

宮城県環境放射線監視センター年報

第8巻

令和4年

宮城県環境放射線監視センター年報

ANNUAL REPORT

OF

MIYAGI PREFECTURE ENVIRONMENTAL RADIATION

MONITORING CENTER

VOL.8 (2022)

第八巻

令和四年

宮城県環境放射線監視センター



この「宮城県環境放射線監視センター年報」は145部作成し、1部当たりの印刷単価は1,056円となっています。

はじめに

本県の東北電力(株)女川原子力発電所を対象とした環境放射線・放射能の測定・監視は、昭和56年度に女川町内に「宮城県原子力センター」を設置して開始しました。しかし、平成23年3月に発生した東日本大震災により当センターが全壊し、また、東京電力(株)福島第一原子力発電所の影響により県内全域、特に県南地域の環境放射線等の測定・監視が加わったことから、平成27年4月に、仙台市内に再建し、「宮城県環境放射線監視センター」と名称も変更して新たにスタートを切っており、9年目を迎えております。

このたび、令和4年度における当センターの活動状況について、「宮城県環境放射線監視センター年報 第8巻」としてとりまとめました。

令和4年度は、原子力災害対策指針補足参考資料「平常時モニタリングについて」に基づき、緊急事態が発生した場合への平常時からの備えとして、関係する市町等と連携して土壌採取計画等を作成し、環境試料中の放射性物質濃度測定に取り組み、東北電力(株)女川原子力発電所2号機の再稼働に備えました。

同発電所2号機の再稼働が近づいてきており、県民の安全、安心のための発電所周辺環境における適切な環境放射線・放射能の監視測定という当センターの使命は重みを増しており、身が引き締まる思いです。

最後になりますが、本年報の発刊に当たりまして御指導、御助言をいただきました関係各位に御礼を申し上げますとともに、広く県民及び関係者の方々に御高覧いただき、参考にしていただければ幸いに存じます。

令和6年1月

宮城県環境放射線監視センター
所長 長谷部 洋

目 次

はじめに

第8巻(2022)

I 宮城県環境放射線監視センター概要	1
II 論文	
1 宮城県の土壌及び海底土におけるプルトニウム起源の推定	7
高橋稜、有田富和、安達里美、杉山照徳、長谷部洋	
III 技術報告	
1 ダストモニタによる大気中放射性物質濃度の監視について(中間報告)	13
木村幸由、高群富貴、杉山照徳、長谷部洋	
2 2023年1月14日～15日の指標線量率上昇について	41
木村幸由、高群富貴、杉山照徳、長谷部洋	
IV 資料	
資料1 宮城県における環境放射能核種分析結果	46
(1) Ge半導体検出器による分析結果	49
(2) Sr-90分析結果	63
(3) H-3分析結果	63
(4) 原子力規制庁委託調査結果	64
資料2 環境試料の放射化学分析結果	68
資料3 緊急事態が発生した場合への平常時からの備えとして実施した 環境試料中の放射性物質濃度の測定結果	75
資料4 モニタリングステーションにおける冬期エアコン設定温度の見直し	78
資料5 可搬型モニタリングポストのバッテリー保持時間の試験結果	81
資料6 市販の空気清浄機による測定室のラドン及びトロンの娘核種 低減の試み	83
資料7 近年の牡鹿半島周辺海域の褐藻類からの ¹³¹ Iの検出状況	84

C o n t e n t s

Preface

I	Outline of Miyagi Prefecture Environmental Radiation Monitoring Center -----	1
II	Papers	
1	Estimation of Plutonium Origin in terrestrial and seafloor soils of Miyagi Prefecture -----	7
	<i>Ryo Takahashi, Tomikazu Arita, Satomi Adachi, Akinori Sugiyama and Hiroshi Hasebe</i>	
III	Technical Papers	
1	Monitoring of adioactivity concentrations of airborne dust with the Radioactive Dust Monitor (interim report) -----	13
	<i>Yukiyoshi Kimura, Tomitaka Takamure, Akinori Sugiyama and Hiroshi Hasebe</i>	
2	The increase in the Artificial Dose Rate on January 14th to 15th, 2023 -----	41
	<i>Yukiyoshi Kimura, Tomitaka Takamure, Akinori Sugiyama and Hiroshi Hasebe</i>	
IV	Data	
1	Results of Radionuclide Analysis of Environmental Samples -----	46
(1)	Results of Gammaray Spectrometry with Gedetectors -----	49
(2)	Results of Sr-90 Analysis -----	63
(3)	Results of H-3 Analysis -----	63
(4)	Fallout Survey Data in Miyagi Prefecture -----	64
2	Results of Radiochemical Analysis of Environmental Samples -----	68
3	Results of Radionuclide Analysis of Environmental Samples Conducted in Preparation for Nuclear Disaster -----	75
4	Change the temperature setting of air conditioner at Monitoring Stations in winter -----	78
5	Test results of battery retention time of Portable Posts for Radiation Monitoring -----	81
6	Attempts to reduce radon and thoron daughter nuclides in a radioactivity measurement room using a commercial air purifier -----	83
7	Detection of Iodine-131 in Brown Alga Arame (<i>Eisenia bicyclis</i>) from Oshika Peninsula Coast in Recent Years -----	84

