

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：11101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24310002

研究課題名(和文)福島第一原発事故由来プルトニウム同位体の環境中への飛散状況の把握

研究課題名(英文) Understanding the distribution and migration process of Fukushima-derived plutonium isotopes in the environment.

研究代表者

山田 正俊 (YAMADA, MASATOSHI)

弘前大学・被ばく医療総合研究所・教授

研究者番号：10240037

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：環境試料中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を調べることにより、放出されたプルトニウムの起源を同定することができる。土壌中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を測定し、福島第一原発事故由来のプルトニウムの寄与率を推定した。福島県内の表層土壌中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比は0.03～1.27であり、福島第一原発事故由来のプルトニウムの存在を確認した。その寄与率は、最大で42%であった。

研究成果の概要(英文)：The activity ratio of  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  is characteristic for the Pu emission source, information on the Pu isotopic signature is very useful to identify the sources of Pu in the environment. The objectives of this study were to measure the  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  activity ratio in surface soil samples and to estimate the relative contribution of the global fallout Pu and the Fukushima-derived Pu.

The  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  ratios in surface soil samples ranged from 0.03 to 1.27. Higher  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  ratios than the value of 0.03 from the global stratospheric fallout were found. Higher ratios may prove the existence of Pu from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. The contribution of Pu from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident can be estimated as a mixture of Pu from the global stratospheric fallout and Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. The relative percentage of Pu from the Fukushima accident was 42% in soil sample of  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  ratio of 1.27.

研究分野：同位体環境化学

キーワード：環境計測 環境放射線(能) 福島原発事故 プルトニウム 防護

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 2011年3月11日、太平洋三陸沖を震源として未曾有の巨大地震があり、それによって大規模な津波が発生した。加えて、東京電力(株)福島第一原子力発電所の水素爆発、ベント、炉心熔融に始まる一連の事故による放射性物質の大気中への大量放出、高濃度汚染水の海洋への漏洩が起こった。

(2) 科学技術戦略推進費『放射性物質の分布状況等に関する調査研究』が実施され、プルトニウムの土壤濃度マップが作成された。福島第一原子力発電所から概ね100km圏内の約2,200箇所の土壤調査箇所のうち、100箇所(各箇所1地点)で放射性ストロンチウムとプルトニウム同位体分析が実施された。本調査において $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 双方が検出された5箇所の放射能比は0.33~2.2程度であり、今回の事故に伴い新たに沈着したものと考えられた。 $^{238}\text{Pu}$ のみ検出された1箇所とあわせ、事故由来のプルトニウムが検出された6箇所のうち、3箇所は30km圏外で採取されたものであり、原発近傍のみならず遠距離まで飛散していたことになる。しかし、この調査では計測時間が約20時間と短く、大部分が不検出とされた。また、 $^{89}\text{Sr}$ (半減期:50.53日)が検出され、今回の事故に伴い新たに沈着したものと考えられた。

### 2. 研究の目的

(1)  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は、原子炉や核兵器のタイプ、核燃料の種類や燃焼時間などによって異なることが知られている。そのため、環境試料中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比を調べることで、その起源を特徴づけることができ、環境中での挙動や移行過程解明にも役立つ。表面土壌中の放射性セシウムは、福島第一原子力発電所から北西方向に高濃度の蓄積がみられた。本研究では、福島第一原発から北西方向を中心に、土壌中のプルトニウム同位体の汚染マップの作成、放射能比情報を基に起源と輸送過程の評価、を行うことを目的とする。

(2) 環境試料中の放射性ストロンチウムの分析は、文部科学省放射能測定シリーズ2「放射性ストロンチウム分析法」が公定法として用いられているが、化学分離操作が複雑で分析に時間を要するという難点があった。そこで、簡便で迅速な $^{90}\text{Sr}$ 定量法を開発し、福島サンプルに適用し、環境動態を把握することを目的とする。

