

# 京都府における土壌及び海底堆積物中のプルトニウムについて

近藤 博文 吉田 ひとみ 藤江 康弘

Plutonium in Soil and Sea Sediment in Kyoto Prefecture

Hirofumi KONDOH Hitomi YOSHIDA Yasuhiro FUJIE

京都府では、関西電力高浜原子力発電所の周辺監視の一環として1997年度から土壌7地点及び海底堆積物3地点の $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ を継続的に測定してきた。本報告では、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ の経年変化について報告するとともに $^{238}\text{Pu}$ と $^{239+240}\text{Pu}$ との放射能比( $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ )を算出しPuの起源推定を行ったのであわせて報告する。 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ の経年変化については、地点ごとの明確な傾向は見られなかったが、測定開始当初5年間(1997~2001年度)と直近5年間(2014~2018年度)との平均値(Bq/kg乾土)を比較したところ、土壌において $^{238}\text{Pu}$ が0.039から0.019に半減し、 $^{239+240}\text{Pu}$ が0.50から0.32と減少傾向が見られた。 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ を算出したところ、土壌の平均値は約0.03となったことから、過去の大気圏内核実験に伴うフォールアウト(グローバルフォールアウト)の影響が大きいものと考えられた。一方、海底堆積物における全地点の平均値は約0.02となり、グローバルフォールアウトに加えて海流等の影響を受けているものと推測されたが、今回の調査からは起源については不明であった。また、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ について東京電力福島第一原子力発電所(福島第一原発)事故前後の比較を行ったところ変化がみられなかったこと、また、福島第一原発事故の影響と考えられるような高値は検出されなかったことから、Puについては福島第一原発事故による京都府内への影響はないものと考えられた。

キーワード：プルトニウム、放射性元素、放射能比、グローバルフォールアウト、東京電力福島第一原子力発電所事故

Keywords: Plutonium, Radioactive element, Radioactivity ratio, Global fallout, Fukushima Daiichi nuclear power station accident

## はじめに

プルトニウム(Pu)は原子番号94の人工元素であり、1941年にSeaborgらによって発見された。Puの代表的核種のひとつである $^{239}\text{Pu}$ は原子炉内で $^{238}\text{U}$ が中性子を捕獲して $^{239}\text{U}$ となり、それが $\beta$ -崩壊して $^{239}\text{Np}$ に、さらに $\beta$ -崩壊して $^{239}\text{Pu}$ となったものである。Puには多数の同位体があり、 $^{241}\text{Pu}$ を除いてすべて $\alpha$ 放射体である。Puの同位体の放出する $\alpha$ 線のエネルギーはほぼ4.9~5.8MeVの範囲に留まり、特に $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ の $\alpha$ 線のエネルギーは非常に接近している。そのため $\alpha$ 線エネルギー分析では両者が弁別できないため、通常 $^{239+240}\text{Pu}$ というような形で表示される<sup>1)</sup>。

地球環境中には、微量ではあるが至る所にPuが存在しており、Puの拡散の起源として、過去の大気圏内核実験に伴うフォールアウト(グローバルフォールアウト)の他に、1964年に発生した人工衛星の打ち上げ失敗による放射性同位体熱電気転換器(SNAP9-A)に使用されていた $^{238}\text{Pu}$ の拡散が知られている。また、局地的な拡散として、水爆搭載航空機の落下事故、プルトニウム工場からの漏えい、チェルノブイリ原発事故の影響等が知られている<sup>2)</sup>。

Puには、 $^{238}\text{Pu}$ (半減期86年)、 $^{239}\text{Pu}$ (半減期24100年)、 $^{240}\text{Pu}$ (半減期6580年)、 $^{241}\text{Pu}$ (半減期14年)等の長半減期の同位体が存在し、それらの放射能比は核兵器の材料や爆発の規模な

どで異なることが知られており、放射能比を用いたPuの起源推定が行われている。例えば、日本の水田における $^{238}\text{Pu}$ と $^{239+240}\text{Pu}$ との放射能比( $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ )は0.03程度と報告されている<sup>3)</sup>。東京電力福島第一原子力発電所(以下、福島第一原発という)事故前の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ は、グローバルフォールアウト(含むSNAP9-A)は0.032(以下、「グローバルフォールアウト値」という)、大気圏フォールアウト(1963-1979)は0.037、長崎に投下された原子力爆弾は0.074、太平洋における核実験は0.001~0.014と推定されている<sup>4)</sup>。また、2011年に発生した福島第一原発事故において放出されたPuについて、周辺土壌を中心に調査が行われ、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ がグローバルフォールアウト値に比べて二桁程度高値を示すことが報告されている<sup>4-6)</sup>。

