

長崎県における環境中のCs安定同位体の環境分布及び濃縮係数

前田 卓磨

Distribution and Concentration Factor of Stable Cesium Isotope in Aquatic Environment in Nagasaki Prefecture

Takuma MAEDA

キーワード：セシウム安定同位体、濃縮係数、海水、海産生物、ICP-MS

Key words: stable cesium isotope, concentration factor, sea water, marine organisms, ICP-MS

はじめに

九州電力株式会社玄海原子力発電所(佐賀県東松浦郡玄海町)から10km圏内は、原子力施設からの放射性物質又は放射線の放出による周辺環境への影響評価に資する観点から、「長崎県地域防災計画(原子力災害対策編)」(平成13年5月策定、平成21年6月修正)で防災対策を重点的に充実すべき地域の範囲(Emergency Planning Zone: EPZ)に指定されている。当センターでは、同計画の「長崎県緊急時環境放射線モニタリング計画」に基づき、平成13年度から平常時の環境放射能(線)モニタリング調査(以下、「モニタリング調査」という)を実施している。

また、モニタリング調査に関連して令和2年度より環境中のセシウム(Cs)の安定同位体(^{133}Cs)の挙動から人工核種(^{137}Cs 、半減期:30年)の濃縮係数を推測することを目的とした調査を実施しており、本稿で調査結果を報告する。

Csは生体の必須元素であるNa、Kと似た科学的性質を持ち、体内に取り込まれた場合全身に分布すると考えられるため¹⁾、 ^{137}Cs による内部被ばくの影響が懸念される。 ^{137}Cs 等の人工核種は過去の大気中核実験や原発事故により環境中に放出されたが、現在ではGe半導体検出器等による測定では不検出となる例があり、低濃度で推移していると考えられる。 ^{133}Cs は安定に天然で存在するCsの同位体であり、一般に同位体は同様の環境動態を示すと考えられるため²⁾、本調査では ^{133}Cs の環境中における分布を把握し、海産生物における放射性Csの濃縮係数を推測した。

^{133}Xe (キセノン)は原発事故の際に放出されるが³⁾、希ガスであるため拡散しやすく、観測することは技術的に難しいとされ、国内では高崎観測所(群馬県)

や日本分析センター(千葉県)で観測されている。 ^{133}Cs は ^{133}Xe の娘核種であり、 ^{133}Xe は半減期が約5日であるため、放出後は環境中の ^{133}Cs 濃度が上昇する可能性が考えられる。 ^{133}Cs の平常時における大気浮遊じん中の濃度を把握することで、事故発生時における ^{133}Xe 放出の形跡を調査できる可能性があるか検討を行った。

調査方法

1 調査地点及び試料採取

試料は令和2年度～令和3年度のモニタリング調査時に採取した。調査地点を図1に示す。海水と大気浮遊じんはすべての地点が玄海原子力発電所の30km圏内で、生体試料は鷹島町にある漁業協同組合で購入して分析に用いた。採取試料を表1に示す。

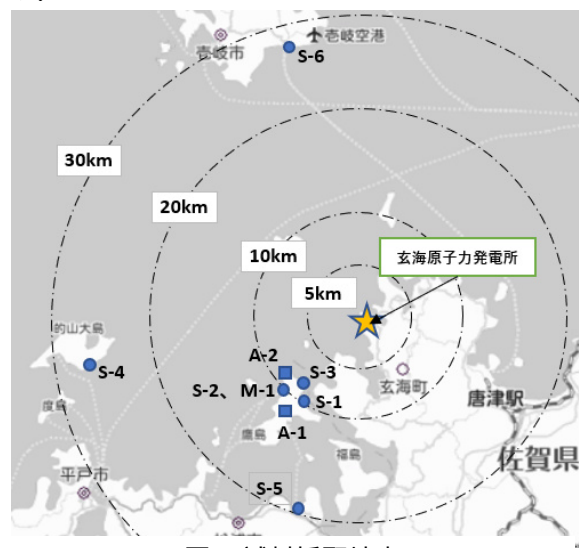


図1 試料採取地点

海水は20Lポリタンクで20Lを直接採取し、1L分取した試料をICP-MS分析に用い、残試料に塩酸を加え(5mL/試料1L)、Ge半導体検出器の分析に用いた。大気浮遊じんはハイボリュームエアサンプラーを用いて、24時間採取した(1m³/分、ろ紙:HE-40T、捕集面積:402.5cm²)。

2 分析方法

(1)¹³⁷Csの測定

¹³⁷Csは原子力規制庁の放射能測定法シリーズに準じて行った。海水はリンモリブデン酸アンモニウム-二酸化マンガン共沈法により¹³⁷Csを分離し、ガンマ線スペクトロメトリー(測定時間70,000秒)により測定した。生体試料は可食部以外を除去した後、105で24時間乾燥し、電気炉で450で48時間灰化した後、測定した。大気浮遊じんはろ紙から円形に12枚(4.8cm)打ち抜き、測定した。

