

放射能環境動態・影響評価
ネットワーク共同研究拠点（ERAN）

FY2023 Final Report

【拠点間/Within ERAN 共同研究】

拠点間共同研究

採択番号	研究代表者氏名	研究代表者所属	課題名	共同研究者氏名	共同研究者所属
E-23-01	恩田 裕一	筑波大学	六ヶ所村における再処理施設稼働前における森林・溪流のトリチウム状況の把握	グシエフ マキシム 今田 省吾 吉田 聡	福島大学 環境科学技術研究所 環境科学技術研究所
E-23-02	坂口 綾	筑波大学	環境水中の極微量Tc分析法確立	田副 博文 赤田 尚史 高久 雄一	弘前大学 弘前大学 筑波大学
E-23-03	山崎 信哉	筑波大学	環境水中ヨウ化物イオンの迅速かつ選択的回収に向けた電気化学的手法の速度論的検討	平尾 茂一	福島大学
E-23-04	ヨシエンコ ヴァシル	福島大学	Monitoring study in the forested areas in Rokkasho	難波 謙二 吉田 聡 今田 省吾 柿内 秀樹	福島大学 環境科学技術研究所 環境科学技術研究所 環境科学技術研究所
E-23-05	平尾 茂一	福島大学	福島第一原子力発電所周辺における環境中トリチウムの評価	柿内 秀樹	環境科学技術研究所
E-23-06	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129I動態	笹 公和 平尾 茂一 松中 哲也 松村 万寿美	筑波大学 福島大学 金沢大学 筑波大学
E-23-07	石庭 寛子	IER	野生動物の硬組織試料を活用した線量評価に関する研究	高貝 慶隆 アンダーソン ドノヴァン 岡 壽崇 青木 譲	IER IREM 日本原子力研究開発機構 福島大学
E-23-08	グシエフ マキシム	IER	Tritium water measurements in small Fukushima catchments'	赤田 尚史	IREM
E-23-09	三浦 富智	弘前大学	核燃料再処理施設稼働に向けた野生ネズミの調査	アンダーソン ドノヴァン 今田 省吾 石庭 寛子 大塚 良仁 山城 秀昭 中田 章史	弘前大学 環境科学技術研究所 福島大学 環境科学技術研究所 新潟大学 北海道科学大学
E-23-10	赤田 尚史	弘前大学	有機物中水素量に関する研究	柿内 秀樹 山田 椋平 桑田 遥	環境科学技術研究所 弘前大学 弘前大学
E-23-11	田副 博文	IREM	Investigation of temporal variation and control factor of Sr-90 in fish bone sample collected in Ukedo River	和田 敏裕 三浦 富智	IER IREM
E-23-12	大森 康孝	弘前大学	自動車走行サーベイによる土壌中のラジウム濃度評価のための基礎的検討	平尾 茂一 床次 眞司 細田 正洋 クランロッド チュティマ	福島大学 弘前大学 弘前大学 弘前大学
E-23-13	アンダーソン ドノヴァン	弘前大学	Estimating dose to wild boars in Fukushima Prefecture	石庭 寛子 三浦 富智	福島大学 弘前大学
E-23-14	山田 椋平	弘前大学	水中トリチウム濃度測定に係る相互比較分析	平尾 茂一 赤田 尚史 桑田 遥 Kheamsiri Khemruthai	福島大学 弘前大学 弘前大学 弘前大学
E-23-15	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	弘前大学 日本原子力研究開発機構 弘前大学
E-23-16	辻 英樹	国立環境研究所	河川における懸濁物質中の有機物とセシウム137の分配係数の関係	五十嵐 康記 脇山 義史	福島大学 福島大学
E-23-17	柿内 秀樹	環境科学技術研究所	福島における環境トリチウムの遡及的評価	恩田 裕一 加藤 弘亮	筑波大学 筑波大学

