

# 海底土中のプルトニウムの分析

宮本 哲司・柴山 信行

海洋調査課 海洋汚染調査室

The Analysis of Plutonium in the Sediment

Tetsuji Miyamoto and Nobuyuki Shibayama

Marine Pollution Research Laboratory, Ocean Surveys Division

海洋汚染調査室において、新たに海底土中の人工放射性元素プルトニウム (Pu) の分析業務を開始したのでその分析法及び結果について報告する。

なお Pu の分析は放射能調査研究費「放射性固体廃棄物の海洋処分に関する調査研究」の一環として行った。

## 1. はじめに

我が国の環境放射能に関しては核実験による放射性降下物を主体とした分析測定に加え、原子力エネルギー利用に伴う発電所・核燃料再処理工場などの施設から排出される低レベル放射性物質の環境中におけるレベル及びその挙動の把握を目的として様々な調査研究がなされている。これらの調査研究の中で、Pu は人体に及ぼす影響の面から大きな関心を持たれている放射性物質の一つである。海洋においては、Pu は第二次大戦以降に新たに投入された物質であることから、海洋中の物質移動の機構解明等のための指標物質として、また、低レベル放射性固体廃棄物の海洋処分に関し、その処分の臨界量を決定する放射性核種の一つとして調査研究が進められており、海水・海底土中の分布及び挙動に注目が払われている。

Pu の分析に際しては、環境において比較的存在量の少ない Pu 同位体  $^{236}\text{Pu}$  または  $^{242}\text{Pu}$  を標準物質として使用する必要があるが、Pu の使用に関しては「核原料物質・核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律」により核燃料物質として規制を受け、特別の取扱い施設を必要とし、使用の承認を科学技術庁から受けなければならない。このたび水路部では施設の整備を終え、科学技術庁からの承認を受けると共に、Pu の分析に必要な機器等を整備したので新たに Pu の分析を開始した。

## 2. 分析法

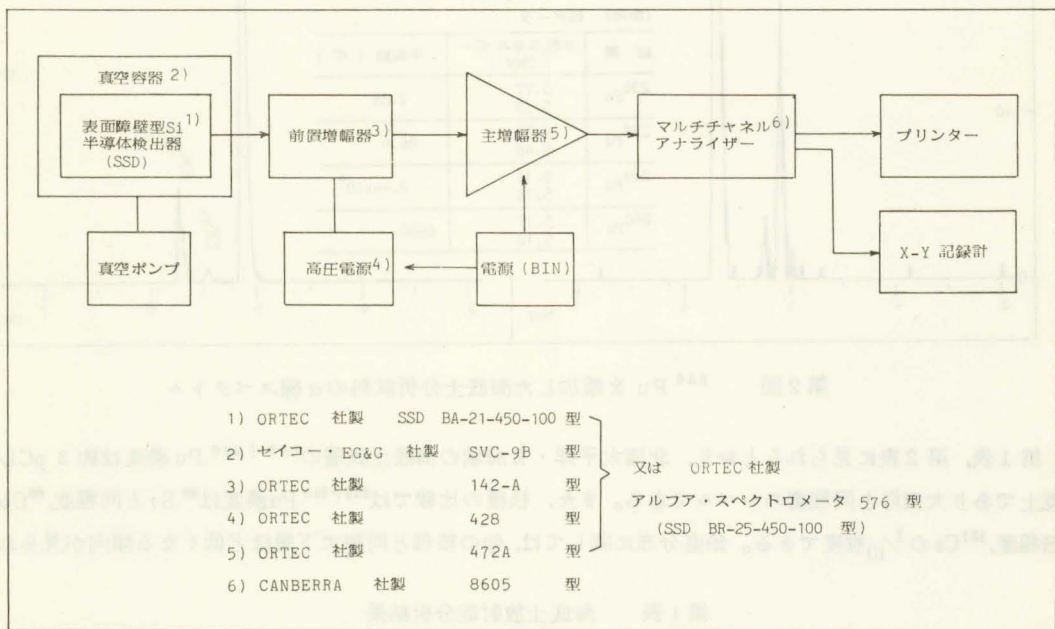
本分析法は、科学技術庁放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」(昭和 54 年 3 月)に従ったものである。以下にその概略を示す。なお詳細は同分析法を参照されたい。

- (1) 乾土試料 50~100g を秤量する。
- (2) Pu 標準液 ( $^{236}\text{Pu}$  1~10 dpm) を正確に一定量を添加する。
- (3) 熱 8.4N 硝酸を加え浸出し、浸出液は濾別後洗液と合わせ、シロップ状になるまで濃縮する。
- (4) 蒸発濃縮した溶液に熱 8.4 N 硝酸及び過酸化水素を加え析出した塩を溶解する。
- (5) 試料溶液を発泡がなくなるまで加熱して過酸化水素を分解し、冷却した後陰イオン交換カラムに流し