(2)¹³³Csの測定

海水は孔径0.2μmのクロマトディスク(GLサイエンス製)を用いてろ過し、5%硝酸で10~100倍希釈して10mLに定容した。生体試料は灰化後の試料3mgに硝酸5mL、過酸化水素1mL、フッ化水素2mLを加え、マイクロ波試料前処理装置(マイルストーンゼネラル製 ETHOS-One)で240で酸分解した後、フッ化水素を蒸発させるため同装置で加熱濃縮し、5%硝酸で10mLに定容した。大気浮遊じんは打ち抜き後の残試料から正方形(一辺1cm)に一枚ポンチして生体試料と同様に分析した。分析機器はICP-MS(アジレント製 Agilent7700x)を用いた。

調査結果と考察

1 ¹³⁷Cs測定結果

表1に¹³⁷Csの測定結果を示す。トラフグを除く全試料においてND(不検出=検出限界値未満)であった。そこで、2011~2021年度のモニタリング調査の結果

表1 ¹³⁷Cs測定結果

採取試料	採取地点	試料数	¹³⁷ Cs	
海水	S-1	1	ND	Bq/L
	S-2	2	ND	
	S-3	2	ND	
	S-4	2	ND	
	S-5	2	ND	
	S-6	1	ND	
イカ		2	ND	Bq/kg生
トラフグ	M-1	2	ND~0.13	
ヒジキ		2	ND	
大気浮遊じん	A-1	4	ND	mBq/m ³

鷹島の漁業協同組合で購入

を整理した(表2)。海水とトラフグについては検出される割合が多いが、イカや海藻類(カジメ・ヒジキ)に

ついては少なかった。海水の¹³⁷Cs平均値は0.0021(Bq/L)であり、他地域における調査結果と一致した⁴⁾。なお、福島第一原発事故以前の我が国周辺海域の海水中¹³⁷Cs濃度は、0.0015~0.002(Bq/L)の範囲であり³⁾、本調査結果と近い値であった。濃縮係数は生体試料と海水試料の濃度比(式1)で算出した(海水の比重は1.024とした)。

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{生体試料の}^{137}\text{Cs放射能濃度(Bq/kg-wet)}}{\text{海水の}^{137}\text{Cs放射能濃度(Bq/kg)}} \quad \dots \text{式1}$$

表3にIAEAによる濃縮係数⁵⁾の推奨値を示す。結果を比較すると、イカについては本調査の数値が大きい値となったが、トラフグとカジメについては、概ね近い水準であった。また、カジメについては他地域の調査結果⁴⁾と近い値であった。

2 ¹³³Cs測定結果

表4に¹³³Csの測定結果を示す。海水の¹³³Cs平均値は0.31であり、他地域での調査結果⁴⁾とよく一致した。濃縮係数は式2で算出した(海水の比重は1.024とした)。

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{生体試料の}^{133}\text{Cs放射能濃度}(\mu\text{g/kg-wet)}}{\text{海水の}^{133}\text{Cs放射能濃度}(\mu\text{g/kg)}} \quad \dots \text{式2}$$

IAEA推奨値と比較すると、トラフグとヒジキについては低い値となり、イカについてはよく一致した。また、ヒジキについては、他地域での海藻の調査結果⁴⁾と概ね一致した。¹³⁷Csの測定結果による濃縮係数と比較すると、全体的に低い値となったが、大きな差はみられなかった。ただし、海水と生体試料の採取期間が異なることや、試料数が少ないことに留意する必要がある。¹³³Csと¹³⁷Csの原子数比を表5に示す。海水の原子数比は 2.0×10^{-9} であり、神奈川県三崎沖の調査結果²⁾と近い値であった。また、生体試料については、¹³⁷Csの検出数が1であったイカを除けば、概ね海水の結果と一致したため、調査地点における生物中の¹³⁷Csは海水中の¹³⁷Csと平衡状態にあることが推測された。

3 大気浮遊じんの測定結果

¹³⁷Csについては、2011年5月のみ検出された。本試料は¹³⁴Csも極微量検出されており、福島第一原子力発電所における事故の影響が考えられる。モニタリング開始以降、大気浮遊じんの試料で¹³⁷Csが検出されたのは本事例のみである。大気浮遊じん中の¹³³Cs測定結果は0.21~0.37(ng/m³)であり概ね安定していた。事故時の日本分析センターによる希ガス測定⁶⁾は2011年3月7日から4月18日まで行われて

いる(1週間連続採取)。この期間における¹³³Xeの最大濃度は、3月14日から3月22日の測定結果である1,300(Bq/ m³)であり、事故前の濃度は0.001(Bq/ m³)程度とされているため、原発事故の影響によって濃度が上昇したと考えられる。¹³³Xeの半減期を5.2日として質量に換算すると約1.9 × 10⁻⁴(ng/ m³)で、放出時からの経過時間を約1日とすると、約12%が¹³³Csに崩壊していることから、約2.6 × 10⁻⁵(ng/ m³)の¹³³Csが発生したと考えられる。実際には、沈着により千葉県に到達した¹³³Cs濃度はさらに減少している直線的に到達する場合における¹³³Cs濃度上昇に

