

放射能環境動態・影響評価
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

FY2022 FINAL REPORT
【拠点間/Within ERAN 共同研究】

研究種目	申請番号	氏名	所属機関	研 究 題 目	受入研究者	共同研究者
拠点間	E-22-01	恩田 裕一	筑波大学	森林小流域におけるトリチウムの流出プロセス研究	今田 省吾 吉田 聡	
拠点間	E-22-02	加藤 弘亮	筑波大学	森林源頭部流域における溶存態セシウムの土壌浸透フラックスと流出経路の推定	新里 忠史	
拠点間	E-22-03	坂口 綾	筑波大学	高マトリクス試料中の極微量放射性核種の測定と応用	田副 博文 赤田 尚史	
拠点間	E-22-04	山崎 信哉	筑波大学	電気化学的手法を用いた環境水中のヨウ化物イオン回収法の確立	平尾 茂一	
拠点間	E-22-05	Yoschenko Vasyl	福島大学	Exploratory study in the forested area in Rokkasho	難波 謙二 今田 省吾 吉田 聡	
拠点間	E-22-06	脇山 義史	福島大学	阿武隈川および新田川における出水時の ¹²⁹ I動態	笹 公和 平尾 茂一	松村 万寿美 松中 哲也
拠点間	E-22-07	高田 兵衛	福島大学	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	
拠点間	E-22-08	石庭 寛子	福島大学	二動原体染色体解析による野生イノシシの線量推定	三浦 富智 Anderson Aaron Donovan	
拠点間	E-22-09	五十嵐 康記	福島大学	森林火災が放射性セシウムの挙動に与える影響の解明 ~2017年福島県十万人森林火災を対象として~	林 誠二 佐々木 祥人	
拠点間	E-22-10	三浦 富智	弘前大学	核燃料再処理施設再稼働に向けた野生ネズミの調査	今田 省吾 大塚 良仁 中平 嶺 石庭 寛子 Donovan Aaron Anderson	山城 秀昭 中田 章史 中山 亮 竹林 花依
拠点間	E-22-11	赤田 尚史	弘前大学	生体試料の前処理手法に関する研究	田副 博文 坂口 綾 Kranrod Chutima	桑田 遥 高久 雄一
拠点間	E-22-12	細田 正洋	弘前大学	大気中放射性物質の連続モニタリング	平尾 茂一 床次 真司 赤田 尚史 大森 康孝	
拠点間	E-22-13	田副 博文	弘前大学	ICP質量分析法による水中放射性ストロンチウム定量法の開発と標準化	高貝 慶隆	
拠点間	E-22-14	藤原 健壮	日本原子力 研究開発機構	有機結合型トリチウム分析の前処理手法の改良	赤田 尚史 寺島 元基	桑田 遥
拠点間	E-22-16	柿内 秀樹	環境科学 技術研究所	アーカイブ試料を用いた環境トリチウムの適応的評価	恩田 裕一 加藤 弘亮	

森林小流域おけるトリチウムの流出プロセス研究

氏名：恩田 裕一

受入研究者：今田 省吾・吉田 聡

共同研究者：

1. 成果

六カ所村では、再処理施設の稼働によるトリチウム放出が予想されている。そこで、トリチウムの森林小流域への流出の影響を調査するために、Fallout が予想される地域において、試験流域を設定し、トリチウムの環境中の挙動を解明することを試みた。

本年度は現地調査を行い、各地において、溪流の流量、電気伝導度、水温を測定し、現地モニタリングの候補地の選定にあたった。選ばれた候補地は、電気伝導度が 200micro S/cm をこえるたかいところで、牧草の施肥の影響を受けている長い滞留時間の地下水が起源と想定された (Site1)。もう一つの候補地は、電気伝導度 100microS/cm 以下で、より浅い地中水からの寛容が想定された。それらの 2 つの流域を設定することで、降下してくるであろうトリチウムを用いた水循環プロセスの解明に役立つと考えられる。しかしながら、再処理施設の稼働が遅れる見込みとなったため、今年度は、測器の設置を延期することとした。

