

青森県原子力センター所報

第20号

令和7年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.20(2025)

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として、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8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
ー令和6年度調査結果ー 3
工藤 翔 奈良和久 安積 潔 幸 進 菅野邦昭 大山一寿
2. UTEVA レジンを用いた α スペクトロメータによるウラン分析法の検討 25
檜山宝孝 奥山凱斗 安積 潔
3. 大気浮遊じん中の天然放射性核種による全 β 計数率- $\alpha\beta$ 同時計数率の関係
性 33
松倉祐介 今 良暉 大坂直人 三浦 太 安積 潔 神 俊雄
4. LB-7 による C-14 測定の検討 41
工藤 翔 安積 潔

II 学会発表等要旨

1. トリプル四重極 ICP-MS を用いた固相抽出法による葉菜中 ^{129}I 分析法の検
討 47
檜山宝孝
2. DGA レジンを用いた固相抽出法による ^{90}Sr 迅速分析法の検討 48
松倉祐介
3. 青森県東通原子力発電所周辺における大気浮遊じん及び降下物中の放射能濃
度 49
檜山宝孝

III 令和7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
ー令和7年度調査内容ー 53
工藤 翔 奈良和久 安積 潔 幸 進 菅野邦昭 大山一寿
2. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査 55
神 俊雄 木村芳伸

原稿の分類

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 6 年度調査結果 —

工藤 翔 奈良和久 安積 潔
幸 進* 菅野邦昭* 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 6 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等モニタリング計画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。

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。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 6 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	液体シンチレーション計数装置 LSC-LB7 (アロカ社製)	液体シンチレーション計数装置 1220 Quantulus Quantulus GCT 6220 (Revvity 社製)
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

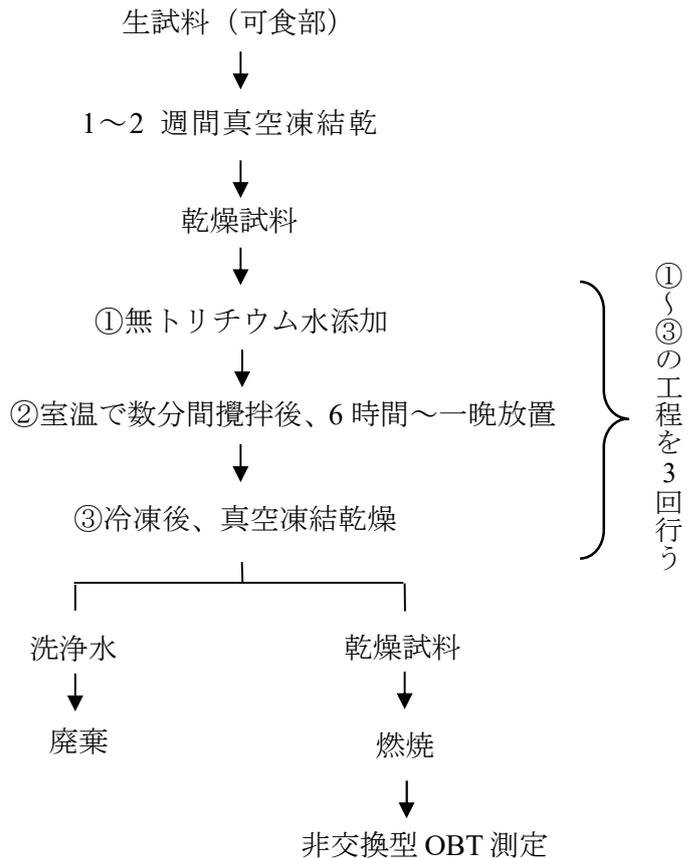


図2 非交換型 OBT の分析工程

(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⁾。測定条件は表 3 のとおりである。

表 3 I-127 及び I-129 の測定条件

項目	¹²⁷ I	¹²⁹ I
測定機器	ICP-MS Agilent 7700x (アジレント・テクノロジー社製)	AMS (東京大学保有)
測定供試量	コンブ：約 0.7 g 乾 ハクサイ：約 2 g 乾	コンブ：約 0.7 g 乾 ハクサイ：約 2 g 乾
測定時間	9 秒積分 5 回繰り返し	コンブ：1,500 秒 ハクサイ：2,250 秒

(4) I-131

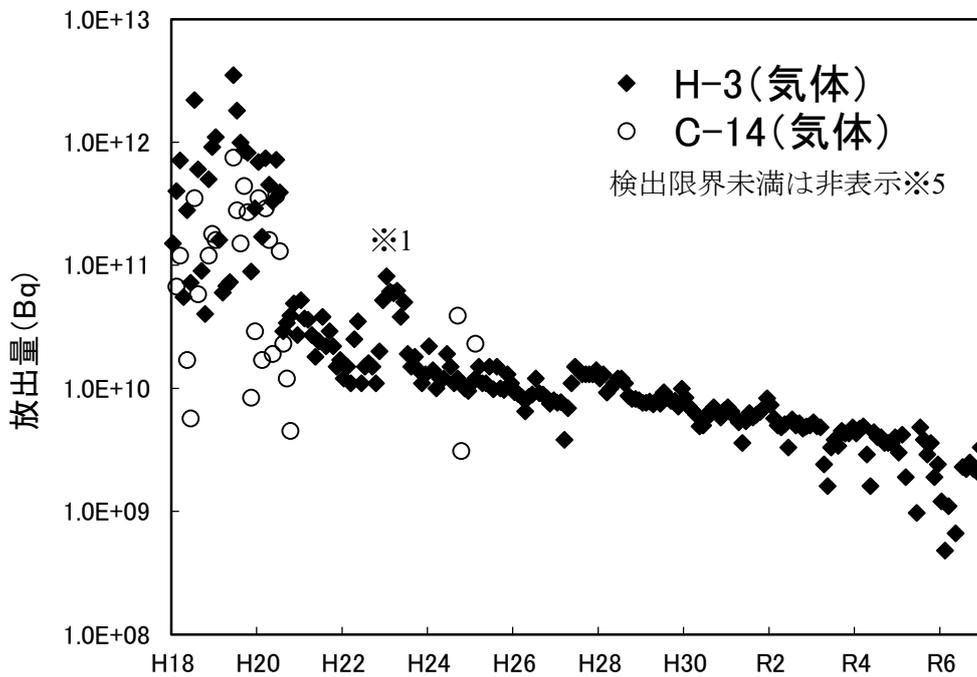
放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁵⁾ に準拠し、生試料又は乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。測定条件は表 4 のとおりである。

表 4 I-131 の測定条件

項目	¹³¹ I
測定機器	ゲルマニウム半導体検出装置 GC4020 (ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製)
試料容器	マリネリ容器 (生) U-8 容器 (乾物)
測定供試量	キャベツ：2 L 生 コンブ：100.85 g 乾 ハクサイ：41.73 g 乾
測定時間	80,000 秒

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 7 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。



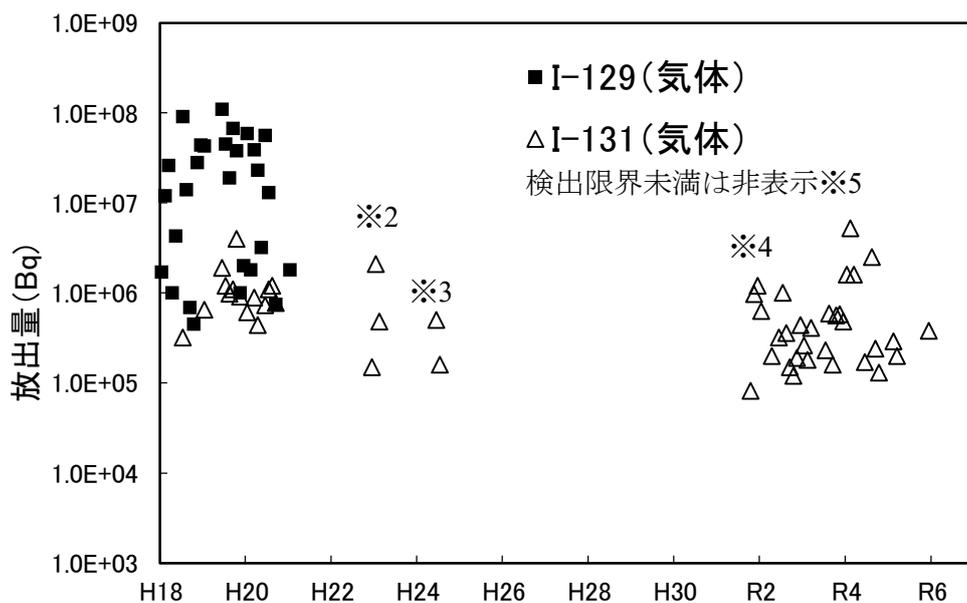
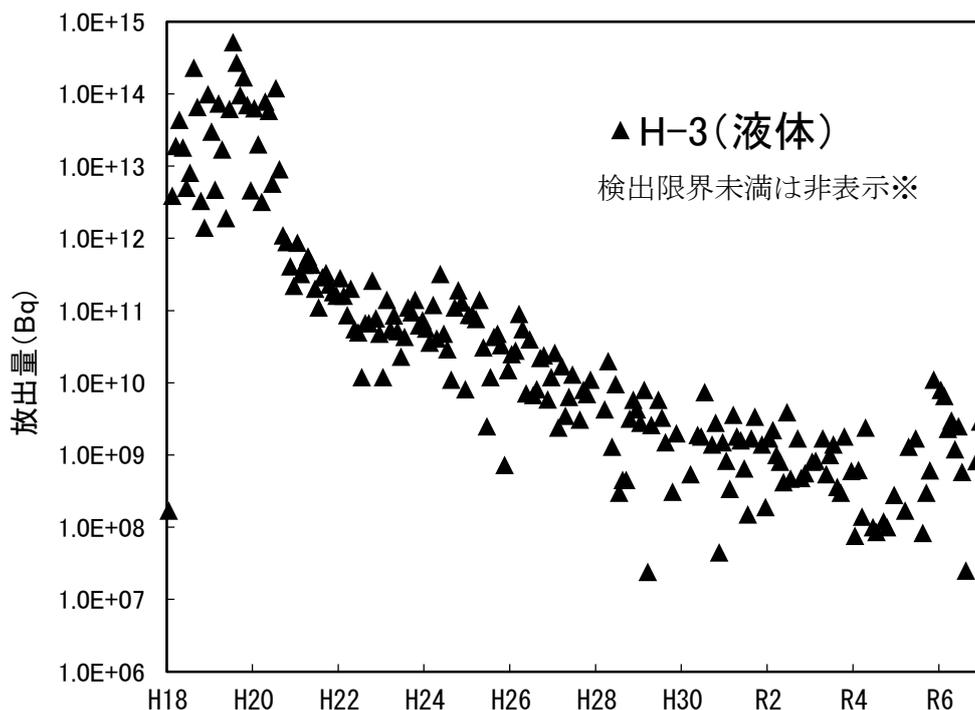


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
 (平成18年4月～令和7年3月)

- ※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。



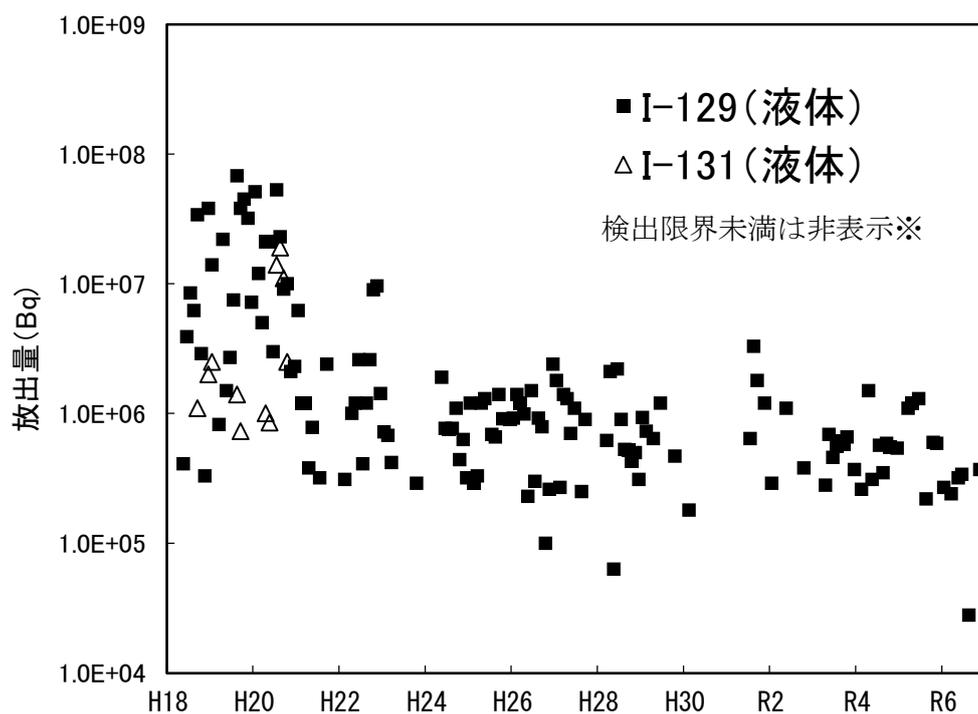


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
 (平成18年4月～令和7年3月)

※ 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 5 及び図 5 に示す。牛乳の TFWT 及び非交換型 OBT 並びに乳牛の飲料水について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 5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（令和 6 年度）

採取地点	採取月	R6 年度調査結果			(参考)		
		牛乳（原乳）		飲料水 ^{※1} (Bq/L)	H19~R5 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	*	*	*	*~0.63	*~0.61	*~0.46
二又	4 月	*	—	*	*~0.57	*~0.63	*~0.34
豊原	4 月	*	*	*	*~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 6 年度において検出限界以下であった試料の検出限界は TFWT で 0.30~0.34 Bq/L、非交換型 OBT で 0.32 Bq/L、飲料水で 0.23~0.37 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 を合わせたもの。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。

