

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 10 号

平成 27 年度

Bulletin
Of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.10 (2015)

青森県原子力センター

<http://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/genshisenta/>

目 次

I 研究報告

1. 表土採取地点（浜ノ平）における放射性セシウムの挙動について・・・・・・・・・・ 3
赤石 新 松山 大 木村秀樹

II 技術報告

1. 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査・・・・・・・・・・ 13
－中間報告（上北地域及び下北地域）－
五十嵐飛鳥 工藤達晃 工藤 翔 赤石 新 松山 大 鈴木将文
佐々木 守 木村秀樹
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・・・ 29
－平成 26 年度調査結果－
神 俊雄 赤石 新 松山 大 幸 進 岡 光昭 岡村泰治
3. 測定局の移設前後の測定結果について・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 43
－空間放射線量率及び大気浮遊じん中の全 α 、全 β 放射能－
福士貴史 小川裕貴 佐々木 守 木村秀樹

III 学会発表等要旨・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 55

IV 平成 27 年度調査研究事業報告

1. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・・・・・ 67
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 75
（平成 27 年度実施内容）
3. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討・・・・・・・・ 77

原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

は　　じ　　め　　に

青森県では、六ヶ所村に日本原燃(株)の原子燃料サイクル施設、東通村に東北電力(株)の東通原子力発電所 1 号機、大間町に電源開発(株)の大間原子力発電所及びむつ市にリサイクル燃料貯蔵(株)のリサイクル燃料備蓄センターの立地が進められており、現在、国において新規制基準に係る適合性審査が進められているところです。

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

平成 23 年 3 月の東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故から 5 年が経過し、本県の原子力施設周辺における環境放射線モニタリング結果への事故の影響は、かなり少なくなりました。しかし、事故の記憶を風化させず、モニタリング体制の充実・強化に努める姿勢は堅持したいと考えています。今年度、緊急時モニタリングとしては、国のモニタリング情報共有・公開システムが整備されるとともに、簡易型電子線量計について仕様の検討、設置場所の調査・選定等を行っており、来年度から整備することとしています。また、県内の原子力施設、特に再処理工場から放出される放射性物質による周辺住民等の線量を推定・評価するための具体的な方法を定める「測定結果に基づく線量算出要領」について、これまで再処理工場のアクティブ試験による影響等を踏まえ検討を積み重ねてきましたが、今年度策定に至りました。

人事異動による職員の入れ替えがある中、技術レベルを維持・向上させていくためには、専門研修の受講、学会・セミナー等への参加、実践的な訓練の実施等を通じて、職員の知識・技術の習得を図るとともに、意識を高めていくことが重要だと考えています。その一環として、当センターでは、これまで実施してきた調査研究の成果や日常のモニタリングで得られた知見についてとりまとめ、所報として発刊してきました。今回は、節目の第 10 号となります。ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご教示を賜りますようお願い申し上げます。

この所報第 10 号のとりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員をはじめ多くの専門家の方々からご意見・ご指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。今後とも、職員一人一人が研鑽を積みながら一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、引き続きご支援いただきますようよろしくお願い申し上げます。

平成 28 年 3 月

青森県原子力センター

所 長　木 村 秀 樹

研 究 報 告

表土採取地点（浜ノ平）における放射性セシウムの挙動について

赤石 新 松山 大 木村秀樹

東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故後の環境放射線モニタリングにおいて、表土（浜ノ平）中放射性セシウム濃度が事故の翌年から上昇しており、他の調査地点と異なる推移を示したことから、表土採取地点（浜ノ平）における放射性セシウムの挙動について検討するための調査を行った。調査の結果、浜ノ平では当該事故により飛来した放射性セシウムの多くが現地に生育していた草に沈着し、その後枯死した草の分解に伴って土壌に移行していることが要因であると考えられた。

1. はじめに

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故（以下「事故」という。）により、大量の放射性核種が環境中に放出された。このうち I-131、Cs-134、Cs-137 等については放出量が多く、本県においても種々の環境試料で検出された。特に Cs-134 及び Cs-137 は、半減期が比較的長いため、原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリングにおいて、長期間事故の影響が認められている。

浜ノ平とその近隣の地点で採取した表土については、事故後放射性セシウム（Cs-134 及び Cs-137）の測定結果に増加傾向が見られた。放射性セシウムの推移を見ると、半減期が約 30 年の Cs-137 は過去の大気圏内核実験の影響により事故前から検出されているのに対し、Cs-134 は事故後から検出され始めており、半減期が約 2 年であることを考慮すると現在検出される Cs-134 は事故由来のものと考えられる。

浜ノ平では、この Cs-134 が事故の翌年から上昇するという他の地点とは異なる推移を示していた。本報告ではこの点に着目し、平成 26 年度に放射性セシウムの土壌中深度分布調査、土壌有機物（腐植物質）調査等を行い、この地点における放射性セシウムの挙動について検討した。

2. 調査方法

2.1 調査地点及び試料採取日

深度分布及び腐植物質調査を実施した地点及び試料採取日とモニタリングにおける月間降下物及び表土の採取地点、試料採取頻度を以下に示す。深度分布及び腐植物質調査を実施した地点とモニタリングにおける月間降下物及び表土の採取地点の位置を図 1 に示す。

(1) 深度分布及び腐植物質調査における調査地点及び試料採取日

浜ノ平：平成 26 年 7 月 22 日

川内町：平成 26 年 7 月 25 日

関根：平成 26 年 8 月 4 日

(2) 月間降下物（モニタリング調査）

砂子又：1 回／月

(3) 表土（モニタリング調査）

浜ノ平：1回／年（7月）

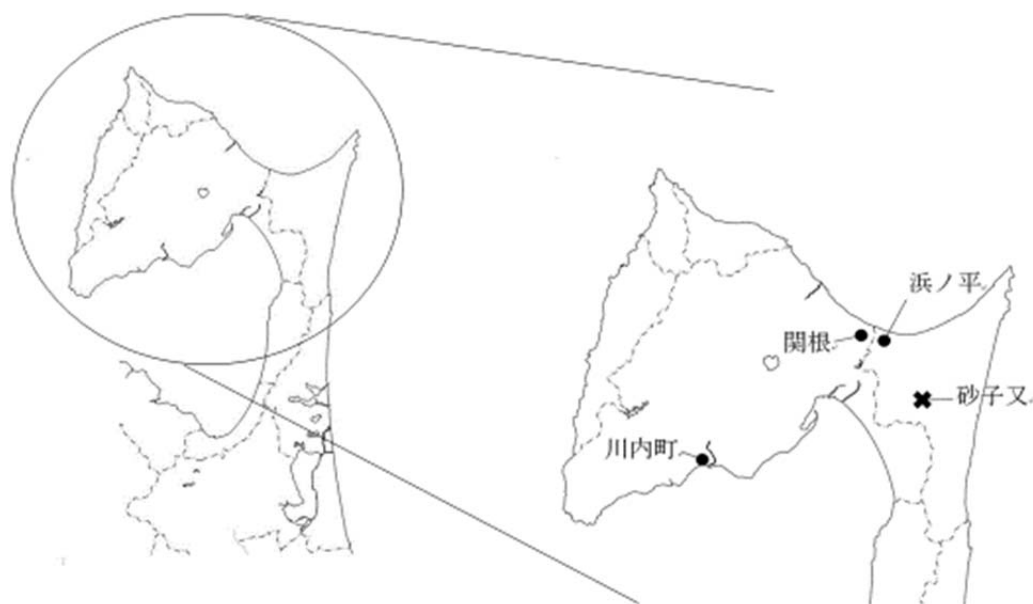


図1 試料採取地点

2.2 試料採取及び前処理方法

(1) 表土

地表～5 cm の深さまでの表土をステンレス製採土器（10 cm ϕ × 5 cm）を用いて採取した。草、小石等を除き、105℃で24時間以上乾燥し、乳鉢で軽く摩砕後、2 mm 篩に通したものを γ 線放出核種測定用試料とした¹⁾。

(2) 深度分布及び腐植物質調査

各調査地点においてスクレーパープレート（15 × 30 cm）を用いて、表土を層別（0-1、1-2、2-3、3-4、4-5 cm）に採取した。採取した土壌は層ごとに均一に混合した後、腐植物質調査用に一部を分取し、残りは105℃で24時間以上乾燥した。その後、乳鉢で軽く摩砕後、2 mm 篩に通したものを γ 線放出核種測定用試料とした¹⁾。

(3) 月間降下物

降水及びじん埃を大型水盤（採取面積 0.466 m²）により1カ月ごとに採取し、U-8 容器（円筒形、高さ 62 mm、底面積 21 cm²、スチロール製）に蒸発乾固して、 γ 線放出核種測定用試料とした¹⁾。

2.3 測定方法

(1) γ 線放出核種

文部科学省の放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」（平成4年改訂）に基づき実施した。U-8 容器に充填した試料を遮蔽体内に設置し、ゲルマニ

ウム半導体検出器により γ 線スペクトルを測定した。測定時間は 80000 秒とした²⁾。

(2) 腐植物質

2.2(1)において分取した試料について、専門業者に委託し、熊田法(0.1 N 水酸化ナトリウム溶液抽出－酸沈殿分画－過マンガン酸滴定法)により、腐植物質含有量の測定を行った。

2.4 測定機器

γ 線放出核種

- ・キャンベラジャパン株式会社製 ゲルマニウム半導体検出器 GC4020
- ・セイコー E G & G 株式会社製 ゲルマニウム半導体検出器 GMX-25

3. 結果と考察

3.1 浜ノ平における放射性セシウムの推移

図2に浜ノ平とその近隣地点における表土中放射性セシウムの推移を示す。事故の影響について考察するため、Cs-134に着目し4箇所の表土採取地点における推移を見ると、浜ノ平以外の地点では事故が発生した平成23年度からCs-134が検出されているが、浜ノ平では一年遅れの平成24年度から検出され、その翌年の平成25年度にはさらに高い値となった。Cs-137についても浜ノ平は平成22年度と比較して平成23年度は同程度であったが、平成24、25年度と上昇がみられた。このように浜ノ平の放射性セシウムが他の地点とは異なる推移を示していることが分かる。

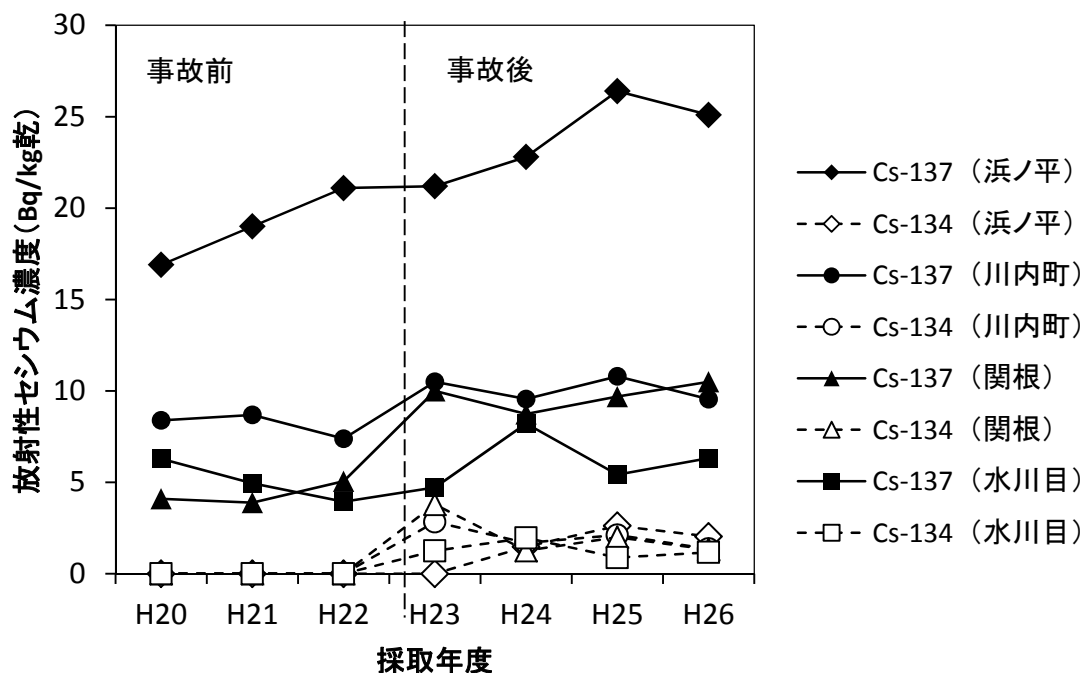


図2 浜ノ平とその近隣地点における表土中放射性セシウムの推移

3.2 深度分布及び腐植物質調査

表3に各調査地点における採取層ごとのCs-134濃度及び腐植物質含有量を、図3にそれぞれの深度分布の状況を示す。層ごとのCs-134濃度を見ると、いずれの地点においても深くなるにつれて減少しており、Cs-134が地表から供給されていることを示していた。また、Cs-134が検出され

たのは3層目までであったことから、事故に起因する放射性セシウムのほとんどが表層3 cmに留まっているものと考えられる。

層ごとの腐植物質含有量を見ると、いずれの地点においても深くなるにつれて減少しており、腐植物質も地表から供給されていることを示していた。また、腐植物質含有量が多い地点は地表に生育している植物の量が多いことから、腐植物質含有量は植物の繁茂状況を反映しているものと考えられる。

図3を見ると、深度0-1 cmのCs-134濃度及び0-3 cmのCs-134積分量は、腐植物質含有量が多い浜ノ平で高く、関根では地理的に近い浜ノ平より、腐植物質含有量が同程度の川内町に近い値となった。環境中に放出された放射性セシウムの地表への沈着について、田中ら³⁾は大気を経由した土壌への乾性沈着あるいは湿性沈着のほか、植生に覆われている森林への沈着も重要な移行経路としている。森林の樹冠は表面積が大きく大気中の汚染物質を捕集する機能を持つため、放射性物質が森林に沈着する場合、林床への直接的な沈着だけでなく、樹冠への沈着及びその後の降雨による洗い落としによる林床への移行などを考える必要があるとしている。浜ノ平と関根は地理的に近く、飛来した放射性セシウムの量に大きな違いはないと推定されるのにもかかわらず、表土中Cs-134濃度の差が大きいのは、浜ノ平では繁茂している植物が多いことから、放射性セシウムがより多く沈着し、土壌に移行したのと考えられる。また、このことが、浜ノ平において表土中の事故に起因する放射性セシウムの測定値が平成23年度に上昇がみられず、平成24年度以降に上昇したことの要因となっているものと考えられる。

表3 採取層ごとのCs-134濃度及び腐植物質含有量

深度 (cm)	浜ノ平		川内町		関根	
	¹³⁴ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	腐植物質 含有量 (g/kg 乾)	¹³⁴ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	腐植物質 含有量 (g/kg 乾)	¹³⁴ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	腐植物質 含有量 (g/kg 乾)
0-1	7.6	110	4.3	78	3.0	72
1-2	2.8	93	1.7	61	2.1	39
2-3	1.3	77	0.75	51	1.1	33
3-4	ND(0.79)	70	ND(0.70)	38	ND(0.76)	33
4-5	ND(0.73)	64	ND(0.90)	44	ND(0.69)	32

- ・ Cs-134 濃度は試料採取日に補正した値。
- ・ ND：検出限界以下。（ ）内は検出限界値。



写真 1 表土試料採取地点の様子（上から浜ノ平、川内町、関根）

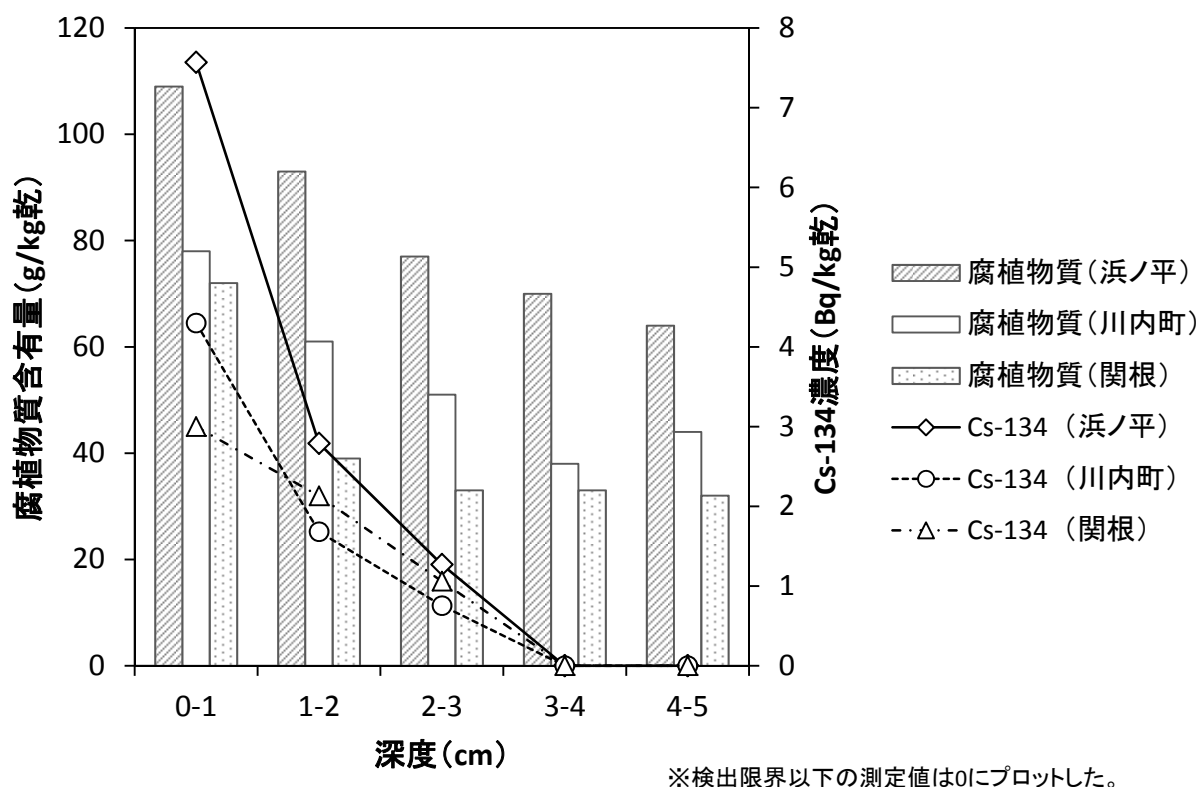


図3 Cs-134 濃度及び腐植物質含有量の深度分布状況

3.3 放射性セシウムの表土への沈着量の推定

河原⁴⁾によると、落葉は時間の経過に伴って分解が進み、その重量は(1)式に示すように指数関数的に減少する。

$$y = e^{-kt} \quad \dots\dots(1)$$

y: 落葉の残存率 (%), t: 経過時間 (年)、k: 重量減少 (分解) 率 (年⁻¹)

そこで、以下のとおり仮定し、Cs-134 降下量の測定値を用いて表土への沈着量の推定を行い、これまでの表土の測定値と比較した。

- ・事故により降下した放射性セシウムは 100%採取地点に生育している植物に沈着し、その枯草 (植物遺体) の分解に伴い土壌へ移行する。
- ・植物遺体は(1)式に従い分解が進み、分解生成物が土壌へ移行するのと同じ割合で放射性セシウムが土壌へ移行する (k の値は河原による重量減少 (分解) 率と年平均気温の関係から 0.35 とした)。

このような放射性セシウムの移行挙動を模式的に表したのが図4である。

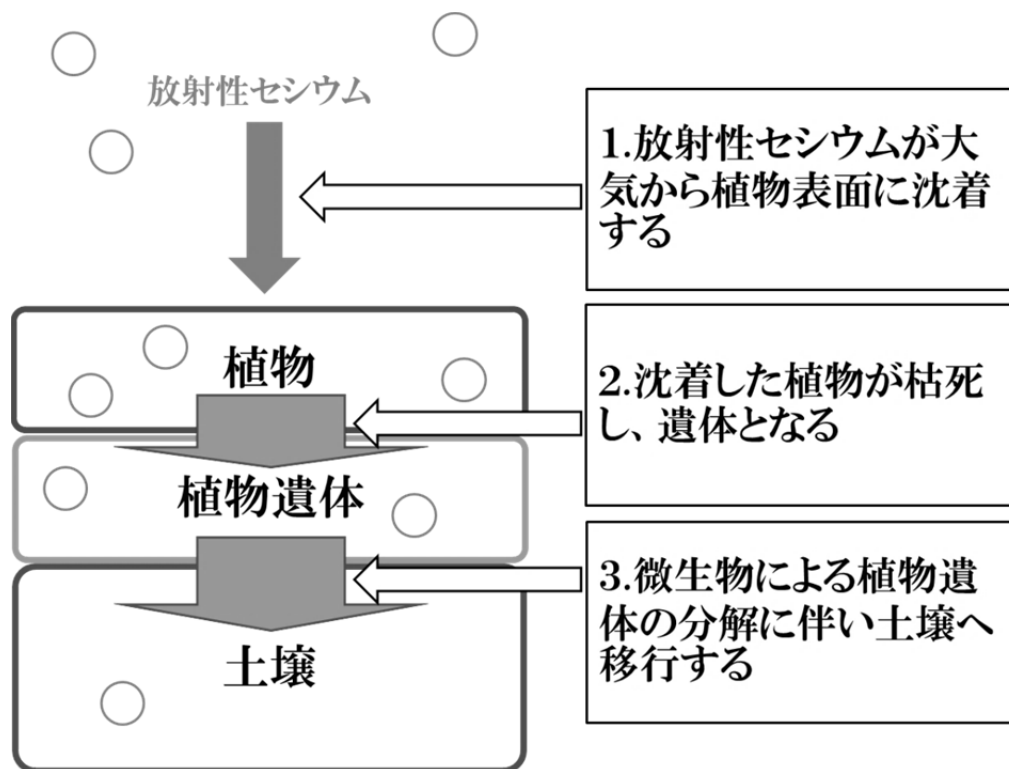


図4 採取地点における放射性セシウムの移行挙動概念図

砂子又で毎月採取している降下物の測定結果から平成23年2月28日～平成23年12月28日のCs-134降下量は 112 Bq/m^2 であった。モニタリングで表土を採取した平成24年7月時点における平成23年に生育していた植物の遺体の残存率を(1)式より求めると81.5%であり、18.5%が分解して土壌へ移行したことになる。平成23年に植物に沈着したCs-134の18.5%が土壌へ移行したことになるため、Cs-134の物理的半減期による減衰も考慮して、平成24年7月時点での表土への沈着量を推定したところ 14.3 Bq/m^2 となった。これに対して、平成24年7月における表土（浜ノ平）中Cs-134測定値 1.48 Bq/kg 乾を 1 m^2 当たりの沈着量に換算すると 15.1 Bq/m^2 であり、降下量から推定した沈着量とほぼ一致した。

同様の推定を平成25年及び平成26年についても行うと、平成25年7月時点では推定した沈着量が 23.7 Bq/m^2 に対して実測の沈着量が 40.2 Bq/m^2 、平成26年7月時点では推定した沈着量が 23.5 Bq/m^2 に対して実測の沈着量が 24.5 Bq/m^2 となった。平成25年の推定値と実測値に差がみられたが、表土（浜ノ平）中Cs-134測定値にはサンプリングによるばらつきが約23%※、計数誤差が測定値の約10%であり、これらを考慮すると、矛盾しない結果であると考えられる。

※この地点において9ポイントから表土を採取し、それぞれの試料についてCs-134の測定を行ったところ、変動係数は約23%（ $n=9$ ）であった。

4. まとめ

表土採取地点（浜ノ平）における放射性セシウムの挙動について検討するための調査を行った。放射性セシウム及び腐植物質が地表から供給されていること、腐植物質含有量にも示されるとおり表土採取地点の植物の繁茂状況に差があること、植物に沈着するモデルによる表土への沈着量

の推定値が測定値と概ね一致することから、浜ノ平における Cs-134 及び Cs-137 濃度について、平成 23 年度に上昇がみられず、平成 24 年度以降上昇しているのは、事故により飛来した放射性セシウムの多くがその地点に生育していた植物に沈着し、その後枯死した植物の分解に伴い土壤に移行していることが要因であると考えられる。

文 献

- 1)文部科学省編：「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」（昭和 57 年）
- 2)文部科学省編：「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」（平成 4 年改訂）
- 3)田中万也、坂口綾、岩谷北斗、高橋嘉夫：福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムの環境中での移行挙動とミクロスケールでの不均質性，放射化学，**27**，12-19（2013）
- 4)河原輝彦：森林生態系における炭素の循環－リターフォール量とその分解速度を中心として－，林試研報 *Bull.For.&For.Prod.Res.Inst.*，**334**，21-52（1985）

技 術 報 告

青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 －中間報告（上北地域及び下北地域）－

五十嵐飛鳥 工藤達晃 工藤 翔 赤石 新
松山 大 鈴木将文 佐々木 守 木村秀樹

1. はじめに

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

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

本県では、平成25年度から3か年にわたり、モニタリング対象地域を含む青森県全域において空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定し、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握することとした。本報は、中間報告として平成27年度に上北地域及び下北地域において実施した調査結果を中心にとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 調査地点及びルートを選定

平成27年度は表1のとおり上北地域及び下北地域の14市町村を対象として、各市町村からそれぞれ1地点を選定して定点測定を行うとともに、主要道路における走行測定を行った。

(1) 定点測定地点

NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定、可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定及び土壌中放射性物質濃度の測定地点（定点測定地点）については、原則として各市町村の人口密集地から選定し、以下の点に留意した。測定地点の位置は図1のとおりである。

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

表 1 調査地域及び対象市町村

地域区分	対 象 市 町 村
上北地域	十和田市、三沢市、野辺地町、七戸町、六戸町、横浜町、東北町、六ヶ所村、おいらせ町
下北地域	むつ市、大間町、東通村、風間浦村、佐井村

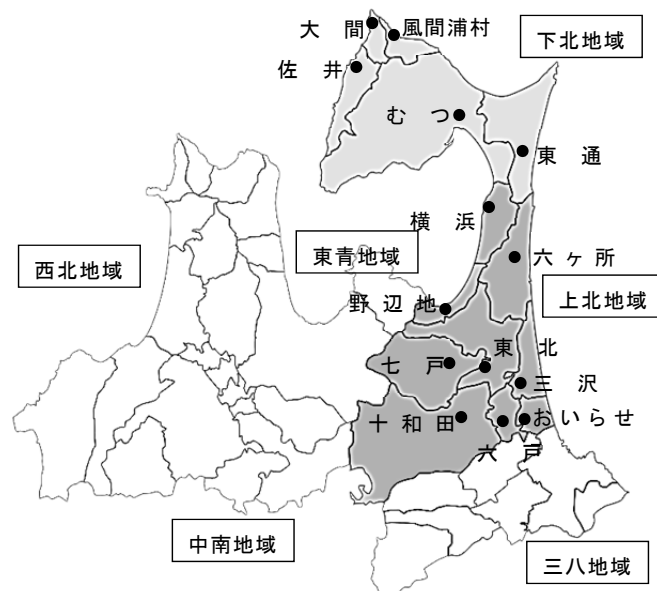


図 1 定点測定地点

(2) 走行測定ルート

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

- ・ 国道を中心に選定。なお、バイパスがある場合は旧道を選定。
- ・ 高規格幹線道路、地域高規格道路を除外。
- ・ 原子力施設周辺の環境放射線モニタリングで実施している走行測定ルートを除外。