京都府では、関西電力高浜原子力発電所の周辺監視の一環として1997年度から土壌及び海底堆積物中の $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ を継続的に測定してきた。本報では、その経年変化について報告するとともに、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ を算出することによりPuの起源推定を行ったので報告する。また、藤波ら<sup>7)</sup>は、福島第一原発事故の際、京都府内で採取した降下物及び浮遊じんにおいて、福島第一原発事故由来と考えられるCs-137が検出されたことと報告していることから、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ を用いて福島第一原発事故によるPuの京都府内の土壌及び海底堆積物への影響について評価を行ったので、あわせて報告する。

## 材料と方法

### 1. 採取地点

採取地点を図1に示す。京都府内の土壌7地点（大山、吉坂、杉山、丸山、金剛院、岡安及び老富）及び海底堆積物3地点で採取を行った。海底堆積物の採取地点は、St.1（N：35°35'18"、E：135°28'56"）、St.2（N：35°35'25"、E：135°30'05"）及びSt.3（N：35°33'54"、E：135°29'43"）の水深約50mの地点とした。

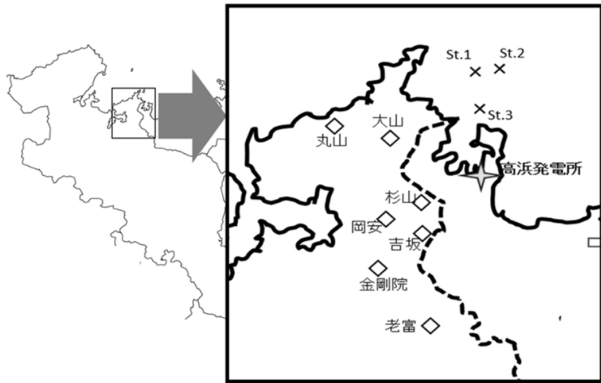


図1. プルトニウム測定試料（土壌及び海底堆積物）採取地点

### 2. 採取、前処理及び測定方法

採取は、放射能測定法シリーズNo.16環境試料採取法（文部科学省及び原子力規制庁）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（文部科学省及び原子力規制庁）に従い実施した。

全国のデータは、原子力規制庁「環境放射線データベース」<https://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top>（参照 2020年4月10日）のデータを用い算出した。土壌については放射能測定調査（水準調査）のデータを用いた。また、海底堆積物については水準調査に加えて原子力施設周辺環境放射線モニタリング調査のデータを用いた。

## 結果

### 1. 土壌の経年変化

#### 1-1. $^{238}\text{Pu}$ 濃度の経年変化

図2に土壌の $^{238}\text{Pu}$ 濃度の測定結果を示す。なお、岡安、丸山及び金剛院では検出例が少なく、検出されても検出下限値程度であったため省略した。大山、吉坂及び老富においては、全国平均と同程度又は低い値となった年度が多かった。また、各地点とも年度間の変動が大きく、明らかな経年変化はみられなかった。杉山において、1997年度から2013年度にかけて他地点に比べて高値（0.062～0.11（Bq/kg乾土））が検出されたが、2014年度からは検出下限値未満となった。

変動が大きかった杉山を除く6地点における、測定開始当

初5年間（1997～2001年度）と直近5年間（2014～2018年度）との平均値（Bq/kg乾土）を比較したところ、0.039から0.019に半減した。また、検出割合は14/30から8/30に減少した。

