

ISSN 1881-7238

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 1 号

平成 18 年度

Bulletin

Of

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.1 (2006)

青森県原子力センター



## は じ め に

このたび、青森県原子力センター所報を創刊する運びとなりました。

本県では、平成2年に青森県環境保健センター放射能部及び六ヶ所放射線監視局を設置し、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等の調査並びに監視を行って参りました。その後、予定されている原子力施設の新増設に対応した監視体制の充実強化を図るため、平成15年4月に両施設の機能を再編成し、総合的な監視機関として、当センターが設置されました。

当センターの主な業務は、原子力施設の周辺における環境放射線の監視、安全協定に基づく施設への立入調査、調査研究などであり、原子力災害発生時には緊急時環境放射線モニタリングの拠点となります。特に、平成18年3月からは国内初の商業用施設である六ヶ所再処理工場において、使用済燃料を用いた総合試験（アクティブ試験）が行われているところであり、環境放射線モニタリングを引き続き着実に進めて行くとともに、地域住民はじめ県民の皆様の原子力に関わる安全・安心感の醸成に直結する重要な職責を担っているという認識のもと、研鑽を積みながら一步一步前進して参りたいと存じます。

本所報は、当センターが調査研究として進めている課題のほかに、日常業務で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、ご指摘を賜りますようお願い申し上げます。

平成19年3月

青森県原子力センター所長

奈良 忠 明



# 目 次

## I 研究報告

1. ルミネセンス線量計と蛍光ガラス線量計の比較 ..... 3  
佐々木久美子 木村秀樹 工藤香織 貝森優希 今 武純
2. モニタリングカーによる空間放射線量率の走行測定 ..... 14  
安積 潔 庄司博光 鈴木将文 大下内 伸 工藤英嗣
3. 放射性ストロンチウム分析におけるラドン・トロン壊変生成物の影響と対策..... 21  
神 俊雄 木村秀樹 武藤逸紀 齋藤 稔 菅野信行  
森本隆夫
4. 牛肉の灰化プログラムの検討 ..... 28  
武藤逸紀 五十嵐飛鳥 三浦 太 木村秀樹 神 俊雄  
工藤俊明 吹越恵里子 齋藤輝夫 鹿内伸泰 今 武純

## II 資料

1. 再処理工場のアクティブ試験に伴う環境への影響について ..... 37  
大久保英樹 庄司博光 工藤英嗣 永井 進
2. 青森県における大気中クリプトン-85 濃度調査 ..... 43  
三浦誓也 貝森優希 工藤英嗣 野呂幸男 時枝隆之  
広瀬勝己

- III 学会等発表要旨 ..... 45



# I 研 究 報 告



# 熱ルミネセンス線量計と蛍光ガラス線量計の比較

佐々木久美子 木村秀樹 工藤香織<sup>\*1</sup> 貝森優希 今 武純

積雪寒冷地における積算線量測定のための TLD と RPLD の諸特性を把握する目的で、セルフドーズ評価試験、温度特性試験及び環境における比較測定を行った。その結果、環境における比較測定結果では、全期間を通して両者の間には正の相関（相関係数 0.88）が認められた。しかしながら、当センターが有するロットの TLD のセルフドーズは 4.06 及び 3.77nGy/h、RPLD は 0.53nGy/h となり、両線量計の間には明確な差がみられた。また、環境における測定結果を用いて求めた低温による感度変化係数は、TLD では  $1.07 \pm 0.052$  と 1 より大きく、RPLD では  $0.97 \pm 0.033$  と 1 より小さくなり、低温時の感度変化の違いが明らかになった。以上の結果から、本県のような積雪寒冷地において、環境における両線量計の測定値を比較する場合には、セルフドーズとともに、測定時期（温度条件）を考慮する必要がある。

## 1. はじめに

原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリング（以下「モニタリング」という。）の一環として、熱ルミネセンス線量計（以下「TLD」という。）による積算線量測定が広く行われている。しかしながら、TLD は、①フェーディング効果により気温の高い夏季において測定値が低下する傾向がある、②素子のロットによってセルフドーズが異なる、③繰り返し測定ができない等の欠点があることが知られている。

一方、同様な積算型の線量計である蛍光ガラス線量計（以下、「RPLD」という。）の場合には、①素子間の感度のばらつきが小さい、②フェーディングが小さい、③繰り返し測定が可能である等の利点があることから、RPLD のモニタリングへの適用が検討されてきた。その結果、RPLD は TLD と同等の優れた性能を有しており、また、TLD と RPLD の測定の間と比較的よく一致した値が得られたことが報告されている<sup>1)3)</sup>。しかしながら、積雪寒冷地における冬期間のモニタリングでは 5%程度感度が低下することに留意する必要があるとの報告<sup>4)</sup>があり、著者らが行った室内実験の結果でも  $0.05 \sim 0.09\% / ^\circ\text{C}$  の感度低下がみられている<sup>5)</sup>。

国内初の商用原子燃料サイクル施設が立地されている青森県六ヶ所村は、1年の約3分の1の期間で月平均気温が  $5^\circ\text{C}$  以下と低く、積雪が多い時には 2m 近くまで観測されるような気象条件である。積雪が多くなると、大地からの放射線が遮へいされることにより空間放射線量が低下し、測定値に対するセルフドーズの寄与が相対的に大きくなるため、使用する線量計のセルフドーズを正確に把握しておくことが重要となる。また、気温が長期にわたり低くなるため、低温による感度変化を把握しておくことが不可欠である。

本報では、トンネルを利用した測定により線量計のセルフドーズを評価した結果とともに、室内実験及び原子燃料サイクル施設周辺地域における比較測定により、温度特性の評価を行った結果について報告する。

\*1: 現青森県環境生活部環境政策課

## 2. 調査方法

### 2.1 積算線量計

TLD 測定には松下産業機器(株)製素子(UD-200S)及びリーダー(UD-512P)を、RPLD 測定には東芝硝子(現旭テクノグラス)社製素子(SC-1B)及びリーダー(FGD-201)を使用し、測定はそれぞれ文部科学省放射能測定法シリーズ<sup>6), 7)</sup>に従った。校正は、両線量計とも測定の都度、校正用の標準照射場である照射装置で照射した素子(以下「標準素子」)を用いて行った。

### 2.2 セルフドーズ評価のための測定調査

積算線量計のセルフドーズを評価するための測定は、宇宙線レベルが地上と比べてかなり低い青函トンネルを利用して行った。青函トンネルは、図1に示すように、日本の本州と北海道を結ぶ全長53.85km(海底部23.30km)の海底トンネルであり、北海道旅客鉄道(株)が管理している。セルフドーズの測定は、このトンネル内の図2に示す北海道側先進導坑旧ポンプ室(以下「セルフドーズ測定地点」という。)において、2002年2月から2004年2月まで実施した。この場所は、海と陸の境目に位置し、海面からの深さは283mである。トンネル内の気温及び湿度は年間を通じて一定で、それぞれ約20℃及び80~90%である。この場所で壁厚5cmの鉛容器を5cm厚の鉛ブロックで囲み、すべての面で鉛厚10cm以上となるような遮へい箱を形成した。その中に、TLD(ロットA、ロットB)各10素子及びRPLD5素子を鉛容器(10cm厚)内に半年~1年間設置し、回収日の翌日に測定を行った。

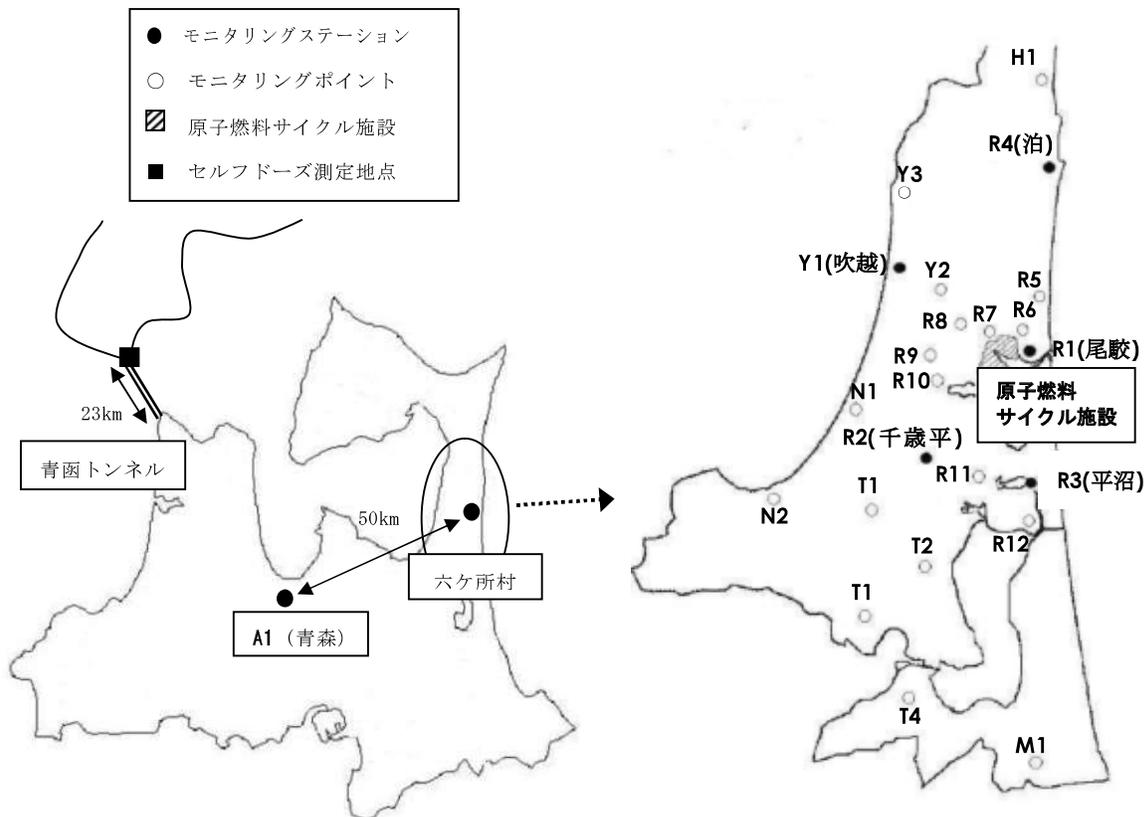


図1 セルフドーズ及び空間放射線の調査地点

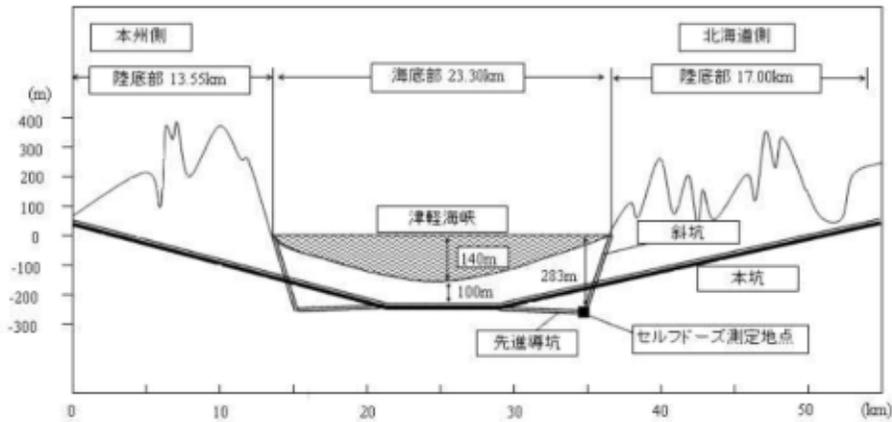


図2 青函トンネルの概要

素子の運搬には、鉛 2cm 厚の運搬容器を使用し、回収から翌日の読み取りまでの間は 5cm 厚の鉛容器に保管した。この運搬及び保管の間に素子が受けた線量については、チェック用の素子を同時に運搬・保管して読み取りを行うことにより、十分低いことを確認した。

セルフドーズ測定における影響要因として、宇宙線（電離成分、中性子成分）、ラドン濃度、 $\gamma$ 線量の測定を 2002 年 8 月に実施した（(財)日本分析センターへ委託）。宇宙線については、応用光研製 3in $\Phi$  球形 NaI(Tl)シンチレーション検出器（光学ガラスに石英使用）を用い、3～50MeV の範囲でスペクトルを約 2 日間測定した。次に各チャンネルの計数にそのチャンネルに相当するエネルギーを乗じ、積算して吸収エネルギーを算出した。また、地上の宇宙線レベルと比較するため、青函トンネル斜坑の地上入口付近においても、同様に約 2 時間の測定を行った。

大気中 Rn-222 濃度については、GENITRON 製電離箱式ラドン濃度測定器（Alpha GUARD）を用い、約 4 日間測定を行った。中性子線量は、富士電機社製サーベイメータ型レムカウンタ（2 in $\Phi$  球形 5 気圧 He-3 比例計数管）9 台を用い、約 4 日間測定を行った。このレムカウンタは、エネルギー特性向上のため、ポリエチレン厚 8cm の市販品に、さらに 2cm 厚のポリエチレンカバーを被せて使用した。 $\gamma$ 線量は、宇宙線の測定と同じ 3in $\Phi$  球形 NaI(Tl)シンチレーション検出器を用い、約 1 時間のスペクトル測定を行って空気吸収線量を算出した。

### 2.3 温度特性試験

TLD 及び RPLD の温度特性を比較するため、照射時の温度条件を -10 $^{\circ}$ C、0 $^{\circ}$ C、20 $^{\circ}$ C 及び 30 $^{\circ}$ C と変えた実験を行った。（財）環境科学技術研究所の全天候型人工気象実験施設内大型人工気象室（12 m  $\times$  11 m  $\times$  13 m）において、照射線源として Cs-137（3.3 MBq）及び Co-60（1.9 MBq）の点線源を重ねて使用し、その線源を中心とする半径 110 cm の円周上に TLD 20 素子（ロット A 及びロット B 各 10 素子）及び RPLD 10 素子を並べて、それぞれ 187 時間（約 125  $\mu$ Gy）照射<sup>5)</sup>、3～5 時間後に測定を行った。

### 2.4 TLD の初期フェーディング検討試験

TLD については、放射線の照射後、測定値が短期間で減少する初期フェーディングが知ら

れており、この現象が安定化するまでの時間は温度に依存するとされている<sup>6)</sup>。本県における TLD 測定方法では、まず、校正用 TLD は、初期フェーディングを安定化させるため、標準照射後、室温 (22°C) で約 48 時間以上放置後に測定を実施している。一方、環境モニタリング用 TLD は、環境に約 3 箇月間設置後、できるだけ迅速に測定結果を得るため回収した翌日に測定を実施しており、室温での放置時間は 18 時間程度になる。モニタリング対象地域の月平均気温が -2.6~23.1°C であったことから、環境モニタリング用 TLD では、特に冬季において初期フェーディングが安定化していない可能性がある。

環境測定における初期フェーディングの状況を推定するため、次のとおり冬季における環境測定を模擬した照射実験を行った。照射した TLD80 素子 (ロット A 及び B 各 40 素子) は、40 素子ずつに分け、それぞれ 22°C の室内 (グループ 1) 及び 3°C の冷蔵庫 (グループ 2) で 48 時間放置後、まずそのうちの 20 素子ずつを測定した。冷蔵庫に残ったグループ 2 の 20 素子を 22°C の室内に移動し、グループ 1 とともにさらに 18 時間 (照射からの経過時間 66 時間) 放置した後、測定を行った。

## 2.5 原子燃料サイクル施設周辺環境における比較測定

図 1 に示した、六ヶ所村 12 地点 (R1~R12)、横浜町 3 地点 (Y1~Y3)、野辺地町 2 地点 (N1~N2)、東通村 1 地点 (H1)、東北町 4 地点 (T1~T4)、三沢市 1 地点 (M1) 及び青森市 1 地点 (A1) の計 24 地点において、2001 年 4 月から 2005 年 3 月まで両線量計を設置し、比較測定を実施した。即ち、地上 1.8 m に設置した収納箱内に 6 素子の TLD 及び 3 素子の RPLD を地表に対して水平方向に配置し、3 箇月毎に設置回収した。測定は、両者とも回収日の翌日に行った。

測定データの解析には図 1 に示す 6 モニタリングステーションに設置した NaI(Tl) シンチレーション検出器 (3 inΦ×3 in 円筒形、以下「NaI」という。) 及び気象観測機器により連続測定を行っている空気吸収線量率、気温及び積雪深を用いた。

## 3. 結果と考察

### 3.1 セルフドーズの評価

積算線量計のセルフドーズ測定結果を表 1 に示す。2 ロットの TLD に関するそれぞれの平均値は、4.06 及び 3.77 nGy/h であり、ロットによって異なった値を示した。RPLD (1 ロット) の測定結果は、平均で 0.53 nGy/h であり、TLD に比べ約 3 nGy/h 低かった。

表 1 青函トンネル内での TLD 及び RPLD セルフドーズ測定結果 (海面下 283m) 単位: nGy/h

	1 回目 (2002 年 2 月 19 日 — 2002 年 8 月 19 日)	2 回目 (2002 年 8 月 19 日 — 2003 年 3 月 13 日)	3 回目 (2003 年 3 月 13 日 — 2004 年 2 月 27 日)	平均
TLD (ロット A)	3.89 ± 0.20	4.08 ± 0.21	4.20 ± 0.17	4.06
TLD (ロット B)	3.76 ± 0.16	3.70 ± 0.11	3.86 ± 0.16	3.77
RPLD	0.51 ± 0.18	0.62 ± 0.14	0.48 ± 0.07	0.53

この測定値に含まれる宇宙線、中性子線、バックグラウンド  $\gamma$  線及び大気中ラドンによる寄与を把握するため、セルフドーズ測定地点において実際にこれらを測定し、評価した。その結果を表 2 に示す。

表 2 青函トンネル内での宇宙線等測定結果

測定項目	測定値(単位)	積算線量計への影響(nGy/h)
宇宙線	0.0279 (MeV/s)	0.03
$^{222}\text{Rn}$ 濃度	7.0 (Bq/m <sup>3</sup> )	-
中性子線量	0.09 (nSv/h)	<0.0003
$\gamma$ 線線量	32.1 (nGy/h)	0.01