2. 論文

なし

森林源頭部流域における溶存態セシウムの土壌浸透フラックスと流出経路の推定

氏名：加藤 弘亮

受入研究者：新里 忠史

共同研究者：

1. 成果

<本研究成果の概要>

森林域から水系への溶存態 Cs-137 の流出経路の推定を目的とし、森林源頭部に設置した試験小流域において詳細な水文観測を行い、斜面地中水の流出が表流水の溶存態 Cs-137 濃度に及ぼす影響を調査した。

キーワード：福島第一原子力発電所事故、溶存態セシウム、表流水、斜面地中水、森林源頭部流域

1. 背景

森林源頭部における溶存態 Cs-137 の流出に関して、リターからの溶出 (Sakakibara et al., 2021) や斜面浅層土壌水の混合 (Iwagami et al., 2019b) が指摘されている。しかし、特に後者において詳細な水文観測を通じて調査した例は少ない。そこで本研究では、森林域から水系への溶存態 Cs-137 流出に関して、斜面土層からの地下水流出の影響を調査した。

2. 研究方法

福島県浪江町の森林源頭部流域に試験小流域を設け、2022 年 4 月～2022 年 12 月まで観測を実施した。試験小流域はスギとコナラ、クリ、アカマツを主とする水源涵養林であり、流域面積が 0.008 km²、Cs-137 の初期沈着量は 4727 kBq/m² である。試験小流域の湧水点の直下と、およそ 25 m 下流の地点にパーシャルフリューム及び三角堰を設置し表流水の流出量を観測した。下流量水堰の近傍の森林斜面において、ピエゾメータで地下水の圧力ポテンシャルを、浅井戸で地下水位を観測した。月に 1, 2 回の頻度で平水時の水サンプリングを行い、また、出水時には自動採水器による連続サンプリングを行った。

3. 結果

表流水の溶存態 Cs-137 濃度は、平水時が平均 0.10 ± 0.02 Bq/L であったのに対し、出水時には 0.23 ± 0.02 Bq/L (4 降雨イベントの平均値) と濃度が上昇する傾向を示した。また、斜面土層内の地下水の溶存態 Cs-137 は平均 0.74 ± 0.07 Bq/L と表流水に比べて高い値を示すことが分かった。斜面土層内の地下水は、平水時には地表から地下深部へ向かう流動を示したのに対し、出水時には斜面に沿って河道方向へと流動するように、地下水流動方向が変化していることが確認された。

4. 結論

出水時の表流水中の溶存態 Cs-137 濃度上昇に関して、斜面浅層の地下水の Cs-137 濃度と地下水の圧力ポテンシャルの観測結果から、比較的に Cs-137 濃度の高い地下水が斜面浅

層に存在しており、出水時にはその地下水が河道に流出して表流水の溶存態 Cs-137 濃度の上昇に寄与していることが示唆された。

<参考文献>

- [1] Iwagami, S., Tsujimura, M., Onda, Y., Konuma, R., Satou, Y., Sakakibara, K., Yoschenko, V., 2019. Dissolved ^{137}Cs concentrations in stream water and subsurface water in a forested headwater catchment after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J. Hydrol. 573, 688-696.
- [2] Sakakibara, K., Iwagami, S., Tsujimura, M., Kounma, R., Sato, Y., Onda, Y., 2021. Radiocesium leaching from litter during rainstorms in the Fukushima broadleaf forest. Sci. Total Environ. 796, 148929.

2. 論文

高マトリクス試料中の極微量放射性核種の測定と応用

氏名：坂口 綾

受入研究者：田副 博文・赤田 尚史

共同研究者：

1. 成果

人類の核活動により環境中に放出されたネプツニウム-237 (^{237}Np 半減期 2.14 Ma) は 2000 kg 以上におよぶと試算される。使用済み核燃料中では ^{237}Np の物理化学的挙動から重要核種として注目されているものの、環境中特に水圏の ^{237}Np に関しては包括的な研究がこれまで行われてこなかった。これは、水圏中に存在する ^{237}Np が極微量である上に、その測定のための濃縮精製過程が非常に煩雑であること、さらには近年拡大しつつある質量分析の際の適切なスパイクが欠損している事によると考えられる。特に福島第一原子力発電所からの処理水海洋放出や、六ヶ所村再処理工場の本格稼働を目前にそのモニタリングの重要性が高まる中、本研究では、環境水中の ^{237}Np をできるだけ簡便かつ迅速に分析することを最終目的とし、大量試料からの簡便な前濃縮法の確立およびスパイク核種として ^{236}gNp に着目しこの製造に関する検討を行ってきた。