環境水中の極微量 Tc 分析法確立

氏名：坂口 綾

受入研究者：田副 博文・赤田 尚史・高久 雄一

1. 成果

人工放射性核種テクネチウム-99(半減期 = 21.1 万年)はその物理化学的性質から、重要核種として環境におけるモニタリングが重要視されている。しかし、一般環境水中の Tc-99 は放射線分析や質量分析のいずれにおいても現状その測定が困難である。先行研究にて、これまで数十～数百 L の海水を必要としていた Tc-99 の分析を 1.5 L で行える可能性が示唆された。しかし、測定の妨害となる核種の除去が不十分でありその実現には至っていない。本研究では、最終的に質量分析による簡便な Tc-99 定量法確立をめざし、さらなる妨害核種の除去のための Tc-99 分離濃縮法を検討した。また、Tc-99 質量分析における分析効率や測定精度向上のために用いる‘スパイク’候補の長半減期 Tc-97(半減期 = 421 万年)および‘トレーサー’候補の短半減期 Tc-95m (半減期 = 60 日)を Nb+Li 核反応により同時に製造できる条件を探索するため、それぞれの反応における励起関数を得ることとした。〈99Tc 分離濃縮法の検討〉質量分析装置(ICP-MS)による Tc-99 分析時の妨害核種(Mo-98、Ru-99)のさらなる除去と海水からの Tc-99 濃縮を目的とし、TEVA レジンおよび Tc-01 レジンを用いた海水からの粗分離・濃縮および精製濃縮分離法について検討した。粗分離過程においては、分析に必要な海水量を TEVA レジン(2 ml)に連続的に流した後、1 M 硝酸で樹脂を洗浄、8 M 硝酸で Tc を溶離する一連の実験において、洗浄条件を変えることにより Tc(Re)の高収率、Ru、Mo の高除去率を目指した。Tc-01 レジンを用いた精製分離過程においては、Tc の溶離条件を予備的に検討し、最終溶離液中の Tc-99 および妨害核種の測定を行った。〈Tc-97 スパイク・Tc-95m トレーサーの製造〉Nb の金属箔を重ねたスタックターゲットに Li-7 イオンビームを 2.9 時間照射することで、52.4-30.5 MeV の範囲において Tc 同位体の製造を行った。照射後の Nb 箔の γ 線測定により得られた Tc-95m、Ru-97(Tc-97)の放射能から核反応断面積を求め、それぞれの励起関数を得た。【結果と考察】〈Tc-99 分離濃縮法の検討〉粗分離過程において、最適化した洗浄量、洗浄速度を 1.5 L の海水に適用し、分離濃縮実験を行った結果、Tc(Re)の回収率は $92.5 \pm 5.1\%$ であった。Mo-98 および Ru-99 の除去係数はそれぞれ 7.3×10^4 、 3.0×10^3 であり、Mo の目標除去係数を達成した。精製分離過程では 100%に近い Tc の回収率を保った上で Ru をさらに 1/230 除去することができると分かった。〈Tc-97 スパイク・Tc-95 トレーサー

の製造) Li イオンビームを照射した Nb 箔から Tc-97、Tc-95m の製造が確認され励起関数を得ることができた。製造された Tc-95m/Tc-97 比が 1 Bq/1 fg となる Li ビームエネルギーは 52.4 MeV であり、Nb フォイルから Tc を精製することで今後 Tc の質量分析における有用なスパイク・トレーサー試薬を作成可能なことが示唆された。

2. 論文

環境水中ヨウ化物イオンの迅速かつ選択的回収に向けた

電気化学的手法の速度論的検討

氏名：山崎 信哉

受入研究者：平尾 茂一

1. 成果

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。本研究ではヨウ化物イオンを電気化学的手法により回収、定量する方法について実試料への適用可能性について検討を行った。電気化学測定は、作用電極に銀線 (0.5 mm ϕ)、参照電極に Ag/AgCl 電極(3M NaCl)、対極に白金線を用いて行った。電解液(0.1 M 硝酸カリウム溶液)中に、 $^{127}\text{I}^-$ (0-100 μM) 及び $^{125}\text{I}^-$ (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。電極面積や印加電圧、ヨウ化物イオン濃度を変化させて、溶液中のヨウ化物イオン濃度の経時変化を記録した。反応前後の溶液それぞれについて、NaI シンチレーターを用いてヨウ化物イオン濃度を求めた。実試料として、筑波大学内の松美池で採取した水を 0.45 μm のフィルターでろ過した水を用いた。電気化学的手法と HPLC-ICP-MS 法でそれぞれ I-濃度を測定し、クロスチェックを行った。環境水レベルのヨウ化物イオン濃度の溶液について印加電圧の影響を調べた結果、+50 mV のとき最も効率よく I-を回収できた。この結果は、前年度に報告したヨウ化物イオンを高濃度に含む溶液で得られた結果と同じであった。また、反応溶液量が 3 mL の場合、15 分以内に反応が定常状態となった。銀線の長さを 5, 10, 15 cm と長くすると反応速度及びヨウ化物イオンの反応量が上昇したが、20 cm の場合 15 cm と全く同じ結果が得られた。ヨウ化物イオン濃度の対数と反応量には直線関係が得られたため、電極に回収したヨウ化物イオン量を定量することで、溶液中のヨウ化物イオン濃度を求めることができると推測された。ため池の水を用いてヨウ化物イオンの回収・定量を試みたところ、本手法の結果と HPLC/ICP-MS の結果が誤差範囲内で一致した。しかし、実試料を測定した際のヨウ化物イオンの電極への回収率は、同濃度のヨウ化物イオンを含む模擬溶液で得られた値と比べて、1/10 以下であった。これは実試料中の有機物が電極に吸着して反応効率を下げたためと推測された。以上の結果より、本電気化学的手法を実環境試料に適用する際は、試料を採取した後、有機物を活性炭などで除くのが好ましいと考えられる。

