

放射能環境動態・影響評価
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

FY2021 FINAL REPORT

【拠点間/Within ERAN 共同研究】

NO	氏名	所属機関名	研究課題名	共同研究者	所属
E-21-01	恩田裕一	CRiED	新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響	高田兵衛 脇山義史	IER IER
E-21-02	加藤弘亮	CRiED	森林源頭部における表流水への溶存態セシウム137の流出経路の推定	新里忠史	JAEA
E-21-03	坂口 綾	CRiED	高マトリクス試料中の極微量放射性核種測定法確立	Jian Zheng	QST
E-21-04	高橋純子	CRiED	福島県山木屋地区における除染後のダイズ連作地と非耕作地の土壤理化学性の比較	脇山義史	IER
E-21-05	山崎 信哉	CRiED	銀電極を用いた定電位電解におけるヨウ素の同位体分別	平尾 茂一	IER
E-21-06	脇山 義史	IER	阿武隈川および新田川における出水時の129I動態	笹 公和 松村万寿美 松中哲也 平尾茂一	CRiED 筑波大学 金沢大学 IER
E-21-07	高田兵衛	IER	河川から海洋への放射性セシウムの寄与と挙動の解析	青山道夫	CRiED
E-21-08	赤田 尚史	IREM	液体シンチレーションカウンターを用いたトリチウム分析のためのカクテル剤の検討	田副博文 桑田 遥 藤原健壮 寺島元基 平尾茂一	IREM IREM JAEA JAEA JAEA
E-21-09	田副 博文	IREM	ICP質量分析計を用いた緊急時における水質中のSr-90分析	高貝 慶隆	IER
E-21-10	細田 正洋	IREM	大気中放射性物質の連続モニタリングに資する基礎研究	平尾茂一 床次眞司 赤田尚史 玉熊佑紀	IER IREM IREM IREM

新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響

氏名：恩田 裕一

共同研究者：高田 兵衛・脇山 義史

1. 成果

福島原発事故により拡散した ^{137}Cs の挙動を調査するには、懸濁態 ^{137}Cs を追跡すること、すなわち河川内の浮遊砂移行を調査することが重要である。また、 ^{137}Cs フラックスは降水や雪解けによる出水時に増大することから、出水時における浮遊砂移行の挙動を調査する必要がある。そこで、新井田川の粒径別の浮遊砂の挙動と海への影響を調査するために Laser In-Situ Scattering and Transmissometry (LISST) Streamside Sequoia Scientific, Inc. Seattle, WA, USA を用いて、時系列の粒度組成調査を行った。その結果、出水に SS が粗粒化する傾向をもたらすことが多く、セシウムのフラックスについて粒度組成を基に、再計算が可能となった。またその粒度分布を基に、海洋での溶脱率についてもより高精度で評価が可能となった。

2. 論文

なし

森林源頭部における表流水への溶存態セシウム 137 の流出経路の推定

氏名：加藤 弘亮

共同研究者：新里 忠史

1. 成果

河川流域の上流部に位置する森林域は、河川水中の溶存態放射性セシウムの供給源になり得る。しかし、従来の Kd 吸脱着モデルでは、河川水中の溶存態放射性セシウムの季節変動や出水時の濃度変動を再現できない等の課題が残っている。

森林源頭部から水系に流出する放射性セシウムは、森林斜面土層内の地下水や土壌水の混合と、河道の堆積有機物からの溶出が混合して形成される。先行研究では、堆積有機物からの溶出の影響を現地観測や室内実験で調査した事例があるが、森林斜面土層内の飽和帯（浅い地下水）の流出の影響に着目した研究はない。そこで本研究では、森林源頭部での詳細な水文観測により、斜面土層からの地下水水流出が表流水の溶存態放射性セシウム濃度の変動に及ぼす影響を解明することを目的として実施した。