スパイクの製造には、 $7\text{Li}(^{232}\text{Th}, \text{xn})^{239-\text{x}}\text{Np}$ 反応を用いることとした。まず、ターゲット元素や副生成物などの妨害核種から極微量の Np を分離する方法を確立した。実際の実験では理研 AVF サイクロトロンで金属 ^{232}Th のスタックフォイルに高エネルギー(約 30-40 MeV)の 7Li ビームを照射することで製造される Np 同位体(^{236}mNp)の定量を行った。

また、大量の環境水試料から Np を前濃縮する方法として、だしパックに電子線(100kGy)を照射しグラフト重合により作成したアミドキシム型吸着材を用いることとした。海水(0.5 kg および 5 kg)を用いて吸着時間、pH や官能基量を変えて室内実験を行うことで吸脱着条件について検討した。

スパイク生成のための照射実験により得られた結果として、副生成物である ^{236}mNp に関して 28-43 MeV の照射エネルギー範囲で核反応断面積(励起関数)を 0.12-0.42 mb と得ることができた。また、アミドキシム型吸着材を用いた結果として 24 時間以内に pH 4 および pH 8 の海水で 95% の Np が海水から吸着濃縮可能なことが明らかになった。これらの実験については今後さらに検討を進める予定である。

2. 論文

電気化学的手法を用いた環境水中のヨウ化物イオン回収法の確立

氏名：山崎 信哉

受入研究者：平尾 茂一

共同研究者：

1. 成果

【背景】

環境水中に存在するヨウ素は I⁻や IO₃⁻といった無機ヨウ素や、有機ヨウ素など様々な化学形態をとるが、物理的、化学的、生物的作用などにより化学形態が変化する。環境に存在する放射性ヨウ素の生体影響や環境動態を評価するためには、化学形態ごとに存在量を知ることが重要である。そこで本研究ではヨウ化物イオンをターゲットとして、電気化学的手法を用いた回収、定量法の確立を目的とし、銀電極を用いて I⁻をヨウ化銀として回収する方法について検討した。

【実験】

電気化学測定には、作用電極に銀ディスク電極(7.1 mm²)または銀ワイヤー(60 mm²)、参照電極に Ag/AgCl 電極(3M NaCl)、対極に白金電極を用いた。まずは電解液(0.1 M KNO₃ 溶液)中に、K¹²⁷I(最終濃度 0-100 μM)及び K¹²⁵I(3 kBq)を添加し、電圧を加えて試料を攪拌しながら定電位電解を行った。反応前後の溶液中の ¹²⁵I-および ¹²⁷I-濃度はそれぞれ、NaI シンチレーション検出器を用いた γ 線測定およびリニアスイープボルタンメトリー(LSV)により電流量を求めて定量した。

【結果と考察】

I⁻-回収率の最適化を行うために、電解濃縮時間を 120 秒、¹²⁷I-濃度を 100 μM に固定し、印加電圧を -400 mV から +200 mV の間で変化させた。次に ¹²⁷I-濃度を 1 μM に固定し、電解濃縮時間(0-4 h)と溶液量(2 mL, 4 mL)を変化させて時間依存性を調べた。これらの結果から、印加電圧が +50 mV のとき最も効率よく I⁻を回収できた。また、電極面積が同じ場合、溶液量を少なくするほど定常状態に達するまでの時間が短くなり、反応効率がよい結果が得られた。

I⁻-選択性を確認するために、0.1 M KNO₃ 溶液中に 10 mM となるように KIO₃ を添加して、定電位電解を行った。この結果、大量の IO₃⁻が存在しても反応は見られず、I⁻のみが選択的に反応する結果となった。

