

青森県原子力センター所報

第19号

令和6年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.19(2024)

青森県原子力センター

<https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/genshisenta/center-home.html>

は じ め に

青森県原子力センターは、県内原子力施設周辺住民の安全の確保及び環境の保全を図るため、放射能の調査・原子力施設の監視機関として、六ヶ所村に設置されました。

主な業務は、環境放射線等の監視に関すること及び立地した原子力施設の安全性に関することであり、このうち環境放射線等の監視については、測定する項目、地点及び調査する環境試料の種類等を原子力施設毎に定めたモニタリング計画に基づき、空間放射線の測定・監視及び環境試料の分析・測定を行っています。

当センター所報は、これら日常のモニタリングで得られた知見や関連して実施している調査研究の成果をとりまとめたものです。とりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会委員の皆様から貴重な御意見・御指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。

現在県内の主要な原子力施設については、東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故以降、未だ再稼働・操業に至っておりませんが、来るべき時期に向け、職員 1 人 1 人が研鑽を積み、一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、引き続きの御指導・御鞭撻のほどよろしくお願い申し上げます。

令和 7 年 3 月

青森県原子力センター

所 長 工 藤 俊 明

目 次

I 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
—令和5年度調査結果— 3
阿部真之 檜山宝孝 神 俊雄 幸 進 天間陽斗 大山一寿

II 学会発表等要旨

1. α β 同時計数機構付きダストモニタによる施設起因 α ・ β 放射能濃度の
推定 25
大坂直人

III 令和6年度調査研究事業報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査
—令和6年度調査内容— 29
阿部真之 檜山宝孝 神 俊雄 幸 進 天間陽斗 大山一寿
2. 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 31
大山 勝 葛西邦生
3. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査 43
木村芳伸 檜山宝孝 神 俊雄

原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

I 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 —令和 5 年度調査結果—

阿部 真之 檜山 宝孝 神 俊雄
幸 進* 天間 陽斗* 大山 一寿*

1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、その運転に伴い、Kr-85、トリチウム (H-3)、C-14 及び I-129 などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が放出される。青森県では、「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)」において、測定結果に基づく線量の推定・評価方法について基本的な考え方を示しており、この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、日本原燃株式会社と共同で調査研究を実施している。

この一環として、平成 19 年度から環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を、平成 20 年度からは I-129 と同様に施設から放出される核種として I-131 について調査を開始している。また、有機結合型トリチウム (OBT) について、調査開始当初は組織自由水トリチウム (TFWT) と容易に交換する形態の OBT (交換型 OBT) を含む全 OBT を対象としていたが、平成 21 年度から、より詳細な線量評価手法の検討のため、試験的に魚類について非交換型 OBT を追加実施し、平成 26 年度からは OBT をすべて非交換型 OBT として調査を行っている。さらに、平成 27 年度からは海藻の TFWT 及び OBT を追加し実施している。

本報告は令和 5 年度の調査結果について、とりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

対象試料及び調査地点等については、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計画¹⁾における農畜産物及び海産生物の中から選定し、表 1 のとおりとした。また、これらの調査地点については、図 1 に示す。

なお、令和 5 年度からは、六ヶ所再処理工場の状況を踏まえ、令和 4 年度調査対象のうち委託により実施していた県実施分の核種 (非交換型 OBT 及び I-129) について、検体数の削減を行っている。また、キャベツについては横浜町から睦栄に採取地点を変更している。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

放射能測定法シリーズ「トリチウム分析法」²⁾に準拠し、液体シンチレーション測定法を用いた。試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを TFWT 濃度とした。乾燥物については、無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去後、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを非交換型 OBT 濃度とした。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBT のみ測定した。

* : 日本原燃株式会社

牛乳の採取地点においては、乳牛の飲料水についても調査を行った。試料は、蒸留により精製した後、トリチウム濃度 (Bq/L) を測定した。測定条件は表 2 のとおりである。

(2)C-14

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

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測定法により測定し、C-14 比放射能を算出した。また、乾燥試料の燃焼により生成した二酸化炭素量を測定し、試料中の全炭素量を算出した。これらによって求めた C-14 比放射能と全炭素量から、試料中の C-14 濃度を算出した。測定条件は表 2 のとおりである。

表 1 対象試料及び調査地点・核種 (令和 5 年度)

試料	実施者	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種				
				H-3		C-14	I-129	I-131
				TFWT	非交換型 OBT			
牛乳 (原乳)	事業者	六原	1	○	○	○	—	—
	県	二又		○	—	○	—	—
	事業者	豊原		○	○	○	—	—
精米	県	千樽	1	—	—	○	—	—
		室ノ久保		—	—	○	—	—
	事業者	二又		—	○	○	—	—
		戸鎖		—	○	○	—	—
ハクサイ	事業者	千樽		○	○	○	○	○
キャベツ	県	睦栄		○	—	○	—	○
ダイコン	県	出戸	1	○	—	○	—	—
バレイショ	事業者	尾駸		○	○	○	—	—
ナガイモ	事業者	平沼		○	○	○	—	—
魚類 (ヒラメ等)	県	六ヶ所村	1	○	—	—	—	—
	事業者	前面海域		○	○	—	—	—
海藻類 (コンブ)	事業者	六ヶ所村 前面海域	1	○	○	—	○	○

表 2 トリチウム及び C-14 の測定条件

項目	³ H	¹⁴ C
測定機器	アロカ LSC-LB7	Perkin Elmer 1220 Quantulus Revvity Quantulus GCT 6220
試料容器	外側ポリエチレン、内側テフロン 145 mL 又はテフロン 100 mL	テフロン 3 mL
シンチレータ	Ultima Gold LLT 50 mL	5w/v% ブチル PBD-トルエン溶液 0.5 mL
測定供試量	50 mL	2 mL
測定時間	500 分	500 分



図1 調査地点図

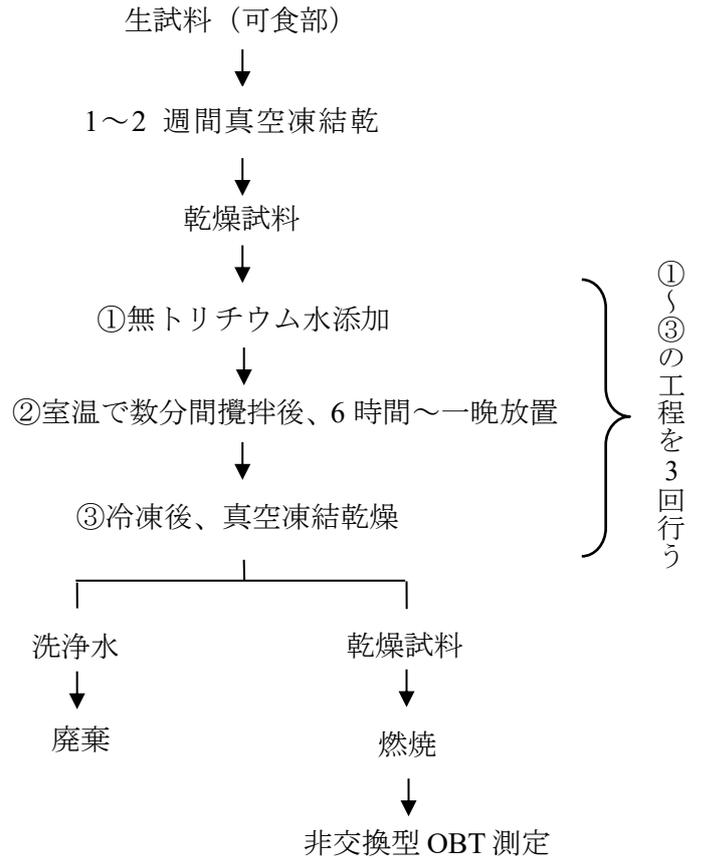


図2 非交換型 OBT の分析工程

(3) I-129

試料を真空凍結乾燥後に燃焼させ、発生したヨウ素を水酸化テトラメチルアンモニウム溶液に捕集し、一部を分取して安定ヨウ素 (I-127) 測定用試料とした。残りの溶液を溶媒抽出後、銀担体を添加してヨウ化銀を調製し、I-129 測定用試料とした。加速器質量分析装置 (AMS) を用いて I-129 と I-127 の原子数比を測定し、ICP 質量分析計を用いて安定ヨウ素量を定量し、これらの値から試料中の I-129 濃度を求めた⁴⁾。

(4) I-131

放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁵⁾ に準拠し、Ge 半導体検出器により測定した。

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において、平成 18 年 4 月から令和 6 年 3 月にかけて放出された放射性気体廃棄物 (トリチウム、C-14 及び I-129・131) の月間放出量を図 3 に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図 4 に示す。平成 18 年から実施されている使用済燃料を用いたアクティブ試験については、予定されていた使用済燃料のせん断・溶解処理が平成 20 年 10 月で終了しているため、それ以降の放出量は大きく減少している。

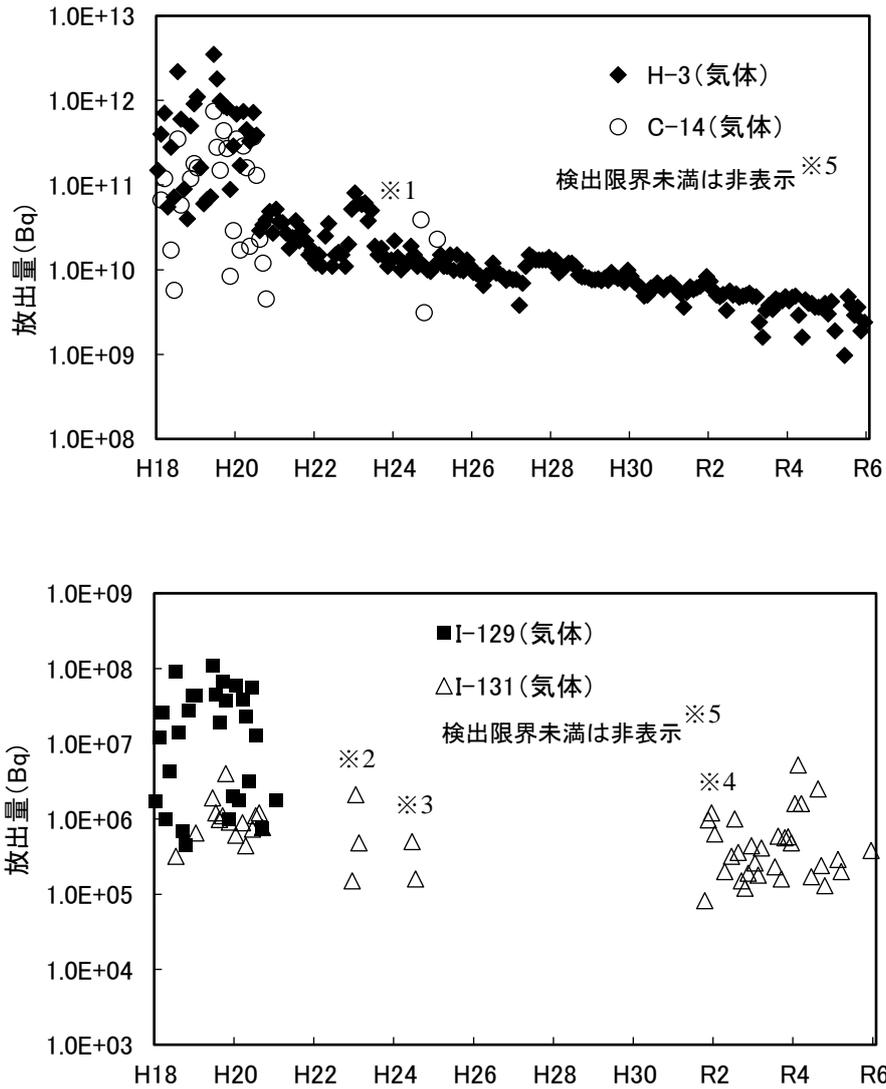


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～令和6年3月)

- ※1 ガラス固化試験等の影響。詳細は青森県原子力センター所報第8号 (p49) に記載。
- ※2 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所事故の影響と考えられる。詳細は青森県原子力センター所報第7号 (p25) に記載。
- ※3 ガラス固化試験等の影響。詳細は青森県原子力センター所報第8号 (p49) に記載。
- ※4 設備の保守管理に伴う放出。
- ※5 検出限界値は概算で、H-3 (気体) : $\sim 10^9$ (Bq/月) 程度、C-14 (気体) : $\sim 10^{10}$ (Bq/月) 程度、I-129 (気体) : $\sim 10^6$ (Bq/月) 程度、I-131 (気体) : $\sim 10^5$ (Bq/月) 程度。

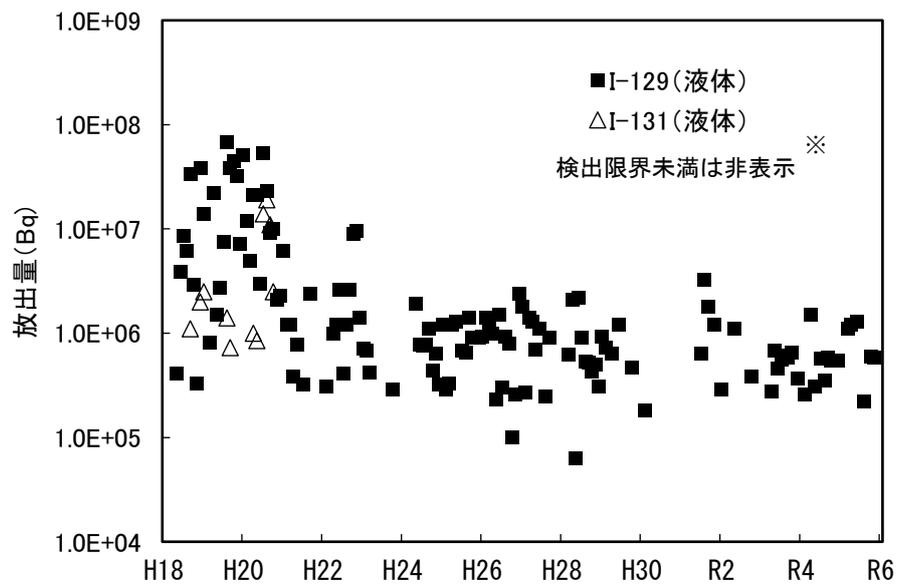
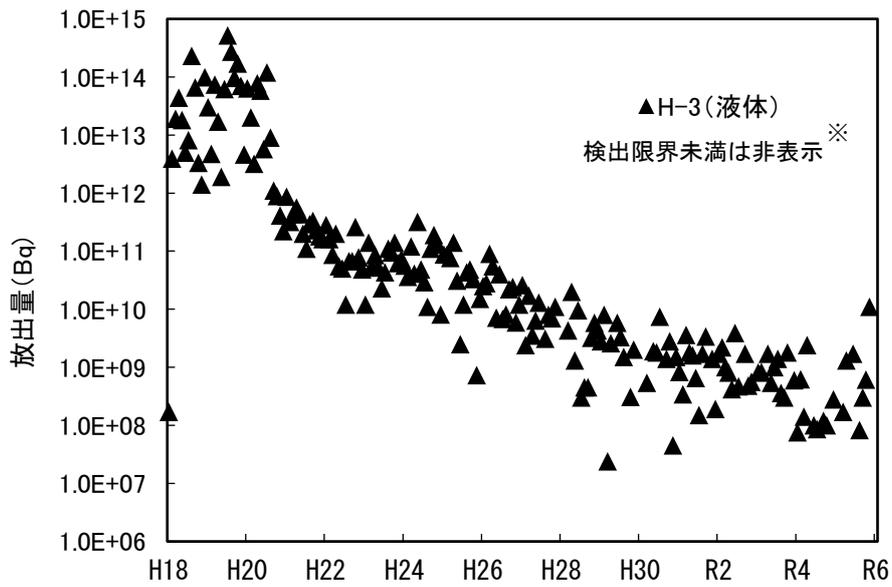


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
 (平成18年4月～令和6年3月)

※ 検出限界値は概算で、H-3(液体)： $\sim 10^7$ (Bq/月)程度、I-129(液体)： $\sim 10^5$ (Bq/月)程度、I-131(液体)： $\sim 10^5$ (Bq/月)程度。

4. 調査結果

4.1 トリチウム

牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を、表3及び図5に示す。牛乳については、TFWTで検出限界以下～0.39 Bq/L、非交換型 OBT で検出限界以下、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.25 Bq/L であり、牛乳及び飲料水とも、これまでの測定値と同程度であった。

表3 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（令和5年度）

採取地点	採取月	R5 年度調査結果			(参考)		
		牛乳（原乳）		飲料水 ^{※1} (Bq/L)	H19～R4 年度調査結果		
		TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)		牛乳（原乳）	飲料水 ^{※1} (Bq/L)	
				TFWT (Bq/L)	OBT ^{※2} (Bq/L)		
六原 ^{※3}	4月	0.39±0.11	*	0.25±0.07	*~0.63	*~0.61	*~0.46
二又	4月	*	—	*	*~0.57	*~0.63	*~0.34
豊原	4月	0.38±0.11	*	*	*~0.73	*~0.77	*~0.59

・「—」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。なお、令和5年度の検出限界はTFWTで0.33～0.39 Bq/L、非交換型OBTで0.36～0.43 Bq/L、飲料水で0.23～0.36 Bq/Lであった。