Pu (IV) を吸着させる。

- (6) 8.4 N 硝酸及び 10 N 塩酸を用いカラムを洗浄する。
- (7) ヨウ化アンモニウム-塩酸溶液で Pu (IV) を Pu (III) に還元，溶離する。
- (8) 溶出液を蒸発乾固した後，硝酸及び過塩素酸を加え加熱し過塩素酸の白煙が生じなくなるまで蒸発乾固して有機物を分解する。
- (9) 分離・精製した試料は 3.5 N 硫酸で溶解し，次にアンモニア水及び 3.5 N 硫酸で pH を調整する。
- (10) ステンレス板を装着した電着セルに溶液を移し，0.5 A で 2 時間電着する。
- (11) 電着板は水洗・乾燥後ガス炎で赤熱・焼付し計測試料とする。

### 3. 放射能測定



第1図 α線スペクトル測定装置ブロック・ダイアグラム

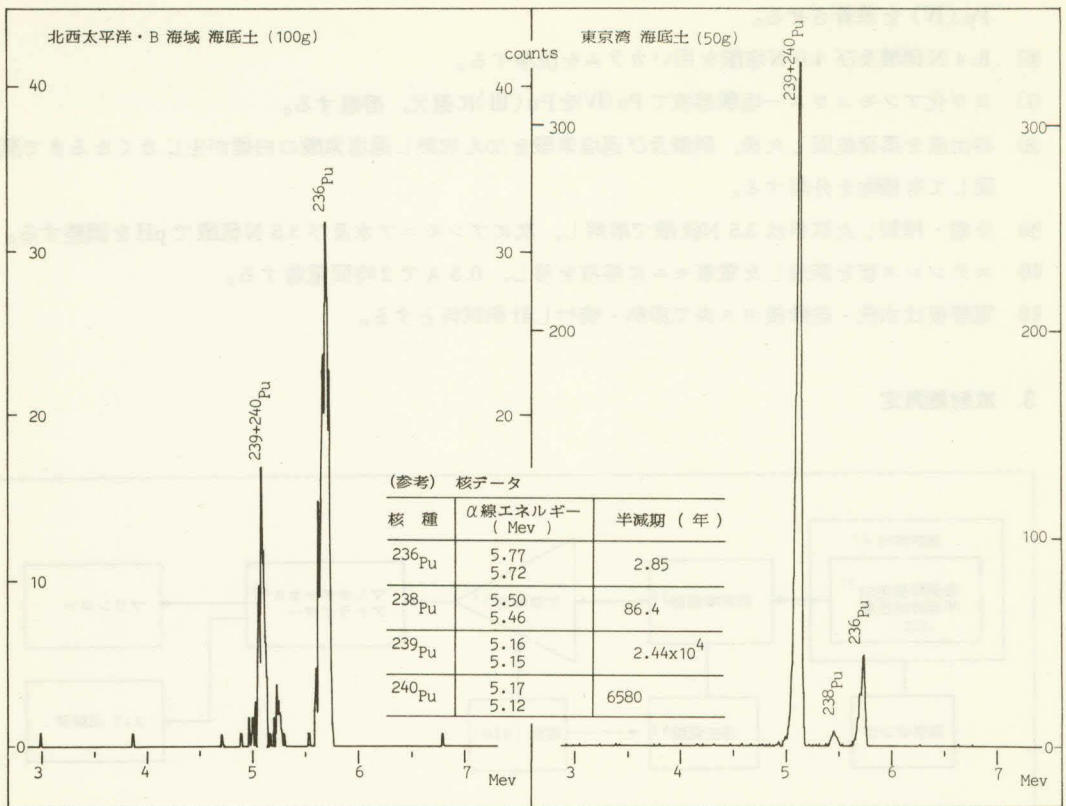
放射能測定にはα線スペクトル測定装置を使用した。装置の概略を第1図に示す。

計測のエネルギー範囲は 2~8 Mev, 4~6 Mev とし, 80,000 秒計測した。

第2図に海底土のα線スペクトルを示す。図から明らかなように, 測定結果からは<sup>239</sup>Pu と<sup>240</sup>Pu の合計量(以下<sup>239</sup>+<sup>240</sup>Pu と記す。)及び<sup>238</sup>Pu の定量が可能である。

### 4. 結果

低レベル放射性固体廃棄物の海洋処分候補海域(北西太平洋・B海域)等の海底土試料でPuについて得られた結果を同時に測定した<sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs及び<sup>60</sup>Coの値と共に第1表に示す。第2表には北西太平洋・B海域と大西洋海底土中の<sup>239</sup>+<sup>240</sup>Pu等のレベルの比較のために, 測定された濃度範囲と平均濃度を示す。



