

# 青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 7 号

平成 24 年度

Bulletin  
Of  
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.7 (2012)

青森県原子力センター

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



## は じ め に

青森県では、六ヶ所村において日本原燃(株)のウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター及び高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センターが操業しており、再処理工場ではアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が実施されています。東通村においては、東北電力(株)東通原子力発電所1号機が平成17年12月に運転を開始しましたが、現在は定期検査中となっています。また、六ヶ所村に日本原燃(株)のMOX燃料加工施設、大間町に電源開発(株)の大間原子力発電所及びむつ市にリサイクル燃料貯蔵(株)のリサイクル燃料備蓄センターの建設が進められています。

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

平成23年3月に発生した東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故を契機に、環境放射線モニタリングの重要性が改めて認識されるようになりました。正確な測定結果を公表することはもとより、緊急時における迅速で広範囲な状況把握、放射性物質の環境での分布・挙動の解明、測定結果が持つ意味のわかりやすい説明など、住民の方々の安全確認と安心感の醸成に対するより一層の取組が求められています。

当センターで進めている調査研究事業は、環境放射線モニタリング結果の評価に資するとともに、職員の技術的能力の維持・向上につながるものであり、上記のような社会的ニーズにも応えることができると考えています。このため、今年度も、これまで実施してきた調査研究の成果や日常のモニタリングで得られた知見についてとりまとめ、所報として発刊することといたしました。ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご教示を賜りますようお願い申し上げます。

この所報第7号のとりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員をはじめ多くの専門家の方々からご意見・ご指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。今後とも、職員一人一人が研鑽を積みながら一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、引き続きご支援いただきますようよろしくお願い申し上げます。

平成25年3月

青森県原子力センター

所 長 木 村 秀 樹



## 目 次

### I 研究報告

1. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・・・・・・・・・ 3  
今 壽貴 木村芳伸 大下内 伸 工藤俊明  
貝森優希 佐々木久美子 五十嵐飛鳥 木村秀樹
2. 青森県における空間放射線量率特性調査・・・・・・・・・・・・・・・・ 15  
大坂直人 大久保英樹 木村秀樹

### II 技術報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 23  
ー平成 23 年度調査結果ー  
二瓶祐介 工藤俊明 今 壽貴 竹ヶ原 仁  
幸 進 岡 光昭 武石 稔
2. 青森県の環境放射線モニタリング及び環境放射能水準調査における東京電力（株）  
福島第一原子力発電所事故の影響について・・・・・・・・・・・・・・・・ 35  
五十嵐 健 工藤俊明 山口和貴 葛西邦生 二瓶祐介  
田中義也 佐々木耕一 安藤史孝 深堀雄基

### III 学会等発表要旨・・・・・・・・・・・・・・・・ 55

### IV 平成 24 年度調査研究事業報告

1. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・・・・・ 59
2. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・ 69
3. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 71
4. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討・・・・・・・・ 73
5. 青森県における空間放射線量率特性調査・・・・・・・・・・・・・・・・ 79

## 原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

# I 研 究 報 告





## 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

今 壽貴 木村芳伸 大下内 伸\*<sup>1</sup> 工藤俊明  
貝森優希\*<sup>2</sup> 佐々木久美子\*<sup>3</sup> 五十嵐飛鳥\*<sup>4</sup> 木村秀樹

大気中トリチウム (T) を、水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH<sub>3</sub>T 等) の 3 種の化学形別に採取・測定する方法について検討し、実際の環境において調査を行った。まず、採取装置をモニタリングステーションに設置するため、HT 及び CH<sub>3</sub>T のキャリアーとして可燃性ガスを用いない加湿カラム法について検討し、HTO、HT 及び CH<sub>3</sub>T が概ね定量的に採取できることを確認した。さらに、モニタリングステーションでの試料採取条件について検討し、六ヶ所再処理工場周辺地域に設置したモニタリングステーション尾駱局及び吹越局において調査を実施した。測定結果は、過去に(公財)環境科学技術研究所が六ヶ所村で調査した結果と同程度であった。

### 1. はじめに

トリチウム (T) は、成層圏において空気と宇宙線の相互作用で生成する自然放射性核種であり、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH<sub>3</sub>T 等) の 3 種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の 200 倍以上が環境中に放出されており、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている<sup>1)</sup>。

青森県では、平成 17 年 12 月に東通原子力発電所が営業運転を開始し、平成 18 年 3 月には六ヶ所再処理工場がアクティブ試験を開始しており、県は、トリチウムの放出量が比較的多いとされている六ヶ所再処理工場周辺地域のモニタリングステーションにおいて、大気中水蒸気状トリチウム (HTO) のモニタリングを継続して行っている。再処理施設から大気中へ放出されるトリチウムの化学形は、東海再処理施設では全トリチウムのうち約 26 %が HT (CH<sub>3</sub>T 等を含む。) の化学形であったとの報告<sup>2)</sup>があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスを使用する方法<sup>3)</sup> (以下「従来法」という) が用いられている。しかし、例えばモニタリングステーションのように、長期間採取状況を監視できない場合に対応するために、可燃性ガスの代わりに加湿カラムを用いる方法 (以下「加湿カラム法」という) が提案されている<sup>4),5)</sup>。本調査では、まず、加湿カラム法により HT 及び CH<sub>3</sub>T が定量的に採取できることを確認し、採取条件を検討した後、モニタリングステー

\*1：現八戸環境管理事務所

\*2：現青森県下北地域県民局地域連携部むつ環境管理事務所

\*3：現東青県民局健康福祉部 (保健総室)