青森県全域における走行測定ルートの概要を図 2 に示す。このうち、平成 27 年度の走行測定ルートは黄色のルートのとおりである。

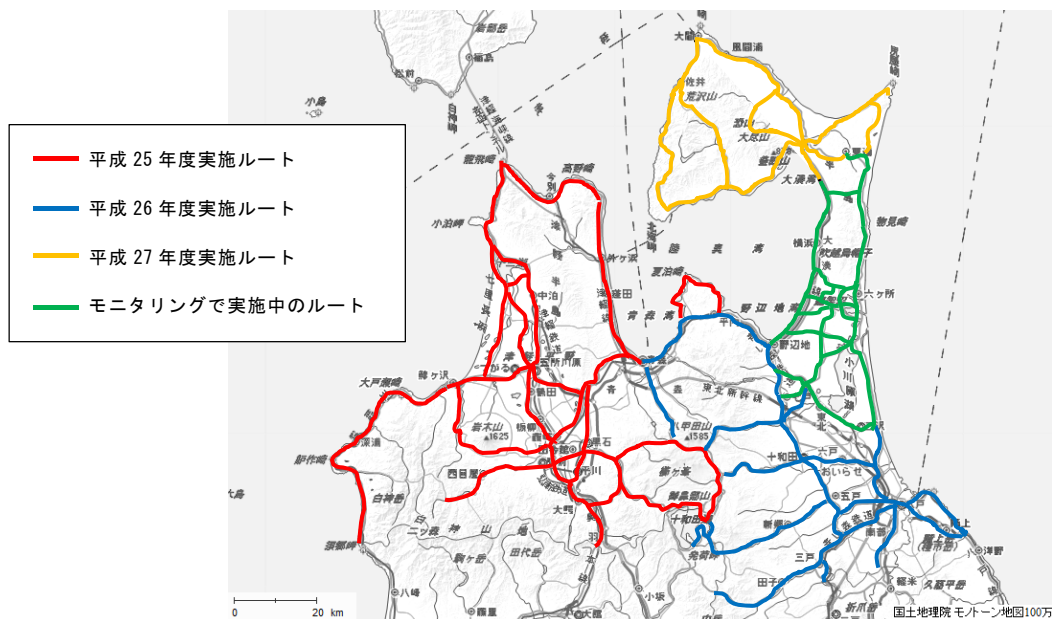


図2 青森県全域における走行サーベイルート

2.2 調査内容

(1) NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定

空間放射線量率の水準を把握するため、エネルギー補償型 NaI(Tl) シンチレーションサーベイメータ（日立アロカメディカル㈱製 TCS-171B）（以下「サーベイメータ」という。）により、地上高 1 m における空間放射線量率（空気吸収線量率（nGy/h）、以下同じ。）を 30 秒間隔で 5 回測定し平均した。

(2) 可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定

人工放射性核種の地表への沈着量と空間 γ 線の構成成分を把握するため、可搬型ゲルマニウム（Ge）半導体検出器（キャンベラジャパン㈱製 Falcon5000）により、空間 γ 線スペクトルを地上高 1 m で 60 分測定した。測定は(1)と同地点で実施した。測定結果は、文部科学省の放射能測定法シリーズ¹⁾に則り、Beck らが開発した HASL の解析法により以下に示す仮定の下で解析した。

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

(3) 土壌中放射性物質濃度の測定

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

ア 土壌中濃度

ステンレス製土壌採取器（10 cm φ×5 cm）により、1 地点あたり 5 ポイント採取し、混合した。採取した土壌は 105 °C で乾燥後に Ge 半導体検出器（キャンベラジャパン(株)製 GC4020 及び SEIKO EG&G(株)製 GMX25）により γ 線放出核種測定（測定時間 80,000 秒）を行うとともに、放射化学分析（Sr-90、Pu）を実施した。試料採取は(1)と同地点で実施した。

イ 深度分布

スクレーパープレート（(株)塚原製作所製 150×300 mm）を用い、地表から土壌を層別（0-0.5、0.5-1.0、1.0-1.5、1.5-2.0、2.0-3.0、3.0-4.0、4.0-5.0、5.0-7.0、7.0-10.0 cm）に採取した。採取した土壌は 105 °C で乾燥後に Ge 半導体検出器（キャンベラジャパン(株)製 GC4020 及び SEIKO EG&G(株)製 GMX25）により γ 線放出核種測定（測定時間 80,000 秒）を行った。試料採取地点として上北地域からは十和田市を、下北地域からはむつ市を選定し、それぞれ(1)と同地点で実施した。

(4) サーベイカーによる走行測定

主要道路周辺における空間放射線量率の水準を把握するため、サーベイカーによる走行測定を行った。速度は 60 km/h 以下で、片側 2 車線以上の道路の場合は、周辺の地面からの放射線をできる限り測定できるよう左端の車線を走行した。測定は、車両の屋根に設置されているエネルギー補償型 2" φ×2" NaI(Tl) シンチレーション検出器（G(E) 関数荷重演算方式、3MeV 以上カット、測定高さ 1.95 m、低線量率計）を用いて、スケーラ方式により行い、空間放射線量率（10 秒値）を概ね 500 m ごとに平均し、500 m 区間平均値を算出した。

(5) サーベイカーとサーベイメータの比較測定

サーベイカーによる走行測定の結果を汎用性のあるサーベイメータ測定値へ換算できるように、サーベイカーとサーベイメータによる定点測定を同じ場所で同時に実施した。測定方法は、サーベイメータについては、検出器を地上 1m に横向きに設置し、時定数（30 秒）の 5 倍の 150 秒後に 30 秒間隔で 5 回読み取り、その平均値を求めた。その後、同一の場所でサーベイカーによる測定を、サーベイメータの測定時間と合わせて 2 分半行った。

また、サーベイカーとサーベイメータの測定値の差の要因を把握するため、比較的線量の高い八戸地域（階上）において詳細な調査を実施した。

3. 結果と考察

(1) サーベイメータによる空間放射線量率の測定

サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果を表 2 に示す。測定値は 20～46 nGy/h であった。地域別に見ると、上北地域の平均が 25 nGy/h、下北地域の平均が 33 nGy/h であった。なお、今回使用したサーベイメータのデジタル表示の測定下限値は 10 nGy/h であったが、測定値は 5 回測定の平均であるため、1 nGy/h まで表示している。また、5 回測定の変動係数は 13 %程度であった。

表 2 サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果

地域	市町村	測定地点	測定年月日	空間放射線量率 (nGy/h)
上北	十和田市	西金崎公園	H27.10.19	26
	三沢市	三沢市中央公園	H27.11.12	24
	野辺地町	中道ふれあい公園	H27.11. 5	22
	七戸町	七戸中学校体育館隣接地	H27.10.19	26
	六戸町	旧柳町小学校	H27.11. 4	28
	横浜町	三保野公園	H27.11. 5	28
	東北町	東北町南総合運動公園	H27.10.19	20
	六ヶ所村	村立第一中学校	H27.11. 5	24
	おいらせ町	いちょう公園	H27.11. 4	30
平均±標準偏差				25±3.0
下北	むつ市	旭町児童公園	H27.11. 2	30
	大間町	大間小学校	H27.10.28	28
	東通村	旧小田野沢小学校	H27.11.12	28
	風間浦村	蛇浦小学校	H27.10.29	46
	佐井村	ぼぼらす（児童交流センター）	H27.10.28	34
平均±標準偏差				33±6.8

(2) 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定

可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果を表 3 に示す。

天然放射性核種について、空間放射線量率に対する各系列の寄与率は全地点の平均でウラン系列が 22 %、トリウム系列が 39 %、K-40 が 36 %であった。地域別に見ると、上北地域の平均でウラン系列が 22 %、トリウム系列が 38 %、K-40 が 37 %、下北地域の平均でウラン系列が 23 %、トリウム系列が 39 %、K-40 が 35 %であった。

人工放射性核種について、Cs-134 はいずれの地点でも検出限界以下であった。Cs-137 は 14 地点中 10 地点で検出され、測定値は 0.078～0.28 kBq/m²であった。

可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率とサーベイメータによる空間放射線量率を比較したところ、図 3 に示すとおり正の相関が認められた。可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率に比してサーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあるが、これはサーベイメータによる測定値には宇宙線の寄与及び自己照射の影響があるためと考えられる。長岡ら²⁾によると、それぞれの寄与は 5 nGy/h 及び 1 nGy/h 程度であり、今回の測定結果から見積もられる値はそれよりやや大きくなっており、平成 25 年度及び 26 年度の調査結果と同じ傾向であった。

表 3 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果

地域	市町村	測定 年月日	天候	空間放射線量率への寄与(%)			空間放射 線量率 (nGy/h)	¹³⁴ Cs (kBq/m ²)	¹³⁷ Cs (kBq/m ²)
				U 系列	Th 系列	⁴⁰ K			
上北	十和田市	H27.10.19	晴	21	34	42	16	ND(0.12)	0.24
	三沢市	H27.11.12	晴	22	38	35	12	ND(0.11)	0.24
	野辺地町	H27.11. 5	晴	27	34	37	14	ND(0.12)	ND(0.12)
	七戸町	H27.10.19	晴	20	35	40	12	ND(0.10)	0.21
	六戸町	H27.11. 4	晴	22	34	41	14	ND(0.12)	0.26
	横浜町	H27.11. 5	晴	18	45	34	13	ND(0.11)	0.13
	東北町	H27.10.19	晴	19	35	42	9	ND(0.10)	0.098
	六ヶ所村	H27.11. 5	晴	23	42	31	14	ND(0.12)	0.19
	おいらせ町	H27.11. 4	晴	21	48	29	18	ND(0.13)	0.078
平均±標準偏差				22±2.3	38±5.1	37±4.6	13±2.4		
下北	むつ市	H27.11. 2	曇	24	38	35	16	ND(0.12)	0.14
	大間町	H27.10.28	晴	24	42	32	18	ND(0.13)	ND(0.090)
	東通村	H27.11.12	曇	20	41	35	22	ND(0.14)	0.28
	風間浦村	H27.10.29	曇	23	48	27	39	ND(0.18)	ND(0.090)
	佐井村	H27.10.28	晴	25	28	45	22	ND(0.14)	ND(0.15)
平均±標準偏差				23±1.7	39±6.4	35±5.8	23±8.3		

・ ND : 検出限界以下。() 内は検出限界値。

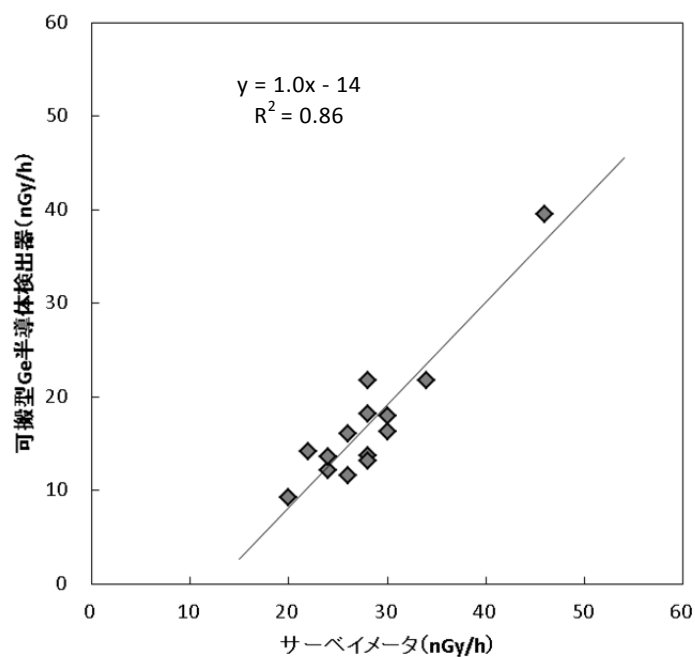


図 3 サーベイメータと可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率の関係

(3) 土壌中放射性物質濃度の測定

ア 土壌中濃度

Ge 半導体検出器による Cs-134 及び Cs-137 の測定結果を表 4 に示す。Cs-134 は七戸町及び東北町の 2 地点で検出され、測定値はそれぞれ 0.78 及び 0.51 Bq/kg 乾であった。その他 12 地点では検出限界以下であった。また、Cs-137 は 13 地点で検出され、測定値は 1.2～4.7 Bq/kg 乾であった。七戸町及び東北町で測定された Cs-134 は、東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故の影響と考えられる。当該事故の影響について、Cs-134 及び Cs-137 の物理的半減期による減衰を考慮すると、試料採取日における Cs-134 濃度から当該事故に起因する Cs-137 濃度を推定することができる。七戸町及び東北町で測定された Cs-134 濃度から算出した Cs-137 の事故寄与分は、それぞれ 3.3 及び 2.1 Bq/kg 乾であり、ほとんどが当該事故寄与分と考えられた。

イ 深度分布

地表から層別に採取した土壌について、Ge 半導体検出器による Cs-134 及び Cs-137 測定結果を表 5 に、Cs-137 の深度分布を図 4 に示す。十和田市、むつ市どちらも Cs-134 は表層（0～0.5 cm）のみで検出され、Cs-137 は全層で検出された。

Cs-137 は深い層まで検出されていることから、過去の大気圏内核実験に起因するものが大部分と考えられるが、表層で Cs-134 が検出されていることから、東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故に起因するものも含まれていると考えられる。

今回、in-situ 測定結果の計算では、測定された Cs-137 が過去の大気圏内核実験に起因するものと仮定して緩衝深度 β を 4.85 g/cm^2 としたが、深度分布調査の結果から実際の β を求めたところ、十和田市は 17 g/cm^2 、むつ市は 15 g/cm^2 で仮定より大きい値であった。図 4 を見ると、Cs-137 濃度は、十和田市では表層 1.0 cm まで、むつ市では表層 0.5 cm までの値が高く、それより下層では低くほぼ横ばいとなっていたため、通常の指数関数フィッティングによる算出法では正確な β を求めることが難しいと推測された。

両地点の表層（0～0.5 cm）における Cs-137 測定値から、Cs-134 測定値をもとに算出した試料採取時点における事故寄与分を差し引いたところ、十和田市及びむつ市でそれぞれ 2.9 及び 0.74 Bq/kg 乾となり、下層の土壌中濃度とほぼ同程度の値となった。このことから、両地点とも過去の大気圏内核実験に起因する Cs-137 を含む土壌が客土されるなど、人為的な攪拌があった後に、当該事故によって表層に新たに Cs-137 が沈着したものと考えられる。

また、Cs-137 沈着量について、今年度実施した 14 地点の土壌中濃度測定と in-situ 測定による測定結果を比較したのが図 5 である。地点によって in-situ 測定結果が高めに計算されており、相関も認められなかった。

この深度分布調査結果と沈着量の比較結果から、実際の β は地点によって異なり、一律に適用することは難しいと考えられる。

表 4 土 壌 中（深度 0～5 cm）の Cs-134 及び Cs-137 測定結果

地域	市町村	採取年月日	¹³⁴ Cs		¹³⁷ Cs	
			濃度(Bq/kg 乾)	沈着量(kBq/m ²)	濃度(Bq/kg 乾)	沈着量(kBq/m ²)
上北	十和田市	H27.10.19	ND(0.46)	ND(0.021)	4.7	0.21
	三沢市	H27.11.12	ND(0.48)	ND(0.024)	1.5	0.073
	野辺地町	H27.11. 5	ND(0.46)	ND(0.029)	ND(0.4)	ND(0.025)
	七戸町	H27.10.19	0.78	0.024	3.1	0.097
	六戸町	H27.11. 4	ND(0.54)	ND(0.020)	3.9	0.14
	横浜町	H27.11. 5	ND(0.53)	ND(0.018)	4.1	0.14
	東北町	H27.10.19	0.51	0.020	1.4	0.058
	六ヶ所村	H27.11. 5	ND(0.45)	ND(0.025)	1.8	0.098
	おいらせ町	H27.11. 4	ND(0.63)	ND(0.021)	2.6	0.085
下北	むつ市	H27.11. 2	ND(0.45)	ND(0.024)	2.5	0.14
	大間町	H27.10.28	ND(0.47)	ND(0.027)	1.2	0.070
	東通村	H27.11.12	ND(0.71)	ND(0.040)	1.6	0.089
	風間浦村	H27.10.29	ND(0.68)	ND(0.030)	1.9	0.083
	佐井村	H27.10.28	ND(0.49)	ND(0.028)	1.5	0.087

- ・測定値は試料採取日に補正した値。
- ・沈着量は土壌採取面積を用いて単位面積当たりに換算した値。
- ・ND：検出限界以下。（ ）内は検出限界値。

表 5 層別採取土壌中の Cs-134 及び Cs-137 測定結果

深度(cm)	十和田市		むつ市	
	¹³⁴ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	¹³⁷ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	¹³⁴ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	¹³⁷ Cs 濃度 (Bq/kg 乾)
0-0.5	0.58	5.3	1.4	6.9
0.5-1.0	ND(0.53)	5.1	ND(0.52)	1.8
1.0-1.5	ND(0.48)	3.9	ND(0.54)	1.2
1.5-2.0	ND(0.50)	3.4	ND(0.54)	1.4
2.0-3.0	ND(0.52)	3.5	ND(0.58)	0.89
3.0-4.0	ND(0.53)	3.4	ND(0.71)	1.4
4.0-5.0	ND(0.59)	2.2	ND(0.52)	1.0
5.0-7.0	ND(0.46)	2.5	ND(0.57)	1.2
7.0-10.0	ND(0.54)	3.6	ND(0.63)	1.6

- ・測定値は試料採取日に補正した値。
- ・ND：検出限界以下。（ ）内は検出限界値。

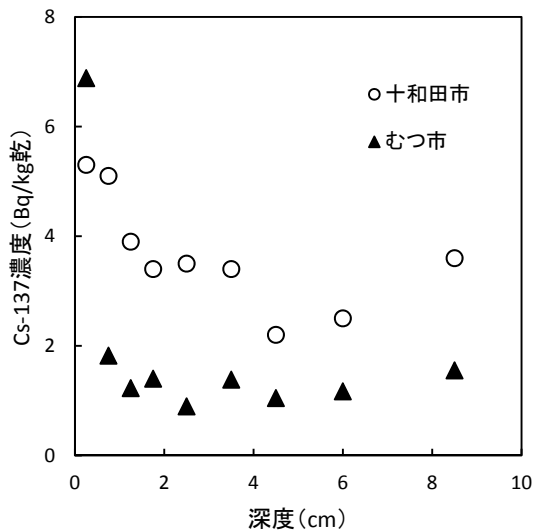


図4 土壌中 Cs-137 の深度分布状況

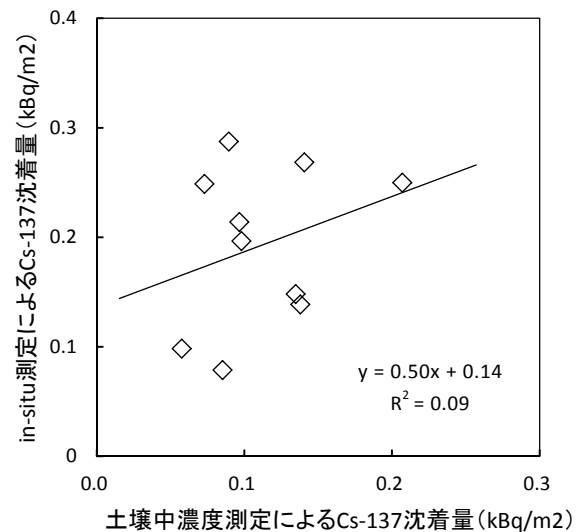


図5 土壌中濃度測定と in-situ 測定による Cs-137 沈着量の関係 (ND のデータは除外)

(4) サーベイカーによる走行測定

サーベイカーによる下北地域の走行測定の結果（500 m 区間平均値）を表 6 に示す。空間放射線量率の測定結果は 10～34 nGy/h の範囲であった。今回の走行測定結果全体を地図上にプロットしたものを図 6 に示す。この図では、表示密度に合わせて 10 秒値を自動的に平均して示している。以下に測定結果の概況を示す。

- ・むつ市街（田名部付近）や大湊湾の海岸付近で測定値が低い傾向を示した。周辺の表層地質³⁾は「泥・砂・れき」であった。
- ・恐山・燧岳付近で測定値が低い傾向を示した。表層地質は、恐山・燧岳火山起源の火山噴出物（火山砕屑物、安山岩熔岩及び同質集塊岩）であった。
- ・下北半島西部海岸付近は測定値が高い傾向を示した。中でも長後付近は特に高い値を示した。表層地質は花崗岩・花崗閃緑岩、粘板岩・ホルンフェルス珪岩であった。また、仏ヶ浦も高い値を示した。表層地質は緑色凝灰岩であった。
- ・川内から佐井に北上する主要地方道 46 号は、湯野川を境に測定値が徐々に上昇した。川内から湯野川までの表層地質は「泥・砂・れき」であり、その東側には恐山火山起源の火山噴出物（火山砕屑物）があった。湯野川から北側は、表層地質が流紋岩、凝灰岩であった。
- ・下北半島北東部山地帯（尻屋、尻労付近）で高い傾向を示し、中でも岩屋、尻屋、大沼付近で高い値を示した。表層地質は粘板岩・ホルンフェルス珪岩であった。

表 6 サーベイカーによる走行測定結果

道路	区 間	測定年月日	天候	空間放射線量率 (nGy/h)
国道 279 号	中野沢～田名部～大間	H27.10.7	晴	11 ～ 18
国道 338 号	砂子又～田名部～川内～	H27.10.7/8	晴/曇	10 ～ 34
	脇野沢～佐井～大間			
主要地方道 4 号	田名部～恐山～大畑	H27.10.8	曇	11 ～ 22
主要地方道 6 号	田名部～岩屋～尻屋	H27.10.14	晴	11 ～ 25
主要地方道 46 号	川内～佐井	H27.10.7	晴	12 ～ 30
県道 172 号	岩屋～尻労	H27.10.14	晴	13 ～ 19
県道 248 号	尻労～小田野沢	H27.10.14	晴	15 ～ 25
ふれあい道路	砂子又～田名部	H27.10.8	曇	11 ～ 18

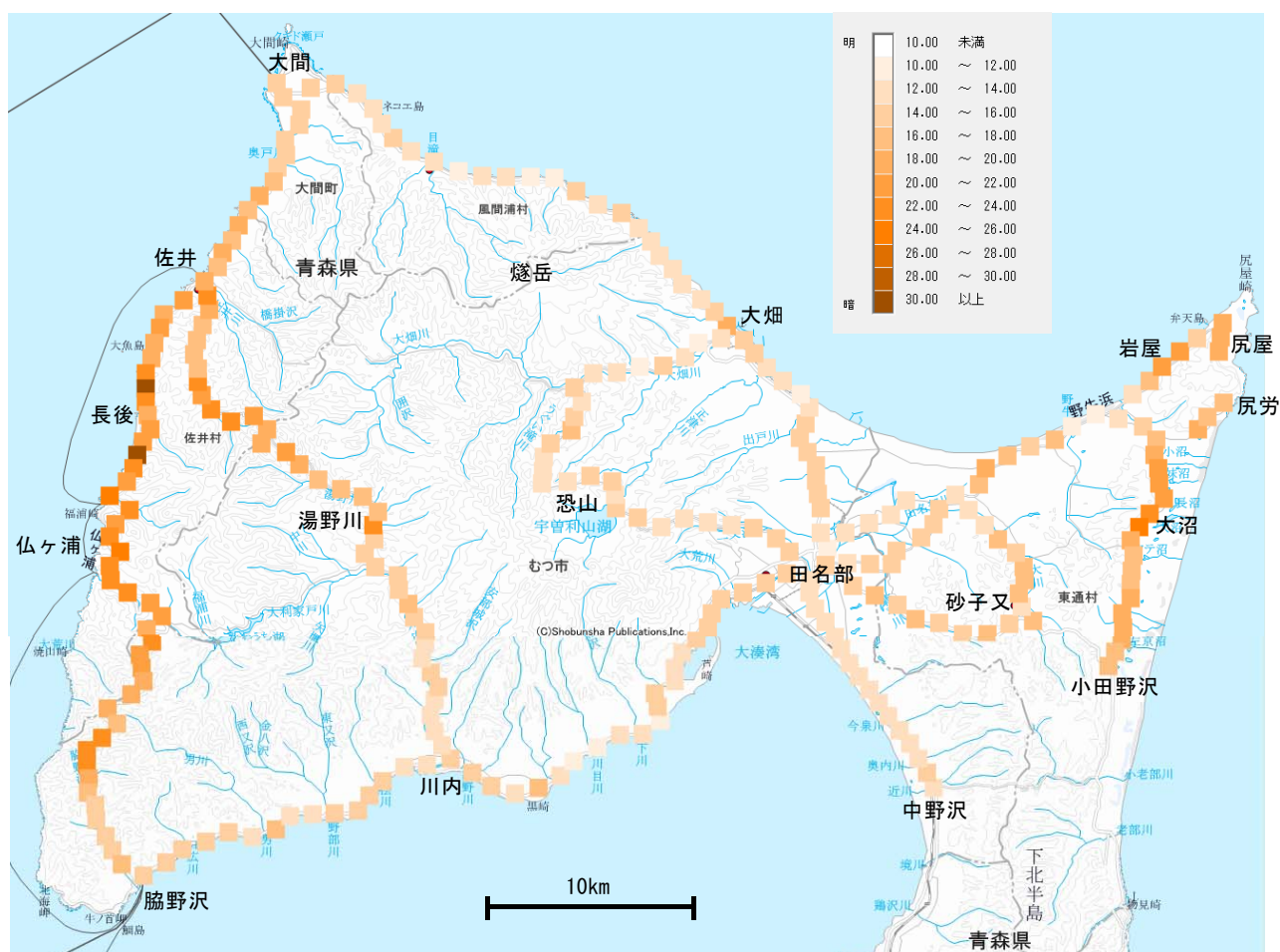


図 6 サーベイカーによる走行測定結果

(5) サーベーカーとサーベイメータによる比較測定

ア 定点測定

本調査で実施しているサーベーカーとサーベイメータの測定値の違いを把握するため、付近に建物等のない平地で空間放射線量率の高い地点と低い地点を含む計 18 地点で定点測定を行った。その結果を図 7 に示す。両者には正の相関が認められ、サーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあった。また、空間放射線量率の高い切り通しの場所において 4 地点測定を行い、その測定結果を図 7 に併せて示す。切り通しにおいては、上記相関に比べてサーベーカーの測定値が高い方に外れたものが見られた。これは、サーベーカーの測定が、下面からの放射線を遮へいしており、相対的に側面からの影響を受けやすいことによるものと考えられる。