宇宙線については、3in $\Phi$  球形 NaI(Tl)シンチレーション検出器により測定した 3~50 MeV の吸収エネルギー0.0279MeV/s に、ガラス線量計に対する宇宙線寄与を求める換算係数 0.99<sup>8)</sup> を乗じ、0.03 nGy/h と推定した。TLD への宇宙線寄与もほぼ同程度と考えられる<sup>9)</sup>。また、3~50MeV の吸収エネルギーについて、地上における測定値と比較すると、セルフドーズ測定地点における測定値は地上の約 1/1,100 であった。

中性子線量率の測定値は 0.09nSv/h であった。中性子は RPLD 測定値に直接的な影響を与えないと考えられるため、中性子が鉛 10 cm を通過した場合に生じる  $\gamma$  線線量率を評価した。中性子のエネルギーを 14 MeV と仮定して、換算係数 0.0033<sup>10)</sup> を用い、0.0003 nGy/h と算出した。測定した中性子線量率は、測定器のセルフドーズを含んだ値であるため、実際の影響はさらに小さく、無視できると考えられる。

同地点におけるバックグラウンド  $\gamma$  線線量率は 32.1 nGy/h であった。この値は、3in $\Phi$  球形 NaI(Tl)シンチレーション検出器のセルフドーズ及び宇宙線寄与を減じた値である。バックグラウンドの  $\gamma$  線エネルギーを 1 MeV と仮定し、10 cm 厚の鉛による減衰率を 0.00032<sup>11)</sup>として計算した結果、遮へい箱内の線量率は 0.01 nGy/h と見積もられた。

Rn-222 については、この地点の濃度は日本における通常の居住環境と同じレベルであること、積算線量計が設置されている遮へい箱の中の空間が 17.5cmW×9.0cmD×2.5cmH と非常に狭いことから、積算線量計への影響は無視できると考えられる。

以上の結果から、青函トンネル内の遮へい箱に設置したこれらの積算線量計の測定値への寄与は、宇宙線から 0.03 nGy/h、 $\gamma$  線から 0.01 nGy/h、合計で 0.04 nGy/h と評価した。この値は、TLD については約 1%と無視できる値である。また、RPLD については約 8%の影響であるが、測定のばらつきと比較しても小さいため、無視できると考えられる。

### 3.2 積雪時における測定値へのセルフドーズの寄与

六ヶ所村の原子燃料サイクル施設周辺地域及び青森市では、冬季に積雪が観測され、その遮へい効果により空間放射線量率の低下がみられている。積雪の量は地域により異なり、モニタリングステーション設置地点では、青森市、六ヶ所村千歳平が比較的多く、横浜町吹越、六ヶ所村平沼及び泊が比較的少ない傾向にある。

各モニタリングステーションにおける TLD、RPLD 及び NaI の測定値と積雪深の関係を図 3 に示す。TLD 及び RPLD の測定値は四半期値を、NaI の測定値は積雪期の前後 1 箇月程度を含む 11 月から 5 月の月平均値を用いた。積雪深は、それぞれに対応した四半期又は月の平均値を用いた。それぞれの地点の空間放射線量率は、大地からの放射線量により異なってお

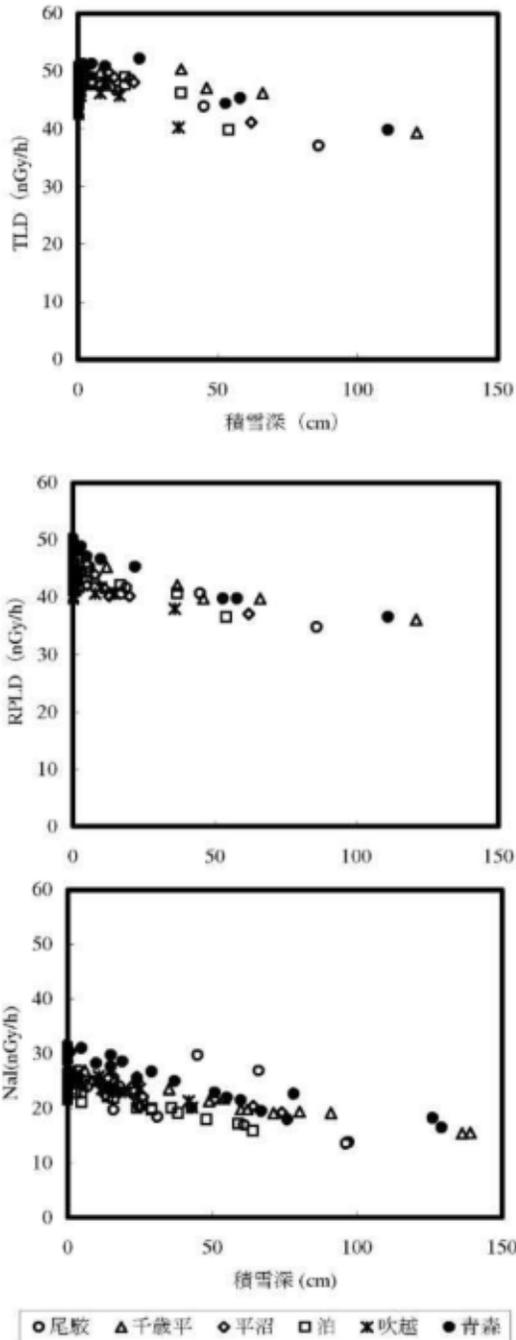


図3 積雪深と TLD, RPLD 及び NaI の関係

### 3.3 温度特性試験

温度特性試験結果を 20°Cでの測定値に対する-10°C, 0°C, 30°Cでの測定値の比として図4に示す。TLDは、20°Cでの測定値に比べ、低温側の0°C及び-10°Cでの測定値が3~5%高く、高温側の30°Cでの測定値は逆に2~3%低くなる結果が得られた。一方、RPLDは、低温側の0°C及び-10°Cでの測定値が2~3%低く、高温側の30°Cでの測定値は逆に3%程度高くなる結果と

り、積雪深が0 cmの場合で、地点により最大7 nGy/h程度の差がみられる。しかし、積雪深が大きくなるにつれて、測定値の低下がみられ、積雪深が70 cm程度以上になると、各測定器とも10 nGy/h程度低くなった値でほぼ一定になり、地点による差異もみられなくなった。積雪により大地からの放射線が遮へいされるため、前述のセルフドーズの評価結果から、積雪深が大きくなるにつれて、測定値に対するセルフドーズの寄与は、TLDでは約10%まで大きくなるが、RPLDでは1%程度であることが明らかになった。この他、測定値には大気中のラドン壊変生成物の寄与も考えられるが、六ヶ所村と青森市における庄司ら<sup>12)</sup>の調査では0.63~1.6 nGy/hと推定されており、相対的に小さいと考えられる。

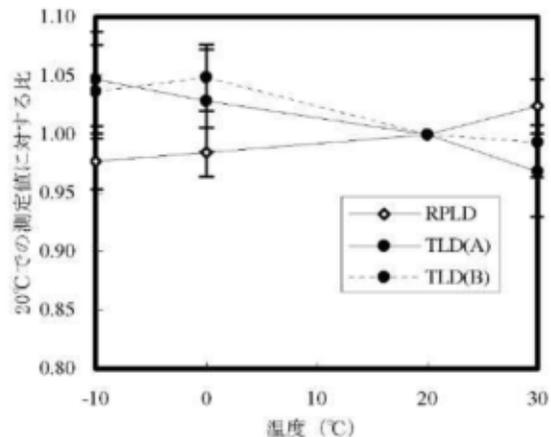


図4 温度特性試験における 20°Cでの測定値に対する各温度条件での測定値の比較

なった。

### 3.4 TLDの初期フェーディング検討試験

照射から48時間及び66時間経過後の測定値を、グループ1の測定値に対する比で示したのが表3である。

グループ2の測定値はグループ1と比較し、3℃で放置した48時間時点で5%、その後22℃で18時間放置しても2~3%高い値となり、初期フェーディングが安定化していないことが確認された。この結果は、前述の温度特性試験結果とほぼ一致する。これらのことから、TLDの場合、積雪寒冷期における測定値は、低温の影響で初期フェーディングが安定化しないため約2~3%程度高めになることが推測された。

表3 初期フェーディングの影響  
(グループ2/グループ1)

ロット	照射後の放置時間	
	48h	66h
A	1.05 ± 0.058	1.03 ± 0.048
B	1.05 ± 0.037	1.02 ± 0.031

グループ 1: (22℃, 48h)+(22℃, 18h)  
グループ 2: (3℃, 48h)+(22℃, 18h)

### 3.5 原子燃料サイクル施設周辺環境における比較測定

TLDとRPLDによる四半期毎の積算線量を比較した結果を図5に示す。全期間を通して両者の間には正の相関(相関係数0.88)が認められるが、母集団を第1~第3四半期と積雪寒冷期である第4四半期に分けると、相関係数はそれぞれ0.92及び0.94となり、より高い相関を示した。

第1~第3四半期の測定値から推定すると、RPLDはTLDより約6µGy/91日低くなっているが、両線量計のセルフドーズの差は約3nGy/h、91日に換算すると約7µGyと見積もられており、この値とほぼ一致した。一方、積雪寒冷期である第4四半期では、RPLDはTLDより約19µGy/91日低くなった。この差は、セルフドーズの差より2.7倍大きく、セルフドーズ以外にRPLDの値を低下させる要因があるものと推測される。

以下、それぞれの線量計について、特に冬期における測定値の相違について考察する。

### 3.6 環境における測定値に基づく温度特性の評価

表4に、積算線量の測定期間の中で最も気温が高くなる7月~9月(第2四半期)及び最も気温が低くなる1月~3月(第4四半期)について、気温の測定値(1時間値)の平均及び標準偏

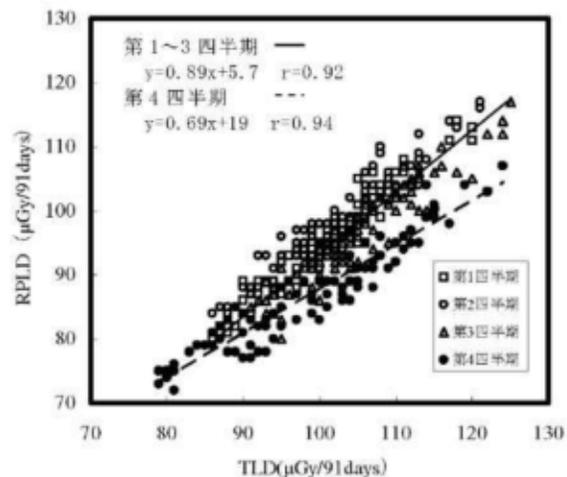


図5 RPLD及びTLD測定結果

差を示す。モニタリングポイントのうち、気温の測定を行っているのは尾駮局及び千歳平局である。測定値は、第2四半期で平均17.6～20.7℃、標準偏差が3.0～3.9℃、第4四半期で平均-1.0～1.6℃、標準偏差が3.2～3.9℃であった。

表4 各モニタリングステーションにおける気温測定結果 (単位: °C)

年度	第2四半期 (7月～9月)				第4四半期 (1月～3月)			
	尾駮		千歳平		尾駮		千歳平	
	平均	標準偏差	平均	標準偏差	平均	標準偏差	平均	標準偏差
2001	18.5	3.0	18.7	3.1	1.6	3.7	1.2	3.8
2002	19.0	3.2	19.2	3.4	-0.2	3.2	-0.4	3.2
2003	17.7	3.0	17.6	3.1	1.1	3.9	0.6	3.9
2004	20.7	3.8	20.6	3.9	-0.5	3.2	-1.0	3.3

このように第2四半期と第4四半期の平均気温の差は約20℃であり、前述の温度特性試験の低温(-10℃、0℃)下での測定値は、TLDでは3～5%、RPLDでは-2～-3%の変化がみられたことから、モニタリングポイントでの測定値に対しても同様に気温の影響があることが考えられる。しかし、図3に示すように、気温が低くなる第4四半期は積雪による環境γ線量率の低下がみられることから、これらの期間の測定値を単純に比較することにより、気温の影響を把握することはできない。

これらのモニタリングポイントでは、同時にNaIによる環境γ線量率の連続測定を行なっていることから、両者の測定値を用いて解析することにより、積雪による遮へい効果をキャンセルし、積算線量測定値に対する気温の影響を把握することを試みた。

第2四半期の線量率測定値 $D_2$ を基準とし、以下のように表す。

$$D_{2i} = G_i + C_i + S_i \quad \dots\dots (1)$$

ここで、

i: 検出器の種類、N(NaI)、T(TLD)、R(RPLD)のいずれかを取る

G: 環境γ線線量率測定値

C: 宇宙線による線量率測定値

S: 自己照射による線量率測定値

であり、宇宙線(電離成分)及び自己照射による線量率はほぼ一定と考えることができるため、積雪と低温の影響を受ける第4四半期の測定値 $D_4$ は、

$$D_{4i} = \alpha_i(\beta G_i + C_i + S_i) \quad \dots\dots (2)$$

となる。ここで、

$\alpha_i$ : 気温による感度変化係数

$\beta$ : 積雪による遮へい効果

である。積雪時と無積雪時の測定値の差、即ち第2四半期と第4四半期の差は、次の式となる。

$$D_{2i} - D_{4i} = G_i + C_i + S_i - \alpha_i(\beta G_i + C_i + S_i) \quad \dots\dots (3)$$

ここで、NaIは温度補償回路を有するため、 $\alpha_N$ は1と考えられるので、

$$D_{2N} - D_{4N} = (1 - \beta)G_N \quad \dots\dots (4)$$

となり、これが第2四半期と第4四半期の間の積雪による場の線量の差となる。

一方、TLDの温度係数 $\alpha_T$ は、第4四半期において、温度特性が1と仮定したときの測定値により実際の測定値を除すことにより求められるので、

$$\alpha_T = D_{4T} / (\beta G_T + C_T + S_T) \quad \dots\dots (5)$$

と表され、これを変形して

$$\begin{aligned} \alpha_T &= D_{4T} / (G_T + C_T + S_T + \beta G_T - G_T) \\ &= D_{4T} / (D_{2T} - (1 - \beta) G_T) \quad \dots\dots (6) \end{aligned}$$

となる。

ここで、TLD及びNaIはどちらもトレーサビリティを有する標準線源により校正しており、測定地点が同じであるため、 $G_T$ と $G_N$ は等しいと考えることができる。したがって、式(6)は

$$\begin{aligned} \alpha_T &= D_{4T} / (D_{2T} - (1 - \beta) G_N) \\ &= D_{4T} / (D_{2T} - (D_{2N} - D_{4N})) \quad \dots\dots (7) \end{aligned}$$

となる。

式(7)に従って $\alpha_i$ を算出した結果を表5に示す。ここで、積雪がないときの場の線量はモニタリングポイントにより異なり、同じポイントでも第4四半期における測定値 $D_{4i}$ はその年の積雪量により変化するため、 $\alpha_i$ は各モニタリングポイントにおける年度ごとに求めた。その結果、TLDの $\alpha_T$ は $1.07 \pm 0.052$ となり、温度特性試験結果 $1.03-1.05(-10^\circ\text{C}, 0^\circ\text{C}/20^\circ\text{C})$ 及びTLDの初期フェーディング検討結果 $(1.02-1.03)$ と一致した。また、RPLDの $\alpha_R$ は $0.97 \pm 0.033$ となり、温度特性試験結果 $0.97-0.98(-10^\circ\text{C}, 0^\circ\text{C}/20^\circ\text{C})$ とよく一致した。

表5 各モニタリングステーションにおける気温による感度変化係数

地点	年度	空間線量率測定値 (nGy/h)						気温による感度変化係数 ( $\alpha_i$ )	
		第2四半期 ( $D_{2i}$ )			第4四半期 ( $D_{4i}$ )			TLD	RPLD
		NaI	TLD	RPLD	NaI	TLD	RPLD		
尾駁	2001	25.6	46.7	45.8	21.8	46.7	40.8	1.09	0.97
	2002	25.5	46.2	44.9	18.5	44.0	40.8	1.12	1.08
	2003	25.2	46.7	45.8	22.6	48.5	41.7	1.10	0.97
	2004	25.6	47.6	44.9	14.8	37.1	34.8	1.01	1.02
千歳平	2001	26.2	48.5	47.2	21.4	47.2	39.8	1.08	0.94
	2002	25.7	47.6	45.3	20.0	46.2	39.8	1.10	1.01
	2003	25.9	48.5	46.2	23.2	50.4	42.1	1.10	0.97
	2004	26.0	48.1	45.3	16.8	39.4	36.2	1.01	1.00
平沼	2001	25.2	46.7	44.9	23.5	49.0	40.3	1.09	0.93
	2002	25.1	47.2	44.4	22.6	48.1	40.3	1.08	0.96
	2003	24.9	47.6	45.3	24.4	49.9	41.7	1.06	0.93
	2004	25.1	46.2	43.5	20.5	41.2	37.1	0.99	0.95
泊	2001	22.7	45.3	44.4	21.2	47.6	40.8	1.09	0.95
	2002	22.7	46.2	44.9	19.3	46.2	40.8	1.08	0.98
	2003	22.5	47.2	45.3	20.9	49.0	42.1	1.07	0.96
	2004	21.8	46.2	43.5	17.5	39.8	36.6	0.95	0.93
吹越	2001	24.9	42.6	42.6	24.7	46.2	40.8	1.09	0.96
	2002	24.9	43.0	41.7	23.2	45.8	40.8	1.11	1.02
	2003	24.9	43.5	44.0	24.8	48.1	41.7	1.11	0.95
	2004	25.1	45.8	41.7	21.8	40.3	38.0	0.95	0.99
青森	2001	30.3	49.0	49.0	21.8	44.4	39.8	1.10	0.98
	2002	29.6	48.5	48.5	21.5	45.3	39.8	1.12	0.99
	2003	29.5	49.5	50.4	27.2	52.2	45.3	1.11	0.94
	2004	29.9	50.8	49.0	19.2	39.8	36.6	0.99	0.96
平均	-	-	-	-	-	-	1.07±0.052	0.97±0.033	