調査方法として、帰宅困難区域に位置する福島県浪江町の森林流域を調査対象流域とした。調査対象流域の流域面積は 0.002 km² で、流域の平均 137Cs 沈着量は 4700 kBq/m² である。調査対象流域において、湧水、表流水、土壌浸透水、及び斜面土層内の飽和帯地下水を定期的に採水した。土壌浸透水はゼロテンションライシメータを用いて採取した。飽和地下水は斜面に設置した井戸及びピエゾメータ内の水を採取した。採水した水試料は 0.45 μm のメンブレンフィルターで濾過した。フィルターで濾過した水試料をマリネリ容器に封入し、ゲルマニウム γ 線検出器を用いて 137Cs 濃度を定量した。なお、本研究では、フィルター通過水に含まれる 137Cs を溶存態の放射性セシウムと定義した。

水試料の採水のほかに、調査対象流域の 2 地点に量水堰と自記水位計を設置して表流水の流量変化を観測した。ピエゾメータは斜面測線上の 4 カ所に設置し、各地点で 4 深度のピエゾ水位を自記水位計を用いて記録することで、平水時及び出水時の斜面土層内の地下水ポテンシャルの変化を推定した。

調査観測結果から、平水時に調査対象流域から流出する表流水の溶存態 137Cs 濃度は概ね 0.1~0.4 Bq/L であった。流水の溶存態 137Cs 濃度は水温により変動する傾向が認められた。また、水温が 10 度変動した場合の溶存態 137Cs 濃度の変動率 (D10 値) は 2018 年から 2021 年の間に徐々に低下する傾向が認められた。一方、土壌浸透水の溶存態 137Cs 濃度はリター通過水で 5~6 Bq/L 程度、リター・土層通過水で 2~3 Bq/L であった。斜面土層内の地下水は 0.1~2.4 Bq/L と、表流水と比べて比較的高い溶存態 137Cs 濃度をを示すことが分かった。

降雨-流出時には、流量のピークに先立って表流水の溶存態 137Cs 濃度が上昇することが確認された。表流水の溶存態 137Cs 濃度の変動は、表流水の流量よりも地下水位の変動と対

応していたことから、平水時と出水時の斜面土層内の地下水ポテンシャルの分布からその流動方向を推定した。その結果、平水時には斜面飽和帯の地下水が深部に向かって流動するが、出水時には地下水位の上昇とともに、斜面土層から河道に向かって流動していることが明らかになった。これらの観測結果から、森林斜面の浅い地下水は比較的高い溶存態 ^{137}Cs を有し、出水時には斜面飽和帯の地下水が流出することで表流水の ^{137}Cs 濃度の上昇に寄与していることが示唆された。

2. 論文

高マトリクス試料中の極微量放射性核種測定法確立

氏名：坂口 綾

共同研究者：Jian Zheng

1. 成果

宇宙素粒子観測装置であるスーパーカミオカンデ(SK)タンク内の超純水に硫酸ガドリニウム($Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$)を溶解させることで、超新星背景ニュートリノの観測を目指す SK-Gd プロジェクトが進行している。硫酸ガドリニウム中には天然の極微量放射性核種が含まれており、妨害シグナルの要因となることからいくつかの核種において濃度の上限値が定められている。この核種の一つであるラジウム-226(^{226}Ra , $T_{1/2}=1600$ 年; 上限値 0.5 mBq/kg- $Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$)は既に γ 線測定による定量法が確立されている¹⁾。しかしこの方法では、極低バックグラウンド環境で約 1 週間の測定時間を必要とするため、SK タンクに導入する約 100 トンの硫酸ガドリニウム全バッチ中の ^{226}Ra を測定するには環境的制約と時間的コストが必要となる。そこで本研究では硫酸ガドリニウム中の ^{226}Ra を質量分析法(ICP-MS)で迅速に測定することを目的として、ICP-MS の高感度化と硫酸ガドリニウムからの ^{226}Ra の抽出・濃縮について検討した。