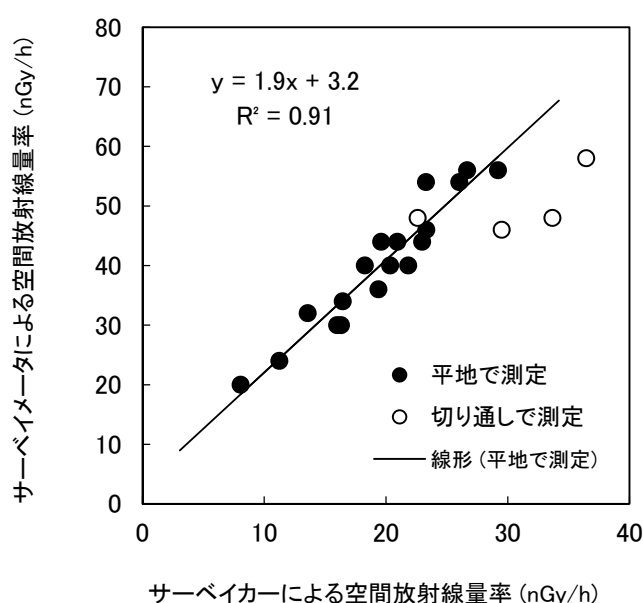


図 7 サーベーカーとサーベイメータによる定点測定比較結果

イ. 詳細調査

サーベーカーとサーベイメータの測定結果の相関関係を検討するにあたり、両者の測定の違いに、①検出器の違い、②サーベイメータの温度特性、③車体による遮へい、④検出器の向き、⑤検出器の高さが考えられることから、それぞれの違いについて調査した。測定場所は、空間放射線量率が比較的高く、周囲に建物等のない場所（階上岳登山口駐車場の約 30 m × 約 30 m）で行った。

① 検出器の違いに関する調査

サーベーカーとサーベイメータでは、どちらも NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用しているが、検出器自身の違いによる測定値の差を把握するため、サーベーカーで 30 秒値を 30 回測定後（測定時間 15 分）、サーベーカー屋根上の検出器を取り外し、サーベイメータを同じ位置で同じ縦向きに固定して、測定開始 150 秒後から 90 秒毎にレートメー

タで 1 nGy/h の桁まで 10 回読み取った（時定数 30 秒、測定時間 15 分）。

サーベイカーの測定値が 23.7 ± 0.99 nGy/h、サーベイメータの測定値が 32 ± 2.5 nGy/h であり、その差は、 7.8 ± 2.7 nGy/h であった。

検出器の違いには、宇宙線の寄与および自己照射の違いが考えられる。宇宙線の寄与は、サーベイカーの検出器が 3MeV 以上をカットしているため長岡ら⁴⁾によると約 2 nGy/h となり、サーベイメータが 3MeV 以上を 3MeV としてエネルギー補償しているため長岡ら²⁾によると約 5 nGy/h となることから、サーベイメータの方が約 3 nGy/h 高い。自己照射は、サーベイカーの検出器がメーカーによると約 1.7~2 nGy/h であり、サーベイメータが長岡ら²⁾によると約 1 nGy/h となることから、サーベイカーの方が約 0.7~1 nGy/h 高い。これらを統合すると、文献値等から考えられる検出器の違いは、サーベイメータの方が約 2~2.3 nGy/h 高く、定点測定結果で得られた回帰式の y 切片の値 3.2 nGy/h と同程度であった。一方、詳細調査で得られた値 7.8 nGy/h はこの範囲よりも大きな値になった。

② サーベイメータの温度特性に関する調査

（公財）日本分析センター⁵⁾によると、サーベイメータの温度特性は 17℃ に対する 5℃ での相対感度が 0.94 ± 0.01 となる事例があることから、①の調査終了後、サーベイカーの窓を開放して約 1 時間放置し、サーベイメータを外気温と同じ 2.7℃ とした上で、①と同様の調査を行った。

車内温度 25℃ でのサーベイメータの測定値は 32 ± 2.5 nGy/h、外気温と同じ 2.7℃ での測定値は 32 ± 1.4 nGy/h であった。両者の比は 1.00 ± 0.09 となり、温度の影響は見られなかった。

③ 車体による遮へいに関する調査

②の調査終了後、サーベイカーを移動させ、サーベイカーの検出器と同じ場所、同じ縦向き、同じ高さ 1.95 m にサーベイメータを固定して測定を行った。測定値は 48 ± 2.9 nGy/h であり、①におけるサーベイメータの測定値 (32 ± 2.5 nGy/h) に対する比は 1.51 ± 0.11 であった。

④ サーベイメータの検出器の向きに関する調査

サーベイカーとサーベイメータの検出器の向きが異なるため、③の調査終了後、サーベイメータの検出器の向きを横向きに変えて測定を行った。測定値は 51 ± 2.8 nGy/h であり、縦向きの際の測定値 (48 ± 2.9 nGy/h) に対する比は 1.06 ± 0.09 であった。長岡⁴⁾によると、円筒形 NaI(Tl) 検出器の場合、軸方向を 0° とすると 120° 程度までは軸方向よりも感度がよく、今回の結果も、この効果により横向きの方が高くなっているものと考えられる。

⑤ サーベイメータの検出器の高さに関する調査

サーベイメータとサーベイカーの検出器の高さが異なるため、④の調査終了後、サー

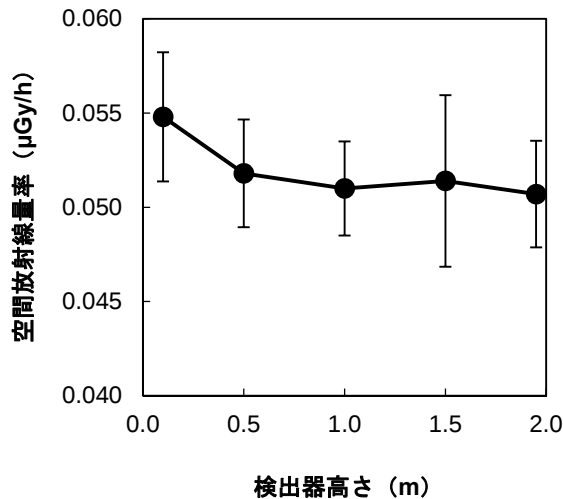


図8 NaI(Tl)サーベイメータの測定高さ毎の空間放射線量率の分布

※エラーバーは10回の測定の標準偏差

バイメータの定点測定と同じ1 m 高さのほか、1.5 m、0.5 m、0.1 m の高さでも測定を行った。検出器の向きは、サーベイメータの測定と同じ横向きとした。

サーベイメータの検出器の高さ毎の空間放射線量率測定結果を図8に示す。1.5 m 高さのときには小雪が降ったため、測定値及び変動が若干大きくなっているが、分布全体をみると、0.1 m 以外の測定値に明確な違いは見られなかった。検出器高さ 1.95 m と 1.0 m との測定値の比は 1.01 ± 0.07 であった。

⑥ 要因分析

サーベイカーとサーベイメータの要因別調査結果を用いて、サーベイカーからサーベイメータへの換算式を次のとおり検討した。

サーベイカーの測定値を説明変数 x 、サーベイメータの測定値を目的変数 y とし、検出器による違いは固有のものであるため定数とし、検出器の温度特性、車体による遮へい、検出器の向き、検出器の高さの比を説明変数の乗数とすると、換算式は以下のとおりとなる。

$$\begin{aligned}
 \text{サーベイメータ測定値 } y &= (\text{温度特性の影響}) \times (\text{遮へいの影響}) \times (\text{向きの影響}) \\
 &\quad \times (\text{高さの影響}) \times \text{サーベイカー測定値 } x \\
 &\quad + (\text{検出器の違い}) \\
 &= (1.00 \pm 0.09) \times (1.51 \pm 0.11) \times (1.06 \pm 0.09) \\
 &\quad \times (1.01 \pm 0.07) x + (7.8 \pm 2.7) \\
 &= (1.6 \pm 0.3) x + (7.8 \pm 2.7)
 \end{aligned}$$

得られた換算式は、誤差を考慮すると図7の定点測定結果で得られた回帰式 $y = 1.9x + 3.2$ と矛盾はなかった。

また、換算式の傾きが 1 より大きくなる要因のうち、車体による遮へいの影響が最も大きいことがわかった。一方、他の要因であるサーベイメータの温度特性、向き、高さの影響については、誤差等が比較的大きく明確には確認できなかった。

4. 平成 26 年度放射化学分析結果

平成 26 年度の土壤中放射性物質濃度の測定のうち、放射化学分析結果を表 7 に示す。Sr-90 濃度は ND～1.0 Bq/kg 乾、Pu-238 濃度はすべて ND、Pu-239+240 濃度は 0.017～0.22 Bq/kg 乾であり、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング結果（Sr-90 : < 0.4 ～9.1 Bq/kg 乾、Pu-239+240 : < 0.04～0.79 Bq/kg 乾）と同程度の値であった。

Sr-90 濃度及び Pu-239+240 濃度について、各地点における Cs-137 濃度との関係を確認したところ、図 9 及び図 10 のとおりであり、いずれも正の相関が認められ、Sr-90 濃度と Pu-239+240 濃度の間には図 11 のとおり弱い正の相関が認められた。なお、階上町の Cs-137 濃度は Cs-134 濃度から推測してほとんどが東京電力㈱福島第一原子力発電所の事故影響によるものであり、相関図から大きく外れたデータとなったため、今回は除外してある。

表 7 放射化学分析結果 [平成 26 年度]

地域	市町村	調査地点	採取年月日	⁹⁰ Sr (Bq/kg 乾)	²³⁸ Pu (Bq/kg 乾)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (Bq/kg 乾)	¹³⁷ Cs (Bq/kg 乾)
東青	青森市	大野小学校	H26.10.30	ND(0.17)	ND(0.0084)	0.019	1.7
	平内町	小湊川ひだまり公園	H26.10. 9	0.86	ND(0.0099)	0.22	7.2
	蓬田村	蓬田小学校	H26.10. 9	0.53	ND(0.0084)	0.073	3.0
	外ヶ浜町	外ヶ浜町中央公民館	H26.10.20	0.52	ND(0.0088)	0.063	4.7
	今別町	今別小学校	H26.10.20	0.84	ND(0.0093)	0.077	5.6
三八	八戸市	番屋平公園	H26.10.24	ND(0.19)	ND(0.0090)	0.027	1.4
	階上町	階上町役場	H26.10.24	ND(0.19)	ND(0.0091)	0.017	20
	田子町	中央コミュニティー広場	H26.10.23	1.0	ND(0.0078)	0.17	7.6
	三戸町	関根ふれあい公園	H26.10.23	0.56	ND(0.0085)	0.18	4.9
	五戸町	五戸町図書館	H26.10.28	ND(0.22)	ND(0.0093)	0.047	1.7
	南部町	ふれあい公園	H26.10.23	0.36	ND(0.0087)	0.041	1.9
	新郷村	金ヶ沢農村公園	H26.10.28	ND(0.17)	ND(0.0089)	0.023	2.3

- ・測定値は試料採取日に補正した値。
- ・ND：検出限界以下。（ ）内は検出限界値。

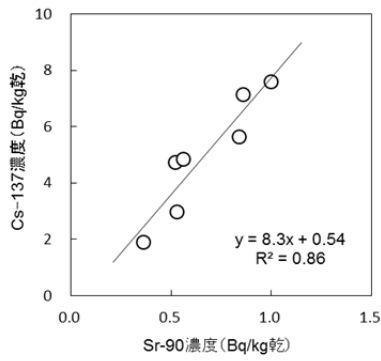


図 9 Sr-90 濃度と Cs-137 濃度の関係 (平成 26 年度分析結果)

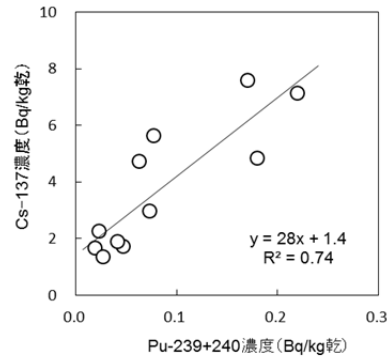


図 10 Pu-239+240 濃度と Cs-137 濃度の関係 (平成 26 年度分析結果※)
※階上町のデータを除く

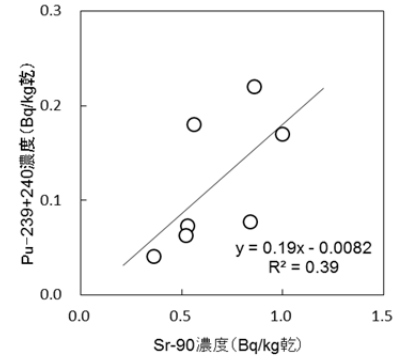


図 11 Sr-90 濃度と Pu-239+240 濃度の関係 (平成 26 年度分析結果)

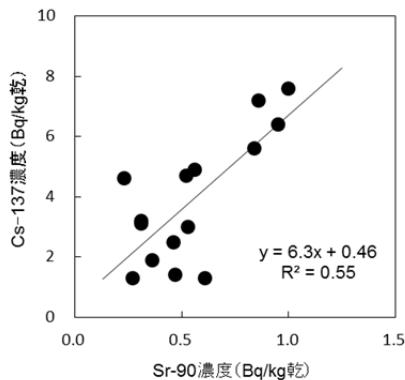


図 12 Sr-90 濃度と Cs-137 濃度の関係
(平成 25・26 年度分析結果※)
※板柳町のデータを除く

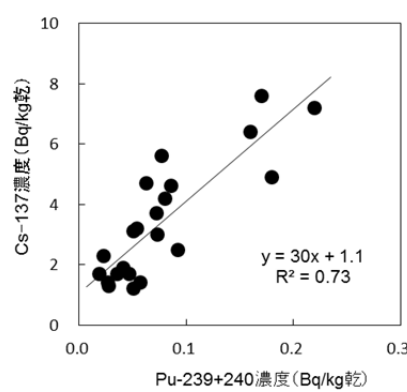


図 13 Pu-239+240 濃度と Cs-137 濃度の関係
(平成 25・26 年度分析結果※)
※階上町のデータを除く

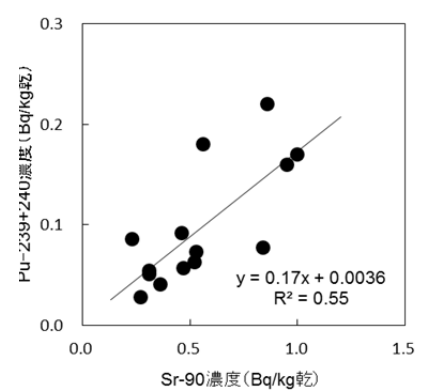


図 14 Sr-90 濃度と Pu-239+240 濃度の関係
(平成 25・26 年度分析結果※)
※板柳町のデータを除く

また、図 9～11 に平成 25 年度の実施結果を併せてプロットしたものが図 12～14 であり、平成 26 年度と同様にいずれも正の相関が認められた。なお、平成 25 年度実施分の板柳町の Sr-90 濃度については相関図から大きく外れたデータとなったため、今回は除外してある。

5. まとめ

平成 27 年度に上北地域及び下北地域において実施した調査結果は以下のとおりであった。

- ・サーベイメータによる空間放射線量率は 20～46 nGy/h であり、地域別では上北地域の平均が 25 nGy/h、下北地域の平均が 33 nGy/h であった。
- ・可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定の結果は、Cs-134 はいずれの地点でも検出限界以下であり、Cs-137 は 14 地点中 10 地点で検出され、測定値は 0.078～0.28 kBq/m²であった。
- ・サーベイメータによる空間放射線量率と可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率は正の相関が認められた。また、サーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあった。

- ・ Ge 半導体検出器による土壌中（深度 0～5 cm）Cs-134 及び Cs-137 測定結果は、Cs-134 が七戸町及び東北町の 2 地点で検出され、その他の地点では検出されなかった。Cs-137 は野辺地町を除く 13 地点で検出された。七戸町及び東北町における Cs-137 については、Cs-134 濃度から推定したところ、ほとんどが東京電力㈱福島第一原子力発電所の事故に起因するものと考えられた。
- ・ 十和田市及びむつ市における深度分布の調査結果では、過去の核実験由来の Cs-137 が深さ 10 cm までほぼ均一に分布し、表層に事故由来の Cs-137 が沈着しているものと推定された。
- ・ サーベイカーによる下北地域の走行測定を行った結果、空間放射線量率は 10～34 nGy/h であった。
- ・ サーベイカーとサーベイメータによる定点測定の比較を行った結果、正の相関が認められ、サーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあった。その要因としては、車体による遮へいの影響が大きく、その他のサーベイメータの温度特性、向き、高さの影響は明確には確認できなかった。
- ・ 平成 26 年度の放射化学分析の結果、Sr-90 濃度及び Pu-239+240 濃度は、いずれも Cs-137 濃度と正の相関が認められた。また、Sr-90 濃度と Pu-239+240 濃度の間にも弱い正の相関が認められた。

なお、平成 28 年度に、平成 25 年度～平成 27 年度の調査結果をとりまとめる計画である。

文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」（平成 20 年 3 月）
- 2) 長岡和則、本田幸一郎、宮野敬治：環境 γ 線線量測定における宇宙線の寄与，*RADIOISOTOPES*, 45, 665-674 (1996)
- 3) 経済企画庁：土壌分類図（表層地質図—平面的分類図—）青森県（昭和 45 年 3 月）
- 4) 長岡鋭、森内茂：環境 γ 線線量率の高精度測定のためのデータ処理手順，保健物理，**29**, 315-320 (1994)
- 5) （公財）日本分析センター：平成 27 年度環境放射能分析研修資料「環境ガンマ線量率測定法（初級）」

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 —平成 26 年度調査結果—

神 俊雄 赤石 新 松山 大
幸 進^{*1} 岡 光昭^{*1} 岡村泰治^{*1}

1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、平常運転においても Kr-85、トリチウム(³H)、C-14 及び I-129 などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が放出される。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成 18 年 2 月 7 日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成 19 年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を開始した。平成 20 年度からは I-131 を追加し、平成 21 年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）を追加、平成 26 年度からは OBT をすべて非交換型 OBT として実施している。

本報告は平成 26 年度の調査結果についてとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

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

精米試料について、平成 25 年度は平沼地区において 2 試料（平沼①、平沼②）を採取していたが、精米（平沼①）の調査を終了した。このため、今年度の試料である精米（平沼）は、昨年度までの精米（平沼②）である。また、OBT について、これまで魚類を除き、交換型を含む全 OBT を調査対象としていたが、平成 26 年度からすべての試料について、非交換型 OBT を対象とした。その他については、平成 25 年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

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

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを組織自由水トリチウム（TFWT）濃度とした。乾燥物については、無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去後、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを非交換型有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）濃度とした。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBT のみ測定した。牛乳の採取地点においては、乳牛の飲料水についても調査を行った。試料は、減圧蒸留法により精製したのち、トリチウム濃度（Bq/L）を測定した。

^{*1}：日本原燃株式会社

(2) C-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」³⁾に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

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

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

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 26 年度）

試 料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			³ H		¹⁴ C	¹²⁹ I・ ¹³¹ I
			TFWT	非交換型 OBT		
牛乳 (原乳)	六 原 ^{※1}	4	○	○	○	—
	横浜町	4	○	○	○	—
	二 又	4	○	○	○	—
	豊 原	4	○	○	○	—
精 米	千 樽	1	—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	二又①		—	○	○	—
	二又②		—	○	○	—
	戸 鎖		—	○	○	—
	平 沼 ^{※2}		—	○	○	—
ハクサイ	出 戸	1	○	○	○	○
	千 樽		○	○	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	出 戸		○	○	○	—
バレイショ	尾 駁		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平 沼		○	○	○	—
魚 類 ^{※3}	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②	4				
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村前面海域①	2	—	—	—	○

※1 六原地区の牛乳（原乳）については、試料提供者が平成 26 年 10 月末で乳牛の飼育を中止したことから、第 4 四半期は同集落内の別の酪農家から提供を受けた。

※2 平成 25 年度調査における“平沼②”。

※3 魚類はヒラメ及びカレイ。

TFWT：組織自由水トリチウム

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



図 1 調査地点図

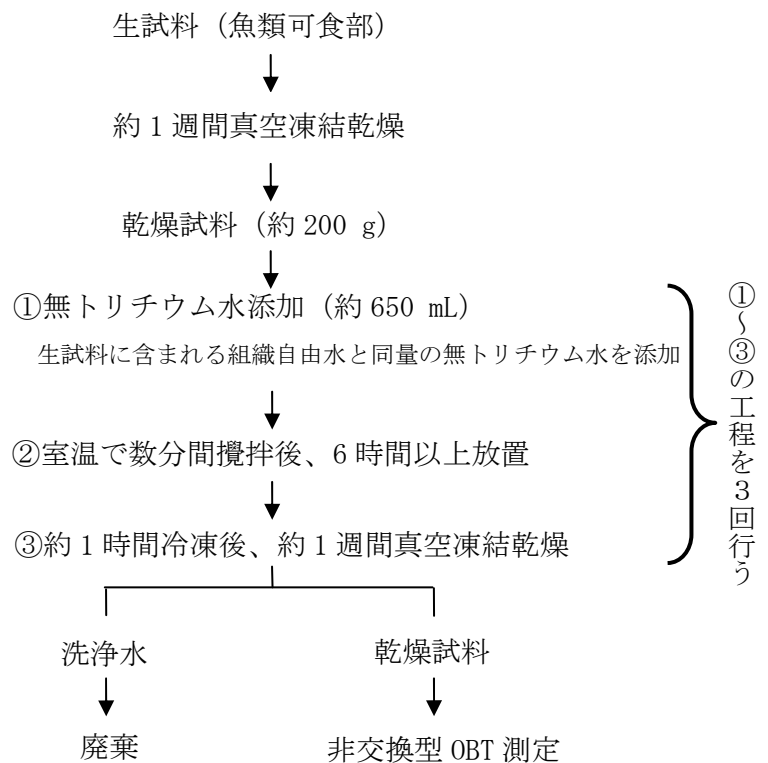


図 2 非交換型 OBT の分析工程

(3) I-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素から安定ヨウ素(I-127)測定用試料を分取した後、ヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置 (AMS) を用いて I-129 と I-127 の原子数比を測定した。また、ICP 質量分析法によって安定ヨウ素を定量した。これらによって求めた I-129/I-127 原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中の I-129 濃度を求めた⁴⁾。

(4) I-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁵⁾ に準拠し、生試料又は乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成 18 年 4 月から平成 27 年 3 月にかけて放出された放射性気体廃棄物（トリチウム、C-14 及び I-129・131）の月間放出量を図 3 に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図 4 に示す。平成 18 年から実施された使用済燃料を用いたアクティブ試験については、試験で予定されていた使用済燃料のせん断・溶解処理が平成 20 年 10 月で終了しているため、それ以降の放出量は大きく減少している。

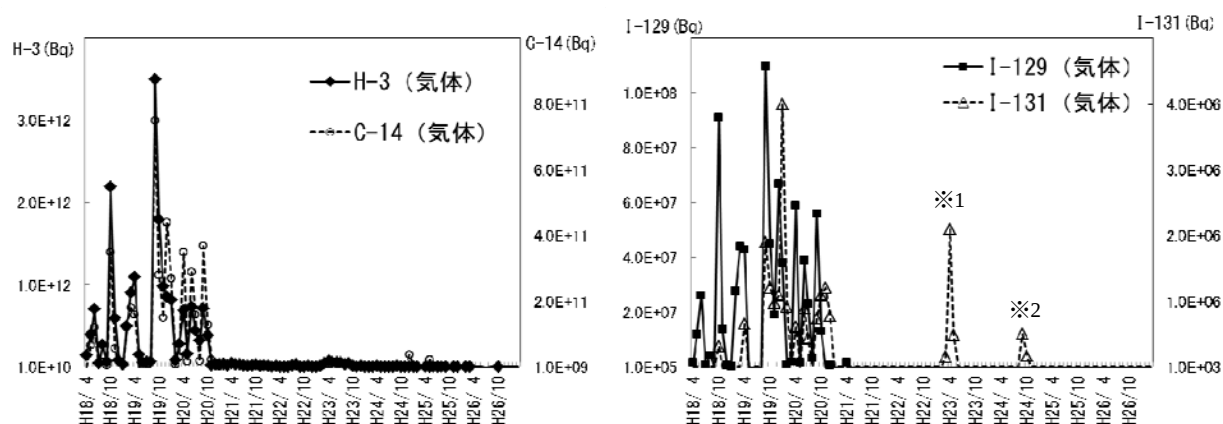


図 3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成 18 年 4 月～平成 27 年 3 月)

- ※1 東京電力(株)福島第一原子力発電所事故の影響と考えられる。詳細は青森県原子力センター所報第 7 号 (p25) に記載。
 ※2 ガラス固化試験等の影響。詳細は青森県原子力センター所報第 8 号 (p49) に記載。

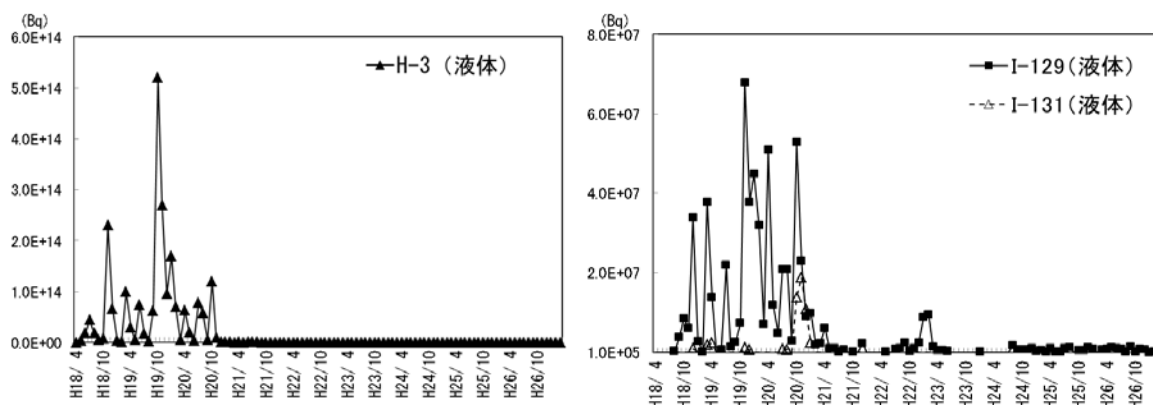


図 4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成 18 年 4 月～平成 27 年 3 月)

4. 調査結果

4.1 トリチウム

牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表2及び図5に示す。牛乳についてはTFWTで検出限界以下～0.47 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.62 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.59 Bq/Lであり、牛乳及び飲料水ともにこれまでの値と同程度であった。地点ごとでは、TFWTは六原及び豊原が他の地点に比べて比較的高めであり、非交換型OBTは六原が高めであった。2地点において、乳牛に与えている飲料水中のトリチウム濃度についても、検出される頻度が高く、飲料水中のトリチウム濃度が、牛乳中トリチウム濃度が高めである要因のひとつとして考えられる。

表2 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（平成26年度）

採取地 点	採取 月	平成26年度調査結果			(参考)		
					平成19～25年度調 査結果		平成22～25 年度 調査結果
		牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)	牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)
		TFWT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT※2 (Bq/L)	
六原※1	4月	0.41±0.09	0.62±0.11	0.46±0.06			
	7月	0.42±0.10	*	*	*～0.63	*～0.52	*～0.38
	10月	*	0.34±0.10	0.43±0.07			
	1月	*	0.40±0.10	0.21±0.06			
横浜町	4月	*	*	*			
	7月	0.37±0.11	*	*	*～0.51	*～0.70	*～0.48
	10月	*	*	*			
	1月	*	*	*			
二 又	4月	*	0.37±0.11	*			
	7月	*	*	*	*～0.42	*～0.63	*～0.25
	10月	*	*	*			
	1月	*	0.39±0.10	*			
豊 原	4月	0.40±0.09	*	0.33±0.06			
	7月	*	*	0.45±0.07	*～0.73	*～0.77	*～0.57
	10月	0.47±0.10	*	0.59±0.07			
	1月	*	0.35±0.10	0.45±0.06			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.26～0.33 Bq/L、非交換型OBTで0.30～0.49 Bq/L、飲料水で0.18～0.22 Bq/Lであった。