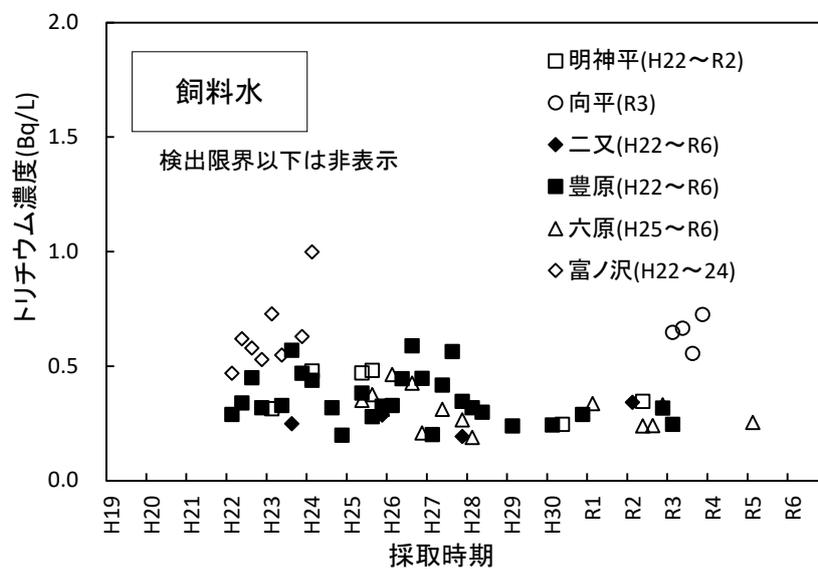
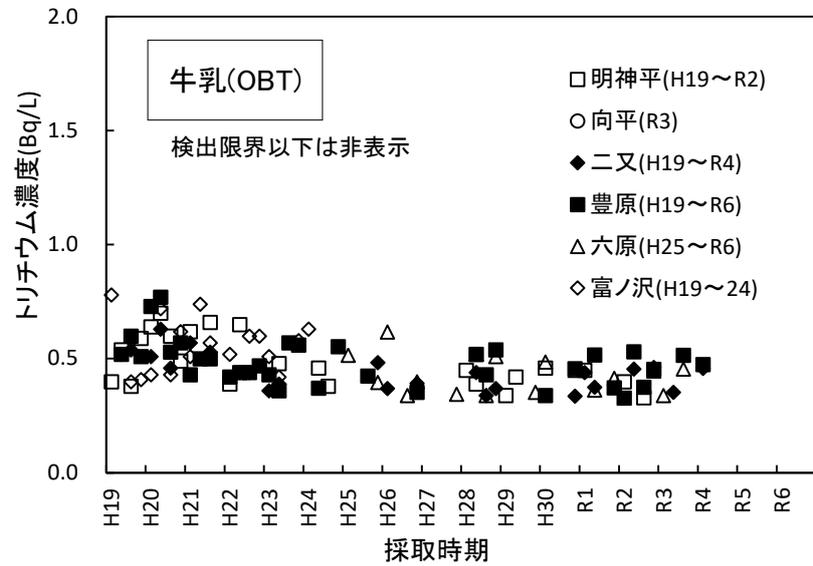
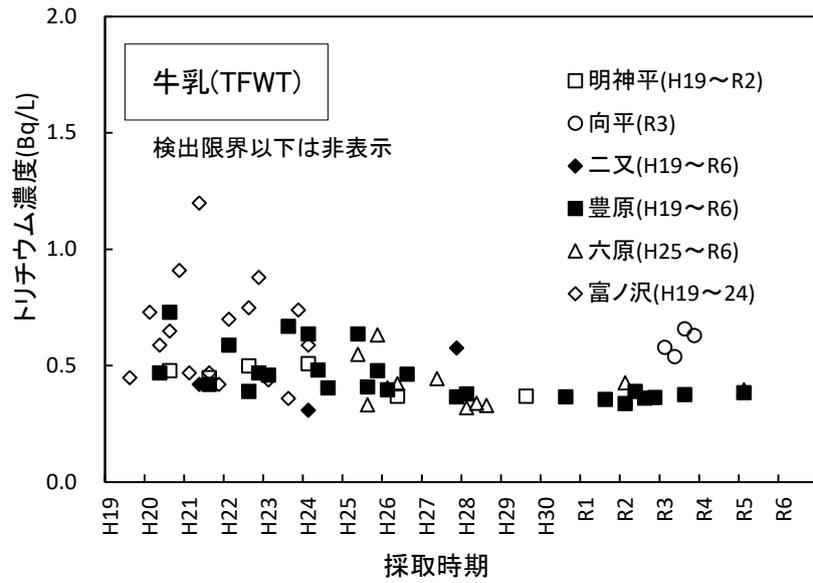


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

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 6 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 6 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (令和 6 年度)

試料名	採取地点	採取月	R6 年度調査結果		(参考) H19~R5 年度
			調査結果		調査結果
			非交換型 OBT (Bq/L)		OBT** (Bq/L)
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 6 年度において検出限界以下であった試料の検出限界は 0.33 Bq/L であった。

※ 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。

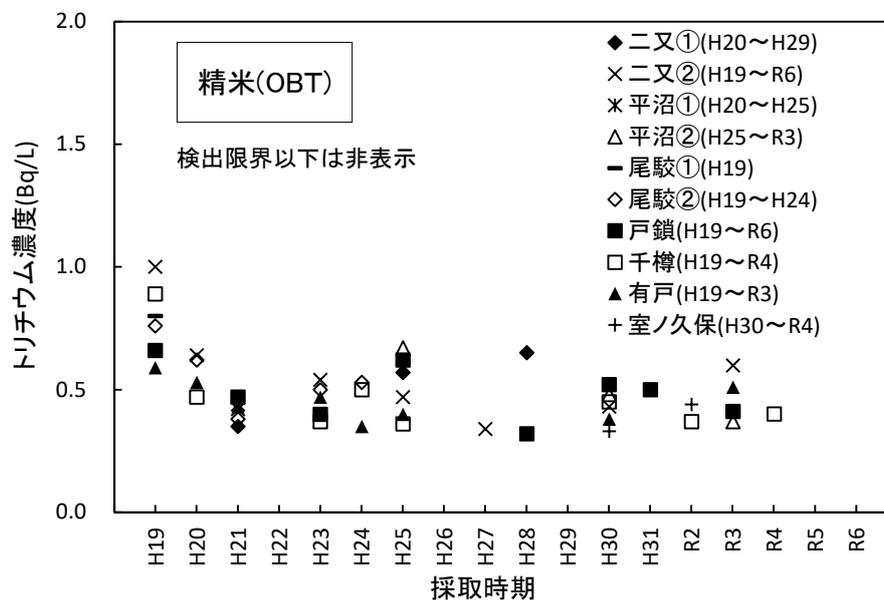


図 6 精米におけるトリチウム濃度 (OBT) の経年変化

※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 7 及び図 7 に示す。野菜については TFWT で 0.55~0.73 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 が平成 19~令和 5 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 6 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（0.21~0.39 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 7 野菜のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 6 年度）

試料名	採取地点	採取月	R6 年度調査結果		(参考) H19~R5 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	0.68±0.11	*	*~0.89	*~0.68
キャベツ	睦栄 ^{※2}	10 月	0.62±0.12	—	*	—
ダイコン	出戸	9 月	0.73±0.14	—	*~0.67	*~0.68
パレイショ	尾駸	7 月	0.68±0.11	*	0.41~0.88	*~0.84
ナガイモ	平沼	11 月	0.55±0.12	*	*~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 6 年度において検出限界以下であった試料の検出限界は 0.33 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。

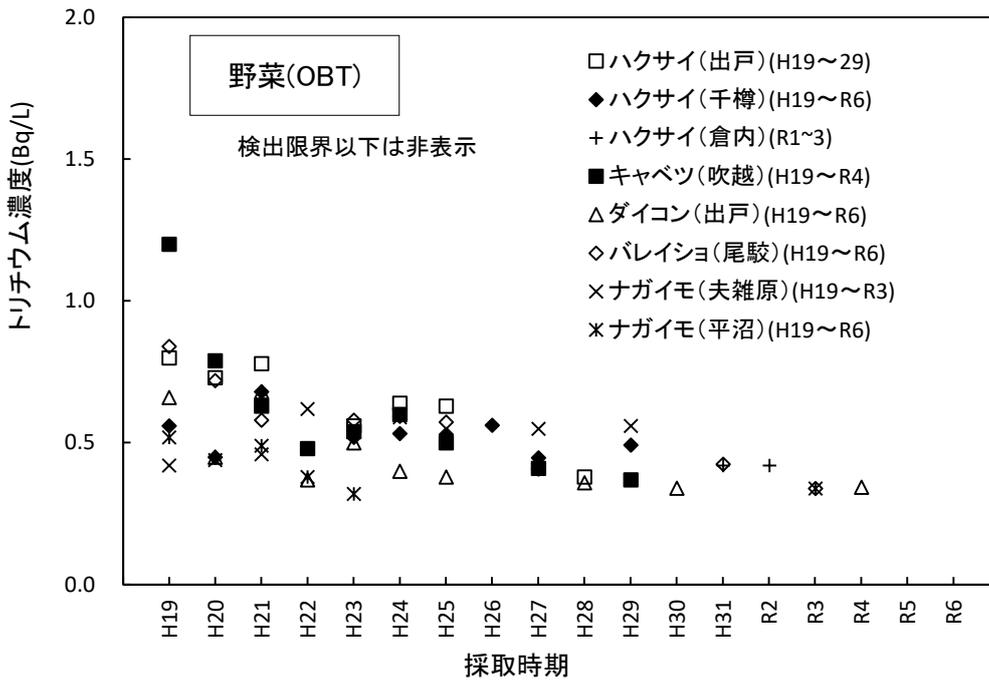
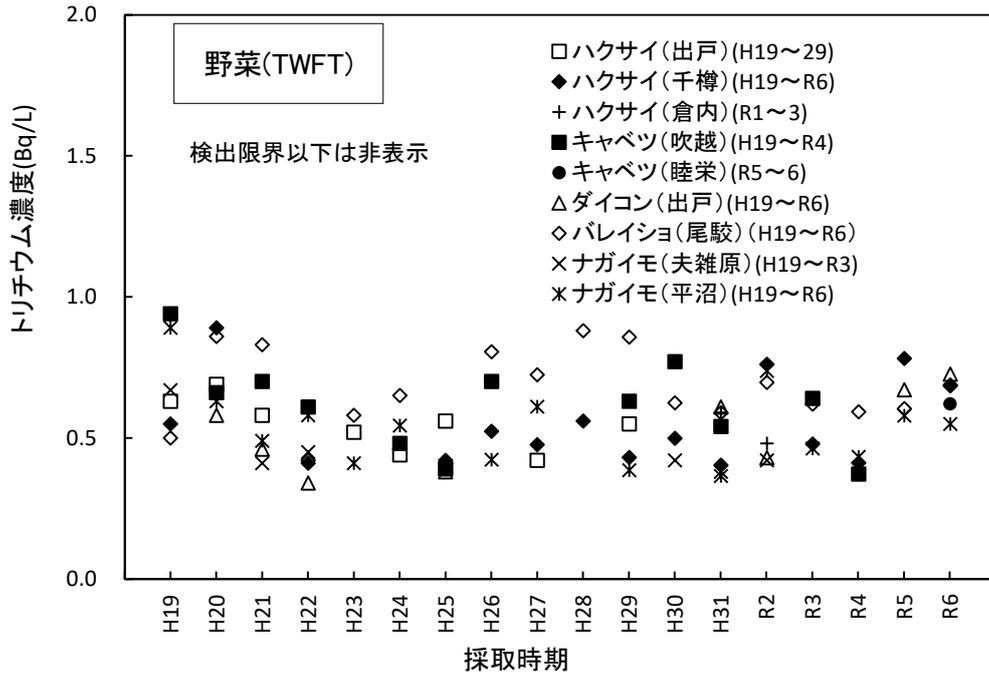


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

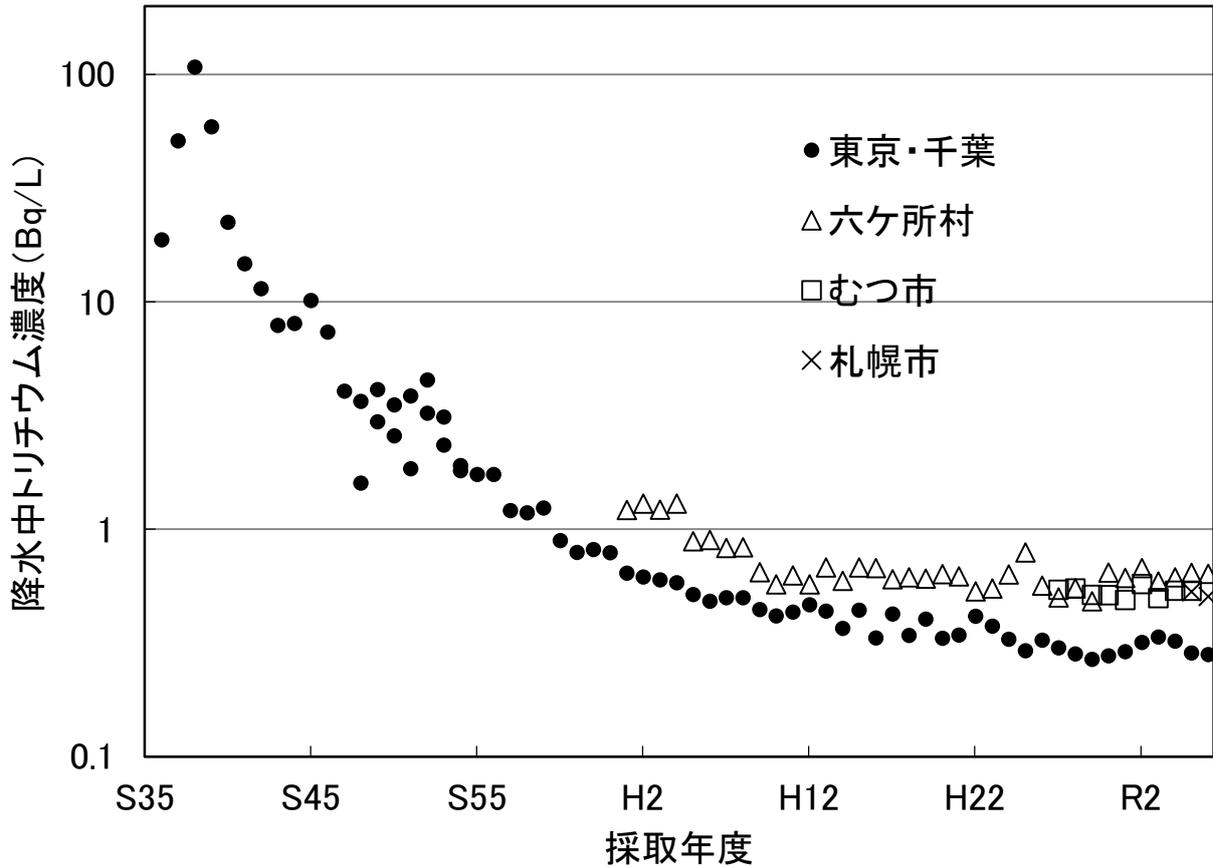


図 8 東京・千葉、六ヶ所村、むつ市及び札幌市における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・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 5~6 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 6 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 6 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 8 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 9 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 8 魚類（ヒラメ等）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 6 年度）

試料名	採取地点	採取月	魚種	R6 年度調査結果		（参考）H19～R5 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 9月	ヒラメ	* *	— *	*~3.2	*~1.4	*~0.48

- ・「—」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 6 年度の検出限界は TFWT は 0.34～0.38 Bq/L、非交換型 OBT は 0.32 Bq/L であった。

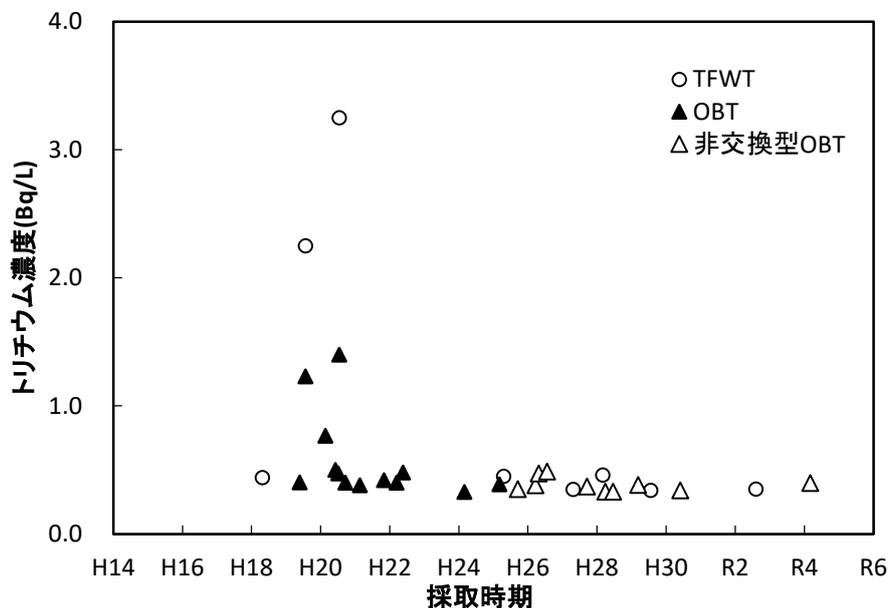


図 9 魚類（ヒラメ等）におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT、非交換型 OBT)の経年変化
※平成 14～18 年度は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

