

【資料】

人形峠天王地区における河川水中の放射性核種濃度の経年変化とラドン濃度調査

Study on Radioactive Substances (U-238, Ra-226 and Rn-222) in River Water in Ningyotoge Tennou Area

森上嘉亮, 中野拓也, 三宅和彰, 小川 登

MORIKAMI Yoshiaki, NAKANO Takuya, MIYAKE Kazuaki, OGAWA Noboru

要 旨

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構人形峠環境技術センター周辺の環境放射線等監視結果を解析したところ、天王用水取入口の河川水中ラドン濃度は上流地点である池河川中流に比べて高い濃度を示していた。濃度の上昇原因を調べるため、ラドン及び系列核種であるウラン、ラジウムについて経年変化を解析するとともに、周辺で調査を行ったところ、流入する表流水による確定的な影響は認められず、天王用水取入口直近において地下水等が影響した可能性が示唆された。

[キーワード：環境放射能, ウラン238, ラジウム226, ラドン222]

[Key words : Environmental Radiation, U-238, Ra-226, Rn-222]

1 はじめに

岡山県では、原子力施設である国立研究開発法人日本原子力研究開発機構人形峠環境技術センター（以下「人形峠センター」という。）周辺において、放射線のみならず、陸水や土壌、生物質等の環境試料の監視測定（以

下「監視測定」という。）を1979年度から継続して行っている。2020年度における測定地点及び測定試料を図1に示す。これらのうち「排水口」は、人形峠センターが水処理し、基準値以下であることを確認した後に敷地内を流れる池河川に施設排水として放流している地点であ

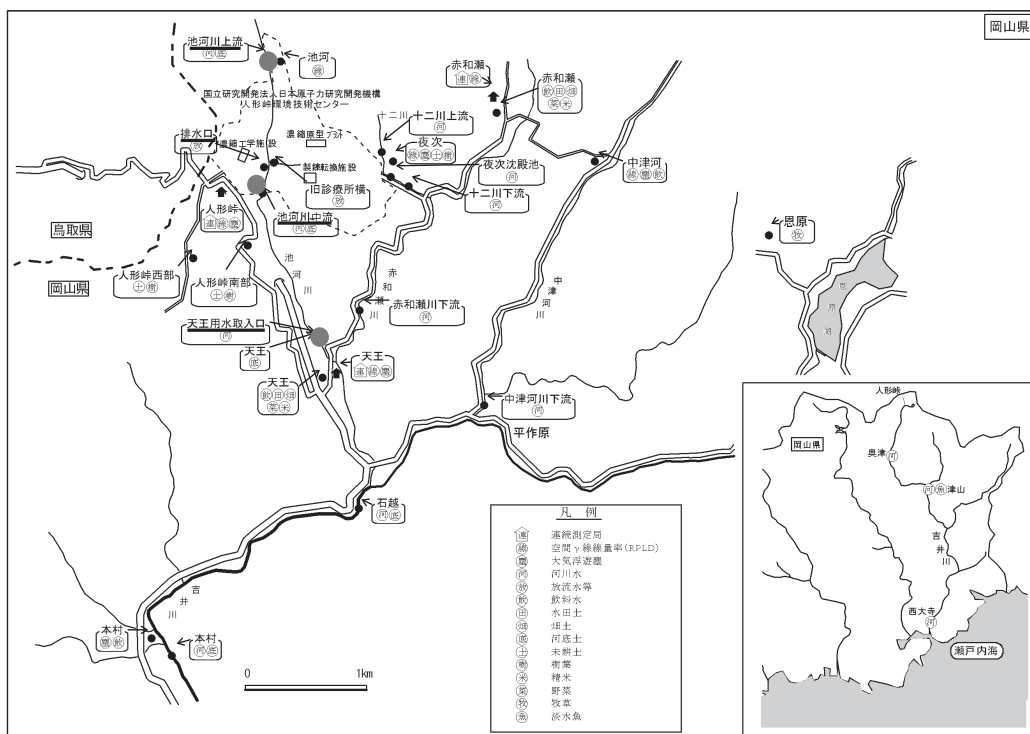


図1 人形峠環境技術センターに係る環境放射線等監視測定地図

る。県は、施設排水の影響を監視するため、排水口から最も近い下流側敷地境界である「池河川中流」、更に約1.3 km下流の「天王用水取入口」及び排水の影響がない上流側敷地境界である「池河川上流」を中心に河川水を採取し、放射性核種等を測定している。調査結果については、毎年度開催される岡山県環境放射線等測定技術委員会において、これまで異常値はないと評価されているが、ラドン222（以下「Rn-222」という。）について、天王用水取入口における濃度が上流地点に比べて比較的高い傾向にあった。今回、過去30年間に実施した放射性核種測定値の経年変化を解析するとともに、天王用水取入口のRn-222濃度の上昇原因について周辺での追加調査を行ったので、その結果を報告する。