※1 平成25年度から調査開始

※2 平成19～25年度までの調査結果は交換型OBTを含む。

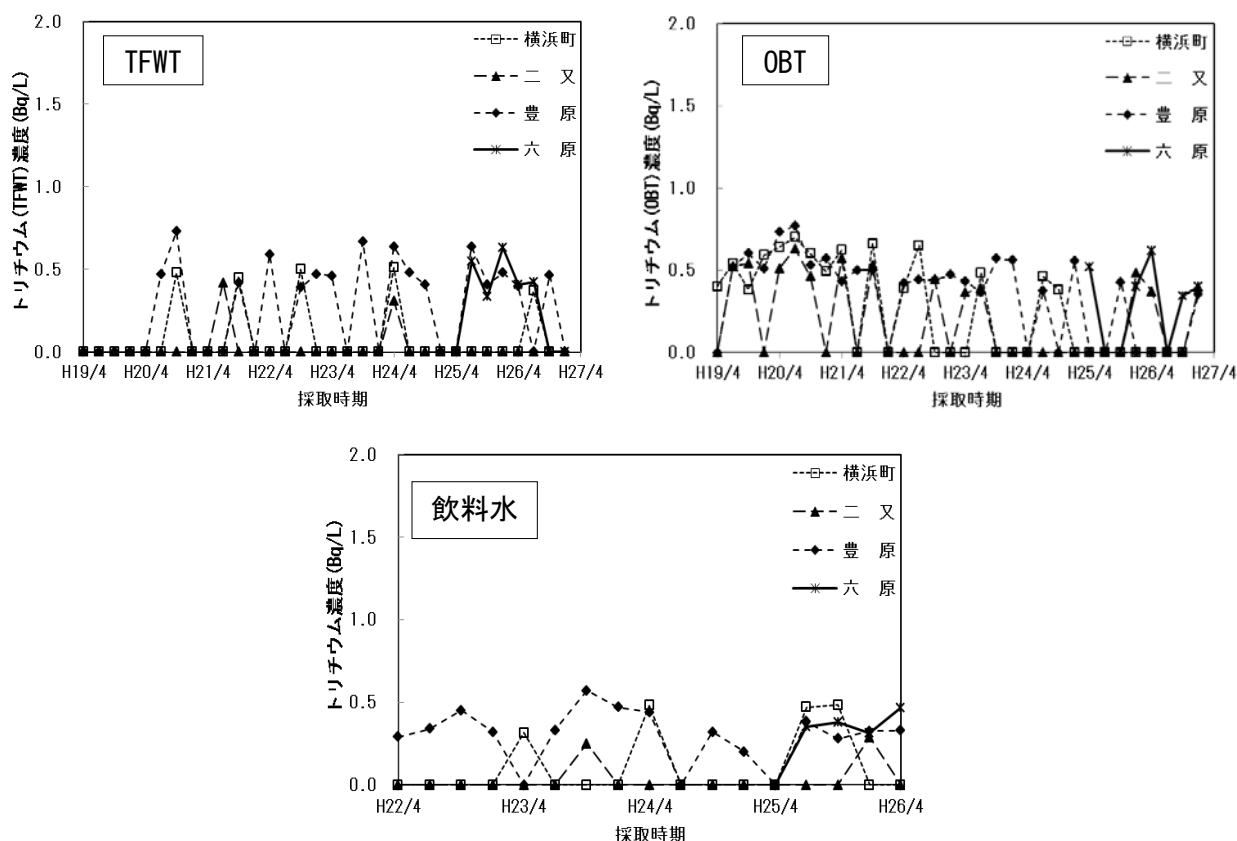


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

精米におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表3及び図6に示す。精米の非交換型OBTはすべて検出限界以下であった。

表3 精米のトリチウム（OBT）濃度（平成26年度）

試料名	採取地点	採取月	平成26年度調査結果	(参考) 平成19～25年度調査結果
			非交換型OBT (Bq/L)	OBT※1 (Bq/L)
精米	千樽	10月	*	*～0.89
	野辺地町	10月	*	*～0.59
	二又①※2	9月	*	*～0.57
	二又②	9月	*	*～1.0
	戸鎖	10月	*	*～0.66
	平沼※3	10月	*	*

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

※1 平成19～25年度までの調査結果は交換型OBTを含む。

※2 平成20年度から調査開始 ※3 平成25年度から調査開始

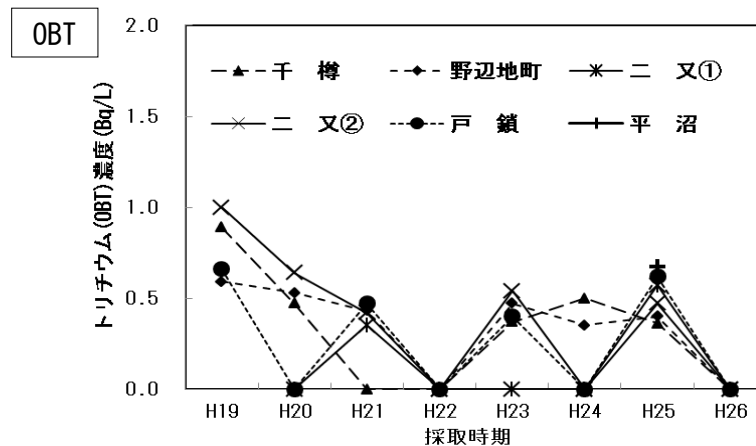


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化
※検出限界以下は0としてプロットした。

野菜におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表4及び図7に示す。野菜についてはTFWTで検出限界以下～0.81 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.56 Bq/Lであった。TFWTについては、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点もあるが、全体的な傾向としては明確でない。OBTについては、交換型OBTを含む平成25年度までの値と比較して、平成26年度は1試料を除くすべての試料で検出限界以下と、低めとなっている。

なお、陸上試料である牛乳(原乳)、精米及び野菜のトリチウム濃度は、近年の大气及び雨水中トリチウム濃度*と同程度であった。東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化を図8に示す。大気中核実験の影響により、降水中のトリチウム濃度は1960年台には100 Bq/Lを超えていたが、その後はゆるやかに減少し、現在は1 Bq/Lを下回る水準である⁶⁾⁷⁾。

※ 青森県実施の環境放射線モニタリング(平成20～26年度)における大気及び雨水のトリチウム濃度は以下のとおり。
大気：検出限界(0.21～0.36 Bq/L)以下～1.0 Bq/L
雨水：検出限界(0.23～0.36 Bq/L)以下～1.2 Bq/L

表4 野菜のトリチウム(TFWT、OBT)濃度(平成26年度)

試料名	採取地点	採取月	平成26年度調査結果		(参考)平成19～25年度調査結果	
			TFWT	非交換型OBT	TFWT	OBT※
			(Bq/L)	(Bq/L)	(Bq/L)	(Bq/L)
ハクサイ	出戸	10月	*	*	*～0.69	*～0.80
	千樽	10月	0.52±0.11	0.56±0.11	*～0.89	*～0.68
キャベツ	横浜町	10月	0.70±0.11	*	*～0.94	0.48～1.2
ダイコン	出戸	10月	*	*	*～0.58	0.37～0.68
バレイショ	尾駁	8月	0.81±0.10	*	0.41～0.86	*～0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	*	*～0.67	*～0.62
	平沼	11月	0.42±0.10	*	*～0.89	*～0.79

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.30～0.33 Bq/L、OBTで0.32～0.51 Bq/Lであった。

※ 平成19～25年度までの調査結果は交換型OBTを含む。

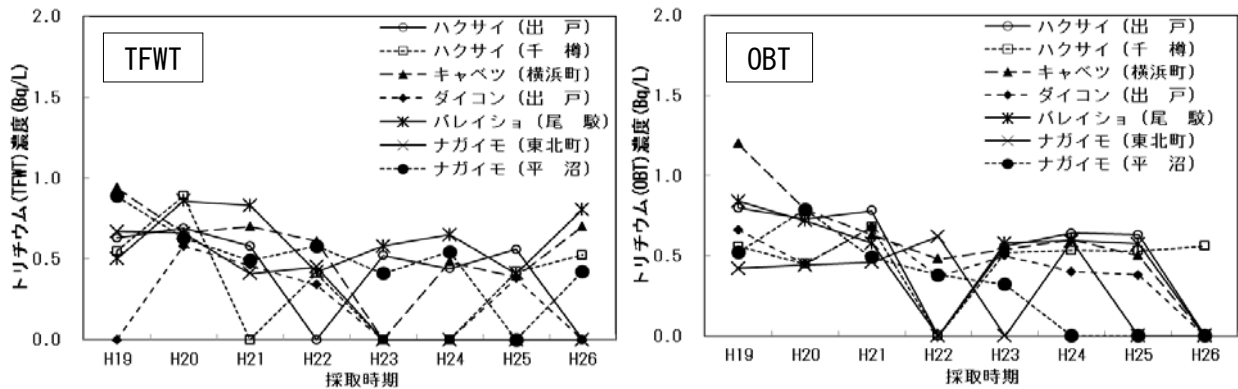


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

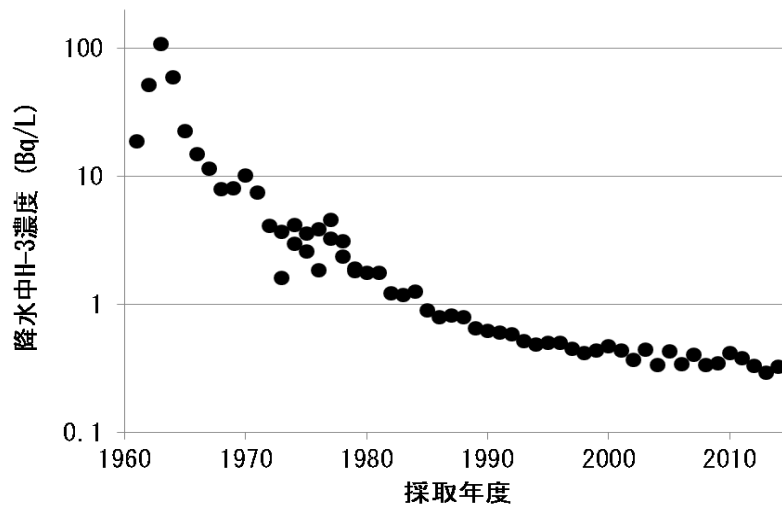


図8 東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・引用元、測定年度及び測定地点は以下のとおり。
- (国研)放射線医学総合研究所：環境中のトリチウム測定調査データベース
「環境中トリチウム－降水測定データ」
- 1961～1979 年度 東京・気象庁
- 1973～1979 年度 千葉市稲毛区穴川
- 1979～2007 年度 千葉市稲毛区山王町
- (公財)日本分析センター：環境放射線データベース
「身のまわりなどの一般環境」
- 1. 調査対象：大気
- 2. 調査年度：2007 年度～
- 3. 調査地域：千葉
- 4. 調査カテゴリ：降下物
- 5. 調査試料：月間降下物
- 6. 調査核種：H-3
- 2007～2015 年度 千葉市稲毛区山王町

海洋試料である魚類（ヒラメ）の測定結果を表 5 及び図 9 に示す。TFWT はすべて検出限界以下であり、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBT については、検出限界以下～0.49 Bq/L であり、平成 21～24 年度までは検出限界以下であったが、平成 24 年度まで検出限界以下であったが、平成 25～26 年度と続けて、検出限界を超える試料が出ている。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は 0.1～0.2 Bq/L 程度と報告されている⁸⁾。

表 5 魚類（ヒラメ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成 26 年度）

試料名	採取地 点	採取月	平成 26 年度調査結果		（参考）平成 19～25 年度調査結果		
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
魚類 (ヒラメ)	六ヶ所 村 前面海 域①	6 月	*	0.38±0.11	*～3.3	*～1.4	*～0.35
		9 月	*	*			
		10 月	*	*			
		12 月	*	*			
	六ヶ所 村 前面海 域②	6 月	*	*	*～0.45	*～0.77	*
		7 月	*	0.47±0.10			
		10 月	*	0.49±0.10			
		1 月 ^{※1}	*	*			

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWT で 0.30～0.33 Bq/L、非交換型 OBT で 0.30～0.34 Bq/L であった。

※1 重量として 15%程度のカレイ類を含む

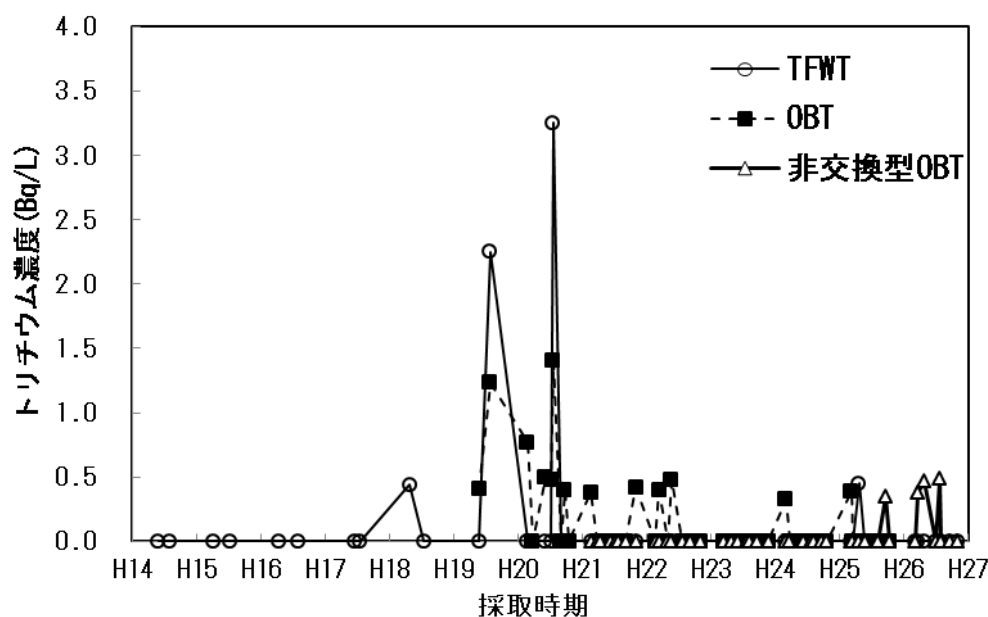


図 9 魚類(ヒラメ)におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT、非交換型 OBT)の経年変化

※1 検出限界以下は 0 としてプロットした。

※2 平成 18 年度以前は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

4.2 C-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物の C-14 比放射能の測定結果は表 6 に示すとおり、精米が 0.231～0.240 Bq/g 炭素、葉菜が 0.235～0.237 Bq/g 炭素、根菜・いも類が 0.231～0.238 Bq/g 炭素であった。

図 10 に環境放射線モニタリングで測定しているこれらの試料の C-14 比放射能の推移を示す。

C-14 のモニタリングを開始した平成 7 年度から平成 18 年度まで C-14 比放射能には減少傾向が認められている。大気圏内核実験によって増加した C-14 は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。アクティブ試験の影響が認められなかった平成 7 年度から平成 18 年度までに県のモニタリングで得られた C-14 比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値 0.228 Bq/g 炭素⁹⁾を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源の C-14 の半減時間を求めると 9.5 年となり、これは府馬ら¹⁰⁾による核実験起源の C-14 の 1963 年から 1976 年までの半減時間 9.0 年、1984 年から 2000 年までの半減時間 10.3 年とほぼ一致した。

また、平成 7 年度から平成 18 年度まで年度ごとに測定値の変動係数を算出し、その平均値を求めた。先に得られた減衰式と変動係数から平成 7 年度から平成 18 年度までの各年度における比放射能の推定値と変動幅 (3σ) を求め、これらを用い施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推移を推定し、図に示した。平成 26 年度の測定値には、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内にあった。

表 6 農産物の C-14 比放射能 (平成 26 年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	H26 年度調査結果	(参考) H19~25 年度
				(Bq/g 炭素)	調査結果 (Bq/g 炭素)
米	精米	千 樽	10 月	0.238 $\pm$ 0.003	0.231 $\sim$ 0.248
		野辺地町	10 月	0.241 $\pm$ 0.003	0.229 $\sim$ 0.249
		二又① ^{※1}	9 月	0.237 $\pm$ 0.003	0.231 $\sim$ 0.241
		二又②	9 月	0.229 $\pm$ 0.003	0.235 $\sim$ 0.251
		戸 鎖	10 月	0.231 $\pm$ 0.003	0.237 $\sim$ 0.255
		平 沼 ^{※2}	10 月	0.233 $\pm$ 0.003	0.234
葉菜	ハクサイ	出 戸	10 月	0.236 $\pm$ 0.002	0.227 $\sim$ 0.245
		千 樽	10 月	0.236 $\pm$ 0.003	0.230 $\sim$ 0.260
	キャベツ	横浜町	10 月	0.238 $\pm$ 0.003	0.227 $\sim$ 0.267
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	10 月	0.238 $\pm$ 0.003	0.228 $\sim$ 0.239
	パレイショ	尾 駁	8 月	0.231 $\pm$ 0.003	0.225 $\sim$ 0.244
	ナガイモ	東北町	11 月	0.238 $\pm$ 0.003	0.225 $\sim$ 0.243
		平 沼	11 月	0.237 $\pm$ 0.003	0.230 $\sim$ 0.258

※1 平成 20 年度から調査開始

※2 平成 25 年度から調査開始

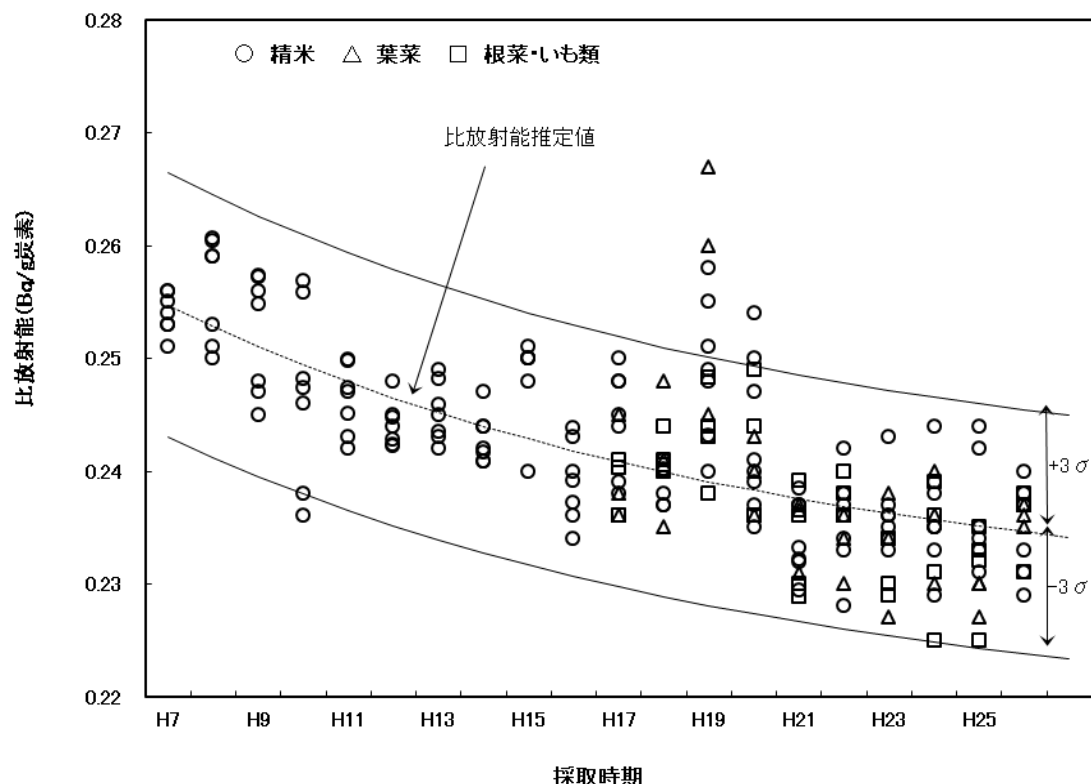


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

炭素-14 比放射能推定値及び変動幅の算出方法

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

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

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

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

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

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

t : 平成 6 年度からの経過年数 (年)

- ・変動幅 (3σ) = 比放射能推定値・変動係数・3

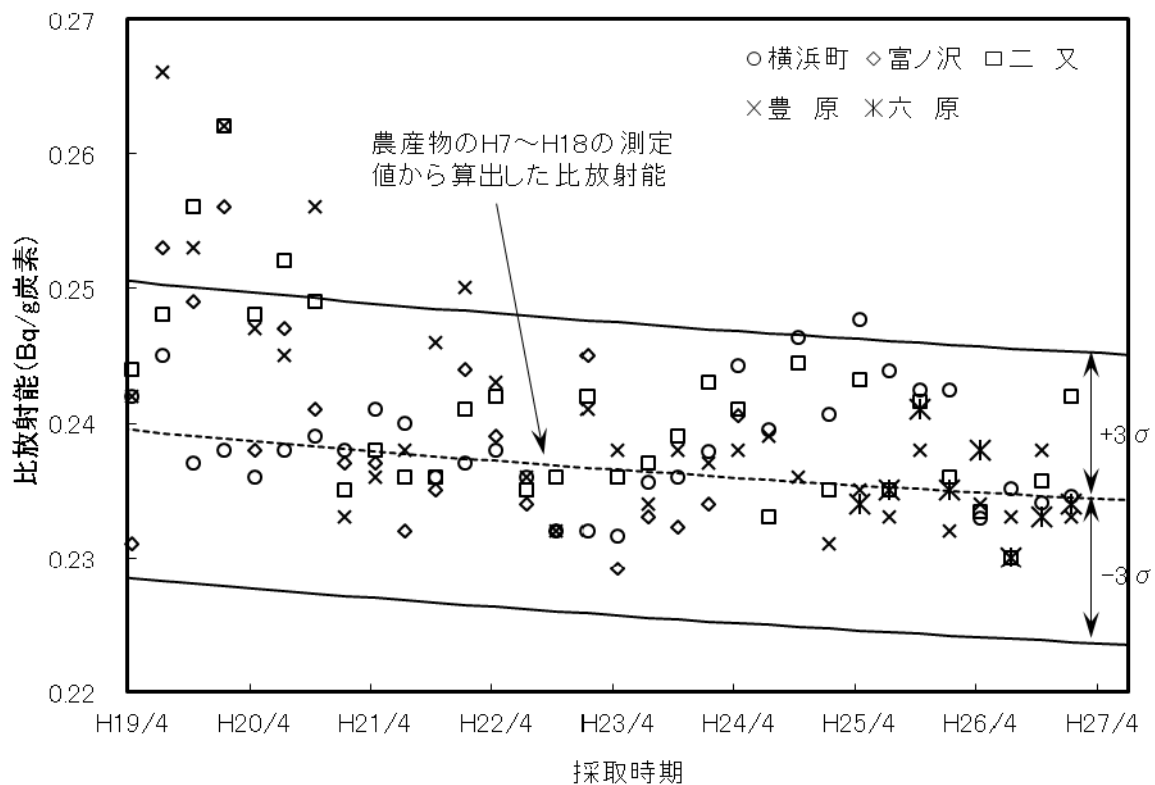
変動係数: 平成 7～18 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

牛乳の C-14 比放射能の測定結果は表 7 に示すとおり、0.230～0.242 Bq/g 炭素であった。図 11 に牛乳の C-14 比放射能の推移を示す。牛乳についてはアクティブ試験前の測定結果がないため、参考として農産物の値から求めた比放射能の推定値と変動幅も併せて記載した。牛乳においても、図 10 に示す農産物と同様に平成 19 及び 20 年度は高い値がみられている。平成 26 年度の測定値は、平成 25 年度と比較してやや低めであり、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。

表 7 牛乳の C-14 比放射能（平成 26 年度）

試料名	採取地点	採取月	H26 年度調査結果	(参考) H19～25 年度 調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛 乳 (原乳)	六原※	4 月	0.238 ± 0.003	0.234 ～ 0.241
		7 月	0.230 ± 0.003	
		10 月	0.233 ± 0.003	
		1 月	0.234 ± 0.003	
	横浜町	4 月	0.233 ± 0.003	0.232 ～ 0.248
		7 月	0.235 ± 0.003	
		10 月	0.234 ± 0.003	
		1 月	0.235 ± 0.003	
	二 又	4 月	0.233 ± 0.003	0.233 ～ 0.262
		7 月	0.230 ± 0.003	
		10 月	0.236 ± 0.003	
		1 月	0.242 ± 0.003	
	豊 原	4 月	0.234 ± 0.003	0.231 ～ 0.266
		7 月	0.233 ± 0.003	
		10 月	0.238 ± 0.003	
		1 月	0.233 ± 0.003	

※ 平成 25 年度から調査開始



4.3 I-129 及び I-131

環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比を表 8 に、その経年変化を図 12 に示す。葉菜類については、I-129 濃度は $3.8 \times 10^{-8} \sim 1.1 \times 10^{-7}$ Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は $1.4 \times 10^{-9} \sim 6.5 \times 10^{-9}$ であり、平成 19 年度以降、全体として低下傾向にあると見られる。海藻類については、I-129 濃度は 3.1×10^{-4} 及び 2.8×10^{-4} Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は 7.4×10^{-11} 及び 8.2×10^{-11} であり、平成 20 年度以降低下傾向が見られるが、近年は横ばいで推移している。

I-129 の環境への放出量については、大気中核実験によるものが 57 kg であるのに対し、仏国 La Hague 及び英国 Sellafield の 2 つの再処理施設からの 2007 年までの放出量は、それぞれ海洋に 3800 kg 及び 1600 kg、大気中に 75 kg 及び 180 kg であり、再処理施設からの放出によるものが大部分を占める¹¹⁾。I-129/I-127 原子数比については、大気圏内核実験後の環境において、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$ 程度と報告されている¹²⁾。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の I-129/I-127 原子数比は、これらと同程度であった。

I-131 は、すべての試料において検出限界以下であった。

表 8 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比（平成 26 年度）

試料名	採取地点	採取月	平成 26 年度調査結果		(参考) 平成 19～25 年度 調査結果	
			¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比
ハクサイ	出 戸	10 月	3.8×10^{-8} $\pm 8.6 \times 10^{-9}$	1.4×10^{-9}	7.5×10^{-8} $\sim 1.7 \times 10^{-5}$	3.3×10^{-9} $\sim 4.9 \times 10^{-7}$
	千 樽	10 月	1.1×10^{-7} $\pm 1.3 \times 10^{-8}$	5.3×10^{-9}	7.0×10^{-8} $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	2.8×10^{-9} $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10 月	4.5×10^{-8} $\pm 1.3 \times 10^{-8}$	6.5×10^{-9}	1.1×10^{-7} $\sim 1.2 \times 10^{-5}$	4.2×10^{-9} $\sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	8 月	3.1×10^{-4} $\pm 7.0 \times 10^{-6}$	7.4×10^{-11}	8.5×10^{-5}	4.6×10^{-11}
		11 月	2.8×10^{-4} $\pm 7.0 \times 10^{-6}$	8.2×10^{-11}	$\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$\sim 9.1 \times 10^{-10}$