ると考えられることから、大気浮遊じん中の濃度と比較してかなり小さい値となるため、ICP-MSを用いて検出するためには試料量が過剰となる。このため、事故の影響による¹³³Cs濃度の変動を把握することは困難であると考えられる。ただし、福島第一原発と日本分析センターは約210km離れており(玄海原発とA-1地点は約12km、当センターは約65km)、事故当時の大気拡散過程の解析⁷⁾によると、プラント北東方向に拡散後、海上で南下して千葉県東部を通過(3月14日昼から15日午後)していることから、近傍地点についてはより詳細な調査や解析を要する。

表2 過去10年間のモニタリングにおける¹³⁷Cs測定結果(2011～2021年度)

試料	採取地点	測定年度	試料数	検出数	¹³⁷ Cs			
					濃度範囲	平均値 ²	単位	濃縮係数[-]範囲
海水	S-1	2011～2021	11	7	ND～0.0028	0.0021	Bq/L	-
トラフグ	M-1	2011～2021	11	9	ND～0.25	0.20	Bq/kg生	～120
イカ	M-1	2019～2021	3	1	ND～0.20	0.20		～98
カジメ	M-1	2011～2018	8	3	ND～0.15	0.11		～73
ヒジキ	M-1	2019～2021	3	0	ND	ND		-
大気浮遊じん	A-1	2015～2021	14	0	ND	ND	mBq/m ³	-
	A-2	2011～2014	8	1	ND～0.057 ¹	0.057		-

1 2011年5月採取試料のみ検出

2 検出した試料の平均値

出典：長崎県地域防災計画に係る環境放射能調査(2011年度～2021年度)

表3 IAEAによる海産生物の濃縮係数推奨値

生物の種類	濃縮係数
魚	100
イカ・タコ	9
藻類	50

表4 ¹³³Cs測定結果

試料	採取地点	測定年度	試料数	¹³³ Cs			
				濃度	平均値	単位	濃縮係数[-]範囲
海水	S-1	2020～2021	1	0.40	0.31	μg/L	-
	S-2		2	0.33			
	S-3		2	0.31			
	S-4		2	0.30			
	S-5		2	0.30			
	S-6		1	0.23			
トラフグ	M-1	2020～2021	2	6.2～20	13	μg/kg	20～67
イカ	M-1		2	2.4～4.0	3.2		8～13
ヒジキ	M-1		2	3.7～6.3	5.0		12～21
大気浮遊じん	A-1	2020～2021	4	0.21～0.37	0.27	ng/m ³	-

表5 ¹³³Csと¹³⁷Csの原子数比

試料	原子数比
	¹³⁷ Cs/ ¹³³ Cs
海水	2.0×10 ⁹
トラフグ	4.6×10 ⁹
イカ	1.9×10 ⁸
カジメ	6.6×10 ⁹

まとめ

本県のモニタリング調査で採取した生体試料、環境試料を用いて、 ^{137}Cs と ^{133}Cs の濃度分布を把握した。海水中の ^{137}Cs と ^{133}Cs の濃度は国内の他地点における調査結果と同程度であった。また、海水と生体試料の ^{137}Cs と ^{133}Cs 濃度からそれぞれ濃縮係数を算出したところ、IAEAの推奨値に概ね近い値であった。

参考文献・脚注

- 1) 環境省HP：放射線による健康影響等に関する統一
的な基礎資料（平成29年版），[https://www.env.go.jp/
chemi/rhm/h29kisoshiryu/h29kiso-02-02-04.html](https://www.env.go.jp/chemi/rhm/h29kisoshiryu/h29kiso-02-02-04.html) (2022.
5.31アクセス)
- 2) 帰山秀樹：東京電力福島第一原発事故の影響評価を
中心とした海産動物プランクトンの人工放射性核種
に関する研究(総説)，*日本プランクトン学会報*，

63(1), 8-15 (2016)

- 3) 環境省HP：放射線による健康影響等に関する統一
的な基礎資料（平成29年版），[https://www.env.go.jp/
chemi/rhm/h29kisoshiryu/h29kiso-02-02-05.html](https://www.env.go.jp/chemi/rhm/h29kisoshiryu/h29kiso-02-02-05.html) (2022.
6.1アクセス)
- 4) 加藤健二他：新潟県沿岸における海水及び海藻の
 ^{137}Cs と安定Csの濃度分布，*新潟県放射線監視セ
ンター年報*，**1**，21-28(2002)
- 5) 環境省HP：放射線による健康影響等に関する統一
的な基礎資料（平成29年版），[https://www.env.go.j
p/chemi/rhm/h30kisoshiryu/h30kiso-04-04-10.html](https://www.env.go.jp/chemi/rhm/h30kisoshiryu/h30kiso-04-04-10.html) (20
22.6.1アクセス)
- 6) 公益財団法人日本分析センターHP：日本分析セン
ターにおける空間放射線量率について：事故調後の
調査結果，[https://www.jcac.or.jp/site/senryo/kako.htm
l](https://www.jcac.or.jp/site/senryo/kako.html) (2022.6.1 アクセス)
- 7) 堅田元喜他：福島第一原子力発電所事故における
放射性核種の大気放出・拡散・沈着，*エアロゾル
研究*，**32**(4)，237-243 (2017)