

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 5 号

平成 22 年度

Bulletin

Of

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.5 (2010)

青森県原子力センター

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

は じ め に

青森県では、六ヶ所村において、日本原燃(株)のウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センター、再処理工場の一部である使用済燃料受入れ・貯蔵施設が操業しており、再処理工場本体については試験運転の最終段階であるアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）中であり、MOX燃料加工施設（平成28年3月しゅん工予定）の建設工事が進められております。東通村においては、東北電力(株)東通原子力発電所1号機が営業運転しており、東京電力(株)東通原子力発電所1号機（平成29年3月運転開始予定）の建設工事も始まりました。また、大間町には全炉心MOX燃料装荷可能な電源開発(株)の大間原子力発電所（平成26年11月運転開始予定）、むつ市には使用済燃料中間貯蔵施設であるリサイクル燃料貯蔵(株)のリサイクル燃料備蓄センター（平成24年7月事業開始予定）の建設工事が進められているところです。

原子力センターでは、多様な原子力施設に係る環境放射線モニタリングを着実に実施するため、放射性廃棄物の放出管理など原子力施設そのものを知ることに加え、環境放射能分析に係る専門研修を受講したり、関係する学会等から最新の技術的課題に関する情報を収集することで、職員のモニタリング技術と意欲の維持・向上を図ってきております。また、モニタリング結果の評価上の課題となっているものについては、調査研究事業として取り組んでいるところであり、モニタリングにおける線量評価の妥当性を確認したり、必要に応じて改善に資する観点から、モニタリングを実施する上で欠かすことのできない重要な業務となっています。

本所報は、当センターが実施している調査研究事業の成果を取りまとめるとともに、日常の環境放射線モニタリング業務から得られた技術的知見を取りまとめたものです。ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご指摘をいただければ幸いに存じます。

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全力で業務を進めて参る所存でございますので、関係各位におかれましては、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23年3月

青森県原子力センター

所 長 庄 司 博 光

目 次

I 研究報告

1. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
武藤逸紀 安田 浩 竹ヶ原 仁 松村浩治
今井慎一 根本 誠 城戸寛子

II 技術報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 25
ー平成 21 年度調査結果ー
大下内 伸 竹ヶ原 仁 大坂直人 木村秀樹
五十嵐飛鳥 幸 進 岡 光昭 武石 稔
2. 表土中ヨウ素-129 分布調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 35
工藤俊明 五十嵐飛鳥
3. 東通原子力発電所に係る空間 γ 線スペクトル測定調査・・・・・・・・ 43
成田 俊 貝森優希 工藤俊明 安積 潔 斎藤 陽

III 学会等発表要旨・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 55

IV 平成 22 年度調査研究事業報告

1. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・・・・・ 59
2. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・ 60
3. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 65
4. 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・・・・・・・・ 66
5. 表土中ヨウ素-129 分布調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 71
6. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討・・・・・・・・ 72
7. 東通原子力発電所に係る空間 γ 線スペクトル測定調査・・・・・・・・ 74

I 研 究 報 告

環境放射能拡散シミュレーションシステム

武藤逸紀 安田 浩 竹ヶ原 仁 松村浩治*¹
今井慎一*² 根本 誠*³ 城戸 寛子*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年度にシステムを構築した。

平成17年度から平成18年度は、環境モニタリングにおけるクリプトン-85濃度及び空間放射線量率の調査結果を用いてシステムの検証を行い、平成19年度は精度向上及び機能の追加を目的として検討を行った。平成20年度はこれらの検討をもとに風速場評価機能の精度向上、トリチウム（HT、HTO）やヨウ素-129等の計算を目的とした降水等による地表沈着計算機能の追加、被ばく線量評価計算機能の追加、トリチウム計算モデルの追加によるシステムの高度化を行った。

平成21年度は高度化したシミュレーションシステムを用い、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間についてシミュレーションシステムによる計算結果との比較・検討を行うとともに、パラメータ調整等によりシステムの最適化を行った。

本報告ではシミュレーションシステムを用いて計算を行い、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間において、空間放射線量率の施設寄与分、大気中クリプトン-85濃度、大気中ヨウ素-129濃度及びヨウ素-129降下量、大気中HTO濃度について計算結果と測定値の比較・検討を行った。

2. 調査方法

2.1 計算の概要

本シミュレーションシステムは、再処理工場主排気筒の放出情報及び再処理工場やモニタリングステーション（以下「MS」という。）の気象観測値を用いて、放射性物質の拡散計算を行い施設周辺の大気中濃度並びに被ばく線量を算出する。計算の概要について、以下に示す。

(1) 計算モード及び計算モデル

本シミュレーションシステムは、2つの計算モード及び3つの計算モデルを有している。その概要について以下に示す。

ア 計算モード

(ア) リアルタイム計算モード

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。）から最新データを取得し計算を行い、10分ごとに計算結果を自動更新する。

(イ) シミュレーション計算モード

指定した期間について、データベースに保存したデータを用いて計算を行う。

*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

イ 計算モデル

本シミュレーションシステムは、プルームモデル、パフモデル、トリチウムモデルを有している。

各計算モード及び計算モデルにおける計算可能な項目を表1に示す。本報告ではシミュレーション計算モードによるパフモデル及びトリチウムモデルを中心に検討を行った。

表1 各モードにおける計算内容

| 計算モード | 計算モデル | 計算対象核種 | 計算項目 | | | | | |
|-------------|-----------|--------|-------|-------|----------------------|-----------|---------|----------|
| | | | 風速分布図 | 大気中濃度 | 放射性雲による γ線外部被ばく線量 | β線外部被ばく線量 | 内部被ばく線量 | 地表沈着率(量) |
| リアルタイムモード | パフモデル | Kr-85 | ○ | ○ | ○ | ○ | — | — |
| シミュレーションモード | プルームモデル | Kr-85 | — | ○ | ○ | ○ | — | — |
| | | I-129 | — | ○ | ○ | — | — | — |
| | | HT | — | ○ | — | — | — | — |
| | | HTO | — | ○ | — | — | — | — |
| | パフモデル | Kr-85 | ○ | ○ | ○ | ○ | — | — |
| | | I-129 | ○ | ○ | ○ | — | ○ | ○ |
| | | HT | ○ | ○ | — | — | ○ | — |
| | | HTO | ○ | ○ | — | — | ○ | ○ |
| | トリチウムモデル* | HT | ○ | ○ | — | — | ○ | — |
| | | HTO | ○ | ○ | — | — | ○ | ○ |

※乾性沈着及び湿性沈着により地表に沈着したトリチウムの再放出を考慮する。

(2) 計算範囲及び計算格子

設定可能な計算範囲及び計算格子について、以下に示す。

ア 計算範囲

10 km 四方、25 km 四方、80 km 四方、140 km 四方、260 km 四方の5段階から選択

イ 計算格子

(ア) 水平方向

最大 100 個×100 個

(イ) 鉛直方向

鉛直方向の層はσ座標を用いて分割する。第1層に一定の層厚さ係数を乗じて第2層の厚さを計算し、第2層に同じく層厚さ係数を乗じて第3層の厚さを計算し、これを最上面まで繰り返す。第2層以上の層厚さの最大は100 mで、層厚さ係数によらない。

最上面の標高 : 任意設定可能

第1層の厚さ : 任意設定可能

第2層以上の層の厚さ : 最大 100 m

層厚さ係数 : 任意設定可能

なお、本報告での計算範囲は再処理施設を中心とした25 km 四方、水平方向の計算格子は50 個×50 個とした。鉛直方向の計算格子については、最上面を標高2 km、第1層の厚さを25 m、層厚さ係数を1.15とした。

(3) 計算用データの取得

テレメータシステムから計算に必要な気象観測値及び再処理施設主排気筒の測定値をリアルタイム（10分間隔）で取得しデータベースに保存する。取得する項目については表2に示すとおり。テレメータシステムで取得できないトリチウム及びヨウ素-129の放出情報については計算を行う期間の放出量を別途計算しシステムに入力する。

表2 テレメータシステムから取得している計算用データ

| 測定地点 | 気象観測値 | | | | 放出量 | |
|----------------|------------------|-------------------|-------|----|-------------|------|
| | 風向・風速 (地上10m) | 風向・風速 (地上150m) | 大気安定度 | 雨量 | β 計数率 | 排気流量 |
| 尾駸 | ○ | — | ○ | ○ | — | — |
| 千歳平 | ○ | — | ○ | ○ | — | — |
| 平沼 | — | — | — | ○ | — | — |
| 泊 | — | — | — | ○ | — | — |
| 吹越 | — | — | — | ○ | — | — |
| 二又 | ○ | — | ○ | ○ | — | — |
| 老部川 | — | — | — | ○ | — | — |
| 室ノ久保 | — | — | — | ○ | — | — |
| 再処理工場 気象観測局 | ○ | ○ | ○ | ○ | — | — |
| 再処理工場 主排気筒 | — | — | — | — | ○ | ○ |

(4) パラメータ調整

シミュレーションシステムを用いた拡散計算において、以下のパラメータについては調整可能であり、必要に応じ調整する。

- ア パフモデルの放出パフごとの気象観測値の時間内挿の有無を選択する。
- イ Briggs の式¹⁾を参考に吹き上げ高さを求め、放出点の高さを一定の値として計算する。
- ウ 高度 z の風速の計算パラメータのべき指数 p について、気象条件を考慮して設定する。

(5) 風速場計算

パフモデル、トリチウムモデルを計算モデルに選択した場合は、地形データに沿った座標系の風速場を作成する。

- ア 地形データを考慮し水平方向及び鉛直方向の座標を補正する。
- イ 気象観測地点である再処理施設主排気筒及び MS において、大気安定度に応じてべき指数 p を設定する。
- ウ 気象観測地点である主排気筒及び MS において、主排気筒の風向（地上 150 m）及び MS の風向（地上 10 m）を用い、イで各地点において設定したべき指数 p を用いて最上面の風向・風速を計算する。
- エ ウで計算した気象観測地点の最上面の風速を用い、気象観測地点からの距離を考慮して水平内挿し、最上面の高度における各格子点の風速を求める。
- オ エで求めた最上面の格子点ごとの風速について、イで設定したべき指数 p を使って下向きに内挿し、全ての格子点における風速を求める。べき指数 p は各計算格子から最も近い気象観測地点の値を用いる。
- カ オで求めた 3次元風速場に質量保存則（MASCON モデル）を適用し、補正する。

(6) 移流・拡散計算及び大気中濃度計算

- ア プルームモデルは放出点の風速を用い、核種の物理的半減期を考慮して計算する。
- イ パフモデルは(5)で作成した風速場を用い、核種の物理的半減期、乾性沈着、湿性沈着を考慮して計算する。
- ウ トリチウムモデルは(5)で作成した風速場を用い、乾性沈着、湿性沈着、HTO の再放出を考慮して計算する。

(7) γ 線及び β 線による外部被ばく線量、吸入による内部被ばく線量、地表沈着率の計算

- ア プルームモデルは放射性雲による γ 線外部被ばく線量及び β 線外部被ばく線量を計算する。
- イ パフモデルは放射性雲による γ 線外部被ばく線量、 β 線外部被ばく線量、内部被ばく線量、地表沈着率を計算する。
- ウ トリチウムモデルは内部被ばく線量（吸入摂取及び経皮摂取）、地表沈着率を計算する。

2.2 計算の詳細

(1) パフモデル

パフモデルでは、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。

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1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。

$$\chi_{i,IP,x,y,z} = \frac{Q_{i,IP}}{(2\pi)^{1.5} \times \sigma_{X_{IP}} \times \sigma_{Y_{IP}} \times \sigma_{Z_{IP}}} \cdot \exp\left(-\frac{(x_{p_{IP}} - x)^2}{2\sigma_{X_{IP}}^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{(y_{p_{IP}} - y)^2}{2\sigma_{Y_{IP}}^2}\right) \cdot \left\{ \exp\left(-\frac{(z_{p_{IP}} + z)^2}{2\sigma_{Z_{IP}}^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z - z_{p_{IP}})^2}{2\sigma_{Z_{IP}}^2}\right) \right\} \dots \text{数式 1}$$

| | | |
|---|---|---|
| (| $\chi_{i,IP,x,y,z}$ | : 評価地点(x,y,z)の点における核種iの大気中濃度 (Bq/m ³) |
| | $Q_{i,IP}$ | : 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) |

計算間隔及びパフの放出間隔を設定することができ、本報告では計算間隔は 10 分間又は 1 時間、パフの放出間隔は 15 秒に設定している。パフモデルの時間内挿の有無を選択することができ、10 分ごとに取得している気象観測値を用いてパフの放出間隔の 15 秒ごとに時間内挿を行う。

時間内挿は数式2を用いて行う。

$$U(t + \Delta t) = U_1 + \frac{(U_{t+T} - U_t)}{n_{\max}} \cdot n \dots \text{数式 2}$$

| | | |
|---|-----------------|---|
| (| $U(t+\Delta t)$ | : 時刻 $t+\Delta t$ における風速(m/s) |
| | U_t | : 時刻 t における風速(m/s) |
| | U_{t+T} | : 時刻 $t+T$ における風速(m/s) |
| | n_{max} | : 気象ステップ間のパフの総ステップ数(= $T/\Delta t$) |
| | Δt | : パフのタイムステップ(sec) |
| | T | : 気象データのタイムステップ (sec) |
| | n | : 時刻 $t+\Delta t$ における気象ステップ間のパフのステップ数($n=1\sim n_{max}$) |

(2) トリチウムモデル

トリチウムモデルでは、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。

トリチウムの移流・拡散及び大気中濃度は数式 3 により計算する。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -u \frac{\partial C_i}{\partial x} - v \frac{\partial C_i}{\partial y} - w \frac{\partial C_i}{\partial z^*} + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_h \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_h \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z^*} \left(K_v \frac{\partial C_i}{\partial z^*} \right) \dots \text{数式 3}$$

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

| | | |
|---|--------------------|--------------------------------------|
| (| 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^2/s) |
| | C_i | : 大気中濃度(Bq/m^3) |
| | i | : トリチウムの化学形(=1 : HT、=2 : HTO) |
| | F_{source} | : 1 次放出フラックス($Bq/m^3/s$) |
| | $F_{reemission}$ | : 再放出フラックス($Bq/m^2/s$) |
| | F_{dry}, F_{wet} | : 乾性/湿性沈着率($Bq/m^2/s$) |
| | λ | : トリチウムの崩壊定数(1/s) |

(3) 吹き上げ高さの計算

放出点の高さは地上 150 m であるが、気象条件によって吹き上げ高さが増加することから、吹き上げ高さを調整して計算を行うことにより測定値と計算結果の一致度が向上する。吹き上げ高さは Briggs の式 (数式 4~8) ¹⁾ を参考に計算し、放出点の高さを一定の値としてシミュレーション計算を行った。

ア 有風時・中立

$$\Delta H = 3 \cdot \frac{W}{U} \cdot d \dots \text{数式 4}$$

(ただし、大気状態が中立、 $W/U \geq 4$)

| | | | | |
|---|------------|-------------|-----|---------------|
| (| ΔH | : 吹き上げ高さ(m) | W | : 吹き出し速度(m/s) |
| | U | : 風速(m/s) | d | : 排気筒出口直径(m) |

イ 有風時・安定

$$\Delta H = 1.5 \cdot \left(\frac{F_m}{U} \right)^{1/3} \cdot s^{-1/6} \dots \text{数式 5}$$

F_m : momentum flux parameter [m^4/s]

$$F_m = \left(\frac{\rho_0}{\rho_a} \right) \cdot \left(\frac{d^2 \cdot W^2}{4} \right) \approx \left(\frac{d^2 \cdot W^2}{4} \right) \dots \text{数式 6}$$

$$\because \left(\frac{\rho_0}{\rho_a} \right) \approx 1$$

| | | |
|---|--|---|
| (| ρ_0 : 排気密度(g/m^3) | ρ_a : 環境大気の密度(g/m^3) |
| | s : 安定性パラメータ($1/\text{s}^2$) | |
| | 大気安定度 E : 0.000876 | 大気安定度 F : 0.00175 |
| | 大気安定度 G : 0.00245 | |

ウ 静穏時 ($U < 0.5 \text{ m/s}$)

$$\Delta H = 4 \cdot \left(\frac{F_m}{s} \right)^{1/4} \dots \text{数式 7}$$

| | | |
|---|----------------------------------|-------------------|
| (| s : 安定性パラメータ($1/\text{s}^2$) | |
| | 大気安定度 A-E : 0.000876 | 大気安定度 F : 0.00175 |
| | 大気安定度 G : 0.00245 | |

エ ダウンウォッシュ時 ($W/U < 1.5$)

$$\Delta H = 2 \cdot \left(\frac{W}{U} - 1.5 \right) \cdot d \dots \text{数式 8}$$

(4) 高さ z における風速の計算

高さ z における風速は、高度 10 m の地上風 U_s から数式 9 のべき法則²⁾で計算している。

$$U_z = U_s (z/z_s)^p \dots \text{数式 9}$$

| | | |
|---|--|------------------------------------|
| (| U_z : 高さ z における風速(m/s) | U_s : 地上風(m/s) |
| | z : 地上高さ(m) | z_s : 地上風測定高さ(m) |
| | p : べき指数(-) | |
| | 大気安定度 A : 0.1 | 大気安定度 B : 0.15 |
| | 大気安定度 C : 0.2 | 大気安定度 D : 0.25 |
| | 大気安定度 E : 0.25 | 大気安定度 F : 0.3 |

数式 9 を用いた上空の風速の値が実際の気象と乖離するような気象条件において、再処理工場地上 10 m 及び地上 150 m の風速の測定値からべき指数 p を計算しシミュレーション計算を行った。

2.3 計算結果及び測定値の比較

本報告ではシミュレーションシステムを用いて以下の計算を行い、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間において、以下の項目について計算結果と測定値の比較・検討を行った。調査地点を図 1 に示す。

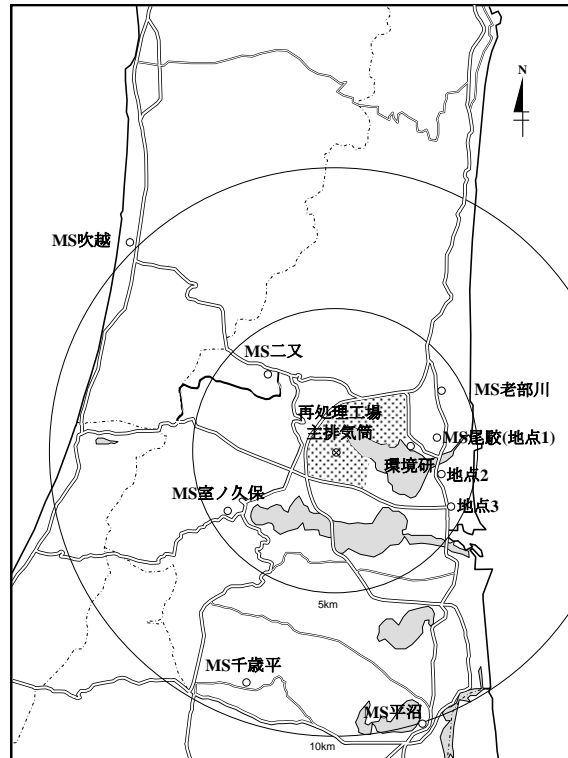


図1 再処理工場周辺における調査地点の位置

(1) 空間放射線量率の施設寄与分

パフモデルを用いて空間放射線量率の施設寄与分を10分間隔で算出し、青森県がMS尾駁、MS千歳平、MS吹越において調査している空間放射線量率（10分値）についてSCA弁別法³⁾を用いて求めた施設寄与分と比較した。

(2) 大気中クリプトン-85濃度

パフモデルを用いて大気中クリプトン-85濃度を10分間隔で算出し、青森県及び日本原燃(株)がMSにおいて調査しているβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタの測定結果（10分平均値）と比較した。

ア MS設置β線ガスモニタ

(ア) 青森県による測定地点

MS尾駁（地点1）

(イ) 日本原燃(株)による測定地点

MS二又、MS室ノ久保

イ 可搬型β線ガスモニタ

地点2、地点3

(3) 大気中ヨウ素-129濃度及びヨウ素-129降下量

パフモデルを用いてヨウ素-129大気中濃度及び沈着量を1時間間隔で算出し、(財)環境科学技術研究所（以下、「環境研」という。）が青森県からの委託事業として実施している放出放射能環境分布調査^{4)~6)}で報告している再処理工場から放出されたヨウ素-129の大気中濃度及び降下量（環境研構内において1ヶ月ごとに採取）と比較した。

(4) 大気中 HTO 濃度

トリチウムモデル及びパフモデルを用いて大気中 HTO 濃度を 1 時間間隔で算出し、青森県及び日本原燃(株)が環境放射線モニタリングで MS において調査している大気中水蒸気状トリチウム濃度の分析結果及び環境研が放射能環境分布調査⁵⁾で報告されている大気中形態別³H濃度のうち大気中 HTO 濃度と比較した。

ア 青森県による測定地点 (1 ヶ月ごとに採取)

MS 尾駮、MS 吹越

イ 日本原燃(株)による測定地点 (1 ヶ月ごとに採取)

MS 老部川、MS 二又、MS 室ノ久保

ウ 環境研構内 (1、2 週間ごとに採取)

3. 調査結果

3.1 空間放射線量率の施設寄与分を用いた比較・検討

シミュレーションシステム (パフモデル使用) により放出情報や気象情報等から空間放射線量率の施設寄与分を 10 分間隔で算出し、MS において調査している空間放射線量率 (10 分値) について SCA 弁別法³⁾を用いて求めた施設寄与分と比較した。また、1 時間あたりの γ 線による外部被ばく実効線量の分布計算も行った。比較検討の対象としたのは MS 尾駮、MS 千歳平、MS 吹越の空間放射線量率に施設寄与が認められた期間とした。

SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分と、シミュレーションシステムにより算出した空間放射線量率の施設寄与分の経時変化について図 2~5 に示す。

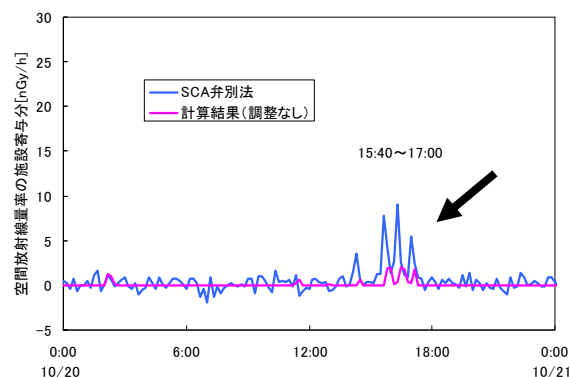


図 2 MS 尾駮における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化 (1)
(平成 18 年 10 月 20 日)

図 2 に MS 尾駮における経時変化を示す。シミュレーションシステムによる計算結果 (調整なし) は、SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分を概ね再現している。