※1 平成22年度から調査開始。

※2 平成19～25年度は交換型OBTと非交換型OBTを併せたもの。平成26年度以降は非交換型OBT。

※3 平成25年度から調査開始。

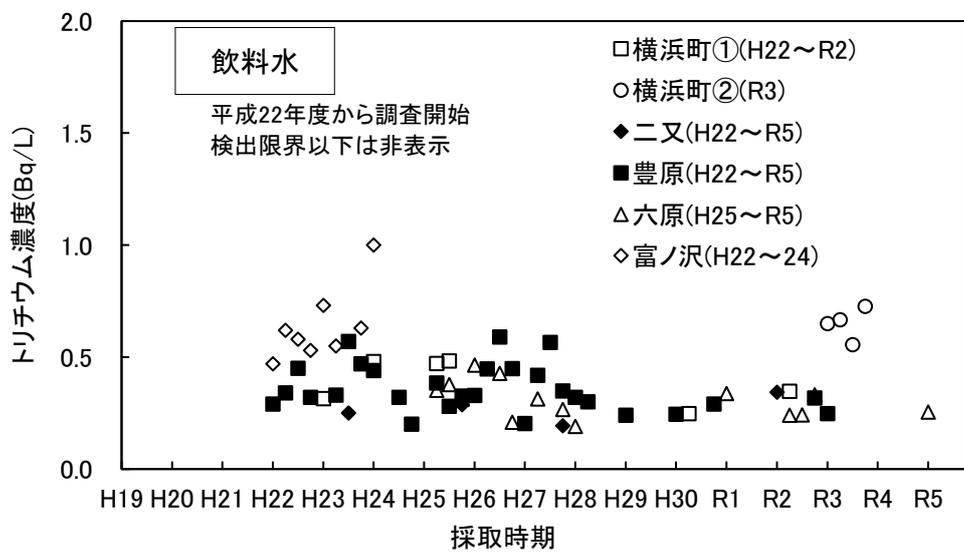
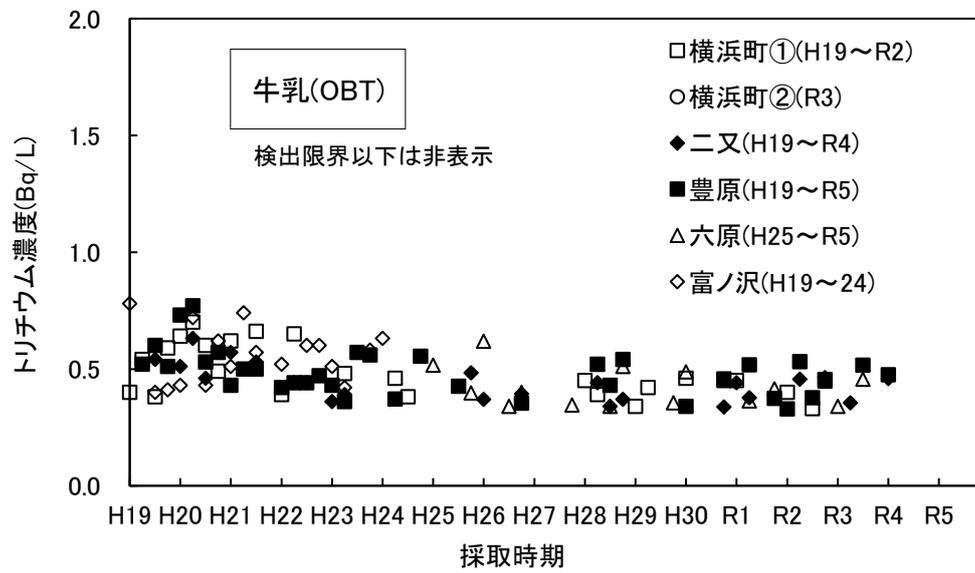
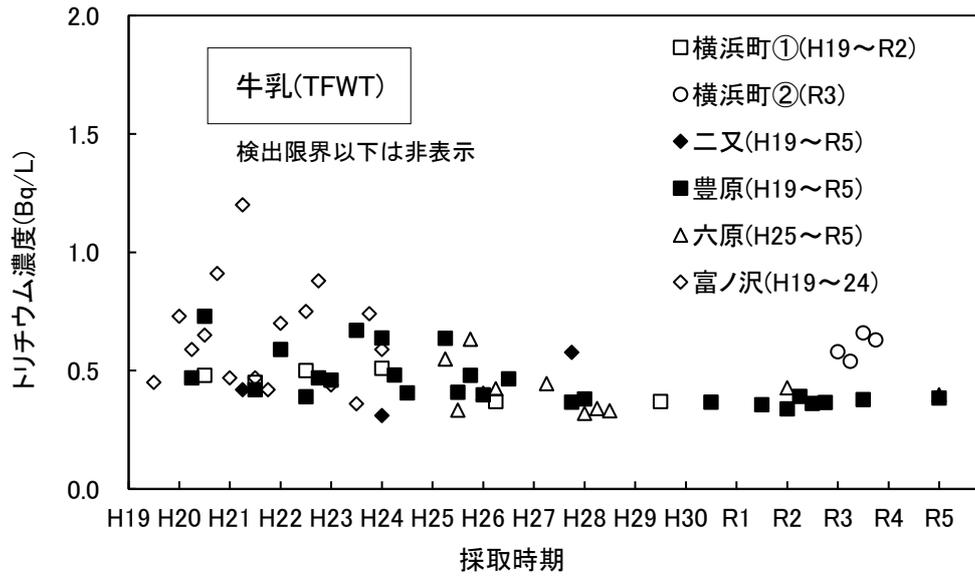


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

精米におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表4及び図6に示す。精米の非交換型OBTは検出限界以下であり、これまでの測定値と同程度であった。

表4 精米のトリチウム（OBT）濃度（令和5年度）

試料名	採取地点	採取月	R5年度調査結果		(参考) H19~R4年度
			非交換型 OBT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)	調査結果
精米	二又	9月	*		*~1.0
	戸鎖	9月	*		*~0.66

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお、令和5年度の検出限界は0.41 Bq/Lであった。

※1 平成19~25年度は交換型OBTと非交換型OBTを合わせたもの。平成26年度以降は非交換型OBT。

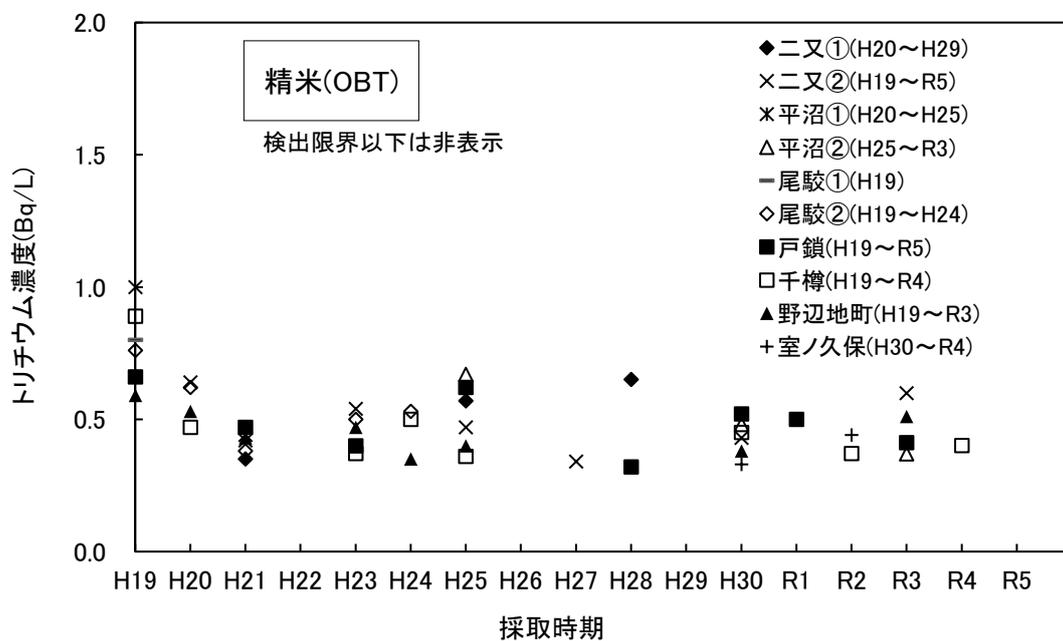


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化

※凡例において、青森県と日本原燃株式会社の調査地点が同じものについては、①が青森県、②が日本原燃株式会社調査分。

野菜におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表 5 及び図 7 に示す。野菜については TFWT で検出限界以下～0.78 Bq/L、非交換型 OBT はすべて検出限界以下であり、ダイコンの TFWT が H19～R4 年度の調査結果の範囲を上回ったが、計数誤差を考慮するとこれまでの測定値と同程度であった。

なお、陸上試料である牛乳（原乳）、精米及び野菜のトリチウム濃度は、近年の大気及び雨水中トリチウム濃度*と同程度であった。参考として、東京・千葉、六ヶ所村、むつ市及び札幌市における降水中トリチウム濃度の経年変化を図 8 に示す。降水中のトリチウム濃度は、昭和 30 年台には大気圏内核実験の影響により 100 Bq/L を超えていたが、その後はゆるやかに減少し、現在は 1 Bq/L を下回る水準である⁶⁻⁷⁾。また、降水中のトリチウム濃度は、緯度効果により六ヶ所村、むつ市及び札幌市が東京・千葉に比べやや高めの傾向が見られる。

* 青森県実施の環境放射線モニタリング（平成 19～令和 5 年度）における大気及び雨水のトリチウム濃度は以下のとおり。

大気：検出限界（0.21～0.36 Bq/L）以下～1.1 Bq/L

雨水：検出限界（0.23～0.36 Bq/L）以下～1.4 Bq/L

表 5 野菜のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 5 年度）

試料名	採取地点	採取月	R5 年度調査結果		(参考) H19～R4 年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)
ハクサイ	千樽	10 月	0.78±0.12	*	*~0.89	*~0.68
キャベツ	睦栄 ^{※2}	10 月	*	—		
ダイコン	出戸	9 月	0.67±0.13	—	*~0.61	*~0.68
パレイショ	尾駸	7 月	0.60±0.11	*	0.41~0.88	*~0.84
ナガイモ	平沼	11 月	0.57±0.11	*	*~0.89	*~0.79

・「—」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。なお、令和 5 年度の検出限界は TFWT で 0.34~0.39 Bq/L、非交換型 OBT で 0.37~0.39 Bq/L であった。

※1 平成 19～25 年度は交換型 OBT と非交換型 OBT を併せたもの。平成 26 年度以降は非交換型 OBT。

※2 令和 5 年度から調査開始。

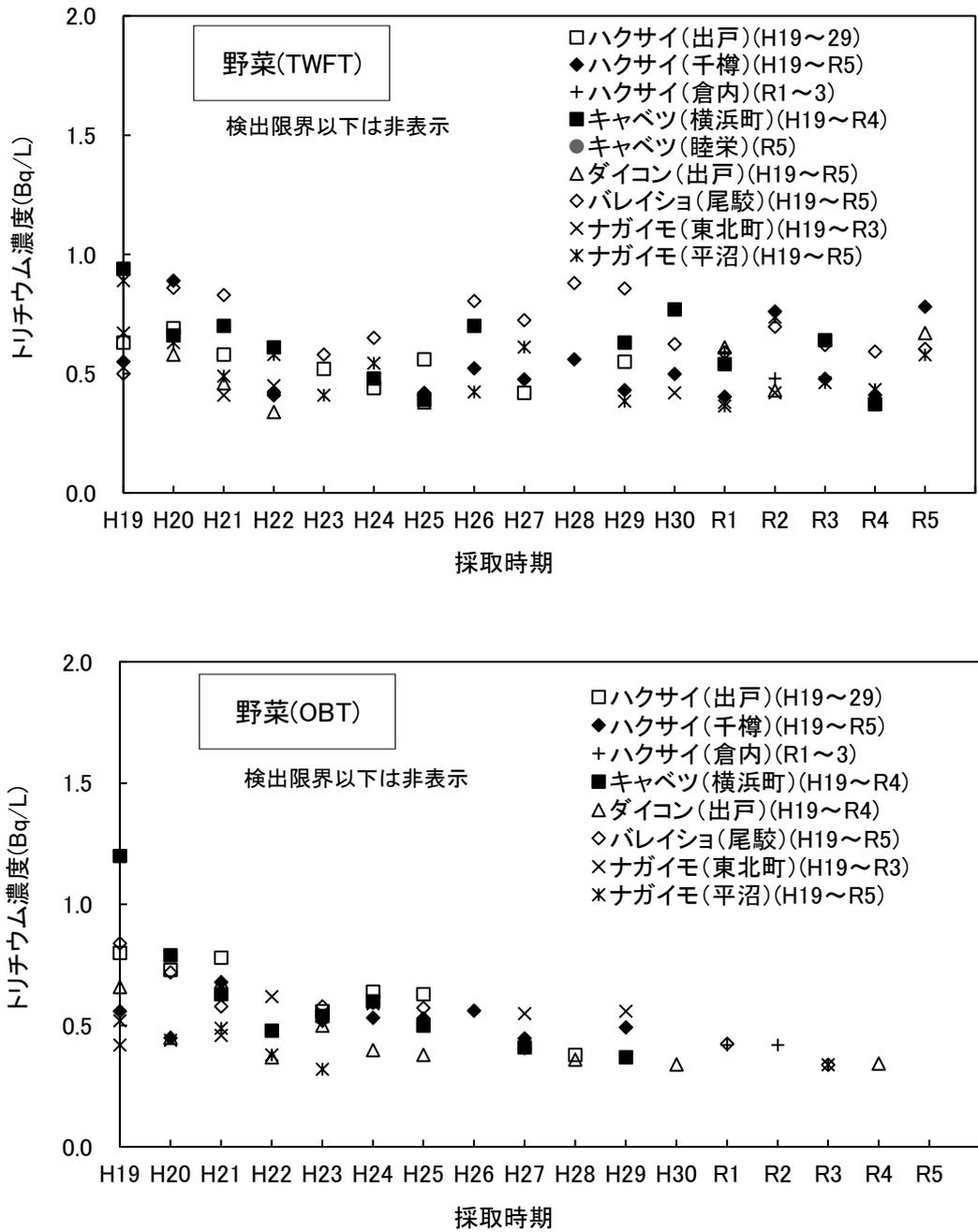


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

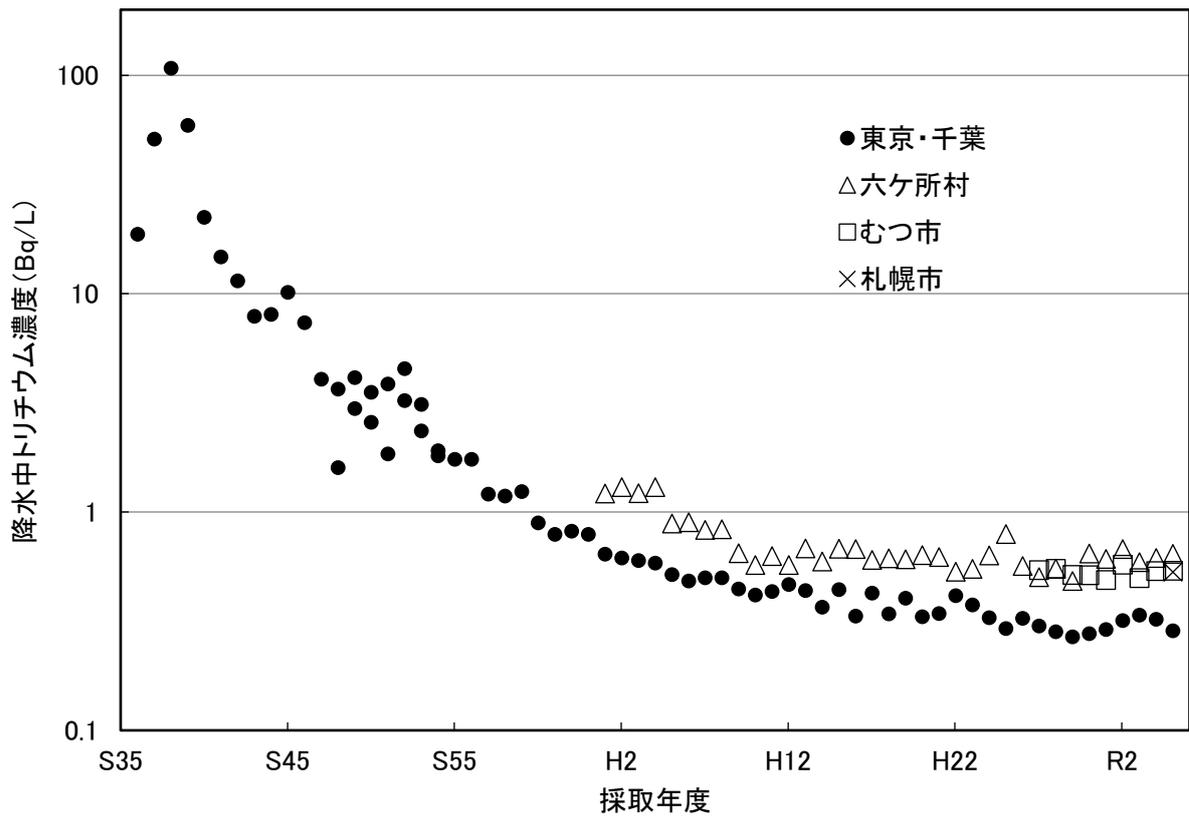


図 8 東京・千葉、六ヶ所村、むつ市及び札幌市における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・引用元、測定年度及び測定地点は以下のとおり。
 - (国研)量子科学技術研究開発機構量子生命・医学部門放射線医学研究所
環境中のトリチウム測定調査データベース「環境中トリチウム-降水測定データ」⁶⁾
 - 昭和 36~54 年度 東京・気象庁
 - 昭和 48~54 年度 千葉市稲毛区穴川
 - 昭和 54~平成 19 年度 千葉市稲毛区山王町
 - (公財)日本分析センター
環境放射線データベース「身のまわりなどの一般環境」⁷⁾
 - 1.調査対象：大気
 - 2.調査年度：平成 19 年度～
 - 3.調査地域：北海道、青森、千葉
 - 4.調査カテゴリー：降下物
 - 5.調査試料：月間降下物
 - 6.調査核種：H-3
 - 令和 5 年度 札幌市北区
 - 平成 27~令和 5 年度 むつ市港町
 - 平成 19~令和 5 年度 千葉市稲毛区山王町
- ・六ヶ所村のデータは、青森県実施の環境放射線モニタリング（平成元～令和 5 年度）の六ヶ所村千歳平における年間平均値。