5. まとめ

平成 26 年度の調査において、陸上試料中トリチウムについては近年の大気及び雨水中トリチウム濃度と同程度であり、全体として、平成 19 及び 20 年度より低めであった。また、海洋試料である魚類では、TFWT はすべて検出限界以下であった。一方、平成 21 年度から調査を開始した魚類の非交換型 OBT については、平成 24 年度まで検出限界以下であったが、平成 25～26 年度と続けて、検出限界を超える試料があった。C-14 比放射能は、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。I-129 は、葉菜類、海藻類ともに I-129/I-127 原子数比が大気圏内核

実験後のバックグラウンドレベルと同程度であり、平成 19 及び 20 年度より低下傾向にあった。
I-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

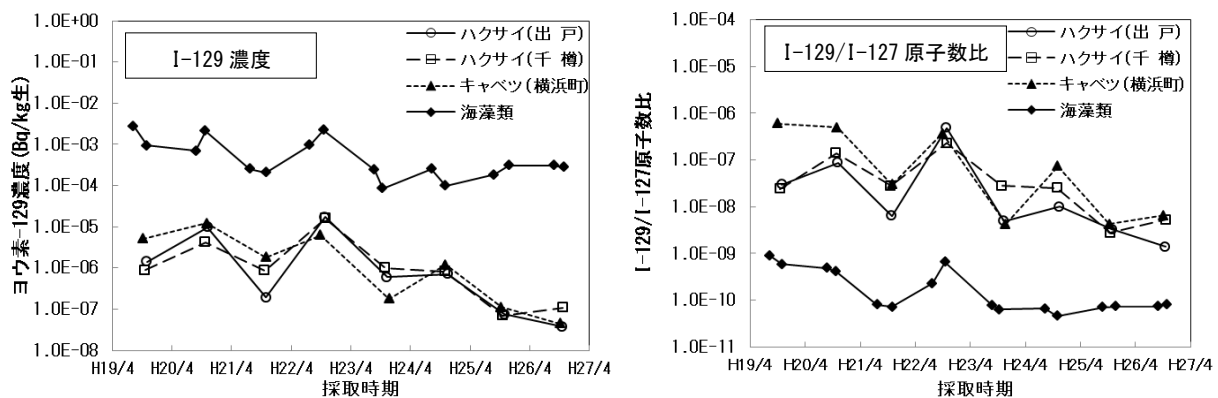


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

文 献

- 1) 青森県：環境放射線モニタリング（平成 21 年 4 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（平成 14 年）
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（平成 5 年）
- 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）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 4 放射性ヨウ素分析法（平成 8 年改訂）
- 6) (国研)放射線医学総合研究所：環境中のトリチウム測定調査データベース
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html>（最終アクセス：平成 28 年 2 月 9 日）
- 7) (公財)日本分析センター：環境放射線データベース
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/>（最終アクセス：平成 28 年 2 月 9 日）
- 8) 中野政尚、國分祐司、武石稔：東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの海水中濃度及び拡散状況，保健物理, **44**(1), 60～65(2009)
- 9) Y. Inoue and T. Iwakura : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiation Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 10) 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 ^{14}C の環境バックグラウンドレベル, *RADIOISOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 11) Tania Jabbar, Gabriele Wallner, Peter Steiber : A review on ^{129}I analysis in air, *Journal of Environmental Radioactivity*, **126**, 45-54 (2013)
- 12) Xiaolin Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)

測定局の移設前後の測定結果について

－空間放射線量率及び大気浮遊じん中の全 α 、全 β 放射能－

福士貴史 小川裕貴 佐々木 守 木村秀樹

1. はじめに

本県では原子力施設周辺の住民等の健康と安全を守るため、原子力施設周辺地域において環境放射線モニタリングを実施しており、その一環として、空間放射線量率や大気浮遊じん中放射能濃度等の常時監視を行っている。このような常時監視を行っている測定局のうち、平沼局、泊局及び小田野沢局については、その設置場所が平成24年10月に公表された青森県津波浸水予測図における浸水域に入っていることから、平成27年2月に同地区内の浸水域外へ移設した¹⁾。移設時における測定状況は表1のとおりである。

本報告は、移設前後における空間放射線レベル等の調査結果についてとりまとめたものである。

表1 移設時における測定状況

	平沼局	泊局	小田野沢局
旧測定場所の測定期間	平成27年2月9日まで	同年2月23日まで	同年2月16日まで
機器調整による欠測の期間	平成27年2月9日から 平成27年2月20日まで	同年2月23日から 同年3月5日まで	同年2月16日から 同年2月26日まで
新測定場所の測定期間	平成27年2月20日から	同年3月5日から	同年2月26日から

2. 調査方法

2.1 測定局及び対象項目

平沼局、泊局及び小田野沢局における空間放射線量率及び大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能を対象とする。移設前後の測定局の配置を図1に示す。

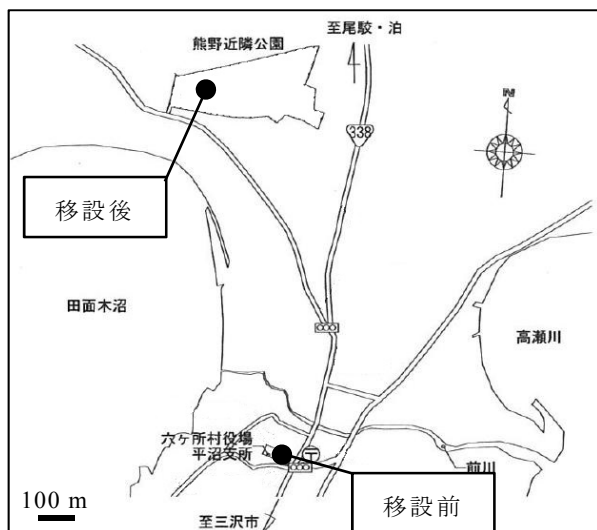
2.2 測定装置

(1) 空間放射線測定器

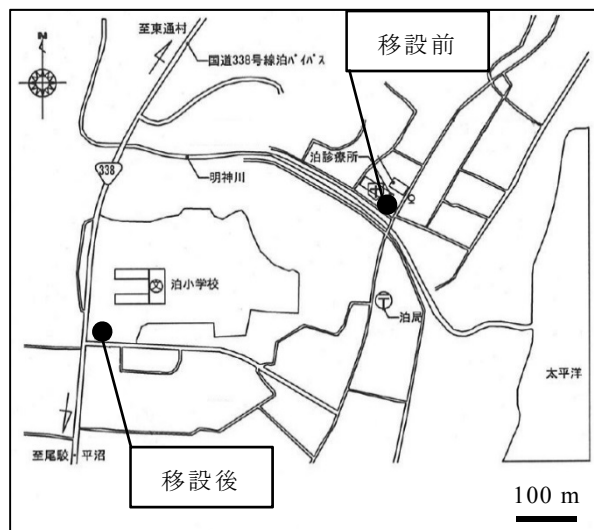
- ・検出器：3" ϕ × 3" NaI(Tl)シンチレーション検出器
- ・測定位置：地上 1.8 m
- ・測定エネルギー範囲：50 keV～3 MeV
- ・エネルギー補償方式：G(E)関数荷重演算方式

(2) 大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能測定器

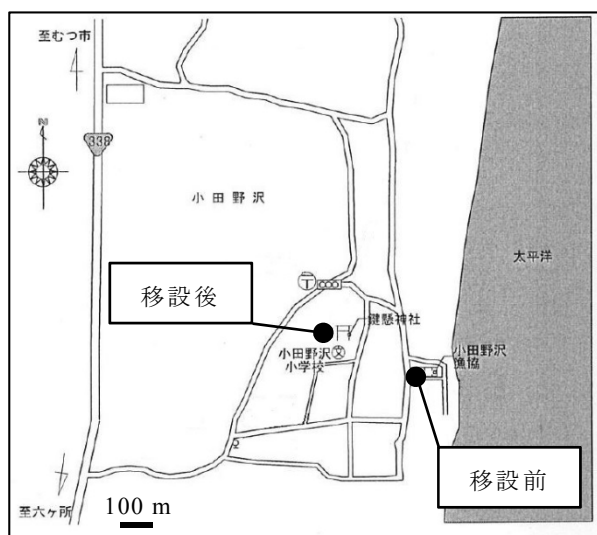
- ・検出器： α 線、 β 線用 50 mm ϕ ZnS(Ag)+プラスチックシンチレーション検出器
- ・集じん時間：平沼局及び泊局は168時間、小田野沢局は3時間
- ・計測時間：平沼局及び泊局は集じん終了後72時間放置 1時間測定、小田野沢局は集じん終了後10分間測定
- ・集じん方法：ろ紙間けつ自動移動方式
- ・ろ紙：HE-40T長尺ろ紙
- ・大気吸引量：平沼局及び泊局は約100 ℓ /分、小田野沢局は約200 ℓ /分
- ・吸引口位置：地上 1.5～2.0 m



ア. 平沼局



イ. 泊局



ウ. 小田野沢局

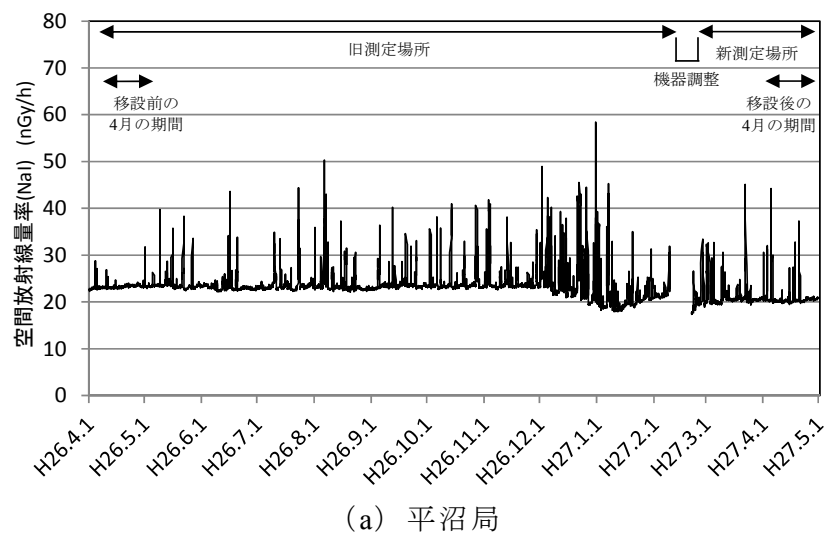
図1 移設前後の測定局の配置

3. 調査結果及び考察

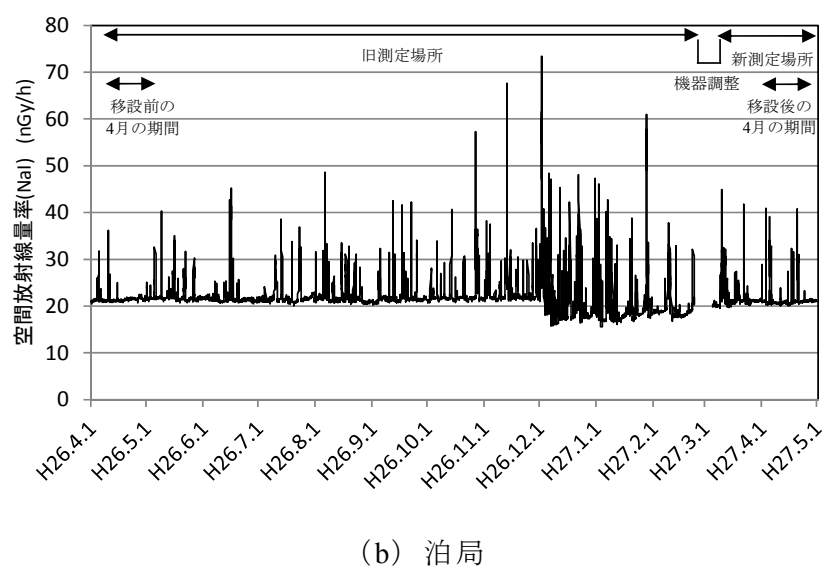
3.1 空間放射線量率

(1) 空間放射線量率測定結果

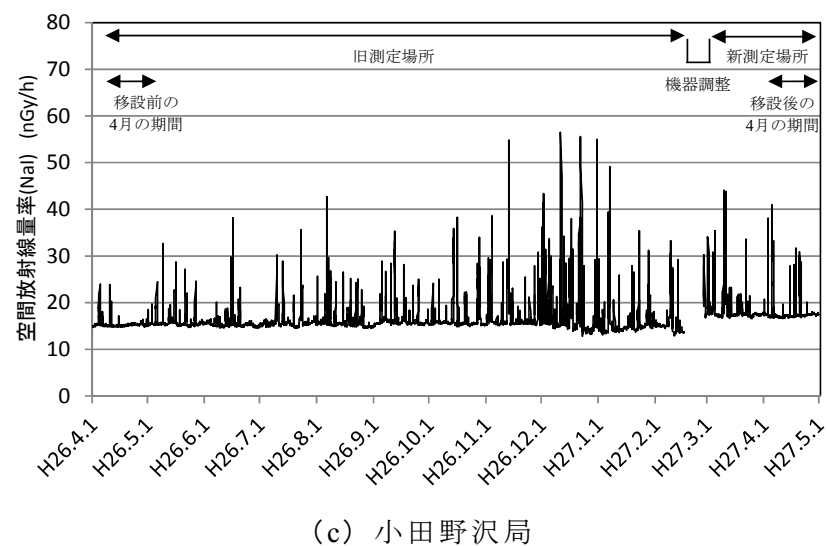
移設前後における空間放射線量率の1時間値の推移を図2に示す。3局とも移設前後で積雪がない時期のバックグラウンドレベルに変化が見られた。降雨や積雪がない条件で比較するため、移設前の測定値は平成26年4月1日～4月30日、移設後は平成27年4月1日～4月30日のそれぞれ1カ月間の測定結果を用いて比較検討を行った。表2に示すように平均値は平沼局が2.9 nGy/h 低く、泊局が0.5 nGy/h 低く、小田野沢局は2.1 Gy/h 高かった。また、t検定による平均値の差の検定を行ったところ、3局いずれも移設前後において信頼度99%で有意な差異が認められた。



(a) 平沼局



(b) 泊局



(c) 小田野沢局

図2 移設前後の空間放射線量率の推移(1時間値)

表 2 移設前（平成 26 年 4 月）と移設後（平成 27 年 4 月）における
空間放射線量率の比較（1 時間値）

測定項目		データ数	平均値	標準 偏差	最大値	最小値	移設前後の 平均値の差 (移設後-移設前)	t 値 (0.01)
平沼局	移設前	628	23.2	0.31	24.2	22.3	-2.9	88.8
	移設後	540	20.3	0.31	21.4	19.5		>2.58
泊局	移設前	612	21.4	0.25	22.5	20.6	-0.5	16.2
	移設後	516	20.9	0.29	22.1	20.2		>2.58
小田野沢局	移設前	618	15.2	0.21	16.1	14.8	2.1	72.6
	移設後	524	17.3	0.27	18.5	16.8		>2.58

注) 1 時間値の中から、次の条件を満たす測定値を用いた。

- ・感雨有が連続していた場合、感雨無となった 1 時間経過後の測定値
- ・雨量ゼロが 2 時間連続した後の測定値
- ・積雪ゼロが 2 時間連続した後の測定値

(2) 核種別寄与率

NaI(Tl)シンチレーション検出器で取得している 10 分間の γ 線スペクトルを用いて、空間放射線の構成成分における核種別寄与を算出した結果を、表 3 に示す。それぞれ 1 日を通して感雨及び降水量がない日を選定し、10 分値を 144 個加算して 1 日分のスペクトルとし、アンフォールディング法により解析した。空間放射線量率に対する K-40、ウラン系列、トリウム系列及びその他の成分からの寄与率について移設前後で比較したところ、移設後の値は平沼局及び小田野沢局では K-40 及びウラン系列が減少し、トリウム系列及びその他の成分が増加した。泊局では、K-40 及びその他の成分が減少し、ウラン系列及びトリウム系列が増加した。また、いずれのスペクトルにも、Cs-134 及び Cs-137 のピークは認められなかった。

表 3 移設前後の空間放射線量率に対する核種別寄与

上段：線量率 (nGy/h) [3 MeV 以上カット]
(下段)：寄与率 (%)

(a)平沼局

旧 測 定 場 所						新 測 定 場 所					
測定日	線量率	⁴⁰ K	U 系列	Th 系列	その他	測定日	線量率	⁴⁰ K	U 系列	Th 系列	その他
H26.4.13	18.2 (100)	7.0 (38.4)	5.1 (27.7)	4.5 (24.8)	1.6 (9.0)	H27.4.13	16.0 (100)	5.9 (36.8)	4.1 (25.4)	4.6 (28.9)	1.4 (8.9)
H26.4.25	18.6 (100)	7.2 (38.5)	5.2 (27.7)	4.7 (25.1)	1.6 (8.7)	H27.4.25	16.3 (100)	5.9 (36.2)	4.3 (26.2)	4.6 (28.4)	1.5 (9.1)
H26.4.26	18.5 (100)	7.1 (38.5)	5.2 (27.8)	4.6 (24.8)	1.7 (8.9)	H27.4.26	16.2 (100)	6.0 (36.6)	4.2 (25.8)	4.6 (28.6)	1.5 (9.0)
H26.4.27	18.9 (100)	7.2 (38.0)	5.4 (28.6)	4.7 (24.9)	1.6 (8.5)	H27.4.27	16.5 (100)	6.0 (36.3)	4.3 (26.1)	4.7 (28.6)	1.5 (9.1)
平均	18.6 (100)	7.1 (38.3)	5.2 (28.0)	4.6 (24.9)	1.6 (8.8)	平均	16.3 (100)	5.9 (36.5)	4.2 (25.9)	4.7 (28.6)	1.5 (9.0)

(b)泊局

旧 測 定 場 所						新 測 定 場 所					
測定日	線量率	⁴⁰ K	U 系列	Th 系列	その他	測定日	線量率	⁴⁰ K	U 系列	Th 系列	その他
H26.4.13	17.2 (100)	6.7 (39.3)	4.4 (25.9)	4.0 (23.3)	2.0 (11.5)	H27.4.13	16.4 (100)	5.9 (36.0)	4.2 (25.5)	4.3 (26.4)	2.0 (12.1)
H26.4.25	17.2 (100)	6.8 (39.4)	4.4 (25.8)	4.0 (23.4)	2.0 (11.4)	H27.4.25	16.6 (100)	6.0 (36.0)	4.3 (26.0)	4.4 (26.5)	1.9 (11.5)
H26.4.26	17.1 (100)	6.6 (38.6)	4.3 (25.2)	4.0 (23.7)	2.1 (12.5)	H27.4.26	16.7 (100)	6.0 (36.2)	4.3 (25.5)	4.4 (26.4)	2.0 (11.9)
H26.4.27	17.4 (100)	6.8 (39.1)	4.5 (25.9)	4.0 (22.9)	2.1 (12.1)	H27.4.27	16.8 (100)	6.1 (36.3)	4.4 (26.1)	4.4 (26.0)	1.9 (11.6)
平均	17.2 (100)	6.7 (39.1)	4.4 (25.7)	4.0 (23.3)	2.0 (11.9)	平均	16.6 (100)	6.0 (36.1)	4.3 (25.8)	4.4 (26.3)	2.0 (11.8)

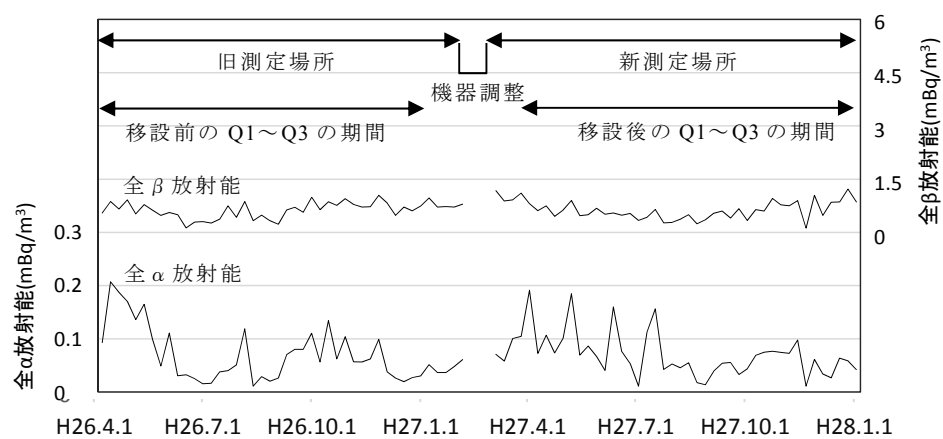
(c)小田野沢局

旧 測 定 場 所						新 測 定 場 所					
測定日	線量率	⁴⁰ K	U 系列	Th 系列	その他	測定日	線量率	⁴⁰ K	U 系列	Th 系列	その他
H26.4.13	12.4 (100)	3.6 (29.3)	4.2 (33.7)	2.3 (18.8)	2.3 (18.2)	H27.4.13	13.8 (100)	3.8 (31.0)	4.3 (34.9)	3.8 (30.9)	1.8 (14.5)
H26.4.25	12.3 (100)	3.9 (31.6)	4.4 (36.0)	2.7 (21.8)	1.3 (10.5)	H27.4.25	13.9 (100)	3.9 (27.7)	4.4 (31.3)	3.8 (27.6)	1.9 (13.4)
H26.4.26	12.3 (100)	3.9 (31.5)	4.4 (35.9)	2.7 (22.2)	1.3 (10.4)	H27.4.26	13.9 (100)	3.9 (27.8)	4.4 (31.3)	3.8 (27.4)	1.9 (13.5)
H26.4.27	12.6 (100)	3.9 (31.2)	4.6 (36.8)	2.7 (21.4)	1.3 (10.7)	H27.4.27	14.2 (100)	3.9 (27.4)	4.6 (32.6)	3.9 (27.4)	1.8 (12.7)
平均	12.4 (100)	3.8 (30.9)	4.4 (35.6)	2.6 (21.0)	1.5 (12.5)	平均	14.0 (100)	3.9 (27.7)	4.4 (31.6)	3.8 (27.5)	1.8 (13.2)

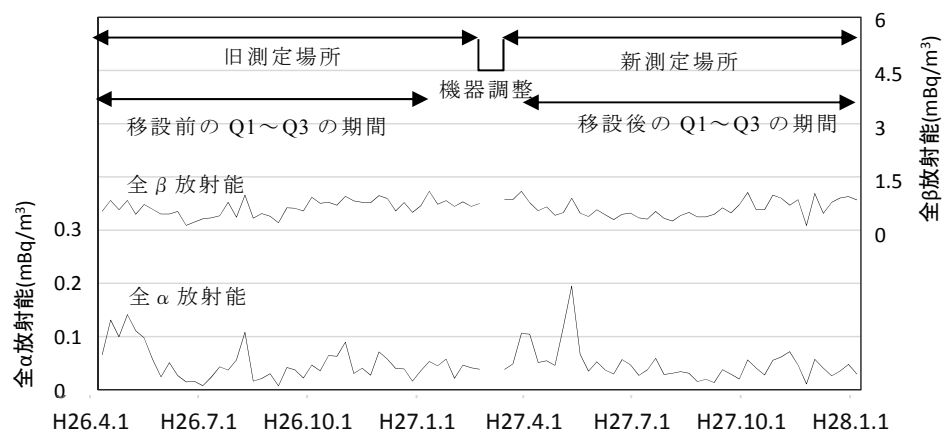
3.2 大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能(1)大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能測定結果

移設前後における大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能の測定値の推移を図 3 に示す。平沼局及び泊局は原子燃料サイクル施設を監視対象としており、施設からの放出の変動状況を把握するため、1 週間の集じん後に、半減期の短いラドン壊変生成物が概ね減衰する 72 時間放置し、1 時間の測定を行っている。また、小田野沢局は東通原子力発電所を監視対象としており、施設からの影響を迅速に検知するため、3 時間集じん、集じん終了直後 10 分間の測定を行っている。

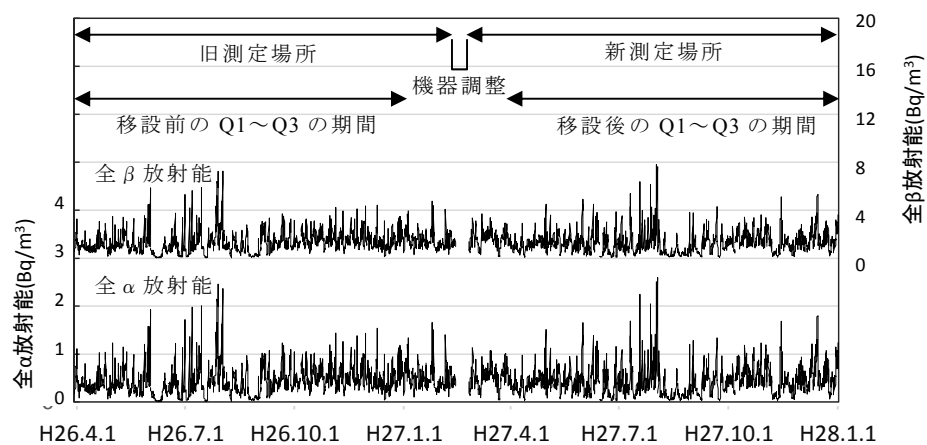
3 局とも移設前後でトレンドに明確な違いは見られなかった。移設後の測定値は第 1～第 3 四半期までしか確定していないため、移設前も第 1～第 3 四半期の 9 カ月間の測定結果を用いて比較検討を行った。各測定局の移設前後の測定値として、移設後（平成 27 年）と移設前 5 年間（平成 22～26 年）の測定値を比較したところ、表 4 に示すように小田野沢局の全 α 放射能以外、平均値は移設後の方が移設前より高くなった。t 検定による平均値の差の検定を行ったところ、いずれの項目も移設前後において信頼度 99 %で有意な差異が認められなかった。