I 宮城県環境放射線監視センター概要

1 所在地

宮城県仙台市宮城野区幸町四丁目7-1-2

国土地理院承認 平14総復 第149号



図-1 位置図

2 組織及び名簿（令和4年度）

職名（担当）		氏 名	配属年月日
所 長		長谷部 洋	R 4. 4. 1
総括次長兼技術次長（班長）		杉 山 照 徳	R 4. 4. 1
庶務担当	次 長（庶務担当）	佐 藤 英 明	R 4. 4. 1
	主 査	照 井 幹 雄	H 30. 4. 1
	主 事	石 尾 佳 織	R 4. 4. 1
監視測定班	副主任研究員（副班長）	有 田 富 和	R 2. 4. 1
	研究員（副班長）	高 群 富 貴	R 4. 4. 1
	研究員	安 達 里 美	R 4. 4. 1
	研究員	木 村 幸 由	H 30. 4. 1
	研究員	伊 藤 節 男	H 26. 4. 1
	技 師	高 橋 稜	R 2. 5. 1

3 決算（令和4年度歳入歳出決算書から事業関連を抜粋）

歳 出

単位：円（令和5年5月31日現在）

科 目	決 算 額	摘 要
(通常予算)		
02 総務費		
10 生活環境費		
07 環境放射能監視測定費	133,288,494	環境放射能監視測定事業

4 主要設備・機器（重要物品）

令和5年3月31日現在

区分	名称	メーカー・型式等	数量	取得年度	備考
監視・測定用	1 標準線量計	ポニー工業(株)・AE-1326他	1台	H17	
	2 ダスト・ヨウ素サンプラー	応用光研工業(株)・S-2766	1台	H18	女川局
	3 蛍光ガラス線量計	AGCテクノグラス(株)・FGD-252	1台	H19	
	4 O γ 線標準照射装置	ポニー工業(株)・PSR-102MS型	1台	H22	
	5 高純度ゲルマニウム半導体検出器	ORTEC(セイコー・インジニアーズ(株)・GMX25P4-70-RB-B他	1台	H23	監視Ge1、サンプルチェンジャー付
	6 可搬型モニタリングポスト	応用光研工業(株)・HND-304A 他	6台	H23	(R5.1.18廃棄)
	7 可搬型モニタリングポストデータ処理装置	応用光研工業(株)・FC-S21W 他	1式	H23	
	8 ポータブルゲルマニウム γ 線核種分析装置	セイコー・インジニアーズ(株)・Trans-SPEC-DX-100T 他	1台	H23	
	9 検体採取車	トヨタハイエース、2690cc	1台	H23	
	10 移動観測車	スバルフォレスター、1990cc	1台	H23	NaI検出器(スペクトル解析可)搭載
	11 広域モニタリングステーション	富士電機(株)・アルミサンドイッチパネル 他	10式	H24	石巻稲井局、雄勝局、河南局、河北局、北上局、鳴瀬局、南郷局、涌谷局、津山局、志津川局
	12 電離箱式検出器	富士電機(株)・NCE207K	10式	H24	
	13 自動液体濃縮装置	(株)星理科学器械・マントルヒーター他	1式	H24	
	14 ゲルマニウム半導体検出器ダストヨウ素モニタ	日立アロカティカル(株)・DSM-R41-22843	1台	H26	寄磯局
			1台	H27	小屋取局
15 低バックグラウンドベータ線自動測定装置	日立アロカティカル(株)・LBC-4202B	1台	H26		

区分	名称	メーカー・型式等	数量	取得年度	備考	
監視・測定用	16	消臭・脱煙装置付き電気炉	(株)東京技術研究所・TFF80-C	2台	H26	
	17	消臭・脱煙装置	(株)東京技術研究所・VM-B	3台	H26	
	18	Ge半導体検出器用予備電気冷却装置	セイコー・イメージアントロジー(株)・CFG-X-COOL-III-115	1台	H26	
	19	ICP発光分光分析装置	サーモフィッシャーサイエンティフィック(株)・iCAP7000シリーズ	1台	H26	
	20	マイクロ波試料前処理装置	マイルストーンセネラル(株)・ETHOS UP	1台	H26	
	21	低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ	日立アロカメディカル(株)・LSC-LB7	1台	H26	
	22	ハンドフットクロズモニタ	日立アロカメディカル(株)・MBR-201H	1台	H26	
	23	MS点検車	ホンダフリードスパイク、1490cc	1台	H26	
	24	電離箱式検出器	(株)日立製作所・RIC-338	7台	H29	女川局、小屋取局、寄磯局、飯子浜局、鮫浦局、谷川局、荻浜局
	25	電離箱式検出器収納筐体	(株)日立製作所・OVN-R41-23078	3台	H29	女川局、小屋取局、寄磯局
	26	電離箱式検出器収納筐体	(株)日立製作所・OVN-17	4台	H29	飯子浜局、鮫浦局、谷川局、荻浜局
	27	高線量率測定装置(電離箱検出器用線量率測定演算部)	(株)日立製作所・ASE-1452	7台	H29	女川局、小屋取局、寄磯局、飯子浜局、鮫浦局、谷川局、荻浜局
	28	低線量率測定装置(NaI検出器用線量率測定演算部)	(株)日立製作所・ASM-1465	7台	H29	女川局、小屋取局、寄磯局、飯子浜局、鮫浦局、谷川局、荻浜局
	29	ゲルマニウム半導体検出器用大型遮蔽体		1台	H29	
	30	ゲルマニウム半導体検出器(GEM型)	セイコー・イメージアントロジー(株)・GEM25-70	1台	H29	監視Ge 2
	31	検出器冷却用液体窒素凝縮装置	ORTEC社製・MOBIUS Recycler	1台	H29	監視Ge 2用
	32	オートサンプルチェンジャー付き鉛遮蔽体		1台	H29	監視Ge 2用
	33	解析用ソフトウェア	Gamma Station	1式	H29	
34	検出器冷却用液体窒素凝縮装置	ORTEC社製・MOBIUS Recycler	1台	R1	監視Ge 1用	