\*4：現青森県環境保健センター

ション尾駁局及び吹越局（以下、MS 尾駁及び MS 吹越）において調査を行い、化学形別トリチウムのバックグラウンドレベルを把握した。

## 2. 調査方法

### 2.1 採取方法

#### (1) 採取装置

従来法による採取装置を図1、加湿カラム法による採取装置を図2に示す。大気は、採取装置の最後に設置した真空ポンプ（DA-30D、ULVAC）で吸引し採取装置に導入する。入口側には、焼結金属製フィルターを設置し、大気の採取速度と総量はデジタル流量計で測定する。化学形別トリチウムは、モレキュラーシーブ 3A を充填した HTO カラム、HT カラム及び CH<sub>3</sub>T カラムに捕集する。

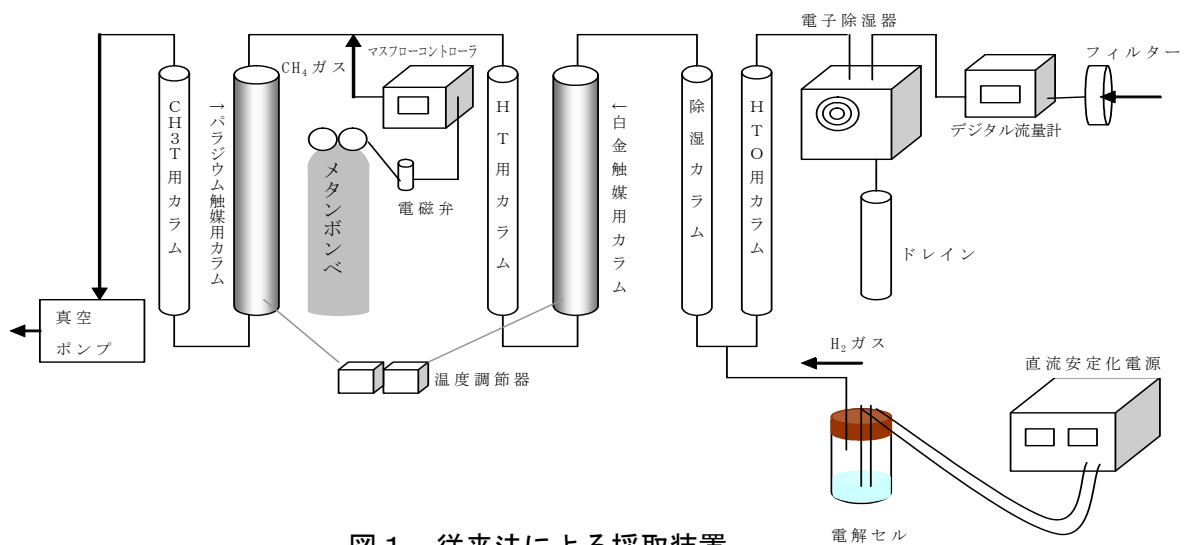


図1 従来法による採取装置

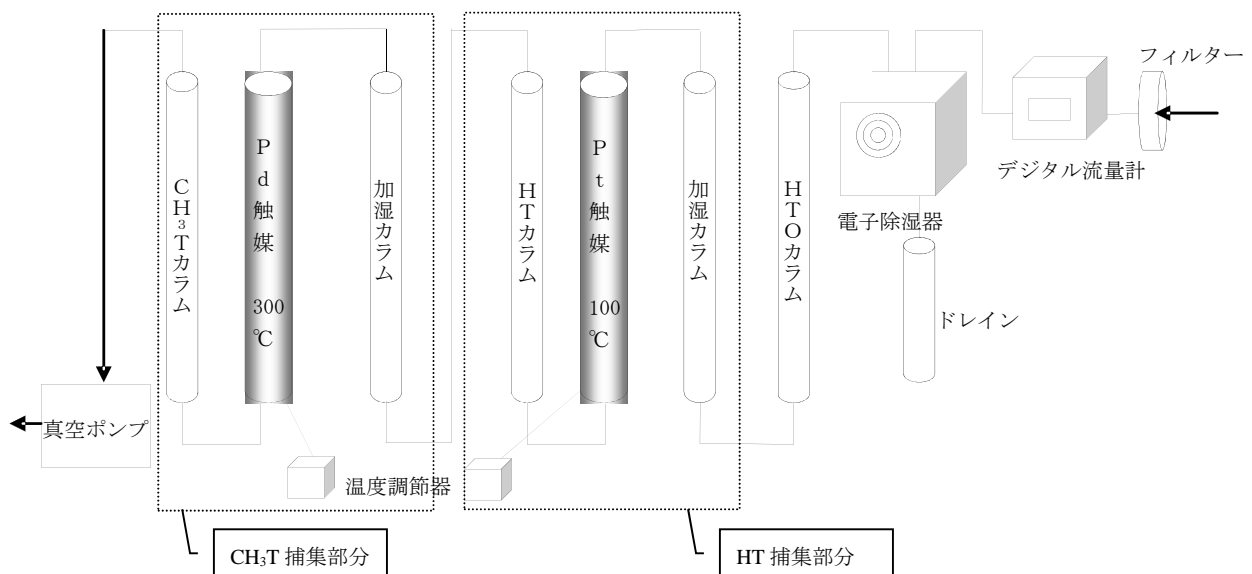


図2 加湿カラム法による採取装置

HTO については、電子除湿器（出口露点 1~3°C）により一部を捕集した後、残りを HTO カラムに捕集する。

HT については、100°C に加熱した Pt 触媒 (Pt を担持させたメタルハニカム触媒、Pt 担持量 6.0g/L、25mm φ × 40mm、3 個) で酸化し、水として HT カラムに捕集する。この際、大気中の H<sub>2</sub> 濃度が低いため、キャリアを添加する必要があるため、図 1 の従来法では無トリチウム水を電気分解させて発生した H<sub>2</sub>、図 2 の加湿カラム法では無トリチウム水蒸気を添加する。

