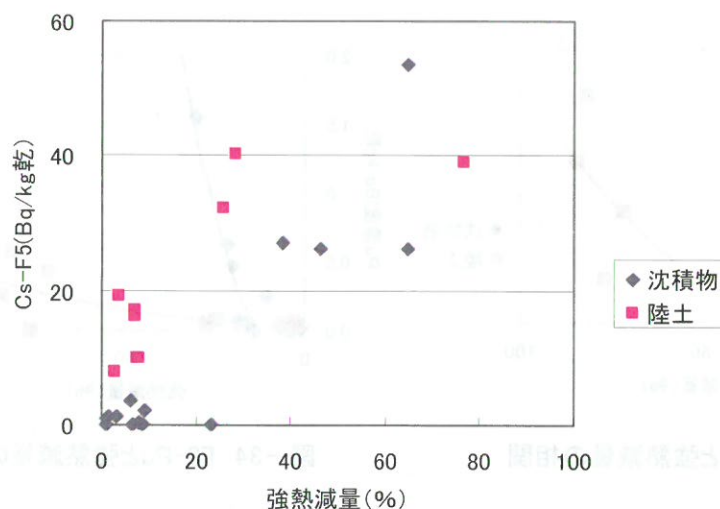


図-37 全Cs濃度と強熱減量の相関



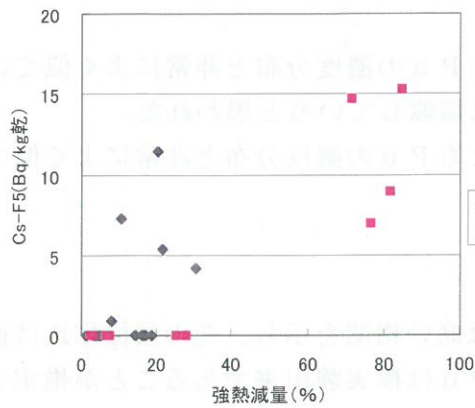


図-38 F1-Cs濃度と強熱減量の相関

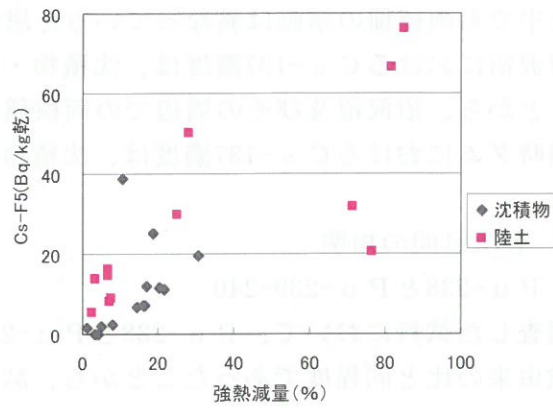


図-39 F5-Cs濃度と強熱減量の相関

有機物の増加に伴うCs-137濃度の上昇率は沈積物と陸土とではほぼ同程度であるが、有機物の増加に伴うPu濃度の上昇率は陸土よりも沈積物の方が大きい。その結果、陸土中のPu/Cs-137濃度比は有機物量にかかわらず一定となるが、沈積物中のPu/Cs-137濃度比は有機物量が増加するにしたがって高くなると考えられる。このことから、湖沼やダム貯水池内には、Puを選択的に沈降させる生物など有機的な要因が存在すると推定できる。

## 5 まとめ

### (1) Puの検出状況

調査したすべての試料からPu-239+240が検出された。その濃度は、沈積物、陸土とも尾瀬沼が高く、全国の調査結果と比較しても高い値であった。Pu-238は、沈積物7試料、陸土8試料から検出された。

尾瀬沼におけるPu濃度は、周辺部の濃度が湖心部の濃度と同程度か上回っていることから、特異な濃度分布であることが伺われた。陸土のPu濃度は、湿原を流れる川の上流部で高く、下層の方が上層より高かった。

沼沢沼におけるPu濃度は、湖心部で最も高かった。陸土のPu濃度は、上層の方が下層より高い地点と、上層・下層が同程度の地点があった。

四時ダム貯水池におけるPu濃度は、上流から下流にかけて上昇し、放水口から離れたダムサイトで最高値を示した。陸土のPu濃度は、2地点とも上層と下層が同程度であった。