海洋試料である魚類（ヒラメ等）の測定結果及びその経年変化を表 6 及び図 9 に示す。TFWT は検出限界以下であり、近年は横ばいで推移している。また、平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBT についても検出限界以下であり、こちらも近年は横ばいで推移している。

なお、赤田らによる青森県太平洋側海域における魚類中トリチウム濃度の調査では、平成 17～令和 3 年度に TFWT で検出下限値以下～3.59 Bq/L 程度、平成 17～令和元年度に非交換型 OBT で検出下限値以下～0.56 Bq/L 程度であり、使用済燃料のせん断・溶解処理に伴い上昇したが、近年はバックグラウンドレベルで推移していると報告があり⁸⁾、本調査における魚類中トリチウム濃度は、これらと同程度であった。

また、平成 27 年度から調査を開始した海藻類（コンブ）の測定結果を表 7 に示す。TFWT 及び非交換型 OBT はすべて検出限界以下であった。

表 6 魚類（ヒラメ等）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 5 年度）

試料名	採取地点	採取月	魚種	R5 年度調査結果		（参考）H19～R4 年度調査結果		
				TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
魚類 (ヒラメ等)	六ヶ所村 前面海域	6月	ヒラメ	*	—	*~3.2	*~1.4	*~0.48
		7月		*	*			

- ・「—」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。なお、令和 5 年度の検出限界は TFWT で 0.33～0.36 Bq/L、非交換型 OBT で 0.37 Bq/L であった。

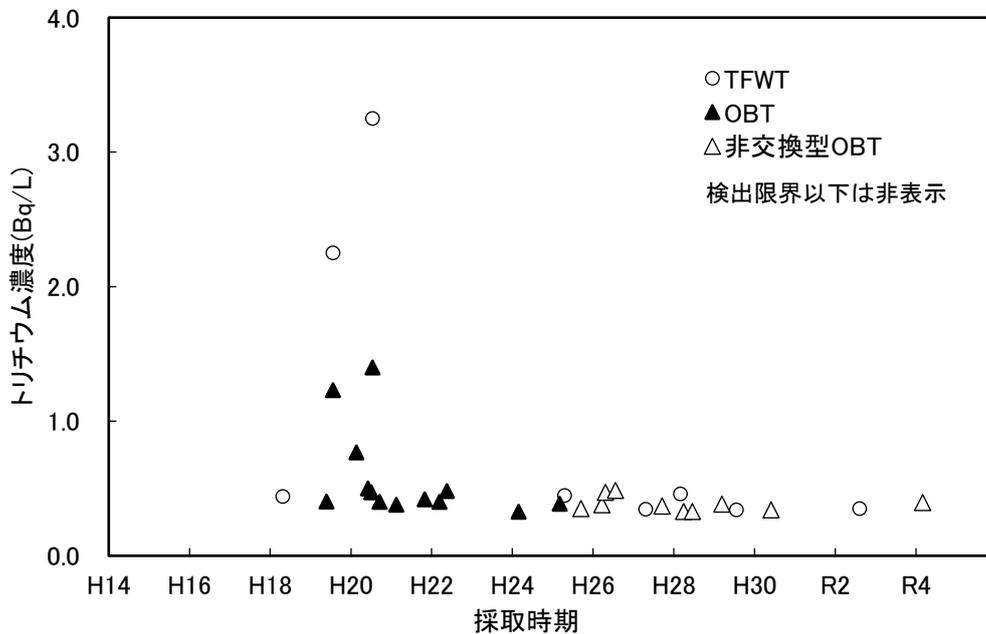


図 9 魚類（ヒラメ等）におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT、非交換型 OBT)の経年変化
 ※平成 14～18 年度は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

表7 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和5年度）

試料名	採取地点	採取月	R5年度調査結果		H27~R4年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	8月	*	*	*	*~0.42

- 測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお、令和5年度の検出限界はTFWTで0.34 Bq/L、非交換型OBTで0.35 Bq/Lであった。

4.2 C-14

農産物における C-14 比放射能の測定結果及びその経年変化を表 8 及び図 10 に示す。比放射能は精米で 0.222~0.232 Bq/g 炭素、葉菜で 0.224~0.230 Bq/g 炭素、根菜・いも類で 0.217~0.233 Bq/g 炭素であり、これまでの測定値と同程度であった。

大気圏内核実験によって増加した C-14 は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られており、アクティブ試験の影響が認められた平成 19 年度から平成 21 年度までの期間は一時的に上昇しているものの、その後は減少傾向を示している。また、核実験以前の自然平衡値としては、UNSCEAR2008 の 0.222 Bq/g 炭素⁹⁾や、井上らによる 0.228 Bq/g 炭素¹⁰⁾といった知見があるが、本調査において得られている測定値の一部は既にこれを下回る水準であることから、(公財)環境科学技術研究所が報告している令和 5 年度の大気中の C-14 比放射能 0.209 Bq/g 炭素¹¹⁾を暫定的なベースラインとし、農産物の C-14 比放射能から差し引くことで核実験起源の C-14 比放射能推定値（以下、「過剰 C-14 比放射能」という。）とした。図 11 にアクティブ試験の影響が認められなかった平成 7 年度から平成 18 年度及び平成 22 年度から令和 5 年度までの過剰 C-14 比放射能の推移を示す。また、下に示す式 1、2 を用いて過剰 C-14 比放射能の半減時間を求めると 21.1 年（標準誤差 0.67 年）となった。

$$\left(\begin{array}{l} \text{過剰 C-14 比放射能 } C_{EX} = A \times \exp(-\lambda t) \quad (\text{Bq/g 炭素}) \quad \dots \text{式 1} \\ \lambda = \ln 2 / T \quad \dots \text{式 2} \end{array} \right)$$

A: 平成 7 年度における過剰 C-14 比放射能計算値 (Bq/g 炭素) 0.0447
 λ : 過剰 C-14 の環境における減衰定数 (年) $\lambda = \ln 2 / T$
T: 過剰 C-14 の環境における半減期計算値 (年)
t: 平成 7 年度からの経過年数 (年)

表 8 農産物の C-14 比放射能 (令和 5 年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	R5 年度調査結果	(参考) H19~R4 年度
				(Bq/g 炭素)	調査結果
				(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
米	精米	千樽	9 月	0.232 ± 0.002	0.229 ~ 0.248
		室ノ久保 ^{※1}	9 月	0.227 ± 0.002	0.226 ~ 0.233
		二又	9 月	0.224 ± 0.002	0.223 ~ 0.251
		戸鎖	9 月	0.222 ± 0.002	0.225 ~ 0.255
葉菜	ハクサイ	千樽	10 月	0.224 ± 0.002	0.221 ~ 0.260
	キャベツ	睦栄 ^{※2}	10 月	0.230 ± 0.002	~
根菜・ いも類	ダイコン	出戸	9 月	0.233 ± 0.002	0.223 ~ 0.239
	パレイショ	尾駸	7 月	0.217 ± 0.002	0.223 ~ 0.244
	ナガイモ	平沼	11 月	0.221 ± 0.002	0.221 ~ 0.249

※1 平成 30 年度から調査開始。

※2 令和 5 年度から調査開始。

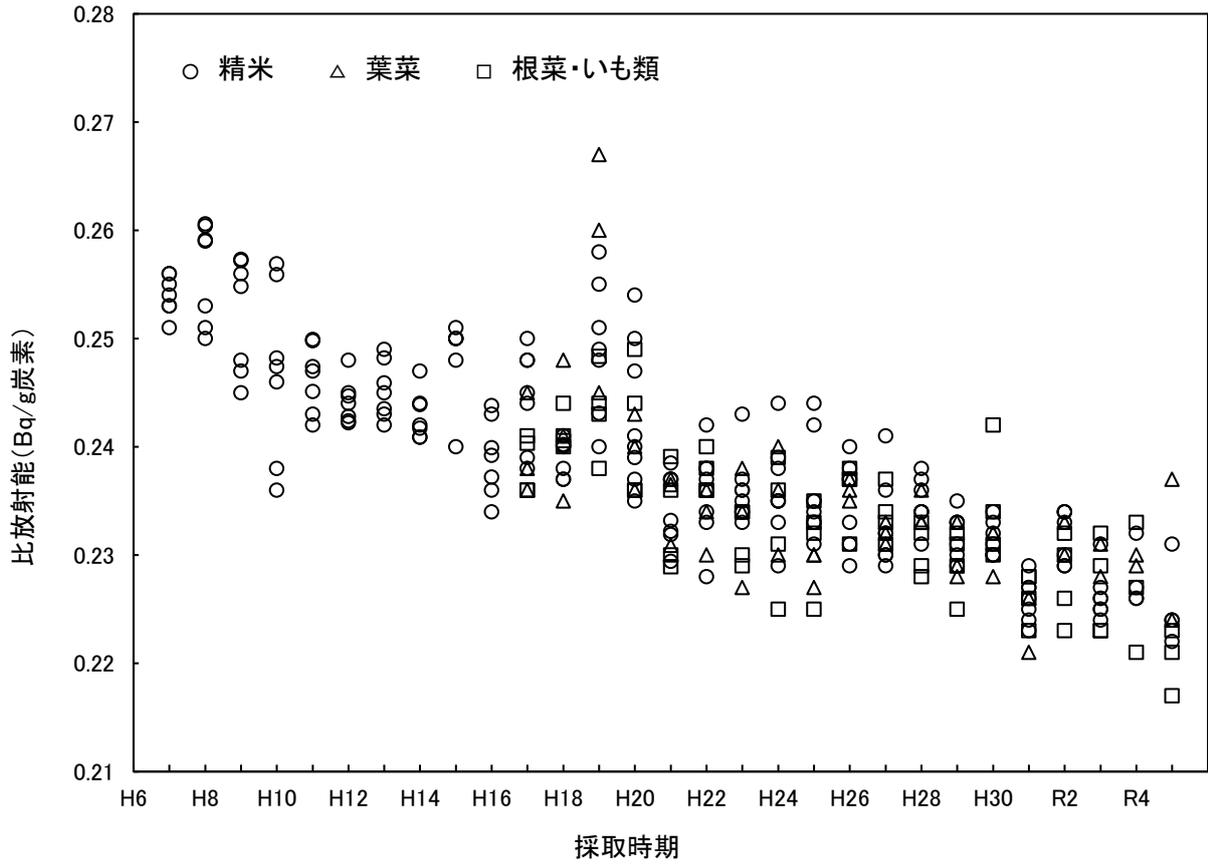


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

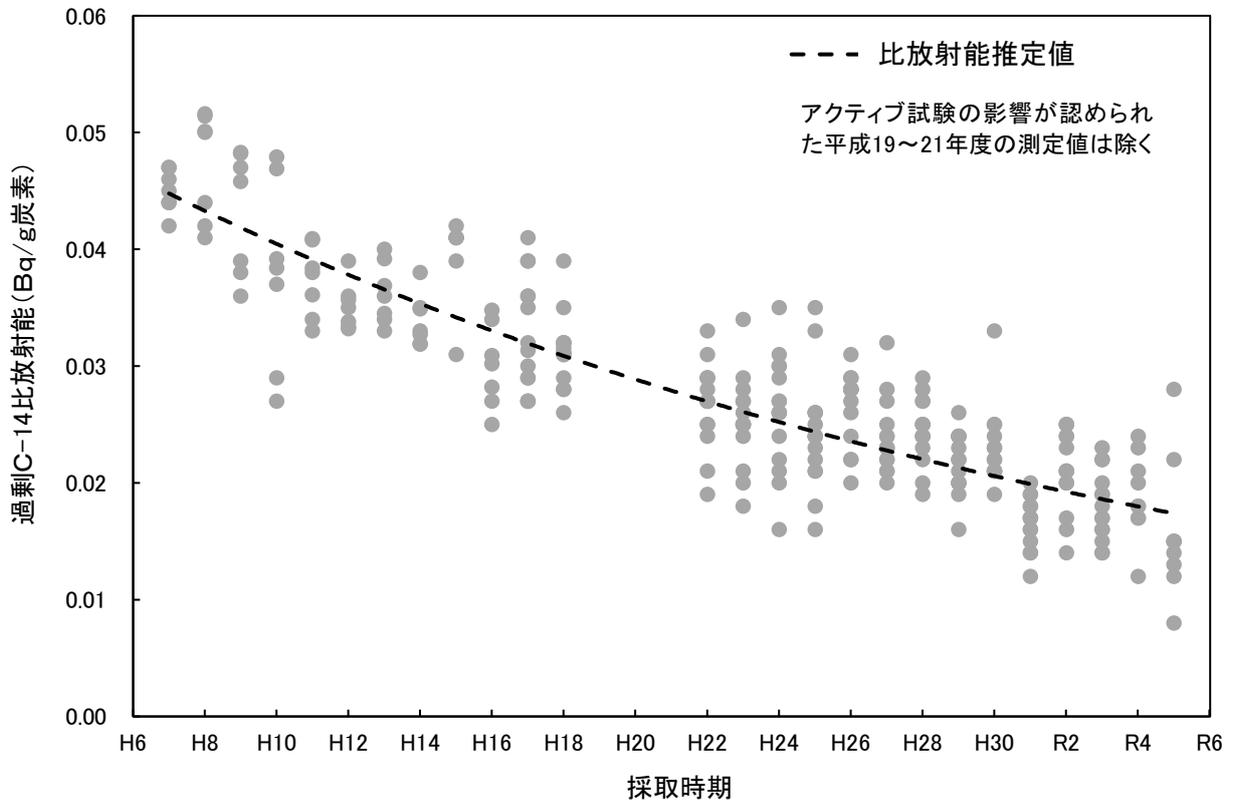


図 11 農産物における過剰 C-14 比放射能の経年変化

牛乳の C-14 比放射能の測定結果及びその経年変化を表 9 及び図 12 に示す。比放射能は 0.229 ~ 0.231 Bq/g 炭素であり、これまでの測定値と同程度であった。農産物においてアクティブ試験の影響が認められた平成 19 年度から平成 21 年度までは高めの傾向ではあったものの、その後は減少傾向を示している。

図 13 に農産物と同様に求めた牛乳の過剰 C-14 比放射能の推移を示す。過剰 C-14 比放射能の半減時間を求めると 22.4 年（標準誤差 2.4 年）であり、農産物の半減期 21.1 年に近い値となった。なお、乳牛に与えられる飼料は周辺地域で生産されたものに限らないため、牛乳と農産物の C-14 比放射能は必ずしも同じ挙動を示すものではないと考えられる。また、ベースラインとした比放射能 0.209 Bq/g 炭素は暫定的に設定した値であることから、再処理施設の本格稼働まで引き続きデータを蓄積する必要がある。

*牛乳についてのパラメータは以下のとおり。

- A : 平成 22 年度における過剰 C-14 比放射能計算値 (Bq/g 炭素) 0.0303
- λ : 過剰 C-14 の環境における減衰定数 (年)
- T : 過剰 C-14 の環境における半減期計算値 (年)
- t : 平成 22 年度からの経過年数 (年)

表 9 牛乳の C-14 比放射能（令和 5 年度）

試料名	採取地点	採取月	R5 度調査結果	(参考) H19~R4 度
			(Bq/g 炭素)	調査結果 (Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原 ^{※1}	4 月	0.231 ± 0.002	0.222 ~ 0.241
	二又	4 月	0.231 ± 0.002	0.223 ~ 0.262
	豊原	4 月	0.229 ± 0.002	0.225 ~ 0.266