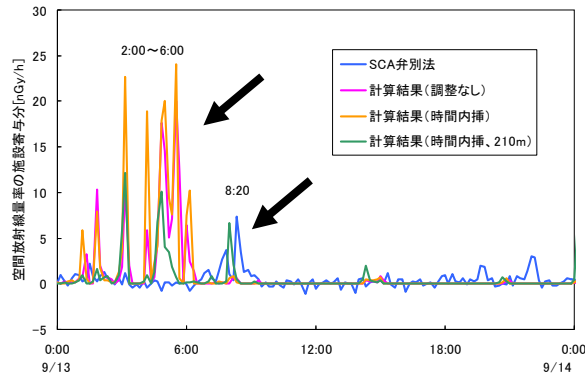


図3 MS尾駁における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化(2)
(平成19年9月13日)

図3にMS尾駁における経時変化を示す。シミュレーションシステムによる計算結果(調整なし)は平成19年9月13日2:00~6:00において過大となり、平成19年9月13日8:20の空間放射線量率の施設寄与分を再現できなかった。放出パフごとの時間内挿を行い計算したが一致度は向上しなかった。平成19年9月13日8:10(表3)の気象条件を用いて、数式4から吹き上げ高さを計算すると60mとなる。放出パフごとの時間内挿に加え、吹き上げ高さを考慮し放出高さを210mとして計算したところ、空間放射線量率の施設寄与分と計算結果の一致度が向上した。

表3 平成19年9月13日8:10の気象状況

| 観測地点 | 風向 | 風速(m/s) | 大気安定度 |
|---------------|-----|---------|-------|
| 再処理工場(地上10m) | WSW | 4.4 | C-D |
| 再処理工場(地上150m) | W | 5.7 | |

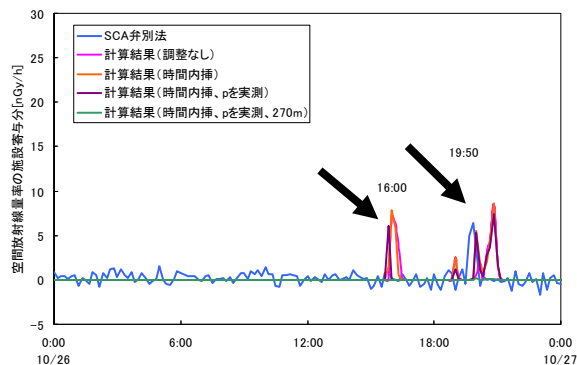


図4 MS千歳平における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化(3)
(平成19年10月26日)

図4にMS千歳平における経時変化を示す。平成19年10月26日16:00においてシミュレーションシステムによる計算結果(調整なし)は空間放射線量率の施設寄与分に対し過大となった。放出パフごとの時間内挿に加え、べき指数pを風速の実測値から計算したところ一致度は向上しなかったが、さらに吹き上げ高さを考慮し放出高さを270mにして計算したところ、一致度が向上した。

平成19年10月26日15:50において再処理工場(地上150m)の風速2.8m/sに対し、再処理工

場（地上 10 m）の風速は 0.5 m/s であった。数式 9 を用いて上空の風速を計算する場合、再処理工場の大気安定度が D であることからべき指数 p は 0.25 を用いる。実測の風速から p を求めると 0.64 であり、この値を用いると上空の風をより強い値として計算する。

平成 19 年 10 月 26 日 16:00 において数式 4 から吹き上げ高さを計算すると 120 m となる。放出パフごとの時間内挿、風速の実測値から求めたべき指数 $p(0.64)$ 、吹き上げ高さを考慮した放出高さ(270 m)で計算したところ、平成 19 年 10 月 26 日 16:00 において一致度が向上した。同日の気象状況を表 4 に示す。

また、平成 19 年 10 月 26 日 19:50 においてシミュレーションシステムによる計算結果（調整なし）は空間放射線量率の施設寄与分を再現できなかったが、放出パフごとの時間内挿を行い計算したところ一致度が向上した。

表 4 平成 19 年 10 月 26 日 15:50 の気象状況

| 観測地点 | 風向 | 風速(m/s) | 大気安定度 |
|----------------|----|---------|-------|
| 再処理工場（地上 10m） | W | 0.5 | D |
| 再処理工場（地上 150m） | NE | 2.8 | |

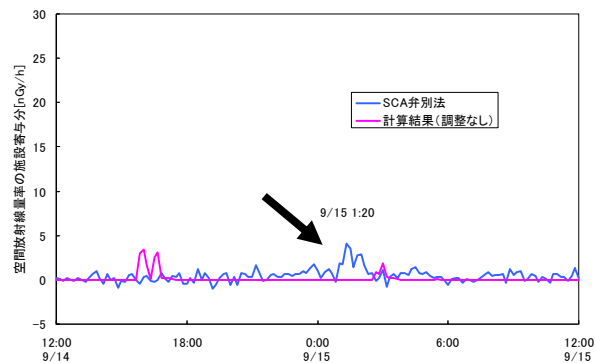


図 5 MS 吹越における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化（平成 19 年 9 月 14 日～15 日）

図 5 に MS 吹越における経時変化を示す。シミュレーションシステムによる計算結果は平成 19 年 9 月 15 日 1:20 の空間放射線量率の施設寄与分を再現できなかった。平成 19 年 9 月 15 日 1:10 における第 1 層（地上 0 m～地上約 25 m）の風速場を図 6 に、同日時の気象状況を表 5 に示す。また、平成 19 年 9 月 15 日 1:20 の 1 時間あたりの γ 線による外部被ばく実効線量の分布図を図 7 に示す。

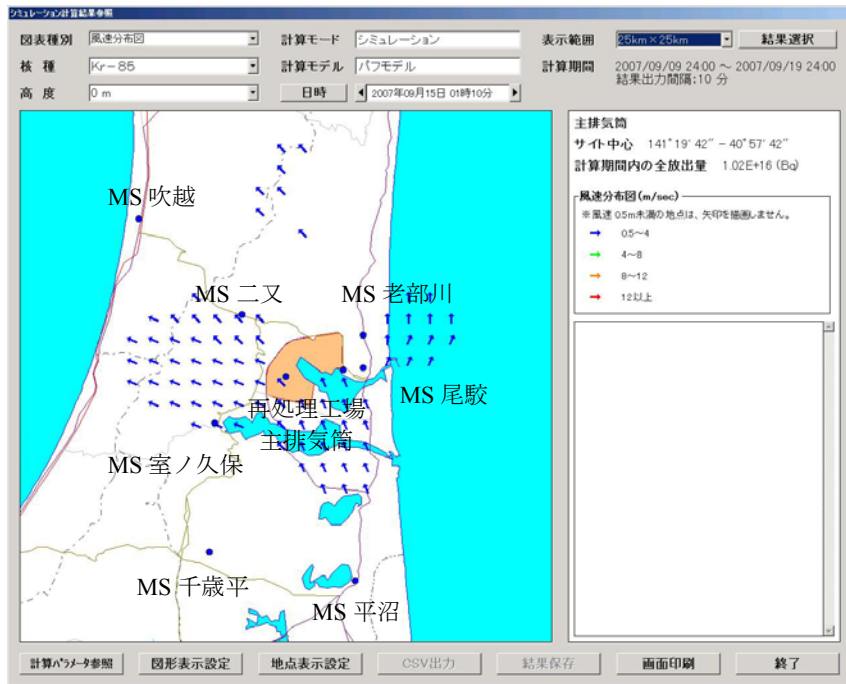


図6 平成19年9月15日1:10 第1層(地上0m~地上約25m)の風速場

表5 平成19年9月15日1:10の気象状況

| 観測地点 | 風向 | 風速(m/s) | 大気安定度 |
|---------------|-----|---------|-------|
| 再処理工場(地上10m) | SSE | 1.0 | D |
| 再処理工場(地上150m) | ESE | 2.4 | D |
| MS尾駁(地上10m) | SW | 0.8 | D |
| MS千歳平(地上10m) | C | 0.1 | D |
| MS二又(地上10m) | C | 0.1 | D |

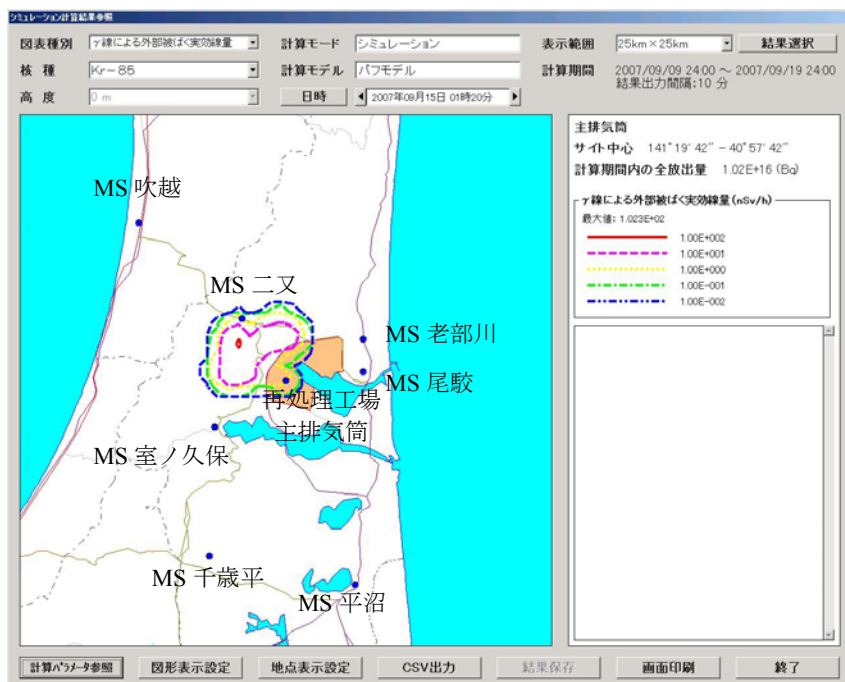


図7 平成19年9月15日1:20 1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量の分布図

MS 吹越における空間放射線量率の施設寄与分は平成 19 年 9 月 15 日 1:20 に上昇した。MS 二又において平成 19 年 9 月 14 日 23 時に空間放射線量率の施設寄与分が上昇しており、主排気筒から放出されたプルームは MS 二又から MS 吹越へ移流したと考えられる。

平成 19 年 9 月 15 日 0:00~3:00 は MS 尾駈、MS 千歳平、MS 二又（地上 10 m）では風速の平均値は 1 m/s 未満であった。パフモデルで使用する拡散係数は、風下方向への移動距離に対する関数である。無風、弱風時にはパフの風下方向への移動距離が小さくなることにより拡散係数が実際よりも小さくなるため、計算結果では図 7 のようにプルームは二又周辺に停滞することとなり、MS 吹越における空間放射線量率の施設寄与分を再現することができない。静穏な気象条件におけるパフモデルの拡散係数について、今後検討を行う。

3.2 大気中クリプトン-85 濃度を用いた比較・検討

シミュレーションシステム（パフモデル使用）により放出情報や気象情報等から大気中クリプトン-85 濃度を 10 分間隔で算出し、MS 尾駈、MS 二又、MS 室ノ久保において調査している β 線ガスモニタ及び可搬型 β 線ガスモニタの測定結果（10 分平均値）と比較した。また、大気中クリプトン-85 濃度の分布計算も行った。

MS 尾駈（地点 1）において調査している β 線ガスモニタ及び可搬型 β 線ガスモニタ（地点 2、3）の測定結果と、シミュレーションシステムにより算出した大気中クリプトン-85 濃度の経時変化について図 8、図 9 に示す。

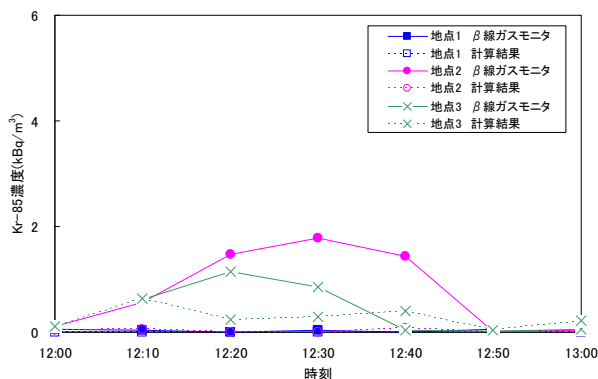


図 8 地点 1~3 における Kr-85 濃度及び計算結果の経時変化
(平成 19 年 12 月 21 日)

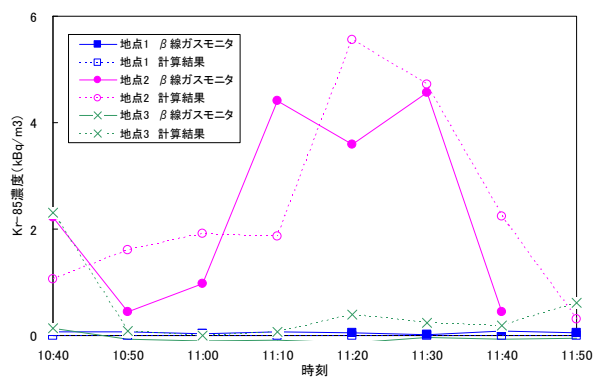


図 9 地点 1~3 における Kr-85 濃度及び計算結果の経時変化
(平成 20 年 9 月 17 日)

図 8 については、地点 2 において、可搬型 β 線ガスモニタによりクリプトン-85 が継続して検出されているのに対し、計算結果はほぼゼロであった。地点 3 においては、計算結果にある程度クリプトン-85 濃度の上昇が見られている。平成 19 年 12 月 21 日 12:10 における第 1 層（地上 0 m ~ 地上約 25 m）の風速場を図 10 に、平成 19 年 12 月 21 日 12:20 におけるクリプトン-85 の拡散・分布状況を図 11 に示す。

図 9 については β 線ガスモニタの測定値と計算結果は概ね一致した。

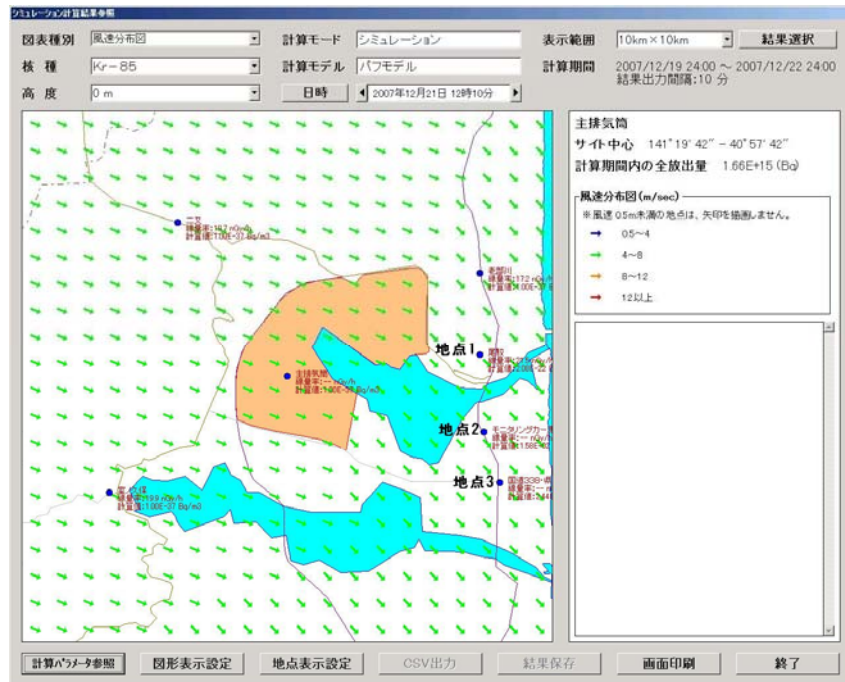


図 10 平成 19 年 12 月 21 日 12:10 第 1 層 (地上 0 m~地上約 25 m) の風速場

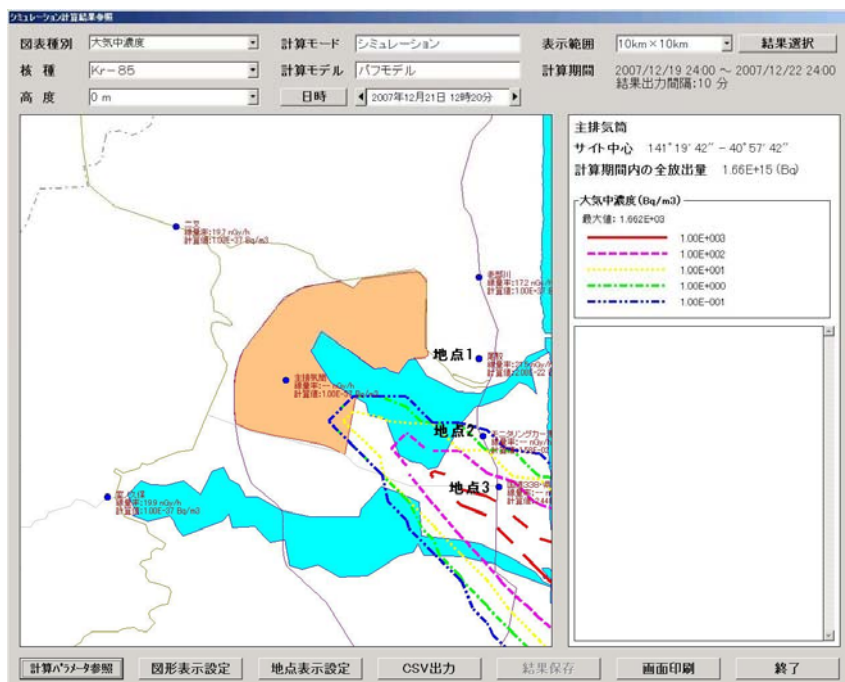


図 11 平成 19 年 12 月 21 日 12:20 大気中クリプトン-85 の拡散・分布状況

平成 19 年 12 月 21 日 12:20 には地点 2 の測定値が地点 3 より高くなっているにもかかわらず、拡散・分布図ではブルームが地点 3 よりさらに南側に分布しており、計算結果は測定値を再現していない。この原因は風向の測定値は 16 方位であり、16 方位の軸を中心とした 22.5° の範囲での風向の変化を計算に細かく反映することができないためであると考えられる。風向の角度データの取り込みについて今後検討を行う。

MS 二又及び MS 室ノ久保において調査している β 線ガスモニタの測定結果と、シミュレーションシステムにより算出した大気中クリプトン-85 濃度の経時変化について図 12 及び図 13 に示す。

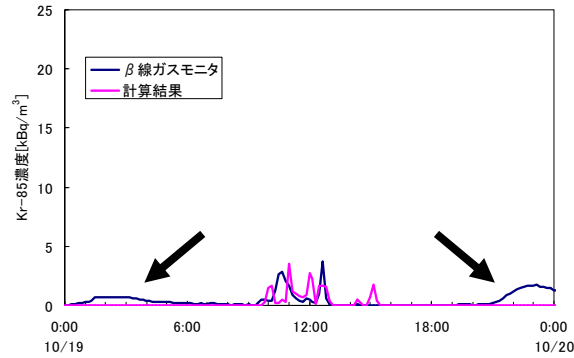


図 12 MS 二又におけるクリプトン-85 濃度及び計算結果の経時変化
(平成 18 年 10 月 19 日)

図 12 に MS 二又における経時変化を示す。計算結果は再処理工場の寄与と考えられるクリプトン-85 濃度の上昇について概ねよく再現できたが、未明及び深夜に見られる大気中クリプトン-85 濃度のゆるやかな上昇については計算結果では再現されなかった。

平成 18 年 10 月 18 日深夜から 10 月 19 日未明にかけて、及び、10 月 19 日深夜には、MS 二又（地上 10 m）では、風速 0.5 m/s 以下の静穏な気象条件であった。

パフモデルで使用する拡散係数は、風下方向への移動距離に対する関数である。無風、弱風時にはパフの風下方向への移動距離が小さくなることにより拡散係数が実際よりも小さくなるため、同日未明及び深夜における大気中クリプトン-85 濃度の上昇を再現できない。静穏な気象条件におけるパフモデルの拡散係数について、今後検討を行う。

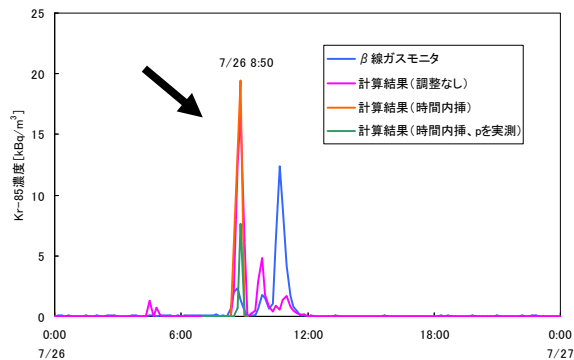


図 13 MS 室ノ久保におけるクリプトン-85 濃度及び計算結果の経時変化
(平成 20 年 7 月 26 日)

図 13 に MS 室ノ久保における経時変化を示す。平成 20 年 7 月 26 日 8:50 のシミュレーションシステムによる計算結果は大気中クリプトン-85 濃度に対し過大となった。このピークに着目し放出パフごとの時間内挿を行い計算したところ一致度は向上しなかったが、さらにべき指数 p を風速の実測値から計算すると一致度が向上した。平成 20 年 7 月 26 日 8:40 の気象状況（再処理工場）を表 6 に示す。

表 6 平成 20 年 7 月 26 日 8:40 の気象状況（再処理工場）

| 観測地点 | 風向 | 風速(m/s) | 大気安定度 |
|----------------|-----|---------|-------|
| 再処理工場（地上 10m） | ENE | 3.7 | C |
| 再処理工場（地上 150m） | NE | 1.7 | |
| MS 尾駸 | NE | 2.3 | C |
| MS 千歳平 | E | 2.1 | A-B |
| MS 二又 | S | 1.0 | B |

平成 20 年 7 月 26 日 8:40 において再処理工場（地上 150 m）の風速 1.7 m/s に対し、再処理工場（地上 10 m）の風速は 3.7 m/s であった。数式 9 を用いて上空の風速を計算する場合、再処理工場の大気安定度が C であることからべき指数 p は 0.2 を使い、上空の風速を地上の風速よりも速く計算する。このような気象条件では上空の風速は過大評価となる。実測の風速から求めたべき指数 $p(-2.8)$ を用いて計算すると、上空の風を地上の風よりも弱く計算する。

平成 20 年 7 月 26 日 8:50 における大気中クリプトン-85 濃度の分布について、図 14 に調整なしで計算した分布図を、図 15 に放出パフごとの時間内挿を行いべき指数 p を風速の実測値から計算した分布図を示す。