#### 4. まとめ

- 1) 当センターが有するロットの TLD のセルフドーズは 4.06 及び 3.77nGy/h、RPLD は 0.53nGy/h となり、両線量計の間には明確な差がみられた。
- 2) 原子燃料サイクル施設周辺環境において、TLD と RPLD による四半期毎の積算線量を比較測定した結果、全期間を通して両者の間には正の相関（相関係数 0.88）が認められた。また、母集団を「第 1～第 3 四半期」と積雪寒冷期である「第 4 四半期」に分けると、相関係数はそれぞれ 0.92 及び 0.94 となり、より高い相関を示したことから、両線量計の間には異なる温度依存性があることが示唆された。
- 3) 「第 1～第 3 四半期」の測定値は、RPLD は TLD より約 6 $\mu$ Gy/91 日低く、この値は両線量計のセルフドーズの差（約 7 $\mu$ Gy/91 日）とほぼ一致していた。一方、積雪寒冷期である第 4 四半期の測定値は、RPLD は TLD より約 19 $\mu$ Gy/91 日低く、セルフドーズ以外の要因（温度依存性）があるものと推測された。
- 4) TLD と RPLD による「積雪と感度低下のない第 2 四半期」と「積雪と低温の影響を受ける第 4 四半期」の測定結果から、積雪による遮へい効果を除き低温による感度変化係数を求めた。その結果、TLD では  $1.07 \pm 0.052$  となり、温度特性試験結果 1.03-1.05(-10 $^{\circ}$ C,0 $^{\circ}$ C/20 $^{\circ}$ C) 及び TLD の初期フェーディング検討結果(1.02-1.03)と一致した。また、RPLD では  $0.97 \pm 0.033$  となり、温度特性試験結果 0.97-0.98(-10 $^{\circ}$ C,0 $^{\circ}$ C/20 $^{\circ}$ C)とよく一致した。
- 5) 以上の結果から、RPLD は低温時における数%程度の感度低下が確認され、本県のような積雪寒冷地においては、環境における TLD と RPLD の測定値を比較する場合には、線量計のセルフドーズとともに、測定時期（温度条件）を考慮する必要があると考える。

#### 謝 辞

セルフドーズ評価のための測定にあたり、青函トンネルの管理者である北海道旅客鉄道㈱に多大なご協力を賜ったことに、深く感謝いたします。

また、本調査のまとめに当たり、(財)環境科学技術研究所環境動態研究部長久松俊一氏から多くの貴重なご助言をいただきましたことに、深く感謝いたします。

#### 文 献

- 1) 宮崎清、道広憲秀、清水光郎、信森達也：蛍光ガラス線量計(RPLD)を用いた環境 $\gamma$ 線測定法-熱ルミネセンス線量計(TLD)との比較検討，岡山県環境保健センター年報，**29**，67-71 (2005)
- 2) 今村和彦、猩々伸博、今村博香、藤崎学、國生保：積算線量測定における測定機器の比較調査，鹿児島県環境センター所報，**12**，55-60 (1996)
- 3) 林正樹、長島純一、早川博信：ガラス線量計実用化計画の概要（Ⅱ），平成 11 年度福井県原子力環境監視センター所報，**6**，33-37 (1999)
- 4) 山崎興樹、江端英和、大高敏裕、笠原貢、眞保隆博、藤巻広司、加藤健二、殿内重政：蛍光ガラス線量計を用いた積算線量測定(2)-熱ルミネセンス線量計との比較，新潟県保健環境科学研究所年報，**16**，90-97 (2001)

- 5) T.Iyogi, K.Kudo, H.Takegahara, S.Hisamatsu, H.Kimura, K.Sasaki, M.Saito, J.Inaba :  
Temperature dependency of radiophotoluminescence glass dosimeter  
sensitivity, J.Nucl.Sci.Technol.Supplement **4**, 470-473 (2004)
- 6) 文部科学省：熱ルミネセンス線量計を用いた環境  $\gamma$  線量測定法 (平成 2 年改訂)
- 7) 文部科学省：蛍光ガラス線量計を用いた環境  $\gamma$  線量測定法 (平成 14 年)
- 8) 坂本隆一、長岡鋭、斉藤公明、堤正博、森内茂：環境測定用ガラス線量計に対する自己照射と宇宙線寄与の評価, JAERI-M 94-060 (1994)
- 9) 長岡和則、本田幸一郎、宮野敬治：環境  $\gamma$  線線量測定における宇宙線の寄与,  
RADIOISOTOPES, **45**, 665-674 (1996)
- 10) 放射線施設のしゃへい計算 実務マニュアル 2000, 原子力安全技術センター
- 11) J.H.Hubbell : Photon Mass Attenuation and Energy-absorption Coefficients from 1keV to  
20MeV, Int.Appl.Radiat.Isot., **33**, 1269-1290 (1982)
- 12) 庄司博光、奥野直子、佐々木守、野田正志：積雪による大地からの  $\gamma$  線のしゃへい効果,  
青森県環境保健センター研究報告, **7**, 33-38 (1996)

# モニタリングカーによる空間放射線量率の走行測定

安積 潔 庄司博光 鈴木将文\*<sup>1</sup> 大下内 伸 工藤英嗣

モニタリングカーによる空間放射線量率の走行測定において、走行速度が測定値に及ぼす影響について検討した。走行速度 20～60 km/h で 500m 区間平均線量率を測定したところ、線量率は速度によらずほぼ一定の値を示した。また、変動係数は 1～5%程度であり、走行速度が高速になるほど大きくなる傾向がみられた。変動係数が十分小さいことから、500m 区間平均線量率を測定する場合、走行速度は 60km/h 以下として測定上問題ないと考えられる。

また、原子燃料サイクル施設周辺地域において、平成 17 年度第 1 四半期から平成 18 年度第 3 四半期にかけて、四半期に 1 回モニタリングカーによる空間放射線量率の走行測定を実施した。測定値の範囲は、積雪がない期間は 12～26nGy/h、積雪がある期間は 8～20nGy/h であり、積雪時には線量率の低下がみられた。測定場所による違いとしては、高架橋の上は線量率が低く、切通しでは高くなる傾向がみられた。また、表層地質が完新世の砂丘砂である海岸部の線量率が低めとなる傾向がみられた。

## 1. はじめに

青森県では、空間放射線量率の分布を把握し緊急時の基礎情報とするために、平常時から定期的にモニタリングカーによる測定を実施している。原子燃料サイクル施設周辺地域においては、モニタリング計画に基づき平成 3 年度から定点測定を実施しており、また、平成 19 年度からは定点測定に加え走行測定を実施することとしている。このため、走行速度の違いが測定値に及ぼす影響について検討するとともに、予備調査として、平成 17 年度から同施設周辺地域の走行測定を実施した。

## 2. 調査方法

### 2.1 測定方法

走行測定は、降雨雪がない日を選定し、2inΦ×2inNaI(Tl)シンチレーション検出器（アロカ製、測定エネルギー範囲 50keV～3MeV、G(E)関数法）及び GPS を搭載したモニタリングカーにより行った。スケーラー方式により測定した線量率（10 秒値）を概ね 500m 毎に平均して 500m 区間平均線量率を算出し、測定値とした。

### 2.2 走行速度が測定値に及ぼす影響

#### (1) 計数誤差からの変動係数の推算

G(E)関数法により線量率を算出する際に、測定で得られたスペクトルのエネルギーを平均的な

---

\*1:現青森県エネルギー総合対策局

エネルギー  $E_{av}$  で代表できると仮定すれば、線量率と計数率の関係は式(1)で表され、計数誤差のみを考慮した線量率の変動係数は式(2)で表すことができる。

$$x = 60 \cdot a \cdot n \cdot G(E_{av}) \quad \dots\dots (1)$$

$$CV = \frac{\sqrt{N}/t}{n} \times 100 = \sqrt{\frac{V}{3600 \cdot L \cdot n}} \times 100 = \sqrt{\frac{a \cdot V \cdot G(E_{av})}{60 \cdot L \cdot x}} \times 100 \quad \dots\dots (2)$$

- CV : 変動係数(%)
- N : 計数值(count)
- n : 計数率(cps)
- t : 測定時間(s) L(km)の区間平均線量率を算出する場合  $t=3600L/V$
- V : 走行速度(km/h)
- x : 線量率(nGy/h)
- a : 線量率換算係数[(nGy/h)/(μR/h)] 本測定器の場合  $a=8.7$
- $G(E_{av})$  : エネルギー  $E_{av}$  におけるスペクトル-線量変換演算子(μR/h/cpm)<sup>1)</sup>

## (2) 実測値からの変動係数の算出

同一区間において走行測定を繰り返し実施し、その測定値を用いて変動係数を算出した。

走行測定は、信号等がなく一定速度で走行することができ、かつ路上における定点測定も可能である 1km の区間において実施した。走行速度は 20km/h、30 km/h、45 km/h 及び 60 km/h の 4 とおりとし、各速度とも 9 回測定した。500m 区間平均線量率及びその変動係数を区間毎に算出し、走行速度の違いが測定値に及ぼす影響について検討した。なお、変動係数は式(3)により算出した。

$$CV = \frac{\sqrt{\frac{\sum (x - x_{av})^2}{m-1}}}{x_{av}} \times 100 \quad \dots\dots (3)$$

- CV : 変動係数
- m : データ数 (m=9)
- x : 測定値
- $x_{av}$  : 測定値の平均値

また、25m 毎に定点測定 (1 分間測定) を行い線量率の分布を把握し、走行測定により地点毎の線量率の差をどの程度把握できるか調査した。

## 2.3 原子燃料サイクル施設周辺地域における走行測定

走行測定ルートは、原子燃料サイクル施設 (再処理工場主排気筒) から概ね半径 5km 圏内において、主要な集落、道路及びサイクル施設からの全方位を測定することを考慮し選定した。

走行速度は 60km/h 以下とし、四半期に 1 回測定を実施して、線量率の分布を把握すると共に、年間を通じて支障なく測定できることの確認を行った。

### 3. 調査結果及び考察

#### 3.1 走行速度が測定値に及ぼす影響

##### (1) 計数誤差からの変動係数の推算

式(2)により、500m 区間平均線量率の変動係数を推算した結果を図 1 に示す。ただし、算出に当たっては、①スペクトルのエネルギーをある平均的なエネルギーで代表できる、②測定場の線量率は 20nGy/h で均一である、と仮定した。

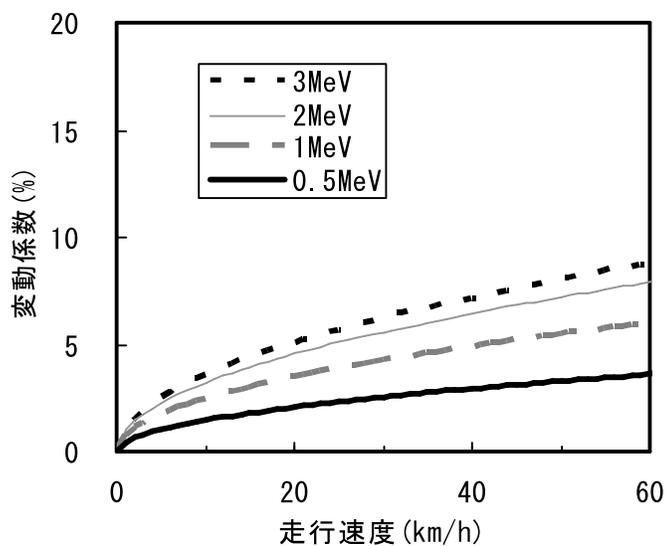


図 1 500m 区間平均線量率の変動係数（推算値）

変動係数は走行速度が高速であるほど大きくなる。また、本測定器の測定エネルギー範囲では、スペクトル-線量変換演算子が最大となるエネルギーは 3MeV であり、エネルギー以外の条件を一定とすると、エネルギーを 3MeV と仮定した場合に変動係数は最大となる。モニタリングで測定する環境  $\gamma$  線の平均エネルギーは 3MeV より低いと考えられるため、測定場の線量率が 20nGy/h で均一と仮定して、走行速度 60km/h 以下では、測定値の変動係数は 9% を超えることはない と推算された。

##### (2) 実測値からの変動係数の算出

走行測定は、1km の区間を各速度 9 回実施した。また、走行測定により地点毎の線量率の差をどの程度把握できるか調査するため、25m 毎に定点測定（1 分間測定）を行った。測定日は平成 18 年 11 月 8 日、天候は曇であった。

図 2 に走行測定結果（10 秒値）及び定点測定結果（1 分値）を示す。走行測定については、各測定区間の中間点に、9 個の 10 秒値の平均値及び標準偏差（ $1\sigma$ ）を示した。走行速度が低速であるほど各測定区間で得られるデータ数が多くなり、定点測定で得られた線量率に対する追従性が良くなることが確認された。

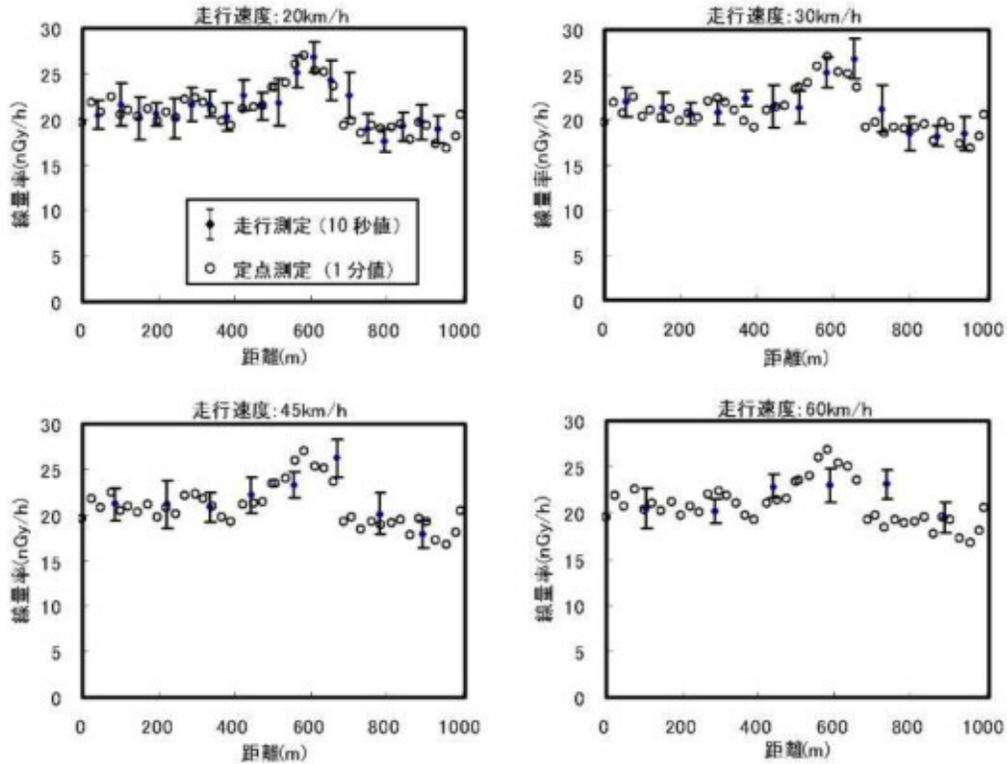


図2 走行測定結果（10秒値）及び定点測定結果（1分値）

走行測定による10秒値から算出した各区分9個の500m区間平均線量率を図3に、その平均値及び変動係数を表1に示す。500m区間平均線量率の平均値は、速度によらずほぼ一定の値を示した。また、変動係数は1~5%程度であり、走行速度が高速になるほど大きくなる傾向がみられた。

変動係数が十分小さいことから、500m区間平均線量率を測定する場合、走行速度は60km/h以下として測定上問題ないと考えられる。一方、地点毎の線量率の差を詳細に把握することが目的である場合は、より低速にて測定する必要があると考えられる。

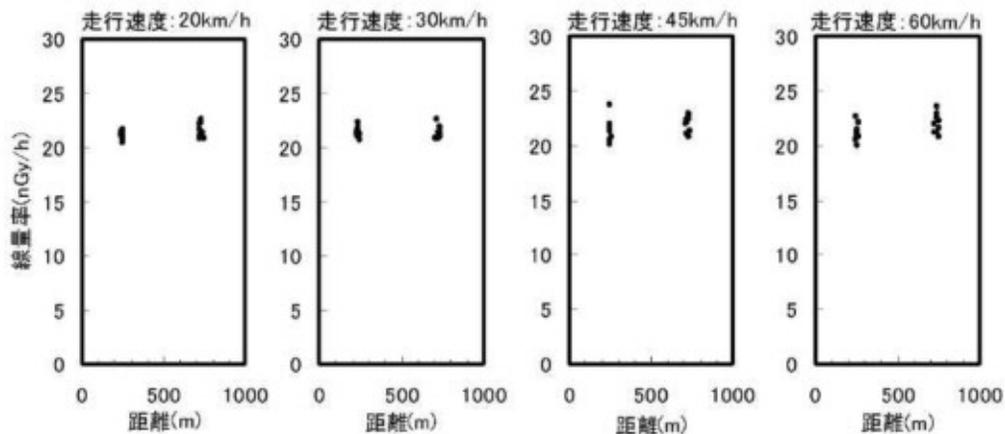


図3 走行測定結果（500m区間平均線量率）

表 1 500m 区間平均線量率の平均値及び変動係数（実測値）

速度	平均値(nGy/h)		変動係数(%)	
	0～500 m	500～1000 m	0～500 m	500～1000 m
20 km/h	21.1	21.6	1.6	2.8
30 km/h	21.4	21.4	2.3	2.7
45 km/h	21.4	21.9	4.7	3.5
60 km/h	21.2	21.9	3.8	4.1

また、実測の線量率及び全計数率を用い、式(1)、(2)により、実測値の計数誤差のみを考慮した変動係数を推算した。走行速度 20km/h、0～500m 区間での線量率 21.1nGy/h、全計数率 62.1cps から、式(1)により  $G(E_{av})$  は  $0.65 \times 10^{-3} \mu\text{R/h/cpm}$  と求められ、平均的なエネルギー  $E_{av}$  は 0.32 MeV となる。この結果から、式(2)により計数誤差のみを考慮した変動係数を推算した結果を、9 個の実測値から算出した変動係数とともに表 2 に示す。