区分	名称		メーカー・型式等	数量	取得年度	備考
監視・測定用	35	可搬型モニタリングポスト	(株)日立製作所・MAR-5700B 他	5台	R2	緊急時用
				2台	R2	監視用
	36	ダストモニタ	(株)日立製作所・MDR-3000 他	2台	R2	飯子浜局、鮫浦局
	37	可搬型モニタリングポスト用サーバー	FUJITSU(株)・ServerPRIMERGY RX1330 M4	1台	R2	
	38	マルチチャンネルアナライザー	セイコー・インジニアリング(株)・MCA-7a/M7-010型	1台	R3	監視Ge 1用
広報	1	可搬型モニタリングポスト	応用光研工業(株)・HND-304A 他	2台	H23	白石局、山元局 (R5. 1. 18廃棄)
				1台	H23	丸森局 (R5. 1. 18廃棄)
その他	1	原子力防災用車両	トヨタアルファードハイブリッド	1台	H24	
	2	大気モニタ	富士電機(株)	19台	H30	
	3	大気モニタ等データ収集・伝送装置	富士電機(株)	1台	H30	
	4	オートサンプルチェンジャー付きヨウ素サンプラ	富士電機(株)	5台	H30	
	5	簡易型放射線量等測定器	富士電機(株)	1台	R3	