CH<sub>3</sub>T については、300°C に加熱した Pd 触媒 (DASH-220D、2-4mm φ、NECHEMCAT) で酸化し、水として CH<sub>3</sub>T 用カラムに捕集する。この際、大気中の CH<sub>4</sub> 濃度が低いため、キャリアを添加する必要があるため、図 1 の従来法ではトリチウムの入っていない石油起源の CH<sub>4</sub>、図 2 の加湿カラム法では無トリチウム水蒸気を添加する。

加湿カラム法における無トリチウム水蒸気の供給は、図 3 に示す加湿カラムを用いた。プラスチックバイアルに無トリチウム水を入れておき、超高分子量ポリエチレン多孔質フィルムを通して、徐々に蒸発させる仕組みになっている。

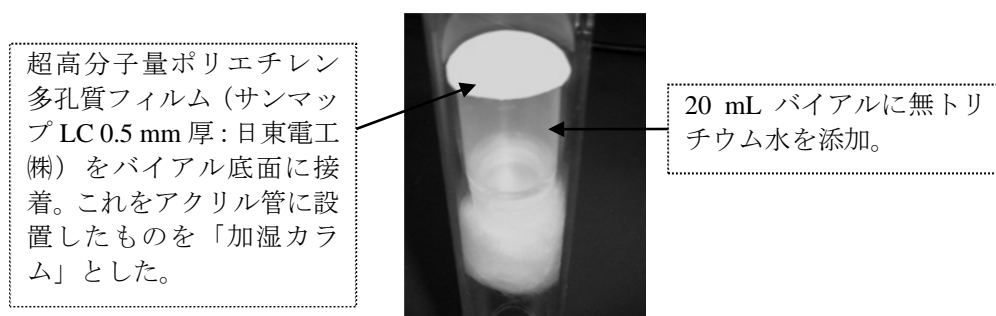


図 3 加湿カラムの構造

## (2) 加湿カラム法の検討

加湿カラム法による採取装置の HT 捕集部と CH<sub>3</sub>T 捕集部それぞれについて、試料採取が定量的に行われているかを検討した。採取装置は、原子力センター青森市駐在の実験室に設置し室内の空気を採取した。

### ア H<sub>2</sub> ガスを用いない方法の検討

H<sub>2</sub> を用いない方法を検討するための採取装置の概略を図 4-(A) に示す。従来法の電解セルの前段に加湿カラム、Pt 触媒及び捕集用の HT-1 カラムを設置し、流速 1.5L/min 程度で大気を採取した。ここで、大気中の HT が定量的に HT-1 カラムに捕集されれば、後段の従来法による HT-2 カラムで捕集された H<sub>2</sub>O にトリチウムが検出されないこととなる。

### イ CH<sub>4</sub> を用いない方法の検討

CH<sub>4</sub> を用いない方法を検討するための採取装置の概略を図 4-(B) に示す。従来法のメタンポンペの前段に加湿カラム、Pd 触媒及び捕集用の CH<sub>3</sub>T-1 カラムを設置し、流速 1.3L/min 程度で大気を採取した。ここで、大気中の CH<sub>3</sub>T が定量的に CH<sub>3</sub>T-1 カラムに捕集されれば、後段の従来法による CH<sub>3</sub>T-2 カラムで捕集された H<sub>2</sub>O にトリチウムが検出されないこととなる。

