

# 青森県原子力センター所報

第3号

平成20年度

Bulletin

Of

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.3 (2008)

青森県原子力センター

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



## はじめに

青森県六ヶ所村ではウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センター、そして再処理工場の一部である使用済燃料受入れ・貯蔵施設が操業されており、再処理工場本体については実際の使用済燃料を用いて行うアクティブ試験の最終段階である第5ステップの試験が行われています。また、MOX燃料工場については平成20年10月に準備工事が開始され平成24年に操業が予定されています。むつ市においては使用済燃料中間貯蔵施設が平成22年の操業予定とされ平成20年3月に準備工事が開始されました。東通村では東北電力（株）東通原子力発電所1号機（BWR110万kW）が営業運転されており、さらに東北電力（株）2号機と東京電力（株）1号機、2号機が計画され、大間町では全炉心MOX燃料装荷可能な大間原子力発電所（ABWR138.3万kW）が運転開始予定を平成26年と計画され、建設工事が進められています。

このような状況のもと、青森県では関係機関の機能を再編成し、原子力施設の総合的な監視機関として平成15年度に当原子力センターを設置しました。早いもので新機関として独立してから6年目が終わろうとしています。新たな機能として設けた青森市駐在については当初は戸惑い試行錯誤を続けておりましたが、ルーチン業務はもとより主たる業務である調査研究事業についても軌道に乗ってきております。また、原子力施設の立ち入りや環境監視を行っている安全監視課、分析課においても調査結果から得た知見や補足調査結果を報告書としてとりまとめる体制も整ってきました。

このように本県の調査研究が順調に充実強化されてきておりますのは、ひとえに関係各位の御指導、御鞭撻の賜と感謝しております。特に、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会、青森県原子力施設環境放射線等監視評価会議及び調査結果検討会の委員の方々には深く感謝申し上げます。

調査研究は、その成果を環境放射線調査結果の評価に資することを目的として実施しておりますが、それを行うことそのこと自体が職員の技術能力の維持・向上につながるものであり、当センターとして欠かすことができない重要な業務です。

今後とも調査研究活動を通じて原子力センター設立の目的の達成のため職員一同全力をつくす所存でございますので、引き続き御支援いただきたくよろしくお願い申し上げます。

平成21年3月

青森県原子力センター  
所長 齋藤 稔



## 目 次

### I 研究報告

1. 青森県の環境放射線モニタリングにおける六ヶ所再処理工場からの影響・・・・・・・・ 3  
－平成 18-19 年度環境試料中放射能測定結果－  
吹越恵里子 木村秀樹 庄司博光 齋藤 稔  
住谷秀一 瀧田昭久 金 泰裕

### II 技術報告

1. 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・評価方法について・・・ 19  
堀田智史 庄司博光 齋藤 稔
2. 環境試料中の H-3、C-14 及び I-129 調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 27  
－平成 19 年度調査結果－  
五十嵐飛鳥 大下内 伸 吹越恵里子 木村秀樹  
田中義也 尾形哲司 住谷秀一
3. 原子力施設前面海域状況調査（イガイ類及び海底土）・・・・・・・・・・・・・・・・ 35  
安積 潔 吹越恵里子 木村秀樹 橋本丈夫

### III 学会等発表要旨・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 45

### IV 平成 20 年度調査研究事業報告

1. 青森県における大気中クリプトン-85 濃度調査・・・・・・・・・・・・・・・・ 51
2. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・・・・・ 60
3. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・ 77
4. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 81
5. ICP 質量分析法による環境試料中のプルトニウム同位体調査・・・・・・・・ 83
6. 原子力施設前面海域状況調査（イガイ類及び海底土）・・・・・・・・ 89
7. 河底土中フッ素濃度の変動に係る原因調査・・・・・・・・・・・・・・・・ 90
8. 東通原子力発電所に係る空間  $\gamma$  線スペクトル測定調査・・・・・・・・ 98



# I 研 究 報 告



## 青森県の環境放射線モニタリングにおける六ヶ所再処理工場からの影響 -平成 18-19 年度環境試料中放射能測定結果-

吹越恵里子 木村秀樹 庄司博光 齋藤 稔  
住谷秀一\*1 瀧田昭久\*1 金 泰裕\*2

青森県並びに日本原燃株式会社及び東北電力株式会社が、原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所周辺地域において実施した平成 18 年度と平成 19 年度の環境放射線モニタリング結果のうち、六ヶ所再処理工場のアクティブ試験の影響と考えられる測定値の変動が認められた環境試料中 H-3 及び C-14 の調査結果について報告する。

大気中水蒸気状 H-3 については、平成 19 年 3 月及び 4 月にモニタリングステーション(MS)尾駮局で採取した大気中水分の測定値が 3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。大気中水蒸気状 H-3 と同様に MS で測定している Kr-85 の平均濃度との関係に基づき、施設寄与について考察した。尾駮沼では、平成 19 年 4 月に採取した湖沼水中 H-3 濃度が ND~3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。尾駮沼は海水が流入する汽水湖であり、塩分と H-3 濃度の関係について考察した。平成 19 年 10 月の調査において、六ヶ所村前面海域で採取した魚類の組織自由水中 H-3 濃度が 2 Bq/L、東通原子力発電所の前面海域における海水中 H-3 濃度が 3 Bq/L 及び 4 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。再処理工場の前面海域における海況等観測結果に基づき、施設寄与について考察した。原子燃料サイクル施設周辺地域において、平成 19 年 9 月から 10 月に採取した精米及び野菜中 C-14 の比放射能に、過去の測定値の範囲を上回るものがあつた。測定値の経年変化、再処理工場からの C-14 の放出状況等から、施設寄与について考察した。これらの測定値に基づき、再処理工場に起因する周辺住民等の預託実効線量を推定・評価したところ、法令に定める周辺監視区域外の実効線量限度に比較して極めて低い値であつた。

### 1. はじめに

青森県には、六ヶ所村に日本原燃株式会社の原子燃料サイクル施設が立地されている。原子燃料サイクル施設は、ウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センター及び再処理工場から構成されている。これらのうち、再処理工場は、年間 800 t・U の使用済燃料の処理能力を持つ、我が国初の商業用大型再処理施設である。再処理工場では、原子力発電所で使用した核燃料を一定期間冷却し、せん断・溶解した後溶媒抽出によりウラン(U)及びプルトニウム(Pu)を取り出す作業が行なわれる。このような運転において、国内外の最良の技術により環境への放出量の低減化が図られているが、放射性物質の放出量は原子力発電所など

\*1：日本原燃株式会社

\*2：東北電力株式会社

に比較して大きい。国の安全審査において放出が想定されている主要な放射性核種は、放射性気体廃棄物として、H-3、C-14、Kr-85、I-129、I-131、その他ヨウ素、その他希ガス、その他核種(β(γ)線を放出する核種)及びその他核種(α線を放出する核種)、放射性液体廃棄物としては、H-3、I-129、I-131、その他核種(α線を放出しない核種)及びその他核種(α線を放出する核種)とされており、推定年間放出量は、多くの核種で東海再処理工場を上回っている<sup>1),2)</sup>。

また、東通村では、東北電力株式会社の東通原子力発電所1号機が平成17年12月から営業運転を行なっている。この原子炉は、沸騰水型軽水炉で電気出力は110万キロワットである。

このような状況のもと、青森県と日本原燃株式会社は原子燃料サイクル施設周辺地域において平成元年4月から、また青森県と東北電力株式会社は東通原子力発電所周辺地域において平成15年4月から環境放射線モニタリングを実施している。モニタリング項目は空間γ線の測定と環境試料中放射性核種の分析測定に大別され、安全審査結果などを参考にして、対象試料や対象核種などを選定している。

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)を開始した。本報告では、青森県並びに日本原燃株式会社及び東北電力株式会社による平成18年度と平成19年度の環境放射線モニタリング結果<sup>3),4)</sup>をもとに、環境試料中H-3及びC-14の測定結果におけるアクティブ試験の影響について考察する。

## 2. 調査方法

### 2.1 青森県における環境放射線モニタリング計画の概要

原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所に係るモニタリング計画の概要は表1に示すとおりである。空間γ線量率の連続測定は、施設周辺地域に設置したモニタリングステーション(MS)11箇所及びモニタリングポスト(MP)8箇所において実施している。MSでは、空間γ線量率に加え、大気浮遊じん中全α及び全β放射能(全αは原子燃料サイクル施設周辺のみ)、大気中気体状β放射能(原子燃料サイクル施設周辺のみ)の連続測定や気象観測も併せて行っている。また、55箇所に蛍光ガラス線量計(RPLD)を設置し、γ線の積算線量の測定を行っている。比較対照として、青森市にMS、むつ市川内町にRPLDを設置し、同様の測定を行なっている。

環境試料中の放射性核種については、大気、大気浮遊じん、湖沼水、表土、農畜産物、海水、海底土、海産食品等を採用し、γ線放出核種、H-3、Sr-90等の分析測定を実施している。

表1 環境放射線モニタリング計画の概要

区分	測定装置・環境試料	測定項目
空間放射線	NaI(Tl)シンチレーション式線量率計 電離箱式線量率計 蛍光ガラス線量計(RPLD)	空間γ線量率 積算線量
環境試料中の放射性核種	大気 大気浮遊じん 雨水 降下物、河川水、湖沼水、水道水、井戸水、河底土、湖底土、表土、農畜産物、淡水産食品、海水、海底土、海産食品、指標生物	気体状β放射能、 <sup>3</sup> H、 <sup>131</sup> I、HF 全α、全β <sup>3</sup> H γ線放出核種、 <sup>3</sup> H、 <sup>14</sup> C、 <sup>90</sup> Sr、 <sup>129</sup> I、Pu、 <sup>241</sup> Am、 <sup>244</sup> Cm、U、F

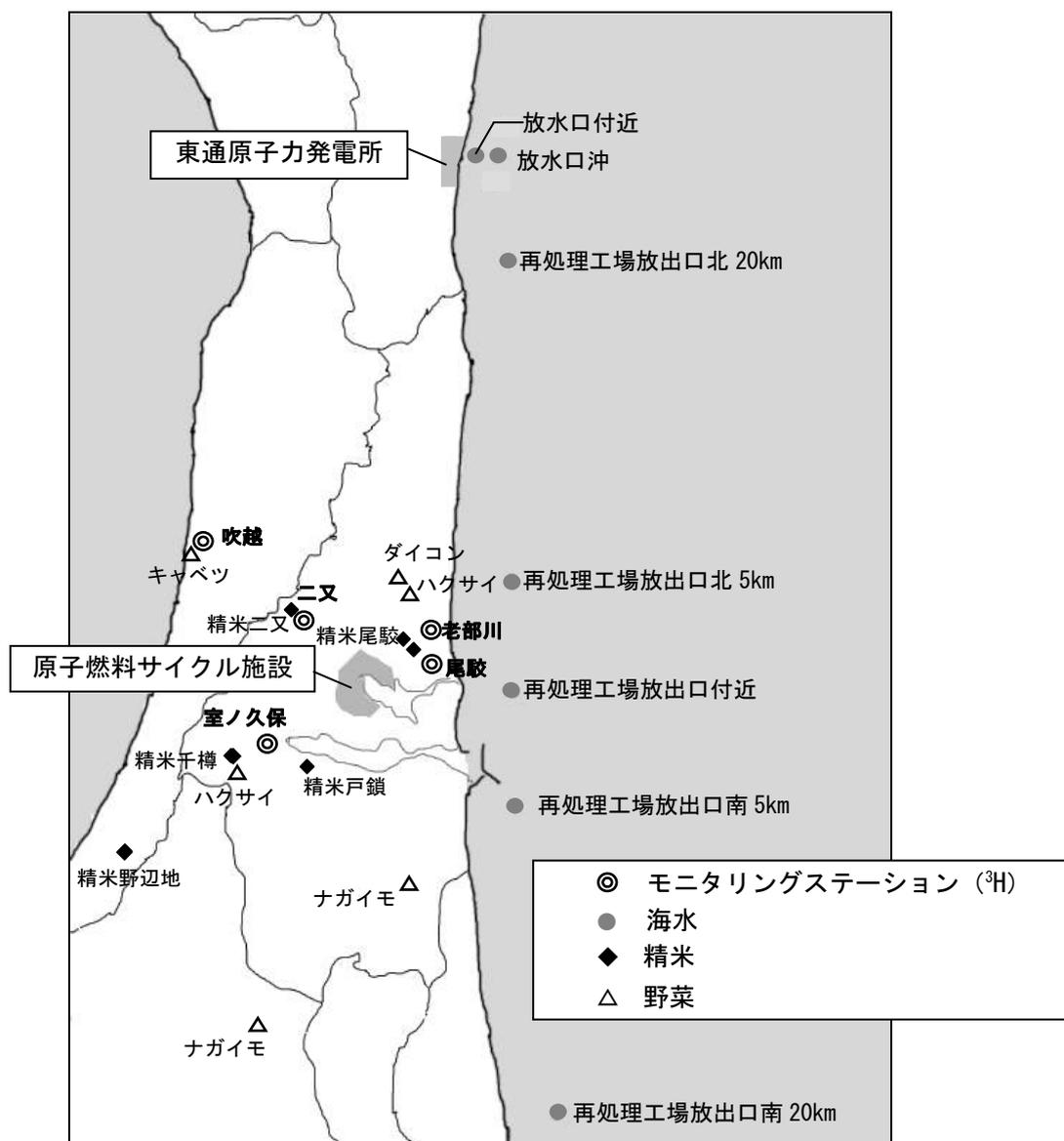


図1 環境試料採取地点 (<sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C)

図1は、原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所に係るモニタリングのうち、本報告で対象とした環境試料の採取地点を示している。

## 2.2 測定方法

### 2.2.1 トリチウム

H-3 は環境中でほとんどが水の形で存在するため、大気中の水蒸気や水道水、海水、魚類（組織自由水）等を対象としている。大気中水蒸気状 H-3 は、大気を連続してモレキュラーシーブカラムに通して水蒸気を捕集した。後にカラムを加熱して回収した水を 1 箇月分まとめ、KMnO<sub>4</sub> と Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub> を加えて蒸留した。魚類は、可食部を取り出した後、真空凍結乾燥法により含まれる組織自由水を回収した。これを KMnO<sub>4</sub> 存在下で還流して有機物を分解後蒸留した。海水等は採取した試料に KMnO<sub>4</sub> と Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub> を加えて蒸留した。このように蒸留、精製した試料に液体シンチレータを混合し、低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置で 50 min×10~20 回測定した。青森県では、このような測定による H-3 の定量下限値を 2 Bq/L と定めている。大気中水蒸気状ト

リチウムについては、捕集用カラムから回収した試料水についてトリチウム濃度を測定し、この水分中濃度に大気中水分量( $\text{g}/\text{m}^3$ )を乗じて大気中濃度を求める。水分中濃度の定量下限値は、水道水等と同様に  $2 \text{ Bq}/\text{L}$  であるが、大気中濃度については、大気中水分量の季節変動を考慮し、定量下限値を  $40 \text{ mBq}/\text{m}^3$  としている。

## 2.2.2 炭素-14

C-14 は、大気の上層部で宇宙線と空気中の窒素との相互作用で生成されており、自然界（天然）に存在している他、核実験や原子力施設により生成されている。そのため、C-14 は再処理工場からの放射性気体廃棄物の主要放出核種であり、環境に放出された C-14 は、光合成により植物体に取り込まれ、それらを人が摂取することになるため、線量評価上重要な核種のひとつである。青森県においては、精米および野菜を対象としてモニタリングを実施している。精米はそのまま、野菜は凍結乾燥後、高圧酸素下で燃焼させ  $\text{CO}_2$  を生成させた。この  $\text{CO}_2$  を金属リチウムと反応させて炭化リチウムとし、水を加えて発生させたアセチレンからクロム触媒を用いてベンゼンを合成した。ベンゼンと液体シンチレータを混合し、低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置で  $50 \text{ min} \times 10$  回の測定をして C-14 の比放射能（炭素量あたりの放射能） $\text{Bq}/\text{gC}$  を求め、試料に含まれる炭素量から試料中 C-14 濃度を算出した。

## 3. 調査結果及び考察

### 3.1 大気中水蒸気状トリチウム

大気中水蒸気状 H-3 の調査は、図 1 に示す MS のうち MS 尾駮局、MS 吹越局、MS 二又局、MS 老部川局及び MS 室ノ久保局の 5 地点及び比較対照である MS 青森局において実施している。平成 19 年 3 月の大気中水蒸気状 H-3 については、大気中濃度 ( $\text{mBq}/\text{m}^3$ ) は全地点で ND ( $40 \text{ mBq}/\text{m}^3$  未満) であったが、水分中濃度 ( $\text{Bq}/\text{L}$ ) は尾駮地点における測定値が  $3 \text{ Bq}/\text{L}$  となり、過去の測定値の範囲 ND ( $2 \text{ Bq}/\text{L}$  未満) ~  $2 \text{ Bq}/\text{L}$  を上回った。また、平成 19 年 4 月の大気中水蒸気状トリチウムについても、大気中濃度 ( $\text{mBq}/\text{m}^3$ ) は全地点で ND であったが、水分中濃度 ( $\text{Bq}/\text{L}$ ) は尾駮地点における測定値が  $3 \text{ Bq}/\text{L}$  となり、3 月と同じ値であった。

表 2 に再処理工場から放射性気体廃棄物として放出されている H-3 及び Kr-85 の月間放出量を示す。H-3 については、使用済燃料のせん断が行われていない月においても、せん断した月に比較し放出量は少ないものの有意な放出が確認されており、一方 Kr-85 については、せん断のない月は検出限界未満となっている。

表 2 再処理工場からの放射性気体廃棄物 ( $^3\text{H}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ ) の放出状況

年月	$^3\text{H}$ (Bq)	$^{85}\text{Kr}$ (Bq)	燃料せん断体数
平成 19 年 1 月	$4.0 \times 10^{10}$	検出限界未満	0 体
平成 19 年 2 月	$5.0 \times 10^{11}$	$2.0 \times 10^{15}$	130 体 (BWR)
平成 19 年 3 月	$9.1 \times 10^{11}$	$3.0 \times 10^{15}$	145 体 (BWR)
平成 19 年 4 月	$1.1 \times 10^{12}$	$4.3 \times 10^{15}$	44 体 (PWR)
平成 19 年 5 月	$1.6 \times 10^{11}$	検出限界未満	0 体
平成 19 年 6 月	$6.0 \times 10^{10}$	検出限界未満	0 体

平成 19 年 3 月の大気中 H-3 試料が採取された 3 月 1 日～3 月 30 日のうちせん断・溶解が行われていたのは 1 日から 8 日までであり、この期間の再処理工場の上空 150m における風向は、図 2 に示すとおり西からの

風が卓越していた。モニタリングステーション尾駁局は主排気筒の東側に位置しており、気体状β放射能濃度（Kr-85）の測定結果には、施設寄与と考えられる変動が認められている。

使用済燃料のせん断・溶解期間中において Kr-85 の放出と H-3 の放出量の比が一定であり、また放出された H-3 が Kr-85 と同様に大気中を移流・拡散すると仮定すれば、この期間中に各測定地点において測定された Kr-85 濃度は、同じ測定地点における大気中水蒸気状 H-3 濃度の指標になると考えられるため、「Kr-85 平均濃度」と H-3 の水分中濃度との相関について検討した。なお、Kr-85 平均濃度の算出には、10 分値（10 分間の計測値から求めた濃度）を用い、施設寄与が認められない測定値を 0 とし算出した。また、H-3 の水分中濃度については定量下限値未満の測定値についても定量された測定値とみなして取り扱った。

その結果、図 3 に示すとおり、各測定局・地点における Kr-85 平均濃度とトリチウムの水分中濃度に正の相関関係が確認されており、尾駁地点における平成 19 年 3 月の大気中水蒸気状トリチウムの測定結果には、施設からの寄与があるものと考えられる。

平成 19 年 4 月については、3 月 31 日～4 月 27 日の期間に採取しており、再処理工場では、4 月 8 日から 4 月 15 日にかけて使用済燃料のせん断・溶解が実施されている。せん断・溶解が実施されている期間の再処理工場上空 150 m における風配図を図 4 に示す。また図 5 は、Kr-85 の放出と風向の変動状況を詳細に示したものである。図 4 をみると西方向からの風と東方向からの風の出現頻度が同程度であったが、図 5 では Kr-85 の放出があった期間は主に西方向からの風が卓越していたことがわかる。

3 月と同様に「Kr-85 平均濃度」と H-3 の水分中濃度との相関について検討したものが図 6 である。主排気筒の東側に位置する MS 尾駁局は、「Kr-85 平均濃度」と H-3 の水分中濃度が共に高くなっているが、主排気筒の西側にある MS 二又局については、H-3 の水分中濃度が比較的高いものの「Kr-85 平均濃度」は低い。MS 二又局の方向へ風向が変わった 4 月 13 日から 15 日は、せん断・溶解作業が休止されていた期間が長く Kr-85 の放出も少なかったが、H-3 については、ある程度の放出があったためこのような結果になったものと考えられる。

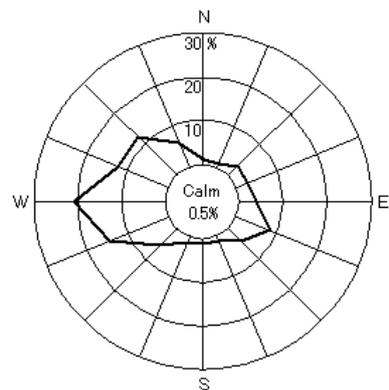


図 2 再処理工場上空 150m における風配図  
(平成 19 年 3 月 1 日～8 日)

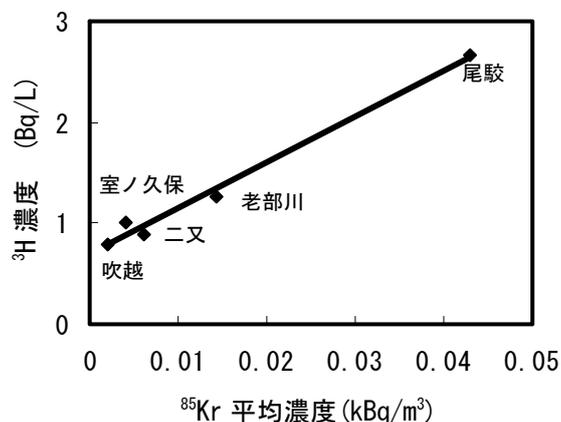


図 3  $^{85}\text{Kr}$  平均濃度（平成 19 年 3 月 1 日～8 日）と  $^3\text{H}$  水分中濃度（平成 19 年 3 月）

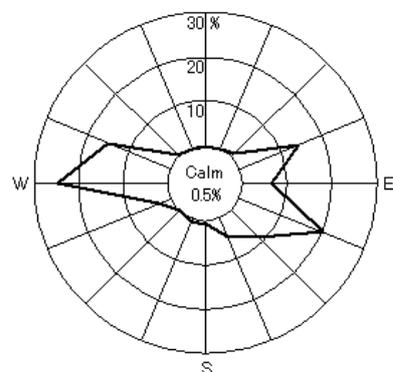


図 4 再処理工場上空 150m における風配図  
(平成 19 年 4 月 8 日～15 日)

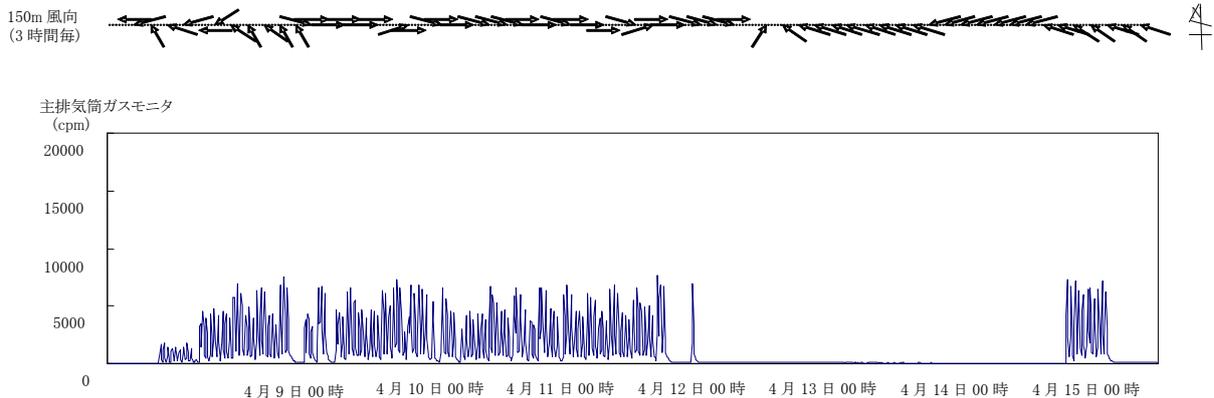


図5 平成19年4月8日～4月15日の主排気筒ガスモニタの変動状況と風向

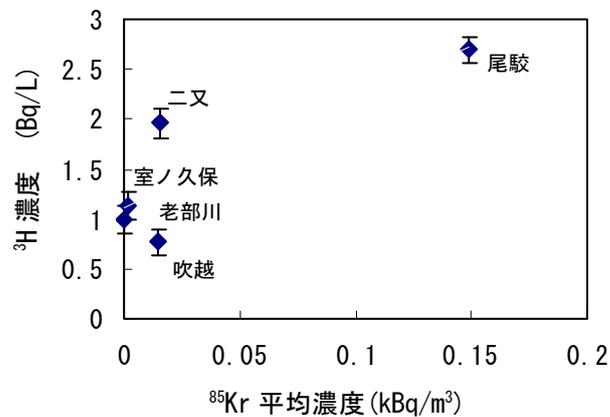


図6 Kr-85 平均濃度 (H19年4月8日～15日) と H-3 水分中濃度 (H19年4月)

### 3.2 湖沼水中トリチウム

六ヶ所村の中央部に位置し、原子燃料サイクル施設が隣接する尾駁沼は、海水が流入する汽水湖である。尾駁沼における湖沼水の調査は、図7に示す3地点において、年4回表面水を採取して行っている。平成19年4月の調査において、4月17日に採取した湖沼水中 H-3 濃度は地点 A 及び地点 B でそれぞれ 2 Bq/L 及び 3 Bq/L であり、その翌日の4月18日に採取した地点 C の湖沼水では ND (2 Bq/L 未満) であった。地点 A 及び地点 B の測定値は、過去の測定値 ND を上回った。

再処理工場からの H-3 を含む放射性液体廃棄物は安全を確認後、図7に示すとおり海洋放出口 (沖合約 3 km、水深約 44 m) から六ヶ所村前面海域に放出されている。4月においては、試料採取日 (17日) の前の6日、7日及び14日に放出が行われている。

尾駁沼には海域から海水の流入があるので、この影響を把握するために、採取した湖沼水の塩分の測定も行っている。過去の調査結果においては、湖沼水の塩分は 4.0～27 (参考：標準海水の塩分は約 35) であり、海水の影響割合は大きく変化しているが、いずれも H-3 濃度は ND であった。

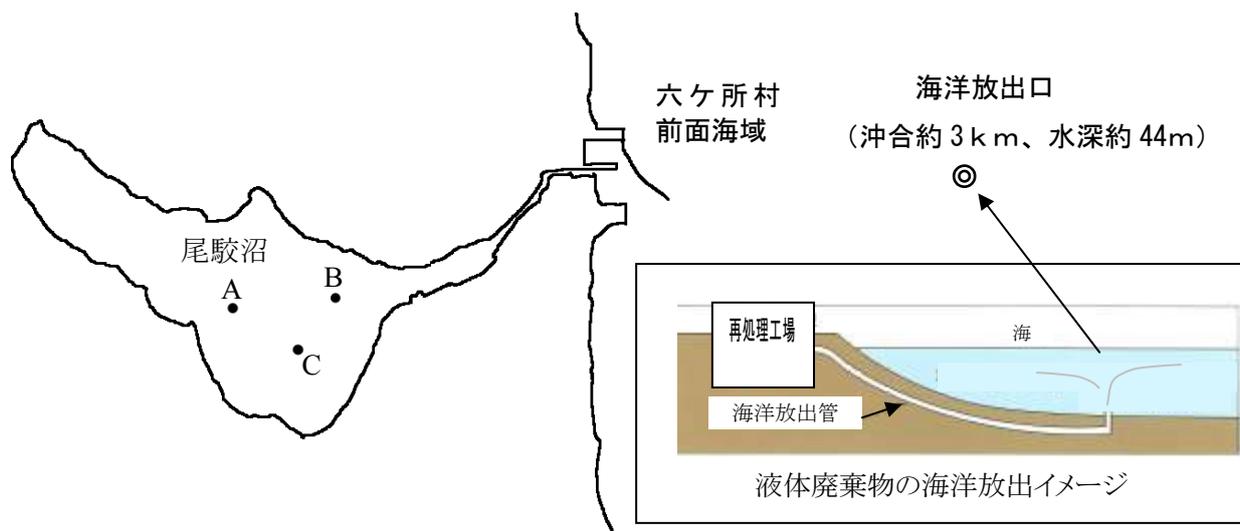


図 7 尾駁沼における湖沼水採取地点と海洋放出口

今回の測定結果における H-3 濃度と塩分の関係を図 8 に示す。地点 C の H-3 濃度については ND (2 Bq/L 未満) ではあったが、測定された値をそのままプロットした。塩分が高いほど、すなわち尾駁沼への海水の流入が大きいほど H-3 濃度も高くなる傾向を示している。このようなことから、再処理工場から放出された H-3 を含む液体廃棄物が海域において海水と混合し、その海水の一部が潮汐等によって尾駁沼に流入したと推定される。

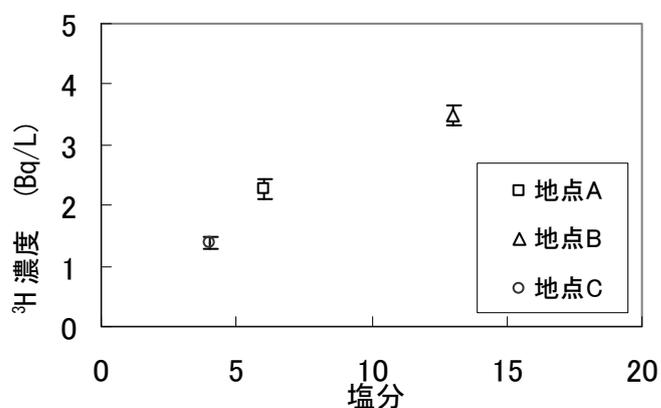


図 8 湖沼水中塩分と <sup>3</sup>H 濃度の関係

### 3.3 海洋試料中トリチウム

平成 19 年 10 月における再処理工場及び東通原子力発電所からの H-3 放出状況と海水及び魚類 (組織自由水) 中 H-3 の測定結果を表 4 に示す。県実施分の魚類 (組織自由水) については、試料生 1 kg 当たりの放射能濃度は ND (2 Bq/kg 生未満) であったが、組織自由水として含まれる水分中の濃度は 2 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。また、東北電力株式会社実施分の海水については、東通原子力発電所放水口付近で 4 Bq/L、放水口沖で 3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。

魚類 (組織自由水) 中の H-3 は、試料から真空凍結乾燥法により水分 (組織自由水) を取り出して水分中濃度を測定し、この水分中濃度と試料に含まれる水分量から次式により試料中の H-3 濃度を求めた。

$$\text{試料中 H-3 濃度 (Bq/kg 生)} = \text{水分中トリチウム濃度 (Bq/L)} \times \text{試料に含まれる水分量 (L/kg 生)}$$