なお、平均値は算術平均により求め、検出下限値未満の場合は除外した。

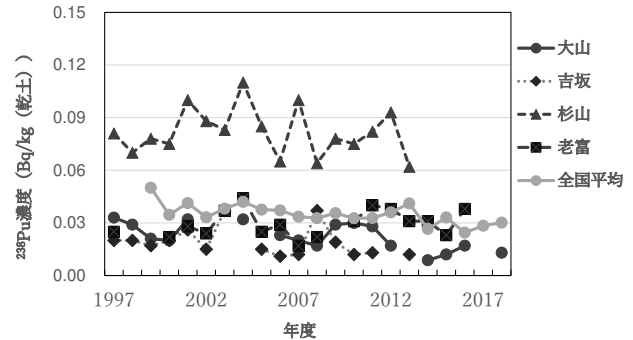


図2. 土壌における $^{238}\text{Pu}$ 濃度の経年変化（1997～2018年度）（検出下限値未満の場合は除いた。）

#### 1-2. $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の経年変化

図3に土壌の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の測定結果を示す。岡安において検出下限値程度又は検出下限値未満であった。丸山及び金剛院において全国平均よりやや低い値となった。大山、吉坂及び老富において、年度ごとに変動はあるものの全国平均より高い傾向にあった。 $^{238}\text{Pu}$ と同様に杉山において、1997年度から2013年度にかけて他地点に比べて高値（2.3～3.0（Bq/kg乾土））が検出されたが、2014年度からは検出下限値程度であった。

$^{238}\text{Pu}$ と同様に杉山を除く6地点における、1997～2001年度と2014～2018年度との平均値（Bq/kg乾土）を比較したところ、0.50から0.32と減少傾向が見られた。

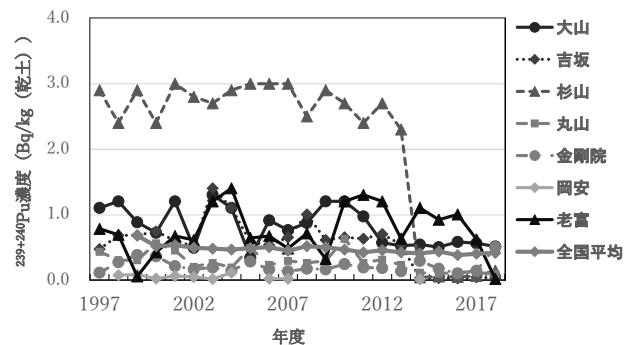


図3. 土壌における $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の経年変化（1997～2018年度）（検出下限値未満の場合は除いた。）

## 2. 海底堆積物の経年変化

### 2-1. $^{238}\text{Pu}$ 濃度の経年変化

図4に海底堆積物の $^{238}\text{Pu}$ 濃度の測定結果を示す。各地点の検出値は全国平均と同程度であり、土壌と比べて地点間及び年度間の変動は小さい傾向にあった。また、地点ごとの明らかな経年変化は見られなかった。

St.1において、1998年度に0.039 (Bq/kg 乾土) と他地点及び他年度と比較して高値を示した。

土壌と同様に1997~2001年度と2014~2018年度との平均値 (Bq/kg 乾土) を比較したところ、0.021から0.018とわずかに減少傾向が見られたが、土壌のような大きな減少は見られなかった。なお、検出割合は11/15から12/15と変化がみられなかった。

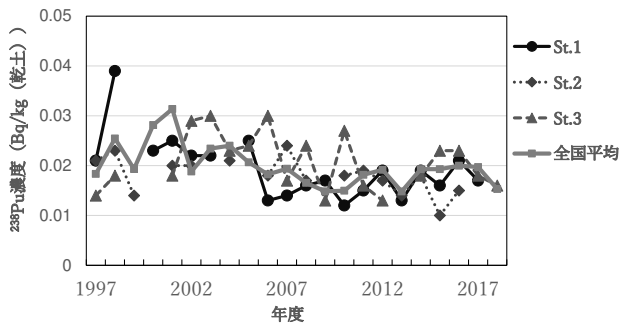


図4. 海底堆積物における $^{238}\text{Pu}$ 濃度の経年変化 (1997~2018年度)  
(検出下限値未満の場合は除いた。)

### 2-2. $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の経年変化

図5に海底堆積物の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の測定結果を示す。各地点の検出値は1 Bq/kg 前後であり、全国平均 (約0.5 Bq/kg) と比べて高値となった。また、地点及び年度間の変動は小さいものの、濃度は土壌と比べてやや高値となった。

1997~2001年度と2014~2018年度との平均値 (Bq/kg 乾土) を比較したところ、1.1から1.0となり横ばいかやや低下した。

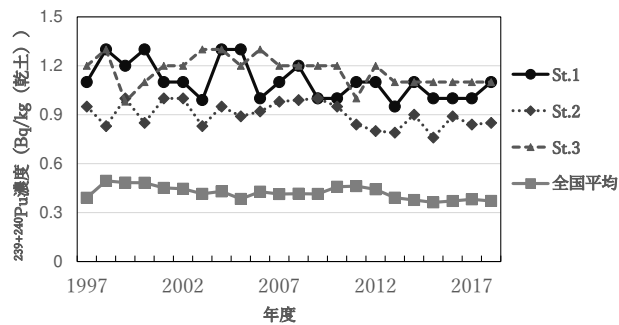


図5. 海底堆積物における $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の経年変化 (1997~2018年度)