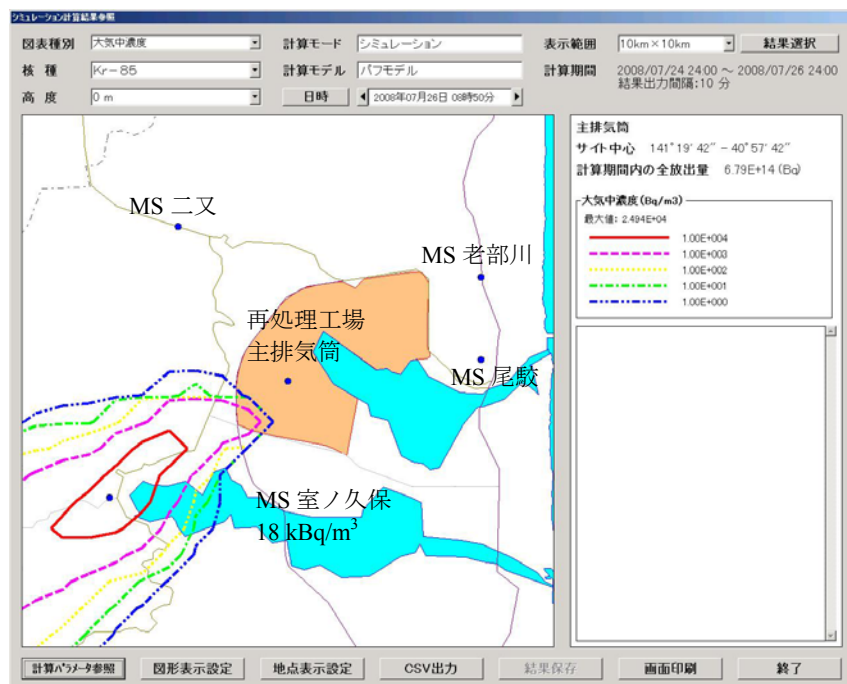


図 14 平成 20 年 7 月 26 日 8:50 大気中クリプトン-85 濃度の分布図（調整なし）

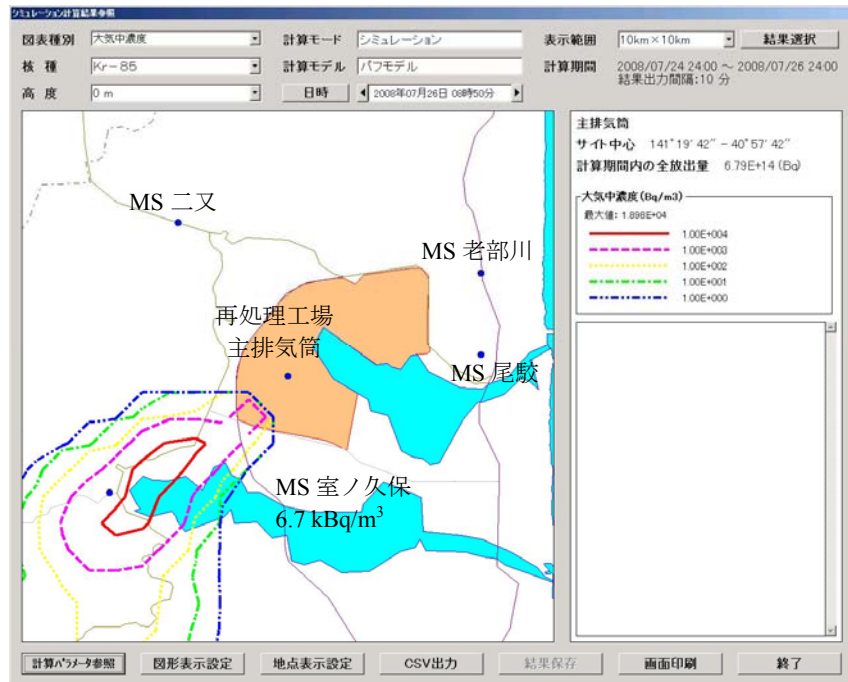


図 15 平成 20 年 7 月 26 日 8:50 大気中クリプトン-85 濃度の分布図
(時間内挿、ベキ指数 p を風速の実測値から計算)

放出パフごとの時間内挿を行い、ベキ指数 p を風速の実測値から計算することにより、プルームが南側に移動し、一致度が向上する結果となった。風速場計算に用いる気象観測値の中で、MS 室ノ久保における風速場の計算において影響が大きいのは、MS 室ノ久保に近い MS 二又の気象観測値であり、表 5 の気象状況によると、この時間には MS 二又において風向 S、風速 1.0 m/s の風が吹いていた。計算結果(調整なし)ではベキ指数 p に 0.2 を用い、MS 二又上空の風速を 1.0 m/s 以上として計算するため、プルームは北側に移動する。実測値から計算した $p(-2.8)$ を用いることにより MS 二又上空の風速を 1.0 m/s 未満として計算するため、MS 二又の南風の影響が弱まり、計算結果においてプルームが南側に移動したと考えられる。

3.3 大気中ヨウ素-129 濃度及びヨウ素-129 降下量を用いた比較・検討

環境研が平成 18 年～平成 20 年に行った放出放射能環境分布調査^{4)~6)}で報告している再処理工場から放出されたヨウ素-129 の大気中濃度及び降下量について、シミュレーションシステム(パフモデル使用)により放出情報や気象情報等から算出したヨウ素-129 大気中濃度及び沈着量と比較した。なお、ヨウ素-129 の放出情報は 1 週間ごとの測定結果であるため、再処理工場から 1 週間均等に放出されたものとし、計算間隔は 1 時間ごととした。

環境研における大気中粒子状ヨウ素-129 濃度とガス状ヨウ素-129 濃度の報告値とシミュレーションシステムによる計算結果の比較を図 16 に、環境研におけるヨウ素-129 の降下量とシミュレーションシステムによる計算結果の比較を図 17 に示す。

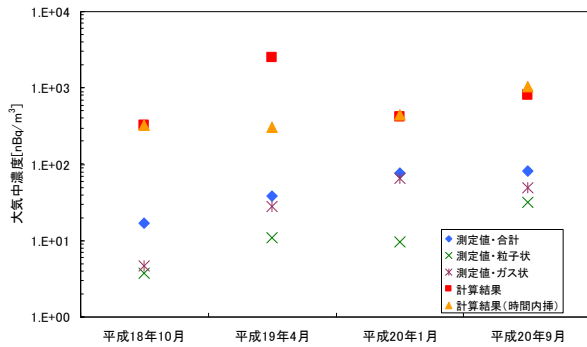


図 16 環境研における大気中ヨウ素-129 濃度の測定値と計算結果の比較

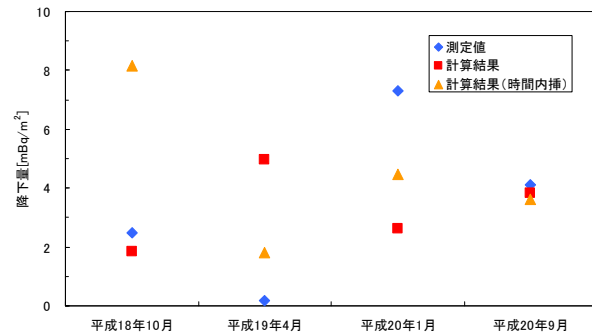


図 17 環境研におけるヨウ素-129 降下量の測定値と計算結果の比較

シミュレーションシステムにより計算したヨウ素-129の大気中濃度について、環境研における大気中粒子状ヨウ素-129濃度とガス状ヨウ素-129濃度の報告値の和と比較したところ、約6~65倍の過大評価となった。放出パフごとの時間内挿を行ったところ一致度が向上する傾向となり、約6~19倍の過大評価となった。

シミュレーションシステムにより計算した沈着量について、環境研におけるヨウ素-129の降下量と比較したところ、平成19年4月は約26倍となり、その他の期間については0.4倍~0.9倍となった。放出パフごとの時間内挿を行ったところ、降下量は平成18年10月は約3倍、平成19年4月は約10倍の過大評価となった。平成20年1月は0.6倍、平成20年9月は0.9倍となった。

今後はこれまで計算を行っていない期間についても引き続き検討を行う。

3.4 大気中トリチウム濃度を用いた比較・検討

青森県及び日本原燃(株)がMSにおいて調査している大気中水蒸気状トリチウム濃度の平成19年の分析結果及び環境研が平成19年に行った放出放射能分布調査で報告されている大気中形態別³H濃度のうち大気中HTO濃度⁵⁾について、シミュレーションシステム(トリチウムモデル及びパフモデル使用、パフモデルの時間内挿等パラメータ調整はしていない)により放出情報や気象情報等から算出した大気中HTO濃度と比較した。トリチウムの放出情報は1週間ごとの測定結果であるため、再処理工場から1週間均等に放出されたものとし、計算間隔は1時間ごととした。検討の対象としたのは、分析結果に施設寄与が認められた期間である。

青森県及び日本原燃(株)MSにおける大気中水蒸気状トリチウム濃度測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較を図18~図21に示す。また、環境研における大気中HTO濃度測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較を図22及び図23に示す。図において、大気中HTO濃度の測定値は、本県におけるバックグラウンドを差し引いたものをプロットしている。バックグラウンドは次のように計算した。再処理工場アクティブ試験開始前の平成15年度~平成17年度において、施設周辺地域の県のHTO濃度観測地点(MS尾駁、MS吹越)におけるHTO水分中濃度の平均値を求めると0.51 Bq/Lとなった。次に、平均HTO水分中濃度に大気中水分量を乗じ、月ごとの大気中HTO濃度のバックグラウンド推定値とした。大気中水分量は観測地点ごとに回収された水分量の値を用いた。青森県及び日本原燃(株)MSにおける採取期間は1ヶ月であり、環境研構内における採取期間は1、2週間である。

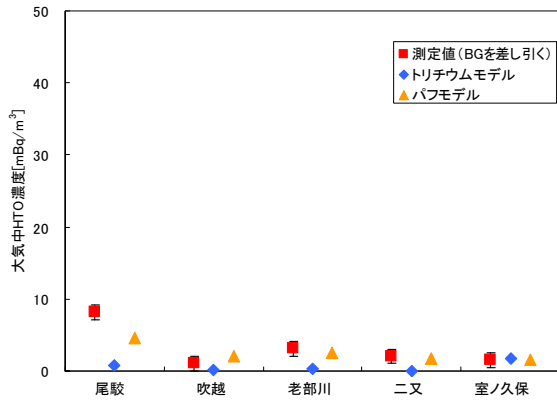


図 18 青森県及び日本原燃(株)MSにおける大気中HTO濃度の測定値と計算結果の比較(平成19年3月)

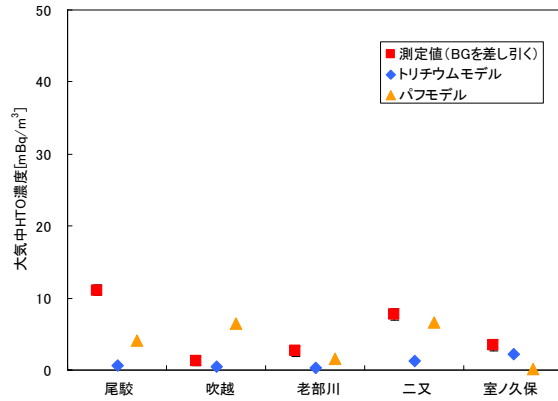


図 19 青森県及び日本原燃(株)MSにおける大気中HTO濃度の測定値と計算結果の比較(平成19年4月)

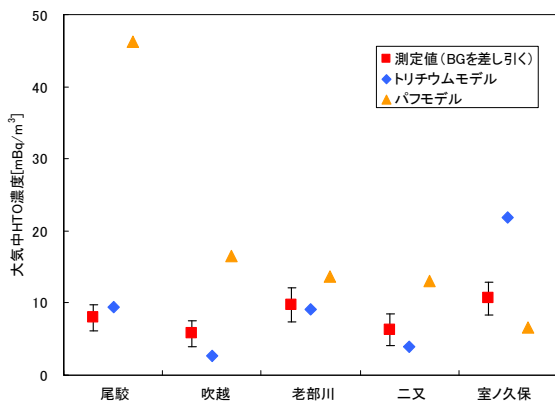


図 20 青森県及び日本原燃(株)MSにおける大気中HTO濃度の測定値と計算結果の比較(平成19年9月)

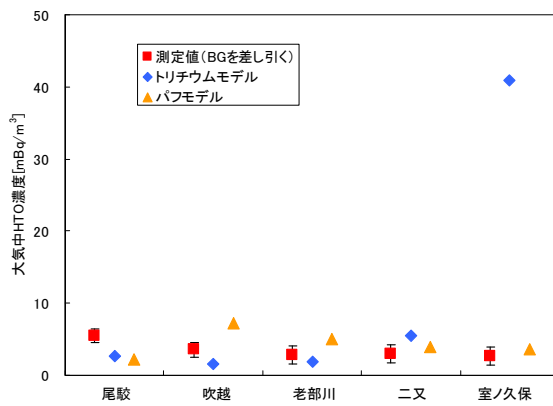


図 21 青森県及び日本原燃(株)MSにおける大気中HTO濃度の測定値と計算結果の比較(平成19年10月)

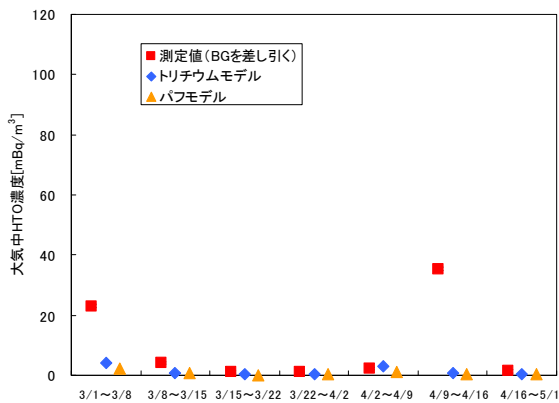


図 22 環境研における大気中HTO濃度の測定値と計算結果の比較(平成19年3月1日～平成19年5月1日)

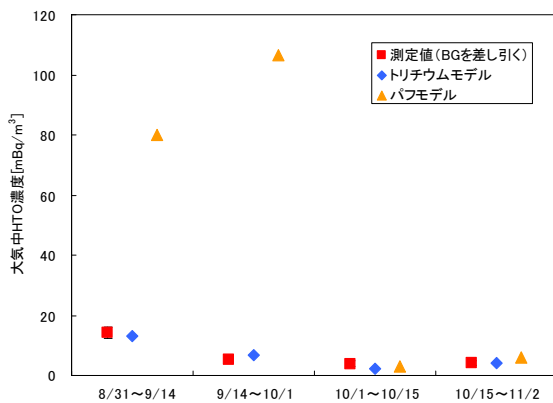


図 23 環境研における大気中HTO濃度の測定値と計算結果の比較(平成19年8月31日～平成19年11月2日)

トリチウムモデルの計算結果では平成19年3月～4月(図18、図19、図22)の測定値に対し過小評価となる傾向があり、パフモデルの計算結果では平成19年9月～10月(図20、図21、図23)の測定値に対し過大評価となる傾向があった。トリチウムモデルの乾性沈着及び湿性沈着の沈着係数、パフモデルの沈着速度を季節ごとに設定する必要があると考えられる。

5. まとめと展望

- 1)空間放射線量率の施設寄与分及び大気中クリプトン-85 濃度についてはパフモデルでよく再現でき、気象条件等により測定結果とは異なる計算結果となる場合についてはパラメータ調整により一致度を向上させることができた。今後はこれまで計算を行っていない期間について、パラメータ調整に関する知見を蓄積する。この知見を基に、計算プログラムにおいて気象条件等に応じてパラメータを自動的に調整しシミュレーション計算する機能について検討を行う。また、静穏な気象条件における拡散係数及び風向の角度データの取り込みについても検討を行う。
- 2)ヨウ素-129 の大気中濃度に対し計算結果が過大であった。今後はこれまで計算を行っていない期間についても引き続き検討を行う。
- 3)トリチウム濃度については、春期及び秋期においてトリチウムモデル及びパフモデルの計算結果と測定値の一致度が異なった。今後はパラメータについて季節ごとに検討する。
- 4)今後は、再処理工場からの放射性物質の影響について、シミュレーション計算を行い、放射性物質の拡散・分布状況の解析に用いることにより環境への影響の評価に資する。

シミュレーションシステムを用いた計算結果と測定値を比較・検討するにあたり、日本原燃(株)に多大なご協力を賜ったことに深く感謝いたします。

文 献

- 1) G.A.Briggs: Plume Rise, 59, USAEC Division of Technical Information Extension, Oak Ridge (1969)
- 2) 環境庁大気保全局大気規制課: 窒素酸化物総量規制マニュアル, 180-193, 公害研究対策センター, 東京都(1995)
- 3) 堀田智史、庄司博光、齋藤稔: 青森県原子力センター所報, 第3号, 19-25(2008)
- 4) (財)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, 135-189(2007)
- 5) (財)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, 47-113(2008)
- 6) (財)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, 249-319(2009)

II 技 術 報 告

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 21 年度調査結果—

大下内 伸 竹ヶ原 仁 大坂直人 木村秀樹*¹
五十嵐飛鳥*² 幸 進*³ 岡 光昭*³ 武石 稔*³

1. はじめに

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

本報告は平成 21 年度の調査結果について取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),2)}における農畜産物及び海産生物の中から選定し、表 1 のとおりとした。これらの調査地点を図 1 に示す。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

文部科学省放射能測定法シリーズ「トリチウム分析法」³⁾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を測定し、これを組織自由水トリチウム（TFWT）濃度とした。乾燥物については、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度を測定し、これを有機結合型トリチウム（OBT）濃度とした。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBT のみ測定した。

なお、OBT は非交換型 OBT と交換型 OBT に分類されるが、これらの OBT は、生物体内での挙動が異なることや、交換型 OBT が分析室内空気中のトリチウムや試料中 TFWT の影響を受ける可能性があることから、近年においては試料を凍結乾燥後に無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去し、非交換型 OBT のみ分析することを推奨する研究⁴⁾もある。本調査においては、

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*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

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 21 年度）

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

TFWT：組織自由水トリチウム

OBT：有機結合型トリチウム（交換型 OBT を除去しない従来型の OBT）

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

※魚類の非交換型 OBT については、5 試料について行った。

平成 21 年度から、魚類については非交換型 OBT の分析も行った。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。

(2) 炭素-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」⁵⁾ に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

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

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

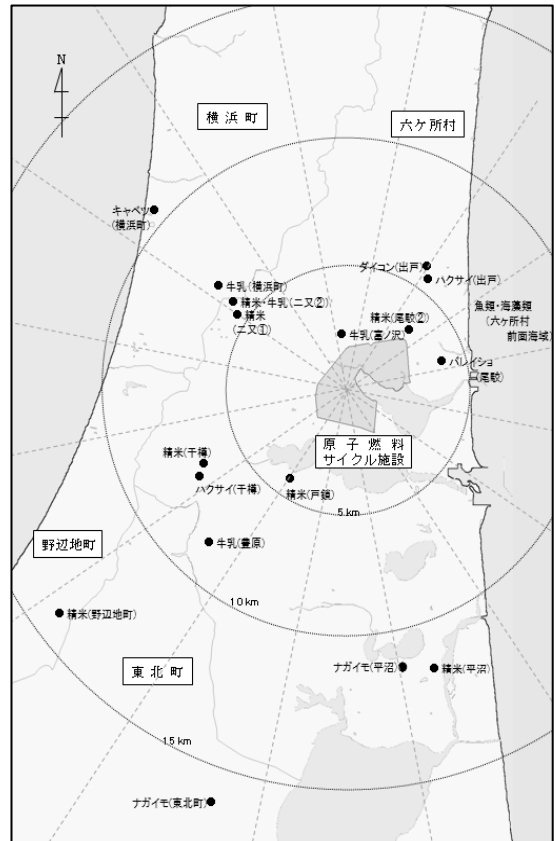


図 1 調査地点図

(3) ヨウ素-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素からヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置（AMS）を用いてヨウ素-129(^{129}I)とヨウ素-127(^{127}I)の原子数比を測定した。また、乾燥試料を次亜塩素酸ナトリウム溶液で分解し、ICP 質量分析法によって安定ヨウ素(^{127}I)を定量した。これらによって求めた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中のヨウ素-129 濃度を求めた⁶⁾。

(4) ヨウ素-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁷⁾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。

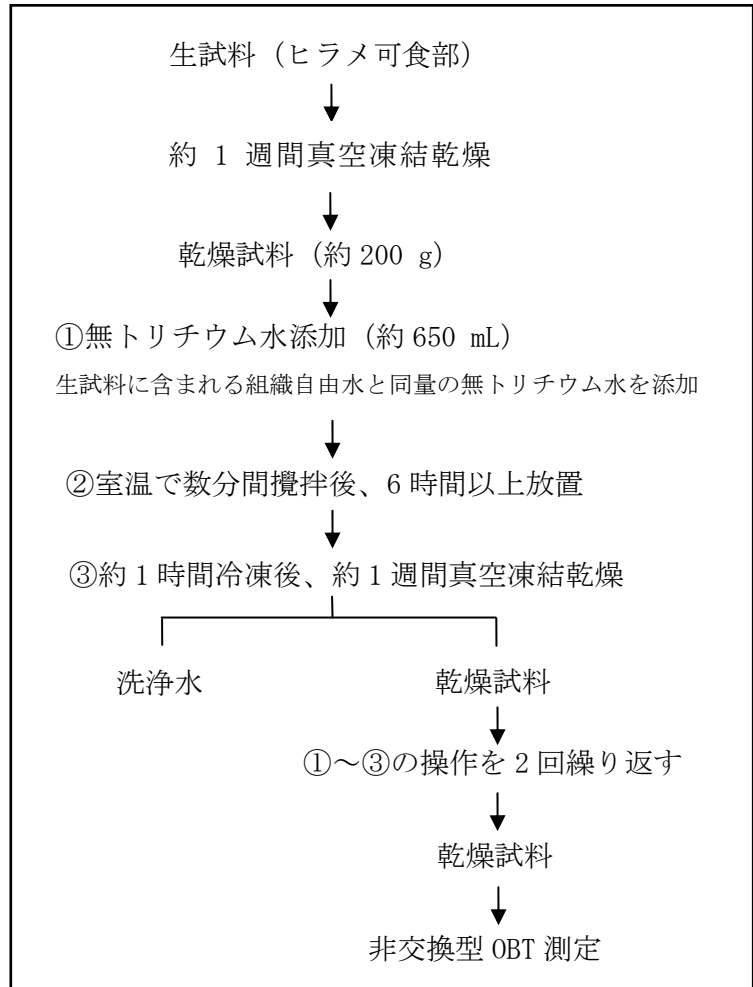


図 2 非交換型 OBT の分析工程

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 22 年 3 月にかけて放出された放射性気体廃棄物（トリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131）の月間放出量を図 3 に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図 4 に示す。平成 21 年度における月ごとの放出量は、気体、液体のいずれも平成 19 及び 20 年度に比較して少なかった。