表9 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和6年度）

試料名	採取地点	採取月	R6年度調査結果		H27~R5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	9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6年度の検出限界はTFWTで0.34 Bq/L、非交換型OBTで0.32 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 10 及び図 10 に示す。比放射能は精米で 0.222~0.227 Bq/g 炭素、葉菜で 0.225~0.229 Bq/g 炭素、根菜・いも類で 0.223~0.231 Bq/g 炭素であった。

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いる。本県の測定においても、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となっており、核実験による増加した C-14 の減衰に加え、Suess 効果による環境中 C-14 濃度の低下が複合して起きているものと推測される。ここでは、(公財)環境科学技術研究所が報告している令和 6 年度の六ヶ所村尾駸における大気中の C-14 比放射能 0.207 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 6 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 22.4 年（標準誤差 0.68 年）となった。

$$\left(\begin{array}{l} \text{過剰 C-14 比放射能 } C_{EX} = A \times \exp(-\lambda t) \quad (\text{Bq/g 炭素}) \quad \dots \text{式 1} \\ \lambda = \ln 2 / T \quad \dots \text{式 2} \\ \\ A: \text{平成 7 年度における過剰 C-14 比放射能計算値 (Bq/g 炭素)} \quad 0.466 \\ \\ T: \text{過剰 C-14 の環境における半減期計算値 (年)} \\ t: \text{平成 7 年度からの経過年数 (年)} \end{array} \right)$$

表 10 農産物の C-14 比放射能（令和 6 年度）

種類	試料名	採取地点	採取月	R6 年度調査結果	(参考) H19~R5 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	0.223 ± 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	0.222 ± 0.002	0.223 ~ 0.251
		戸鎖	9 月	0.224 ± 0.002	0.222 ~ 0.255
葉菜	ハクサイ	千樽	10 月	0.225 ± 0.002	0.221 ~ 0.260
	キャベツ	睦栄 ^{※2}	10 月	0.229 ± 0.002	0.237
根菜・ いも類	ダイコン	出戸	9 月	0.231 ± 0.002	0.223 ~ 0.239
	パレイショ	尾駸	7 月	0.223 ± 0.002	0.217 ~ 0.244
	ナガイモ	平沼	11 月	0.224 ± 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。

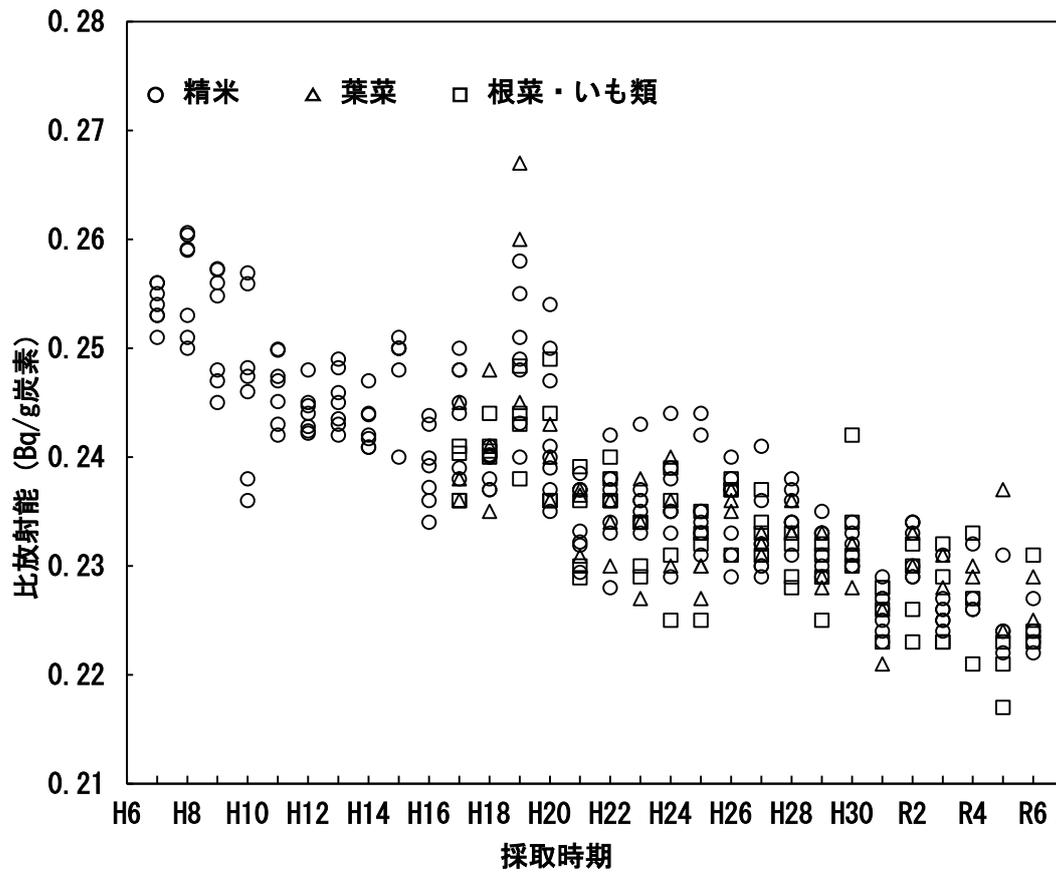


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

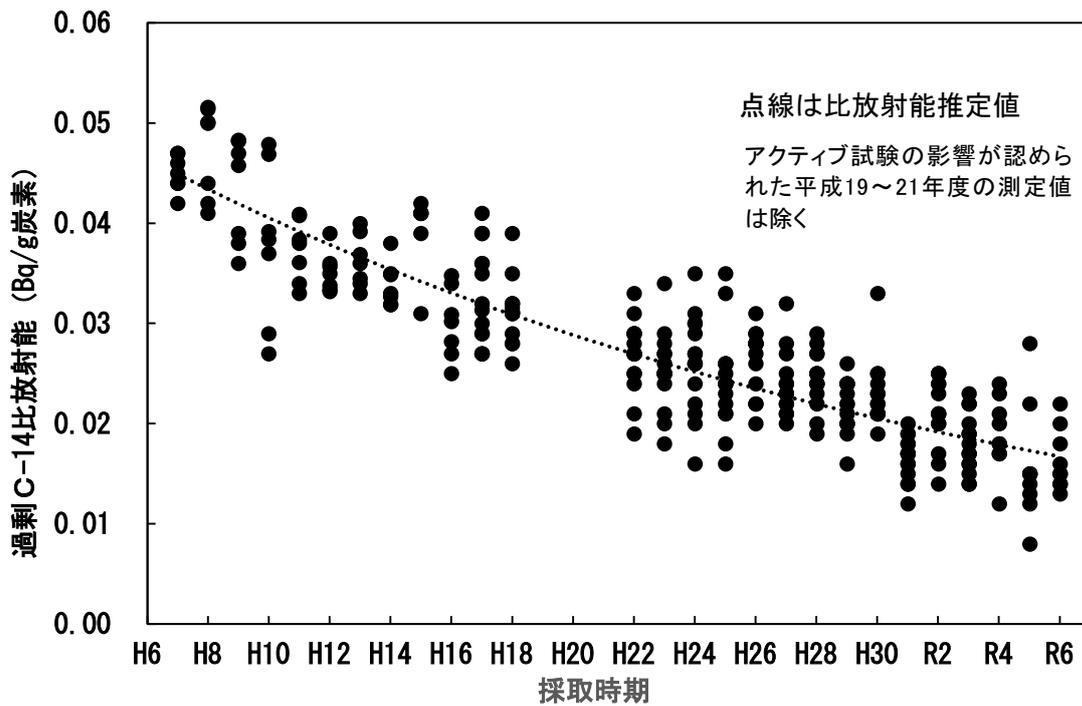


図 11 農産物における過剰 C-14 比放射能の経年変化

牛乳の C-14 比放射能の測定結果及びその経年変化を表 11 及び図 12 に示す。比放射能は 0.234 ~ 0.235 Bq/g 炭素であった。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 25.5 年（標準誤差 2.8 年）であり、農産物の半減期 22.4 年に近い値となった。

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 0.207 Bq/g 炭素¹⁾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とともに、適切なバックグラウンドレベルについて検討する必要がある。

*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) 0.0321

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 11 牛乳の C-14 比放射能（令和 6 年度）

試料名	採取地点	採取月	R6 年度調査結果	(参考) H19~R5 年度
			(Bq/g 炭素)	調査結果 (Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原*	4 月	0.235 ± 0.002	0.222 ~ 0.241
	二又	4 月	0.234 ± 0.002	0.223 ~ 0.262
	豊原	4 月	0.235 ± 0.002	0.225 ~ 0.266

※ 平成 25 年度から調査開始。

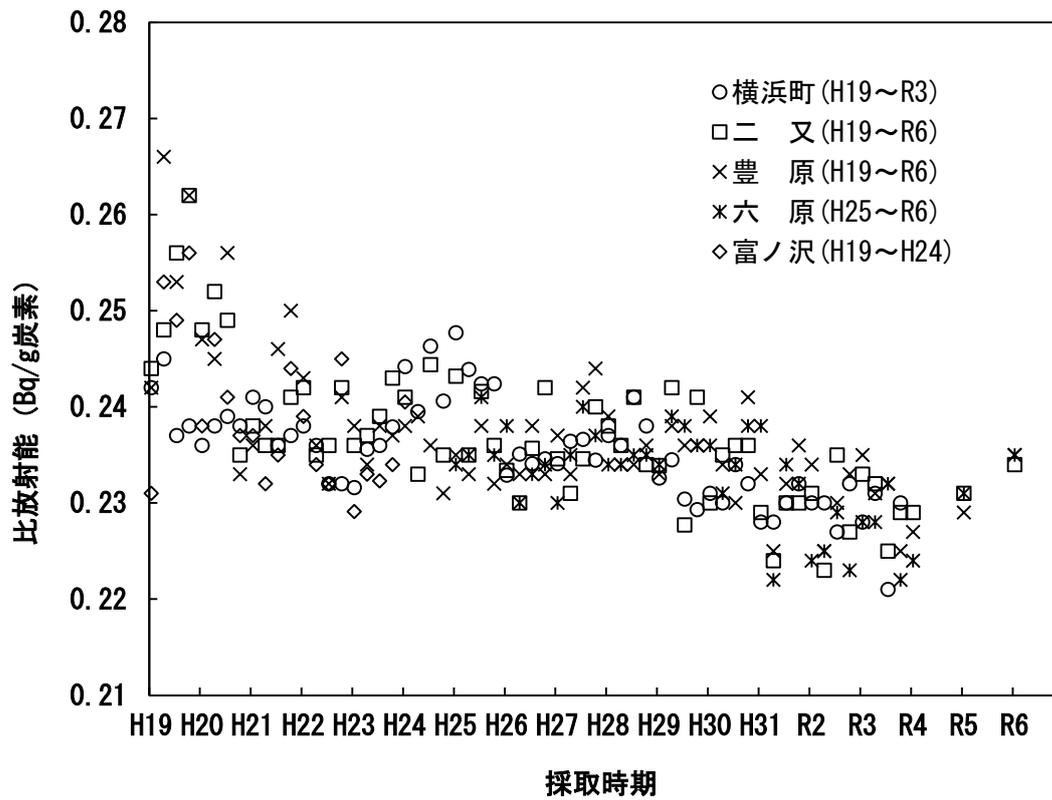


図 12 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

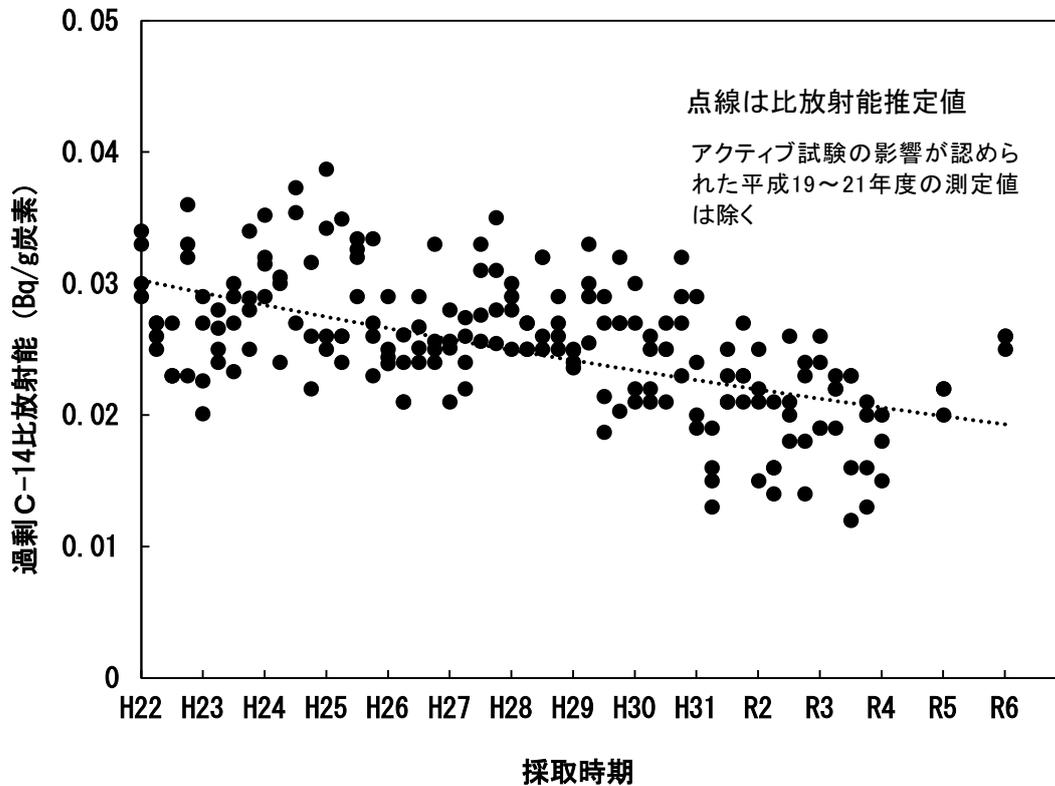


図 13 牛乳における過剰 C-14 比放射能の経年変化

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 12 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 13 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 12 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比（令和 6 年度）

試料名	採取地点	採取月	R6 年度調査結果		(参考) H19~R5 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	$(6.4 \pm 1.2) \times 10^{-8}$	$(3.2 \pm 0.64) \times 10^{-9}$	5.4×10^{-8} $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	5.0×10^{-9} $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	9 月	$(4.9 \pm 0.10) \times 10^{-4}$	$(9.3 \pm 0.18) \times 10^{-11}$	8.5×10^{-5} $\sim 2.8 \times 10^{-3}$	4.6×10^{-11} $\sim 9.1 \times 10^{-10}$

表 13 環境試料中の I-131 濃度（令和 6 年度）

試料名	採取地点	採取月	R6 年度調査結果	(参考) H23~R5 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※	10 月	*	*
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	9 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 6 年度の検出限界は 0.065~0.20 Bq/kg 生であった。