(a) 平沼局



(b) 泊局



(c) 小田野沢局

測定条件

- (a)、(b) 1 週間集じん、集じん終了後 72 時間放置 1 時間測定
- (c) 3 時間集じん、集じん終了後 10 分間測定

図 3 移設前後の大気浮遊じん中全 α 、全 β 放射能の推移

表 4 移設前 5 年間と移設後の全 α 、全 β 放射能の測定値

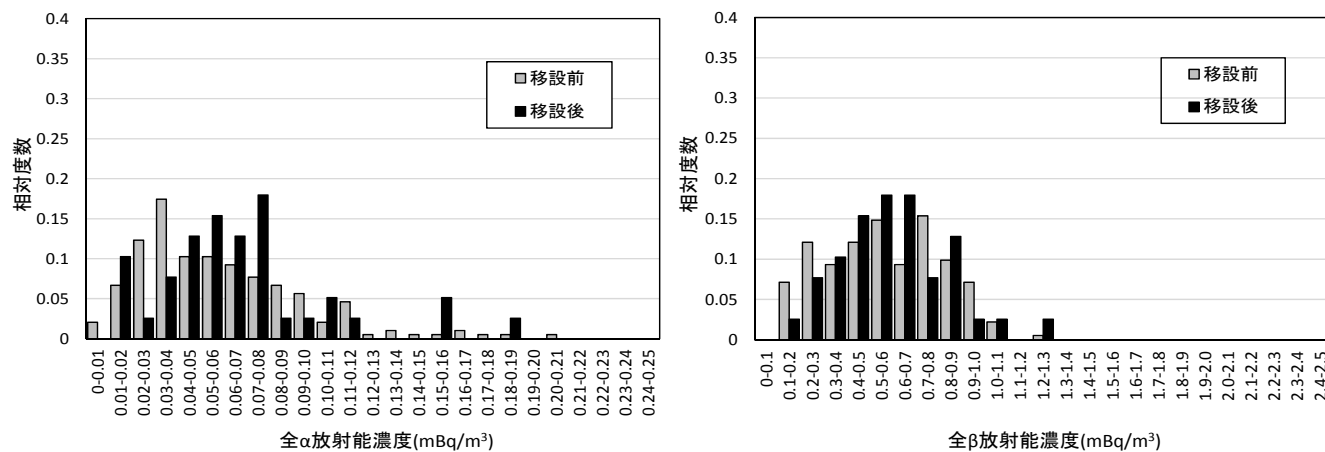
測定項目		データ数	平均値	標準偏差	最大値	最小値 (*は検出 限界以下)	移設前後の 平均値の差 (移設後-移設前)	t 値 (0.01)
平沼局 全 α	移設前	195	0.0588	0.04	0.21	*	0.007	0.222
	移設後	39	0.0662	0.04	0.18	0.011		<2.60
平沼局 全 β	移設前 ^{※3}	182	0.567	0.28	1.3	0.11	0.024	0.266
	移設後	39	0.591	0.24	1.2	0.12		<2.60
泊 局 全 α	移設前	195	0.0425	0.03	0.17	*	0.003	0.113
	移設後	39	0.0458	0.03	0.14	*		<2.60
泊 局 全 β	移設前 ^{※3}	182	0.542	0.25	0.19	*	0.036	0.406
	移設後	39	0.578	0.24	0.12	0.12		<2.60
小田野沢局 全 α	移設前	10964	0.418	0.30	3.0	0.0056	-0.001	0.0928
	移設後	2205	0.417	0.29	2.6	0.022		<2.58
小田野沢局 全 β	移設前	10964	1.25	0.90	9.0	0.022	0.008	0.385
	移設後	2205	1.26	0.86	7.8	0.077		<2.58

※3：平成 23 年度第 1 四半期における原子燃料サイクル施設の大気浮遊じん中の全 β 放射能については、平成 23 年 3 月に発生した東京電力(株)福島第一原子力発電所事故の影響により上昇が見られているため、集計には用いていない²⁾。

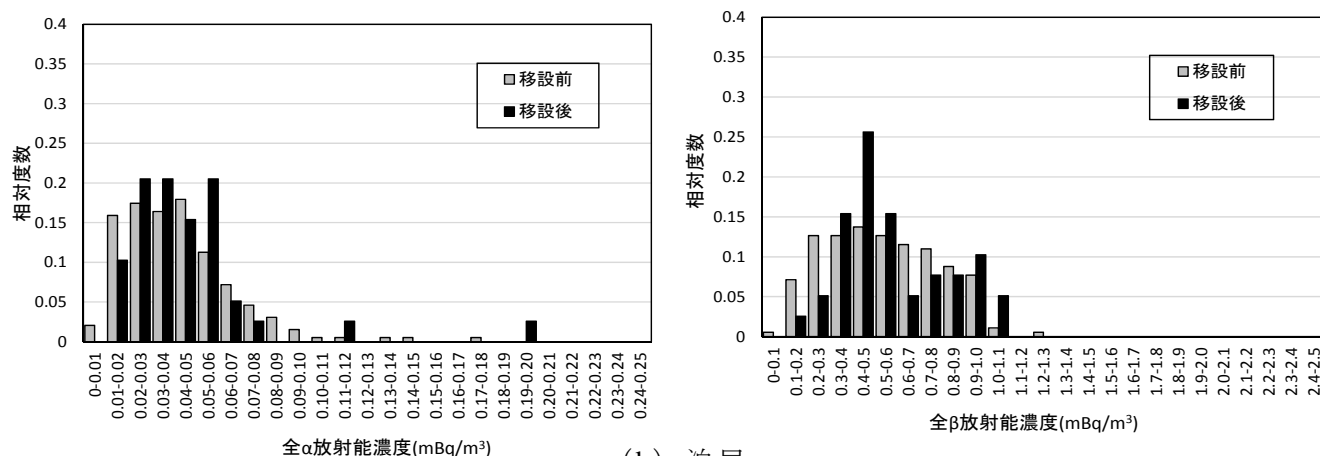
(2) ヒストグラムによる比較

移設前 5 年間と移設後の大気浮遊じん放射能濃度のヒストグラムによる比較を図 4 に示す。サンプル数が異なるため、縦軸は相対頻度を用いている。

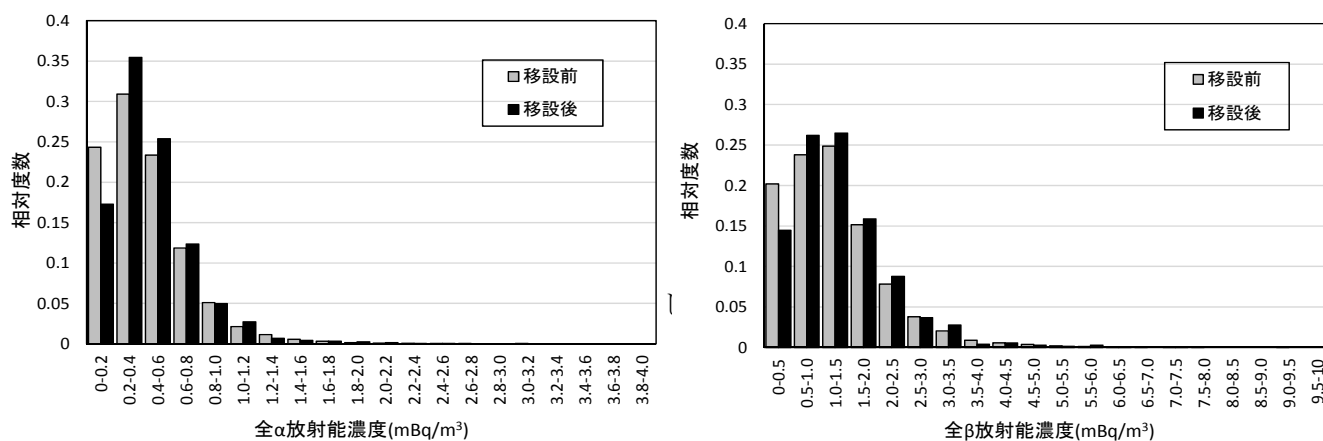
移設前後で大きな変化は見られてないが、平沼局及び泊局では移設後の全 α 放射能濃度の値に高いものがみられている。これは、平成 27 年の 4 月下旬から 5 月上旬にかけて、中国大陸から全 α 放射能濃度の高い大気が入り込み、広域的な上昇がみられたものと考えられる³⁾。



(a) 平沼局



(b) 泊局



(c) 小田野沢局

図 4 移設前後の大気浮遊じん放射能濃度のヒストグラム

4. まとめ

平成 27 年 2 月に平沼局、泊局及び小田野沢局を移設したことから、移設前後における空間放射線レベル等を調査した。空間放射線量率は移設前後で有意な差異が認められ、空間放射線量率に対する核種別の寄与にも変化が見られた。一方、大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能については、3 局いずれも移設前後で有意な差異は認められなかった。

文 献

- 1)青森県：「原子力施設環境放射線調査報告書（平成 26 年度報）」, 322-326（平成 26 年）
- 2)青森県：「原子力施設環境放射線調査報告書（平成 23 年度第 1 四半期報）」, 218-220（平成 23 年）
- 3)青森県：「原子力施設環境放射線調査報告書（平成 27 年度第 1 四半期報）」, 219-222（平成 27 年）

学会発表等要旨

保健物理・環境科学部会セッション

「屋内退避か？避難か？災害対策における緊急時モニタリングの役割」

原子力災害対策指針が求めるモニタリング

木村 秀樹

日本原子力学会 2015年秋の大会、静岡県静岡市、2015.9.9-9.11

原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリングについては、その方法、測定結果の評価基準等に係る指針として、昭和53年1月、当時の原子力委員会・環境放射線モニタリング中央評価専門部会により、「環境放射線モニタリングに関する指針」が我が国で初めて策定された。また、昭和59年6月には、原子力施設からの放射性物質又は放射線の異常な放出に対応するための緊急時環境放射線モニタリングについて、具体的な事項を定めた「緊急時モニタリング指針」が原子力安全委員会により策定された。その後、ICRP勧告の国内法令への取入れ等に伴う数回の改訂を経て、平成20年3月には、上記2つの指針を統合した「環境放射線モニタリング指針」が原子力安全委員会により策定されている。

平成23年3月の東日本大震災に伴う東京電力(株)福島第一原子力発電所事故を踏まえ、原子力施設等に係る防災対策の見直しが進められ、新たに発足した原子力規制委員会により、平成24年10月に「原子力災害対策指針」（以下、「指針」という。）が制定された^{※1}。指針は、緊急事態における原子力施設周辺の住民等に対する放射線の影響を最小限に抑える防護措置を確実なものにすることを目的として、原子力事業者、国、地方公共団体等の原子力災害対策について専門的・技術的事項等を定めるものであり、緊急時における環境放射線モニタリング（以下、「緊急時モニタリング」という。）についても考え方が示されている。また、緊急時モニタリングに関する詳細な事項は、本指針の補足参考資料として原子力規制庁監視情報課が平成26年1月に作成した「緊急時モニタリングについて」に取りまとめられている^{※2}。

※1：最新の改正は、平成27年4月22日である。

※2：平成27年4月22日に第2版が発行されている。

指針では、緊急事態の初期対応段階において、原子力施設の状況に応じ、緊急事態を警戒事態、施設敷地緊急事態及び全面緊急事態の3つに区分している。また、原子力災害が発生した場合に重点的に対策を講じる区域として、実用発電用原子炉の場合、緊急時活動レベル(EAL)に応じて放射性物質の環境への放出前の段階から予防的に防護措置を準備する区域(PAZ)を原子力施設から概ね半径5km、EALや運用上の介入レベル(OIL)に基づき緊急時防護措置を準備する区域(UPZ)を原子力施設から概ね30kmと定めている。

原子力施設から環境へ放射性物質が放出された場合には、比較的広い範囲において空間放射線量率等の高い地点が発生する可能性があるため、このような事態に備え、国、地方公共団体及び原子力事業者が、迅速に緊急時モニタリングを行い、その測定結果を防護措置を実施すべき基準に照らして、必要な措置を実施する。この判断基準として、空間放射線量率や環境試料中の放射性物質濃度等の原則計測可能な値で表されるOIL(OIL1～OIL6)を設定している。

国、地方公共団体、原子力事業者及び関係指定公共機関は、警戒事態において緊急時モニタリングの準備を行い、施設敷地緊急事態に国は地方公共団体の協力を得て緊急時モニタリングセンター(EMC)を設置し、緊急時モニタリングを実施する。

緊急時モニタリングの目的は、

- ① 原子力災害による環境放射線の状況に関する情報収集
- ② OILに基づく防護措置の実施の判断材料の提供
- ③ 原子力災害による住民等と環境への放射線影響の評価材料の提供

にあるが、初期モニタリングにおいては、防護措置に関する判断に必要な項目を優先する。

OIL1(空間放射線量率 $500\mu\text{Sv/h}$)のためのモニタリングについては、固定観測局及び可搬型モニタリングポスト等による空間放射線量率の連続測定を第一とし、必要に応じてモニタリングカーやサーベイメータを用いたモニタリングを実施する。固定観測局等は、基本的には防護措置の実施に係る指示が発出される単位となる地域ごとに1地点以上設置することが望ましい。OIL2(空間放射線量率 $20\mu\text{Sv/h}$)のためのモニタリングについても実施手法や実施地点は同様であるが、さらに固定観測局等の測定を補完するために、航空機モニタリングを実施する。このようなニーズに対応するために、社会環境や自然環境など地域の実情を考慮しつつ、降雨に関与する対流雲の水平方向の大きさや福島第一原子力発電所事故の実態を踏まえ、観測地点間の距離が5km程度となることを目安として、UPZ圏内に固定観測局を整備することとしている。

OIL6(飲食物中放射性物質濃度)のためのモニタリングについては、まず飲食物中の放射性物質濃測定を実施すべき地域を特定するために空間放射線量率の測定が必要となるが、実施地域はOIL1やOIL2のためのモニタリングに比べて広範となるため、原子力施設周辺の固定観測局等による測定に加え、モニタリングカーやサーベイメータによる測定、航空機モニタリングを行うことが有効である。また、環境放射能水準調査で設置している固定観測局の測定結果も活用できる。OIL6としては、「飲料水、牛乳・乳製品」及び「野菜類、穀類、肉、卵、魚、その他」を対象に、放射性ヨウ素、放射性セシウム、プルトニウム及び超ウラン元素のアルファ核種、ウランについて初期設定値が示されており、これらについて分析・測定を行うこととしている。

原子力施設から放出された放射性プルームからの影響を考慮したUPZ圏外の防護措置については、施設側の状況や緊急時モニタリング結果等を踏まえて、屋内退避の指示をUPZ圏外の一定の範囲(同心円を基本)に拡張することとし、放射性物質が当該範囲外へ通過したと判断されたときは、速やかに屋内退避の指示を解除する。このためのモニタリングについては、敷地内や敷地境界などの情報を把握することに加え、UPZ圏内のモニタリングにより放射性プルームの流跡の概要を把握するほか、走行モニタリングや航空機モニタリング等の機動的なモニタリング手法を用い、拡張された防護範囲における放射性プルーム通過の判断に資する情報を収集する必要があるとしている。

放射線影響の評価のためのモニタリングについては、基本的にOILに係るモニタリングの結果の一部を活用可能であるが、要員や資機材等に余裕がある場合には、大気や土壌等の環境試料中の放射性物質濃度も測定する。

このようなモニタリング結果は、現地のEMCにおいて測定の妥当性を確認した後、国が一元的に集約し、中央の原子力規制委員会・内閣府原子力事故合同対策本部又は原子力災害対策本部の放射線班(ERC チーム放射線班)において、専門家や指定公共機関の支援の下で評価し、OILに

よる防護措置の判断等のために活用する。また、国は、集約及び共有したすべての緊急時モニタリング結果を、分かりやすくかつ迅速に公表する。

以上のような原子力災害対策指針が求めるモニタリングに対応するために、空間放射線量率の測定体制の強化やモニタリング情報共有・公開システムの整備等が進められてきたところであるが、モニタリングの実効性をさらに向上するために、以下のような課題に取り組む必要がある。

空間放射線量率の測定においては、自然災害への対策として、まず通信回線を多重化すること、また測定器の堅牢性を高めるとともに、機器の交換や他の機器による代替測定を迅速に行える体制とすることが挙げられる。加えて、線量率レベルの面的な把握やプルームの流跡の推定などのために、測定値と計算シミュレーションを組み合わせた解析システムの構築に取り組む必要がある。

環境試料中の放射性核種の測定では、膨大な試料に対応するため、行政分野を横断した測定体制の確立や今回の事故の経験を反映させた前処理・測定マニュアルの整備が望まれる。また、住民の内部被ばく線量の評価や施設からの影響把握のために、大気中放射性核種の採取・測定体制やアルファ核種（プルトニウム等）及びベータ核種（ストロンチウム90等）の分析体制を強化する必要がある。

最後に、効果的かつ効率的なモニタリング体制により「データをとる」、評価結果の見える化や住民に届ける仕組みにより「データを活かす」、そして、何より、総合的なモニタリングの教育・支援体制の整備により「人を育てる」ための取組を継続することが、今後のモニタリングの充実強化に不可欠と考える。

保健物理・環境科学部会セッション
「屋内退避か？避難か？災害対策における緊急時モニタリングの役割」

原子力災害対策指針が求めるモニタリング

平成27年9月10日
青森県原子力センター
木村 秀樹

モニタリング項目

- ＜空間放射線＞
 - ◆ 空間放射線量率
人が外部から1時間当たりを受ける線量
 - ◆ 積算線量
人が外部から一定期間(通常3カ月)に受ける線量の合計
 - ◆ 単位
グレイ/時、シーベルト/時、グレイ、シーベルト
- ＜環境試料中の放射性核種濃度＞
 - ◆ 試料
大気浮遊じん、大気、降水物、水道水、表土、牛乳、精米、野菜、海水、海底土、海産食品、指標生物 等
 - ◆ 核種
ガンマ線放出核種(ヨウ素-131、セシウム-137等)、トリチウム、ストロンチウム-90、プルトニウム 等
 - ◆ 単位
ベクレル/m³、ベクレル/L、ベクレル/kg

平常時における環境放射線モニタリングの現状

＜原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリング＞

- ◆ 環境放射線モニタリングは、原子力施設周辺の10～30km圏内において、自治体が中心となり原子力事業者とともに実施
- ◆ モニタリング結果は、自治体が設置した監視・評価機構により評価し、公表
- ◆ 自治体によるモニタリングの財源は国の交付金であり、平成26年度時点で24の道府県に交付

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）

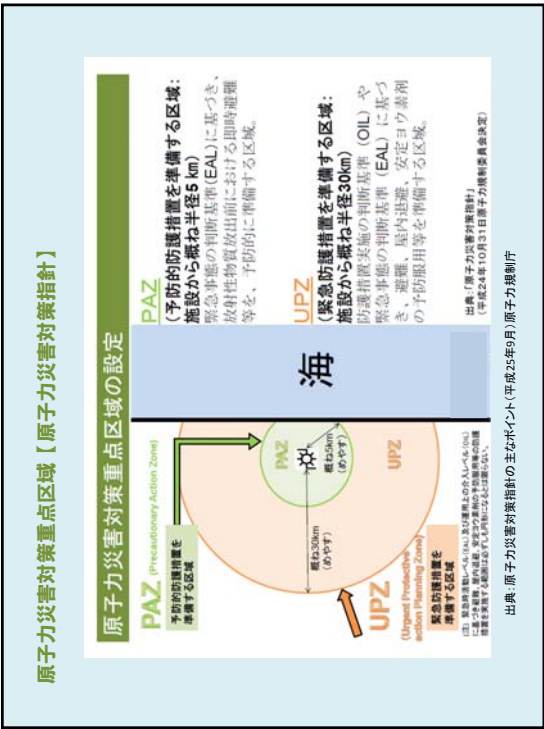
- ＜環境放射線水準調査＞
 - ◆ 全国47都道府県が、国からの委託調査として実施
 - ◆ 調査地域は、基本的に都道府県内全域をカバー
 - ◆ 調査結果は、国のホームページ等で公開

緊急事態の初期対応段階における防護措置の考え方【原子力災害対策指針】

運用上の介入レベル(OIL)

- ◆ 放射性物質の放出後は、その拡散により比較的広い範囲において空間放射線量率等の高い地点が発生する可能性があるため、緊急時モニタリングを迅速に行い、その測定結果を防護措置を実施すべき基準に照らして、必要な措置の判断を行い、これを実施
- ◆ 判断基準として、空間放射線量率や環境試料中の放射性物質の濃度等の原則計測可能な値で表される運用上の介入レベル(OIL: Operational Intervention Level)を設定
- ◆ 現在のOILの値は、福島第一原子力発電所事故の際に実施された防護措置の状況や教訓を踏まえ、当面運用できるものとして設定したもの

OILと防護措置【原子力災害対策指針】			
基準の種類	基準の概要	初期設定値	防護措置の概要
OIL1	地表面に沈着した放射性物質による被ばく影響の防止のため、数時間以内に避難又は屋内退避	空間放射線量率 (地上1m) 500 μ Sv/h	・数時間内を目途に区域特定 ・避難（又は屋内退避）
OIL2	地表面に沈着した放射性物質による被ばく影響の防止のため、1週間程度内に一時移転	空間放射線量率 (地上1m) 20 μ Sv/h	・1日内を目途に区域特定 ・地域生産物摂取制限 ・1週間程度内に一時移転
飲食物スクリーニング基準	OIL6による判断のための飲食物中放射性物質測定を実施すべき地域の特定	空間放射線量率 (地上1m) 0.5 μ Sv/h	・数日内を目途に測定を実施すべき区域の特定
OIL6	経口摂取による被ばく影響の防止のため飲食物の摂取を制限	(例)飲料水 放射性ヨウ素300Bq/kg 放射性セシウム 200Bq/kg 等	・1週間内を目途に飲食物中放射性物質測定実施 ・飲食物摂取制限



緊急時モニタリングの実施【原子力災害対策指針】

国、地方自治体、原子力事業者及び関係指定公共機関は、警戒事態において緊急時モニタリングの準備を行い、施設敷地緊急事態に**緊急時モニタリングセンター(EMC)**を設置し、緊急時モニタリングを実施する。

＜緊急時モニタリングの目的＞

- ◆ 原子力災害による環境放射線の状況に関する情報収集
- ◆ OILに基づく防護措置の実施の判断材料の提供
- ◆ 原子力災害による住民等と環境への放射線影響の評価材料の提供

＜初期モニタリングにおける測定項目＞

- ◆ 原子力災害対策重点地域を中心とした空間放射線量率及び大気中の放射性物質
- ◆ 放射性物質の放出により影響を受けた環境試料中の放射性物質濃度
- ◆ 広範な周辺環境における空間放射線量率及び放射性物質濃度

ただし、**防護措置に関する判断に必要な項目を優先**する。

OIL1及びOIL2のためのモニタリング【原子力災害対策指針補足参考資料】

- ◆ 固定観測局及び可搬型モニタリングポスト等による**空間放射線量率の連続測定を第一**
- ◆ 必要に応じてモニタリングカーやサーベイメータによる測定、航空機モニタリングを実施
- ◆ 固定観測局等は、基本的には防護措置の実施に係る指示が発出される単位となる地域ごとに1地点以上設置
- ◆ このようなニーズに対応するために、地域の実情を考慮しつつ、降雨に関する対流雲の水平方向の大きさや福島第一原子力発電所事故の実態を踏まえ、**観測地点間の距離が5km程度となることを目安**として、UPZ圏内に固定観測局を整備

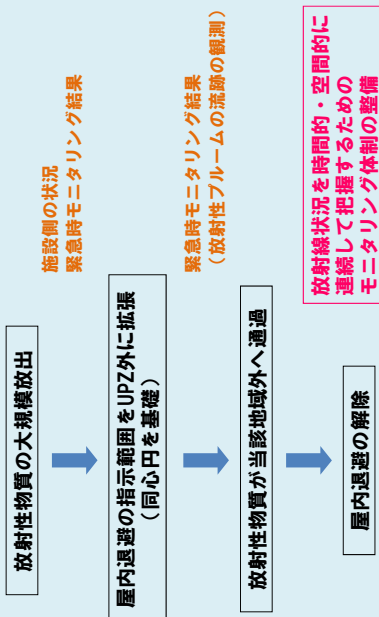
OIL6のためのモニタリング【原子力災害対策指針補足参考資料】

- ◆ 飲食物中の放射性物質濃度測定を実施すべき地域の特定
空間放射線量率 $0.5\mu\text{Sv/h}$ 以上
固定観測局等に加え、モニタリングカーやサーベイメータによる測定、航空機モニタリングが有効
環境放射線水準調査の固定観測局も活用可能
- ◆ 対象試料
「飲料水、牛乳・乳製品」
「野菜類、穀類、肉、卵、魚、その他」
- ◆ 対象核種
放射性ヨウ素、放射性セシウム、プルトニウム及び超ウラン元素のアルファ核種、ウラン