2. 論文

Monitoring study in the forested areas in Rokkasho

氏名：ヨシエンコ ヴァシル

受入研究者：難波 謙二・吉田 聡・今田 省吾・柿内 秀樹

1. 成果

Background and Aim The planned start of operation of the Rokkasho Reprocessing Plant and MOX Fuel Fabrication Plant in FY2025 may result in releases of radioactive substances into the Environment. This project continues the research initiated in 2022 at two forest observation sites in the area of potential impact of the nuclear fuel cycle facility. Our preliminary results revealed low (background) levels of ^{137}Cs contamination of the components of the study ecosystems originated from the global fallout. In FY2023, we aimed to obtain more detailed data on ^{137}Cs distributions at the experimental sites, which would enable the estimates of radionuclide fluxes in the cedar forest and identification of the most contaminated broadleaf species as potential monitoring targets for the period of the facility operation.

Study Area and Sampling The study was continued in mature cedar (Site 1) and mixed broadleaf (Site 2) forests located approximately 4 km and 6 km northwest of the nuclear facility, respectively. In 2023, samplers of litterfall (LF), throughfall (TF) and stemflow (SF) were installed. Biomass, litter, and water were sampled in Sep-Nov.

Results: Background Levels of ^{137}Cs in the Study Areas Based on the measurement results available to the moment, ^{137}Cs deposition levels in the study area are estimated at $2.4 \cdot 1.1 \text{ kBq m}^{-2}$ and $1.8 \cdot 0.4 \text{ kBq m}^{-2}$ in the cedar and broadleaf forest plots, respectively, which corresponds to the GFO level on the Pacific side of land of Japan. The ^{137}Cs expectation depths (mass depths) at the cedar and broadleaf forest sites are $6.2 \cdot 0.4 \text{ cm}$ ($21 \cdot 4 \text{ kg m}^{-2}$) and $6.5 \cdot 0.9 \text{ cm}$ ($25 \cdot 6 \text{ kg m}^{-2}$), respectively (sampling in FY2022). ^{137}Cs concentrations in litter are at the level of several Bq kg^{-1} . Litter inventories account for about 0.3% of the total deposition in the cedar forest and about 0.1% in the broadleaf forest, respectively. ^{137}Cs concentrations in the crown compartments of cedar (foliage, branch) are in the range $1\text{-}3 \text{ Bq kg}^{-1}$. ^{137}Cs concentrations at the level of several Bq kg^{-1} were measured in leaves and branches sampled from several broadleaf species, such as Acer, Lindera, and others. Measurements of ^{137}Cs activities in samples collected from other broadleaf species, as well as in fresh LF and TF from cedar site, are in progress.

What's next

- Completion of ^{137}Cs measurements and assessment of the fluxes;
- Elaboration of a routine monitoring scheme. Specification of the potential monitoring targets (e.g., TF and LF).