□ はキャリアー添加。

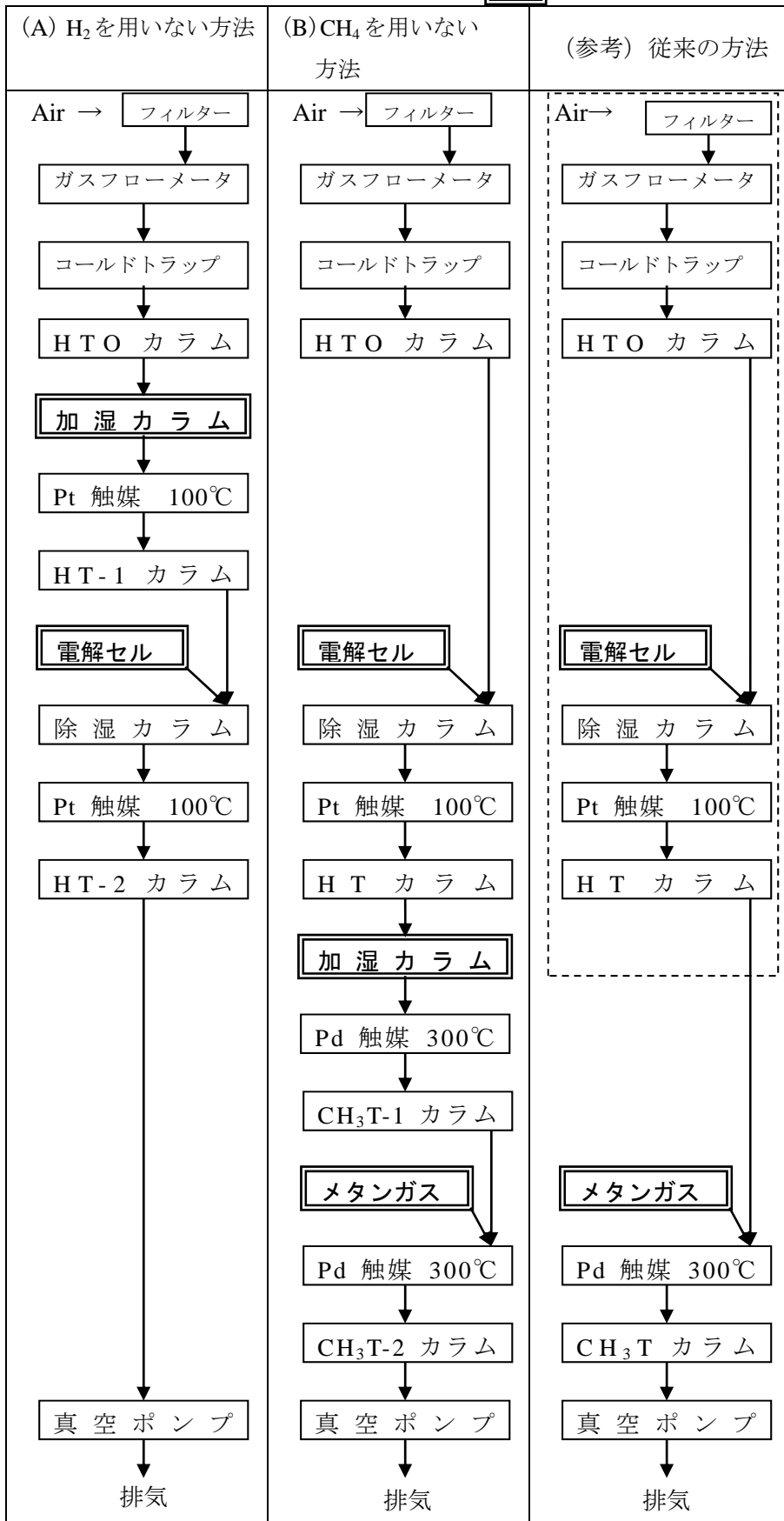


図4 H<sub>2</sub>またはCH<sub>4</sub>を用いない方法を検討するための装置

## 2.2 モニタリングステーションにおける試料採取

### (1) 採取条件の検討

モニタリングステーションに加湿カラム法を用いた採取装置を設置して調査を行うために、採取流量、採取期間、無トリチウム水の供給量等の採取条件について検討した。

### (2) MS 尾駁及び MS 吹越における調査

MS 尾駁及び MS 吹越の位置を図 5 に示す。MS 尾駁は六ヶ所再処理工場の東約 3km に位置し、秋期から冬期における主風向風下である。MS 吹越は同工場の北西約 10km に位置し、夏期における主風向風下である。これらの地点に加湿カラム法による採取装置を設置し、平成 22 年度の夏期から平成 24 年度の冬期まで大気中トリチウムを化学形別に採取した。1 回の採取期間は 1 週間、採取回数は 20 回であった。

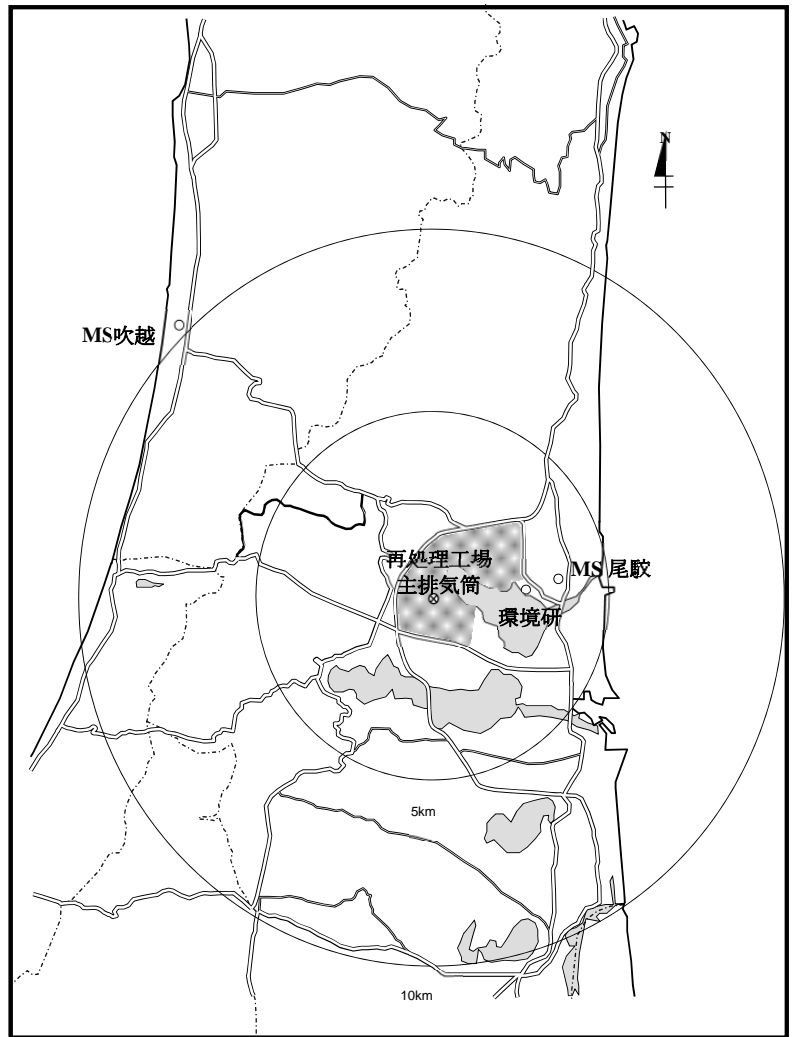


図 5 調査地点

## 2.3 分析方法

採取したカラムを管状炉で 400 °C に加熱して試料水を回収した。回収した試料水の量に応じて容量 20 mL 又は 100 mL の低拡散ポリエチレンバイアルを用い、それぞれ試料水 10 mL または 50 mL に液体シンチレータ (Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan) を同量混合し、測定試料とした。測定は液体シンチレーション計数装置 (LSC-LB5、日立アロカメディカル) により行い、測定時間は 1000 分 (50 分 × 20 回) とした。