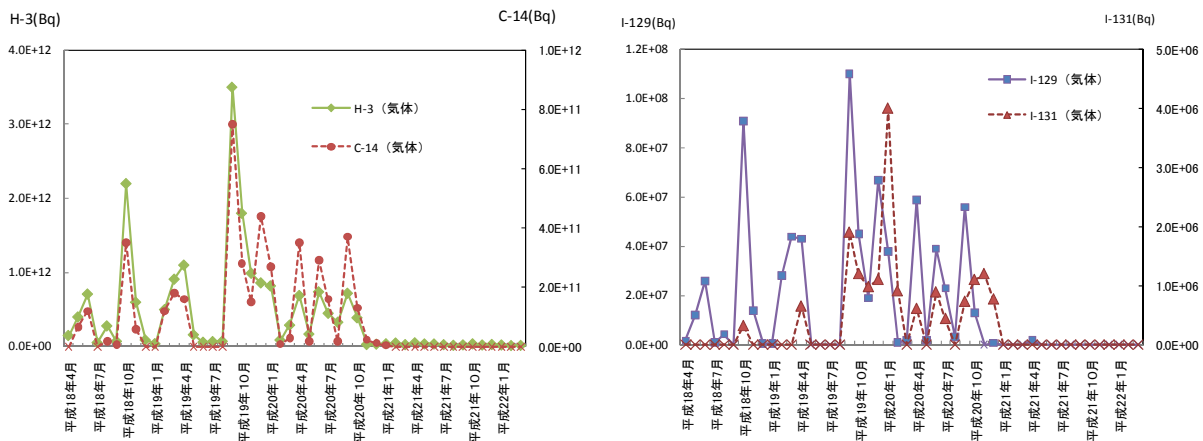


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成22年3月)

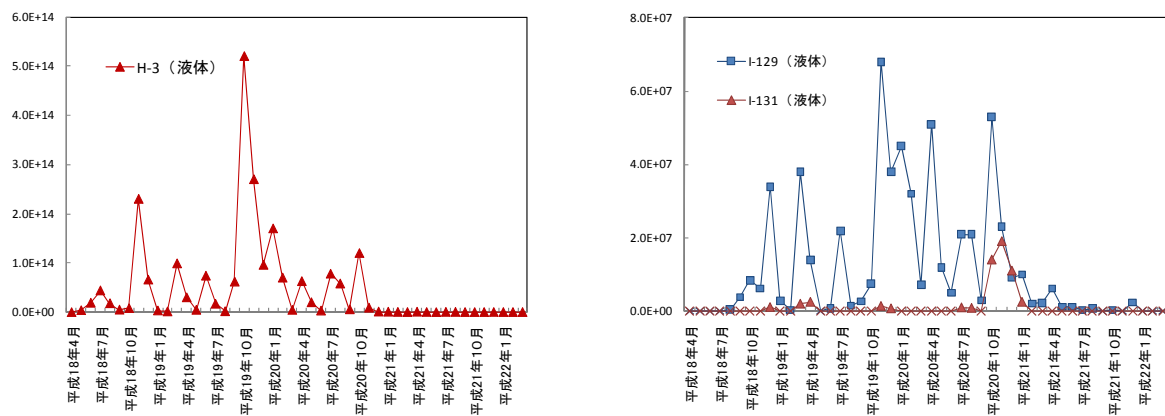


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成22年3月)

4. 結果と考察

4.1 トリチウム

環境試料中のトリチウムの測定結果を表2に示す。陸上試料である牛乳、精米、葉菜及び根菜・いも類については、TFWTで検出限界以下～1.2 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.78 Bq/Lとなり、近年の大気及び降水中トリチウム濃度と同程度であった。海洋試料である魚類については、TFWTで検出限界以下、OBTで検出限界以下～0.42 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比べ低い値であった。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1～0.2 Bq/L程度と報告されている⁸⁾。平成21年度から調査を開始した非交換型OBTについては、検出限界以下であった。

表2 環境試料中のトリチウム (TFWT、OBT 及び非交換型 OBT) 濃度

| 試料名 | 採取地点 | 平成 21 年度調査結果 | | | (参考) 平成 19, 20 年度調査結果 | | |
|-------------|--------------------|--------------|-------------|--------------------|-----------------------|------------|------------|
| | | TFWT (Bq/L) | OBT (Bq/L) | 非交換型 OBT (Bq/L) | TFWT (Bq/L) | OBT (Bq/L) | |
| 牛 乳 (原乳) | 富ノ沢 | Q1 | 0.47±0.14 | 0.51±0.15 | - | *, 0.73 | 0.78, 0.43 |
| | | Q2 | 1.2±0.13 | 0.74±0.15 | - | *, 0.59 | *, 0.72 |
| | | Q3 | 0.47±0.11 | 0.57±0.11 | - | 0.40, 0.65 | 0.41, 0.43 |
| | | Q4 | 0.42±0.12 | * | - | *, 0.91 | 0.40, 0.62 |
| | 横浜町 | Q1 | * | 0.62±0.15 | - | *, * | 0.40, 0.64 |
| | | Q2 | * | * | - | *, * | 0.54, 0.70 |
| | | Q3 | 0.45±0.11 | 0.66±0.11 | - | *, 0.42 | 0.38, 0.60 |
| | | Q4 | * | * | - | *, * | 0.59, 0.49 |
| | 二 又 | Q1 | * | 0.57±0.14 | - | *, * | *, 0.51 |
| | | Q2 | 0.42±0.12 | * | - | *, * | 0.52, 0.63 |
| | | Q3 | * | 0.53±0.10 | - | *, * | 0.54, 0.46 |
| | | Q4 | * | * | - | *, * | *, * |
| | 豊 原 | Q1 | * | 0.43±0.14 | - | *, * | *, 0.73 |
| | | Q2 | * | 0.50±0.15 | - | *, 0.47 | 0.52, 0.77 |
| | | Q3 | 0.42±0.12 | 0.50±0.10 | - | *, 0.73 | 0.60, 0.53 |
| | | Q4 | * | * | - | *, * | 0.51, 0.57 |
| 精米 | 尾駁① ^{※1} | - | - | - | - | 0.80 | |
| | 尾駁② | - | 0.38±0.10 | - | - | 0.76, 0.62 | |
| | 千 樽 | - | * | - | - | 0.89, 0.47 | |
| | 野辺地町 | - | 0.43±0.11 | - | - | 0.59, 0.53 | |
| | 二 又① ^{※2} | - | 0.35±0.10 | - | - | * | |
| | 二 又② | - | 0.42±0.11 | - | - | 1.0, 0.64 | |
| | 戸 鎖 | - | 0.47±0.11 | - | - | 0.66, * | |
| | 平 沼 ^{※2} | - | 0.44±0.11 | - | - | * | |
| ハクサイ | 出 戸 | 0.58±0.16 | 0.78±0.16 | - | 0.63, 0.69 | 0.80, 0.73 | |
| | 千 樽 | * | 0.68±0.11 | - | 0.55, 0.89 | 0.56, 0.45 | |
| キャベツ | 横浜町 | 0.70±0.16 | 0.63±0.16 | - | 0.94, 0.66 | 1.2, 0.79 | |
| ダイコン | 出 戸 | 0.46±0.10 | 0.68±0.11 | - | *, 0.58 | 0.66, 0.45 | |
| パレイシヨ | 尾 駁 | 0.83±0.13 | 0.58±0.14 | - | 0.50, 0.86 | 0.84, 0.72 | |
| ナガイモ | 東北町 | 0.41±0.11 | 0.46±0.11 | - | 0.67, 0.66 | 0.42, 0.44 | |
| | 平 沼 | 0.49±0.13 | 0.49±0.11 | - | 0.89, 0.63 | 0.52, 0.79 | |
| 魚類 (ヒラメ) | 六ヶ所村 前面海域 | * | *~0.42±0.12 | * | *~3.3 | *~1.4 | |

・「-」は調査対象外

・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。

・Q1, Q2, Q3 及び Q4 は、採取時期がそれぞれ第1、第2、第3及び第4四半期であることを示す。

・(参考) 平成 19, 20 年度調査結果は、左から平成 19 年度、平成 20 年度の調査結果を順に示す。

※1 平成 19 年度で調査終了 ※2 平成 20 年度から調査開始

4.2 炭素-14

環境試料中の炭素-14 比放射能の測定結果は表 3 に示すとおり、牛乳が 0.232～0.250 Bq/g 炭素、精米が 0.229～0.237 Bq/g 炭素、葉菜が 0.230～0.237 Bq/g 炭素、根菜・いも類が 0.228～0.239 Bq/g 炭素であった。牛乳については、平成 21 年度の測定値は、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。環境放射線モニタリングで測定している精米、葉菜、根菜・いも類の炭素-14 比放射能の推移を図 5 に示す。炭素-14 のモニタリングを開始した平成 7 年度から平成 18 年度まで、炭素-14 比放射能には減少傾向が認められている。大気圏内核実験によって増加した炭素-14 は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。アクティブ試験の影響が認められなかった平成 7 年から平成 18 年度までに県のモニタリングで得られた炭素-14 比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値 0.228 Bq/g 炭素⁹⁾を差し引き、時間に

表 3 環境試料中の炭素-14 比放射能 (Bq/g 炭素)

| 試料名 | 採取地点 | H21 年度調査結果 | (参考) H19、20 年度調査結果 | |
|------------|-------------------|-------------|--------------------|--------------|
| 牛乳 (原乳) | 富ノ沢 | Q1 | 0.237±0.003 | 0.231, 0.238 |
| | | Q2 | 0.232±0.003 | 0.253, 0.247 |
| | | Q3 | 0.235±0.002 | 0.249, 0.241 |
| | | Q4 | 0.244±0.003 | 0.256, 0.237 |
| | 横浜町 | Q1 | 0.241±0.003 | 0.242, 0.236 |
| | | Q2 | 0.240±0.003 | 0.245, 0.238 |
| | | Q3 | 0.236±0.002 | 0.237, 0.239 |
| | | Q4 | 0.237±0.002 | 0.238, 0.238 |
| | 二又 | Q1 | 0.238±0.003 | 0.244, 0.248 |
| | | Q2 | 0.236±0.003 | 0.248, 0.252 |
| | | Q3 | 0.236±0.003 | 0.256, 0.249 |
| | | Q4 | 0.241±0.003 | 0.262, 0.235 |
| | 豊原 | Q1 | 0.236±0.003 | 0.242, 0.247 |
| | | Q2 | 0.238±0.003 | 0.266, 0.245 |
| | | Q3 | 0.246±0.003 | 0.253, 0.256 |
| | | Q4 | 0.250±0.003 | 0.262, 0.233 |
| 精米 | 尾駸① ^{※1} | - | 0.240 | |
| | 尾駸② | 0.237±0.003 | 0.258, 0.254 | |
| | 千樽 | 0.233±0.002 | 0.248, 0.240 | |
| | 野辺地町 | 0.229±0.003 | 0.249, 0.235 | |
| | 二又① ^{※2} | 0.231±0.002 | 0.241 | |
| | 二又② | 0.237±0.003 | 0.251, 0.250 | |
| | 戸鎖 | 0.237±0.003 | 0.255, 0.247 | |
| | 平沼 ^{※2} | 0.232±0.002 | 0.239 | |
| ハクサイ | 出戸 | 0.230±0.002 | 0.245, 0.236 | |
| | 千樽 | 0.237±0.003 | 0.260, 0.243 | |
| キャベツ | 横浜町 | 0.236±0.003 | 0.267, 0.240 | |
| ダイコン | 出戸 | 0.228±0.002 | 0.238, 0.236 | |
| パレイショ | 尾駸 | 0.236±0.003 | 0.244, 0.244 | |
| ナガイモ | 東北町 | 0.239±0.003 | 0.243, 0.236 | |
| | 平沼 | 0.230±0.002 | 0.258, 0.249 | |

・ Q1, Q2, Q3 及び Q4 は、採取時期がそれぞれ第 1、第 2、第 3 及び第 4 四半期であることを示す。

・ (参考) 平成 19、20 年度調査結果は、左から平成 19 年度、平成 20 年度の調査結果を順に示す。

※ 1 平成 19 年度で調査終了 ※ 2 平成 20 年度から調査開始

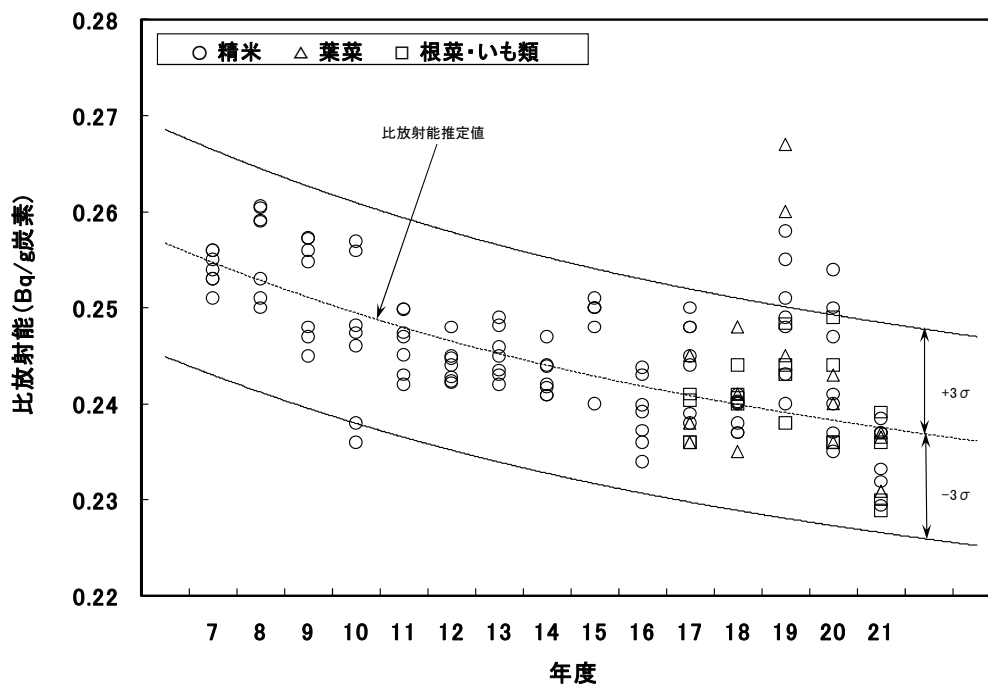


図5 炭素-14比放射能の経年変化(平成7年度～平成21年度)

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炭素-14の環境における壊変定数 (年) $\lambda = \ln 2 / T$

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

t : 平成6年度からの経過年数 (年)

・変動幅 (3σ) = 比放射能推定値・変動係数・3

変動係数: 平成7～18年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

よる減衰式を求めた。核実験起源の炭素-14の半減時間を求めると9.5年となり、これは府馬らによる核実験起源の炭素-14の1963年から1976年までの半減時間9.0年、1984年から2000年までの半減時間10.3年¹⁰⁾とほぼ一致した。また、平成7年度から平成18年度まで各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5に示した。平成21年度の測定値には、平成19及び20年度のような高い値がみられず、バックグラウンドレベルと考えられる比放射能推定値と比較しても、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。

4.3 ヨウ素-129 及びヨウ素-131

環境試料中のヨウ素-129 濃度及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比を表 4 に示す。ヨウ素-129 濃度については、葉菜類で $1.9 \times 10^{-7} \sim 1.8 \times 10^{-6}$ Bq/kg 生、海藻類で 2.1×10^{-4} 及び 2.5×10^{-4} Bq/kg 生であった。海藻類は葉菜類に比べて安定ヨウ素濃度が高く、このためヨウ素-129 濃度についても海藻類の方が高くなっているものと考えられる。一方、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は葉菜類で $6.4 \times 10^{-9} \sim 3.0 \times 10^{-8}$ 、海藻類で 7.2×10^{-11} 及び 8.0×10^{-11} であった。大気圏内核実験後の環境中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$ 程度と報告されている¹¹⁾。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、これらと比較して同程度であり、また、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに低めであった。

ヨウ素-131 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。

表 4 環境試料中のヨウ素-129 濃度及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比

| 試料名 | 採取地点 | 平成 21 年度調査結果 | | (参考) 平成 19, 20 年度調査結果 | | |
|--------------|--------------|---|---|---|---|---|
| | | ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生) | $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比 | ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生) | $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比 | |
| ハクサイ | 出戸 | $1.9 \times 10^{-7} \pm 0.1 \times 10^{-7}$ | 6.4×10^{-9} | 1.4×10^{-6} , 9.7×10^{-6} | 3.0×10^{-8} , 8.7×10^{-8} | |
| | 千樽 | $8.6 \times 10^{-7} \pm 0.7 \times 10^{-7}$ | 2.8×10^{-8} | 8.8×10^{-7} , 4.2×10^{-6} | 2.4×10^{-8} , 1.4×10^{-7} | |
| キャベツ | 横浜町 | $1.8 \times 10^{-6} \pm 0.3 \times 10^{-6}$ | 3.0×10^{-8} | 5.1×10^{-6} , 1.2×10^{-5} | 6.0×10^{-7} , 5.0×10^{-7} | |
| 海藻類 (コンブ) | 六ヶ所村 前面海域 | ① | $2.5 \times 10^{-4} \pm 0.7 \times 10^{-5}$ | 8.0×10^{-11} | 2.8×10^{-3} , 6.9×10^{-4} | 9.1×10^{-10} , 4.9×10^{-10} |
| | | ② | $2.1 \times 10^{-4} \pm 0.6 \times 10^{-5}$ | 7.2×10^{-11} | 9.3×10^{-4} , 2.1×10^{-3} | 5.9×10^{-10} , 4.1×10^{-10} |

・(参考) 平成 19, 20 年度調査結果は、左から平成 19 年度、平成 20 年度の調査結果を順に示す。

5. 実効線量の試算

平成 21 年度の調査結果については、再処理工場からの寄与が認められなかったことから、実効線量の試算は省略した。

6. まとめ

平成 21 年度の調査において、トリチウムは、陸上試料については、近年の大気及び降水中トリチウム濃度と同程度であり、海洋試料である魚類については、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBT については、検出限界以下であった。炭素-14 比放射能は、牛乳については、平成 21 年度の測定値は、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。平成 7 年度から環境モニタリングで測定している精米、葉菜、根菜・いも類については、平成 21 年度の測定値には、平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。ヨウ素-129 は、葉菜類、海藻類ともに $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比が大気圏内核実験後のバックグラウンドレベルと比較して同程度であり、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに低めであった。ヨウ素-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

文 献

- 1) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書（平成 19 年度報）
- 2) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書（平成 20 年度報）
- 3) 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）
- 4) 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)
- 5) 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）
- 6) 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）
- 7) 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）
- 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) Inoue, Y. and Iwakura, T. : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiocarbon 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, *RADIOSOTOPES*, 51, 381-391(2002)
- 11) Xiaolin. Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 262, 67-75 (2004)

表土中ヨウ素-129 分布調査

工藤俊明 五十嵐飛鳥^{*1}

1. はじめに

青森県では、再処理工場から放出される核種の一つであるヨウ素-129 (^{129}I) について、環境における分布状況と蓄積状況を把握するため、原子燃料サイクル施設周辺地域において、表土中のヨウ素-129 の測定を行っている。

平成 11～12 年度にかけて、比較対象（青森市）1 地点を含む 20 地点について、中性子放射化分析法を用いてバックグラウンド調査を実施した。

平成 18 年 3 月 31 日から再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が開始されたことから、以前バックグラウンド調査を実施した地点について、平成 21 年度に、中性子放射化分析法に比べ高感度な加速器質量分析法による表土中のヨウ素-129 調査を実施した。

本報告は、これらの調査結果について取りまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点を表 1 及び図 1 に示す。調査対象試料は、平成 11～12 年度実施のバックグラウンド調査と同じ地点から今年度採取した 20 試料に、分析法の違いによるデータの比較検討を行うため平成 11 年度に採取した 4 試料（尾駸、千歳平、横浜町、青森市）を加えた 24 試料とした。

2.2 採取方法

直径 10 cm×深さ 5 cm のステンレス製採土器を用いて、1 地点につき 9 点採取した。

2.3 測定方法

(1) 前処理

試料は 70℃乾燥後、2 mm ふるいを通過したものを対象とした。

(2) 測定

燃焼法によって回収したヨウ素からヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構むつ事務所が保有する加速器質量分析装置（AMS）を用いてヨウ素-129 と安定ヨウ素 (^{127}I) の原子数比を測定した。この $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比と ICP 質量分析法により定量した安定ヨウ素から試料中のヨウ素-129 濃度を求めた。

*1：現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

表 1 調査対象試料一覧

| 調査地点 | 採取日 | 備考 |
|--------------------|-------------------|-----------------------------|
| ①吹越 | H12.8.21、H21.9.9 | 個人宅 |
| ②横浜町 ^{※1} | H11.7.8、H21.7.16 | 個人所有牧草地 |
| ③出戸 | H12.8.21、H21.9.8 | 屯所裏空き地 |
| ④はまなす公園 | H12.8.21、H21.9.9 | 公園内 |
| ⑤二又 | H12.8.21、H21.9.9 | 旧小学校校庭隅 |
| ⑥富ノ沢 | H12.8.21、H21.9.8 | 個人宅 |
| ⑦老部川 | H12.8.21、H21.9.8 | 個人宅 |
| ⑧弥栄平 | H12.8.21、H21.9.8 | 道路脇草地 |
| ⑨尾駮 ^{※1} | H11.7.8、H21.7.16 | 県大気汚染局舎裏 |
| ⑩沖付 | H12.8.21、H21.9.8 | 松葉採取地点 |
| ⑪尾駮沼南畔 | H12.8.22、H21.9.8 | 旧道脇草地 |
| ⑫戸鎖 | H12.8.22、H21.9.9 | 小学校校庭隅 |
| ⑬最終処分場 | H12.8.22、H21.9.9 | 処分場擁壁外側 |
| ⑭市柳沼北畔 | H12.8.22、H21.8.27 | 国道脇草地 |
| ⑮豊原 | H12.8.22、H21.9.9 | 集会場 |
| ⑯市柳沼東畔 | H12.8.22、H21.8.27 | 国道脇草地 |
| ⑰酪農センター | H12.8.22、H21.9.8 | 敷地内草地 |
| ⑱八森 | H12.8.22、H21.9.8 | 集会場 |
| ⑲千歳平 ^{※1} | H11.7.8、H21.7.16 | 児童公園 |
| ⑳青森市 ^{※1} | H11.7.21、H21.7.21 | 小学校跡地 (H11)、青年の家跡地内敷地 (H21) |