※ 令和 5 年度から調査開始。

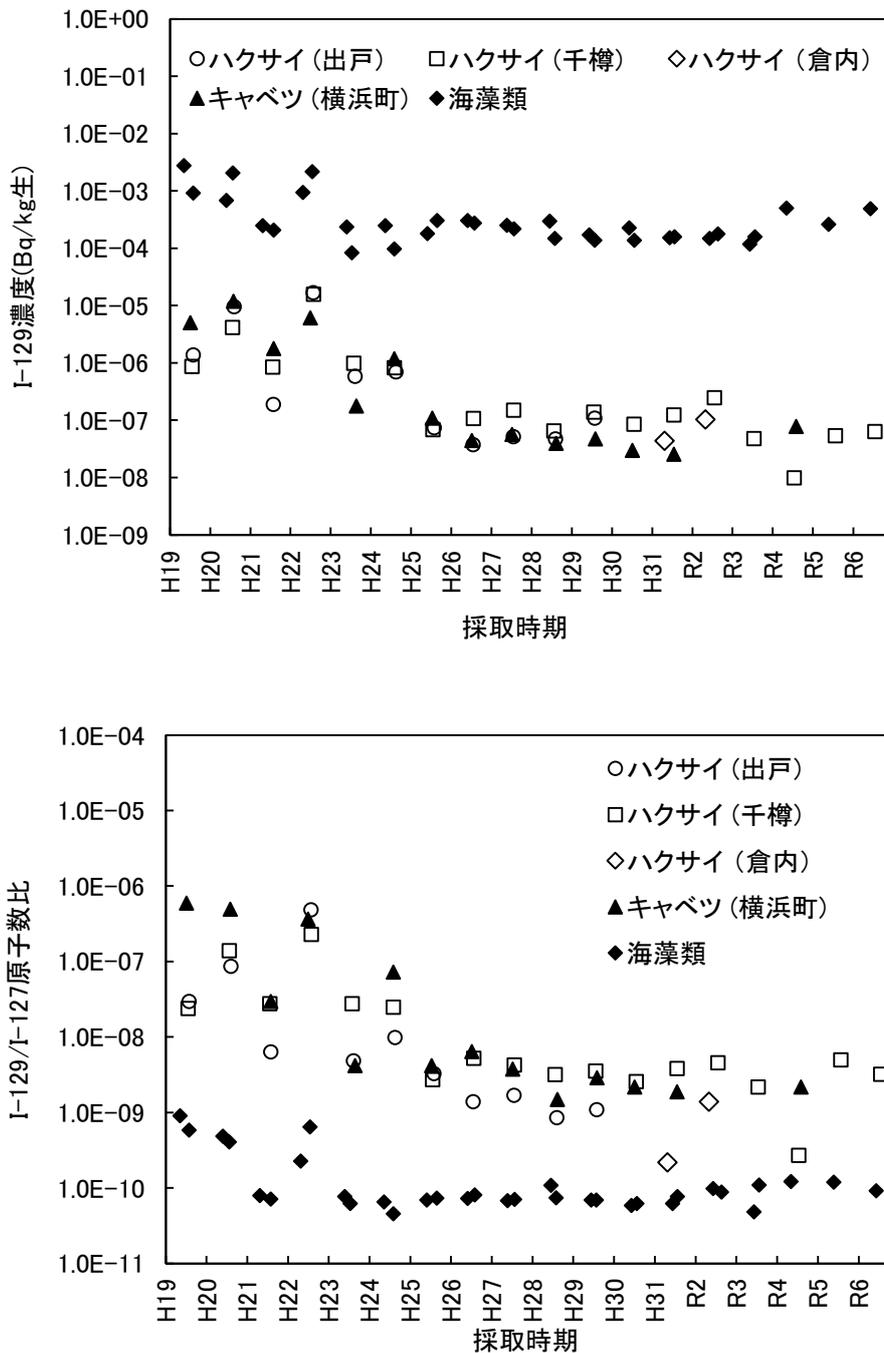


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

- 1) 陸上試料中トリチウムについては、近年の大気及び雨水中トリチウム濃度と同程度であり、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。
- 2) 農産物及び牛乳中の C-14 比放射能については、平成 7 年度以降、アクティブ試験の期間を除

き減少傾向にある。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7年3月）
- 2) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ9 トリチウム分析法（令和5年）
- 3) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ25 放射性炭素分析法（令和7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）
- 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) 原子力規制委員会：環境放射能・放射線データベース
<https://www.enraddb.go.jp/>（最終アクセス：令和8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6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7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)

UTEVA レジンを用いた α スペクトロメータによるウラン分析法の検討

檜山宝孝 奥山凱斗 安積 潔

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング（以下「モニタリング」という。）の一環として、表土及び農産物中のウランを調査対象としており、同モニタリング計画実施要領¹⁾では、放射能測定法シリーズ14「ウラン分析法」²⁾に準拠し、次の手法（以下「従来法」という。）により、モニタリングの対象試料の分析を行うこととしている。

従来法は、①リン酸トリブチル（TBP）-キシレン抽出によりアルカリ金属、アルカリ土類金属、鉄等を除去、②塩酸逆抽出によりトリウム、希土類元素等を除去し、ウランを分離精製する方法である。①及び②の分離精製では、分液ロート及び振とう機を用いた煩雑な分離操作を伴う。また、有機溶剤を用いるため、労働安全衛生法上、換気設備等の設置によるばく露の低減措置を講ずる必要があるほか、作業環境測定の実施が必要となる。

上記のような複雑な分離精製操作及び有機溶剤を用いないウラン分析法として、陰イオン交換樹脂や UTEVA レジンを用いた方法が数多く報告されており³⁾、本報では、比較的簡便な装置で行える坂口らの UTEVA レジンを用いた分析法^{4,5)}がモニタリングの対象試料に適用可能であるか検討を行った。

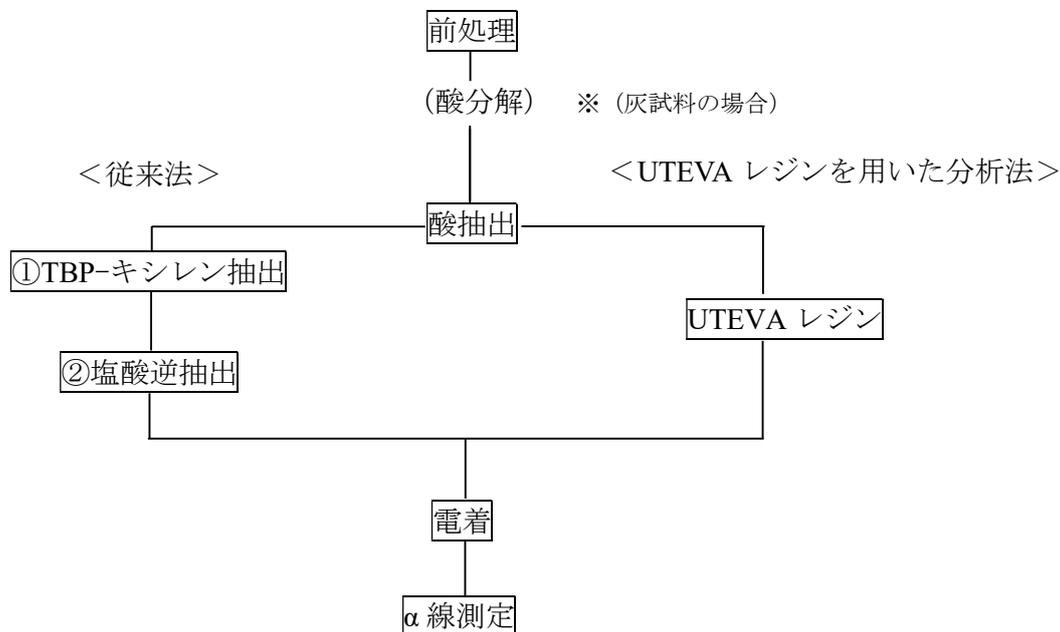


図1 分析法の概要

2. 調査方法

2.1 対象試料

モニタリングの対象試料である表土、湖底土及び農産物のうち、令和元年度から令和2年度に採取した表土、ハクサイ、ダイコン、松葉を用いた。

2.2 前処理方法

対象試料の前処理は、放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」⁶⁾に基づき、以下のとおり行った。

表土は、植物根や石礫等の異物を取り除き、105℃で24時間以上乾燥、磨砕しながら2mmのふるいにより再度異物を取り除き、モーターグラインダーにより粉砕し、土壌試料とした。

ハクサイ及びダイコンは、食用に供さない部分を取り除いた後、水洗いし、適当な大きさに細断した。松葉は、枯れ葉等を取り除いた。その後、これらを105℃で24時間以上乾燥、450℃で24時間灰化し、灰試料とした。

2.3 分析・測定方法

(1) 従来法によるウラン分析法

放射能測定法シリーズ 14「ウラン分析法」²⁾に準拠した方法（TBP抽出法）により行った。

(2) UTEVA レジンを用いたウラン分析法

対象試料の酸抽出から UTEVA レジン導入直前までの分析法及び電着については従来法に基づき、UTEVA レジンによる分離精製については、坂口らの報告^{4,5)}を参考とした。

図2に今回検討した UTEVA レジンを用いたウラン分析法（以下「UTEVA レジン法」という。）のフローを示すとともに、分析操作を以下に示す。なお、妨害元素を除去する通液量及び供試量については、後述の2.3(3)及び2.3(4)で検討した。また、図3に UTEVA レジン法に用いる装置概略図を示す。

供試量は約2gとし、(灰試料については有機物を湿式分解した後に)硝酸で加熱抽出後、ろ過した。その後、ろ液を蒸発乾固し、3M硝酸15-20mLに溶解させたものを試料溶液とした。

UTEVA レジン (Eichrom Technologies 社製、粒径 100-150 μm) をカラム (室町ケミカル (株) 製ムロマックミニカラム M) に純水を用いて 1.5 mL 充填し、3 M 硝酸 30 mL でコンディショニングした。この UTEVA レジンカラムに試料溶液を通液し、3 M 硝酸 15 mL (試料溶液容器の洗浄)、3 M 硝酸 20 mL (同カラムの洗浄)、9 M 塩酸 5 mL (塩酸系に変換)、5 M 塩酸 25 mL (トリウム、プルトニウム除去) を通液した。その後、0.01 M 塩酸 15 mL でウランを溶出した。

ウラン溶出液に硝酸 5 mL を加え蒸発乾固させた後、硝酸 5 mL と過塩素酸 1 mL を加え再度蒸発乾固させた。その後、硫酸 (1+19) により 1 分間加熱沸騰した後、アンモニア水 (1+1) を 1-2 mL、硫酸 (1+19) を数滴加え、pH を 1-2 に調整した。調製した溶液を電着用セルに純水で移し、0.3 A で 2~3 時間、ステンレス製電着板に通電させた後、アンモニア水を 1 mL 加え、さらに 1 分間通電させた。ステンレス製電着板をガスバーナーで赤熱させ、その後、α スペクトロメータにより 90,000 秒測定した。

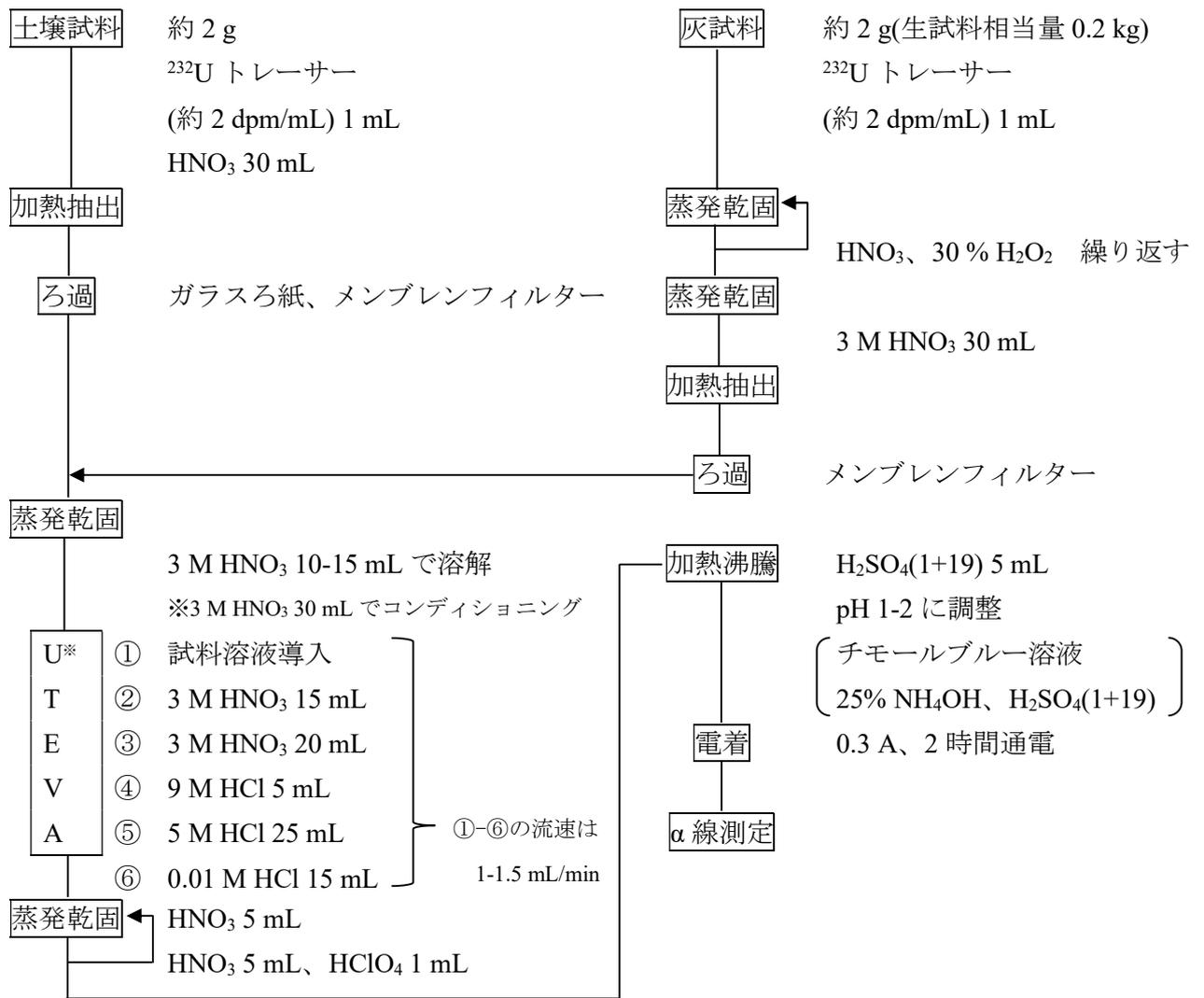


図2 UTEVA レジン法のフロー

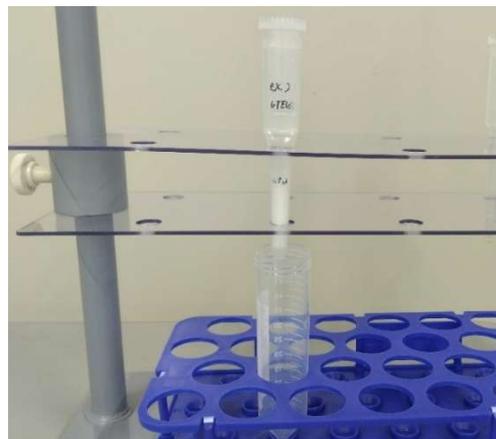
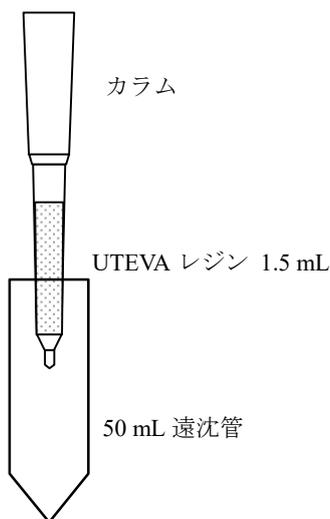