両者を比較すると、計数誤差のみを考慮した変動係数の方が若干小さな値となった。差が生じた理由としては、式(2)は、スペクトルのエネルギーをある平均的なエネルギーで代表できると仮定し、また、計数誤差のみを考慮した式であるが、実際の測定においては、計数誤差の他にも様々な誤差要因（線量率やエネルギー分布の不均一性、時間経過による線量率の変動、測定区間の若干のずれ等）が存在することが考えられる。

表 2 変動係数の比較

速度	計数誤差のみを考慮した変動係数(%)	実測値の変動係数(%)
20 km/h	1.3	1.6
30 km/h	1.6	2.3
45 km/h	2.0	4.7
60 km/h	2.3	3.8

(0～500m 区間)

### 3.2 原子燃料サイクル施設周辺地域における走行測定

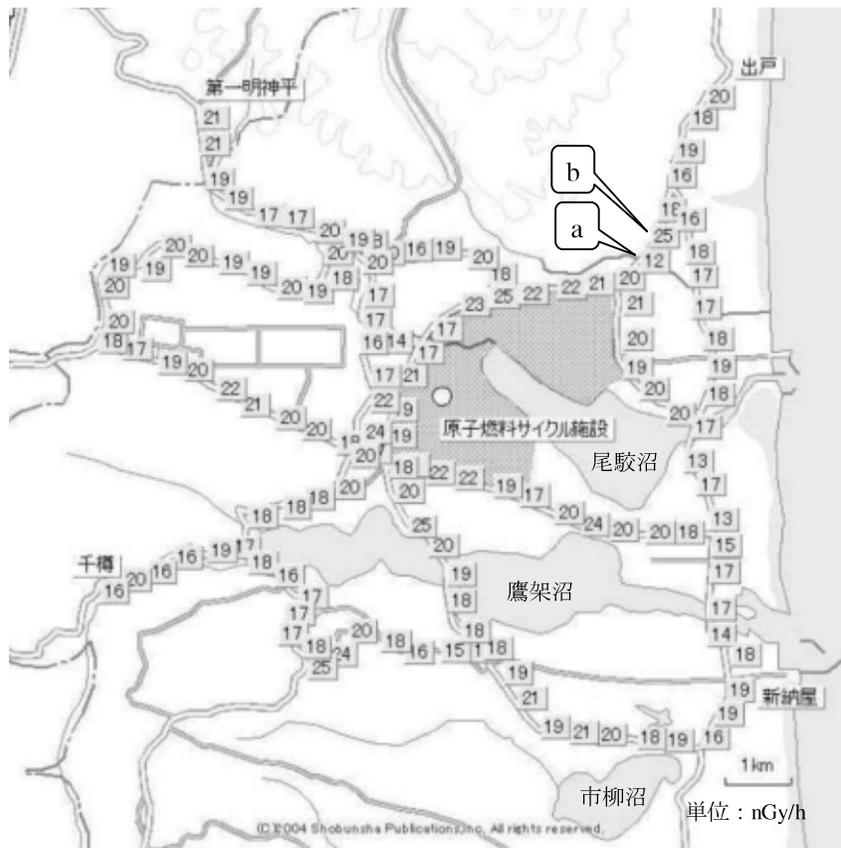
原子燃料サイクル施設周辺地域において、平成 17 年度第 1 四半期から平成 18 年度第 3 四半期にかけて四半期に 1 回実施した走行測定結果（500m 区間平均線量率）を表 3 に示す。走行速度は 60km/h 以下とした。積雪がない期間の測定値の範囲は 12～26nGy/h であり、各測定結果はほぼ同様であった。積雪がある期間の測定値の範囲は 8～20 nGy/h であり、積雪による線量率の低下がみられた。また、積雪がある冬期においても支障なく測定できることを確認した。

表 3 原子燃料サイクル施設周辺地域の走行測定結果

測定日	測定値 (nGy/h)	平均値 (nGy/h)	備考
平成 17 年 6 月 17 日	13 ～ 24	18	
平成 17 年 9 月 16 日	12 ～ 25	19	
平成 17 年 11 月 28 日	14 ～ 26	20	
平成 18 年 2 月 21 日	8 ～ 18	12	道端に数十 cm の積雪あり
平成 18 年 6 月 13 日	13 ～ 23	17	
平成 18 年 8 月 24 日	14 ～ 25	19	
平成 18 年 12 月 12 日	11 ～ 20	16	道端に 0～10cm 程度の積雪あり

平成 17 年 9 月 16 日の測定結果（500m 区間平均線量率）を図 4 に示す。測定値は、GPS のデータをもとに測定開始地点にプロットした。高架橋（図中、写真 a）では線量率が低く、切通し（図中、写真 b）では高い傾向がみられた。

原子燃料サイクル施設周辺の表層地質<sup>2), 3)</sup>を図 5 に示す。走行ルート周辺の主な地質は①太平洋沿岸に点在する沖積低地堆積物—砂丘砂（完新世）、②太平洋沿岸、湖沼群及びその流入河川に沿って広がる沖積低地堆積物—砂・礫（完新世）、③その他の地域に広く分布する火山灰—砂・粘土・礫（更新世）である。走行測定はアスファルトで舗装された道路で行っており、表層地質により測定結果を一概に説明することはできないが、尾駮沼や鷹架沼東方の海岸部など、表層地質が完新世の砂丘砂である地帯の線量率が低めである傾向がみられた。



地図使用承認○昭文社第 48G081 号

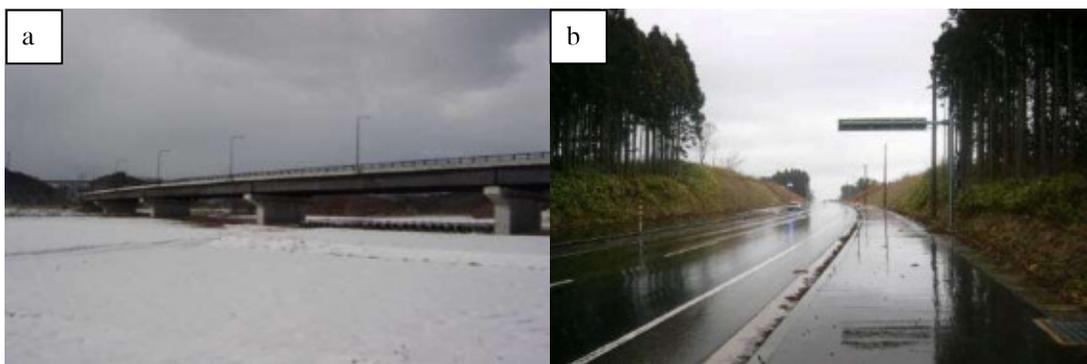


図 4 原子燃料サイクル施設周辺地域の走行測定結果（500m 区間平均線量率）  
（測定日：平成 17 年 9 月 16 日）

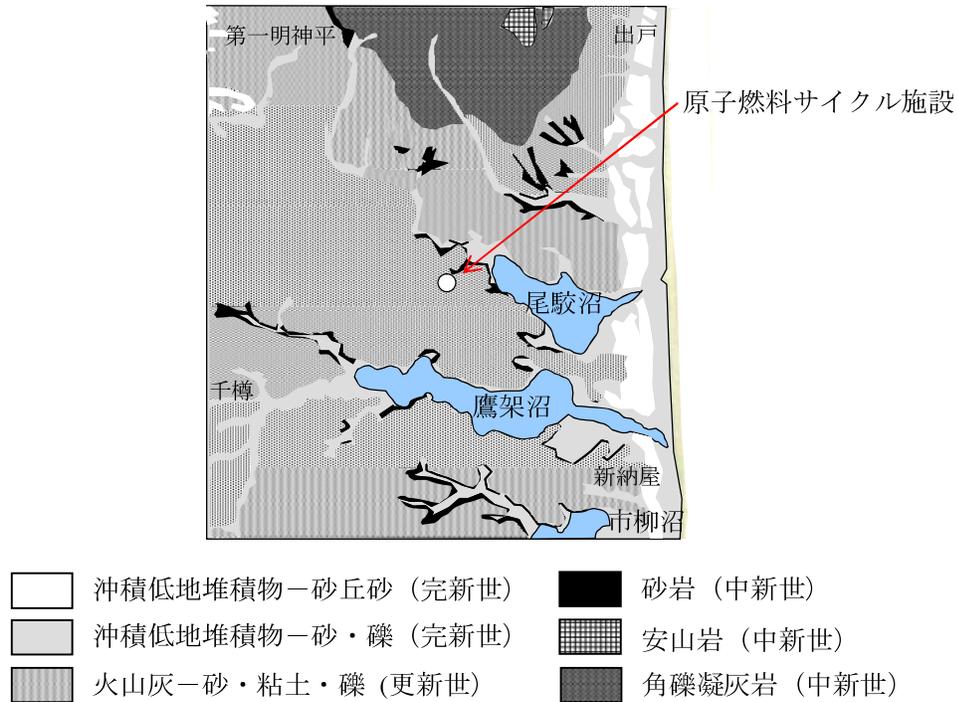


図5 原子燃料サイクル施設周辺の表層地質

#### 4. まとめ

モニタリングカーによる空間放射線量率の走行測定を実施した結果、以下の知見が得られた。

- 1) 走行速度 20～60 km/h で 500m 区間平均線量率を測定した結果、線量率は速度の違いによらずほぼ一定の値を示した。また、変動係数は 1～5%程度であり、走行速度が高速になるほど大きくなる傾向がみられた。変動係数が十分小さいことから、500m 区間平均線量率を測定する場合、走行速度は 60km/h 以下として測定上問題ないと考えられる。
- 2) 原子燃料サイクル施設周辺地域において、平成 17 年度第 1 四半期から平成 18 年度第 3 四半期にかけて四半期に 1 回走行測定を実施し、積雪のある冬期においても支障なく測定できることを確認した。
- 3) 測定値の範囲は、積雪がない期間は 12～26nGy/h、積雪がある期間は 8～20nGy/h であり、積雪時には線量率の低下がみられた。
- 4) 高架橋の上は線量率が低く、切通しでは高くなる傾向がみられた。また、尾駁沼や鷹架沼東方の海岸部など、表層地質が完新世の砂丘砂である海岸部の線量率が低めとなる傾向がみられた。

#### 文 献

- 1) 森内茂：スペクトル-線量変換演算子による線量評価法とその演算子の決定, JAERI 1209 (1971)
- 2) 青森県：むつ小川原開発地域 土地分類基本調査 平沼 (1970)
- 3) 青森県：むつ小川原開発地域 土地分類基本調査 陸奥横浜 (1970)

# 放射性ストロンチウム分析における ラドン・トロン壊変生成物の影響と対策

神 俊雄 木村秀樹 武藤逸紀 齋藤 稔<sup>\*1</sup> 菅野信行<sup>\*2</sup> 森本隆夫<sup>\*2</sup>

放射性ストロンチウム(Sr-90)の分析において、測定用試料を調製する操作（ミルクキング）の際に使用する No.5A の定量ろ紙（以下 5A ろ紙）に、大気中ラドン・トロン壊変生成物が吸着することにより測定用試料に混入し、測定結果に正の誤差を与えることが明らかとなった。

壊変生成物混入への対策として、試料をろ過する前に 5A ろ紙をあらかじめ塩酸および温水でろ紙を洗浄する手法、ろ過操作に 5A ろ紙の代替としてガラスろ過器を使用する手法を検討した結果、ラドン・トロン壊変生成物の測定用試料への混入対策として有効であることを確認した。

## 1. はじめに

放射性ストロンチウム(Sr-90)分析においては、ストロンチウムを化学分離し精製した後、Sr-90（半減期 28.74 年）の壊変生成物である Y-90（半減期 64.10 時間）を、放射平衡に達した後に水酸化鉄（Ⅲ）との共沈により単離（ミルクキング）し、Y-90 から放出される β 線を測定する。測定は繰り返し行い、β 線の計数が Y-90 の半減期に従い減衰することを確認する。

Y-90 を正確に定量するためには Sr-90 と Y-90 を確実に分離することが必要である。このため、ミルクキング操作においては Y-90 が共沈している水酸化鉄沈殿をろ別後溶解し、再び沈殿を生成する操作を 3 回繰り返す方法をとっているが、この過程で大気中のラドン・トロン壊変生成物が混入し、測定結果に正の誤差を与えることが判明したため、対策について検討を行った。

## 2. 調査方法

### 2.1 分析方法

ミルクキング操作（図 1）は文部科学省 放射能測定法シリーズ 2 放射性ストロンチウム分析法（平成 15 年）<sup>2)</sup>に準拠して行った。

β 線測定の際は、BG（バックグラウンド、ステンレス製試験皿のみ）と試料（水酸化鉄沈殿をマウントしたろ紙（No.5C、24mmΦ）をデンプン糊でステンレス皿に固定、コロジオンで沈殿を固着させたもの）を図 2 に示す順番で測定する。測定時間は BG、試料とも 60 分である。試料の前後の BG の計数率を平均して試料の計数率から差し引くことにより、正味の

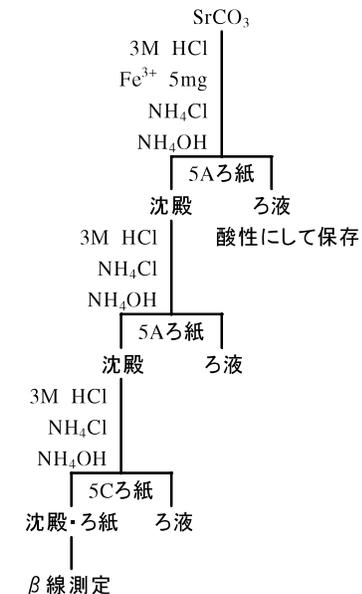


図 1 ミルクキング操作概要

\*1 現青森県環境生活部原子力安全対策課

\*2 財団法人 日本分析センター

計数率を求める。Y-90 の半減期を確認するため、各試料の繰り返し測定を行う。繰り返し回数は4～7サイクル、1 台の機器で同時に測定する試料数は4～7 試料である（図2）。

## 2.2 使用機器

β 線測定：低バックグラウンド 2π ガスフロー  
計数装置

（ALOKA 社製 LBC-4211：窓なし、  
Q ガス使用、計数効率約 63%）

α 線測定：シリコン半導体検出器

（ORTEC 社製 Octete PLUS  
ALPHASPECTROMETER、検出部面  
積 450mm<sup>2</sup>）

ラドン曝露装置：（財）日本分析センター ラドン曝露容器（ステンレス製、容積 170L）

ラドン測定：通気式電離箱（Genitron 社製 alpha-GUARD）

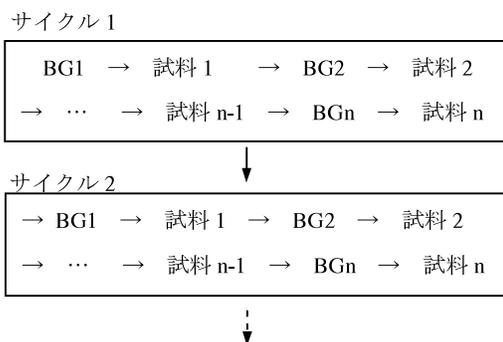


図2 <sup>90</sup>Sr 分析における測定順序

## 3. 結果と考察

### 3.1 定量ろ紙（5A ろ紙）へのラドン・トロンの壊変生成物の吸着状況

平成 15 年度の大気浮遊じん（青森市）の Sr-90 分析において、β 線の計数率が図 3 のようなパターンを示した。図 3 内の直線(a)は Y-90 の半減期の傾きを示す直線である。1 サイクル目、2 サイクル目の計数はこの直線の傾きと異なり、Y-90 以外の核種による計数であると推測された。

大気浮遊じんの採取地点はこの地点も含めて計 6 地点あり、これらの地点の試料についても同時に分析・測定を行っていたことから、大気浮遊じん 6 試料の測定結果をまとめてプロットした（図 4）。計数率の減衰パターンはラドン（Rn-222）及びトロン（Rn-220）の壊変生成物の減衰パターン<sup>1)</sup>によく似ている。図 4 にそれぞれの見かけ上の半減期である 37 分、12 時間の減衰の傾きをもつ直線(b)、(c)を示す。

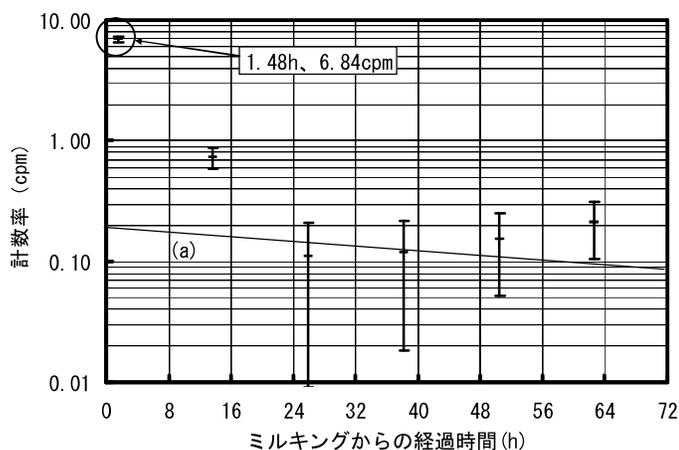


図3 大気浮遊じんに係る β 線計数率の推移（青森市）

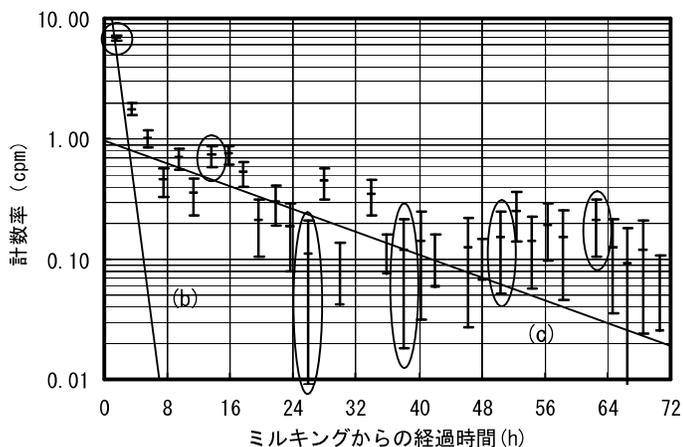


図4 大気浮遊じんに係る β 線計数率の推移（6 地点）

○：青森市の測定値

大気浮遊じん 6 試料に共通してラドン・トロンの壊変生成物の減衰パターンが現れていることから、これは1つの試料に特有の現象ではなく、ミルクキング操作においてラドン・トロンの壊変生成物が混入していると考えられる。そこで、ラドン・トロンの壊変生成物混入の要因と対策を検討することとした。