<ICP-MS 高感度化> プラズマへの試料導入効率向上およびプラズマ中における元素のイオン化効率向上による高感度化を目指し、①試料溶液の脱溶媒を行いドライエアロゾルとして試料をプラズマに導入、②プラズマを発生させるトーチの内径を変更(2.5 mm→ 2 mm)した。更に、試料分析部へのイオン透過効率向上を目的とし、差動排気部の高真空化を図った。また、単位時間当たりの試料導入量に対する感度上昇を目指し、ネブライザーの種類についても検討した。それぞれの条件における装置設定条件の最適化を自作のチューニング溶液で行い、最終的な ICP-MS の感度による ^{226}Ra の定量下限から、必要な硫酸ガドリニウムの量を見積もった。

< ^{226}Ra 抽出・濃縮> 硝酸系溶液中での Ra 吸着選択制の高い樹脂(AnaLig Ra-01)の利用にあたり、濃度の異なる硝酸に硫酸ガドリニウムを飽和量溶解し、それぞれの溶解度を求めることで最適な硝酸濃度と ^{226}Ra 測定に必要な最小試料溶液量を見積もった。先行研究²⁾で Ra の回収率トレーサーとして用いられていた Ba の放射性核種(^{133}Ba)を用い、カラムに充填する樹脂量や通液する溶液の流速等の最適化を行った。また、樹脂に吸着した Ra を質量分析のために回収する方法として 0.03 mol/L の EDTA による溶離と濃硝酸+過酸化水素による樹脂分解を試みた。

<ICP-MS 高感度化> 導入試料の脱溶媒化や試料導入速度の検討、トーチのインジェクター一径の決定、高真空化により、最終的な感度は一般的な ICP-MS の約 30 倍に上昇した。この時の ^{226}Ra の定量下限値は 0.48 ppq であった。

< ^{226}Ra 抽出・濃縮> 硫酸ガドリニウムは 2 mol/L 硝酸に対して最も溶解性が高く(約

10%)、ICP-MS の感度から ^{226}Ra 測定に必要な溶液量は約 350 mL と計算された。吸着実験に要する時間、吸着率、回収率と、回収溶液を ICP-MS で測定する際のマトリクス効果を考慮した結果、使用する樹脂量 0.75 mL、流速約 5 mL/min で 500 mL の試料溶液を通過し、濃硝酸+過酸化水素による樹脂分解で Ra を回収する方法が現段階で最も効率よく Ra を抽出・濃縮する方法と判断した。この条件における ^{133}Ba の吸着率は $89.7 \pm 0.4\%$ 、吸着した Ba の回収率は 85.4 %であった。今後は更なる回収率の向上を目指し改善を行っていくとともに、SK-Gd に導入する硫酸ガドリニウム中の ^{226}Ra 定量を行う。

【参考文献】 1) S. Ito, et al. Prog. Theor. Exp. Phys 2020, 7. ; 2) S. Ito, et al. Prog. Theor. Exp. Phys 2018, 6.

2. 論文

福島県山木屋地区における除染後のダイズ連作地と非耕作地の 土壌理化学性の比較

氏名：高橋 純子
共同研究者：脇山 義史

1. 成果

土壌侵食による Cs-137 流出に関するモニタリングとして、事故直後より福島県川俣町山木屋地区を中心に USLE プロットによる観測が行われてきた。2011 年 7 月から 2014 年 7 月まで、さらに除染作業を挟み、2014 年 12 月から 2020 年 12 月まで山木屋地区内の畑地で継続された調査によって、除染前の未耕作畑では、時間とともに流出する土砂中の Cs-137 濃度が減少し、さらに除染によって、流出する土砂中の Cs-137 濃度は一桁程度減少し、その後は明確な時間変化は認められないことが明らかにされた。さらに、土砂侵食量に関しても、除染前後で比較すると除染後の方が単位侵食力あたりの土砂流出量が低下している傾向にある。本共同研究では、モニタリングの終了にあたり、USLE プロット内で土壌断面調査を実施し、除染前後の耕作地・未耕作地における土壌の理化学性（三相分布、飽和透水係数、粒径組成、粒径別 Cs-137 濃度等）の測定を行い、これまでの結果を補完する情報を提供することを目的とした。