試料水中のトリチウム測定結果をもとに HTO、HT 及び CH<sub>3</sub>T の大気中濃度を算出した。

### 3. 調査結果及び考察

#### 3.1 加湿カラム法の検討

##### (1) 採取装置配管の検討

採取装置の配管はすべてシリコンチューブを用いていたが、シリコンチューブは水蒸気を透過する可能性があるとの知見を得たことから、これを確認するために、加湿カラム、触媒カラム及び捕集カラムで構成する簡単な装置を作製し、シリコンチューブを用いた場合と気体透過性の低い TPE（熱可塑性エラストマー）チューブを用いた場合で、加湿カラム減少量と捕集カラム増加量を比較した。結果を表 1 に示す。シリコンチューブを用いた場合は、捕集カラム増加量が 20% 多くなったが、TPE チューブを用いた場合は両者がほぼ同量となり、カラムに捕集された水分には、シリコンチューブを透過した実験室内の水蒸気が混入していたと推定される。このため、以下の (2) 及び (3) における HT 及び CH<sub>3</sub>T 濃度は、「捕集カラム増加量－加湿カラム減少量」の水分が実験室内の水蒸気であったと仮定し、下式のようにして大気中湿分及び HTO 濃度測定結果を用いて補正した。なお、検出限界以下の HTO 濃度は計算に用いなかった。

表 1 使用する配管における採取量変化

使用配管	採取期間	積算流量 (m <sup>3</sup> )	加湿カラム	触媒カラ	捕集カラム	①/②
			減少量 (g) ①	ム増加量 (g) ②	増加量 (g) ②	
シリコンチューブ	H24.12.28~H25.1.7	14.327	10.47	-0.36	12.97	1.20
TPE チューブ	H25.1.11~1.18	9.850	8.02	-0.49	8.70	1.02

HT 及び CH<sub>3</sub>T 濃度(mBq/m<sup>3</sup>)

$$= \frac{\text{試料濃度(mBq/m}^3\text{)} \times \text{積算流量(m}^3\text{)} - \frac{\text{HTO 濃度(mBq/m}^3\text{)}}{\text{大気中湿分(g/m}^3\text{)}} \times (\text{増加量} - \text{減少量})(\text{g})}{\text{積算流量(m}^3\text{)}}$$

##### (2) H<sub>2</sub> ガスを用いない方法

図 4(A)の装置により大気中の HT を採取、測定した結果を表 2 に示す。3 回の検討いずれにおいても、HT-1 カラム増加量が加湿カラムの減少量より 5%程度多くなったが、前述のように配管チューブから大気中水蒸気が混入したためと考えられる。

HT 濃度は、前段の HT-1 カラムで 6.2~8.5 mBq/m<sup>3</sup>であったのに対し、後段の HT-2 カラムでは検出限界以下であった。これは、H<sub>2</sub> の代わりに水蒸気を添加することにより、大気中 HT を水として回収可能であることを示している。HT-2 カラム捕集水中トリチウムの検出限界値が 1.7~3.4 mBq/m<sup>3</sup>であったことから、HT-1 における HT の捕集効率 は 60%以上であると推定される。

表2 H<sub>2</sub>を用いない方法による大気中トリチウム捕集結果及びトリチウム濃度結果

採取期間	積算流量 (m <sup>3</sup> )	大気中 湿分 (g/m <sup>3</sup> )	加湿カラ ム減少量 (g) ①	Pt 触媒 増加量 (g) ②	HT-1 カラ ム増加量 (g)	①/②	HTO 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HT-1 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HT-2 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )
H19.11.23 ~11.26	7.813	6.1	14.47	0.00	15.35	106	(2.5±1.9)	7.1±0.67	(0.76±0.58)
H19.11.29 ~12.1	4.931	7.0	11.24	0.00	11.64	104	(2.4±2.2)	8.5±0.78	(-0.85±1.1)
H19.12.4 ~12.6	5.540	6.0	10.22	0.11	10.58	105	6.4±1.9	6.2±0.61	(0.96±0.83)

### (3) CH<sub>4</sub> ガスを用いない方法

図 4(B)の装置により大気中の CH<sub>3</sub>T を採取、測定した結果を表 3 に示す。4 回の検討いずれにおいても、CH<sub>3</sub>T-1 カラム増加量が加湿カラムの減少量より 20~30%多くなったが、前述のように配管チューブから大気中水蒸気が混入したためと考えられる。

CH<sub>3</sub>T 濃度は、前段の CH<sub>3</sub>T-1 カラムで 0.87~1.7 mBq/m<sup>3</sup>であったのに対し、後段の CH<sub>3</sub>T-2 カラムではすべて検出限界以下であった。初めの 3 回の測定においては、カラム捕集水中トリチウムの検出限界値が 0.80~1.2 mBq/m<sup>3</sup>であり、大気中の CH<sub>3</sub>T 濃度が 0.87~1.7 mBq/m<sup>3</sup>であったことから、CH<sub>3</sub>T-1 における CH<sub>3</sub>T の捕集効率は明確に確認できなかった。このため、4 回目の測定においては、採取期間を 2 倍にするとともに、CH<sub>4</sub> の供給量を 2 分の 1 にしたところ、CH<sub>3</sub>T-2 濃度の検出限界値が 0.40 mBq/m<sup>3</sup>と約 2 分の 1 となり、CH<sub>3</sub>T の捕集効率は 70%以上であることが確認できた。

