

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 8 号

平成 25 年度

Bulletin
Of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.8 (2013)

青森県原子力センター

<http://gensiryoku.pref.aomori.lg.jp/center/>

は じ め に

青森県では、六ヶ所村において日本原燃(株)のウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター及び高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センターが操業しており、再処理工場ではアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が実施されています。東通村においては、東北電力(株)東通原子力発電所1号機が平成17年12月に運転を開始しましたが、現在は定期検査中となっています。また、六ヶ所村に日本原燃(株)のMOX燃料加工施設、大間町に電源開発(株)の大間原子力発電所及びむつ市にリサイクル燃料貯蔵(株)のリサイクル燃料備蓄センターの建設が進められています。

青森県原子力センターは、このように多様な原子力施設の総合的な監視を行うため、これまでの監視組織の機能を再編成し、平成15年4月に設置されました。六ヶ所村の本所、青森市駐在及び東通村駐在で構成されており、主な業務は、環境放射線モニタリング、安全協定に基づく立入調査、調査研究などとなっています。

モニタリング結果は様々な要因で変動し得るものであり、原子力施設に起因する住民等の線量が年線量限度を十分下回ることが確認されている場合でも、施設からの影響を正確に把握するため、またモニタリングを効率的に行うために、放射性物質の環境における移行状況や空間放射線の変動要因などの解明に関する調査研究の推進は重要です。当センターで進めている調査研究事業は、このようなモニタリング結果の評価に資するとともに、職員の技術的能力の維持・向上につながるものと考えています。

このため、今年度も、これまで実施してきた調査研究の成果や日常のモニタリングで得られた知見についてとりまとめ、所報として発刊することといたしました。ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご教示を賜りますようお願い申し上げます。

この所報第8号のとりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員をはじめ多くの専門家の方々からご意見・ご指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。今後とも、職員一人一人が研鑽を積みながら一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、引き続きご支援いただきますようよろしくお願い申し上げます。

平成26年3月

青森県原子力センター

所 長 木 村 秀 樹

目 次

I 研究報告

- TMAH アルカリ抽出法を用いた DRC-ICP-MS による葉菜及び海藻試料中のヨウ素-129
分析の検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
木村芳伸 木村秀樹

II 技術報告

1. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・ 13
和田浩司 大久保英樹 木村秀樹 松村浩治
今井慎一 根本 誠 城戸寛子
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 47
ー平成 24 年度調査結果ー
坂 恭平 五十嵐 健 二瓶祐介 工藤俊明
幸 進 岡 光昭 岡村泰治
3. 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査・・・・・・・・ 59
ー中間報告（中南地域及び西北地域）ー
松山 大 赤石 新 五十嵐 健 鈴木将文
大久保英樹
4. 環境放射線監視テレメータシステムの更新・・・・・・・・・・・・ 73
鈴木将文 安積 潔 佐々木 守 和田浩司
竹谷公貴 大久保英樹 木村秀樹

III 平成 25 年度調査研究事業報告

1. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・ 85
2. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・ 87
3. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 97
4. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討・・・・・・・・ 99
5. 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査・・・・・・・・ 101

原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

- I 研究報告 調査研究事業で得られた成果や学会等で発表したものに加筆したもの、
分析測定技術やモニタリング結果を検討し取りまとめたもの
- II 技術報告 日常業務で得られた技術資料をまとめたもの
- III 調査研究事業報告 当該年度調査研究事業の実施結果をとりまとめたもの

I 研 究 報 告

TMAH アルカリ抽出法を用いた DRG-ICP-MS による 葉菜及び海藻試料中のヨウ素-129 分析の検討

木村芳伸 木村秀樹

ダイナミックリアクションセルを装備した ICP 質量分析装置を用いて、葉菜及び海藻試料中のヨウ素 129 を分析する方法について検討した。試料からのヨウ素の抽出は、試料燃焼法に比較し簡便で安定的にヨウ素を抽出できる、水酸化テトラメチルアンモニウム溶液による抽出法を用いた。さらに葉菜試料については、分析供試量を増やしつつ測定溶液量を低減するため、固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離・濃縮工程を追加した。ヨウ素-129 の検出限界値は、葉菜で 0.018Bq/kg 生、海藻で 0.23Bq/kg 生と評価され、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」の検出限界値と比較して葉菜でおおよそ 100 分の 1、海藻でおおよそ 17 分の 1 まで低減することができた。

1. はじめに

本県では、「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画」に基づき、表土中ヨウ素-129 の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」¹⁾ (以下、「ヨウ素 129 分析法」という) の放射化学分析法 (β 線測定) により実施している。他方、文部科学省放射能測定法シリーズ「環境試料中ヨウ素-129 迅速分析法」²⁾ (以下、「迅速分析法」という) では、前処理工程にアルカリ抽出-固相抽出分離法を、測定に ICP 質量分析法を用いた、迅速で簡便な分析法が示されている。

ICP 質量分析装置を用いたヨウ素-129 の測定においては、キャリアガスのアルゴンに不純物として含まれるキセノン-129 や試料に含まれるヨウ素-127 の水素化物の妨害が問題となる。ダイナミックリアクションセルを装備した ICP 質量分析装置(DRG-ICP-MS) は、これらの妨害を低減することによりヨウ素-129 の測定を大幅に改善した。Fujiwara *et al.*³⁾ は、この測定法を用いて、東海再処理工場周辺における土壌中のヨウ素-129 分析を行っている。

ヨウ素の抽出について、ヨウ素 129 分析法では試料燃焼法を用いており、供試量を多くできることから検出限界値を迅速分析法より低くできる利点があるが、高温で酸素ガスを用いるため危険を伴い、操作が煩雑で時間も要する。一方、迅速分析法では、生の葉菜に比較的low濃度のアルカリ溶液を加えて振とうし、試料表面に付着したヨウ素を抽出する簡便な方法を用いている。本調査では、乾燥・粉碎した試料を高濃度のアルカリ溶液 (25%水酸化テトラメチルアンモニウム溶液、以下、25%「TMAH」溶液という) に溶解させ、試料内部に取り込まれたヨウ素も抽出する方法を用いることとした。Tagami *et al.* は、この抽出法を植物試料に適用し、ICP-MS により塩素、臭素及びヨウ素の分析を行っている⁴⁾。

TMAH に溶解後の溶液は、ろ過・希釈するだけでそのまま ICP 質量分析装置に導入しヨウ素を測定できる (以下、「TMAH アルカリ抽出法」という) が、固相抽出ディスクを用いて溶液中のヨウ素を分離・精製することにより、供試量を増加させつつ測定溶液量を低減させることが可能である (以下、「TMAH アルカリ抽出-分離精製法」という)。

本調査では、TMAH アルカリ抽出法による前処理工程において、供試量を迅速分析法より増加させ、DRC-ICP-MS により測定を行うことで、検出限界値をヨウ素 129 分析法より低減できることを確認した。

2. 調査方法

2.1 試料

TMAH 溶液による試料中ヨウ素抽出率を評価するため、標準試料として NIST SRM1547 peach leaves 及び SRM1573a tomato leaves を使用した。また、葉菜としては青森市内で購入したキャベツを使用し、海藻としては環境放射線モニタリングで採取したマコンブを使用した。キャベツについては 70℃で 2 日間、コンブについては 70℃で 5 日間乾燥し、細断後ミルミキサーで粉碎・混合し分析に供した。

2.2 TMAH アルカリ抽出法によるヨウ素の分析

TMAH アルカリ抽出法により、NIST 標準試料、キャベツ及びマコンブについて分析した。分析から測定までのフローを図 1 に示す。試料 0.1~2g 乾については 100mL、5g 乾については 250mL、10g 乾については 500mL の PFA 瓶に秤取し、25%TMAH 溶液（精密分析用、Wako）を固液比 10 倍（試料 1g に対し溶液 10mL の割合）で加え、密栓し乾燥機に入れ 80℃で 16 時間以上加熱した。放冷後、PFA 瓶容量の 4 割程度まで水を加え希釈し、GA100+No.5C(φ 47mm または 90mm)ろ過し、残渣は水で洗浄し、ろ液と合わせ

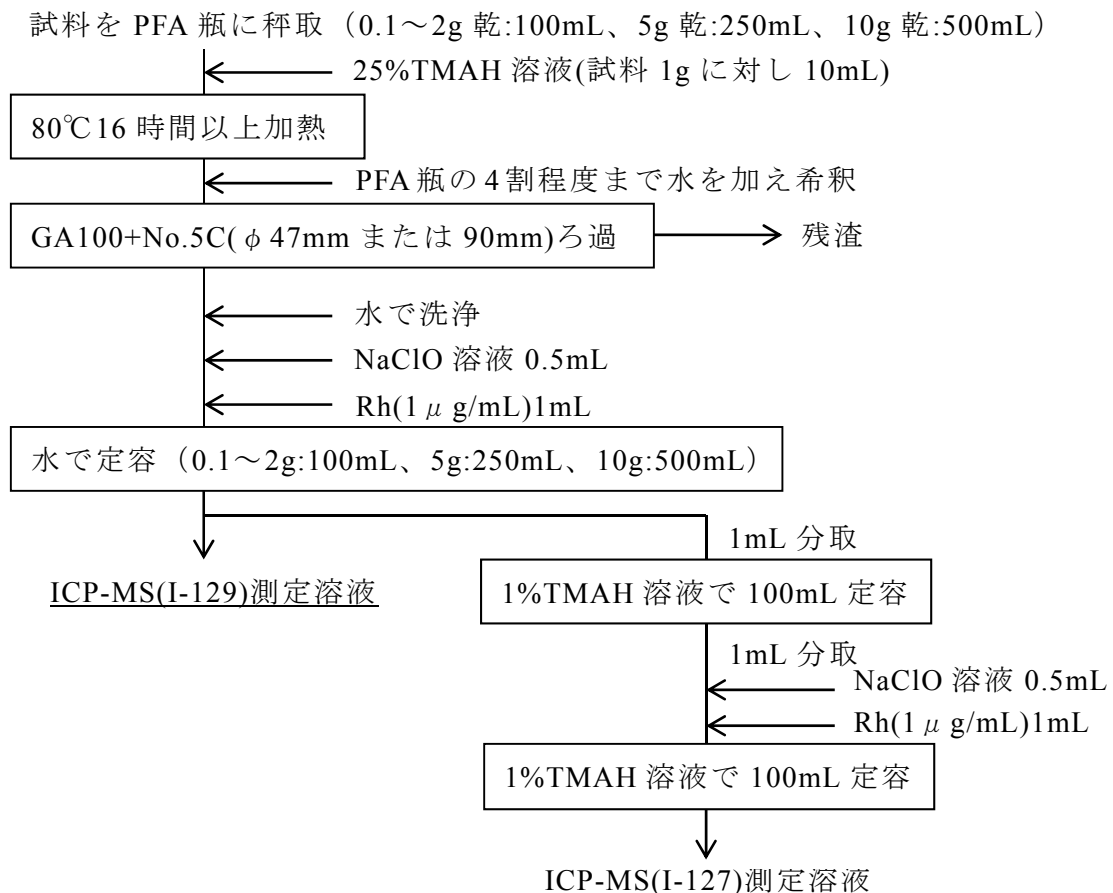
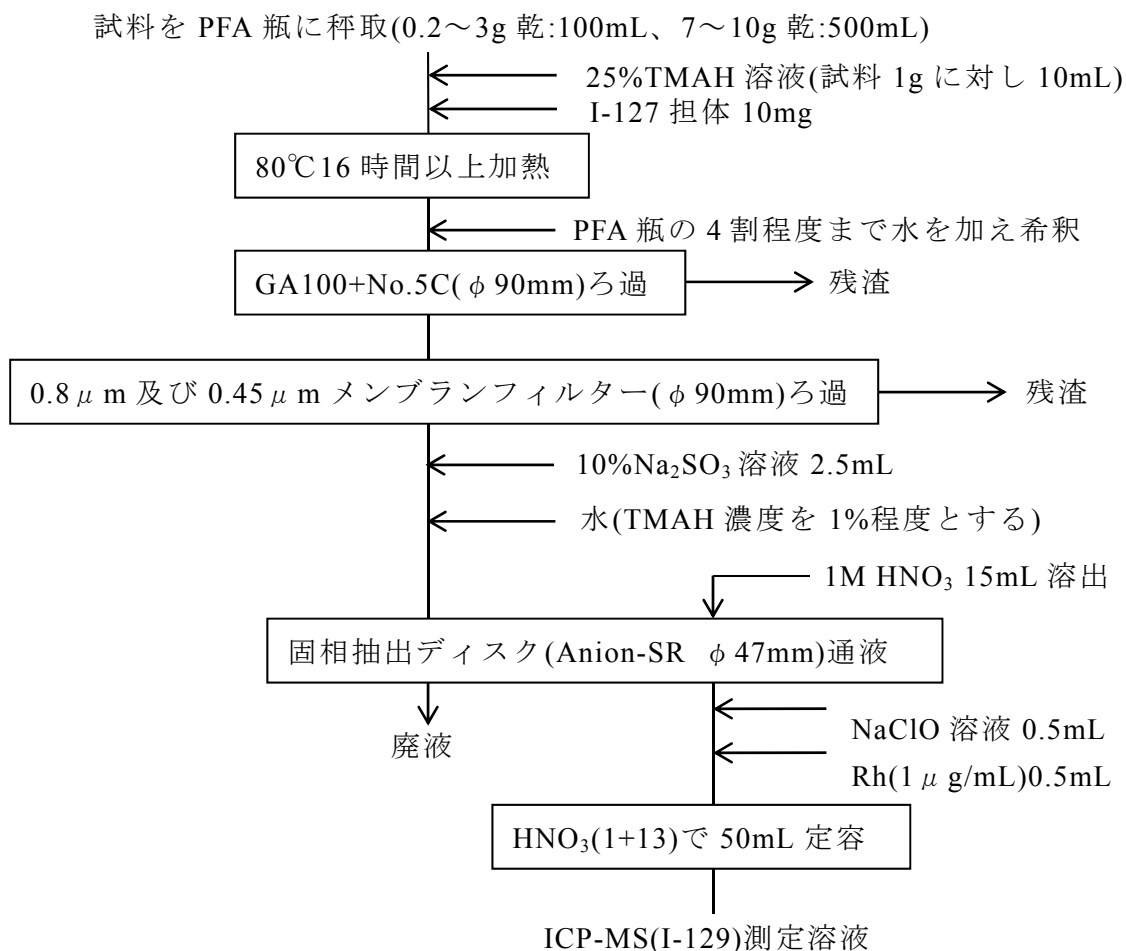


図 1 分析フロー (TMAH アルカリ抽出法)

てメスフラスコに移した。これに酸化剤として次亜塩素酸ナトリウム溶液（化学用、Wako）0.5mL 及び内標準元素としてロジウム（原子吸光分析用、Wako）を $1\mu\text{g}$ 加えて水で定容し、測定溶液とした。ヨウ素-129 濃度を測定する場合には、この溶液を直接 ICP 質量分析装置に導入するが、ヨウ素-127 濃度を測定する場合には、溶液をさらに 1 万倍に希釈し測定溶液とした。

2.3 TMAH アルカリ抽出-分離精製法によるヨウ素の分析

本法はキャベツについてのみ適用した。分析から測定までのフローを図 2 に示す。試料 0.2~3g 乾については 100mL、7~10g 乾については 500mL の PFA 瓶に秤取し、25%TMAH 溶液を固液比 10 倍で加え、回収率測定のためヨウ素-127 担体 10mg（原子吸光分析用、Wako）を添加し、密栓し乾燥機に入れ 80°C で 16 時間以上加熱した。放冷後、使用した PFA 瓶容量の 4 割程度まで水を加えてアルカリ濃度を下げ、No.5C ろ紙に GA100（ともに $\phi 90\text{mm}$ ）を重ねて溶液を吸引ろ過した。さらに固相抽出ディスクの目詰まりを抑えるため、溶液を孔径 $0.8\mu\text{m}$ 及び $0.45\mu\text{m}$ のメンブランフィルター（ともに $\phi 90\text{mm}$ 、ADVANTEC）を用いて吸引ろ過した。ろ液に水を加え TMAH 濃度を 1%程度としたのち、還元剤として 10%亜硫酸ナトリウム溶液（特級、Wako）2.5mL を加え、固相抽出ディスク（ $\phi 47\text{mm}$ Empore 2252-Anion、3M）に通液しヨウ素をディスクに保持させ、これを 1M 硝酸溶液 15mL（特級、Wako）で溶出させた。溶出液は 50mL メスフラ



※ICP-MS(I-127)測定溶液の作成フローは図 1 を参照

図 2 分析フロー（TMAH アルカリ抽出-分離精製法）

スコに移し、次亜塩素酸ナトリウム溶液 0.5mL 及び内標準元素としてロジウム $1\mu\text{g}$ を加え 1M 硝酸溶液で定容した。ヨウ素-129 濃度を測定する場合には、この溶液を直接 ICP 質量分析装置に導入するが、ヨウ素-127 濃度を測定する場合には、図 1 と同様に溶液を 1 万倍に希釈し測定溶液とした。

2.4 測定

ヨウ素-129 標準溶液(Eckert&Ziegler Isotope Products 社製)を希釈し、これにヨウ化アンモニウムを加え 1%TMAH で希釈することで、ヨウ素-129 濃度が $0\sim 0.0033\text{Bq/mL}$ 、ヨウ素-127 濃度が 0.2mg/mL の検量線溶液を作成した。これを用い、各分析方法により得られた溶液について、ICP 質量分析装置(ELAN DRC-e)でヨウ素-127 及びヨウ素-129 の定量を行った。装置の測定条件を表 1 に示す。ヨウ素-129 を測定する際には、DRC 内に酸素ガスを導入し、キャリアガス (アルゴン) 中に含まれるキセノン-129 等と反応させ、測定妨害を低減させた。

3. 結果と考察

3.1 TMAH アルカリ抽出法による各試料のヨウ素抽出率

標準試料 (NIST SRM1547 peach leaves 及び SRM1573a tomato leaves) を TMAH アルカリ抽出法により分析し、測定溶液中のヨウ素-127 濃度を測定した結果を表 2 に示す。

得られた測定値と参考値について t 検定を行った結果、信頼度 95%で有意差は無かったことから、TMAH アルカリ抽出法では、植物の葉部組織からほぼ全量のヨウ素を抽出していると考えられる。

海藻試料については、ヨウ素-127 の値付けを持つ標準試料が入手できなかったことから、マコンブを用い、抽出率に最も影響を及ぼすと考えられる固液比を変化させて試料中のヨウ素-127 を定量的に抽出できる条件を確認することとした。まず、供試量を 0.1

表 1 測定条件

項目	設定値	
	ヨウ素-127	ヨウ素-129
ネブライザーガス流量	1.04 L/min	1.01 L/min
補助ガス流量	1.4 L/min	1.6 L/min
プラズマガス流量	17 L/min	17 L/min
ICP RF 出力	1500 W	1600 W
DRC ガス流量	—	O ₂ : 0.6 mL/min
積分時間	1 秒	2 秒
繰返し回数	1 回	10 回
測定回数	5 回	5 回

表 2 TMAH アルカリ抽出法による試料中 I-127 濃度測定結果

試料	供試量 (g)	測定結果($\mu\text{g/g}$) ^{**}			参考値 ($\mu\text{g/g}$)
		1 回目	2 回目	3 回目	
NIST1547 peach leaves	1.0	0.31 ± 0.003	0.33 ± 0.004	0.32 ± 0.001	0.3
NIST1573a tomato leaves	1.0	8.7 ± 0.094	8.6 ± 0.059	8.6 ± 0.038	8.5

※誤差は、ICP 質量分析装置による 5 回の測定値より求めた標準偏差である。

～1.6g 乾まで段階的に変化させて 100mL の PFA 瓶に入れ、それぞれに 25%TMAH 溶液を 4mL 加え、以降は図 1 に示す分析フローに従い操作した。なお、供試量 0.4g 以上については、No.5C によるろ過後の溶液が多少不透明であったため、孔径 0.45 μ m のメンブランフィルターによるろ過を追加した。測定結果を表 3 に示す。

固液比 5～40 倍の範囲において、ヨウ素-127 の抽出量に大きな変化は見られなかったことから、この範囲においてはマコンブについても TMAH アルカリ抽出法を適用できると考えられた。

3.2 TMAH アルカリ抽出法によるヨウ素-129 検出限界値

まずキャベツについて検討した。ICP 質量分析法によるヨウ素-129 の分析において検出限界値を低減させるためには、供試量を増加させつつ、ICP 質量分析装置に導入する溶液の希釈容量(分析工程における最終的な溶液量)を低減させることが効果的である。そこで、キャベツについて供試量を段階的に増加させ分析操作を行ったところ、溶解後の溶液の粘性が高いため、供試量 2g 以上では、供試量を増加するにつれろ液量も増加せざるを得なくなり、結果として希釈容量も増加するため表 4 に示すとおり、希釈容量当たりの供試量を増加させることができなかった。希釈容量当たりの供試量(供試量/希釈容量)が大きいほど測定溶液中のヨウ素濃度が高く、従ってヨウ素-129 の検出限界値が低くなるため、供試量 2g 以上では検出限界値を低減させることができないこととなる。また、ろ液量低減のために TMAH 溶液量を半分に減らして操作を行ったが、溶解後の溶液の粘性が高く、ろ過の際に加える水の量が変わらないことから、さほどの液量は低減されなかった。従って、TMAH アルカリ抽出法による葉菜の供試量は 2g が限度と考えられる。

表 3 TMAH アルカリ抽出法によるマコンブ中 I-127 抽出量の変化

供試量 (g 乾)	TMAH 量 (mL)	固液比	測定結果(mg/g 乾)			
			1 回目	2 回目	3 回目	平均
1.6	4	2.5	4.3	4.3	4.1	4.3±0.13
0.8		5	5.5	5.5	5.2	5.4±0.17
0.4		10	5.3	5.1	5.3	5.2±0.11
0.1		40	5.5	5.4	5.2	5.3±0.18

表 4 TMAH アルカリ抽出法におけるキャベツ試料の供試量と希釈容量の関係

供試量 (g 乾)	TMAH (mL)	ろ液量 (mL)	希釈容量 (mL)	希釈容量当たりの供試量* (g/mL)
0.2	2	60	100	0.002
1	10	70	100	0.01
2	20	90	100	0.02
5	50	200	250	0.02
10	100	420	500	0.02

* 供試量/希釈容量

次にマコンブについて検討した。マコンブは、もともと試料に含まれるヨウ素-127が非常に多いため（6mg/g 乾程度）、ICP 質量分析装置内で生成するヨウ素-127の水素化物イオン（ $^{127}\text{I}^1\text{H}^1\text{H}$ ）等によるヨウ素-129の妨害が大きい。平成23年度の調査において、測定溶液中に含まれるヨウ素-127濃度とヨウ素-129検出限界値の間には相関が認められており、ヨウ素-127濃度が倍増すると、ICP 質量分析装置のヨウ素-129検出限界値もほぼ倍増することから（図3）、もともと多量のヨウ素-127を含む海藻試料については、供試量を増加させても検出限界値の向上はほとんど見込めないものと考えられた。また、高濃度のヨウ素-127は測定時に大きなメモリー効果を引き起こし、他の試料の測定に悪影響を及ぼすことから、最終的な測定溶液中のヨウ素-127濃度は、DRC-ICP-MSによる測定に用いている標準溶液の濃度と同じ0.2mg/mLとなるように供試量を調整することとした。マコンブ中のヨウ素-127量を6mg/g 乾とした場合、供試量はおよそ3gとなる。この条件を元にマコンブを実際に分析・測定した場合のヨウ素-129検出限界値を表5に示す。

3.3 TMAH アルカリ抽出-分離精製法によるヨウ素-129 検出限界値

キャベツは、もともと試料に含まれるヨウ素-127が少ないため、固相抽出ディスクを用いた分離精製法でヨウ素を濃縮することにより、ヨウ素-129の検出限界値を低減することが可能となる。キャベツについて TMAH アルカリ抽出-分離精製法により、供試量を0.2g~7gの間で段階的に変化させ分析を行った場合のヨウ素-127回収率と、回収率で補正した希釈容量あたりの供試量（供試量×回収率/希釈容量）を表6に示す。希釈容量あたりの供試量（供試量×回収率/希釈容量）が大きいほど測定溶液中のヨウ素濃度が高く、従ってヨウ素-129の検出限界値が低くなる。TMAH アルカリ抽出-分離精製法では供試量を増やすほどこの比は大きくなるが、供試量7gで回収率が大きく低下し、頭

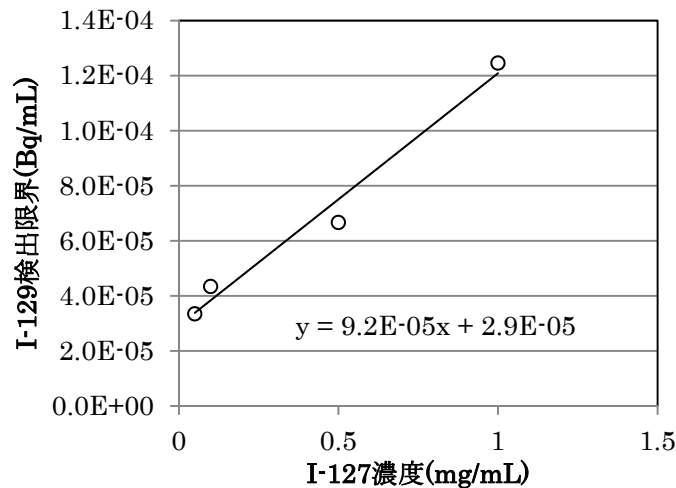


図3 測定溶液中 I-127 濃度と I-129 検出限界値の関係

表5 TMAH アルカリ抽出法でマコンブを分析した場合の検出限界値

供試量 (g 乾)	TMAH (mL)	ろ液量 (mL)	希釈容量 (mL)	測定値 (Bq/kg 生) [*]	検出限界値 (Bq/kg 生) [*]
3	30	90	100	0.21 ± 0.077	0.23

※測定値は実際に試料を分析して得られた値であり、検出限界値は測定値の誤差の3倍とした。
なお、試料水分率は85%であり、回収率は100%とした。

表 6 TMAH アルカリ抽出-分離精製法におけるキャベツ試料の供試量と希釈容量の関係

供試量 (g 乾)	希釈容量 (mL)	回収率	希釈容量当たりの供試量* (g/mL)
0.2	50	0.90	0.0036
1		0.87	0.017
3		0.86	0.052
7		0.54	0.076

※ 供試量×回収率／希釈容量

打ちとなった。また、固相抽出ディスクが目詰まりを起こすため、供試量は 7g が限界であった。そこで、供試量 10g についてアルカリ抽出した溶液を 3 等分し、それぞれについて固相抽出ディスクを一枚ずつ用いてヨウ素を分離・精製することとした。その際、溶出液である 1M 硝酸溶液の濃度を倍にすることで、溶出に必要な液量を半分の 7.5mL に抑え、希釈容量を 50mL に維持した。この方法でキャベツを分析・測定した場合のヨウ素-127 回収率、回収率で補正した希釈容量当たりの供試量及びヨウ素-129 検出限界値を表 7 に示す。本調査のキャベツの分析において（表 4 及び表 6 の分析結果を含め）、希釈容量当たりの供試量が最も高い分析条件となり、検出限界値は 0.018Bq/kg 生となった。なお、固相抽出ディスクは、硝酸溶液の濃度を上げることで、より少量でのヨウ素の溶出が可能となるが、ヨウ素の溶出には固相抽出ディスク及びろ過器具の洗浄も含めてある程度の液量が必要なことから、1 試料あたり 3 枚の使用が限度と考えられる。

4. まとめ

TMAH アルカリ抽出法を用いて葉菜及び海藻試料の前処理を行い、DRC-ICP-MS によりヨウ素-129 を分析する方法について検討した。TMAH アルカリ抽出法は、文部科学省放射能測定法シリーズ「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」より供試量を増加させても、葉菜及び海藻試料中のヨウ素を定量的に抽出できることを確認した。また、試料に含まれるヨウ素-127 が少ない葉菜試料については、固相抽出ディスクを用いた TMAH アルカリ抽出-分離精製法により、供試量をさらに増加させつつ測定溶液量を低減させることができた。このように調製した溶液を DRC-ICP-MS で測定することにより、ヨウ素-129 の検出限界値を、葉菜で 0.018Bq/kg 生、海藻で 0.23Bq/kg 生まで低減することが可能となった。ヨウ素 129 分析法、迅速分析法、TMAH アルカリ抽出法及び TMAH アルカリ抽出-分離精製法について、ヨウ素-129 の分析目標レベル及び検出限界値を表 8 に示す。本調査で得られた各試料の検出限界値は、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」に記載の分析目標レベルと比較して、葉菜でおよそ 100 分の 1、海藻でおよそ 17 分の 1 に相当する。

表 7 TMAH アルカリ抽出-分離精製法でキャベツを分析した場合の検出限界値

供試量 (g 乾)	希釈容量 (mL)	回収率	希釈容量当たり の供試量* ¹ (g/mL)	測定値 (Bq/kg 生)* ²	検出限界値 (Bq/kg 生)* ²
10	50	0.83	0.16	0.00080±0.0058	0.018

※1 供試量×回収率／希釈容量

※2 測定値は実際に試料を分析して得られた値であり、検出限界値は測定値の誤差の 3 倍とした。
なお、試料水分率は 94%である。

表 8 各分析法における分析目標レベルと検出限界値

分 析 法	供試量	分析目標レベル又は検出限界値 [*] (Bq/kg 生)	
		キャベツ	マコンブ
ヨウ素 129 分析法	30g 乾	2	4
迅速分析法	10g 生	9	—
TMAH アルカリ抽出法	3g 乾	—	0.23
TMAH アルカリ抽出-分離精製法	10g 乾	0.018	—

※TMAH アルカリ抽出法及び TMAH アルカリ抽出-分離精製法の数値は検出限界値であり、実際に試料を分析し、得られた測定値の誤差を 3 倍したものである。また、ヨウ素 129 分析法及び迅速分析法の数値は分析目標レベルであり、その分析条件は以下のとおりである。

ヨウ素 129 分析法（放射化学分析法）

低バックグラウンドガスフローカウンタの計数効率 4%、測定時間 100 分、回収率 60%、葉菜の試料水分率 90%、海藻の試料水分率 80%

迅速分析法

ICP 質量分析装置の検出限界値 0.65mBq/mL、回収率 80%、希釈容量 100mL、葉菜の試料水分率 90%

文 献

- 1)文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」（平成 8 年）
- 2)文部科学省放射能測定シリーズ「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」（平成 16 年）
- 3)H.Fujiwara, K.Kawabata, J.Suzuki and O.Shikino : Determination of ¹²⁹I in soil samples by DRC-ICP-MS, J. Anal. At. Spectrom., 2011, 26, p.2528-2533
- 4)K.Tagami, S.Uchida, I.Hirai, H.Tsukada and H.Takeda : Determination of chlorine, bromine and iodine in plant samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry after leaching with tetramethyl ammonium hydroxide under a mild temperature condition, ANALYTICA CHIMICA ACTA **570**, 88-92(2006)

II 技 術 報 告

環境放射能拡散シミュレーションシステム

和田浩司 大久保英樹 木村秀樹 松村浩治*¹
今井慎一*² 根本 誠*³ 城戸寛子*³

1. はじめに

本県では、六ヶ所再処理工場から放出された放射性物質の環境放射線モニタリング結果への寄与を把握するため、環境放射能拡散シミュレーションシステム（以下、「シミュレーションシステム」という。）を構築し、運用している。シミュレーションシステムは、本県のテレメータシステムから、六ヶ所再処理工場主排気筒の放出情報、六ヶ所再処理工場及びモニタリングステーションで観測している気象データを取り込み、プルームモデル、パフモデル及びトリチウムモデルにより、放射性物質の移流・拡散状況の計算を行うものである。

シミュレーションシステムの概要及び六ヶ所再処理工場のアクティブ試験により放出された放射性物質の寄与が認められたモニタリング結果とシミュレーションシステムによる計算結果との比較検討結果についてはすでに報告した^{1), 2)}。

平成 25 年度には、計算精度の向上を図るため、これまで 16 方位で取得してきた風向データを角度データとして取り込めるようシミュレーションシステムの改造を行った。六ヶ所再処理工場においては、アクティブ試験における使用済燃料のせん断・溶解処理が平成 20 年 10 月で終了し放射性物質の放出量が減少したため、モニタリング結果への寄与がほとんど認められなくなっている。このため、本報告では、風速場計算結果と風向風速観測値の比較・検討により角度風向データ取り込みの効果について確認し、その結果をとりまとめた。

2. 調査方法

風向を 16 方位に変換したデータを使用した場合と角度データとして使用した場合とでそれぞれ風速場の計算を行い、観測値との比較・検討を行った。また、風向を 16 方位データに変換した場合と角度データとした場合との大気中クリプトン-85 濃度分布の計算結果の比較・検討を行った。

*1：日本電気株式会社 *2：NEC ソフトウェア東北株式会社

*3：株式会社ヴィジブルインフォメーションセンター

2.1 使用した気象データ

青森県及び日本原燃（株）では、原子燃料サイクル施設に係るモニタリングの一環として、モニタリングステーションにおいて気象要素の観測を行っている。県のモニタリングステーション尾駸局及び千歳平局に加え、日本原燃（株）のモニタリングステーション二又局及び再処理施設気象観測局において観測している風向・風速、大気安定度のデータを使用し、計算対象地域の風速場の計算を行った。

この計算結果の検証のため、（公財）環境科学技術研究所（以下、「環境研」という。）が総合気象観測装置により観測している風向・風速のデータの提供を受け、計算結果との比較を行った。また、千歳平局及び二又局の観測データも計算結果の検証に使用した。

風速場計算及び計算結果の比較に使用した気象データの概要を表 1 及び表 2 に、観測地点を図 1 に示す。

2.2 計算期間

2013 年 5 月 1 日～5 月 31 日、2013 年 8 月 1 日～8 月 31 日、2013 年 10 月 1 日～10 月 31 日及び 2013 年 12 月 1 日～26 日の 4 期間について、角度風向データと 16 方位風向データのそれぞれ 10 分値を用いて計算を実施した。計算結果は 1 時間値のほか、短期的な状況を確認するため、それぞれ期間の中から 1 日ずつ選定し、10 分値として出力した。

2.3 風ベクトルの相関係数の比較

角度風向データと 16 方位風向データのそれぞれを用いた計算結果から、各観測地点における風ベクトルを抽出し、観測値との相関係数を求め、一致度の指標とした。

表 1 風速場計算に使用した気象データ

実施者	観測地点	項目
青森県	尾駸局	風向、風速、大気安定度
	千歳平局	風向、風速、大気安定度
	二又局	風向、風速、大気安定度
日本原燃(株)	再処理施設	風向 150m、風速 150m、
	気象観測局	風向 10m、風速 10m、大気安定度