※1：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対象地点（県実施分）

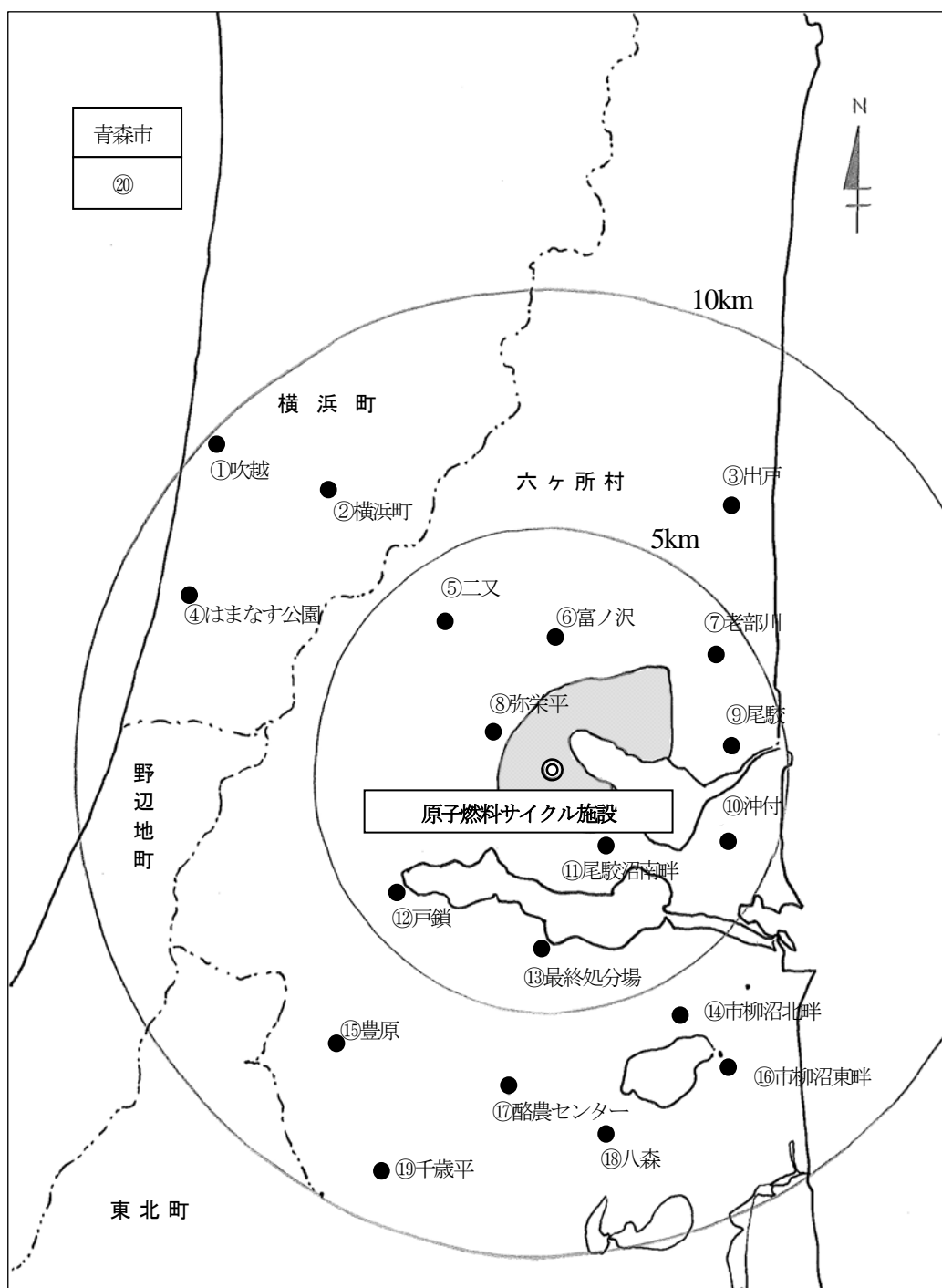


図1 調査地点図

3. 調査結果

3.1 バックグラウンド調査との比較

本調査における調査結果を表2及び図2に示す。ヨウ素-129濃度については、平成11～12年度採取分は $<0.0002\sim 0.0014$ Bq/kg 乾、平成21年度採取分は $0.000032\sim 0.0023$ Bq/kg 乾であり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比については平成11～12年度採取分は $9.6\times 10^{-10}\sim 1.2\times 10^{-8}$ 、平成21年度採取分は $1.1\times 10^{-9}\sim 8.0\times 10^{-8}$ であった。

ヨウ素-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 $10^{-9}\sim 10^{-7}$ との報告がある¹⁾。

平成21年度採取分の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、平成11～12年度採取分を上回っている地点が多く、そのうち、沖付、尾駱沼南畔、弥栄平及びはまなす公園は $2.0\times 10^{-8}\sim 8.0\times 10^{-8}$ であった。出戸は、平成11～12年度採取分はヨウ素-129が検出限界未満であり、平成21年度採取分は 2.9×10^{-8} であった。沖付、尾駱沼南畔は、再処理工場から見て南東～東南東の方位に、弥栄平、はまなす公園は西北西の方位にあり、同工場の気象観測結果(図3)によると、年間の主な風向の風下に位置していることから、再処理工場から放出された気体廃棄物(図4)の影響が考えられる。今後、同じ地点での調査を数年ごとの間隔で実施しデータを蓄積して検討を進める。

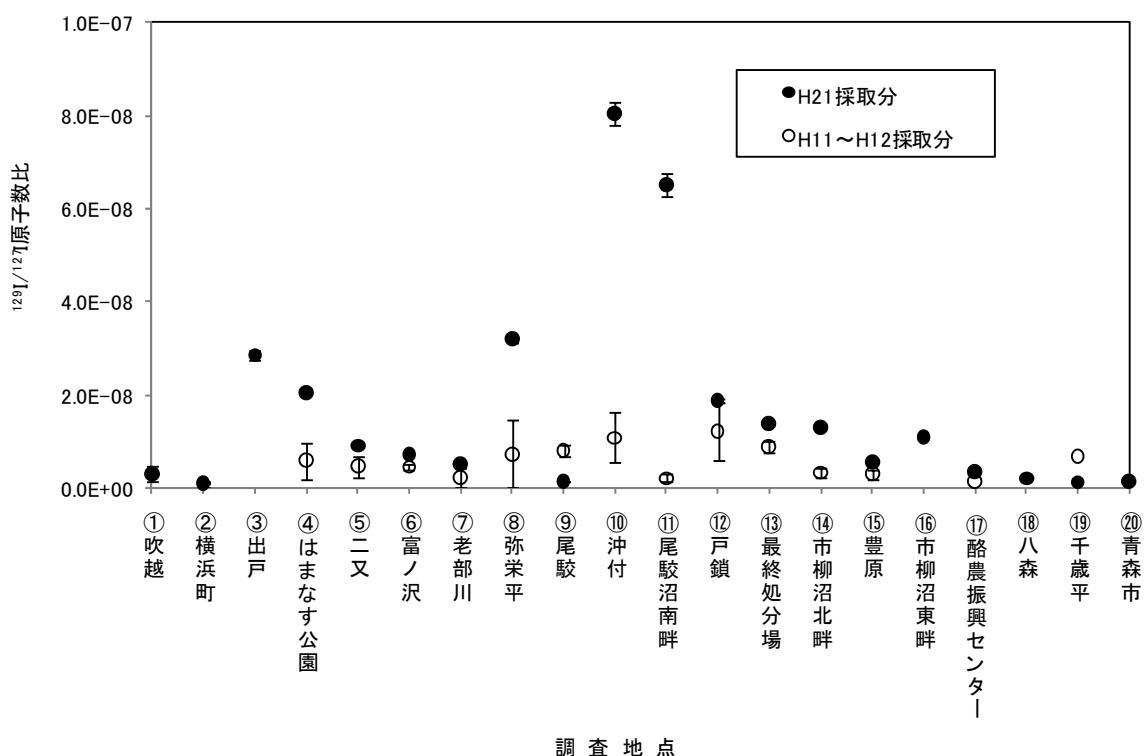


図2 表土中 I-129 調査結果 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比)

表2 表土中 I-129 調査結果一覧

| 地点 | ¹²⁹ I濃度(Bq/kg 乾土) | | | ¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比 | | |
|-----------|--|--|--|--|---|---|
| | H11~H12 採取※1 | H21 採取※2 | H11~H12 採取※3 | H11~H12 採取※1 | H21 採取※2 | H11~H12 採取※3 |
| ①吹越 | 2.0×10 ⁴ ±1.0×10 ⁴ | 1.7×10 ⁴ ±6.0×10 ⁶ | | 3.2×10 ⁹ ±1.6×10 ⁹ | 2.8×10 ⁹ ±1.2×10 ¹⁰ | |
| ②横浜町 | 3.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 1.5×10 ⁴ ±4.0×10 ⁶ | 4.2×10 ⁴ ±1.0×10 ⁵ | 9.6×10 ¹⁰ ±6.4×10 ¹⁰ | 1.1×10 ⁹ ±3.3×10 ¹¹ | 1.6×10 ⁹ ±4.3×10 ¹¹ |
| ③出戸 | <0.0002 | 5.3×10 ⁴ ±1.6×10 ⁵ | | - | 2.9×10 ⁸ ±1.0×10 ⁹ | |
| ④はまなす公園 | 3.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 2.3×10 ³ ±4.0×10 ⁵ | | 5.9×10 ⁹ ±3.9×10 ⁹ | 2.0×10 ⁸ ±3.7×10 ¹⁰ | |
| ⑤二又 | 4.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 2.0×10 ³ ±3.0×10 ⁵ | | 4.6×10 ⁹ ±2.3×10 ⁹ | 9.1×10 ⁹ ±1.5×10 ¹⁰ | |
| ⑥富ノ沢 | 7.0×10 ⁴ ±1.0×10 ⁴ | 1.0×10 ³ ±2.0×10 ⁵ | | 4.6×10 ⁹ ±6.6×10 ¹⁰ | 7.2×10 ⁹ ±1.6×10 ¹⁰ | |
| ⑦老部川 | 2.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 3.8×10 ⁴ ±1.0×10 ⁵ | | 2.2×10 ⁹ ±2.2×10 ⁹ | 5.2×10 ⁹ ±1.7×10 ¹⁰ | |
| ⑧弥栄平 | 2.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 1.0×10 ³ ±2.0×10 ⁵ | | 7.3×10 ⁹ ±7.3×10 ⁹ | 3.2×10 ⁸ ±8.0×10 ¹⁰ | |
| ⑨尾駮 | 7.0×10 ⁴ ±1.0×10 ⁴ | 7.8×10 ⁵ ±2.4×10 ⁶ | 6.3×10 ⁴ ±1.4×10 ⁵ | 8.0×10 ⁹ ±1.3×10 ⁹ | 1.5×10 ⁹ ±5.1×10 ¹¹ | 7.3×10 ⁹ ±2.0×10 ¹⁰ |
| ⑩沖付 | 4.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 1.6×10 ³ ±4.0×10 ⁵ | | 1.1×10 ⁸ ±5.4×10 ⁹ | 8.0×10 ⁸ ±2.4×10 ⁹ | |
| ⑪尾駮沼南畔 | 5.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 1.3×10 ³ ±4.0×10 ⁵ | | 2.1×10 ⁹ ±8.4×10 ¹⁰ | 6.5×10 ⁸ ±2.4×10 ⁹ | |
| ⑫戸鎖 | 4.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 6.7×10 ⁴ ±1.2×10 ⁵ | | 1.2×10 ⁸ ±6.1×10 ⁹ | 1.9×10 ⁸ ±3.8×10 ¹⁰ | |
| ⑬最終処分場 | 1.4×10 ³ ±2.0×10 ⁴ | 5.4×10 ⁴ ±1.3×10 ⁵ | | 8.8×10 ⁹ ±1.3×10 ⁹ | 1.4×10 ⁸ ±3.8×10 ¹⁰ | |
| ⑭市柳沼北畔 | 6.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 1.3×10 ⁴ ±5.0×10 ⁶ | | 3.3×10 ⁹ ±1.1×10 ⁹ | 1.3×10 ⁸ ±6.1×10 ¹⁰ | |
| ⑮豊原 | 1.1×10 ³ ±4.0×10 ⁴ | 8.8×10 ⁴ ±2.0×10 ⁵ | | 3.0×10 ⁹ ±1.1×10 ⁹ | 5.5×10 ⁹ ±1.4×10 ¹⁰ | |
| ⑯市柳沼東畔 | <0.0002 | 3.4×10 ⁴ ±1.4×10 ⁵ | | - | 1.1×10 ⁸ ±5.4×10 ¹⁰ | |
| ⑰嵯峨振興センター | 4.0×10 ⁴ ±2.0×10 ⁴ | 3.1×10 ⁴ ±6.0×10 ⁶ | | 1.5×10 ⁹ ±7.7×10 ¹⁰ | 3.6×10 ⁹ ±7.5×10 ¹¹ | |
| ⑱八森 | <0.0002 | 1.2×10 ⁴ ±3.0×10 ⁶ | | - | 2.1×10 ⁹ ±5.5×10 ¹¹ | |
| ⑲千歳平 | 2.0×10 ⁴ ±1.0×10 ⁴ | 3.2×10 ⁵ ±1.1×10 ⁶ | 2.8×10 ⁴ ±8.0×10 ⁶ | 6.8×10 ⁹ ±3.4×10 ⁹ | 1.2×10 ⁹ ±4.5×10 ¹¹ | 7.3×10 ⁹ ±2.4×10 ¹⁰ |
| ⑳磯野藪 | <0.0002 | 2.6×10 ⁴ ±5.0×10 ⁶ | 3.5×10 ⁴ ±5.0×10 ⁶ | - | 1.3×10 ⁹ ±2.8×10 ¹¹ | 4.1×10 ⁹ ±6.3×10 ¹¹ |

※1：中性子放射化学分析法により分析。

※2：加速器質量分析法により分析。

※3：平成11年度に採取した試料を加速器質量分析法により再分析。

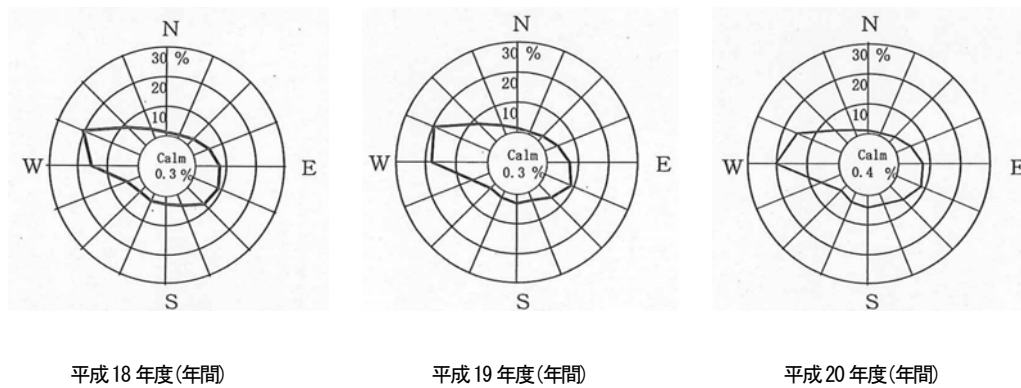


図3 再処理工場気象観測結果における風配図 (地上150m) ^{2)~4)}

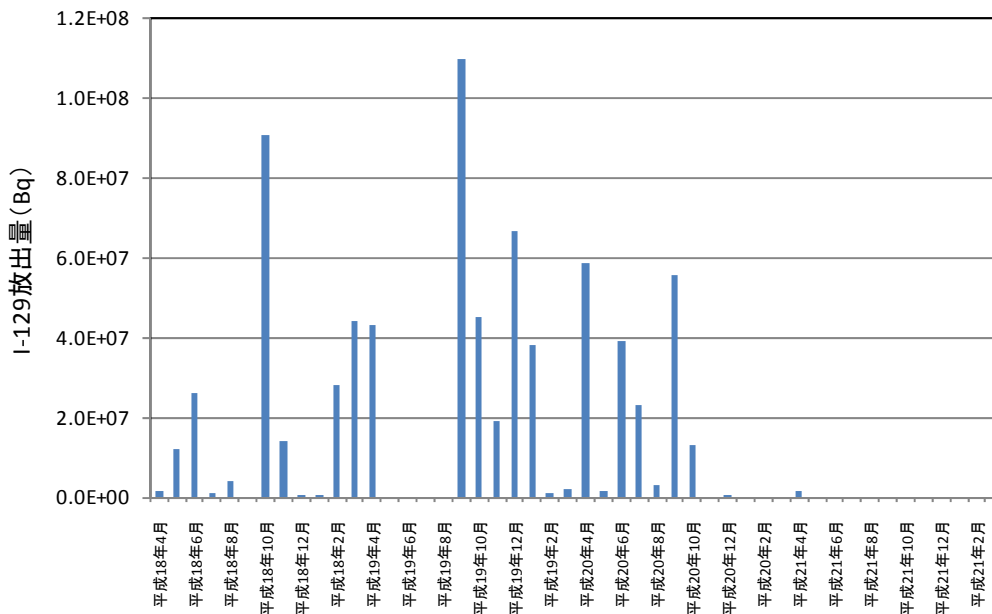


図4 再処理工場の気体廃棄物中 I-129 放出量の推移 (H18~H21)

3.2 分析法の違いによる検討

本調査において、平成11~12年度の調査においては中性子放射化分析法、平成21年度の調査においては加速器質量分析法により、ヨウ素-129を分析した。これら分析法の違いによるデータの比較検討を行うため、平成11年度に採取した4試料(尾駈、千歳平、横浜町、青森市)を加速器質量分析法により再分析を行い、中性子放射化分析法による分析結果と比較した。その結果を図5に示す。

青森市を除く3試料(尾駈、千歳平、横浜町)について、中性子放射化分析法による分析結果と加速器質量分析法による分析結果は、中性子放射化分析法の計数誤差を考慮すると概ね一致した。中性子放射化分析法では検出限界未満(<0.0002 Bq/kg 乾)だった青森市も、他地点の計数誤差から判断すると大きく異なる傾向はみられない。このことから、分析法の違いによる分析結果への影響は無いと考えられる。

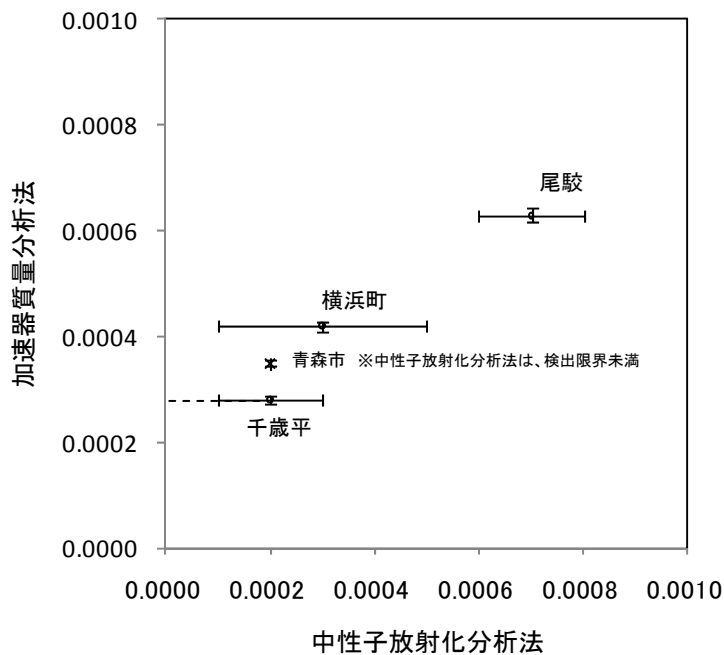


図5 分析法の違いによる¹²⁹I濃度の比較 (単位: Bq/kg 乾)

4. まとめ

- 1) アクティブ試験開始後の平成21年度調査結果は、平成11~12年度のバックグラウンド調査と比較すると¹²⁹I/¹²⁷I原子数比が上回っている地点が多かった。再処理工場の気象観測結果によると年間の主な風向の風下方向となる地点が多く、再処理工場からの影響が考えられる。今後も定期的に調査を実施してデータを蓄積し、検討していくこととする。
- 2) 平成11~12年度は中性子放射化分析法、平成21年度は加速器質量分析法によりヨウ素-129分析を実施していることから、分析法の違いによるデータの比較検討を行った結果、分析法の違いによる分析結果への影響はないと考えられる。

文 献

- 1) Xiaolin. Hou : Application of ¹²⁹I as an environmental tracer, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **262**, 67-75 (2004)
- 2) 青森県 : 原子力施設環境放射線調査報告書 (平成18年度報)
- 3) // (平成19年度報)
- 4) // (平成20年度報)

東通原子力発電所周辺に係る空間 γ 線スペクトル測定調査

成田 俊 貝森優希^{*1} 工藤俊明 安積 潔^{*2} 斉藤 陽^{*3}

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。

積算線量(空間 γ 線)は、調査地点において周辺環境の変化により測定値が変動することがあり、地点ごとにおける空間 γ 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。

このようなことから、将来、線量のレベルや構成成分に変動が見られた場合に原因究明するための基礎データを得ることを目的として、東通原子力発電所周辺地域の積算線量調査地点(全21地点)において可搬型Ge半導体検出器(以下、「in-situ Ge」という。)及びNaI(Tl)スペクトロメータ(以下、「NaI」という。)を用いた空間 γ 線スペクトル測定を実施し、各調査地点の空間 γ 線線量率における核種・壊変系列ごとの寄与線量率を求めた。また、空間 γ 線の主な放射源となっている土壌について、調査地点の中で土壌の採取が可能であった11地点で採取し、 γ 線放出核種分析を実施してin-situ Geによる土壌中放射性核種濃度測定結果と比較検討を行った。

2. 調査方法

2.1 空間 γ 線スペクトル

2.1.1 調査地点

図1、表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、in-situ Ge及びNaIにより空間 γ 線スペクトル測定を実施した。