H-3 の定量下限値は、試料中濃度が 2 Bq/kg 生、水分中濃度が水道水等と同様に 2 Bq/L であり、試料に含まれる水分量は通常 0.7~0.8 L/kg 生であることから、今回のように水分中濃度が定量下限値以上であっても、試料中濃度が ND (2 Bq/kg 生未満) になる場合がある。

表 4 平成 19 年 10 月における放出状況及びモニタリング結果

月日	放 出 状 況						モニタリング結果	
	再処理工場			東通原子力発電所			試料名 (実施者)	トリチウム 濃度 (Bq/L)
	排水量 (m <sup>3</sup> )	トリチウム 放出量 (Bq)	トリチウム 放出濃度 <sup>※1</sup> (Bq/L)	排水量 <sup>※2</sup> (m <sup>3</sup> )	トリチウム 放出量 (Bq)	トリチウム 放出濃度 <sup>※3</sup> (Bq/L)		
10/2	584.8	9.9×10 <sup>13</sup>	1.7×10 <sup>8</sup>	—	—	—		
10/3	—	—	—	—	—	—	海水 (県)	ND <sup>※4</sup>
10/4	585.3	8.5×10 <sup>13</sup>	1.5×10 <sup>8</sup>	—	—	—		
10/6	586.4	8.3×10 <sup>13</sup>	1.4×10 <sup>8</sup>	—	—	—		
10/10	—	—	—	27.1	* <sup>※5</sup>	<2 <sup>※6</sup>	海水 (日本原燃)	ND <sup>※7</sup>
							海水 (東北電力)	4、3 <sup>※8</sup>
10/11	583.6	7.0×10 <sup>13</sup>	1.2×10 <sup>8</sup>	15.3	* <sup>※5</sup>	<2 <sup>※6</sup>		
10/13	586.2	5.0×10 <sup>13</sup>	8.6×10 <sup>7</sup>	—	—	—		
10/17	575.1	2.4×10 <sup>10</sup>	4.2×10 <sup>4</sup>	15.9	* <sup>※5</sup>	<2 <sup>※6</sup>		
10/18	586.7	5.2×10 <sup>13</sup>	8.9×10 <sup>7</sup>	—	—	—		
10/19	543.4	5.2×10 <sup>13</sup>	9.6×10 <sup>7</sup>	—	—	—		
10/23	—	—	—	—	—	—	魚類組織自由水 (県)	2 <sup>※9</sup>
10/27	581.5	1.9×10 <sup>13</sup>	3.2×10 <sup>7</sup>	—	—	—		
10/31	585.5	1.3×10 <sup>13</sup>	2.2×10 <sup>7</sup>	—	—	—		

※1 トリチウム放出濃度は、トリチウムの放出量 (Bq) と排水量 (m<sup>3</sup>) から算出。

※2 排水量は、液体廃棄物処理系の最終タンクから復水器冷却水 (復水器を通過した海水) に排水する量。

※3 液体廃棄物は、復水器冷却水 (復水器を通過した海水) と混合・希釈した後、東通原発前面海域へ放出される。トリチウム放出濃度は、液体廃棄物中トリチウム濃度を復水器冷却水による希釈倍率で除すことにより算出。

※4 全地点 (3 地点: 放出口付近、放出口北 20km 地点、放出口南 20km 地点) において ND (定量下限値未満: <2Bq/L)。

※5 \* : 検出限界未満。

※6 液体廃棄物中トリチウム濃度は、「発電用軽水型原子炉施設における放出放射性物質の測定に関する指針」で定められている測定下限濃度 (2.0×10<sup>-1</sup> Bq/cm<sup>3</sup>) 以下であったことから、復水器冷却水により混合・希釈 (約 4 万倍) された後のトリチウム放出濃度は 2 Bq/L を充分下回る。

※7 全地点 (3 地点: 放出口付近、放出口北 5km 地点、放出口南 5km 地点) において ND (定量下限値未満: <2Bq/L)。

※8 放水口付近において 4 Bq/L、放水口沖において 3 Bq/L。

※9 魚類については水分中濃度。

表 4 に示すとおり、東通原子力発電所からのトリチウム放出濃度は、いずれも 2 Bq/L 未満であった。一方、再処理工場については、10 月に 10 回放出しており、そのトリチウム放出濃度は、4.2×10<sup>4</sup> Bq/L～1.7×10<sup>8</sup> Bq/L であった。

東通原子力発電所に係る海水の採取地点は図 1 に示すように再処理工場海洋放出口の北側に位置しており、魚類の採取海域も同様に海洋放出口の北側である。再処理工場の前面海域における、10 月 2 日から 10 日までの期間及び翌 10 月 11 日から 23 日までの期間の流向別流速出現頻度は

図9に示すとおりであり、いずれの期間も北向きの海流が多く、海洋放出口から海水採取地点及び魚類採取海域の方向へ向かう海流が卓越していた。

以上の状況から、これらのトリチウム濃度が過去の測定値の範囲を上回ったのは、再処理工場におけるアクティブ試験の影響と考えられる。

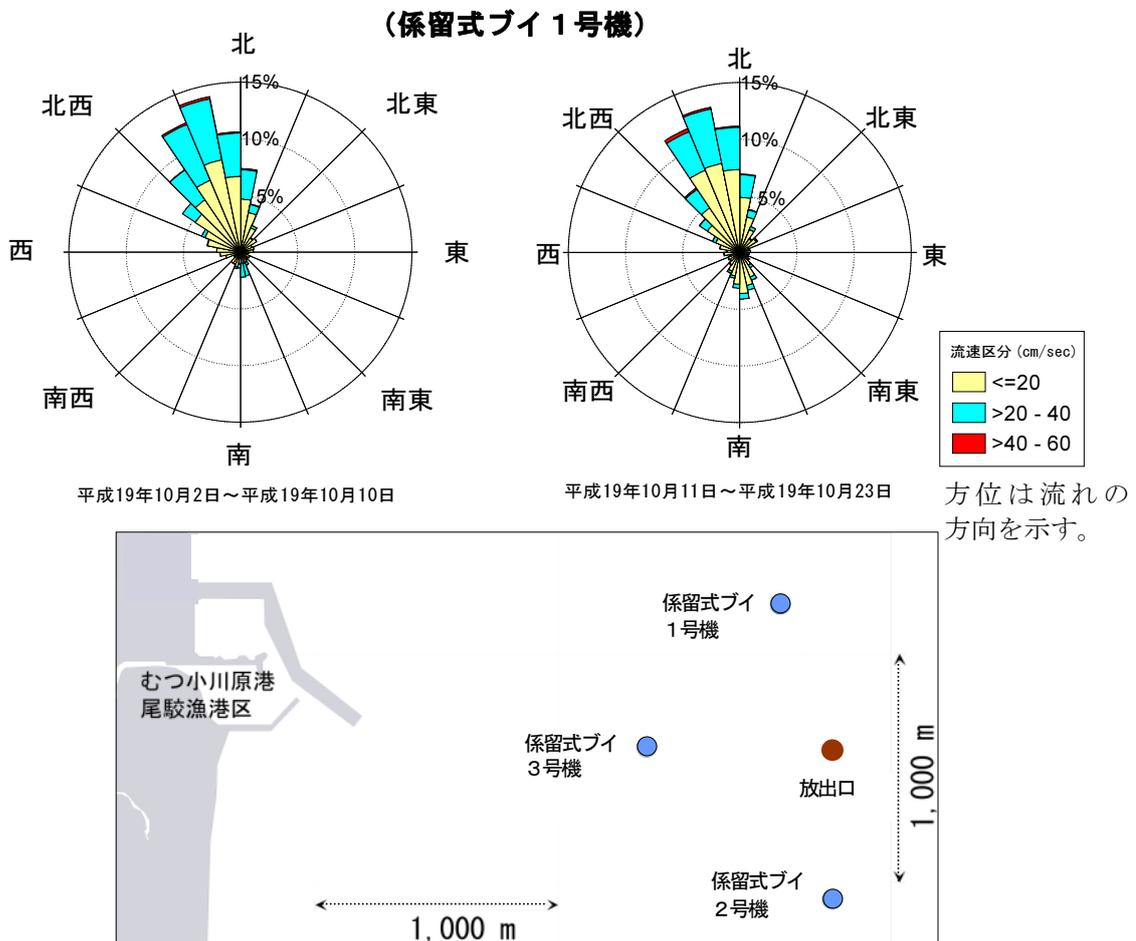


図9 流向別流速出現頻度(上)及び係留式ブイ配置図(下)

(注1) 図中の流向は海流が向かう方向を示す。

(注2) 県が(財)日本海洋科学振興財団に委託している、「六ヶ所村海洋沖合海洋放射能等調査」の一環として得られた観測データである。

### 3.4 生物試料中の炭素-14

平成19年度第3四半期の精米及び野菜のC-14測定結果を表5に示す。C-14の比放射能が、精米の尾駁(事業者実施分)で0.26 Bq/gC、ハクサイ(出戸)が0.25 Bq/gC、ハクサイ(千樽)が0.26 Bq/gC、キャベツ(横浜町)が0.27 Bq/gC、ナガイモ(平沼)が0.26 Bq/gCとなり、それぞれ当該地点の過去の測定値の範囲を上回った。放射能濃度(Bq/kg生)では、ハクサイ(出戸、千樽)及びダイコン(出戸)が当該地点の過去の測定値を上回り、ナガイモ(東北町)が下回った。

表5 精米及び野菜中の炭素-14 測定結果（平成19年度第3四半期）

上段：放射能濃度（Bq/kg 生）、下段：比放射能（Bq/g 炭素）

試料	採取地点	採取年月日	測定値	過去の測定値の範囲	参考炭素量 gC/kg生 (過去の範囲)
精米	尾駸 (県)	H19.10.7	91 <b>0.24</b>	88~91 <b>0.24~0.25</b>	377 (361~381)
	尾駸 (事業者)	H19.9.24	100 <b>0.26</b>	87~110 <b>0.23~0.25</b>	389 (394~423)
	千樽 (県)	H19.10.2	93 <b>0.25</b>	90~98 <b>0.24~0.25</b>	373 (370~381)
	戸鎖 (事業者)	H19.10.1	99 <b>0.26</b>	88~110 <b>0.24~0.26</b>	388 (394~513)
	二又 (事業者)	H19.10.2	97 <b>0.25</b>	88~110 <b>0.24~0.25</b>	386 (393~423)
	野辺地町 (県)	H19.10.1	94 <b>0.25</b>	87~100 <b>0.24~0.26</b>	375 (365~379)
	比較対照 (青森市)	H19.9.29	90 <b>0.24</b>	88~97 <b>0.24~0.26</b>	371 (358~374)
ハクサイ	出戸 (県)	H19.10.29	5 <b>0.25</b>	3~4 <b>0.24</b>	19.2 (14.6~15.2)
	千樽 (事業者)	H19.10.18	6 <b>0.26</b>	4 <b>0.24~0.25</b>	21.8 (16.9~21.8)
キャベツ	横浜町 (県)	H19.10.4	6 <b>0.27</b>	5~7 <b>0.24~0.25</b>	21.6 (22.3~27.8)
ナガイモ	平沼 (事業者)	H19.11.27	18 <b>0.26</b>	16~18 <b>0.25</b>	67.7 (66.4~72.4)
	東北町 (県)	H19.12.1	15 <b>0.24</b>	16~17 <b>0.24</b>	62.3 (67.3~71.2)
ダイコン	出戸 (県)	H19.10.29	5 <b>0.24</b>	4 <b>0.24</b>	20.9 (17.6~17.9)

独立行政法人放射線医学総合研究所の調査において、植物由来有機成分中 C-14 の比放射能は、大気圏核実験の開始に伴い、1963年に最大に達した後、年々減少率が小さくなりつつもなお減少傾向が続いていることが報告されている。本県においても、精米及び野菜の C-14 比放射能の平均値は、図10に示すように平成18年度まで同様に減少傾向がみられる。一方、平成19年度の平均値はここ数年より高くなっており、個々の測定値では、それぞれの地点の過去の最大値を上回ったものもある。平成19年における再処理工場のアクティブ試験に伴い放出された気体廃棄物（C-14）の放出状況を確認したところ、5月から8月までは検出限界未満であったが、精米や野菜の採取時期に近い9月と10月には放出が確認されている。

放射能濃度は試料の生育・発育状況により変動することが考えられるが、C-14の比放射能は自然環境においてはほぼ一定であることから、施設からの影響を評価するための指標になると考えられる。

測定結果及び再処理工場からの放出状況を勘案すれば、今四半期に調査した精米及び野菜には、再処理工場のアクティブ試験による C-14 の影響があったものと考えられる。

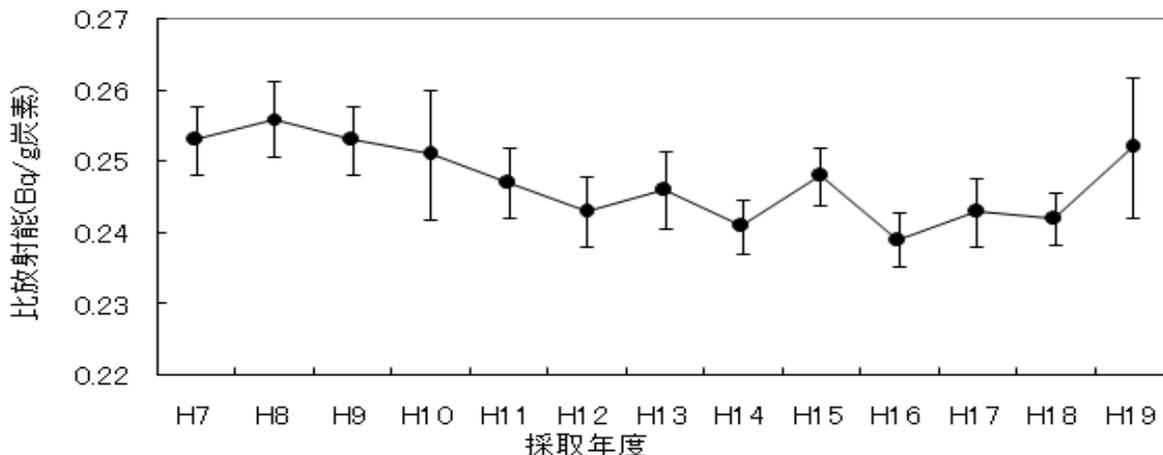


図 10 農産物中 <sup>14</sup>C 比放射能の平均値の経年変化

(注 1) 試料数 平成 7～16 年度 精米：7

平成 17～19 年度 精米：7、野菜：6

(注 2) エラーバーは標準偏差を示す。

### 3.5 測定結果に基づく線量の推定・評価

測定結果に基づく線量の推定・評価は、「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結果の評価方法」（平成 18 年 4 月改訂、青森県）<sup>3)</sup> 及び「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）<sup>3)</sup> に基づき実施した。

#### 3.5.1 大気中トリチウム

大気中水蒸気状トリチウムについては、大気中濃度がすべての地点で ND であったことから、空気の吸入摂取による預託実効線量の算出は行わないこととしているが、参考として、大気中濃度が定量下限値 (40 mBq/m<sup>3</sup>) の空気を 1 年間吸入した場合の預託実効線量を試算すると、0.000009 mSv であった。

また、トリチウムの大気中濃度の算出に用いる水分中濃度に施設寄与が認められたことから、「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、参考として、陸域の生物試料（米、葉菜、根菜・いも類及び牛乳）の経口摂取による預託実効線量を試算した。試算に当たっては、生物試料のトリチウムの比放射能が大気中水分の比放射能と等しいとし、実効線量係数は国の安全審査に用いられた有機結合型トリチウムの値 ( $4.2 \times 10^{-8}$  mSv/Bq) を用いて、それらの試料を 1 年間摂取するものとした。また、大気的水分中濃度は、尾駱地点で 3 月に 3 Bq/L が測定されたことから、当該月については 3 Bq/L、その他の期

表 6 陸上生物試料中トリチウムの経口摂取による預託実効線量試算結果（単位：mSv/年）

食品等の種類	実効線量
米	0.000006
葉 菜	0.000012
根菜・いも類	0.000007
牛 乳	0.000008
合 計	0.000033

間（11 箇月）については定量下限値（2 Bq/L）として平成 18 年度 1 年間の平均値（2.1 Bq/L）を算出した。試算結果は、表 6 に示すとおり合計で 0.000033 mSv となった。

### 3.5.2 海洋試料中トリチウム

測定結果に基づく線量の試算は、「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結果の評価方法」（平成 18 年 4 月改訂、青森県）に基づき実施することとしており、魚類（組織自由水）中のトリチウムについては、試料中濃度が ND（2 Bq/kg 生未満）であったことから、海水魚の経口摂取による預託実効線量の算出は行わないこととしているが、参考として組織自由水中トリチウム濃度が定量下限値（2 Bq/kg 生未満）の海水魚を 1 年間経口摂取した場合の預託実効線量を試算すると、0.000003 mSv/年<sup>\*1</sup>であった。

<sup>\*1</sup> 預託実効線量の算出パラメータ

- ・ 1 日摂取量 海水魚 200 g/日
- ・ トリチウム（水）1Bq を経口摂取した場合の成人の実効線量係数  $1.8 \times 10^{-8}$  mSv/Bq

### 3.5.3 生物試料中炭素-14

精米及び野菜中の C-14 については、直近の 3 年間（平成 16 年度から平成 18 年度）における全試料の比放射能の平均値 0.24 Bq/g 炭素をバックグラウンドとし、平成 19 年度の測定値との差を再処理工場からの寄与分とみなして経口摂取による預託実効線量を試算した。

これらの精米及び野菜を 1 年間摂取した場合の試算結果は表 7 に示すとおり、精米で 0.0005 mSv、葉菜で 0.00005 mSv 及び根菜・いも類で 0.00007 mSv であった。

また、今四半期の測定結果をもとに、天然の C-14 を含めた試料に含まれる全 C-14 年間の実効線量を試算したところ、過去の試算結果と同程度であった。

表 7 試料中の<sup>14</sup>Cによる預託実効線量の試算結果（単位：mSv/年）

試料の区分	H19年度		過去の試算結果の範囲
	再処理工場の影響 とみなしたもの	天然の <sup>14</sup> Cを 含めたもの	天然の <sup>14</sup> Cを 含めたもの
精米	0.0005	0.0065	0.0061～0.0070
葉菜	0.00005	0.0004	0.0003～0.0004
根菜・いも類	0.00007	0.0006	0.0007

注)過去の試算結果の範囲は、精米は平成 7～18年度、葉菜及び根菜・いも類は平成 17～18年度の値

預託実効線量の算出パラメータ

- ・ 食品等の 1 日摂取量 米 320g、葉菜 370g、根菜・いも類 230g
- ・ 1 Bq を経口摂取した場合の成人の実効線量係数 C-14： $5.8 \times 10^{-7}$  mSv/Bq

以上のように、本調査における測定結果に基づき六ヶ所再処理工場に起因する周辺住民等の預託実効線量を推定・評価したところ、いずれの結果も法令に定める周辺監視区域外の実効線量限度（1 mSv/年）に比較して極めて低い値であった。

#### 4. まとめ

- 1) 平成 18 年度及び平成 19 年度の環境放射線モニタリング結果をもとに、環境試料中 H-3 及び C-14 の測定結果における六ヶ所再処理工場のアクティブ試験の影響について考察した。
- 2) 大気中水蒸気状 H-3 については、平成 19 年 3 月及び 4 月にモニタリングステーション(MS)尾駁局で採取した大気中水分の測定値が 3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。大気中水蒸気状 H-3 濃度は、同一地点で測定している「Kr-85 平均濃度」及びその地域の風向と関連が認められており、アクティブ試験の影響が考えられる。
- 3) 尾駁沼で平成 19 年 4 月に採取した湖沼水中 H-3 濃度が ND~3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。尾駁沼は海水が流入する汽水湖であり、この時期は、湖沼水の塩分が高いほど、すなわち尾駁沼への海水の流入が大きいほど H-3 濃度も高くなる傾向を示している。このようなことから、再処理工場から放出された H-3 を含む放射性液体廃棄物が海域において海水と混合し、その海水の一部が潮汐等によって尾駁沼に流入したことによると推定される。
- 4) 平成 19 年 10 月の調査において、六ヶ所村前面海域で採取した魚類の組織自由水中 H-3 濃度が 2 Bq/L、東通原子力発電所の前面海域における海水中 H-3 濃度が 3 Bq/L 及び 4 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。再処理工場の前面海域における流向別流速出現頻度から、試料採取時期に再処理工場の海洋放出口から、海水採取地点及び魚類採取海域の方向へ向かう海流が卓越していたことが確認されており、アクティブ試験の影響が考えられる。
- 5) 原子燃料サイクル施設周辺地域において、平成 19 年 9 月から 10 月に採取した精米及び野菜中 C-14 の比放射能に、過去の測定値の範囲を上回るものがあった。C-14 比放射能の平均値は、平成 18 年度まで減少傾向がみられたが、平成 19 年度の平均値はここ数年より高くなっており、個々の測定値では、それぞれの地点の過去の最大値を上回ったものもある。アクティブ試験に伴い放出された放射性気体廃棄物 (C-14) の放出状況を確認したところ、平成 19 年 5 月から 8 月までは検出限界未満であったが、精米や野菜の採取時期に近い 9 月と 10 月には放出が確認されており、これらの精米及び野菜には、アクティブ試験の影響があったものと考えられる。
- 6) これらの測定結果に基づき、再処理工場に起因する周辺住民等の預託実効線量を推定・評価したところ、法令に定める周辺監視区域外の実効線量限度(1 mSv/年)に比較して十分低い値であった。

#### 文 献

- 1)日本原燃株式会社：再処理事業指定申請書(平成元年 3 月)
- 2)K.SHINOHARA：Studies on Assessment of Radiological Effects on the Regional Environment Due to the Operation of the Tokai Reprocessing Plant. *Doctoral Thesis* (2004)
- 3)青森県：原子力施設環境放射線調査結果報告書 (平成 18 年度報)
- 4)青森県：原子力施設環境放射線調査結果報告書 (平成 19 年度報)
- 5)府馬正一,井上義和, 宮本霧子,武田洋,岩倉哲男,新井清彦,樫田義彦,一政祐輔：1990 年代の日本における 14C の環境バックグラウンドレベル,RADIOISOTOPES,51,381-391(2002)



## II 技 術 報 告



## 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・評価について

堀田智史 庄司博光 齋藤 稔

### 1. はじめに

再処理工場におけるアクティブ試験（使用済燃料による総合試験）は、平成18年3月31日から開始しており、使用済燃料のせん断・溶解に伴い、環境における空間放射線量率の測定値に施設起因と考えられる変動が認められている。

このことから、空間放射線量率と Bi-214、Tl-208 から放出される $\gamma$ 線の計数率に着目した SCA(Bi)、SCA(Tl) の関係を重回帰分析により求め、得られた重回帰式により求めた推定自然線量率を実測値から差し引き、施設からの寄与分を弁別する SCA 弁別法について平成18年度から検討している<sup>1)</sup>。SCA 弁別法は、使用済燃料のせん断・溶解期間以外の測定値から求めた重回帰式により、使用済燃料のせん断・溶解期間の測定値について施設起因の線量を推定・評価しており、この二つの期間における機器の調整や測定環境の変化が推定自然線量率の精度に影響する。このことから、実際に平成19年度の測定値を用いて試算を行い、その程度について確認した。

### 2. 調査方法

#### 2.1 SCA 弁別法による施設寄与の弁別及び実効線量の試算方法

SCA 弁別法は、重回帰分析で得られた回帰式により求めた推定自然線量率を空間放射線量率の実測値から差し引き、得られた差を施設寄与分として求める方法である。推定自然線量率は、(1)式に示すとおり空間放射線量率と Bi-214 から放出される $\gamma$ 線(1.76MeV 等)の計数率に着目した SCA(Bi)及び Tl-208 から放出される $\gamma$ 線(2.62MeV 等)の計数率に着目した SCA(Tl)の関係について重回帰分析を行った回帰式から求め、実測値から推定自然線量率を差し引いた残差を推定寄与線量率とする((2)式)。施設に起因する実効線量は、使用済燃料のせん断・溶解期間の測定値を対象とし、(3)式に示すとおり、推定寄与線量率の平均値とデータ個数の積に線量換算係数を乗じて求めている。

$$\text{推定自然線量率(nGy/h)} = (a \times \text{SCA(Bi)}) + (b \times \text{SCA(Tl)}) + c \quad \dots (1)$$

$$\left( \begin{array}{l} a, b, c : \text{重回帰分析により求めた定数} \\ \text{SCA(Bi)} : \text{Bi-214 エネルギー領域(1.65} \sim \text{2.5MeV)の計数率(cps)} \\ \text{SCA(Tl)} : \text{Tl-208 エネルギー領域(2.51} \sim \text{3MeV) の計数率(cps)} \end{array} \right)$$

$$Y \text{ (nGy/h)} = [\text{実測値 (nGy/h)} - \text{推定自然線量率(nGy/h)}] + \varepsilon_s + \varepsilon_r \quad \dots (2)$$

$$\left( \begin{array}{l} Y : \text{推定寄与線量率} \\ \varepsilon_s : \text{機器点検によるゲイン調整や積雪に起因する系統誤差} \\ \varepsilon_r : \text{偶然誤差 } (\neq 0) \end{array} \right)$$

$$\text{実効線量}(\mu \text{ Sv}) = \underbrace{\sum_{i=1}^N Y_i \times H/60(h)}_{\text{積算値(nGy)}} \times 0.8(\text{Sv/Gy})/1000 \quad \dots (3)$$

$$\left( \frac{\sum_{i=1}^N X_i}{N} \times N + \frac{\sum_{i=1}^N \varepsilon_{si}}{N} \times N + \frac{\sum_{i=1}^N \varepsilon_{ri}}{N} \times N \right)$$

H: 1 時間値の場合は 60、10 分値の場合は 10  
 N: 使用済燃料のせん断・溶解期間のデータ数  
 X: 実測値－推定自然線量率

重回帰分析はせん断・溶解期間の測定値を除いた期間を用いて行うため、重回帰分析に用いた測定値全体を通じた推定寄与線量率の平均は 0 となる。本法は、使用済燃料のせん断・溶解期間についても測定環境が変化しないことから推定自然線量率と SCA (Bi)、SCA (TI) の関係が等しく、施設寄与がなければ推定寄与線量率の平均は 0 になると仮定し、推定寄与線量率の変動を施設寄与分として評価している。

しかし、実際の推定自然線量率と SCA (Bi)、SCA (TI) の関係は、積雪などの自然要因や測定器の点検に伴うゲイン調整などにより変化し、推定寄与線量率の試算結果に影響を与える。図 1 に千歳平局の平成 19 年度の推定寄与線量率の年間推移グラフを示す。なお、重回帰式は平成 19 年度 1 年間の使用済燃料のせん断・溶解期間以外の測定値から求めた。7 月、12 月にゲイン調整による正方向への変動が、2 月～3 月には積雪による負方向への変動がみられる。このように、推定寄与線量率はある特定の期間を対象とした場合はゲイン調整や積雪による系統誤差の影響により平均値が 0 にならない。加えて、偶然誤差の影響も考えられるが、取り扱う測定データ数が非常に多く、平均化すると影響はほぼ 0 となると考えられる。

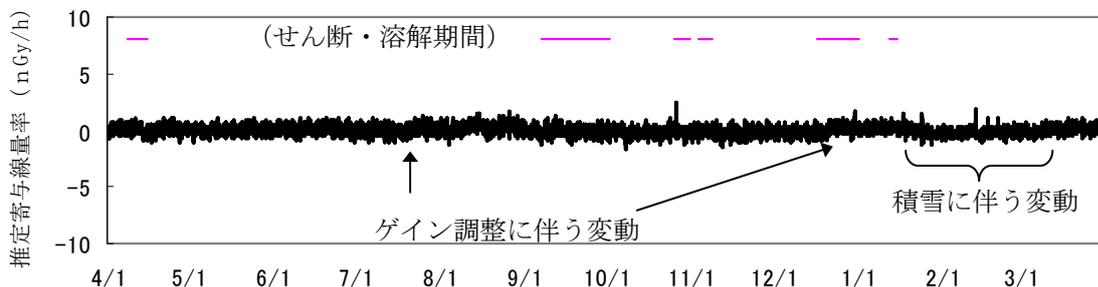


図 1 推定寄与線量率の年間推移グラフ (平成 19 年度千歳平局)

系統誤差の影響は使用済燃料のせん断・溶解期間を評価する場合にも存在し、正確に施設起因の線量を推定・評価するためには、系統誤差の影響を排除もしくは小さくできるかが課題となる。そこで平成 19 年度の測定値を用いて、(a)当該年度 (平成 19 年度) 1 年間の測定値を用いて重回帰式を作成する、(b)当該年度 (平成 19 年度) 測定値を用い四半期毎に重回帰式を作成する、(c)平成 18 年度の測定値から重回帰式を作成する方法で評価を行い、実効線量の試算結果や、推定寄

与線量率の変動にどの程度影響するのか検討した。なお、平成 19 年度 1 年間の測定時間 8800 時間のうち、使用済燃料のせん断時間は年間で約 800 時間である。

### 3. 調査結果

#### 3.1 使用済燃料のせん断・溶解期間以外の測定値について

使用済燃料のせん断・溶解期間以外の測定値について、(a)平成 19 年度 1 年間の測定値を用いて重回帰式を作成する方法及び(b)平成 19 年度の測定値を用い四半期毎に重回帰式を作成する方法により年間及び四半期毎に実効線量を試算した場合について表 1 にまとめた。偶然誤差  $\varepsilon_r$  の総和を 0 とすると、(a)の年間を通じた推定寄与線量率の総和及び平均値は 0 となり、実効線量は“実測値と推定自然線量率の差”  $X$  と系統誤差  $\varepsilon_s$  の平均値にデータ個数を乗じた値となる。しかし、四半期のように特定の期間のみを抽出して実効線量を試算した場合、系統誤差  $\varepsilon_s$  が存在すると、推定寄与線量率の平均値及びその総和である実効線量は 0 にならない。一方、(b)の四半期毎に重回帰式を作成した場合には、各四半期及び年間の推定寄与線量率の平均値が 0 となる。また、(c)の他年度の測定値から作成した重回帰式を用いて評価した場合には、重回帰分析に用いる母集団が異なるため、年間及び四半期毎のどちらの推定寄与線量率の平均も 0 にならない。

表 1 使用済燃料のせん断・溶解期間以外の測定値における年間及び四半期毎の実効線量試算結果

	年間の実効線量	四半期毎の実効線量
(a)	$\text{実効線量} = \left( \frac{\sum_{i=1}^N Xi}{N} \right) \times N + \left( \frac{\sum_{i=1}^N \varepsilon_{si}}{N} \right) \times N = 0$	$\text{実効線量} = \left( \frac{\sum_{i=1}^{n_j} Xi}{n_j} \right) \times n_j + \left( \frac{\sum_{i=1}^{n_j} \varepsilon_{si}}{n_j} \right) \times n_j \neq 0$ <p style="text-align: center;"><math>j=1\sim 4</math></p>
(b)	$\text{実効線量} = \left( \frac{\sum_{i=1}^{n_1+n_2+n_3+n_4} Xi}{n_1+n_2+n_3+n_4} \right) \times (n_1+n_2+n_3+n_4)$ $+ \left( \frac{\sum_{i=1}^{n_1+n_2+n_3+n_4} \varepsilon_{si}}{n_1+n_2+n_3+n_4} \right) \times (n_1+n_2+n_3+n_4) = 0$	$\text{実効線量} = \left( \frac{\sum_{i=1}^{n_j} Xi}{n_j} \right) \times n_j + \left( \frac{\sum_{i=1}^{n_j} \varepsilon_{si}}{n_j} \right) \times n_j = 0$ <p style="text-align: center;"><math>j=1\sim 4</math></p>