Cs-137 濃度の深度分布に関しては、除染前は深さに伴い指数関数的に減少していたが、除染後は 20cm 深度までほぼ均一の濃度となった。特に、最表層 0-1cm の濃度は除染により約 2% (45 Bq/g から 0.96 Bq/g) にまで減少していた。除染後の Cs-137 存在量も約 100 kBq/m² であり、除染前の約 4 分の 1 であった。

土壌の理化学性に関しては、本地点は除染前から造成された土地であり、A 層の発達はやや弱い傾向にあった。除染前は気相率が 2.7% と低く、飽和透水係数も 2.9×10^{-4} cm/秒 と低い傾向にあったが、除染により物理性が改善され（気相率 33~38%）、飽和透水係数も上昇していることが示された ($2.1-3.4 \times 10^{-3}$ cm/秒)。また、除染によりレキ・粗砂画分が増加しており、除染前はレキ+粗砂の重量割合が 20.8% だったのに対し、除染後は 38.1% であった。湿式篩別および沈降法により有機物分解後の土壌を 2 mm 以上、0.5-2 mm、0.2-0.5 mm、0.063-0.2 mm、0.020-0.063 mm、0.002-0.020 mm、0.002 mm 以下の 7 つに分画し、それぞれの画分中の Cs-137 濃度を測定したところ、除染前・除染後ともに細粒なほど Cs-137 濃度が高い傾向が認められた。とくに、除染前の比表面積 $S(\text{m}^2/\text{g})$ と Cs-137 濃度 $C(\text{Bq}/\text{kg})$ の関係は $C=15164S^{0.61}$ と非常に高い精度で近似され、He and Walling (1996) がイギリス南西部の土壌で示した係数 0.65 と近い値であった。一方、除染によってクリーンかつ粒径の粗い粒子が投入されたことを反映し、除染後の比表面積と Cs-137 濃度の関係は $C=723S^{0.90}$ と変化していることが明らかとなった。

2. 論文

銀電極を用いた定電位電解におけるヨウ素の同位体分別の検討

氏名：山崎 信哉

共同研究者：平尾 茂一

1. 成果

【序論】

放射性ヨウ素は再処理施設や原発事故などにより環境中に放出される。ヨウ素-131 は半減期の短さから被ばく影響の観点で重要である一方、減衰が早いため事故直後などに測定しなければならない。一方でヨウ素-129 は半減期が長いため長期におけるモニタリングが容易であるが、化学状態別の定量に至っていない研究が多い。ヨウ素は環境試料中で様々な化学形態を取ることが考えられ、事故初期の動態や長期的な移行挙動を把握する上で化学形態及びその変化を調べることは重要である。放射性ヨウ素 (I-129) は長半減期核種であるため、環境レベルの濃度では放射線計測が困難であり、質量分析 (加速器質量分析 AMS、誘導結合プラズマ質量分析 ICP-MS) を用いた測定が試みられている。これらの質量分析を行うために、溶媒抽出法などを用いた前処理が行われている。しかし、この方法では全ヨウ素をヨウ化物イオンに変換して回収するため、化学状態別定量ができない。そこで、本研究では放射性ヨウ素の存在状態の解明を行うこと目的として、電気化学的手法によるヨウ素の回収法の構築を試みた。本課題ではヨウ化物イオンを対象として銀電極表面へのヨウ化物イオンの濃集挙動について検討した。