- ・再処理施設気象観測局以外の風向・風速は地上 10m の観測データ。
- ・観測データは 10 分値。

表 2 計算結果との比較に使用した気象データ

実施者	観測地点	項目
青森県	千歳平局	風向、風速
日本原燃(株)	二又局	風向、風速
(公財)環境科学 技術研究所	(公財)環境科学 技術研究所	風向、風速

- ・風向・風速は地上 10m の観測データ。
- ・観測データは 10 分値及び 1 時間値。

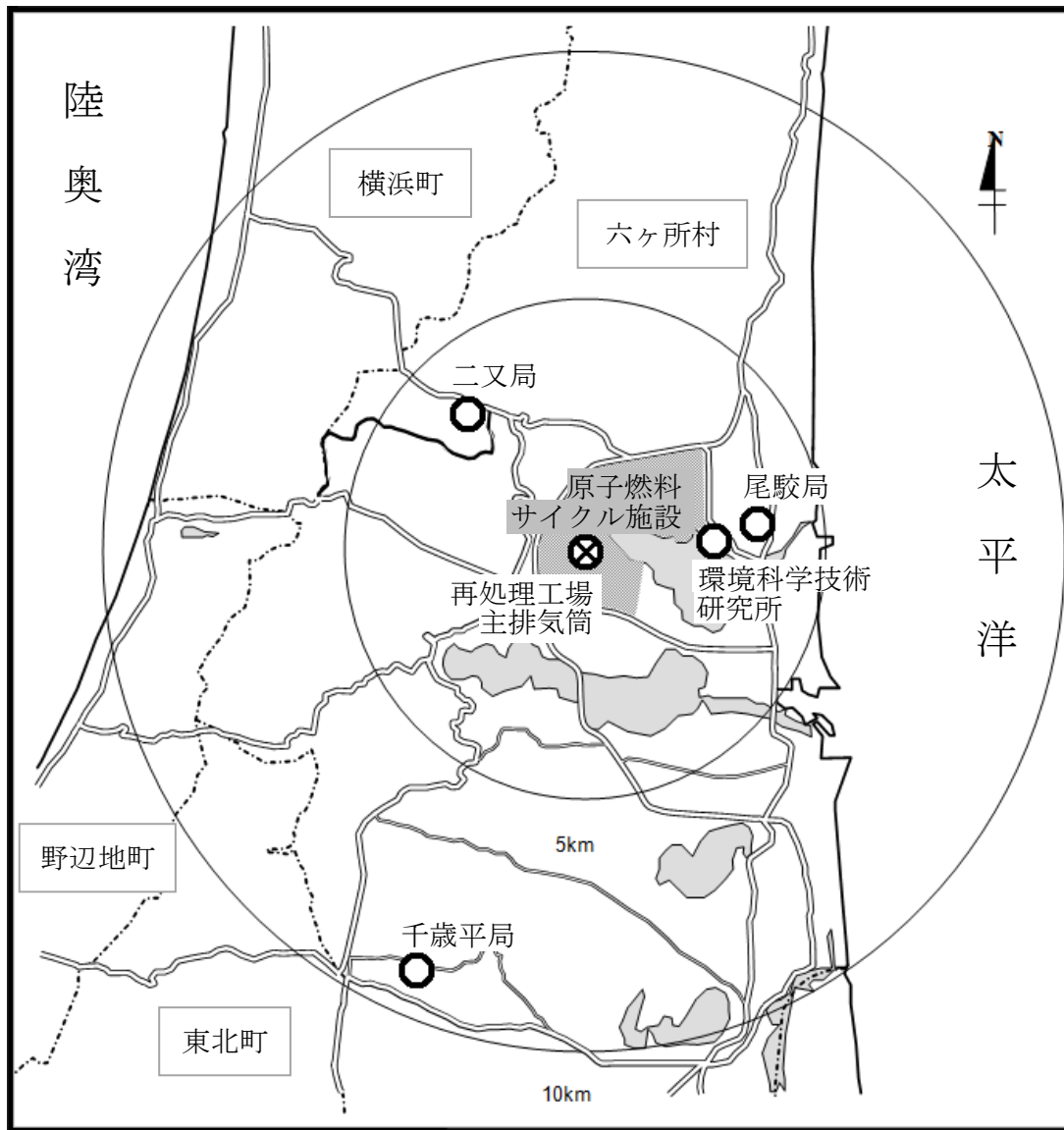


図1 再処理工場周辺における観測地点の位置

風ベクトルの相関係数について

同一地点における観測値と計算値の風ベクトルの時系列の相関 $r(V_m, V_s)$ は近似的に次式で与えられる (図2 参照)³⁾。

$$r(V_m, V_s) \cong \frac{\sum_{i=1}^n |V_{m,i}| \cdot |V_{s,i}| \cos \theta_i}{\sum_{i=1}^n |V_{m,i}| \cdot |V_{s,i}|}$$

$V_{m,i}$: i 番目の観測値の風ベクトル

$V_{s,i}$: i 番目の計算値の風ベクトル

θ_i : $V_{m,i}$ と $V_{s,i}$ のなす角(観測値と計算値の風向の違い)

i : 時系列データのデータ番号(1~ n)

n : 相関を取る時系列データの数

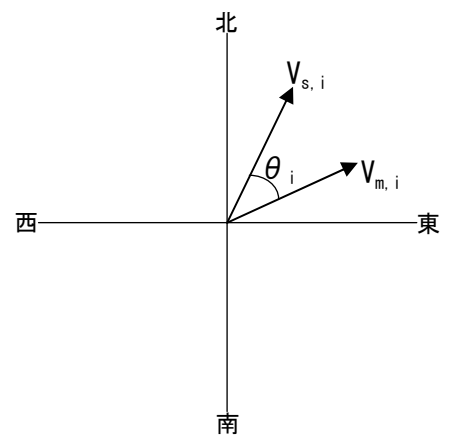


図2 風ベクトルの比較

2.4 経時変化の比較

角度風向データと 16 方位風向データのそれぞれを用いた計算結果から、各観測地点における風向及び風速を抽出し、観測値とともに計算期間における時系列グラフを作成し、比較した。また、風向の計算結果と観測値との角度差を求め、角度風向データを用いた場合と 16 方位風向データを用いた場合とで経時変化の比較を行った。

2.5 大気中濃度分布の比較

風向データを角度風向とした場合と 16 方位風向とした場合とで、放射性物質の単位放出における大気中濃度分布を仮想的に計算し、比較した。気象データは、再処理施設主排気筒 150m における角度風向と 16 方位風向の角度差(最大：11.25 度)が大きくなる 2013/8/12 9:00～10:00 の観測値を使用した。計算の条件を表 3、再処理気象観測局の気象データを表 4 に示す。

表 3 大気中濃度分布の計算条件

項目	内容
放出地点	再処理施設主排気筒
放出高さ	地上 150 m
核種	⁸⁵ Kr
放出率	1 Bq/h
放出継続時間	1 h
解析日時	2013/8/12 9:00～10:00
パフのタイムステップ	10 秒
気象データ時間間隔	10 分
出力時間間隔	10 分

表 4 再処理気象観測局 気象データ

日時	風速(m/s)	風向		大気安定度
		16 方位	角度	
8/12 9:00	7.7	270	281	C
8/12 9:10	7.5	270	281	C
8/12 9:20	6.7	270	274	C
8/12 9:30	6.8	292.5	292	C
8/12 9:40	6.4	270	279	D
8/12 9:50	7.5	292.5	285	D
8/12 10:00	7.5	292.5	284	D

3. 結果と考察

3.1 風ベクトルの相関係数の比較

(1) 環境研における観測値との比較

16 方位風向データを用いた計算結果と角度風向データを用いた計算結果のそれぞれについて、環境研から提供を受けた総合気象観測装置による風向・風速の観測値との比較を行った。10 分値により 1 日分のデータの比較を行った結果を表 5 に、また、1 時間値により 1 カ月分のデータの比較を行った結果を表 6 に示す。

相関係数としては、角度風向データを用いた場合の方が 16 方位風向データを用いた場合に比べて、10 分値で 0.1~0.5 %、1 時間値では 0.3~0.4 %改善されており、風向を 16 方位から角度にしたことで、風速場の精度が向上したことが確認できた。

なお、もともと 16 方位風向データと角度風向データの差は最大で 11.25 度であり、 $\theta = 11.25^\circ$ の場合の相関係数は 0.98 となるため、これらのデータで求めた相関係数の改善率は最大で 2 %程度となる。

(2) モニタリングステーションにおける観測値との比較

環境研における観測値と同様に、モニタリングステーション千歳平局及び二又局における風向・風速の観測値との比較を行った。千歳平局における観測値との比較を行った結果を表 7 及び表 8 に、二又局における観測値との比較を行った結果を表 9 及び表 10 に示す。

相関係数は、角度風向データを用いた場合の方が 16 方位風向データを用いた場合に比べて、千歳平局については 10 分値が 0.5~0.7 %、1 時間値が 0.6~0.7 %、二又局については 10 分値、1 時間値ともに 0.2~0.7 %改善されており、風向を角度にしたことで、風速場の精度が向上したことが確認できた。これらの地点では、観測値を風速場計算の入力値として用いているため、環境研における観測値との比較を行った場合よりも全体的に相関係数が高めの傾向が見られた。

表 5 環境研観測値との相関(10 分値、1 日分(145 データ))

期間	16 方位(改良前)	角度(改良後)	改善率
5/21 0:00~5/22 0:00	0.982	0.986	0.5 %
8/12 0:00~8/13 0:00(※)	0.984	0.987	0.3 %
10/23 0:00~10/24 0:00	0.993	0.994	0.1 %
12/5 0:00~12/6 0:00	0.928	0.930	0.2 %

※8/12 10:10~16:40 は二又局で欠測

表 6 環境研観測値との相関(1 時間値、1 カ月分)

期間	データ数	16 方位(改良前)	角度(改良後)	改善率
5/1 1:00~5/31 23:00	718	0.980	0.983	0.3 %
8/1 1:00~8/31 23:00	702	0.969	0.973	0.4 %
10/1 1:00~10/31 23:00	733	0.983	0.987	0.4 %
12/1 1:00~12/26 0:00	590	0.983	0.987	0.4 %

表 7 モニタリングステーション千歳平局観測値との相関(10分値、1日分(145データ))

期間	16方位(改良前)	角度(改良後)	改善率
5/21 0:00～5/22 0:00	0.991	0.998	0.7%
8/12 0:00～8/13 0:00(※)	0.993	0.999	0.5%
10/23 0:00～10/24 0:00	0.994	1.000	0.6%
12/5 0:00～12/6 0:00	0.991	0.997	0.6%

※8/12 10:10～16:40 は二又局で欠測

表 8 モニタリングステーション千歳平局観測値との相関(1時間値、1カ月分)

期間	データ数	16方位 (改良前)	角度 (改良後)	改善率
5/1 1:00～5/31 23:00	718	0.993	0.999	0.6%
8/1 1:00～8/31 23:00	702	0.992	0.999	0.7%
10/1 1:00～10/31 23:00	733	0.993	0.999	0.6%
12/1 1:00～12/26 0:00	590	0.994	1.000	0.6%

表 9 モニタリングステーション二又局観測値との相関(10分値、1日分(145データ))

期間	16方位(改良前)	角度(改良後)	改善率
5/21 0:00～5/22 0:00	0.983	0.990	0.7%
10/23 0:00～10/24 0:00	0.996	0.999	0.2%
12/5 0:00～12/6 0:00	0.961	0.968	0.7%

表 10 モニタリングステーション二又局観測値との相関(1時間値、1カ月分)

期間	データ数	16方位 (改良前)	角度 (改良後)	改善率
5/1 1:00～5/31 23:00	718	0.989	0.997	0.7%
8/1 1:00～8/31 23:00	702	0.986	0.992	0.6%
10/1 1:00～10/31 23:00	733	0.992	0.995	0.4%
12/1 1:00～12/26 0:00	590	0.995	0.998	0.2%

3.2 経時変化の比較

(1) 環境研における観測値との比較

風向・風速の計算値と環境研における観測値を時系列グラフにより比較した。期間は3.1項と同一期間であり、1日分の10分値を比較したものが図3-1～図3-4、1カ月分の1時間値を比較したものが図3-5～図3-8である。(a)に風向、(b)に風速のそれぞれの計算結果と観測値を、(c)に計算結果と観測値の風向の角度差を示した。

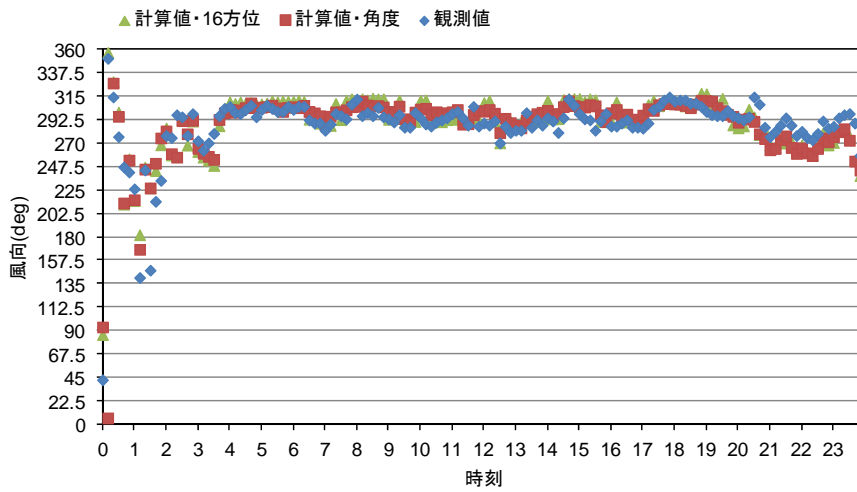
風速については、角度風向データと16方位風向データを用いた場合とでは大きな違いはなく、1日分、1カ月分のいずれも観測値に近い経時変化を示している。風向については、図3-4のように、風速が小さい期間では16方位風向データを用いた計算値と角度風向データを用いた計算値の両者とも観測値との角度のずれが大きくなる傾向が見られるものの、風速がある程度大きい期間では角度風向データを用いた計算値の方が、観測値の角度差が低減している。図3-5～図3-8に示した1時間値についても同様の傾向が現れており、季節毎の傾向の違いは見られなかった。

(2) モニタリングステーションにおける観測値との比較

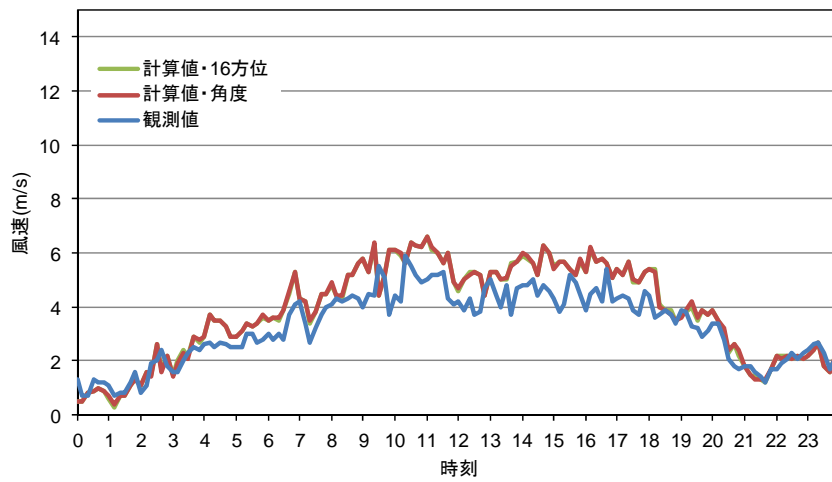
環境研における観測値と同様に、モニタリングステーション千歳平局における観測値と比較を行ったのが図4-1～図4-8、モニタリングステーション二又局における観測値との比較を行ったのが図5-1～図5-7である。

全体的な傾向は(1)と同様であるが、16方位風向データを用いた計算結果では、観測値との角度差が約10度程度の幅を持って頻繁に変動しているのに対し、角度風向データを用いた場合は角度差が全体的に低減し、変動も小さくなっており、角度と16方位の角度差(最大11.25度)が解消されたことが現れているものと考えられる。

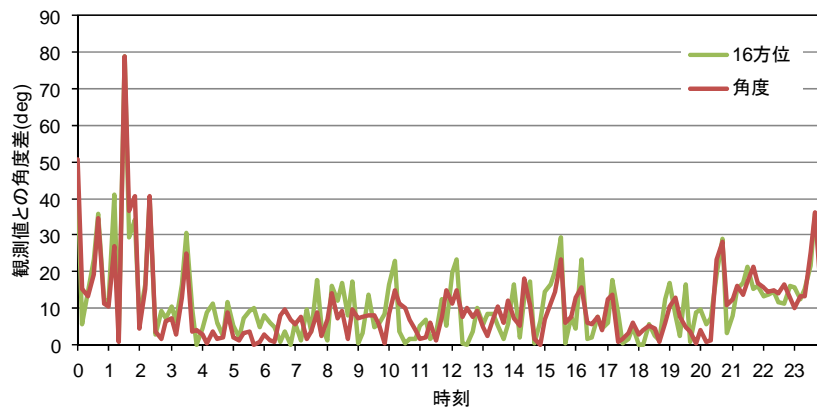
なお、3.1(2)で述べたように、モニタリングステーションにおける観測値は風速場計算の入力値であるため、時系列グラフで比較しても、環境研の場合より計算値と観測値との違いは小さくなっている。



(a) 風向

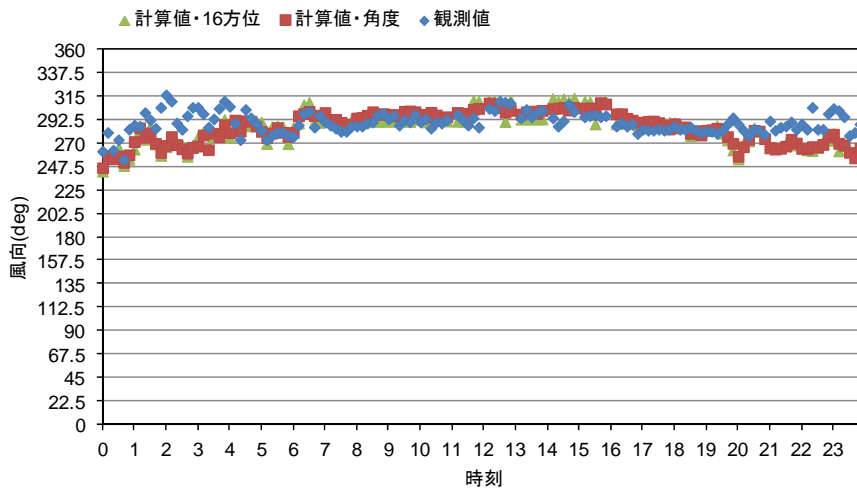


(b) 風速

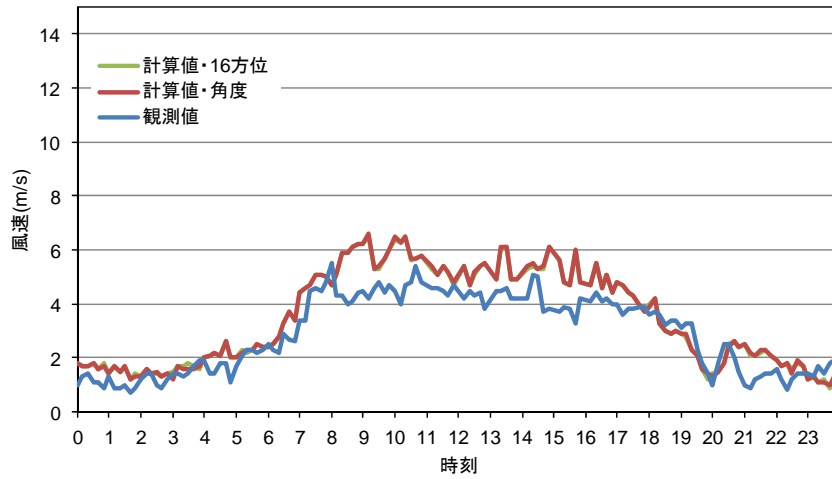


(c) 観測値との角度差

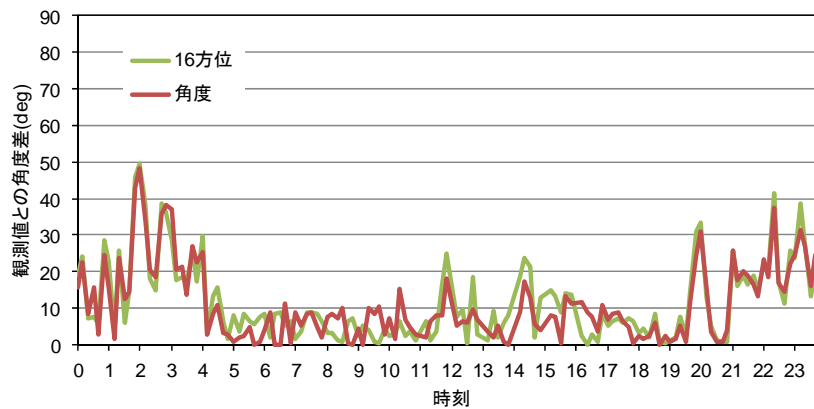
図 3-1 環境研総合気象観測装置観測値との比較 (10 分値、5/21 0:00~5/22 0:00)



(a) 風向

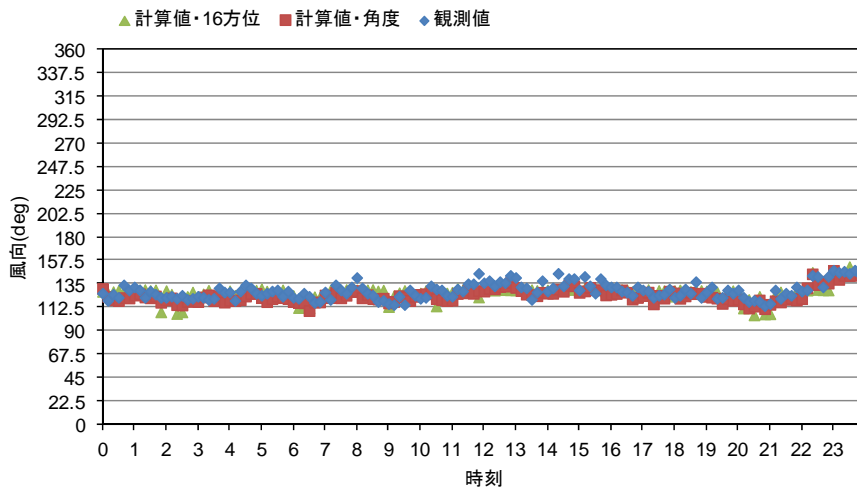


(b) 風速

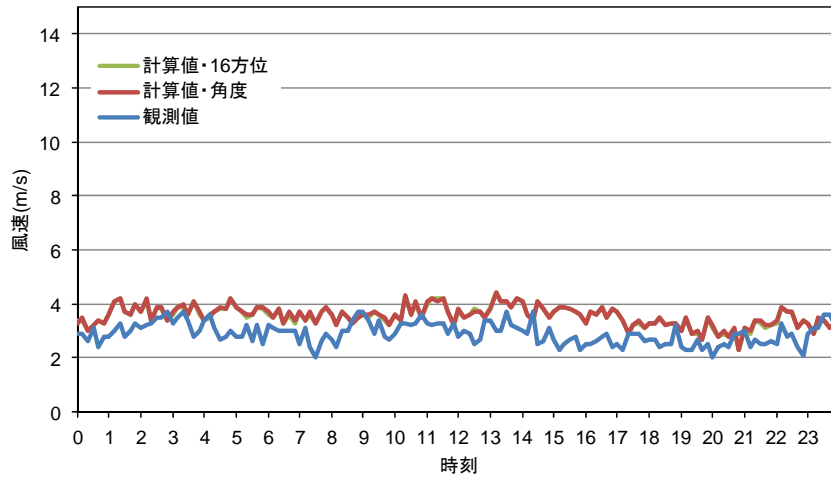


(c) 観測値との角度差

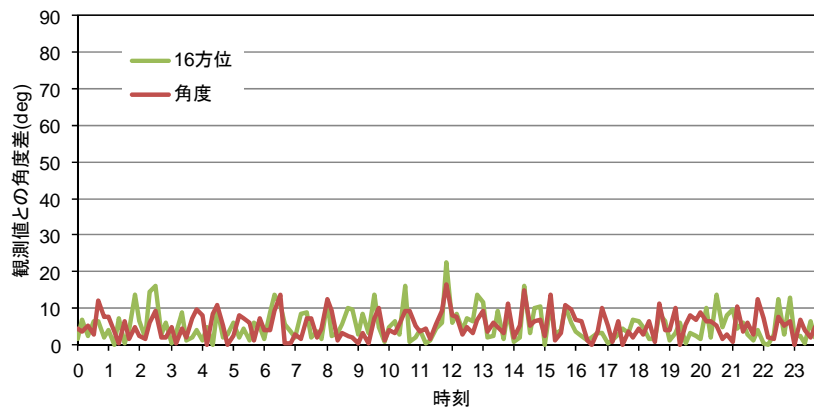
図 3-2 環境研総合気象観測装置観測値との比較 (10 分値、8/12 0:00~8/13 0:00)



(a) 風向

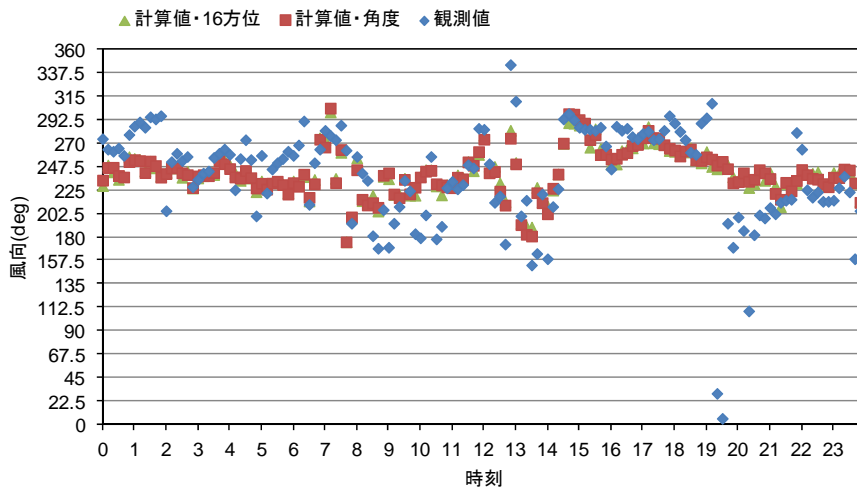


(b) 風速

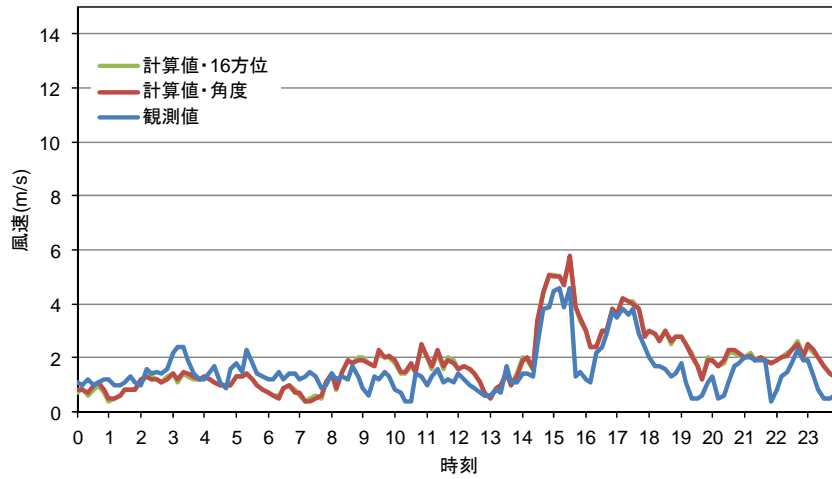


(c) 観測値との角度差

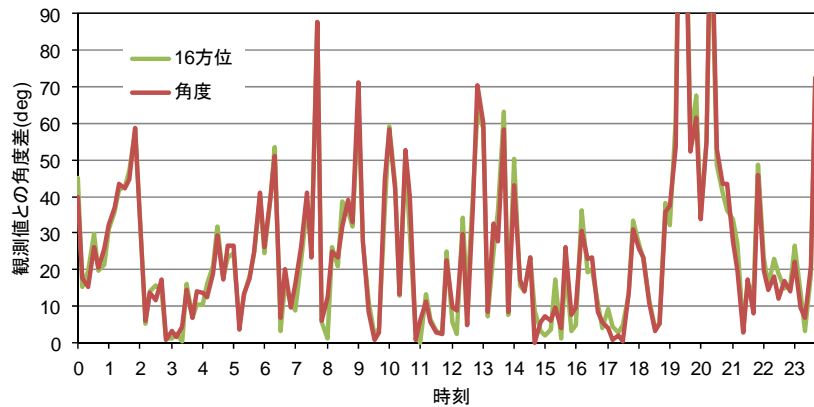
図 3-3 環境研総合気象観測装置観測値との比較(10分値、10/23 0:00~10/24 0:00)



(a) 風向

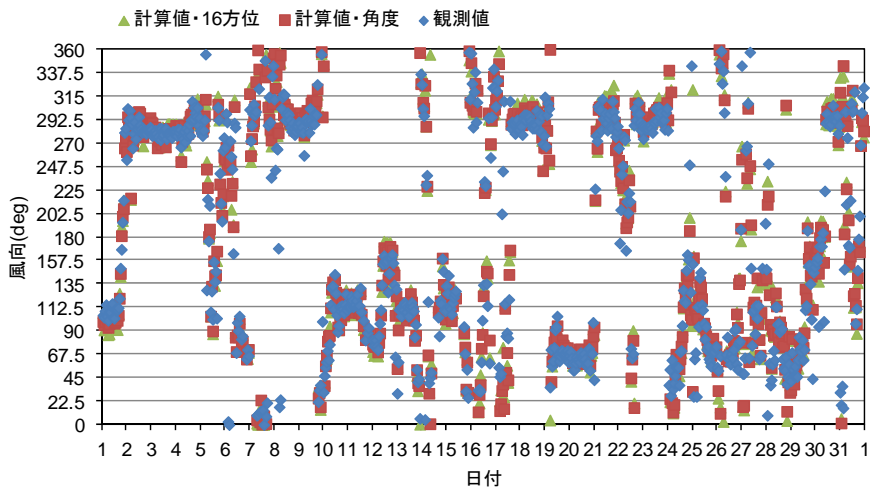


(b) 風速

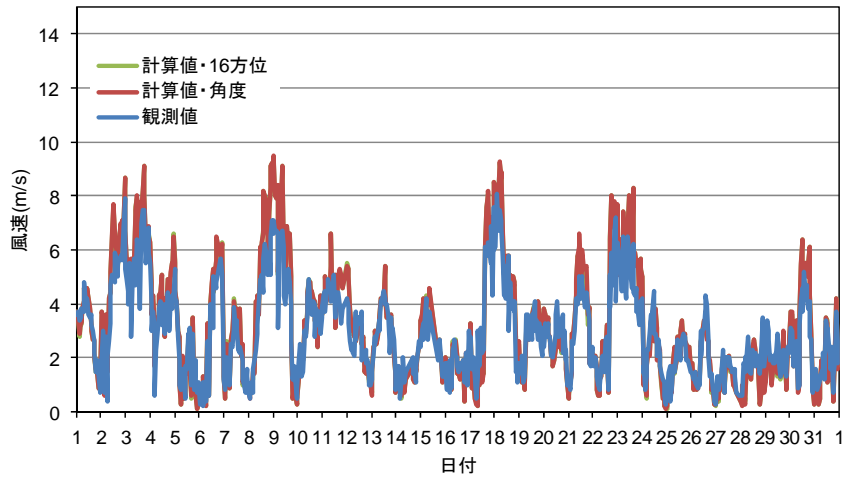


(c) 観測値との角度差

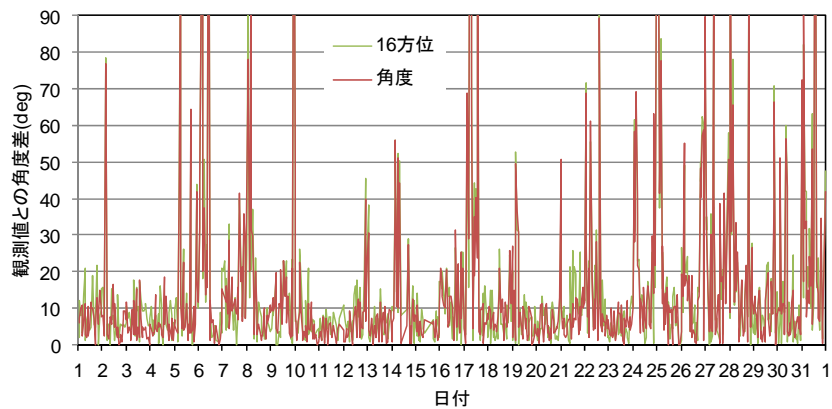
図 3-4 環境研総合気象観測装置観測値との比較 (10 分値、12/5 0:00~12/6 0:00)



(a) 風向

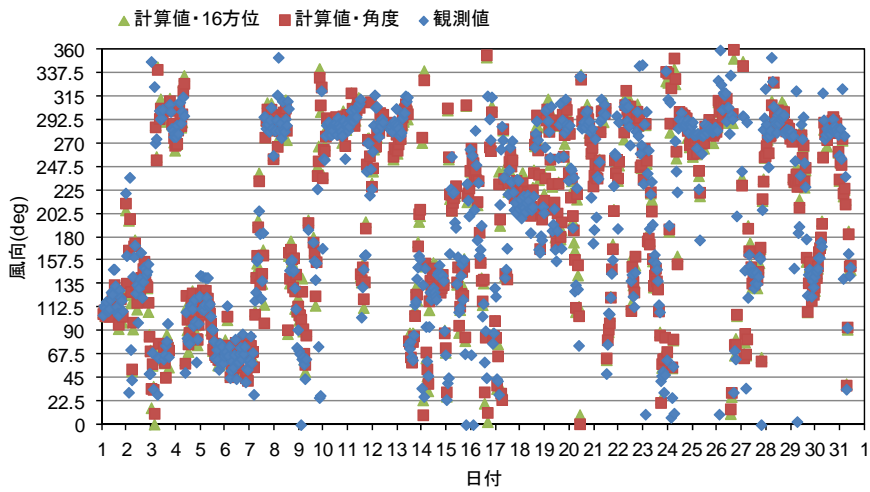


(b) 風速

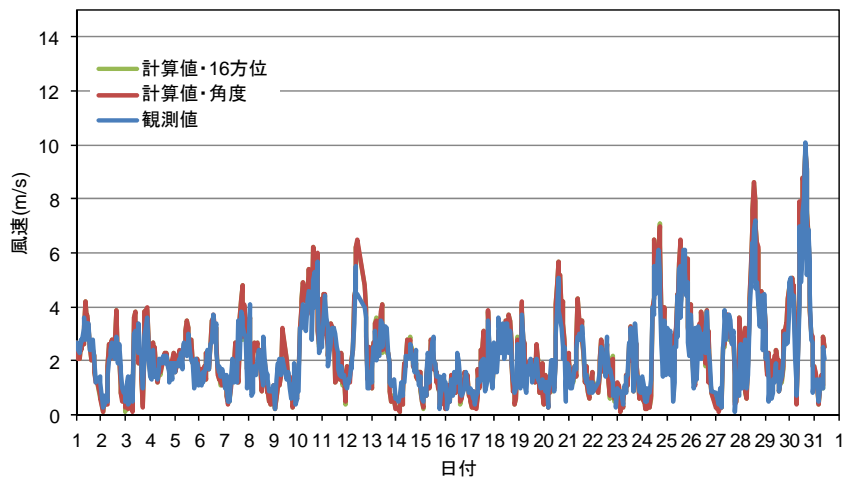


(c) 観測値との角度差

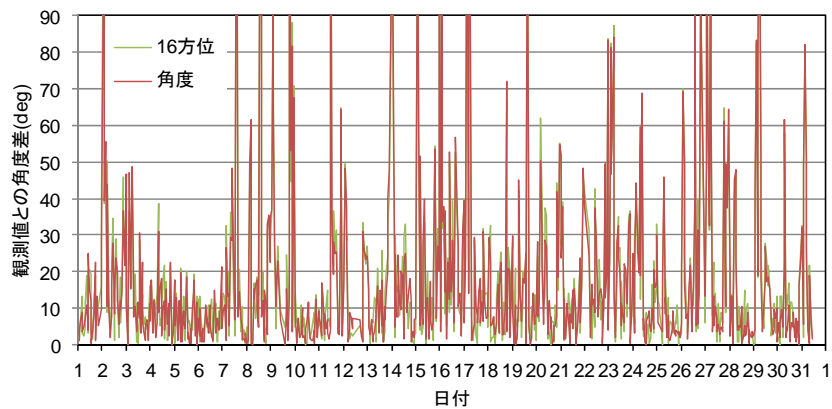
図 3-5 環境研総合気象観測装置観測値との比較(1 時間ごと、5/1 1:00~5/31 23:00)