$n_1 \sim n_4$  : 第 1 四半期から第 4 四半期における使用済燃料のせん断・溶解期間以外のデータ個数  
 $n_1 + n_2 + n_3 + n_4 = N$

表 2 に県が設置している測定局における平成 19 年度の使用済燃料のせん断・溶解期間以外の測定値について、実際に SCA 弁別法を用い求めた推定寄与線量率の平均値及びその 99%信頼区間を示す。また、図 1 に尾駱局の推定寄与線量率の(a)~(c)の方法で作成した年間推移グラフを示す。

表2 平成19年度使用済燃料のせん断・溶解期間以外の推定寄与線量率の平均値 (単位:nGy/h)

		第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	年間
尾駁	(a) <sup>※</sup>	0.002±0.014	-0.072±0.020	0.071±0.023	0.004±0.018	0.000±0.010
	(b)	0.000±0.017	0.000±0.017	0.000±0.023	0.000±0.017	0.000±0.036
	(c)	-0.026±0.016	-0.078±0.018	0.016±0.022	-0.542±0.027	-0.177±0.013
千歳平	(a)	0.088±0.020	0.126±0.026	-0.182±0.024	-0.005±0.021	0.000±0.012
	(b)	0.000±0.013	0.000±0.016	0.000±0.022	0.000±0.019	0.000±0.035
	(c)	0.051±0.018	0.086±0.023	-0.162±0.022	-0.534±0.028	-0.132±0.014
平沼	(a)	-0.018±0.021	-0.037±0.023	0.192±0.025	-0.092±0.022	0.000±0.012
	(b)	0.000±0.013	0.000±0.015	0.000±0.020	0.000±0.021	0.000±0.035
	(c)	-0.034±0.014	-0.057±0.016	0.037±0.020	-1.062±0.042	-0.317±0.020
泊	(a)	0.161±0.018	0.162±0.020	-0.074±0.024	-0.233±0.026	0.000±0.013
	(b)	0.000±0.012	0.000±0.014	0.000±0.018	0.000±0.024	0.000±0.036
	(c)	-0.175±0.014	-0.217±0.015	-0.282±0.020	-0.878±0.030	-0.405±0.014
吹越	(a)	0.166±0.017	-0.144±0.022	-0.083±0.021	-0.168±0.021	0.000±0.010
	(b)	0.000±0.013	0.000±0.015	0.000±0.049	0.000±0.019	0.000±0.056
	(c)	-0.013±0.014	0.021±0.016	-0.018±0.020	-0.589±0.029	-0.171±0.013

※ (a)平成19年度1年間の測定値を用いて重回帰式を作成  
 (b)平成19年度の測定値を用い四半期毎に重回帰式を作成  
 (c)平成18年度1年間の測定値を用いて重回帰式を作成

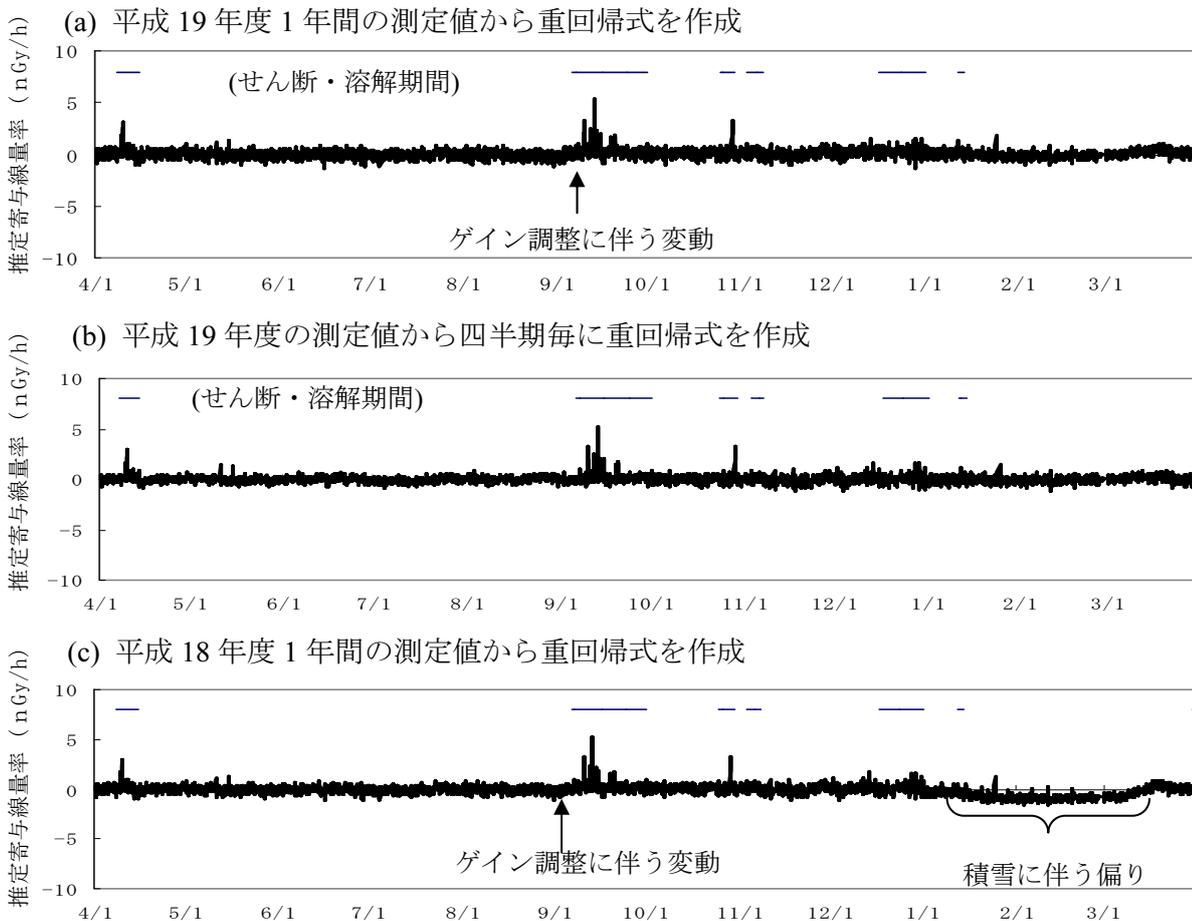


図2 推定寄与線量率の年間推移グラフ(平成19年度尾駁局)

表 2 から、(a)と(b)を比較すると、尾駸局のように全四半期を通じて平均値の差が±0.1nGy/h 程度に収まっている測定局がある一方、四半期毎の平均値が大きく異なる測定局もみられ、第 4 四半期の泊局では、系統誤差の影響により約 0.2nGy/h の差がみられた。(c) の他の年度の測定値から重回帰式を作成し試算した場合の平均値は(a)と比較し、第 1 から第 3 四半期は大きな差はみられないが、図 2 の(c)に示すように第 4 四半期のような積雪期では差が大きくなる傾向がみられ、平沼局では 1nGy/h 程度異なっていた。また、図 2 の(b)の方法は(a)、(c)にみられるゲイン調整に伴う変動や(c)の積雪に伴う負の方向への偏りが軽減されており、系統誤差の影響を軽減するのに有効であることがわかる。

### 3.2 使用済燃料のせん断・溶解期間の測定値について

3.1 に示すように、使用済燃料のせん断・溶解期間以外の平均値は系統誤差の影響を受け大きく異なっていた。このため、せん断・溶解期間が、系統誤差の影響により平均値が大きく異なる四半期に存在する場合、実効線量の試算結果に影響する。表 3 に平成 19 年度の測定値について測定局毎に種々の重回帰式の作成法により試算した実効線量の比較結果を示す。

表 3 中の(a)、(b)、(c)の試算結果を比較すると、いずれの差についても最大で 0.4 μSv 程度であり、1 μSv レベルで評価を行う場合にはほぼ一致していた。表 2 に示すように推定寄与線量率の平均値は用いる重回帰式の違いにより最大で 1nGy/h 程度の差がみられたが、実効線量の試算結果に関しては 1 μSv のレベルで評価を行う場合には系統誤差の影響は無視することが可能であるといえる。

表 3 SCA 弁別法による平成 19 年度実効線量試算結果 (単位：μSv)

	(a) 平成 19 年度 1 年間の測定値から重回帰式を作成	(b) 平成 19 年度 1 年間の測定値から四半期毎に重回帰式を作成	(c) 平成 18 年度 1 年間の測定値から重回帰式を作成
尾駸	0.26	0.17	0.17
千歳平	0.03	0.10	-0.03
平沼	0.25	0.04	-0.03
泊	0.19	0.08	-0.21
吹越	0.15	0.12	0.05

### 3.3 推定寄与線量率の最大値及び最小値に及ぼす影響について

3.1 のように、推定寄与線量率に含まれる系統誤差は、推定寄与線量率の試算結果には大きな誤差要因となる。そこで推定寄与線量率の最大値及び最小値に及ぼす影響を調査し、テレメータシステムによるリアルタイムでの施設寄与の有無の確認が可能かどうか検討した。

県が設置している測定局における平成 19 年度の使用済燃料のせん断・溶解期間の測定値について種々の重回帰式の作成法により得られた推定寄与線量率の最大値及び最小値を表 4 に示す。最大値は上段に、最小値は下段括弧内に示す。

表4 平成19年度の使用済燃料せん断・溶解期間におけるSCA弁別法による  
推定寄与線量率の最大値及び最小値比較結果 (単位：nGy/h)

測定局	(a)平成19年度1年間の測定値を用いて重回帰式を作成	(b)平成19年度1年間の測定値を用いて四半期毎に重回帰式を作成	(c)平成18年度1年間の測定値を用いて重回帰式を作成
尾駁	5.4 (-1.3)	5.3 (-1.1)	5.3 (-1.0)
千歳平	2.4 (-1.3)	2.7 (-1.0)	2.5 (-1.1)
平沼※	8.6 (-1.2)	8.2 (-1.3)	8.2 (-1.2)
泊	1.8 (-1.3)	1.8 (-1.3)	2 (-1.3)
吹越	2.9 (-1.1)	2.8 (-0.8)	2.8 (-1.1)

(注：上段は最大値、下段括弧内は最小値を示す)

※ 医療・産業に用いる放射性同位元素等の影響による変動分も含む

推定寄与線量率の最大値及び最小値は、重回帰式の作成に用いる期間により最大で0.4nGy/h程度の差がみられた。また、図2の尾駁局における推定寄与線量率の年間推移をみると、最大値を示した日時は(a)、(b)、(c)とも同じ時間であり、他の測定局についても同様の傾向が確認された。以上のことから予め推定寄与線量率の算出式をテレメータシステムに入力しておくことで、いずれの重回帰式を用いた場合でもリアルタイムで施設寄与の有無を確認することが可能と考えられる。

### 3.4 今後の課題について

本調査では、四半期毎に重回帰式を作成する方法が最も系統誤差の影響を軽減するのに適している結果が得られた。一方、重回帰分析を行う区間を短期間にする、十分な測定値の数が得られない問題もある。実際の空間放射線量率の変動は平成19年度の使用済燃料のせん断・溶解期間約800時間のうち、1nGy/h以上の変動がみられた時間数は最大でも60時間程度であり、それ以外の時間は施設寄与がほとんどみられず、重回帰分析に供することが可能と考えられる。よって、今後使用済燃料のせん断・溶解期間を除いて重回帰式を求める方法だけではなく、それらの測定値を含めて重回帰式を作成する方法についても検討が必要である。

## 4. まとめ

- 1)使用済燃料のせん断・溶解期間以外について推定寄与線量率の平均値を求めた結果、一年間の測定値を用いて重回帰式を作成した場合は、四半期毎に重回帰式を作成した場合と比較し、系統誤差の影響により最大で約0.2nGy/hの差がみられた。
- 2)四半期毎に重回帰分析を行い推定寄与線量率を求める方法は、測定器の点検によるゲイン調整や積雪などによる系統誤差による推定寄与線量率の変動を低減するのに有効である。
- 3)SCA弁別法を用いた実効線量の試算に関して1μSvのレベルで評価する場合は、推定寄与線

量率中の系統誤差の影響は無視することができる。

4)SCA 弁別法により推定寄与線量率を求めることで施設寄与の有無を確認することが可能と考えられる。

#### 文 献

- 1) 大久保英樹、庄司博光、木村秀樹、齋藤 稔、工藤英嗣、永井 進：青森県原子力センター所報, 第 2 号, 3-16(2007)



## 環境試料中の H-3、C-14 及び I-129 調査 —平成 19 年度調査結果—

五十嵐飛鳥 大下内 伸 吹越恵里子 木村秀樹  
田中義也\*<sup>1</sup> 尾形哲司\*<sup>1</sup> 住谷秀一\*<sup>1</sup>

### 1. はじめに

平常時モニタリングの目的の一つとして、原子力施設の周辺住民等の健康と安全を守るため、環境における原子力施設に起因する放射性物質又は放射線による周辺住民等の線量が、1 年間の線量限度（1 ミリシーベルト）を十分に下回っていることを確認することとされており、また、環境におけるモニタリングについては、継続実施できることが必要である。

以上を踏まえ、県では、計画の策定に当って、調査する試料は調査地域において主要なものであり、継続的に採取可能なもの、測定する放射性核種については、比較的容易に分析ができ、かつ、調査する試料との組み合わせにより、モニタリングの目標を合理的に達成できるものを対象とした。その際、原子力施設の安全審査における周辺住民等の線量評価上主要な試料及び核種を参考とした。

一方で、安全審査における線量評価結果が比較的小さいものの、再処理工場から気体又は液体廃棄物として放出が確認されている核種について、環境への影響をより詳細に把握しておくことは、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に重要である。このようなことから、「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）」において、県と事業者が分担し環境における調査研究を実施することとした。

本調査研究は、モニタリング計画における農作物及び海産食品の中から対象試料を選定し、これらの試料中の H-3、C-14 及び I-129 について調査を行うものであり、平成 19 年度から開始した。今回は、平成 19 年度の調査結果を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、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おける食品の中から選定し、再処理工場からの放出が確認されている H-3、C-14 及び I-129 を対象として、表 1 のとおりとした。また、これらの採取地点を図 1 に示した。

#### 2.2 測定方法

##### (1)H-3

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

---

\*1：日本原燃株式会社

- 2) 試料を真空凍結乾燥により、組織自由水 H-3(TFWT) と有機結合型 H-3(OBT) に分別し、それぞれ分析した。ただし、精米については含まれる水分が少ないことから、OBT のみを対象とした。
- 3) TFWTは、真空凍結乾燥により試料から取り出した水分について、OBTは乾燥試料を燃焼して得た水分について、液体シンチレーション計測によりH-3 濃度を測定し、この水分中濃度と試料に含まれる水分量\*から次式により試料中のH-3 濃度を求めた。

$$\text{試料中H-3 濃度 (Bq/kg生)} = \text{水分中H-3 濃度 (Bq/L)} \times \text{試料に含まれる水分量}^*(\text{L/kg生})$$

※OBT の場合は、試料を燃焼して得られた水分量

## (2) C-14

- 1) 放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」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。
- 2) 試料を真空凍結乾燥後、燃焼させて二酸化炭素を生成させ、触媒を用いてベンゼンを合成し、液体シンチレーション計測により C-14 の比放射能を求めた。
- 3) 試料中の全炭素量は、生成した二酸化炭素量の測定又は乾燥試料の元素分析によって求め、これと C-14 比放射能から C-14 濃度を算出した。

## (3) I-129

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素-129 分析法」では、特殊な機器を必要とせず比較的簡単に行える放射化学分析法と、原子炉を用いてより低いレベルまで定量できる中性子放射化分析法が採用されている。一方、加速器質量分析法は分析・測定に利用できる装置が限定されるものの、中性子放射化分析法と同等以上の感度を持ち、近年環境試料に適用され始めた方法である。本調査では、現在の環境試料中 I-129 の濃度レベルが非常に低く中性子放射化分析法によっても検出できない場合があること、本県むつ市にある日本原子力研究開発機構青森県研究開発センターむつ事務所が加速器質量分析装置を保有しており、環境試料中 I-129 の分析測定に使用可能であること等を勘案し、加速器質量分析法を用いた。
- 2) 試料を真空凍結乾燥後、燃焼 - 固相抽出法によりヨウ素を分離し、ヨウ化銀の沈



図 1 調査地点図

殿を生成する。このヨウ化銀から測定試料を作製し、加速器質量分析装置を用いて I-129 を測定した。

- 3) 加速器質量分析法では、測定試料中の I-129 と安定元素である I-127 の原子数比が測定される。環境試料中の I-129 濃度を算出するためには、当該試料中の I-127 濃度が必要であるため、乾燥試料を次亜塩素酸ナトリウム溶液で分解し、ICP 質量分析法により I-127 を分析した。

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 19 年度）

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

\*1 TFWT：組織自由水 H-3

\*2 OBT：有機結合型 H-3

### 3. 調査結果

平成 19 年度に実施した本調査の結果を表 2 に示した。個々の調査結果については以下のとおりである。

#### 3.1 H-3

平成 19 年度に実施した試料における試料中の TFWT は、10 月採取の六ヶ所村前面海域の魚類で 2.2 Bq/L が測定され、再処理工場におけるアクティブ試験の影響と推定された<sup>1)</sup>。そのほかの試料については、横浜町のキャベツ及び平沼のナガイモが、他に比べてやや高めの測定値であった。

OBT は、ほとんどの試料で検出されたが、燃焼水の濃度が他に比べて高い測定値を示したのは二又の精米、横浜町のキャベツ、10 月採取の六ヶ所村前面海域の魚類であり、TFWT が高めであった試料と一致した。

TFWT と OBT の水分中濃度に大きな違いはみられなかったが、試料生 1 kg 当たりの濃度としては、TFWT の方が OBT より 10 倍近く大きくなった。これは試料によって多少違いはあるが、TFWT としての水素の量が、有機物に結合した水素より 10 倍程度多いことによる。

なお、OBTは、有機物のC-C骨格に直接結合している非交換型OBTと、-COOHや-OH基の一部として存在し容易にTFWTと交換する交換型OBTに分類される。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H-3 に汚染され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、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<sup>2)</sup>もある。本調査研究では、現在非交換型OBTと交換型OBTを併せて分析しているが、今後、交換型OBTの除去の有無も含めて分析方法について検討する。

### 3.2 C-14

本調査における牛乳（原乳）の C-14 の放射能濃度は 13.1～18.9 Bq/kg 生、比放射能は 0.231～0.266 Bq/g 炭素であった。また、精米の C-14 の放射能濃度は 90.3～100 Bq/kg 生、比放射能は 0.240～0.258 Bq/g 炭素、葉菜が 4.71～5.79 Bq/kg 生、比放射能は 0.245～0.267 Bq/g 炭素、根菜が 4.98～21 Bq/kg 生、比放射能は 0.238～0.258 Bq/g 炭素であった。

C-14 は、主に高層大気における宇宙線との相互作用により生成されており、大気中では安定炭素と同様の挙動をとることから、大気中の炭素を同化して生育する植物中の C-14 比放射能（炭素 1 g 当たりの C-14 の放射能）は、大気中の C-14 比放射能を反映する。このため、試料中の C-14 比放射能は、原子力施設から放出された C-14 の環境への影響を把握する指標となる。

平成 19 年度の調査結果において、牛乳、精米及び葉菜・根菜中の C-14 比放射能いずれも他に比べて高めの測定値の試料がみられた。過去の測定値からの変動と比較した精米、葉菜・根菜については、再処理工場におけるアクティブ試験の影響と推定され<sup>1)</sup>、過去の比較データのない牛乳についても同程度の測定値が見られたものがあつた。

### 3.3 I-129

本調査における葉菜類の I-129 濃度は、 $8.8 \times 10^{-7} \sim 5.1 \times 10^{-6}$  Bq/kg 生、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は  $2.4 \times 10^{-8} \sim 6.0 \times 10^{-7}$  であつた。また、海藻類の I-129 濃度は、 $9.3 \times 10^{-4}$  及び  $2.8 \times 10^{-3}$  Bq/kg 生であり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は  $5.9 \times 10^{-10}$  及び  $9.1 \times 10^{-10}$  であつた。葉菜類に比べて安定ヨウ素濃度が高い海藻類は、I-129 濃度も高くなつている。

I-129 は過去の大気圏内核実験等により広く環境にもたらされ、半減期が長いことから、環境中で安定ヨウ素（I-127）と同様な挙動をとると考えられている。環境中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比はある程度の幅内にあることが確認されており、大気圏内核実験後の環境では、陸上試料で  $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で  $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$  程度との報告<sup>3)</sup> がある（フォールアウトバックグラウンド）。

本調査では、ハクサイの  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は陸上試料のフォールアウトバックグラウンドと同程度であつたが、キャベツについては、これらと比較してやや高めであつた。また、海藻類の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比についても、海洋試料のフォールアウトバックグラウンドに比較してやや高めであつた。

ヨウ素濃度が元々低い試料では、外部から I-129 の供給があると  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比が影響を受けやすいと考えられる。葉菜中の全ヨウ素濃度は、キャベツで  $0.002 \sim 0.03 \mu\text{g/g}$  生<sup>4)</sup> とかなり低いレベルであり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比で影響が見られやすい試料と考えられる。なお、現在の環境における

I-129 濃度レベルの目安として、本調査における測定値を用いて内部被ばくによる預託実効線量を試算した。試算では、ハクサイとキャベツ、海藻類それぞれの放射能濃度の最大値を用い、これらを1年間摂取すると仮定した。試算結果は以下のとおりであり、極めて低い値であった。

・ハクサイ、キャベツ

$$370 \text{ g/日}^{\ast 1} \times 365 \text{ 日} \times 10^{-3} \times 5.1 \times 10^{-6} \text{ Bq/kg生} \times 7.2 \times 10^{-5} \text{ mSv/Bq}^{\ast 2} = 5.0 \times 10^{-8} \text{ mSv}$$

・海藻類

$$40 \text{ g/日}^{\ast 1} \times 365 \text{ 日} \times 10^{-3} \times 2.8 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg生} \times 7.2 \times 10^{-5} \text{ mSv/Bq}^{\ast 2} = 2.9 \times 10^{-6} \text{ mSv}$$

※1 1日の摂取量：「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結果の評価方法」（平成18年4月改訂 青森県）

※2 I-129 1 Bq を経口摂取した場合の成人の預託実効線量係数：  
「環境放射線モニタリング指針」（平成20年3月 原子力安全委員会）

#### 4. 平成19年度調査結果のまとめ

平成19年度の調査において、H-3及びC-14の測定結果には、過去のモニタリング結果と比較し、高い値となったものがあった。I-129については、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比がフォールアウトバックグラウンドと比較してやや高めの測定値もあった。これらについては、今後の調査結果を積み重ねることにより、変動状況等を把握し検討を進める。

#### 文 献

- 1) 原子力施設環境放射線調査報告書（平成19年度第3四半期報 青森県）
- 2) 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)
- 3) Xiaolin. Hou : Application of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 262, 67-75 (2004)
- 4) 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）

表2 環境試料中 H-3、C-14 及び I-129 調査結果 (H19 年度)

試料名	採取地点	採取年月日	<sup>3</sup> H				<sup>14</sup> C	
			組織自由水		有機結合型		Bq/kg 生	Bq/g 炭素
			Bq/kg 生	Bq/L	Bq/kg 生	Bq/L		
牛乳 (原乳)	富ノ沢	H19. 4. 25	*	*	0.0574±0.0083	0.783±0.114	14.5±0.114	0.231±0.0018
		H19. 7. 3	*	*	*	*	13.1±0.140	0.256±0.00270
		H19. 10. 5	0.397±0.129	0.450±0.146	0.0274±0.0082	0.397±0.129	15.1±0.115	0.249±0.0019
		H20. 1. 8	*	*	0.0285±0.0083	0.407±0.119	14.0±0.148	0.256±0.00270
	横浜町	H19. 4. 25	*	*	0.0286±0.0088	0.396±0.122	15.0±0.116	0.242±0.0019
		H19. 7. 5	*	*	0.0469±0.0105	0.540±0.121	16.3±0.126	0.245±0.0019
		H19. 10. 23	*	*	0.0298±0.0092	0.383±0.118	14.7±0.115	0.237±0.0019
		H20. 1. 15	*	*	0.0439±0.0088	0.593±0.118	14.4±0.113	0.238±0.0019
	二又	H19. 4. 3	*	*	*	*	15.1±0.164	0.244±0.00265
		H19. 7. 3	*	*	0.0354±0.00766	0.518±0.112	13.5±0.145	0.248±0.00267
		H19. 10. 3	*	*	0.0372±0.00835	0.540±0.121	14.0±0.149	0.256±0.00273
		H20. 1. 8	*	*	*	*	15.8±0.165	0.262±0.00274
	豊原	H19. 4. 3	*	*	*	*	18.9±0.205	0.242±0.00263
		H19. 7. 3	*	*	0.0408±0.00882	0.518±0.112	16.7±0.174	0.266±0.00276
		H19. 10. 3	*	*	0.0435±0.00880	0.603±0.121	16.2±0.173	0.253±0.00271
		H20. 1. 8	*	*	0.0404±0.00930	0.511±0.117	17.4±0.182	0.262±0.00274
精米	尾駁①	H19. 10. 7	—	—	0.345±0.0610	0.801±0.141	90.7±0.95	0.240±0.0025
	尾駁②	H19. 9. 24	—	—	0.352±0.0571	0.763±0.123	100±1.05	0.258±0.00271
	千樽	H19. 10. 2	—	—	0.372±0.0471	0.887±0.112	92.7±0.96	0.248±0.0025
	野辺地町	H19. 10. 1	—	—	0.255±0.0474	0.590±0.109	93.7±0.96	0.249±0.0025
	二又	H19. 10. 2	—	—	0.454±0.0572	0.995±0.125	97.2±1.03	0.251±0.00268
	戸鎖	H19. 10. 1	—	—	0.285±0.0527	0.664±0.122	99.1±1.04	0.255±0.00270
	比較対照 (青森)	H19. 9. 29	—	—	—	—	90.3±0.94	0.243±0.0025

・「—」は調査対象外。

・組織自由水 H-3 および有機結合型 H-3 については、水分中濃度の測定結果が誤差の3倍以下のものは\*とし、試料中濃度も\*とした。

(表2 続き)

試料名	採取地点	採取年月日	<sup>3</sup> H				<sup>14</sup> C		<sup>129</sup> I (AMS測定)	
			組織自由水		有機結合型		Bq/kg 生	Bq/g 炭素	Bq/kg 生	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I 原子数比
			Bq/kg 生	Bq/L	Bq/kg 生	Bq/L				
ハクサイ	出戸	H19. 10. 29	0.597±0.132	0.628±0.139	0.0203± 0.00360	0.799± 0.141	4.71± 0.049	0.245± 0.0025	1.4×10 <sup>-6</sup> ± 0.3×10 <sup>-7</sup>	3.0×10 <sup>-8</sup>
	千樽	H19. 10. 18	0.519±0.131	0.551±0.139	0.0147± 0.00320	0.559± 0.121	5.68± 0.0596	0.260± 0.0027	8.8×10 <sup>-7</sup> ± 0.3×10 <sup>-7</sup>	2.4×10 <sup>-8</sup>
キャベツ	横浜町	H19. 10. 4	0.888±0.134	0.940±0.142	0.0353± 0.00421	1.22±0.145	5.79± 0.057	0.267± 0.0026	5.1×10 <sup>-6</sup> ± 1.5×10 <sup>-7</sup>	6.0×10 <sup>-7</sup>
ダイコン	出戸	H19. 10. 29	*	*	0.0182± 0.00335	0.655± 0.120	4.98± 0.052	0.238± 0.0025	—	—
バレイショ	尾駸	H19. 8. 16	0.393±0.110	0.502±0.140	0.0856± 0.0128	0.836± 0.124	21.0± 0.228	0.244± 0.00265	—	—
ナガイモ	東北町	H19. 12. 1	0.565±0.118	0.665±0.139	0.0318± 0.00809	0.420± 0.106	15.1± 0.15	0.243± 0.0025	—	—
	平沼	H19. 11. 27	0.741±0.116	0.894±0.140	0.0439± 0.0103	0.518± 0.121	17.5± 0.184	0.258± 0.0027	—	—
魚類	六ヶ所村 前面海域	H19. 8. 24	*	*	0.0516± 0.0155	0.402± 0.121	—	—	—	—
		H19. 10. 23	1.73±0.10	2.25±0.13	0.161± 0.0150	1.23±0.115	—	—	—	—
海藻類	六ヶ所村 前面海域	H19. 8. 7	—	—	—	—	—	—	2.8×10 <sup>-3</sup> ± 5.6×10 <sup>-5</sup>	9.1×10 <sup>-10</sup>
		H19. 10. 29	—	—	—	—	—	—	9.3×10 <sup>-4</sup> ± 1.1×10 <sup>-5</sup>	5.9×10 <sup>-10</sup>

・「—」は調査対象外。

・組織自由水 H-3 および有機結合型 H-3 については、水分中濃度の測定結果が誤差の3倍以下のものは\*とし、試料中濃度も\*とした。



## 原子力施設前面海域状況調査（イガイ類及び海底土）

安積 潔 吹越恵里子 木村秀樹 橋本丈夫<sup>\*1</sup>

### 1. はじめに

青森県では、「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」及び「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング基本計画」に基づき、原子力施設周辺における環境放射線モニタリング（以下、「モニタリング」という。）を実施している。

モニタリングで対象としている海底土及びムラサキイガイについては、近年採取が難しくなってきたことから場所を移動しながら採取している状況であり、これが測定結果の変動の要因となることが考えられる。このため、下北半島東側海域及び北側海域について海底土及びイガイ類の分布状況等の調査や採取した試料の分析を行い、分析値の変動や継続して実施できる採取方法について検討を行った。

### 2. 調査方法

#### 2.1 海底の状況調査及び試料採取

調査海域の近傍の漁協から借り上げた漁船により調査地点へ移動し、スクーバ式潜水により海底の写真撮影や試料採取を行った。採取試料及び調査地点を表1に示す。

##### (1) 調査地点

下北半島東側海域における海底土及びイガイ類の調査地点を図1及び図2に、下北半島北側海域における海底土及びイガイ類の調査地点を図3に示す。

---

\*1：財団法人 日本分析センター

表 1 調査地点

試料	調査海域	調査地点	緯度	経度
海底土	下北半島 東側海域	東 S-1	N 41°11'19"	E 141°24'18"
		東 S-2	N 41°11'07"	E 141°24'14"
		東 S-3	N 41°10'37"	E 141°24'50"
		東 S-4	N 41°10'13"	E 141°24'05"
	下北半島 北側海域	北 S-1	N 41°32'20"	E 140°53'25"
		北 S-2	N 41°30'54"	E 140°53'32"
		北 S-3	N 41°30'19"	E 140°53'42"
		北 S-4	N 41°29'42"	E 140°53'37"
イガイ類	下北半島 東側海域	東 M-1	N 41°07'49"	E 141°23'48"
		東 M-2	N 41°07'44"	E 141°23'46"
		東 M-3	N 41°06'56"	E 141°23'39"
		東 M-4	N 41°05'51"	E 141°23'58"
		東 M-5	N 41°05'40"	E 141°23'53"
		東 M-6	N 41°03'43"	E 141°23'31"
(試料採取は東 M-1 及び東 M-6 において実施)				
	下北半島 北側海域	北 M-1		
		北 M-2	N 41°33'56"	E 140°55'06"