### 3. 研究の方法

(1) 梅雨が本格化し土壌の表面状態が変化する前の試料として、2011年3月から6月までに採取した土壌試料および福島県浪江町において採取した試料中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を測定し、プルトニウム土壤汚染マップを作成する。 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比の測定はアルファ線ス

ペクトロメトリーにより行う。プルトニウム同位体比( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ )は、原子炉や核兵器のタイプ、核燃料の種類や燃焼時間などによって異なることが知られている。そのため、環境試料中のプルトニウム同位体比を調べることで、その起源を特徴づけることができ、環境中での挙動や移行過程解明にも役立つことが期待される。福島第一原発事故以前の土壌中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比は、グローバルフォールアウト起源の $0.032\pm 0.017$ である。福島第一原発事故由来のプルトニウムの混入があればこの比は高くなることが予想される。グローバルフォールアウト起源と福島第一原発事故起源のふたつのエンドメンバーの混合によるとして、福島第一原発事故由来のプルトニウムの割合を決定することができる。本研究において得られた土壌中の放射能比を基に、プルトニウムの起源を特定し、福島第一原発由来であることが確認されれば、福島第一原発事故由来のプルトニウムの寄与率を決定し、その輸送過程を評価する。

(2)  $^{235}\text{U}$ の核分裂によって生じる放射性核種のうち、 $^{90}\text{Sr}$ は放射性セシウムとともに高い生成率(核分裂収率)を持つ。福島第一原子力発電所事故ではその多くが燃料棒あるいは原子炉内に留まっていると考えられており、陸上環境中への放出量は放射性セシウムに比べると3桁程度少ないと見積もられている。しかしながら、ストロンチウムがカルシウムと類似した化学的性質を持ち骨部に濃集しやすい特性や環境中では水に溶解しやすく、風化によって容易に移動することからその動態を注視することは不可欠である。本研究ではプルトニウムとともに放射性ストロンチウムの環境動態を把握するため、土壌および水中生物であるサクラマス分析を実施した。

### 4. 研究成果

#### (1) 土壌中の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比

$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比の測定結果を図1に示す。図中、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比が0.026-0.1となった地点を赤色、黄色は0.1-0.2、緑色は0.2-0.5、青色は0.5以上となった地点を示している。

$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比が0.5を超える高い地点は、 $^{137}\text{Cs}$ の蓄積量が最も大きい(3,000kBq/m<sup>2</sup>以上)福島第一原発から北西方向のエリアと重なった。 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比が0.2-0.5の緑丸の地点は、主に福島第一原発から45km以遠の北西方向の地点であった。また、少量ではあるが福島第一原発由来プルトニウムが福島市付近、郡山市でも観測された。福島第一原発から南方向にあるいわき市の土壌試料は0.1以下となり、有意の福島第一原発由来プルトニウムは確認できなかった。

図1に示す通り、いくつかの地点において、大気圏核実験によるグローバルフォールア

ウト比の  $0.032 \pm 0.017$  に比べて有意に高い  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比が観測された。これは福島第一原発事故由来のプルトニウムが飛散・沈着したことを示唆している。土壤中で観測された  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比が、グローバルフォールアウト比の  $0.032 \pm 0.017$  と、福島第一原発の原子炉内の 2.97 の二つのエンドメンバーによる混合として、福島第一原発由来プルトニウムの寄与率を求めた。その結果、土壤に存在するプルトニウムのうち、福島第一原発事故に起因する割合は、最も大きい地点で 42 % となった。

福島市周辺の  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の平均値は  $0.16 \pm 0.11$  であったが、放射性セシウムの沈着が多い地域 ( $3,000\text{kBq}/\text{m}^2$  以上) では  $0.82 \pm 0.43$  となった。プルトニウムは沸点が  $3,235^\circ\text{C}$  と高いため、気体ではなく極微細な粒子として放出され飛散したため、放射性セシウムに比べ遠距離の地点まで飛散し沈着した量が少なかったと考えられる。