*1：現青森県下北地域県民局地域連携部むつ環境管理事務所

*2：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*3：現青森県警察本部生活安全部保安課

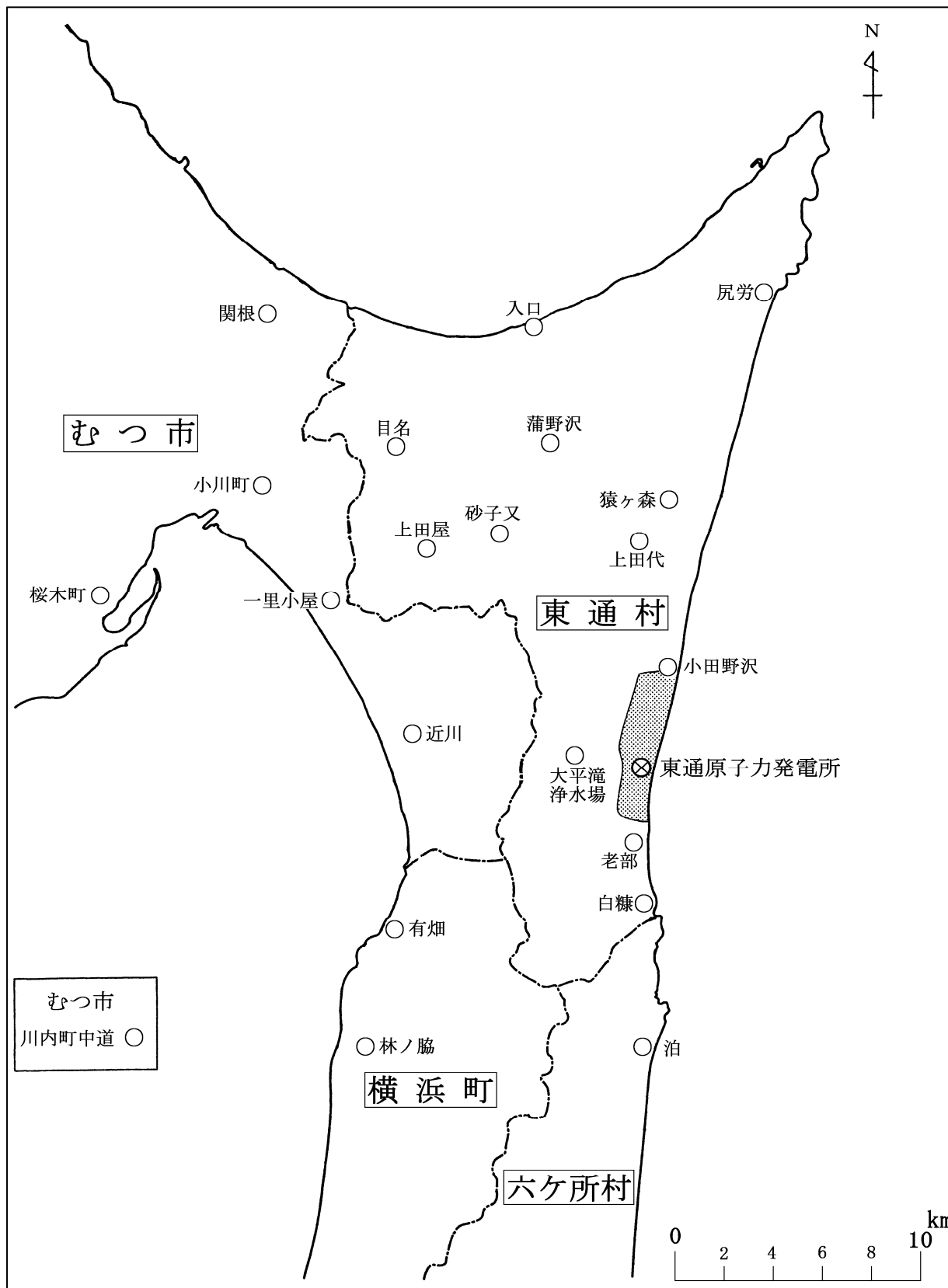


図 1 調査地点

表 1 測定状況

| 地 点 名 | 測定年月日 | 地点の状況 | 土壌の採取 |
|--------|-----------|-----------------|------------------|
| 小田野沢 | H18.10.5 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| 老 部 | H18.9.22 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| 砂子又 | H18.10.5 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| 大平滝浄水場 | H18.8.31 | 浄水場入口脇の斜面 | × |
| 猿ヶ森 | H18.11.2 | 草地 | ○ |
| 目 名 | H18.10.27 | 草地 | ○ |
| 入 口 | H18.10.24 | グラウンド脇 | ○ |
| 尻 労 | H18.11.17 | 近くに砂利がある | ○ |
| 近 川 | H18.8.31 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| 一里小屋 | H18.10.18 | 周辺に敷地境界の壁がある | × |
| 桜木町 | H18.10.18 | 地面に石が多い | × |
| 関 根 | H18.10.25 | 草地 | ○ |
| 有 畑 | H18.10.4 | 草地 | ○ |
| 泊 | H18.11.2 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| むつ市川内町 | H18.8.31 | 草地、周辺に舗装された道路有り | ○ |
| 小 川 町 | H18.9.11 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| 林ノ脇 | H18.10.4 | モニタリングステーション敷地内 | × |
| 白 糠 | H18.9.22 | 草地、近傍に石碑有り | ○ (採取：H18.10.25) |
| 上田代 | H18.9.22 | 草地 | ○ (採取：H18.10.24) |
| 上田屋 | H18.11.10 | 草地 | ○ |
| 蒲野沢 | H18.10.27 | 草地 | ○ |

2.1.2 装置及び測定方法

表 2 に測定に用いた装置及び測定条件の概要を示す。測定は平成 18 年 8 ～11 月の降水のない時間帯に行った。検出器は、積算線量計収納箱の近傍に、いずれも実効中心が地上 1m の高さとなるよう下向きに設置した。

in-situ Ge による測定結果（以下、「in-situ Ge 測定結果」という。）については、Beck らが開発した方法^{1),2)} (HASL 方式) を用いて核種・壊変系列ごとに空間 γ 線量率及び土壌中の放射能濃度の算出を行った。NaI については、アンフォールディングにより空間 γ 線量率の算出を行った。HASL 方式による解析は以下に示す仮定の下で行った。

- ①測定地点は周囲に建物等のない無限平面であること。
- ②土壌密度は 1.60g/cm^3 であり、組成は、 Al_2O_3 : 13.5 %、 Fe_2O_3 : 4.5 %、 SiO_2 : 67.5 %、 CO_2 : 4.5 %、 H_2O : 10 % であること。
- ③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 ($\alpha = 0.33\text{cm}^{-1}$) であること。

積算線量測定地点の状況は表 1 に示すとおりであり、必ずしも上記①～③を考慮して測定地点を選定したものではない。

また、測定対象核種は、Th 系列 (Tl-208、Ac-228)、U 系列 (Pb-214、Bi-214)、K-40 及び Cs-137 とした。

表 2 測定装置及び測定条件

| | in-situ Ge | NaI |
|------------|-------------------------------|---|
| 検出器 | GC2519 (Canberra 製、相対効率 25 %) | JSM-102 (Aloka 製、検出部 3 cm ϕ \times 3 cm) |
| 測定時間 | 80 ~100 分間 | 10 分間 (8 ~10 回測定) |
| MCA チャンネル数 | 4096ch | 240ch |

2.2 土壌中 γ 線放出核種

2.2.1 調査地点

図 1、表 1 に示す 21 地点のうち、土壌の採取が可能であった 11 地点とした。

2.2.2 試料採取・前処理方法

採取地点において、直径 5 cm、深さ 25 cm の採土器を用いて、1 地点につき 5 点採取を実施した。採取した土壌は、0~5cm、5~10cm、10cm~25cm の 3 層に切り分け、同一の地点、深度のものを混合し 105°C で 24 時間以上乾燥した。乾燥後、2mm メッシュのふるいを用いて乾燥細土とした。

2.2.3 装置及び測定方法

Ge 半導体検出器は SEIKO EG&G ORTEC 製 GMX-25、GMX-40 を使用した。乾燥細土を U-8 容器に適量分取し、試料中のラドンの散逸を防ぐため測定試料を密封して 1 ヶ月程度放置した後、80000 秒測定を行った。

3. 調査結果

3.1 空間 γ 線量率測定結果

各地点における壊変系列ごとの空間 γ 線量率について、in-situ Ge 測定結果、NaI による測定結果を表 3、図 2 に示す。また、表 3 には RPLD による積算線量測定値 (91 日換算値) のうち、積雪の影響が小さい期間 (平成 15 年~平成 18 年の 4~12 月) における平均値を 1 時間当たりの線量で表した値 (以下、「RPLD 線量率」という) を併せて記載した。なお、調査結果をとりまとめる過程において、in-situ Ge のピーク効率に経年変化が確認されたため、in-situ Ge 測定時の効率校正曲線を推定し、空間 γ 線スペクトルの解析を行っている³⁾。

表3 各地点における壊変系列ごとの寄与線量率及びRPLD線量率

(単位：nGy/h)

| 地点名 | Th系列 | | U系列 | | ⁴⁰ K | | ¹³⁷ Cs | 合計 | | RPLD線量率 |
|--------|---------|------|---------|-----|-----------------|-----|-------------------|---------|------|---------|
| | in-situ | NaI | in-situ | NaI | in-situ | NaI | in-situ | in-situ | NaI | |
| | Ge | | Ge | | Ge | | Ge | Ge | | |
| 小田野沢 | 3.2 | 2.7 | 4.1 | 4.8 | 4.6 | 5.3 | — | 11.9 | 12.8 | 38.7 |
| 老部 | 3.1 | 3.3 | 4.7 | 5.7 | 4.1 | 4.9 | — | 11.9 | 13.8 | 39.8 |
| 砂子又 | 5.8 | 5.1 | 4.8 | 4.9 | 5.3 | 6.0 | — | 15.9 | 16.1 | 43.3 |
| 大平滝浄水場 | 5.1 | 4.7 | 3.6 | 4.1 | 5.7 | 6.6 | 0.11 | 14.5 | 15.5 | 43.0 |
| 猿ヶ森 | 9.6 | 10.1 | 4.5 | 5.6 | 7.8 | 8.0 | 0.18 | 22.1 | 23.7 | 50.2 |
| 目名 | 5.2 | 5.5 | 4.5 | 5.3 | 4.8 | 5.8 | 0.28 | 14.8 | 16.6 | 44.1 |
| 入口 | 12.0 | 11.2 | 4.0 | 5.0 | 6.4 | 7.4 | 0.25 | 22.6 | 23.5 | 50.3 |
| 尻労 | 6.3 | 5.2 | 5.3 | 5.4 | 5.4 | 5.5 | 0.06 | 17.0 | 16.1 | 44.1 |
| 近川 | 4.8 | 5.4 | 4.3 | 5.2 | 4.9 | 5.5 | — | 14.0 | 16.1 | 44.2 |
| 一里小屋 | 7.5 | 8.8 | 6.4 | 6.5 | 7.0 | 7.5 | 0.15 | 21.1 | 22.8 | 46.6 |
| 桜木町 | 6.0 | 6.2 | 4.2 | 4.6 | 5.3 | 5.9 | 0.14 | 15.6 | 16.8 | 42.9 |
| 関根 | 5.3 | 5.0 | 3.0 | 3.5 | 5.7 | 6.5 | 0.24 | 14.2 | 15.1 | 46.3 |
| 有畑 | 8.8 | 8.4 | 4.2 | 4.9 | 7.0 | 7.6 | 0.17 | 20.2 | 20.9 | 50.4 |
| 泊 | 5.4 | 5.2 | 4.0 | 4.7 | 6.7 | 7.4 | 0.16 | 16.2 | 17.3 | 43.5 |
| むつ市川内町 | 7.2 | 7.8 | 3.5 | 4.6 | 5.7 | 7.4 | 0.25 | 16.6 | 19.8 | 46.3 |
| 小川町 | 3.4 | 4.4 | 5.8 | 6.4 | 4.6 | 5.8 | — | 13.8 | 16.5 | 38.6 |
| 林ノ脇 | 5.5 | 5.0 | 3.2 | 4.1 | 7.8 | 8.4 | — | 16.5 | 17.6 | 42.4 |
| 白糠 | 9.3 | 7.1 | 4.7 | 5.0 | 6.0 | 6.2 | 0.20 | 20.2 | 18.3 | 40.9 |
| 上田代 | 6.9 | 7.4 | 4.2 | 4.7 | 6.9 | 7.4 | — | 17.9 | 19.5 | 44.3 |
| 上田屋 | 5.6 | 6.8 | 4.5 | 5.2 | 5.6 | 6.3 | — | 15.8 | 18.3 | 44.6 |
| 蒲野沢 | 4.9 | 4.8 | 4.6 | 5.2 | 4.7 | 5.3 | 0.08 | 14.3 | 15.3 | 42.8 |
| 最大 | 12.0 | 11.2 | 6.4 | 6.5 | 7.8 | 8.4 | 0.28 | 22.6 | 23.7 | 50.4 |
| 最小 | 3.1 | 2.7 | 3.0 | 3.5 | 4.1 | 4.9 | — | 11.9 | 12.8 | 38.6 |
| 平均 | 6.2 | 6.2 | 4.4 | 5.0 | 5.8 | 6.5 | 0.18 | 16.5 | 17.7 | 44.2 |

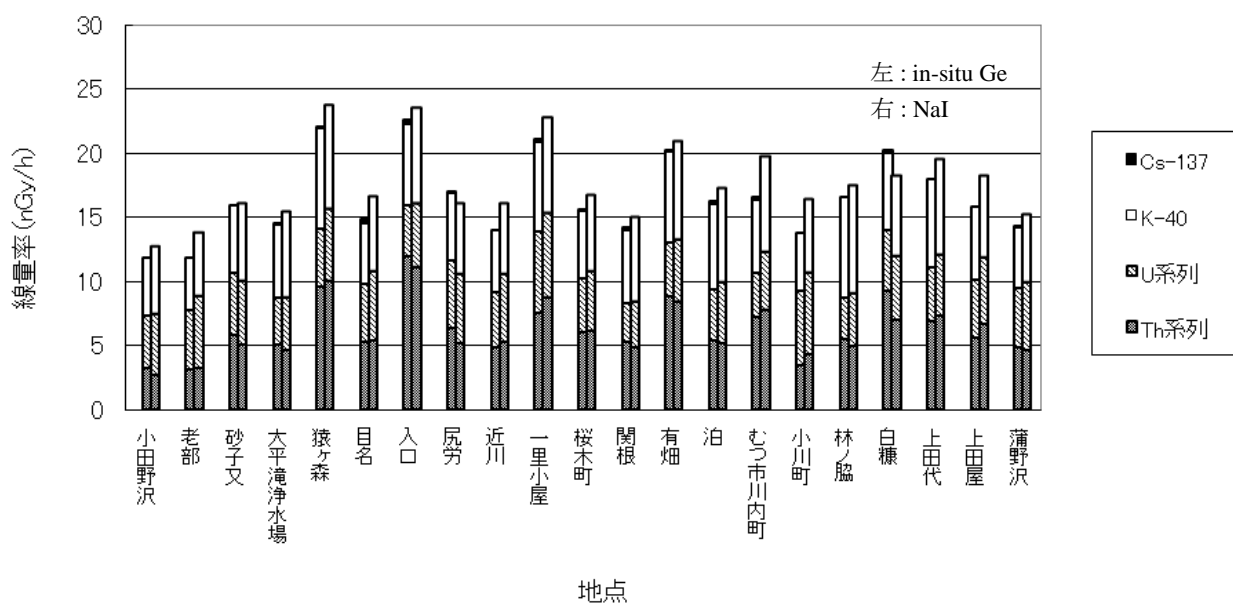


図2 各地点における空間γ線量率の構成成分

in-situ Ge による空間 γ 線量率と NaI による空間 γ 線量率の関係を図 3 に、in-situ Ge による空間 γ 線量率と RPLD 線量率の関係を図 4 に示す。in-situ Ge による空間 γ 線量率と NaI による空間 γ 線量率の間には、図 3 に示すとおり高い相関が認められる。in-situ Ge による空間 γ 線量率と RPLD 線量率についても図 4 に示すとおり相関が認められる。y 切片は宇宙線の寄与分と考えられる。

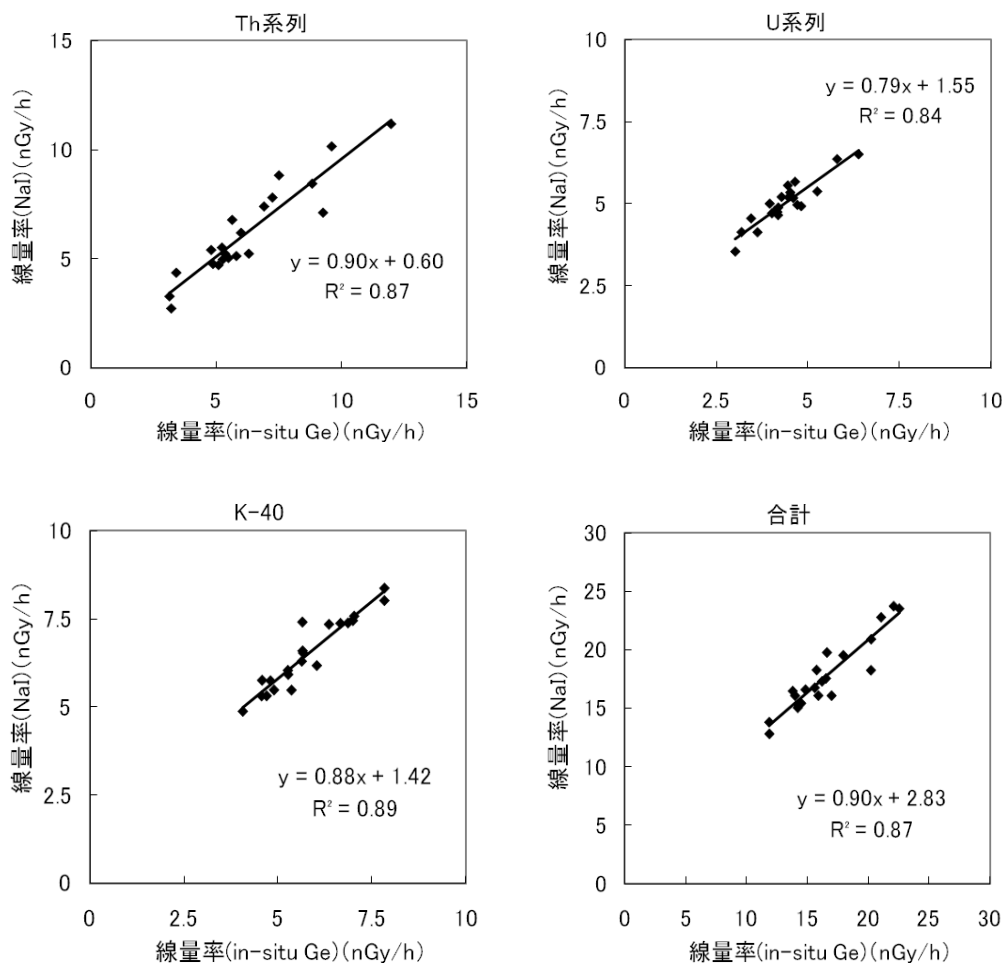


図 3 in-situ Ge による空間 γ 線量率と NaI による空間 γ 線量率の関係

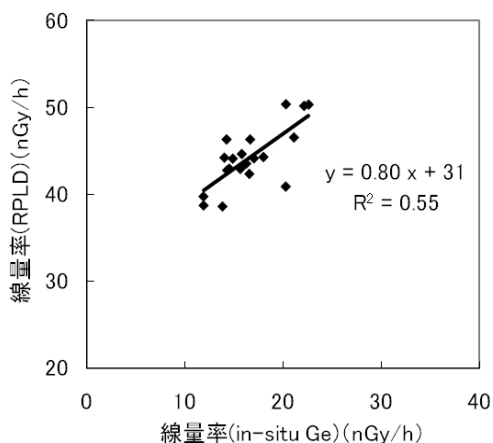


図 4 in-situ Ge による空間 γ 線量率と RPLD 線量率の関係

3.2 土壌中の放射能濃度測定結果

3.2.1 天然放射性核種

天然放射性核種について、in-situ Ge 測定及び採取した土壌の γ 線放出核種測定結果を表4に示す。

表4 各地点における深度ごとの放射能濃度(天然放射性核種)

| 地点名 | 採取深度 (cm) | 天然放射性核種 (Bq/kg 湿土) | | | | |
|------------|----------------------|-------------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-----------------|
| | | Th 系列 | | U 系列 | | ^{40}K |
| | | $^{208}\text{Tl}^{**1}$ | ^{228}Ac | ^{214}Pb | ^{214}Bi | |
| 猿ヶ森 | 0~5 | 8.3±0.4 | 20±1.4 | 21±0.8 | 20±0.8 | 240±7 |
| | 5~10 | 7.6±0.3 | 21±1.0 | 22±0.7 | 18±0.7 | 230±6 |
| | 10~20 ^{**2} | 8.1±0.3 | 22±1.1 | 22±0.7 | 17±0.7 | 230±6 |
| | in-situ | 5.3 | 14 | 9.3 | 9.8 | 190 |
| 目名 | 0~5 | 3.2±0.3 | 8.4±0.8 | 14±0.6 | 12±0.6 | 120±5 |
| | 5~10 | 3.4±0.2 | 9.5±0.8 | 13±0.6 | 12±0.5 | 120±4 |
| | 10~25 | 3.7±0.2 | 11±0.8 | 15±0.6 | 12±0.5 | 130±4 |
| | in-situ | 2.9 | 7.9 | 9.5 | 8.7 | 110 |
| 入口 | 0~5 | 7.0±0.3 | 20±1.1 | 21±0.7 | 19±0.7 | 180±5 |
| | 5~10 | 7.4±0.3 | 21±1.1 | 22±0.7 | 19±0.7 | 190±6 |
| | 10~25 | 6.4±0.3 | 18±1.0 | 18±0.6 | 15±0.6 | 160±6 |
| | in-situ | 6.3 | 16 | 9.1 | 8.9 | 150 |
| 尻芳 | 0~5 | 5.3±0.3 | 18±1.2 | 16±0.7 | 14±0.7 | 190±7 |
| | 5~10 | 4.1±0.3 | 13±1.1 | 14±0.7 | 14±0.7 | 190±7 |
| | 10~20 ^{**2} | 6.0±0.3 | 16±1.1 | 17±0.8 | 15±0.7 | 210±6 |
| | in-situ | 3.5 | 9.9 | 11 | 11 | 130 |
| 関根 | 0~5 | 2.4±0.3 | 6.6±1.0 | 8.3±0.8 | 6.7±0.7 | 160±6 |
| | 5~10 | 1.8±0.3 | 7.4±0.9 | 8.4±0.7 | 7.2±0.6 | 140±5 |
| | 10~25 | 2.2±0.2 | 4.8±1.0 | 8.6±0.6 | 7.1±0.6 | 150±6 |
| | in-situ | 2.7 | 7.8 | 7.8 | 6.6 | 130 |
| 有畑 | 0~5 | 5.9±0.3 | 17±1.0 | 16±0.8 | 14±0.7 | 200±6 |
| | 5~10 | 5.8±0.3 | 15±1.2 | 17±0.7 | 16±0.7 | 200±6 |
| | 10~25 | 5.6±0.3 | 17±1.0 | 16±0.7 | 15±0.6 | 210±5 |
| | in-situ | 5.0 | 12 | 10 | 8.8 | 170 |
| むつ市 川内町 | 0~5 | 6.5±0.4 | 17±1.3 | 20±0.9 | 17±0.8 | 220±7 |
| | 5~10 | 7.1±0.4 | 21±1.2 | 22±0.8 | 18±0.7 | 210±6 |
| | 10~25 | 5.2±0.4 | 14±1.0 | 17±0.8 | 15±0.7 | 230±6 |
| | in-situ | 4.0 | 9.9 | 7.2 | 8.2 | 130 |
| 白糠 | 0~5 | 6.9±0.3 | 17±1.1 | 20±0.8 | 17±0.7 | 200±6 |
| | 5~10 | 6.1±0.3 | 16±1.0 | 18±0.7 | 16±0.6 | 180±5 |
| | 10~25 | 4.5±0.3 | 13±0.9 | 17±0.6 | 14±0.6 | 150±5 |
| | in-situ | 4.6 | 12 | 10 | 9.5 | 140 |
| 上田代 | 0~5 | 5.0±0.3 | 13±1.0 | 14±0.7 | 12±0.7 | 200±6 |
| | 5~10 | 4.7±0.3 | 15±0.9 | 12±0.6 | 10±0.6 | 190±5 |
| | 10~25 | 4.6±0.3 | 12±0.8 | 13±0.6 | 11±0.5 | 170±5 |
| | in-situ | 4.0 | 9.8 | 8.5 | 9.0 | 160 |

| 地 点 名 | 採取深度 (cm) | 天然放射性核種 (Bq/kg 湿土) | | | | |
|-------|---------------------|--------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-----------------|
| | | Th 系列 | | U 系列 | | ⁴⁰ K |
| | | ²⁰⁸ Tl | ²²⁸ Ac | ²¹⁴ Pb | ²¹⁴ Bi | |
| 上 田 屋 | 0～5 | 2.9±0.3 | 6.7±1.1 | 9.5±0.7 | 10±0.7 | 130±6 |
| | 5～10 | 3.1±0.3 | 8.0±0.9 | 11±0.7 | 8.9±0.6 | 140±5 |
| | 10～25 | 3.7±0.3 | 11±0.9 | 12±0.6 | 11±0.6 | 140±5 |
| | in-situ | 3.0 | 8.0 | 7.8 | 11 | 130 |
| 蒲 野 沢 | 0～5 | 2.2±0.2 | 5.6±0.8 | 7.2±0.5 | 5.9±0.5 | 87±4 |
| | 5～10 | 1.9±0.3 | 5.9±0.8 | 6.7±0.7 | 6.9±0.5 | 91±4 |
| | 10～20 ^{※2} | 2.6±0.2 | 7.3±0.7 | 11±0.4 | 10±0.5 | 110±4 |
| | in-situ | 2.8 | 6.4 | 9.5 | 9.7 | 110 |
| 最 大 | 0～25 | 8.3 | 22 | 22 | 20 | 240 |
| | in-situ | 6.3 | 16 | 11 | 11 | 190 |
| 最 小 | 0～25 | 1.8 | 4.8 | 6.7 | 5.9 | 87 |
| | in-situ | 2.7 | 6.4 | 7.2 | 6.6 | 110 |
| 平 均 | 0～25 | 4.9 | 14 | 15 | 13 | 170 |
| | in-situ | 4.0 | 10 | 9.0 | 9.1 | 140 |