### (2) γ線放出核種の検出状況

人工のγ線放出核種のうち検出されたのはCs-137だけであり、調査したすべての試料から検出された。その濃度は、沈積物、陸土とも尾瀬沼が高く、全国の調査結果と比較しても高い値であった。

尾瀬沼におけるCs-137濃度は、Puの濃度分布と似ていたが、中心部との濃度比はPuとは異なっていることから、湖内での両核種の挙動には違いがあると思われた。陸土の

Cs-137濃度は、Puと同様に上流部で高かった。しかし、上流部では下層より上層の方が高く、下流部では下層の方が高かったが、上層と下層の濃度差はPuよりも小さかった。陸土中でも両核種の挙動は異なっていると思われた。

沼沢沼におけるCs-137濃度は、沈積物・陸土ともPuの濃度分布と非常によく似ていることから、沼沢沼及びその周辺での両核種の挙動は類似していると思われた。

四時ダムにおけるCs-137濃度は、沈積物・陸土ともPuの濃度分布と非常によく似ていた。

### (3) 各項目間の相関

#### ① Pu-238とPu-239+240

調査した試料において、Pu-238とPu-239+240は高い相関を示し、その同位体比は核実験由来の比と同程度であったことから、試料中のPuは核実験由来であることが推定された。

#### ② Pu及びCs-137と有機物

昨年と同様に、ダム底沈積物と陸土中のPu及びCs-137は強熱減量と相関を示したことから、ダム底及び陸土への両核種の蓄積には有機物が寄与している可能性があると思われた。昨年の調査では、複数の湖沼から採取した沈積物中のPu及びCs-137濃度と強熱減量は相関を示さなかった。しかし、同一の湖沼から採取した今回の沈積物では両核種濃度と強熱減量は相関を示したことから、湖沼でも両核種の沈積に有機物が寄与していると思われた。

#### ③ Pu-239+240とCs-137

調査した試料において、Pu-239+240とCs-137の濃度は高い相関を示したことから、両核種の起源は同一であると推定された。また、調査試料のうち大部分のPu-239+240/Cs-137の濃度比は、核実験由来の濃度比と同程度であることから、両核種の起源は核実験であると推定された。しかし、沈積物の中に核実験由来の濃度比を上回る試料があった。沈積物の両核種の濃度比は強熱減量と相関を示すことから、PuとCs-137の蓄積量の比に有機物が寄与していると思われた。

### (4) 結合形態別Pu

Puの蓄積機構における有機物の寄与を調査するため、試料中のPuを結合形態別に分画した。その結果、どの試料にも可溶態のPuは存在しなかったが、炭酸塩結合態、鉄マンガン酸化物結合態、有機物結合態、ケイ酸塩母材結合態の各Pu濃度の割合は、各湖沼・ダムで異なっていた。

尾瀬沼の沈積物では、有機物結合態が多くを占める地点とケイ酸塩母材結合態が多くを占める地点があり、同一湖沼でも沈積物中のPuの結合形態が異なっていることがわかった。陸土では、すべての試料で有機物結合態が大部分を占めていたことから、Puが植物に吸収されて蓄積したものと思われた。

沼沢沼では、沈積物・陸土ともケイ酸塩母材結合態が大部分を占めていた。沈積物では湖心部のみに有機物結合態が存在したが、その割合は小さかった。沼沢沼は貧栄養湖であり、生物生産が少ないためと思われた。

四時ダムの沈積物では、上流から下流にかけてPuの結合形態別割合が変化していた。ダム貯水池中心部とダムサイト奥部には有機物結合態が存在しており、水中の生物による



吸収・沈積が起こったと考えられた。陸土では、上層と下層で結合形態別割合がほぼ同じであることから、地表から10cmまでは土質が均一化していると思われた。

#### (5) 結合形態別 C s -137

結合形態別 P u の存在割合に特徴のあった沈積物 4 試料（尾瀬沼 2、沼沢沼 1、四時ダム 1 試料）について、結合形態別 C s -137 を定量した。尾瀬沼では、P u では検出されなかった可溶態 C s -137 が存在し、さらに他のフラクションの割合も P u とは大きく異なっていたことから、P u と C s -137 の湖内での挙動は同一ではないことがわかった。沼沢沼では、P u では検出されなかった可溶態 C s -137 が存在した他は、フラクションの構成に大きな違いは見られず、沼沢沼では両核種の挙動は類似していると思われた。四時ダムでは、ケイ酸塩母材結合態以外の C s -137 は存在せず、P u の結合形態別割合と大きく異なっており、ダム貯水池内での両核種の挙動に違いがあると思われた。