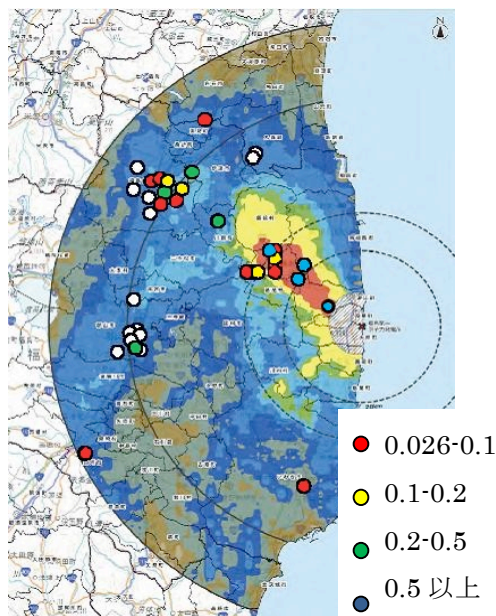


図1 土壤中の  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の分布

(2) 土壤中の  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比と福島第一原発事故由来の核分裂生成物濃度の比較

同一試料について測定した土壤中の福島第一原発事故由来の核分裂生成物と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の比較を図2~図6に示す。図中の核種濃度 ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{129\text{m}}\text{Te}$ ,  $^{129}\text{Te}$ ) のデータは、Hosoda et al (2012) (研究成果論文④), Tazoe et al (2013) (研究成果論文⑤) から引用した。

土壤中の  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{129\text{m}}\text{Te}$ ,  $^{129}\text{Te}$  濃度と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の関係は、福島第一原発から北西方向の高空間線量率の地域から採取した地点ではどちらも高い値を示すが、全体として明瞭な相関は認められなかった。