### 3.2 ラドン・トロンの壊変生成物の混入経路の検討

3.1において、ミルクキング操作においてラドン・トロンの壊変生成物が混入していると考えられたことから、測定用試料に混入すると考えられる経路は、分析試料に含まれる自然放射性核種に起因する場合、試薬類に不純物として含まれる場合、大気中に存在する壊変生成物が吸着する場合の3つがある。このうち、試料に混入している可能性は、分析の過程でラドン・トロンの壊変生成物を生み出す源となる U、Th 及び Ra を除去する操作を行うことから、可能性としては小さいものと考えられる。以下 3.2 (1)において試薬の検討、3.2 (2)では試薬ブランクの検討、3.2 (3)、3.2 (4)ではろ紙への吸着の検討を行った。

#### (1) 試薬類の影響の検討

ミルクキング操作に使用する試薬類にラドン・トロンの壊変生成物が含まれていないことを確認するため、次のような検討を行った。

ミルクキング操作および測定に使用する試薬（塩酸、アンモニア水、塩化アンモニウム、塩化第二鉄）について、液体状のものは試料測定用ステンレス皿（25mmΦ）に蒸発乾固、固体状のものはそのまま皿に広げ、低バックグラウンド 2π ガスフロー計数装置を用い β 線を測定した。供試量はいずれも、ミルクキング操作に使用する量と同等かそれ以上である。

測定結果はいずれもほぼバックグラウンドレベルであった。

#### (2) ブランク試料の検討

測定用試料中へのラドン・トロンの壊変生成物の混入が、ミルクキング操作によるものであることを確認するため、試薬ブランクについてミルクキング操作を行った。

純水約 30mL に 3M HCl 15mL と鉄担体 (5mgFe<sup>3+</sup>)、塩化アンモニウム約 1g を加え、ミルクキング (図 1) と同様の操作を行ったものを 5 試料作成した。試料間の測定時間間隔を小さくし、計数率の変化を詳細に観測するため、試料間の BG 測定を省略、BG、試料 1～5、BG の順で 3 サイクル (約 24 時間) 測定した。各サイクルの前後の BG 計数を平均して試料の計数から差し引くことでバックグラウンド補正とした。

1 試料ごとのプロットでは大気浮遊

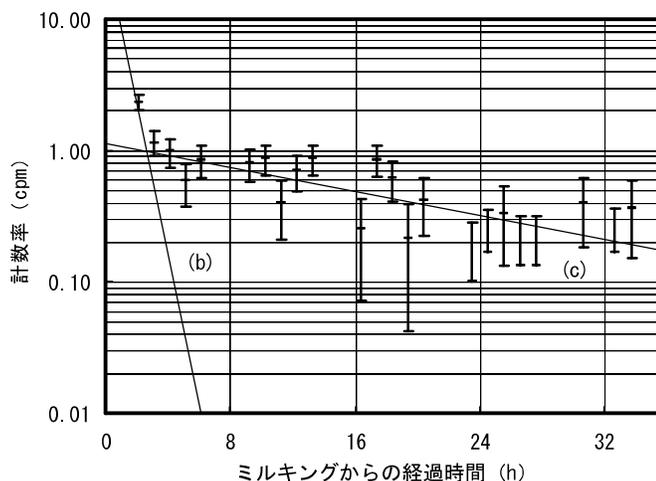


図 5 ミルクキング操作における  
ブランク試料の β 線計数率変化 (5 試料)

じんの場合 (図 3) と同様に一定の減衰を読み取ることができないが、5 試料分をまとめてプロットすると、図 4 と同様の減衰パターンが現れている (図 5)。

このことから、ラドン・トロンの壊変生成物はミルキング操作を行うことにより測定用試料に混入することが確認された。

### (3) 定量ろ紙の検討

試薬以外でミルキング操作に使用するものとして、水酸化鉄沈殿のろ別に使用する 5A ろ紙が挙げられる。ろ紙は表面積が大きく、ラドン・トロンの吸着が考えられることから、ろ紙について検討を行った。

5A ろ紙 1 枚を少量の水を用いて足長ロートに密着させ、その後 3M HCl 15mL および温水 25mL で洗浄した。この洗浄液、ろ紙 1 枚分と 3 枚分をそれぞれ 200mL ビーカーに取り、鉄担体 (5mgFe<sup>3+</sup>) および塩化アンモニウム約 1g を加え加熱沸騰後、アンモニア水を加えて水酸化鉄沈殿を生成させ、5C ろ紙にマウントした。この試料について、30 分間隔の連続測定を行った。測定開始前に測定した 3~4 時間分の BG 計数を平均して試料の計数から差し引くことでバックグラウンド補正とした。

β 線測定を行った結果、ラドン・トロンの壊変生成物と考えられる減衰パターンがみられた。5A ろ紙 1 枚分の試料に対し、3 枚分の試料の計数率は数倍高い。

ここでみられるラドン・トロンの壊変生成物の減衰パターンのうち、ラドンの壊変生成物の 37 分の半減期に近い最初の 2.5 時間、5 プロット分について最小二乗法を用いて回帰直線を求めた。

回帰直線の切片より求めた経過時間 0 (ろ紙洗浄時) における計数率は、ろ紙 1 枚分で 21cpm、3 枚分で 55cpm となり、用いたろ紙の枚数におおむね比例している。

以上より、ラドン・トロンの壊変生成物が 5A ろ紙に吸着し、塩酸洗浄により溶出している可能性が高いと考えられる。

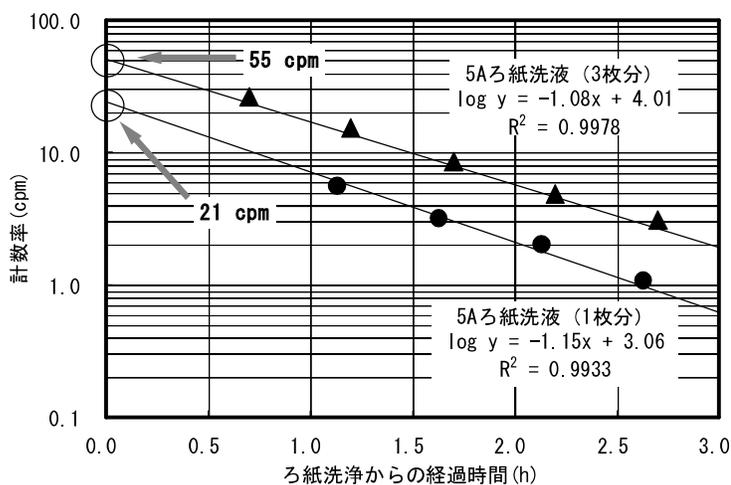


図 6 洗浄した 5A ろ紙の枚数による計数率の違い

### (4) 壊変生成物のろ紙への吸着確認

ラドン・トロンの壊変生成物が実際にろ紙に吸着することを確認するため、5A ろ紙のラドン曝露試験を行った。

5A ろ紙を高濃度 (~17,000Bq/m<sup>3</sup>) のラドン雰囲気 に 1 日程度曝露し、その後 3M HCl 15mL および温水 25mL で洗浄した。これらの液を 3 枚分あわせて 200mL ビーカーに取り、鉄担体 (0.5mgFe<sup>3+</sup>) および塩化アンモニウム約 1g を加え加熱沸騰後、アンモニア水を加えて水酸化鉄

沈殿を生成させ、5C ろ紙にマウントした。この試料について  $\alpha$  線スペクトロメータによる測定を行った。

$\alpha$  線測定を行った結果、図 7 に示すように、ウラン系列の Po-214 (7.687MeV) に対応するピークが確認された。このことにより、空気中のラドン・トロン壊変生成物がろ紙に吸着することが確認された。

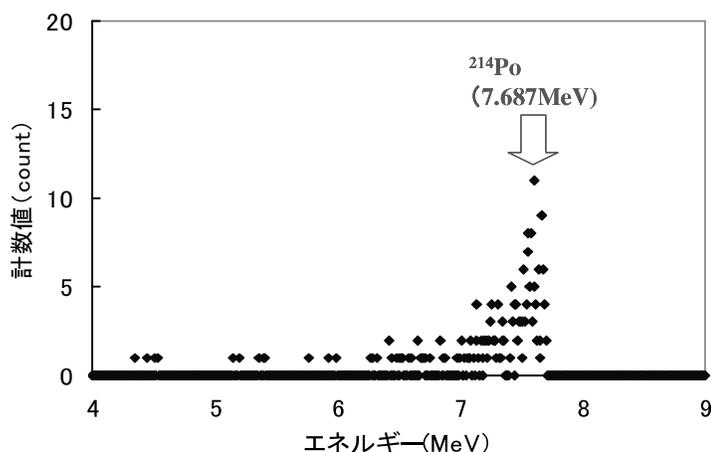


図 7 水酸化鉄沈殿に共沈した  $^{214}\text{Po}$  のピーク

### 3.3 ラドン・トロンの壊変生成物の除去の検討

3.2 において、ミルキング操作に使用する 5A ろ紙にラドン・トロンの壊変生成物が吸着し、酸による洗浄により測定用試料に混入していることが明らかとなったことから、対策を検討することとした。

以下 3.3 (1) においてろ紙の予備洗浄による除去効果の検討、3.3 (2) ではガラスろ過器使用による除去効果の検討、3.3 (3) では Y-90 の回収率の確認を行った。

#### (1) ろ紙の洗浄による除去効果

ラドン・トロンの壊変生成物は酸等による洗浄でろ紙から洗い落とされ、測定用試料に混入していると考えられることから、あらかじめ 5A ろ紙を洗浄してラドン・トロンの壊変生成物を除去する検討を行った。

純水約 30mL に 3M HCl 15mL と鉄担体 ( $5\text{mgFe}^{3+}$ )、塩化アンモニウム約 1g を加え、ミルキング操作を行った。水酸化鉄沈殿をろ別する 5A ろ紙は、使用前に 3M HCl 15mL および温水 25mL で 2 回洗浄した。こうして作成した測定用試料について、30 分間隔の  $\beta$  線連続測定を行った。BG としては、試料測定開始前に行った 3~4 時間分の計数値を平均して用いた。

図 8 に正味計数率の時間変化を示す。ラドンの壊変生成物 (見かけの半減期が約 37 分) がほぼ減衰した 4 時間後~8 時間後の計数率の平均は、0.13cpm であり、洗浄を行わなかった場合の 0.44cpm と比較して明らかに減少していることが確認された。

ろ紙の洗浄を行ってもラドンの壊変生成物の影響は完全に排除できなかったが、ラドンの壊変生成物については半減期が短いことから、試料調製から測定までの時間を数時間とることにより、測定への影響を排除することが可能である。

実際の分析における  $\beta$  線測定で問題と

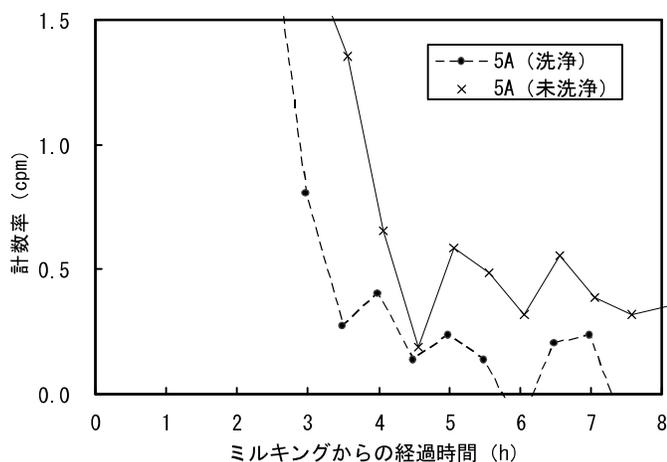


図 8 5A ろ紙洗浄の有無による計数率の比較

なるのは、見かけの半減期が約 12 時間と長いトロンの変生成物の影響であるが、使用直前に 5A ろ紙を塩酸及び温水で洗浄することにより、この影響をほぼ排除できることがわかった。

### (2) ガラスろ過器使用による除去効果

ガラスろ過器は酸による煮沸洗浄が可能であり、使用直前まで純水に浸漬しておくことから、5A ろ紙よりもラドン・トロンの変生成物の付着を防ぐことが容易であると考えられる。このため、5A ろ紙の代わりにミルク操作にガラスろ過器を使用する検討を行った。

純水 25mL、3M HCl 15mL、鉄担体 (5mgFe<sup>3+</sup>)、塩化アンモニウム約 1g を 100mL ビーカーに取り、5A ろ紙の代わりにガラスろ過器 (P100 および P40 の 2 種類) を使用し、ミルク操作を行った。ガラスろ過器は事前に 3M HCl で煮沸し、そのまま 1 日以上浸漬したものを使用直前に純水で洗浄して使用した。この試料について、3.3 (1) の 5A ろ紙の場合と同様に 30 分間隔の β 線連続測定を行った。

図 9 に計数率の時間変化を示す。ラドンの変生成物 (見かけの半減期が約 37 分) がほぼ減衰した 4 時間後～8 時間後の計数率の平均は、P100 を使用したとき 0.052cpm、P40 を使用したとき 0.20cpm であり、洗浄していないろ紙を使用した場合の 0.44cpm と比較して明らかに減少していることが確認された。

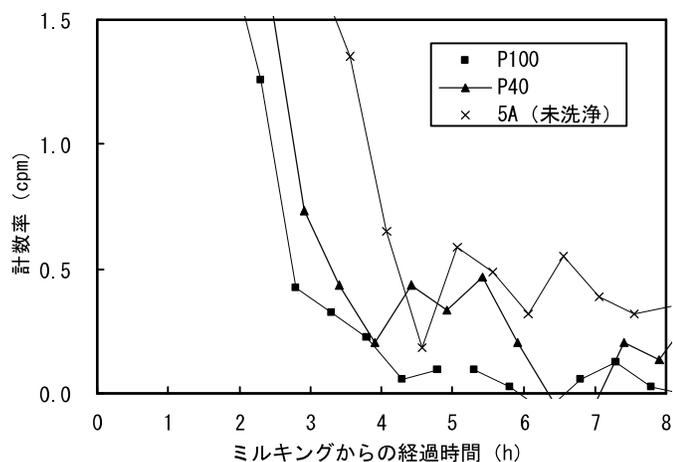


図 9 ガラスろ過器を用いたブランク試料の計数率

5A ろ紙の洗浄を行った場合と同様に、ラドンの変生成物の影響は残るがトロンの変生成物の影響はほぼ排除されており、ガラスろ過器 (P100 及び P40) を使用することの有用性が確認された。

### (3) Y-90 回収率の確認

ろ紙の予備洗浄及びガラスろ過器の使用により、ラドン・トロンの変生成物の影響を低減できることが明らかとなった。これらの対策を行ったことにより、ストロンチウムの測定結果に影響を与えることがないことを確認するため、純水に Sr-90 を添加した試料について実際に測定を行い、結果の比較をした。

純水に既知量の Sr-90 (Y-90 との放射平衡状態) を添加したものを 100mL ビーカーに取り、3M HCl 15mL、鉄担体 (5mgFe<sup>3+</sup>)、塩化アンモニウム約 1g を加え、洗浄済みの 5A ろ紙及びガラスろ

表 1 <sup>90</sup>Sr 添加試料の測定結果 <sup>90</sup>Sr 添加量 : 4.75Bq ± 3.4%

	測定結果 (Bq)	測定結果/添加値
ガラスろ過器 (P100)	4.53 ± 0.046	0.95
ガラスろ過器 (P40)	4.30 ± 0.046	0.91
5A ろ紙 (洗浄済み)	4.58 ± 0.045	0.96

過器を使用し、ミルク操作を行った。調製した測定用試料を低バックグラウンド  $2\pi$  ガスフロー計数装置を用いて測定し、試料中の Sr-90 を定量した。

測定結果を表 1 に示す。測定結果はどの場合も添加値と 10%以内で一致しており、ラドン・トロンの壊変生成物を除去する対策を行っても、ストロンチウムの測定に影響を与えないことが確認された。

#### 4. まとめ

平成 15 年度第 1 四半期の大気浮遊じんの Sr-90 分析において、 $\beta$  線の計数率がラドン・トロンの壊変生成物の減衰パターンに類似した経時変化を示した。ミルク操作においてラドン・トロンの壊変生成物が混入していると考えられることから、ラドン・トロンの壊変生成物混入の要因と対策を検討することとし、以下の知見を得た。

- 1) 5A ろ紙に吸着していたラドン・トロンの壊変生成物が、塩酸洗浄により溶出して測定用試料に混入することを明らかにした。
- 2) 高濃度ラドン雰囲気曝露したろ紙の洗浄液中にラドンの壊変生成物である Po-214 が検出され、空気中のラドン・トロンの壊変生成物がろ紙に吸着することを確認した。
- 3) 5A ろ紙を使用直前に洗浄すること及び試料調製から測定までの時間を数時間とることにより、放射性ストロンチウム分析におけるラドン・トロンの壊変生成物の影響を軽減できる。
- 4) ガラスろ過器 (P100 及び P40) の使用は、ラドン・トロンの壊変生成物の影響の軽減対策として、5A ろ紙の洗浄と同等の効果を持つ、より簡便な方法である。

#### 文 献

- 1) 文部科学省：全ベータ放射能測定法 (昭和 51 年改訂)
- 2) 文部科学省：放射性ストロンチウム分析法 (平成 15 年改訂)

# 牛肉の灰化プログラムの検討

武藤逸紀 五十嵐飛鳥 三浦 太\*<sup>1</sup> 木村秀樹 神 俊雄  
工藤俊明 吹越恵里子 齋藤輝夫 鹿内伸泰 今 武純

東通原子力発電所のモニタリングにおいて、牛肉試料の灰化を行っているが、油脂分が多く含まれているため、灰化炉内温度が 300℃を超えたところで発火する事象がみられた。そこで、試料を発火させずに灰化させるため、300℃での長時間加熱処理により油脂分を揮散させた後、炉内温度を上昇させて試料を灰化した結果、発火は確認されなかった。