## 3. $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$

図6に土壌 (大山、吉坂、杉山及び老富) 及び海底堆積物 (St.1~3) の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の結果を示す。なお、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の算出にあたっては、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ のいずれもが検出された場合のみ算出し、有効数字2桁まで求めた。丸山、金剛院及び岡安の3地点は検出割合が少なかったことから省略した。

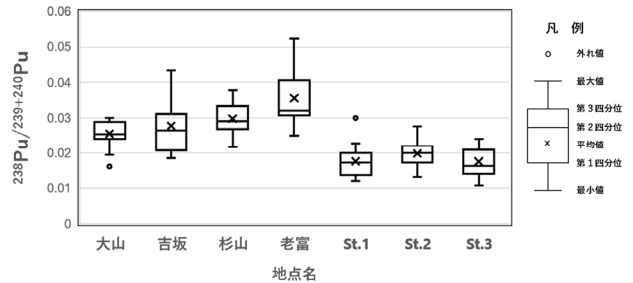


図6. 土壌及び海底堆積物における地点ごとの $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比

### 3-1. 土壌

老富において他の地点に比べてやや高い傾向が認められ、2000年度に0.052、2013年度に0.049と比較的高値であった。杉山において1998年度から2014年度にかけて、他地点に比べて $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ のいずれも高値が検出されたが、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の平均値は0.03程度であり他地点と差がなかった。全地点の平均値も約0.03であり、グローバルフォールアウト値<sup>1)</sup>と同程度となった。

### 3-2. 海底堆積物

海底堆積物においては、 $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ のいずれもが年度間、地点間の変動が小さかったことから、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ についても地点間の変動はあまりみられず、全体としての平均値は約0.02であり、グローバルフォールアウト値<sup>4)</sup>や土壌より低い値であった。

### 3-3. 福島第一原発事故の影響

土壌及び海底堆積物の福島第一原発事故前 (1997~2010年度) と事故後 (2011~2018年度) の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の比較を行った (図7)。土壌及び海底堆積物いずれも事故前後で大きな変化はみられなかった。また、グローバルフォールアウト値<sup>4)</sup>を大きく超えるような値を示す地点はなかった。

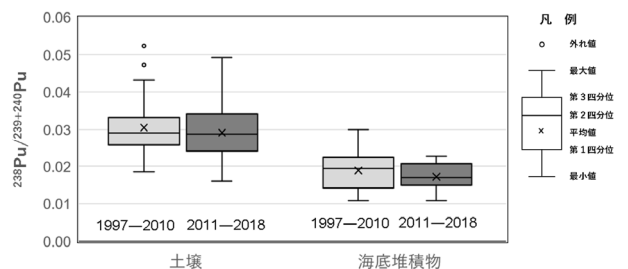


図7. 土壌及び海底堆積物における $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比の2011年度前後の比較

## 考察

## 1. 土壌の経年変化

$^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、地点ごとでは、年度間の変動が大きく、明らかな経年変化はみられなかったが、杉山を除く6地点における、1997～2001年度と2014～2018年度との平均値を比較したところ、 $^{238}\text{Pu}$ は半減し $^{239+240}\text{Pu}$ は減少傾向が認められた。これは半減期にともなう減少に加えて、主に土壌に吸着したPuが風や水の作用<sup>8)</sup>により移動・拡散したためと考えられた。また、杉山において、1997年度から2013年度にかけて $^{238}\text{Pu}$ 及び $^{239+240}\text{Pu}$ ともに他地点に比べ高値が検出されたが、その後は他地点と同程度となった。その要因として、自然的な要因に加え、客土等の人為的な要因が影響を及ぼした可能性が考えられた。

## 2. 海底堆積物の経年変化

$^{238}\text{Pu}$ 濃度は全国平均と同程度であったが、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は1 Bq/kg乾土前後であり、全国平均(約0.5Bq/kg乾土)と比べて高値となったが、その要因については不明であった。