(3) 土壌および野生生物中の  $^{90}\text{Sr}$

環境省により実施された 2012 年の水域モ

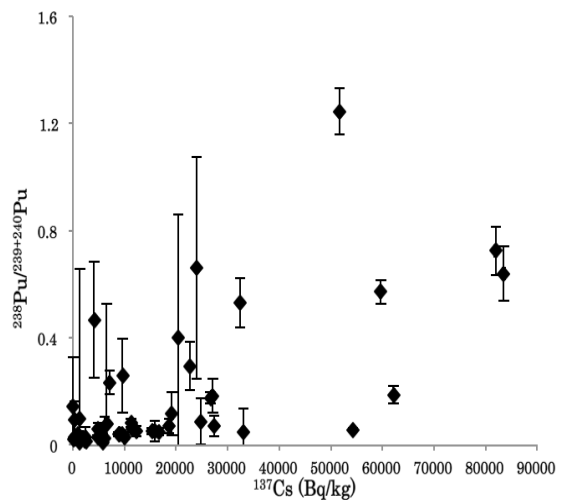


図2  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の関係

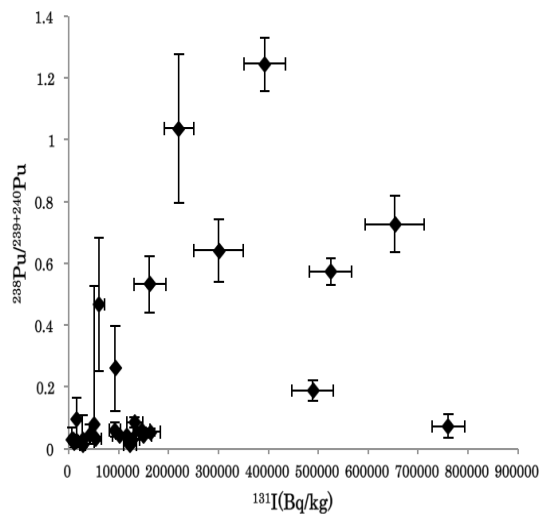


図3  $^{131}\text{I}$  と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の関係

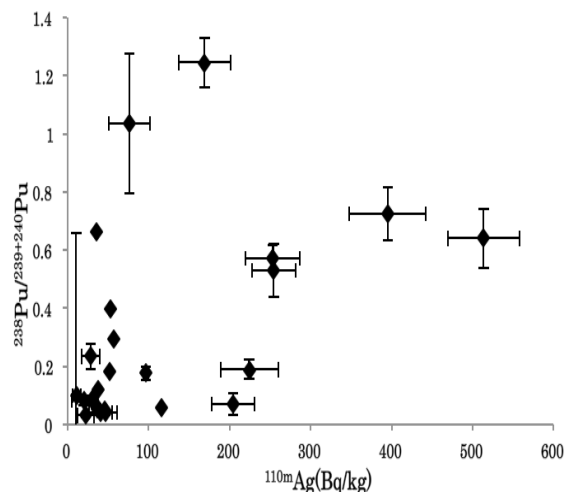


図4  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の関係

ニタリングの結果では、高汚染地域である福島県双葉郡浪江町を流れる請戸川および高瀬川の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は  $130 - 1100\text{ mBq}/\text{L}$  であった。この値は原子炉からの継続漏えいが懸念される福島第一原発近海を上回るものであった。土壤中でセシウムは粘土鉱物に不可逆的に吸着していると考えられており溶存態と

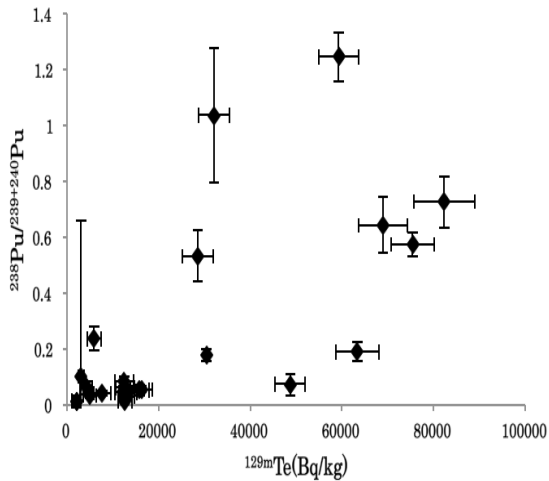


図5  $^{129m}\text{Te}$  と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の関係

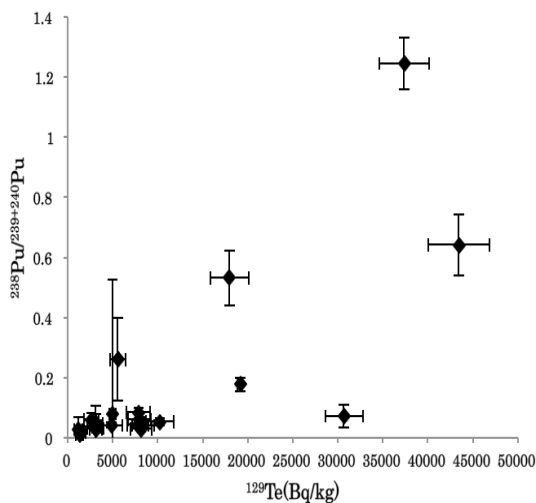


図6  $^{129m}\text{Te}$  と  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  比の関係

しての河川水への流出は少ないが、吸着量に対して極微量ずつ溶出している影響が表れていると考えられる。同河川水試料について $^{90}\text{Sr}$ 濃度の分析結果は得られていないが、過去の研究から $^{90}\text{Sr}$ はより土壤中から溶出しやすい傾向を持つことが示されている。