表3 CH<sub>4</sub>を用いない方法による大気中トリチウム捕集結果及びトリチウム濃度結果

採取期間	積算流量 (m <sup>3</sup> )	大気中 湿分 (g/m <sup>3</sup> )	加湿カラ ム減少量 (g) ①	Pd 触媒増 加量 (g)	CH <sub>3</sub> T-1 カラ ム増加量 (g) ②	①/②	HTO 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	CH <sub>3</sub> T-1 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	CH <sub>3</sub> T-2 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )
H24.10.16 ~10.23	10.689	7.8	10.50	-1.22	13.76	1.19	5.3±0.56	1.7±0.33	(0.66±0.37)
H24.10.31 ~11.7	9.913	7.7	6.84	0.10	8.87	1.31	4.0±0.54	0.88±0.25	(0.33±0.39)
H24.12.6 ~12.13	13.093	4.2	7.15	0.00	8.98	1.26	6.8±1.1	0.87±0.19	(0.29±0.26)
H24.12.27 ~H25.1.10	27.804	3.7	12.85	-0.02	16.10	1.25	1.1±0.33	1.5±0.16	(0.20±0.13)

### 3.2 MS 尾駁及び吹越における採取条件の検討

#### (1) 大気中水分量の季節変化

MS 尾駁及び MS 吹越において、モニタリングで採取している大気中水分のデータから求めた月間の絶対湿度の範囲を表 4 に示す。観測結果には、夏に高く冬に低い季節変動が見られる。モニタリングではこのデータをもとに、月ごとの採取流量を表 5 のように調整している。

表 4 各地点における月ごとの絶対湿度の変動  
(H9~H11 年度) (mL/m<sup>3</sup>)

月	青 森		尾 駁		吹 越	
	最大	最小	最大	最小	最大	最小
4	7.0	4.4	6.2	4.6	7.1	4.7
5	9.2	6.7	7.4	5.1	8.4	5.4
6	13.0	9.1	11.0	8.1	13.0	8.4
7	18.0	8.9	17.0	8.3	17.0	13.0
8	20.0	9.6	19.0	11.0	19.0	14.0
9	15.0	10.0	16.0	11.0	15.0	11.0
10	10.0	6.7	10.0	7.0	10.0	6.8
11	7.0	5.0	6.2	4.4	6.6	2.5
12	4.4	3.5	4.3	2.3	4.8	2.7
1	5.9	2.7	4.8	2.6	4.8	2.8
2	4.3	3.1	3.5	2.6	4.1	3.3
3	6.6	3.3	3.9	3.0	4.1	3.0

表 5 モニタリングにおける大気  
水分中トリチウム採取流量  
(L/min)

月	局 舎 名		
	青 森	尾 駁	吹 越
4	0.8	0.8	0.8
5	0.6	0.7	0.6
6	0.4	0.5	0.4
7	0.4	0.4	0.3
8	0.3	0.3	0.3
9	0.4	0.3	0.4
10	0.5	0.5	0.5
11	0.8	0.8	1.0
12	1.2	1.3	1.2
1	1.1	1.2	1.1
2	1.2	1.5	1.2
3	0.9	1.3	1.3

#### (2) 加湿カラムからの無トリチウム水供給速度

大気採取流量や気温に対する加湿カラムからの無トリチウム水の供給量を検討した。採取装置を原子力センター青森市駐在の実験室に設置し、気温が異なる時期に大気採取流量を変化させて無トリチウム水の供給速度を測定した。結果を表 6 に示す。供給速度は、加湿カラムの減少量と採取時間から算出した。

無トリチウム水の供給速度は、気温が 16℃と 19℃ではほとんど変わらなかったが、24℃ではやや大きくなる傾向を示した。また、気温 19℃において、大気採取流量を 1.5 L/min から 0.3 L/min に変化させたところ、供給速度は後者の方がやや大きくなった。加湿カラム用バイアルの個数を 2 個から 3 個に増やした場合、供給速度はほぼ 1.5 倍となり、個数に比例して増加した。

これらの結果から、本採取装置では、加湿カラム用バイアル 1 個当たりの無トリチウム水の供給速度は、0.0010-0.0015 g/min と見積もられた。バイアル 1 個には無トリチウム水約 15 mL を入れておくことができるため、約 7 日間（約 10000 min）の連続採取が可能と考えられる。



表 6 無トリチウム水供給速度の検討結果

大気採取 流量(L/min)	設置場所 平均気温	加湿カラム 用バイアル 個数	採取時間 (min)	加湿カラム 減少量 <sup>※1</sup> (g)	加湿カラムから の供給速度 (g/min)	バイアル 1 個 あたりの供給 速度 (g/min)
1.4	16°C	2	6010	9.42	0.0016	0.0008
				11.63	0.0019	0.0010
1.5	19°C	2	6100	12.50	0.0020	0.0010
				9.65	0.0016	0.0008
1.2	24°C <sup>※2</sup>	2	10080	30.61	0.0030	0.0015
				29.26	0.0029	0.0015
			5930	11.79	0.0020	0.0010
				13.51	0.0023	0.0012
0.3	19°C <sup>※2</sup>	2	6150	14.86	0.0024	0.0012
				16.33	0.0027	0.0014
		3	5888	22.93	0.0039	0.0013
				24.76	0.0042	0.0014
			5370	22.52	0.0042	0.0014
				19.71	0.0037	0.0012

※1 上段は HT 用、下段は CH<sub>3</sub>T 用の加湿カラムにおける減少量

※2 装置は一定温度に保たれている実験室内に設置した

### (3) 採取条件の検討

(1) 及び (2) を踏まえ、採取条件を検討した。

試料採取期間については、再処理工場からの放出量データが 1 週間単位であることや、カラム交換頻度などを考慮し 7 日間 (約 10000 min) とした。この場合、HTO については 1.5 L/min (冬季) から 0.6 L/min (夏季) の範囲で 2 本のカラムを飽和させず測定に必要な量を確保することができる。また、加湿カラムのバイアル 1 個あたりの無トリチウム水供給量が 7 日間で 10-15 g となることから、測定供試量の 10 mL を安定的に確保するため、HT についてはバイアルを 2 個とする。しかし、CH<sub>3</sub>T については自然環境におけるレベルが低く、検出限界を下げる必要があることから、無トリチウム水の供給量をできるだけ測定供試量に近づけるためにバイアル数は 1 個とする。