※1 平成 25 年度から調査開始。

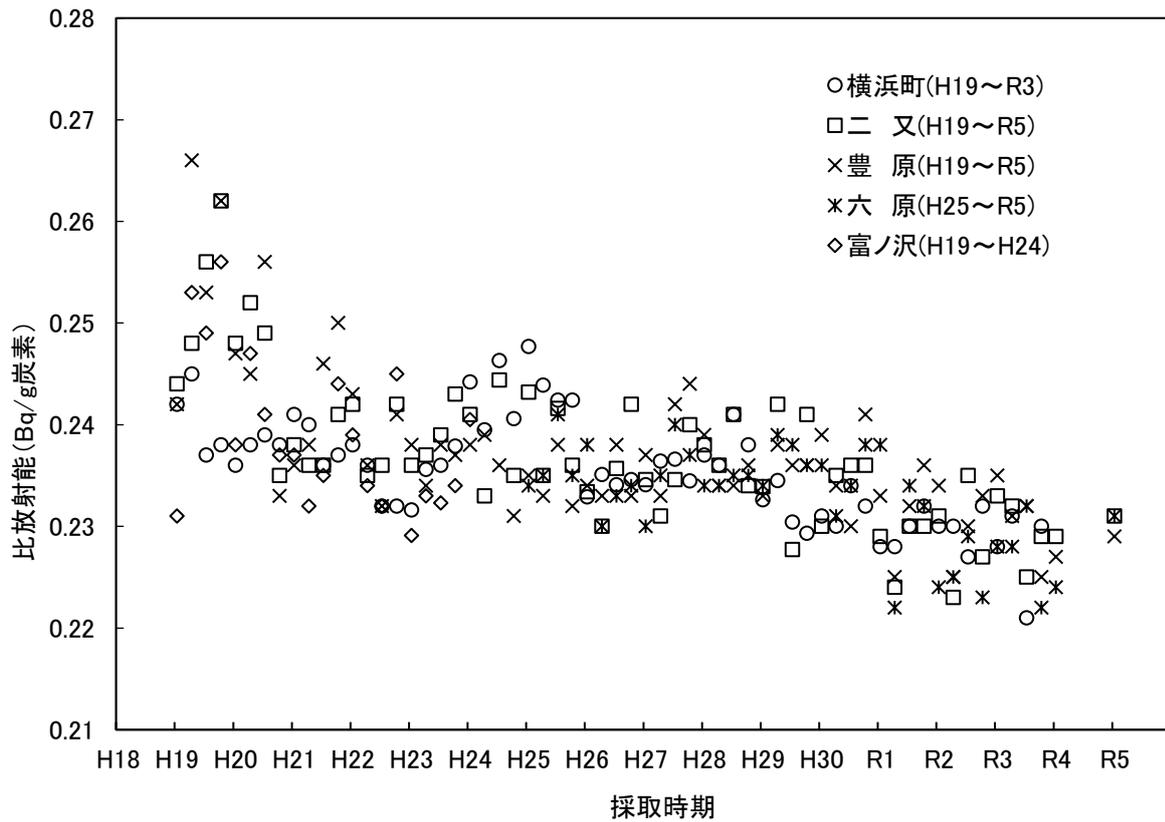


図 12 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

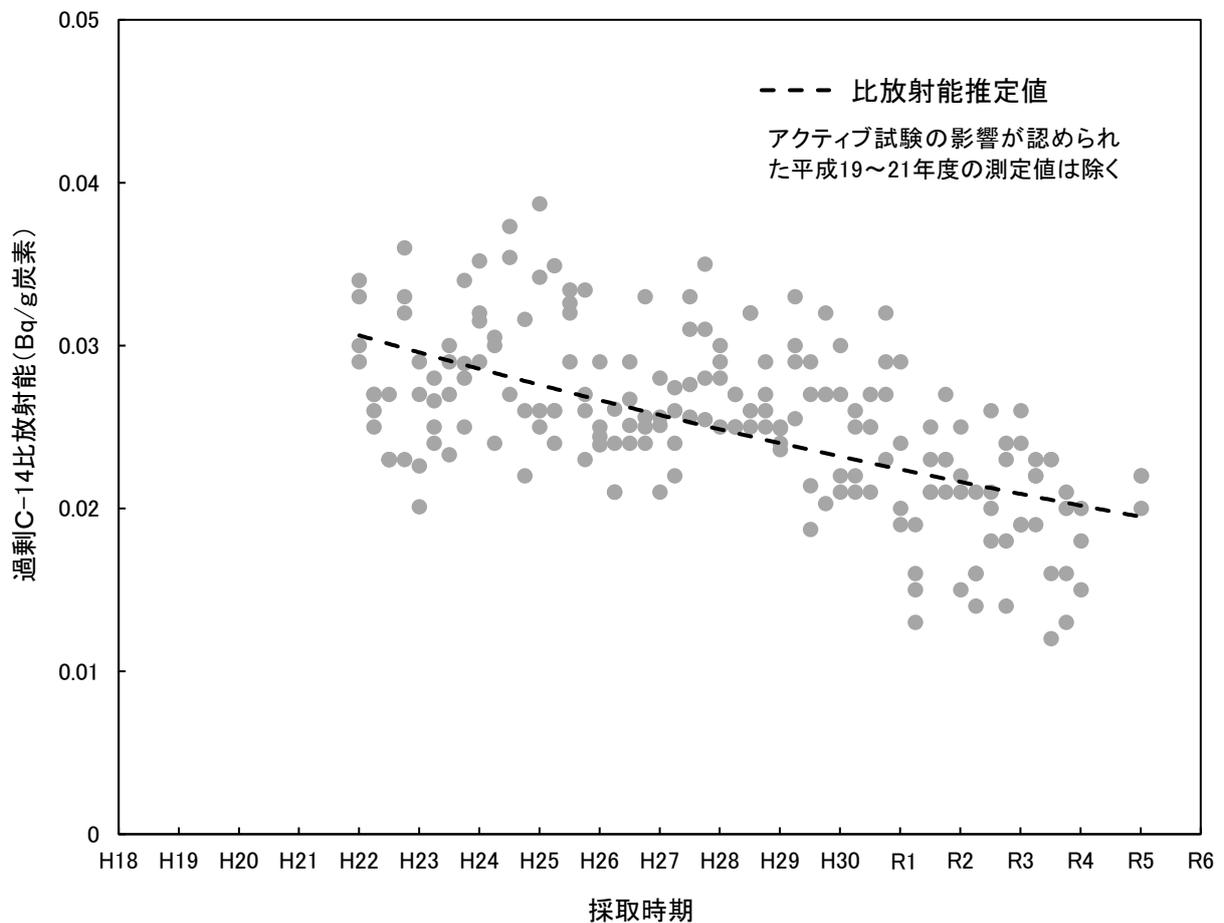


図 13 牛乳における過剰 C-14 比放射能の経年変化

4.3 I-129 及び I-131

環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比を表 10 に、その経年変化を図 12 に示す。平成 19 年度以降、全体として減少傾向が見られるが、近年は横ばいで推移している。

なお、再処理施設周辺における I-129/I-127 原子数比は、アクティブ試験前の陸圏試料で 10^{-9} ~ 10^{-8} 、水圏試料で 10^{-10} 程度であり、使用済燃料のせん断・溶解処理に伴い上昇したが、近年は試験前のバックグラウンドレベルで推移していると報告があり¹¹⁻¹³⁾、本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の I-129/I-127 原子数比は、これらと同程度であった。

I-131 は、表 11 に示すとおり、すべての試料において検出限界以下であった。

表 10 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比（令和 5 年度）

試料名	採取地点	採取月	R5 年度調査結果		(参考) H19~R4 年度調査結果	
			I-129 濃度 (Bq/kg 生)	I-129/I-127 原子数比	I-129 濃度 (Bq/kg 生)	I-129/I-127 原子数比
ハクサイ	千樽	10 月	$(5.4 \pm 0.8) \times 10^{-8}$	$(5.0 \pm 0.7) \times 10^{-9}$	4.8×10^{-8}	2.2×10^{-9}
					$\sim 1.6 \times 10^{-5}$	$\sim 2.3 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	8 月	$(2.6 \pm 0.06) \times 10^{-4}$	$(1.2 \pm 0.03) \times 10^{-10}$	8.5×10^{-5}	4.6×10^{-11}
					$\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$\sim 9.1 \times 10^{-10}$

表 11 環境試料中の I-131 濃度（令和 5 年度）

試料名	採取地点	採取月	R5 年度調査結果	(参考) H23~R4 年度調査結果
			(Bq/kg 生)	(Bq/kg 生)
ハクサイ	千樽	10 月	*	*
キャベツ	睦栄 ^{※2}	10 月	*	
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	8 月	*	*

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお、令和 5 年度の検出限界は 0.056~0.63 Bq/kg 生であった。

※2 令和 5 年度から調査開始。

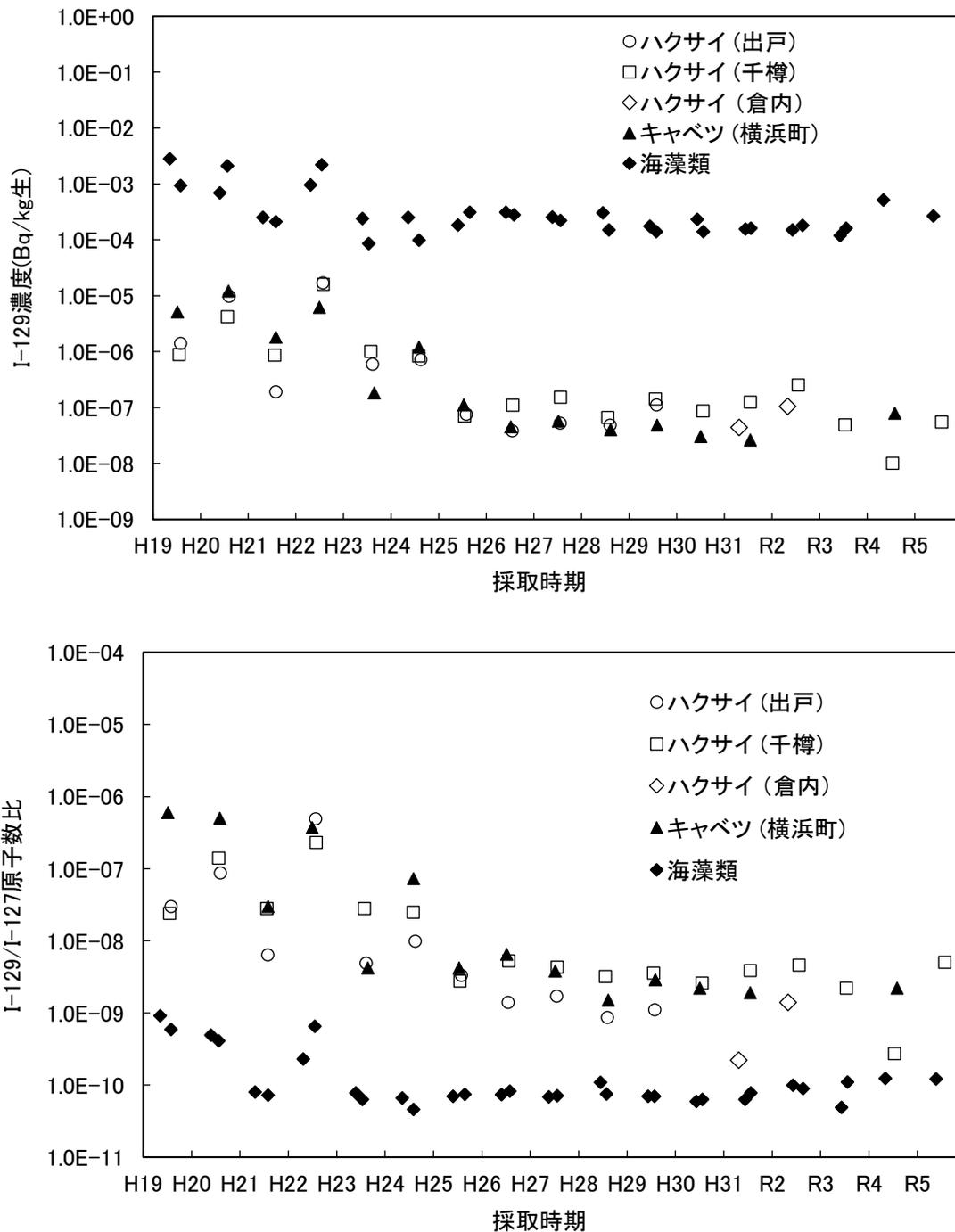


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

- 1) 陸上試料中のトリチウム濃度は、近年の大气及び雨水中トリチウム濃度と同程度であり、すべての試料において、再処理施設において行われた使用済燃料のせん断・溶解処理の影響が認められた平成 19 及び 20 年度より低いレベルであった。また、海洋試料である魚類及び海藻類中のトリチウム濃度は、すべての試料において検出限界以下であった。
- 2) C-14 については、各試料の測定値から暫定的なベースラインを差し引いて求めた過剰 C-14 比放射能の半減時間を計算した結果、農産物と牛乳で近い値となった。

3) I-129 については、すべての試料において I-129/I-127 原子数比がアクティブ試験前のバックグラウンドレベルと同程度であった。また、平成 19 年度以降減少傾向にあり、近年は横ばいで推移している。

I-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

文 献

- 1) 青森県：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計画（令和 2 年 3 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（令和 5 年）
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（平成 5 年）
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法（平成 16 年）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 4 放射性ヨウ素分析法（平成 8 年改訂）
- 6) (国研) 量子科学技術研究開発機構量子生命・医学部門放射線医学研究所
：環境中のトリチウム測定調査データベース
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html>（最終アクセス：平成 29 年 9 月 15 日）
- 7) (公財)日本分析センター：環境放射線データベース
<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/>（最終アクセス：令和 7 年 2 月 17 日）
- 8) N. Akata, D. Anderson, H. kakiuchi, R. Yamada, H. Hasegawa and S. Ueda : Tissue-free water tritium and non-exchangeable organically bound tritium concentrations in fish near coastline during and after operation of Japan's first nuclear fuel reprocessing facility, *Science of the Total Environment*, 947(2024)174404
- 9) 原子放射線の影響に関する国連科学委員会 放射線の線源とその影響 UNSCEAR2008 年報告書(2008)
- 10) Y. Inoue and T. Iwakura : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiation Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 11) (公財)環境科学技術研究所 令和 5 年度排出放射性物質による環境影響に関する調査（海域部分を除く）報告書（令和 6 年 3 月）
- 12) Y. Satoh, H. kakiuchi, S. Ueda, N. Akata and S. Hisamatsu : Concentrations of iodine-129 in livestock, agricultural, and fishery products around spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, Japan, during and after its test operation, *Environmental Monitoring and Assessment*, 191:61(2019)
- 13) 植田真司, 長谷川英尚, 柿内秀樹, 大塚良仁, 阿部康一, 赤田尚史, 落合伸也 : 六ヶ所再処理工場のアクティブ試験時における環境放射能 -放出された放射性物質の環境への影響について-, *RADIOISOTOPES*, 73, 81-99(2024)

Ⅱ 学 会 发 表 等 要 旨

α β 同時計数機構付きダストモニタによる 施設起因 α ・ β 放射能濃度の推定

大坂直人

第 5 回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会,
大阪府吹田市, 2024. 12. 16-12. 18

青森県では、県内原子力施設からの予期しない放射性物質の放出の早期検出を目的として、連続集じん・連続測定方式の α β 同時計数機構付きダストモニタを施設周辺 4 地点に設置し、そのうち 3 地点では令和 5 年度から運用を開始している。

当該ダストモニタの運用に当たり、施設寄与弁別後のダストモニタ測定値（以下「施設起因 α ・ β 放射能濃度」という。）を監視する必要があることから、過去の報告（外川ら,2019）を参考に、 α β 同時計数率を用いて、集じん開始 1 時間経過後からの任意の正 10 分において施設起因 α ・ β 放射能濃度を推定する方法を考案し、施設寄与の弁別性能を評価した。

県内原子力施設からの影響が認められなかった令和 5 年度の測定データを用いて、施設起因 α ・ β 放射能濃度を推定した結果、考案した推定方法は、国が求める確認開始設定値である α : 1 Bq m^{-3} 、 β : 5 Bq m^{-3} を運用する上で支障はないものと考えられた。

αβ同時計数機構付きダストモニタによる施設起因α・β放射能濃度の推定

青森県原子力センター 大坂直人



はじめに

青森県では、県内原子力施設（東北電力(株)東通原子力発電所、日本原燃(株)六ヶ所再処理工場）からの予期しない放射性物質の放出の早期検出を目的として、連続集じん・連続測定方式のαβ同時計数機構付きダストモニタを施設周辺4地点に設置し、そのうち図1に示す東通原子力発電所周辺の3地点（小田野沢、老部、近川）では、令和5年度から運用を開始している。

当該ダストモニタの運用に当たり、施設寄与と弁別後のダストモニタ測定値（以下「施設起因α・β放射能濃度」という。）を監視する必要があることから、今般、施設起因α・β放射能濃度を推定し、施設寄与の弁別性能を評価した。



図1 測定地点図（東通原子力発電所周辺3地点）

ダストモニタの諸元及び運用

- ・測定項目：全α計数率、全β計数率、αβ同時計数率[※]
(coinゲート：0～400 μs)
- ・検出器：50 mmφ ZnS(Ag)+プラスチックシンチレーション検出器
- ・集じん方式：ろ紙間欠自動移動方式
- ・集じんろ紙：長尺ろ紙（HE-40T）
- ・集じん流量：約180 L・min⁻¹
- ・集じん時間：24時間（午前9時にろ紙移動）
- ・吸引口位置：地上1.5～2.0 m



図2 集じん・検出機構

※：αβ同時計数率は、β線を検出した直後（～数百μs）にα線を検出する現象の頻度を表す。
天然放射性核種 Rn-222 の壊変生成物である Bi-214（半減期：約20分）のβ壊変と、Bi-214 の壊変生成物である Po-214（半減期：約164 μs）のα壊変はほぼ同時に計数されるため（図3）、施設起因のα線・β線放出核種の影響がない場合、天然放射性物質による変動αβ同時計数率と、実測α線・β線計数率には強い正の相関がある。^[1]

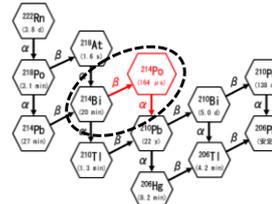


図3 ラドンの壊変図

施設起因α・β放射能濃度の推定方法

ダストモニタについて、1時間の連続採取及び連続測定等により、α：1 Bq m⁻³程度、β：5 Bq m⁻³程度の施設起因の人工放射性物質を測定できることを国が求めているため^[2]、過去の報告（外川ら,2019）^[3]を参考に、集じん開始1時間経過後からの任意の正10分において施設起因α・β放射能濃度を推定する方法を次式のとおり考案した。（下線部のαをβに置き換えることで施設起因β放射能濃度も推定。）

$$\text{施設起因}\alpha\text{放射能濃度}[\text{Bq m}^{-3}] = (\underline{\Delta\alpha} - \alpha \cdot \underline{\Delta\alpha\beta}) / \underline{\Delta V} / \text{計数効率} / \text{捕集効率}$$

ただし、

$\underline{\Delta\alpha}$ ：1時間前からの全α計数率（10分間平均値）の増分[s⁻¹]

$\underline{\Delta\alpha\beta}$ ：1時間前からのαβ同時計数率（10分間平均値）の増分[s⁻¹]

$\underline{\Delta V}$ ：1時間前からの積算流量の増分[m³]

a：施設寄与が認められない期間における全α計数率（1時間平均値）を目的変数、αβ同時計数率（1時間平均値）を説明変数とする単回帰式の傾き

施設寄与の弁別性能の評価対象

- ・対象地点：小田野沢、老部及び近川の3地点
- ・対象期間：2023年4月3日10時00分～2024年4月1日9時00分（令和5年度分）
（県内原子力施設からの影響が認められなかった期間）

施設起因α・β放射能濃度の推定結果

施設起因α・β放射能濃度の推定にあたっては、9時の自動ろ紙移動後から翌9時まで24時間連続で採取できた場合のデータのみを使用した。

- 図4に示すとおり、全α・全β計数率（1時間平均値）とαβ同時計数率（1時間平均値）との間には強い正の相関が認められた。（3地点とも同様の傾向。）
- 図5に示すとおり、小田野沢の施設起因α放射能濃度の度数分布はほぼ0 Bq m⁻³を中心に左右対称な山型だが、正規Q-Qプロットは非直線形であった。（3地点とも同様の傾向。施設起因β放射能濃度についても同様の傾向。）
- 図6及び表1に示すとおり、施設起因α放射能濃度については、小田野沢及び近川で6～9月に国が求める確認開始設定値1 Bq m⁻³を上回ることがあったが、そのデータ数の割合は0.004～0.015%と極めて低かった。一方、施設起因β放射能濃度については、1年を通して国が求める確認開始設定値5 Bq m⁻³を十分に下回っていた。