この結果を踏まえて新しい灰化プログラムを作成し、昇温途中で発火することなく灰化することが可能になったが、これまでの灰化プログラムに比べ加熱時間を長くする必要があった。Cs については長時間の加熱による損失が報告されていることから、従来と比較して長時間を要する本灰化プログラムによる Cs の損失について検討した。その結果、Cs が試料中に残存する割合は 84%~86%であり、本プログラムは実用上問題なく使用できると考えられた。

## 1. はじめに

青森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において、牛肉を対象試料として放射性核種の分析測定を行っている。分析の前処理として、乾燥後電気式の灰化炉による灰化を行っているが、従来用いている灰化プログラムでは、昇温中 300℃を超えた辺りで試料が発火する事象がみられた。その原因は油脂分が多量に含まれているためと考えられたことから、試料に含まれる油脂分を長時間かけて揮散させた後に灰化する牛肉専用のプログラムを検討した。

## 2. 調査方法

### 2.1 試料採取

採取地点 : 東通村野牛

試料部位 : 牛モモ肉 (ミンチ状)

### 2.2 試料調製法

以下の手順で牛肉試料を前処理した。

- ① ミンチ状の試料から 2kg 分取り 200g ずつに分け、平底磁製皿に入れた。
- ② 試料を 105℃で 24 時間乾燥した。
- ③ 試料を 3 台の灰化炉で 1 台につき 2kg、計 6kg 灰化した。



図 1 乾燥前の試料

\*1: 現青森県警察本部生活安全部生活環境課

## 2.3 使用機器の概要

試料の灰化および Cs 分析に用いた機器は次のとおりである（表 1、2、3）。

表 1 乾燥機の概要

メーカー	株式会社熱計装
型式	KN300-36S
容量	300mmΦ の平底磁製皿を 36 枚収納可能

表 2 灰化炉の概要

メーカー	株式会社熱計装
型式	KN20S-MH
容量	300mmΦ の平底磁製皿を 20 枚収納可能
脱臭装置	白金触媒脱臭装置
特徴	・プログラム制御により自動的に温度制御が可能 ・灰化炉内に設置された温度センサーにより、上中下段 3 点の炉内温度を監視、記録可能

表 3 ICP-MS の概要

メーカー	エスアイアイ・ナノテクノロジー
型式	SPQ9400
仕様	四重極質量分析計
性能	質量範囲：4～256AMU

## 3. 結果と考察

### 3.1 牛肉用灰化プログラムの検討

#### (1) 改良前のプログラムによる試料灰化時の温度上昇

牛肉試料生 3kg を 500g ずつ 6 枚の磁製皿に分け、メーカーが鶏卵・畜肉類用として作成したプログラムにより灰化した結果、灰化開始後 6 時間 30 分から 7 時間 30 分にかけて、炉内温度が急激に上昇する事象がみられた(図 2)。

本事象は炉内温度を 310℃ から 450℃ まで 1 時間かけて昇温する段階で発生していることから、当該温度設定範囲内において試料が発火したものと考えられる。

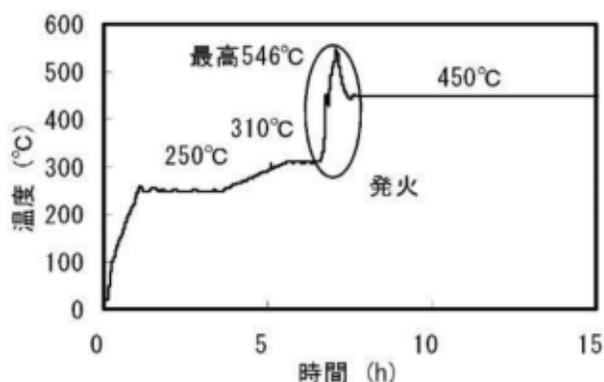


図 2 310℃→450℃に昇温した時の温度変化

図3に灰化プログラム終了後に灰化炉から取り出した磁製皿を示す。

炉内で図3の磁製皿の下段に置かれていた試料が発火し、磁製皿外面および底面すすが付着していた。

図4に灰化前の105℃24時間乾燥後の牛肉試料を示す。乾燥状態では試料から分離された液状の油脂が磁製皿の底にたまっていることが確認できる。この油脂分が十分に揮散しないまま、油脂分の発火点まで昇温させたために発火したと考えられる。

## (2) 油脂分揮散条件の検討その1

昇温中の発火を避けるため、1台の灰化炉に入れる牛肉試料を生3kgから2kgに、また磁製皿1枚あたりの牛肉試料の量も500gから200gに減らして200gずつ磁製皿10枚に分けた。更に、油脂分を均一化させるため、牛肉試料をミンチ状にして磁製皿に分散させた。

油脂分を揮散させるため300℃で14時間30分保持した後、9時間30分かけて300℃から360℃まで緩やかに昇温し、その後360℃で14時間30分保持して再度油脂分を揮散させるプログラムにより灰化を行ったが、炉内上段で僅かな温度上昇が確認されたことから炉内上段の磁製皿において、発火があったと考えられる(図5)。発火が起きたのは300℃から360℃に昇温する過程の340℃の時点であり、このことから300℃で14時間30分保持する条件では油脂分の揮散が不十分であったと考えられる。

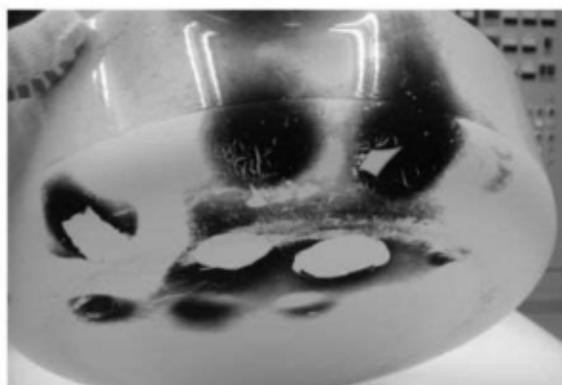


図3 磁製皿外側面、底面に付着したすす

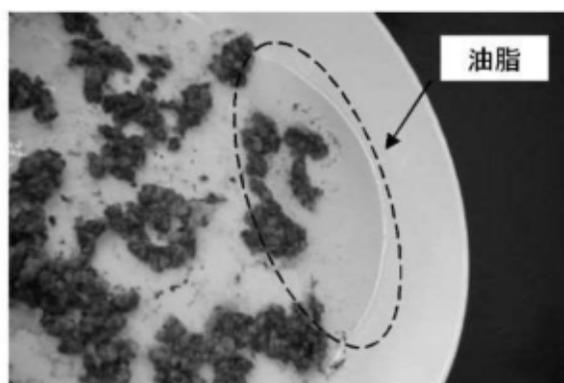


図4 105℃で24時間乾燥後の牛肉

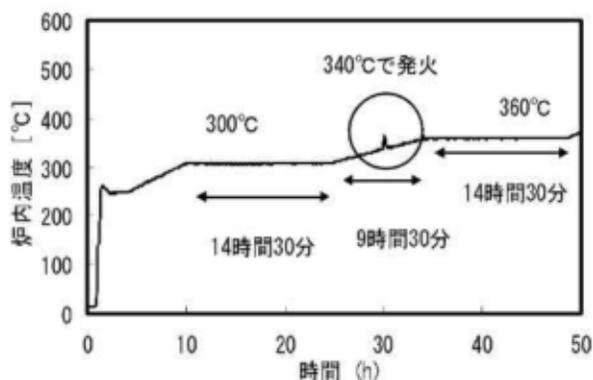


図5 300℃→360℃に昇温した時の温度変化

### (3) 油脂分揮散条件の検討その 2

油脂分の揮散を促進するため、最初に保持する温度を 320℃に上げ、その他は(2)と同様の条件で灰化を行った結果、炉内上段、中段で温度上昇が確認されたことから炉内上段、中段の磁製皿において、発火があったと考えられる(図 6)。

最初の温度保持の段階で発火したことから、320℃での保持温度は高すぎたものと考えられる。

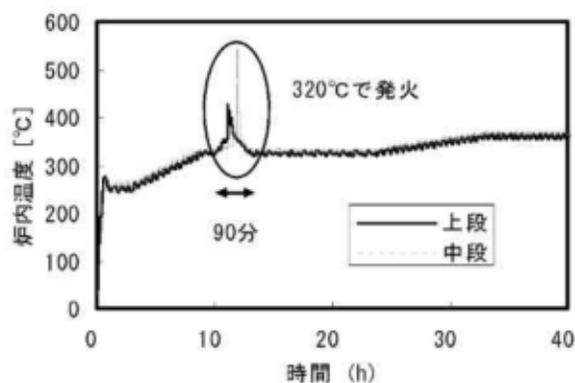


図 6 320℃で保持した時の温度変化

### (4) 油脂分揮散条件の検討その 3

これまでの検討により、油脂分を発火させずに揮散させるためには 300℃での長時間保持が必要と考えられたことから、所要時間を検討するため、油脂分揮散の経時変化を把握する実験を行った。

- ① 300℃に昇温する。
- ② 一定時間保持した後、105℃まで温度を下げ、灰化炉から取り出す。
- ③ 試料の重量を測定、状態の目視確認を行う。
- ④ 再度灰化炉に入れ、①～③を繰り返す。

図 7 に 300℃加熱の累計時間に対する試料重量の変化を示す。加熱の初期においては急激な重量の減少がみられたが、加熱時間の経過とともに減少割合が小さくなっている。

累計 6 時間加熱後(図 7 の①)での試料の状態は光沢があり、磁製皿および灰化炉内壁が全体的に茶褐色に着色していた。

油脂分が十分に揮散することなく磁製皿に残存しているためであると考えられる。

累計 26 時間加熱後(図 7 の②)での試料の状態は、磁製皿側面の一部および灰化炉内が茶褐色に着色していた。

累計 91 時間加熱後(図 7 の③)での試料の状態は表面にひびが入り、乾燥した状態であった。また、磁製皿および灰化炉内壁に付着していた褐色の物質はほとんど消失していた。

この 300℃で 91 時間加熱した試料を、従来のように 450℃まで昇温するプログラムで灰化したところ、発火は確認されなかった(図 8)。このことから、300℃で長時間保持することにより、

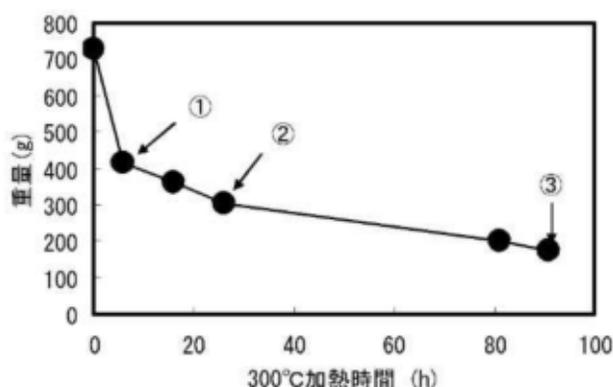


図 7 300℃加熱における試料重量の経時変化

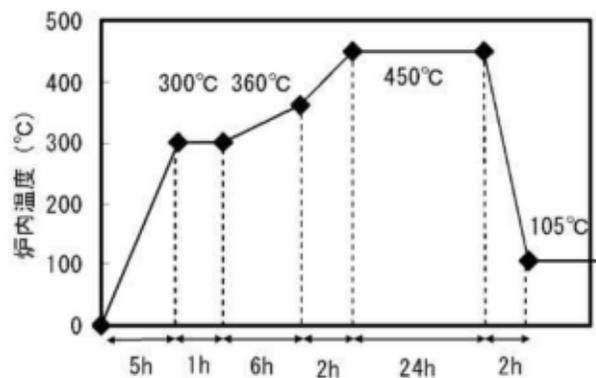


図 8 300℃で 91 時間加熱後の灰化プログラム

油脂分が十分に揮散し、牛肉試料を発火させることなく灰化できることがわかった。

### (5) 新プログラムによる灰化

これまでの検討結果を踏まえ、長時間加熱を取り入れた灰化プログラムを図9に示す。

累計加熱時間 81 時間から 91 時間では比較的重量変化が小さく、試料の状態にもあまり変化がみられなかったこと、安全のため昇温過程が勤務時間内に終了することを考慮し、300℃での保持時間は 87 時間とした。

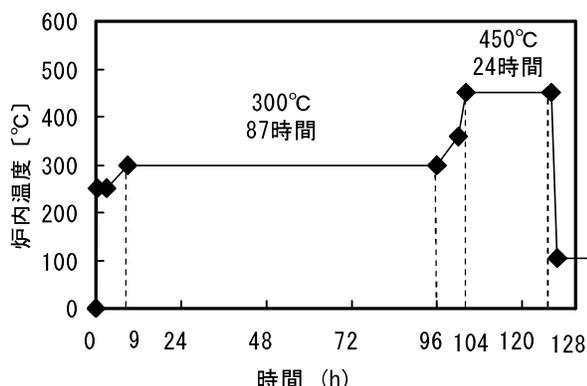


図9 長時間加熱を取り入れた灰化プログラム

### 3.2 Cs 損失の検討

長時間加熱を取り入れた灰化プログラムを用いることにより、油脂分を十分に揮散させ、牛肉試料を発火することなく灰化することが可能となったが、Cs は長時間の加熱による損失が比較的大きいことが報告されているため<sup>1), 2)</sup>、従来と比較して長時間を要する本灰化プログラムによるCsの損失について検討した。Csについては、その同位体のうちCs-134及びCs-137がモニタリングの対象核種となっている。

安定Csを添加した牛肉試料（生試料2kgに対するCs添加量：10mg）及び安定Csを添加しなかった牛肉試料（生2kg）を105℃で乾燥後、(5)のプログラムを用いて3台の炉で灰化した。灰試料は硝酸及び過酸化水素水で加熱分解した後、硝酸で溶解したものを試料原液とした。試料原液を希釈し、Inを内標準としてICP-MSによりCsを定量し、Csの残存量を求めた。表4に示すようにCsを添加した試料のCs残存量は8.7~8.9mg、Csを未添加の試料のCs残存量は0.28mgであった。

ここで、灰化前のCs含有量に対する灰化後のCs残存割合を $\alpha$ %、牛肉に元来含まれているCsを $x$  mgとすれば、

$$\text{Cs未添加試料のCs残存量(mg)} = x \times \frac{\alpha}{100}$$

また、Cs添加量は10mgであるから

$$\text{Cs添加試料のCs残存量(mg)} = (10 + x) \times \frac{\alpha}{100}$$

となり、上式から

$$\alpha(\%) = \frac{(\text{Cs添加試料のCs残存量} - \text{Cs未添加試料のCs残存量})}{10} \times 100$$

と求められる。

長時間加熱を取り入れたプログラムによる試験結果から得られた残存割合は、84%~86%とな

った。以上のように、300℃での長時間加熱を伴う牛肉用の灰化プログラムは、わずかに Cs の損失はみられたものの、モニタリングにおける試料前処理法として十分実用可能であると考えられる。

表 4 300℃での長時間加熱を取り入れたプログラムによる Cs 残存割合

試料名	供試量 (生 kg)	Cs 添加量 (mg)	灰分率 (%)	Cs 残存量 (mg/試料)	残存割合 (%)
灰化炉 No.1	2.05	10	0.807	8.7	84
灰化炉 No.2	2.04	10	0.843	8.8	85
灰化炉 No.3	2.04	10	0.833	8.9	86
Cs 未添加	2.04	0	0.812	0.28	-

#### 4. まとめ

300℃での長時間加熱を取り入れた灰化プログラムにより、油脂分を揮散させ、牛肉を発火させることなく灰化することが可能となった。この新しい牛肉用灰化プログラムによる Cs の損失について検討したところ、Cs が試料に残存する割合は 84%～86%であり、モニタリングにおいて実用可能であると考えられる。

#### 文 献

- 1) 野中信博, 樋口英雄, 浜口博, 戸村健児: 植物の乾式灰化に伴う元素の損失, 分析化学, **30**, 599-604 (1981)
- 2) 野中信博, 樋口英雄, 浜口博, 戸村健児: 植物標準試料 Orchard Leaves の乾式灰化に伴う元素の損失—加熱温度及び加熱時間と元素の損失との関係—, 分析化学, **34**, 362-364 (1985)

## II 資 料

# 再処理工場のアクティブ試験に伴う環境への影響について

大久保英樹 庄司博光 工藤英嗣 永井 進<sup>\*1</sup>

## 1. はじめに

青森県六ヶ所村に立地している原子燃料サイクル施設の主要な施設である再処理工場は、平成19年11月の本格操業を目指し、平成18年3月31日からアクティブ試験（使用済燃料による総合試験）を開始し、平成18年9月末までに合計73体のPWR燃料のせん断・溶解作業を実施した。

再処理工場での使用済燃料のせん断・溶解によるクリプトン-85(Kr-85)等の放射性物質の大気中への放出に伴い、施設の周辺地域に設置したモニタリングステーションの空間放射線量率及び大気中の気体状β放射能の測定値に変動が認められたことから、その変動状況について検討した。

## 2. 環境モニタリング

県では、原子燃料サイクル施設の周辺地域において「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構想、基本計画及び実施要領」に基づき、平成元年4月から環境放射線モニタリングを実施してきている。

### 2.1 測定地点

サイクル施設の周辺地域において、県は5局、事業者（日本原燃㈱）は3局のモニタリングステーションを設置し、連続モニタによる測定を行っている（図1）。

なお、事業者は、敷地境界付近に9局のモニタリングポストを設置している。

### 2.2 測定方法

モニタリングステーションにおける空間放射線量率、大気中の気体状β放射能の測定装置等は、次のとおりである（表1）。

表1 空間放射線量率、大気中の気体状β放射能の測定装置及び測定方法

項目	測定装置	測定方法
空間放射線量率	・低線量率計	検出器実効中心
	3in Φ×3in NaI(Tl)シンチレーション検出器 (温度補償方式加温装置付)、G(E)関数荷重演算方式	地上1.8m
大気中の気体状β放射能	・β線ガスモニタ	大気吸引量：約6.5L/分
	プラスチックシンチレーション検出器 (350×300×2mm)、検出槽容量 約30L	吸引口位置：地上1.5~2.0m