(a) 風向

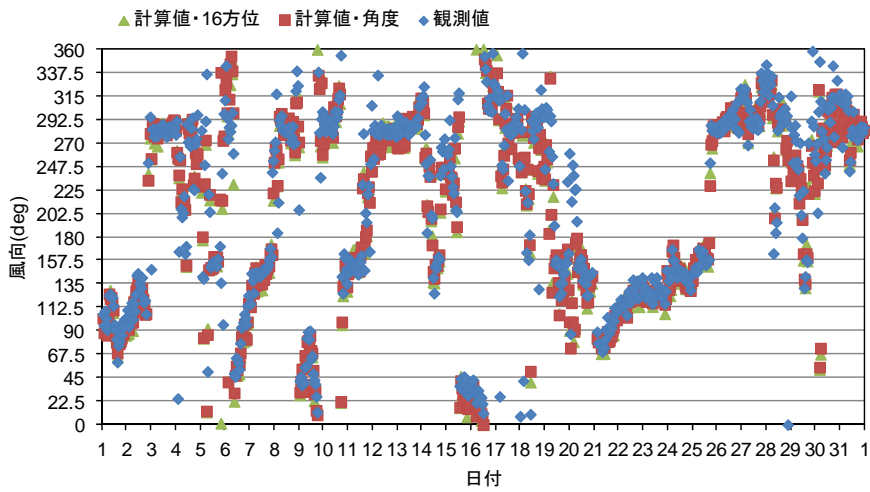


(b) 風速

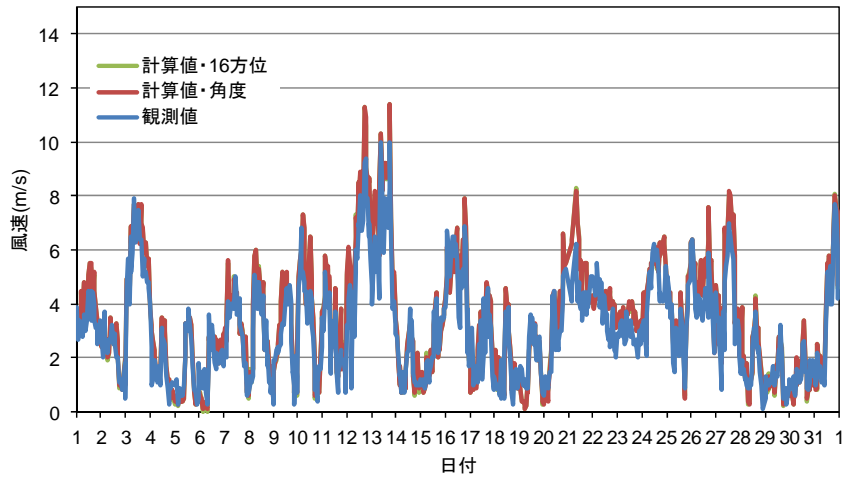


(c) 観測値との角度差

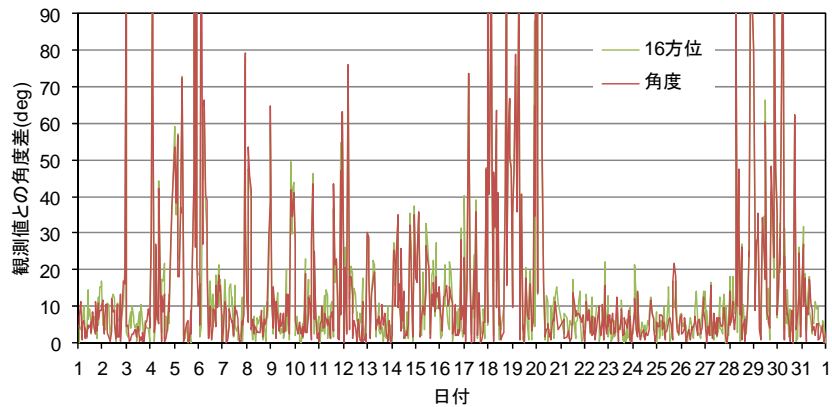
図 3-6 環境研総合気象観測装置観測値との比較(1時間ごと、8/1 1:00~8/31 23:00)



(a) 風向

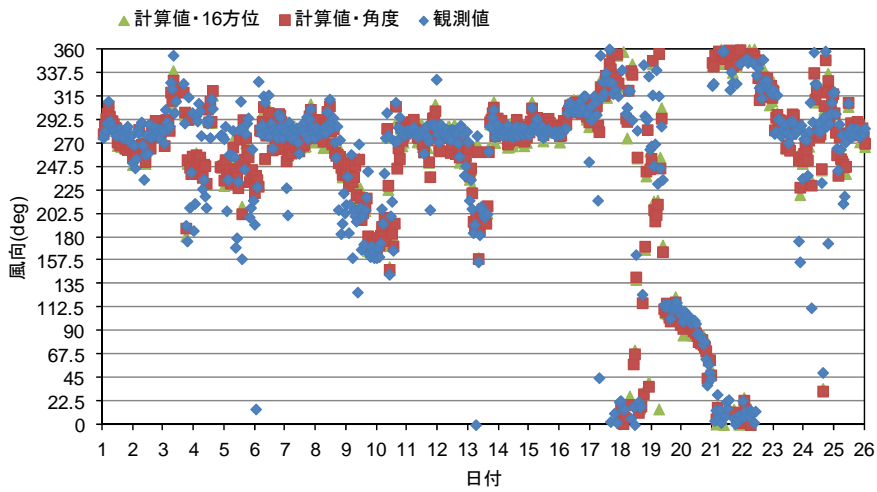


(b) 風速

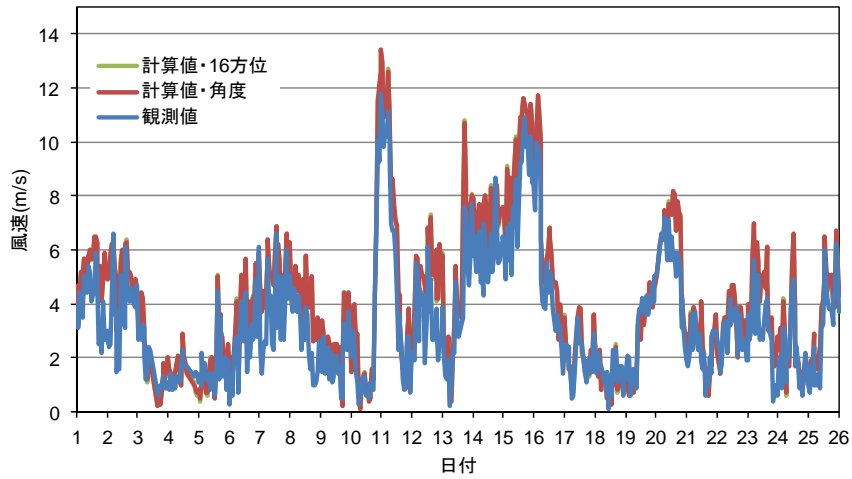


(c) 観測値との角度差

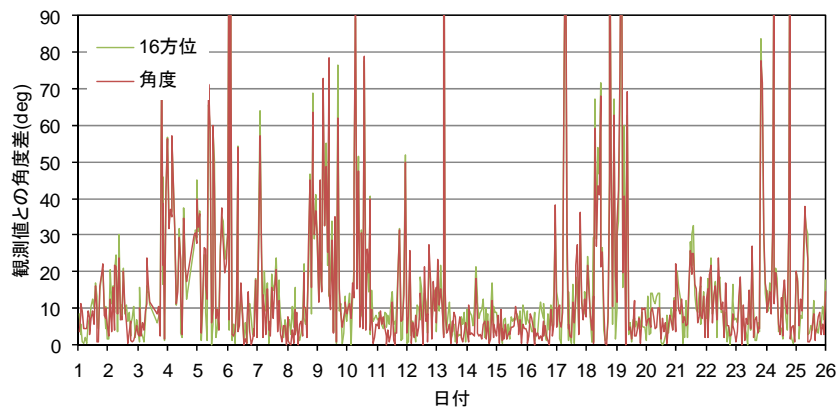
図 3-7 環境研総合気象観測装置観測値との比較(1 時間ごと、10/1 1:00~10/31 23:00)



(a) 風向

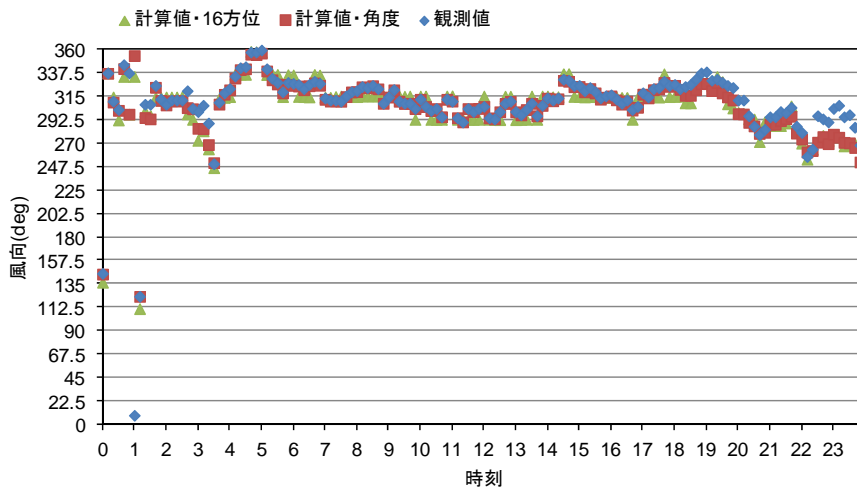


(b) 風速

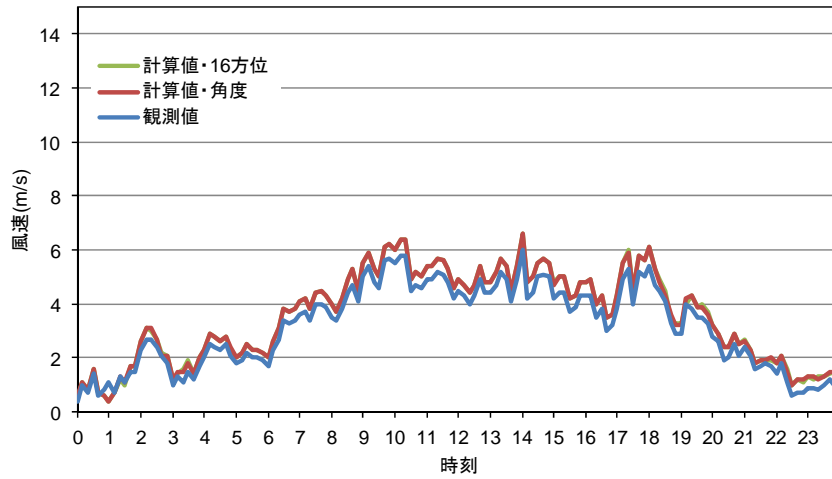


(c) 観測値との角度差

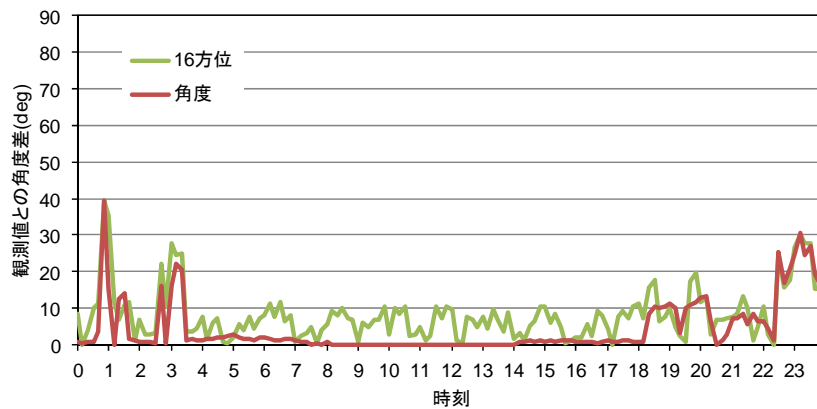
図 3-8 環境研総合気象観測装置観測値との比較(1時間ごと、12/1 1:00~12/26 0:00)



(a) 風向

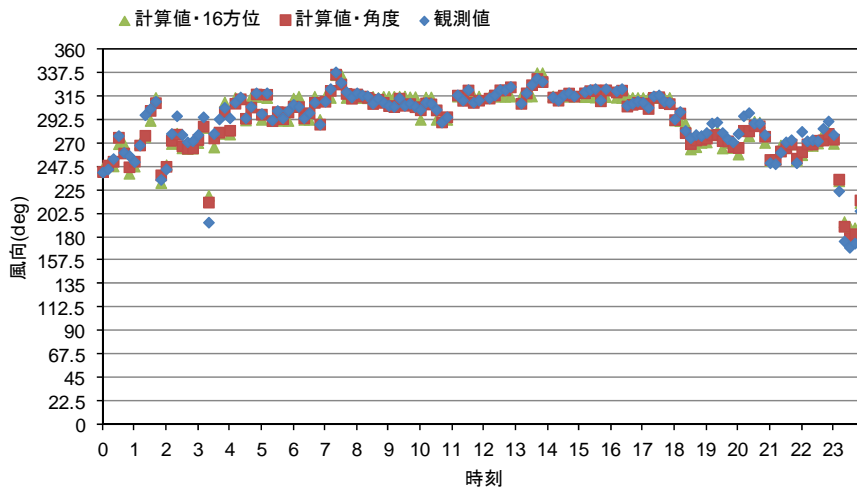


(b) 風速

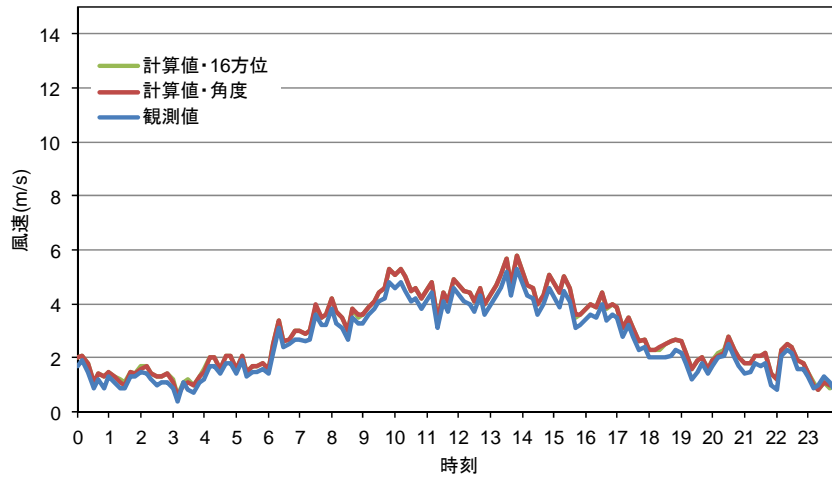


(c) 観測値との角度差

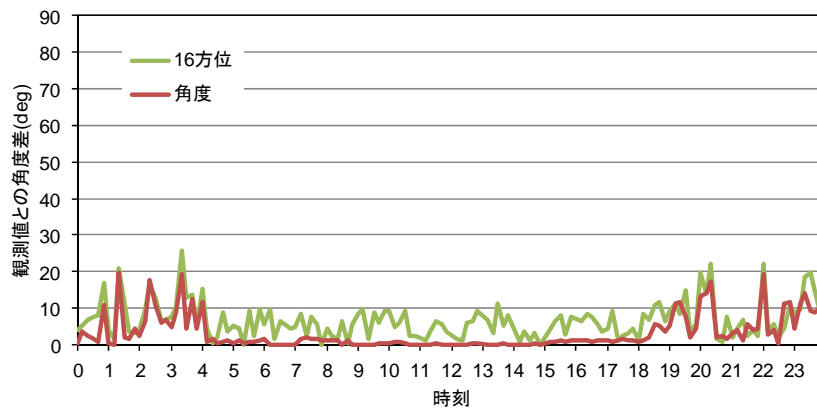
図 4-1 千歳平局観測値との比較(10 分値、5/21 0:00~5/22 0:00)



(a) 風向

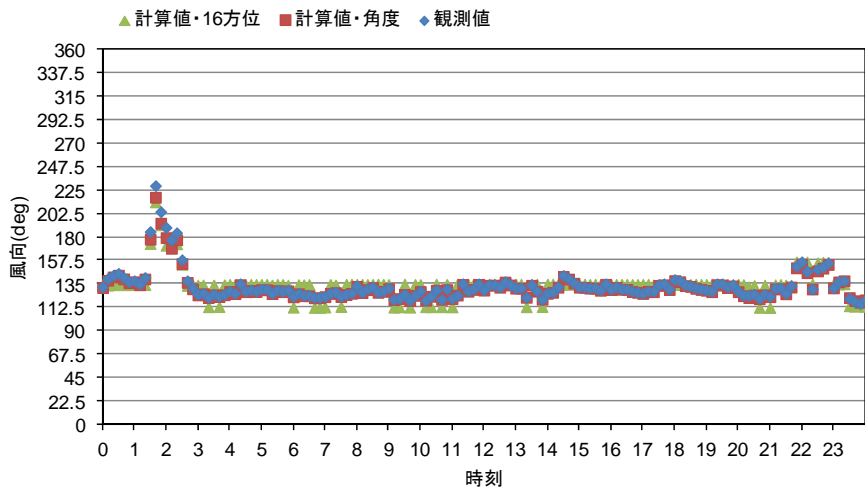


(b) 風速

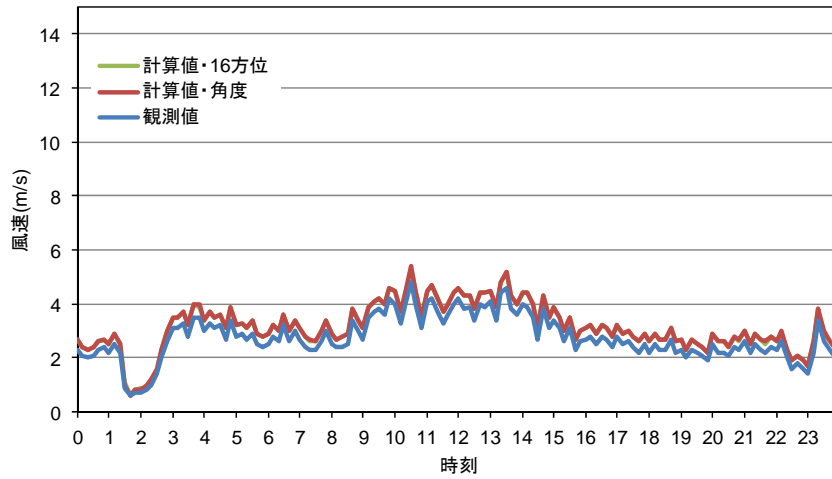


(c) 観測値との角度差

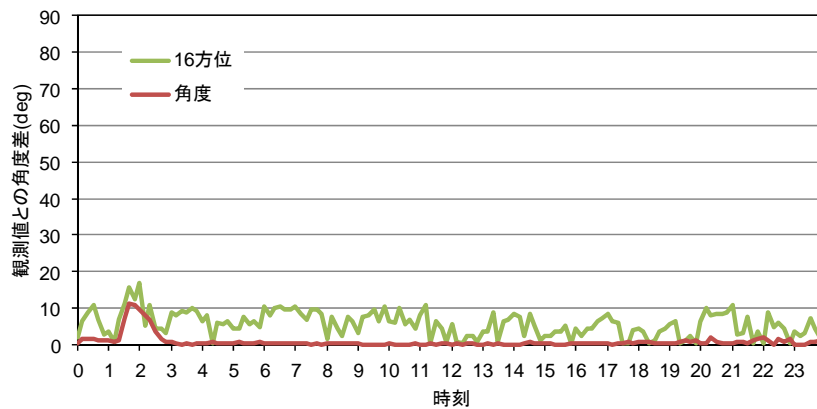
図 4-2 千歳平局観測値との比較(10 分値、8/12 0:00~8/13 0:00)



(a) 風向

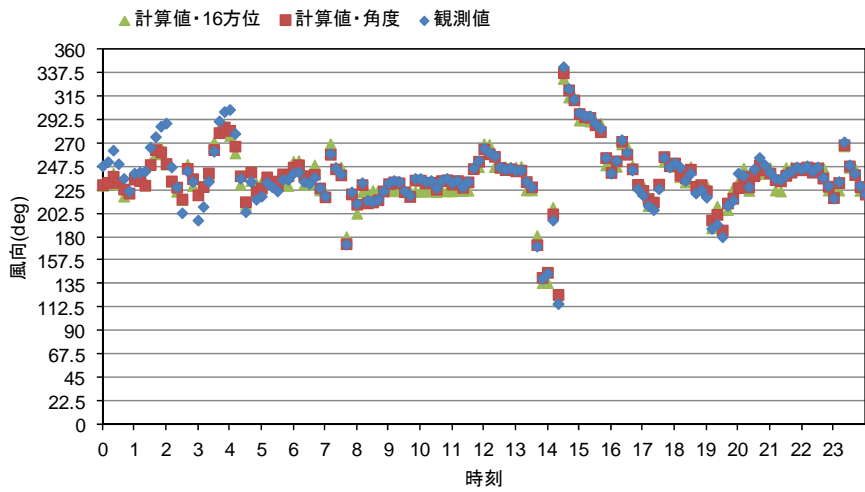


(b) 風速

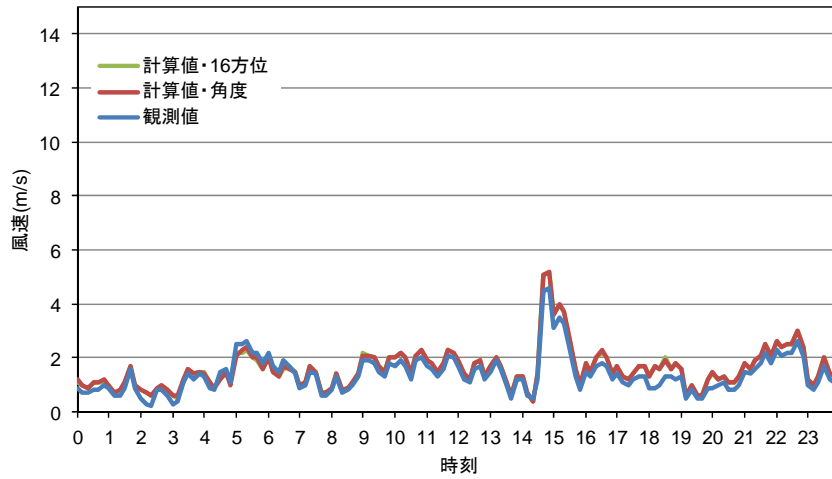


(c) 観測値との角度差

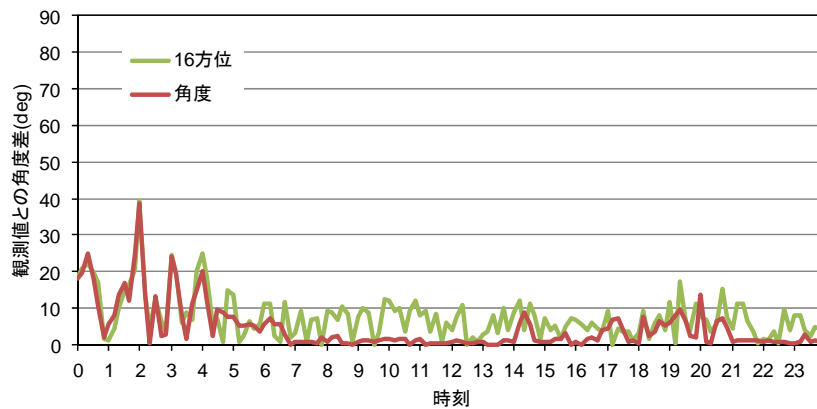
図 4-3 千歳平局観測値との比較(10 分値、10/23 0:00~10/24 0:00)



(a) 風向

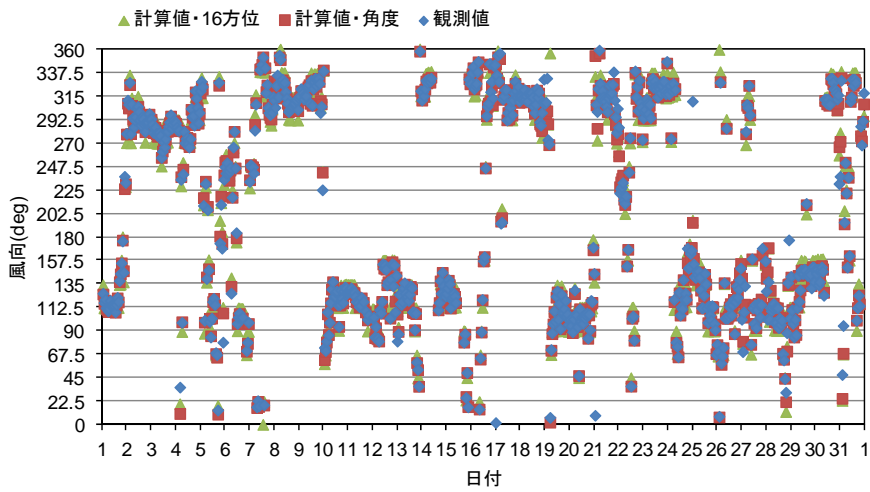


(b) 風速

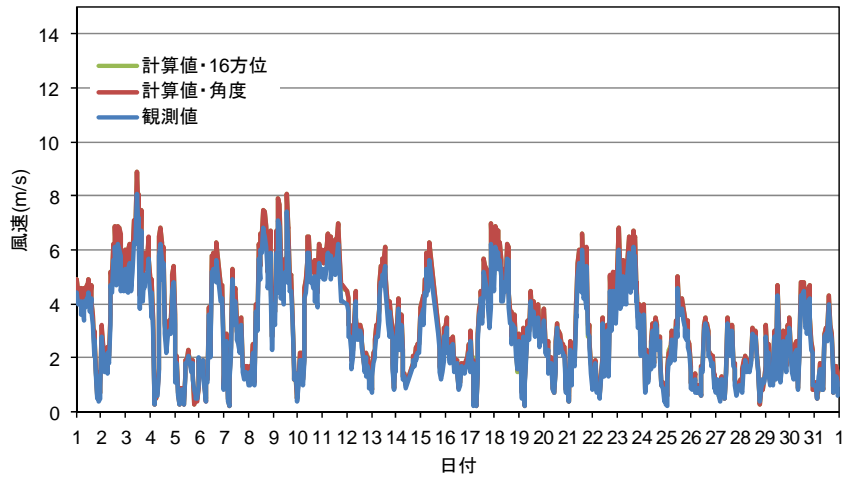


(c) 観測値との角度差

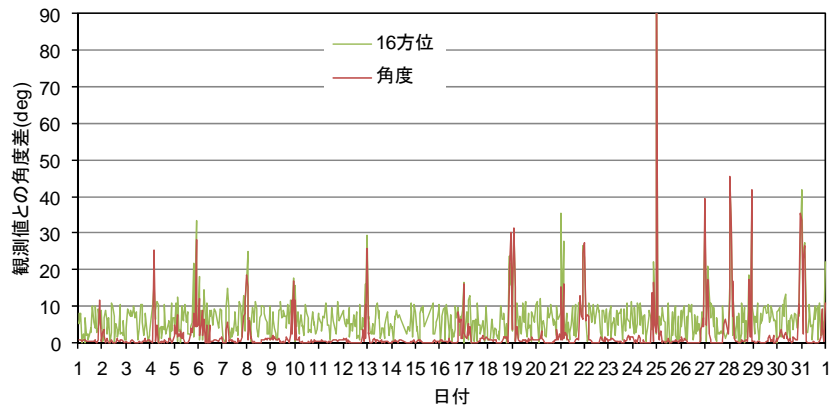
図 4-4 千歳平局観測値との比較(10 分値、12/5 0:00~12/6 0:00)



(a) 風向

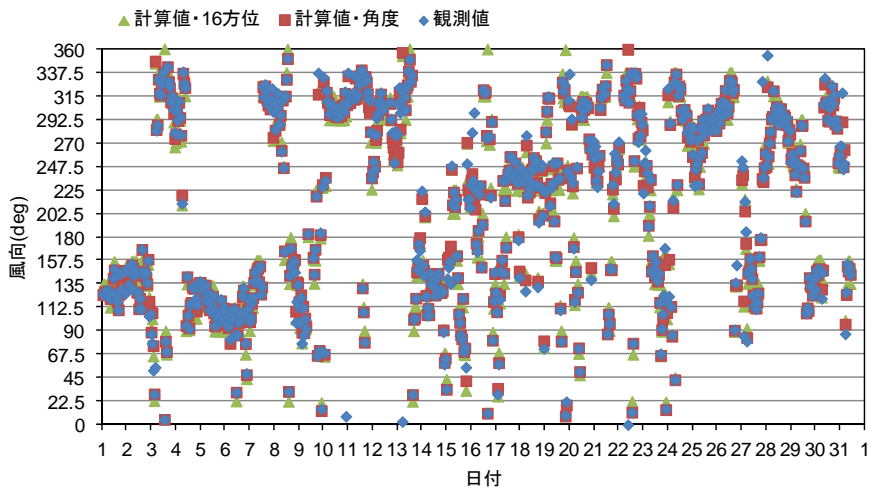


(b) 風速

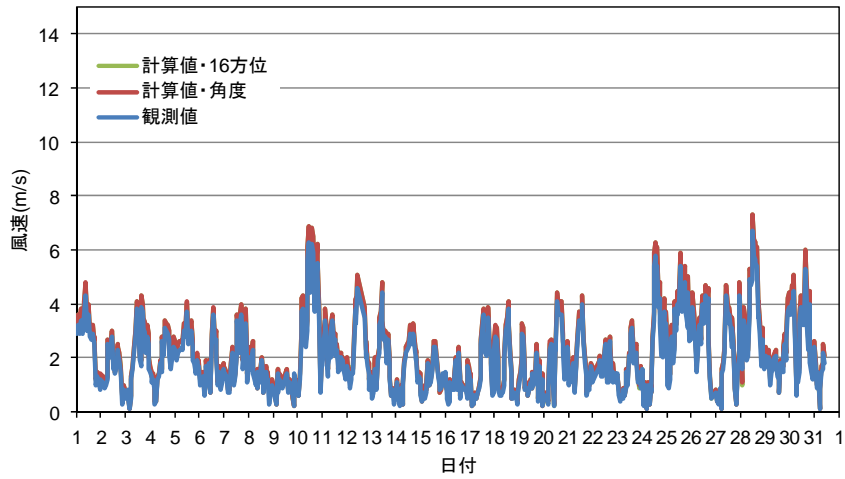


(c) 観測値との角度差

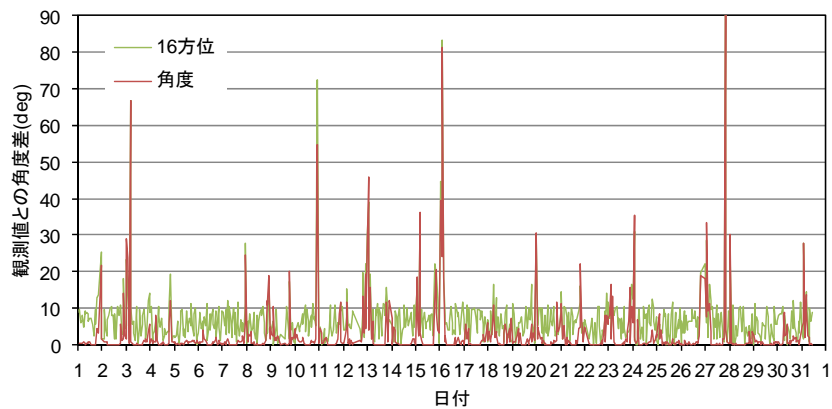
図 4-5 千歳平局観測値との比較(1時間ごと、5/1 1:00~5/31 23:00)



(a) 風向

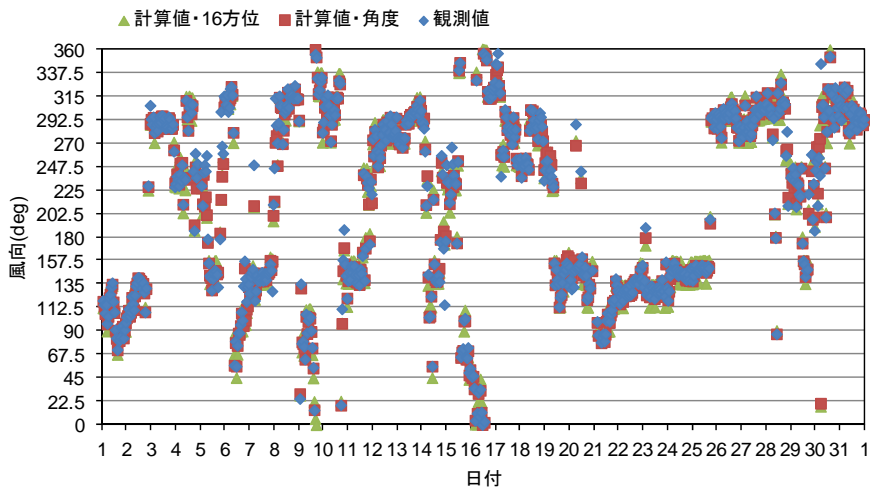


(b) 風速

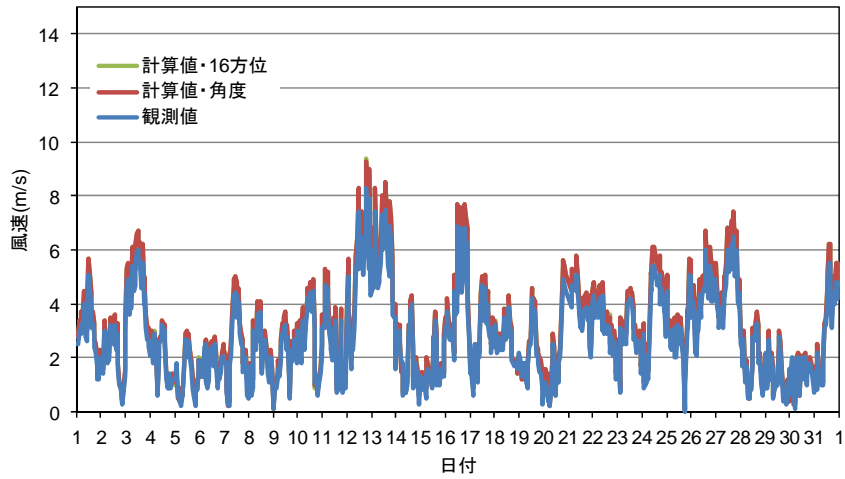


(c) 観測値との角度差

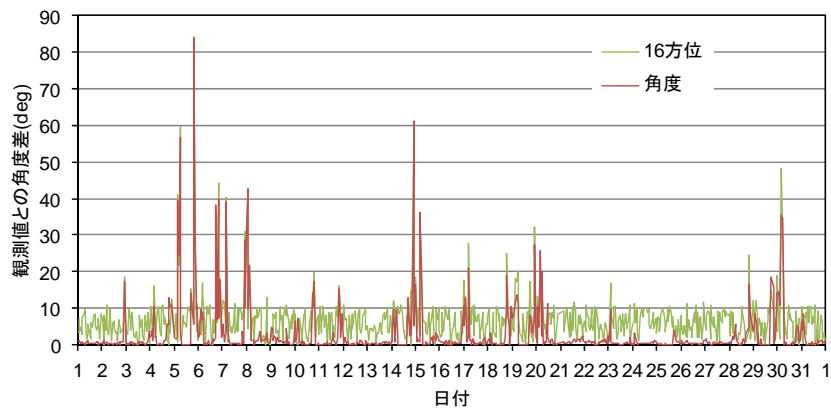
図 4-6 千歳平局観測値との比較(1時間ごと、8/1 1:00~8/31 23:00)