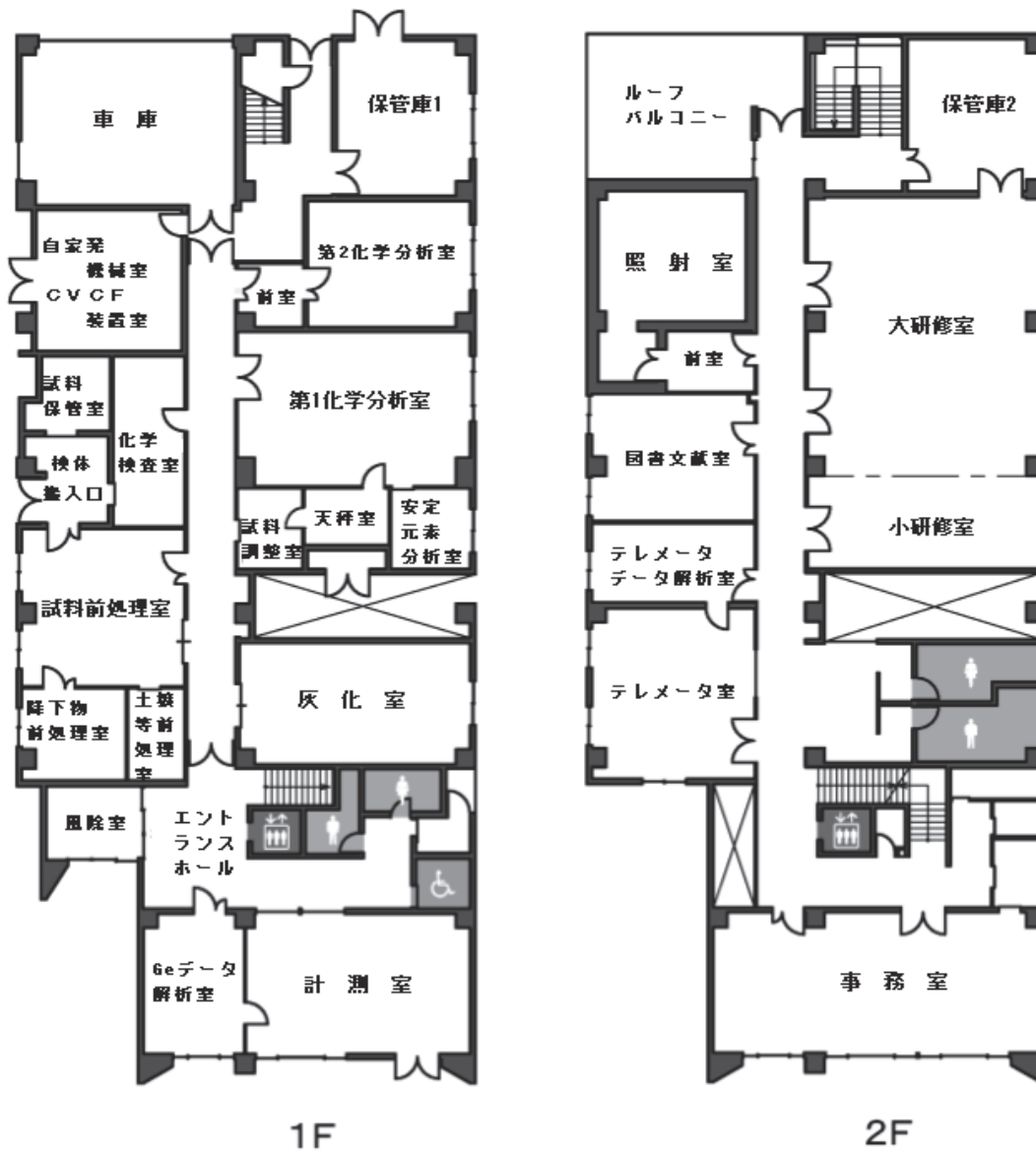


図-2 環境放射線監視センター配置図

◎女川原子力発電所周辺監視

- 周辺モニタリングステーション (既設3局、再建4局)
- 広域モニタリングステーション (10局)



周辺モニタリングステーション
(既設局)



周辺モニタリングステーション
(再建局)



広域モニタリングステーション

◎福島第一原子力発電所事故対応

- ◆ 県南地区設置可搬型モニタリングポスト (3局) ※
- ▲ 水準調査用固定型モニタリングポスト (7局)



県南地区設置
可搬型モニタリングポスト ※

※ R4.9.30をもって測定終了



水準調査用
固定型モニタリングポスト



緊急時モニタリング用
電子式線量計

◎緊急時モニタリング対応

- 電子式線量計 (50局)