また、1997～2001年度と2014～2018年度との平均値(Bq/kg乾土)を比較したところ、 $^{238}\text{Pu}$ 濃度は0.021から0.018と減少傾向が見られたが、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は、1.1から1.0と横ばいかわずかに減少傾向がみられた。これは、 $^{239}\text{Pu}$ 及び $^{240}\text{Pu}$ と比較して $^{238}\text{Pu}$ の半減期が短く、15年間で、 $^{239}\text{Pu}$ 及び $^{240}\text{Pu}$ がそれぞれ99.96%と99.84%残存するのに対し、 $^{238}\text{Pu}$ は89%が残存することが主な要因と考えられた。

3.  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 

土壌における全地点の平均値は約0.03と、グローバルフォールアウト値<sup>4)</sup>と同程度となったことから、土壌中のPuの主な起源はグローバルフォールアウトと考えられた。

海底堆積物における全地点の平均値は約0.02と、グローバルフォールアウト値<sup>4)</sup>及び土壌と比べて低い値となったことから、その起源については、グローバルフォールアウトに加えて海流等の影響を受けているものと推測されるが、今回の調査からは不明であった。

## 4. 福島第一原発事故による影響

福島第一原発事故後、福島第一原発周辺の土壌から、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ がグローバルフォールアウト値に比べて二桁程度高値を示すことが報告されている<sup>4-6)</sup>。京都府内の土壌及び海底堆積物における $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ を福島第一原発事故前後で比較したところ、土壌及び海底堆積物とも顕著な変化が認められなかった。また、福島第一原発事故の影響とされるようなグローバルフォールアウト値の二桁程度高値を検出した地点及び年度はなかった。以上のことから、福島第一原発事故によるPuの拡散は福島第一原発周辺に限定的と報告されるとおり<sup>9,10)</sup>、京都府内の土壌及び海底堆積物中のPuは福島第一原発事故の影響を受けていないものと考えられた。

## 引用文献

- 1) 松岡理. 1993. プルトニウムの安全性評価, pp. 43-69, 日刊工業新聞社, 東京.
- 2) Harley H. J. 1980. Plutonium in the Environment - A Review. J. Radiat. Res., 21, 83-104.
- 3) Yamamoto M. 1983.  $^{241}\text{Am}$  and Plutonium in Japanese Rice-field Surface Soils. J. Radiat. Res., 24, 237-249.
- 4) Zheng J., Tagami K., Uchida S. 2013. Release of Plutonium Isotopes into the Environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident: What Is Known and What Needs to Be Known. Environ. Sci. Technol., 47, 9584-9595.
- 5) Yamamoto M., Takada T., Nagao S., Koike T., Shimada K., Hoshi M., Zhumadilov K., Shima T., Fukuoka M., Imanaka T., Endo S., Sakaguchi A., Kimura S. 2012. An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis of plutonium analysis. Geochemical Journal, 46, 341-353.
- 6) 山本政儀, 坂口綾. 2015. 福島第一原子力発電所事故に絡む環境アクチニド元素諸核種. 地球化学, 49, 173-184.
- 7) 藤波直人, 宮島直人, 渡邊哲也, 田邊義浩, 西内一. 2012. 京都府の環境放射線モニタリング結果に認められた福島第一原発事故の影響. 京都大学原子炉実験所専門研究会報告書『環境放射能モニタリングと移行挙動研究』pp. 11-17.
- 8) 岡林弘之. 1983. 環境中の超ウラン元素. 日本原子力学会誌, 25 (10), 10-16.
- 9) Kierepko R., Sahoo S. K., Hosoda M., Tokonami S., Sorimachi A., Kim E., Ohno M. 2019.  $^{238}\text{Pu}/^{(239+240)\text{Pu}}$  activity ratio as an indicator of Pu originating from the FDNPP accident in the terrestrial environment of Fukushima Prefecture. Journal of Environmental Radioactivity, 196, 133-140.
- 10) Hain K., Faestermann T., Fimiani L., Golser R., Gomez-Guzman M. J., Korschinek G., Kortmann F., Gostomski L. C., Ludwig P., Steier P., Tazoe H., Yamada M. 2017. Plutonium Isotope ( $^{239-241}\text{Pu}$ ) Dissolved in Pacific Ocean Waters Detected by Accelerator Mass Spectrometry: No Effects of the Fukushima Accident Observed. Environ. Sci. Technol., 51, 2031-2037.