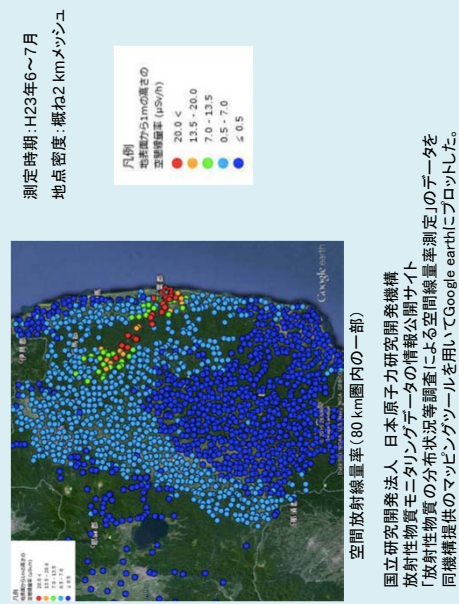
空間放射線量率測定のポイント

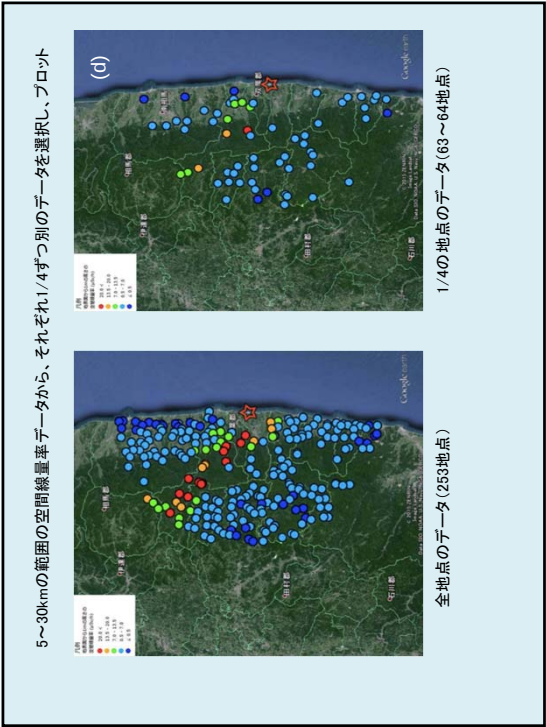
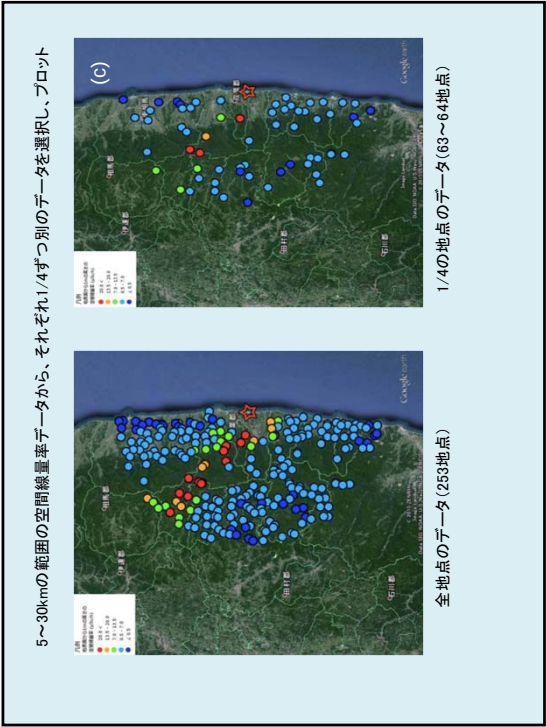
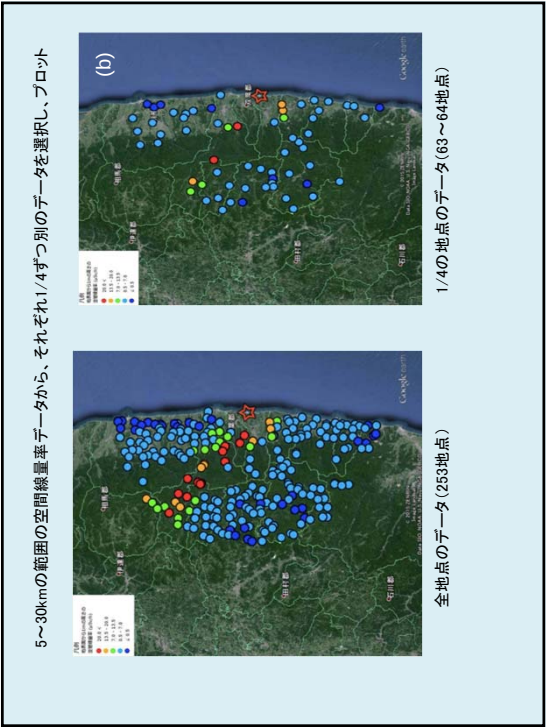
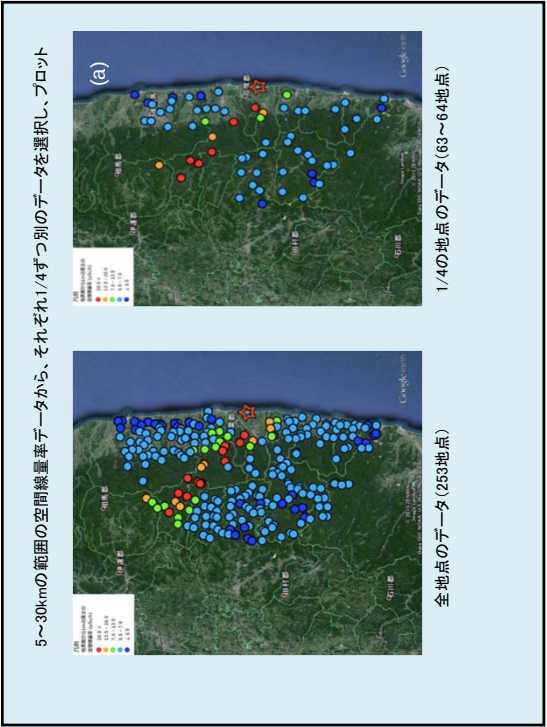
- ◆ 自動連続測定が基本
高機能のモニタリングポストと簡易線量計のベストミックス
- ◆ 自然災害に強い測定システム
通信回線の多重化
機器の堅牢性より交換・代替測定
- ◆ 測定手法の整理、充実
測定量は、空気吸収線量が周辺線量当量か？
測定高さの補正は？
- ◆ 航空機モニタリング、走行サーベイ等の実施体制の充実
線量率レベルの面的把握、プルーム流跡の把握
計算シミュレーションと測定値の組合せ
測定値の二次元補間

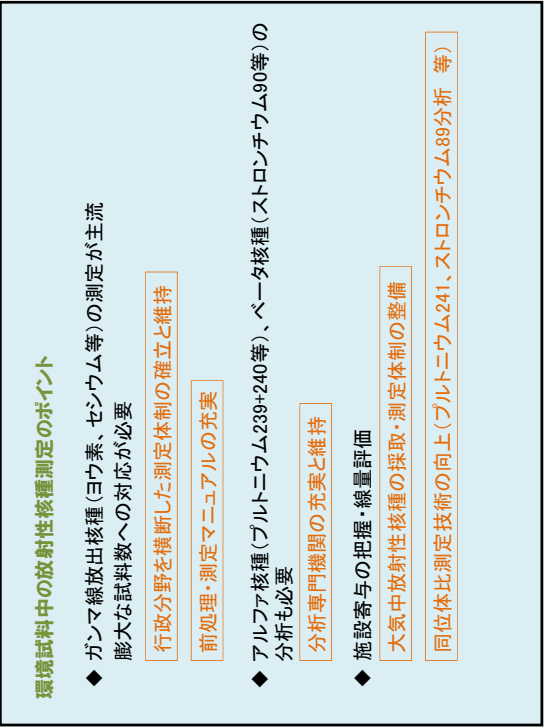
UPZ外の防護措置に係るモニタリング 【原子力災害対策指針（H27年3月4日改定案）別添2】



放射線量等分布マップを用いたケーススタディ







平成 27 年度調査研究事業報告

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

武藤 逸紀

1. はじめに

トリチウム (T) は、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH_3T 等) の 3 種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の 200 倍以上が環境中に放出され、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている¹⁾。

再処理施設から大気中へ放出されるトリチウムの化学形は、東海再処理施設主排気筒においては全トリチウムのうち約 26%が HT (CH_3T 等を含む。) の化学形であったとの報告²⁾があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスをキャリアとして使用する方法³⁾が用いられている (以下「ガス添加法」という)。しかし、例えばモニタリングステーションのように、長期間採取状況を監視できない場所に対応するために、可燃性ガスの代わりにキャリアとして無トリチウム水を添加する加湿カラムを用いる方法 (以下「加湿カラム法」という) が提案されている^{4),5)}。

本調査では、平成 16 年度から加湿カラム法を用いた採取方法の検討を行っているが、県の測定結果と公益財団法人環境科学技術研究所 (以下「環境研」という) がガス添加法を用いて採取した試料の測定結果^{7) ~14)}を比較したところ、HT 及び CH_3T の測定結果に違いが見られた。このため、平成 25 年度は、新たに購入した Pt 触媒と、従来まで使用していた触媒とを用いた採取装置により並行試験を行い、平成 26 年度は、Pt 触媒の数を変えた採取装置により、並行試験を行ったが、その原因を特定するには至らなかった。

採取地点・採取期間の違いによる影響を除外して県と環境研の調査結果を比較するため、平成 26 年 11 月から平成 27 年 4 月にかけて、環境研と並行して試料を採取し、分析したところ、HTO 及び HT は概ね一致したが、 CH_3T は県の測定結果が環境研の測定結果と比較して高かった。キャリアとして添加している無トリチウム水により HT 酸化用の Pt 触媒の活性が低下している可能性が考えられたため、加湿カラムをこれまでどおり Pt 触媒の上流側に設置した場合と、Pt 触媒の下流側に設置した場合で、HT 及び CH_3T 測定値に違いがあるか検討した。

2. 調査方法

2.1 採取装置

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

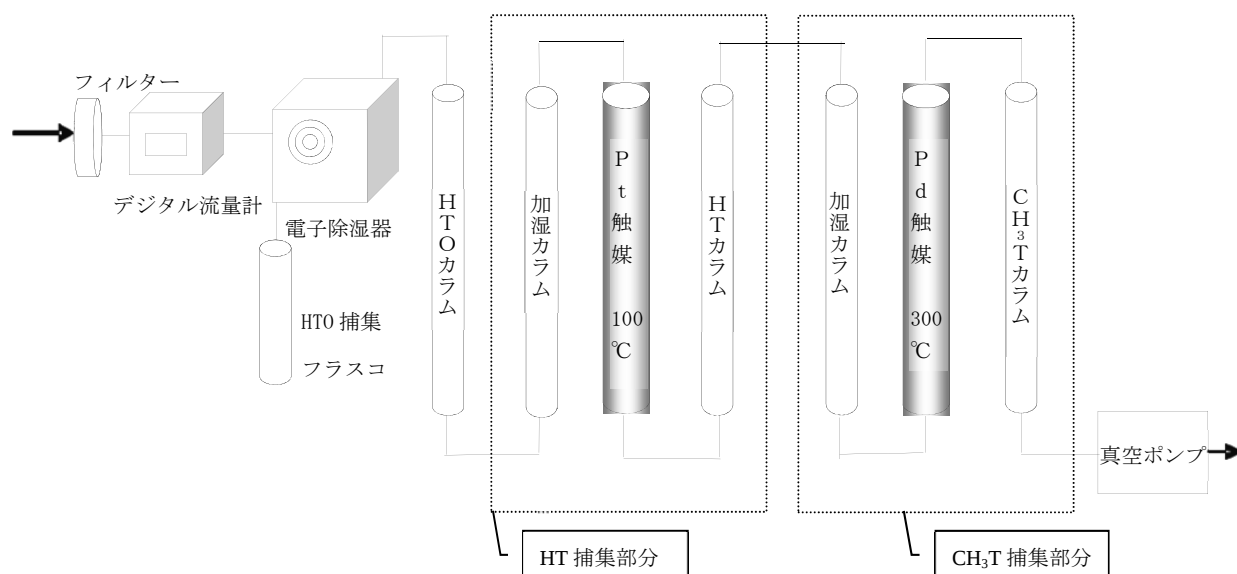


図1 加湿カラム法による採取装置の概要

ラーシーブ 3A を充填した HTO カラム、HT カラム及び CH_3T カラムに捕集する。

HTO については、電子除湿器（出口露点 $1\sim 3^\circ\text{C}$ ）により一部を捕集した後、残りを HTO カラムに捕集する。

HT については、 100°C に加熱した Pt 触媒 (D2SPT6S40C、田中金属工業株式会社、Pt 担持量 6.0 g/L 、 $25\text{ mm}\phi\times 40\text{ mm}$) で酸化し、水として HT カラムに捕集する。この際、大気中の H_2 濃度が低いため、キャリアとして無トリチウム水蒸気を添加する。

CH_3T については、 300°C に加熱した Pd 触媒 (DASH-220D、エヌ・イー ケムキャット株式会社、 $2\text{-}4\text{ mm}\phi$) で酸化し、水として CH_3T カラムに捕集する。この際、大気中の CH_4 濃度が低いため、キャリアとして無トリチウム水蒸気を添加する。

加湿カラム法における無トリチウム水蒸気の供給は、アクリル管に図 2 に示す加湿バイアルを設置して行った（加湿カラム）。プラスチックバイアルに無トリチウム水を入れておき、超高分子ポリエチレン多孔質フィルムを通して、徐々に蒸発させる仕組みである。

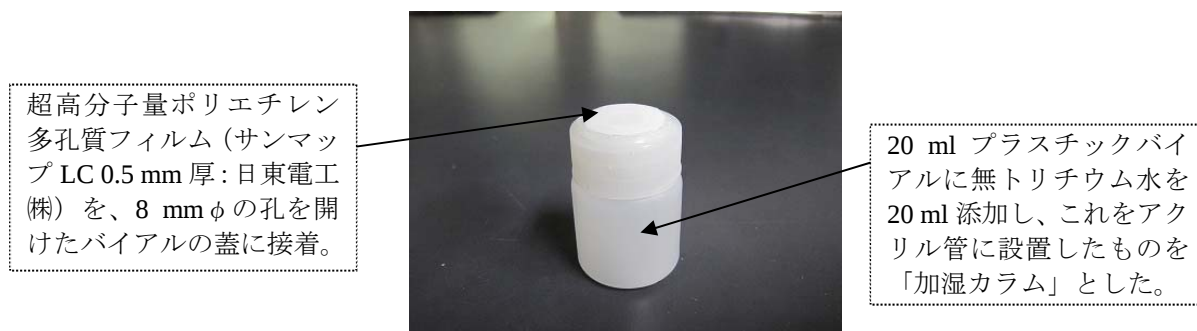


図2 加湿バイアル外観

2.2 試料採取

(1) 並行採取によるガス添加法との比較

ア 採取条件

環境研が用いているガス添加法による採取装置¹³⁾と並行採取を行った。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：約 1 ヶ月間
- ・大気採取流量： 1.5 L/min
- ・大気採取量：約 65 m³

イ 採取地点

環境研構内

ウ 採取時期

平成 26 年 11 月 (10/31～11/28)、12 月 (11/28～12/26)、平成 27 年 2 月 (1/30～3/2)、3 月 (3/2～4/2)、4 月 (4/2～4/30)

(2) 無トリチウム水供給の位置による Pt 触媒活性の変化の検討

ア 採取条件

これまでどおり Pt 触媒の上流側（前）で加湿を行う採取装置（以下、Pt 前加湿）と、Pt 触媒下流側（後）で無トリチウム水による加湿を行う採取装置（以下、Pt 後加湿）の 2 台の採取装置（図 3）により、同時に HTO、HT 及び CH₃T の採取を行った。

その他の採取条件は以下のとおり。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：約 4 週間
- ・大気採取流量： 1.5 L/min
- ・大気採取量：約 60 m³

イ 採取地点

青森市駐在テレメータ室（室内の空気を採取）

ウ 採取時期

平成 27 年 10 月 (10/5～11/4)、平成 27 年 11 月 (11/12～12/11)、平成 27 年 12 月 (12/11～1/8)

2.3 分析方法

試料採取後のカラムを管状炉に設置し、窒素ガスを流しながら 400℃に加熱し、追い出した水蒸気を冷却管により冷却し、試料水として回収した。

回収した試料水に過酸化ナトリウム及び過マンガン酸カリウムを添加し減圧蒸留した後、試料水の量に応じて容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアル（6000477、Perkin Elmer Japan）又は POLYVAIALS145（BIN-PT145、ZINSSER ANALYTIC）を用い、それぞれ試料水 10 mL または 50 mL

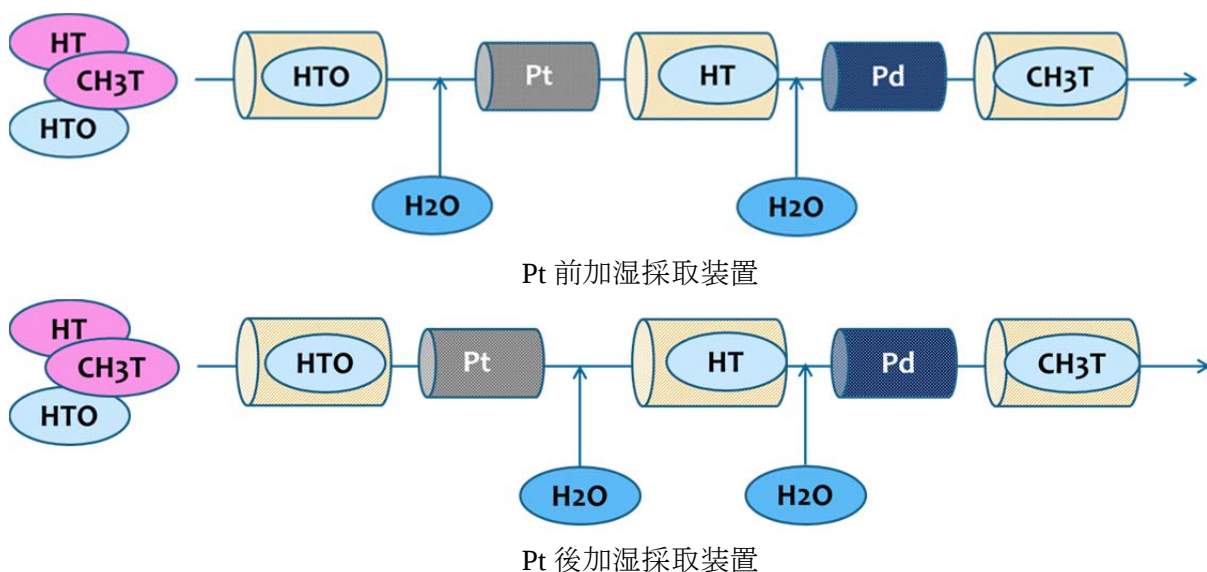


図 3 無トリチウム水供給位置の検討に用いた採取装置の概要

に液体シンチレータ（Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan）を同量混合し、測定試料とした。試料水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定は液体シンチレーション計数装置（LSC-LB5、日立アロカメディカル）により行い、測定時間は、2.2 (1) については 4000 分（50 分 × 80 回）、2.2 (2) については 2000 分（50 分 × 40 回）とした。

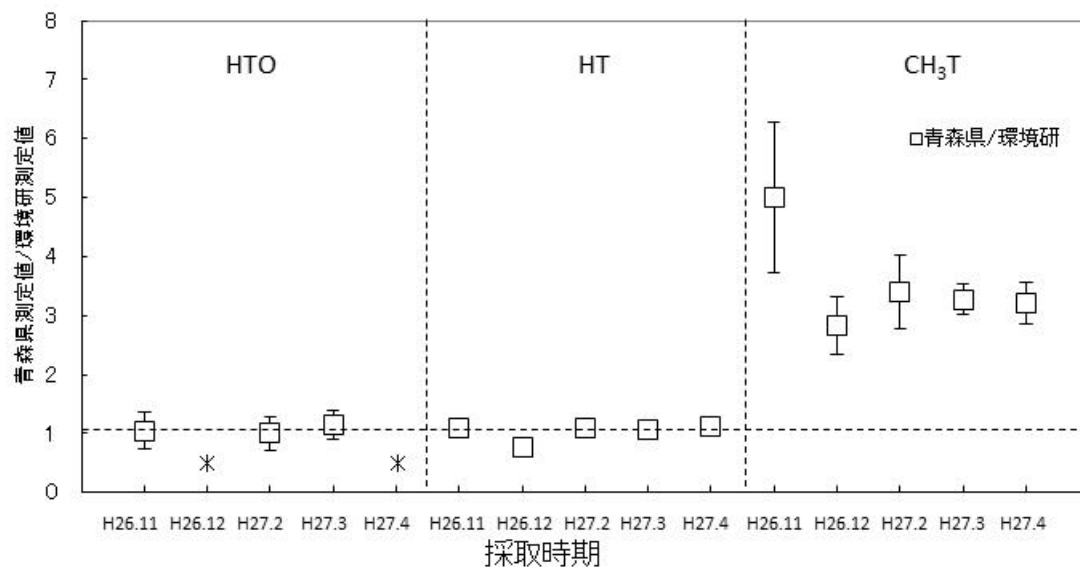
試料水中のトリチウム測定結果及び大気採取量をもとに HTO、HT 及び CH₃T の大気中濃度を算出した。

3. 調査結果

3.1 並行採取によるガス添加法との比較

環境研構内において並行採取した試料の測定結果を図 4 に示す。同時期に採取した環境研の測定値に対する県の測定値の比（県/環境研）としてプロットした。県の測定結果は、約 4 週間採取した 1 つの試料の測定値であり、環境研の測定結果は、県の測定結果と比較するため、約 2 週間ごとに採取した 2 つの試料の測定値¹⁴⁾を、各試料の大気採取量を考慮して加重平均したものを用いた。図の誤差棒は、合成した計数誤差である。

両機関の測定結果について、HTO 及び HT は概ね一致したが、CH₃T は県の測定結果が環境研の測定結果と比較して高くなった。キャリアとして添加している無トリチウム水により HT 酸化用の Pt 触媒の活性が低下し、酸化されなかった HT が下流の CH₃T 捕集部に混入している可能性がある。HT は CH₃T に比べて濃度が高く（県の測定結果 HT : 3.3~5.6 mBq/m³、CH₃T : 1.7~2.0 mBq/m³）、HT の一部が酸化されず下流の CH₃T 捕集部に移行しても HT 濃度に大きな影響はないが、CH₃T の濃度には比較的大きく影響しているものと考えられる。



*環境研の測定値が検出限界以下だったため、非表示

図4 並行採取による測定結果（県/環境研 県：加湿カラム法 環境研：ガス添加法）

3.2 無トリチウム水供給位置の変更による Pt 触媒活性の変化

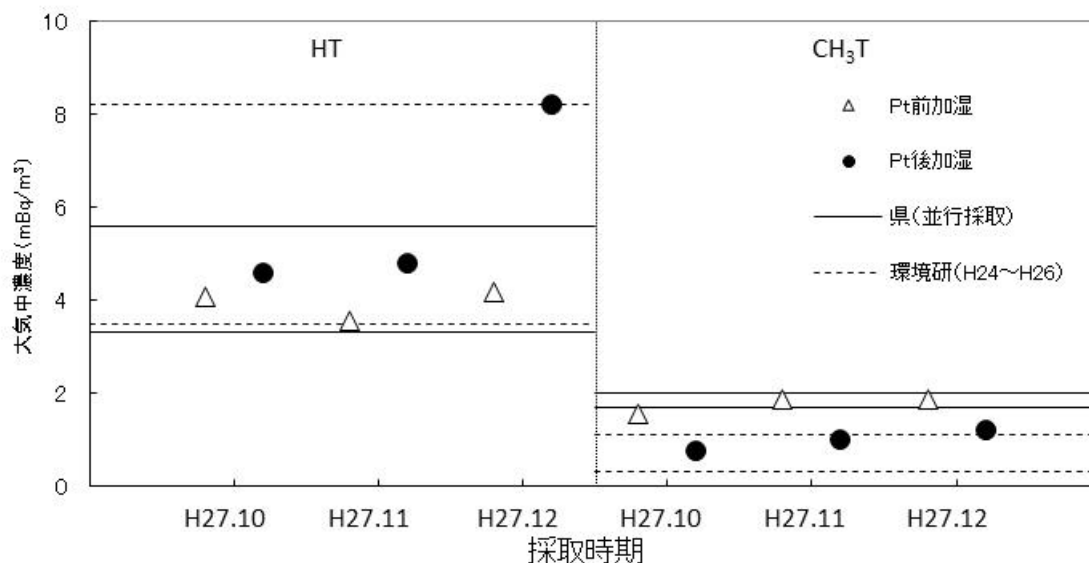
HT 酸化用の Pt 触媒の活性を低下させることなく、キャリアである無トリチウム水を添加するため、無トリチウム水の供給位置を Pt 触媒下流側（Pt 後加湿）に変更することとし、これまでの方法（Pt 前加湿）と比較、検討した（図3）。

それぞれの方法により採取した試料について、HT 及び CH₃T を測定した結果を表1及び図5に示す。HT については、Pt 前加湿では 3.6～4.2 mBq/m³、Pt 後加湿では 4.6～8.2 mBq/m³であり、Pt 後加湿の方が高く、CH₃T については、Pt 前加湿では 1.6～1.9 mBq/m³、Pt 後加湿では 0.74～1.2 mBq/m³であり Pt 後加湿の方が低かった。

また、比較のため、図5には採取期間、採取流量等の採取条件が概ね同じである3.1の県と環境研の並行採取における県の測定結果、及び平成24年～平成26年における環境研の測定結果^{12)～14)}の範囲を記載した。HT については、Pt 後加湿の平成27年12月分を除き3.1の県の測定結果（3.3～5.6 mBq/m³）と同程度であり、いずれの試料でも環境研の平成24年度～平成26年度の測定結果（3.5～8.2 mBq/m³、採取期間2週間毎）と同程度であった。CH₃T については、Pt 前加湿は3.1の県の測定結果（1.7～2.0 mBq/m³）と同程度と高めであったが、Pt 後加湿の測定結果は、環境研の平成24年度～平成26年度の測定結果（0.30～1.1 mBq/m³、採取期間2週間毎）と同程度であり、Pt 後加湿の方法により、Pt 触媒の活性の低下を防ぐことができた可能性がある。

表1 無トリチウム水供給の位置の変更による Pt 触媒活性の変化の検討

採取期間	Pt 前加湿		Pt 後加湿	
	HT 濃度(mBq/m ³)	CH ₃ T 濃度(mBq/m ³)	HT 濃度(mBq/m ³)	CH ₃ T 濃度(mBq/m ³)
H27.10.5~11.4	4.1 ± 0.062	1.6 ± 0.056	4.6 ± 0.068	0.74 ± 0.063
H27.11.12~12.11	3.6 ± 0.083	1.9 ± 0.057	4.8 ± 0.087	1.00 ± 0.041
H27.12.11~H28.1.8	4.2 ± 0.061	1.9 ± 0.053	8.2 ± 0.082	1.20 ± 0.064



— : 県測定結果（並行採取）の範囲

- - : 環境研測定結果（H24～H26）の範囲

図5 無トリチウム水供給の有無及び位置の変更による測定結果

4. まとめ

並行採取により県と環境研の測定結果を比較したところ、HTO 及び HT は概ね一致したが、CH₃T は県の測定結果が環境研の測定結果と比較して高くなった。キャリアとして添加している無トリチウム水により HT 酸化用の Pt 触媒の活性が低下し、HT が下流の CH₃T 捕集部に混入しているためと考えられた。このため、無トリチウム水の供給の位置を変更し、Pt 触媒下流側（後）で無トリチウム水の加湿を行ったところ、CH₃T 測定結果が過去の環境研の測定結果と近くなり、Pt 触媒の活性の低下を防ぐことができた可能性がある。今後、環境研と再度並行採取を行い、この試料採取方法の妥当性を確認する。

文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, *Isotope News*, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of ³H released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 262, 569-572 (2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*, 416-420 (2003)
- 4) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁 : 核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中 ³H 濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299 (2006)
- 5) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓 : 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発、日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323 (2007)

- 6) 財団法人環境科学技術研究所：平成 18 年度放出放射能環境分布調査報告書，164(平成 19 年)
- 7) 財団法人環境科学技術研究所：平成 19 年度放出放射能環境分布調査報告書，105(平成 20 年)
- 8) 財団法人環境科学技術研究所：平成 20 年度放出放射能環境分布調査報告書，309(平成 21 年)
- 9) 財団法人環境科学技術研究所：平成 21 年度放出放射能環境分布調査報告書，345(平成 22 年)
- 10) 財団法人環境科学技術研究所：平成 22 年度排出放射能環境分布調査報告書，218(平成 23 年)
- 11) 財団法人環境科学技術研究所：平成 23 年度排出放射能環境移行調査報告書，193(平成 24 年)
- 12) 公益財団法人環境科学技術研究所：平成 24 年度排出放射能環境移行調査報告書，275(平成 25 年)
- 13) 公益財団法人環境科学技術研究所：平成 25 年度排出放射能環境移行調査報告書，249(平成 26 年)
- 14) 公益財団法人環境科学技術研究所：平成 26 年度排出放射能環境移行調査報告書，301(平成 27 年)

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 (平成 27 年度実施内容)

神 俊雄 赤石 新 松山 大
幸 進^{*1} 鈴木彩加^{*1} 岡村泰治^{*1}

1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成 18 年 3 月 31 日からアクティブ試験が行なわれており、Kr-85、トリチウム(H-3)、C-14 及び I-129 などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成 18 年 2 月 7 日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成 19 年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を開始した。平成 20 年度からは I-131 を追加し、平成 21 年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）を追加、平成 26 年度からは OBT をすべて非交換型 OBT として実施している。平成 26 年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

2. 平成 27 年度の調査計画と今後の進め方

平成 27 年度の調査計画を表 1 に示した。平成 25 年度まで、海藻類を除くすべての試料について、交換型 OBT と非交換型 OBT を合わせた OBT を、また、魚類については非交換型 OBT も調査してきたが、これらの OBT は生物体内での挙動が異なることや、交換型 OBT は分析室内空気中のトリチウムや試料中 TFWT の影響を受ける可能性があるため、平成 26 年度以降、海藻類を除くすべての試料について非交換型 OBT を調査することとしている。これらの調査結果については平成 28 年度にとりまとめることとしている。