2. 論文

福島第一原子力発電所周辺における環境中トリチウムの評価

氏名：平尾 茂一

受入研究者：柿内 秀樹

1. 成果

There is a need for scientific knowledge to evaluate the environmental impact associated with the release of ALPS-treated water stored at the TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) into the ocean. Tritium is a radioactive isotope with a half-life of 12.3 years, most of which is present in the environment as water form, HTO. Since atmospheric transport of HTO is the fastest pathway to organisms living on land, it is necessary to first obtain actual measurements of atmospheric concentrations and then evaluate the consequences of environmental HTO impact. On land, HTO is taken up by plants and is fixed by photosynthesis. Therefore, information on tritium concentration in plants is essential for environmental impact assessment. However, the number of monitoring on land is small compared to the substantial expansion of ocean monitoring. In this study, tritium concentrations in plants in the vicinity of the FDNPP were measured, and the relationship between concentration fluctuations and meteorological conditions was examined. Environmental assessment requires sampling the same plants at multiple sites. In this study, *Solidago altissima* was used as the monitoring plant because it grows throughout Japan and in many locations in Fukushima. Tissue free water (TFW) was extracted from the collected leaves of *Solidago altissima*. Traditionally, a combination of vacuum freeze-drying and distillation has been used for the extraction. However, it is difficult to process a large number of samples simultaneously and efficiently in a system consisting of a vacuum pump and a cooling system. Therefore, a new membrane separation method using PTFE filters was applied. Tritium concentration of tissue free water (TFWT) was measured by using low background liquid scintillation counter (Quantulus GCT6220, PerkinElmer). The TFWT concentration was successfully measured and ranged within the variation in previous observations, although the TFWT concentration obtained was slightly higher than the current background level in Japan. The findings presented in this research can be utilized to evaluate the ecological consequences of tritium in the vicinity of a release site.

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：松中 哲也・松村 万寿美

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 年度は阿武隈川中流地点(集水面積 2800 km²、平均 129I 沈着量 0.041 Bq m⁻²)で 2018 年 7 月と 10 月に採取した水試料、2021 年度・2022 年度は新田川下流の原町地点(集水面積 200 km²、平均 129I 沈着量 0.093 Bq m⁻²)で 2016 年 8 月・2017 年 10 月に採取した水試料を分析した。この結果、新田川では 129I が阿武隈川に比べて、総流出量に対する懸濁態の割合が高いことが示された。このことから、129I 沈着量が大きいくほど懸濁態の寄与が大きくなる可能性が考えられた。この仮説を検証するため、2023 年度は流域内の 129I 沈着量がさらに大きいと考えられる新田川上流の蕨平地点で採取した試料を対象として、分析を行った。蕨平地点における集水面積は 206 km² であり、流域平均 129I 沈着量は 0.069 Bq m⁻² と推定された。ただし、この沈着量は、流域内の測定点数が少ないため、過小評価されている可能性がある。この地点で 2016 年 8 月 16~17 日の出水イベント時に採取した水試料を用いて、2022 年度までと同様に前処理、加速器質量分析法による 129I/127I 比測定、ICP-QQQ-MS による 127I 濃度測定を行った。溶存態 129I 濃度の平均値は 2.4×10^{-4} mBq L⁻¹ (n=5)、懸濁物質の 129I 濃度の平均値は 1.1×10^{-2} Bq kg⁻¹ (n=5) であった。129I/127I 比の平均値は、溶存態で 1.0×10^{-8} 、懸濁物質で 4.9×10^{-8} であった。これらの値は、新田川下流の原町地点での値よりも高く、両集水域における沈着量の違いを反映していると考えられる。それぞれの濃度の時間変化を見ると、溶存態 129I 濃度は上昇した後に低下し、懸濁物質の 129I 濃度は減少した。見かけの分配係数 K_d の平均値は 5.6×10^4 L Bq⁻¹ であり、原町地点(2016 年： 2.3×10^4 L Bq⁻¹、2017 年： 2.2×10^4 L Bq⁻¹)よりも高く、沈着量が多い流域ほど流出に対する懸濁態の寄与が大きいくことを示している。129I の流出量は 1.8×10^4 Bq であり、このうち 96.7% が懸濁態であった。この懸濁態割合も原町地点(2016 年：92%、

2017年：83%) に比べて高い値であった。2023年度の結果は、流域平均 129I 沈着量が大きい流域では懸濁態として移行しやすいという仮説を支持するものとなった。今後、2017年に蕨平で採取した試料を分析に供し、この仮説の確認を行う予定である。また、蕨平地点における流域平均 129I 沈着量が過小評価されている可能性があるため、既存データを参照するなどしてその確認を行う。なお、2019年度・2020年度に得られた結果をとりまとめて、Applied Geochemistry 誌に投稿し、2024年3月29日現在査読中である。