2 材料と方法

2.1 監視測定結果の集計

監視測定結果は、人形峠周辺の環境放射線等測定報告書として県が毎年度とりまとめており、1991年度から2020年度までの30年間のデータを集計し、ウラン238（以下「U-238」という。）、ラジウム226（以下「Ra-226」という。）及びRn-222について統計処理を行い、経年変化図等を作成し、比較検討を行った。元素分析を行ったU-238については、検出下限値未満の場合は検出下限値を、放射線計測を行ったRa-226及びRn-222については、測定値を用いて統計処理した。なお、U-238濃度の検出下限値は、2004年度までは0.03 Bq/L、2005年度以降は0.003 Bq/Lとしている。

2.2 現地調査

2.2.1 試料採取

試料採取に当たっては、天王用水取入口から池河川中流の間で概ね20 m間隔の河川中央部、池河川に流入する小沢及び天王用水取入口周辺の採取可能な10地点（①～⑩）において2020年11月6日に河川水を採取した（図2）。なお、①地点は天王用水取入口であり、⑧地点は小沢から池河川へ流下する直前の地点である。採取は、監視測定と同様にU-238及びRa-226は放射能測定法シリーズ¹⁾に準拠し、Rn-222は1 L保存瓶（SHIBATA製 SPC保存瓶）にラドンが揮散しないよう静かに河川水を満水採取し、シリコン栓で密栓して試料とした。

2.2.2 測定項目、測定方法等

測定方法及び使用した測定機器を表1に示す。U-238及びRa-226について、放射能測定法シリーズ¹⁾に準拠して前処理を行った後、U-238及びRa-226濃度は同シリーズに、Rn-222は液体シンチレーションカウンター法²⁾に準

拠してそれぞれ測定した。

3 結果及び考察

3.1 監視測定からの解析

3.1.1 経年変化

1991年度から2020年度までの河川水中のU-238、Ra-226及びRn-222濃度の経年変化図を図3、4、5に示す。また、同期間における最大値、最小値、平均値及び標準偏差について、測定結果を表2、3、4に示す。

U-238については、池河川上流では全て検出下限値未満であったが、池河川中流及び天王用水取入口では検出下限値未満から0.04 Bq/Lの測定範囲であり、全期間を通じて大きな変動傾向は認められなかった。

Ra-226について、池河川中流では、最大値が0.0063 Bq/Lであり、2005年頃に比べて近年上昇している傾向であったが、1990年台後半と同レベルであり、平均値は0.002 Bq/Lであった。池河川上流は、全期間を通じ

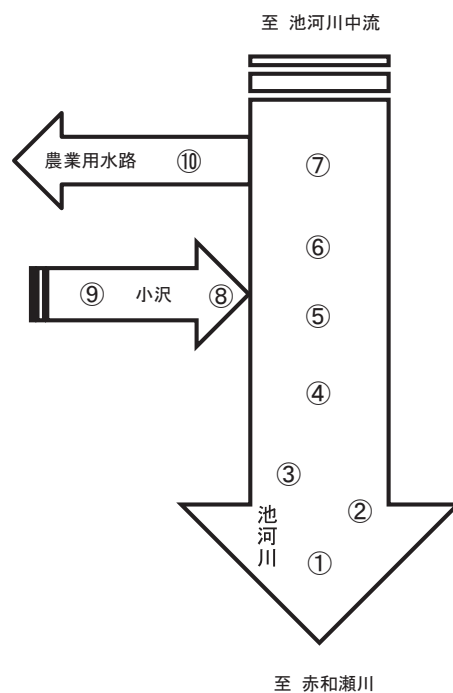


図2 天王用水取入口周辺の河川水採取地点
※①～⑩は河川水の採取地点を示す。

表1 測定項目、測定方法、測定機器一覧

測定項目	測定方法	測定機器
U-238	ICP質量分析法	ICP質量分析装置 (サーモフィッシャーサイエンティフィック製 iCAPQc型)
Ra-226	EDTA-4Na 分解・BaSO ₄ 再沈法及び全α計数法	2πガスフロー自動測定装置 (日立アロカメディカル製 LBC-4311B)
Rn-222	液体シンチレーションカウンター法	液体シンチレーションカウンター (日立アロカメディカル製 LSC-7400型)