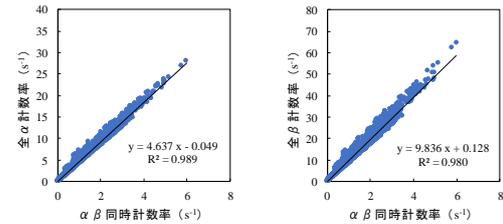


図4 全α・全β計数率とαβ同時計数率の関係（小田野沢）

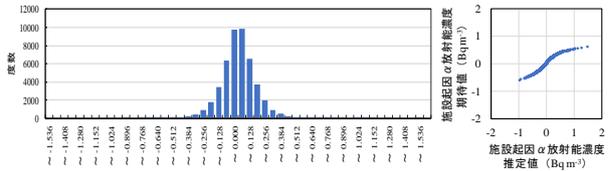


図5 施設起因α放射能濃度の度数分布、正規Q-Qプロット（小田野沢）

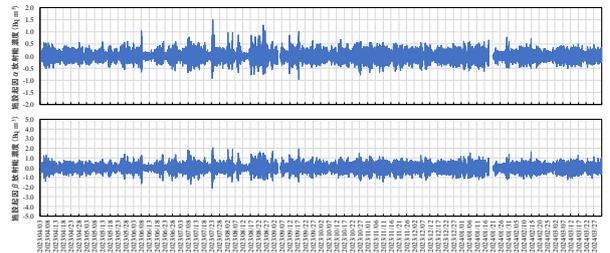


図6 施設起因α・β放射能濃度の推移（小田野沢）

表1 推定した施設起因α・β放射能濃度の統計処理結果

【施設起因α放射能濃度】	小田野沢	老部	近川
データ数	46920	46782	46920
平均 (Bq m ⁻³)	0.0050	0.0026	0.0041
最大 (Bq m ⁻³)	1.5	0.66	1.3
最小 (Bq m ⁻³)	-0.95	-0.66	-1.3
標準偏差 (Bq m ⁻³)	0.14	0.11	0.14
1 Bq m⁻³ 超えデータ数	7	0	2
1 Bq m ⁻³ 超えデータ割合	0.015%	0.000%	0.004%
【施設起因β放射能濃度】	小田野沢	老部	近川
データ数	46920	46782	46920
平均 (Bq m ⁻³)	-0.00046	-0.0012	-0.00065
最大 (Bq m ⁻³)	2.1	1.4	2.0
最小 (Bq m ⁻³)	-2.1	-1.9	-2.4
標準偏差 (Bq m ⁻³)	0.28	0.26	0.31
5 Bq m⁻³ 超えデータ数	0	0	0
5 Bq m ⁻³ 超えデータ割合	0.000%	0.000%	0.000%

考察

県内原子力施設からの影響が認められなかった令和5年度分の測定データを用いて、施設起因α・β放射能濃度を推定した結果、前述の手法は、国が求める確認開始設定値であるα：1 Bq m⁻³、β：5 Bq m⁻³を運用する上で支障はないものと考えられた。

参考文献

- [1] 放射能測定法シリーズNo.36「大気中放射性物質測定法」（令和4年6月制定、原子力規制庁監視情報課）
- [2] 「平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）」（令和3年12月21日改訂、原子力規制庁監視情報課）
- [3] 外川洋一、山口英策、藤澤浩、佐々木健一「ダストモニタにおけるαβ同時計数機能を用いた推定人工放射能濃度の算出方法について」（第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会）

Ⅲ 令和6年度調査研究事業報告

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 — 令和 6 年度調査内容 —

阿部 真之 檜山 宝孝 神 俊雄
幸 進* 天間 陽斗* 大山 一寿*

1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、その運転に伴い、Kr-85、トリチウム (H-3)、C-14 及び I-129 などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が放出される。青森県では、「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)」において、測定結果に基づく線量の推定・評価方法について基本的な考え方を示しており、この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、日本原燃株式会社と共同で調査研究を実施している。

この一環として、平成 19 年度から環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を、平成 20 年度からは I-129 と同様に施設から放出される核種として I-131 について調査を開始している。また、有機結合型トリチウム (OBT) について、調査開始当初は組織自由水トリチウム (TFWT) と容易に交換する形態の OBT (交換型 OBT) を含む全 OBT を対象としていたが、平成 21 年度から、より詳細な線量評価手法の検討のため、試験的に魚類について非交換型 OBT を追加実施し、平成 26 年度からは OBT をすべて非交換型 OBT として調査を行っている。さらに、平成 27 年度からは海藻の TFWT 及び OBT を追加し実施している。

令和 5 年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

2. 令和 6 年度調査内容

令和 6 年度の調査内容等を表 1 に示す。令和 6 年度は、令和 5 年度と同じ内容であり、その調査結果については令和 7 年度にとりまとめることとしている。

なお、令和 7 年度以降については、六ヶ所再処理工場の操業状況を踏まえ、再度調査内容等を検討する。

* : 日本原燃株式会社

表1 令和6年度の調査内容等

試料	実施者	調査地点	頻度 (回/年)	対象核種				
				TFWT	H-3 非交換型 OBT	C-14	I-129	I-131
牛乳 (原乳)	県	二又	1	○	—	○	—	—
	事業者	六原	1	○	○	○	—	—
	事業者	豊原	1	○	○	○	—	—
精米	県	室ノ久保	1	—	—	○	—	—
	県	千樽	1	—	—	○	—	—
	事業者	二又	1	—	○	○	—	—
	事業者	戸鎖	1	—	○	○	—	—
ハクサイ	事業者	千樽	1	○	○	○	○	○
ダイコン	県	出戸	1	○	—	○	—	—
ナガイモ	事業者	平沼	1	○	○	○	—	—
キャベツ	県	睦栄	1	○	—	○	—	○
バレイショ	事業者	尾駁	1	○	○	○	—	—
魚類 (ヒラメ等)	県	六ヶ所村前面海域	1	○	—	—	—	—
	事業者	六ヶ所村前面海域	1	○	○	—	—	—
海藻類 (コンブ)	事業者	六ヶ所村前面海域	1	○	○	—	○	○

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

大山 勝 葛西邦生*

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構想」及び平成 15 年度から「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」に基づき、環境放射線等の調査（以下、「環境放射線モニタリング」という。）を実施している。その一環として、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、海底土、湖底土中のプルトニウムの分析をイオン交換法を適用した化学分離で行い、測定を α 線スペクトロメトリにより実施している。 α 線スペクトロメトリにおいては、Pu-239 と Pu-240 が放出するそれぞれの α 線のエネルギーがほぼ等しく、区別して定量できないことから両核種の合計量として定量する。一方、環境中における Pu-239 と Pu-240 を弁別して定量し、その原子数比（以下、「Pu-240/239」という。）を調べることは起源の推定に有効である。環境中における Pu-240/239 は世界平均で 0.176、日本平均で 0.173 であるとの知見があり²⁾、大気圏内核実験や高濃度の Pu-239 が含まれるプルトニウム爆弾の影響（約 0.037~0.065²⁾）、発電の際に長時間中性子場に置かれることにより Pu-240 量が多く生成される原子力発電所や再処理施設等の影響（環境試料で検出された Pu-240/239 は約 0.21~0.4²⁾）によるものである。Pu-239 と Pu-240 を弁別して定量する方法としては、緊急時における分析法として採用されている ICP 質量分析法²⁾がある。

本県では平成 23 年度まで、日本原燃株式会社六ヶ所再処理施設（以下、「再処理施設」という。）からの影響のバックグラウンドレベルの把握を目的に、平成元年度から平成 18 年度までに採取した表土、海底土、湖底土を対象として、ICP 質量分析法により Pu-239 及び Pu-240 の濃度並びに Pu-240/239 を調査した^{3~7)}。平成 23 年度までに行った調査では、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」²⁾（以下、「迅速分析法」という。）に準拠して硝酸とフッ化水素酸の混合溶液による酸分解・浸出を行った。

平成 18 年から再処理施設において、使用済燃料を用いた総合試験であるアクティブ試験が開始され、平成 20 年 10 月までに使用済燃料のせん断・溶解処理が行われた。同施設からの α 線放出核種放出実績はないが、現在も放射性液体廃棄物及び放射性気体廃棄物の放出が継続している。

本調査では、再処理施設の本格操業を見据えた現状のバックグラウンドレベルの把握を目的として、平成 19 年度以降に採取した表土、海底土、湖底土を対象とした Pu-239 及び Pu-240 濃度並びに Pu-240/239 の調査を行う。迅速分析法では密封容器を用いてマイクロウェーブ分解装置で加熱するが、これに用いる容器容量の制限から供試量を増やすことは困難であるため、バックグラウンドレベルの Pu-240/239 を評価することは困難であった。令和 5 年度は酸浸出工程を再検討し、供試量を増やすことが容易な環境放射線モニタリングで用いている常圧下での硝酸抽出を採用した。また、前回調査時から ICP 質量分析装置を更新していることから、測定条件を再検討した⁸⁾。令和 6 年度は前年度に検討した条件を基に、酸抽出前に行う試料中有機物の加熱分解時の温度の影響を確認した上で、標準試料及び令和 4 年度及び令和 5 年度に採取したモニタリング対象試料（表土、海底土、湖底土）のプルトニウム同位体調査を行った。

*：現青森県危機管理局原子力安全対策課

2. 調査方法

2.1 対象試料

標準試料として、IAEA より頒布されている IAEA-384 RADIONUCLIDES IN FANGATAUFA LAGOON SEDIMENT (Pu-(239+240)の認証値 108 ± 13 Bq/kg) 及び IAEA-385 NATURAL AND ARTIFICIAL RADIONUCLIDES IN SEDIMENT FROM THE IRISH SEA (Pu-(239+240)の認証値 2.98 ± 0.26 Bq/kg) を用い、40°Cで 24 時間以上乾燥して分析に供した。認証値は、各国の分析機関 (IAEA-384 : 44 機関、 IAEA-385 : 41 機関) から報告された分析値の中で値付けに採用された値の中央値とその 95%信頼区間を表す。

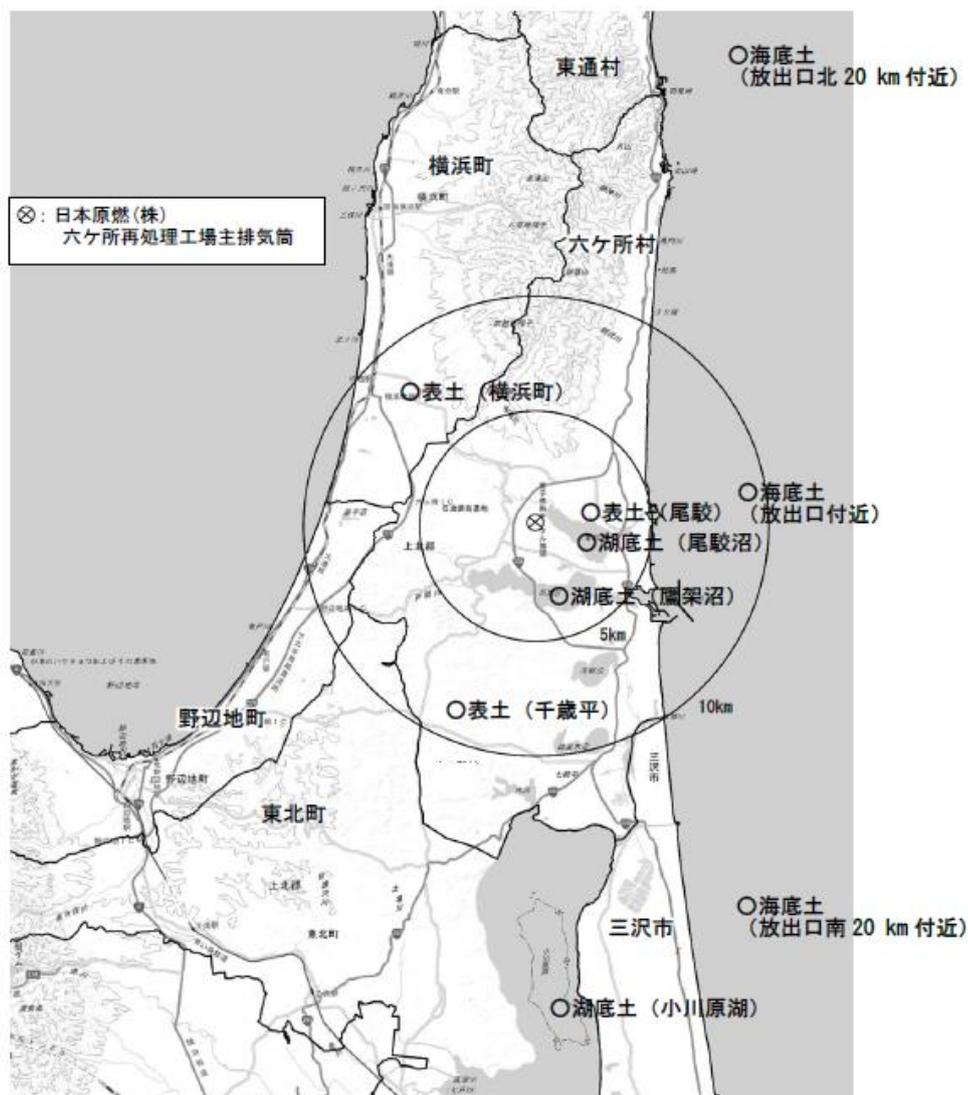
環境試料としては、令和 4 年度及び令和 5 年度に採取したモニタリング対象試料の表土 (尾駮、千歳平、横浜町)、海底土 (放出口付近、放出口北 20 km 地点、放出口南 20 km 地点)、湖底土 (尾駮沼、鷹架沼、小川原湖) を 105°C乾燥後、2 mm ふるいを通過したものを微粉碎して分析に供した。環境試料の調査地点図を図 1 に示す。

2.2 試薬等

使用した主な試薬等を表 1 に示す。

表 1 使用した試薬・器具等

名称	規格等	製造元
Pu-242 標準溶液	25.58 Bq/g (基準日 1989.12.18)	National Institute of Standards and Technology
硝酸	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
硝酸	精密分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
塩酸	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
酢酸	精密分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
水酸化ナトリウム	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
亜硝酸ナトリウム	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
よう化アンモニウム	和光特級	富士フイルム和光純薬 (株)
強塩基性陰イオン交換樹脂	No.6、架橋度 8 % 100-200 メッシュ、Cl 形	富士フイルム和光純薬 (株)



地理院タイルに測定地点等を追記して掲載
<https://maps.gsi.go.jp/development/ichiran.html>

図1 環境試料の調査地点図（表土、海底土、湖底土）

2.3 分析方法

本調査の分析フローを図2に示す。加熱条件は2.5標準試料及び環境試料表土の加熱温度の妥当性の確認で検討した。

試料約 50 g を 500 mL ビーカーに秤取
 電気炉で昇温に 3 時間、500 °C で 4 時間加熱、放冷
 (または昇温に 3 時間、450 °C で 6 時間加熱、放冷 ※標準試料及び表土)

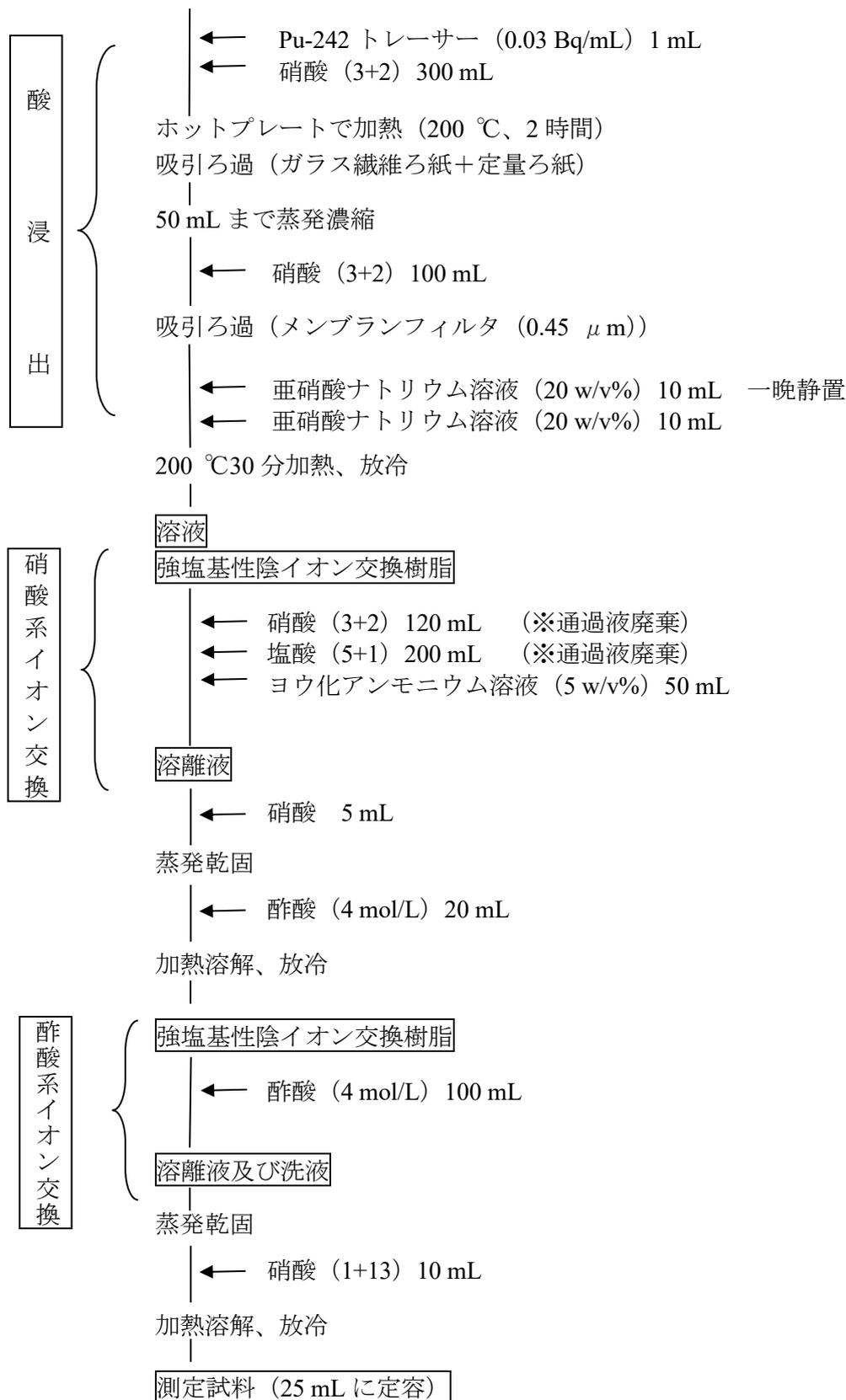


図 2 分析フロー

2.4 測定方法

ICP 質量分析はアジレント・テクノロジー株式会社製 Agilent8900 を用いた。測定条件は表 2 のとおりである。

質量分析では、信号は質量数と電荷の比（以下、「 m/z 」という。）として得られる。定量は、 $m/z=239$ 及び 240 の強度と $m/z=242$ の強度の比から、Pu-239 及び Pu-240 を定量する Pu-242 トレーサー法で行った。