【実験】

NaI 検出器によるヨウ素-125 の回収率を求めめるため、ヨウ素 125-I を 3-3000 Bq/10mL となるように調製し、測定を行った。

電気化学測定は銀ディスク電極 (ϕ 3mm)、白金線、銀一塩化銀電極 (+0.197 V vs SHE) をそれぞれ作用電極、対極、参照電極として用いた。装置はポテンシオメーターとファンクションジェネレーター一体型 (EC-stat 101、EC フロンティア) を用いた。10 ppb ヨウ素-127 溶液 (pH 7.0) について +0.20V で定電位電解 (CPE) を最大 60 分間行った後、リニアスイープボルタンメトリー (LSSV) をにより還元電流を測定した。さらに、ヨウ素-125 の回収率を求めめるため 300 Bq/ 10 mL とするよう 10 ppb ヨウ素-127 溶液に加えた。この溶液について 0.2 V で CPE を 30-180 分間行い、測定後の溶液について NaI で放射能測定を行った。

【結果】

NaI の検出効率はおおよそ 40%と求まった。また、放射能濃度が 10 Bq/ 10 mL を下回ると検出効率の誤差が大きくなったため、この濃度を今回の条件における検出限界とした。

ヨウ素-125 の溶液について CPE の時間を変えて電極への回収率を求めた結果、おおよそ 30 分で一定となった。この結果はヨウ素-127 における回収率の時間依存性と同様の傾向を示

した。また、ヨウ素-125の回収率は80%程度であり完全に回収はできなかった。これはヨウ素の濃度が電気化学反応に寄与するためと考えられる。このことからヨウ素-127の濃度とヨウ素-125の回収率との相関を今後検討する必要がある。また、時間を変えてCPEを行ったときのヨウ素-125とヨウ素-127の回収率には直線関係が成り立った。このことから今回の実験条件下では、CPE時の同位体分別は起こらないと結論づけられた。今後は、上記の検討を行ったうえで環境試料に適用してヨウ素を回収するための条件について検討する。

2. 論文

Shinya Yamasaki, Hikaru Saito, Tsukasa Nakamura, Kazuya Morooka, Keisuke Sueki, Satoshi Utsunomiya, Gravitational separation of ^{137}Cs contaminated soil in Fukushima environment: Density dependence of ^{137}Cs activity and application to volume reduction. *Journal of Environmental Radioactivity*, 246, 106846, 10 pages, 2022.

Shinya Yamasaki, Satoshi Utsunomiya, A review of efforts for volume reduction of contaminated soil in the ten years after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 59(2), 135-147, 2022.