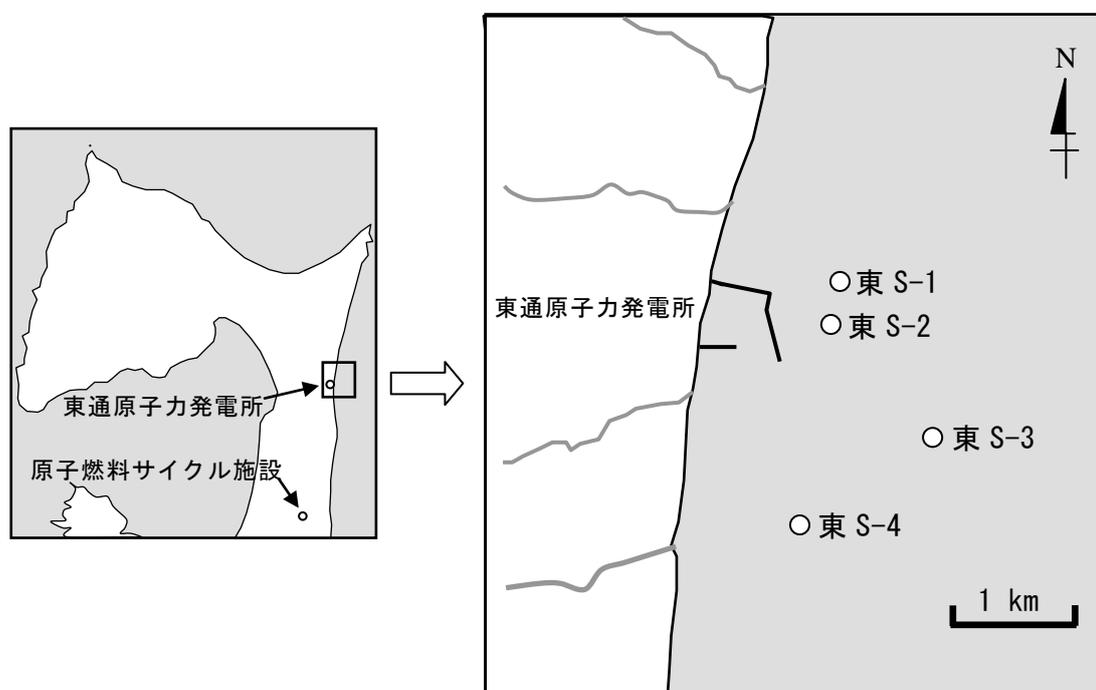


図 1 下北半島東側海域における海底土調査地点

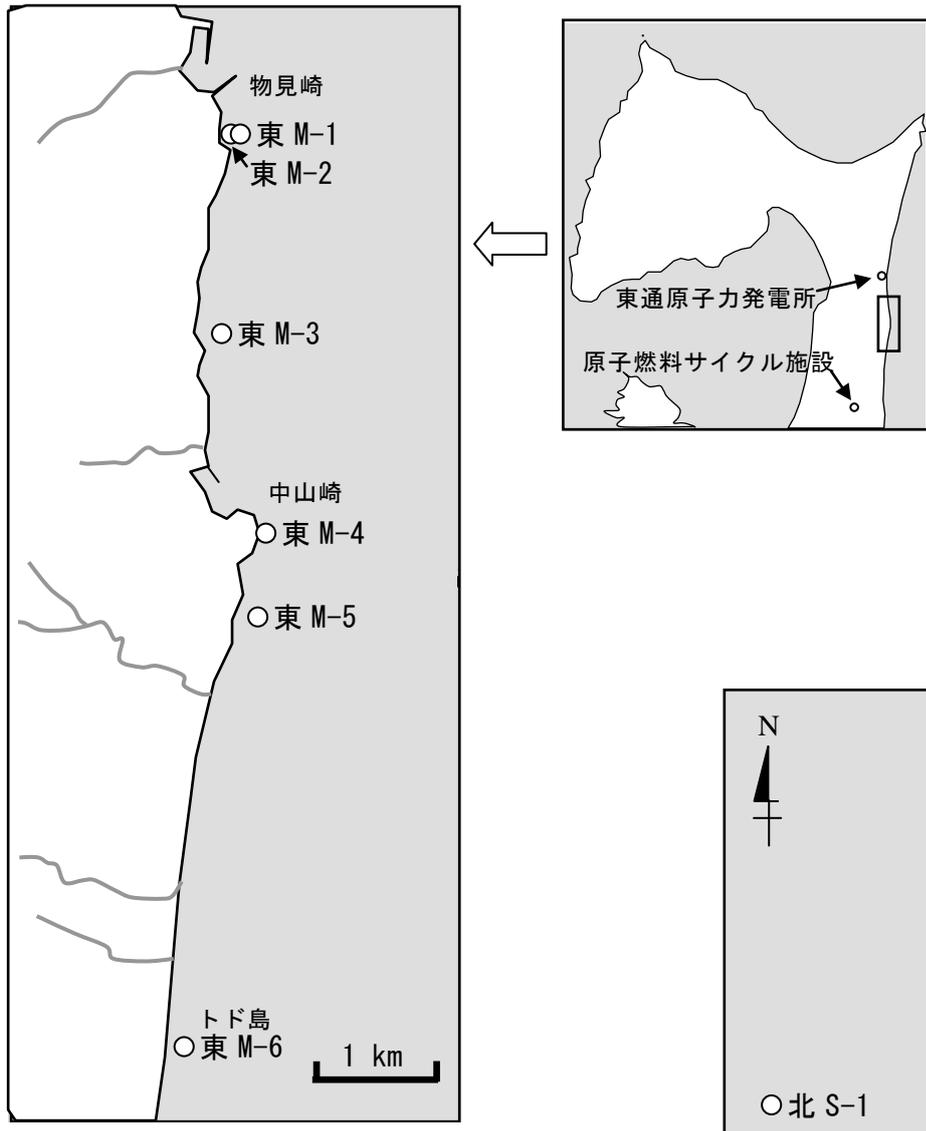


図 2 下北半島東側海域におけるイガイ類調査地点

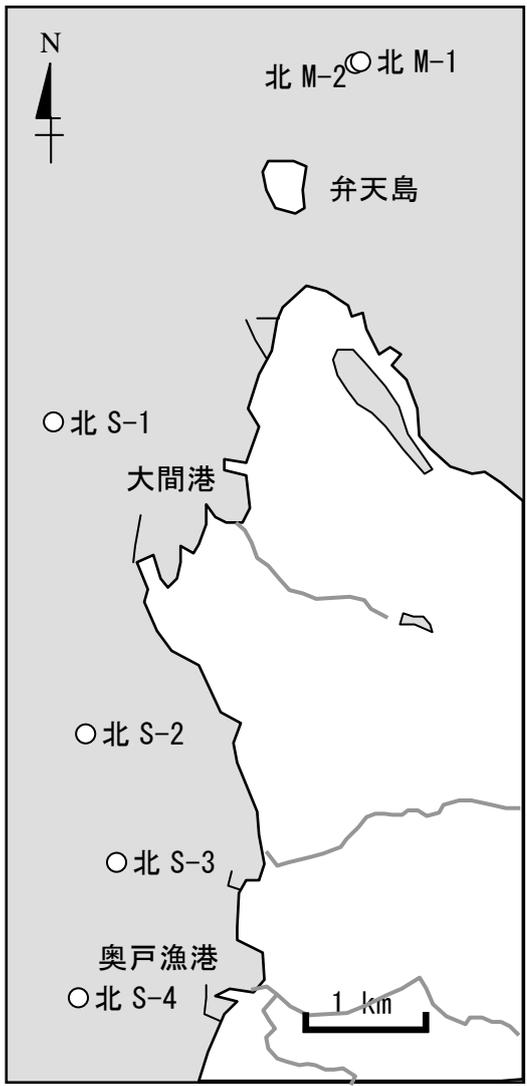


図 3 下北半島北側海域における海底土及びイガイ類調査地点

## (2) 調査日時

下北半島北側海域 海底土・イガイ類 : 平成 20 年 9 月 8 日

下北半島東側海域 海底土 : 平成 20 年 9 月 9 日

下北半島東側海域 イガイ類 : 平成 20 年 9 月 10 日

下北半島北側海域は海潮流の流れが強いため、潜水調査は流れがもっとも弱い「小潮」の時期に実施した。

## 2.2 環境試料中放射性核種濃度の測定

### (1) 試料調製

文部科学省 放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」(昭和 58 年制定)<sup>1)</sup>に準じて行った。

海底土については、105℃で乾燥した後磁製乳鉢で磨砕し、2 mm のふるいに通して分析試料とした。

イガイ類については、殻を取り除いてむき身にし、105℃で乾燥した後 450℃で灰化し、灰を 0.35 mm のふるいに通して分析試料とした。

### (2) $\gamma$ 線放出核種分析

文部科学省 放射能測定法シリーズ 7「ゲルマニウム半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトロメトリー」(平成 4 年改訂)<sup>2)</sup>に準じて行った。

分析試料を U-8 容器に入れ、Ge 半導体検出器により測定を行った。検出器は ORTEC 社製 GMX-25、GMX-40 を用いた。

### (3) Pu-239+240 分析

文部科学省放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」(平成 2 年改訂)<sup>3)</sup>に準じて行った。

分析試料を 500℃で加熱処理後、<sup>242</sup>Pu 回収率補正用トレーサを添加し、硝酸 (3+2) を加えて加熱抽出した。抽出液を陰イオン交換樹脂カラムに通し、硝酸 (3+2)、塩酸 (5+1)、ヨウ化アンモニウム-塩酸溶液によりプルトニウムを分離した。プルトニウムをステンレス板上に電着し、シリコン半導体検出器を用いて $\alpha$ スペクトロメトリにより Pu-239+240 を定量した。検出器は ORTEC 社製 BU-020-450-AS を用いた。

## 3. 調査結果

### 3.1 試料採取地点及び採取試料の状況

#### (1) 海底土

##### ア 下北半島東側海域

下北半島東側海域における海底土の調査地点の状況を表 2 に示す。

東 S-1 は砂場が 50%程度存在し、砂場の間に岩盤や転石が存在している状況であった。海上からのスミスマッキンタイヤ式採泥器による海底土の採取は、多少の困難を伴うが可能であると考えられる。

東 S-2 及び東 S-3 は平坦な砂場であった。これらの地点においては、海上からのスミスマッキンタイヤ式採泥器による海底土の採取は容易であると考えられる。

東 S-4 は砂場が 20%程度存在し、岩盤や転石の間に砂場が点在している状況であった。海上からのスミスマッキンタイヤ式採泥器による海底土の採取は困難と考えられる。

表 2 下北半島東側海域における海底土採取地点の状況

調査地点	目視による底質(%)				水深(m)
	岩盤	転石	礫	砂	
東 S-1	40	10	0	50	19.0
東 S-2	0	0	0	100	17.7
東 S-3	0	0	0	100	37.7
東 S-4	40	40	0	20	18.6

注) 転石：長径 10 cm 以上 礫：長径 10 cm 未満

## イ 下北半島北側海域

下北半島北側海域における海底土の調査地点の状況を表 3 に示す。いずれの地点も海底の大部分に転石及び礫が見られ、所々に礫混じりの砂質が点在していた。海底土は、表層部にある転石及び礫を 5 cm 程度取り除いた後採取した。これらの地点においては、海上からのスミスマッキンタイヤ式採泥器による海底土の採取は困難と考えられたが、潜水による採取は可能であることを確認した。

表 3 下北半島北側海域における海底土採取地点の状況

調査地点	目視による底質(%)				水深(m)
	岩盤	転石	礫	砂	
北 S-1	0	40	55	5	19.9
北 S-2	0	20	70	10	19.5
北 S-3	0	30	60	10	16.5
北 S-4	0	60	30	10	19.6

## (2) イガイ類

### ア 下北半島東側海域

下北半島東側海域におけるイガイ類調査地点の状況並びに個体長及び個体重を表 4 に示す。東 M-1 及び東 M-6 周辺において多量のイガイ類を確認した。両地点とも船で近づき 0.5~1.5 m 程度の潜水により採取することができ、継続的に採取可能であると考えられる。また、東 M-2 においてもイガイ類を確認したが、小さな個体ばかりであり生息数も少なかった。東 M-3、東 M-4 及び東 M-5 においてはイガイ類は確認できなかった。

表 4 下北半島東側海域におけるイガイ類調査地点の状況並びに個体長及び個体重

調査地点	生息範囲	生息密度 (個/m <sup>2</sup> )	水深 (m)	採取可否	全長(cm)			重量(g)		
					平均	最大	最小	平均	最大	最小
東 M-1	約 10×1.5m	約 20	1~1.5	可	10.6	13.8	6.2	125	232	30
東 M-2	約 15×1m	約 10	0.5	否	—	—	—	—	—	—
東 M-3	なし	—	—	否	—	—	—	—	—	—
東 M-4	なし	—	—	否	—	—	—	—	—	—
東 M-5	なし	—	—	否	—	—	—	—	—	—
東 M-6	約 15×1.5m	約 20		可	8.0	12.1	5.6	52.8	152	17
東 M-6 岸側	約 15×10m	約 15	0.5~1	可	—	—	—	—	—	—

注) 1. イガイ類の採取は東 M-1 及び東 M-6 において行った。  
2. イガイ類にはイガイやムラサキイガイがある。

### イ 下北半島北側海域

下北半島北側海域におけるイガイ類調査地点の状況並びに個体長及び個体重を表 5 に示す。北 M-1、北 M-2 共に多量のイガイ類を確認した。両地点とも船で近づき十数 m の潜水により採取することができ、継続的に採取可能であると考えられる。

表 5 下北半島東側海域におけるイガイ類調査地点の状況並びに個体長及び個体重

調査地点	生息範囲	生息密度 (個/m <sup>2</sup> )	水深 (m)	採取可否	全長(cm)			重量(g)		
					平均	最大	最小	平均	最大	最小
北 M-1	約 10m×10m	約 7	12.0	可	14.7	17.6	9.4	290	471	86
北 M-2	約 15m×15m	約 6	14.3	可	15.7	18.9	12.0	362	1100	169

注) イガイ類にはイガイやムラサキイガイがある。

## 3.2 測定結果

### (1) $\gamma$ 線放出核種

海底土、イガイ類ともに、人工放射性核種の測定値は全て計数誤差の 3 倍以下であり、検出されなかった。

なお、これまで実施した原子燃料サイクル施設に係るモニタリング及び東通原子力発電所に係るモニタリングにおける海底土及びムラサキイガイ中  $\gamma$  線放出核種（人工放射性核種）の測定結果は、いずれも青森県が定める定量下限値未満であった。

### (2) Pu-239+240

Pu-239+240 の測定結果を表 6 に示す。

海底土の測定結果は、下北半島東側海域で 0.45~0.74 Bq/kg 乾、下北半島北側海域で 0.077~1.1 Bq/kg 乾であった。下北半島北側海域において、地点による測定値の変動幅が比較的

大きい傾向がみられたが、いずれの海域の測定結果も、原子燃料サイクル施設に係るモニタリング及び東通原子力発電所に係るモニタリングにおける過去の測定値と同じ水準であった。

また、イガイ類の測定結果は、下北半島東側海域で 0.00084 及び 0.00093 Bq/kg 生、下北半島北側海域で 0.0024 及び 0.0039 Bq/kg 生であった。下北半島北側海域の測定値が東側海域よりやや高めの傾向がみられたが、いずれの海域の測定結果も、原子燃料サイクル施設に係るモニタリング及び東通原子力発電所に係るモニタリングにおける過去の測定値と同じ水準であった。

表 6 Pu-239+240 分析結果

対象 試料	採取地点	測定結果 <sup>※2</sup>		過去の測定値の範囲 <sup>※3</sup>		単位	
				原子燃料 サイクル施設	東通原子力 発電所		
海底土	下北半島	東 S-1	0.49	± 0.030	0.11 ~0.90	0.28 ~0.88	Bq/kg 乾
		東 S-2	0.74	± 0.037			
	東側海域	東 S-3	0.45	± 0.027			
		東 S-4	0.56	± 0.030			
	北側海域	北 S-1	0.35	± 0.022			
		北 S-2	0.077	± 0.0088			
		北 S-3	0.80	± 0.042			
		北 S-4	1.1	± 0.05			
イガイ類 <sup>※1</sup>	下北半島	東 M-1	0.00084	± 0.00025	ND <sup>※4</sup> ~0.005	ND <sup>※4</sup> ~0.003	Bq/kg 生
	東側海域	東 M-6	0.00093	± 0.00024			
		下北半島	北 M-1	0.0039			
	北側海域	北 M-2	0.0024	± 0.00039			

※1 イガイ類にはイガイやムラサキイガイがある。

※2 測定結果は有効数字 2 桁で表し、誤差は計数誤差のみを示した。

※3 「過去の測定値の範囲」の期間は、原子燃料サイクル施設については平成元～19 年度、東通原子力発電所については平成 15～19 年度。ただし、イガイ類についてはムラサキイガイの測定値の範囲を示した。

※4 ND は定量下限値未満 (<0.002 Bq/kg 生)

#### 4. まとめ

- 1) 下北半島東側海域において、海底が平坦な砂場であり、海底土をスミスマッキンタイヤ式採泥器により海上から容易に採取可能である地点を確認した。下北半島北側海域については、海底表面はほぼ転石や礫で覆われており海上からの海底土の採取は困難と考えられたが、潜水による採取は可能であることを確認した。
- 2) 下北半島東側海域及び北側海域において多量のイガイ類を確認した。これらの地点にお

いてはイガイ類を継続的に採取可能であると考えられる。

- 3) 下北半島東側海域及び北側海域における海底土及びイガイ類の  $\gamma$  線放出核種（人工放射性核種）及び Pu-239+240 の測定値は、原子燃料サイクル施設に係るモニタリング及び東通原子力発電所に係るモニタリングにおける過去の測定値と同じ水準であった。

## 文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 16 環境試料採取法（昭和 58 年）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器による  $\gamma$  線スペクトロメトリー（平成 4 年改訂）
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 12 プルトニウム分析法（平成 2 年改訂）

### Ⅲ 学 会 等 发 表 要 旨



## 六ヶ所再処理工場周辺環境におけるトリチウム濃度の変動

木村芳伸 五十嵐飛鳥 木村秀樹 齋藤輝夫\*<sup>1</sup> 庄司博光  
大久保英樹\*<sup>2</sup> 齋藤 稔 住谷秀一\*<sup>3</sup> 金 泰裕\*<sup>4</sup> 島 茂樹\*<sup>5</sup>

日本保健物理学会 第42回研究発表会 沖縄県宜野湾市 2008年6月26日

日本原燃(株)六ヶ所再処理工場が平成18年3月からアクティブ試験(使用済燃料による総合試験)を実施しており、東北電力(株)東通原子力発電所1号機が平成17年12月に営業運転を開始している。青森県、日本原燃(株)及び東北電力(株)が施設周辺地域で実施している環境放射線モニタリングにおいて、トリチウム濃度が過去の測定結果を上回ったことから、その変動要因を検討した。①平成19年3月に尾駈地点において採取した大気中水蒸気(水分中濃度で3Bq/L)、②平成19年4月に尾駈沼において採取した湖沼水2試料(2Bq/L及び3Bq/L)、③平成19年10月に六ヶ所村前面海域において採取したヒラメ(自由水)(2Bq/L)④平成19年10月に東通原発前面海域において採取した海水2試料(3Bq/L及び4Bq/L)について、当時の施設からの放射性廃棄物の放出状況、気象条件や海域の流況等を用いて検討した結果、測定値の上昇は、六ヶ所再処理工場のアクティブ試験に伴い大気に放出された気体廃棄物又は海洋に放出された液体廃棄物の影響によるものと考えられた。これらについて住民等の預託実効線量を試算した結果は、法令に定める年線量限度(1mSv)と比較して極めて低い値であった。

\*1: 現青森県三八地域県民局地域連携部八戸環境管理事務所

\*2: 現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

\*3: 日本原燃株式会社

\*4: 東北電力株式会社

\*5: 財団法人 日本海洋科学振興財団

## 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

堀田智史 大久保英樹\*<sup>1</sup> 庄司博光 木村秀樹  
齋藤 稔 工藤英嗣\*<sup>2</sup> 永井 進\*<sup>3</sup>

第16回環太平洋原子力会議, 青森県青森市, 2008.10.13-10.17

平成18年3月31日から開始された六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験(使用済燃料による総合試験)による使用済燃料のせん断・溶解に伴い、施設周辺地域で常時監視している空間放射線量率の測定値に施設起因と考えられる変動が認められている。

このため、空間放射線量率と Bi-214 から放出されるγ線(1.76 MeV 等)の計数率に着目した SCA(Bi)及び Tl-208 から放出されるγ線(2.62 MeV 等)の計数率に着目した SCA(Tl)の関係から求めた重回帰式により、自然寄与分の線量率を推定し、空間放射線量率測定値から差し引くことにより施設からの寄与分を推定する方法を開発した。

本法を六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験中のモニタリング結果に適用した結果、空間放射線量率の施設寄与分を精度良く弁別できること及び平成18年度の空間放射線量率測定結果からせん断・溶解が行われた期間における実効線量の試算結果は全て0.1 μSv未満であり極めて

低い値であることが確認された。

\*1：現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

\*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

## 原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング

吹越恵里子 木村秀樹 庄司博光、  
齋藤 稔 住谷秀一\*1 瀧田昭久\*1

第 16 回環太平洋原子力会議，青森県青森市，2008. 10. 13-10. 17

青森県及び日本原燃株式会社が、原子燃料サイクル施設周辺地域において実施した 2006 年 4 月から 2007 年 6 月における環境放射線モニタリング結果のうち、六ヶ所再処理工場のアクティブ試験の影響と考えられる測定値の変動が認められた、空間  $\gamma$  線量率、大気中気体状  $\beta$  放射能及び環境試料中 H-3 の調査結果について報告した。

空間  $\gamma$  線量率については、天然放射性核種である Bi-214 及び Tl-208 から放出される  $\gamma$  線の計数率を変数とした重回帰分析により自然放射線による  $\gamma$  線量率を推定し、測定値から差し引くことにより施設寄与分を弁別する方法について検討した。この方法を 2006 年 4 月から 2007 年 3 月の測定結果に適用するとともに、大気中気体状  $\beta$  放射能測定結果とあわせて検討し、再処理工場から放出された Kr-85 の寄与を精度よく弁別できることを示した。

環境試料中 H-3 については、2007 年 3 月にモニタリングステーション (MS) 尾駈局で採取した大気中水分の測定値が 3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。この期間、施設周辺の 5 箇所の MS における Kr-85 平均濃度と H-3 の大気水分中濃度に正の相関関係が認められており、再処理工場のアクティブ試験の影響と推定した。

また、尾駈沼において 2007 年 4 月に採取した湖沼水中 H-3 濃度が 2~3 Bq/L となり、過去の測定値の範囲を上回った。尾駈沼は海水が流入する汽水湖であり、今回の湖沼水の調査では、塩分が高いほど、すなわち尾駈沼への海水の流入が大きいほど H-3 濃度も高くなる傾向を示している。このようなことから、再処理工場から海域に放出された H-3 を含む液体廃棄物の一部が海水とともに潮汐等によって尾駈沼に流入したと推定した。

\*1：日本原燃株式会社

## 青森県における環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 調査 —平成 19 年度調査結果—

五十嵐飛鳥 大下内 伸 吹越恵里子 木村秀樹  
田中義也\*<sup>1</sup> 尾形哲司\*<sup>1</sup> 佐々木耕一\*<sup>1</sup> 住谷秀一\*<sup>1</sup>

第 10 回「環境放射能」研究会，茨城県つくば市，2009. 3. 3-3. 5

青森県及び日本原燃株式会社は、原子燃料サイクル施設周辺地域において平成 19 年度から共同で環境放射線の調査研究を行っており、平成 19 年度に実施した牛乳、精米、葉菜・根菜、魚類及び海藻類中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 調査結果について報告した。

トリチウムは TFWT と OBT についてそれぞれ液体シンチレーション計測法によって測定した。また、炭素-14 はベンゼン合成-液体シンチレーション計測法、ヨウ素-129 は加速器質量分析法 (AMS) によって測定した。

平成 19 年度の調査において、トリチウム及び炭素-14 の測定結果には、再処理工場のアクティブ試験の影響が考えられるものがあった。ヨウ素-129 については、<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 原子数比がフォールアウトによるバックグラウンドと比較して、やや高めの測定値があった。

本調査における測定値を用いて内部被ばくによる預託実効線量を試算した結果は、周辺監視区域外の実効線量限度 (1mSv/年) に比べ、極めて低い値であった。

\*1：日本原燃株式会社

## 青森県における原子力施設環境放射線モニタリング結果（平成 18 年度及び平成 19 年度）について

竹ヶ原 仁 吹越恵里子 木村秀樹 庄司博光  
齋藤 稔 住谷秀一\*<sup>1</sup> 瀧田昭久\*<sup>1</sup> 金 泰裕\*<sup>2</sup>

平成 20 年度放射能分析確認踏査技術検討会，東京都千代田区，2009. 3. 18

青森県六ヶ所村に建設中の日本原燃株式会社六ヶ所再処理工場では平成 18 年 3 月から使用済燃料による総合試験（アクティブ試験）を開始している。アクティブ試験は原子力発電所で利用された実際の使用済燃料を用いて安全機能や機器設備の性能を確認するもので、具体的確認内容は、環境への放出放射エネルギー、核分裂生成物の分離性能などである。

六ヶ所再処理工場は、国内外の最良の技術を用いて、再処理に伴い発生する廃棄物をできる限り取り除く設計とされているが、その一部は排気又は排水とともに大気、海洋へ放出される。主要なものとしてクリプトン-85 (<sup>85</sup>Kr)、トリチウム (<sup>3</sup>H)、炭素-14 (<sup>14</sup>C) が挙げられ、これらは青森県における環境放射線モニタリングにおいて施設寄与分として検出され得るレベルのものであると推定された。

アクティブ試験開始以降、青森県の環境放射線モニタリング結果では空間放射線及び環境試料中の放射能濃度に施設寄与と考えられる変動が認められている。

\*1：日本原燃株式会社

\*2：東北電力株式会社



## IV 平成 20 年度 調査研究事業報告



## 青森県における大気中クリプトン-85濃度調査

武藤逸紀 工藤俊明 五十嵐飛鳥 堀田智史  
熊谷邦彦 吹越恵里子 佐々木耕<sup>\*1</sup> 外川洋<sup>\*1</sup>  
大田 潤<sup>\*1</sup> 榊 雄<sup>\*1</sup> 葛西 尚<sup>\*1</sup> 小向幼菜<sup>\*1</sup>

### 1. はじめに

青森県では、再処理工場の操業後における環境への影響の評価に資するため、平成15年度から平成17年度まで気象研究所との共同研究として、再処理工場から放出される主要な核種の一つであるKr-85のバックグラウンド調査を実施し報告した<sup>1)</sup>。

平成18年3月31日からは六ヶ所再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料による総合試験）が行われたことから、平成18年度からは本県が構築している環境放射能拡散シミュレーションシステムの精進のための基礎資料とするため、施設周辺地域において、Kr-85濃度の分布調査を実施している。

気象研究所が採用したKr-85分析法<sup>2)</sup>（以下「気象研法」という。）はバックグラウンドレベルの濃度を対象としており分析濃度範囲が狭いことから、平成18年度からの分布調査において分析範囲を超えると予想される試料については、当所で開発した前処理法により希釈を行った<sup>3)</sup>。

平成19年度及び20年度については、再処理工場主排気筒風下方向扇形状3地点におけるKr-85の移流拡散状況を調査した。また、試料の希釈の参考とするためにβ線ガスモニタによるKr-85濃度の測定を行った。気象研法による分析は年度末に結果が得られることから次年度にその結果をとりまとめることとしており、平成19年度はβ線ガスモニタによる測定結果のみを報告した。今回は平成19年度の全ての調査結果のとりまとめと今年度（平成20年度）のβ線ガスモニタによる測定結果についてとりまとめたものである。

### 2. 調査方法

#### 2.1 調査地点

調査当日の風向・風速より、再処理工場主排気筒風下方向扇形状3地点を選定した。

#### 2.2 気象研法

調査地点においてアルミニウムバッグ（容量0.5 m<sup>3</sup>）にポンプを用いて25 L/minの流速で20分間大気試料を連続的に捕集する。

---

\*1：日本原燃株式会社

本法におけるKr-85分析装置の分析可能範囲は、約10~100 Bq/0.5 m<sup>3</sup>であることから、β線ガスモニタによるKr-85濃度を参考に、大気試料中のKr-85濃度が分析可能範囲にはいるように、純空気<sup>\*</sup>で希釈する。

分析可能範囲に希釈した大気試料を、流速2L/minで活性炭吸着容器に吸着させる。活性炭に吸着させた大気試料は、ヒーターで加温しながらヘリウムガスで加圧して1Lアルミ容器に封入し、Kr-85分析装置による分析に供する。Kr-85前処理及び分析装置の概略を図1に示す。

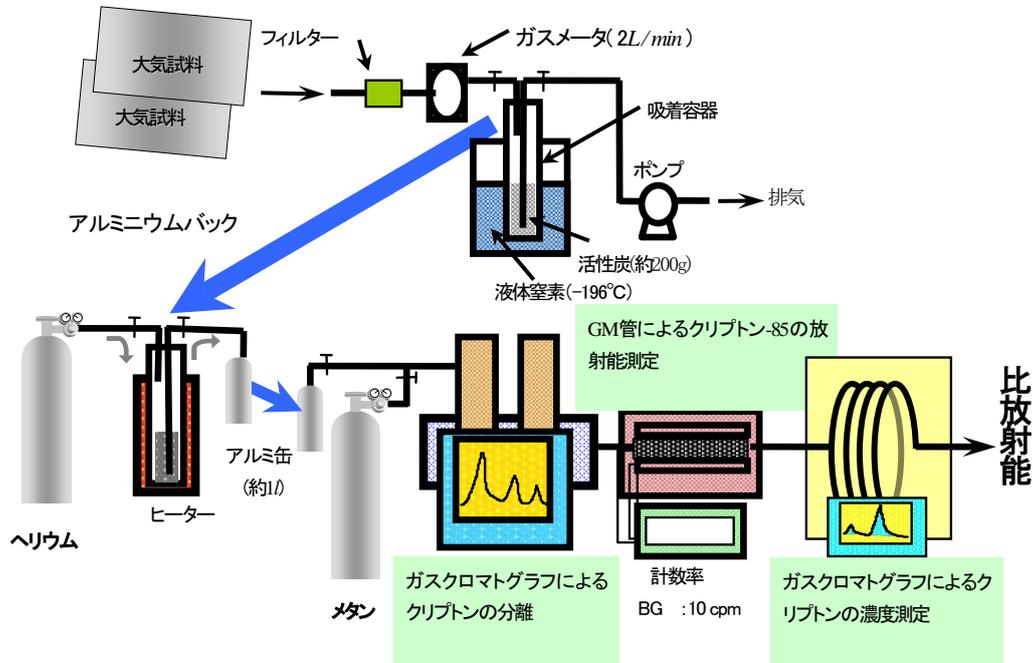


図1 Kr-85前処理及び分析装置の概略

大気中 Kr-85 濃度は、希釈倍率 N 倍の場合に、安定クリプトンとの比を用いて次式により算出する。

$$\text{大気中 Kr-85 濃度(Bq/m}^3\text{)} = \frac{\text{GM管内放射能(Bq)}}{\text{GM管内Kr量(ml)}} \times \text{1.14 ppm} \times \text{N}$$