2. 論文

野生動物の硬組織試料を活用した線量評価に関する研究

氏名：石庭 寛子

受入研究者：高貝 慶隆・Anderson Donovan

共同研究者：岡 壽崇・青木 譲

1. 成果

Hard tissues, such as bones and teeth, retain their shape and can be preserved for extended periods, making them useful in species identification within the field of ecology. Recent advancements in analytical technology have made it possible to extract valuable information from archived hard tissue samples. In this study, we will utilize hard tissue specimens that have already been collected to measure levels of radioactive strontium, which is known to accumulate in teeth and bones, and CO₂- radicals, which are known to accumulate in tooth enamel. By doing so, we will be able to assess the radiation exposure levels of wildlife living in the difficult-to-return zone in Fukushima Prefecture. In this fiscal year, it was confirmed that CO₂- radicals without impurities could be extracted from the tooth of Japanese field mouse (*Apodemus speciosus*). Collected tooth samples were divided into two groups, young and old, based on the degree of wear of the molars. In each group, molars from 15 individuals were combined at a time due to the small size of mouse teeth, making it challenging to detect radical signals. Subsequently, the molars were powdered, and impurities were removed. Radical signals were detected using electron spin resonance instrument. Intensity of radical in young and old groups showed similar trend with estimated total lifetime radiation dose, i.e., the young group was lower and the old group was higher. As for the next step, dose estimation is performed based on the relationship between stepwise irradiation of the samples and the ESR signal and establish measuring method to detect radical intensity for each individual.

2. 論文

Tritium water measurements in small Fukushima catchments"

氏名：グシエフ マキシム

受入研究者：赤田 尚史

1. 成果

In 2023, small headwater catchments with 26 potential sites were identified for potential water samples and had an area from 0.53 km² to 185 km² at 18 site elevations ranging from 57 m near Abukuma River and 1618 m with discharge from 0.02 m³/s to 2.88 m³/s. On 12 Oct 2023, 19 river water sites (Fig. 1) and one monthly rainwater of September 2023 were sampled for H-3 measurements using Liquid Scintillation Counter after sample distillation. H-3 in rainwater is 0.391(±0.15) Bq/L at IER roof and H-3 in river water ranges from 0.002(±0.15) Bq/L to 0.832(±0.14) Bq/L with an average of 0.335 ±0.234. Using 3H=0.21 (±0.14) Bq/L with 3H in Fukushima precipitation leads to Mean Transit Times (MTT) = 38 years, but the MTT uncertainty needs to be reduced by enrichment process of river water samples at natural tritium levels. Using H-3 values measured at 19 river sites, the annual effective dose of the drinking water pathway ranges from 0.02 nSv to 10.93 nSv with an average of 4.41 ± 3.07 nSv, which is much lower than the worldwide internal dose. .

2. 論文

Not available

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：Anderson Donovan・今田 省吾・石庭 寛子・大塚 良仁

共同研究者：山城 秀昭・中田 章史

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。2023年度は、青森県六ヶ所村の3地点を調査し、環境測定および野生アカネズミの捕獲を実施した。捕獲した8匹の野生アカネズミ (*Apodemus speciosus*) から、脾臓、肝臓、腎臓、心臓、肺、脳、生殖巣および硬組織を採取し、アーカイブ用試料として保存した。令和5年度中のERANサンプルアーカイブに登録した (Metadata: IREMS00007)。

【各臓器試料の処理・保存状況】 ①肝臓、腎臓、肺、心臓、大脳：10%中性緩衝ホルマリン固定後、組織学的解析を可能とするため、パラフィン包埋組織を準備した。将来的に、組織切片画像の提供が可能である。また、組織を小片に細切後、液体窒素で急速冷凍した。-80℃で保存している。②脾臓：脾細胞培養を行い、染色体標本作製し、染色体顕微鏡画像を取得した。解析後に画像の提供が可能である。③血液：血清分離後、液体窒素で急速冷凍した。-80℃で保存している。④精巣：ブアン液または10%中性緩衝ホルマリンで固定後、パラフィン包埋組織を準備した。また、組織を小片に細切後、液体窒素で急速冷凍した。-80℃で保存している。⑤卵巣：ブアン液または10%中性緩衝ホルマリンで固定後、パラフィン包埋組織を準備した。⑥：硬組織 (骨、歯)：-30℃で保存している。

2. 論文

Metadata of IREMS00007

(https://www.ied.tsukuba.ac.jp/s_archive/IREMS00007.html)