(a) 風向

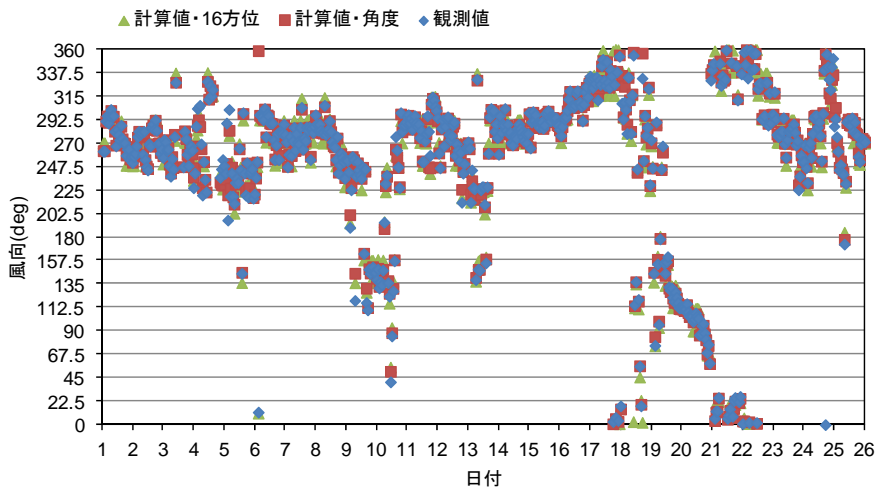


(b) 風速

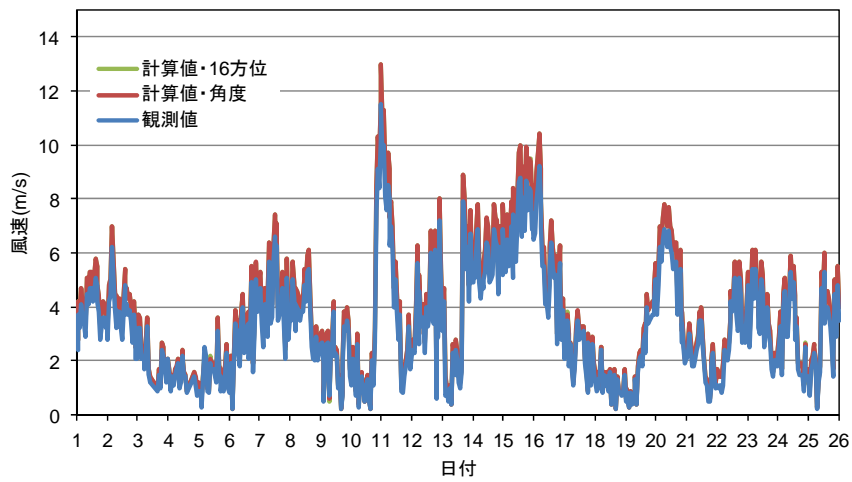


(c) 観測値との角度差

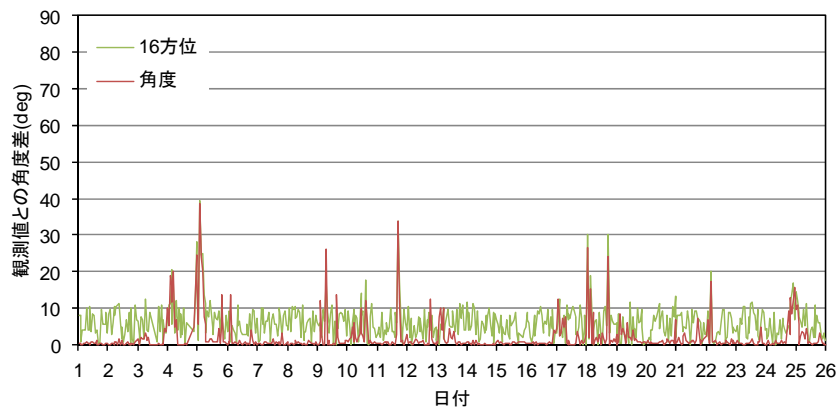
図 4-7 千歳平局観測値との比較(1時間ごと、10/1 1:00~10/31 23:00)



(a) 風向

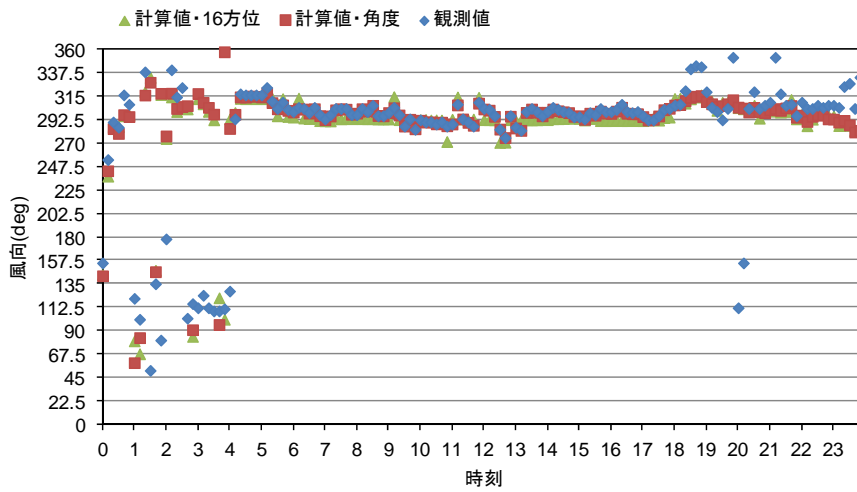


(b) 風速

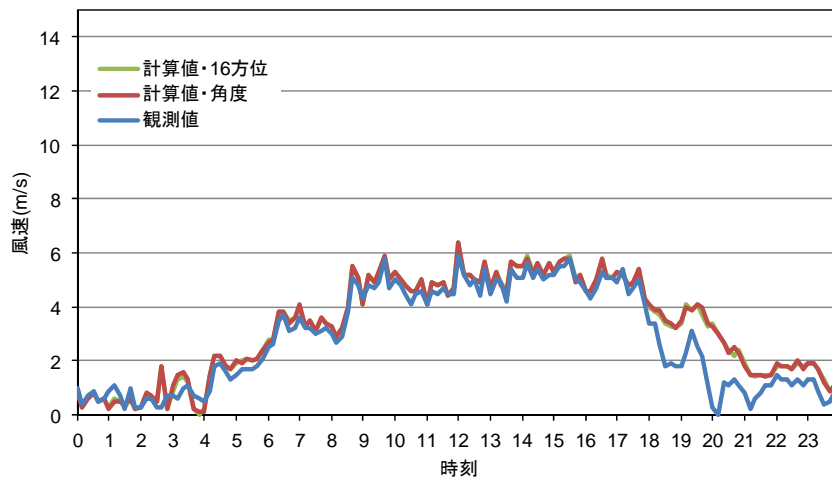


(c) 観測値との角度差

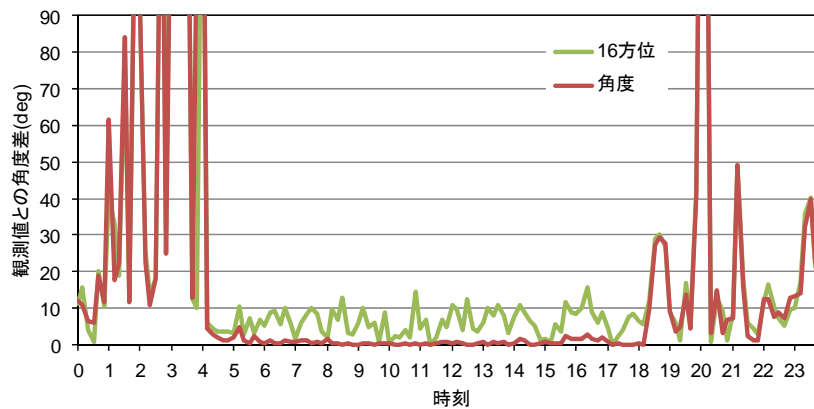
図 4-8 千歳平局観測値との比較(1 時間ごと、12/1 1:00~12/26 0:00)



(a) 風向

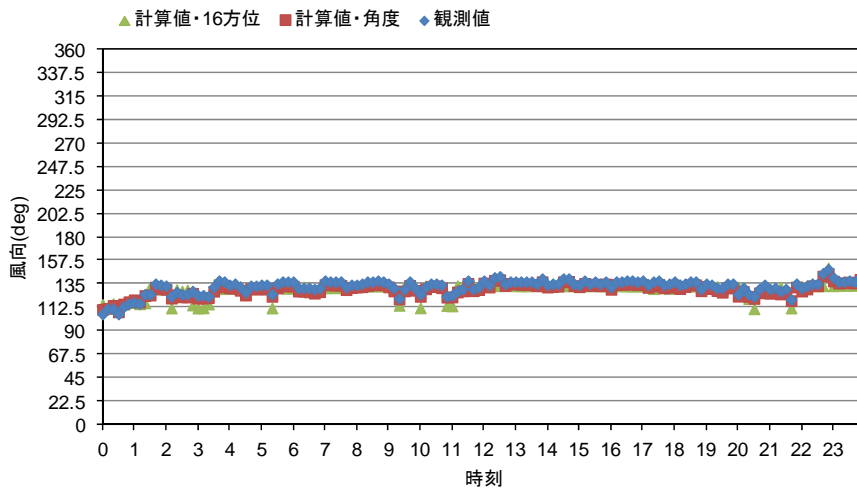


(b) 風速

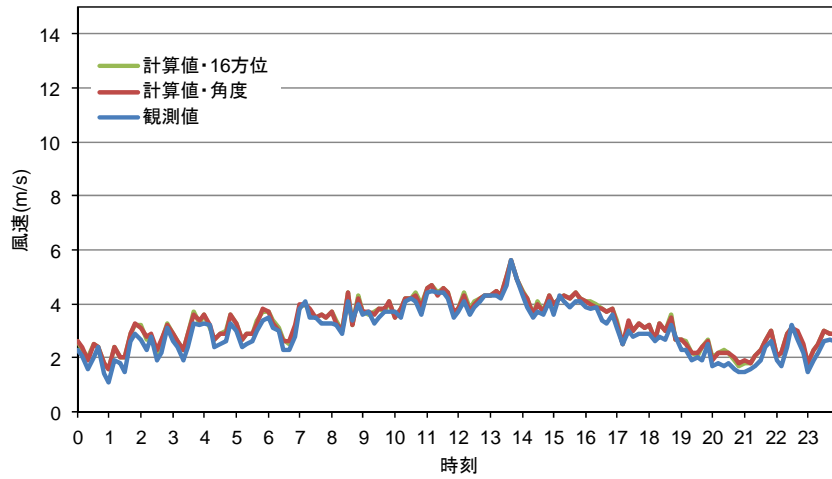


(c) 観測値との角度差

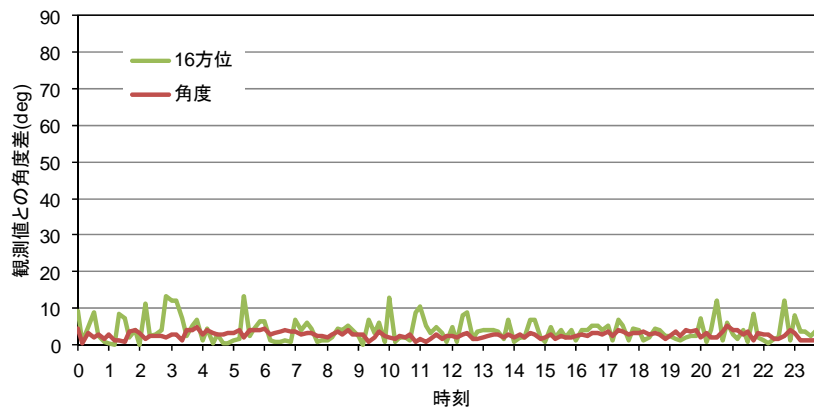
図 5-1 二又局観測値との比較(10 分値、5/21 0:00~5/22 0:00)



(a) 風向

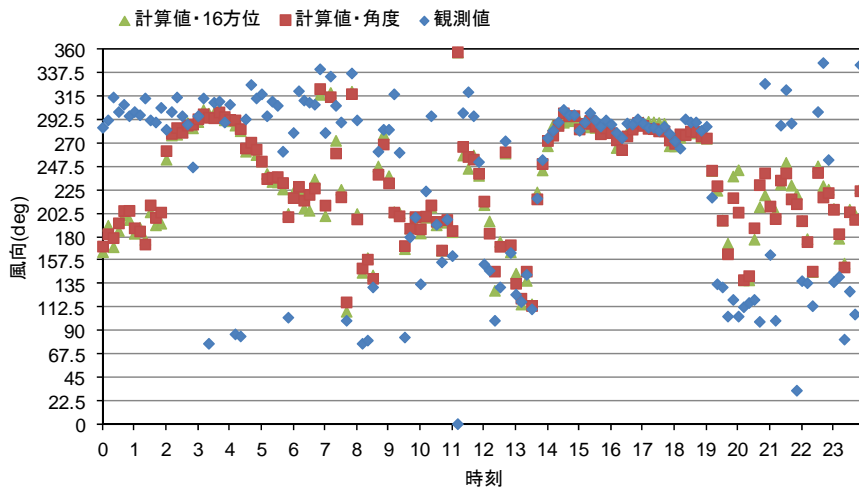


(b) 風速

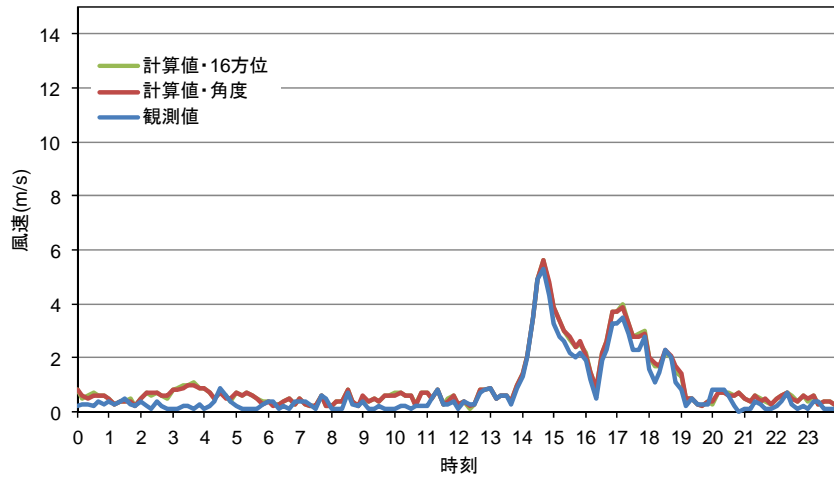


(d) 観測値との角度差

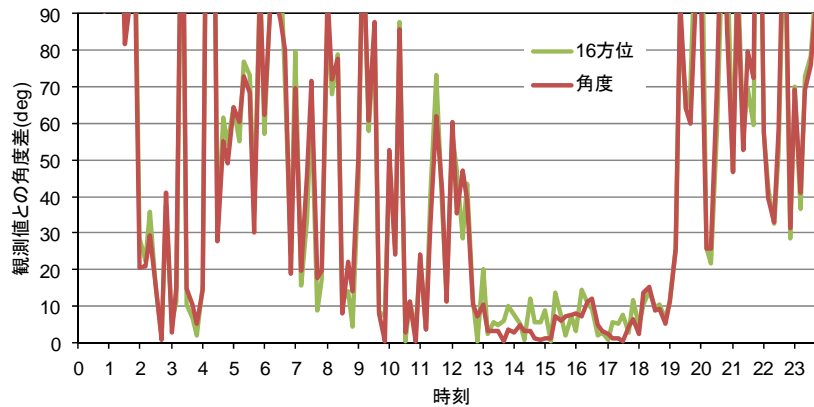
図 5-2 二又局観測値との比較(10 分値、10/23 0:00~10/24 0:00)



(a) 風向

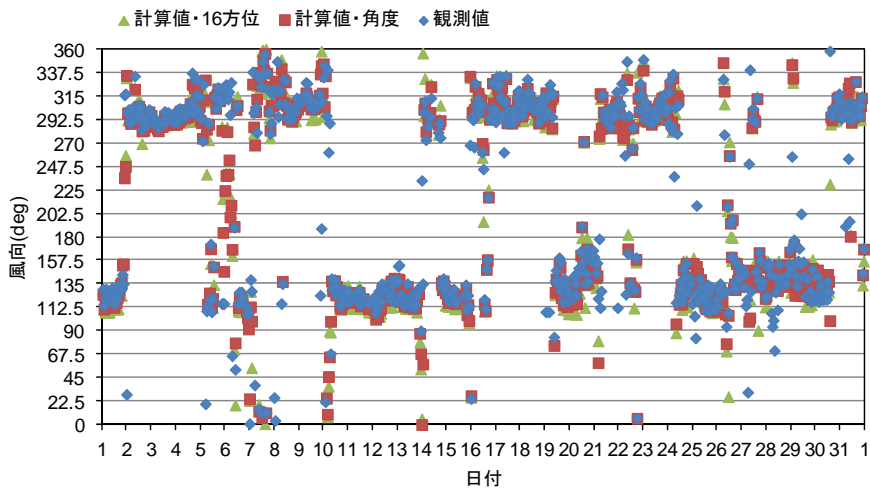


(b) 風速

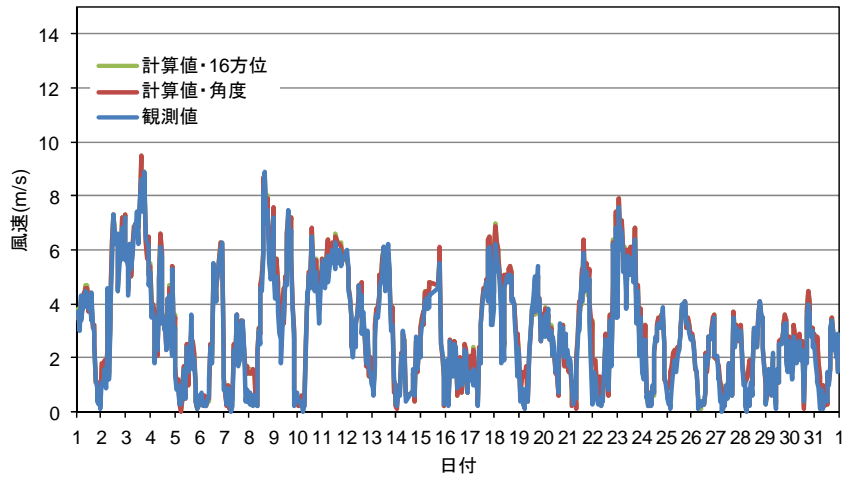


(c) 観測値との角度差

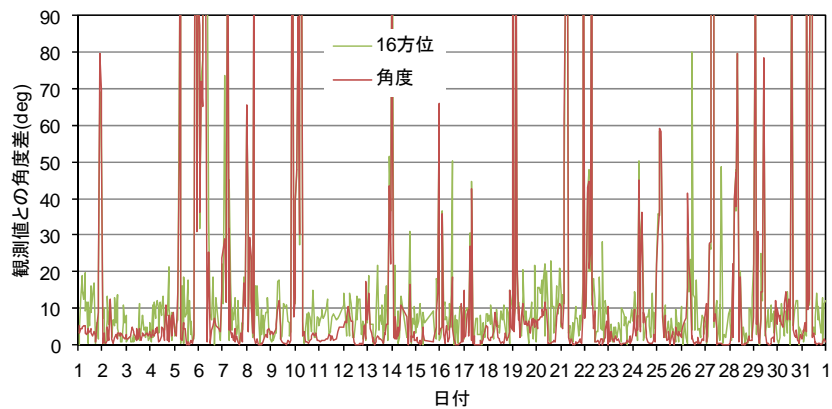
図 5-3 二又局観測値との比較(10分値、12/5 0:00~12/6 0:00)



(a) 風向

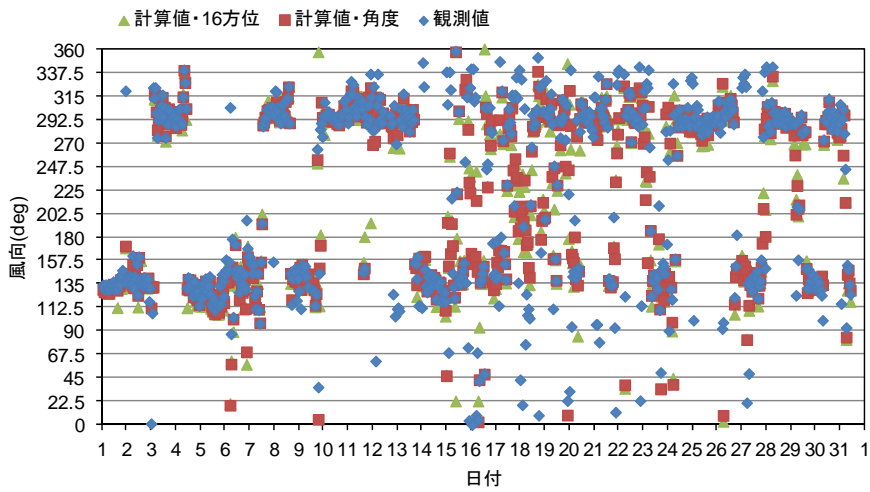


(b) 風速

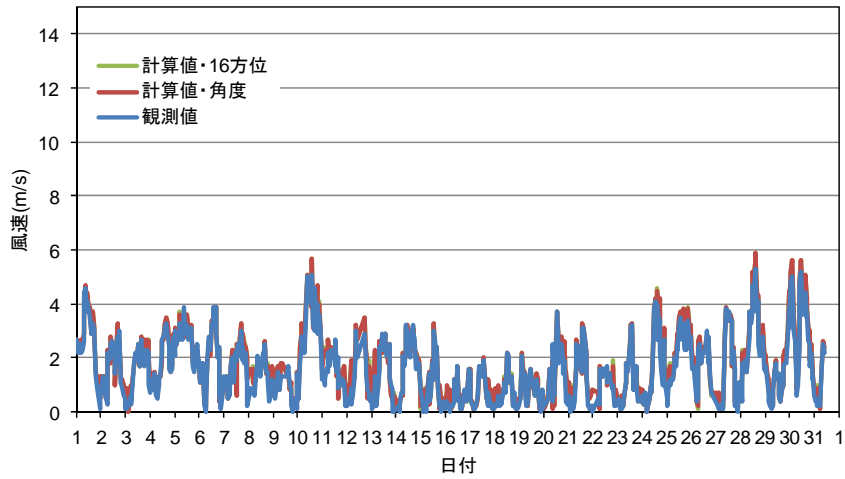


(c) 観測値との角度差

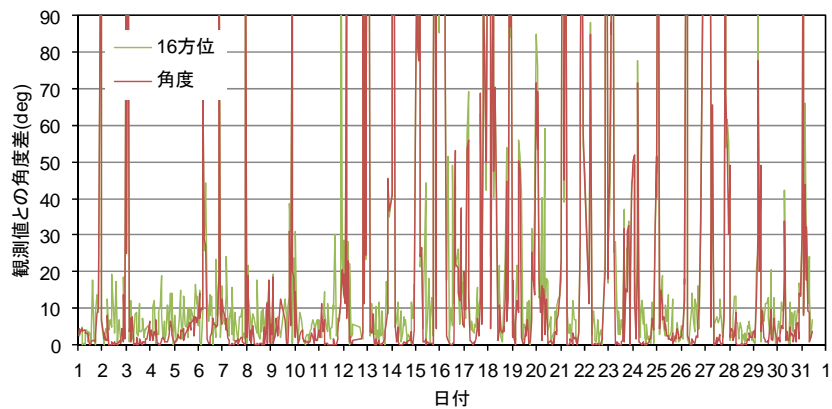
図 5-4 二又局観測値との比較(1時間ごと、5/1 1:00~5/31 23:00)



(a) 風向

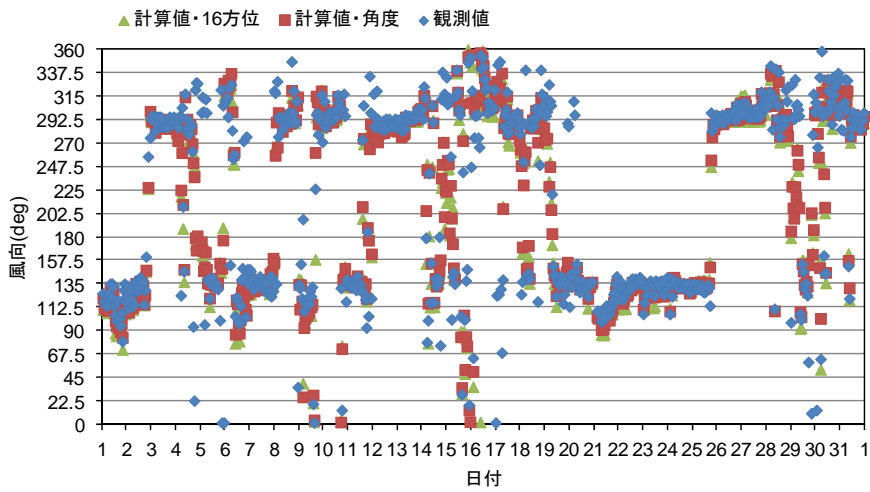


(b) 風速

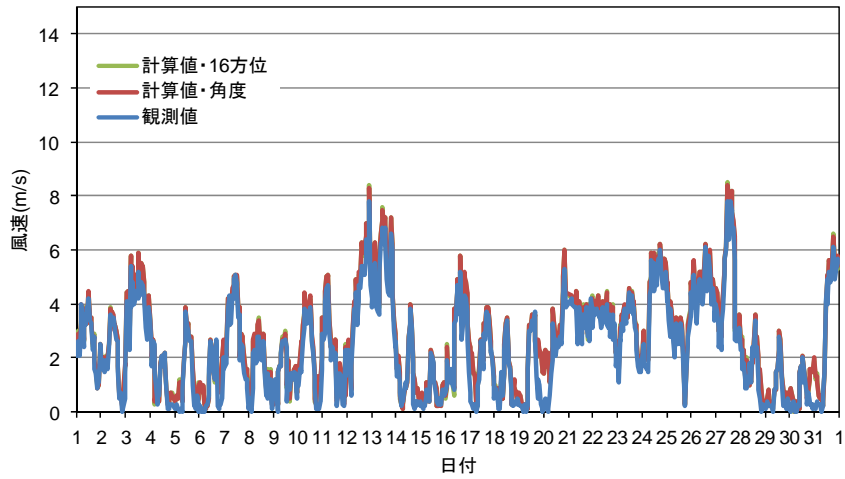


(c) 観測値との角度差

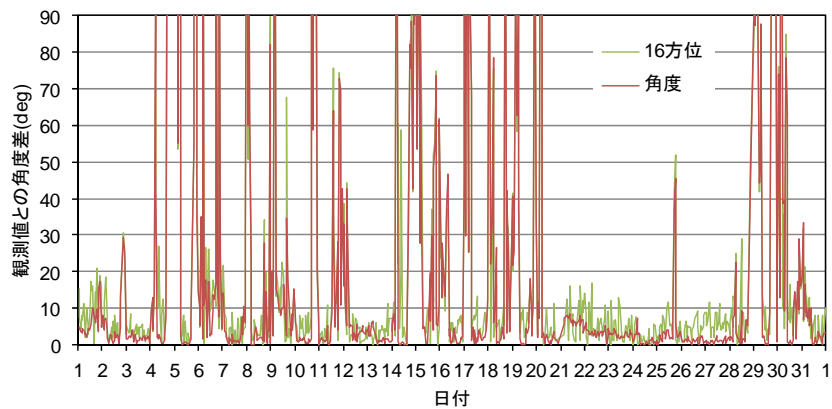
図 5-5 二又局観測値との比較(1時間ごと、8/1 1:00~8/31 23:00)



(a) 風向

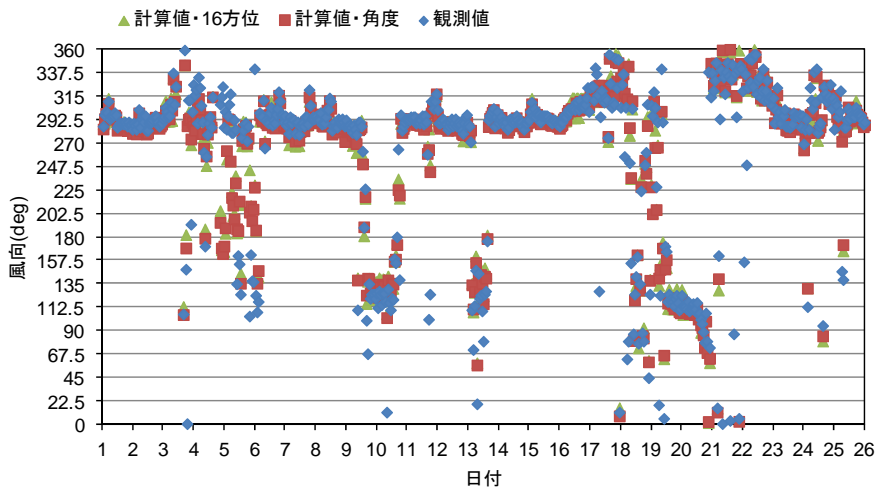


(b) 風速

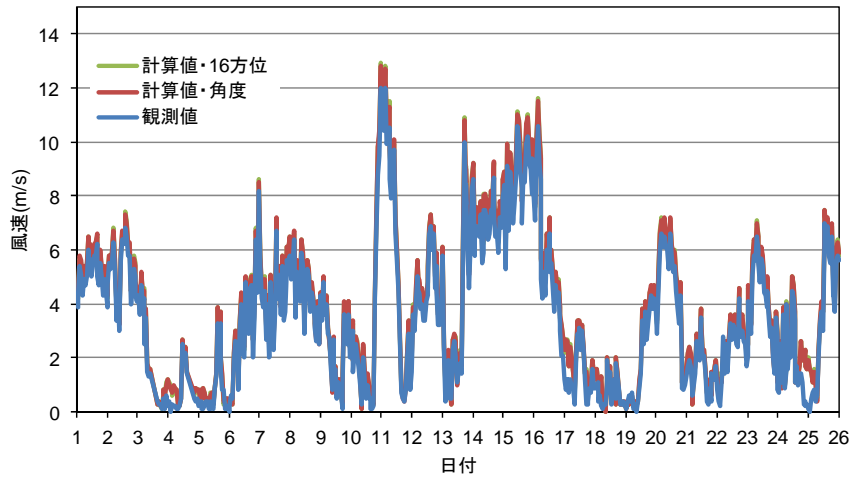


(c) 観測値との角度差

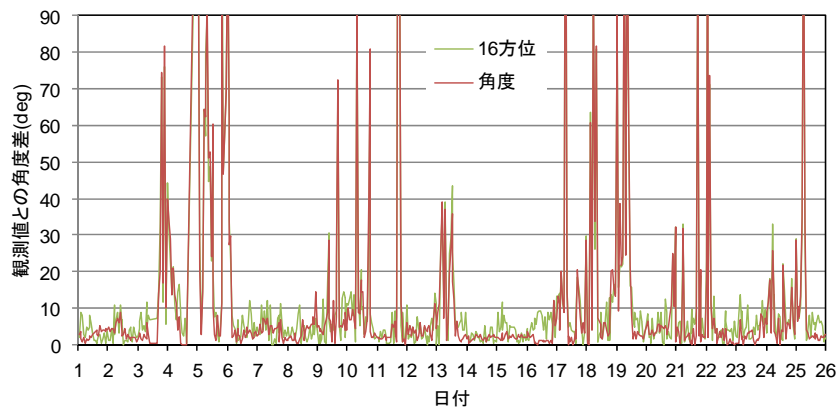
図 5-6 二又局観測値との比較(1時間ごと、10/1 1:00~10/31 23:00)



(a) 風向



(b) 風速



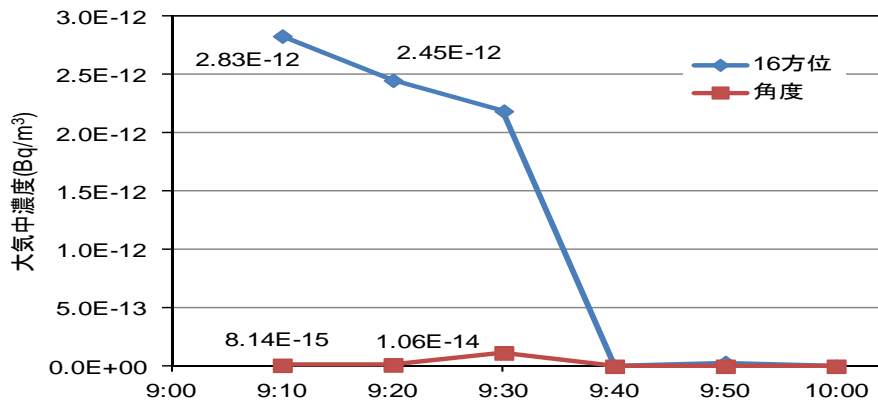
(c) 観測値との角度差

図 5-7 二又局観測値との比較(1 時間ごと、12/1 1:00~12/26 0:00)

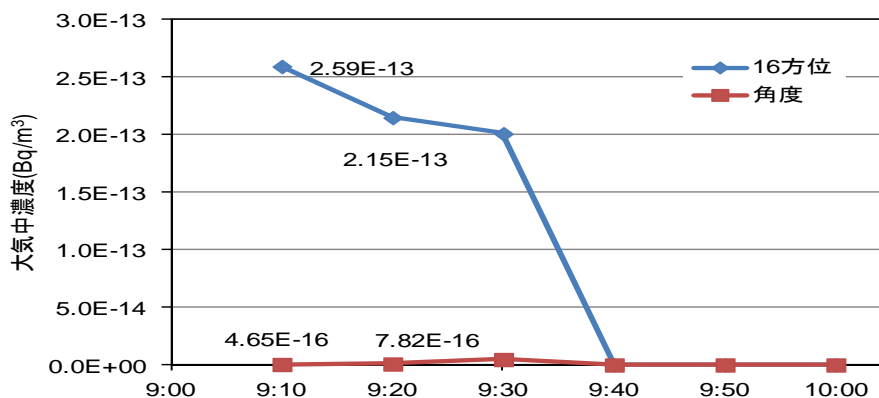
3.3 大気中濃度分布の比較

再処理工場からの単位放出を仮定し 2013/8/12 9:00～10:00 における大気中濃度分布のシミュレーション計算を実施した。環境研及びモニタリングステーション尾駸局における大気中濃度の経時変化を図 6 に示す。16 方位風向データを用いた計算結果では、両地点とも 9:10～9:30 の間に濃度が上昇しているが、角度風向データを用いた計算結果では大気中濃度はほとんど変化しないという結果となった。9:10 における濃度分布を図 7 に示す。(a)の 16 方位風向データを用いた計算結果では、パフは西風に従って真東に移流し、環境研やモニタリングステーション尾駸局を通過するが、(b)の角度風向データを用いた計算結果では、パフが東南東に移流するため、これらの地点を通過しないことが見て取れる。