### 2.3 β線ガスモニタ

モニタリングステーション設置 β線ガスモニタ

アロカ(株)製 MGR-R42-21403

- ・検出器 : 350×300×2 mm プラスチックシンチレーション検出器
- ・シンチレータ数 : 1 枚
- ・容積 : 約 30 L
- ・光電子増倍管 : 2 本
- ・鉛遮へい : 約 1.5 cm
- ・サンプリング流量 : 6.5 L/min
- ・測定下限濃度 : 0.1 kBq/m<sup>3</sup>

<sup>\*</sup> 大陽日酸(株)の商標名。大気を吸引し、CO、CO<sub>2</sub>、THC、H<sub>2</sub>Oを除去し、14.7 Mpa(at 35°C)でボンベに充填した圧縮空気。含有する Kr-85 濃度は0.0014±0.0001 kBq/m<sup>3</sup>。

## 可搬型β線ガスモニタ

アロカ(株)製 MGR-R48-21208

- ・検出器 : φ180×0.5 mm プラスチックシンチレーション検出器
- ・シンチレータ数 : 2 枚
- ・容積 : 約 12 L
- ・光電子増倍管 : 4 本 (2 分割検出槽のそれぞれに各 2 本)
- ・鉛遮へい : 約 1.5 cm
- ・サンプリング流量 : 5 L/min
- ・測定下限濃度 : 0.5 kBq/m<sup>3</sup>

## 2.4 風向風速計

モニタリングステーション : 地上 10 m ・ プロペラ式

日本原燃(株)濃縮埋設事業所 : 地上 10 m ・ 超音波式

日本原燃(株)再処理事業所 : 地上 10 m ・ 超音波式

地上 150 m ・ ドップラーソーダ

## 3. 調査結果

### 3.1 平成 19 年度調査結果

#### (1) 調査地点

調査地点は図 2 に示すとおり次の 3 地点とした。

地点 1 : モニタリングステーション尾駸局

地点 2 : 六ヶ所村大字尾駸字沖付 モニタリングカー測定地点 5

地点 3 : 六ヶ所村大字尾駸字沖付 国道 338 号線と県道 180 号線の交差点

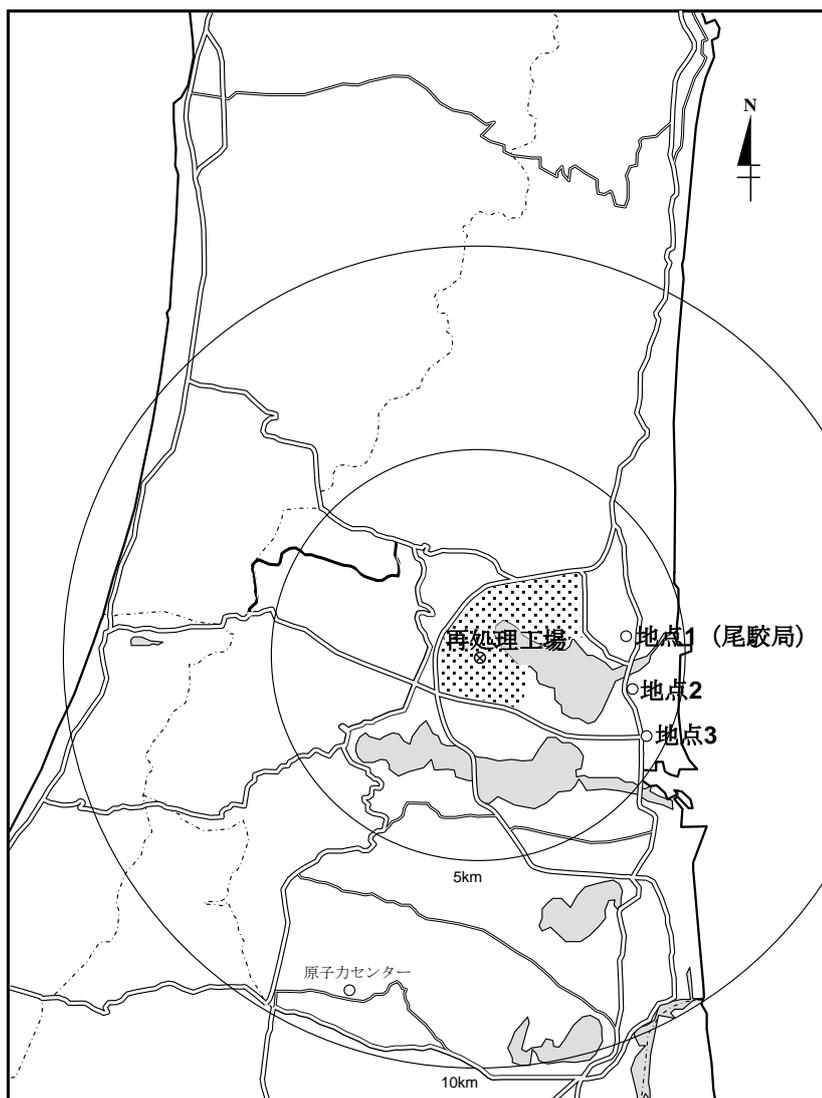


図2 調査地点

(2) 調査日時

平成19年12月21日 12:00~13:00

(3) 気象状況

気象状況は表1、2のとおり西～北西の風向であり、調査地点は再処理工場の風下であった。

表1 平成19年12月21日の気象状況（地上10m）

測定局	時刻	風向	風速(m/s)	大気安定度
尾駁	12:00	WNW	5.9	D
	12:10	NW	6.6	D
	12:20	NW	6.3	D
	12:30	WNW	6.4	D
	12:40	NW	7.9	D
	12:50	WNW	5.0	D
	13:00	WNW	7.4	D
再処理 事業所	12:00	WNW	7.9	D
	12:10	WNW	8.4	D
	12:20	WNW	8.2	D
	12:30	WNW	7.7	D
	12:40	WNW	9.7	D
	12:50	W	8.6	D
	13:00	WNW	7.8	D

表2 平成19年12月21日の気象状況（地上150m）

測定局	時刻	風向	風速(m/s)
再処理 事業所	12:00	WNW	12.1
	12:10	WNW	13.6
	12:20	WNW	14.3
	12:30	WNW	13.1
	12:40	WNW	12.6
	12:50	WNW	15.1
	13:00	WNW	13.6

(4)  $\beta$ 線ガスモニタによる測定結果

地点1においてはモニタリングステーション尾駁局に設置している $\beta$ 線ガスモニタを、地点2および3については可搬型 $\beta$ 線ガスモニタにより測定した。測定結果は図3に示すとおり、再処理工場から放出されたKr-85が検出されている。

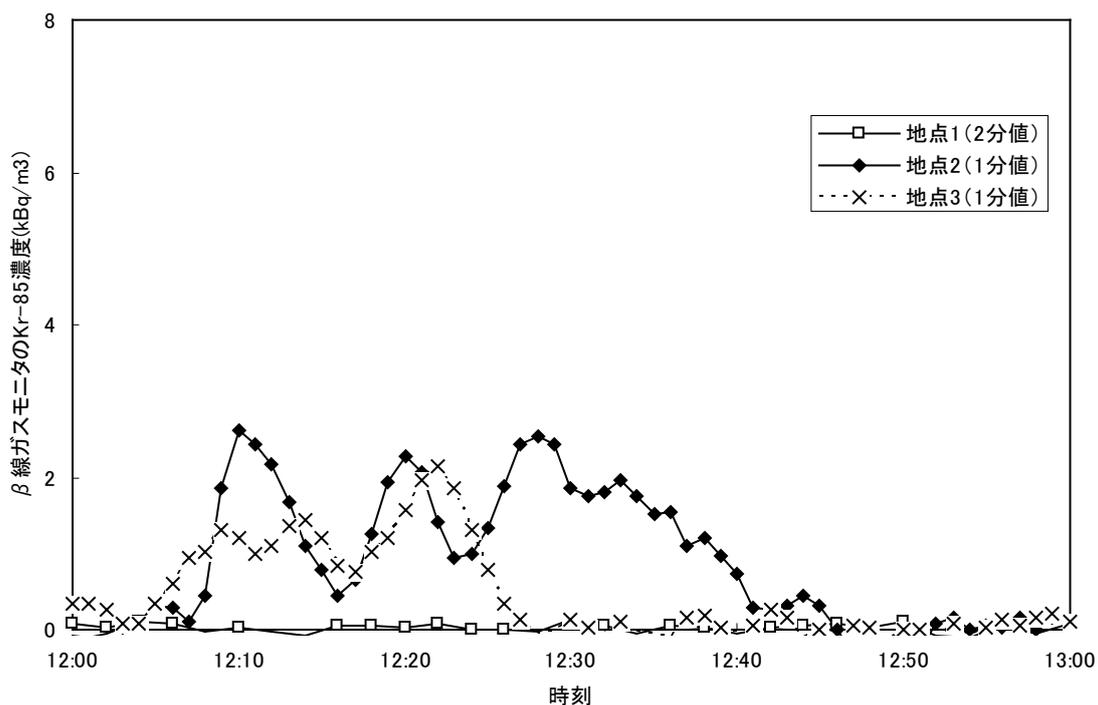


図3 β線ガスモニタの測定結果(平成19年12月21日)

(5) 気象研法による測定結果

採取した大気試料についてβ線ガスモニタによる測定を参考に、純空気による希釈倍率を決定し、気象研法により測定した。測定結果を表3に示す。地点1についてはほぼバックグラウンドと同程度であり、地点2、3についてはバックグラウンドの100倍～1000倍程度の濃度であった。気象研法とβ線ガスモニタの測定値は概ね一致していた。

表3 気象研法による測定結果(平成19年度)

(単位: kBq/m<sup>3</sup>)

地点名	採取日時	Kr-85濃度	希釈倍率	(参考) β線ガスモニタ※
地点1	平成19年12月21日 12:20 ~ 12:40	0.0018 ± 0.0005	—	<0.1
地点2	平成19年12月21日 12:00 ~ 12:20	1.2 ± 0.02	20	1.0
	12:20 ~ 12:40	1.2 ± 0.02	10	1.6
地点3	平成19年12月21日 12:00 ~ 12:20	0.96 ± 0.02	20	0.9
	12:20 ~ 12:40	0.22 ± 0.005	33	<0.5

※β線ガスモニタ(地点1では2分値、地点2及び地点3では1分値)の20分間の平均値である。

### 3.2 平成 20 年度調査結果

#### (1) 調査地点

調査地点は図 2 に示すとおり次の 3 地点とした。

地点 1 : モニタリングステーション尾駁局

地点 2 : 六ヶ所村大字尾駁字沖付 モニタリングカー測定地点 5

地点 3 : 六ヶ所村大字尾駁字沖付 国道 338 号線と県道 180 号線の交差点

#### (2) 調査日時

平成 20 年 9 月 17 日 10:40~11:50

#### (3) 気象状況

気象状況は表 4、5 のとおり西~北西の風向であり、調査地点は再処理工場の風下であった。

表 4 平成 20 年 9 月 17 日の気象状況 (地上 10m)

測定局	時刻	風向	風速(m/s)	大気安定度
尾駁	10:40	WNW	4.0	B
	10:50	WNW	4.7	C
	11:00	WNW	3.5	C
	11:10	WNW	4	B
	11:20	WNW	4.3	C
	11:30	WNW	4.0	C
	11:40	NW	4.2	C
	11:50	WNW	3.5	C
再処理 事業所	10:40	WNW	4.7	C
	10:50	WNW	3.7	B
	11:00	NW	3.9	B
	11:10	WNW	4.4	C
	11:20	W	4.6	C
	11:30	W	4.6	C
	11:40	WNW	4.4	C
	11:50	WNW	4.9	C

表5 平成20年9月17日の気象状況(地上150m)

測定局	時刻	風向	風速(m/s)
再処理 事業所	10:40	W	5.3
	10:50	W	5.4
	11:00	WNW	5.2
	11:10	W	5.1
	11:20	W	4.6
	11:30	W	5.5
	11:40	W	6.0
	11:50	W	6.4

(4) β線ガスモニタによる測定結果

地点1においてはモニタリングステーション尾駸局に設置しているβ線ガスモニタを、地点2および3については可搬型β線ガスモニタにより測定した。測定結果は図4に示すとおり、再処理工場から放出されたKr-85が検出されている。

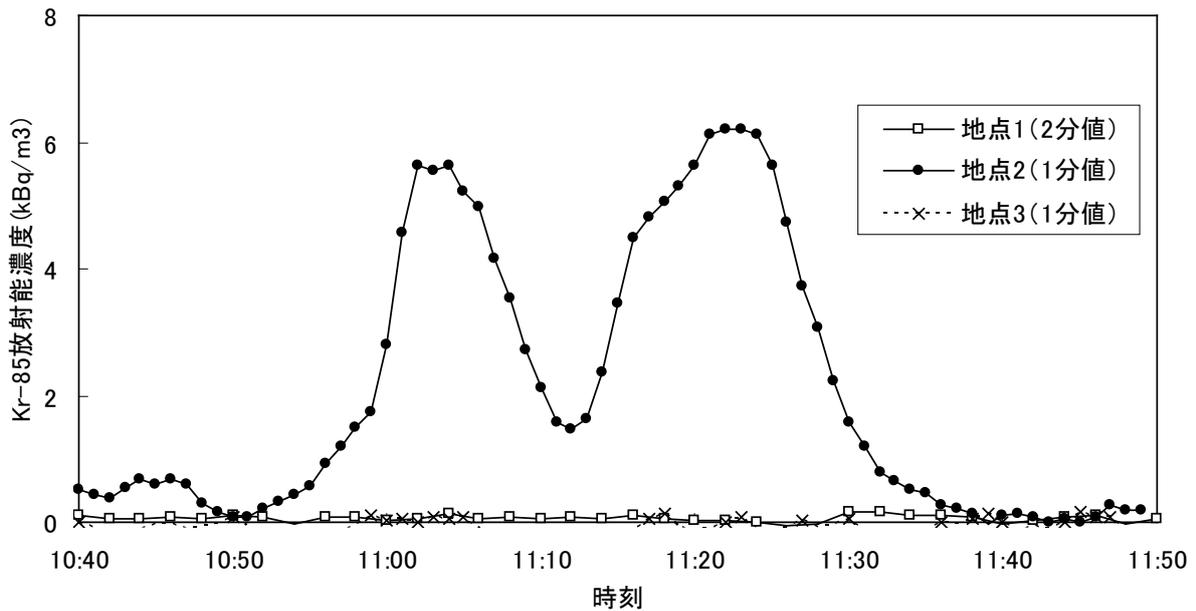


図4 β線ガスモニタの測定結果(平成20年9月17日)

(5) 気象研法による測定

採取した大気試料についてβ線ガスモニタによる測定を参考に、純空気による希釈倍率を決定し、気象研法により測定する。測定結果については平成21年度にとりまとめる。

#### 4. 今後の進め方

これまでの調査において、気象研法とβ線ガスモニタの測定値は概ね一致することを確認した。β線ガスモニタは気象研法による前処理の参考とするために用いていたが、Kr-85の経時変化をとらえることができ、環境放射能拡散シミュレーションシステムの精度向上に有効に利用できることから、平成21年度からは本ガスモニタを用いて調査を行うこととする。

#### 文 献

- 1) 三浦誓也、貝森優希、工藤英嗣、野呂幸男、時枝隆之、広瀬勝己：青森県原子力センター所報 第1号, 43-44(2006)
- 2) Yasuhito Igarashi, Michio Aoyama, Kazuhiro Nemoto, Katsumi Hirose, Takashi Miyao, Katsuhiko Fushimi, Mikihiko Suzuki, Shigeo Yasui, Yasuhiro Asai, Iwao Aoki, Kenji Fujii, Shigeo Yamamoto, Hartmut Sartorius and Wolfgang Weiss : <sup>85</sup>Kr measurement system for continuous monitoring at the Meteorological Research Institute, Japan. Journal of Environmental monitoring, 3, 688-696(2001)
- 3) 高橋秀昭、工藤俊明、貝森優希、堀田智史、木村秀樹、安積 潔、北畠 茂、佐々木耕一、外川洋一、泉 淳、小向幼菜：青森県原子力センター所報, 第2号, 41-47(2007)

## 環境放射能拡散シミュレーションシステム

武藤逸紀 庄司博光 木村秀樹  
松村浩治\*1 今井慎一\*2 根本 誠\*3

### 1. はじめに

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年度に整備した。

平成17年度から平成18年度は、環境モニタリングのKr-85濃度、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った。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う高度化を行った。

### 2. 調査内容

#### 2.1 現システムの概要

現システムの計算モードにはリアルタイム計算モードとシミュレーション計算モードがある。

リアルタイム計算モードは青森県環境放射線テレメータシステム（以下、「テレメータシステム」という。）から新たなデータを取得し計算を行う。シミュレーションモードでは、指定した時間帯のデータを取り込んで計算を行う。

拡散計算はプルームモデル、パフモデル、KDE法のいずれかを使用する。計算範囲は東西方向、南北方向それぞれ25kmとし、メッシュ個数は50×50である。以下に計算処理の概要を示す。

- ①テレメータシステムから計算に必要な気象データ（モニタリングステーションの風向・風速、大気安定度等、日本原燃(株)再処理事業所の風向・風速（高さ150m）及び排気データ（ $\beta$ 計数率、排気流量）をリアルタイム（10分間隔）で取得し、データベースに保存する。
- ②取得した気象データを使用して、計算対象地域の風速場の計算を行う。
- ③風速場及び取得した排気データを使用して、放出された放射性物質の移流、拡散計算を行う。
- ④拡散計算の結果から、放射性物質の大気中地上濃度及び放射性雲からの $\gamma$ 線による外部被ばく実効線量率を計算し、その空間分布を求める。
- ⑤空間分布データを地図上に重ねて表示する。
- ⑥計算結果をデータベースに保存する。

---

\*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

## 2.2 シミュレーションシステムの高度化

解析精度向上、計算機能の追加および計算モデルの最適化を目的として以下の項目を行った。

### ①風速場評価機能の精度向上

シミュレーションシステムの風速場計算プログラムに地形の影響を考慮する処理を追加すると共に、GPV データ適用可能性の検討を行った。

### ②降水等による地表沈着評価機能追加

Kr-85 以外の核種にも対応するため、降水等による地表沈着評価を行えるように拡散計算及び濃度・線量計算を行うプログラムを高度化した。

### ③積算被ばく線量計算機能追加

積算線量計による測定値と計算値の比較が行えるように年単位、3 ヶ月単位といった任意期間の積算被ばく線量の計算機能を追加した。

### ④トリチウム拡散評価計算機能追加

HT、HTO またはその両方が放出された場合を想定し、HTO の再放出を考慮した評価を行う計算機能を追加した。トリチウム専用の拡散計算プログラムを新規に追加してシステム実装した。吸入摂取及び経皮摂取による内部被ばく実効線量の計算機能もあわせて追加した。

### ⑤C-14 拡散評価機能の検討

C-14 の放出形態、各化学系における環境動態、パラメータの調査・整理及び計算モデルの検討を行った。

### ⑥計算モデルの最適化

平成 19 年度より高度化の検討を行い、計算モデルについて検証を行った。

プルームモデルは風向の移流変化を再現できない。KDE 法、オイラー型モデルは精度を上げるためには計算コストがかかるため、リアルタイムモードには適さない。このためリアルタイムモードはパフモデルのみとした。

また、計算モデルを以下のとおり最適化した。

- ・リアルタイム計算モード : パフモデル
- ・シミュレーション計算モード : パフモデル、プルームモデル、  
オイラー型モデル (トリチウム専用)

最大表示範囲を青森県全域とし、メッシュの個数を可変とした。

## 2.3 シミュレーションシステムの高度化後の計算処理

### (1) リアルタイム計算モード

風速場計算機能について地形の影響を考慮し、精度向上を行ったパフモデルにより拡散計算を行う。評価対象核種はガス、粒子状物質である。核種の物理減衰を考慮する。Kr-85 の放出率は、テレメータシステムのデータを使用する。Kr-85 以外の核種の放出率は一定の値を用いて計算する。

- ① 地形データ作成
- ② 風速一次推定場の計算鉛直座標は地形を考慮するため、地形に沿った座標系( $\sigma$ 座標)とする。
- ③ ②で作成した推定場の質量保存則による補正(MASCON モデル)
- ④ ③で作成した風速場を用いたパフの移流計算

- ⑤ パフの大気中濃度の計算
  - 放射性崩壊による減衰計算
- ⑥ 放射性雲による $\gamma$ 線外部被ばく線量の計算
- ⑦ 結果の保存

## (2) シミュレーションモード

### ア プルームモデル

再処理事業所の風向・風速（高さ 150 m）を用い、プルームモデルにより拡散計算を行う。積算被ばく線量計算機能により、拡散計算の結果から積算被ばく線量の計算を行う。評価対象核種はガス、粒子状物質である。核種の物理減衰を考慮する。

- ① 放出高さの代表風速を求める(通常、放出点の風速とする)
- ② ①の風速を用いたプルームによる大気中濃度の計算
- ③ 放射性雲による $\gamma$ 線外部被ばく線量の計算
- ④ 吸入による内部被ばく線量の計算
- ⑤ 積算被ばく量の計算
- ⑥ 結果の出力

### イ パフモデル

風速場計算機能について地形の影響を考慮し精度向上を行い、降水等による地表沈着機能を追加したパフモデルにより拡散計算を行う。積算被ばく線量計算機能により、拡散計算の結果から積算被ばく線量の計算を行う。評価対象核種はガス及び粒子状物質である。核種の物理減衰を考慮する。

- ① 地形データ作成
- ② 風速一次推定場の計算
  - 鉛直座標は地形を考慮するため、地形に沿った座標系( $\sigma$ 座標)とする。
- ③ ②で作成した推定場の質量保存則による補正(MASCON モデル)
- ④ ③で作成した風速場を用いたパフの移流計算
- ⑤ パフの大気中濃度の計算
  - ・放射性崩壊による減衰計算
  - ・乾性沈着計算
  - ・湿性沈着計算
- ⑥ 放射性雲による $\gamma$ 線外部被ばく線量の計算
- ⑦ 吸入による内部被ばく線量の計算
- ⑧ 積算被ばく線量の計算
- ⑨ 結果の出力

### ウ トリチウム計算モデル

シミュレーションシステムの高度化で追加したトリチウム計算機能により、オイラー型移流・拡散方程式を用いて拡散計算を行う。風速場計算機能について地形の影響を考慮し精度向上、降水等による地表沈着機能の追加を反映している。積算被ばく線量計算機能により、拡散計算の結果から積算被ばく線量の計算を行う。評価対象核種は HT、HTO とする。核種の物理減衰、HTO の再放出を考慮する。

- ① 地形データ作成
- ② 風速一次推定場の計算  
鉛直座標は地形を考慮するため、地形に沿った座標系( $\sigma$ 座標)とする。
- ③ ②で作成した推定場の質量保存則による補正(MASCON モデル)
- ④ オイラー型モデルによるトリチウムの移流拡散計算
  - ・ 拡散係数の計算
  - ・ 放射性崩壊による減衰計算
  - ・ 乾性沈着計算
  - ・ 湿性沈着計算
  - ・ HTO の再放出計算
- ⑤ 大気中濃度の計算
- ⑥ 吸入摂取及び経皮摂取による内部被ばく線量の計算
- ⑦ 積算被ばく線量計算
- ⑧ 結果の出力

### 3. まとめ

平成 20 年度は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った。

風速場評価機能の精度向上を目的とした GPV データ適用及び C-14 拡散評価機能については、今後そのとり入れについて検討を進める。

平成 21 年度からは本シミュレーションシステムを用いて環境影響評価を行う。また、以下の機能について検証し、パラメータ等の検討を行う。

#### (1) 風速場評価機能

テレメータシステムから取得した気象データを用いて風速場の計算を行う。広範囲の検証計算の場合は、GPV データの適用も検討する。(2)~(4)の検証結果をもとに、パラメータ等の検討を行う。

#### (2) Kr-85 濃度拡散計算機能及び Kr-85 による外部被ばく線量計算機能

テレメータシステムから測定値を用いて算出した Kr-85 の放出量と(1)で作成した風速場データを用いて Kr-85 の地上大気中濃度及び Kr-85 による外部被ばく線量を計算する。その計算結果と $\beta$ 線ガスモニタの測定値等を比較してパラメータ等を検討する。

#### (3) トリチウム拡散評価機能

H-3 の放出量の測定値と(1)で作成した風速場データを用いて H-3 の地上大気中濃度を計算する。その計算結果と大気中の水蒸気状トリチウムの測定値等を比較し、沈着、再放出等に係るパラメータ等を検討する。

#### (4) 地表沈着評価機能

I-129 等の地表沈着評価機能の対象となる核種の放出量の測定値と(1)で作成した風速場データを用いて地上大気中濃度を計算する。その計算結果と実測値を比較して沈着に係るパラメータ等を検討する。

参考

「システム構成」

システム構成の概要を図1に示す。シミュレーションシステムの構成は青森県原子力センター（青森県六ヶ所村）のリアルタイム計算サーバ、シミュレーション計算PC、青森県原子力センター青森市駐在（青森県青森市）のシミュレーション計算PCである。青森県の環境モニタリングステーション・モニタリングポスト及び日本原燃株式会社の環境モニタリングステーション・敷地内モニタからテレメータシステムに測定値(2分値)が伝送されている。テレメータシステムはイーサネットを使用し、青森県原子力センターのリアルタイム計算サーバ、計算シミュレーションPCに測定値(10分値)をリアルタイムで送信している。

システム構成の概要を図1に示す。

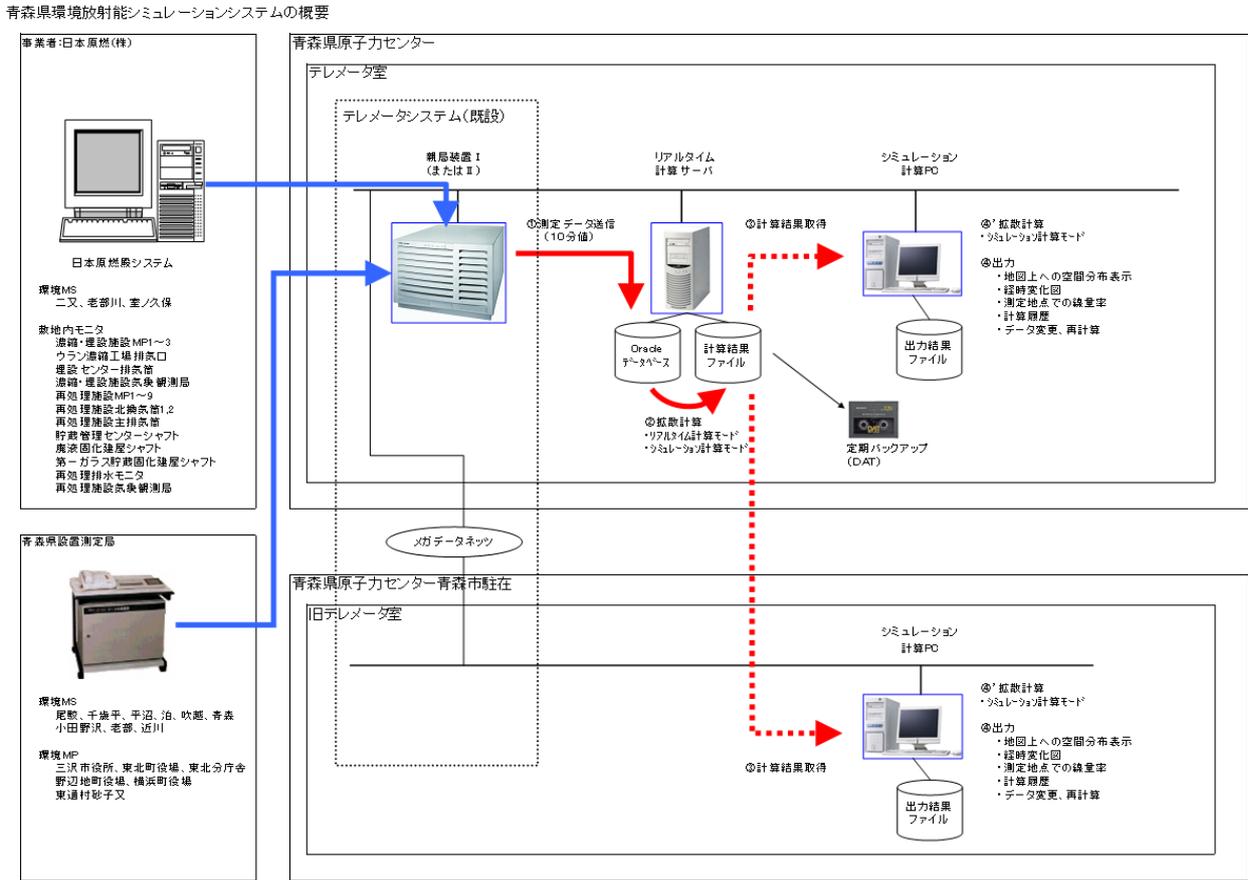


図1 システム構成

リアルタイム計算サーバでは、テレメータシステムから測定値を取得し、データベースに保存する。また、データベースの測定値を用いてリアルタイムでの拡散計算を行い、計算結果を表示する。シミュレーション計算PCでは、リアルタイム計算サーバのデータベースから取得した測定値を用いて任意の期間での拡散計算を行い、計算結果を表示する。

「拡散計算処理の流れ」

シミュレーションシステムは、リアルタイムでテレメータシステムから測定値を取得して拡散

計算を行うリアルタイム計算モード機能、任意の期間での拡散計算を行うシミュレーション計算モード機能の2つの計算機能を持つ。リアルタイムモード機能ではパフモデルを用いて拡散計算を行い、シミュレーションモードではプルームモデル、パフモデル、トリチウムモデルを選択して拡散計算を行う。

拡散計算処理の流れは以下のとおりである。

- (1) 風速場計算
- (2) 移流・拡散計算及び大気中濃度計算
- (3) 放射性雲によるγ線外部被ばく線量の計算
- (4) 吸入による内部被ばく線量の計算
- (5) 積算被ばく量の計算
- (6) 結果の出力

### 「風速場計算」

風速場の計算には、数値地図のデータを用いて格子点の地形データを算出し、一次推定風速場を計算する。一次推定風速場について MASCON モデルを用いて、質量保存則による補正を行う。

#### (1) 地形データ

地形データは数値地図<sup>1)</sup>の 50mメッシュデータを用い、近傍 4 点の線形内挿で算出する。水平方向は直交座標とし、鉛直方向は地形を考慮するため、σ 座標系とする。

$$z^* = z_t \cdot \frac{z - z_s}{z_t - z_s} \quad \dots \text{数式 1}$$

$$\left( \begin{array}{ll} z^* & : \text{地形準拠座標における地上高さ[m]} & z & : \text{直交座標における地上高さ[m]} \\ z_t & : \text{計算範囲の最上面の高度[m]} & z_s & : \text{標高[m]} \end{array} \right)$$

#### (2) 一次推定風速場

まず、数式 2 を使用して計算範囲の最上面の高度 $z_t$ における風速を計算する。<sup>2)</sup>

$$u_z = u_s (z/z_s)^p \quad \dots \text{数式 2}$$

$$\left( \begin{array}{lll} u_s & : \text{観測点での風速[m/s]} & z_s & : \text{観測点での高度[m]} & u_z & : \text{高さzでの風速[m/s]} \\ P & : \text{Pasquill安定度に対するパラメータ}^2) \end{array} \right)$$