#### (6) 結合形態別 P u 及び結合形態別 C s -137 と強熱減量

陸土及び沈積物中の結合形態別 P u の存在割合と強熱減量との相関から、炭酸塩結合態、鉄マンガン酸化物結合態、有機物結合態の P u 濃度は有機物量によって上昇する傾向が見られた。一方、C s -137 では、可溶態及びケイ酸塩母材結合態 C s -137 濃度が有機物量によって上昇する傾向が見られた。このことから、陸土及び沈積物中の有機物が P u と C s の蓄積に与える影響は異なっている可能性がある。

さらに、沈積物においては、陸土に比べて有機物当たりの P u 濃度が高いことから、湖沼やダム貯水池内には、P u を選択的に蓄積し沈降させる有機的要因が存在すると考えられた。

[ 参考文献 ]

- 1) 福島県衛生公害研究所：「平成11年度 環境試料中のプルトニウム調査報告書」(2000)
- 2) 福島県衛生公害研究所：「平成12年度 環境試料中のプルトニウム調査報告書」(2001)
- 3) 全国湖沼環境保全対策推進協議会：「全国湖沼資料集」(1999)
- 4) 福島県生活環境部環境指導課：「平成12年度水質測定計画による測定結果」(2001)
- 5) (財)日本ダム協会：「ダム年鑑2001」(2001)
- 6) 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)
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) A.Tisser , P.G.C. Campbell and M.Bisson : Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals , Anal. chem 51,844-851(1979)
- 12) 日本分析センター公開データベース
- 13) 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)
- 14) (財)尾瀬保護財団：「尾瀬はともだち」(2000)
- 15) 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1 土壌から農作物への放射性物質の移行係数、(1994)
- 16) 山本政儀：チェルノブイリ原子力発電所事故起因の環境中超ウラン元素、保健物理、24、(1989)
- 17) 福島浩人、中山一成：降下物、陸水、海水、土壌および核種食品試料の放射能調査、第34回環境放射能調査研究成果論文抄録集(1992)
- 18) 原子力安全研究協会：生活環境放射線(国民線量の算定)(1992)



## 1 目的

今回の調査で採用したA. Tessierらの分別溶出分離法（以下、「従来法」という）では、有機物結合態Puを分離する際に、試料に過酸化水素水を加えて加熱し、試料中の有機物を分解する過程がある。その際、試料に多量の有機物が含まれていると、過酸化水素水と有機物との急激な反応が起こり、内容物が溢出するなどの危険を伴う。また、反応の状態に応じて、少量ずつ過酸化水素水を加えなければならないため、分析に時間がかかる。そこで、過酸化水素水を用いた有機物分解に代わる方法として、試料の灰化による有機物分解法（以下、「灰化法」という）について検討した。

## 2 試料

採取後、冷凍庫（-40℃）中で保存した湖底沈積物2湿試料を用いた。（下表に測定データを示す）

	乾燥細土率 (%)	強熱減量 (%)	Pu(238+239+240) (Bq/kg乾)	Cs-137 (Bq/kg乾)
尾瀬沼 地点1	9.1	22	3.27	22
尾瀬沼 地点4	7.1	31	6.91	31