図3 装置概略図

(3) 妨害元素の除去の確認方法

坂口らの報告^{4,5)}は、UTEVA レジンを海水に適用した方法であるため、同方法を土壌試料及び農産物の灰試料に適用できるか確認する必要がある。

坂口らの UTEVA レジンをを用いた方法^{4,5)}では、トリウム、プルトニウムを除去するため、5 M 塩酸 20 mL を通液する。ウラン濃度が高い土壌試料では、共存するトリウム、プルトニウム等を除去しきれないことも考えられることから、モニタリングの対象試料において、比較的ウラン濃度が高い土壌試料（横浜町明神平）約 1 g を用いて、5 M 塩酸の通液量を 20-30 mL の範囲で、妨害元素の除去の状況を確認することとした。

(4) 供試量の増加及び農産物の灰試料への適用の検討方法

モニタリングでは、核種ごとに測定条件や精度を一定の水準に保つため、定量下限値（ウランについては、土壌で 0.8 Bq/kg 乾、農産物で 0.02 Bq/kg 生）¹⁾を定め、常に検出限界が定量下限値を下回るように分析を行っている。

2.3(3)において、土壌試料約 1 g として検討を行った。この場合、回収率を 80%、測定時間 90,000 秒とすると、検出限界は 1 Bq/kg 乾程度となり、定量下限値¹⁾を上回る。このため、2.3(2)の UTEVA レジン法により土壌試料約 2 g として検討することとした。

農産物は土壌と比較して、トリウム、プルトニウム等の妨害元素量は少ないと考えられる。また、農産物の主要元素であるナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウムは、2 M 硝酸下の UTEVA レジンではほとんど吸着しない⁷⁾。本法では、試料溶液は 3 M 硝酸で導入することから、先述の農産物の主要元素はウランと競合する量は少なく、ウランの分離精製に影響を与えないと考えられる。このため、灰試料についても、2.3(2)の UTEVA レジン法により灰試料約 2 g（生試料相当量 0.2 kg）として、検討することとした。

なお、妨害元素の除去については 2.3(3)の評価結果で決定した量を用いた。

2.4 試薬及び測定機器等

分析で用いた試薬類は、富士フィルム和光純薬（株）製の試薬特級又は精密分析用のものを用いた。

ろ過用のガラスろ紙（GA-100）、及びメンブレンフィルター（孔径 0.45 μm）はアドバンテック東洋（株）製を用いた。

α線測定には、セイコー・イーザーアンドジー（株）製 Alpha Ensemble を用いた。

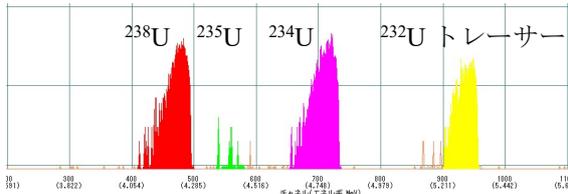
3. 調査結果

3.1 妨害元素の除去の検討

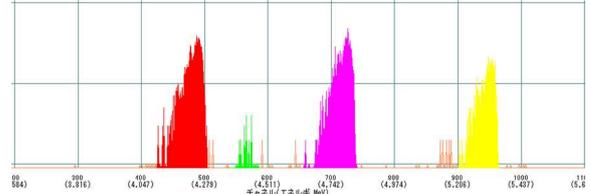
図 4 に 5 M 塩酸の通液量を変えた R2Q2 表土（横浜町明神平）のスペクトルと従来法によるスペクトルを示す。いずれの 5 M 塩酸の通液量においても、従来法と比較し、同等のウランの分離ができていることが確認された。

先述の 2.3(4)のとおり、土壌試料約 1 g の場合、検出限界が定量下限値¹⁾を下回らないため供試量を増加させる必要がある。供試量を増加及び多様な試料へ適用した場合においても、確実にウランの分離精製を行うため、また、分析時間の観点から 5 M 塩酸の通液量を 25 mL として、以降

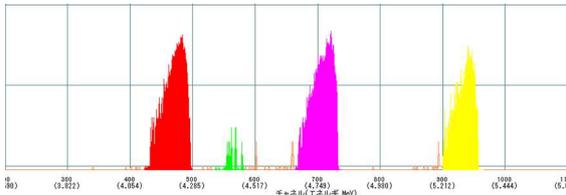
の検討を行うこととした。



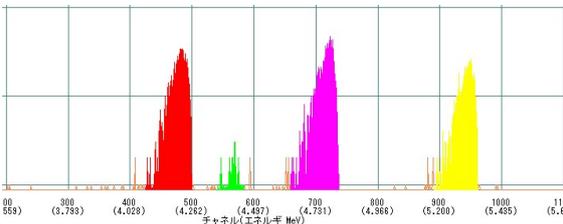
(a)UTEVA レジン法 5 M 塩酸通液量 20 mL



(d)従来法



(b)UTEVA レジン法 5 M 塩酸通液量 25 mL



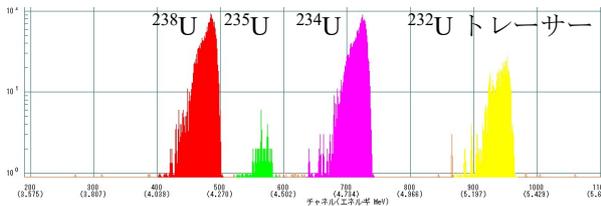
(c)UTEVA レジン法 5 M 塩酸通液量 30 mL

(a)-(c)の供試量はいずれも 1.0 g、(d)の供試量は 1.1 g

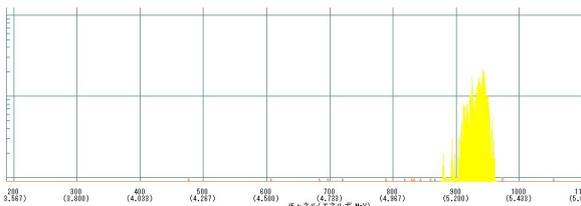
図 4 5 M 塩酸の通液量を変えた R2Q2 表土（横浜町明神平）のスペクトル
及び従来法によるスペクトル

3.2 供試量の増加及び農産物の灰試料への適用の検討

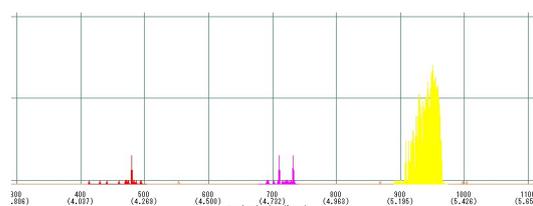
図 5 に R2Q2 表土（横浜町明神平）及び R2Q2 ダイコン（出戸）の UTEVA レジン法によるスペクトルを示す。土壌試料においては同等の分離ができていることを確認され、また、農産物の灰試料においてはトレーサーのピークを見る限りウランの分離ができていると推測された。



(a)UTEVA レジン法 R2Q2 表土（横浜町明神平）2.0 g



(b)UTEVA レジン法 R2Q2 ダイコン（出戸）2.56 g
（生試料相当量 0.2 kg）



(c)従来法 R2Q2 ダイコン（出戸）6.40 g
（生試料相当量 0.5 kg）

図 5 土壌試料及び農産物の灰試料約 2 g におけるスペクトル

3.3 UTEVA レジン法及び従来法による測定結果の比較

表1に UTEVA レジン法と従来法による測定結果を示す。なお、測定値は標準偏差に対して濃度が十分に高い ^{234}U 及び ^{238}U を比較した。UTEVA レジン法 (I) と従来法 (II) による測定値の比 (I/II) は、 $0.90 \pm 0.10 - 1.00 \pm 0.06$ であり、おおむね同程度の測定値が得られている。また、UTEVA レジン法による回収率は $0.92-1.02$ と良好であった。

ウランの検出限界は、土壌が $0.42-0.46 \text{ Bq/kg}$ 乾、農産物が $0.0045-0.0047 \text{ Bq/kg}$ 生であり、本県が定める定量下限値（土壌が 0.8 Bq/kg 乾、農産物が 0.02 Bq/kg 生）¹⁾を下回っている。

分析期間は、従来法では分離精製に2日程度要するが、UTEVA レジン法では2-3時間程度と迅速であった。

表1 UTEVA レジン法と従来法の測定結果

試料名	UTEVA レジン法 (I)			従来法 (II)		II/I
	供試量 (生試料相当量)	回収率	測定値 ^{※1,2} (Bq/kg 乾・生) 上段: ^{238}U 、下段: ^{234}U	検出限界 (Bq/kg 乾・生) 上段: ^{238}U 、下段: ^{234}U	測定値 ^{※1,2} (Bq/kg 乾・生) 上段: ^{238}U 、下段: ^{234}U	
R2Q2 表土 (千歳平)	2.00 g	0.94	5.72 ± 0.45 6.59 ± 0.50	0.23 0.23 全ウラン: 0.468	6.30 ± 0.55 7.04 ± 0.58	0.90 ± 0.10 0.93 ± 0.10
R2Q2 表土 (横浜 町明神平)	2.00 g	1.02	44.3 ± 2.1 48.2 ± 2.2	0.21 0.21 全ウラン: 0.425	48.3 ± 2.0 48.1 ± 2.0	0.91 ± 0.05 1.00 ± 0.06
R2Q2 ハクサイ (倉内)	1.04 g (0.20 kg)	0.92	N.D.	0.0023 0.0023 全ウラン: 0.0047	N.D.	- -
R2Q2 ダイコン (出戸)	2.56 g (0.20 kg)	0.97	N.D.	0.0022 0.0022 全ウラン: 0.0045	N.D.	- -
R1Q1 松葉 (青森市)	2.28 g (0.2 kg)	0.98	0.023 ± 0.002 0.029 ± 0.003	0.0022 0.0022 全ウラン: 0.0045	0.025 ± 0.002 0.031 ± 0.002	0.91 ± 0.12 0.92 ± 0.10

※1 濃度±標準偏差

※2 「N.D.」は検出限界未満を示す。

4. まとめ

- 1) UTEVA レジン法 (I) と従来法 (II) による測定値の比 (I/II) は、 $0.90 \pm 0.10 - 1.00 \pm 0.06$ であり、おおむね同程度の測定値が得られた。また、UTEVA レジン法による回収率は $0.92-1.02$ と良好であった。
- 2) ウランの検出限界は、土壌が $0.42-0.46 \text{ Bq/kg}$ 乾、農産物が $0.0045-0.0047 \text{ Bq/kg}$ 生であり、本県が定める定量下限値（土壌が 0.8 Bq/kg 乾、農産物が 0.02 Bq/kg 生）¹⁾を下回った。
- 3) 分析期間は、従来法では分離精製に2日程度要するが、UTEVA レジン法では2-3時間程度と迅速であり、また、従来比と比較し煩雑な操作も伴わなかった。

謝 辞

本分析法の検討に当たり、ご助言いただいた国立大学法人筑波大学 坂口教授に深く感謝の意を表します。

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実施要領（令和 7 年 3 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 14 ウラン分析法（平成 14 年）
- 3) Wenting Bu, Jian Zheng, Michael E. Ketterer, Sheng Hu, Shigeo Uchida, Xiaolin Wang : Development and application of mass spectrometric techniques for ultra-trace determination of ^{236}U in environmental samples-A review, *Analytica Chimica Acta*, **995**, 1-20(2017)
- 4) A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, F. Quinto, K. Mino, J. Tomita, M. Hoshi, N. Whitehead, M. Yamamoto : First results on ^{236}U levels in global fallout, *Science of the Total Environment*, **407**, 4238-4242(2009)
- 5) R. Eigl, P. Steier, S.R. Winkler, K. Sakata, A. Sakaguchi : First study on ^{236}U in the Northeast Pacific Ocean using a new target preparation procedure for AMS measurements, *Journal of Environmental Radioactivity*, **162-163**, 244-250(2016)
- 6) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 16 環境試料採取法（昭和 58 年）
- 7) E. Philip Horwitz, Mark L. Dietz, Renato Chiarizia, Herbert Diamond : Separation and Preconcentration of Uranium from Acidic Media by Extraction Chromatography, *Analytica Chimica Acta*, **266**, 25-37(1992)

大気浮遊じん中の天然放射性核種による 全 β 計数率と α β 同時計数率の関係性

松倉祐介 今 良暉 大坂直人*¹
三浦 太 安積 潔 神 俊雄

1. はじめに

青森県では、県内に立地する日本原燃株式会社原子燃料サイクル施設（以下「原子燃料サイクル施設」という。）、東北電力株式会社東通原子力発電所（以下「東通原子力発電所」という。）及びリサイクル燃料貯蔵株式会社リサイクル燃料備蓄センターを対象として環境放射線モニタリングを実施しており^{1~3}、その一環として、東通原子力発電所周辺において施設影響を監視するため大気浮遊じん中の全 β 放射能の測定を実施している。

令和4年度以前は、集じん部と測定部が分離したダストモニタ（以下「旧設機器」という。）を運用していたが、令和4年度末に機器更新を行い、令和5年度以降は、「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）」を踏まえ、集じん部と測定部が一体となった連続集じん・連続測定方式の $\alpha\beta$ 同時計数機構付きダストモニタ（以下「現行機器」という。）を運用している。本報では、現行機器の運用をとおして得られた天然放射性核種に係る知見を報告する。

2. 調査方法

2.1 ダストモニタの機器仕様及び測定条件

ダストモニタを運用する上で、測定値の変動に影響する天然放射性核種（主に Rn-222 及び Rn-220 の壊変生成物）の寄与を評価する必要がある。旧設機器及び現行機器の機器仕様及び測定条件を表1に示す。旧設機器では、3時間集じん直後に集じん箇所を検出器位置に移動させて10分間測定し、全 α 及び全 β 放射能の関係から、東通原子力発電所からの異常な放出を速やかに検知する運用としていた。

現行機器では、集じん位置に検出器を配置して全 α 及び全 β 放射能を連続測定している。施設寄与の弁別方法としては、県内に立地する原子燃料サイクル施設のうち再処理施設から α 線放出核種と β 線放出核種が共に放出される可能性を踏まえ、放射能測定法シリーズ No.36「大気中放射性物質測定法」⁴で示されている $\alpha\beta$ 同時計数率を用いた方法を採用している。

$\alpha\beta$ 同時計数率は、 β 線を検出した直後に α 線を検出する現象の頻度を表す。Rn-222の壊変図を図1に示す。Rn-222の壊変生成物である Bi-214の β 壊変と、Bi-214の壊変生成物である Po-214の α 壊変はほぼ同時に計数されるため、施設起因の α 線・ β 線放出核種の影響がない場合、天然放射性核種による $\alpha\beta$ 同時計数率と、 α 線・ β 線計数率には強い正の相関があることが報告されている^{4~6}。

2.2 可搬型ゲルマニウム半導体検出器の機器仕様及び測定条件

Rn-222 及び Rn-220 は、土壌中の U 系列・Th 系列に属する放射性核種の壊変生成物であることから、現行機器による測定値に対する評価の参考とするため、可搬型ゲルマニウム半導体検出

*1：現青森県危機管理局消防保安課

器による in-situ 測定を行い、各地点における土壤中の系列別の放射能濃度を比較することとした。可搬型ゲルマニウム半導体検出器の設置状況を図 2 に示す。

可搬型ゲルマニウム半導体検出器は、ORTEC 社製 Trans-SPEC-DX-100T を用いた。放射能測定法シリーズ No.33 「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」⁵⁾ に準拠し、地上高 1 m に可搬型ゲルマニウム半導体検出器を設置し、ダストモニタの採取間隔と合わせ、1 時間測定を自動繰返機能により 24 回行った。