このように、これまでの 16 方位風向データを用いた場合には、拡散軸のずれに起因して、特に濃度分布の変化が大きい地点での計算結果に大きな違いが現れるおそれがある。これまでに行った大気中クリプトン-85 濃度の測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果との比較検討においても、拡散軸のずれに起因すると考えられる計算結果と測定値との不一致が認められているため、角度風向データを用いることにより拡散軸のずれが解消され、モニタリング地点における計算結果と測定値との一致度が向上することが期待できる。

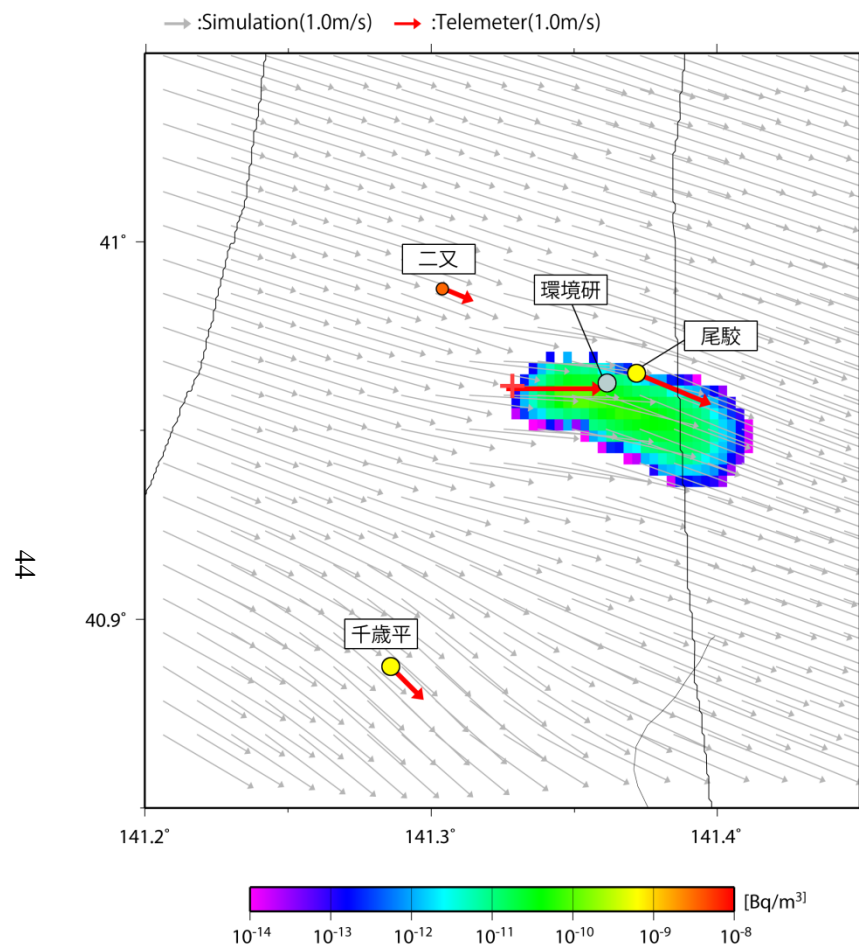


(a) 環境研

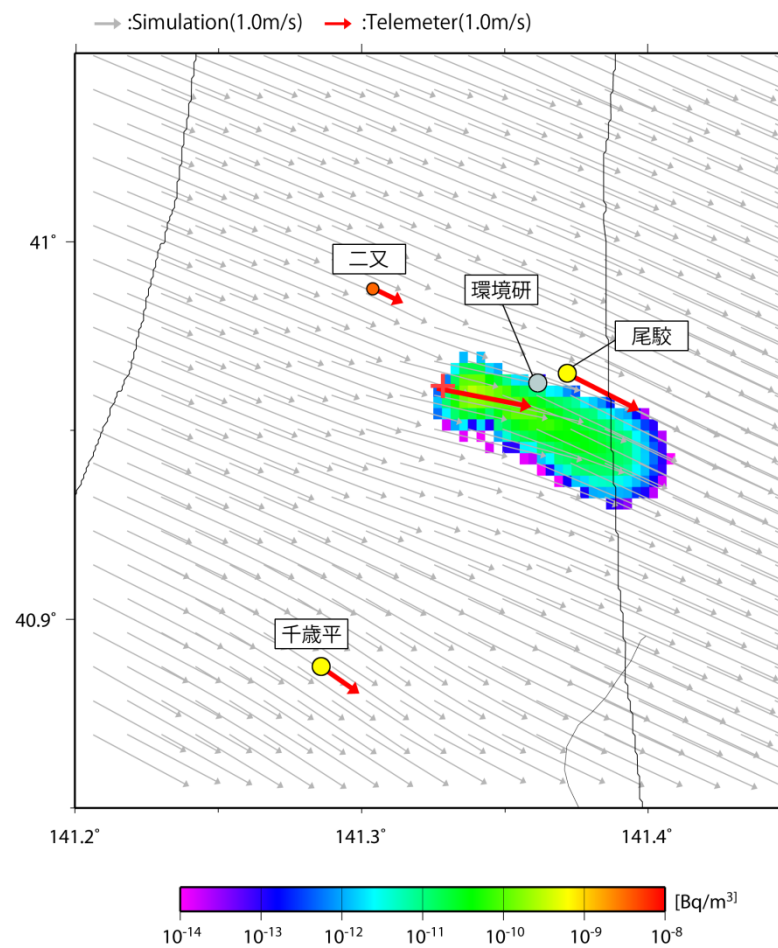


(b) モニタリングステーション尾駸局

図 6 観測地点における大気中濃度の経時変化 (2013/8/12 9:10～10:00、高度 150m)



(a) 16 方位風向データ



(b) 実角度風向データ

図7 16 方位風向データと角度風向データによる濃度分布の比較(2013/8/12 9:10、高度 150m)

4. まとめ

- 1) 風向を 16 方位とした場合と角度とした場合で風速場のシミュレーションを行い、観測値と比較したところ、角度風向データの取込みによって、風速場計算の精度が向上することが確認できた。
- 2) また、再処理工場からの単位放出を仮定して大気中濃度分布を計算し比較したところ、角度風向データを用いることにより、拡散軸のずれが解消され、計算値と測定値との一致度の向上が期待できる結果が得られた。

謝 辞

シミュレーションシステムによる計算及び計算結果との比較・検討に用いた気象データの提供について、(公財)環境科学技術研究所及び日本原燃(株)に多大な御協力をいただいたことに深く感謝いたします。

文 献

- 1) 武藤逸紀、高橋秀昭、三浦誓也、安田浩、木村秀樹、佐々木耕一、外川洋一、松村浩治、今井慎一、根本誠：六ヶ所再処理工場周辺地域におけるクリプトン-85 の拡散・分布状況，青森県原子力センター所報 第4号，11-21(2009)
- 2) 武藤逸紀、安田浩、竹ヶ原仁、松村浩治、今井慎一、根本誠、城戸寛子：環境放射能拡散シミュレーションシステム，青森県原子力センター所報 第5号，3-21(2010)
- 3) 公害研究対策センター：「窒素酸化物総量規制マニュアル 増補改訂版 環境庁大気保全局大気規制課編」(1995)

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 —平成 24 年度調査結果—

坂 恭平 五十嵐 健 二瓶祐介^{*1} 工藤俊明^{*2}
幸 進^{*3} 岡 光昭^{*3} 岡村泰治^{*3}

1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成 18 年 3 月 31 日からアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が行なわれており、クリプトン-85(⁸⁵Kr)、トリチウム(³H)、炭素-14(¹⁴C)及びヨウ素-129(¹²⁹I)などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成 18 年 2 月 7 日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成 19 年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 について調査を開始した。平成 20 年度からはヨウ素-131(¹³¹I)を追加し、平成 21 年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）を追加し実施している。

本報告は平成 24 年度の調査結果についてとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

対象試料及び調査地点は、現在実施している青森県の原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング基本計画¹⁾における農畜産物及び海産生物の中から選定し、表 1 のとおりとした。これらの調査地点を図 1 に示す。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

文部科学省放射能測定法シリーズ「トリチウム分析法」²⁾に準拠し、液体シンチレーション計測法を用いた。

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを組織自由水トリチウム（TFWT）濃度とした。乾燥物については、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを有機結合型トリチウム（OBT）濃度とした。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBTのみ測定した。

OBT は非交換型 OBT と交換型 OBT に分類されるが、これらの OBT は、生物体内での挙動が異なることや、交換型 OBT が分析室内空気中のトリチウムや試料中 TFWT の影響を受ける可能性があることから、近年においては試料を凍結乾燥後に無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去し、非交換型 OBT のみ分析することを推奨する研究³⁾もある。本調査においては、平成 21 年度から、魚類については非交換型 OBT の分析も行った。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。

*1：現三八地域県民局地域連携部八戸環境管理事務所

*2：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*3：日本原燃株式会社

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 24 年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種				
			³ H			¹⁴ C	¹²⁹ I・ ¹³¹ I
			TFWT	OBT	非交換型 OBT		
牛乳（原乳）	富ノ沢	1※ ¹	○	○	—	○	—
	横浜町	4	○	○	—	○	—
	二又	4	○	○	—	○	—
	豊原	4	○	○	—	○	—
精米	尾駸②	—	—	○	—	○	—
	千樽	—	—	○	—	○	—
	野辺地町	—	—	○	—	○	—
	二又①	—	—	○	—	○	—
	二又②	—	—	○	—	○	—
	戸鎖	—	—	○	—	○	—
	平沼	—	—	○	—	○	—
ハクサイ	出戸	1	○	○	—	○	○
	千樽	—	○	○	—	○	○
キャベツ	横浜町	—	○	○	—	○	○
ダイコン	出戸	—	○	○	—	○	—
バレイショ	尾駸	—	○	○	—	○	—
ナガイモ	東北町	—	○	○	—	○	—
	平沼	—	○	○	—	○	—
魚類※ ²	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②	4	○	○	○	—	—
海藻類(コンブ)	六ヶ所村前面海域①	2	—	—	—	—	○

※¹ 富ノ沢地区の牛乳（原乳）については、酪農家が乳牛の飼育をやめたため、第 1 四半期で調査を終了した。

※² 魚類はヒラメ及びカレイ。

TFWT：組織自由水トリチウム OBT：有機結合型トリチウム（交換型 OBT を除去しない OBT）

非交換型 OBT：有機結合型トリチウム（交換型 OBT を除去した OBT）



図 1 調査地点図

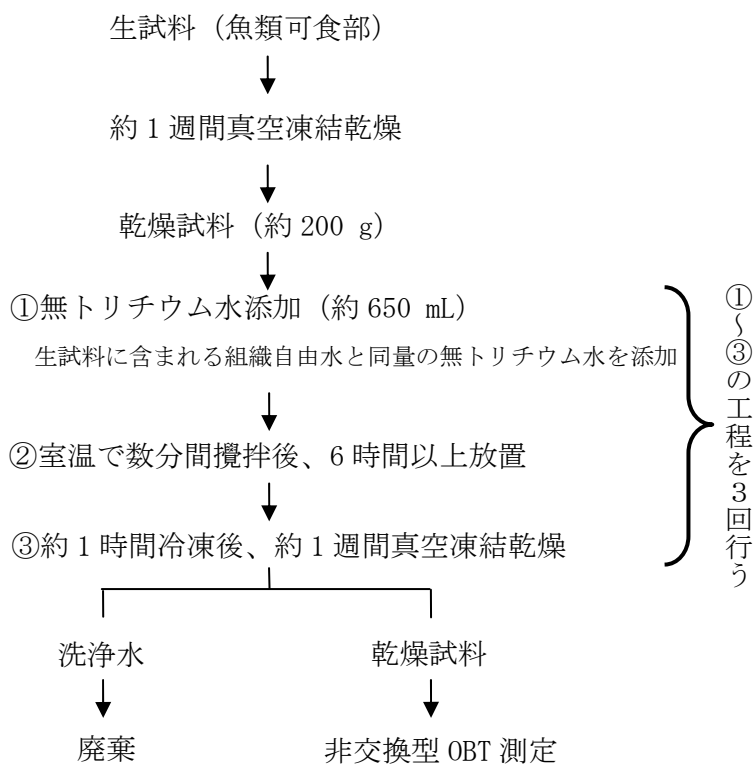


図 2 非交換型 OBT の分析工程

牛乳の採取地点においては、乳牛の飲料水についても調査を行った。飲料水の水源として、富ノ沢においては富ノ沢及び二又の地下水を混合し富ノ沢浄水場から配水される水道水、横浜町においては明神平の地下水をその場で滅菌・消毒して配水される水道水、二又においては酪農家が管理する井戸水、豊原においては千歳平の地下水及び富ノ沢浄水場の水を混合し千歳平浄水場から配水される水道水を使用していた。

(2) 炭素-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」⁴⁾に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

試料を真空凍結乾燥後、高圧酸素下で燃焼し、生成した二酸化炭素から触媒によりベンゼンを合成した。これを液体シンチレーション計測法により測定し、炭素-14比放射能を定量した。

また、乾燥試料の燃焼による二酸化炭素量の測定によって、試料中の全炭素量を測定した。これらによって求めた炭素-14比放射能と全炭素量から、試料中の炭素-14濃度を算出した。

(3) ヨウ素-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素からヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置(AMS)を用いてヨウ素-129(¹²⁹I)とヨウ素-127(¹²⁷I)の原子数比を測定した。また、乾燥試料を次亜塩素酸ナトリウム溶液で分解し、ICP質量分析法によって安定ヨウ素(¹²⁷I)を定量した。これらによって求めた¹²⁹I/¹²⁷I原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中のヨウ素-129濃度を求めた⁵⁾。

(4) ヨウ素-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁶⁾に準拠し、生試料又は乾燥試料をGe半導体検出器により測定した。

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成18年4月から平成25年3月にかけて放出された放射性気体廃棄物(トリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131)の月間放出量を図3に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図4に示す。平成18年から実施された使用済燃料を用いたアクティブ試験については、試験で予定されていた使用済燃料のせん断・溶解処理が平成20年10月で終了しているため、それ以降の放出量は大きく減少している。平成24年度については、気体廃棄物中の炭素-14(平成24年12月から平成25年1月)及びヨウ素-131(平成24年9月から10月)にガラス固化試験等の影響が見られているが、全般的に平成20年10月以前より低いレベルであった。

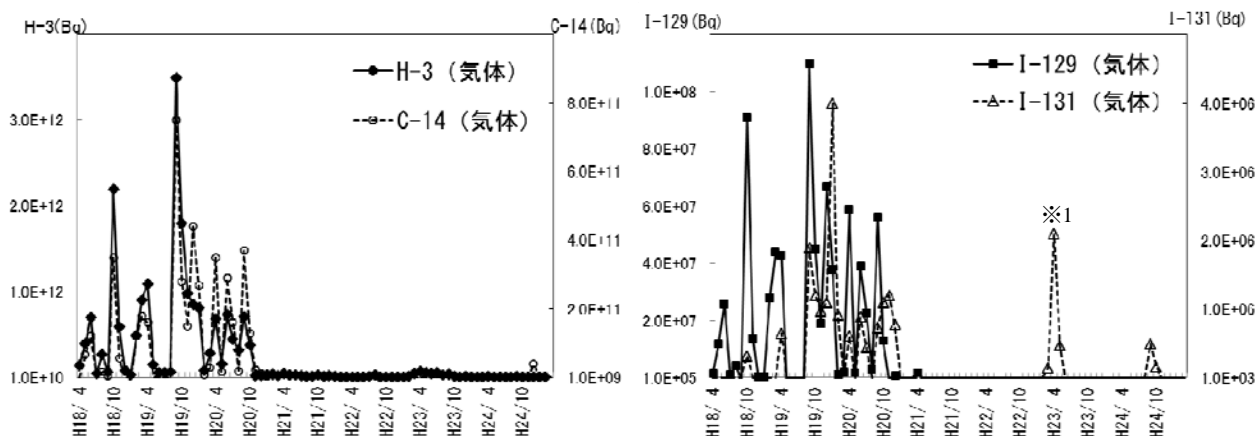


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成25年3月)

※1 平成23年3月から5月にヨウ素-131の放出量が高めとなっているのは、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故の影響と考えられる。詳細については青森県原子力センター所報第7号(p25)に記載。

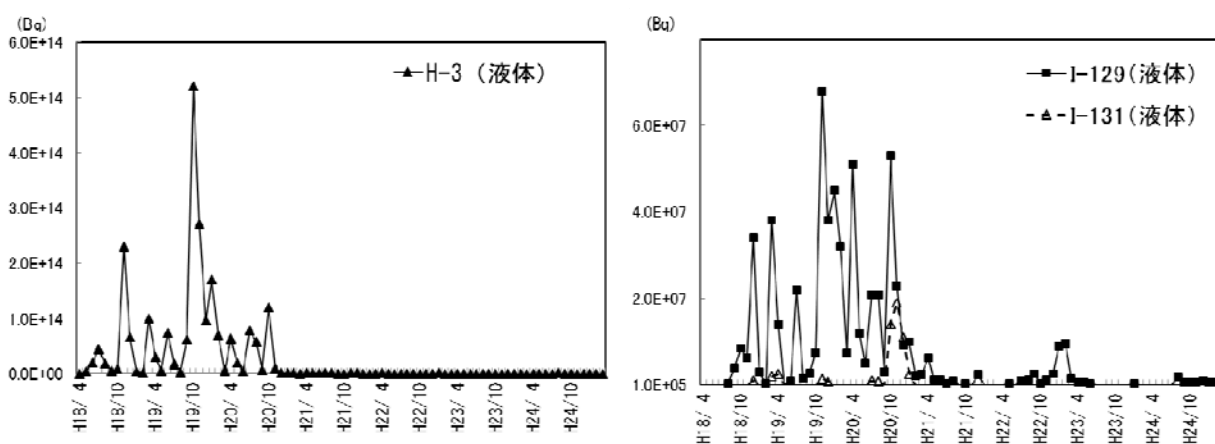


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成25年3月)

4. 調査結果

4.1 トリチウム

牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表2及び図5に示す。牛乳についてはTFWTで検出限界以下～0.64 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.63 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～1.0 Bq/Lであり、牛乳及び飲料水ともにこれまでの値と同程度であった。地点ごとにみると、TFWT、OBTともに富ノ沢及び豊原が他の地点に比べて比較的高めになっていた。それぞれの地点の乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度を見ると同様の傾向がみられていることから、牛乳中のトリチウム濃度は乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度を反映していると考えられる。

表2 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（平成24年度）

採取地点	採取月	平成24年度調査結果			(参考)		
		牛乳（原乳）			平成19～23年度調査結果		
		TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	飲料水 (Bq/L)	牛乳（原乳）	飲料水 (Bq/L)	調査結果
			TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	飲料水 (Bq/L)		
富ノ沢	4月	0.59±0.15	0.63±0.15	1.0±0.10	*~1.2	*~0.78	*~0.73
	4月	0.51±0.15	*	0.48±0.09			
横浜町	7月	*	0.46±0.15	*	*~0.50	*~0.70	*~0.32
	10月	*	0.38±0.12	*			
	1月	*	*	*			
二又	4月	0.31±0.10	*	*			
	7月	*	*	*	*~0.42	*~0.63	*~0.25
	10月	*	*	*			
	1月	*	*	*			
豊原	4月	0.64±0.10	*	0.44±0.07			
	7月	0.48±0.10	0.37±0.11	*	*~0.73	*~0.77	*~0.57
	10月	0.41±0.10	*	0.32±0.06			
	1月	*	0.55±0.12	0.20±0.06			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.31~0.50 Bq/L、OBTで0.31~0.51 Bq/L、飲料水で0.18~0.30 Bq/Lであった。

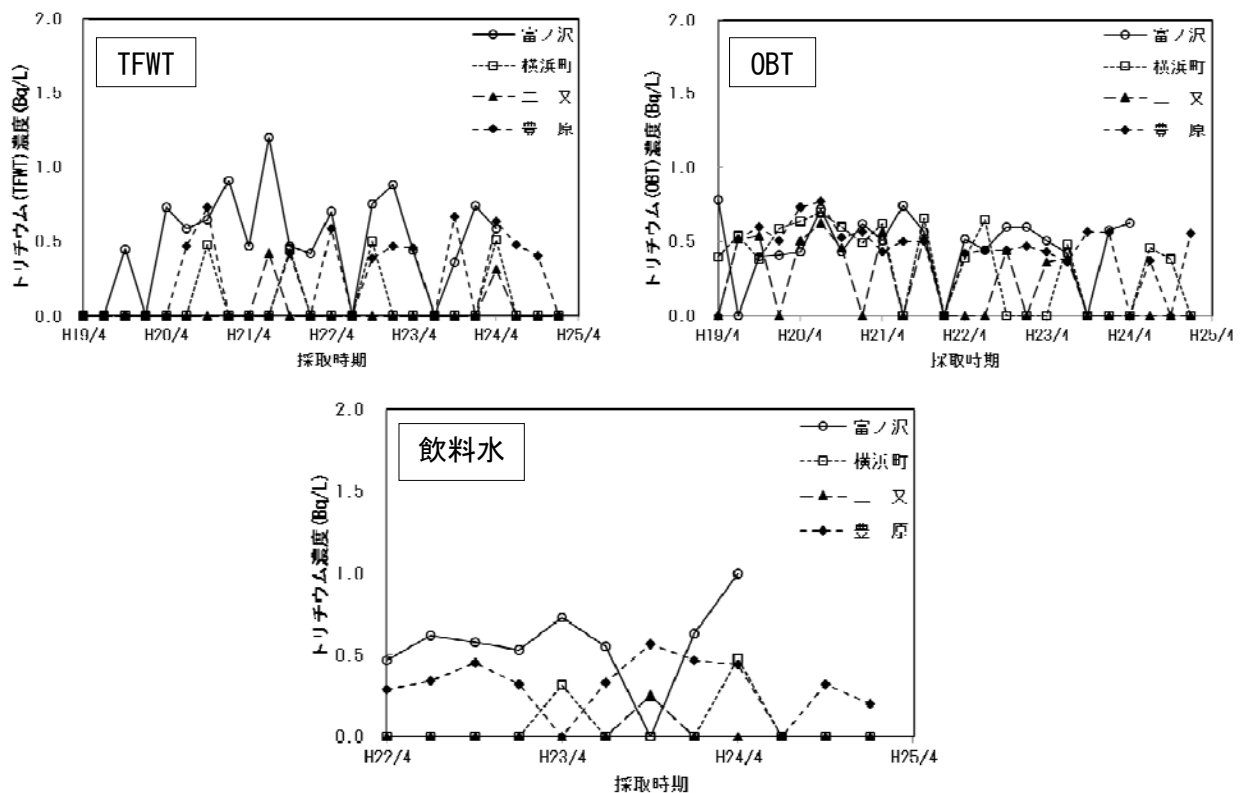


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化
※検出限界以下は0としてプロットした。

精米におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表3及び図6に示す。精米についてはOBTで検出限界以下～0.53 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点が多い。

野菜におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表4及び図7に示す。野菜についてはTFWTで検出限界以下～0.65 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.64 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点もあるが、全体的な傾向としては明確でない。

陸上試料である牛乳(原乳)、精米及び野菜のトリチウム濃度は、近年の大気及び雨水中トリチウム濃度^{※1}と同程度であった。

※1 青森県実施の環境放射線モニタリング(平成20～23年度)における大気及び雨水のトリチウム濃度は以下のとおり。
 大気：検出限界(0.27～0.36 Bq/L)以下～1.0 Bq/L
 雨水：検出限界(0.26～0.36 Bq/L)以下～0.90 Bq/L

表3 精米のトリチウム(OBT)濃度(平成24年度)

試料名	採取地点	採取月	平成24年度調査結果	(参考)平成19～23年度調査結果
			OBT (Bq/L)	OBT (Bq/L)
精米	尾駸 ^① ^{※1}	-	-	0.80
	尾駸 ^②	9月	0.53±0.15	*～0.76
	千樽	10月	0.50±0.15	*～0.89
	野辺地町	10月	0.35±0.11	*～0.59
	二又 ^① ^{※2}	10月	*	*～0.35
	二又 ^②	10月	*	*～1.0
	戸鎖	10月	*	*～0.66
	平沼 ^{※2}	9月	*	*～0.44

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、0.31～0.50 Bq/Lであった。

※1 平成19年度で調査終了 ※2 平成20年度から調査開始

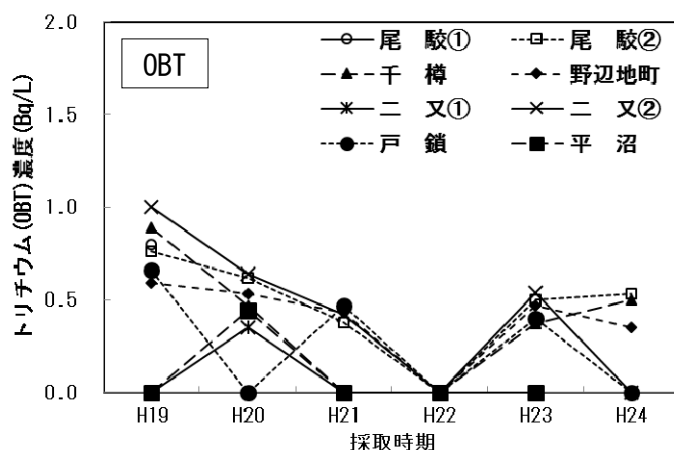


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

表4 野菜のトリチウム (TFWT、OBT) 濃度 (平成24年度)

試料名	採取地点	採取月	平成24年度調査結果		(参考) 平成19~23年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)
ハクサイ	出戸	11月	0.44±0.11	0.64±0.11	*~0.69	*~0.80
	千樽	10月	*	0.53±0.10	*~0.89	*~0.68
キャベツ	横浜町	11月	0.48±0.11	0.60±0.11	*~0.94	0.48~1.2
ダイコン	出戸	11月	*	0.40±0.12	*~0.58	0.37~0.68
パレイショ	尾駸	8月	0.65±0.11	0.59±0.15	0.42~0.86	*~0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	0.59±0.11	*~0.67	*~0.62
	平沼	11月	0.54±0.10	*	0.41~0.89	0.32~0.79

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.32~0.45 Bq/L、OBTで0.31~0.45 Bq/Lであった。

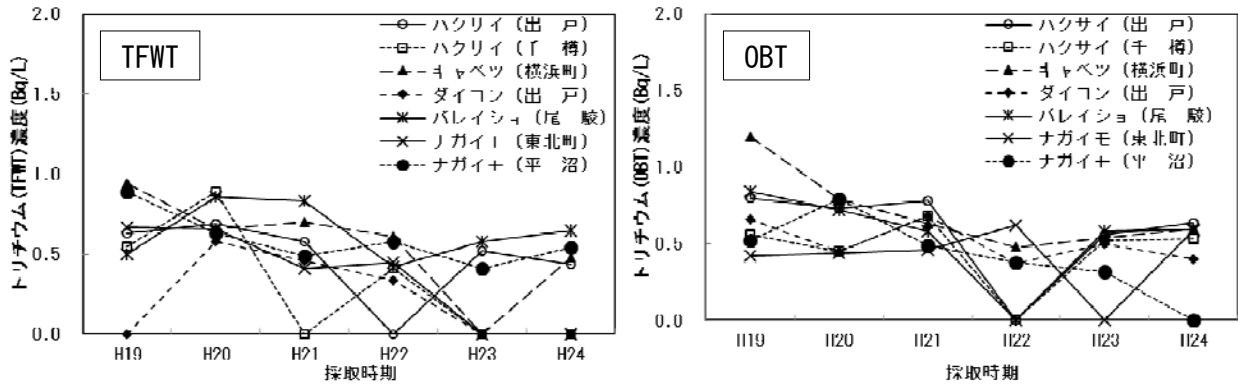


図7 野菜におけるトリチウム濃度 (TFWT、OBT) の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

海洋試料である魚類の測定結果を表5及び図8に示す。TFWTはすべて検出限界以下、OBTは5月採取分で0.33 Bq/Lとなった他は検出限界以下であり、平成19及び20年度と比べ低い値であった。平成21年度から調査を開始した非交換型OBTについては、すべて検出限界以下であった。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1~0.2 Bq/L程度と報告されている⁷⁾。

表5 魚類のトリチウム (TFWT、OBT) 濃度 (平成24年度)

試料名	採取地点	採取月	平成24年度調査結果			(参考) 平成19~23年度調査結果		
			TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)
魚類 ^{※1}	六ヶ所村 前面海域①	6月	*	*	*			
		8月	*	*	*			
		11月	*	*	*	*~3.3	*~1.4	*
		12月	*	*	*			
魚類 ^{※1}	六ヶ所村 前面海域②	5月	*	0.33±0.10	*			
		9月	*	*	*			
		10月	*	*	*	*	*~0.77	*
		1月	*	*	*			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.27~0.46 Bq/L、OBTで0.30~0.45 Bq/L、非交換型OBTで0.30~0.45 Bq/Lであった。

※1 魚類はヒラメ及びカレイ

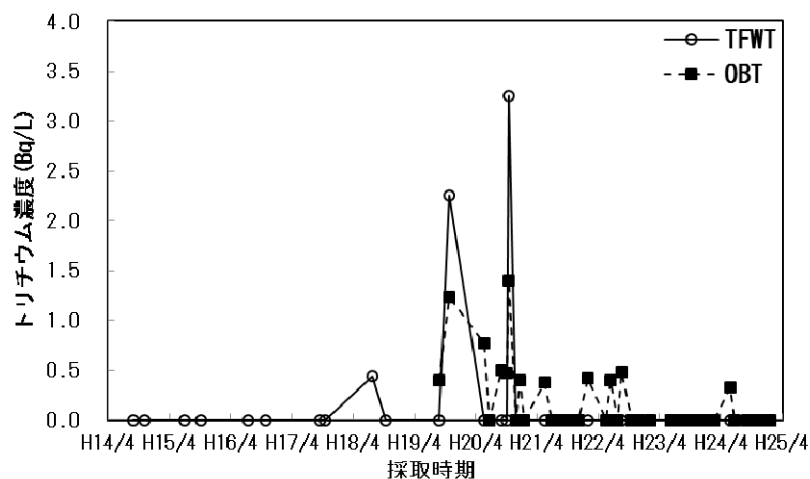


図8 魚類におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

※1 検出限界以下は0としてプロットした。

※2 平成18年度以前は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

4.2 炭素-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物の炭素-14比放射能の測定結果は表6に示すとおり、精米が0.229~0.244 Bq/g炭素、葉菜が0.230~0.240 Bq/g炭素、根菜・いも類が0.225~0.239 Bq/g炭素であった。

図9に環境放射線モニタリングで測定しているこれらの試料の炭素-14比放射能の推移を示す。炭素-14のモニタリングを開始した平成7年度から平成18年度まで炭素-14比放射能には減少傾向が認められている。大気圏内核実験によって増加した炭素-14は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。アクティブ試験の影響が認められなかった平成7年度から平成18年度までに県のモニタリングで得られた炭素-14比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値0.228 Bq/g炭素⁸⁾を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源の炭素-14の半減時間を求めると9.5年となり、これは府馬ら⁹⁾による核実験起源の炭素-14の1963年から1976年までの半減時間9.0年、1984年から2000年までの半減時間10.3年とほぼ一致した。

また、平成7年度から平成18年度まで年度ごとに測定値の変動係数を算出し、その平均値を求めた。先に得られた減衰式と変動係数から平成7年度から平成18年度までの各年度における比放射能の推定値と変動幅(3σ)を求め、これらを用い施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推移を推定し、図に示した。平成24年度の測定値には、すべての試料において平成19及び20年度のような高い値がみられず、施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推定値±3σの範囲内であった。

表6 農産物の炭素-14 比放射能（平成24年度）

試料名	採取地点	採取月	H24年度調査結果	(参考) H19~23年度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
精米	尾駁① ^{*1}	-	-	0.240
	尾駁②	9月	0.229±0.003	0.236~0.258
	千樽	10月	0.238±0.003	0.233~0.248
	野辺地町	10月	0.239±0.003	0.229~0.249
	二又① ^{*2}	10月	0.235±0.003	0.231~0.241
	二又②	10月	0.235±0.003	0.235~0.251
	戸鎮	10月	0.233±0.003	0.237~0.255
	平沼 ^{*2}	9月	0.244±0.003	0.228~0.239
ハクサイ	出戸	11月	0.240±0.003	0.230~0.245
	千樽	10月	0.230±0.003	0.236~0.260
キャベツ	横浜町	11月	0.236±0.003	0.227~0.267
ダイコン	出戸	11月	0.239±0.003	0.228~0.238
パレイショ	尾駁	8月	0.225±0.003	0.234~0.244
ナガイモ	東北町	11月	0.236±0.003	0.229~0.243
	平沼	11月	0.231±0.003	0.230~0.258

※1 平成19年度で調査終了 ※2 平成20年度から調査開始

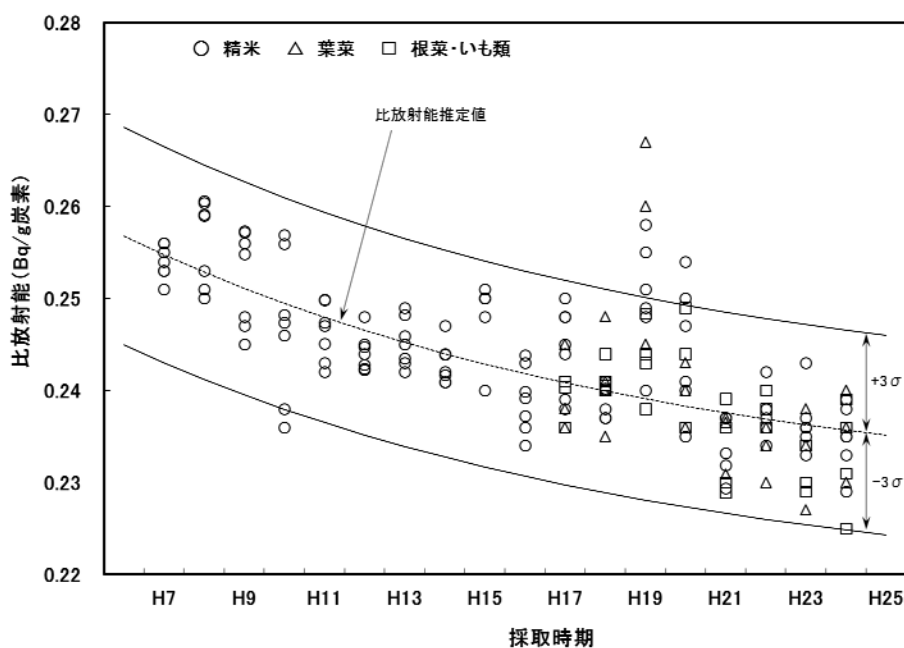


図9 農産物における炭素-14 比放射能の経年変化

炭素-14 比放射能推定値及び変動幅の算出方法

・比放射能推定値 = $F_c + 0.228$ (自然平衡レベル) (Bq/g 炭素)

F_c : フォールアウト寄与分の比放射能計算値 (Bq/g 炭素)。平成6年度からの経過年数 t との関係は次式のとおりとし、平成7~18年度の測定値から自然平衡レベルを差し引いた値を用いて回帰分析を行い、定数 A 及び λ を求めた。

$$F_c = A \cdot \exp(-\lambda t)$$

A : 平成6年度におけるフォールアウト寄与分の比放射能計算値 (Bq/g 炭素) 0.0288

λ : フォールアウト起源の炭素-14の環境における減衰定数 (年) $\lambda = \ln 2/T$

T : フォールアウト起源の炭素-14の環境における半減期計算値 (年) 9.45

t : 平成6年度からの経過年数 (年)