これらのことから、採取条件を下記のように設定した。

採取期間	: 約 7 日間 (約 10000 min)
大気採取流量	: 1.0 L/min (夏季)、1.3 L/min (冬季)
HTO カラム本数	: 2 本
HT 用加湿カラムのバイアル数	: 2 個
CH <sub>3</sub> T 用加湿カラムのバイアル数	: 1 個

### 3.3 モニタリングステーションにおける測定結果

採取装置を MS 尾駁及び MS 吹越に設置し大気試料の採取を行った。それぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表 7 及び図 6 に示す。HTO は検出限界以下～18 mBq/m<sup>3</sup>、HT が 2.4～7.4 mBq/m<sup>3</sup>、CH<sub>3</sub>T が 1.3～4.5 mBq/m<sup>3</sup> となった。採取期間において六ヶ所再処理工場からの放出は管理目標値の約 4000 分の 1 以下であり、HTO 測定値がモニタリングにおける同工場のアクティブ

試験前の測定値と同程度であったことなどから、今回の測定結果は、施設影響のないバックグラウンドレベルであったと考えられる。

HTO では検出限界以下の値が多く見られたが、9 月及び 11 月は検出された測定値が比較的多かった。MS 吹越における H23 年 6 月の測定値に比較的高い値があったが、夏季は大気中水分量が多くなるため、トリチウムが検出された場合大気中濃度が大きくなる傾向がある。HT 及び CH<sub>3</sub>T についてはすべて検出され、HT が CH<sub>3</sub>T と比較して高い値であった。また、これらの値について、季節的な変動は見られなかった。

なお、本調査における測定結果は、(公財) 環境科学技術研究所による青森県六ヶ所村における過去の調査結果 (HTO 濃度 0.9~37.5 mBq/m<sup>3</sup> HT 濃度 1.9~13.0 mBq/m<sup>3</sup> CH<sub>3</sub>T 濃度 0.3~4.8 mBq/m<sup>3</sup>)<sup>6)~11)</sup>と同程度であった。

表 7 MS 尾駁及び MS 吹越における大気中トリチウムの化学形別濃度測定結果

MS 尾駁				MS 吹越			
採取期間	HTO 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HT 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	CH <sub>3</sub> T 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	採取期間	HTO 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HT 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	CH <sub>3</sub> T 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )
H22.8.18~8.25	(14.0±6.3)	6.4±1.4	2.9±0.8	H22.8.18~8.25	(1.8±6.0)	4.7±1.5	2.4±0.7
H22.8.25~9.1	(12.8±6.4)	5.7±0.9	2.4±0.5	H22.8.25~9.1	(13.5±6.1)	5.9±0.8	1.4±0.4
H22.12.7~12.14	(2.1±1.2)	4.6±0.6	2.2±0.3	H22.12.7~12.14	(0.2±1.4)	6.4±0.8	2.8±0.4
H22.12.14.12.21	(1.5±1.2)	5.3±0.7	4.5±0.7	H22.12.14.12.21	(1.9±1.3)	7.1±0.6	3.7±0.5
H23.6.1~6.8	(1.4±3.1)	6.8±0.71	4.1±0.48	H23.6.1~6.8	13±3.3	7.4±0.78	2.7±0.43
H23.6.8~6.15	(9.9±4.0)	5.6±0.93	2.9±0.44	H23.6.8~6.15	18±4.1	5.0±1.1	2.8±0.42
H23.8.18~8.25	(12±6.2)	5.6±0.92	3.1±0.43	H23.8.18~8.25	(9.0±5.3)	6.3±1.0	3.0±0.48
H23.8.25~9.1	(0.17±5.8)	5.7±0.75	3.1±0.49	H23.8.25~9.1	(12±5.6)	4.8±0.78	2.3±0.44
H23.11.2~11.9	(1.8±2.5)	4.4±0.53	2.8±0.29	H23.11.2~11.9	(1.3±2.3)	4.1±0.55	1.3±0.29
H23.11.9~11.16	(5.5±1.9)	3.7±0.54	2.4±0.29	H23.11.9~11.16	6.3±1.8	4.8±0.64	1.7±0.32
H24.1.10~1.17	(1.8±0.92)	5.9±0.64	3.9±0.30	H24.1.10~1.17	(0.99±0.81)	5.4±0.73	2.3±0.31
H24.1.17~1.24	(0.31±1.3)	5.8±0.53	4.2±0.31	H24.1.17~1.24	(2.9±1.0)	5.6±0.57	2.5±0.31
H24.7.27~8.3	4.9±1.4	5.5±0.68	4.0±0.44	H24.7.12~7.19	8.2±1.0	6.0±0.73	1.8±0.37
H24.8.3~8.10	(1.7±1.1)	6.4±0.78	3.3±0.45	H24.7.26~8.2	(3.1±1.3)	7.4±0.77	3.4±0.40
H24.8.29~9.5	(2.3±1.4)	6.4±0.77	1.7±0.41	H24.9.12~9.19	7.8±1.2	5.5±0.66	1.8±0.34
H24.9.5~9.12	5.3±1.3	5.1±0.67	1.8±0.37	H24.9.19~9.26	6.2±0.94	5.1±0.76	2.2±0.43
H24.11.7~11.14	3.8±0.52	5.2±0.52	1.5±0.26	H24.11.28~12.5	8.1±1.1	3.1±0.48	2.4±0.26
H24.11.14~11.21	2.0±0.36	5.9±0.53	1.5±0.25	H24.12.5~12.12	6.3±1.0	3.6±0.50	1.9±0.26
H25.1.10~1.17	5.1±0.74	4.7±0.54	2.9±0.26	H25.1.24~1.31	(3.1±1.3)	5.5±0.78	2.3±0.39
H25.1.17~1.24	(0.26±1.2)	4.6±0.86	2.6±0.44	H25.1.31~2.7	(-0.67±1.3)	2.4±0.77	3.4±0.43