最適化した電気化学測定の条件で、妨害イオンの多い海水及びため池の水を用いて I⁻の回収・定量を試みた。0.45 μm でろ過した試料 2 mL に ¹²⁵I-(3 kBq)をトレーサーとして添加し、銀電極に電解濃縮を行うことで I⁻の回収・定量を行った。この結果、¹²⁷I-濃度が低くなるにつれて回収率は減少した。また、Cl⁻の影響を調べた結果、海水レベルの NaCl (0.7 M) では Cl⁻は I⁻の反応を妨害しないことが分かった。また、¹²⁵I-を回収率トレーサーとし

て ^{127}I -濃度を定量した結果、HPLC/ICP-MS で定量した I-濃度とほぼ同じ値が得られた。
以上の結果から、本電気化学的手法は I-を選択的かつ簡便に回収し、環境水中の I-濃度を選択的に定量できるシステムとなり得ることが示唆された。

2. 論文

なし

Exploratory study in the forested area in Rokkasho

氏名：Yoschenko Vasyl

受入研究者：難波 謙二・今田 省吾・吉田 聡

共同研究者：

1. 成果

EXPLORATORY STUDY IN THE FORESTED AREA IN ROKKASHO

Background and Aim

The planned start of operation of the Rokkasho Reprocessing Plant and MOX Fuel Fabrication Plant in FY2023 may result in releases of radioactive substances into the Environment. The aim of this project is to measure current (background) levels of radioactive contamination of forest ecosystems in the areas adjacent to the nuclear facility in order to prepare for the assessment of potential impacts caused by its operation. In particular, at this stage we focus on ^{137}Cs as an artificial radionuclide present in ecosystems and potentially released from the nuclear facility.

Study Area and Sampling

The study has been conducted in mature cedar (site 1) and mixed broadleaved (site 2) forests located approximately 4 km and 6 km northwest of the nuclear facility, respectively. In May, 3 30-cm soil cores were sampled at each site to assess ^{137}Cs deposition levels and vertical distributions. Foliage and litter samples were collected in November.

Measurements and Results

The soil cores were divided into 2 cm thick slices, dried at 100°C , homogenized, and placed into U-8 containers. Radionuclide concentrations in the samples were measured using HPGe detectors GC-4020 and Lynx Digital Signal Analyzer (Canberra Industries; 1.74% efficiency at 661 keV, calibration error $< 2\%$, measurement uncertainty $< 15\%$).

Based on the measurement results, mean ^{137}Cs deposition levels in the study area were estimated at 2.4 kBq m^{-2} and 1.8 kBq m^{-2} in the cedar and broadleaved forest plots, respectively, which corresponds to the GFO level on the Pacific side of land of Japan. In contrast to the areas impacted by the Fukushima accident, the maximum concentrations of ^{137}Cs in most cores were found below the topsoil. The mean ^{137}Cs expectation depths (mass depths) at the cedar and broadleaved forest sites are 6.2 cm (21 kg m^{-2}) and 6.5 cm (25 kg m^{-2}), respectively.

Due to the very low concentrations of radiocesium in biomass and forest litter, measuring these samples requires significant time. At the moment, these measurements are close to completion.

What's next

- * Completion of ^{137}Cs (litter and biomass samples) and ^3H (cedar foliage sample) measurements and assessment of the current exposures;
- * Elaboration of a routine monitoring scheme and continuation of the study in the same forest stands in FY2023.

2. 論文

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

受入研究者：笹 公和・平尾 茂一

共同研究者：松村 万寿美・松中 哲也

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 I-129 (半減期: 1,570 万年) は、高い化学的活性や Cs-137 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。Cs-137 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、I-129 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 年度に阿武隈川中流地点 (集水面積 2800 k m²、平均 I-129 沈着量 0.041 Bq/m²) で採取した水試料について分析を行い、Cs-137 に比べて、I-129 は溶存態として流出する割合が高いことなどを示した。

2019 年度、2020 年度に対象とした阿武隈川中流では I-129 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 I-129 の沈着量が高い新田川で採取した試料を分析した。その結果、新田川では I-129 が阿武隈川に比べて、懸濁態として移行しやすいことを示唆する結果が得られた。この傾向を確認するため、2022 年度は 2017 年 10 月 23~24 日の出水イベント時に新田川下流の原町地点 (集水面積 206 k m²、平均 I-129 沈着量 0.093 Bq/m²) で採取した 6 つの水試料の分析を行った。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 I-129/I-127 比を測定し、ICP-QQQ-MS を用いて I-127 濃度を測定した。