土壌試料においては福島第一原発より北西方向に飛散した高濃度プルームにより汚染された浪江町赤宇木で最も高い $^{90}\text{Sr}$  ( $166 \pm 24 \text{ Bq kg}^{-1}$ )および $^{137}\text{Cs}$  ( $72,200 \pm 200 \text{ Bq kg}^{-1}$ )濃度が観察された(図7)。一方で福島市や郡山市では $^{90}\text{Sr}$ 濃度については事故以前のバックグラウンド値と区別できない $10 \text{ Bq kg}^{-1}$ 以下の値であった。また、土壌試料の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は $0.0002 \sim 0.0023$ であり、平均値は $0.0013$ であり、文部科学省によって実査されたモニタリング結果と整合的であった。これに対して2012年に採捕されたサクラマス骨格中の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は $0.0036$ であり、土壌よりも高い値が得られた。さらに2013年では濃度には現象が見られたものの放射能比は $0.0071$ まで増加しており、2種の放射性核種の動態に大きな相違が生じていることを示している(図8)。チェルノブイリ事故以降の環境試料の分析結果では、放

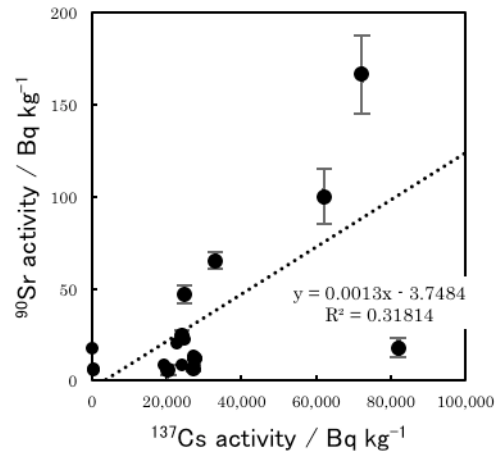


図7 福島県において採取した土壌試料中の $^{137}\text{Cs}$ および $^{90}\text{Sr}$ 濃度

出後3~5年程度の期間で土壌からの移行性成分の流出はおさまり、10年以降では生態学的半減期は核種の物理学的半減期に近づくことが指摘されている。今後も土壌に加え、環境動態を把握することが可能なモニタリング体制を維持することが必要となる。

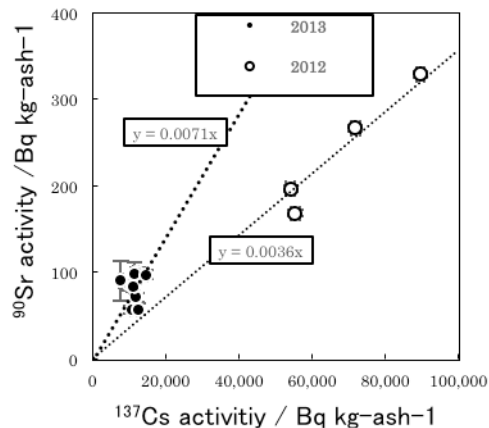


図8 請戸川で採捕されたサクラマス骨試料中の $^{137}\text{Cs}$ および $^{90}\text{Sr}$ 濃度

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計5件)

- ① Bu, W. T., M. Fukuda, J. Zheng, T. Aono, T. Ishimaru, J. Kanda, G. Yang, K. Tagami, S. Uchida, Q. J. Guo, M. Yamada, Release of Pu isotopes from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident to the marine environment was negligible. Environmental Science and Technology, 査読有, 48(16), 2014, 9070-9078. DOI:10.1021/es502480y
- ② Kang, D.-J., H. Tazoe, M. Yamada, Y. Ishii, Differences in remediation effect of  $^{137}\text{Cs}$  in Napiergrass (*Pennisetum purpureum* Schum.) under different land-use soil and cutting