\*1: 日本原燃(株)安全技術室環境管理センター

### 3. 測定値の変動状況

モニタリングステーションの連続モニタの測定値については、1時間値（1時間の平均値）を統計処理して評価を行っており、一方で10分値（10分間の平均値）によるリアルタイムでの監視も行っている。

この10分値の変動状況を、施設からの影響が比較的顕著にみられた5月3日～5月5日（PWR燃料10体処理、燃焼度約12,000～約17,000MWD/t、冷却期間約20年）及び6月7日～6月11日（PWR燃料31体処理、燃焼度約30,000～約33,000MWD/t、冷却期間約10～18年）を例に示す（図2, 3）。これらの図には、参考として、主排気筒高さ（150m）の風向、再処理工場から大気中に放出するKr-85を監視する主排気筒ガスモニタ、事業者が敷地境界付近に設置している再処理事業所モニタリングポスト（MPI～9）の変動状況も併せて示している。

#### 3.1 5月3日～5月5日の変動状況

5月5日0時から6時頃にかけて、再処理施設から北西のほぼ同方向に位置する二叉局（施設から約4km）及び吹越局（施設から約10km）において、それぞれ空間放射線量率、大気中の気体状β放射能濃度の上昇が認められた。

連続モニタの測定値の主な変動要因は、図4のとおりであり、空間放射線量率は、測定器の検出器に到達したγ線を測定することから、大気中に浮遊しているラドンの壊変生成物が降雨雪に取り込まれて地表面に落下することにより上昇するほか、施設から放出されたKr-85が、測定局上空を通過した場合にも上昇する。

一方、大気中の気体状β放射能については、測定局付近の空気に含まれる気体状の放射性物質（β線）を測定することから、Kr-85が測定局付近に到達して初めて測定値の上昇がみられる。

本事例についても同様に、施設から放出されたKr-85が、風下方向に位置する二叉局の上空を通過したことにより空間放射線量率が上昇し、その後、吹越局周辺に到達したことにより、気体状β放射能濃度が上昇したものと考えられる。

#### 3.2 6月7日～6月11日の変動状況

6月10日12時頃、風下方向に位置する室ノ久保局において、空間放射線量率と同時に大気中の気体状β放射能濃度の上昇が認められ、気体状β放射能濃度（1時間値）として、初めて定量下限値である $2\text{kBq/m}^3$ を観測した。

### 4. まとめ

六ヶ所再処理工場については、国の安全審査において、操業開始に伴い放出される放射性物質による施設周辺住民等が受ける線量は、法令に定める年線量限度(1mSv)を十分下回るものと評価されている。

アクティブ試験の開始以降、本県の環境放射線モニタリングに施設から放出される放射性物質の影響が認められていることから、県では、環境放射線モニタリングを今後も引き続き着実に実施するとともに、施設起因の放射線及び放射性物質による周辺住民等の線量を適切に評価していくこととしている。

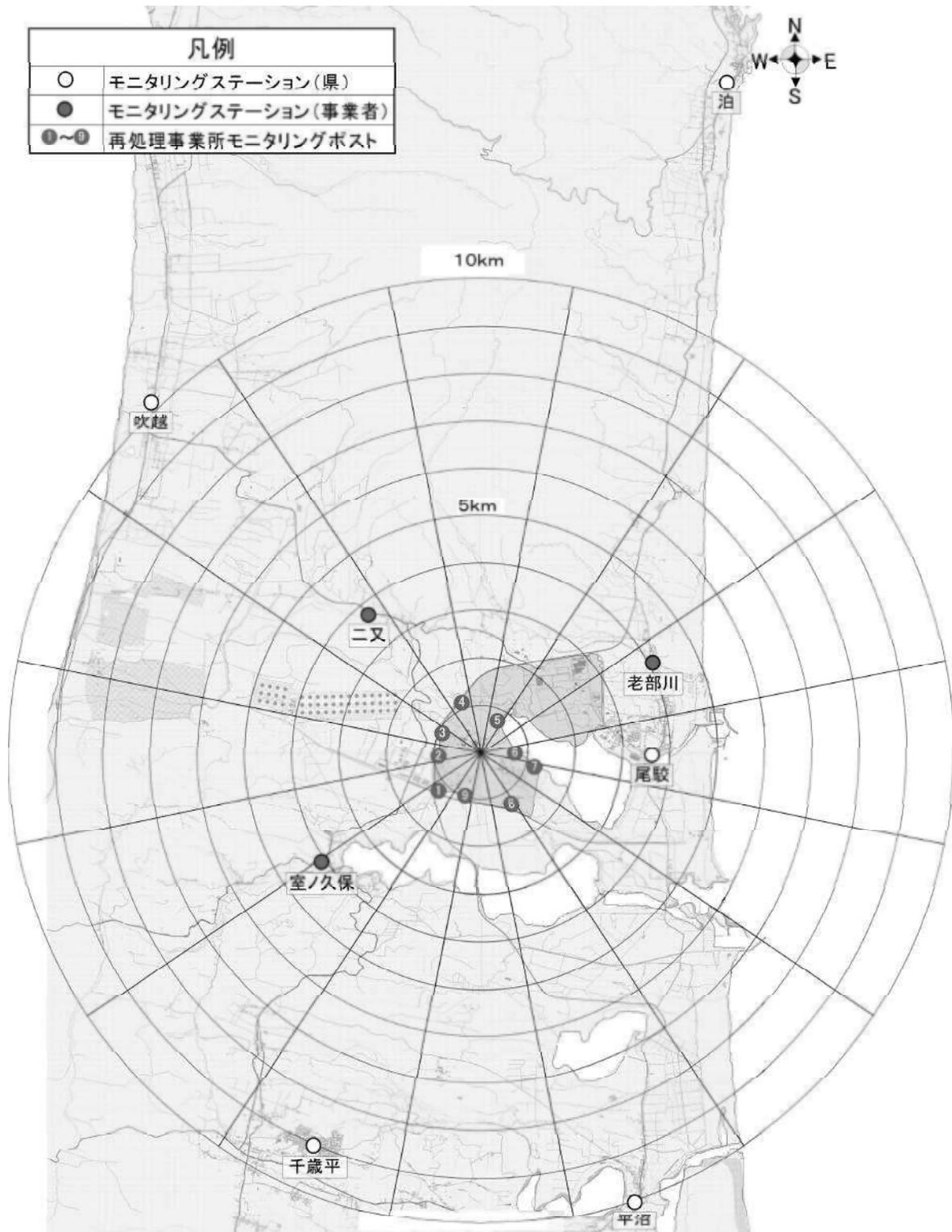
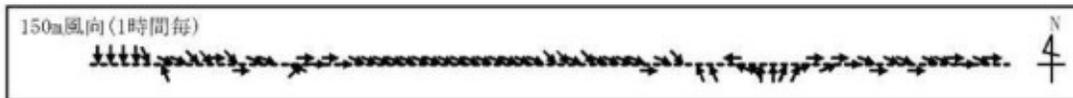
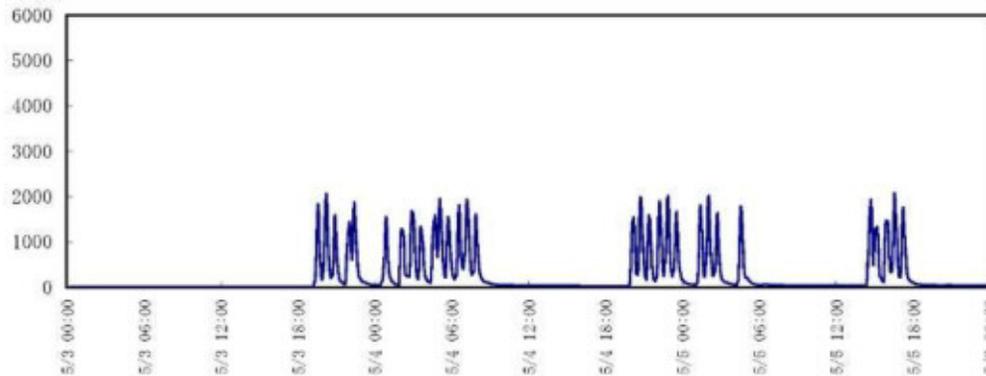


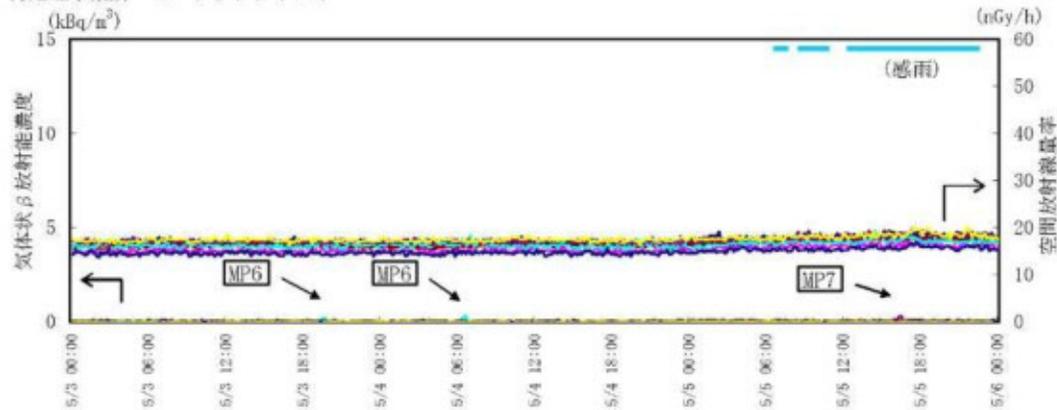
図1 測定局配置図



主排気筒ガスモニタ  
(cpm)



再処理事業所 モニタリングポスト



モニタリングステーション

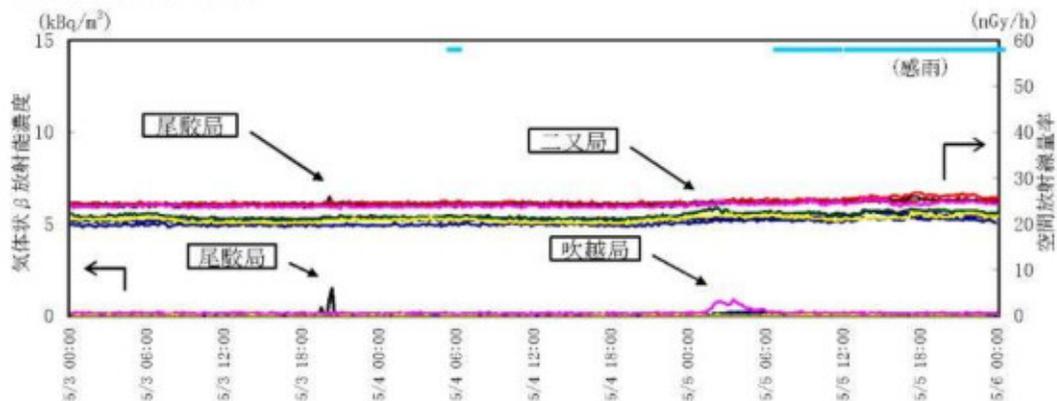
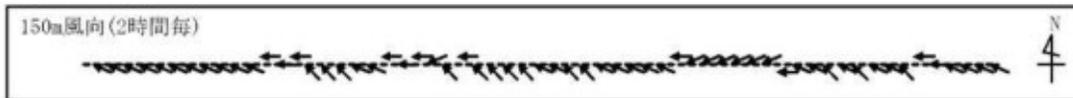
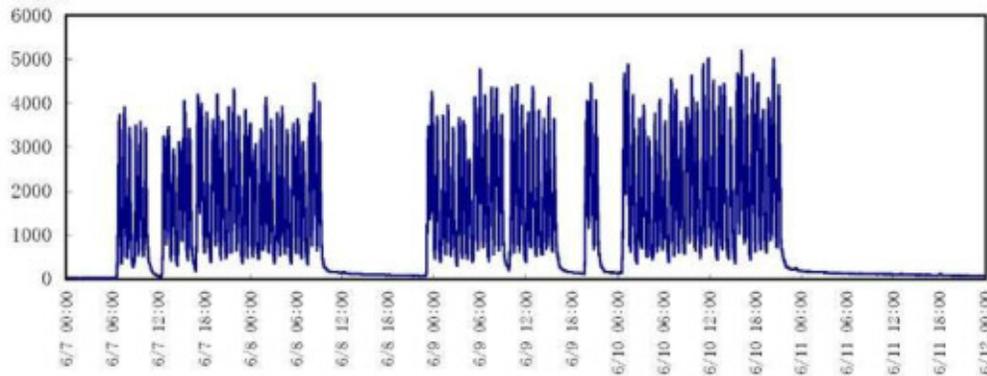


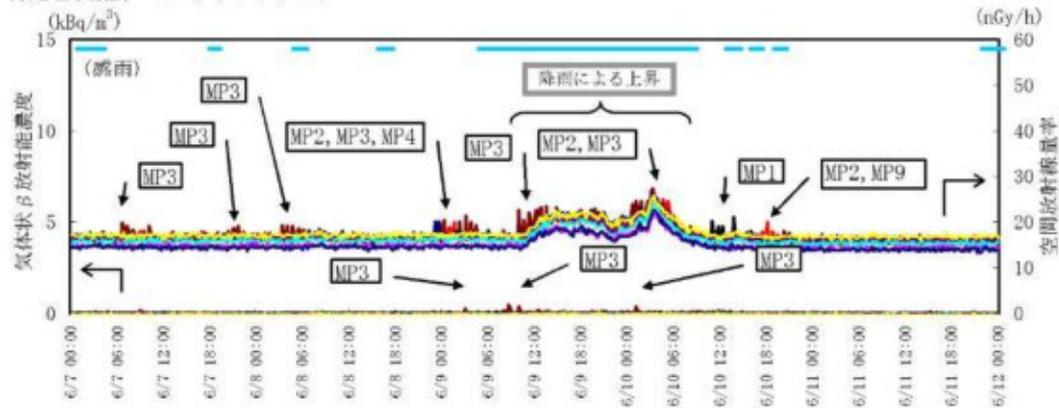
図2 平成18年5月3日～5月5日の連続モニタの変動状況(10分値)



主排気筒ガスモニタ  
(cpm)



再処理事業所 モニタリングポスト



モニタリングステーション

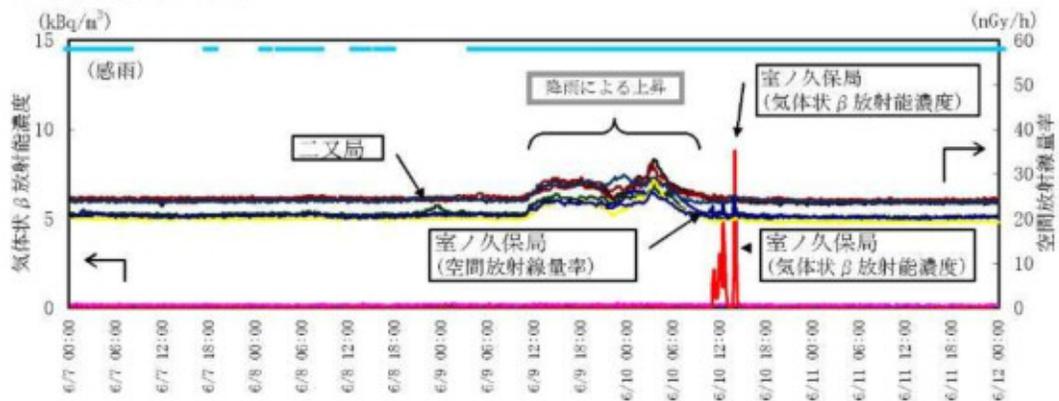


図3 平成18年6月7日～6月11日の連続モニタの変動状況(10分値)

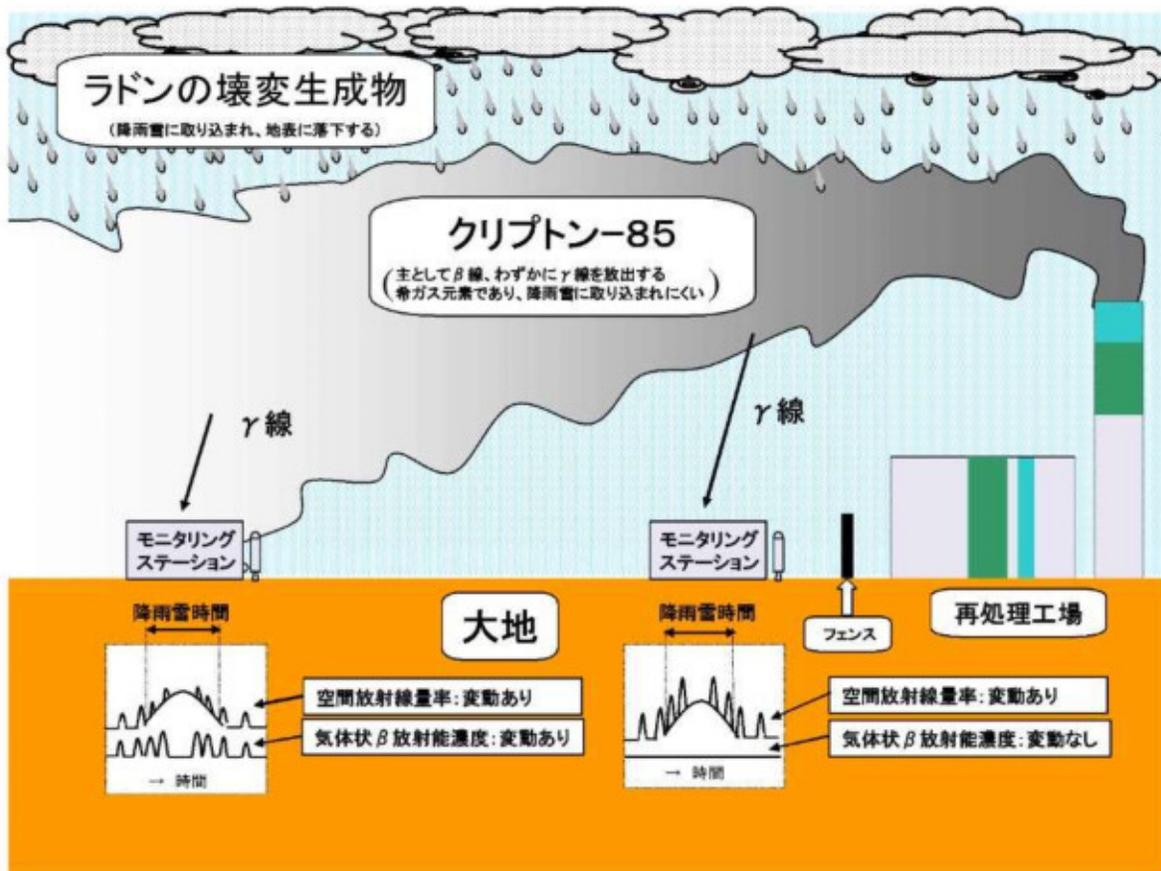


図4 連続モニタの測定値の主な変動要因

# 青森県における大気中クリプトン-85 濃度調査

三浦誓也 貝森優希 工藤英嗣 野呂幸男\*1 時枝隆之\*2 広瀬勝己\*2

## 1. はじめに

六ヶ所再処理工場から大気中に放出されるクリプトン-85（以下、Kr-85 という。）について、再処理工場の本格操業前後における環境への影響の評価に資するため、本県では、気象庁気象研究所（以下、気象研という。）との共同研究として、2003年6月から青森市において本格操業前のバックグラウンド調査を実施したので、その結果を報告する。