溶存態 I-129 濃度の平均値は 0.13 μ Bq/L、懸濁物質の I-129 濃度の平均値は 2.4 mBq/kg であり、見かけの分配係数 K_d の平均値は 22000 L/kg であった。I-129/I-127I 比の平均値は、溶存態では 5.0×10^{-9} 、懸濁物質で 3.2×10^{-8} であった。I-129 の流出量は 32 kBq であり、流域内の総 I-129 沈着量の 0.17% に相当した。これらの結果は、2021 年度に対象とした新田川原町地点の 2016 年 8 月のイベントとほぼ同様な結果であった。I-129 の濃度平均値および流出量について、阿武隈川との比較の上で、2021 年度の分析によって得られた結果と同様に新田川では I-129 が懸濁態として移行しやすいことが確認された。

溶存態および懸濁物質の I-129 濃度の時間変化について共通する傾向は見出すことができなかった。2016 年のイベントでは懸濁物質の I-129 濃度は減少傾向を示したが、2017 年のイベントでは一度増加した後、ほぼ一定の値を示した。懸濁物質の炭素含量、粒径組成パラメータとの関係を見ても、有意な相関を示す共通した項目は認められなかった。降雨の量・強度の違いが I-129 の濃度時間変化に反映されている可能性が考えられる。

総括として、阿武隈川との比較において新田川では I-129 が懸濁態として移行しやすいことが確認された。この結果は懸濁態・溶存態の量比が沈着量に依存する可能性を示唆してい

る。この仮説を検証するためには、今後さらに平均 I-129 沈着量が大きいと考えられる流域で採取した水・懸濁物質試料の分析・解析を行う予定である。

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

受入研究者：青山 道夫

共同研究者：

1. 成果

はじめに

東電福島第一原発事故発生から 12 年が経過したが、福島県周辺の沿岸域における海水中の放射性 Cs 濃度は事故前の値には収束していない。これは、陸域に沈着した放射性セシウムが河川を介して同沿岸へ流入していることに起因する。特に河川を介して運ばれる放射性 Cs の多くは微細な河川懸濁粒子中に含まれており、これらが海洋へと運ばれることで、河口周辺の沿岸に生息する海産生物への経口による摂取および一部は生体内へと移行することが考えられる。その移行しやすい吸着形態については海洋においては未だによくわかっていない。そこで、河川から海洋へと運ばれた懸濁粒子中の放射性 Cs の吸着形態を調べるために、福島県の東電福島第一原発周辺に位置する河川のうち、同原発から南 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、河川水および海水試料を採取した。採取後、ろ過を行い、ろ紙上に付着した懸濁粒子の濃度と放射性 Cs 濃度、ならびに放射性 Cs の吸着形態について調べた。

結果

2019～2021 年の 3 年間で採取された懸濁粒子中の放射性 Cs 濃度は河川が平均 1 万 Bq/kg-dry、漁港の海水中が数千 Bq/kg-dry であり、河川の方が高いことから、漁港で確認された懸濁粒子中の放射性 Cs の多くは河川由来であることが示唆された。また、懸濁粒子中の放射性 Cs の吸着形態はイオン交換態および有機態、ともに 1 %程度と低いことが分かった。これらの結果を更に解析し、沿岸域に生息する海産生物への放射性 Cs の移行についても評価する。