## 3 方法

上記の試料について、従来法と灰化法により溶出分離を行い、得られたフラクション1～4のPu濃度及びフラクション5のCs-137濃度を測定した。

従来法のフローチャートは本編の図-5に、灰化法のフローチャートは図-40に示した。

## 4 結果

結果を表-6に示す。従来法と灰化法において、フラクション1～3までの抽出操作は同一であることから、従来法と灰化法とではフラクション1～3のPu濃度は同程度になると予想された。しかし、地点4では従来法と灰化法の結果はほぼ一致したものの、地点1では差が見られた。湿試料の不均一性や抽出条件の違いなどによるものと考えられるが、原因は明らかではない。フラクション4のPu濃度は、地点1と地点4ともに灰化法が従来法の約半分であった。灰化法では有機物の分解が不完全であったために、抽出されたPu量が、従来法よりも少ない結果になったと思われる。灰化法では、本来フラクション4として抽出されるべきPuが、フラクション5に移行したため、フラクション5のPu濃度は従来法よりも高くなった。一方、フラクション5のCs-137濃度は、従来法と灰化法とで同程度であったことから、フラクション4のCs-137濃度も従来法と灰化法とでは差がないと考えられる。灰化によって、有機物結合態Csは結合している有機物から離脱するが、Puは完全には離脱しないと考えられ、PuとCsでは結合する有機物の種類や結合の方法が異なっている可能性がある。

以上のことから、灰化法は、有機物結合態Csの分離には適用できるが、有機物結合態Puの分離には不適當であることが明らかになった。よって、今回の調査では従来法を用いることとした。