阿武隈川および新田川における出水時の 129I 動態

氏名：脇山 義史

共同研究者：笹 公和・松村 万寿美・松中 哲也・平尾 茂一

1. 成果

福島第一原子力発電所事故によって放出された長寿命の 129I (半減期：1,570 万年) は、高い化学的活性や 137Cs との挙動の違いなどの観点から、陸から海洋への挙動を長期的に把握することが必要な核種の 1 つである。137Cs に関しては、台風接近などにもなう出水時に懸濁態として多量に流出することが知られているが、129I の出水時における動態を観測した例は少ない。申請者らは 2019 年度、2020 年度に阿武隈川で採取した水試料について分析を行い、137Cs に比べて、129I は溶存態として流出する割合が高いことなどを示した。これらの結果に基づいて、European Geoscience Union General Assembly 2021 および日本地球惑星科学連合大会 2021 において発表を行なった。昨年度まで分析対象とした阿武隈川中流では 129I の沈着量が相対的に低かったことから、2021 年度は、浜通り地域の 129I の沈着量が高い新田川で採取した試料を分析対象として阿武隈川を対象とした分析結果との比較を行った。分析対象としたのは 2016 年 8 月 16～17 日の出水イベント時に新田川下流の原町地点で採取した水試料である。採取地点における集水面積は 206 km²、平均 129I 沈着量は 0.093 Bq m⁻² であった。水試料をろ過して得た浮遊土砂およびろ液試料について、昨年度までと同様の方法で、前処理を行い、加速器質量分析法にて 129I/127I 比を測定し、ICP-QQQ-MS を用いて 127I 濃度を測定した。溶存態 129I 濃度の平均値は 1.8×10^{-4} mBq L⁻¹ (n=4)、懸濁物質の 129I 濃度の平均値は 4.1×10^{-3} Bq kg⁻¹ (n=4) であり、見かけの分配係数 K_d の平均値は 2.2×10^4 L Bq⁻¹ であった。129I/127I 比の平均値は、溶存態では 5.6×10^{-9} 、懸濁物質で 28×10^{-9} であり、懸濁物質で高かった。129I の流出量は 2.5×10^4 Bq であり、流域内の総 129I 沈着量の 0.13% に相当した。これらの値を阿武隈川 2018 年 10 月の出水イベントで採取された試料の分析結果と比べると、溶存態 129I 濃度の平均値は 2.3 倍高い値であり、流域平均 129I 沈着量の比 (新田川：阿武隈川 = 2.6 : 1) と同程度であった。このことから、溶存態 129I 濃度が、流域の 129I 沈着量に応じて高くなることが示唆される。一方で、懸濁物質の 129I 濃度は新田川で 9.4 倍高い値であり、前述の 129I 沈着量の比を大きく上回っていた。また、見かけの分配係数の平均値が阿武隈川では 103 L kg⁻¹ のオーダーであったのに対して、新田川では 104 L kg⁻¹ のオーダーにあったことも符合する。これらの結果からは、新田川では 129I が懸濁態として移行しやすいことが示唆される。その原因としては、両流域における 129I 沈着量の違い、土地利用構成や面積といった特性の違い、あるいは対象としたイベントの降雨規模の違いが反映された可能性が考えられる。今後の継続的な試料分析により、河川に通じた 129I 動態の支配要因を明らかにしていきたい。

2. 論文

河川から海洋への放射性セシウムの寄与と挙動の解析

氏名：高田 兵衛

共同研究者：青山 道夫

1. 成果

はじめに

東電福島第一原発事故発生から 10 年経過してもなお、福島県周辺の沿岸域では未だに事故前のレベルを超える海水中の放射性 Cs 濃度が検出されている。これは、東電福島第一原発施設からの直接漏洩のみならず、陸域に沈着した放射性セシウムが河川を介して同沿岸域へ流入し海水中の放射性セシウム濃度を高めている可能性がある。これらを解決する課題として、同事故由来の放射性 Cs の動態や濃度レベルを支配する因子として、河川の影響について検討する必要がある。更に、海洋生態系への影響についても海産魚の放射性セシウム濃度の高止まりが続いており、河川由来の粒子に含まれている放射性セシウムの生態系への寄与が考えられる。特に有機態の放射性セシウムは生体内へと取り込みやすいことが想定されるので、粒子中の有機態の放射性セシウムの割合を明らかにする。そこで本研究は、河川から沿岸海域にいたる放射性 Cs 濃度レベルを把握するとともに粒子中の有機態放射性セシウムの割合をもとめ、その動態について解き明かすことを目的とする。調査福島県の東電福島第一原発周辺に位置する河川における河川のうち、同原発から南に 10km に位置する、富岡川下流およびその河口付近の富岡漁港にて、水試料の採取を行った。採取した後、ろ過を行い、溶存態と粒子態に分別し、それぞれ放射性セシウム濃度を測定した。また、粒子態においては更に、イオン交換態ならびに有機態の放射性セシウムに分別し、粒子態の放射性セシウムに対するそれぞれの画分の割合を求めた。

結果および考察

2019～2021 年にかけて、河川中の溶存態放射性セシウム濃度は 10-20 Bq/m³ 程度の濃度範囲で推移した。一方、海水においても河川河口付近の漁港においては、溶存態放射性セシウム濃度が 20 Bq/m³ を超えるような値が確認され、これは、河川からの粒子態の放射性セシウムのうち、一部が溶脱し溶存態へと移行したことが考えられる。また、河川中の粒子態放射性セシウムのうち、イオン交換態および有機態のセシウムの割合求めたところ、河川ではイオン交換態の割合が海水に比べ高く、一方、有機態セシウムの割合は共に数%程度であった。今後は有機態セシウムの経年的変動と粒子の性状との関連性を明らかにする。