2. 論文

二動原体染色体解析による野生イノシシの線量推定

氏名：石庭 寛子

受入研究者：三浦 富智・Anderson Donovan

共同研究者：

1. 成果

Analyzing dicentric chromosomal aberrations is considered the gold standard of cytogenetic biodosimetry, as it has the necessary sensitivity for estimating acute radiation exposures. In addition, higher dicentric frequencies have been observed in cells of humans or wildlife inhabiting areas of chronic and low dose rate radiation exposures (i.e., areas with radiation doses higher than the average natural background radiation). However, dose response of dicentrics requires consideration of dose rates and is still relatively unknown if dicentrics have the utility to be an effective radiation biomarker to subjects inhabiting these areas exposed to chronic radiation. In previous years, we have collected and cultured blood from 307 wild boars to analyze dicentrics in lymphocytes. Then, our goal is to estimate whole body absorbed dose to each subject using our study's calibration curve and the frequency of dicentrics in each subject. This process requires thousands of cells to be scored for each animal and an extensive amount of time. Thus, the analysis is still on-going and will need to be completed in the future. Currently, we have found no dicentric chromosome aberrations in the wild boar in Fukushima Prefecture. Thus, chronic radiation exposure to each subject may be too low to cause dicentrics. These results need to be verified by increasing the number of cells scored per animal especially at lower doses.

Concurrently to conducting the dose assessment using dicentric frequency, we have estimated the absorbed dose to each animal using modelling approaches (i.e., ERICA 2.0). We were able to publish a paper with these results and will use these estimated doses to compare to doses estimated by the dicentric assessment. In brief, total dose rates to wild boar ranged from 0.02 to 36 $\mu\text{Gy h}^{-1}$, which was primarily attributed to external radiation exposure, and dose rates to the maximally exposed animals were above the generic noeffects benchmark of 10 $\mu\text{Gy h}^{-1}$. Using the estimated age of each animal, lifetime radiation doses ranged from <0.1 mGy to 700 mGy.

2. 論文

森林火災が放射性セシウムの挙動に与える影響の解明

~2017 年福島県十万山森林火災を対象として~

氏名：五十嵐 康記

受入研究者：林 誠二・佐々木 祥人

共同研究者：

1. 成果

In April 2017, a forest fire occurred in a difficult-to-return zone (Juman-yama, Namie.). Forest fires in areas with high concentrations of radioactive materials in the environment, such as areas affected by the nuclear power plant accident, can have a significant impact on society. The heat of the fire may act on the litter layer on the soil surface and the ontogeny of Cs in the surface soil. Leaching characteristics from litter and soil may be altered, especially in terms of hydrological transport. Therefore, we thought that we could experimentally clarify the dynamics of radioactive Cs in soil by using fire-extended and non-fire-extended soil immediately after a fire. The purpose of this study is to clarify the dynamics of radioactive Cs in soil, especially the effect on solubility, by using the spreading and non-extending soils immediately after the fire.

Kd decreased with increasing fire temperature. Ash produced at higher temperatures may be a source of dissolved ^{137}Cs . The Kd obtained from ash samples at the post-fire site ranged from 2000 to 6000 (L/g). Therefore, samples could have been produced at temperatures around 250° C.

This study investigated the dynamics of radioactive Cs in soil due to forest fires in environments with high concentrations of radioactive materials. The focus of this study was on issues in areas affected by the release of radioactive materials from the Fukushima nuclear accident.

2. 論文

NA

核燃料再処理施設再稼働に向けた野生ネズミの調査

氏名：三浦 富智

受入研究者：今田 省吾・大塚 良仁・中平 嶺・石庭 寛子・Donovan Anderson

共同研究者：山城 秀昭・中田 章史・中山 亮・竹林 花依

1. 成果

東京電力福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された放射性物質による被ばくの生物学的影響研究が数多く行われてきた。しかし、これらの研究の課題は、事故前のバックグラウンドデータが欠如していることにある。アカネズミは行動半径が中・大型哺乳類に比べて広くなく、また地域的隔離により地域集団を作る可能性が考えられる。本研究では、小型哺乳類である野生アカネズミを対象として、内部被ばく調査、DNA 試料アーカイブ、病理組織試料アーカイブ、染色体異常調査、精子の形態的解析を行い、青森県六ヶ所村の使用済み核燃料再処理工場の再稼働前のバックグラウンドデータを集積することを目的とする。

2022 年度は、六ヶ所村内の野生ネズミ調査方法を環境科学技術研究所と打ち合わせを行い、生体試料の共有法について協議した。また、野生ネズミの調査に必要な核種許可申請（青森県野生ネズミ捕獲申請、弘前大学動物実験計画申請（対象動物外）、三八上北森林管理署国有林内採集許可証）を行い、調査地点の選定のための予備調査を行った。