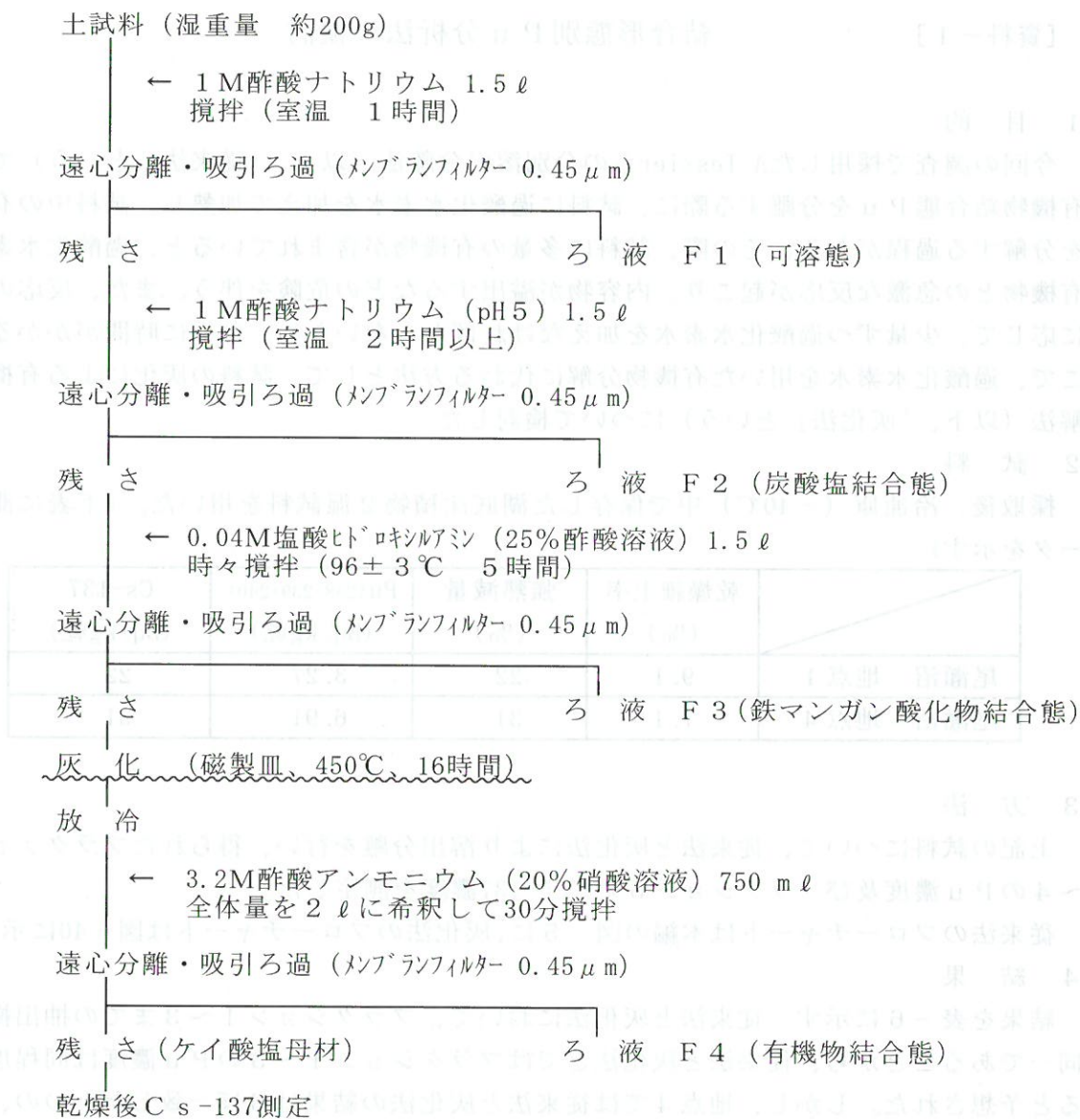


図-40 結合形態別 Pu 分離法 (灰化法)

表-6 従来法、灰化法による Pu、Cs-137溶出量の比較

	Pu (Bq/kg乾)					Cs-137 (Bq/kg乾)
	F 1	F 2	F 3	F 4	F 5	F 5
尾瀬沼 地点 1	LTD	0.121	0.629	0.320	2.20	13
	LTD	LTD (0)	0.059 (9)	0.176 (55)	3.04 (138)	11 (85)
尾瀬沼 地点 4	LTD	0.465	1.55	4.18	0.713	21
	LTD	0.495 (106)	1.49 (96)	2.68 (64)	2.24 (314)	20 (95)

上段：従来法

中段：灰化法

下段：従来法を100%としたときの灰化法の割合(%)



## [資料-2] 結合形態別 Cs-137の分析法の検討

### 1 目的

土試料中の結合形態別 Pu、Cs-137両核種の濃度を測定する方法としては、目的核種ごとに溶出分離を行う（以下「個別法」という）か、溶出液を2分して Pu 及び Cs-137の分析を行うのが適当である。しかし、2回の抽出操作を行うには時間と労力が必要であり、また溶出液を2分すると目的核種の検出限界値が上昇するなどの欠点がある。そこで、一回の抽出操作で両核種を測定する方法（以下「同時法」という）についての検討を行った。

### 2 試料

採取後、冷凍庫（-40℃）中で保存した湖底沈積物3試料、ダム底沈積物1試料を用いた。（下表に測定データを示す）

	乾燥細土率 (%)	強熱減量 (%)	Cs-137 (Bq/kg乾)
尾瀬沼 地点3	11	21	65
尾瀬沼 地点4	7.1	31	46
沼沢沼 地点1	15	11	65
四時ダム 地点3	28	16	9.0

### 3 方法

個別法は、上記の試料について、A. Tessierらの方法により結合形態別に溶出分離を行い、得られたフラクション溶液にリンモリブデン酸アンモニウムを添加・攪拌後、沈殿をろ過してU-8容器に移し、Ge半導体検出器を用いてCs-137濃度を測定した。（図-41）

同時法は、各フラクション溶液をPu分析に供した後、鉄共沈の残液と試料流下液及びカラム洗浄液を合わせて、リンモリブデン酸アンモニウムによるCs-137の捕集を行い、Ge半導体検出器を用いてCs-137濃度を測定した。（図-42）

### 4 結果

結果を表-7に示す。フラクション1については、個別法と同時法のCs-137濃度がほぼ同じ値であったことから、同時法でもCs-137が回収されたことが分かる。しかし、フラクション2では同時法の結果が個別法の63~73%、フラクション3では19~32%、フラクション4では0~31%と低かったことから、同時法ではCs-137が完全には回収できなかった。フラクション2、3、4については、溶液中のCsがPuを分析する過程で減少した（イオン交換樹脂への吸着など）か、あるいはリンモリブデン酸アンモニウムとの吸着を阻害する要因が溶液中に存在したと考えられるが、原因は明らかではない。このことから、フラクション1のCs-137測定には同時法は有効であるが、フラクション2、3、4の測定には不相当であると思われる。