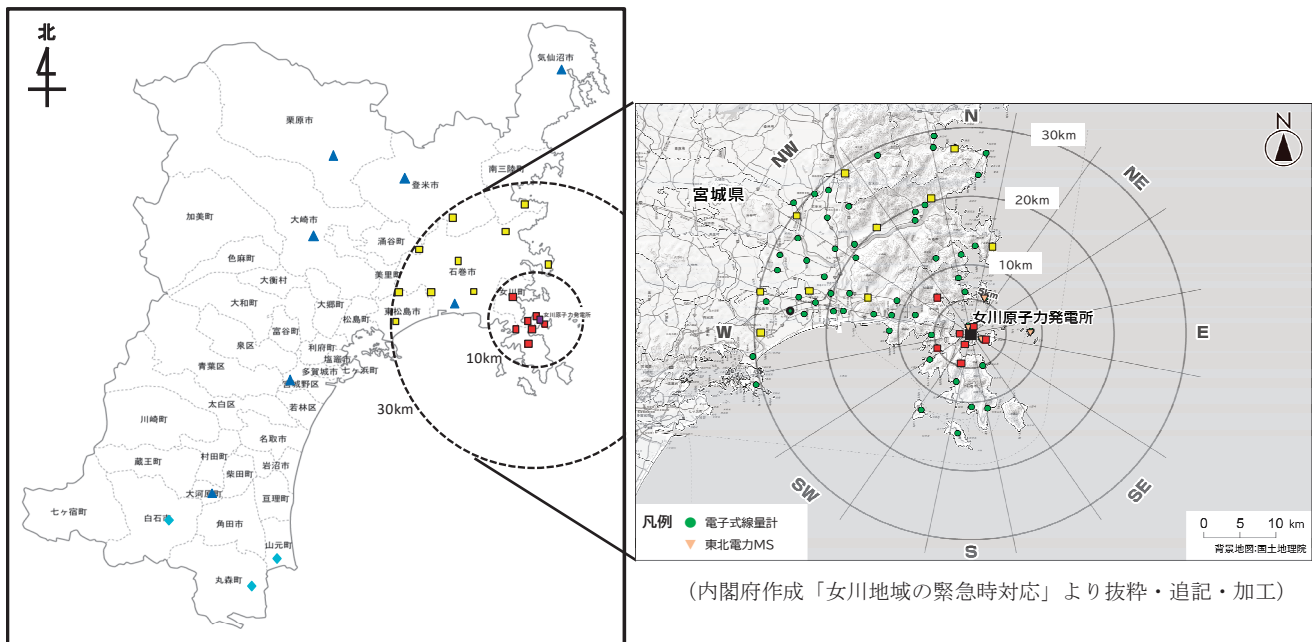


図-3 放射線測定装置配置図

II 論文

宮城県の土壌及び海底土におけるプルトニウム起源の推定

高橋稜*、有田富和、安達里美、杉山照徳、長谷部洋

* 元宮城県環境放射線監視センター

宮城県では2003年度より、平常時におけるバックグラウンドの把握や環境中における人工放射性核種の挙動解析等を目的として、種々の環境試料についてプルトニウムを継続的に測定してきた。今回、データが蓄積できた試料のうちから土壌1地点と海底土2地点の測定結果に着目し、 α 線スペクトロメトリー法による ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ の測定値から $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比を、ICP-MS法による ^{239}Pu 及び ^{240}Pu の測定値から $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を算出し、プルトニウムの起源推定を行ったので報告する。2011-2022年の土壌における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の平均値は 0.17 ± 0.01 ($n=12$) であり、過去の大気圏内核実験に伴ういわゆるグローバルフォールアウト ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比0.18) の影響を大きく受けているものと推定された。2011-2012年の ^{238}Pu が検出された海底土1地点における $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は0.014であり、グローバルフォールアウトの比0.03と比べて低い値となった一方、2011-2022年の海底土2地点における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の平均値はそれぞれ 0.244 ± 0.004 ($n=12$)、 0.239 ± 0.006 ($n=11$) であり、その比の高いビキニ核実験 (1946~1956年) 由来のプルトニウムによる影響が認められた。

1 はじめに

宮城県では、2010年3月18日に県、女川町及び石巻市が了解した東北電力株式会社女川原子力発電所 (以下「女川原発」という。) 3号機のプルサーマル計画を契機とし、プルサーマル開始前後の数値を比較考察するため、種々の環境試料について2003年度よりプルトニウム分析を委託により開始した。しかしながら、実際のところは2011年3月に発生した東日本大震災により、女川原発は現在に至るまで運転を停止している状況であり、プルサーマル開始前後の測定値比較は実施できていない。

一方で、1986年4月26日に発生したチェルノブイリ原子力発電所事故 (以下「チェルノブイリ原発事故」という。) や、1964年4月21日に発生したアメリカ合衆国の人工衛星 (SNAP-9A) 打ち上げ失敗による ^{238}Pu の大気圏内への拡散等による影響を観察するため、2012年度まで ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ について過去に採取した試料も含め分析を継続的に実施してきた。2014年度からは ^{238}Pu のフォールアウトによる影響がほぼ認められない状況を鑑み、 ^{238}Pu を測定対象外とし、代わりに高分解能型誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 法を用いて ^{239}Pu と ^{240}Pu を弁別して測定することとした。これはプルトニウムの同位体の中で核兵器級プルトニウムの大部分を占めるのが ^{239}Pu であり、仮に高濃度のプルトニウムが検出された場合に、その起源が核実験等による核兵器由来であるか、原子力発電所由来であるかを判断する上での1つの指標とすることを目的としている。2022年度現在でも宮城県内で採取した種々の環境試料から、微量ではあるものの ^{239}Pu 、 ^{240}Pu が継続して検出されている状況である。

今回はこれまで得られた土壌及び海底土における ^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu の各放射能濃度の値を用いて $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を算出し、宮城県において検出されているプルトニウムの起源推定について検討を行った。

2 方法

2.1 試料採取地点

土壌及び海底土の採取地点を図1に示す。宮城県内において土壌1地点、海底土2地点で採取した試料のデータを用いた。

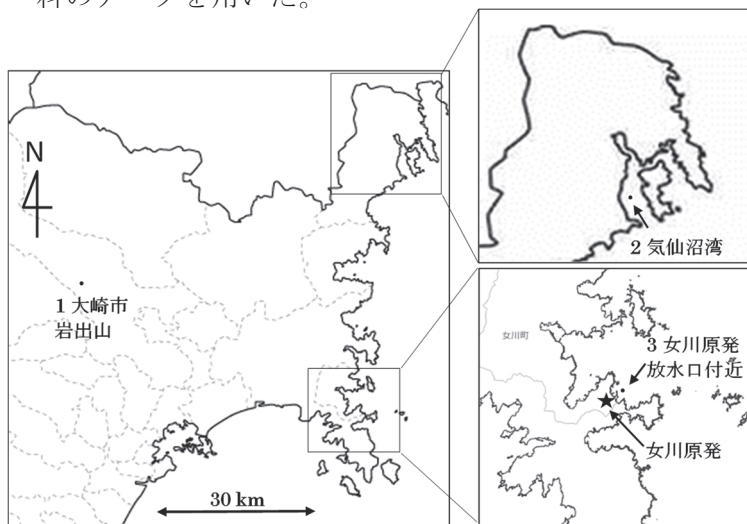


図1 試料採取地点
地点1：土壌 地点2、3：海底土

2.2 採取方法・前処理・測定方法

試料採取は放射能測定法シリーズNo. 16環境試料採取法（文部科学省）に従い実施した。また、前処理及び測定は放射能測定法シリーズNo. 12プルトニウム分析法及びNo. 28環境試料中プルトニウム迅速分析法（文部科学省）に従う方法にて公益財団法人日本分析センターに分析を委託し、 α 線スペクトロメトリ（ORTEC社製BU-020-450-AS等）及びICP-MS（サーモフィッシャーサイエンティフィック社製二重収束型高分解能ICP-MS ELEMENT-2）にて測定を行った。

分析フローは図2のとおり。なお、今回は毎年連続してデータを取得している2011年度から2022年度までの測定結果を用いた。全国のデータは、原子力規制庁の委託により公益財団法人日本分析センターが運営・管理している環境放射線データベース¹⁾を用いて算出した。