核燃料再処理施設からの東方向約 3km に位置する環境技術科学技術研究所協のサイト 1 は雑木林環境であり、空間線量率は $0.02\text{--}0.03 \mu\text{Gy/h}$ であった。シャーマントラップを設置し、アカネズミおよびヒメネズミの分布が確認された。また、核燃料再処理施設からの北西方向約 4km に位置するサイト 2 は広葉樹と針葉樹の混合林からなり、空間線量率は $0.02\text{--}0.04 \mu\text{Gy/h}$ であった。シャーマントラップを用いた調査では、ヒメネズミのみが捕獲された。

さらに、一部の生存捕獲個体から野外での生体試料採取の可否を検証し、目的とする生体試料を採取可能なことが確認できた。今後、サンプル処理法や保存法を連携機関と協議するとともに、同フィールドでの核燃料再処理施設再稼働前の生物試料を希望する研究者を募り、バックグラウンドデータの取得を実施する。

2. 論文

生体試料の前処理手法に関する研究

氏名：赤田 尚史

受入研究者：田副 博文・坂口 綾・Kranrod Chutima

共同研究者：桑田 遥・高久 雄一

1. 成果

爪は根元の爪母で生まれ、爪床に沿って成長する。平均的に1日で約0.1mm、1ヶ月で3-4cm程度成長すると言われている。全てが生え変わるまでに3-4ヶ月程度かかる。そのため、生体試料に含まれる化学物質濃度を明らかにすることで、生活環境からの影響を評価できる可能性がある。しかし、その洗浄法は確立されていない。そこで、爪組織を対象としたICP質量分析計を用いた無機元素分析手法のための洗浄前処理手法について整理する。

本研究での対象元素は、Na, Ca, Al, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, As, Se, Rb, Sr, Mo, Pd, Ag, Cd, Sn, Sb, Te, Ba, La, Gd, W, Pt, Hg, Tl, Pb, Bi, Uの34元素である。

爪試料約10mgを3回洗浄し、1回ずつの洗浄後の水中濃度をトリプル四重極誘導結合プラズマ質量分析装置を用いて測定した。

爪試料約100mgをHNO₃溶液1mLに溶かし、3%HNO₃溶液になるように20倍希釈すると、Znは約0.5ppm程度になると推定される。本実験の結果、3回の洗浄ではこの濃度の50分の1以下となり十分洗浄できたといえる。ただし、使用する遠沈管の洗浄法、保存法には注意が必要である。

2. 論文

なし

大気中放射性物質の連続モニタリング

氏名：細田 正洋

受入研究者：平尾 茂一・床次 眞司・赤田 尚史・大森 康孝

共同研究者：

1. 成果

福島第一原子力発電所事故から 10 年以上が経過し、人工放射性核種が大幅に減少していることから、人工放射性核種による住民の線量評価において、天然放射性核種からの線量を定量的に評価することが重要になってきている。ラドンをはじめとする自然界に存在する放射性核種は、事故以前から存在しており、その変動を正確に把握することは、人工放射性核種の高精度な測定につながると考えられる。日本における平均的な屋外ラドン濃度は、日本分析センターが実施した全国調査の結果により約 5 Bq/m³ と評価されている (Oikawa et al. J. Environ. Radioact. 2003)。このように大気中のラドン濃度は家屋内と比べて低いことから、その変動を観測するためには、検出限界値がより低いラドンモニタが必要となる。現在、検出限界値が 0.5 Bq/m³ 程度と我が国の平均値の 1 桁程度低い値を持つラドンモニタが市販されており、大気中のラドン濃度測定に使用されている (飯田ほか, Environ.Int. 1996)。昨年度は、大気中ラドンモニタの絶対湿度に対する補正係数を弘前大学被ばく医療総合研究所に設置されているラドン曝露場を利用して評価した。本年度は、大気中ラドンモニタで得られる計数率からラドン濃度への換算係数を較正実験により評価した。さらに、弘前市内において大気中ラドン濃度の連続観測を開始した。