- frequency conditions. *Water, Air & Soil Pollution*, 査読有, 225(7), 2014, DOI: 10.1007/s11270-014-2022-x
- ③ Bu, W. T., J. Zheng, Q. J. Guo, T. Aono, K. Tagami, S. Uchida, H. Tazoe, M. Yamada, Ultra-trace determination of plutonium in small size seawater by SF-ICP-MS with application to Fukushima seawater samples. *Journal of Chromatography, A*, 査読有, 1337, 2014, 171-178.  
DOI: 10.1016/j.chroma.2014.02.066
- ④ Hosoda, M., S. Tokonami, H. Tazoe, A. Sorimachi, S. Monzen, M. Osanai, N. Akata, H. Kakiuchi, Y. Omori, T. Ishikawa, S. K. Sahoo, T. Kovács, M. Yamada, A. Nakata, M. Yoshida, H. Yoshino, Y. Mariya, I. Kashiwakura, Activity concentrations of environmental samples collected in Fukushima Prefecture immediately after the Fukushima nuclear accident. *Scientific Reports*, 査読有, 3, 2013, 2283.  
DOI: 10.1038/srep02283
- ⑤ Tazoe, H., M. Hosoda, A. Sorimachi, A. Nakata, M. A. Yoshida, S. Tokonami, M. Yamada, Radioactive pollution from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in the terrestrial environment. *Radiation Protection Dosimetry*, 査読有, 152(1-3), 2012, 198-203.  
DOI: 10.1093/rpd/ncs222

〔学会発表〕(計5件)

- ① Masatoshi Yamada, Understanding of the distribution of radioactive materials in sea and seafloor sediment. International Symposium of Interdisciplinary Study on Environmental Transfer of Radionuclides from the Fukushima Daiichi NPP Accident. 2015年1月9日, 筑波大学(茨城県・つくば市)
- ② 山田 正俊, 福島第一原子力発電所事故により放出された放射性核種の海水・沈降粒子・海底堆積物における分布の実態, 2014年度日本地球化学会第61回年会, 2014年9月18日, 富山大学(富山県・富山市)
- ③ 山口 朋子, 山田 正俊, 田副 博文, 葛西 宏介, 中田 章史, 細川 洋一郎, 土壌中の放射能比分析による福島第一原子力発電所事故由来のプルトニウムの飛散状況の把握, 平成25年度青森県診療放射線技師学術大会, 2013年11月30日, 弘前大学(青森県・弘前市)
- ④ Hirofumi Tazoe, Takeyasu Yamagata, Hajime Obata, Masatoshi Yamada, Determination of strontium-90 in seawater using TODGA chelating resin. The 23rd V. M. Goldschmidt Conference, 2013年8月28日, Florence (Italy)
- ⑤ Masatoshi Yamada, Jian Zheng, Tatsuo Aono, Pu-239 and Pu-240 inventories and Pu-240/ Pu-239 atom ratios in the water column off Sanriku, Japan. European Geosciences Union General Assembly 2013, 2013年4月9日, Vienna (Austria)

〔図書〕(計1件)

- ① 山田 正俊 他, 丸善出版, 同位体環境分析, 2013, 99-124.

〔その他〕

アウトリーチ活動

- ① 公開講座  
山田 正俊, 原発事故により放出された放射性物質の海洋における動態, 震災から4年を迎えるにあたって-シンポジウム「放射線と環境・食の安全」, 2015年3月14日, 東京大学(東京都・文京区)
- ② 高校生体験教室  
山田 正俊, 環境中で放射性物質はどのように動くの? 2014年度「化学への招待」弘前大学一日体験化学教室, 2014年8月6日, 弘前大学(青森県・弘前市)
- ③ 市民公開講座  
山田 正俊, 福島第一原子力発電所事故起源放射性物質の海洋への影響: 最新の研究動向, 日本放射線影響学会第56回大会市民公開講座, 2013年10月20日, ホテルクラウンパレス青森(青森県・青森市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山田 正俊 (YAMADA, Masatoshi)  
弘前大学・被ばく医療総合研究所・教授  
研究者番号: 10240037

(2) 研究分担者

田副 博文 (TAZOE, Hirofumi)  
弘前大学・被ばく医療総合研究所・助教  
研究者番号: 60447381