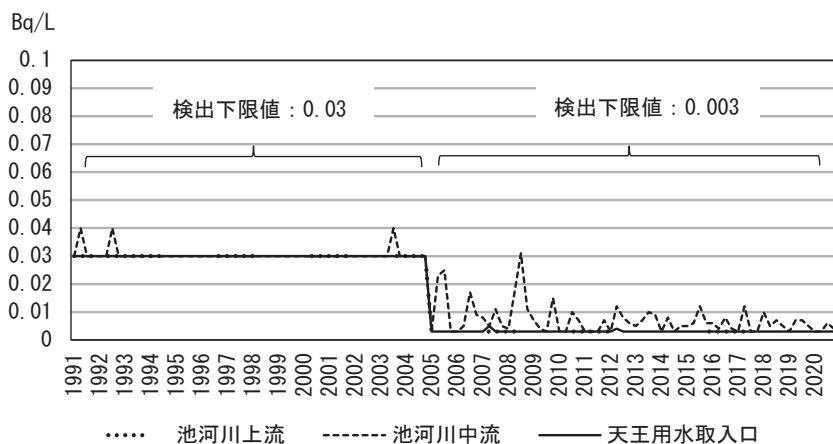


図3 河川水中U-238濃度経年変化図 (1991~2020)

表2 河川水中U-238濃度測定結果 (1991~2020)

単位：Bq/L

地点名	池河川上流		池河川中流		天王用水取入口	
	1991~2004	2005~2020	1991~2004	2005~2020	1991~2004	2005~2020
調査期間	1991~2004	2005~2020	1991~2004	2005~2020	1991~2004	2005~2020
最大値	0.03	0.003	0.04	0.031	0.03	0.005
最小値	0.03	0.003	0.03	0.003	0.03	0.003
平均値	0.030	0.003	0.031	0.007	0.030	0.003
標準偏差	0.000	0.000	0.002	0.006	0.000	0.000
検出下限値	0.03	0.003	0.03	0.003	0.03	0.003

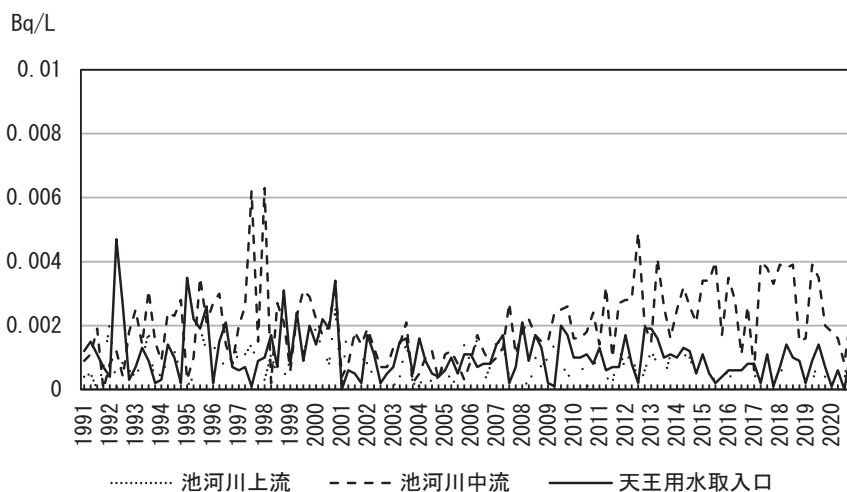


図4 河川水中Ra-226濃度経年変化図 (1991~2020)

表3 河川水中Ra-226濃度測定結果 (1991~2020)

単位：Bq/L

地点名	池河川上流	池河川中流	天王用水取入口
最大値	0.0025	0.0063	0.0047
最小値	0	0	0
平均値	0.001	0.002	0.001
標準偏差	0.001	0.001	0.001