本調査では市販の静電捕集型ラドンモニタ (ERM, 応用光研工業株式会社) を用いた。は、校正実験により校正されたものです。このラドンモニタは 16.8 L の捕集ドームを備え、捕集ドームには +3000 V の電圧が印加されている。その結果、Si 半導体検出器の表面は相対的に負のバイアスとなり正に帯電しているラドン子孫核種である Po-218 を捕集することができる。換算係数の評価は弘前大学被ばく医療総合研究所に設置されているラドン曝露場で実施した。基準ラドンモニタにはドイツ連邦放射線防護局 (BfS) で較正された電離箱式ラドンモニタである AlphaGUARD (以降 AG : Saphymo, ドイツ連邦) を用いた。AG をラドン曝露場内に設置し、同時に曝露場内のラドンガスを ERM に 1 L/min のサンプリング流量で循環させた。得られた結果より、換算係数 (CF) を $CF = C/r$ より評価した。ここで、 C は AG で得られたラドン濃度、 r は ERM で AG との同時測定で得られた計数率である。校正実験の結果、ERM で得られた計数率からラドン濃度への換算係数は $2.8E-2$ Bq/m³/cpb と評価された。さらに、較正した ERM を弘前大学保健学研究科棟 7 階に設置し、大気中ラドン濃度の連続観測を実施した。その結果、大気中のラドン濃度は明け方から日中にかけて低くなり、深夜から明け方にかけて上昇する典型的な日変動を示した。さらに、待機中のラドン濃度は春から夏にかけて低くなり、夏から秋にかけて上昇する季節変動を示した。

今後は連続観測を継続し、気象因子の変動との関連や大気中ラドンのトレーサ利用について検討を進める計画である。

2. 論文

特になし

ICP 質量分析法による水中放射性ストロンチウム定量法の開発と標準化

氏名：田副 博文

受入研究者：高貝 慶隆

共同研究者：

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 ^{90}Sr 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 ^{90}Sr 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 ^{90}Sr . ^{90}Sr 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

有機結合型トリチウム分析の前処理手法の改良

氏名：藤原 健壮

受入研究者：赤田 尚史・寺島 元基

共同研究者：桑田 遥

1. 成果

1. 研究成果報告

環境試料中の有機結合型トリチウムの分析を行う場合、凍結乾燥で組織内自由水を除去し、凍結乾燥試料を燃焼させて燃焼水を採取する前処理が必要となる。規制庁の放射能測定法シリーズで分析手法は取りまとめられているが、丁寧に対応した場合、必要な前処理に時間を要してしまう。これまで共同研究で前処理手法の改良を行い、通常 1,2 か月かかる前処理工程を 1 週間程度に短縮された。今回は、魚試料を用いた予備凍結工程で試料形状を変えることにより、凍結乾燥の迅速化を試みた。また、示差熱分析を行い、燃焼工程の効率化を試みた。

凍結乾燥工程においては、予備凍結時にヒラメ試料を 1cm 角（表面積約 6cm²）から 8cm², 10cm² 程度の細かさとミンチ状まで 4 種類の形状に切り分け凍結乾燥を行い 1 時間ごとの重量を測定することにより恒量到達までの時間を測定した。用いた試料量は検出下限値を 1Bq/kg-生程度と設定した場合必要となる試料量 (20g) を用い、複数回凍結乾燥を行った。処理にかかった時間は 1cm 角 (6cm²) 程度で 22-24 時間程度、ミンチ状で 15-16 時間程度の凍結乾燥で恒量に到達することが明らかになった。このことから組織内自由水を得るための前処理である予備凍結から凍結乾燥の工程が 2 日から 3 日程度で処理可能になることが示唆された。

燃焼工程においては、サンプルによる燃焼を効率よく進めることを目的とし、燃焼温度に伴い発生する有機物成分を TG-DTA で測定し、傾向を確認した。ヒラメ試料について、60°C 程度で二酸化炭素が発生し、500°C 程度で有機物の分解が発生した。

この結果から、自由水回収時に加温乾燥を取り入れる場合、60°C 以上での加温は注意が必要であることが分かった。また、酸素の濃度等実際の燃焼工程とは異なるが、燃焼温度の関係を整理することにより、効率的な燃焼に必要な温度設定が明示されることが示唆された。

2. 論文