次に、数式 2 で計算された高さ $z_t$ における風速を使用し、数式 3~5 を用いて最上面における水平方向風速場を計算する。w成分は 0 とする。

$$U(x, y, z_t) = \frac{\sum_{iws=1}^{nws} \left( \frac{1}{R_{iws}^2} \times U0_{iws} \right)}{\sum_{iws=1}^{nws} \left( \frac{1}{R_{iws}^2} \right)} \quad \dots \text{数式 3}$$

$$V(x, y, z_t) = \frac{\sum_{iws=1}^{nws} \left( \frac{1}{R_{iws}^2} \times V0_{iws} \right)}{\sum_{iws=1}^{nws} \left( \frac{1}{R_{iws}^2} \right)} \quad \dots \text{数式 4}$$

$$W(x, y, z_t) = 0 \quad \dots \text{数式 5}$$

$$\left( \begin{array}{ll} \text{nws} & : \text{観測点の数} \\ U_{0_{iws}}, V_{0_{iws}} & : \text{iws番目の観測点における風速のu,v方向成分(m/s)} \\ R_{iws} & : \text{iws番目の観測点から任意地点(x,y)までの距離(m)} \end{array} \right)$$

数式 3~5 で求めた風速場を使用し、再び数式 2 を用いて各高度における風速の水平分布を求める。

### (3) 質量保存則による補正

計算された風速の一次推定値( $u_0, v_0, w_0$ )から、MASCONモデルを用いて質量保存則を満たす補正值( $u, v, w$ )を求める。MASCONモデルは数式 6 で示される質量保存則を拘束条件として、算出領域  $\Omega$  において、数式 7 の値を最小にするような風速( $u, v, w$ )を算出するものである<sup>3)</sup>。 $a_1, a_2$ は水平、鉛直方向に対する風速に関する重みであり、大気安定度によって変化するパラメータである。

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \quad \dots \text{数式 6}$$

$$\int_{\Omega} a_1^2 (u - u_0)^2 + a_1^2 (v - v_0)^2 + a_2^2 (w - w_0)^2 d\Omega \quad \dots \text{数式 7}$$

### 「大気拡散計算 プルームモデル」

プルームモデルでは、「風速場計算」で計算した地形の影響を考慮した風速場ではなく、放出点である再処理事業所主排気筒の風向・風速（高さ 150 m）を使用して拡散計算を行う。核種の物理減衰を考慮する。

放出点の風速を用いてプルームによる放射性核種の大気中濃度の計算し、放射性雲による  $\gamma$  線外部被ばく線量及び吸入による内部被ばく線量の計算を行う。

### (1) 大気中濃度の計算

放射性核種の大気中濃度は数式 8 により計算する。

$$\chi_i(x, y, z) = \frac{Q_i}{2\pi \cdot \sigma_y \cdot \sigma_z \cdot U} \times \exp\left(-\frac{\lambda_i \cdot x}{U}\right) \times \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \times \left[ \exp\left(-\frac{(z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z+H)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right] \quad \dots \text{数式 8}$$

$$\left( \begin{array}{ll} \chi_i(x, y, z) & : \text{評価地点(x,y,z)における核種iの濃度 (Bq/m}^3\text{)} \\ Q_i & : \text{核種iの放出率 (Bq/s)} \\ H & : \text{放出源の実効放出高さ (m)} \\ U & : \text{放出源の実効放出高さを代表する風速 (m/s)} \\ \sigma_y, \sigma_z & : \text{濃度分布のy方向およびz方向の拡がりのパラメータ (m)} \\ x, y, z & : \text{水平風下方向、水平横方向および鉛直方向の座標 (m)} \\ \lambda_i & : \text{核種 i の物理的崩壊定数 (s}^{-1}\text{)} \end{array} \right)$$

## (2) 放射性雲によるγ線外部被ばく線量の計算

放射性雲からのγ線による外部被ばく実効線量は指針<sup>4)</sup>に則り、数式9により計算する。

$$H_g = K_2 \cdot D \cdot Cf_E \quad \dots \text{数式 9}$$

$H_g$	: 放射性雲からのγ線による実効線量( $\mu\text{Sv/h}$ )
$K_2$	: 空気カーマから実効線量への換算係数( $\mu\text{Sv}/\mu\text{Gy}$ )
$D$	: 評価地点(x,y,0)の空気カーマ率 ( $\mu\text{Gy/h}$ )
$Cf_e$	: 照射線量ビルドアップから実効線量ビルドアップへの補正係数

## (3) 吸入による内部被ばく実効線量の計算

地表面近傍まで拡散移流してきたプルームに含まれる放射性物質を吸入摂取することによる内部被ばく線量は数式10により計算する。

$$H_{\text{Inh},i} = K_{\text{Inh},i} \cdot \chi_i(x,y,0) \cdot M \cdot t_{\text{internal}} / 24 \times 1 \times 10^6 \quad \dots \text{数式 10}$$

$H_{\text{Inh},i}$	: 核種iの吸入摂取による内部被ばく線量 (Sv)
$K_{\text{Inh},i}$	: 核種iの吸入摂取による内部被ばく線量係数(Sv/Bq)
$\chi_i(x,y,z)$	: 評価地点(x,y,0)における核種iの地表面大気中濃度 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )
$M$	: 呼吸率 ( $\text{m}^3/\text{d}$ )
$t_{\text{internal}}$	: 吸入摂取による被ばく時間(h)

### 「大気拡散計算 パフモデル」

パフモデルでは、「風速場計算」で計算した地形の影響を考慮した風速場を用いてパフの移流及び大気中濃度計算を行う。大気中濃度の計算には放射性崩壊による核種の減衰、乾性沈着、湿性沈着を考慮する。核種の大気中濃度の計算結果から放射性雲によるγ線外部被ばく線量、吸入による内部被ばく線量を計算する。

また、乾性沈着、湿性沈着による核種の地表沈着量について計算する。

#### (1) パフの移流

風向と風速のデータをもとにパフの移流計算を行う。時刻 $t+\Delta t$ におけるパフ中心の座標 $(xp_{t+\Delta t}, yp_{t+\Delta t}, zp_{t+\Delta t})$ は、時刻 $t$ におけるパフ中心の座標 $(xp_t, yp_t, zp_t)$ から数式11、12、13に基づいて計算する。

$$xp_{t+\Delta t} = xp_t + \Delta t \cdot u_t \quad \dots \text{数式 11}$$

$$yp_{t+\Delta t} = yp_t + \Delta t \cdot v_t \quad \dots \text{数式 12}$$

$$zp_{t+\Delta t} = zp_t + \Delta t \cdot w_t \quad \dots \text{数式 13}$$

$xp, yp, zp$	: パフの中心の座標 (m)	$t$	: 時刻
$\Delta t$	: パフの放出時間間隔 (s)		
$u, v, w$	: 「風速場計算」から得られた地点 $(xp, yp, zp)$ における x,y,z 方向の風速成分(m/s)		

(2) 核種の大気中濃度の計算

評価地点(x,y,z)における、任意のパフによる核種iの大気中濃度は数式 14 により計算する。濃度分布の広がりパラメータは気象指針の濃度分布の計算式<sup>5)</sup>に従う。

$$\chi_{i,IP,x,y,z} = \frac{Q_{i,IP}}{(2\pi)^{1.5} \times \sigma_{X_{IP}} \times \sigma_{Y_{IP}} \times \sigma_{Z_{IP}}} \cdot \exp\left(-\frac{(x_{P_{IP}} - x)^2}{2\sigma_{X_{IP}}^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{(y_{P_{IP}} - y)^2}{2\sigma_{Y_{IP}}^2}\right) \cdot \left\{ \exp\left(-\frac{(z_{P_{IP}} + z)^2}{2\sigma_{Z_{IP}}^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z - z_{P_{IP}})^2}{2\sigma_{Z_{IP}}^2}\right) \right\} \quad \dots \text{数式 14}$$

{	$\chi_{i,IP,x,y,z}$	: 評価地点(x,y,z)の点における核種iの大気中濃度 (Bq/m <sup>3</sup> )
	$Q_{i,IP}$	: 核種iのパフ中核種量(Bq)
	x,y,z	: 評価地点の座標(m)
	$x_{P_{IP}}, y_{P_{IP}}, z_{P_{IP}}$	: パフの中心座標(m)
	$\sigma_{X_{IP}}, \sigma_{Y_{IP}}, \sigma_{Z_{IP}}$	: パフの濃度分布のx,y,z軸方向の広がりパラメータ (m)

数式 14 のパフが放出されてから t 秒後の核種 i のパフ中核種量は数式 15 により計算する。

$$Q_i = Q_{\text{initial},i} \times R_i \quad \dots \text{数式 15}$$

{	$Q_i$	: 放出後t秒後の核種iのパフ中核種量 (Bq)
	$Q_{\text{initial},i}$	: 放出直後の核種iのパフ中核種量 (Bq)
	$R_i$	: 核種iのパフ中残存率

物理崩壊、乾性及び湿性沈着を考慮した核種iのパフ中残存率 $R_i$ は数式 16 により計算する。

$$R_i = R_{L,i} \times R_{d,i} \times R_{w,i} \quad \dots \text{数式 16}$$

{	$R_{L,i}$	: 核種iの物理的崩壊によるパフ中残存率
	$R_{d,i}$	: 核種iの乾性沈着によるパフ中残存率
	$R_{w,i}$	: 核種iの湿性沈着によるパフ中残存率

放出後t秒経過したパフの物理的崩壊による核種iのパフ中残存率 $R_{L,i(t)}$ は数式 17 により計算する。

$$R_{L,i(t)} = \exp(-\lambda_i \times t) \quad \dots \text{数式 17}$$

{	$\lambda_i$	: 核種iの物理的崩壊定数 (s <sup>-1</sup> ) (=ln(2)/HL <sub>i</sub> )
	HL <sub>i</sub>	: 核種iの物理的半減期 (s)
	T	: パフが放出されてからの経過時間 (s)

放出後t秒経過したパフの乾性沈着による核種iのパフ中残存率 $R_{d,i(t)}$ はIAEAのレポートによる数式 18 により計算する<sup>6)</sup>。

$$R_{d,i(t)} = R_{d,i(t-\Delta t)} \times \exp(-\Lambda_{d,i(t)} \times \Delta t) \quad \dots \text{数式 18}$$

$$\left( \begin{array}{l} R_{d,i,(t-\Delta t)} : \text{前ステップまでの乾性沈着による核種}i\text{のパフ中残存率} \\ \Delta t : \text{パフの時間間隔 (s)} \\ \Lambda_{d,i,(t)} : \text{放出後}t\text{秒後における全地表面への核種}i\text{の相対乾性沈着率 (s}^{-1}\text{)} \end{array} \right)$$

放出後 $t$ 秒経過したパフの湿性沈着による核種 $i$ のパフ中残存率 $R_{w,i,(t)}$ はH. D. Brenkらによる数式 19 により計算する<sup>7)</sup>。 $\Lambda_{w,i,(t)}$ は数式 20 により計算する。

$$R_{w,i,(t)} = R_{w,i,(t-\Delta t)} \times \exp(-\Lambda_{w,i,(t)} \times \Delta t) \cdots \text{数式 19}$$

$$\left( \begin{array}{l} R_{w,i,(t-\Delta t)} : \text{前ステップまでの湿性沈着による核種}i\text{のパフ中残存率} \\ \Delta t : \text{パフの時間間隔 (s)} \\ \Lambda_{w,i,(t)} : \text{放出後}t\text{秒後における核種}i\text{の洗浄係数 (s}^{-1}\text{)} \end{array} \right)$$

$$\Lambda_{w,i,(t)} = a \cdot I^b \cdots \text{数式 20}$$

$$( a, b : \text{洗浄係数パラメータ} \quad I : \text{降水強度[mm/h]} )$$

### (3) 放射性雲による $\gamma$ 線外部被ばく線量の計算

放射性雲中の核種 $i$ の $\gamma$ 線による外部被ばく線量は、プルームモデルと同様に数式 9 から計算する。

### (4) 吸入による内部被ばく実効線量

呼吸摂取による内部被ばく線量は、評価点における核種の大気中濃度からプルームモデルと同様に、数式 10 を用いて計算する。

### (5) $\beta$ 線による外部被ばく実効線量

$\beta$ 線による外部被ばく実効線量率は、評価点における大気中濃度から数式 21 により計算する。

$$D_{\text{sub},i}(x, y, 0) = DF_{\text{sub},i} \cdot \chi_i(x, y, 0) \cdots \text{数式 21}$$

$$\left( \begin{array}{l} D_{\text{sub},i}(x, y, 0) : \text{核種}i\text{の}\beta\text{線による外部被ばく実効線量}[\mu\text{Sv/h}] \\ DF_{\text{sub},i} : \text{核種}i\text{の}\beta\text{線による外部被ばく実効線量換算係数}[\mu\text{Sv/h per Bq/m}^3] \\ \chi_i(x, y, 0) : \text{評価点の核種}i\text{の大気中濃度}[\text{Bq/m}^3] \end{array} \right)$$

### (6) 地表沈着量の計算

評価地点の地表面における核種 $i$ の沈着率 $\omega_i$ は数式 22 により計算する。

$$\omega_i = \omega_{d,i} + \omega_{w,i} \cdots \text{数式 22}$$

$$\left( \begin{array}{l} \omega_{d,i} : \text{評価地点における核種}i\text{の乾性沈着率 (Bq/m}^2\text{/s)} \\ \omega_{w,i} : \text{評価地点における核種}i\text{の湿性沈着率 (Bq/m}^2\text{/s)} \end{array} \right)$$

評価地点の地表面における核種 $i$ の乾性沈着率 $\omega_{d,i}$ はW. G. N. Slinnによる数式 23 により計算する<sup>8)</sup>。

$$\omega_{d,i} = \chi_{i,x,y,0} \times Vg_i \cdots \text{数式 23}$$

$$\left( \begin{array}{l} \chi_{i,x,y,0} \quad : \text{評価地点}(x,y,0)\text{における核種}i\text{の地表面大気中濃度 (Bq/m}^3\text{)} \\ \mathbf{Vg}_i \quad : \text{核種}i\text{の沈着速度 (m/s)} \end{array} \right)$$

評価地点の地表面における核種*i*の湿性沈着率 $\omega_{w,i}$ はH. D. Brenkらによる数式 24 により計算する<sup>6)</sup>。

$$\begin{aligned} \omega_{w,i} &= \int_0^\infty \chi_{i,x,y,z} dz \times \Lambda = \sum_{IP=1}^{NPF} \left\{ \int_0^\infty \chi_{i,IP,x,y,z} dz \right\} \times \Lambda_i \\ &= \sum_{IP=1}^{NPF} \left[ \int_0^\infty \frac{Q_{i,IP}}{\left( (2\pi)^{1.5} \times \sigma_{xIP} \times \sigma_{yIP} \times \sigma_{zIP} \right)} \times \exp\left(-\frac{(xp_{IP} - x)^2}{2\sigma_{xIP}^2}\right) \times \exp\left(-\frac{(yp_{IP} - y)^2}{2\sigma_{yIP}^2}\right) \right. \\ &\quad \times \left. \left\{ \exp\left(-\frac{(z + zp_{IP})^2}{2\sigma_{zIP}^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z - zp_{IP})^2}{2\sigma_{zIP}^2}\right) \right\} dz \right] \times \Lambda_i \quad \dots \text{数式 24} \\ &= \sum_{IP=1}^{NPF} \left[ \frac{Q_{i,IP}}{(2\pi \times \sigma_{xIP} \times \sigma_{yIP})} \times \exp\left(-\frac{(xp_{IP} - x)^2}{2\sigma_x^2}\right) \times \exp\left(-\frac{(yp_{IP} - y)^2}{2\sigma_y^2}\right) \right] \times \Lambda_i \\ &\quad \left( \begin{array}{l} \Lambda_i \quad : \text{核種}i\text{の洗浄係数 (s}^{-1}\text{)} \quad xp,yp,zp : \text{パフ}IP\text{の中心座標(m)} \\ NPF \quad : \text{全パフ数} \end{array} \right) \end{aligned}$$

### 「トリチウムモデル」

トリチウムモデルでは、「風速場計算」で計算した地形の影響を考慮した風速場を用い、オイラー型モデルによってトリチウムの移流・拡散計算及び大気中濃度の計算を行う。また、大気中濃度の計算結果から呼吸摂取及び経皮摂取による内部被ばく線量の計算を行う。トリチウムの化学形はHT及びHTOを想定しており、移行、除去過程としては、放射性崩壊による減衰、乾性沈着、湿性沈着及びHTOの再放出を考慮する。トリチウムの移行過程を図2に、再放出過程を図3に示す。

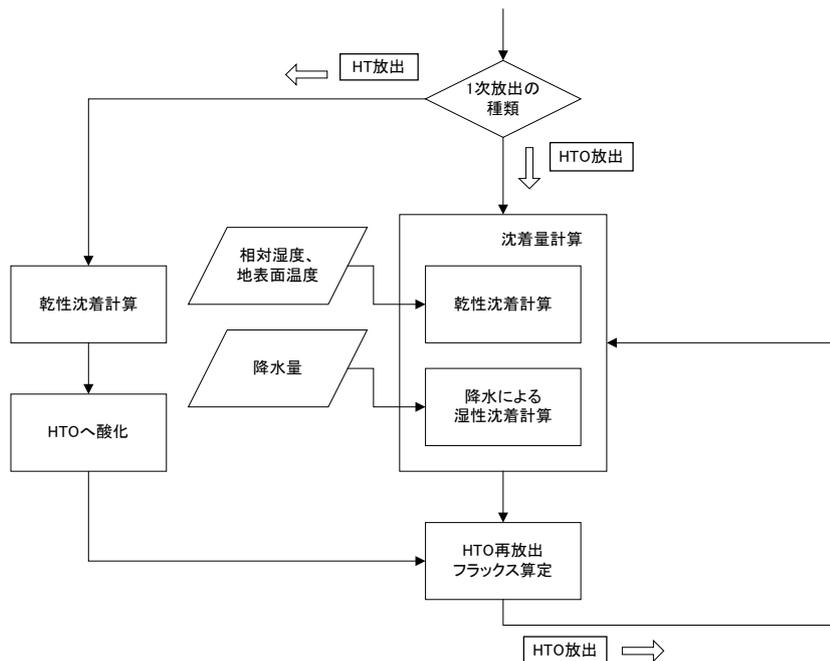


図2 トリチウムの移行過程

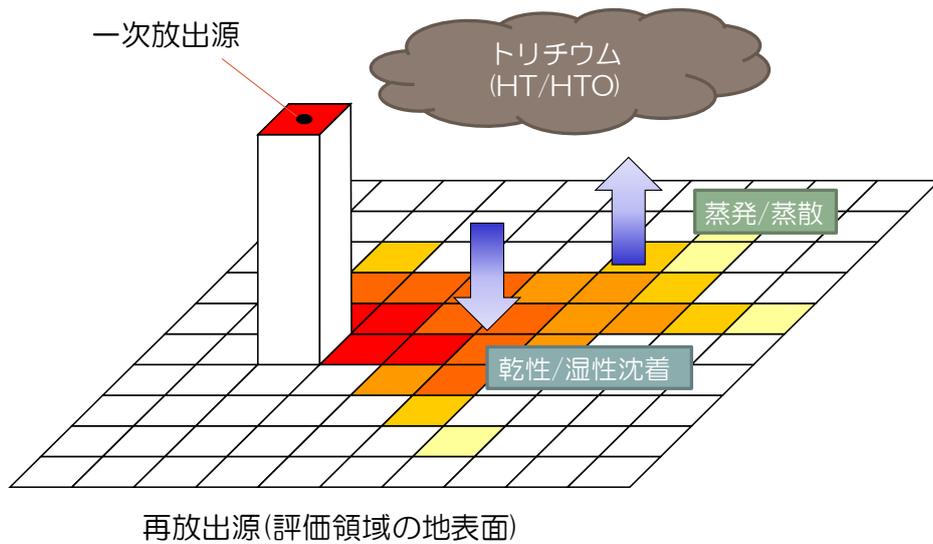


図3 トリチウムの再放出過程

(1) 移流・拡散及び大気中濃度計算

トリチウムの移流・拡散及び大気中濃度は数式 25 により計算する。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -u \frac{\partial C_i}{\partial x} - v \frac{\partial C_i}{\partial y} - w \frac{\partial C_i}{\partial z^*} + \frac{\partial}{\partial x} \left( K_h \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_h \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z^*} \left( K_v \frac{\partial C_i}{\partial z^*} \right) \dots \text{数式 25}$$

$$+ F_{\text{source}} + \frac{\partial}{\partial z^*} (F_{\text{reemission}} - F_{\text{dry}}) - F_{\text{wet}} - \lambda C_i$$

- $u, v, w$  : 「風速場計算」から得られた風速  $u, v, w$  成分[m/s]
- $K_h, K_v$  : 水平方向、鉛直方向の拡散係数[m<sup>2</sup>/s]
- $C_i$  : 大気中濃度[Bq/m<sup>3</sup>]
- $i$  : トリチウムの化学形(=1 : HT、=2 : HTO)
- $F_{\text{source}}$  : 1次放出フラックス[Bq/m<sup>3</sup>/s]
- $F_{\text{reemission}}$  : 再放出フラックス[Bq/m<sup>2</sup>/s]
- $F_{\text{dry}}, F_{\text{wet}}$  : 乾性/湿性沈着率[Bq/m<sup>2</sup>/s]
- $\lambda$  : トリチウムの崩壊定数[1/s]

(2) HTO 放出についての乾性沈着

HTO の乾性沈着フラックスは、交換速度法を用いて数式 26 により計算する。

$$F_{\text{dry}} = q_s + q_p \dots \text{数式 26}$$

- $F_{\text{dry}}$  : 乾性沈着フラックス [Bq/m<sup>2</sup>/s]
- $q_s$  : 土壌との濃度差拡散フラックス[Bq/m<sup>2</sup>/s]
- $q_p$  : 植物との濃度差拡散フラックス[Bq/m<sup>2</sup>/s]

土壌との濃度拡散フラックス $q_s$ は数式 27、数式 28 により計算する。

$$q_s = v s_{\text{ex}} \times (C(t) - h_a \cdot C_s(t)) \dots \text{数式 27}$$

$$C_s(t) = D(t)/L_s \dots \text{数式 28}$$

$$\left( \begin{array}{l} v_{s_{ex}} : \text{HTO水蒸気交換速度(大気} \leftrightarrow \text{土壌)[m/s]} \\ C(t) : \text{時刻tにおける地表大気中HTO濃度[Bq/m}^3\text{]} \\ C_s(t) : \text{時刻tにおける土壌水中のHTO濃度[Bq/m}^3\text{]} \\ D(t) : \text{時刻tにおける沈着量[Bq/m}^2\text{]} \\ L_s : \text{HTOが沈着する地表面水相当厚さ(=0.002)[m]} \\ h_a : \text{大気の絶対湿度} \end{array} \right)$$

植物との濃度差拡散フラックス $q_p$ は数式 29 により計算する。 $v_{p_{ex}}$ 、LAI、 $L_p$ 、 $f$ は地勢に対するパラメータである。

$$q_p = v_{p_{ex}} \cdot \text{LAI} \cdot f \cdot (C(t) - h_a \cdot C_p(t)) \dots \text{数式 29}$$

$$C_p(t) = D(t)/L_p \dots \text{数式 30}$$

$$\left( \begin{array}{l} v_{p_{ex}} : \text{HTO水蒸気交換速度(大気} \leftrightarrow \text{植物)[m/s]} \\ \text{LAI} : \text{葉面積指数} \\ L_p : \text{植物の水相当厚さ(=2.4} \times 10^{-3}\text{)[m]} \\ f : \text{植物の育成面積割合(=0} \sim 1\text{)} \end{array} \right)$$

### (3) HT 放出についての乾性沈着

HT の乾性沈着フラックスは、沈着速度法を用いて数式 31 により計算する。

$$\begin{array}{ll} F_{dry} = v_g \times C(t) & (z \leq z_i) \\ F_{dry} = 0 & (z > z_i) \end{array} \dots \text{数式 31}$$

$$\left( \begin{array}{l} F_{dry} : \text{時刻(t)における沈着率[Bq/m}^2\text{/s]} \\ C(t) : \text{時刻tにおける大気中濃度[Bq/m}^3\text{]} \\ v_g : \text{沈着速度[m/s]} \\ z_i : \text{接地境界層高さ[m]} \end{array} \right)$$

### (4) 湿性沈着

湿性沈着は降水による沈着(ウォッシュアウト)のみを考慮し、HTO のみに適用する。沈着率は数式 32 及び数式 33 により計算する。

$$F_{wet} = \Lambda \times C(t) \dots \text{数式 32}$$

$$\Lambda = a \times I^b \dots \text{数式 33}$$

$$\left( \begin{array}{l} F_{wet} : \text{降水による湿性沈着率[Bq/m}^3\text{/s]} \\ C(t) : \text{時刻tにおける大気中濃度[Bq/m}^3\text{]} \\ \Lambda : \text{洗浄率[1/s]} \quad I : \text{降水強度[mm/hr]} \\ a, b : \text{洗浄係数パラメータ} \end{array} \right)$$

### (5) 再放出フラックスの計算

トリチウムの再放出フラックスは、TRIDOSEで用いられているモデルを使用し、数式 34 により計算する<sup>9)</sup>。また、湖水、河川、海洋からの再放出はないものとする。

$$F_{\text{re-emission}} = q1 + q2 + q3 + q4 \dots \text{数式 34}$$

$$\left( \begin{array}{l} F_{\text{re-emission}} : \text{再放出フラックス} [\text{Bq}/\text{m}^2/\text{s}] \\ q1 : \text{土壌との濃度差拡散フラックス} [\text{Bq}/\text{m}^2/\text{s}] \\ q2 : \text{土壌からの蒸発フラックス} [\text{Bq}/\text{m}^2/\text{s}] \\ q3 : \text{植物との濃度差拡散フラックス} [\text{Bq}/\text{m}^2/\text{s}] \\ q4 : \text{植物からの蒸散フラックス} [\text{Bq}/\text{m}^2/\text{s}] \end{array} \right)$$

土壌との濃度差拡散フラックス q1 は数式 35、土壌からの蒸発フラックス q2 は数式 36 により計算する。

$$q1 = v_{s_{\text{ex}}} \times (h_a \times C_s(t) - C(t)) \dots \text{数式 35}$$

$$q2 = v_{s_{\text{ev}}} \times C(t) \dots \text{数式 36}$$

$$\left( \begin{array}{l} v_{s_{\text{ex}}} : \text{HTO水蒸気交換速度(大気} \leftrightarrow \text{土壌)} [\text{m}/\text{s}] \\ v_{s_{\text{ev}}} : \text{土壌水の蒸発速度} [\text{m}/\text{s}] \quad h_a : \text{大気の絶対湿度} \\ C_s(t) : \text{時刻} t \text{における土壌水中のHTO濃度} [\text{Bq}/\text{m}^3] \\ C(t) : \text{時刻} t \text{における地表大気中HTO濃度} [\text{Bq}/\text{m}^3] \end{array} \right)$$

植物との濃度差拡散フラックス q3 は数式 37、植物からの蒸散フラックス q4 は数式 38 により計算する。時刻 t における植物組織自由水中 HTO 濃度  $C_p(t)$  は数式 39 により計算する。 $v_{p_{\text{ex}}}$ 、 $v_{p_{\text{ev}}}$ 、LAI、 $L_p$ 、f は地勢に対するパラメータである。

$$q3 = v_{p_{\text{ex}}} \cdot \text{LAI} \cdot f \cdot (h_a \cdot C_p(t) - C(t)) \dots \text{数式 37}$$

$$q4 = v_{p_{\text{ev}}} \cdot C_p(t) \cdot f \dots \text{数式 38}$$

$$C_p(t) = D(t) / L_p \dots \text{数式 39}$$

$$\left( \begin{array}{l} C_p(t) : \text{時刻} t \text{における植物組織自由水中HTO濃度} [\text{Bq}/\text{m}^3] \\ v_{p_{\text{ex}}} : \text{HTO水蒸気交換速度(大気} \leftrightarrow \text{植物)} [\text{m}/\text{s}] \\ v_{p_{\text{ev}}} : \text{植物の蒸散速度} [\text{m}/\text{s}] \\ \text{LAI} : \text{葉面積指数} [-] \\ L_p : \text{植物の水相当厚さ} (=2.4 \times 10^{-3}) [\text{m}] \\ f : \text{植物の育成面積割合} (=0 \sim 1) \end{array} \right)$$

#### (5) 吸入摂取及び経皮摂取による内部被ばく実効線量の計算モデル

トリチウム拡散評価計算機能において考慮する被ばく経路は、吸入摂取及び経皮摂取による内部被ばくとする。被ばく線量は、ICRP Publ.72 に基づき、HTO 放出については数式 40、HT 放出については数式 41 により計算する<sup>10)</sup>。

$$H_{\text{inh}} = \chi_{\text{HTO}} \cdot K_{\text{HTO}} \cdot 1.5 \cdot B \dots \text{数式 40}$$

$$H_{\text{inh}} = (\chi_{\text{HT}} \cdot K_{\text{HT}} \cdot 1.2 + \chi_{\text{HTO}} \cdot K_{\text{HTO}} \cdot 1.5) \cdot B \dots \text{数式 41}$$

$H_{inh}$  : 吸入摂取による内部被ばく線量 (Sv/s)  
 $\chi_{HTO}$  : HTOの地表付近空気中濃度 (Bq/m<sup>3</sup>)  
 $\chi_{HT}$  : HTの地表付近空気中濃度 (Bq/m<sup>3</sup>)  
 $K_{HTO}$  : HTO吸入摂取による内部被ばく線量係数 (Sv/Bq)  
 $K_{HT}$  : HT吸入摂取による内部被ばく線量係数 (Sv/Bq)  
 1.5 : 経皮摂取を考慮するための係数  
 1.2 : 肺被ばく線量を考慮するための係数  
 $B$  : 呼吸率 (m<sup>3</sup>/s)

### 「積算被ばく線量モデル」

積算被ばく線量計算モデルでは、大気拡散計算プルームモデル、大気拡散計算パフモデル、トリチウムモデルを用いて、年単位、3ヶ月単位といった任意期間の積算被ばく線量の計算を行う。

#### (1) 積算内部被ばく線量

大気拡散計算プルームモデル、大気拡散計算パフモデル、トリチウムモデルの各モデルから時間積算濃度を算出し、数式 42 により吸入摂取による実効線量を計算する。

$$D_{inh} = B_R \cdot \chi \cdot K \cdots \text{数式 42}$$

$D_{inh}$  : 吸入摂取による実効線量 (Sv)       $B_R$  : 呼吸率 (m<sup>3</sup>/s)  
 $\chi$  : 放射性物質の時間積算濃度 (Bq/m<sup>3</sup> · s)  
 $K$  : 吸入摂取による実効線量係数 (Sv/Bq)

#### (2) 積算外部被ばく線量

大気拡散計算プルームモデル、大気拡散計算パフモデル、トリチウムモデルの各モデルの各モデルから空気カーマ率を算出し、数式 43 により放射性雲からの $\gamma$ 線による外部被ばく実効線量を計算する。

$$D = \frac{K_2}{1000} \int_0^T \bar{D}(t) dt \cdots \text{数式 43}$$

$D$  : 放射性雲からの $\gamma$ 線による外部被ばく実効線量 (Sv)  
 $\bar{D}(t)$  : 空気カーマ率 (mGy/h)  
 $K_2$  : 空気カーマから実効線量への換算係数 (Sv/Gy)  
 $T$  : 評価期間(h)

#### (3) $\beta$ 線による積算外部被ばく線量

大気拡散計算パフモデル(5) $\beta$ 線による外部被ばく実効線量の計算結果を用い、数式 44 により積算外部被ばく実効線量を計算する。

$$D = \int_0^T \bar{D}(t) dt \cdots \text{数式 44}$$

$$\left( \begin{array}{l} D : \beta \text{線による外部被ばく実効線量 (Sv)} \\ \bar{D}(t) : \beta \text{線による外部被ばく実効線量率 (Sy/h)} \\ T : \text{評価期間(h)} \end{array} \right)$$