土壤中の放射性物質濃度の解析法は、前述の「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」に準拠し、Beck らが開発した HASL の解析法を採用した。解析に当たっては、以下の条件を仮定した。

- ・周囲の地形は無限に開かれた平らな地形（無限平面）であること。
- ・天然放射性核種は土壤中で均一分布であること。なお、U 系列及び Th 系列の解析に当たっては、分岐比を考慮した。

表 1 更新前後の機器仕様及び測定条件

	旧設機器(令和 4 年度以前)	現行機器(令和 5 年度以降)
メーカー	Aloka 株式会社	富士電機株式会社
測定項目	全 α 計数率、全 β 計数率	全 α 計数率、全 β 計数率、αβ 同時計数率
集じん時間	3 時間	24 時間
測定位置	集じん位置の 1 ステップ後の位置	集じん位置
報告値	集じん終了直後の 10 分間平均値	集じん終了直前の 10 分間平均値
集じん方法	ろ紙間欠自動移動方式	同左(午前 9 時にろ紙移動)
大気吸引量	約 200 L/分	約 180 L/分
吸引口位置	地上 1.5~2.0 m	同左
校正線源	α 線用: ²⁴¹ Am、β 線用: ³⁶ Cl	同左
施設寄与の弁別方法	—	αβ 同時計数を用いた方法により施設起因の α・β 放射能を推定

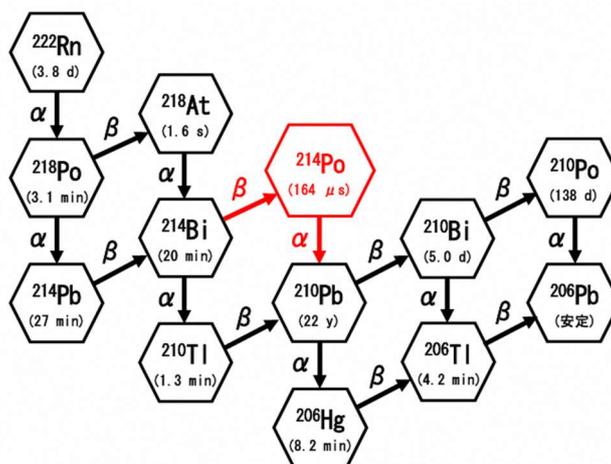


図 1 Rn-222 の壊変図

(放射能測定法シリーズ No. 36 「大気中放射性物質測定法」から引用)



図2 可搬型ゲルマニウム半導体検出器の設置状況

2.2 測定地点

東通原子力発電所に係る大気浮遊じん中の全 β 放射能測定地点を図3に示す²⁾。



図3 東通原子力発電所に係る大気浮遊じん中の全 β 放射能測定地点
(国土地理院電子地形図に追記)

3. 調査結果

3.1 現行機器における全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率の関係

全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率の関係を図4に、月ごとの全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率から算出した回帰直線の傾きを図5に示す。

いずれの地点においても全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率には強い正の相関が認められたが、小田野沢は他2地点と比較し、回帰直線から上振れしているように見える測定値が多いことを確認した。

回帰直線の傾きは、全地点で春季～夏季に大きい傾向を示し、全β計数率とαβ同時計数率の回帰直線から上振れしているように見える測定値が多い小田野沢は、他2地点と比較し春季～秋季において大きかった。一方で、冬季は全地点で一様に小さくなる傾向を示した。

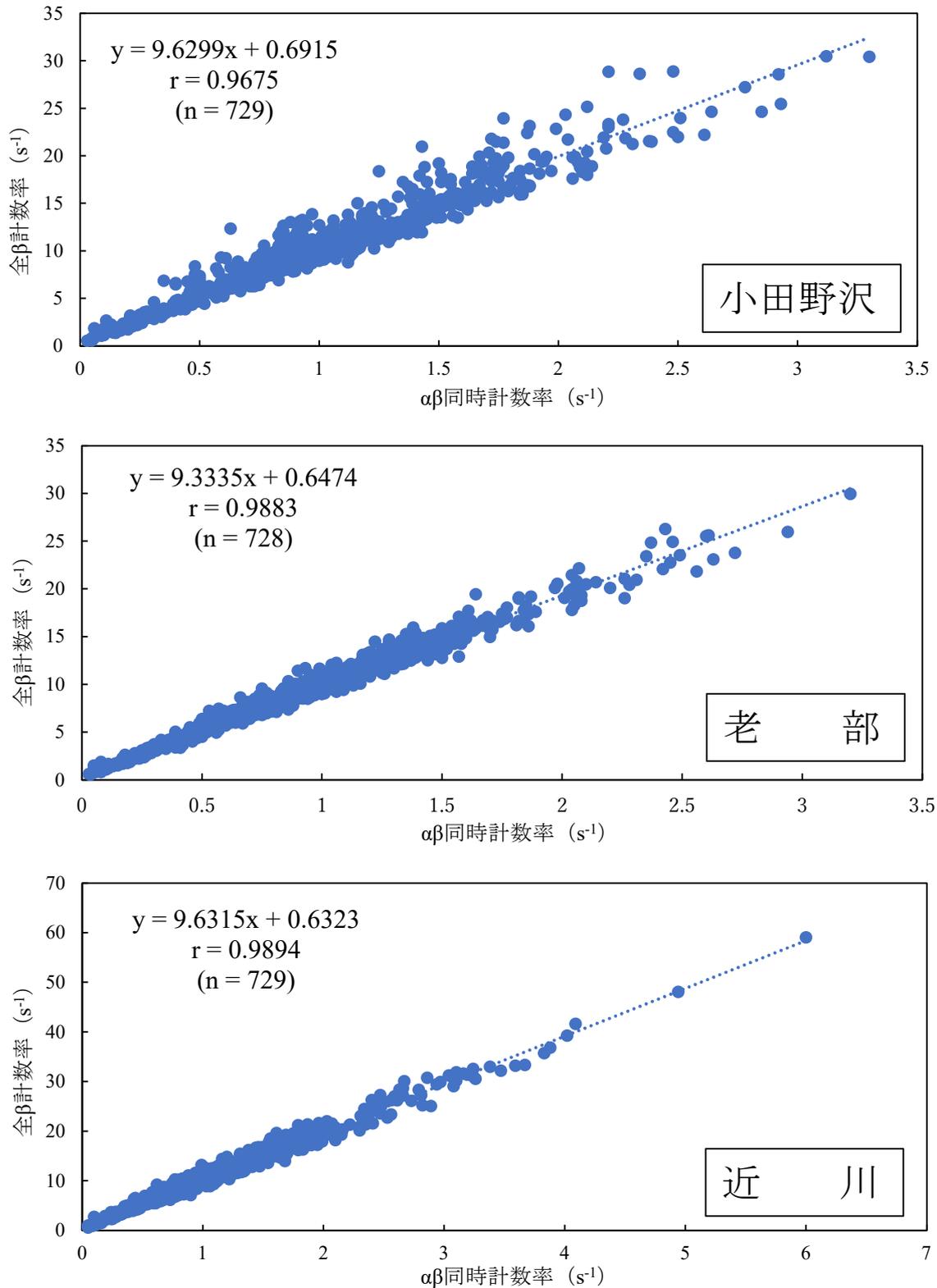


図4 全β計数率とαβ同時計数率の関係
(測定期間：令和5年4月～令和7年3月)

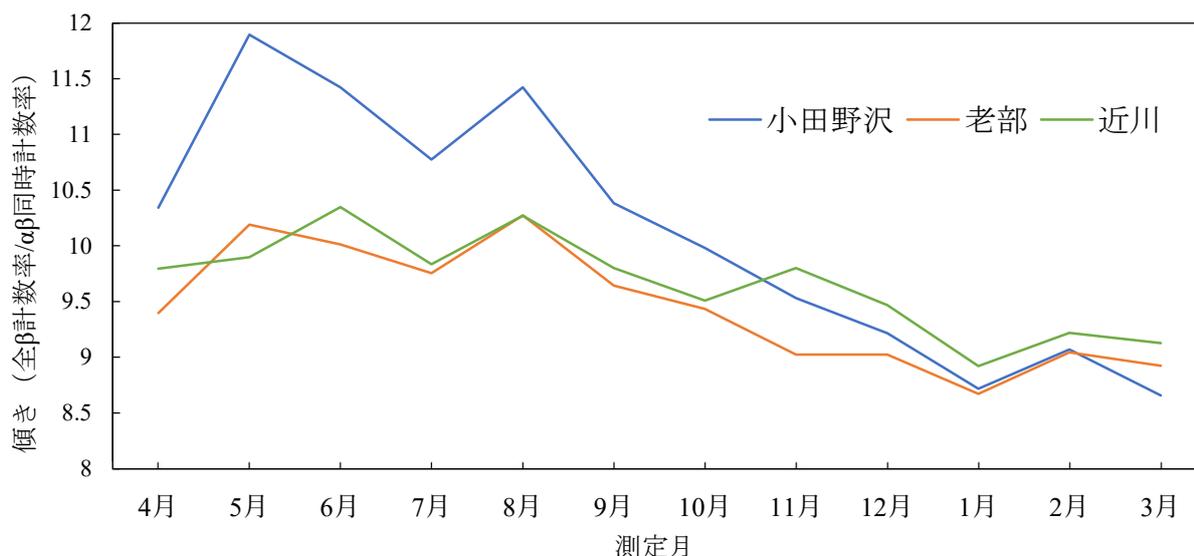


図5 月ごとの回帰直線の傾き

大気浮遊じん中に存在する天然放射性核種は主に、Rn-222 の壊変生成物と、Rn-220 の壊変生成物である。土壌中に存在する Rn-222 及び Rn-220 の親核種から生成したこれらの壊変生成物は、土壌からの Rn-222 及び Rn-220 の散逸や、微細な土壌粒子の舞い上がり等により大気浮遊じんとして捕集される。

Rn-222 及びその壊変生成物の半減期は比較的長いことから、測定地点近傍のみだけでなくユーラシア大陸など遠方起源のものも全 α ・全 β 放射能の測定値に影響する一方、Rn-220 及びその壊変生成物の半減期は 10^1 秒～約 10 時間と短いため、近傍の寄与が大きいと考えられる。

大西ら⁹⁾が当該弁別法を検討した際、吸引口の高さや Rn-220 の半減期の短さを考慮して、Rn-220 の壊変生成物が無視できると仮定し、大気浮遊じんとして Rn-222 の壊変生成物のみが存在するという前提において、天然放射性核種による $\alpha\beta$ 同時計数率と α 線計数率に強い正の相関があることを報告している。

仮に、Rn-222 の壊変生成物以外の放射性核種、例として施設起因の α 線・ β 線放射核種や Rn-220 の壊変生成物の濃度が相対的に高くなった場合には、 $\alpha\beta$ 同時計数率に対して全 α ・ β 計数率が増加し、結果として回帰直線の傾きが大きくなるとともに相関が弱くなることが考えられる。施設起因の放射性核種の影響が認められない状況で回帰直線を上回るものは、Rn-220 の影響が相対的に高い測定値と考えられる。

このことから、回帰直線の傾きが冬季に全地点で一様に小さくなる理由として、積雪により近傍における Rn-222 及び Rn-220 の大気への散逸が抑制され、遠方からの Rn-222 の壊変生成物の影響が支配的になるためと考えられる。

3.2 可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定結果

各地点における系列別の放射能濃度を表 2 に示す。各地点における Th 系列/U 系列の放射能濃度は 0.491～0.745 であり、小田野沢は他 2 地点と比較し U 系列に対する Th 系列の比が高いことから、小田野沢は測定地点近傍の土壌を起源とする Rn-220 の壊変生成物が寄与する割合が他 2 地点より高く、これにより、全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率の相関が他 2 地点より低くなっている可

能性が考えられる。

表 2 各地点における系列別の土壤中放射能濃度

地点	放射能濃度 (Bq/g)			Th 系列 /U 系列
	U 系列	Th 系列	K-40	
小田野沢	0.0102	0.00760	0.107	0.745
老部	0.0109	0.00536	0.0823	0.491
近川	0.0124	0.00768	0.106	0.619

5 まとめ

令和 5 年度から運用開始した現行機器から得られた天然放射性核種に関する知見を取りまとめた。全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率の関係は、いずれの地点においても強い正の相関が認められたが、小田野沢は他 2 地点と比較して、回帰直線から上振れしているように見える測定値が多かった。

月ごとの全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率から算出した回帰直線の傾きは全地点で春季～夏季に大きく、全 β 計数率と $\alpha\beta$ 同時計数率の回帰直線から上振れしているように見える測定値が多い小田野沢は、他 2 地点と比較して春季～秋季において大きいことを確認した。一方で、冬季は全地点で一様に小さくなる傾向を示した。

変動要因の一因として、積雪や土壤中の U 系列・Th 系列の組成の違いが影響している可能性が考えられるが、詳細な検討のためには更にデータを蓄積していく必要がある。

文 献

- 1) 青森県：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（令和7年3月）
- 2) 青森県：東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング計画（令和7年3月）
- 3) 青森県：リサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線モニタリング計画（令和7年3月）
- 4) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ36「大気中放射性物質測定法」（令和4年）
- 5) 大西勝基、島田秀志、吉岡満夫、早川博信：「放射性浮遊塵中の人工放射能識別（I）」（福井県環境放射線監視センター年報,第15号,83-92(1991-1992)）
- 6) 外川洋一、山口栞奈、舘憲治、佐々木耕一：「ダストモニタにおける α β 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）
- 7) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ33「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」（平成29年）

LB-7 による C-14 測定の検討

工藤 翔 安積 潔

1. はじめに

本県では、「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング実施計画（以下、「モニタリング計画）」という。）に基づき、牛乳や野菜といった農畜産物中に含まれる C-14 の分析を行っている。C-14 の測定には、Revvity 社製の液体シンチレーション計数装置 QUANTULUS GCT6220（以下、「QUANTULUS」という。）を使用しているが、1 台しか所有していないため、不具合が発生した場合に復旧までの間モニタリングに支障が出るおそれがあることが課題となっている。一方、本県は、トリチウムの測定用にアロカ社製液体シンチレーション計数装置 LB-7（以下、「LB-7」という。）を複数台所有している。LB-7 は 20 mL 以上の容量を持つバイアルを用いた測定を想定した設計であり、C-14 の測定試料約 3 mL に対して大きすぎることから、これまで C-14 の測定には使用してこなかった。しかし、LB-7 を C-14 測定に使用できれば、QUANTULUS に不具合が発生した場合の代替機器として使用できることから、LB-7 を用いた C-14 の測定方法について検討した。

2. 測定方法

(1) 測定試料の調製

測定試料の調製は、放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」¹⁾に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション測定法により行った。分析工程を図 1 に示す。試料は令和 6 年度に採取した精米（室ノ久保）を使用した。酸素雰囲気下のチャンバー内で精米を完全燃焼させて CO₂ とし、金属リチウムと反応させて Li₂C₂ とした。その後、水と反応させて C₂H₂ とし、Cr₂O₃ との触媒反応で最終的にベンゼン C₆H₆ とした。8 mL ガラスバイアル内でベンゼン 2.0 mL、液体シンチレータ（5w/v% プチル PBD-トルエン溶液）0.5 mL を混合し、測定試料とした。また、ブランク試料の計数率及び計数効率を算出するために、大理石（C-14 を含まない CaCO₃）及び NIST シュウ酸二水和物 SRM4990C からそれぞれ CO₂ を生成し、同様の手順でベンゼンを合成し、液体シンチレータと混合し、それぞれブランク試料、標準試料とした。