※1 Tl-208 の Bi-212 からの分岐比は 0.36 である。

※2 礫が多く、20cm より下層が採取できなかった。

in-situ Ge 測定及び、採取した土壌の γ 線放出核種測定結果の相関図を図 5 に示す。in-situ Ge 測定結果と採取した土壌の測定結果には高い相関が認められており、文部科学省放射能測定シリーズ 33「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」³⁾に記載されている実際の測定例の測定結果と同様の傾向を示している。

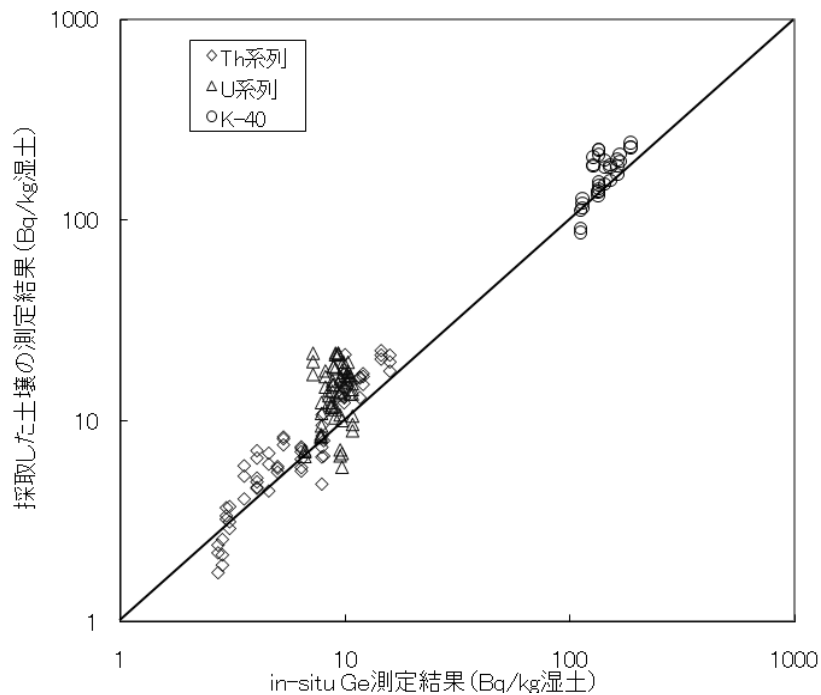


図 5 放射能濃度測定結果における in-situ Ge と土壌測定結果の関係

3.2.2 人工放射性核種

11 地点で採取した土壌中の Cs-137 濃度測定結果を表 5-1 に、またその結果と in-situ Ge 測定結果の比較結果を表 5-2 に示す。in-situ Ge 測定と比較するために、土壌の放射能濃度を単位面積あたりの放射能濃度に換算した。

表 5-1 各地点における放射能濃度 (Cs-137)

| 地点名 | ¹³⁷ Cs (Bq/kg 湿土) | | |
|--------|------------------------------|---------|----------------------|
| | 0~5cm | 5~10cm | 10~25cm [※] |
| 猿ヶ森 | 2.5±0.5 | 2.7±0.4 | 2.2±0.4 |
| 目名 | 5.5±0.4 | 8.0±0.4 | 5.4±0.4 |
| 入口 | 3.2±0.4 | 5.8±0.3 | 3.2±0.3 |
| 尻労 | 1.0±0.3 | 1.5±0.3 | 1.3±0.4 |
| 関根 | 1.9±0.4 | 1.8±0.4 | 1.3±0.3 |
| 有畑 | 2.7±0.4 | 2.5±0.4 | 3.2±0.4 |
| むつ市川内町 | 7.7±0.5 | 4.5±0.5 | 2.9±0.4 |
| 白糠 | 5.3±0.4 | 5.0±0.4 | 4.0±0.4 |
| 上田代 | ND | ND | ND |
| 上田屋 | ND | ND | ND |
| 蒲野沢 | ND | ND | 2.6±0.3 |

※猿ヶ森、尻労、蒲野沢は 10~20cm。

表 5-2 in-situ Ge 測定結果と
土壌の放射能濃度との比較

| 地点名 | ¹³⁷ Cs (Bq/km ²) | | 土壌/ in-situ Ge |
|--------|---|---------------------|-------------------|
| | in-situ Ge | 採取土壌 | |
| 猿ヶ森 | 1.7×10 ⁸ | 3.8×10 ⁸ | 2.2 |
| 目名 | 2.7×10 ⁸ | 1.5×10 ⁹ | 5.7 |
| 入口 | 2.4×10 ⁸ | 1.1×10 ⁹ | 4.5 |
| 尻労 | 5.5×10 ⁷ | 3.1×10 ⁸ | 5.6 |
| 関根 | 2.4×10 ⁸ | 4.2×10 ⁸ | 1.8 |
| 有畑 | 1.7×10 ⁸ | 8.9×10 ⁸ | 5.2 |
| むつ市川内町 | 2.5×10 ⁸ | 8.8×10 ⁸ | 3.6 |
| 白糠 | 2.0×10 ⁸ | 1.1×10 ⁹ | 5.5 |
| 上田代 | ND | ND | - |
| 上田屋 | ND | ND | - |
| 蒲野沢 | 7.8×10 ⁷ | 3.2×10 ⁸ | 4.0 |

表 5-1 のとおり、各地点での Cs-137 の土壌中分布は均一に近い状況となっており、in-situ Ge 測定の仮定（鉛直方向に指数関数分布）とは異なっている。

また、表 5-2 に示すとおり、in-situ Ge 測定結果と土壌の放射能濃度測定結果には約 2~6 倍程度の違いが見られた。これは、各地点の Cs-137 の土壌中の分布が均一に近い状況となっており、そのほかにも実際の土壌の状況（密度、水分量等）が in-situ Ge 測定の仮定と異なっていることが原因として考えられる。

4. まとめ

東通原子力発電所周辺地域の積算線量調査を行っている 21 地点において in-situ Ge 及び NaI を用いた空間γ線スペクトル測定を実施し、各調査地点の空間γ線線量率における壊変系列ごとの寄与線量率を求めた。また、調査地点の中から土壌の採取が可能であった 11 地点において、空間γ線の主な放射源となっている土壌を採取し、γ線放射核種分析を実施して in-situ Ge による土壌中放射性核種濃度測定結果と比較検討を行った。

in-situ Ge 測定及び NaI 測定による空間γ線量率測定結果には高い相関が認められた。また、in-situ Ge による空間γ線量率測定結果と RPLD 線量率にも相関が認められた。

土壌中の放射能濃度については、天然放射性核種では in-situ Ge 測定結果と採取した土壌のγ線放射核種分析結果に高い相関が認められたが、Cs-137 については約 2~6 倍程度の違いがあつ

た。原因としては、各地点の Cs-137 の土壤中分布等が in-situ Ge 測定の解析に用いた仮定と異なっていることが考えられる。

文 献

- 1) H. L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak: “*In Situ* Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-ray Spectrometry”, (1972).
- 2) 文部科学省:放射能測定法シリーズ 33 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) 成田俊、貝森優希、工藤俊明、安積潔、斉藤陽:青森県原子力センター所報, 第 4 号, 88-95(2009)

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測定

北畠 茂 木村秀樹*¹ 木村芳伸 五十嵐飛鳥*² 工藤英嗣*¹
佐々木耕一*³ 武石 稔*³ 金 泰裕*⁴ 島 茂樹*⁵

第9回トリチウム科学技術国際会議, 奈良県奈良市, 2010. 10. 24-10. 29

青森県及び日本原燃株式会社は六ヶ所再処理工場周辺地域において、青森県及び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、環境放射線モニタリングの一環として多くの種類の環境試料についてトリチウム調査を実施している。2006年3月に六ヶ所再処理工場において、試験運転の最終段階である使用済燃料を用いる総合試験(アクティブ試験)が開始されて以降、大気中水蒸気状トリチウムの水分中濃度、海水中のトリチウム濃度及び魚類の組織自由水トリチウム濃度にバックグラウンドレベルを上回ると考えられる測定値が認められるものがあつたため、施設の稼働状況、気象・海象の状況などからその要因について検討した。その結果、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線量限度に比較して極めて低い値であつた。

*1: 現青森県環境生活部原子力安全対策課

*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

環境放射能拡散シミュレーションシステム

武藤逸紀 安田 浩 竹ヶ原 仁 松村浩治*1
今井慎一*2 根本 誠*3 城戸 寛子*3

第12回 環境放射線研究会 茨城県つくば市 2011.3.8-3.10

六ヶ所再処理工場において平成18年3月31日からアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が行なわれており、環境放射線モニタリング（以下、「モニタリング」という。）において施設寄与が認められている。

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ため平成16年度から整備を進めている環境放射能拡散シミュレーションシステムを用いて空間放射線量率の施設寄与分、大気中クリプトン-85濃度及び大気中HTO濃度を計算し、その結果について青森県及び日本原燃㈱によるモニタリングの測定結果と比較・検討を行った。

空間放射線量率の施設寄与分及び大気中クリプトン-85濃度についてはよく再現でき、一致度が低い場合については、吹き上げ高さなどのパラメータを調整することにより一致度を向上させることができた。トリチウム濃度については、春期及び秋期において計算結果と測定値の一致度が異なった。今後は沈着速度等のパラメータについて季節ごとに検討する。

*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

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

熊谷邦彦 堀田智史*1 安田 浩 庄司博光

平成22年度放射能分析確認調査技術検討会，東京都，2011.3.11

六ヶ所再処理工場において平成18年3月31日から開始されたアクティブ試験（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、施設周辺地域を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。

施設寄与を評価するため、空間放射線量率、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（SCA弁別法）を開発した。

SCA弁別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が確認された。また、平成18～20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を試算した結果、実効線量は各年度について全て1μSv 未満であり極めて低い値であった。

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

IV 平成 22 年度調査研究事業報告

環境放射能拡散シミュレーションシステム

武藤逸紀 安田 浩 竹ヶ原 仁 松村浩治^{*1}
今井慎一^{*2} 根本 誠^{*3} 城戸 寛子^{*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年度にシステムを構築した。

平成17年度から平成18年度は、環境モニタリングにおけるクリプトン-85濃度及び空間放射線量率の調査結果を用いてシステムの検証を行い、平成19年度は精度向上及び機能の追加を目的として検討を行った。平成20年度はこれらの検討をもとに風速場評価機能の精度向上、トリチウム（HT、HTO）やヨウ素-129等の計算を目的とした降水等による地表沈着計算機能の追加、被ばく線量評価計算機能の追加、トリチウム計算モデルの追加によるシステムの高度化を行った。

平成21年度は高度化したシミュレーションシステムを用い、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間についてシミュレーションシステムによる計算結果との比較・検討を行うとともに、パラメータ調整等によりシステムの最適化を行った。

高度化及び最適化を行ったシミュレーションシステムを用いて行った計算結果と測定値との比較・検討について本所報の研究報告として取りまとめた。

2. 計算結果と測定値の比較・検討及び今後の展望

本報告ではシミュレーションシステムを用いて計算を行い、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間において、以下の項目について計算結果と測定値の比較・検討を行った。

- (1) 空間放射線量率の施設寄与分
- (2) 大気中クリプトン-85濃度
- (3) 大気中ヨウ素-129濃度及びヨウ素-129降下量
- (4) 大気中HTO濃度

空間放射線量率の施設寄与分及び大気中クリプトン-85濃度についてはパフモデルでよく再現でき、気象条件等により測定結果とは異なる計算結果となる場合については平成21年度に整備したパラメータ調整を行うことにより一致度を向上させることができた。

ヨウ素-129の大気中濃度に対し計算結果が過大であった。今後はこれまで計算を行っていない期間についても引き続き検討を行う。

トリチウム濃度については、春期及び秋期においてトリチウムモデル及びパフモデルの計算結果と測定値の一致度が異なった。今後はパラメータについて季節ごとに検討する。

*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

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

大下内 伸 工藤俊明 五十嵐飛鳥^{*1} 佐々木久美子^{*2} 木村秀樹^{*3}

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 (CH₃T 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 (CH₃T 等を含む。) の化学形であったとの報告もある¹⁾。

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²⁾は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年度及び平成20年度は、可燃性ガスの代わりに加湿カラムを用いる方法^{3),4)}による採取装置を組み立て、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。平成21年度は、加湿カラムを用いる方法により、現地調査を実施するための採取条件を取りまとめた。平成22年度は、この条件をもとに採取装置を組み立て、まずモニタリングステーション青森局 (以下、青森 MS) で実証試験を行い、その後、再処理施設周辺 (モニタリングステーション尾駱局 (以下、尾駱 MS) 及び吹越局 (以下、吹越 MS)) において調査を行った。

2. 調査方法

2.1 採取装置

化学形別トリチウム採取装置 (以下、採取装置) の概略を図1に示す。大気は、採取装置の出口側に設置した真空ポンプ (DA-30D、ULVAC) で吸引し採取装置に導入した。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 カラム、HT カラム及び CH₃T カラムに捕集した。

まず電子除湿器 (出口露点 1~3 °C) により水分 (HTO) の一部を捕集した後、残りの HTO を HTO カラムに捕集した。次に、HT は 100 °C に加熱した Pt 触媒 (Pt を担持させたメタルハニカム触媒、Pt 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

*1 現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

*2 現青森県健康福祉部医療薬務課

*3 現青森県環境生活部原子力安全対策課

カラムを通過した大気試料は、300 °Cに加熱した Pd 触媒 (DASH-220D、0.24 wt%、3 mmΦ、NECHEMCAT) で酸化し、水として CH₃T カラムに捕集した。各触媒カラムの前には、図 2 に示した無トリチウム水蒸気を供給するカラム (以下、加湿カラム) を設置した。

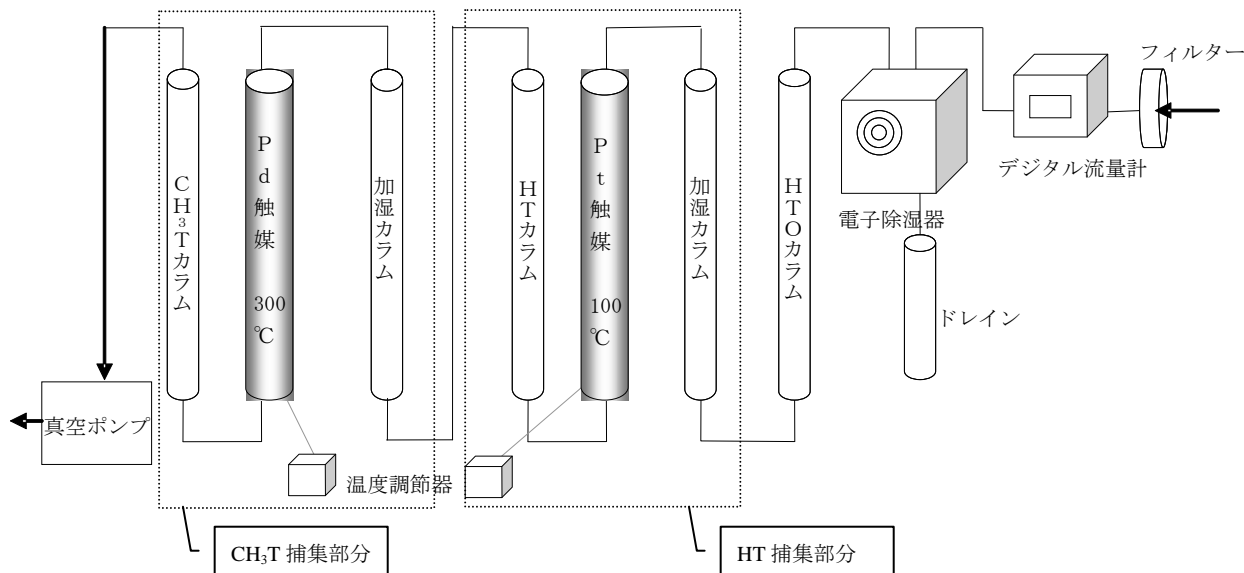


図 1 化学系別トリチウム採取装置
(可燃性ガスを使用しない)

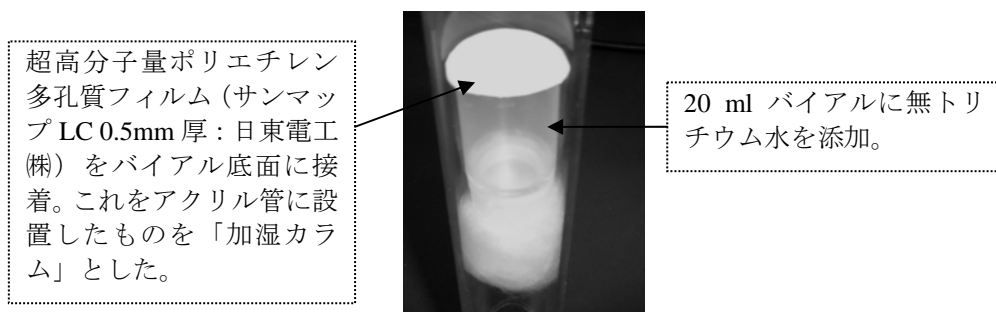


図 2 加湿カラムの概略

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。

HTO、HT 及び CH₃T 用の捕集カラムから回収した試料水中のトリチウム測定結果をもとにそれぞれの大気中濃度及び HTO については水分中濃度を算出した。

3. 調査結果

採取装置を青森 MS に設置し、平成 21 年度に検討し取りまとめた採取条件で大気を採取した。採取条件を表 1 に、それぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表 2 に示す。大気中水分量の多い夏季において、HTO カラムを飽和させることなく、また、キャリアである加湿カラム中の無トリチウム水が途中でなくなることなく採取することができた。測定の結果、HTO は検出限界以下であったが、HT が 5.6 ± 1.4 、 8.3 ± 1.4 mBq/m³、CH₃T が 2.6 ± 0.7 、 2.5 ± 0.8 mBq/m³ と有意な値になった。これらの値は、平成 21 年度までに、青森市駐在実験室内及び屋外空気について、化学形ごとの捕集状況を検討した際の HT 濃度 ($6.2 \sim 8.5$ mBq/m³)、CH₃T 濃度 ($1.6 \sim 3.9$ mBq/m³)^{5),6)}と比較すると、ほぼ同程度であった。

また、8 月及び 12 月には、採取装置を尾駸 MS 及び吹越 MS に設置し、青森 MS とほぼ同様の採取条件で大気を採取した。それぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表 3 に示す。大気中水分量の多い夏季 (8 月) において、0.9 L/min に増加させても HTO カラムを飽和させることなく採取することができた。HTO は検出限界以下であったが、HT が $4.6 \pm 0.6 \sim 7.1 \pm 0.6$ mBq/m³、CH₃T が $1.4 \pm 0.4 \sim 4.5 \pm 0.7$ mBq/m³ と有意な値になった。これらの値は、(財)環境科学技術研究所による青森県六ヶ所村における平成 18 年から平成 21 年の調査結果 (HT 濃度 $1.9 \sim 11.5$ mBq/m³、CH₃T 濃度 $0.4 \sim 4.8$ mBq/m³)^{7)~10)}と同じレベルであった。

表 1 採取条件

| | |
|------------------------------------|------------------------|
| HTO カラム本数 | 2 本 |
| HT カラム本数 | 1 本 |
| HT 用加湿カラム のバイアル数 | 2 個 (無トリチウム水約 30mL) |
| CH ₃ T カラム本数 | 1 本 |
| CH ₃ T 用加湿カラム のバイアル数 | 1 個 (無トリチウム水約 15mL) |

表 2 青森 MS における大気中 HTO, HT 及び CH₃T 測定結果

| 設置場所 | 青森 MS | 青森 MS |
|--|---------------------|---------------------|
| 採取期間 | 2010.7.20 ~7.27 | 2010.8.6 ~8.13 |
| 採取時間 (min) | 10080 | 10080 |
| 採取流量 (L/min) | 0.6 | 0.6 |
| 積算流量 (m ³) | 6.090 | 5.956 |
| HTO カラム増加量 (g) | 37.53 | 49.61 |
| 除湿水 (g) | 81.27 | 88.32 |
| HTO 濃度 (mBq/m ³) | (5.8 ± 5.8) | (2.2 ± 6.9) |
| HTO 濃度 (Bq/L) | (0.30 ± 0.30) | (0.10 ± 0.30) |
| 湿分 ^{*1} (g/m ³) | 19.5 | 23.2 |
| 絶対湿度 ^{*2} (g/m ³) | 19.3 | 21.3 |
| 加湿カラム減少量 (g) | 27.11 | 24.99 |
| HT カラム増加量 (g) | 27.94 | 25.95 |
| HT 濃度 (mBq/m ³) | 5.6 ± 1.4 | 8.3 ± 1.4 |
| 加湿カラム減少量 (g) | 13.25 | 13.41 |
| CH ₃ T カラム増加量 (g) | 14.83 | 15.00 |
| CH ₃ T 濃度 (mBq/m ³) | 2.6 ± 0.7 | 2.5 ± 0.8 |

*1 湿分 (g/m³) = HTO 捕集量 (g) / 積算流量 (m³)