3 結果及び考察

3.1 土壌

大崎市岩出山で採取した土壌（ $n=12$ ）については、 ^{238}Pu の検出事例はないものの、 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu は微量ながら継続的に検出されており、測定値の範囲はそれぞれ0.026~0.067 Bq/kg-dry、0.013~0.041 Bq/kg-dryであった（図3、個々の測定値は本年報資料2に掲載）。各放射能濃度の合計値として算出した $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は全国の測定値（2021年度測定分）¹⁾の範囲内であり、国内水準と同程度であることが分かった。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は0.14~0.18の範囲であり、その平均値は 0.17 ± 0.01 （ $n=12$ ）であった。この $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の値は原子炉や核兵器の種類、核燃料の種類や燃焼時間などによって大きく異なることが知られており、環境中で

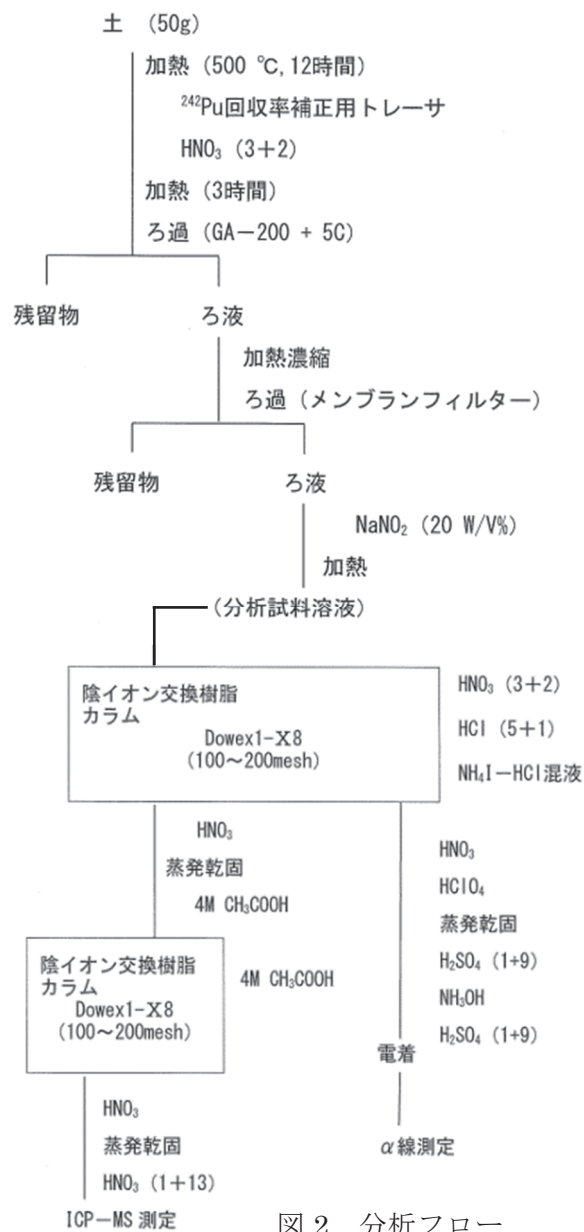


図2 分析フロー

のプルトニウム動態解明に有効な指標の1つとされている^{2, 3)}。日本の一般環境における表層土壌中の²⁴⁰Pu/²³⁹Pu同位体比は約0.17程度とされており⁴⁾、加えて過去の大気圏内核実験に伴うフォールアウト（以下「グローバルフォールアウト」という。）の同位体比は0.18であることから²⁾、今回検出された²³⁹Pu及び²⁴⁰Puは当該事象の影響を大きく受けているものと推定された。

一方、石川⁵⁾によると、1990年11月30日に女川町で採取した山林土壌の²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu放射能比は約0.3であり、チェルノブイリ原発事故起因の核種の比である0.4~0.5⁶⁾に比較的近かった。このことから、宮城県内における土壌については主としてグローバルフォールアウトの影響を受けているものの、一部チェルノブイリ原発事故由来のプルトニウムによる影響も示唆される結果であった。