(2) 測定

(1)により調製した測定試料を LB-7 及び QUANTULUS により測定した。表 1 に詳細な測定条件を示す。

表 1 に詳細な分析条件を示す。試料容器として 8 mL ガラスバイアルを使用した以外は、従来法と同じ条件である。ただし、LB-7 は 20 mL 以上の容量を持つバイアルを用いた測定を想定した設計であり、8 mL バイアルはそのままでは小さすぎてサンプルチェンジャー上に設置できない。そのため、図 2 のとおり、8 mL バイアルが丁度よく収まる形状の 20 mL ポリバイアルに差し込むことで固定した。

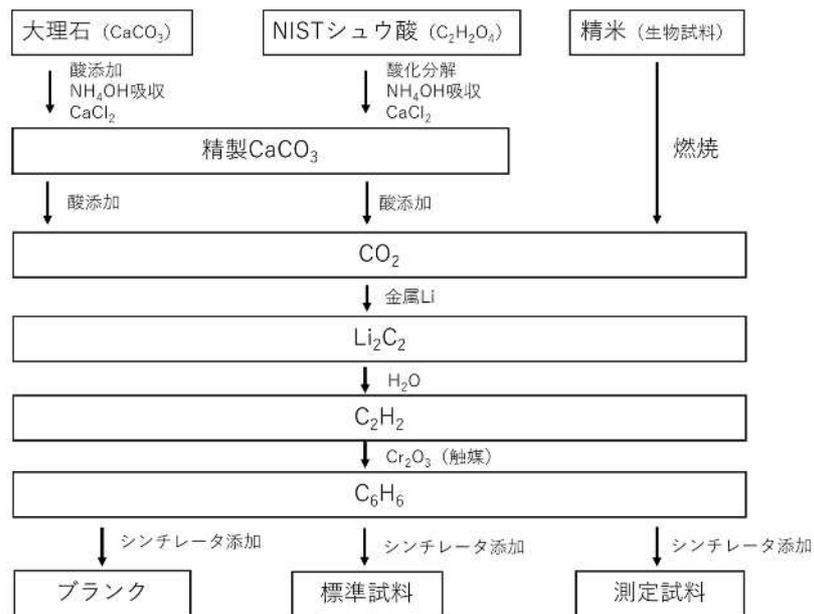


図1 C-14の分析工程

表1 C-14分析条件

	LB-7による測定	QUAUTULUSによる測定 (従来法)
測定機器	液体シンチレーション計数装置 LSC-LB7 (アロカ社製)	液体シンチレーション計数装置 Quantulus GCT 6220 (Revvity社製)
検出器(光電子増倍管)数	3	2
対応バイアルサイズ	145, 100, 20 mL	20, 7, 4 mL
エネルギー領域	3~156 keV	0~156 keV
試料容器	ガラス 8 mL (20mL ポリバイアルに入れて固定)	テフロン 3 mL
シンチレータ	5 w/v%ブチル PBD-トルエン溶液 0.5 mL	
測定供試量	ベンゼン 2.0 mL	
測定時間	500 分	

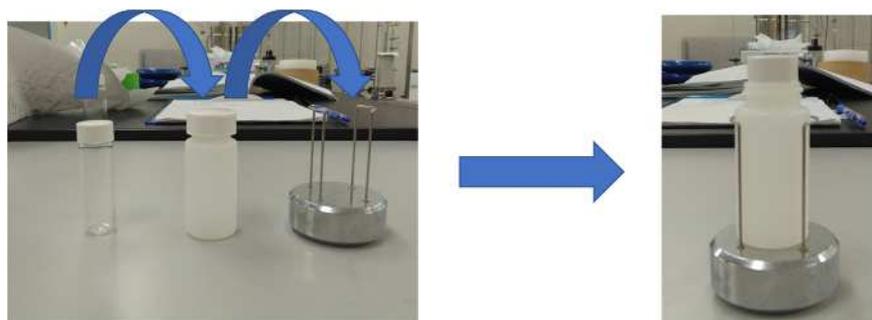


図2 測定バイアルの固定方法

3. 測定結果

測定結果を表 2 に示す。LB-7 の計数効率、QUANTULUS の計数効率と比較して低く、計数誤差が若干大きくなったが、比放射能は QUANTULUS による測定値とほぼ一致した。また、以下の式で算出した検出限界濃度は、LB-7 の測定では 0.00284 Bq/g 炭素であり、本県が定めている定量下限値 0.004 Bq/g 炭素²⁾を下回った。なお、実際の運用においては、測定するエネルギー領域を最適化して計数効率を上げることや、測定時間を増やすこと等により、さらに検出限界値を低減することも可能と考えられる。

$$\text{検出限界濃度 (Bq/g 炭素)} = \frac{n_n}{\frac{E}{100} \times W \times 60}$$

$$n_n = \frac{3}{2} \left\{ \frac{3}{T_s} + \sqrt{\left(\frac{3}{T_s}\right)^2 + 4n_b \left(\frac{1}{T_s} + \frac{1}{T_b}\right)} \right\}$$

n_n : 検出限界計数率 (cpm)
 E : 計数効率 (%)
 W : 測定に供したベンゼン中の炭素量 (g 炭素)
 T_s : 試料計測時間 (500 分)
 n_b : バックグラウンド計数率 (cpm)
 T_b : バックグラウンド計測時間 (500 分)

表 2 令和 6 年度の精米（室ノ久保）測定結果

使用機器	計数率(cpm)			計数効率 (%)	比放射能 (Bq/g 炭素)	検出限界 (Bq/g 炭素)
	ブランク	標準試料	試料			
LB-7 による測定	0.524 ±0.0324	16.2 ±0.54	12.3 ±0.15	51.2	0.228 ±0.0031	0.00284
QUANTULUS による測定 (従来法)	0.218 ±0.0209	25.6 ±0.21	19.5 ±0.19	84.1	0.227 ±0.0023	0.00117

4. 結論

LB-7 により C-14 測定を行った結果、従来法(QUANTULUS による測定)とほぼ同じ比放射能が得られた。C-14 測定において、QUANTULUS が不具合を起こした際の代替機器として利用可能であると考えられる。

文 献

- 1) 原子力規制庁：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（令和 7 年）
- 2) 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実施要領（令和 7 年 3 月）

II 学会発表等要旨

トリプル四重極 ICP-MS を用いた固相抽出法による葉菜中 ^{129}I 分析法の検討

檜山宝孝 葛西邦生* 安積 潔

日本保健物理学会第 58 回研究発表会, 茨城県水戸市, 2025. 12. 18-12. 20

^{129}I は、再処理工場の平常時モニタリング上、長期的な蓄積状況、変動傾向の把握が必要とされている核種である。分析法については、放射能測定法シリーズ 26「ヨウ素-129 分析法」が定められており、令和 7 年 6 月に改訂が行われ、トリプル四重極 ICP-MS 分析法が追加された。今回、今後を見据えたモニタリング手法を検討するため、前処理に特殊な燃焼装置を用いない TMAH 溶液による抽出、比較的簡便な固相抽出法による分離精製及びトリプル四重極 ICP-MS を用いた葉菜中 ^{129}I 分析法の検討を行った。

前処理において、アルカリ抽出後、ペルオキシ二硫酸カリウムによる有機態ヨウ素を分解する工程を追加することにより、葉菜中ヨウ素の回収率が向上した。また、 ^{129}I 添加試料を用いた分析では、 ^{129}I 測定値と ^{129}I 添加量の比は 1.00~1.02 とよく一致しており、ヨウ素担体回収率も 80% 程度と良好であった。試料中 ^{129}I の検出限界は $1.25 \times 10^{-9} \text{ g}$ ($8.2 \times 10^{-3} \text{ Bq}$) /kg 生 (供試量 1 g 乾 (10 g 生相当)、ヨウ素担体回収率 80%とした場合) であり、この値は再処理工場の安全審査において、事業者が評価している平常時の葉菜中 ^{129}I 濃度 ($3.6 \times 10^{-2} \text{ Bq/kg}$ 生) を下回っていることから、同工場の稼働後においては平常時モニタリングに適用できる分析法となる可能性が示唆された。

* : 現青森県危機管理局原子力安全対策課

DGA レジンをを用いた固相抽出法による ^{90}Sr 迅速分析法の検討

松倉祐介 奥山凱斗 檜山宝孝 安積 潔
令和 7 年度環境放射能水準調査に係る技術検討会,
東京都中央区, 2026. 3. 13

ストロンチウム-90 (^{90}Sr) は、原子力関連施設からの周辺環境への影響を把握するために重要な放射性核種である。しかしながら、放射能測定法シリーズ「放射性ストロンチウム分析法」による分析法（以下「従来法」という。）は、煩雑な分析操作や長い分析期間を要する。

当該測定法シリーズが令和 7 年 6 月に改訂された際、従来法よりも短時間で測定結果が得られる固相抽出法に係る記載が参考として追加されたことを踏まえ、DGA レジンをを用いた固相抽出法により、農畜産物からイットリウムを分離精製する迅速分析法（以下「迅速法」という。）の検討を行った。

この分析法は、分析開始時点で ^{90}Sr と ^{90}Y が放射平衡に達しているという条件のもと、 ^{90}Y 直接分離から測定までを同日中に完了することで、分析期間を 3 週間程度短縮するものである。

認証標準試料（IAEA-330 及び IAEA-479）を用いた迅速分析の真度（ $n=3$ ）は、IAEA-330 においては 111 %、IAEA-479 においては 105 %であった。

環境試料（キャベツ、ダイコン、ナガイモ及びハクサイをそれぞれ生 1 kg 相当）による迅速法/従来法の測定結果の比は 0.83 – 0.95、迅速法による ^{90}Sr の放射能濃度の検出限界は 0.021 - 0.027 Bq/kg 生であった。迅速法により得られた測定結果は従来法と概ね同程度であり、検出限界は県が定める定量下限値（0.04 Bq/kg 生）を下回った。

青森県東通原子力発電所周辺における 大気浮遊じん及び降下物中の放射能濃度

檜山宝孝 奥山凱斗 安積 潔

第27回「環境放射能」研究会，茨城県つくば市，2026.3.11-3.13

青森県では、東通原子力発電所周辺において、同発電所からの影響を把握するとともに、当該地域における放射能の水準を把握するため、大気浮遊じん及び降下物の放射能測定を行っており、今般、主に検出される ^7Be 等の天然放射性核種のほか、 ^{137}Cs 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 等の人工放射性核種について近年の測定結果をとりまとめた。

大気浮遊じん中の ^7Be 及び ^{210}Pb 濃度はそれぞれ 1.1 mBq/m^3 から 5.5 mBq/m^3 、 0.21 mBq/m^3 から 1.4 mBq/m^3 の範囲であり、両核種とも夏季に低下する傾向にあった。

降下物（月間）中の ^7Be 及び ^{210}Pb 濃度はそれぞれ 37 Bq/m^2 から 636 Bq/m^2 、 6.5 Bq/m^2 から 118 Bq/m^2 の範囲であり、 ^{210}Pb は夏季に低下する傾向にあったが、 ^7Be は明瞭な季節変動が見られなかった。また、 ^{137}Cs は検出限界以下から 0.067 Bq/m^2 の範囲であり、春季に検出される傾向にあった。降下物（年間）中の ^{90}Sr 及び $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度はそれぞれ検出限界以下から 0.50 Bq/m^2 、 0.0028 Bq/m^2 から 0.0056 Bq/m^2 の範囲であり、両核種ともに近年大きな変動は見られなかった。

近年のトピックスとして、県内において、2023年1月～2023年3月に大気浮遊じんから ^{238}Pu が検出され、主な発生期間は2023年3月だと考えられた。また、(公財)日本分析センターの報告によると、同期間、千葉県千葉市においても ^{238}Pu が検出されており、発生期間及び ^{238}Pu 濃度、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比から同様の事象によるものと考えられた。 ^{238}Pu 濃度が最も高い濃度が1年間継続する仮定して算出した年間の吸引による実効線量は 38 nSv/年 であり、日本人の1年間の被ばく線量の平均値 (2.1 mSv/年) と比べ、十分に低い線量であった。

Ⅲ 令和7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7年度調査内容 —

工藤 翔 奈良和久 安積 潔
幸 進* 菅野邦昭* 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6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7年度調査内容

令和7年度の調査内容等を表1に示す。令和7年度は、令和6年度と同じ内容であり、その調査結果については令和8年度にとりまとめることとしている。

なお、令和8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 7 年度の調査内容等

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		—	○	○	—	—
事業者	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	○	○	—	○	○

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

神 俊雄 木村芳伸

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、六ヶ所再処理工場から放出されたトリチウムの環境大気中における化学形別の濃度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7年度は、前年度に引き続き、1か月単位の連続採取を行った。

2. 調査方法

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、エヌ・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 LC 0.5mm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。

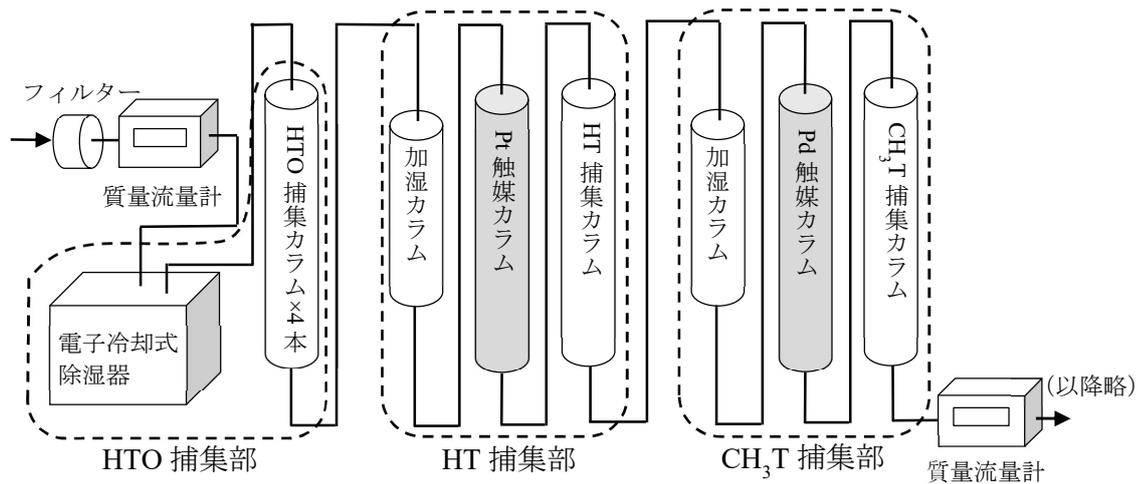


図1 採取装置構成

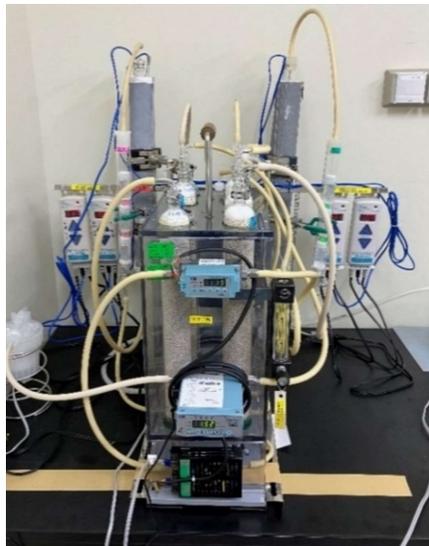


図2 採取装置外観

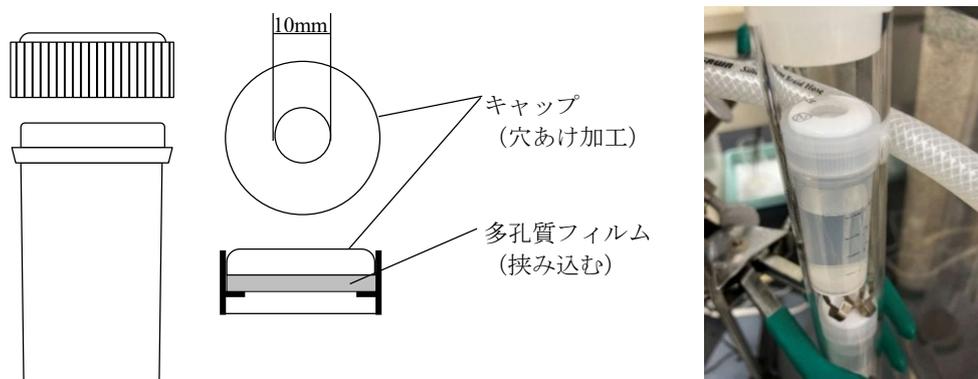


図3 加湿バイアルの構造及び外観

2.2 分析・測定

HTO、HT 及び CH₃T の各捕集カラムを、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て試料水として回収した。HT 及び CH₃T の捕集カラムに供給された水蒸気は、捕集カラムの入口側に偏在して捕集されていることから、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、脱離した水蒸気が水分を捕集していないモレキュラーシーブ近傍を通過しないように留意した。なお、HT 捕集カラムに対しては、念のため捕集水回収後に無トリチウム水を 15 mL 程度加えて加熱回収し、先に回収した試料水と混合した。採取装置前段の電子冷却式除湿器により捕集された大気中水分は、HTO 捕集カラムから回収した試料水と合わせ、以降の分析に供した。