*2 絶対湿度は青森 MS の気温と相対湿度から算出。

() は、測定値がその計数誤差の 3 倍以下で検出限界以下であることを示す。

表3 尾駮 MS 及び吹越 MS における大気中 HTO, HT 及び CH₃T 測定結果

| 設置場所 | 尾駮 MS | 尾駮 MS | 尾駮 MS | 尾駮 MS ^{*3} | 吹越 MS | 吹越 MS | 吹越 MS | 吹越 MS ^{*3} |
|---|--------------------|-------------------|---------------------|----------------------|--------------------|-------------------|---------------------|----------------------|
| 採取期間 | 2010.8.18 ～8.25 | 2010.8.25 ～9.1 | 2010.12.7 ～12.14 | 2010.12.14 ～12.21 | 2010.8.18 ～8.25 | 2010.8.25 ～9.1 | 2010.12.7 ～12.14 | 2010.12.14 ～12.21 |
| 採取時間(min) | 10020 | 10070 | 10010 | 9990 | 10090 | 10050 | 10020 | 9980 |
| 採取流量(L/min) | 0.59 | 0.92 | 1.31 | 1.31 | 0.64 | 0.90 | 1.23 | 1.32 |
| 積算流量(m ³) | 5.934 | 9.223 | 13.139 | 13.043 | 6.471 | 9.012 | 12.519 | 13.144 |
| HTO カラム増加量(g) | 43.52 | 63.55 | 53.71 | 53.45 | 64.76 | 150.76 | 59.24 | 57.23 |
| 除湿水(g) | 77.06 | 127.86 | 0.15 | 0 | 95.92 | 24.59 | 0 | 0 |
| HTO 濃度(mBq/m ³) | (14.0±6.3) | (12.8±6.4) | (2.1±1.2) | (1.5±1.2) | (1.8±6.0) | (13.5±6.1) | (0.2±1.4) | (1.9±1.3) |
| HTO 濃度(Bq/L) | (0.69±0.31) | (0.62±0.31) | (0.51±0.30) | (0.38±0.30) | (0.09±0.30) | (0.70±0.32) | (0.04±0.30) | (0.44±0.29) |
| 湿分 ^{*1} (g/m ³) | 20.3 | 20.8 | 4.1 | 4.1 | 20.0 | 19.5 | 4.7 | 4.4 |
| 絶対湿度 ^{*2} (g/m ³) | 17.1 | 17.4 | 4.1 | 3.7 | 18.0 | 18.5 | 4.3 | 3.9 |
| 加湿カラム減少量(g) | 26.05 | 25.88 | 23.51 | 26.21 | 30.5 | 20.64 | 29.16 | 22.75 |
| HT カラム増加量(g) | 27.13 | 26.82 | 23.75 | 26.21 | 31.41 | 21.55 | 29.37 | 22.93 |
| HT 濃度(mBq/m ³) | 6.4±1.4 | 5.7±0.9 | 4.6±0.6 | 5.3±0.7 | 4.7±1.5 | 5.9±0.8 | 6.4±0.8 | 7.1±0.6 |
| 加湿カラム減少量(g) | 14.00 | 12.78 | 12.54 | 27.48 | 12.53 | 10.83 | 13.68 | 22.79 |
| CH ₃ T カラム増加量(g) | 15.78 | 14.5 | 12.86 | 27.61 | 14.17 | 12.43 | 13.99 | 22.97 |
| CH ₃ T 濃度(mBq/m ³) | 2.9±0.8 | 2.4±0.5 | 2.2±0.3 | 4.5±0.7 | 2.4±0.7 | 1.4±0.4 | 2.8±0.4 | 3.7±0.5 |

*1 湿分 (g/m³) =HTO 捕集量 (g) /積算流量 (m³)

*2 絶対湿度は尾駮 MS 及び吹越 MS の気温と相対湿度から算出。

*3 CH₃T 用の加湿カラム用バイアルを 1 個から 2 個に増加し、無トリチウム水を供給した。

() は、測定値がその計数誤差の 3 倍以下で検出限界以下であることを示す。

4. まとめ

加湿カラムを用いる方法により、平成 21 年度に取りまとめた採取条件で、まず青森 MS で実証試験を行った。大気中水分量の多い夏季において、HTO カラムを飽和させることなく、また、キャリアである加湿カラム中の無トリチウム水が途中でなくなることなく採取することができた。また、8 月及び 12 月には、尾駮 MS 及び吹越 MS において調査を行った。大気中水分量の多い夏季（8 月）において、流量を 0.9 L/min まで増加させても HTO カラムを飽和させることなく採取することができた。HTO は検出下限値以下であったが、HT 及び CH₃T は有意な値となり、(財) 環境科学技術研究所による青森県六ヶ所村における平成 18 年から平成 21 年の調査結果と同じレベルであった。

平成 23 年度は、平成 16 年度から平成 22 年度までの結果を取りまとめることとし、再処理工場の操業状況を確認しながら、施設周辺地域において化学形ごとの大気中濃度を調査する。

文 献

- 1) 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)
- 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 ^3H 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、管野邦昭、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)
- 6) 五十嵐飛鳥、佐々木久美子、工藤俊明、木村秀樹：青森県原子力センター所報 第 4 号, 71-77(2009)
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)

環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査

大下内 伸 竹ヶ原 仁 大坂直人 木村秀樹*1
五十嵐飛鳥*2 幸 進*3 岡 光昭*3 武石 稔*3

1. はじめに

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

2. 平成22年度の調査計画と今後の進め方

平成22年度の調査計画を表1に示した。平成22年度は、平成21年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。これらの調査結果については平成23年度に取りまとめることとしている。平成23年度以降については、表1の調査計画を基本として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。

表1 対象試料及び調査地点・核種（平成22年度）

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

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*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

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 西堀祐司

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 α 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、プルトニウム-239 とプルトニウム-240 が放出するそれぞれの α 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、環境中の濃度と併せて同位体比を調べることはその起源の推定に有効である。

前述の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、プルトニウム-239 とプルトニウム-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 質量分析法によりプルトニウム-239 及びプルトニウム-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、モニタリング対象環境試料の一部を用いて財団法人日本分析センター（以下、「分析センター」という）と相互比較分析（以下、「クロスチェック」という）を行った。クロスチェックの結果、一部の試料で検討基準を外れており、要因について検討を進める。また、モニタリング対象環境試料の分析は平成20年度から開始しており、平成22年度は、海底土等について測定を行い、平成23年度までに全ての試料について測定を行い調査結果を取りまとめる。

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

調査対象試料を表 1 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 駁 沼 鷹 架 沼 小 川 原 湖 | 平成元～18 年度 | |
| 表 土 | 尾 駁 平 千 歳 町 横 浜 比較対照 (青森市) | 平成元～18 年度 | 表層土 (0～5cm) |
| 海底土 | 放 出 口 付 近 放出口北 20km 地点 放出口南 20km 地点 | 平成元～18 年度 | |

2.2 前処理

試料は 105 °C 乾燥後、2 mm ふるい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「環境試料中プルトニウム迅速分析法」¹⁾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、プルトニウム-242 標準溶液 (NIST 4334D) 0.03 Bq 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^{4+} 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 (超音波ネブライザー CETAC U-5000AT 併用) 及び SPQ9400 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 の強度の比からプルトニウム-239 とプルトニウム-240 の量を定量するプルトニウム-242 トレーサー法で行った。

3. 調査結果及び考察

3.1 比較標準試料の分析結果

分析・測定 of 信頼性及び精度を確認するため、比較標準試料として NIST SRM-4350b (RiverSediment)、IAEA-135(SeaSediment)を分析して $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ 放射能濃度及び $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比を算出し、成績書の値と比較した(表 2)。なお、IAEA-135 の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比については IAEA より推奨値が出されていないため、文献値²⁾と比較した。

分析の結果、 $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ 放射能濃度、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 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、補正の必要はないと考えられる。

表 2 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) | | 備考 |
|----------------|---|-------|--|-------------------------|------------|
| | 分析値 ^{※1} | 成績書の値 | 分析値 ^{※1} | 成績書または文献値 ^{※2} | |
| NIST SRM-4350b | 0.504±0.019 | 0.508 | 0.109±0.008 | 0.105 | SPQ9000 使用 |
| | 0.510±0.022 | | 0.108±0.013 | | SPQ9400 使用 |
| IAEA-135 | 191±7 | 213 | 0.212±0.015 | 0.211±0.006 | SPQ9400 使用 |

※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 4~8 時間浸出。誤差は試料間 (n=3) 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

今年度分析したモニタリング対象環境試料の分析結果を表 3 に示す。Pu の起源の推定の指標となる $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、以下のとおりであった。なお、これまで分析した結果と併せた $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の推移を図 1 に示す。

(1) 表土

表土の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の範囲は 0.154~0.179 であり、まだ分析試料数が少ないため地点間の差を比較するには至らないが、P.W.Krey らが世界の土壌 60 試料を測定した結果から得たフォールアウトの平均値 0.176 ± 0.014 ³⁾ と同程度であった。

(2) 海底土

海底土の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比の範囲は 0.212~0.281 であり、本調査における湖底土や表土の分析結果、フォールアウトの平均値に比べ高めであった。財団法人海洋生物環境研究所(以下、「海生研」という)の調査結果⁴⁾によると、海底土の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は 0.212~0.268、平均値は 0.235 ± 0.012 であり、これと比べると同程度であった。

表3 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果

| 試料名 (地点) | 採取 年度 | 放射能濃度 (Bq/kg 乾) | | $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比 | $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ (Bq/kg 乾) | |
|--------------------------|----------|-------------------|-------------------|---|---|----------------------------|
| | | ^{239}Pu | ^{240}Pu | | 本法 ^{※1} | モニタリング ^{※2} 結果 |
| 表土 (尾駁) | H 元 | 0.459±0.060 | 0.296±0.086 | 0.176±0.048 | 0.755 | 0.79 |
| | H2 | 0.375±0.052 | 0.230±0.023 | 0.167±0.016 | 0.604 | 0.52 |
| | H3 | 0.367±0.128 | 0.242±0.079 | 0.179±0.067 | 0.608 | 0.48 |
| | H4 | 0.283±0.023 | 0.173±0.014 | 0.167±0.000 | 0.457 | 0.49 |
| | H5 | 0.427±0.065 | 0.244±0.063 | 0.156±0.044 | 0.671 | 0.57 |
| | H6 | 0.313±0.045 | 0.177±0.009 | 0.154±0.020 | 0.489 | 0.46 |
| 海底土 (放出口付近) | H5 | 0.302±0.035 | 0.266±0.031 | 0.239±0.028 | 0.568 | 0.57 |
| | H6 | 0.284±0.016 | 0.257±0.055 | 0.246±0.053 | 0.540 | 0.55 |
| | H8 | 0.245±0.043 | 0.207±0.026 | 0.230±0.040 | 0.453 | 0.57 |
| | H9 | 0.217±0.020 | 0.212±0.028 | 0.265±0.043 | 0.429 | 0.50 |
| | H10 | 0.264±0.022 | 0.273±0.034 | 0.281±0.034 | 0.537 | 0.56 |
| | H11 | 0.333±0.032 | 0.280±0.030 | 0.229±0.027 | 0.613 | 0.62 |
| | H12 | 0.239±0.023 | 0.220±0.028 | 0.250±0.032 | 0.459 | 0.62 |
| | H13 | 0.333±0.019 | 0.318±0.032 | 0.260±0.023 | 0.651 | 0.61 |
| 海底土 (放出口北 20km 地点) | H14 | 0.339±0.037 | 0.264±0.045 | 0.212±0.038 | 0.603 | 0.57 |
| | H5 | 0.295±0.050 | 0.241±0.049 | 0.222±0.049 | 0.536 | 0.57 |
| | H6 | 0.313±0.053 | 0.279±0.064 | 0.243±0.059 | 0.591 | 0.64 |
| | H7 | 0.248±0.031 | 0.208±0.035 | 0.229±0.044 | 0.456 | 0.42 |
| | H8 | 0.276±0.031 | 0.241±0.063 | 0.237±0.062 | 0.517 | 0.48 |
| | H9 | 0.381±0.039 | 0.323±0.018 | 0.231±0.020 | 0.704 | 0.65 |
| | H10 | 0.310±0.049 | 0.295±0.082 | 0.259±0.069 | 0.605 | 0.54 |
| | H11 | 0.345±0.085 | 0.279±0.063 | 0.220±0.053 | 0.624 | 0.59 |
| 海底土 (放出口南 20km 地点) | H12 | 0.356±0.033 | 0.321±0.047 | 0.246±0.033 | 0.678 | 0.65 |
| | H13 | 0.362±0.037 | 0.359±0.070 | 0.270±0.048 | 0.722 | 0.52 |
| | H14 | 0.407±0.067 | 0.415±0.079 | 0.278±0.063 | 0.822 | 0.70 |
| | H5 | 0.083±0.007 | 0.079±0.018 | 0.258±0.058 | 0.162 | 0.18 |
| | H6 | 0.202±0.010 | 0.191±0.020 | 0.258±0.029 | 0.394 | 0.33 |
| | H7 | 0.198±0.020 | 0.185±0.025 | 0.255±0.043 | 0.383 | 0.32 |
| | H8 | 0.257±0.008 | 0.263±0.027 | 0.279±0.029 | 0.519 | 0.34 |
| | H9 | 0.251±0.013 | 0.224±0.023 | 0.243±0.028 | 0.474 | 0.39 |
| 海底土 (放出口南 20km 地点) | H10 | 0.371±0.036 | 0.346±0.039 | 0.253±0.029 | 0.717 | 0.73 |
| | H11 | 0.249±0.014 | 0.249±0.010 | 0.273±0.011 | 0.498 | 0.45 |
| | H12 | 0.332±0.015 | 0.305±0.006 | 0.250±0.010 | 0.637 | 0.63 |
| | H13 | 0.242±0.012 | 0.240±0.025 | 0.270±0.030 | 0.483 | 0.49 |

※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。

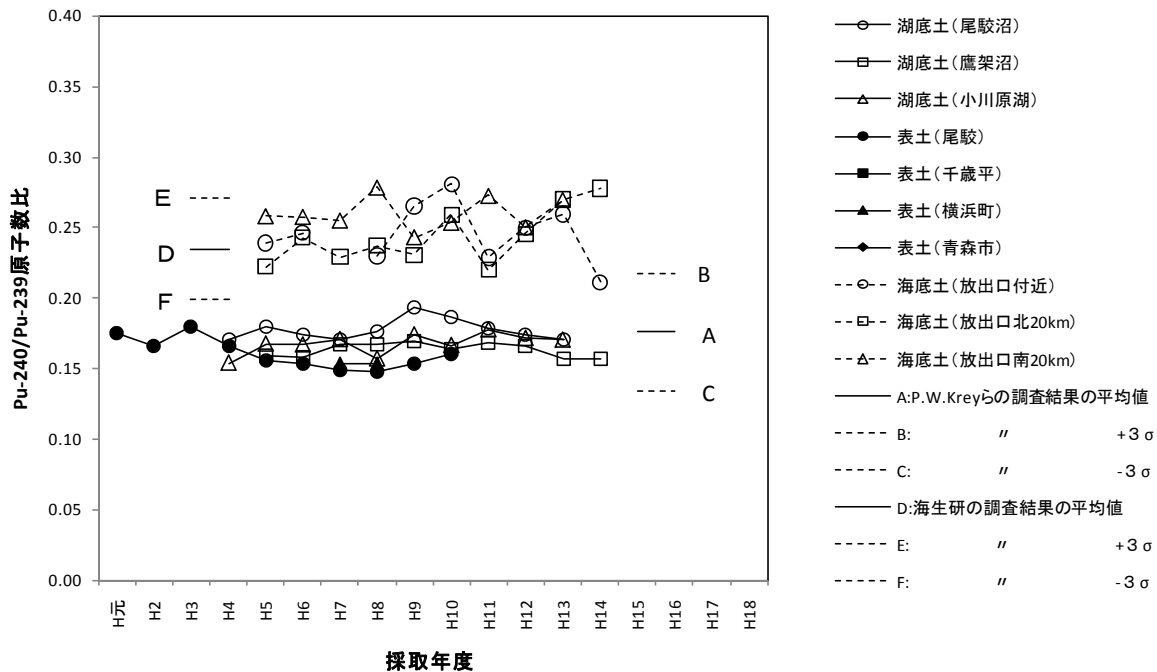


図1 モニタリング対象環境試料のPu-240/Pu-239原子数比

4. まとめ

- 1)今年度分析した結果において、表土の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比はこれまで分析した湖底土や表土と同様にフォールアウトの平均値と同程度であり、海底土の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は海生研の調査結果と同程度であることが確認された。
- 2)今後は未分析の試料の分析を進めるとともに、平成 20 年度に実施した分析センターとのクロスチェックにおいて、一部の試料が検討基準を外れた要因について検討する。

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)村松康行、吉田 聡：ICP-MS を用いた環境試料中の Pu、U、Th の分析, Radioisotopes, 48, 472-487
- 3) 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, 671-678(1976)
- 4)文部科学省：第 52 回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成 21 年度）, 61-62

表土中ヨウ素-129 分布調査

工藤俊明 五十嵐飛鳥*¹

青森県では、再処理工場から放出される核種の一つであるヨウ素-129 について、環境における分布状況と蓄積状況を把握するため、原子燃料サイクル施設周辺地域において、表土中のヨウ素-129 の測定を行っている。

平成11～12年度にかけて、比較対象（青森市）1地点を含む20地点について、中性子放射化分析法を用いてバックグラウンド調査を実施した。

平成18年3月31日から再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が開始されたことから、以前バックグラウンド調査を実施した20地点について、平成21年度に中性子放射化分析法に比べ高感度な加速器質量分析法により表土中のヨウ素-129 調査を実施し、バックグラウンド調査結果と比較を行った。

また、分析法の違いによるデータの比較検討を行うため、平成11年度に採取した4試料（尾駈、千歳平、横浜町、青森市）について加速器質量分析法による分析を行い、中性子放射化分析法による結果と比較した。

これらの調査結果については、本所報の技術報告として取りまとめた。

*1：現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

工藤俊明 五十嵐飛鳥*¹

1. はじめに

本県では、「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画」に基づき、環境試料（表土）中ヨウ素-129 (¹²⁹I) の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「環境試料中ヨウ素 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。

調査研究事業においては、表土、葉菜類及び海藻類中のヨウ素-129 濃度の調査を、蓄積状況等を詳細に把握するため超微量分析法である加速器質量分析法（以下、AMS 法）により実施している。

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」に採用されている ICP 質量分析法については、使用するキャリアガス等にヨウ素-129 の測定の妨害となるキセノン-129 が含まれていることなどにより、測定法シリーズ導入時点では検出感度が放射化学分析法 (¹²⁹I/¹²⁷I 原子数比で $10^{-5} \sim 10^{-4}$) とほとんど差が見られなかったが、最近、この妨害を除去できる機構の開発が進められることにより検出感度が向上しており、¹²⁹I/¹²⁷I 原子数比が $10^{-7} \sim 10^{-6}$ の土壌試料の測定を可能にしたとの報告もある¹⁾。ICP 質量分析法は、検出感度では ¹²⁹I/¹²⁷I 原子数比で 10^{-14} まで検出できる AMS 法に及ばないが、一般には普及しておらず外部の装置を利用するしかない AMS 法のように利用時間等の制約を受けることもなく即応性の点で有利である。また、ICP 質量分析法が文部科学省放射能測定法シリーズにおいて正式採用されれば、モニタリングにおける分析法を ICP 質量分析法に変更する可能性もある。

このようなことから、ICP 質量分析法によるヨウ素-129 分析法について、化学分離等の分析条件、装置による測定条件、種々の環境試料における検出可能レベル等について検討するものである。平成 22 年度は、検討に用いる ICP 質量分析装置を整備した。

2. 調査方法

2.1 分析対象試料

環境試料のうち、表土、生物試料（葉菜、海藻）を対象とする。

2.2 分析方法

分析法は文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素-129 分析法」²⁾に準拠し、燃焼-活性炭吸着法により行う。試料を三連式管状型電気炉で燃焼してヨウ素を活性炭に吸着させた後、この活性炭を水酸化ナトリウム溶液で煮沸してヨウ素を浸出し、溶媒抽出法によりヨウ素を分離・精製し測定溶液とする。

*1：現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

2.3 測定方法

ICP 質量分析装置は、パーキンエルマージャパン社 ELAN DRC-e を用いることとした。ICP 質量分析法によるヨウ素-129 の定量において、キャリアガスのアルゴンに含まれる同重体 (Xe-129) と安定ヨウ素 (I-127) の水素化物($^{127}\text{IH}^+$)による干渉が問題となる。本装置は、このような測定対象元素以外のイオンが引き起こすスペクトル干渉を除去又は低減するためのリアクションセル³⁾ と呼ばれる機構を内蔵している。

リアクションセルとは、外部から気体分子 (ヨウ素-129 測定には酸素を使用) を導入したセルと呼ぶ箱の中を、プラズマからのイオンが通過するときに、気体分子とプラズマからのイオンとの間で生じる相互作用を利用して測定対象元素イオンとスペクトル干渉イオンを選別するものである。その構造は、内部に複数の電極からなるイオンガイドが設けられたセルであり、質量分離部の前に設けられる。これにより本装置は、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比で 10^{-7} を下回るヨウ素-129 の検出を可能としている。

文 献

- 1) 藤原 英司 : ICP-DRC-MS によるヨウ素-129 の迅速測定, TX テクノロジー・ショーケース・イン・ツクバ 2008 環境
- 2) 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)
- 3) 日本工業規格 : 高周波プラズマ質量分析通則 JISK0133 (平成 19 年改正)

東通原子力発電所周辺に係る空間 γ 線スペクトル測定調査

成田 俊 貝森優希^{*1} 工藤俊明 安積 潔^{*2} 斉藤 陽^{*3}

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。

積算線量(空間 γ 線)は、調査地点において周辺環境の変化により測定値が変動することがあり、地点ごとにおける空間 γ 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。

このようなことから、将来、線量のレベルや構成成分に変動が見られた場合に原因究明するための基礎データを得ることを目的として、東通原子力発電所周辺地域の積算線量調査地点(全21地点)において可搬型Ge半導体検出器(以下、「in-situ Ge」という。)及びNaI(Tl)スペクトロメータを用いた空間 γ 線スペクトル測定を実施し、各調査地点の空間 γ 線線量率における核種・壊変系列ごとの寄与線量率を求めた。また、空間 γ 線の主な放出源となっている表土について、調査地点の中で土壌の採取が可能であった11地点で採取し、 γ 線放出核種分析を実施してin-situ Geによる土壌中放射性核種濃度測定結果と比較検討を行った。

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。

*1：現青森県下北地域県民局地域連携部むつ環境管理事務所

*2：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*3：現青森県警察本部生活安全部保安課

編 集 委 員

庄司博光（委員長） 福井弘信（副委員長） 安田 浩
佐々木 守 竹ヶ原 仁 五十嵐 健 工藤俊明
大下内 伸 武藤逸紀 佐々木隆文

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 5 号 (2010)

平成 23 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 476 円です。