「参照したパラメータ」

表 1 数式 2 で使用するパスキル安定度に対するPの値<sup>2)</sup>

パスキル安定度	A	B	C	D	E	FとG
P	0.1	0.15	0.2	0.25	0.25	0.3

表 2 数式 7 で使用する鉛直方向風速重み ( $a_1=1$ )<sup>11)</sup>

大気状態	安定度	$a_2$
Very unstable	A,B	0.2
Slightly unstable	C	0.5
Neutral	D	1.0
Slightly stable	E	2.0
Very stable	F	5.0

表 3 内部固定パラメーター一覧

パラメータ	概要	値	単位	数式	出典
$v_g$	HT 乾性沈着速度	$5.0 \times 10^{-4}$	m/s	31	文献(9) 表 4.4
a	洗浄係数パラメータ	$1.2 \times 10^{-4}$	h/mm/s	34	文献(7)
b	洗浄係数パラメータ	0.5	-	34	文献(7)
$L_s$	土壌水相当厚さ	0.002	m	28	文献(12)
$L_p$	植物の水相当厚さ	$2.4 \times 10^{-3}$	m	30	文献(9) 表 4.3

文 献

- 1) 国土地理院：数値地図 50m メッシュ(標高),(2000)
- 2) 公害研究対策センター：窒素酸化物総量規制マニュアル, 180-181(1995)
- 3) 横山 長之：大気環境シミュレーション,112-119, 白亜書房(1992)
- 4) 原子力安全委員会：発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針 (改訂 12 版),410,大成出版社(2008)
- 5) 原子力安全委員会：発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針(改訂 12 版),369 大成出版社(2008)
- 6) IAEA : Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Release Exposures of Critical Groups,Safety Series No.57,16-17(1982)
- 7) H.D.Brenk and K. J.Vogt : The Calculation of Wet Deposition from Radioactive Plumes, Nuclear Safety, 22(3) 362-371(1981)

- 8) W. G. N. Slinn, : Parameterizations for Resuspension and for Wet and Dry Deposition of Particles and Gases for Use in Radiation Dose Calculations, Nuclear Safety, 19(2) 205-219(1978)
- 9) 村田幹生,野口宏,横山須美 : 気体状放出トリチウムの環境媒体中拡散移行解析及び被ばく線量計算コード(TRIDOSE), JAERI-Data/Code 2000-034,22-23(2000)
- 10) ICRP : Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides : Part5  
Compilation of Ingestion and inhalation Dose Coefficient, Publication 72,84(1996)
- 11) Stevens T. Chan and Gayle Sugiyama, “User’s Manual for MC Wind:A New Mass-Consistent Wind Model for ARAC-3”, UCRL-MA-129067, p20, (1997)
- 12) 横山須美, 野口宏, 龍福進, 佐々木利久, 黒澤直弘, : 事故時放出トリチウムに対する公衆被ばく線量評価コード ACUTRI, JAERI-Data/Code 2002-022, 14, (2002)

## 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

五十嵐飛鳥 佐々木久美子\*<sup>1</sup> 工藤俊明 木村秀樹

### 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<sub>3</sub>T等) の3種の化学形で存在することが知られている。現在、HTO濃度は核実験前のレベルまで減少しているが、現在の環境トリチウムレベルに影響を与えるものとして、原子力発電所や核燃料再処理施設からのトリチウムの放出が考えられる。

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、六ヶ所再処理工場については平成18年3月からアクティブ試験を開始している。トリチウムは、これらの原子力施設から大気及び海洋へ放出される。再処理工場や原子力発電所からの多くはHTOの形で放出されるが、東海再処理施設から大気中へ放出された全トリチウムのうち約26%がHT (CH<sub>3</sub>T等を含む。) の化学形であったとの報告<sup>1)</sup>もある。

このため、環境における大気中トリチウムの化学形別濃度調査を実施し、その挙動を把握することは、原子力施設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ための重要な情報となる。

平成16年度から化学形別の試料採取条件を検討しているが、従来用いられてきた方法は<sup>2)</sup>可燃性ガスを用いている。そのため、安全性の観点から、平成19年度は可燃性ガスの代わりに加湿カラムを用いる採取装置を化学形ごとに組み立て、水素ガス状トリチウム、有機トリチウムをそれぞれ捕集できることを確認し、平成20年度は引き続き、加湿カラムを用いる方法<sup>3,4)</sup>について3種の化学形のトリチウムを系統的に採取する装置を作製して大気中トリチウムを化学形別に捕集できることを確認した。

### 2. 調査方法

#### 2.1 採取方法

化学形別トリチウム採取装置 (以下「採取装置」という。) の概略を図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) で吸引導入した。入口側には、大気中のごみを除くための7 μmのフィルターを設置し、大気の採取速度と採取した大気の総量はデジタル流量計で測定した。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用カラム、HT用カラム及びCH<sub>3</sub>T用カラムに捕集した。

具体的には、まず電子除湿器 (出口露点1~3℃) によりあらかじめ水分 (HTO) の一部を捕集し、HTOはそのままHTO用カラムに捕集した。次に、HTは100℃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 0.12 g/L、25 mmΦ×50 mm、3個) で酸化し、水としてHTカラムに捕集した。HTカラムを通過した大気試料は、300℃に加熱したPd触媒 (DASH-220D、0.24wt%、3mmΦ、NECHEMCAT) で酸化し、水としてメタン用カラムに捕集した。各触媒カラ

\*1: 現 東青地域県民局

ムの前には、図2に示した低トリチウム水蒸気を供給するカラム（以下、「加湿カラム」という。）を設置した。

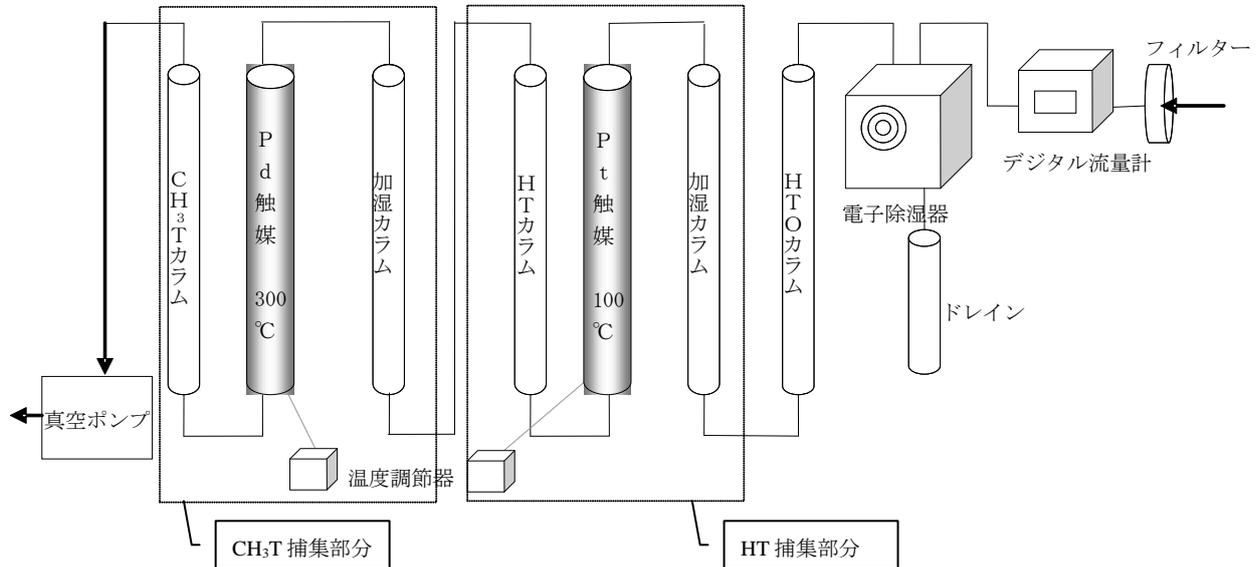


図1 化学系別トリチウム採取装置  
(可燃性ガスを使用しない)

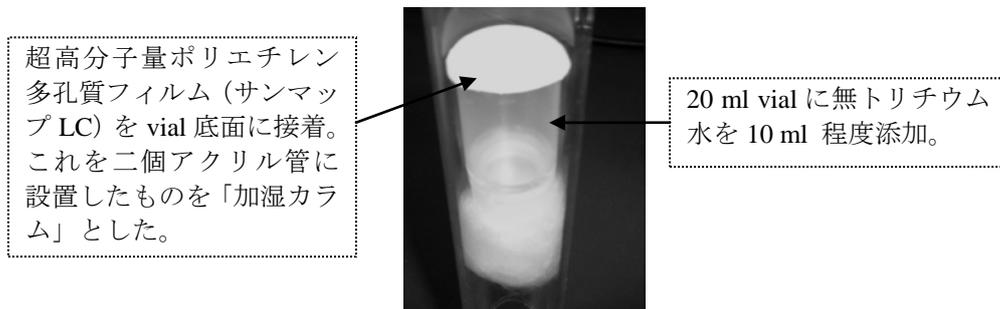


図2 加湿カラムの概略

装置及び採取口は青森市駐在の実験室内に設置し、採取時間は約 6000 分、採取流量は 1.5 L/min 前後になるように調節して実験室内の大気を採取した。これらの採取法によって回収した試料水のトリチウム濃度を測定し、HT及びCH<sub>3</sub>Tの大気中濃度を算出した。

## 2.2 分析方法

捕集用のモレキュラーシーブカラムを管状炉で 400°C に加熱して試料水を回収した。試料水 10 ml を 20 ml 低拡散ポリエチレンバイアルに入れ、それぞれ液体シンチレータ Perkin Elmer Japan 社製 Ultima Gold LLT 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（アロカ製 LSC-LB5）により行い、測定時間は 1000 分（50 分×20 回）とした。

### 3. 調査結果

#### 3.1 大気中トリチウム濃度結果

全化学形を対象とした図1の捕集装置によって、平成19年度及び平成20年度に実施した測定結果を表1に示す。結果は、HTが6.9～8.5 mBq/m<sup>3</sup>、CH<sub>3</sub>Tが1.6～3.5 mBq/m<sup>3</sup>であった。これらの値は、平成19年度に、各化学形ごとの捕集状況を検討した際<sup>5)</sup>のHT濃度（6.2～8.5 mBq/m<sup>3</sup>）、CH<sub>3</sub>T濃度（2.0～3.4 mBq/m<sup>3</sup>）と同程度であった。なお、これらのHT及びCH<sub>3</sub>T濃度は、柿内らによる青森県六ヶ所村2006年における調査結果<sup>4)</sup>とほぼ同じレベルであり、今回の測定結果も同様の結果であった。

表1 加湿カラム捕集法による大気中トリチウム（HT及びCH<sub>3</sub>T）濃度結果

No.	1	2	3	4	5	6
採取終了日	2008.1.18	2008.1.25	2008.2.1	2008.12.1	2008.12.12	2008.12.19
採取時間 (min)	4372	5870	6010	4435	6180	6100
採取流量 (L/m <sup>3</sup> )	1.3	1.3	1.4	1.4	1.4	1.5
積算流量 (m <sup>3</sup> )	5.848	7.812	8.190	6.337	8.909	8.991
HTOカラム増加量 (g)	27.86	41.57	47.09	38.09	65.25	53.47
湿分*1 (g/m <sup>3</sup> )	4.8	5.3	5.8	6.0	7.3	5.9
加湿カラム減少量 (g)	9.58	11.54	9.42	7.71	11.66	12.50
HTカラム増加量 (g)	12.90	11.85	9.92	8.58	12.44	12.77
HT濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	8.0±0.72	7.9±0.52	7.4±0.59	8.5±0.49	7.6±0.50	6.9±0.51
加湿カラム減少量 (g)	10.38	8.30	11.63	9.36	9.32	9.65
CH <sub>3</sub> Tカラム増加量 (g)	10.48	8.69	12.69	10.85	10.07	10.68
CH <sub>3</sub> T濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	1.9±0.59	2.1±0.37	1.9±0.47	3.5±0.57	1.6±0.37	2.2±0.39

\*1 湿分 (g/m<sup>3</sup>) =HTO捕集量 (g) /積算流量 (m<sup>3</sup>)

#### 3.2 現地調査に向けて考慮すべき事項

これまでの検討において、可燃性ガスを用いない方法における加湿カラムの状況は表2のとおりである。今回の加湿カラムを用いた方法では、採取期間は2日～4日間、流量1.2～1.7 L/min程度での採取を実施したが、加湿カラムの減少量(無トリチウム水)はいずれも10g前後だった。加湿カラムに添加してある無トリチウム水の量は約20gであり、実際に現地調査を行う場合の採取期間に応じて増加する必要があると考えられる。

また、秋～冬にかけての室温(20℃程度)における減少量であるため、現地調査に用いる際はHT用加湿カラムについては夏(30℃程度)の温度影響も考慮する必要がある。なお、CH<sub>3</sub>T用加湿カラムを通る気体はいずれの場合も、100℃の触媒カラムを通過した後なので気温による影響はないと考える。

なお、モニタリング地点のうち最も夏場の湿度が高くなる横浜町吹越モニタリングステーションでは、最大湿分が18 g/m<sup>3</sup>になり、今回の検討で実施した採取流量では3日程度でHTOカラムが飽和する。そのため、今後現地調査を実施するにあたって、実施期間に応じた加湿カラムへの無トリチウム水添加量及びHTO捕集用カラム数を考慮する必要がある。

表 2 捕集過程における加湿カラムの状況

	HT 用	CH <sub>3</sub> T用
採取期間 (室温)	2~4 日間 (20℃程度)	
流量 (L/min)	1.2~1.7	
採取時期及び絶対湿度 (g/m <sup>3</sup> )	秋~冬 (4.7~6.5)	
加湿カラム減少量 (g)	9.4~14.5	8.3~11.6

#### 4. まとめ

加湿カラムを用い3種の化学形のトリチウムを系統的に採取する装置により、大気中HT、CH<sub>3</sub>Tをほぼ定量的に捕集することができることを確認した。

同じ室内で採取した大気中のHT、CH<sub>3</sub>T濃度はそれぞれ過去の報告値<sup>5)</sup>と同じレベルであった。今後は本法を用いて現地調査を行うための装置のコンパクト化、採取期間等の検討を行う。

#### 参考文献

- 1) 小嵐淳、横田友和、小沢友康、井坂圭輔、三上智、秋山聖光、小林博英、水谷朋子、檜山佳典：排気中トリチウムモニタリング手法の検証(再評価)と高度化への提言(技術報告), JNC TN8410 2005-04, 核燃料サイクル開発機構 東海事業所
- 2) 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)
- 3) 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<sup>3</sup>H濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299(2006)
- 4) 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)
- 5) 佐々木久美子：青森県原子力センター所報 第2号, 51-57(2007)

## 環境試料中のH-3、C-14及びI-129・131調査

五十嵐飛鳥 大下内 伸 吹越恵里子 木村秀樹  
田中義也\*1 尾形哲司\*1 住谷秀一\*1

### 1. はじめに

平常時モニタリングの目的の一つとして、原子力施設の周辺住民等の健康と安全を守るため、環境における原子力施設に起因する放射性物質又は放射線による周辺住民等の線量が、1年間の線量限度（1ミリシーベルト）を十分に下回っていることを確認することとされており、また、環境におけるモニタリングについては、継続実施できることが必要である。

以上を踏まえ、県では、計画の策定に当って、調査する試料は調査地域において主要なものであり、継続的に採取可能なもの、測定する放射性核種については、比較的容易に分析ができ、かつ、調査する試料との組み合わせにより、モニタリングの目標を合理的に達成できるものを対象とした。その際、原子力施設の安全審査における周辺住民等の線量評価上主要な試料及び核種を参考とした。

一方で、安全審査における線量評価結果が比較的小さいものの、再処理工場から気体又は液体廃棄物として放出が確認されている核種について、環境への影響をより詳細に把握しておくことは、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に重要である。このようなことから、「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）」において、県と事業者が分担し環境における調査研究を実施することとした。

本調査研究は、モニタリング計画における農作物及び海産食品の中から対象試料を選定し、これらの試料中のH-3、C-14及びI-129について調査を行うものであり、平成19年度から開始した。今回は、平成19年度の調査結果について、本所報の技術報告として取りまとめた。

なお、平成20年度からは、I-129を対象としている試料について、I-131を追加して調査している。

### 2. 平成20年度の調査計画と今後の進め方

平成20年度の調査計画を表1に示した。平成20年度は、平成19年度に引き続き同じ試料について調査を継続するとともに、モニタリングで施設影響と考えられる測定値の変動が認められた魚類について、回数を8回に増やして調査を行った。また、I-129と同様に再処理工場から放出が確認されているI-131については、I-129の測定結果から環境試料中の濃度の推定が可能であるものの、実測値により評価するため対象核種に追加した。なお、OBT及びC-14分析対象の尾駈①の精米が農家が稲作をやめ、平成20年以降採取できなくなったことから、平成20年度から採取地点を二又に変更し、更に平沼地点を追加して調査を実施した。これらの調査結果については平成21年度にとりまとめることとしている。平成21年度以降については、表1の調査計画を基本としながら引き続き調査を継続することとし、その調査結果を踏まえ、適宜見直しを行う。また、交換型OBTの除去の有無も含めて分析方法について検討する。

\*1：日本原燃株式会社

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 20 年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			H-3		C-14	I-129・131
			TFWT*1	OBT*2		
牛乳 (原乳)	富ノ沢	2	○	○	○	—
	横浜町	4	○	○	○	—
	富ノ沢	2	○	○	○	—
	二又	4	○	○	○	—
	豊原		○	○	○	—
精米	二又①	1	—	○	○	—
	平沼		—	○	○	—
	尾駸②		—	○	○	—
	千樽		—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	二又②		—	○	○	—
	戸鎖		—	○	○	—
ハクサイ	出戸		○	○	○	○
	千樽		○	○	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	出戸		○	○	○	—
パレイシヨ	尾駸		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類	六ヶ所村	8	○	○	—	—
海藻類	前面海域	2	—	—	—	○

\*1 TFWT：組織自由水 H-3

\*2 OBT：有機結合型 H-3

## ICP 質量分析法による環境試料中のプルトニウム同位体調査

工藤俊明

### 1. はじめに

本県では、平成元年度から「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、原子力施設から環境へ放出される放射性物質の蓄積状況を把握するため、表土、湖底土、海底土中のプルトニウムの分析測定を国（文部科学省）が定めた方法である  $\alpha$  線スペクトロメトリにより実施している。本測定法においては、Pu-239 と Pu-240 が放出するそれぞれの  $\alpha$  線のエネルギーが近接しており弁別定量できないことから、両核種の合計量（Pu-239+240）として定量している。

一方、プルトニウムの同位体組成はその起源により特徴づけられ、環境中の濃度とあわせて同位体比を調べることはその起源の特定に役立つ。

前測定法とは別に国が定めているプルトニウムの迅速分析法は、ICP 質量分析法を用いることとしており、Pu-239 と Pu-240 を弁別して定量することが可能であり、その濃度及び同位体比を迅速に把握できることから緊急時環境モニタリングにおける手法として有用な手法である。

以上を踏まえ、緊急時環境モニタリングにおける再処理工場からの影響の評価に資するため、バックグラウンドレベルを把握することを目的として、モニタリングを開始した平成元年度からこれまでのモニタリング対象環境試料（表土、湖底土、海底土）について、ICP 質量分析法により Pu-239 及び Pu-240 濃度及びその同位体比を調査する。

平成19年度は測定条件の検討等を行った。平成20年度は分析測定の信頼性・精度確認のため標準物質の分析を行うとともに、モニタリング対象環境試料のうち湖底土の分析を実施した。

なお、本調査は平成18年度までに採取したモニタリング対象試料について実施するものであり、平成19年度以降の試料については、モニタリングの一環として継続実施していくこととしている。

### 2. 調査方法

#### 2.1 調査地点及び試料

調査対象試料を下表に示す。

表1 調査対象試料一覧

種別	採取地点	採取年度	備考
湖底土	尾駸沼	平成元～18年度	
	鷹架沼		
	小川原湖		
海底土	放出口付近	平成元～18年度	
	放出口北20km地点		
	放出口南20km地点		
表土	尾駸	平成元～18年度	表層土(0～5cm)
	千歳平		
	横浜町		
	比較対照(青森市)		

## 2.2 前処理

試料は 105℃乾燥後、2mm フルイを通過したものを対象とし、砂質である海底土を除いてモーターグラインダーで微粉碎した。

## 2.3 分析方法

分析法は、文部科学省放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法」<sup>1)</sup>に準じて行った。試料 10 gを分取し、マッフル炉を用い 500 °Cで 4 時間加熱して有機物を分解し、Pu-242 標準溶液 (NIST 4334D) 0.03Bq及び 10M硝酸-1Mフッ化水素酸混合溶液 60 mlを加え、マイクロウェーブ分解装置によるプルトニウム浸出を 30 分間×2 回行った。浸出液中のプルトニウムを亜硝酸ナトリウムでPu<sup>4+</sup>に調整した後、陰イオン交換法によりプルトニウムを分離・精製し硝酸溶液としたものを測定試料とした。陰イオン交換樹脂は、文部科学省放射能測定法シリーズで示されるダウエックス樹脂と同等品であるBio-Rad Laboratories製AG樹脂を使用した。

## 2.4 測定方法

ICP 質量分析装置は、SII ナノテクノロジー製 SPQ9000 を用いた。定量は、質量数/電荷 (以下、m/z と記載) が 239 及び 240 の強度と、242 の強度の比から Pu-239 と Pu-240 の量を定量する Pu-242 トレーサー法で行った。

## 3. 調査結果及び考察

### 3.1 測定条件の検討等

#### (1) 試料導入方法

装置への試料溶液の導入方法について、標準装備の同軸形ネブライザーと、超音波ネブライザー (CETAC U-5000AT+) を検討した。一般には超音波ネブライザーの方が高感度であるが、試料溶液の消費量が多くなるという欠点も併せ持つ。両者を比較するため、超純水と高純度硝酸を用いて希釈したPu-242 標準溶液を測定し、m/z (質量数/電荷) が 239 及び 240 の強度から、Pu-239 と Pu-240 の装置検出限界濃度<sup>2)</sup>を算出した。

検討の結果、Pu-239、Pu-240 とともに超音波ネブライザーの方が同軸型ネブライザーより検出限界濃度が低い値を示した。同軸型ネブライザーでは不検出となる試料も多くなると予測されるため、本調査においては、超音波ネブライザーを用いることとする。

表 2 試料導入方法の検討

試料導入方法	<sup>239</sup> Pu			<sup>240</sup> Pu		
	強度 <sup>※1</sup>	装置検出限界濃度		強度 <sup>※1</sup>	装置検出限界濃度	
	(cps)	(Bq/ml) <sup>※2</sup>	(Bq/kg乾) <sup>※3</sup>	(cps)	(Bq/ml) <sup>※2</sup>	(Bq/kg乾) <sup>※3</sup>
同軸形ネブライザー	0.30±0.67	6.7×10 <sup>-5</sup>	0.33	0.10±0.32	1.1×10 <sup>-4</sup>	0.56
超音波ネブライザー	0.10±0.32	2.9×10 <sup>-6</sup>	0.014	0.20±0.42	1.5×10 <sup>-5</sup>	0.073
モニタリング 試料の濃度 <sup>※4</sup>		0.026～0.48			0.017～0.31	

※1：Pu-242 標準溶液(NIST-4334D 1.2 mBq/ml)を導入し、積分時間 1 秒、繰返回数 10 回で測定した。誤差は、繰返測定標準偏差を示す。

※2：強度の平均値+標準偏差の3倍に相当する濃度。

※3：分析条件を供試量 10 g、化学回収率 50%、メスアップ容量 25 ml と仮定した場合における試料中濃度。

※4：α線スペクトロメトリで測定された原子燃料サイクル調査における県実施分の表土（尾駸、千歳平、横浜町、比較対象（青森市）中<sup>239+240</sup>Pu測定結果（平成元年～平成 18 年。なお、定量下限値未満のものは除く。））について、原子数比を<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu=0.176<sup>1)</sup>と仮定した場合の<sup>239</sup>Pu及び<sup>240</sup>Puの放射能濃度範囲を示す。

## (2) U-238 の影響

試料溶液中にU-238 が存在すると、その水素化物 (<sup>238</sup>UH<sup>+</sup>) が生成しPu-239 のピークに影響する。本分析法には、酢酸系陰イオン交換カラムによりウランを除去する工程が含まれているが、試料溶液中にU-238 が残存した場合の影響を把握するため、ウラン標準溶液を測定しm/z 238 と m/z 239 の強度の比から、Pu-239 のピークへの寄与を確認した。

検討の結果、<sup>238</sup>UH<sup>+</sup>生成率はおよそ 1.2×10<sup>-4</sup>であった。m/z 238 と m/z 239 の強度比が 10<sup>3</sup>程度に達する場合は<sup>238</sup>UH<sup>+</sup>の影響が無視できないと考えられるため、試料の測定にあたり必ずm/z 238 の強度をモニターすることが必要である。

表 3 <sup>238</sup>UH<sup>+</sup>の影響の検討

ウラン濃度 (ppb)	強度 <sup>※1</sup> (cps)		<sup>238</sup> UH <sup>+</sup> 生成率 <sup>※2</sup>
	m/z 238	m/z 239	
0.5	376731.4	45.8	1.22*10 <sup>-4</sup>
1.0	706433.2	82.4	1.17*10 <sup>-4</sup>
2.0	1474946.0	167.9	1.14*10 <sup>-4</sup>

※1：積分時間 1 秒、繰返回数 5 回で測定。

※2：m/z 238 の強度に対する m/z 239 の強度。

## (3) 比較標準試料等の分析

分析・測定の信頼性及び精度を確認するため、比較標準試料(NIST SRM-4350b (RiverSediment))を分析して<sup>239</sup>Pu+<sup>240</sup>Pu放射能濃度及び<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子数比を算出し、成績書の値及び文献値<sup>3)</sup>と比較した。

その結果、<sup>239</sup>Pu+<sup>240</sup>Pu放射能濃度、<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子数比ともに成績書の値、文献値と概ね一致し、分析値に影響を与える質量差別効果（元素の質量数によって元素イオンの透過効率が異なること）についても 1%未満であり、補正の必要はないと考えられる。

表 4 比較標準試料の測定結果

試 料	$^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ (Bq/kg乾)		$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (原子数比)	
	分析値 <sup>※1</sup>	成績書 (文献値 <sup>※2</sup> )	分析値 <sup>※1</sup>	成績書 (文献値 <sup>※2</sup> )
NIST SRM-4350b	0.504±0.019	0.508 (0.53±0.03)	0.109±0.008	0.105 (0.117±0.004)

※1：8M 硝酸で約 5 時間浸出。誤差は繰返測定（3 回）の標準偏差を示す。

※2：8M 硝酸で約 5 時間浸出。誤差は試料間（n=3）の標準偏差を示す。

また、青森県西津軽郡深浦町沖にて採取した海水について、鉄担体による共沈と陰イオン交換法によりウランを分離・精製した試料溶液を測定し、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比を算出した。その結果 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比は天然の比と一致し、今後モニタリング試料の分析・測定に着手した後に、質量差別効果のないことを確認する試料として、本試料溶液を適用できるものと考えられる。

表 5 海水試料の測定結果

試 料	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (同位体比) <sup>※2</sup>	$^{235}\text{U}$ の天然存在比
海水 <sup>※1</sup>	0.00720±0.00019	0.0072

※1：平成 19 年 9 月 13 日、青森県西津軽郡深浦町風合瀬沖合約 400 m 地点にて、表面海水を採取。

※2：誤差は、繰返測定（10 回）の標準偏差を示す。

### 3.2 モニタリング対象環境試料の測定結果

モニタリング対象環境試料のうち湖底土について、今年度分析した結果は表 6 のとおりである。Puの起源の推定の指標となる $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比については、尾駮沼は 0.171～0.194、鷹架沼は 0.157～0.170、小川原湖は 0.154～0.178 であり、尾駮沼が他地点に比べ若干高めである。図 1 にはこれらの原子数比とP.W.Kreyらのフォールアウト調査結果<sup>4)</sup>から求めた平均値±3×（標準偏差(σ)）を示した。全地点とも概ねP.W.Kreyらの調査結果と同程度であった。

表 6 湖底土中<sup>240</sup>Pu及び<sup>239</sup>Pu調査結果

地点	採取 年度	放射能濃度 (Bq/kg 乾)		<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu 原子数比	<sup>239</sup> Pu + <sup>240</sup> Pu (Bq/kg 乾)	
		<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu		本法※ <sup>1</sup>	モニタリング <sup>△</sup> 結果※ <sup>2</sup>
尾駁沼	H4	1.37±0.02	0.85±0.05	0.171±0.011	2.21	1.80
	H5	1.46±0.04	0.95±0.05	0.180±0.010	2.41	2.10
	H6	0.78±0.06	0.49±0.06	0.174±0.026	1.26	1.10
	H7	1.63±0.03	1.01±0.01	0.171±0.003	2.64	2.10
	H8	1.77±0.02	1.14±0.03	0.177±0.005	2.92	2.40
	H9	0.73±0.01	0.51±0.01	0.194±0.004	1.24	1.30
	H10	0.85±0.03	0.58±0.04	0.187±0.014	1.43	1.10
	H11	1.81±0.08	1.19±0.10	0.179±0.017	3.00	2.20
	H12	1.27±0.03	0.81±0.02	0.175±0.006	2.08	1.70
	H13	1.04±0.03	0.65±0.02	0.171±0.007	1.69	1.20
鷹架沼	H5	1.60±0.05	0.94±0.04	0.160±0.009	2.54	2.00
	H6	1.55±0.05	0.90±0.04	0.158±0.009	2.45	2.00
	H7	1.51±0.02	0.91±0.03	0.167±0.007	2.42	1.80
	H8	1.42±0.03	0.85±0.02	0.167±0.006	2.27	1.50
	H9	1.65±0.07	1.00±0.03	0.170±0.009	2.65	2.30
	H10	1.64±0.02	0.97±0.02	0.164±0.004	2.62	1.10
	H11	1.53±0.02	0.94±0.02	0.169±0.004	2.47	2.60
	H12	1.22±0.01	0.73±0.02	0.166±0.006	1.95	1.10
	H13	0.94±0.02	0.52±0.01	0.158±0.005	1.45	1.30
	H14	0.80±0.02	0.44±0.04	0.157±0.015	1.24	0.94
小川原湖	H4	4.07±0.13	2.28±0.07	0.154±0.007	6.35	5.10
	H5	3.45±0.05	2.10±0.03	0.168±0.003	5.54	4.20
	H6	2.32±0.03	1.40±0.04	0.167±0.005	3.72	3.50
	H7	0.99±0.02	0.61±0.02	0.171±0.006	1.59	1.20
	H8	4.35±0.03	2.49±0.02	0.157±0.001	6.84	3.30
	H9	1.56±0.05	0.98±0.05	0.174±0.010	2.54	2.20
	H10	0.73±0.01	0.43±0.03	0.167±0.011	1.16	2.20
	H11	0.56±0.01	0.34±0.03	0.178±0.014	0.91	0.73
	H12	1.20±0.03	0.73±0.04	0.172±0.011	1.94	1.80
	H13	0.33±0.01	0.18±0.01	0.170±0.007	0.51	0.41