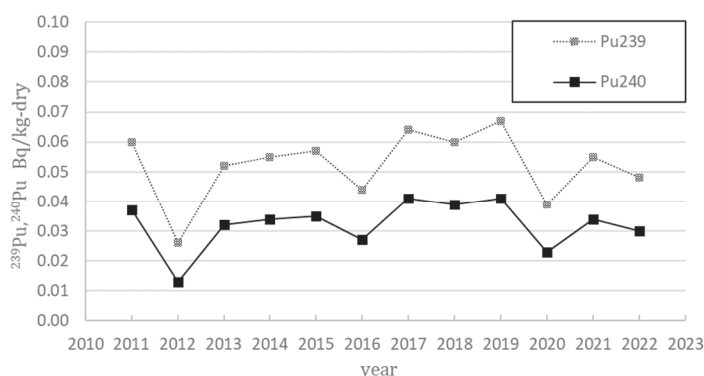


図3 土壌（大崎市岩出山）の²³⁹Pu、²⁴⁰Pu放射能濃度推移*

* 計数誤差（σ）は測定値に比べ極めて小さい

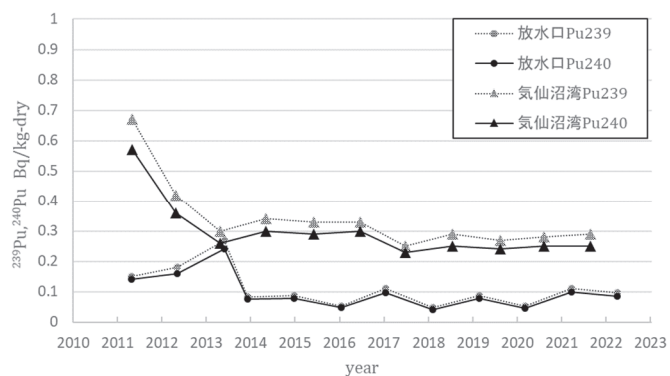


図4 海底土の²³⁹Pu、²⁴⁰Pu放射能濃度推移*

* 計数誤差（σ）は測定値に比べ極めて小さい

3.2 海底土

放水口付近と気仙沼湾で採取した海底土は2011年度と2012年度において同一試料に対しα線スペクトロメトリーとICP-MSの両測定法による分析を実施し、²³⁸Pu、²³⁹⁺²⁴⁰Pu、²³⁹Pu、²⁴⁰Puのデータを取得した（表1）。

表1 α線スペクトロメトリーとICP-MSによる海底土中Pu濃度の分析結果* 単位：Bq/kg-dry

分析法		α線スペクトロメトリー		ICP-MS		
対象核種		²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	
海底土	放水口	2011	N D	0.28±0.018	0.15±0.0007	
		2012	N D	0.33±0.021	0.18±0.003	
	気仙沼湾	2011	0.017±0.0040	1.2±0.06	0.67±0.001	0.57±0.004
		2012	0.011±0.0033	0.79±0.041	0.42±0.010	0.36±0.009

*誤差は計数誤差を表す。

²³⁸Puが検出された気仙沼湾の海底土について²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu放射能比を算出したところ、その値は2011、2012年度いずれも0.014であり、グローバルフォールアウトの比0.03⁷⁾と比べて低い値となった。2011-2022年度の放水口付近における²³⁹Puと²⁴⁰Puの測定値範囲はそれぞれ0.047~0.27 Bq/kg-dryと0.042~0.24 Bq/kg-dryであり、一方、2011-2021年度の気仙沼湾に

における ^{239}Pu と ^{240}Pu はそれぞれ 0.25~0.67 Bq/kg-dry と 0.23~0.57 Bq/kg-dry であった (図 4)。放水口付近と気仙沼湾の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比はいずれも 0.23~0.25 の範囲で非常に良く一致しており、その平均値はそれぞれ 0.244 ± 0.004 ($n=12$)、 0.239 ± 0.006 ($n=11$) であった。なお、放水口付近よりも気仙沼湾の方が ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ の値が高めの理由については、 ^{137}Cs も同様の傾向であることから⁸⁾、粒径や有機物量などの土質の違いが関係しているものと考えられる^{9、10)}。

太平洋におけるプルトニウム同位体の主要な起源は、先述した 1950 年代から 1960 年代初めのグローバルフォールアウトと 1946 年から 1958 年にかけてアメリカ合衆国太平洋核実験場のあったマーシャル諸島ビキニ及びエネウエタック環礁で行われた核実験(通称:ビキニ核実験)による放射性降下物の 2 つに大別され、全海洋に存在する $^{239+240}\text{Pu}$ の総量 12 PBq のうち、太平洋には約 7 割に相当する 8.6 PBq の $^{239+240}\text{Pu}$ が存在すると見積もられている¹¹⁾。

山田²⁾によるとビキニ核実験起源の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は 0.30~0.36 とされており、グローバルフォールアウトの比である 0.18 より高い値を示す。また、山田³⁾は日本沿岸の堆積物中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を調べて海域によりその比が起源の変動を反映していることを明らかにし、東シナ海や相模湾では北赤道海流・黒潮の影響によりビキニ核実験由来の Pu が約 50%、日本海では対馬海流の影響もあり約 20%、オホーツク海では約 10%、釧路沖ではそのほとんどがグローバルフォールアウト起源であると述べている。

今回算出した放水口付近と気仙沼湾における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の平均値はそれぞれ 0.244 ± 0.004 ($n=12$)、 0.239 ± 0.006 ($n=11$) であり、グローバルフォールアウト値である 0.18 より有意に高い値を示した。このことから、宮城県沿岸部においてもグローバルフォールアウトに加え、ビキニ核実験起源のプルトニウムが北赤道海流を経て、黒潮又は対馬海流から津軽海峡を回り込んで流れ込む津軽暖流の影響を受け、堆積しているものと推定された。

3.3 土壌と海底土の比較

図 3 と図 4 に示すように、2011-2022 年の ^{239}Pu と ^{240}Pu の放射能濃度は土壌と比較し海底土の方が一桁程度高い値であった。また、土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は 0.17 程度でグローバルフォールアウトの比とほぼ同値であることが確認できた一方、海底土のその比は 0.242 と有意に高い値を示した。加えて、 ^{238}Pu が検出された気仙沼湾の海底土における $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は 0.014 となり、グローバルフォールアウトの比 0.03 と比べて低い値であった。