表 2 測定条件

項目	設定値
RF 出力	1550 W
プラズマガス流量	15 L/min
ネブライザーガス流量	1.07 L/min
補助ガス流量	0.9 L/min
スプレーチャンバー温度	2°C
サンプリング位置	8 mm
軸方向加速	0 V
スキャンタイプ	シングル四重極
積分時間	10 秒
スイープ回数	10 回
繰返し回数	10 回

2.5 標準試料及び環境試料の表土の加熱温度の妥当性の確認

環境放射線モニタリングでは放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」¹⁾（以下、「プルトニウム分析法」という。）に準拠して、硝酸抽出前の電気炉による土壌の加熱処理温度を 500°C で行っているが、加熱温度が 450°C を超えると、ケイ酸塩などの難溶性物質が形成され、Pu の抽出率が低下するとの知見がある²⁾ことから、本調査においては標準試料及び環境試料の表土を対象とし、加熱処理温度までの昇温時間はいずれも 3 時間とし、500 °C で 4 時間加熱処理した場合と、450 °C で 6 時間加熱処理した場合とで図 2 の分析フローに沿って処理しプルトニウムの抽出量を比較することとした。

標準試料については加熱処理温度（500 °C 及び 450 °C）を変えた場合の試料量当たりの抽出量を確認し、Pu-(239+240)濃度の認証値と比較検討をした。環境試料の表土について加熱処理温度を変えた場合の Pu 抽出率の差を確認するため、Pu-239 濃度及び Pu-240 濃度それぞれの 450°C 加熱時の濃度を 500°C 加熱時の濃度で除して濃度比(450°C/500°C)を算出し、濃度比の平均値及び標準偏差を求めた。

2.6 環境試料の分析

加熱温度 500 °C で図 2 の分析フローに沿って処理してプルトニウムを抽出し、Pu-240/239 及び環境放射線モニタリングの Pu-(239+240)濃度について比較検討した。

3. 結果及び考察

標準試料の測定結果を表 3、環境試料の測定結果を表 4～6 に示す。

3.1 標準試料及び環境試料の表土の加熱温度の妥当性の確認

表 3 (抜粋) に示すとおり、本調査で得られた IAEA-384 中 Pu-(239+240)濃度は認証値と 95%信頼区間の範囲で一致した。IAEA-385 中 Pu-(239+240)濃度は 95%信頼区間の範囲を下回ったが、対象試料の性状や分析方法の違いによるものと考えられる。本調査で得られた Pu-240/239 は IAEA-384、IAEA-385 いずれも認証値と 95%信頼区間の範囲で一致しており、Pu-240/239 から施設影響を評価する目的上は問題ないと考えられる。

表 3 (抜粋) 標準試料の測定結果

標準試料	抽出前の 加熱温度	本調査	IAEA 認証値	本調査	IAEA 認証値
		Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240/239 (原子数比)	Pu-240/239 (原子数比)
IAEA-384	500°C	106.7 ± 2.2	108 ± 13	0.0493 ± 0.0032	0.0497 ± 0.0018
	450°C	109.5 ± 2.3		0.0489 ± 0.0032	
IAEA-385	500°C	2.45 ± 0.041	2.98 ± 0.26	0.178 ± 0.0090	0.168 ± 0.016
	450°C	2.53 ± 0.042		0.175 ± 0.0089	

・本装置の誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差
 ・IAEA 認証値の誤差は 95%信頼区間

表土の Pu-239(450°C/500°C)濃度比を図 3、Pu-240(450°C/500°C)濃度比を図 4 に示す。6 試料の Pu-239(450°C/500°C)濃度比の平均は 1.04 ± 0.06 、Pu-240(450°C/500°C)濃度比の平均は 1.00 ± 0.06 であった。濃度比は標準偏差を考慮すればおおむね 1 であり、450°Cと 500°Cで Pu 抽出量に明確な差は認められないことから、本調査ではプルトニウム分析法に準拠し、加熱温度を 500°Cとして以降の分析を行うこととした。なお本調査で得られた標準試料及び表土中 Pu-(239+240)濃度の結果が Wang ら⁹⁾の結果と傾向が異なった理由として、対象試料、供試量、昇温時間が異なるためケイ酸塩などの難溶性物質が生じにくかったこと等の要因が考えられる。

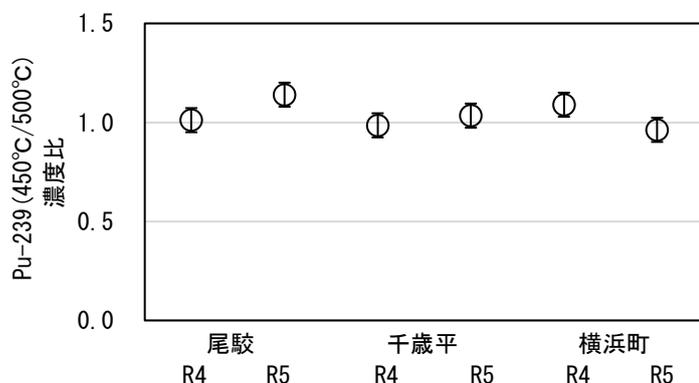


図 3 表土の Pu-239 (450°C/500°C) 濃度比

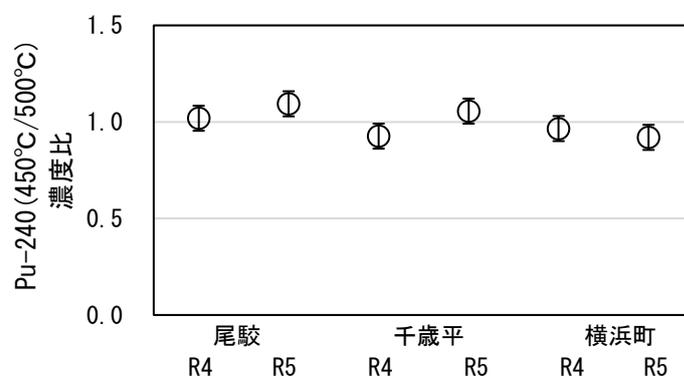


図 4 表土の Pu-240 (450°C/500°C) 濃度比

3.2 環境試料の測定結果

表土の Pu-240/239 を図 5 に、本調査と環境放射線モニタリングの Pu-(239+240)濃度の関係を図 6 に示す。

表土の Pu-240/239 は 0.146~0.243 であり、グローバルフォールアウト由来の日本平均 0.173²⁾ と比較すると千歳平の値が高い。千歳平の Pu-240/239 及び Pu-(239+240)濃度が他地点と異なる理由は明確でないが、日本周辺海洋における海底土の Pu-240/239 は 0.236 ± 0.013 との知見¹⁰⁾がある。同地点は公園であり、海砂等を含む客土により造成された可能性も考えられる。

本調査では今後他年度の試料の分析を継続して進め、Pu-240/239 の経年変化を把握する。なお、環境放射線モニタリングにおいて、当該地点の Pu-(239+240)測定値に県内原子力施設の影響は認められていない。

本調査と環境放射線モニタリングで得られた表土中 Pu-(239+240)濃度には強い相関が認められることから、モニタリング結果の評価にあたり十分参考とすることができると考えられる。

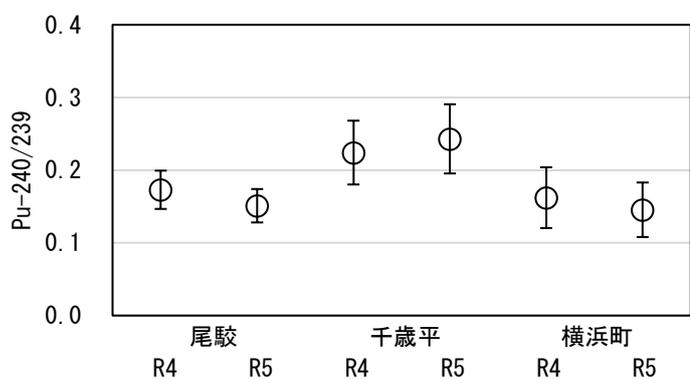


図 5 表土 3 地点における令和 4 年度及び令和 5 年度の Pu-240/239

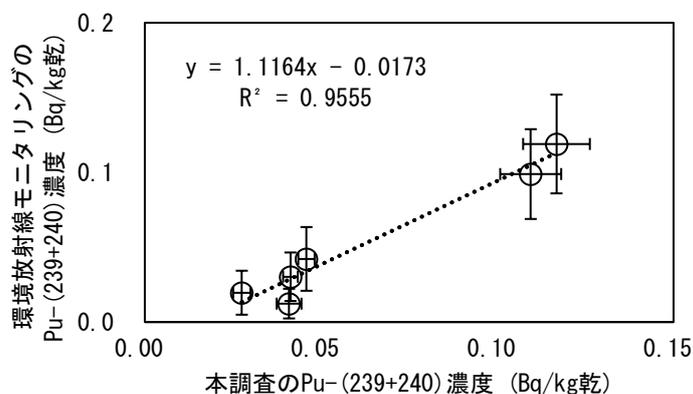


図 6 表土の環境放射線モニタリングと本調査の Pu-(239+240)濃度の関係

海底土の Pu-240/239 を図 7、本調査と環境放射線モニタリングの Pu-(239+240)濃度の関係を図 8 に示す。

海底土の Pu-240/239 は 0.243~0.257 であり、日本周辺海洋における海底土の Pu-240/239 調査¹⁰⁾でえられた値 0.236 ± 0.013 と同程度であった。海底土 Pu-240/239 が陸域におけるグローバルフォールアウト由来の値よりも高い値であるのは、マーシャル諸島沖の核実験に由来すると報告¹¹⁻¹²⁾されており、本調査の結果も同様の理由で高いと考えられる。

本調査と環境放射線モニタリングで得られた海底土中 Pu-(239+240)濃度には強い相関が認められることから、モニタリング結果の評価にあたり十分参考とすることができると考えられる。

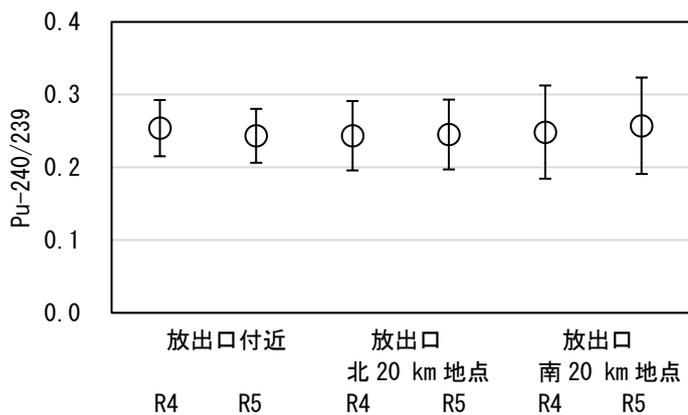


図7 海底土 3 地点における令和 4 年度及び令和 5 年度の Pu-240/239

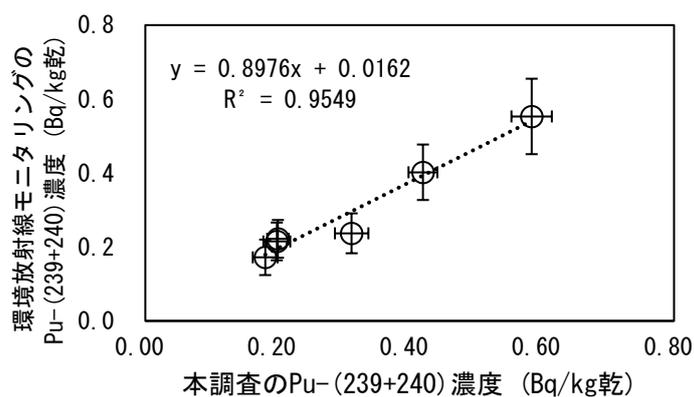


図8 海底土の環境放射線モニタリングと本調査の Pu-(239+240) 濃度の関係

湖底土の Pu-240/239 を図 9、本調査と環境放射線モニタリングの Pu-(239+240)濃度の関係を図 10 に示す。

湖底土の Pu-240/239 は 0.161~0.193 であり、グローバルフォールアウト由来の日本平均 0.173 と同程度であった。

本調査と環境放射線モニタリングで得られた湖底土中 Pu-(239+240)濃度には強い相関が認められることから、モニタリング結果の評価にあたり十分参考とすることができると考えられる。

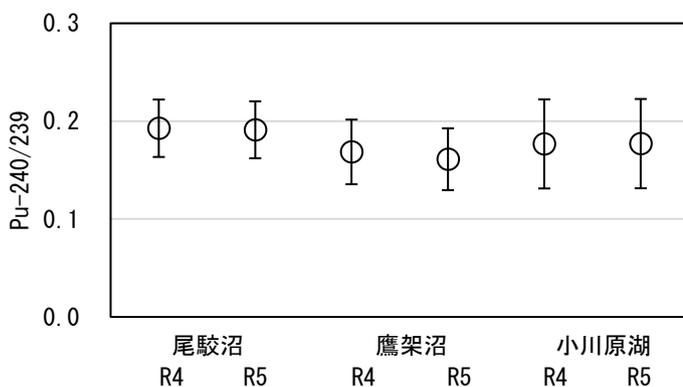


図9 湖底土 3 地点における令和 4 年度及び令和 5 年度の Pu-240/239

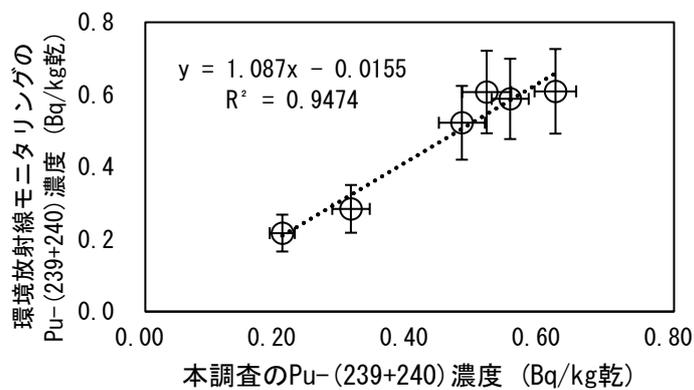


図10 湖底土の環境放射線モニタリングと本調査の Pu-(239+240) 濃度の関係

4. まとめ

- 1) 本調査で得られた IAEA-384 中 Pu-(239+240)濃度は認証値と 95%信頼区間の範囲で一致した。IAEA-385 中 Pu-(239+240)濃度は 95%信頼区間の範囲を下回ったが、対象試料の性状や分析方法の違いによるものと考えられる。
- 2) 本調査で得られた Pu-240/239 は IAEA-384、IAEA-385 いずれも認証値と 95%信頼区間の範囲で一致しており、Pu-240/239 から施設影響を評価する目的上は問題ないと考えられる。
- 3) 本調査で得られた標準試料及び表土中 Pu-(239+240)濃度の結果から、450°Cと 500°Cで Pu 抽出量に明確な差は認められないことから、本調査の環境試料では加熱温度を 500°Cとして分析を行うこととした。
- 4) 本調査と環境放射線モニタリングで得られた環境試料中 Pu-(239+240)濃度には強い相関が認められることから、モニタリング結果の評価にあたり十分参考とすることができると考えられる。また、環境試料中 Pu-240/239 から施設寄与の評価が可能と考えられる。
- 5) 令和 7 年度以降は、平成 19 年度以降に採取した他年度の土試料及び環境放射線モニタリング調査で定量下限値 (0.002 Bq/kg 生) を上回った生物試料を対象としたプルトニウム同位体調査を行い、再処理施設の操業を見据え、バックグラウンドレベルの把握を行う。

文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」(平成 2 年)
- 2) 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)
- 3) 工藤俊明：青森県原子力センター所報,第 2 号,60-61(2007)
- 4) 工藤俊明：青森県原子力センター所報,第 3 号,83-88(2008)
- 5) 工藤俊明：青森県原子力センター所報,第 4 号,79-83(2009)
- 6) 工藤俊明、西堀祐司：青森県原子力センター所報,第 5 号,66-70(2010)
- 7) 成田俊、工藤俊明、西堀祐司：青森県原子力センター所報,第 6 号,13-27(2010)
- 8) 葛西邦生：青森県原子力センター所報,第 18 号,61-69(2023)
- 9) Zhongtang Wang : Effect of Ashing Temperature on Accurate Determination of Plutonium in Soil Samples, Analytical Chemistry is a Transformative Journal, TECHNICAL NOTE, May 4, 2015
- 10) 文部科学省：第 53 回環境放射能調査研究成果論文抄録集,61-62 (2011)
- 11) Shih-Yu Lee , Chih-An Huh , Chih-Chieh Su , Chen-Feng You : Deep-Sea Research partI, 51, 1769-1780 (2004)
- 12) Jian Zheng, Masatoshi Yamada : Science of The Total Environment Volume 340, Issues 1-3, 199-211(2005)