現在、環境試料中のCs-137の測定方法としては、科学技術庁マニュアル「放射性セシウム分析法」の中で「リンモリブデン酸アンモニウム・塩化白金酸法」が定められている。

しかしこの方法は、放射化学分析の手法が必要であり、分析に時間がかかる。そこで今回は、科学技術庁マニュアル「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」中に定められた「海水の前処理法」を採用した。その結果、個別法における各フラクションのCs-137濃度の合計が、全Cs-137濃度の約90%に達していることから、今回の溶出分離液に対して有効な分析方法であると思われた。

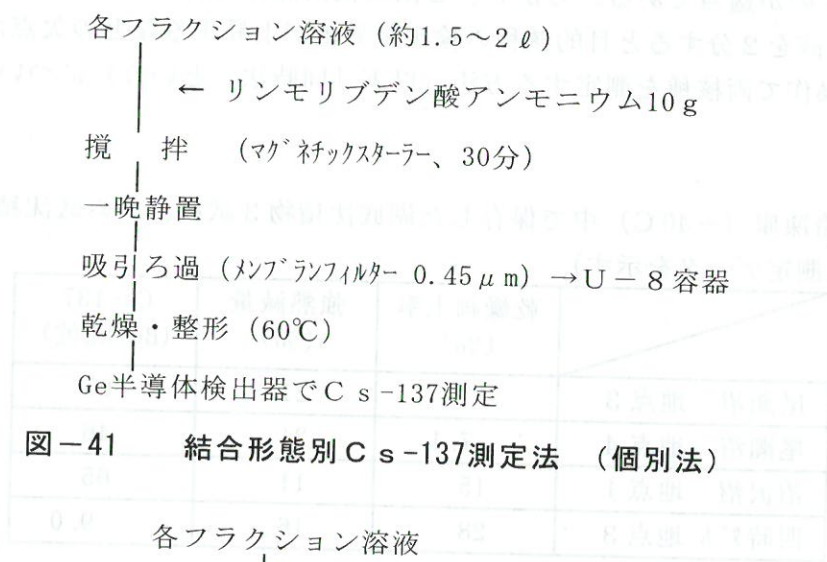


図-41 結合形態別Cs-137測定法 (個別法)