・変動幅 (3σ) = 比放射能推定値・変動係数・3

変動係数 : 平成7~18年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

牛乳の炭素-14 比放射能の測定結果は表 7 に示すとおり、0.231~0.246 Bq/g 炭素であった。図 10 には牛乳の炭素-14 比放射能の推移を示す。牛乳はアクティブ試験前の測定結果がないため、参考として農産物の値から求めた比放射能の推定値と変動幅も併せて記載した。牛乳においても、図 9 に示す農産物と同様に平成 19 及び 20 年度は高い値がみられている。平成 24 年度の測定値は、平成 23 年度と比較してやや高めであったが、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。

表 7 牛乳の炭素-14 比放射能 (平成 24 年度)

試料名	採取地点	採取月	H24 年度調査結果	(参考) H19~23 年度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	富ノ沢	4 月	0.241 \pm 0.003	0.229~0.256
		4 月	0.244 \pm 0.003	
	横浜町	7 月	0.240 \pm 0.003	0.232~0.245
		10 月	0.246 \pm 0.003	
		1 月	0.241 \pm 0.003	
	二又	4 月	0.241 \pm 0.003	0.235~0.262
		7 月	0.233 \pm 0.003	
		10 月	0.244 \pm 0.003	
		1 月	0.235 \pm 0.003	
	豊原	4 月	0.238 \pm 0.003	0.232~0.266
		7 月	0.239 \pm 0.003	
		10 月	0.236 \pm 0.003	
1 月		0.231 \pm 0.003		

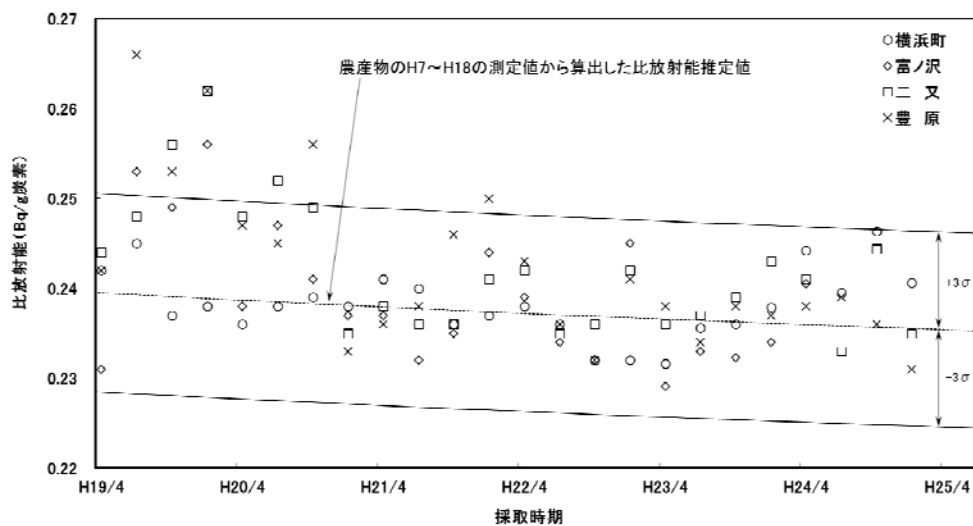


図 10 牛乳における炭素-14 比放射能の経年変化

4.3 ヨウ素-129 及びヨウ素-131

環境試料中のヨウ素-129 濃度及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比を表 8 に、その経年変化を図 11 に示す。ヨウ素-129 濃度については、葉菜類で $7.1 \times 10^{-7} \sim 1.2 \times 10^{-6}$ Bq/kg 生、海藻類で 2.5×10^{-4} 及び 9.8×10^{-5} Bq/kg 生であった。海藻類は葉菜類に比べて安定ヨウ素濃度が高く、このためヨウ素-129 濃度についても海藻類の方が高くなっているものと考えられる。一方、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は葉菜類で $9.9 \times 10^{-9} \sim 7.3 \times 10^{-8}$ 、海藻類で 6.6×10^{-11} 及び 4.6×10^{-11} であった。過去の大気圏内核実験や再処理施設等の影響により、環境中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$ 程度と報告されている¹⁰⁾。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、これらと同程度であり、また、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに低めであった。

ヨウ素-131 は、すべての試料において検出限界以下であった。

表 8 環境試料中のヨウ素-129 濃度及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比 (平成 24 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 24 年度調査結果		(参考) 平成 19~23 年度調査結果	
			ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比	ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比
ハクサイ	出戸	11月	$7.1 \times 10^{-7} \pm 0.6 \times 10^{-7}$	9.9×10^{-9}	$1.9 \times 10^{-7} \sim 1.7 \times 10^{-5}$	$4.9 \times 10^{-9} \sim 4.9 \times 10^{-7}$
	千樽	10月	$8.3 \times 10^{-7} \pm 0.7 \times 10^{-7}$	2.5×10^{-8}	$8.6 \times 10^{-7} \sim 1.6 \times 10^{-5}$	$2.4 \times 10^{-8} \sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	11月	$1.2 \times 10^{-6} \pm 0.1 \times 10^{-6}$	7.3×10^{-8}	$1.8 \times 10^{-7} \sim 1.2 \times 10^{-5}$	$4.2 \times 10^{-9} \sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域 ①	8月	$2.5 \times 10^{-4} \pm 0.6 \times 10^{-5}$	6.6×10^{-11}	$8.5 \times 10^{-5} \sim 2.8 \times 10^{-3}$	$6.3 \times 10^{-11} \sim 9.1 \times 10^{-10}$
		10月	$9.8 \times 10^{-5} \pm 0.3 \times 10^{-5}$	4.6×10^{-11}		

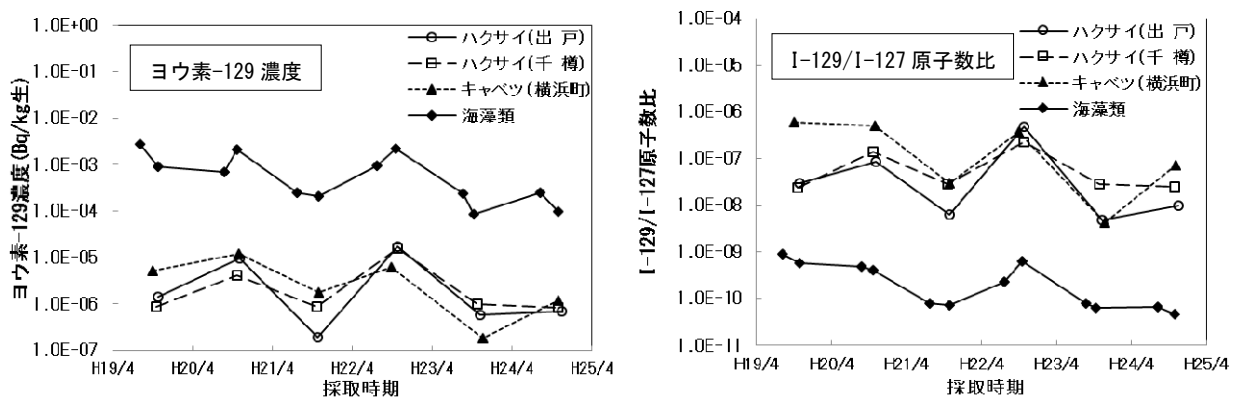


図 1 1 ヨウ素-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

平成 24 年度の調査において、トリチウムは、陸上試料については近年の大気及び雨水中トリチウム濃度と同程度であり、平成 19 及び 20 年度より低めであるが、明確ではない地点もあった。また、海洋試料である魚類については、平成 19 及び 20 年度と比べ明らかに低くなっており、ほとんどが検出限界以下であった。平成 21 年度から調査を開始した魚類の非交換型 OBT については、すべて検出限界以下であった。炭素-14 比放射能は、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。ヨウ素-129 は、葉菜類、海藻類ともに $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比が大気圏内核実験後のバックグラウンドレベルと同程度であり、平成 19 及び 20 年度と比較して低い値であった。ヨウ素-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

文 献

- 1) 青森県：環境放射線モニタリング（平成 21 年 4 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（平成 14 年）
- 3) F. Pointurier, N. Baglan, G. Alanic and R. Chiappini : Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France, *Journal of Environmental Radioactivity*, **68**, 171-189(2003)
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（平成 5 年）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法（平成 16 年）
- 6) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 4 放射性ヨウ素分析法（平成 8 年改訂）
- 7) 中野政尚、國分祐司、武石稔：東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの海水中濃度及び拡散状況、*保健物理*, **44**(1), 60~65(2009)
- 8) Y. Inoue and T. Iwakura : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiocarbon Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 9) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、檜田義彦、一政祐輔：1990 年代の日本における ^{14}C の環境バックグラウンドレベル, *RADIOSOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 10) Xiaolin. Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)

青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 — 中間報告（中南地域及び西北地域） —

松山 大 赤石 新 五十嵐 健
鈴木将文 大久保英樹 木村秀樹

1. はじめに

本県では原子力施設周辺の住民等の健康と安全を守るため、原子力施設周辺地域において、空間放射線量率や環境試料中放射能濃度の調査といった環境放射線モニタリングを行っている。

これら原子力施設周辺地域の調査結果に加え、モニタリング対象外地域の環境放射線に係るデータを蓄積し、本県における環境放射線の水準を把握することは、モニタリング結果を解釈する上での参考となるほか、原子力災害発生時に環境へ放出された放射性物質による影響評価に資することができる。

本県では、平成25年度から3か年にわたり、モニタリング地域を含む青森県全域において空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定し、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握することとした。本報は、中間報告として中南地域及び西北地域において実施した調査の結果をとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 調査地域

県内全市町村のうち、平成25年度は表1のとおり中南地域及び西北地域の14市町村を対象とした。

2.2 調査内容

(1) NaI シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定

空間放射線量率の水準を把握するため、エネルギー補償型 NaI シンチレーションサーベイメータ（日立アロカメディカル(株)製 TCS-171B）（以下「NaI サーベイメータ」という。）により、地上高1mにおける空間放射線量率（nGy/h）を10秒間隔で5回測定し平均した。測定地点は表1の各市町村から1地点ずつ選定した。

(2) 可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定

人工放射性核種の地表への沈着量と空間 γ 線の構成成分を把握するため、可搬型ゲルマ

表1 調査地域及び対象市町村

地域区分	対象市町村
中南地域	弘前市、黒石市、平川市、西目屋村、藤崎町、大鰐町、田舎館村
西北地域	五所川原市、つがる市、鱒ヶ沢町、深浦町、板柳町、鶴田町、中泊町

ニウム (Ge) 半導体検出器 (キャンベラジャパン(株)製 Falcon5000) により、地上高 1 m で 60 分測定した。測定は(1)と同地点で実施した。測定結果は、文部科学省の放射能測定法シリーズ¹⁾に則り、Beck らが開発した HASL の解析法により以下に示す仮定の下で解析した。

- ①周囲の地形は無限に開かれた平らな地形 (無限平面) であること。
- ②天然放射性核種は土壌中で均一分布、人工放射性核種は鉛直方向に指数関数分布であること。今回は土壌中鉛直分布を表すパラメータ β を過去の大気圏内核実験に起因する Cs-137 を考慮し、「発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について」原子力安全委員会 (平成 13 年) に示されている浸透係数 $\alpha = 0.33 \text{ cm}^{-1}$ と土壌密度 $\rho = 1.6 \text{ g/cm}^3$ を用いて 4.85 g/cm^2 ($\beta = \rho / \alpha$) とした。

(3) 土壌中放射性物質濃度の測定

人工放射性核種の土壌中濃度及び深度分布を把握するため、空間放射線量率の測定時に土壌を採取し、放射能濃度の測定を実施した。

○土壌中濃度

ステンレス製土壌採取器 (10 cm ϕ \times 5 cm) により、1 地点あたり 5 ポイント採取し、混合した。採取した土壌は 105°C で乾燥後に Ge 半導体検出器 (SEIKO EG&G(株)製 GMX25 及び GMX40) により γ 線放出核種測定 (測定時間 80,000 秒) を行うとともに、放射化学分析 (Sr-90、Pu) を実施した。試料採取は(1)と同地点で実施した。

○深度分布

スクレーパープレート (株塚原製作所製 150 \times 300 mm) を用い、地表から土壌を層別 (0-0.5、0.5-1.0、1.0-1.5、1.5-2.0、2.0-3.0、3.0-4.0、4.0-5.0、5.0-7.0、7.0-10.0 cm) に採取した。採取した土壌は 105°C で乾燥後に Ge 半導体検出器 (SEIKO EG&G(株)製 GMX25 及び GMX40) により γ 線放出核種測定 (測定時間 80,000 秒) を行った。試料採取は中南地域からは黒石市を、西北地域からは鱒ヶ沢町を選定し、それぞれ(1)と同地点で実施した。

(4) サーベイカーによる走行サーベイ

主要道路周辺における空間放射線量率の水準を把握するため、サーベイカーによる走行サーベイを行った。

- ・測定ルート：県内全市町村を通過するように、主要道路を中心にルートを設定した。
- ・測定方法：エネルギー補償型 2" ϕ \times 2" NaI(Tl) シンチレーション検出器 (G(E) 関数荷重演算方式) を搭載した車両により測定した。測定高さは 1.9 m である。スケータ方式により測定した線量率 (10 秒値) を概ね 500 m 毎に平均し、500 m 区間平均値を算出した。

2.3 調査地点等の選定

- (1) 空間放射線量率の測定、in-situ 測定及び土壌中放射性物質濃度の測定に係る調査地点
標準地域メッシュ (10 km \times 10 km) による地域バランス及び人口分布を考慮して、市町村ごとに調査地点該当メッシュを選定した (図 1)。

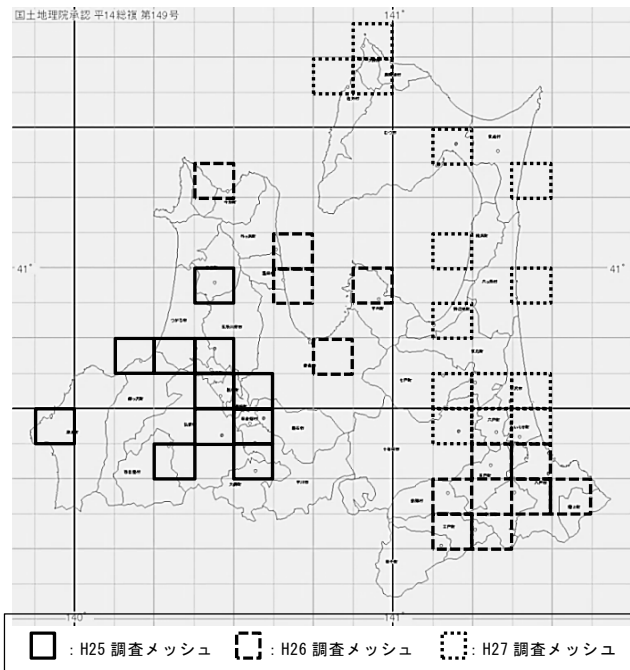


図1 調査地域メッシュ

各市町村における調査地点は原則として人口密集地から選定し、以下の点に留意した。

- ・表面流出などによる侵食及び崩壊がないこと。
- ・土地の改変など人為的攪乱がないこと。
- ・草地や裸地等で概ね 100 m²以上の広さがあること。
- ・民有地でないこと。
- ・当分の間、土地利用の変更等が予定されていないこと。

(2) 走行サーベイルート

走行サーベイルートは原則として各市町村の役場付近を通る道路（国道又は主要地方道）を選定し、以下の点に留意した。

- ・国道をすべて選定。なお、バイパスがある場合は旧道を選定。
- ・市町村に国道が通っていない場合は主要地方道を選定（西目屋村）。
- ・高規格幹線道路、地域高規格道路を除外。
- ・原子力施設周辺の環境放射線モニタリングで実施している走行サーベイルートを選定。
- ・原子力施設に係る UPZ 地域の主要地方道を選定。

青森県全域における走行サーベイルートの概要を図2に示す。また、平成25年度の走行サーベイルートは表2のとおりである。

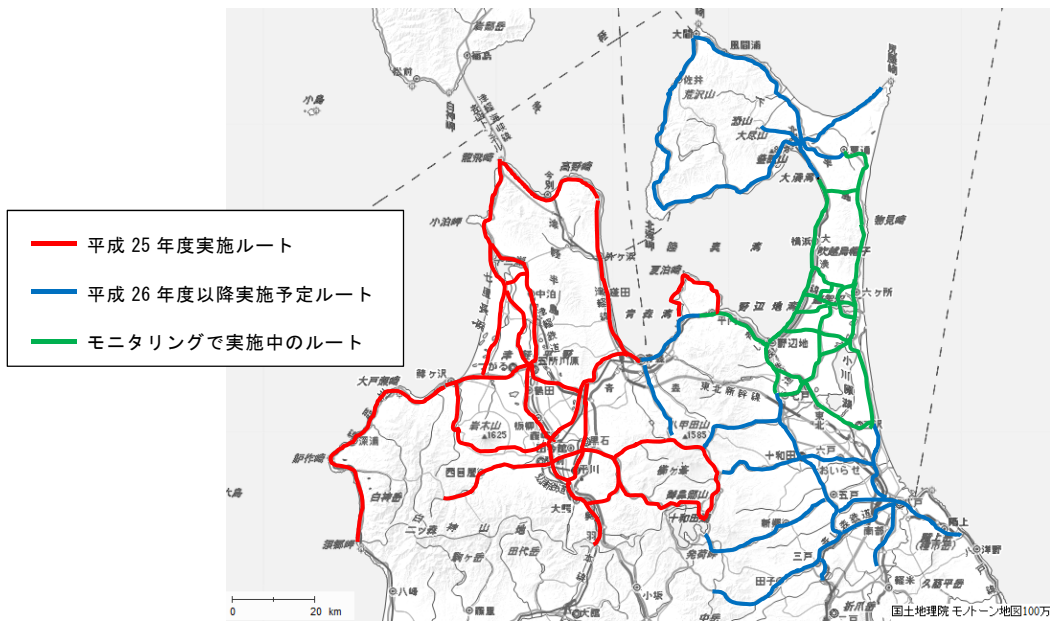


図 2 青森県全域における走行サーベイルート

表 2 平成 25 年度における走行サーベイルート

地域区分	走行サーベイルート
中南地域	国道 7 号 (碓ヶ関～藤崎～青森)
	国道 102 号 (弘前～黒石～焼山)
	国道 103 号 (焼山～城ヶ倉)
	国道 394 号 (城ヶ倉～南中野)
	国道 454 号 (虹の湖～長峰)
	県道 3 号 (鱒ヶ沢～弘前)
	県道 13 号 (大鰐～黒石～浪岡)
西北地域	県道 28 号 (弘前～暗門) ※未舗装の悪路となる山間部は除外
	国道 101 号 (大釈迦～鱒ヶ沢～大間越)
	国道 339 号 (竜飛～藤崎)
	県道 12 号 (市浦～森田)
	県道 43 号 (五所川原～車力)
	市道 189 号 (車力～中里)
その他地域	国道 7/280/339 号 (青森～竜飛)
	県道 9 号 (西平内～小湊)
	市道 285 号 (浪岡～大釈迦)

3. 結果と考察

(1) NaI サーベイメータによる空間放射線量率の測定

NaI サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果を表 3 に示す。測定値は 26～52 nGy/h であった。なお、今回使用した NaI サーベイメータの測定下限値は 10 nGy/h であったが、測定値は 5 回測定の平均であるため、1 nGy/h まで表示している。

(2) 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定

可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果を表 4 に示す。

天然放射性核種について、空間放射線量率に対する各系列の寄与率は全地点の平均でウラン系列が 25%、トリウム系列が 37%、K-40 が 36%であった。西目屋村（地点④）、板柳町（地点⑫）、鶴田町（地点⑬）の 3 地点では、ウラン系列の寄与率がそれぞれ 40%、38%、41%であり、他の地点と比較して高い割合となっていた。これら 3 地点については、in-situ 測定中に降雨があり、この影響でウラン系列の寄与が大きくなった可能性があるため、今後再測定を検討する。

人工放射性核種について、14 地点中 10 地点で Cs-137 が検出されたが、弘前市（地点①）、藤崎町（地点⑤）、鱒ヶ沢町（地点⑩）、鶴田町（地点⑬）の 4 地点では検出限界以下であった。

可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率と NaI サーベイメータによる空間放射線量率を比較したところ、図 3 に示すとおり正の相関が認められた。可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率に比して NaI サーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあるが、これは NaI サーベイメータによる測定値には宇宙線の寄与及び自己照射の影響があるためと考えられる。長岡ら²⁾によると、それぞれの寄与は 5 nGy/h 及び 1 nGy/h 程度であり、今回の測定結果から見積られる値はそれよりやや大きくなっていた。

なお、西目屋村（地点④）、板柳町（地点⑫）、鶴田町（地点⑬）の 3 地点は、全体の相関関係から外れており、測定結果に降雨の影響が考えられるため、回帰直線はこれら 3 地点を除いて作成している。

表 3 NaI サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果

地点番号	市町村	測定地点	測定年月日	空間放射線量率(nGy/h)
①	弘前市	宮園公園	H25.10.23	50
②	黒石市	御幸公園	H25.10.23	28
③	平川市	大坊小学校	H25.10. 8	38
④	西目屋村	西目屋小学校	H25.11.22	52
⑤	藤崎町	ときわ西口広場公園	H25.11. 1	36
⑥	大鰐町	大鰐小学校	H25.11. 1	30
⑦	田舎館村	田舎館中学校	H25.10.23	26
⑧	五所川原市	菊ヶ丘運動公園	H25. 9.26	34
⑨	つがる市	つがる市森田公民館	H25.10.24	42
⑩	鱒ヶ沢町	旧鱒ヶ沢第一中学校	H25.10.24	48
⑪	深浦町	夕陽ヶ丘公園	H25.10.24	48
⑫	板柳町	板柳町公民館	H25.11.22	34
⑬	鶴田町	鶴田中学校	H25.11.22	46
⑭	中泊町	総合文化センター パルナス隣接地	H25. 9.26	42

表 4 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果

地点 番号	市町村	測定 年月日	天候	空間放射線量率への寄与(%)			空間放射線量率 (nGy/h)	¹³⁷ Cs (Bq/m ²)
				U 系列	Th 系列	⁴⁰ K		
①	弘前市	H25.10.23	曇	26	43	28	44	ND(180)
②	黒石市	H25.10.23	晴	21	31	44	16	160
③	平川市	H25.10. 8	曇	18	39	41	29	140
④	西目屋村	H25.11.22	雨・曇	40	41	17	67	240
⑤	藤崎町	H25.11. 1	晴	24	34	39	22	ND(150)
⑥	大鰐町	H25.11. 1	曇	24	34	39	19	440
⑦	田舎館村	H25.10.23	曇	20	33	44	17	120
⑧	五所川原市	H25. 9.26	晴・曇	22	31	46	22	150
⑨	つがる市	H25.10.24	曇	22	41	35	25	370
⑩	鱒ヶ沢町	H25.10.24	曇	20	47	32	41	ND(190)
⑪	深浦町	H25.10.24	曇	18	30	48	30	200
⑫	板柳町	H25.11.22	曇・雨	38	33	28	31	130
⑬	鶴田町	H25.11.22	曇・雨	41	37	20	53	ND(130)
⑭	中泊町	H25. 9.26	曇	21	39	38	24	140

・ ND : 検出限界以下。() 内は検出限界値。

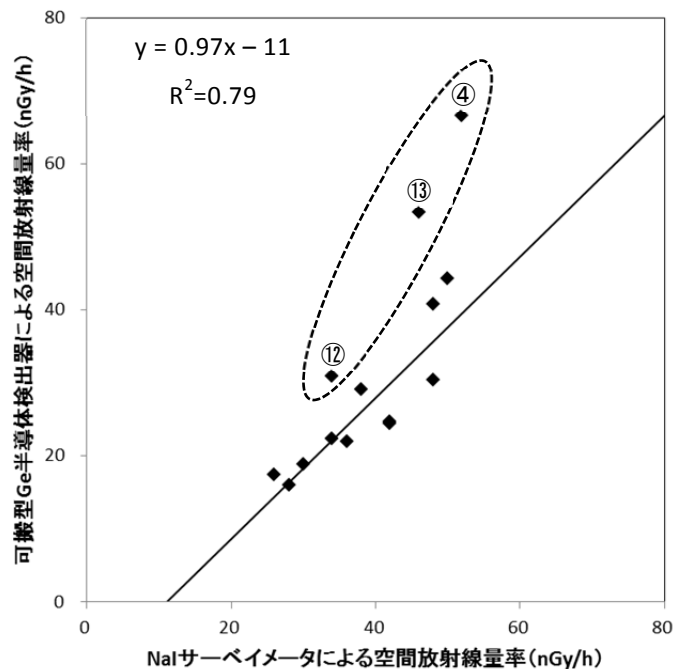


図 3 NaI サーベイメータと可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率の関係

※点線で囲んだ測定値（地点④、⑫及び⑬）については降雨の影響が考えられるため、
回帰直線のデータから除外している。

(3) 土壌中放射性物質濃度の測定

○土壌中濃度

Ge 半導体検出器による人工放射性核種の測定結果を表 5 に示す。Cs-134 は西目屋村(地点④) で検出されたが、その他 13 地点では検出限界以下であった。また、Cs-137 は 13 地点で検出されたが、弘前市(地点①) では検出限界以下であった。

なお、放射化学分析の結果については、次報に掲載する。

○深度分布

地表から層別に採取した土壌について、Ge 半導体検出器による人工放射性核種の測定結果(Cs-134 及び Cs-137 測定結果) を表 6 に示す。

黒石市(地点②)、鱒ヶ沢町(地点⑩) の両地点とも Cs-137 が検出されたのは表層 1.0 cm までであり、それより下層では検出されなかった。過去の大気圏内核実験に起因する Cs-137 は 1.0 cm より深い部分まで分布していると考えられるが、両地点とも深い層では検出されていないこと、鱒ヶ沢町においては Cs-134 も検出されていることから、これらの地点で測定された Cs-137 の大部分は東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故に起因するものと考えられる。

Cs-137 沈着量について、土壌中濃度測定結果と in-situ 測定結果を比較したのが図 4 である。回帰直線の傾きから、in-situ 測定結果の方が平均して 1.8 倍程度大きくなっていることがわかる。今回、in-situ 測定結果の計算では、測定された Cs-137 が過去の大気圏内核実験に起因するものと仮定し β を 4.85 としたが、深度分布調査の結果から実際の β はより

表 5 土壌中の人工放射性核種測定結果

地点番号	市町村	採取年月日	¹³⁴ Cs		¹³⁷ Cs	
			濃度(Bq/kg 乾)	沈着量(Bq/m ²)	濃度(Bq/kg 乾)	沈着量(Bq/m ²)
①	弘前市	H25.10.23	ND(2.2)	ND(130)	ND(1.2)	ND(69)
②	黒石市	H25.10.23	ND(0.7)	ND(42)	1.7	100
③	平川市	H25.10.8	ND(0.8)	ND(45)	1.4	75
④	西目屋村	H25.11.22	1.1	47	4.2	180
⑤	藤崎町	H25.11.1	ND(0.8)	ND(29)	1.2	44
⑥	大鱒町	H25.10.8	ND(0.7)	ND(35)	4.6	230
⑦	田舎館村	H25.10.23	ND(0.8)	ND(45)	1.3	73
⑧	五所川原市	H25.9.26	ND(2.2)	ND(100)	2.5	120
⑨	つがる市	H25.10.24	ND(1.2)	ND(30)	6.4	160
⑩	鱒ヶ沢町	H25.10.24	ND(0.8)	ND(44)	1.8	100
⑪	深浦町	H25.10.24	ND(1.9)	ND(91)	3.2	160
⑫	板柳町	H25.11.22	ND(0.9)	ND(39)	3.7	160
⑬	鶴田町	H25.11.22	ND(0.9)	ND(44)	1.3	61
⑭	中泊町	H25.9.26	ND(0.9)	ND(31)	3.1	100

・測定値は試料採取日に補正した値。

・ND：検出限界以下。() 内は検出限界値。

小さい値であり、in-situ 測定結果が大きめに計算されている地点があるものと考えられる。

より実効的な β を深度分布調査結果から評価することが望ましいが、有意なデータが少なく評価できないため、測定法シリーズに示されている放射性物質沈着後の経過時間 1～5 年の場合の $\beta=3.0$ を用いて計算し、図 4 にプロットした。 $\beta=4.85$ の場合より土壤中濃度測定結果に近くなったが、今後さらに検討が必要である。

表 6 層別採取土壤中の Cs-134 及び Cs-137 測定結果

深度 Z(cm)	黒石市 (地点②)		鱈ヶ沢町 (地点⑩)	
	^{134}Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	^{137}Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	^{134}Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	^{137}Cs 濃度 (Bq/kg 乾)
0-0.5	ND(0.56)	2.0	2.0	5.2
0.5-1.0	ND(0.55)	1.5	0.91	2.0
1.0-1.5	ND(0.59)	ND(0.83)	ND(0.90)	ND(1.2)
1.5-2.0	ND(0.71)	ND(1.1)	ND(1.1)	ND(1.6)
2.0-3.0	ND(0.74)	ND(0.95)	ND(1.0)	ND(2.0)
3.0-4.0	ND(0.76)	ND(0.74)	ND(1.3)	ND(1.4)
4.0-5.0	ND(0.74)	ND(0.93)	ND(1.4)	ND(1.4)
5.0-7.0	ND(0.80)	ND(1.1)	ND(1.0)	ND(1.4)
7.0-10.0	ND(0.73)	ND(0.95)	ND(1.0)	ND(1.4)

・測定値は試料採取日に補正した値。

・ND：検出限界以下。() 内は検出限界値。

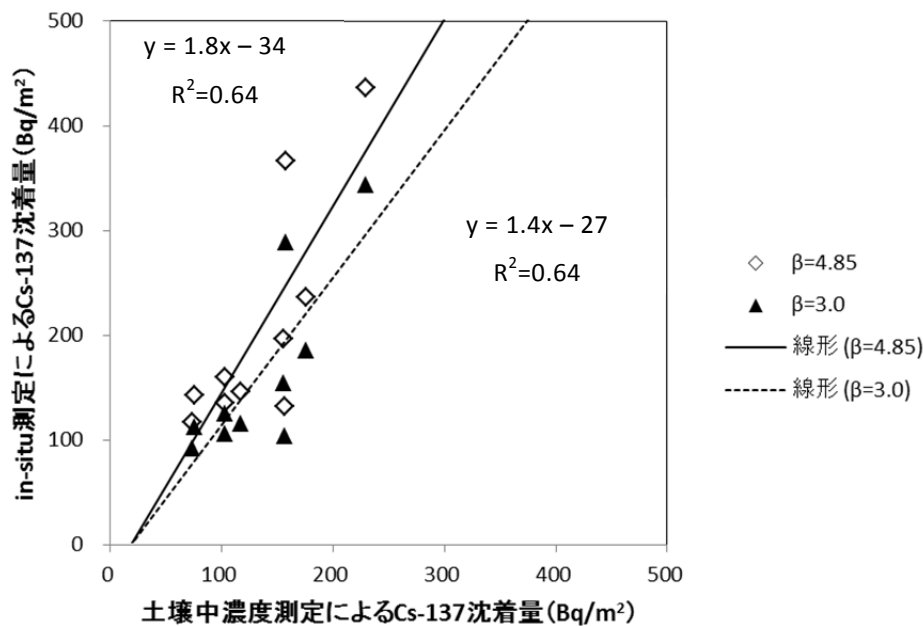


図 4 土壤中濃度測定と in-situ 測定による Cs-137 沈着量の関係

※測定値が ND の場合はプロットしていない。

(4) サーベイカーによる走行サーベイ

サーベイカーによる走行サーベイの結果（500 m 区間平均値）を表 7 に示す。空間放射線量率は、10.7～51.3 nGy/h の範囲であった。このうち、ルート番号①（以下番号はルート番号を示す。）の国道 7 号線で秋田県境から大鰐まで及び鶴ヶ坂から青森までの測定中に小雨が降り空間放射線量率が上昇した可能性があるため、今後再測定を検討する。

今回の走行サーベイ結果全体を地図上にプロットしたのが図 5 である。この図では、解析ソフトが表示密度に合わせて 10 秒値を自動的に平均するため、プロットした値は 1.5~2.5 km の平均値となっている。最も高い線量率を示した地域は、⑨国道 101 号のうち大間越付近であった。表層地質図³⁾によると、この付近の地質は主に深成岩類の花崗岩である。また、①国道 7 号のうち碓ヶ関付近も比較的高い値を示しており、表層地質図によると、この付近の地質は主に火山性岩石である凝灰岩であった。

一方、空間放射線量率が低めとなった地域は、②国道 102 号及び⑦県道 13 号のうち黒石市周辺地域、②国道 102 号のうち十和田湖地域及び③国道 103 号の八甲田山地域であった。表層地質図によると、八甲田山地域の地質は主に第 4 紀の火山性岩石である安山岩溶岩及び同質集塊岩であり、その周辺地域及び十和田湖周辺地域は、第 4 紀の火山性岩石である軽石（浮石流堆積物）又は溶岩凝灰石であった。空間放射線量率と表層地質や土壌との関係については、今後検討を行う。

⑧県道 28 号線について、500 m 区間平均値を地図上にプロットしたのが図 6 である。図 5 と比較して空間放射線量率の変化が明確になっている。この中で最も高い測定値（40.9 nGy/h）はトンネル通過時に測定されたものである。

表7 サーバイカーによる走行サーベイ結果

ルート番号	走行ルート	測定年月日	天候	空間放射線量率 (nGy/h)
(中南地域)				
①	国道 7号 (碓ヶ関～藤崎～青森)	H25.11.7	曇時々小雨	14.5～33.8
②	国道 102号 (弘前～黒石～焼山)	H25.11.6	晴	11.5～42.2
③	国道 103号 (焼山～城ヶ倉)	H25.11.6	晴	10.7～27.0
④	国道 394号 (城ヶ倉～南中野)	H25.11.6	晴	12.6～23.3
⑤	国道 454号 (虹の湖～長峰)	H25.11.6	晴	12.3～21.2
⑥	県道 3号 (鱒ヶ沢～弘前)	H25.11.7	晴	14.3～25.0
⑦	県道 13号 (大鱒～黒石～浪岡)	H25.11.5	晴	11.8～19.1
⑧	県道 28号 (弘前～暗門)	H25.11.6	晴	16.0～40.9
(西北地域)				
⑨	国道 101号 (大釈迦～鱒ヶ沢～大間越)	H25.11.5	晴	14.1～51.3
⑩	国道 339号 (竜飛～藤崎)	H25.11.5	晴	12.9～25.7
⑪	県道 12号 (市浦～森田)	H25.11.6	晴	14.7～21.4
⑫	県道 43号 (五所川原～車力)	H25.11.6	晴	15.0～19.7
⑬	市道 189号 (車力～中里)	H25.11.6	晴	13.9～18.7
(その他地域)				
⑭	国道 7/280/339号 (青森～竜飛)	H25.11.5	晴	13.5～28.7
⑮	県道 9号 (西平内～小湊)	H25.11.7	曇	15.1～24.5
⑯	市道 285号 (浪岡～大釈迦)	H25.11.5	晴	14.7～18.6