以上の結果となった理由として、山田²⁾が述べているように、海底土においては太平洋でのビキニ核実験を起源とする $^{239+240}\text{Pu}$ の環境中(主に海中)への放出による影響が、グローバルフォールアウトやチヨルノービリ原発事故による大気中からの ^{238}Pu の影響に比べて大きく作用していることが要因の 1 つであると考えられた。なお、気仙沼湾には岩手県境を上流端とする二級河川「大川」が流入しており、当該河川が海底土のプルトニウム分析結果に及ぼす影響についても今後検討の余地がある。

4 まとめ

宮城県で採取した土壌及び海底土のプルトニウム分析結果より、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比や $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を調べることによって、下記の結果が得られた。

- (1) ^{239}Pu 及び ^{240}Pu の放射能濃度は、土壌と比較し海底土の方が一桁程度高い値であった。
- (2) 2011-2022 年の大崎市岩出山の土壌における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の平均値は 0.17 ± 0.01 ($n=12$) であり、グローバルフォールアウトの影響を受けている日本の一般環境における表層土壌中の同位体比とほぼ同値であった。

- (3) 2011-2022 年の放水口付近と気仙沼湾の海底土における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比はほぼ 0.24 とグローバルフォールアウトの比 0.18 に比べて有意に高い値を示し、太平洋で行われたビキニ核実験由来と考えられる影響が認められた。
- (4) ^{238}Pu が検出された 2011-2012 年の気仙沼湾の海底土における $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は 0.014 となり、グローバルフォールアウトの比 0.03 と比べて低い値であったことから、主として $^{239+240}\text{Pu}$ が環境中へ放出されたビキニ核実験による影響と考えられ、前項の考察と矛盾しない結果であった。

今回、同じ「土」であっても地表と海底という所在の違いにより、存在するプルトニウムの起源に特徴があることについて、推定ではあるものの過去のプルトニウム放出事例と $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比・ $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比に基づき考察することができたことは意義が深いと考えられる。

謝辞

放射能分析・データ解析に関して多くの助言を頂いた元宮城県原子力センター所長の石川陽一氏に感謝します。

参考文献

- 1) 原子力規制委員会（公益財団法人日本分析センター） 「日本の環境放射能と放射線」（環境放射線データベース） <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/>
- 2) 山田正俊 「海洋におけるプルトニウム同位体の挙動について」、温泉科学(J. Hot Spring Sci.)、70、208-220 (2021)
- 3) 山田正俊 「海水、懸濁粒子、沈降粒子、及び堆積物中のプルトニウム同位体の分布と挙動」、放射線科学、52、No. 3、27-33 (2009)
- 4) 村松康行、吉田聡 「ICP-MS を用いた環境試料中の Pu、U、Th の分析」、Radioisotopes、48、472-487 (1999)
- 5) 石川陽一 「降下物と周辺土壌中の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及びプルトニウム同位体間の放射能比に関する一考察」、宮城県原子力センター年報、第 22 巻、30-36 (2004)
- 6) 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、249-257 (1989)
- 7) Yamamoto, M. et al, An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis on plutonium analysis, *Geochemical Journal*, 46, 341-353 (2012).
- 8) 宮城県 「令和 4 年度 女川原子力発電所 環境放射能調査結果及び過去調査結果の訂正」、21 (2023)
- 9) 佐藤信俊ほか 「県内海底土中の放射能調査(Ⅱ)」、宮城県原子力センター年報、第 6 巻、17-19 (1987)
- 10) Lujanienė, G. et al., Cs, Am and Pu isotopes as tracers of sedimentation processes in the Curonian Lagoon–Baltic Sea system, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 296:787–792 (2013).
- 11) Hamilton, T. F., Linking legacies of the cold war to arrival of anthropogenic radionuclides in the oceans through the 20th century. UCRL-BOOK-201419, U.S. Department of Energy, Office of Scientific and Technical Information (OSTI), <https://www.osti.gov/> (2003)

Estimation of Plutonium Origin in terrestrial and seafloor soils of Miyagi Prefecture

Ryo Takahashi, Tomikazu Arita, Satomi Adachi, Akinori Sugiyama and Hiroshi Hasebe

Since 2003, we have measured plutonium levels in various environmental samples collected in Miyagi Prefecture to investigate the background levels of man-made radionuclides and analyze their behavior. In order to estimate the origin of plutonium, we conducted analyses on these measurements in both terrestrial and seafloor soils. The average $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratio of terrestrial soils was 0.17 ± 0.01 ($n=12$), indicating a significant impact of radioactive fallout from past atmospheric nuclear weapon experiments ('Global Fallout'). On the other hand, the $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio of the seafloor soil was approximately 0.014, lower than the value of Global Fallout, and the average $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratios of the seafloor soil collected from the two sites were 0.244 ± 0.004 ($n=12$) and 0.239 ± 0.006 ($n=11$), respectively. These results suggest that a portion of the plutonium in the seafloor soil may have originated from the nuclear weapon experiments conducted at Bikini Atoll.