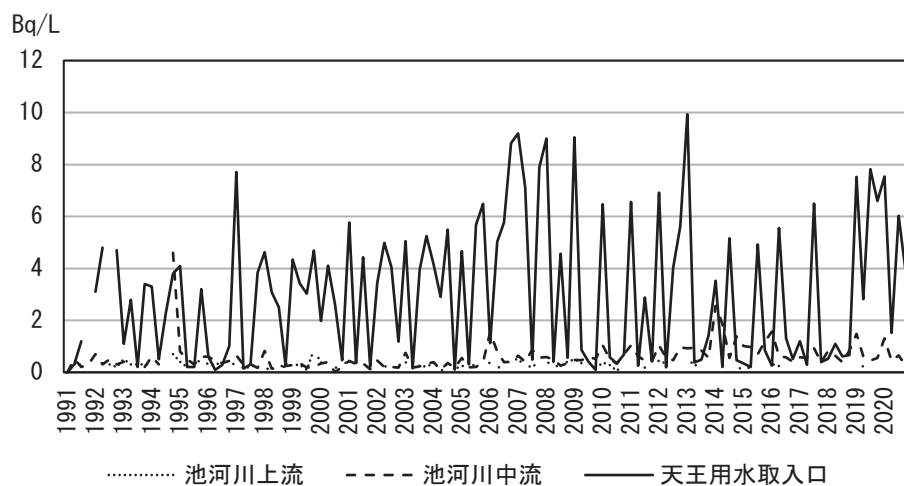


図5 河川水中Rn-222濃度経年変化図 (1991~2020)

表4 河川水中Rn-222濃度測定範囲 (1991~2020)

単位 : Bq/L

地点名	池河川上流	池河川中流	天王用水取入口
最大値	0.88	4.6	9.93
最小値	0.05	0.01	0.09
平均値	0.29	0.60	2.99
標準偏差	0.12	0.53	2.67

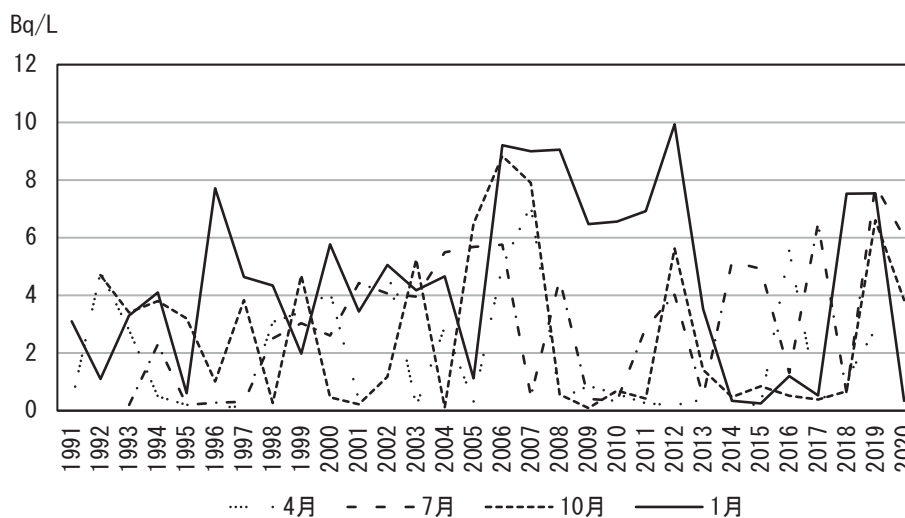


図6 河川水中Rn-222濃度季節別経年変化図 (天王用水取入口)

表5 池河川中流に対する天王用水取入口の河川水中濃度比 (1991~2020)

項目	U-238	Ra-226	Rn-222
最大値	1.0	11.7	260
最小値	0.1	0.0	0.0
平均値	0.8	0.9	9.2
標準偏差	0.3	1.5	24.4

て大きな変動はなく、また天王用水取入口は1990年代から2000年にかけてやや変動する年もあったが、それ以降大きな変動はなく、平均値が0.001 Bq/Lと、全地点がほぼ同レベルであった。

Rn-222について、池河川中流では、最大値が4.6 Bq/Lであり、しばしば濃度の上昇が見られたが、概ね池河川上流と同レベルであり、比較的低濃度で推移していた。一方、天王用水取入口では最大値が9.93 Bq/L、平均値が2.99 Bq/Lと他地点に比べて高い濃度で推移しているが、最小値は0.09 Bq/Lと他地点と同レベルであり、標準偏差は2.67 Bq/Lと大きな変動が認められた。

また、天王用水取入口のRn-222に係る季節別の経年変化を見たところ、バラツキが大きい、特定の季節に濃度の上昇があるなどの偏りは認められなかった。(図6)