表3 標準試料の測定結果

標準試料	抽出前の 加熱温度	回収率 (%)	本調査	本調査	本調査	IAEA 認証値	本調査	IAEA 認証値
			Pu-239 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240/239 (原子数比)	Pu-240/239 (原子数比)
IAEA-384	500°C	54.3	90.4 ± 2.1	16.4 ± 0.83	106.7 ± 2.2	108 ± 13	0.0493 ± 0.0032	0.0497 ± 0.0018
	450°C	46.1	92.9 ± 2.1	16.7 ± 0.85	109.5 ± 2.3		0.0489 ± 0.0032	
IAEA-385	500°C	82.8	1.48 ± 0.030	0.969 ± 0.027	2.45 ± 0.041	2.98 ± 0.26	0.178 ± 0.0090	0.168 ± 0.016
	450°C	79.6	1.54 ± 0.031	0.991 ± 0.028	2.53 ± 0.042		0.175 ± 0.0089	

- ・本装置の誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差
- ・IAEA 認証値の誤差は95%信頼区間

表4 表土の測定結果

採取 地点	採取 年度	抽出前の 加熱温度	回収率 (%)	本調査	本調査	本調査	本調査	本調査	環境放射線モニタリング	本調査
				Pu-239 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-239 (450°C/500°C) 濃度比	Pu-240 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-239 (450°C/500°C) 濃度比	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240/239 (原子数比)
尾駁	R4	500°C	80.5	0.0280 ± 0.0006	1.01	0.0178 ± 0.0005	1.01	0.0459 ± 0.0008	0.0422 ± 0.0071	0.173 ± 0.0088
		450°C	86.0	0.0277 ± 0.0006		0.0175 ± 0.0005		0.0452 ± 0.0008	—	0.172 ± 0.0087
	R5	500°C	74.2	0.0266 ± 0.0006	1.13	0.0147 ± 0.0004	1.09	0.0413 ± 0.0007	0.0303 ± 0.0054	0.151 ± 0.0077
		450°C	89.3	0.0233 ± 0.0005		0.0135 ± 0.0004		0.0368 ± 0.0006	—	0.157 ± 0.0080
千歳平	R4	500°C	85.0	0.0600 ± 0.0014	0.98	0.0494 ± 0.0025	0.92	0.1095 ± 0.0029	0.0989 ± 0.010	0.224 ± 0.014
		450°C	89.0	0.0609 ± 0.0014		0.0534 ± 0.0027		0.1143 ± 0.0031	—	0.239 ± 0.015
	R5	500°C	83.8	0.0617 ± 0.0014	1.03	0.0551 ± 0.0028	1.05	0.1168 ± 0.0032	0.119 ± 0.011	0.243 ± 0.015
		450°C	88.9	0.0596 ± 0.0014		0.0522 ± 0.0027		0.1118 ± 0.0030	—	0.238 ± 0.015
横浜町	R4	500°C	73.5	0.0172 ± 0.0005	1.08	0.0103 ± 0.0007	0.96	0.0275 ± 0.0008	0.0196 ± 0.0049	0.162 ± 0.013
		450°C	85.6	0.0158 ± 0.0004		0.0106 ± 0.0007		0.0265 ± 0.0008	—	0.183 ± 0.015
	R5	500°C	82.9	0.0267 ± 0.0007	0.96	0.0143 ± 0.0009	0.91	0.0409 ± 0.0012	0.0123 ± 0.0033	0.146 ± 0.012
		450°C	87.3	0.0277 ± 0.0008		0.0155 ± 0.0010		0.0432 ± 0.0013	—	0.152 ± 0.013

- ・誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差

表 5 海底土の測定結果（抽出前の加熱温度 500°C）

採取 地点	採取 年度	回収率 (%)	本調査	本調査	本調査	環境放射線モニタリング	本調査
			Pu-239 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240/239 (原子数比)
放出口付近	R4	91.1	0.302 ± 0.0063	0.282 ± 0.0080	0.585 ± 0.010	0.553 ± 0.034	0.254 ± 0.012
	R5	87.4	0.222 ± 0.0046	0.198 ± 0.0056	0.420 ± 0.0073	0.402 ± 0.025	0.243 ± 0.012
放出口 北 20 km 地点	R4	86.2	0.165 ± 0.0038	0.147 ± 0.0075	0.312 ± 0.0084	0.237 ± 0.018	0.244 ± 0.015
	R5	84.9	0.106 ± 0.0025	0.0951 ± 0.0048	0.201 ± 0.0054	0.222 ± 0.017	0.245 ± 0.016
放出口 南 20 km 地点	R4	88.2	0.104 ± 0.0028	0.0950 ± 0.0061	0.199 ± 0.0068	0.215 ± 0.017	0.249 ± 0.021
	R5	90.6	0.0932 ± 0.0025	0.0881 ± 0.0057	0.181 ± 0.0062	0.172 ± 0.016	0.257 ± 0.022

・ 誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差

表 6 湖底土の測定結果（抽出前の加熱温度 500°C）

採取 地点	採取 年度	回収率 (%)	本調査	本調査	本調査	環境放射線モニタリング	本調査
			Pu-239 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-(239+240) 放射能濃度 (Bq/kg 乾)	Pu-240/239 (原子数比)
尾駁沼	R4	83.6	0.363 ± 0.0075	0.257 ± 0.0073	0.620 ± 0.010	0.609 ± 0.039	0.193 ± 0.0098
	R5	79.8	0.324 ± 0.0067	0.228 ± 0.0065	0.552 ± 0.0093	0.588 ± 0.037	0.191 ± 0.0097
鷹架沼	R4	81.2	0.296 ± 0.0069	0.183 ± 0.0093	0.479 ± 0.011	0.522 ± 0.034	0.169 ± 0.011
	R5	74.1	0.324 ± 0.0076	0.192 ± 0.0098	0.517 ± 0.012	0.517 ± 0.012	0.161 ± 0.010
小川原湖	R4	73.1	0.189 ± 0.0052	0.123 ± 0.0079	0.311 ± 0.0095	0.284 ± 0.022	0.177 ± 0.015
	R5	80.5	0.126 ± 0.0034	0.082 ± 0.0053	0.207 ± 0.0063	0.217 ± 0.017	0.177 ± 0.015

・ 誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

木村芳伸 檜山宝孝 神 俊雄

1. はじめに

トリチウム (T) は、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH_3T 等) の3種の化学形で存在することが知られている。日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、その運転に伴いトリチウムを含む放射性気体廃棄物が放出されるが、HTO、HT 及び CH_3T の比率や HT 及び CH_3T の大気中の挙動は明らかになっていない。公益財団法人環境科学技術研究所 (以下「環境研」という) が平成18年から同研究所内において大気中トリチウムの化学形別採取を実施しているが、大気中に極微量存在する HT 及び CH_3T を捕集するためのキャリアガスとして、可燃性の水素ガス及びメタンガスを使用している。本調査では、六ヶ所再処理工場周辺に設置している無人の放射線測定局舎内において安全に大気試料を採取し、トリチウムの化学形別濃度比を明らかにすることを目的として、可燃性ガスの代わりに水蒸気を使用した採取方法¹⁾を検討している。

これまで採取装置及び分析方法を改良してきた結果、大気中の HT 及び CH_3T を安定して採取し測定できる環境が整ったことから、令和5年7月から青森市 (原子力センター青森市駐在) 及び六ヶ所村千歳平 (原子力センター本所) の2か所で連続採取を開始し、大気中 HT 及び CH_3T 濃度の時間的変動及び空間的差異の有無を確認している。令和6年度は、引き続き1か月単位の連続採取を行うとともに、ガラス製の加湿用カラムを樹脂製のねじ口式ガス洗浄瓶に変更し耐久性及び作業効率を改善したほか、採取高さの違いによる測定値への影響を明らかにするため、原子力センター青森市駐在が所在する青森県衛生研究所屋上において大気を採取し分析・測定した。

2. 調査方法

2.1 連続採取

採取装置 (図1及び図2) を青森市 (原子力センター青森市駐在測定局舎) 及び六ヶ所村千歳平 (原子力センター天秤室) に設置し、1か月単位で連続採取を行った。HTO、HT 及び CH_3T の各捕集カラムには、いずれもモレキュラーシーブ (MS-3A) を400g程度充填している。Pt触媒カラムには、Ptがコーティングされたメタルハニカム触媒 (D2SPT6S40C、田中貴金属工業株式会社) を8個、Pd触媒カラムには、Pdがコーティングされたペレット触媒 (DASH-220D、エム・イーケムキャット株式会社) 100gを充填し、それぞれマントルヒーターで100°C程度及び300°C程度に加熱しながら使用した。捕集カラムを通過した空気に適量の水蒸気を添加させるため、容量14mLのポリプロピレン製バイアル (マルエム容器 No.4、株式会社マルエム) を加工し、蓋内部に超高分子量ポリエチレン多孔質フィルム (サンマップ LC0.5mm厚、日東電工株式会社) を組み込み、容器に無トリチウム水を10mL程度入れたもの (図3) (以下「加湿バイアル」という) をガラスカラムに3個収納した。各部品間は気体透過性の低いチューブ (ファームド®BPT、サンゴバン株式会社) で接続した。孔径7µmのポリプロピレン製フィルター及び質量流量計を通過した空気は、電子冷却式除湿器 (DH-109C-1-R、株式会社KELK) で露点温度1

～3°Cとした後、各カラムを通過し負圧ポンプで装置外へ排出される。

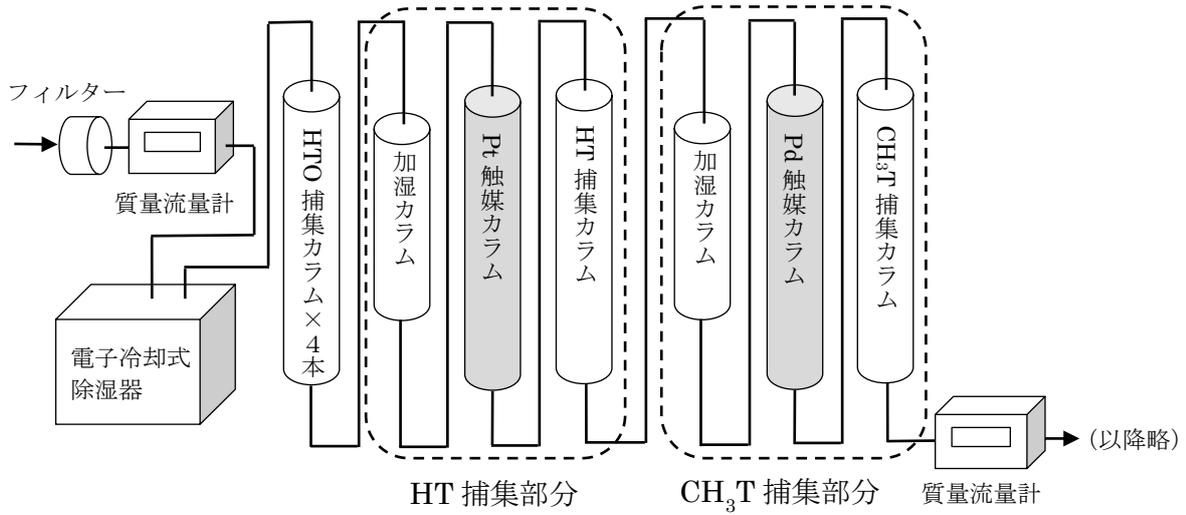


図1 採取装置概要



青森市（原子力センター青森市駐在）



六ヶ所村千歳平（原子力センター本所）

図2 採取装置外観

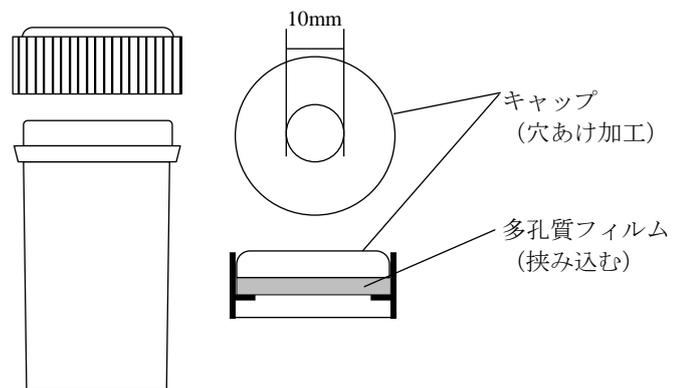


図3 加湿バイアル及び構造

2.2 加湿バイアル収納容器の加湿性能の確認

加湿バイアルは毎月、重量測定及び無トリチウム水の補充が必要であるが、その際にガラスカラムからの取り出し及び収納、シリコン栓及びガラス栓の取り付けなど作業量が多く時間を要する。そこでこれらの作業を短時間で行えるよう、ガラスカラムをポリカーボネート製のねじ口式 250 mL ガス洗浄瓶（以下「加湿ボトル」という）に変更した場合の加湿性能を確認することとした。

加湿ボトルを 25°C または 38°C の一定温度に維持した環境に置き、モレキュラーシーブで乾燥させた空気を流速 1.5 L/min で通過させ、経時的に加湿バイアルの重量を記録した（図 4）。



図 4 加湿ボトル

2.3 採取高さの影響の確認

採取高さの違いによる測定値への影響を確認するため、原子力センター青森市駐在が所在する青森県衛生研究所屋上で令和 5 年 10 月から 12 月までの 3 か月間、大気を採取し、化学形別トリチウム濃度を測定した。2.1 連続採取で大気を採取している測定局舎との位置関係を図 5 に示す。青森県衛生研究所は 3 階建てであり、採取口の高低差はおよそ 13 m である。

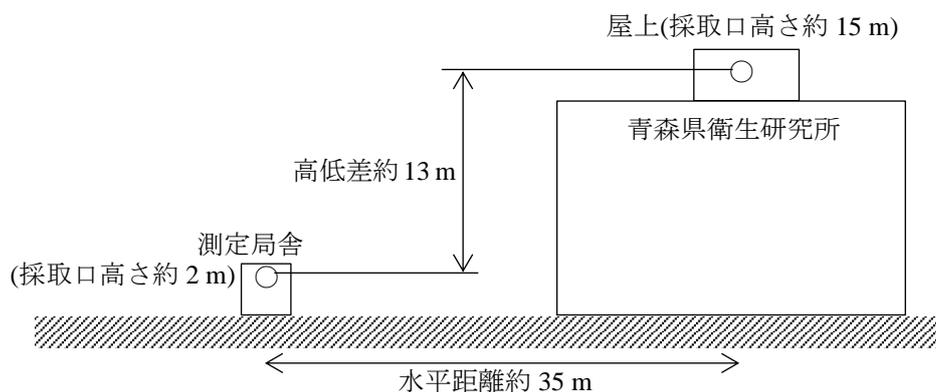


図 5 採取位置関係

2.4 分析

HTO、HT 及び CH₃T の各捕集カラムについて、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却し試料水として回収した。HT 及び CH₃T の捕集カラム

については、加湿カラムで供給された水蒸気が捕集カラムの入口側に多く吸着されていることが過去の調査において判明しており、これを効率よく回収するため窒素ガスを捕集カラムの出口側から流した。なお、HT 捕集カラムについては念のため、放冷後無トリチウム水を 10 mL 程度加え再度加熱し、先に回収した試料水と混合した。回収した試料水 100 mL 当たり過酸化ナトリウム 0.1 g 及び過マンガン酸カリウム 0.1 g を添加し、HTO の試料水については減圧蒸留を、HT 及び CH₃T の試料水については常圧蒸留を行った後、試料水 50 mL（試料水が 50 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加え 50 mL とした）に液体シンチレータ（Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan）を同量加え混合し測定試料とした。測定容器は、容量 145 mL の POLYVIALS145（BIN-PT145、ZINSSER ANALYTIC）を用いた。測定は液体シンチレーション計数装置（AccuFLEX LSC-LB7、ALOKA 株式会社）により行い、測定時間は、1,000 分（50 分×20 回×1 サイクル）とした。

3. 調査結果

3.1 連続採取

各地点の測定結果を表 1 及び表 2 に示す。HTO 測定値はおおよそ絶対湿度に応じた変動を示していたが、HT 及び CH₃T 測定値は比較的一定の値を示しており、採取期間において明確な時間的変動は認められなかった。また、地点間の測定値にも明確な差は認められなかった。参考として、環境研が六ヶ所村尾駁で行っている化学形別トリチウム濃度調査で得られた測定値と併せ、表 1 及び表 2 の各測定結果を図 6～9 に示す（図の誤差棒は計数誤差の 3 倍で示している）。

表 1 青森市の採取条件及び測定結果

採取期間(日数)	流速 (L/min)	採取量 (m ³)	絶対湿度 (g/m ³)	測定結果(mBq/m ³) ^{※1}		
				HTO	HT	CH ₃ T
12/28～1/31 (34) ^{※2}	1.5	73.1	10.9	6.0 ± 1.0	10.3 ± 0.1	1.12 ± 0.07
1/31～3/1 (30) ^{※2}		65.0	10.8	3.6 ± 0.9	10.1 ± 0.1	1.19 ± 0.08
3/1～3/29 (28)		61.0	3.8	3.5 ± 0.3	10.5 ± 0.1	1.12 ± 0.07
3/29～5/1 (33)		71.4	6.4	3.8 ± 0.5	10.3 ± 0.1	1.08 ± 0.07
5/1～5/31 (30)		64.9	8.5	7.5 ± 0.7	10.0 ± 0.1	1.23 ± 0.07
5/31～7/1 (31)		67.3	12.5	8.5 ± 1.0	10.0 ± 0.1	1.23 ± 0.07
7/1～8/1 (31)		67.8	17.7	11.8 ± 1.5	10.2 ± 0.1	1.24 ± 0.07
8/1～8/30 (29)		62.7	19.7	9.5 ± 1.6	9.6 ± 0.1	1.29 ± 0.08
8/30～10/1 (32)		69.2	14.1	13.7 ± 1.2	9.4 ± 0.1	1.12 ± 0.07
10/1～10/31 (30)		65.2	9.6	4.0 ± 0.8	9.4 ± 0.1	1.14 ± 0.07
10/31～11/29(29)		63.2	5.9	3.4 ± 0.5	9.8 ± 0.1	1.16 ± 0.07
11/29～12/27(28)		61.0	4.2	1.6 ± 0.3	9.9 ± 0.1	1.10 ± 0.07