第2図  $^{236}\text{Pu}$  を添加した海底土分析試料のα線スペクトル

第1表、第2表に見られるとおり、北西太平洋・B海域の海底土表層の $^{239}+^{240}\text{Pu}$ 濃度は約3 pCi/kg-乾土であり大西洋と同程度のレベルである。また、核種の比較では $^{239}+^{240}\text{Pu}$ 濃度は $^{90}\text{Sr}$ と同程度、 $^{60}\text{Co}$ の2倍程度、 $^{137}\text{Cs}$ の $1/10$ 程度である。鉛直分布に関しては、他の核種と同様に下層ほど低くなる傾向が見られる。

第1表 海底土放射能分析結果

採取位置		採取年月日	水深	試料厚	放射能濃度 (pCi/kg-乾土)			
緯度	経度		(m)	(cm)	$^{239}+^{240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{60}\text{Co}$
< 北西太平洋・B海域 >								
29-58.6N	146-55.7E	1981.11.7	6220	0 ~ 2	2.7±0.3	1.9±0.5	18.9±0.5	1.0±0.2
				2 ~ 5	2.2±0.3	1.6±0.5	13.3±0.9	0.7±0.2
				5 ~ 8	1.7±0.2	0.8±0.5	11.6±0.9	0.6±0.2
				8 ~ 11	1.8±0.3	1.1±0.4	13.1±0.9	0.9±0.2
				11 ~ 14	0.5±0.1	0.2±0.3	12.7±0.8	0.0±0.2
30-20.4N	147-09.8E	1982.8.16	6250	0 ~ 2	3.0±0.3	1.6±0.2	24.5±0.9	0.9±0.2
30-10.4N	146-42.5E	1982.8.18	6240	0 ~ 2	3.0±0.3	2.7±0.3	28.2±1.2	1.4±0.2
29-53.2N	147-25.0E	1982.8.21	6270	0 ~ 2	1.8±0.2	2.0±0.3	19.2±0.8	0.5±0.2
29-51.6N	147-00.3E	1982.8.20	6220	0 ~ 2	2.1±0.3	2.8±0.3	13.1±1.0	0.7±0.2
30-05.6N	146-59.8E	1982.8.22	6260	0 ~ 2	4.2±0.4	4.3±0.3	32.6±1.2	2.5±0.2
				2 ~ 5	1.9±0.3	1.1±0.2	15.6±1.2	3.4±0.3
				5 ~ 8	0.7±0.1	0.9±0.3	7.5±1.1	0.3±0.2
				8 ~ 11	0.7±0.1	1.0±0.3	8.2±1.0	0.0±0.2
< 東京湾 >								
35-31.8N	139-52.6E	1982.9.8	21	0 ~ 2	112 ±8	9.5±2.1	167 ±2	4.6±0.3

$^{239+240}\text{Pu}$ も $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ で

言われているのと同様に海底表面に沈積した後、再溶解して海底土中を拡散しているものと思われる。

### 5. おわりに

本報告で述べたように海洋汚染調査室において新たに海底土中の $^{239+240}\text{Pu}$ 及

び $^{238}\text{Pu}$ の測定が可能となったことから、北西太平洋ならびに日本周辺海域における海底土中のPuの分布の調査を進めると共に、更に海水中のPuの分析法を確立し、海水に関しても調査を進め、ほかの人工放射性核種の調査とも合わせ、海洋の環境放射能の実態の把握に努めることとしたい。

最後にPuの分析に関し、分析法の御指導、ならびに分析に不可欠な $^{236}\text{Pu}$ 標準液を提供下さった(財)日本分析センターに深く感謝する。

### 参考文献

Bowen V. T., Livingston H. D. 1981: Radionuclide distributions in Sediment cores retrieved from marine radioactive waste dumpsites, in *Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment*, IAEA, Vienna, PP. 36

第2表 海底土表層の放射能濃度範囲と平均値

海 域	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{60}\text{Co}$
北西太平洋・B 海域*(1981,82)	1.8~4.2 (2.8)	1.6~4.3 (2.7)	13~33 (24)	0.5~2.5 (1.2)
大 西 洋** (1975) (28-20N 72-09W, 水深約 2800m)	0.1~5.0 (2.1)	---	6~35 (21)	---

( ) 内は平均値。

単位: pCi/kg- 乾土

\* 表層 0 ~ 2 cm

\*\* Bowen et al. (1981), 表層 0 ~ 5 又は 0 ~ 7.5 cm