有機物中水素量に関する研究

氏名：赤田 尚史

受入研究者：柿内 秀樹・山田 椋平

共同研究者：桑田 遥

1. 成果

福島第一原子力発電所の廃炉作業に伴い発生する、多核種除去設備で処理された「処理水」の海洋放出が開始された。そのため、環境中におけるトリチウム濃度とその挙動に関心が集まっている。動植物内に含まれるトリチウムは、組織自由水 (TFWT) と有機結合型トリチウム (OBT) として存在している。TFWT は有機物を多く含む水試料であり、一般的な水試料と同様な手順で測定される。一方、OBT は有機物を燃焼してトリチウムを水 (HTO) として回収した後に水試料と同様な手順で分析するのが一般的である。この燃焼水濃度を用いて経口摂取による内部被ばく線量を評価するためには、有機物中の水素濃度情報が重要となる。また、試料内の水素量を把握することで、乾燥させた有機物試料の燃焼量を把握することもできる。本研究では、有機物試料中の水素濃度分析を実施し、その濃度レベルを明らかにすることを目的とした。対象とした試料は、魚としてクロソイ、ヒラメ、スズキの3種である。また、植物試料として、リンゴとナシの分析も行った。それぞれの試料から可食部を取り分けた後、真空凍結乾燥法により組織自由水と有機物に分けた。乾燥有機物試料は、粉碎・混合した後に元素分析計 (MT-6, Yanaco) により水素濃度を測定した。その結果、クロソイ、ヒラメ、スズキの水素含有量はそれぞれ $7.62 \pm 0.05\%$ 、 $7.20 \pm 0.15\%$ 、 $7.09 \pm 0.09\%$ であった。リンゴとナシは、それぞれ $6.57 \pm 0.24\%$ および $6.83 \pm 0.05\%$ であった。この結果より、同量を燃焼した場合、リンゴやナシのような可食部より魚類の方が燃焼水を多く得ることができると言える。今後、本データをトリチウムの経口摂取による内部被ばく線量評価に役立てる予定である。

2. 論文

自動車走行サーベイによる土壌中のラジウム濃度評価のための基礎的検討

氏名：大森 康孝

受入研究者：平尾 茂一・床次 眞司・細田 正洋・Kranrod Chutima

1. 成果

1. はじめに 自動車走行サーベイ法は、一般に周辺線量当量率や空気吸収線量率を短時間で広範囲に測定するために用いられる。本研究では、複数台の NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを自動車に搭載し、走行サーベイによってガンマ線波高分布を取得して土壌中のラジウム濃度の広域マッピングを行うことを最終目標とする。土壌中のラジウム濃度を用いることにより土壌からのラドン散逸率を評価することができるため、ラドン散逸率マップを作成することにより、大気輸送モデルの精緻化やラドンによる潜在的な健康リスクの推定に寄与することができる。本研究で用いる NaI(Tl)シンチレータは、温度変化によって光電ピークがドリフトするという温度特性を有する。さらに、シンチレータの個体差もあるため、複数台のスペクトロメータを用いてガンマ線パルス波高分布を取得する場合には、光電ピークの位置合わせが重要となる。本採択課題では、3台のスペクトロメータの器差を明らかにするとともに、測定されたガンマ線パルス波高分布を合成し、合成波高分布と非合成波高分布から評価した空気吸収線量率を比較することにより、合成の妥当性を検証した。

2.方法 測定に用いたスペクトロメータは、3インチ円筒形 NaI(Tl)シンチレーション式スペクトロメータ EMF211 (EMF ジャパン株式会社) である。地面から 1 m の高さに同型の 3 台 (機器 A、B、C) のスペクトロメータを並べて静置し、ガンマ線パルス波高分布を 15 分間測定した。さらに、パルス波高分布を応答行列法によりアンフォールディングし、エネルギースペクトルから空気吸収線量率を評価した。3 台の機器を用いて評価された空気吸収線量率について、機器 A に対する機器 B、C の比を計算し、器差とした。また、15 分間の測定の内、最初の 5 分間で得られたパルス波高分布を抽出し、各チャンネルの計数の和をとることにより、3つの 5 分間測定のパルス波高分布を 15 分間測定に相当するパルス波高分布へ合成した。合成されたパルス波高分布から応答行列法により空気吸収線量率を評価し、基準とする機器 A で評価された空気吸収線量率と比較した。本申請課題におけるガンマ線パルス波高分布は、岐阜県東濃地域の 9 か所において測定された。

3. 結果及び考察 調査地点における空気吸収線量率は、33–113 nGy/h であった。機器 A により評価された空気吸収線量率に対する機器 B および C により評価された線量率の比は、それぞれ 1.01 ± 0.01 (範囲：0.99–1.03) および 0.99 ± 0.06 (範囲：0.89–

1.08) であった。これらの結果から、3 台のスペクトロメータにおいて明らかな器差は認められなかった。また、機器 A により評価された空気吸収線量率に対する合成パルス波高分布から評価された線量率の比は 1.01 ± 0.02 (0.98–1.04) となり、明らかな差は認められなかった。以上の結果は、屋外の in-situ 測定において 3 台のスペクトロメータから得られるパルス波高分布を単純に合成することは妥当であり、複数台を測定に用いることで測定時間の短縮化を図ることができることを示唆する。他方、スペクトロメータを自動車に搭載した場合、車体による減弱などでパルス波高分布に影響を与えたと考えられる。自動車走行サーベイ法におけるパルス波高分布合成技術を確立するためには更なる検討が必要である。