図5 サーバイカーによる走行サーベイ結果

※図中の番号はルート番号、矢印は走行した方向である。

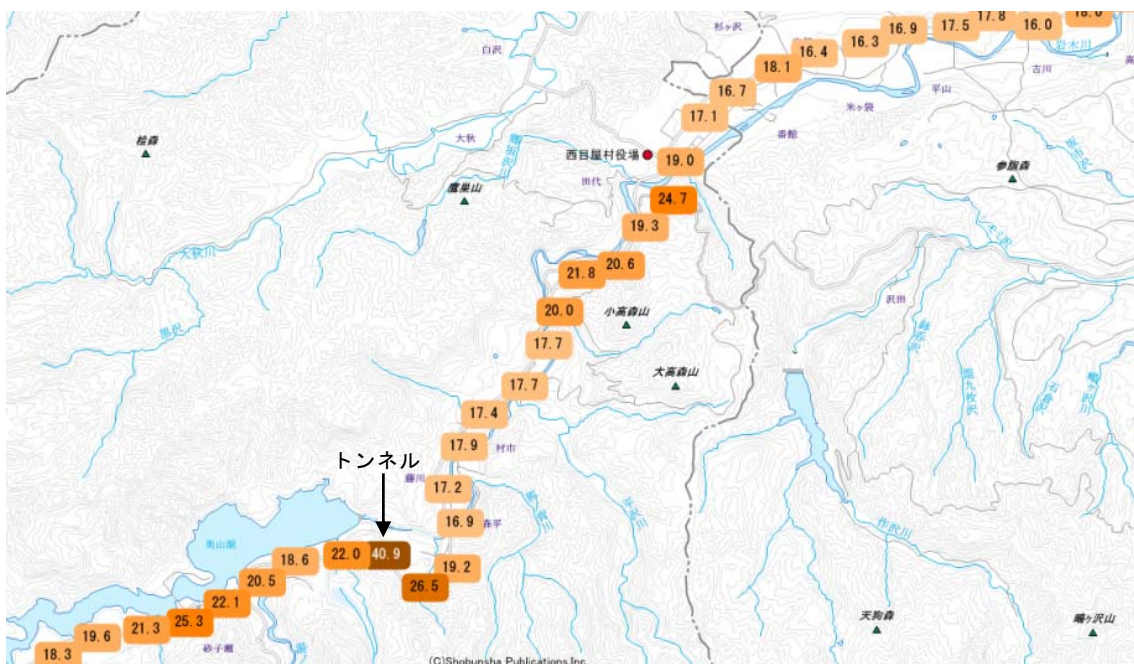


図6 サーバイカーによる走行サーベイ結果（県道28号 西目屋付近）

(5) NaI サーベイメータによる定点測定結果と走行サーベイ結果の比較

NaI サーベイメータによる定点測定結果とこの測定地点に最も近い 500 m 区間の走行サーベイ結果を比較したのが表 8 である。両者の間には図 7 のとおり正の相関が認められたが、測定値自体には差が見られた。測定高さや自己照射の違い、サーベーカーによる下方向の遮へい等が考えられるため、今後要因の検討を行う。

大鰐町（地点⑥）が相関から外れていたため、土地分類^{3),4)}を確認したところ、図 8 のとおり、走行サーベイの区間の土壌は低位泥炭土壌で定点測定地点⑥の灰色低地土壌・黒ボク土壌と異なっており、この低位泥炭土壌の区間では前後の区間と比べて測定値が高めであったことから、土壌の違いが影響しているものと推察される。他の定点測定地点と走行サーベイ区間については、表層地質、土壌ともに大きな違いは見られなかった。

表 8 定点測定と走行サーベイによる空間放射線量率

地点 番号	定点測定		走行サーベイ		
	空間放射線量率 (nGy/h)	土地分類 (上段：表層地質、下段：土壌)	ルート 番号	定点との 距離(m)	空間放射線量率 (nGy/h)
①	50	泥・砂・礫 灰色低地土壌	①	500	20
②	28	泥・砂・礫 粗粒灰色低地土壌・黒ボク土壌	⑦	750	16
③	38	泥・砂・礫 灰色低地土壌	①	600	21
④	52	泥・砂・礫 乾性褐色森林土壌・褐色森林土	⑧	200	21
⑤	36	泥・砂・礫 グライ土壌・細粒グライ土壌	①	1150	20
⑥	30	凝灰岩 灰色低地土壌・黒ボク土壌	①	750	26
⑦	26	泥・砂・礫 灰色低地土壌・褐色低地土壌	②	1250	15
⑧	34	泥・砂・礫 細粒灰色低地土壌	⑩	250	17
⑨	42	泥・砂・礫 黒ボク土壌	⑨	350	19
⑩	48	泥・砂・礫 黒ボク土壌・細粒グライ土壌	⑨	200	21
⑪	48	泥・砂・礫・流紋岩 岩屑土壌・乾性ポドゾル土壌	⑨	150	21
⑫	34	泥・砂・礫 細粒灰色低地土壌	⑩	750	20
⑬	46	泥・砂・礫 褐色低地土壌・グライ土壌	⑩	150	17
⑭	42	泥岩 褐色森林土壌	⑩	50	19

・土地分類は土地分類図（表層地質図及び土壌分類図）に基づく分類

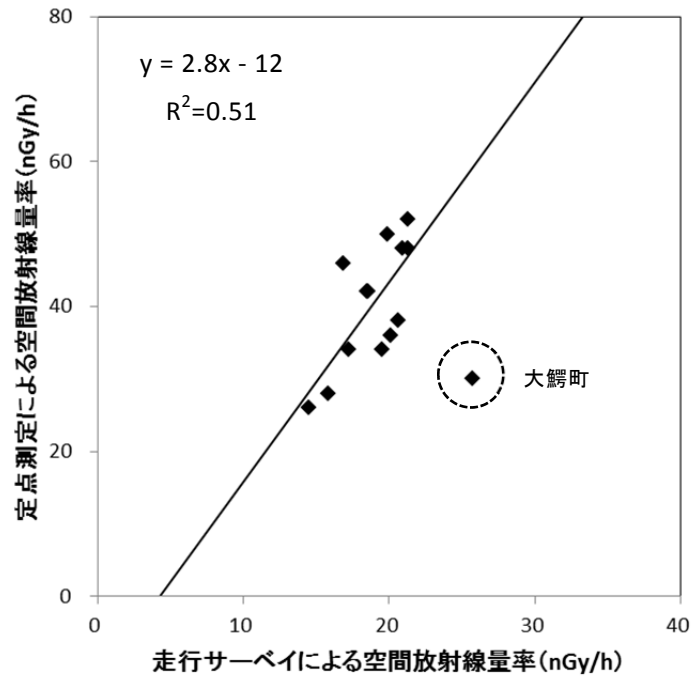


図7 定点点測定と走行サーベイによる空間放射線量率の関係

※図中の回帰直線は大鱈町を除いて作成している。



図8 大鱈町における空間放射線量率と土壌の分布状況

3. 今後の計画

平成 26 年度以降も年次計画に基づき、計画的に調査を行う。

(年次計画)

平成 24 年度 調査計画作成

平成 25 年度 調査実施（西北地域、中南地域）

平成 26 年度 調査実施（東青地域、三八地域）

平成 27 年度 調査実施（上北地域、下北地域及び再調査地点）

平成 28 年度 結果とりまとめ

文 献

- 1)文部科学省：放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」
（平成 20 年 3 月）
- 2)長岡和則、本田幸一郎、宮野敬治：環境 γ 線線量測定における宇宙線の寄与，
RADIOISOTOPES, 45, 665-674 (1996)
- 3)経済企画庁：土地分類図（表層地質図－平面的分類図－）青森県
- 4)経済企画庁：土地分類図（土壌図）青森県

環境放射線監視テレメータシステムの更新

鈴木将文 安積 潔*¹ 佐々木 守*² 和田浩司
竹谷公貴*³ 大久保英樹 木村秀樹

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設周辺地域の住民の健康と安全を守るため、環境モニタリングの一環としてモニタリングステーションやモニタリングポスト（以下、「測定局」という。）による空間放射線量率等の常時監視を行っており、そのデータの収集・解析のために青森県環境放射線監視テレメータシステム（以下、「テレメータシステム」という。）を整備している。平成2年度に原子燃料サイクル施設を対象としてテレメータシステムの運用を開始して以来、平成15年度からは東通原子力発電所、平成20年度からはリサイクル燃料備蓄センターを対象施設に追加している。この間に実施したテレメータシステムの更新又は主な監視機能の追加等は、表1に示すとおりである。

平成25年3月のテレメータシステムの更新に当たっては、平成23年3月の東北地方太平洋沖地震を踏まえ、地震対策の強化や県民への情報提供の充実を図るための改良を行った。本報では、更新に係る改良点とシステムの概要について取りまとめた。

2. テレメータシステムの更新に係る主な改良点

2.1 監視局の機能強化

更新前は、六ヶ所村にある青森県原子力センターに中央監視局、東通村にある東通 OFC に副監視局を設置しデータの収集を行っていたが、新システムでは、震災等による被災リスクを分散させるため、副監視局を原子力施設から50 km 以上離れた青森市の原子力センター青森市駐在（青森県環境保健センター内）に設置するとともに、中央監視局とほぼ同じ機能を持たせ、一方の装置や通信回線に障害が生じた場合にも、測定データの収集や公開作業を継続できるようにした。

表1 テレメータシステムに係る更新及び改造の経緯

年 月	経 緯
平成2年6月	原子燃料サイクル施設周辺地域の放射線等を常時監視するため、青森県環境放射線監視テレメータシステムの運用を開始
平成6年4月	表示局による測定データのリアルタイム公開を開始
平成13年4月	インターネットによる測定データのリアルタイム公開を開始
平成15年7月	東通原子力発電所に係る監視機能を付加したテレメータシステムに更新
平成25年3月	リサイクル燃料備蓄センターに係る監視機能の付加や地震対策の強化等を行ったテレメータシステムに更新するとともに、環境放射能水準調査に係る放射線測定データの取り込みを開始
平成26年3月	東通原子力発電所に係る UPZ に増設した測定局との接続開始

*1：現青森県企画政策部原子力施設安全検証室

*2：青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

*3：現青森県環境生活部原子力安全対策課

2.2 通信回線の二重化

更新前は、測定局からのデータを有線回線1回線により収集していたが、新システムでは通信回線を有線回線と衛星回線とで二重化し、有線回線に障害が発生した場合には、衛星回線に自動で切り替わりデータの収集を継続できるようにした。

2.3 地震対策の強化

地震等の振動による機器の転倒・破損による損害を最小限に抑えるため、テレメータシステムのサーバ類について、免振テーブルによる地震対策を施した。

2.4 環境放射能水準調査用モニタリングポストの接続

平成23年度に八戸市や弘前市など原子力施設周辺地域外の県内8箇所に整備した環境放射能水準調査用モニタリングポストをテレメータシステムに接続し、測定データの収集・解析、ホームページによる公開等をできるようにした。

2.5 携帯端末用ホームページによる測定データのリアルタイム公開

空間放射線量率等の測定データを、パソコン用ホームページに加え、携帯端末用のホームページでもリアルタイムで公開できるようにした。

3. テレメータシステムの構成

3.1 測定局との接続

テレメータシステムは、県及び事業者の測定局に接続し、測定データを収集している。

(1) 測定局の配置数および配置地点

テレメータシステムに接続又は接続予定の測定局の配置数を表2に、測定局の配置地点を図1に示す。

(2) 測定局の収集項目

測定局の調査区分と測定局から収集する測定項目を表3に示す。

表2 テレメータシステムに接続又は接続予定の測定局の配置数

設置主体	配置数
青森県	27局
日本原燃(株)	3局
東北電力(株)	2局
リサイクル燃料貯蔵(株)	1局※

※ 平成26年度以降にテレメータシステムに接続予定

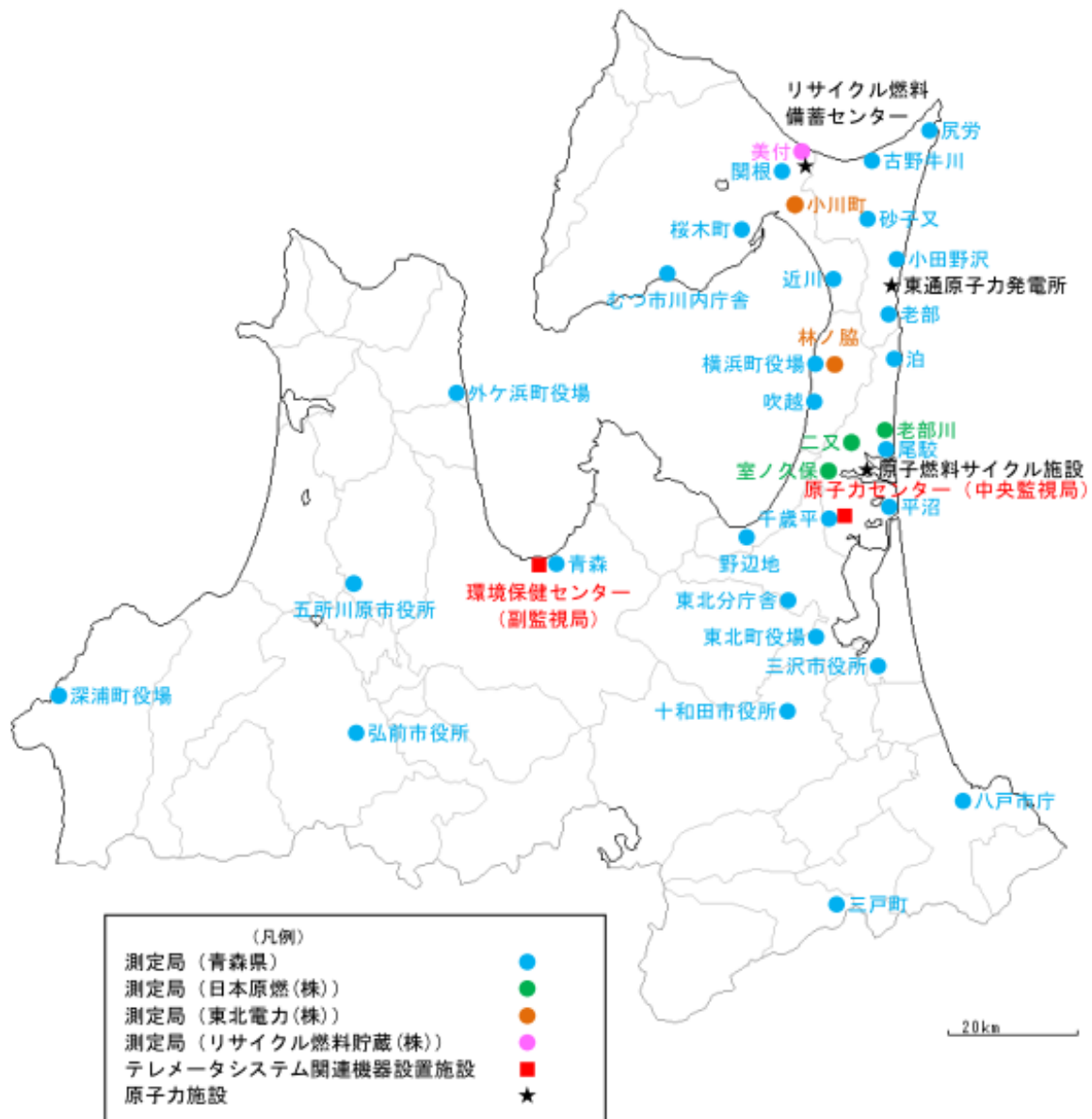


図1 測定局、テレメータシステム関連機器設置施設及び原子力施設の配置

表3 測定局の調査区分と収集する測定項目

実施者	測定局名	モニタリング対象施設等					空間放射線量率			大気浮遊中のαβ放射能	大気中体状β放射能	大気中ヨウ素	大気中体状フッ素	気象							
		原子燃料サイクル施設	東通原子力発電所	リサイクル燃料貯蔵	環境放射能水準調査	放射能水準調査	低線量率計 (NaI) ※1	高線量率計 (IC) ※2	中性子線量率					風向	風速	気温	降水量	感雨	積雪深	日射量	放射収支量
青森県	尾駈局	○	○			○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○		
	千歳平局	○				○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	○	○		
	平沼局	○				○	○	○	○	○	○										
	泊局	○	○			○	○	○	○	○	○										
	吹越局	○	○			○	○	○	○	○	○		○	○	○	○			○		
	青森局	○			○	○		○	○	○	○	○	○	○	○	○			○		
	横浜町役場局	○				○															
	野辺地局	○				○															
	砂子又局	○	○			○	○								○	○	○				
	東北町役場局	○				○															
	東北分庁舎局	○				○															
	三沢市役所局	○				○															
	小田野沢局		○			○	○			○		○				○	○				
	老部局		○			○	○			○		○		○	○	○	○	○	○		
	近川局		○			○	○			○		○		○	○	○	○	○	○		
	尻労局		○			○	○								○	○	○				
	古野牛川局		○			○	○								○	○	○				
	桜木町局		○			○	○								○	○	○				
	関根局		○	○		○	○								○	○	○				
	弘前市役所局					○	○														
	八戸市庁局					○	○														
	五所川原市役所局					○	○														
	十和田市役所局					○	○														
むつ市役所局					○	○															
深浦町役場局					○	○															
外ヶ浜役場局					○	○															
三戸町局					○	○															
日本 原燃株	二又局	○				○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○		
	老部川局	○				○	○	○	○	○	○				○	○	○				
	室ノ久保局	○				○	○	○	○	○	○				○	○	○				
東北 電力株	小川町局		○			○	○								○	○	○				
	林ノ脇局		○			○	○								○	○	○				
リサイクル 燃料貯蔵株	美付局 ^{※3}			○		○	○							○	○	○					

※1 NaI : NaI(Tl)シンチレーション検出器

※2 IC : 電離箱式検出器

※3 平成 26 年度以降にテレメータシステムに接続予定

3.2 システム構成

システム構成を図2に示す。原子力施設周辺地域等に配置されている各測定局から2分周期(空間γ線スペクトルは10分周期)で測定データが送信され、中央監視局及び副監視局の収集サーバに収集される。環境放射能水準調査の測定データは10分周期で送信される。

測定データを収集した中央監視局及び副監視局は、収集した測定データの保存、集計、解析、伝送を行う。また、中央監視局と副監視局との間では、時刻同期や測定データの等値処理を行う。

収集した測定データは、県庁、県関係機関、立地村及び隣接市町村の役場又は公共施設に設置された表示装置(52型液晶画面)や、各測定局(環境放射能水準調査用を除く)に設置されているLED表示装置、パソコン用ホームページ¹⁾及び携帯端末用のホームページ²⁾に、リアルタイムで公開している。

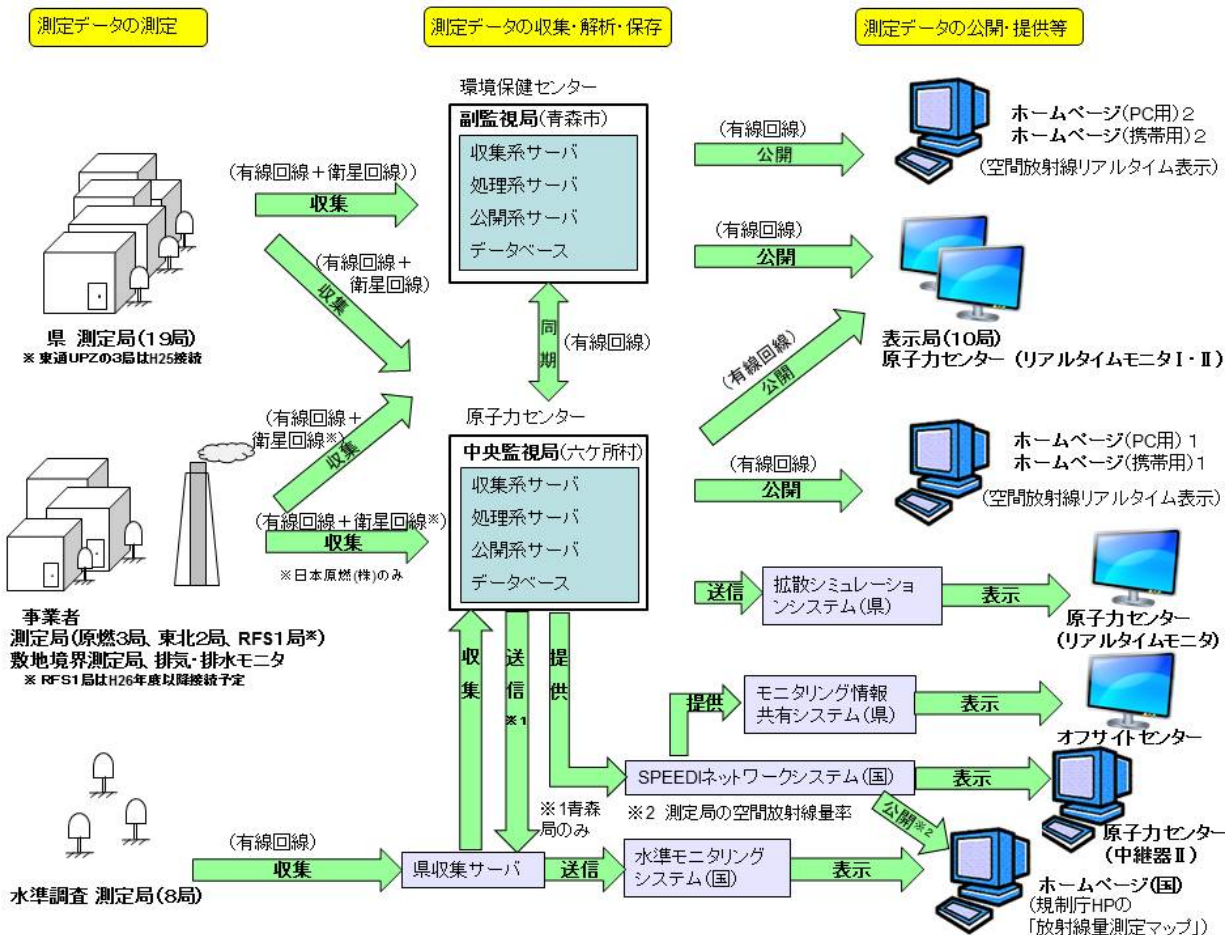


図2 テレメータシステム構成の概要

3.3 他のシステムとの接続

他のシステムとの接続については、以下のとおりである。

(1) 環境放射能水準調査の測定データの送信

環境放射能水準調査は、県内における環境放射能の水準を把握するため、国の委託により実施している調査であり、平成23年度に県内に設置したモニタリングポスト8局及び青森局のデータ(10分値)を収集し国へ送信している。

(2) 拡散シミュレーションシステムへの測定データの送信

拡散シミュレーションシステムは、平常時において六ヶ所再処理工場から放出される放射性物質の移流・拡散状況を推定し、放射性物質の大気中濃度及び放射性物質による外部被ばく実効線量率を空間分布として表示することにより、環境放射線モニタリング結果の評価に資することを目的として運用している。

同システムには、空間線量率、気象及び放出源情報の測定データ(10分値)を提供している。

(3) SPEEDI ネットワークシステムへの測定データの提供

SPEEDI(緊急時迅速放射能影響予測)ネットワークシステムは、原子力施設から大量の放射性物質が放出されたり、あるいは、そのおそれがある緊急時に、周辺環境における放射性物質の大

気中濃度や被ばく線量などを、放出源情報、気象条件及び地形データをもとに迅速に予測するシステムである。

同システムには、空間放射線量率（2 分値）、気象（2 分値又は 10 分値）及び放出源情報（10 分値）の測定データを提供している。

(4) モニタリング情報共有システム（ラミセス）への測定データの提供

モニタリング情報共有システム（ラミセス）は、原子力災害時における緊急時モニタリング業務の円滑な実施に資することを目的として、自治体、国等の防災関係者間におけるモニタリング情報の迅速な収集と共有を支援するコンピュータシステムである。

テレメータシステムから提供された測定データ（空間放射線量率（低線量率、高線量率、中性子線量率）、気象）を、テレメータシステムから SPEEDI ネットワークシステムの中継機 I を経由して、ラミセスサーバに提供している。

(5) 事業者の測定データの収集

事業者（日本原燃、東北電力）のテレメータシステムと接続し、測定局における測定データ、排気・排水モニタ等の放出源情報を収集している。今後、リサイクル燃料貯蔵のシステムとも接続する予定である。

4. テレメータシステムの機能

4.1 データ収集機能

各測定局から測定データを収集する。伝送異常等によりデータを収集出来ない場合は、復旧後に再収集・再演算を行う。

4.2 データ演算・集計機能

(1) 収集された測定データから、2 分値、10 分値及び 1 時間値を算出する。

(2) 二次演算項目の算出。主な項目は以下のとおり。

- ・ ^{214}Bi 及び ^{208}Tl が放出する γ 線の計数率を変数とした重回帰式により自然放射線に基づく線量率を算出し、空間放射線量率測定値から差し引くことにより人工放射線に基づく線量率を演算³⁾

- ・気体状 β ガス計数率及び流量から、気体状 β 放射能濃度（クリプトン濃度）を演算

(3) 各測定データ等の統計処理（過去 5 年間のデータの平均値、 3σ （標準偏差の 3 倍）等）を行う。

(4) 月集計、四半期集計、年集計を算出する。

4.3 データ保存・修正・欠測処理機能

- ・データベース管理期間を、2 分値は最新 2 年分、10 分値及び 1 時間値は最新 6 年分とし、管理期間よりも前のデータは圧縮して保存する。データの保存期限は 35 年とする。

- ・操作端末にてデータベースを修正することができ、2 分値を修正すると自動的に 10 分値及び 1 時間値が修正される。

- ・測定装置からの状態監視項目（測定装置の状態信号等）による欠測処理を行う。また、操作端末から強制的に欠測処理や統計などの演算対象除外を行うことができる。

4.4 画面表示機能

操作端末には、時報、日報、月報、四半期報、年報、任意期間報、線量率出現頻度、大気安定度出現頻度、風向・風速出現頻度、相関表、地図表示、時系列グラフ、任意抽出グラフ、月別・年度別変化グラフ、線量率出現頻度グラフ、風配図、相関図を表示することができる。併せて、状態監視項目やネットワーク監視項目等の履歴を表示することができる。

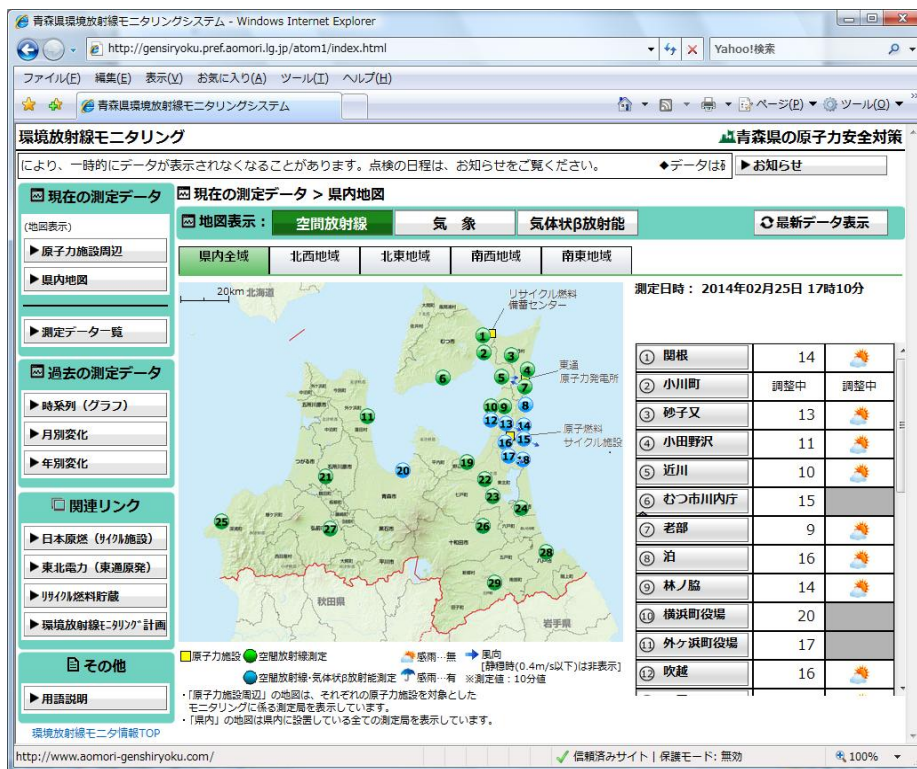
また、リアルタイムモニタ I（テレメータ室内）及び同モニタ II（事務室内）にて、表形式、グラフ形式又は地図形式の測定データを表示することができる。

4.5 公開機能

測定データ（10 分値）を、パソコン用及び携帯端末用のホームページ、表示装置（52 型液晶画面）、及び各測定局（環境放射能水準調査用を除く）に設置されている LED 表示装置に、リアルタイムで公開する。

パソコン用ホームページには、空間放射線量率、気体状β放射能、気象（風向・風速、感雨、降水量、積雪深）のデータを地図上に、また、時系列（表形式、グラフ形式）、月別変化（グラフ形式）、年別変化（グラフ形式）を表示するとともにメッセージを表示することができる（図 3）。携帯端末用ホームページには、空間放射線量率、気体状β放射能、感雨の測定データを過去 2 週間分表形式で表示することができる。なお、空間放射線量率は、低線量率計及び高線量率計のデータを切り替えることができる。

表示装置には、パソコン用ホームページと同様のものを表示するとともに、市町村用広報資料や広報用動画を登録し表示させることができる。

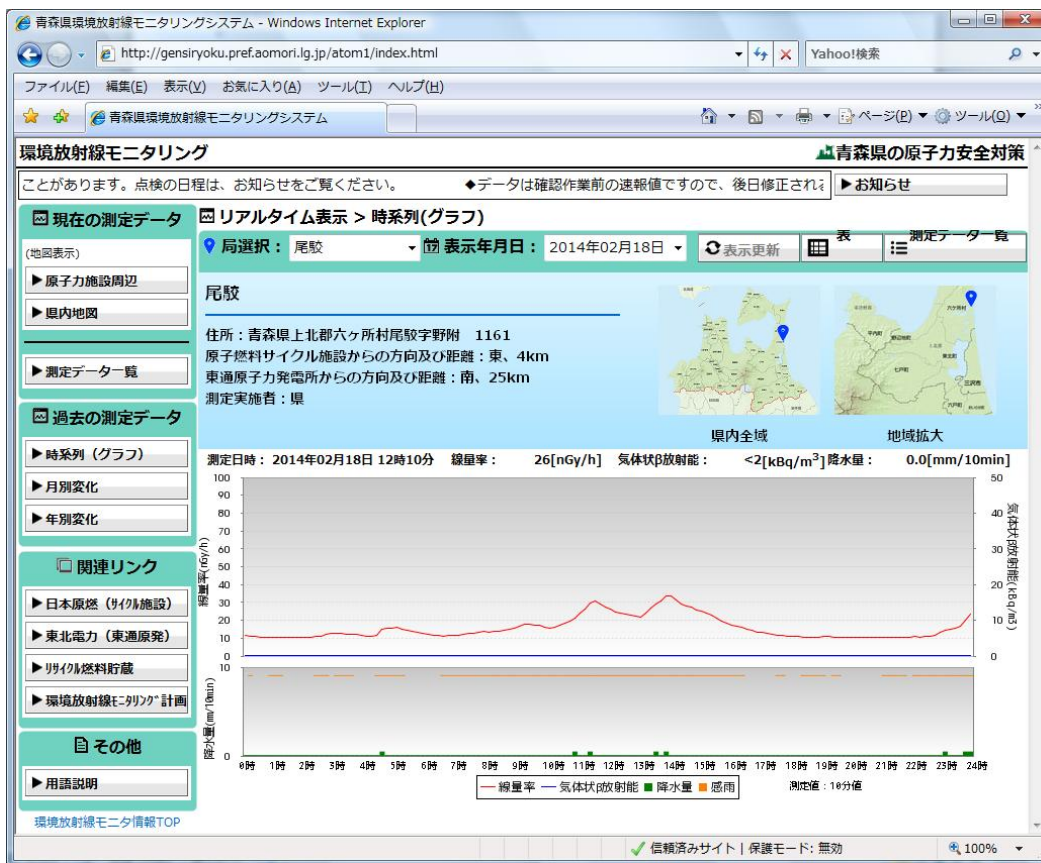


(a) 地図表示

図 3 パソコン用ホームページによるリアルタイム公開



(b) 一覧表



(c) トレンドグラフ

図3 パソコン用ホームページによるリアルタイム公開

4.6 空間 γ 線スペクトル収集・解析機能

空間 γ 線スペクトル（10分値）を収集し、スペクトル間の演算、ROIの設定及び集計、レスポンスマトリクス法を用いたスペクトル解析やG(E)関数法を用いた空間放射線量率の推定を行うことができる。

4.7 ネットワーク監視機能

ネットワーク内のシステムを状態監視できるように疎通監視やネットワーク機器の監視等を行い、その結果を操作端末に表示する。

4.8 異常判定機能

- ・状態監視項目の変化やシステム状態の変化により警報を出力する。
- ・空間放射線量率等に5段階の基準値を設け、超過判定により警報を出力する。
- ・相関判定（2つの論理式による組み合わせ）により警報を出力する。

4.9 異常通報機能

警報を出力した場合には、原子力センター内の館内警報装置が作動するとともに、自動通報装置により職員の携帯電話に電話及びメール通報を行う。

また、操作端末には警報をポップアップ表示するとともに、事務室内に設置したパトライトが基準値の超過により点灯する。

4.10 自動起動・停止機能

テレメータシステムの各機器は、無停電電源装置（UPS）より電源が供給されている。テレメータシステム運転中に外部電源が停電となった場合、UPSが停電を検知し、各機器を自動で停止させた後、UPS自体も停止する。外部電源が復電した場合、UPSが自動で起動し、各機器への電源供給を開始する。各機器は、電源供給が開始されると自動で起動し、テレメータシステムの運転を再開する。

4.11 セキュリティ機能

外部の回線に対してファイアウォールを設定するとともに、システム内においてウィルス対策ソフトを導入している。

また、操作端末では、ログインID及びパスワード管理を行い、不正なユーザの使用を許可しない。

5. まとめ

平成25年3月に青森県環境放射線監視テレメータシステムの更新を行い、新システムの運用を開始した。更新に当たっては、平成23年3月の東北地方太平洋沖地震を踏まえて災害に強いシステムを目指し、通信回線の二重化や地震対策の強化等を行った。また、県内全域に設置したモニタリングポストのデータを収集し、パソコンに加え携帯端末でも公開することにより、県民への情報提供の充実を図った。

文 献

- 1) 環境放射線監視テレメータシステム (パソコン用画面)
<http://gensiryoku.pref.aomori.lg.jp/atom1>
<http://gensiryoku2.pref.aomori.lg.jp/atom1>
- 2) 環境放射線監視テレメータシステム (携帯端末用画面)
<http://gensiryoku.pref.aomori.lg.jp/atom1/m/index.cgi>
<http://gensiryoku2.pref.aomori.lg.jp/atom1/m/index.cgi>
- 3) 大久保英樹、庄司博光、木村秀樹、齋藤稔、工藤英嗣、永井進：空間放射線量率測定結果に基づく施設起因の線量の推定・評価方法の検討，青森県原子力センター所報 第2号，3-16(2007)

Ⅲ 平成 25 年度調査研究事業報告

環境放射能拡散シミュレーションシステム

和田浩司 大久保英樹 木村秀樹 松村浩治*¹
今井慎一*² 根本 誠*³ 城戸寛子*³

六ヶ所再処理工場から放出される放射性物質による環境への影響の評価に資することを目的として、環境放射能拡散シミュレーションシステム（以下、「シミュレーションシステム」という。）を構築することとし、平成15年度に仕様の検討を行い、平成16年度にシステムを構築した。

平成17年度から平成18年度は、環境モニタリングにおけるクリプトン-85濃度及び空間放射線量率の調査結果を用いてシステムの検証を行い、平成19年度は精度向上及び機能の追加を目的として検討を行った。

平成20年度から平成21年度は、これらの検討をもとに風速場評価機能の精度向上、降水等による地表沈着計算機能の追加、積算被ばく線量評価計算機能の追加、トリチウム拡散評価計算機能の追加を行い、平成22年度にその結果を研究報告としてとりまとめた。また、シミュレーションの結果を通常業務で活用するため、リアルタイム計算の結果を事務室に表示させる機能を追加した。