※1：10M 硝酸-1M フッ化水素酸の混酸で浸出し、化学分離後 ICP 質量分析法で定量。

※2：8M 硝酸で浸出し、化学分離後 α 線スペクトロメトリで定量。

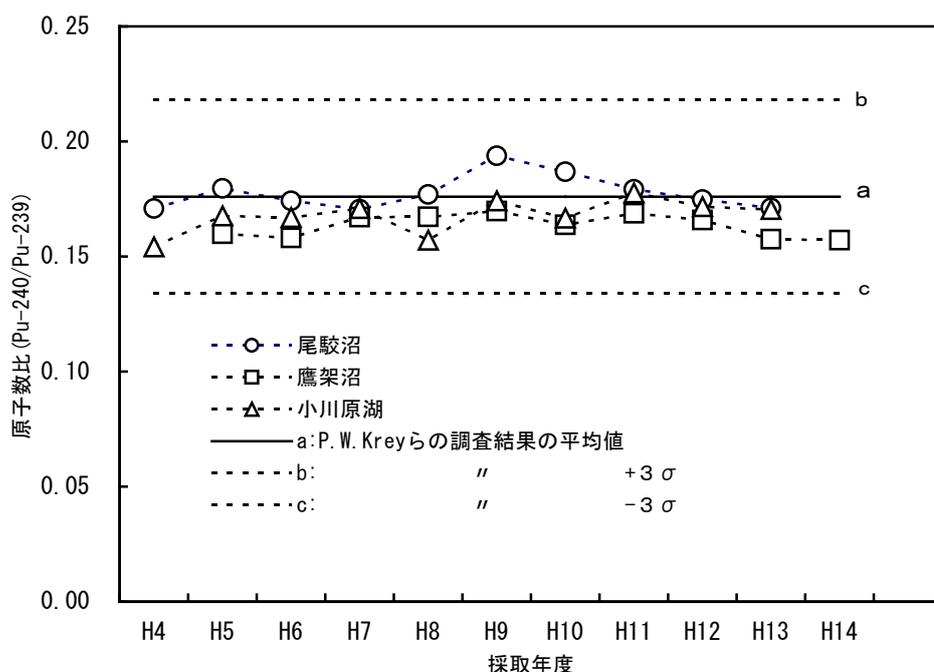


図1 湖底土における原子数比 (Pu-240/Pu-239)

#### 4. まとめ

- 1)装置への試料導入方法は、検出感度に優れる超音波ネブライザーを採用することとした。
- 2)装置の  $^{238}\text{UH}^+$  生成率はおよそ  $1.2 \times 10^4$  であり、 $m/z$  238 と  $m/z$  239 の強度比が  $10^3$  程度に達する場合は影響が無視できないため注意が必要である。
- 3)比較標準試料を分析したところ成績書の値と一致し、装置に質量差別効果による補正は必要ないと考えられる。また、質量差別効果の有無のチェックに海水の  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  同位体比を用いる手法について検討し、適用できることを確認した。
- 4)モニタリング対象環境試料のうち湖底土の一部について分析した。その結果、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比は、全地点ともP.W.Kreyらの調査結果と同程度であった。
- 5)今後モニタリング対象環境試料の分析・測定を進めるとともに、一部の試料を用いて財団法人日本分析センターとクロスチェックを行う。結果については平成 21 年度に報告することとする。

#### 文 献

- 1)文部科学省：放射能測定法シリーズ 28 環境試料中プルトニウム迅速分析法（平成 14 年）
- 2)日本工業規格 高周波プラズマ質量分析通則 JIS K 0133（平成 12 年）
- 3)Yoshihito Ohtsuka, Yuichi Takaku, Jyoji Kimura, Shun'ich Hisamatsu, and Jiro Inaba : Development of Rapid Plutonium Analysis for Environmental Samples by Isotope Dilution/Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry with On-line Column, ANALYTICAL SCIENCES, MARCH 2005 Vol.21
- 4) P.W.Krey, E.P.Hardy, C.Pachucki, F.Rourke, J.Coluzza, and W.K.Benson : Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil, Proceedings of a Symposium on Transuranium Nuclides in the Environment, IAEA-SM-199-39.(pp.671-678)(1976)

## 原子力施設前面海域状況調査（イガイ類及び海底土）

安積 潔 吹越恵里子 木村秀樹 橋本丈夫<sup>\*1</sup>

青森県では、「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」及び「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング基本計画」に基づき、原子力施設周辺における環境放射線モニタリング（以下、「モニタリング」という。）を実施している。

モニタリングで対象としている海底土及びムラサキイガイについては、近年採取が難しくなっていることから場所を移動しながら採取している状況であり、これが測定結果の変動の要因となることが考えられる。このため、下北半島東側海域及び北側海域について海底土及びイガイ類の分布状況等の調査や採取した試料の分析を行い、分析値の変動や継続して実施できる採取方法について検討を行った。

調査結果等については、本所報の技術報告として取りまとめた。

---

<sup>\*1</sup> 財団法人 日本分析センター

## 河底土中フッ素濃度の変動に係る原因調査

北畠 茂 齊藤 陽 五十嵐飛鳥 齋藤 稔

### 1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングの一環として、ウラン濃縮工場による環境への影響を把握することを目的とし、河底土(老部川上流及び下流)中のフッ素濃度調査を行っている。

本調査は平成元年度から実施しており、平成12年度までは経年変動があるものの同様の水準で推移してきていたが、平成13～15年度にそれ以前の変動範囲を外れる高めの調査結果となった。

フッ素化合物は地殻中に広く分布しており、土壌中にも種々の形の鉱物として含まれている<sup>1)</sup>。したがって、上流から流れてきた土砂の堆積状況や河川の周辺の表層土壌(以下、「表土」という。)の河川への流入状況等により、フッ素濃度は変動するものと考えられる。本調査における採取地点の近傍において、近年農地開発工事や森林の伐採が行われており、このような周辺環境の変化も考慮して、河川に流入する表土の河底土への影響を検討する必要がある。そのためには、モニタリング地点の河底土及びその起源になると考えられる周辺地域の表土等について土質等を把握し、比較検討することが重要である。

平成18年度はモニタリング地点近傍における支流地点の河底土及び支流地点周辺の表土を採取し、フッ素濃度の分析を行うとともに、これまで採取したモニタリング試料も対象として、蛍光X線分析による元素組成の半定量を行った。その結果、①老部川本流より、支流においてフッ素濃度が高いこと、②本流、支流ともに河底土又は表土中のフッ素濃度とCaO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、MgOとの相関が認められることがわかった。平成19年度はこれまでの地点に加えて新たに老部川上流地点周辺及びさらに上流の地点(老部川最上流地点)周辺の表土を採取し、フッ素濃度の分析を行った。その結果、支流地点周辺及び老部川上流地点周辺の表土でフッ素濃度が高いことがわかった。

平成20年度は平成18年度に行った蛍光X線分析による半定量結果及びフッ素濃度を用いて濃度相関マトリックスによる解析を行い、モニタリング地点の河底土とモニタリング地点周辺の土壌との類似性について検討した。

### 2. 調査方法

#### 2.1 試料採取地点

調査地点の概略は図1のとおりであり、老部川上流地点(R1)及び老部川下流地点(R2)がモニタリング地点である。

##### (1) モニタリング地点

河底土2試料(老部川上流地点(R1)、老部川下流地点(R2))

##### (2) 老部川最上流地点(モニタリング地点から約1.5 km 上流)

河底土1試料(老部川最上流地点(R3))、表土1試料(老部川最上流周辺(G2))

(3) モニタリング地点近傍

河底土 3 試料(支流地点(R4)、支流流入部斜面地点(R5)、支流流入部本流地点(R6))  
表土 2 試料(支流周辺(G1)、老部川上流周辺(G3))

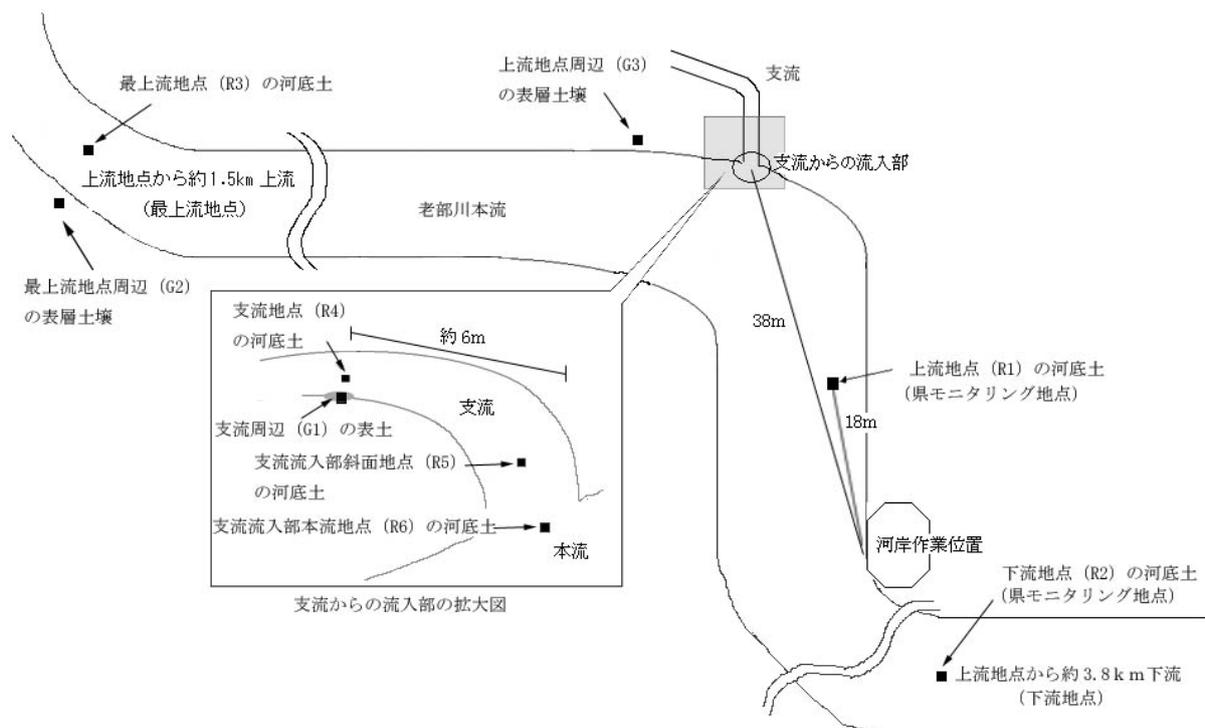


図 1 老部川における河底土等採取地点

## 2.2 分析方法

- (1) フッ素 直接蒸留 - イオン電極法
- (2) 半定量分析 蛍光 X 線分析法

## 3. 結果と考察

### 3.1 モニタリング地点における河底土中フッ素濃度の経年変化

図 2 にモニタリング地点における河底土中フッ素濃度の経年変化を示した。老部川上流地点(R1)について平成 13 年度から 15 年度にそれ以前の変動範囲より高い調査結果となっている。老部川下流地点(R2)においても平成 15 年度には高い調査結果となっている。

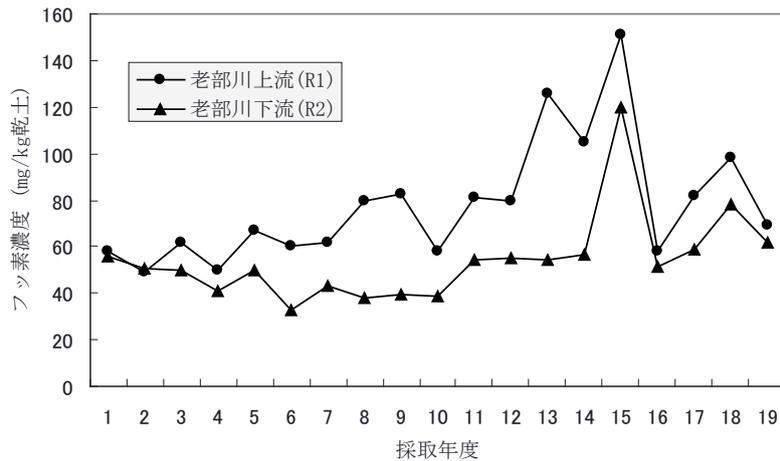


図2 モニタリング地点における河底土中フッ素濃度の経年変化

### 3.2 モニタリング地点周辺の河底土及び表土中のフッ素濃度

表1に老部川最上流地点(R3)、モニタリング地点近傍(R4~R6、G1~G3)における河底土及び表土中のフッ素濃度を示した。支流地点の河底土及び表土(R4~R6、G1)と老部川上流地点周辺の表土(G3)は図2に示す老部川上流地点(R1)よりも高い結果が得られた。また、老部川最上流地点(R3)及びその周辺の表土(G2)は老部川上流地点(R1)とほぼ同じ結果が得られた。これらのことから老部川上流地点(R1)の河底土中のフッ素濃度の変動要因として本流に流れ込む支流の河底土及びその周辺の表土が影響しているものと考えられる。

表1 R3~R6、G1~G3 地点のフッ素濃度

採取年度	試料名	地点名	フッ素濃度 (mg/kg 乾土)
16	河底土	老部川最上流地点 (R3)	47
17	河底土	老部川最上流地点 (R3)	61
18	河底土	老部川最上流地点 (R3)	88
19	河底土	老部川最上流地点 (R3)	60
18	河底土	支流地点 (R4)	116
19	河底土	支流地点 (R4)	118
18	河底土	支流流入部斜面地点 (R5)	134
19	河底土	支流流入部斜面地点 (R5)	121
18	河底土	支流流入部本流地点 (R6)	84
19	河底土	支流流入部本流地点 (R6)	125
18	表土	支流地点周辺 (G1)	175
19	表土	支流地点周辺 (G1)	243
19	表土	最上流地点周辺 (G2)	81
19	表土	上流地点周辺 (G3)	131

### 3.3 濃度相関マトリックスによる各地点間の類似性<sup>2)、3)、4)、5)</sup>

濃度相関マトリックスは各地点間の類似性を各成分比の一致性から調べる方法であり、濃度の大小には直接関係しない。

すなわち、ある構成成分をもつものに対し、単なる希釈効果を行っただけではその構成成分の各成分比は変化しないため、この方法では著しい類似となる。濃度相関マトリックスの求め方についてであるが、A地点とB地点でn成分の濃度(A : a<sub>1</sub>、a<sub>2</sub>、a<sub>3</sub>、・・・a<sub>n</sub> ; B : b<sub>1</sub>、b<sub>2</sub>、b<sub>3</sub>、・・・b<sub>n</sub>)が測定された場合、まずA地点の各成分濃度間の比をとる。

$$X_A = \begin{bmatrix} a_1/a_1 \\ a_2/a_1 & a_2/a_2 \\ a_3/a_1 & a_3/a_2 & a_3/a_3 \\ \dots & \dots & \dots & a_n/a_n \end{bmatrix}$$

B地点についても同様に $X_B$ を作る。次に $X_A$ と $X_B$ との各要素の比をとる。

$$Y_{AB} = \frac{\begin{bmatrix} X_A \\ X_B \end{bmatrix}}{\begin{bmatrix} X_B \\ X_A \end{bmatrix}} = \begin{bmatrix} a_1/a_1 \\ b_1/b_1 \\ a_2/a_1 & a_2/a_2 \\ b_2/b_1 & b_2/b_2 \\ a_3/a_1 & a_3/a_2 & a_3/a_3 \\ b_3/b_1 & b_3/b_2 & b_3/b_3 \\ \dots & \dots & \dots & a_n/a_n \\ \dots & \dots & \dots & b_n/b_n \end{bmatrix}$$

このうち、対角要素の値は1となり、他の要素も濃度比が類似していれば1に近い値となる。 $Y_{AB}$ において判定基準を $M$ とし $M$ と $1/M$ の範囲内にある数値の数を数える。 $M$ としては一般的に1.3又は1.5が使われている。この範囲内にある数を $Y_{AB}$ の対角要素を除いた全体の数で割ったものを相関数といい、相関数 $Z_{AB}$ は

$$Z_{AB} = \frac{1/1.3 \sim 1.3 \text{ (又は } 1/1.5 \sim 1.5 \text{) の範囲内の数}}{\text{行列中の全要素の数(対角要素は除く)}}$$

となる。この相関数を各地点(A、B、C、・・・)で求め濃度相関マトリックスを作成する。

$$Z = \begin{bmatrix} Z_{AA} & & & \\ Z_{AB} & Z_{BB} & & \\ Z_{AC} & Z_{BC} & Z_{CC} & \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{bmatrix}$$

相関数は0～1までの範囲で示され、この値の大小によって試料相互の関連性を知ることができる。全成分比が一致すると1となる。

平成18年度に採取した支流の河底土と表土(R4～R6、G1)、過去の老部川上流地点(R1)及び老部川最上流地点(R3)の河底土について蛍光X線による半定量の分析結果とフッ素濃度を表2に、これらの測定値を用いて濃度相関マトリックス解析を行った結果を表3に示す。表4は表3について $1.0 \geq$ 相関数 $\geq 0.8$ 、 $0.8 >$ 相関数 $\geq 0.6$ 、 $0.6 >$ 相関数 $\geq 0.4$ 、 $0.4 >$ 相関数 $\geq 0.3$ 、 $0.3 >$ 相関数 $\geq 0$ の範囲にある相関数をそれぞれ◎、○、△、▲、×として表したものである。この表から各試料間の類似性について以下のことが読みとれる。

- 1) 老部川上流地点(R1)の河底土 No.1～8 については、No.3～5 及び No.1、2、6、7、8 がそれぞれのグループ内で互いに類似性がみられるが、相関数には年度による変動がみられた。

- 2) 平成 18 年度の支流地点の河底土及び表土 No.12~15 のうち、フッ素濃度が高かった河底土 No.3~5 と類似性がみられたのは No.12 であった。
- 3) 老部川最上流地点(R3)の河底土 No.9~11 については、河底土 No.3~5 とは類似性がみられず、河底土 No.1、2、6、7、8 と類似性がみられた。

以上のことから、老部川上流地点(R1)において河底土中フッ素濃度が高くなった平成 13~15 年度(No.3~5)は土質が他の年度と異なっており、この要因として支流地点の河底土(R4)の影響が考えられる。この地点でフッ素濃度が比較的低かった年度(No.1、2、6~8)については、老部川最上流地点の河底土(No.11)と類似性が認められており、より上流からの土砂の流入の影響が考えられる。

表 2 フッ素濃度及び蛍光 X 線による半定量分析結果 (%)

番号	地点	年度	F <sup>※1</sup>	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	TiO <sub>2</sub>	K <sub>2</sub> O	MnO	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>
1	R1	5	67	50.1	19.1	13.0	9.19	4.70	1.78	0.943	0.593	0.287	0.0850	0.0374
2	R1	7	62	49.5	20.2	13.7	8.00	4.62	1.60	1.020	0.649	0.273	0.1020	0.0692
3	R1	13	126	50.6	24.2	12.3	6.54	2.91	1.19	1.000	0.721	0.258	0.1090	0.0424
4	R1	14	105	50.8	24.5	11.4	6.70	2.80	1.39	0.978	0.769	0.251	0.1140	0.0428
5	R1	15	151	50.5	24.6	12.0	6.39	2.74	1.34	1.050	0.781	0.295	0.1350	0.0695
6	R1	16	58	51.0	21.3	11.9	8.12	3.80	1.71	0.912	0.709	0.239	0.0977	0.0393
7	R1	17	82	51.4	22.2	10.9	8.18	3.33	1.80	0.878	0.757	0.249	0.0941	0.0350
8	R1	18	98	50.8	22.4	11.5	8.07	3.38	1.63	0.970	0.721	0.217	0.1100	0.0616
9	R3	16	47	49.6	17.9	13.4	9.54	5.43	2.10	0.912	0.604	0.177	0.0898	0.0172
10	R3	17	61	49.3	18.2	14.0	9.13	5.37	1.82	1.000	0.601	0.159	0.0829	0.0217
11	R3	18	88	50.5	21.1	11.5	8.78	3.93	1.94	0.944	0.760	0.264	0.1040	0.0345
12	R4	18	116	49.2	23.1	13.4	6.92	3.25	1.37	1.210	0.755	0.318	0.1660	0.1690
13	G1	18	175	49.7	24.3	12.8	5.72	2.80	1.31	1.150	1.100	0.275	0.3310	0.3130
14	R5	18	134	49.8	23.8	11.7	7.42	2.84	1.50	1.160	0.916	0.155	0.2620	0.3470
15	R6	18	84	49.1	20.4	13.7	8.47	4.38	1.59	1.090	0.600	0.278	0.1070	0.0884

※1 フッ素濃度のみ単位は mg/kg 乾土

表3 老部川上流付近の河底土及び表土についての濃度相関マトリックス

地点	R1	R3	R3	R3	R4	G1	R5	R6							
年度	5	7	13	14	15	16	17	18	16	17	18	18	18	18	18
F濃度	67	62	126	105	151	58	82	98	47	61	88	116	175	134	84
番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
1	-														
2	0.803	-													
3	0.409	0.470	-												
4	0.439	0.424	0.985	-											
5	0.303	0.515	0.818	0.727	-										
6	0.833	0.818	0.530	0.591	0.409	-									
7	0.667	0.591	0.591	0.727	0.394	0.833	-								
8	0.485	0.667	0.667	0.803	0.545	0.697	0.788	-							
9	0.561	0.455	0.273	0.288	0.227	0.500	0.379	0.348	-						
10	0.697	0.636	0.273	0.288	0.212	0.561	0.470	0.348	0.833	-					
11	0.727	0.636	0.530	0.606	0.379	0.833	1.000	0.803	0.470	0.470	-				
12	0.288	0.348	0.682	0.697	0.712	0.394	0.409	0.561	0.167	0.242	0.409	-			
13	0.182	0.242	0.455	0.439	0.576	0.242	0.227	0.273	0.152	0.136	0.242	0.485	-		
14	0.197	0.258	0.500	0.515	0.515	0.273	0.333	0.439	0.212	0.227	0.288	0.485	0.621	-	
15	0.742	0.864	0.439	0.439	0.439	0.682	0.621	0.636	0.394	0.515	0.712	0.455	0.288	0.227	-

判定基準(M = 1.3)

表4 老部川上流付近の河底土及び表土についての相関

地点	R1	R1	R1	R1	R1	R1	R1	R1	R3	R3	R3	R4	G1	R5	R6
年度	5	7	13	14	15	16	17	18	16	17	18	18	18	18	18
F濃度	67	62	126	105	151	58	82	98	47	61	88	116	175	134	84
番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
1	-														
2	◎	-													
3	△	△	-												
4	△	△	◎	-											
5	▲	△	◎	○	-										
6	◎	◎	△	△	△	-									
7	○	△	△	○	▲	◎	-								
8	△	○	○	◎	△	○	○	-							
9	△	△	×	×	×	△	▲	▲	-						
10	○	○	×	×	×	△	△	▲	◎	-					
11	○	○	△	○	▲	◎	◎	◎	△	△	-				
12	×	▲	○	○	○	▲	△	△	×	×	△	-			
13	×	×	△	△	△	×	×	×	×	×	×	△	-		
14	×	×	△	△	△	×	▲	△	×	×	×	△	○	-	
15	○	◎	△	△	△	○	○	○	▲	△	○	△	×	×	-

◎ : 1.0 ≥ 相関数 ≥ 0.8    ○ : 0.8 > 相関数 ≥ 0.6    △ : 0.6 > 相関数 ≥ 0.4  
 ▲ : 0.4 > 相関数 ≥ 0.3    × : 0.3 > 相関数 ≥ 0

#### 4. まとめ

- 1) 老部川上流地点近傍にある支流の河底土とその周辺の表土及び老部川上流地点よりもさらに上流地点の河底土とその周辺の表土中のフッ素を分析した結果、支流の河底土及びその周辺の表土でフッ素濃度が高かった。
- 2) 河底土と表土の蛍光 X 線による半定量結果及びフッ素分析結果を用いて濃度相関マトリクス解析を行った結果、老部川上流地点の河底土は年度によって土質が変化しており、フッ素濃度が高くなる要因としてこの近傍にある支流の河底土の影響が考えられる。
- 3) フッ素濃度が比較的lowかった年度については、老部川最上流地点の河底土と類似性が認められており、より上流からの土砂の流入の影響が考えられる。

#### 文 献

- 1)山縣 登、大喜多敏一 編、大喜多敏一、森 正樹、金田和子：環境汚染分析法 11 ハロゲン, 7, 大日本図書(1973)
- 2)日本地球化学会編：水汚染の機構と解析 - 環境科学特論 -, 53~83, 1978
- 3)中村 稔：早瀬野ダム建設に伴う関連水域調査結果, 青森県公害調査事務所所報, No.6, 67~75, 1984

- 4)水上和子、竹内庸夫：濃度比類似性による降水成分の解析，埼玉県公害センター年報，第12号，38～44, 1985
- 5)高木靖弘、近野誠二、松田 漸：14 双子を有する家族の頭髪中重金属について，福井県衛生研究所調査研究報告，昭和53年4月 - 昭和54年11月第14 - 17集, 168～179

## 東通原子力発電所に係る空間 $\gamma$ 線スペクトル測定調査

成田 俊 貝森優希\*<sup>1</sup> 工藤俊明 安積 潔 斉藤 陽

### 1. はじめに

青森県では、平成17年12月に県内初の原子力発電所となる東北電力(株)東通原子力発電所1号機(以下「東通原子力発電所」という。)が営業運転を開始した。営業運転に先立ち、県では「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング実施計画」を策定し、平成15年4月から東通原子力発電所周辺地域において環境放射線モニタリングを実施している。

その一環として調査している積算線量(空間 $\gamma$ 線)については、調査地点ごとに測定値が異なり、また、同一地点においても周辺環境の変化により測定値が変動することから、調査地点における $\gamma$ 線の構成成分を把握することは、モニタリング結果を評価する上で重要である。

以上を踏まえ、平成18年度は、東通原子力発電所周辺地域において可搬型Ge半導体検出器及びNaI(Tl)スペクトロメータを用いた空間 $\gamma$ 線スペクトル測定を実施し、各調査地点における核種・壊変系列ごとの空間 $\gamma$ 線量率及び土壌中の放射能濃度の解析を行った。

また、空間放射線の主な起源となる表土について、その性状等を把握し、基礎資料とするため、調査地点において平成18年度に土壌を採取し、平成19年度に $\gamma$ 線放出核種分析を実施した。

平成20年度は、平成18年度に用いた可搬型Ge半導体検出器(Pタイプ)のピーク効率の経年変化について検討を行った。

### 2. 調査内容

#### 2.1 平成19年度までの調査内容

図1に示すとおり、「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング実施計画」に定める積算線量調査地点(全21地点)において、可搬型Ge半導体検出器及びNaI(Tl)スペクトロメータにより空間 $\gamma$ 線スペクトル測定を実施した。可搬型Ge半導体検出器による測定結果(以下、「in-situ測定結果」という。)については、Beckらが開発した方法<sup>1,2)</sup>(HASL方式)を用いて核種・壊変系列ごとに空間 $\gamma$ 線量率及び土壌中の放射能濃度の算出を行った。

また、現地の状況から土壌の採取が可能と判断した11地点については、併せて土壌の採取(直径5cm、深さ25cmの採土器を用いて、1地点につき5点採取)を行い、Ge半導体検出器により測定を行った。

#### 2.2 平成20年度の調査内容

調査結果をとりまとめる過程において、可搬型Ge半導体検出器のピーク効率の経年変化及びin-situ測定結果の解析ソフトのパラメータについて確認することが必要となったことから、平成20年度は検出器の経年変化について調査した。

平成18年度に実施したin-situ測定結果については、測定器を整備した平成14年度の効率校正曲線を用いて解析を行っていたが、本調査に用いた同軸型Pタイプ検出器では、長時間室温で保存

\*1: 現青森県環境生活部環境政策課

するとピーク効率が低下するという情報をメーカーから入手したため、検出器の経年変化について検討を行うこととした。このようなことから、(財)環境科学技術研究所の協力のもとに、標準線源(Am-241,Ba-133,Co-57,Co-60,Cs-137,Mn-54,Na-22,Y-88)を用いた効率校正を行った。

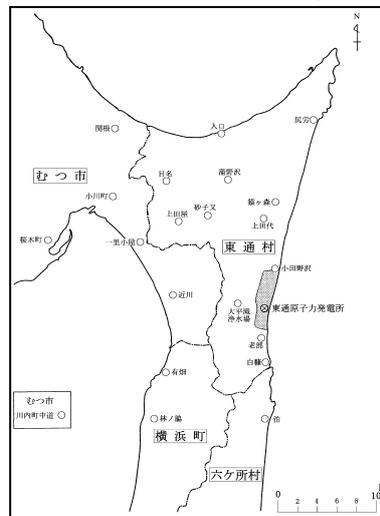


図1 調査地点図

### 3. 調査結果

今回及び平成14年度に標準線源について測定したスペクトルから求めた効率校正曲線を図2に示す。平成14年度に比べ、平成20年度は効率が低下しており、検出器の経年変化が確認された。in-situ測定結果の解析には測定した時期の効率校正曲線を用いる必要があることから、平成14年度及び平成20年度の効率校正曲線を用いて再解析を行い、それらの結果から平成18年度の値を推定することとする。

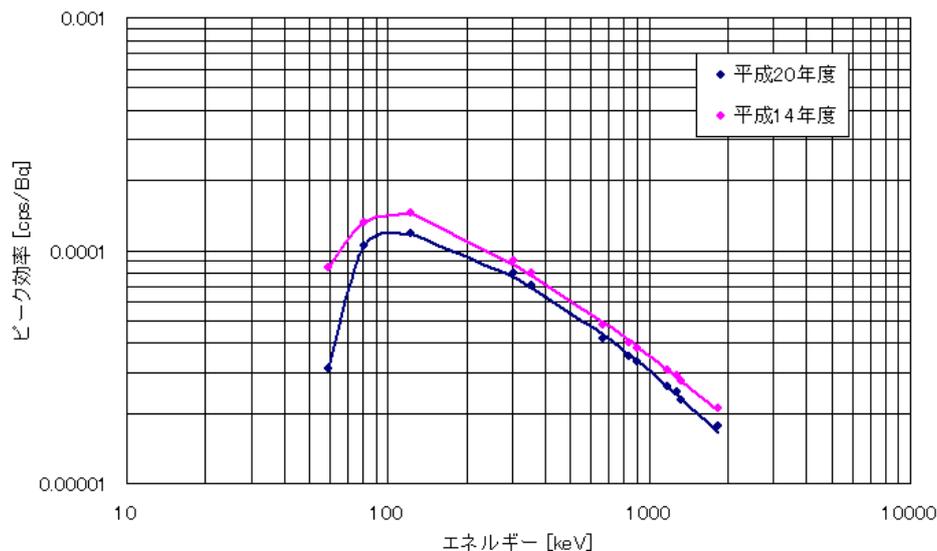


図2 平成14年及び20年度の効率校正曲線

#### 4. まとめ

調査に用いた可搬型 Ge 半導体検出器について標準線源を用いて効率校正を行った結果、ピーク効率の経年低下が確認された。このため、平成 18 年度に実施した in-situ 測定結果については、平成 14 年度及び 20 年度の効率校正曲線を用いて再解析を行い、その結果から平成 18 年度の値を推定することとする。

今後、in-situ 測定結果の解析ソフトのパラメータについて確認した上で、平成 21 年度に調査結果をとりまとめることとする。

#### 文 献

- 1) H. L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak: In Situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-ray Spectrometry, USAEC Report HASL-258(1972).
- 2) (財)日本分析センター編:「環境放射能分析研修 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定法解説」, (財)日本分析センター(2006).

編 集 委 員

齋藤 稔 (委員長) 立田祥治 (副委員長) 庄司博光  
嘉山定伸 木村秀樹 竹ヶ原 仁 工藤俊明 (事務局)  
五十嵐飛鳥 武藤逸紀 西谷貴志

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 3 号 (2008)

平成 21 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 308.7 円です。