2. 論文

Estimating dose to wild boars in Fukushima Prefecture

氏名：Anderson Donovan

受入研究者：石庭 寛子・三浦 富智

1. 成果

The study aimed to estimate radiation exposure in wild boars of Fukushima utilizing the dicentric chromosome assay (DCA), despite its conventional use for acute radiation exposures in humans. The necessity arises from the crucial need to evaluate the impact of radioactive substances released into the environment on wildlife, particularly in regions like Fukushima characterized by chronic low-dose rate exposures. Assessing radiation exposure in wildlife poses challenges due to factors such as heterogeneous radioactive contamination, variability in external dose rates, animal movements and lifetimes, habitat usage, and food availability. These complexities, including the ingestion of contaminants through grazing, complicate dose estimation for large animals like wild boars. The DCA, primarily used for acute radiation exposures in humans, was used to estimate doses in wild animals of Fukushima. However, uncertainties arise due to differences in radiation responses between humans and wildlife. Wild boars in Fukushima received a lifetime radiation dose of up to 700 mGy using conventional methods, such as physical dosimetry modelling, considering both internal radiocesium accumulation and external ambient dose. A discrepancy in dose-response curves was observed between low dose rate (1.43 mGy/min) and high dose rate (200 mGy/min) calibrations. Using dicentric frequencies in wild boars, estimated doses ranging from background to 750 mGy. Future research aims to increase the number of scored cells for dose-response curve generation and focus on wild boars of Fukushima. Additionally, efforts will be made to develop correction factors for dose rates. Furthermore, alternative methodologies like electron spin resonance (ESR) will be explored for comparative dose assessments. Despite the conventional use of the DCA for acute radiation exposures in humans, this study demonstrates its potential applicability in estimating radiation exposure in wild animals of Fukushima, particularly wild boars.

2. 論文

水中トリチウム濃度測定に係る相互比較分析

氏名：山田 椋平

受入研究者：平尾 茂一・赤田 尚史

共同研究者：桑田 遥・Kheamsiri Khemruthai

1. 成果

トリチウム (H-3) は、半減期 12.3 年の放射性同位体であり、近年では福島第一原子力発電所から海洋放出される処理水中に含まれるため関心が高まっている。測定には、主に液体シンチレーションカウンタ (LSC) が用いられ、現在は様々なモデルの LSC が販売されていることから、その性能評価は重要である。そこで本研究では、弘前大学被ばく医療総合研究所 (IREM) と福島大学環境放射能研究所 (IER) がそれぞれ有する同モデルの LSC における機種間差を評価することを最終目的に、標準試料の準備及び IREM での測定を実施した。標準試料には、Merck 社 (Sigma-Aldrich®) の重水試料 (118.17 ± 0.39 Bq/L, 基準日:2020 年 9 月 9 日) を 100 倍程度に希釈したものを 2 種類 (試料 No.1 及び No.2) 準備した。これを IREM が所有する日本レイテック製 LSC-LB5 及び同社製 LSC-LB7 でそれぞれ 3 回測定した。その結果、試料 No.1 は LB5 で 0.75 ± 0.12 Bq/L、LB7 で 0.75 ± 0.11 Bq/L であり、試料 No.2 は LB5 及び LB7 とともに 1.80 ± 0.11 Bq/L であった。今後は、これら試料の放射能測定を IER の同モデル機種で行い結果を比較する予定である。また、同様のことを両機関が有する Perkin Elmer 製 Quantulus GCT 6220 で行う予定である。

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

【目的】 生体試料中の有機結合型トリチウム濃度データを取得するためには試料を乾燥処理し、乾燥試料を燃焼することによって燃焼水を回収する必要がある。しかしながら、試料の燃焼では試料種によって燃焼スピードが異なることから突発的な発火を伴い、火災や不完全燃焼による試料のロス、装置の破損等の懸念がある。そのため、試料種ごとに発火を伴わない燃焼プログラムを作成し、安全かつ容易に燃焼可能な半自動燃焼システムの確立を目指した。本件では、発火を伴わない燃焼プログラム作成のための基礎データとして、示差熱天秤(TG-DTA)と赤外分光光度計(FT-IR)との複合分析を行うことが可能な TG-DTA-FTIR 同時測定システムを用いて食部試料及び魚試料の分析を行い、燃焼温度の制御に資するデータの蓄積を図った。