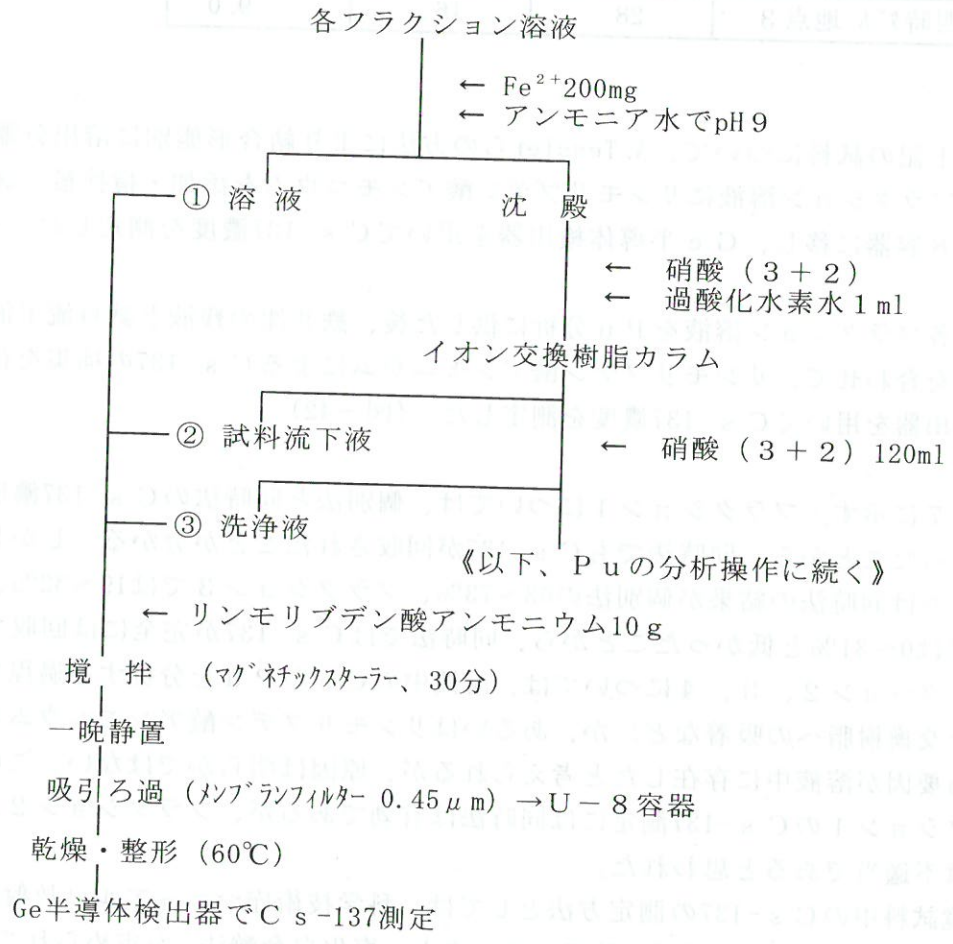


図-42 結合形態別Cs-137測定法 (同時法)



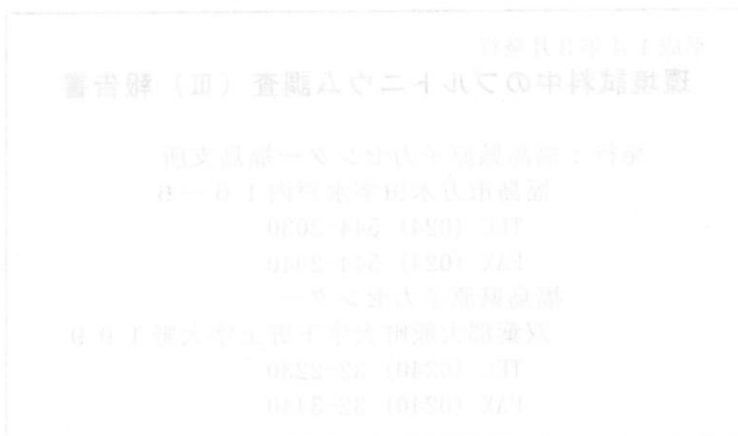
表-7 個別法、同時法によるCs-137溶出量の比較

	各フラクションのCs-137濃度 (Bq/kg乾)						全Cs-137に対する回収率(%)
	F 1	F 2	F 3	F 4	F 5	合計	
尾瀬沼 地点3	11	11	20	4.3	13	59.3	91
	11	7.2	4.0	1.2	11	34.4	53
	(100)	(65)	(20)	(28)	(85)	(58)	
尾瀬沼 地点4	3.7	3.2	12	3.0	19	40.9	89
	4.2	2.0	3.8	LTD	20	30.0	65
	(114)	(63)	(32)	(0)	(105)	(73)	
沼沢沼 地点1	7.0	5.1	5.8	5.8	39	62.7	96
	7.2	3.7	1.1	1.8	39	52.8	81
	(103)	(73)	(19)	(31)	(100)	(84)	
四時ダム 地点3	LTD	LTD	LTD	LTD	7.5	7.5	83
	LTD	LTD	LTD	LTD	7.1	7.1	79
					(95)	(95)	

上段：個別法

中段：同時法

下段：個別法を100%としたときの同時法の割合(%)



試料名	各試料中の Cs-137 濃度 (Bq/kg)					
	F1	F2	F3	F4	F5	平均
地点 3	11	11	11	13	13	11
地点 4	11	11	11	11	11	11
地点 5	11	11	11	11	11	11
地点 6	11	11	11	11	11	11
地点 7	11	11	11	11	11	11
地点 8	11	11	11	11	11	11

上段：同位体

中段：同位体

下段：同位体

平成 14 年 3 月発行

環境試料中のプルトニウム調査 (Ⅲ) 報告書

発行：福島県原子力センター福島支所

福島市方木田字水戸内 16-6

TEL (024) 544-2030

FAX (024) 544-2040

福島県原子力センター

双葉郡大熊町大字下野上字大野 199

TEL (0240) 32-2230

FAX (0240) 32-3440









古紙配合率70%再生紙を使用しています