平成23年度はモニタリング等の観測値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間について、ブルームモデルを用いた計算結果の比較・検討を行い、平成24年度は同じ期間についてパフモデルを用いた計算結果の比較・検討を行った。

シミュレーションシステムの計算に必要なデータは青森県環境放射線監視テレメータシステム（以下、「テレメータシステム」という。）から取得しており、このうち風向についてはこれまで16方位風向データとして取得していたが、平成24年度にテレメータシステムを更新したことにより角度風向データの取得が可能になった。

今年度は風速場計算の精度向上を図るため風向角度データを取り込んで計算を行えるようシミュレーションシステムを改造するとともに、改造後の風速場計算結果と観測値との比較・検討を行った結果について、本所報の技術報告として取りまとめた。

*1：日本電気株式会社 *2：NEC ソフトウェア東北株式会社

*3：株式会社ヴィジブルインフォメーションセンター

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

今 壽貴 木村芳伸

1. はじめに

トリチウム (T) は、成層圏において空気と宇宙線の相互作用で生成する自然放射性核種であり、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH_3T 等) の3種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の200倍以上が環境中に放出されており、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている¹⁾。

青森県では、平成17年12月に東通原子力発電所が営業運転を開始し、平成18年3月には六ヶ所再処理工場がアクティブ試験を開始しており、県は、トリチウムの放出量が比較的多いとされている六ヶ所再処理工場周辺地域のモニタリングステーション (以下、MS) において、大気中水蒸気状トリチウム (HTO) のモニタリングを継続して行っている。再処理施設から大気中へ放出されるトリチウムの化学形は、東海再処理施設では全トリチウムのうち約26%がHT (CH_3T 等を含む。) の化学形であったとの報告²⁾があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスを使用する方法³⁾が用いられている。しかし、例えばMSのように、長期間採取状況を監視できない場所に対応するために、可燃性ガスの代わりに加湿カラムを用いる方法 (以下「加湿カラム法」という) が提案されている^{4),5)}。

本調査では、平成16年度から加湿カラム法によりHT及び CH_3T が定量的に採取できることを確認し、MSでの採取条件を検討した。その結果をもとに、MS尾駁局及びMS吹越局において調査を行い、化学形別トリチウムのバックグラウンドレベルを把握した。これらは、平成24年度に青森県原子力センター所報第7号の研究報告として取りまとめた。

平成25年度は、5月及び9月にMS尾駁局及びMS吹越局において調査を行い、化学形別トリチウムのバックグラウンドレベルを把握した。また、HT及び CH_3T について、(公財)環境科学技術研究所 (以下、環境研) が実施している調査との比較検討を行った。

2. 調査方法

2.1 採取装置

加湿カラム法による採取装置を図 1 に示す。大気は、採取装置の最後に設置した真空ポンプ（DA-30D、ULVAC）で吸引し採取装置に導入する。入口側には、焼結金属製フィルターを設置し、大気の採取速度と総量はデジタル流量計で測定する。化学形別トリチウムは、モレキュラーシーブ 3A を充填した HTO カラム、HT カラム及び CH₃T カラムに捕集する。

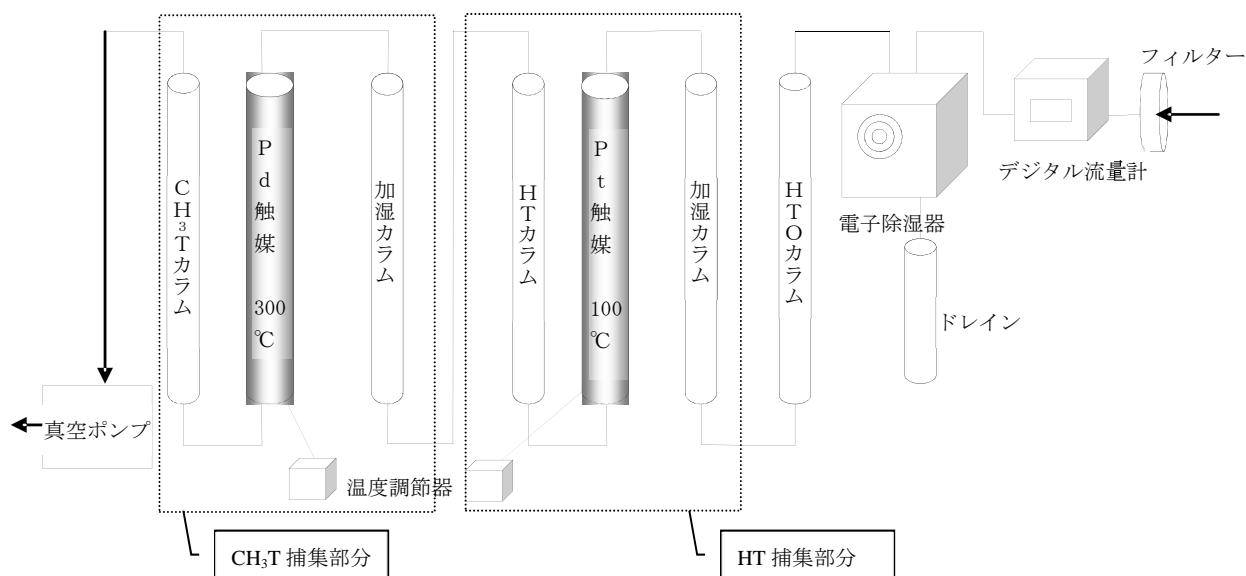


図 1 加湿カラム法による採取装置

HTO については、電子除湿器（出口露点 1~3°C）により一部を捕集した後、残りを HTO カラムに捕集する。

HT については、100°C に加熱した Pt 触媒 (Pt を担持させたメタルハニカム触媒、Pt 担持量 6.0g/L、25mm φ × 40mm、3 個) で酸化し、水として HT カラムに捕集する。この際、大気中の H₂ 濃度が低いため、キャリアを添加する必要がある、無トリチウム水蒸気を添加する。

CH₃T については、300°C に加熱した Pd 触媒 (DASH-220D、2-4mm φ、NECHEMCAT) で酸化し、水として CH₃T 用カラムに捕集する。この際、大気中の CH₄ 濃度が低いため、キャリアを添加する必要がある、無トリチウム水蒸気を添加する。

加湿カラム法における無トリチウム水蒸気の供給は、図 2 に示す加湿カラムを用いた。プラスチックバイアルに無トリチウム水を入れておき、超高分子量ポリエチレン多孔質フィルムを通過して、徐々に蒸発させる仕組みになっている。

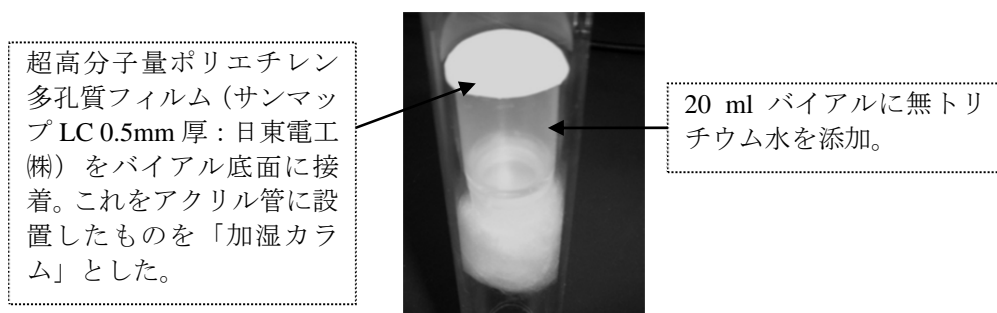


図 2 加湿カラムの構造

2.2 モニタリングステーションにおける試料採取

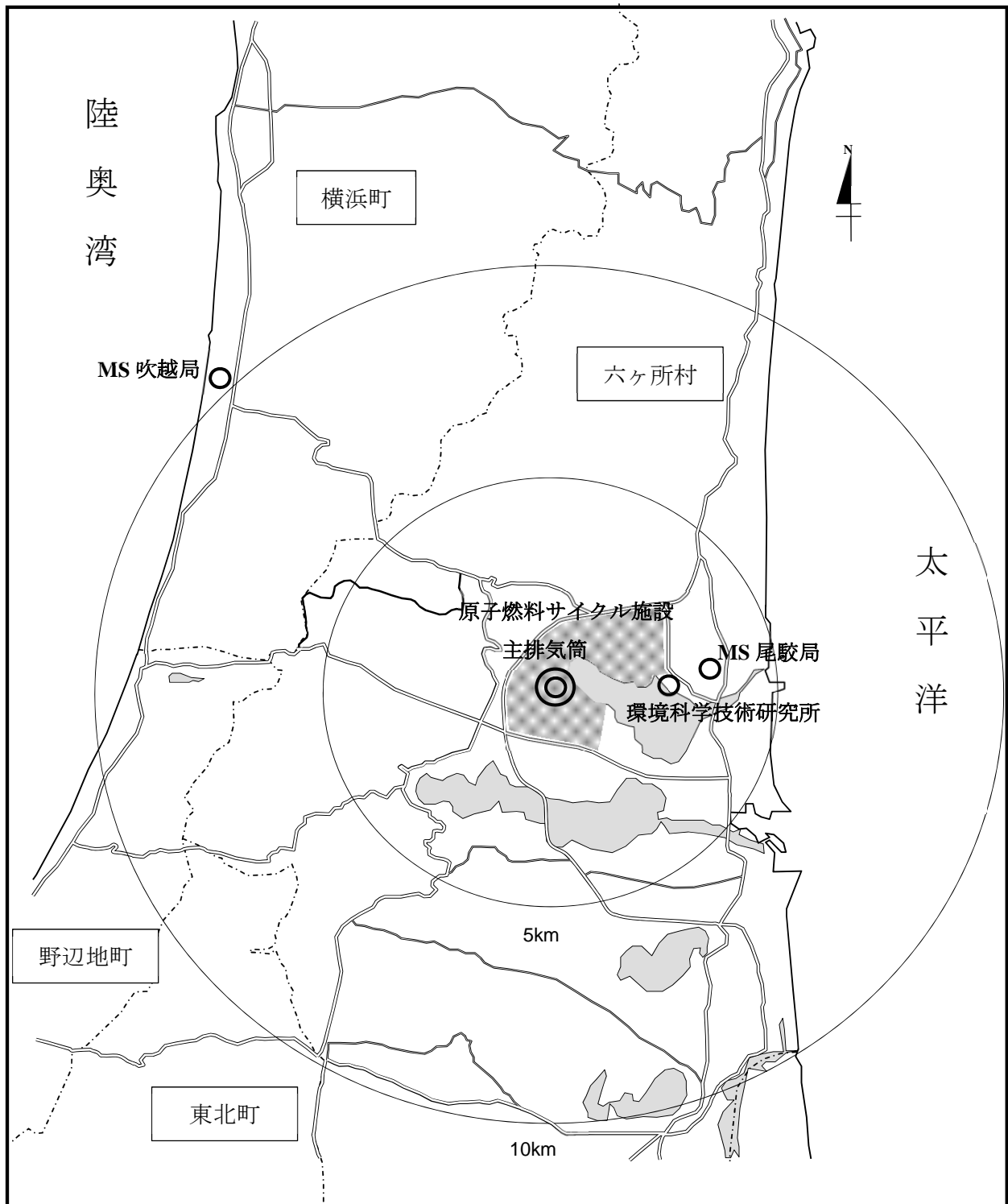


図3 調査地点

(1) 採取条件

採取条件は以下のとおり。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：約7日間（約10000min）
- ・大気採取流量：1.0L/min（夏季）
1.3L/min（冬季）
- ・HTOカラム本数：2本
- ・HT用加湿カラムのバイアル数：2個
- ・CH₃T用加湿カラムのバイアル数：1個

(2) 採取地点

MS尾駁局及びMS吹越局の位置を図3に示す。MS尾駁局は六ヶ所再処理工場の東約3kmに位置し、秋期から冬期における主風向風下である。MS吹越局は同工場の北西約10kmに位置し、夏期における主風向風下である。

(3) 採取時期

本年度は5月及び9月に上記2地点において同一の期間採取を行った。

2.3 分析方法

採取したカラムを管状炉で400℃に加熱して試料水を回収した。回収した試料水の量に応じて容量20mL又は100mLの低拡散ポリエチレンバイアルを用い、それぞれ試料水10mLまたは50mLに液体シンチレータ（Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan）を同量混合し、測定試料とした。測定は液体シンチレーション計数装置（LSC-LB5、日立アロカメディカル）により行い、測定時間は1000分（50分×20回）とした。

試料水中のトリチウム測定結果をもとにHTO、HT及びCH₃Tの大気中濃度を算出した。

3. 調査結果

3.1 モニタリングステーションにおける調査結果

5月及び9月採取分のそれぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表1に示す。それぞれの化学形別トリチウム濃度は2地点において同程度であった。調査を開始した平成22年度以降、六ヶ所再処理工場で使用済燃料のせん断・溶解作業は行われていないため、トリチウムの放出は比較的少なく、測定結果はバックグラウンドレベルであると考えられる。

また、平成22年度以降の調査における化学形別トリチウム濃度の推移を図4に示す。今回の測定値についても、これまでの調査結果と同程度であった。

表1 MS尾駁及びMS吹越における大気中トリチウムの化学形別濃度測定結果

採取期間	MS尾駁			MS吹越		
	HTO濃度 (mBq/m ³)	HT濃度 (mBq/m ³)	CH ₃ T濃度 (mBq/m ³)	HTO濃度 (mBq/m ³)	HT濃度 (mBq/m ³)	CH ₃ T濃度 (mBq/m ³)
H25.5.14~5.21	3.9±0.65	4.5±0.73	3.3±0.35	2.8±0.69	3.5±0.72	1.8±0.31
H25.5.21~5.28	3.8±0.58	3.8±0.62	2.8±0.34	6.7±0.64	5.6±0.62	2.5±0.30
H25.8.28~9.4	(1.9±1.1)	4.4±0.59	1.9±0.36	5.7±1.1	3.8±0.69	1.6±0.34
H25.9.4~9.11	6.5±1.0	3.0±0.66	1.8±0.32	5.2±1.1	3.2±0.63	2.5±0.34

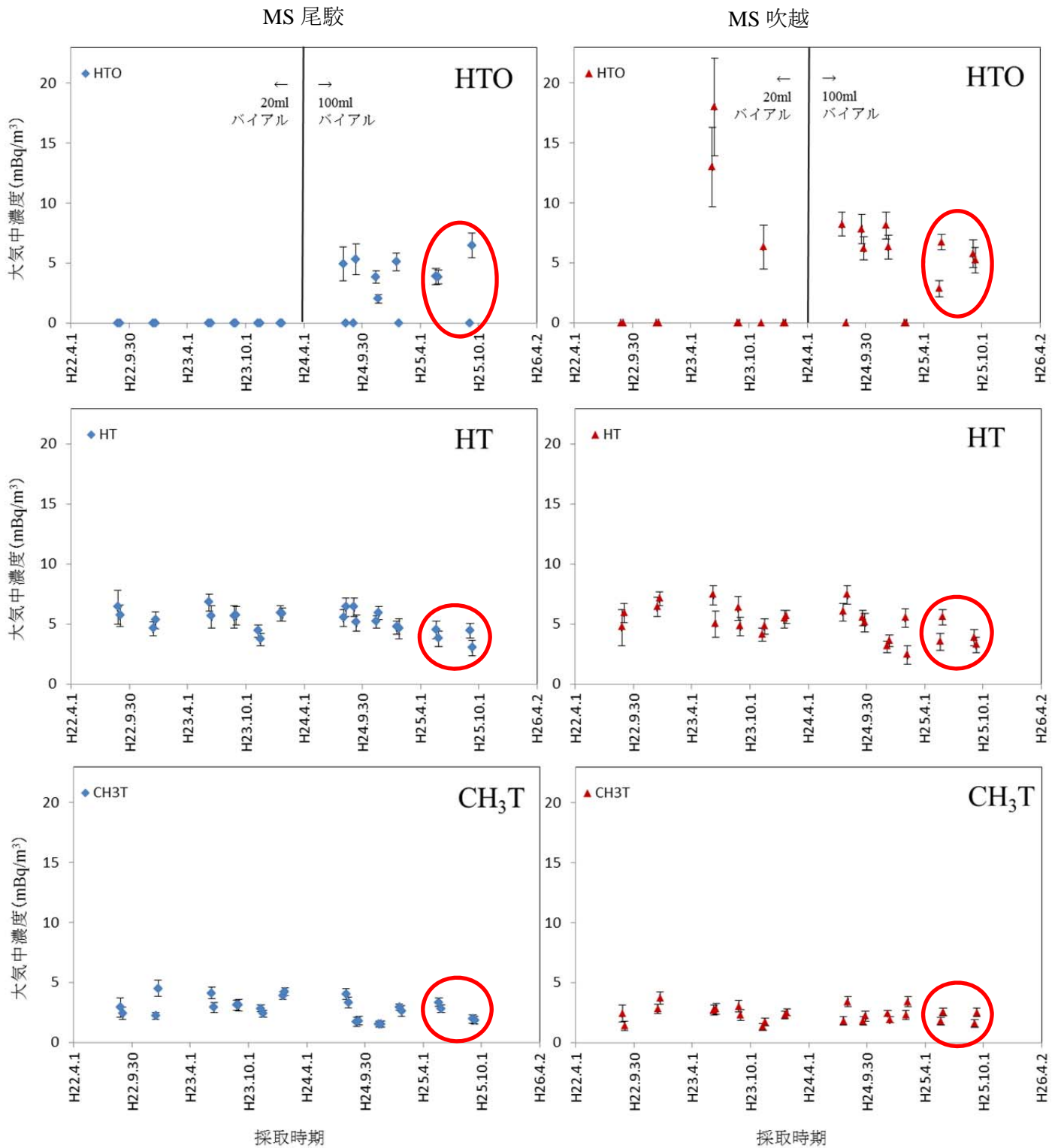


図4 MS尾駁及びMS吹越における大気中トリチウムの化学形別濃度の推移
(楕円部分が今回測定結果)

※検出限界以下は0としてプロット

3.2 環境研が実施している調査との比較

県の測定結果の妥当性を検討するため、環境研の測定結果と試料採取場所が近いMS尾駸局における測定結果を比較した。その結果を経年変化グラフとして図5に示す。県の測定結果は、HTOについては同程度であったが、HTについては2~3割程度低く、CH₃Tについては2~3倍程度高くなった。

また、HT+CH₃T及びCH₃T/HT比の経年変化グラフを図6に示す。HT+CH₃Tは、平均的なレベルとしてはどちらの機関の測定結果も同程度であった。CH₃T/HT比については、環境研で測定開始初期に高い値が見られたものの、それ以外は0.05~0.30で一定であったのに対し、県の測定結果は、環境研より比の値自体が高く変動も大きかった。

以上のように、HT及びCH₃Tは異なるもののHT+CH₃Tのレベルが同程度であることから、県の採取装置において、HT酸化に用いるPt触媒の劣化によりHTが十分に酸化されず、一部が後段のCH₃T捕集部分に流入し、パラジウム触媒によってCH₃Tとともに酸化され捕集されたことが考えられる。このため、Pt触媒について新しく購入したもの（新Pt触媒）及び従来まで使用していたもの（旧Pt触媒）を用い並行試験を行った。並行試験では、青森市駐在分析室内大気を12~14日の期間3回採取し、HT及びCH₃Tの測定を行った。

並行試験の結果を表2に示す。新Pt触媒ではHT 4.4~5.1 mBq/m³、CH₃T 1.4~1.9 mBq/m³、旧Pt触媒ではHT 4.3~4.6 mBq/m³、CH₃T 1.5~1.8 mBq/m³であり、新Pt触媒を用いた場合でもこれまでの環境研の測定値（平均：HT 7.1 mBq/m³、CH₃T 0.77 mBq/m³）に近づく傾向は見られなかった。

また、図5及び図6に並行試験の結果をプロットしたところ、いずれの場合もこれまでの県の測定結果と同程度であった。

Pt触媒の劣化とは異なる他の要因が考えられることから、今後さらなる検討が必要である。

表2 大気中トリチウムの化学形別濃度測定結果（新旧Pt触媒検討）

採取期間	HT濃度(mBq/m ³)		CH ₃ T(mBq/m ³)	
	新Pt触媒	旧Pt触媒	新Pt触媒	旧Pt触媒
H25.11.8~11.21	5.1±0.32	4.6±0.30	1.4±0.15	1.8±0.15
H25.11.21~12.3	4.5±0.35	4.3±0.31	1.8±0.16	1.5±0.14
H25.12.9~12.20	4.4±0.33	4.6±0.40	1.9±0.17	1.7±0.17

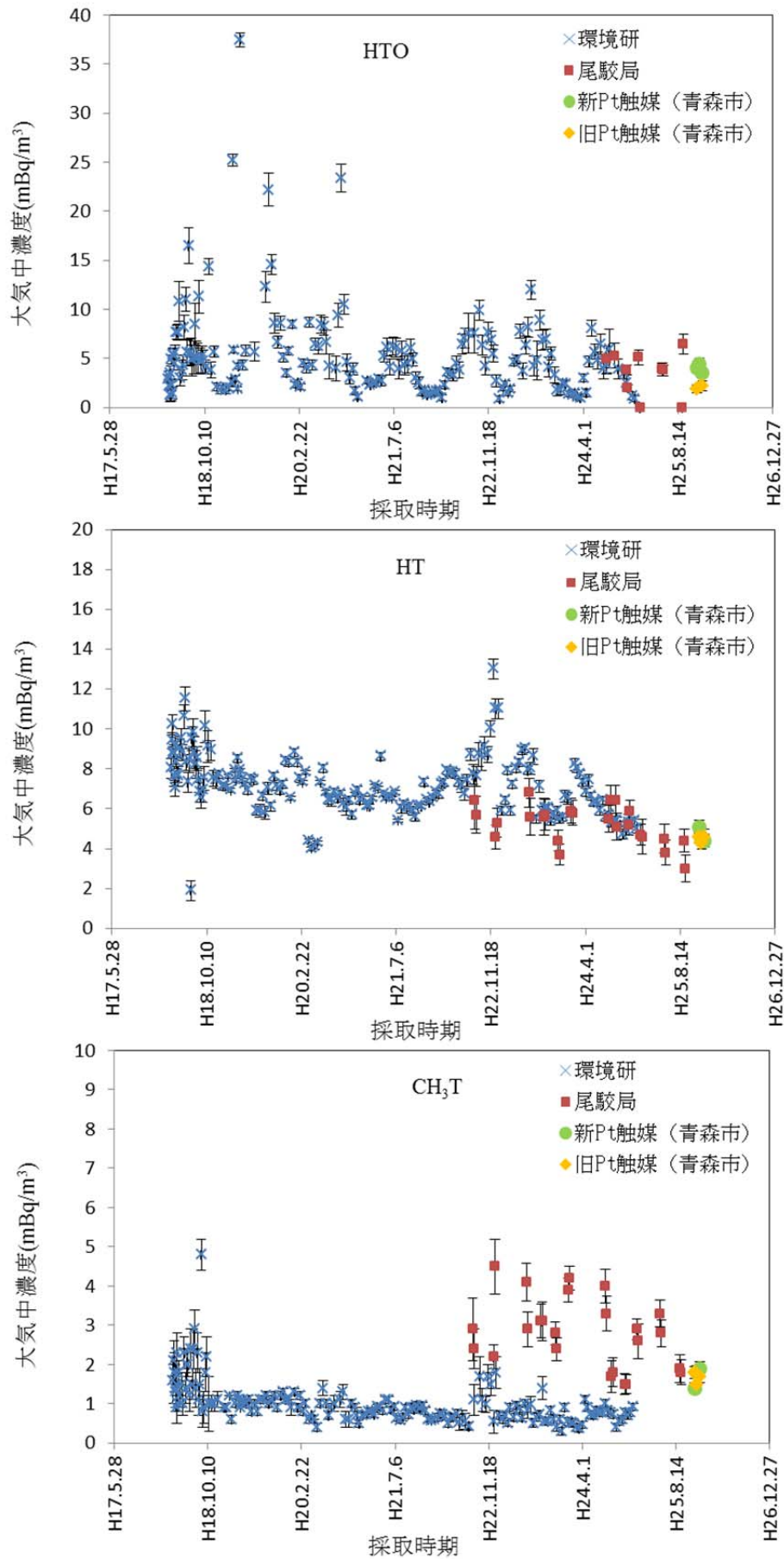


図5 県及び環境研における化学形別トリチウム測定結果の経年変化

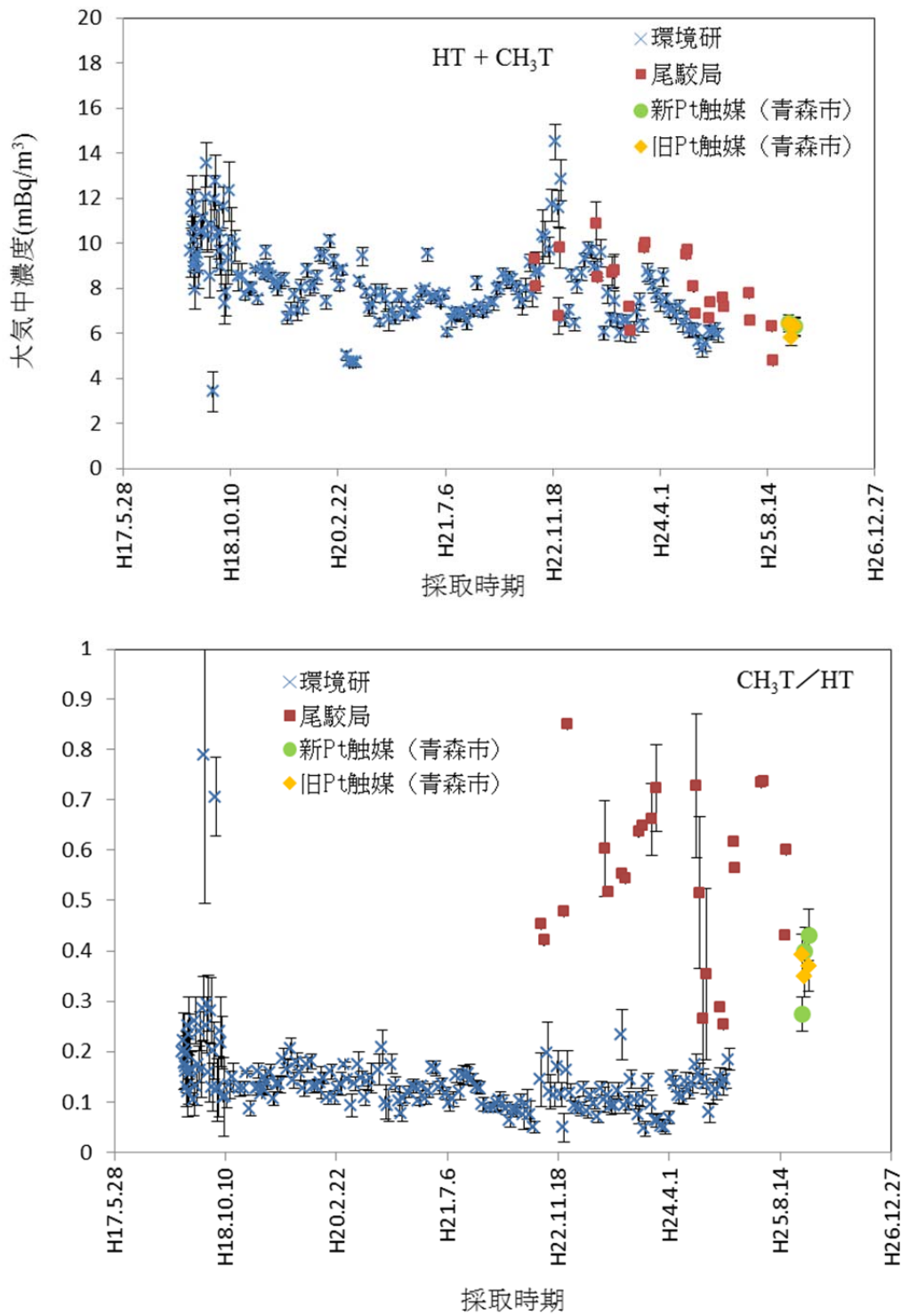


図6 県及び環境研におけるHT+CH₃T（上図）及びCH₃T/HT比（下図）の経年変化

文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, Isotope News, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of ^3H released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 262, 569-572 (2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry, 416-420 (2003)
- 4) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁 : 核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中 ^3H 濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299 (2006)
- 5) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓 : 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323 (2007)
- 6) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 18 年度放出放射能環境分布調査報告書, 164 (平成 19 年)
- 7) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 19 年度放出放射能環境分布調査報告書, 105 (平成 20 年)
- 8) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 20 年度放出放射能環境分布調査報告書, 309 (平成 21 年)
- 9) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 21 年度放出放射能環境分布調査報告書, 345 (平成 22 年)
- 10) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 22 年度排出放射能環境分布調査報告書, 218 (平成 23 年)
- 11) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 23 年度排出放射能環境分布調査報告書, 193 (平成 24 年)
- 12) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 24 年度排出放射能環境分布調査報告書, 275 (平成 25 年)

環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査

坂 恭平 五十嵐 健 二瓶祐介*¹ 工藤俊明*²
幸 進*³ 岡 光昭*³ 岡村泰治*³

1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成18年3月31日からアクティブ試験が行なわれており、クリプトン-85(⁸⁵Kr)、トリチウム(³H)、炭素-14(¹⁴C)及びヨウ素-129(¹²⁹I)などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について(平成18年2月7日 青森県)」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成19年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129について調査を開始した。平成20年度からはヨウ素-131(¹³¹I)を追加し、平成21年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム(非交換型OBT)を追加し実施している。平成24年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

2. 平成25年度の調査計画と今後の進め方

平成25年度の調査計画を表1に示した。富ノ沢の牛乳については、酪農家が乳牛の飼育をやめたため、平成24年度第1四半期で調査を終了した。そのため、代替地点として六原を平成25年度調査計画に追加して調査した。尾駁の精米については、平成25年度は生産者の都合により米を作付しなかったことから、平沼②を代替地点として調査した。その他については、平成24年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。これらの調査結果については平成26年度にとりまとめることとしている。

平成26年度以降、OBT以外は表1の調査計画を基本とし、継続して調査を実施する。OBTについては、これまで海藻類を除くすべての試料について、交換型OBTと非交換型OBTを合わせたOBTを、また、魚類については非交換型OBTも調査してきたが、これらのOBTは生物体内での挙動が異なることや、交換型OBTは分析室内空気中のトリチウムや試料中TFWTの影響を受ける可能性があるため、平成26年度からは、海藻類を除くすべての試料について非交換型OBTを調査する。

*1：現三八地域県民局地域連携部八戸環境管理事務所

*2：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*3：日本原燃株式会社

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 25 年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種				
			³ H			¹⁴ C	¹²⁹ I・ ¹³¹ I
			TFWT	OBT	非交換型 OBT		
牛乳（原乳）	横浜町	4	○	○	—	○	—
	二又		○	○	—	○	—
	豊原		○	○	—	○	—
	六原		○	○	—	○	—
精米	千樽	1	—	○	—	○	—
	野辺地町		—	○	—	○	—
	二又①		—	○	—	○	—
	二又②		—	○	—	○	—
	戸鎖		—	○	—	○	—
	平沼①		—	○	—	○	—
	平沼②		—	○	—	○	—
ハクサイ	出戸	1	○	○	—	○	○
	千樽		○	○	—	○	○
キャベツ	横浜町	1	○	○	—	○	○
ダイコン	出戸	1	○	○	—	○	—
バレイショ	尾駸	1	○	○	—	○	—
ナガイモ	東北町	1	○	○	—	○	—
	平沼		○	○	—	○	—
魚類(ヒラメ)	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②	4	○	○	○	—	—
海藻類(コンブ)	六ヶ所村前面海域①	2	—	—	—	—	○

ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

木村芳伸 工藤俊明*¹

本県では、「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画」に基づき、環境試料（表土）中ヨウ素-129 の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」（以下、「ヨウ素 129 分析法」という）の放射化学分析法（ β 線測定）により実施している。他方、文部科学省放射能測定法シリーズ「環境試料中ヨウ素-129 迅速分析法」（以下、「迅速分析法」という）では、分離精製工程に固相抽出法を、測定に ICP 質量分析法を用いた、迅速で簡便な分析法が記載されている。

迅速分析法の検出限界値（分析目標レベル）はヨウ素 129 分析法に劣るが、供試量を増加させ、さらに、キャリヤガスに含まれる同重体のキセノン 129 による、ヨウ素-129 測定への妨害を抑える機構を備えた ICP 質量分析装置を用いることで、検出限界値を大幅に低減させることが可能であることから、最適な化学分離等の条件、装置による測定条件を確認し、環境放射線モニタリングにおける種々の環境試料への適用可能性を検討することとした。

平成 22 年度は、ヨウ素-129 の測定に供する ICP 質量分析装置として、ダイナミックリアクションセルを備えたパーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e を整備した。平成 23 年度に標準溶液を用いて装置の検出限界値を確認した結果、迅速分析法による表土中ヨウ素-129 の検出限界値は、ヨウ素 129 分析法の 5Bq/kg 乾のおよそ 10 分の 1 となる 0.55Bq/kg 乾であることを確認した。平成 24 年度は、表土の分析条件を見直すことで、検出限界値を 5Bq/kg 乾の 250 分の 1 となる 20mBq/kg 乾まで低減させた。

平成 25 年度は、葉菜及び海藻について、迅速分析法に示されている検出限界値よりも低いレベルまで測定することを目標とした。その際、迅速分析法では、生の葉菜に比較的低濃度のアルカリ溶液を加えて振とうし、試料表面に付着したヨウ素を抽出するところを、本調査では、乾燥・粉碎した試料を高濃度のアルカリ溶液に溶解させ、試料内部に取り込まれたヨウ素も抽出することとした。溶解後の溶液は、ろ過・希釈するだけでそのまま ICP 質量分析装置に導入しヨウ素を測定できるが、固相抽出ディスクを用いて溶液中のヨウ素を分離・精製することにより、検出限界値を下げる事が可能である。これらの方法をもとに葉菜及び海藻の分析条件を検討し、その結果について本所報の研究報告としてとりまとめた。

*¹：現青森県環境生活部原子力安全対策課

青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査

松山 大 赤石 新 五十嵐 健 鈴木将文 大久保英樹

本県では原子力施設周辺の住民等の健康と安全を守るため、原子力施設周辺地域において、空間放射線量率や環境試料中放射能濃度の調査といった環境放射線モニタリングを行っている。

これら原子力施設周辺地域の調査結果に加え、モニタリング対象外地域の環境放射線に係るデータを蓄積し、本県における環境放射線の水準を把握することは、モニタリング結果を解釈する上での参考となるほか、原子力災害発生時に環境へ放出された放射性物質による影響評価に資することができる。

本県では、平成25年度から3か年にわたり、モニタリング地域を含む青森県全域において空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定し、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握することとした。

平成25年度は中南地域及び西北地域において調査を実施しており、調査結果は中間報告として本所報の技術報告としてとりまとめた。

編 集 委 員

木村秀樹（委員長） 福原雅彦（副委員長） 大久保英樹 五十嵐 健
木村芳伸 今 壽貴 田中雄一

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 8 号 (2013)

平成 26 年 3 月 発行

編集・発行 青森県原子力センター

〒039-3215 青森県上北郡六ヶ所村大字倉内字笹崎 400 番 1 号

TEL 0175-74-2251 FAX 0175-74-2442

この印刷物は 210 部作成し、印刷経費は 1 部当たり 1,100 円です。