【研究結果】 TG-DTA の分析結果から、松葉試料を燃焼した場合 170°C、280°C、410°Cに燃焼のピークが見られた。一方、ヒラメ試料では 160°C、450°C、520°Cに燃焼ピークが見られた。燃焼時間の依存性を確認したところ、燃焼時間を長くすることにより、燃焼ピークの高さは低くなるとともに、突発的な発火を防ぐことが分かった。また、FT-IR の結果から、燃焼開始 45 分程度までは水蒸気の吸収帯が見られ、60 分程度より二酸化炭素の吸収帯が見られていた。今回の試料では水蒸気及び二酸化炭素以外の目立ったピークが見られなかったため、不燃性の物質は確認されなかったと考えられる。今後、同様の手法でさまざまな試料におけるデータを増やし、試料種における差異を検討していくことが必要である。また、発火を伴わない燃焼プログラムを作成するためには、2つの観点で調査を進める必要があることが分かった。(1)TG-DTA-FTIR の燃焼条件として、半自動燃焼システムと同様の燃焼スピード及び燃焼時間で分析を行うこと。(2)発生ガスの有無を判断するため、TG-DTA-MS のデータを活用すること。今後、上記のデータを効率よく取得し、燃焼プログラムの開発を進める。

2. 論文

河川における懸濁物質中の有機物とセシウム 137 の分配係数の関係

氏名：辻 英樹

受入研究者：五十嵐 康記・脇山 義史

1. 成果

本研究では、「河川水中の溶存態 137Cs 濃度は、全ての懸濁物質とのイオン交換ではなく無機懸濁物質のみとのイオン交換により規定される」という仮説について、河川水試料を用いた室内試験により立証した。まず懸濁物質試料として、請戸川上流部(2023年7月)・下流部(2023年8月)において遠心分離により濃縮した懸濁粒子を 60°C で 1 週間以上乾燥し、有機性の多い懸濁物質と少ない懸濁物質を用意した。次に水試料として、請戸川上流部の河川水の現場ろ過した濾液を用意した。これらの試料を用いて、137Cs の分配係数(溶存態 137Cs 濃度に対する懸濁物質中 137Cs 濃度の比)と水温の関係が、懸濁物質試料の性状の違いによりどのように異なるか検証する室内試験を行った。まず懸濁物質濃度が 10 mg/L となるよう、水試料 8 L に上流と下流の懸濁物質を混合し、恒温槽内において定温(上流懸濁物質：5°C、下流：30°C/20°C/5°C)で 48 時間攪拌し、その後孔径 0.45 μm フィルタでろ過を行い、ろ液を蒸発濃縮後、ゲルマニウム半導体検出器により 137Cs を定量し、攪拌後の溶存態 137Cs 濃度を求めた(各試験系について 3 反復)。この実験結果から得られる 137Cs 分配係数と水温の関係は、平衡状態を仮定すれば van't Hoff 式に回帰されるはずであるが、全懸濁物質に対する分配平衡の式(モデル-1)と無機懸濁物質に対する式(モデル-2)による再現性の差異を検証することにより、上記の仮説の妥当性をすることができる。なお、懸濁物質中の有機物の割合は、別途持ち帰った水試料をガラス繊維ろ紙にろ過し、ろ紙を 105°C 乾燥後、600°C・30 分加熱し、各乾燥過程におけるろ紙の処理前からの重量増加を測定することで定量を行った。まず上流部・下流部で回収した懸濁物質中の有機物の割合はそれぞれ 86%と 52%であった。この結果をもとに、全懸濁物質の濃度(上流・下流ともに 10 mg/L)に対するモデル式(モデル-1)から得られる水温と溶存態 137Cs 濃度の関係式を、無機懸濁物質のみの濃度(上流：1.4 mg/L、下流：4.8 mg/L)から得られる再現式(モデル-2)と比較したところ、水温と溶存態 137Cs 濃度の関係は、上流・下流の懸濁物質いずれにおいてもモデル-1 に比べてモデル-2 のほうが再現性が良好であった。このことから、河川水中の溶存態 137Cs 濃度は水温と無機懸濁物質濃度によって規定される可能性が示唆された。ただし本実験は液相から固相への 137Cs 吸着過程のみについて検討したものであり、実際の河川水中の 137Cs 挙動を再現するためには 137Cs 脱離過程についても同様な試験により検証を行う必要がある。

2. 論文