*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 27 年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			H-3		C-14	I-129・131
			TFWT	非交換型 OBT		
牛乳 (原乳)	横浜町	4	○	○	○	—
	二 又		○	○	○	—
	豊 原		○	○	○	—
	六 原		○	○	○	—
精米	平 沼	1	—	○	○	—
	千 樽		—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	二又①		—	○	○	—
	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		○	○	○	—
バレイショ	尾 駁		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平 沼		○	○	○	—
魚類	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②		○	○	—	—
海藻類	六ヶ所村前面海域①	2	○	○	—	○

ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

神 俊雄 木村秀樹

1. はじめに

本県では、「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング実施要領」に基づき、環境試料（表土）中 I-129 の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」¹⁾（以下、「ヨウ素 129 分析法」）の放射化学分析法（ β 線測定）により実施している。

他方、文部科学省放射能測定法シリーズ「環境試料中ヨウ素-129 迅速分析法」²⁾（以下、「迅速分析法」）では、分離精製工程に固相抽出法を、測定に ICP 質量分析法を用いた、迅速で簡便な分析法が採用されている。

迅速分析法の分析条件における検出限界値（分析目標レベル）はヨウ素 129 分析法に劣るが、供試量を増加させ、さらに、イオン-分子反応セルにより、安定ヨウ素の 2 水素化物イオン ($^{127}\text{IH}_2^{2+}$) 及びキャリアガス（アルゴン）に不純物として含まれる Xe-129 を除去する機構を備えた ICP 質量分析装置（DRC-ICP-MS）を用いることで、検出限界値を向上させることが可能であることから³⁾、最適な化学分離等の条件、装置による測定条件を確認し、環境放射線モニタリングにおける種々の環境試料への適用可能性を検討する。

平成 22 年度の DRC-ICP-MS（ELAN DRC-e、パーキンエルマージャパン）整備以降、表土中 I-129、葉菜・海藻試料中 I-129 を分析における、検出限界値低減の検討を行ってきた。

平成 26 年度は、葉菜の模擬試料として、標準物質 2 種（NIST SRM1547 peach leaves（以下、「Peach leaves」）及び SRM1573a tomato leaves（以下、「Tomato leaves」））について、水酸化テトラメチルアンモニウム溶液（以下、「TMAH」）抽出と固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離・濃縮を組み合わせた手法により、ヨウ素担体無添加時のヨウ素回収率を評価し、Peach leaves については良好な回収率（0.91～1.05）を得た。一方、Tomato leaves については回収率が 0.19～0.23 と低かった。

平成 27 年度は Tomato leaves における回収率低下の原因を究明するため、共存ハロゲンがヨウ素回収率に及ぼす影響及び抽出条件の再確認を行ったほか、抽出時の TMAH 濃度の低減及び分析供試量の増加について検討した。

2. 調査方法

2.1 試料からのヨウ素の抽出

容量 100～250 mL の PFA 瓶（KURABO INDUSTRIES LTD.）に、試料及び濃度 2.5～25% の TMAH 溶液を分取し密栓した上で、80℃に設定した恒温槽内で 16 時間以上加熱し、試料中ヨウ素を抽出した。

2.2 固相抽出ディスクを用いたヨウ素の捕集・分離

試料抽出溶液を希釈し遠心分離した後、孔径 1.0 μm の PTFE 製メンブランフィルター（ADVANTEC、47 mm ϕ または 90mm ϕ ）を用いて吸引ろ過した。還元剤として 10%亜硫

表 1 I-127 測定条件

項 目	設 定 値
ネブライザーガス流量	1.05～1.06 L/min
補助ガス流量	0.75 L/min
プラズマガス流量	17 L/min
ICP RF 出力	1500 W
DRC ガス流量	—
積分時間	1 秒
繰返し回数	1 回
測定回数	3 回

酸ナトリウム（Wako、特級）溶液を加え、固相抽出ディスク（Empore 2252-Anion、3M、47 mmφ）に通液しヨウ素をディスクに保持させ、1M 硝酸溶液 15 mL（Wako、特級）でヨウ素を溶出させた。

2.3 測定用試料の調製

固相抽出ディスク溶出液に 25%TMAH 溶液 6 mL を加えアルカリ性とした後、次亜塩素酸ナトリウム溶液 0.5 mL 及び内標準元素としてロジウム 1 µg を加え、超純水で 100 mL に定容し、I-127 測定用試料溶液とした。

2.4 測定

作製した溶液について、DRC-ICP-MS により I-127 の定量を行った。ICP 質量分析装置の測定条件を表 1 に示す。

3. 調査結果及び考察

3.1 固相抽出ディスクによるヨウ素回収率に及ぼす共存ハロゲン元素の影響の検討

平成 26 年度に実施した検討において、Tomato leaves 中ヨウ素の回収率が低かったことから両試料の組成を比較したところ、Tomato leaves では Peach leaves と比較して塩素、臭素とも濃度が高く、これらの共存ハロゲン元素が固相抽出ディスクによるヨウ素の捕集効率に影響を与えている可能性があると考えられたことから、高濃度の塩化物・臭化物イオン共存下での固相抽出ディスクによるヨウ素回収率を確認することとした。

試料調製の条件を表 2 に、分析から測定までのフローを図 1 に示す。100 mL PFA 瓶に塩化物イオン標準溶液もしくは塩化ナトリウム、または臭化物イオン標準溶液とヨウ素担体を分取し、還元剤として 10%亜硫酸ナトリウム溶液 3 mL を加え、1%TMAH 溶液で 100 mL 程度とした。また、試薬ブランク及び、塩化物イオンとして用いた NaCl ブランクを同様に調製した。固相抽出ディスクに通液しヨウ素をディスクに保持させ、1 M 硝酸溶液 15 mL でヨウ素を溶出させた。溶出液に 25%TMAH 溶液 6 mL を加えアルカリ性とした後、次亜塩素酸ナトリウム溶液 0.5 mL 及び内標準元素としてロジウム 1 µg を加え、超純水で 100 mL に定容し、I-127 測定用試料溶液とした。作製した溶液について、ICP 質量分析装置により I-127 の定量を行った。

表 2 共存ハロゲン元素の影響の検討における試料調製条件

試料名	I 添加量	ハロゲン添加量
BL	-	-
Cl×1,000		1 mgCl/mL 1 mL (Cl 1 mg)
Cl×10,000	1 µg	1 mgCl/mL 10 mL (Cl 10 mg)
Cl×100,000		NaCl 0.17 g (Cl 100 mg)
NaClBL	-	NaCl 0.17 g (Cl 100 mg)
Br×100		1 mgBr/mL 0.1 mL (Br 0.1 mg)
Br×1,000	1 µg	1 mgBr/mL 1 mL (Br 1 mg)
Br×10,000		1 mgBr/mL 10 mL (Br 10 mg)

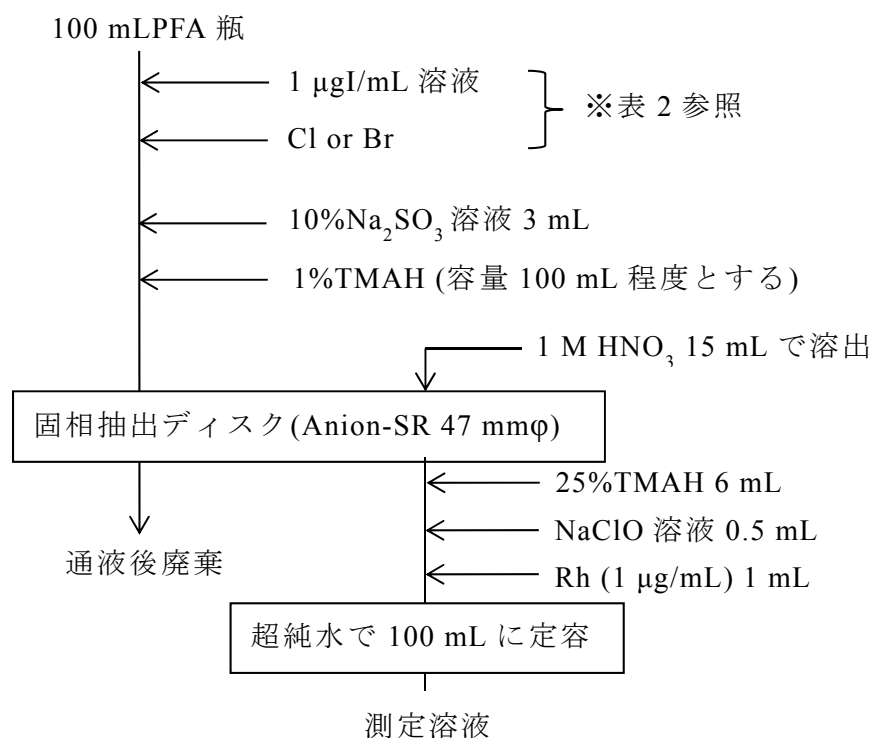


図 1 共存ハロゲン元素の影響の検討における分析フロー

測定結果を表 3 に示す。試薬ブランク (BL) にある程度ヨウ素が検出されているが、同一試薬を用いた NaClBL では比較的計数が小さいことから、これは試薬の汚染ではなく、個別の PFA バイアル汚染によるものと考えられる。このため、試薬ブランクの差し引きは行っていない。また、Br×1,000 の回収率が 1 を大きく超えているのも同様に、バイアルの個別汚染であると考えられる。

この他の試料では、Br×100 の回収率が少々低いものの、回収率はほぼ 1 であり、大過剰の塩化物・臭素物イオン共存下でも、固相抽出ディスクによるヨウ素の回収にはほとんど影響がないという結果が得られた。

なお、試薬ブランク試料等に汚染が見られたことから、以降の検討では、試料に直接接触する器具類は、すべて新規に調製した 20%NaOH 溶液中で煮沸洗浄し、純水・超純水で洗浄した上で使用した。

表 3 共存ハロゲン元素の影響の検討におけるヨウ素濃度測定結果と回収率

試料名	測定試料中 濃度(ppb)	測定試 料量 (mL)	ヨウ素 添加量 (μg)	測定試料中 ヨウ素量 (μg)	回収率
BL	1.89	-	-	-	-
Cl $\times$ 1,000	10.4			1.04	1.04
Cl $\times$ 10,000	10.7	100	1	1.07	1.07
Cl $\times$ 100,000	10.0			1.00	1.00
NaClBL	0.45	-	-	-	-
Br $\times$ 100	8.92			0.892	0.892
Br $\times$ 1,000	12.2	100	1	1.22	1.22
Br $\times$ 10,000	10.3			1.03	1.03

3.2 Tomato leaves 抽出条件の再確認

これまでの検討における抽出条件である試料 (Tomato leaves) 1 g に 25%TMAH 5 mL を添加した状態は、極めて粘性が高いため、抽出前の混合が不十分な場合、試料が塊になったまま TMAH 溶液に接触せず、抽出されない部分が生じる。また、試料が器壁に付着した場合は、その後の加熱抽出工程においても器壁に付着したままとなり、加熱中の水の還流により TMAH が洗い落とされることにより、抽出が不十分な状態となる。これらを踏まえ、平成 26 年度の検討においてヨウ素回収率が低かった Tomato leaves について、抽出時の混合状態等に留意し、分析を行った。

図 2 に分析フロー、表 4 に分析条件を示す。Tomato leaves 1 g を 100 mL PFA 瓶に秤取りし、25%TMAH 溶液 5 mL を加え密栓し、80℃に設定した恒温槽内で加熱した。16 時間加熱後、器壁に付着した一部試料を容器内の抽出液により洗い落とし、さらに 3 時間加熱した。放冷後、水を加えて 80 mL 程度に希釈し、試料溶液を遠心分離した (3500 rpm、4 時間)。さらに固相抽出ディスクの目詰まりを抑えるため、溶液を孔径 1.0 μm の PTFE 製メンブランフィルターを用いて吸引ろ過した。還元剤として 10%亜硫酸ナトリウム溶液 3 mL を加え、固相抽出ディスクに通液しヨウ素をディスクに保持させ、1 M 硝酸溶液 15 mL でヨウ素を溶出させた。溶出液に 25%TMAH 溶液 6 mL を加えアルカリ性とした後、次亜塩素酸ナトリウム溶液 0.5 mL 及び内標準元素としてロジウム 1 μg を加え、超純水で 100 mL に定容し、I-127 測定用試料溶液とした。作製した溶液について、I-127 の定量を行った。分析に当たっては同一の試料を 3 個作成し、ブランク試料と合わせて計 4 試料について並行して分析を進めた。

測定結果を表 5 に示す。BL に多少ヨウ素が混入しているが、回収率の評価に支障のない程度と考えられる。各試料ともほぼ 100%の回収率を得ており、抽出時の十分な混合に留意することにより、Tomato leaves についても固相抽出ディスクを用いて定量的にヨウ素を回収できることが示された。平成 26 年度の調査において、Tomato leaves 中 I-127 の回収率が低くなった原因は、試料の混合不足及び、粘性の高い試料の器壁への付着に起因するものと考えられる。

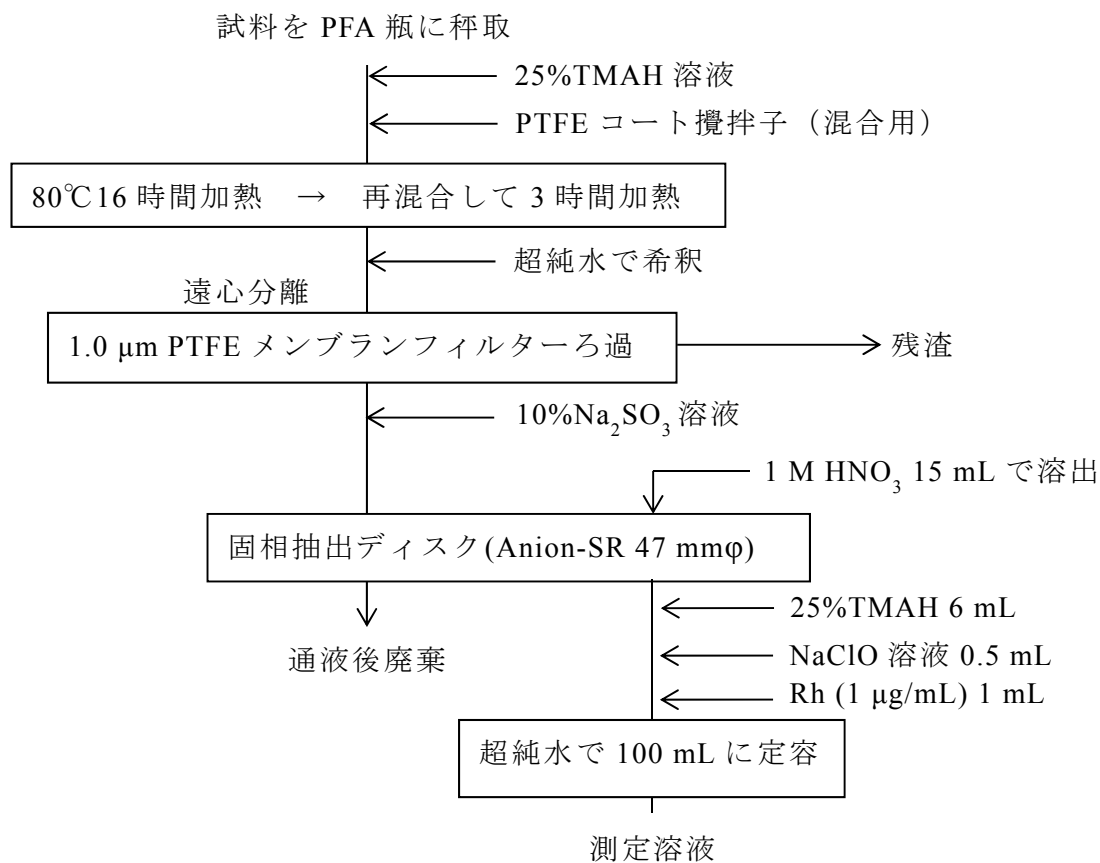


図 2 Tomato leaves 中ヨウ素の分析における分析フロー

表 4 Tomato leaves 抽出条件の再確認における分析条件

試料名	供試量 (g)	PFA 瓶 容量 (mL)	抽出液量(mL)		希釈 容量 (mL)	遠心分 離時間 (h)	PTFE メン ブランフィ ルター径	10% Na ₂ SO ₃ 添加量 (mL)	ディスク 使用数
			25% TMAH	超純 水					
BL	0								
Tomato1		100	5	0	～80	3	47 mmφ	3	1
Tomato2	1								
Tomato3									

表 5 Tomato leaves 抽出条件の再確認におけるヨウ素濃度測定結果と回収率

試料名	測定溶液中 ヨウ素濃度 (ppb = ng/mL)	測定 溶液量 (mL)	測定溶液中 ヨウ素量 (μg)	供試量 (g)	試料中 ヨウ素濃度 (μg/g)	回収率*	参考値 (μg/g)
BL	0.342	100	0.034	-			-
Tomato1	8.69		0.869		0.869	1.02	
Tomato2	8.77	100	0.877	1	0.877	1.03	0.85
Tomato3	8.91		0.891		0.891	1.05	

* 参考値に対する試料中ヨウ素濃度の比

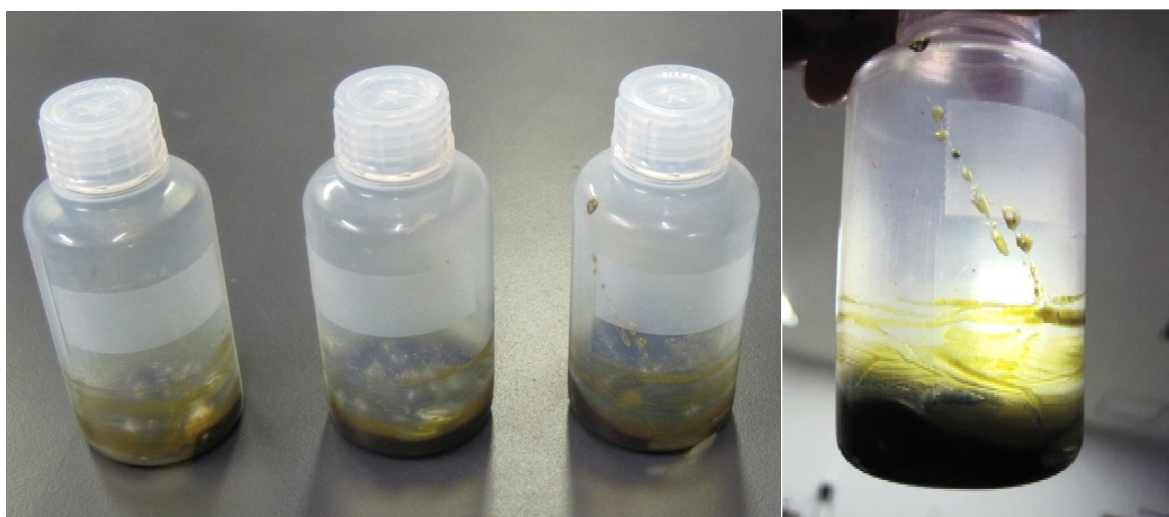


図3 Tomato leaves 1 g と 25%TMAH 5 mL を混合した直後の試料
右図はバイアルを傾け天井の蛍光灯に透かした状態

3.3 抽出時の TMAH 濃度低減の検討

本分析法における課題の一つに、TMAH 抽出後の溶液のろ過時間の短縮がある。ろ過に供する液量を低減するため、抽出時の固液比は可能な限り少なくすることが望ましいと考えられることから、平成 26 年度以降、ヨウ素抽出の際には、平成 25 年度の検討において試料中ヨウ素を定量的に抽出可能とされた中で、最も 25%TMAH 溶液の使用量が少ない条件である固液比 1:5 を採用して検討を進めてきた。しかし、この条件では試料の粘性が高く、試料の混合不足や、器壁への付着の影響により、分析の再現性に問題がある。抽出時に用いる 25%TMAH 溶液の量を増やすことで、この問題は解決できるが、抽出後のろ過時には発泡低減のため、抽出液を純水で希釈し TMAH 濃度を下げる必要があり、ろ過に供する溶液量の増加が懸念される。このため、抽出段階での TMAH 濃度を下げ、希釈後の溶液量を減量することを目的とし、定量的にヨウ素を抽出できる TMAH 濃度条件を検討する。

図 2 の分析フロー及び表 6 の分析条件により、測定溶液を調製し、I-127 の定量を行った。

表 6 抽出時の TMAH 濃度低減の検討における分析条件

試料名	供試量 (g)	PFA 瓶 容量(mL)	抽出液量(mL)		希釈 容量 (mL)	遠心分 離時間 (h)	PTFE メンブラン フィルター 径	10% Na ₂ SO ₃ 添加量 (mL)	ディスク 使用数
			25% TMAH	超純水					
BL	0		10	0					
等倍			10	0					
2 倍	1	100	5	5	～80	4	47 mmφ	3	1
4 倍			2.5	7.5					
10 倍			1	9					

表 7 抽出時の TMAH 濃度低減の検討におけるヨウ素濃度測定結果と回収率

試料名	測定溶液中 ヨウ素濃度 (ppb = ng/mL)	測定 溶液量 (mL)	測定溶液中 ヨウ素量 (μg)	供試量 (g)	試料中 ヨウ素濃度 (μg/g)	回収率*	参考値 (μg/g)
BL	0.539	100	0.054	-	-	-	-
等倍	8.23	100	0.823	1	0.823	0.97	0.85
2 倍	8.25		0.825		0.825	0.97	
4 倍	7.64		0.764		0.764	0.90	
10 倍	6.84		0.684		0.684	0.80	

* 参考値に対する試料中ヨウ素濃度の比

測定結果を表 7 に示す。BL に多少ヨウ素が混入しているが、回収率の評価には大きな影響を与えない程度と考えられる。抽出時の TMAH 濃度低下とともにヨウ素回収率も低下するが、原液の 2 倍希釈、TMAH 濃度で 12.5% 程度までは、同量の 25% TMAH 溶液原液で抽出した場合と同様、ほぼ 100% の回収率が得られている。

3.4 分析供試量増加の検討

これまでの検討により、抽出に用いる TMAH 濃度を 12.5% にしても、ヨウ素を定量的に抽出できることがわかったため、この抽出液を用いて分析供試量を 1~10 g まで変化させて回収率の検討を行った。

図 2 の分析フロー及び表 8 の分析条件により、測定溶液を調製し、I-127 の定量を行った。

測定結果を表 9 に示す。BL に多少ヨウ素が混入しているが、回収率の評価には大きな影響を与えない程度と考えられる。供試量 1~5 g では 100% 前後の回収率が得られているが、供試量 10 g では他の試料と比較して回収率が低めとなっている。供試量 10 g の場合のみ、固相抽出ディスクからの溶離液が緑色に着色しており（図 4）、再分析を行ったところ、この状況の再現性を確認したため、今後、適切な分析条件の検討を行う。

表 8 分析供試量増加の検討における分析条件

試料名	供試量(g)	PFA 瓶容量(mL)	抽出液量(mL)		希釈容量(mL)	遠心分離時間(h)	PTFEメンブレンフィルター径	10% Na ₂ SO ₃ 添加量(mL)	ディスク使用数
			25% TMAH	超純水					
BL	0	100	5	5	～80		47 mmφ	3	1
1 g	1	100	5	5	～80	4	47 mmφ	3	1
2 g	2		10	10	～80			3	1
5 g	5	250	25	25	～400		90 mmφ	10	2
10 g	10		50	50	～400			10	1

表 9 分析供試量増加の検討におけるヨウ素濃度測定結果と回収率

試料名	測定溶液中ヨウ素濃度(ppb = ng/mL)	希釈倍率	測定溶液量(mL)	測定溶液中ヨウ素量(μg)	供試量(g)	試料中ヨウ素濃度(μg/g)	回収率*	参考値(μg/g)
BL	0.252	1	100	0.025	-	-	-	-
1 g	9.26	1	100	0.926	1	0.926	1.09	0.85
2 g	15.4	1		1.54	2	0.77	0.91	
5 g	4.73	10		4.73	5	0.946	1.11	
10 g	6.83	10		6.83	10	0.683	0.80	

* 参考値に対する試料中ヨウ素濃度の比

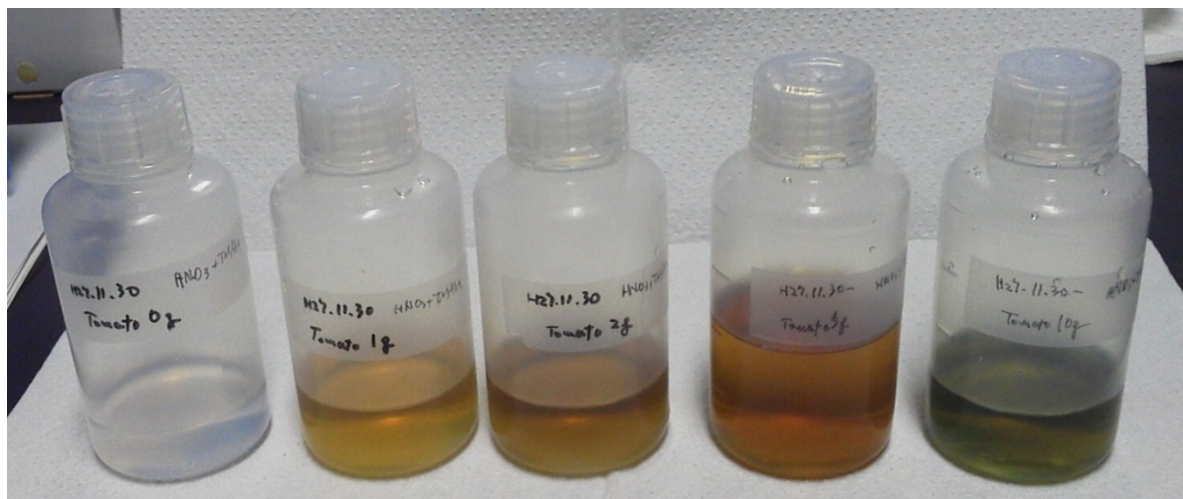


図 4 固相抽出ディスク溶離直後の試料（左から BL、1 g、2 g、5 g、10 g）

4. まとめ

これまでの検討により、以下のことが明らかとなった。

- 大過剰のハロゲンイオンが共存しても、固相抽出ディスクによるヨウ素の捕集には影響を与えない
- 抽出の際の混合状態に留意することにより、Tomato leaves でも良好なヨウ素回収率が得られる
- 抽出に用いる TMAH を 12.5%まで希釈しても、ヨウ素を定量的に抽出できる
- Tomato leaves 供試量 1～5 g の範囲では良好な回収率を得られるが、供試量 10 g では回収率が低めとなった

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26「ヨウ素 129 分析法」(平成 8 年)
- 2) 文部科学省放射能測定シリーズ 32「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」(平成 16 年)
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)

編 集 委 員

木村秀樹（委員長） 圓山浩二（副委員長） 佐々木 守 松山 大
神 俊雄 武藤逸紀 神 正志

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 10 号 （2015）

平成 28 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