3.1.2 池河川中流と天王用水取入口との濃度比較

各項目ごとに池河川中流と天王用水取入口の濃度の関係を比較するため、天王用水取入口と池河川中流の濃度比を求めたところ、バラツキは大きいものの、平均値で

U-238は0.8、Ra-226は0.9が得られた。一方Rn-222は濃度比が9.2であり、他と比較しても大幅に大きい、池河川中流と天王用水取入口の間に、Rn-222を特異的に上昇させる要因の存在が示唆された。(表5)

3.2 天王用水取入口周辺の調査

天王用水取入口周辺10地点(①～⑩)での調査結果を表6に示す。U-238については、⑧地点で0.003 Bq/Lを検出し、その他の地点は検出下限値未満であった。Ra-226については、全ての地点で検出下限値未満であった。Rn-222については、②地点で7.21 Bq/Lが検出され、従来の測定値と比較して同レベルであった。②地点の上流側である④～⑦では、2.21 Bq/L～4.20 Bq/Lの範囲であり、②地点と比較してやや低濃度であった。池河川へ流れ込む小沢で採取した⑧～⑨地点では0.06 Bq/L～0.14 Bq/Lと池河川の地点に比べて低濃度であった。②地点より下流の①地点では1.96 Bq/Lとやや低い濃度であった。②地点から約3 mのやや対岸側である③地点では、7.61 Bq/Lが検出され、同レベルであった。

表6 天王用水取入口周辺の調査結果一覧

単位：Bq/L

地点	U-238	Ra-226	Rn-222
①	<0.003	ND (-0.0002±0.0007)	1.96
②	<0.003	ND (0.0003±0.0007)	7.21
③	<0.003	ND (0.0011±0.0009)	7.61
④	<0.003	ND (0.0006±0.0008)	2.21
⑤	<0.003	ND (0.0000±0.0007)	4.20
⑥	<0.003	ND (-0.0001±0.0007)	3.01
⑦	<0.003	ND (0.0006±0.0008)	3.41
⑧	0.003	ND (0.0001±0.0007)	0.14
⑨	<0.003	ND (0.0003±0.0008)	0.06
⑩	<0.003	ND (0.0012±0.0009)	0.36

※地点は図2を参照

このことから、天王用水取入口極近傍でRn-222濃度を上昇させる要因の存在が示唆された。また、Rn-222はU-238やRa-226の子孫核種であるが、U-238やRa-226の濃度上昇は認められなかったことから、これらがRn-222に影響を与えたものではないと考えられた。

Rn-222は希ガスであり、河川水中では気体が溶存した状態で存在することから、河川を流下する際に揮散する性質がある他、湧水から高濃度に検出される例が知られている³⁾。天王用水取入口のRn-222濃度が比較的高いことについては、天王用水取入口地点付近には明らかな湧水は目視確認できなかったが、河川の傾斜が緩やかで、水が溜まりやすい地形となっているため、同地点の濃度を上昇させる湧水等が極近傍で存在する可能性が示唆された。

4 まとめ

河川水に係る監視測定結果のとりまとめから、U-238及びRa-226については、比較的大きな変動はなく推移しており、池河川中流と天王用水取入口の約1.3 kmの間でほとんど希釈されていないことが分かった。一方、Rn-222については、大きな変動を示していたが、下流側である天王用水取入口周辺の濃度が上昇していた。その要因は季節による傾向は認められず、採取時の河川の状況によって大きな変動を持っているものと考えられた。

また、今回実施した追加調査から、天王用水取入口周辺では、U-238及びRa-226濃度は検出下限値未満又は極低レベルであり、Rn-222濃度に影響を与えるものとは考えられなかった。一方、Rn-222については、天王用水取入口の濃度が池河川へ流入する小沢を含む上流側及び下流側に比べて特異的に高いレベルであったことから、同地点の濃度を上昇させる要因は、極近傍に存在する湧水等である可能性が考えられた。

文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ
<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/library/series/>
(2021.7.19アクセス)
- 2) 野口正安：液体シンチレーターによるRadonの放射能測定, *Radioisotopes*, 13, (5)362-367, 1964
- 3) 畑陽介, 清水光郎, 小川登, 森上嘉亮, 片岡敏夫：金剛川水系における河川水中ラドン濃度調査, *岡山県環境保健センター年報*, 37, 73-76, 2013