## 2. 調査方法

2.1 調査地点 青森市 1 地点（青森県環境保健センター屋上）

2.2 調査期間 2003年6月～2006年3月

### 2.3 採取・分析方法

大気試料は専用の吸着容器（活性炭を充填、液体窒素で-196℃に冷却。）にポンプを用いて、1 L/min で1週間連続して採取する（約 10m<sup>3</sup>）。活性炭に吸着した大気試料は、ヒーターで加熱・加圧処理して1 L アルミ容器に回収後、測定試料とした。測定試料は気象研に送付後、気象研の放射性希ガス分析装置（活性炭冷却捕集及びガスクロマトグラフ分離による大気中 Kr-85 の気体計数システム）にて分析を実施した。Kr-85 試料採取・分析装置の概略を図1に示す。また、大気中 Kr-85 濃度の計算には次式を用いた。

$$\text{大気中 Kr-85 濃度(Bq/m}^3\text{)} = \frac{\text{〈比放射能〉}}{\text{GM管内放射能(Bq)}} \times \frac{\text{〈大気中の Kr 組成比〉}}{1.14\text{ppm (m}^3\text{/m}^3\text{)}}$$

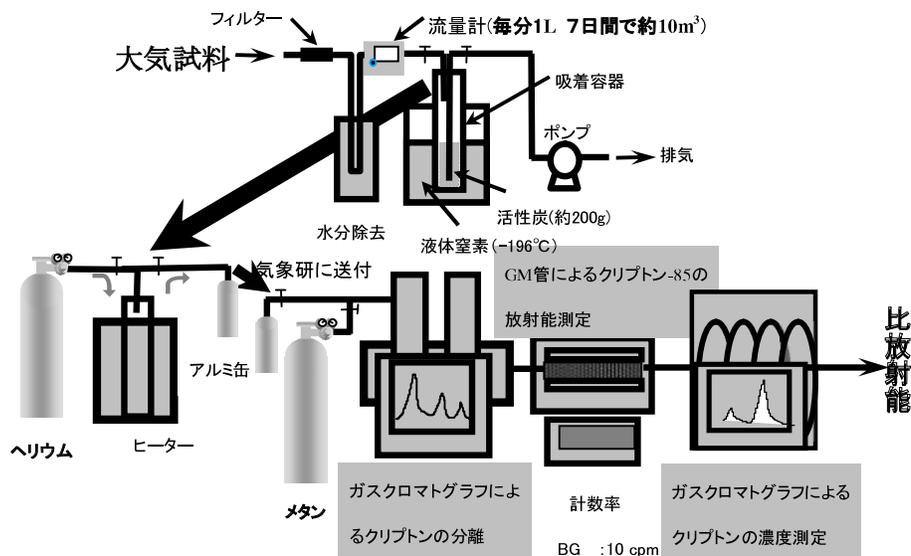


図1 <sup>85</sup>Kr 試料採取・分析装置の概略

\*1: 現青森県環境保健センター 青森環境管理事務所

\*2: 気象庁 気象研究所 地球化学研究部

### 3. 調査結果

#### 3.1 青森市とつくば市における大気中 Kr-85 濃度

青森市及びつくば市における 2003 年 6 月以降の大気中 Kr-85 濃度を図 2 にまとめた。青森市及びつくば市は、いずれも夏季に低く、冬季に高くなるという季節変動を示した。つくば市より高緯度に位置する青森市は、大気中 Kr-85 濃度がつくば市よりやや高く推移しており、これまでの大気中の濃度レベルは  $1.5\text{Bq}/\text{m}^3$  前後であることが確認された。

なお、つくば市において一時的に高い濃度が検出されているのは、気象研究所の北東約 60km にある東海再処理施設の稼働の影響によるものである。<sup>1),2)</sup>

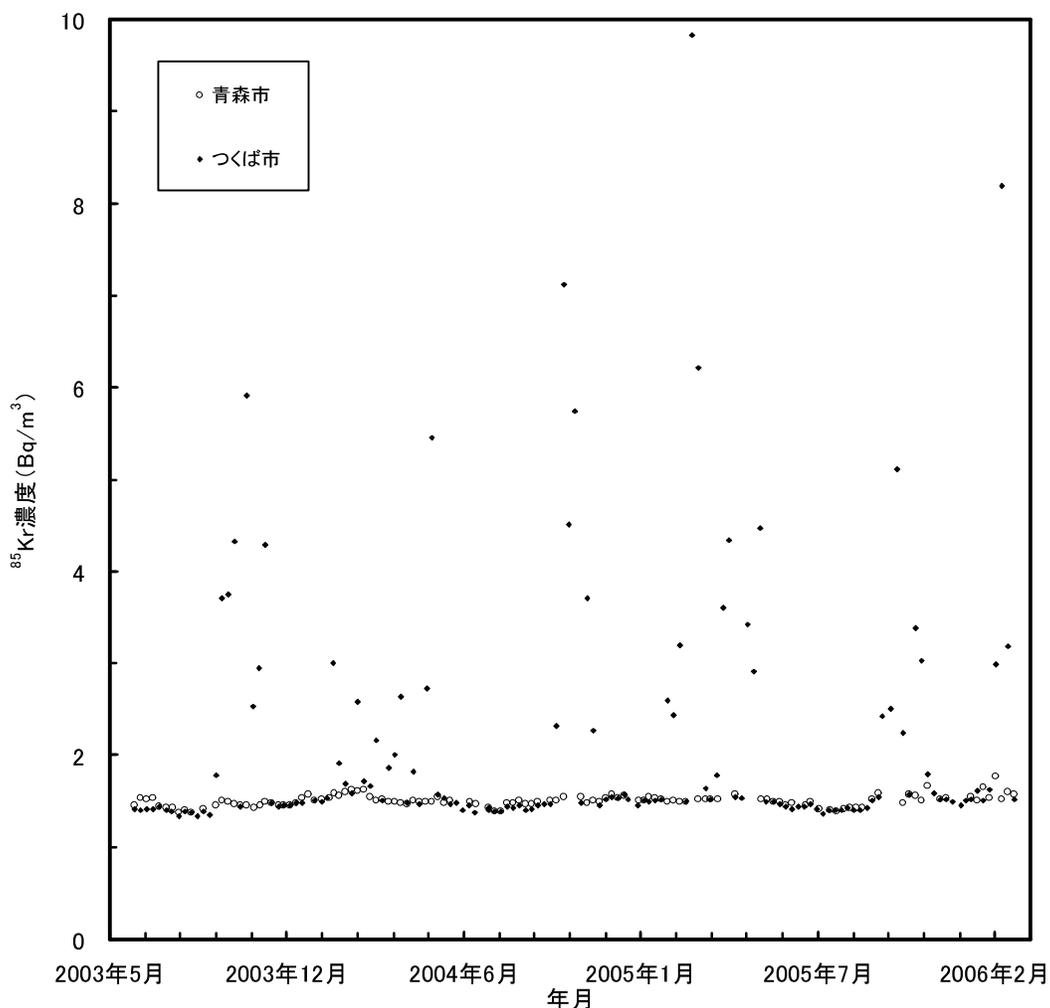


図2 青森市とつくば市における大気中<sup>85</sup>Kr濃度

#### 文 献

- 1) 気象庁 気象研究所 地球化学研究部：茨城県つくば市における大気中の放射性希ガスの観測，環境における人工放射能の研究，35-36（2005）
- 2) 時枝隆之、松枝秀和、石井雅男、斉藤秀、澤庸介、広瀬勝巳、青山道夫、五十嵐康人、篠田佳宏：大気中の放射性気体の実態把握に関する研究，文部科学省第48回環境放射能調査研究成果論文抄録集，7（2006）

### Ⅲ 学 会 等 发 表 要 旨



## 青森県における大気浮遊じん及び降下物中 Be-7 について

鹿内伸泰 齋藤輝夫 木村芳伸<sup>\*1</sup> 神 俊雄 武藤逸紀 齋藤 稔<sup>\*1</sup>  
木村秀樹 工藤俊明 三浦 太<sup>\*2</sup> 吹越恵里子

第 6 回「環境放射能」研究会，茨城県つくば市，2005. 3. 8-3. 10

原子燃料サイクル施設周辺地域（以下、サイクル周辺地域、という）及び東通原子力発電所周辺地域（以下、東通周辺地域、という）において実施している環境放射線モニタリングの結果から大気浮遊じん及び降下物中の Be-7 濃度の推移について取りまとめた。

3 箇月ごとに集じんしているサイクル周辺地域及び青森市の大気浮遊じんの測定結果は第 3 四半期及び第 4 四半期に高い値を示した。一方、1 箇月ごとに集じんしている東通周辺地域の測定結果は春と秋に高い結果を示した。Be-7 の半減期は約 53 日であるため、遅い時期に採取された Be-7 濃度をより大きく反映している。また、東通周辺地域の測定結果を、サイクル周辺地域と同一に比較できるよう補正を行ったところ、その結果は全ての地域において、ほぼ同じレベルであったことから、サイクル周辺地域、東通周辺地域及び青森市を含む広い範囲で大気浮遊じん中の Be-7 濃度は同様に推移していると考えられる。

降下物の Be-7 測定結果についても、サイクル周辺地域及び東通周辺地域で同様に推移した。

サイクル周辺地域の Be-7 測定結果と降水量の関係については、降水量の多い月に Be-7 が高い値を示すことが多いが、その相関は明確ではなかった。これは降水量の他、大気中の Be-7 濃度やウォッシュアウト効果の差（例えば降雪と降雨による違い）などが測定結果に影響しているものと考えられる。

\*1: 現青森県環境生活部原子力安全対策課

\*2: 現青森県警察本部生活安全部生活環境課

## 青森県における大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の変動要因

木村秀樹 高橋秀昭 齋藤 稔<sup>\*1</sup>

日本保健物理学会第 39 回研究発表会，青森県六ヶ所村，2005. 6. 30-7. 1

青森県では、大気浮遊じん中全  $\alpha$  及び全  $\beta$  放射能の測定を、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等調査（原燃サイクル調査）として 1989 年度から 6 地点において、東通原子力発電所に係る調査（東通原発調査）としては 2003 年度から 3 地点において実施している。原燃サイクル調査における測定結果は東通原発調査と異なる変動傾向を示しており、この要因を解明するため、気象データとの関連を調査するとともに、流跡線解析による気塊の移動経路の推定を行った。

原燃サイクル調査における全  $\alpha$  放射能は、春と秋に変動が大きく、高い値が出現しており、夏と冬は低い値で安定している。全  $\beta$  放射能は、秋と冬に全体的に高い値となり、夏に低くなる傾向を示した。 $\alpha/\beta$  比については、東通原発調査が年間を通じてほぼ一定の値となっているのに対し、原燃サイクル調査においては、春に比較的大きく変動し値も高くなるが、冬には値もその変動も小さくなるという特異な季節変動を示した。

原燃サイクル調査において、積雪が継続して観測され始める時期と全  $\alpha$  放射能の低下がみられる時期、積雪がなくなる時期と全  $\alpha$  放射能の上昇がみられる時期がほぼ一致している。このことから、表土が全  $\alpha$  放射能の主要な起源の一つとなっていることが考えられる。

2001年4月から2004年3月における全  $\alpha$  放射能及び  $\alpha/\beta$  比の推移をみると、2003年5月頃に大きく鋭いピークがみられた。この時期、ロシア東部で森林火災が発生していたことが宇宙航空研究開発機構等から報告されており、バイカル湖周辺地域の衛星写真には、火元が無数にあることが示されている。最も全  $\alpha$  放射能濃度が高くなった2003年5月5～11日の期間について、六ヶ所村を起点とした後方流跡線を見ると、青森県に流入した気塊は、10日程度前にはバイカル湖付近を通過していた。全  $\alpha$  放射能の主要核種と考えられる Po-210 は、植物の燃焼により大気中に放出されるという報告があり、大気中全  $\alpha$  放射能濃度の上昇に森林火災が影響している可能性がある。

\*1: 現青森県環境生活部原子力安全対策課

## 放射性ストロンチウム分析における ラドン・トロン壊変生成物の影響の評価

神 俊雄 木村秀樹 武藤逸紀 齋藤 稔<sup>\*1</sup> 菅野信行<sup>\*2</sup> 森本隆夫<sup>\*2</sup>

日本保健物理学会第39回研究発表会, 青森県六ヶ所村, 2005. 6. 30-7. 1.

放射性ストロンチウム分析においては、ストロンチウムを化学分離し精製した後、Sr-90の壊変生成物である Y-90 が Sr-90 と放射平衡に達するのを待ち、Y-90 を水酸化鉄(III)沈殿に共沈させて単離(ミルクィング)し、Y-90 から放出される  $\beta$  線を測定する。この  $\beta$  線測定の際、計数値が Y-90 と異なる半減期で減衰する例がみられたことから、その要因について検討を行った。

ミルクィング操作及び測定に使用する試薬について低バックグラウンド  $2\pi$  ガスフロー計数装置を用い  $\beta$  線を測定したところ、いずれもバックグラウンドレベルであった。

Sr-90 を含まない溶液から水酸化鉄沈殿を生成して測定用試料を調製し、 $\beta$  線計数率の時間変化を詳細に調べたところ、計数率の半減期から、計数はラドン・トロンの壊変生成物によるものであると推測された。

ミルクィング操作に使用する定量ろ紙の酸洗浄液を複数枚分合わせ、水酸化鉄(III)沈殿を生成し、測定用試料を調製、 $\beta$  線計数率の時間変化を調べたところ、洗浄したろ紙の枚数が増加すると  $\beta$  線計数率も増加する傾向を示した。

定量ろ紙  $\text{No.5A}$  を高濃度のラドン雰囲気曝露し、その酸洗浄液から生成した水酸化鉄(III)沈殿について  $\alpha$  線スペクトロメータによる測定を行ったところ、Rn-222 の壊変生成物である Po-214 (7.687MeV) のピークが確認された。これにより、ラドン・トロンの壊変生成物が  $\text{No.5A}$  ろ紙に吸着し、測定用試料に混入することが明らかとなった。

\*1: 現青森県環境生活部原子力安全対策課

\*2: 財団法人 日本分析センター

## 青森県における熱ルミネセンス線量計（TLD）と 蛍光ガラス線量計（RPLD）の比較測定について

佐々木久美子 鈴木将文<sup>\*1</sup> 工藤香織<sup>\*2</sup> 吹越恵理子 野呂幸男 木村秀樹  
渡部陽一<sup>\*3</sup>

日本保健物理学会第 39 回研究発表会, 青森県六ヶ所村, 2005. 6. 30-7. 1.

TLD と RPLD の諸特性を把握するために、環境における比較測定、温度特性試験及びセルフドーズ評価のための測定を実施した。その結果、両線量計の測定結果には良い相関（相関係数 0.88）が認められた。RPLD の測定値は TLD の測定値より約  $6 \mu\text{Gy}/91$  日低くなり、この値は両線量計のセルフドーズの差とほぼ一致した。また、積雪寒冷期の測定においては、RPLD の測定値は、積雪による遮へい効果と低温時における感度低下のため、低めを示すことがわかった。一方、TLD の測定値は、積雪による遮へい効果（低めを示す要因）と低温時における初期フェーディングによる影響（高めを示す要因）を受けることがわかった。

\*1: 現青森県商工労働部資源エネルギー課

\*2: 現青森県環境生活部環境政策課

\*3: 現青森県環境保健センター

## 牛肉の灰化プログラムの検討

武藤逸紀 五十嵐飛鳥 三浦 太<sup>\*1</sup> 木村秀樹 神 俊雄 工藤俊明  
吹越恵里子 齋藤輝夫 鹿内伸泰 今 武純

平成 17 年度放射能分析確認調査技術検討会, 東京都千代田区, 2006. 3. 15

東通原子力発電所のモニタリングにおいて、牛肉試料の灰化を行っているが、油脂分が多く含まれているため、灰化炉内温度が  $300^\circ\text{C}$  を超えたところで発火する事象がみられた。そこで、試料を発火させずに灰化させるため、 $300^\circ\text{C}$  での長時間加熱処理により油脂分を揮散させた後、炉内温度を上昇させて試料を灰化した結果、発火は確認されなかった。

この結果を踏まえて新しい灰化プログラムを作成し、昇温途中で発火することなく灰化することが可能になったが、これまでの灰化プログラムに比べ加熱時間を長くする必要があった。Cs については長時間の加熱による損失が報告されていることから、従来と比較して長時間を要する本灰化プログラムによる Cs の損失について検討した。その結果、Cs が試料中に残存する割合は  $84\% \sim 86\%$  であり、本プログラムは実用上問題なく使用できると考えられた。

\*1: 現青森県警察本部生活安全部生活環境課

編集委員

今 武純 阪崎俊璽 工藤英嗣 木村秀樹 佐々木久美子

青森県原子力センター所報 第1号 (2006)

平成19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

ホームページアドレス <http://gensiryoku.pref.aomori.lg.jp/center/>

この印刷物は 210 部作成し、印刷経費は 1 部当たり 円です。