2. 論文

液体シンチレーションカウンターを用いたトリチウム分析のための カクテル剤の検討

氏名：赤田 尚史

共同研究者：田副 博文・桑田 遥・藤原 健壮・寺島 元基・平尾 茂一

1. 成果

背景

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターは低濃度トリチウムを測定する際に広く利用されている。測定の際には水試料とシンチレーションカクテル剤を混合するのが一般的である。しかし、欧州地域で制定された化学物質の総合的な登録・評価・認可・制限の制度である REACH 規則により、その多くが製造中止になる可能性がある。そのため、継続的に利用可能な代替シンチレーションカクテルを使用することが望まれる。本研究では代替シンチレーションカクテル剤を決定するために、継続的に利用可能な Gold Star LT²と、国内で現在使用されている Ultima Gold LLT、Insta-Gel Plus、Ecocint Ultra の3つのシンチレーションカクテル剤を用いた性能の比較試験を行った。

方法

性能評価ではそれぞれのシンチレーションカクテル剤につき10本の異なる混合比の標準溶液を用意し、液体シンチレーションカウンター(LSC-LB5)で400分測定を行った。そして、得られた結果を基にクエンチングの補正曲線を作成し、シンチレーションカクテル剤の性能を評価するための値である FOM 値(Figure of merit)を求め、それぞれのシンチレーションカクテル剤の最適な混合比、計数効率、バックグラウンドカウントの比較を行った。

結果

比較試験を行った結果、Gold Star LT²は Ultima Gold LLT と同程度の高い計数効率を示し、バックグラウンドカウント値も低かった。しかし、試料とカクテル剤の混合比において試料量が50%を超えてしまうと試料が分離してしまうため、試料調製の際には試料量を50%以下にすることが必要である。また、Gold Star LT²は Ecocint Ultra 及び Insta-Gel Plus より低いバックグラウンドカウント及び高い計数効率を示した。そのため、Gold Star LT²は環境試料中のトリチウムの濃度を測定するうえで、今後継続的に利用できる代替シンチレータとして有効であることを確認した。

2. 論文

Haruka Kuwata, Hirofumi Tazoe, Chutima Kranrod, Kenso Fujiwara, Motoki Terashima, Makoto Matsueda, Shigekazu Hirao, Naofumi Akata (2022) PERFORMANCE EVALUATION OF COMMERCIAL SCINTILLATION COCKTAILS FOR LOW-LEVEL TRITIUM COUNTING by HIGH-CAPACITY LIQUID SCINTILLATION COUNTER, Radiation Protection Dosimetry, accepted.

ICP 質量分析計を用いた緊急時における水質中の Sr-90 分析

氏名：田副 博文

共同研究者：高貝 慶隆

1. 成果

Research has been conducted to speed up and simplify the ^{90}Sr analysis method in water samples based on the importance of Sr-90 measurement for environmental monitoring in the event of a radiological incident. To optimize the measurement with ICP-MS, which enables rapid analysis, we examined the pre-treatment conditions when cation exchange resin chromatography and Sr Resin solid-phase extraction were used. Sr was quantitatively recovered by cation exchange resin from 1 L synthetic water samples, and anionic components such as Ge and Se were efficiently removed. In addition, under the elution condition using 3 M HNO_3 , it is possible to suppress the elution of Zr with a small volume of eluent. The eluate from cation exchange chromatography can be used for successive solid-phase extraction of Sr-Resin directly, which provides further Sr purification and concentration sufficient for Sr-90 determination by ICP-MS. Verification was performed on real samples including high hardness bottled water. We confirmed that the results of the synthetic sample analysis were reproduced, and that Sr was quantitatively recovered (96-100%) and coexisting elements were removed sufficiently so as not to interfere with the measurement of Sr-90. Sr-90 was concentrated by a factor of 100 during chemical separation procedure without any evaporation step. Processing time for more than 10 samples was 3 hours, which is fast enough for emergency response in the case of radiological incident.