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 試料水は減圧蒸留を、HT 及び CH₃T 試料水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。測定容器には容量 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

各地点の測定結果の推移を図 6~9 に示す (図中、誤差棒は計数誤差の 3 倍を示す)。図には、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を併せて掲載している。各測定結果の詳細は文末表 1 及び表 2 に示した。

大気中 HTO 濃度 (図 6) は概ね採取期間中の平均絶対湿度* (図 7) と連動して変動していた。

一方、HT (図 8) 及び CH₃T (図 9) 濃度は、いずれの地点も概ね一定であり、明確な時間的変動は認められなかった。また、地点間の濃度にも明確な差は認められなかった。

* 絶対湿度 [g/m³] = 捕集した大気中水分量 [g] / 採取量 [m³]

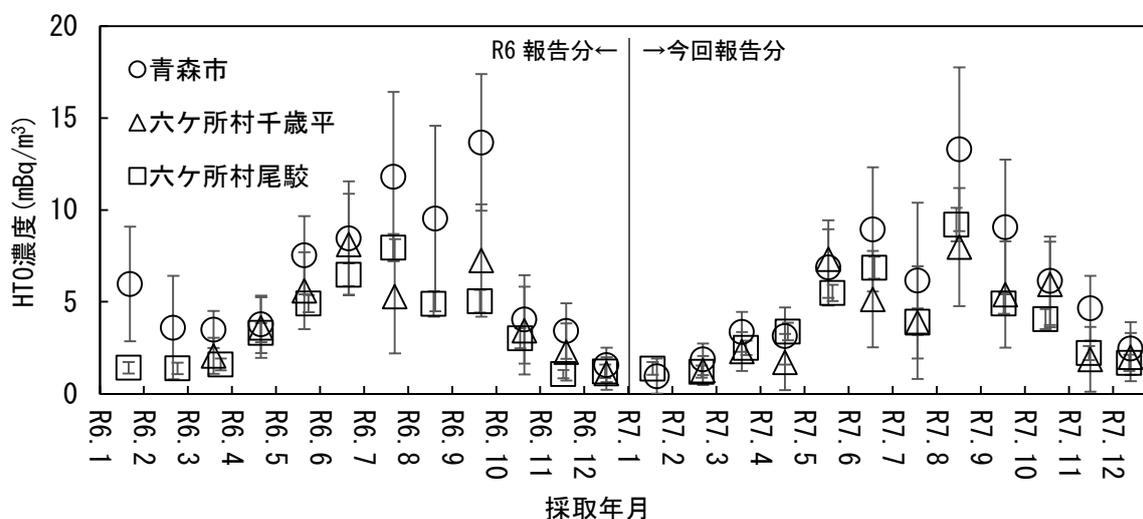


図 6 HTO 濃度の推移

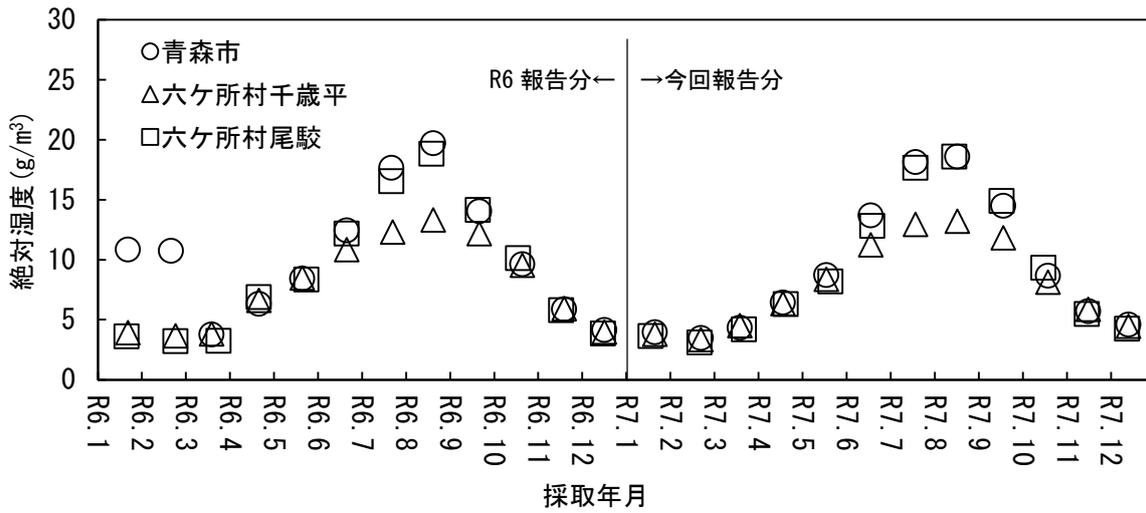


図7 絶対湿度の推移

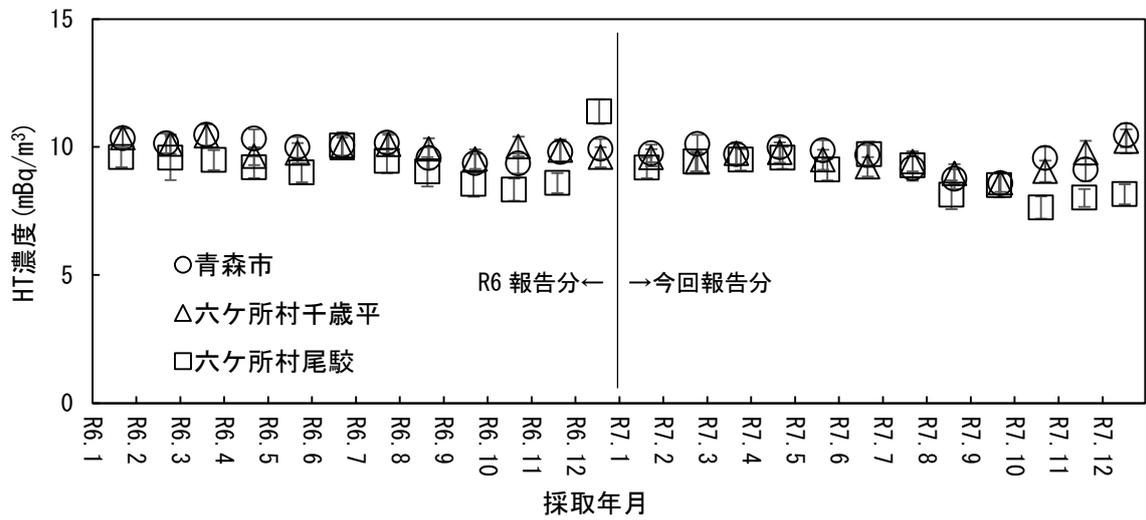


図8 HT濃度の推移

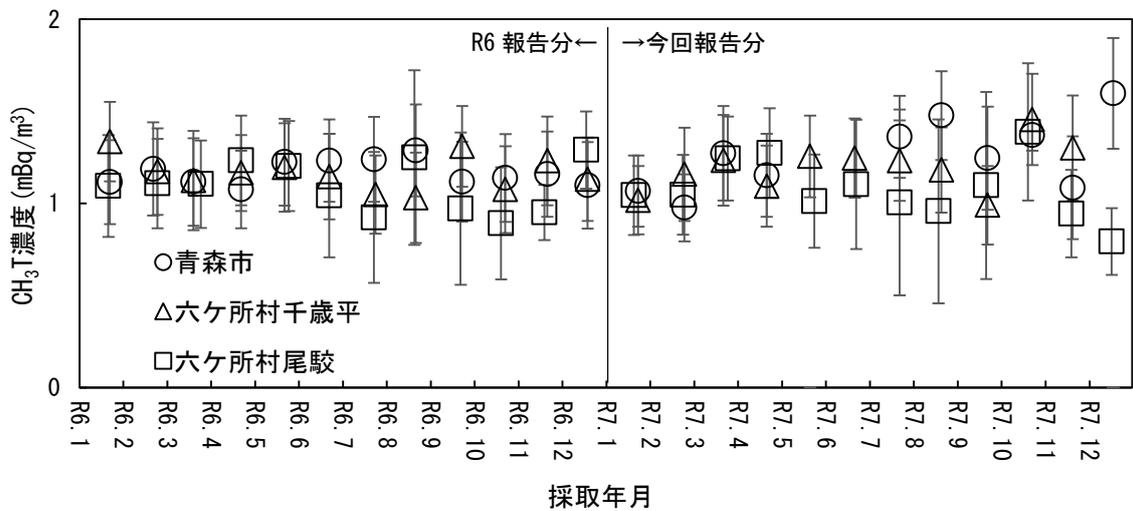


図9 CH₃T濃度の推移

4. まとめ

青森市及び六ヶ所村千歳平の2地点で1か月ごとに連続採取したHT及びCH₃Tの測定値は、概ね一定の値を示しており、明確な時間的変動は認められなかった。また、地点ごとの測定値にも明確な違いは認められなかった。

今後も2地点での連続採取を継続し、再処理施設稼働前の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

本調査結果の考察に当たり、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7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。

表1 採取条件及び測定結果 (青森市)

採取期間(日数)	絶対湿度			測定結果(mBq/m ³) ^{※1}		
	流速 (L/min)	採取量 (m ³)	絶対湿度 (g/m ³)	HTO	HT	CH ₃ T
R6.12.27 ~ R7.1.31 (35)		75.8	4.0	0.97 ± 0.31	9.75 ± 0.11	1.07 ± 0.06
R7.1.31 ~ R7.3.4 (33)		69.8	3.5	1.89 ± 0.28	10.1 ± 0.12	0.98 ± 0.06
R7.3.4 ~ R7.3.31 (27)		57.8	4.4	3.37 ± 0.36	9.72 ± 0.13	1.27 ± 0.08
R7.3.31 ~ R7.4.30 (30)		64.2	6.4	3.15 ± 0.52	9.99 ± 0.13	1.15 ± 0.07
R7.4.30 ~ R7.5.30 (30)		61.1	8.7	6.88 ± 0.69	9.86 ± 0.13	- ^{※2}
R7.5.30 ~ R7.6.30 (31)	1.5	58.6 ^{※3}	13.7	8.95 ± 1.12	9.69 ± 0.13	- ^{※4}
R7.6.30 ~ R7.7.31 (31)		66.3	18.1	6.17 ± 1.41	9.17 ± 0.16	1.36 ± 0.07
R7.7.31 ~ R7.8.29 (29)		61.7	18.6	13.3 ± 1.48	8.75 ± 0.12	1.48 ± 0.08
R7.8.29 ~ R7.9.30 (25) ^{※5}		53.7	14.5	9.08 ± 1.22	8.58 ± 0.13	1.25 ± 0.09
R7.9.30 ~ R7.10.31 (31)		67.0	8.7	6.16 ± 0.80	9.57 ± 0.14	1.37 ± 0.08
R7.10.31 ~ R7.11.28 (28)		60.8	5.7	4.66 ± 0.58	9.12 ± 0.14	1.09 ± 0.09
R7.11.28 ~ R7.12.26 (28)		60.9	4.6	2.47 ± 0.48	10.5 ± 0.15	1.60 ± 0.10

※1 誤差は計数誤差

※2 採取装置不具合 (一時的な触媒カラムの加熱停止) のため欠測

※3 流量計後段から大気が流入したため、近傍の気象観測地点 (青森地方気象台、西南西 2 km) の観測値 (気温、相対湿度) と捕集水量から大気採取量を算出

※4 採取装置不具合 (捕集カラムの水分飽和) のため欠測

※5 9/9~9/16の間、採取停止したため、この期間を除外して評価した

表2 採取条件及び測定結果 (六ヶ所村千歳平)

採取期間(日数)	絶対湿度			測定結果(mBq/m ³) ^{※1}		
	流速 (L/min)	採取量 (m ³)	絶対湿度 (g/m ³)	HTO	HT	CH ₃ T
R6.12.27 ~ R7.1.31 (35)		75.9	3.8	< 0.28	9.59 ± 0.11	1.02 ± 0.06
R7.1.31 ~ R7.3.4 (33)		68.6	3.4	1.28 ± 0.26	9.41 ± 0.12	1.16 ± 0.08
R7.3.4 ~ R7.3.31 (27)		58.2	4.5	2.31 ± 0.35	9.75 ± 0.13	1.23 ± 0.08
R7.3.31 ~ R7.4.30 (30)		63.2	6.4	1.73 ± 0.50	9.79 ± 0.13	1.09 ± 0.07
R7.4.30 ~ R7.5.30 (30)		63.8	8.4	7.34 ± 0.70	9.50 ± 0.13	1.26 ± 0.07
R7.5.30 ~ R7.6.30 (31)	1.5	66.1	11.3	5.16 ± 0.87	9.23 ± 0.12	1.25 ± 0.07
R7.6.30 ~ R7.7.31 (31)		66.4	13.0	3.88 ± 1.02	9.42 ± 0.12	1.23 ± 0.07
R7.7.31 ~ R7.8.29 (29)		62.8	13.2	7.99 ± 1.07	8.97 ± 0.12	1.18 ± 0.07
R7.8.29 ~ R7.9.30 (32)		69.3	11.9	5.41 ± 0.96	8.61 ± 0.11	0.99 ± 0.07
R7.9.30 ~ R7.10.31 (31)		67.4	8.1	5.96 ± 0.77	9.05 ± 0.13	1.46 ± 0.08
R7.10.31 ~ R7.11.28 (28)		60.3	5.9	1.88 ± 0.58	9.78 ± 0.15	1.30 ± 0.09
R7.11.28 ~ R7.12.26 (28)		60.2	4.5	2.00 ± 0.43	10.2 ± 0.15	- ^{※2}

※1 誤差は計数誤差

※2 採取装置不具合 (一時的な触媒カラムの加熱停止) のため欠測

編集委員

工藤俊明（委員長） 橋 健（副委員長） 澤田 譲 和田浩司
安積 潔 檜山宝孝 神 俊雄

青森県原子力センター所報 第20号(2025)

令和8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