※1 誤差は測定装置の計数誤差。

※2 12/28～3/1 まで原子力センター青森市駐在テレメータ室で採取しており、3/1 から屋外の測定局舎に変更した。

表2 六ヶ所村千歳平の採取条件及び測定結果

採取期間(日数)	流速 (L/min)	採取量 (m ³)	絶対湿度 (g/m ³)	測定結果(mBq/m ³) [*]		
				HTO	HT	CH ₃ T
12/28~1/31 (34)	1.5	74.1	4.0	1.1 ± 0.3	10.4 ± 0.1	1.34 ± 0.07
1/31~3/4 (33)		71.5	3.7	(0.7 ± 0.3)	10.1 ± 0.1	1.17 ± 0.07
3/4~3/29 (25)		52.1	3.9	2.1 ± 0.3	10.4 ± 0.1	1.12 ± 0.08
3/29~5/1 (33)		72.9	6.7	3.6 ± 0.5	9.6 ± 0.1	1.17 ± 0.06
5/1~5/31 (30)		65.3	8.5	5.6 ± 0.6	9.8 ± 0.1	1.20 ± 0.08
5/31~7/1 (31)		67.6	10.9	8.1 ± 0.9	10.0 ± 0.1	1.15 ± 0.07
7/1~8/2 (32)		68.7	12.3	5.3 ± 1.0	10.1 ± 0.1	1.05 ± 0.07
8/2~8/30 (28)		61.2	13.3	(2.0 ± 1.0)	9.9 ± 0.1	1.03 ± 0.08
8/30~10/1 (32)		69.4	12.2	7.3 ± 1.0	9.5 ± 0.1	1.31 ± 0.07
10/1~10/31 (30)		65.2	9.6	3.4 ± 0.7	10.0 ± 0.1	1.08 ± 0.07
10/31~11/29(29)		61.8	6.0	2.3 ± 0.5	9.9 ± 0.1	1.23 ± 0.08
11/29~12/27(28)		61.7	4.0	1.1 ± 0.2	9.6 ± 0.1	1.13 ± 0.07

※測定値の括弧書きは不検出を表す。誤差は測定装置の計数誤差。

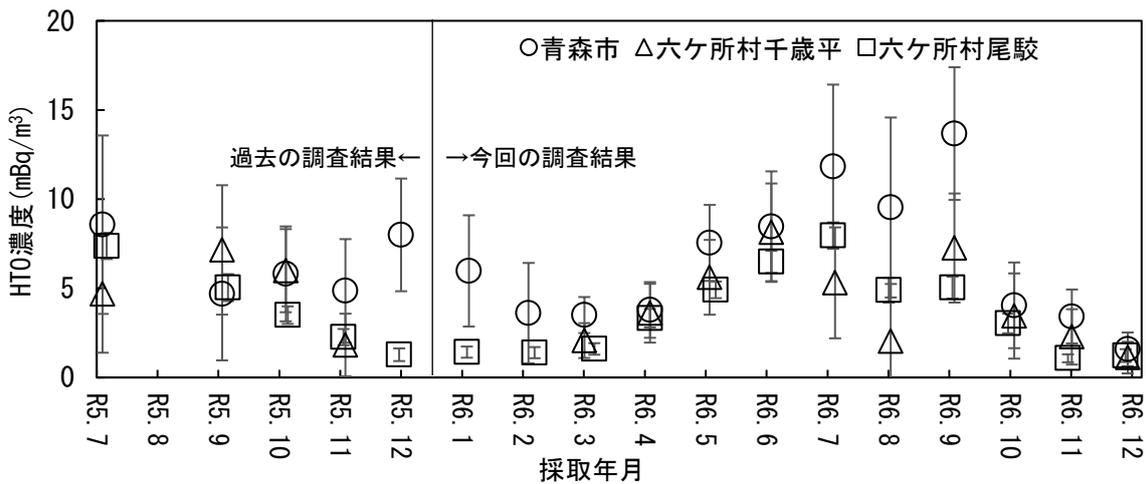


図6 HTO 測定値の推移 (大気中濃度)

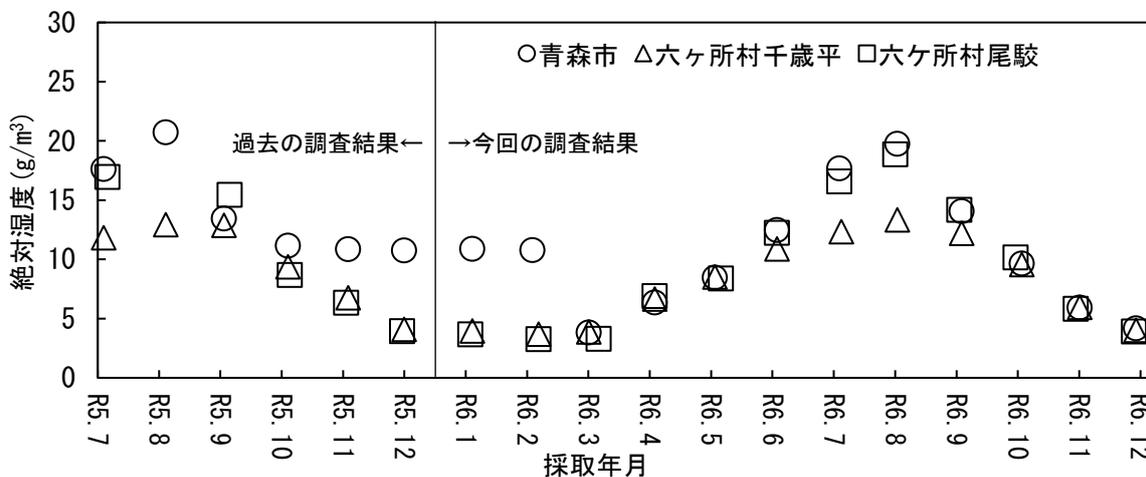


図7 絶対湿度の推移

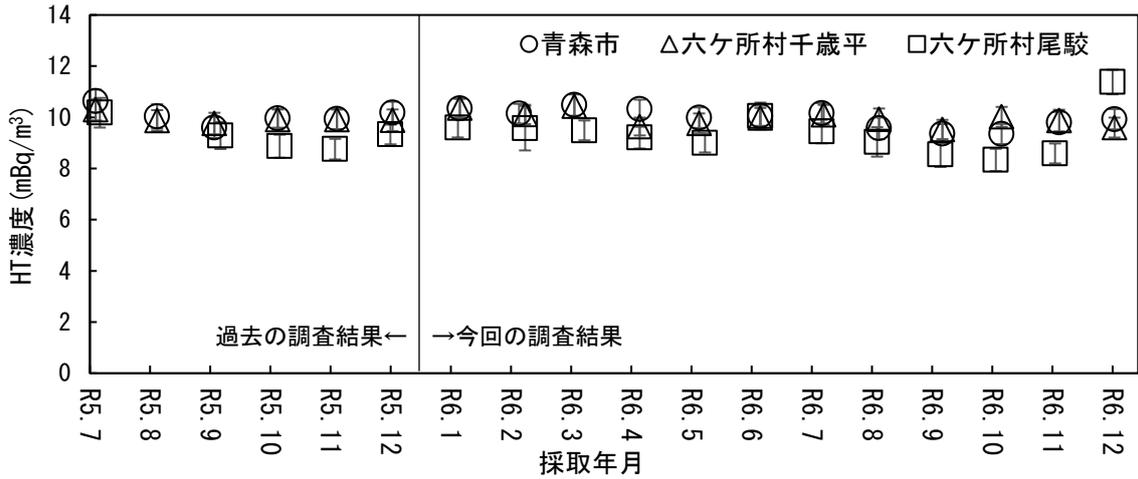


図8 HT測定値の推移

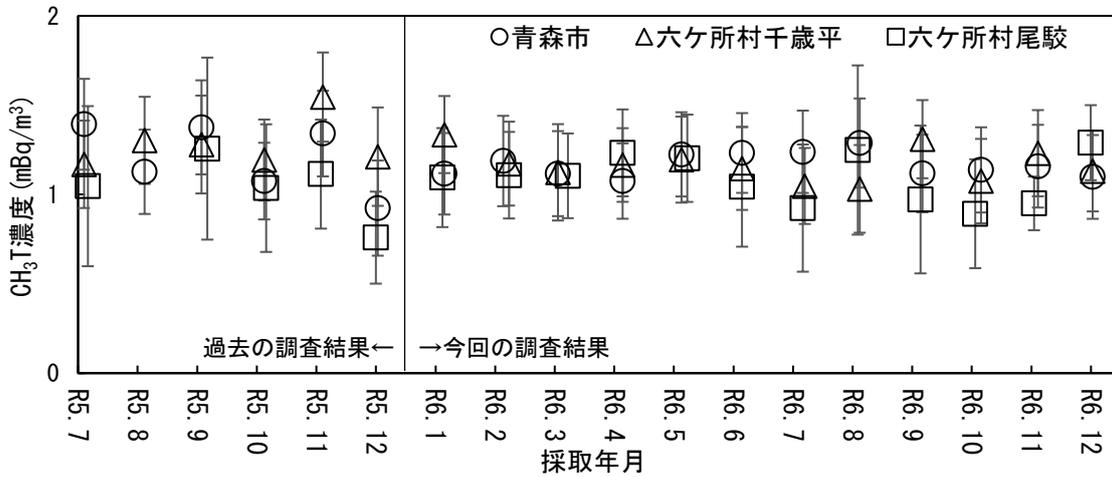


図9 CH₃T測定値の推移

3.2 加湿バイアル収納容器の加湿性能の確認

1本当たり11mLの純水を入れた加湿バイアル3本を加湿ボトルに入れ、25℃または38℃の環境に置いた時の重量変化を図10に、38℃の環境で加湿バイアル2本または3本を加湿ボトルに入れた時の重量変化を図11に示す。

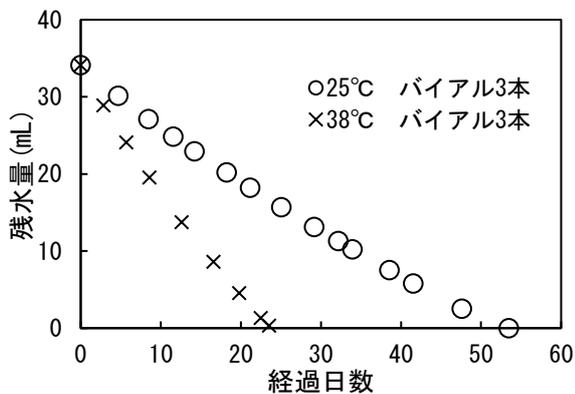


図10 温度を変えた時の残水量の変化

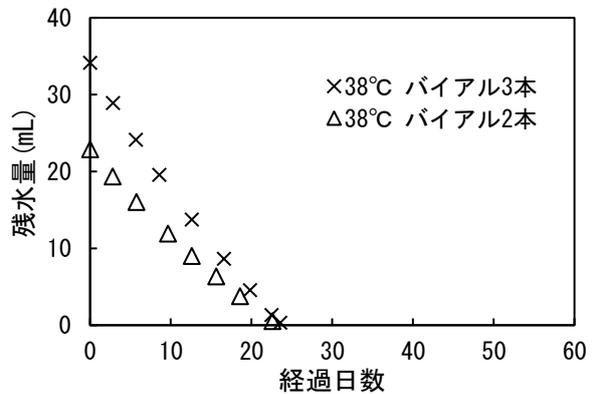


図11 加湿バイアル数を変えた時の残水量の変化

これらの結果と、過去 10 年間の青森市における月平均気温は最高で 28.0℃（2023 年 8 月）であったことから、連続採取において加湿ボトルは 1 か月間無トリチウム水を補充することなく使用できると予想された。なお、加湿バイアル数を変えても残水量が無くなるまでの時間は変わらなかったことから、使用する加湿バイアル数を 1 本とすることも可能であるが、捕集カラムを加熱し試料水を回収する際の損失（0.5～1 mL）及び蒸留する際の損失（1～2 mL）が検出限界に与える影響をできるだけ抑えるためには、本数（加湿量）は多い方が良い。一方で、測定容器に入れる水量に制限があること（50 mL 以下）、HT 捕集カラムについては再回収することを考慮すれば、加湿バイアル数は 3 本程度が適当である。

3.3 採取高さの影響の確認

各場所の測定結果を表 3 及び表 4 に示す（表 3 は表 1 から抜粋したもの）。測定局舎及び屋上での HT 及び CH₃T 測定値に明確な差は認められなかった。参考として表 3 及び表 4 の測定結果を図 12 及び図 13 に示す（図の誤差棒は表の計数誤差の 3 倍で示している）。

表 3 測定局舎の採取条件及び測定結果

採取期間(日数)	流速 (L/min)	採取量 (m ³)	絶対湿度 (g/m ³)	測定結果(mBq/m ³) [※]		
				HTO	HT	CH ₃ T
10/1～10/31 (30)		65.2	9.6	4.0 ± 0.8	9.4 ± 0.1	1.14 ± 0.07
10/31～11/29(29)	1.5	63.2	5.9	3.4 ± 0.5	9.8 ± 0.1	1.16 ± 0.07
11/29～12/27(28)		61.0	4.2	1.6 ± 0.3	9.9 ± 0.1	1.10 ± 0.07

※ 誤差は測定装置の計数誤差。

表 4 屋上の採取条件及び測定結果

採取期間(日数)	流速 (L/min)	採取量 (m ³)	絶対湿度 (g/m ³)	測定結果(mBq/m ³) [※]		
				HTO	HT	CH ₃ T
10/1～10/31 (30)		62.8	9.3	3.5 ± 0.7	9.8 ± 0.1	1.24 ± 0.08
10/31～11/29(29)	1.5	61.7	5.8	2.0 ± 0.5	9.5 ± 0.1	1.12 ± 0.08
11/29～12/27(28)		58.9	4.0	(0.7 ± 0.2)	9.5 ± 0.1	1.00 ± 0.08

※ 測定値の括弧書きは不検出を表す。誤差は測定装置の計数誤差。

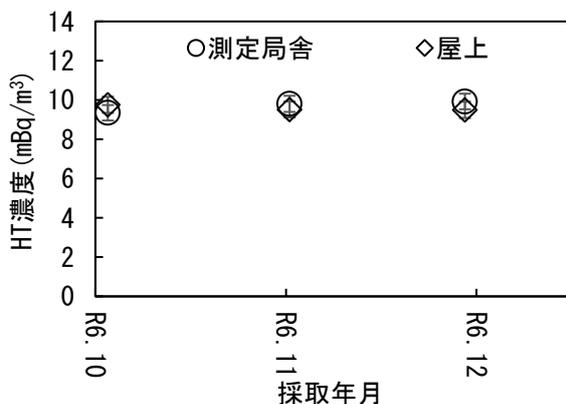


図 12 HT 測定値

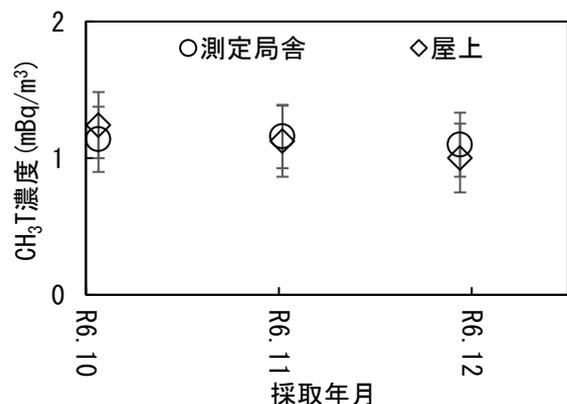


図 13 CH₃T 測定値

4. まとめ

青森市及び六ヶ所村千歳平の2地点で連続採取を行った結果、HT及びCH₃T測定値はほぼ一定の値を示しており、採取期間において明確な時間的変動は認められなかった。また、地点間の測定値を比較しても明確な違いは認められなかった。

加湿バイアルをポリカーボネート製のねじロガス洗浄瓶に収納した場合の加湿性能について確認した結果、測定局舎における連続採取に使用可能であると考えられた。

青森市において測定局舎と隣接する青森県衛生研究所屋上の2か所で並行採取した結果、採取高さの違いによる測定値への影響は認められなかった。ただしこれはバックグラウンドの調査結果であり、再処理工場主排気筒から放出されプルームとして採取地点に到達するであろうトリチウムについても同じ結果になるとは限らないと考えられる。

今後も離れた地点間での連続採取を行い、化学形別トリチウム濃度の推移を確認する。

文 献

- 1) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓：安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発，日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集，323(2007)

謝 辞

本調査においては、青森県環境エネルギー一部原子力立地対策課からの委託事業として、(公財)環境科学技術研究所が実施した「令和6年度 排出放射性物質による環境影響に関する調査」で得られた成果を、同課承認の下に利用しています。成果の御提供に当たり御尽力頂いた関係者の皆様に対し、深く感謝します。

編 集 委 員

工藤俊明（委員長） 奈良孔隆（副委員長） 安積 潔 神 俊雄
木村芳伸 大山 勝

青森県原子力センター所報 第19号（2024）

令和7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 番地 1

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