2. 論文

H. Tazoe, Y. Tomisaka, N. Akata, B. Russell, P. Ivanov, M. Hosoda, S. Tokonami, Rapid Chemical Separation Protocol for Optimized ^{90}Sr Determination by ICP-MS in Water Samples for Radiological Incident. *Radiation Environment and Medicine* 11(1) 7-15 2022

大気中放射性物質の連続モニタリングに資する基礎研究

氏名：細田 正洋

共同研究者：平尾 茂一・床次 眞司・赤田 尚史・玉熊 佑紀

1. 成果

福島第一原子力発電所事故後 10 年以上が経過し、人工放射性核種濃度が減少したことにより住民に対する事故起源の放射性核種による被ばく線量評価には天然放射性核種の影響を定量的に評価することが重要になってきた。自然界には原発事故以前よりラドンをはじめとする天然放射性核種が存在しており、その変動を正確に評価することは人工放射性核種の高い測定精度での測定につながると考えられる。日本分析センターの調査により我が国の大気中のラドン濃度の平均値は約 5 Bq/m³ 程度あることが明らかとなった(Oikawa et al J. Environ. Radioact. 2003)。つまり、大気中ラドン濃度の変動を捉えるためには、より検出下限値が低いラドンモニタが必要である。現在、検出下限値が 0.5 Bq/m³ 程度のラドンモニタが市販されており、これまでも大気中ラドンの連続観測に用いられてきた(Iida et al Environ. Int. 1996)。このラドンモニタは大気中ラドンの捕集に静電捕集法が用いられているが、この手法の欠点として大気中の湿度の影響を受けて測定値が過小評価されることである。そこで、連続測定を実施する際には、十酸化四リン(P₄O₁₀)のような吸湿剤を介して測定器内に乾燥 空気を取り入れる必要があった。しかし、十酸化四リンは吸湿により液体となるため、長期間の測定を実施する場合その管理が問題となる。そこで、本研究では大気中ラドンの連続観測に用いられる静電捕集型ラドンモニタの湿度特性を明らかにするとともに、十酸化四リンの代わりに硫酸カルシウム(Drierite)を使用した場合の除湿効果について検討した。本研究で用いた静電補集型ラドンモニタの捕集容器の容積は 16.8 L であり、正に帯電しているラドンの子孫核種である Po-218 を捕集電極へ収集するための -3000V の印加電圧がかけられる。Po-218 からの α 線の検出には 1700 mm² のプレーナシリコン半導体検出器が用いられている。静電補集型ラドンモニタを Drierite を介して弘前大学被ばく医療総合研究所のラドン曝露場に接続した。その際、直列に接続する Drierite の本数を 1 本から 3 本まで変化させた。ラドン濃度の基準値はラドン曝露場内に設置されている電離箱式ラドンモニタ (AlphaGUARD) で得られた値とした。AlphaGUARD で得られたラドン濃度に対する静電補集型ラドンモニタで得られたラドン濃度の比は、相対湿度の増加に伴い減少傾向を示した。さらに、Drierite の本数が 1 本、2 本及び 3 本としたときのラドン濃度の比はそれぞれ 0.94 ± 0.07 、 0.97 ± 0.04 及び 0.95 ± 0.04 であり、Drierite の本数には依存しなかった。また、静電捕集型ラドンモニタで測定されるラドン濃度は 4 時間程度の遅れがあることが明らかとなったが、応答の遅れは乾燥剤の数に依存しなかった。今後は、静電捕集型ラドンモニタを用いて大気中ラドンの連続測定を開始し、そのベースラインデータと変動幅に関する情報を蓄積するとともに、大気汚染物質などの大気輸送に関するトレーサ利用の可能性についても検討を進める計画である。

2. 論文 なし