MS 尾駁

MS 吹越

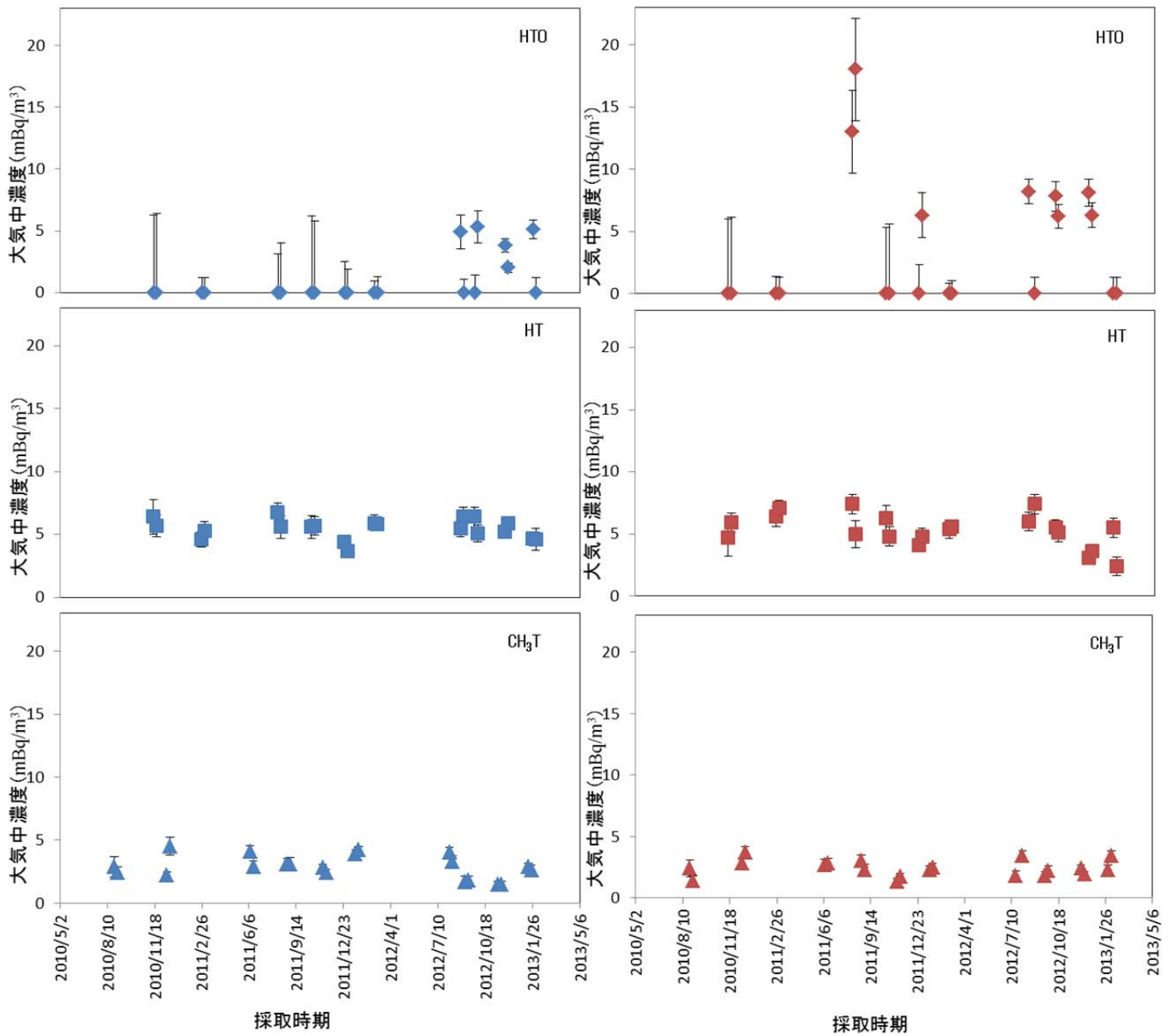


図6 MS尾駁及びMS吹越における大気中トリチウムの化学形別濃度の推移

#### 4. まとめ

可燃性ガスである  $H_2$  及び  $CH_4$  の代わりに、加湿カラムを用いる方法により、大気中の HT、 $CH_3T$  を概ね定量的に捕集することができることを確認した。

この加湿カラム法について、採取流量、期間、加湿カラムからの無トリチウム水供給量等採取条件を検討し、MS 尾駁及び MS 吹越において調査を行った。今回の測定結果は、HTO が検出限界以下～18 mBq/m<sup>3</sup>、HT が 2.4～7.4 mBq/m<sup>3</sup>、 $CH_3T$  が 1.3～4.5 mBq/m<sup>3</sup> であり、施設影響のないバックグラウンドレベルであったと考えられる。HTO では検出限界以下の値が多く見られたが、9 月及び 11 月は検出された測定値が比較的多かった。HT 及び  $CH_3T$  についてはすべての測定結果で検出され、HT が  $CH_3T$  と比較して高い値であった。また、これらの値について、季節的な変動は見られなかった。

今後も調査を継続し、六ヶ所再処理工場操業後の周辺地域における化学系別トリチウムの実態把握に努めることとする。

#### 文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, Isotope News, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of  $^3H$  released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 262, 569-572 (2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry, 416-420 (2003)
- 4) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁: 核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中  $^3H$  濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299 (2006)
- 5) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓: 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発、日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323 (2007)
- 6) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 18 年度放出放射能環境分布調査報告書, 164 (平成 19 年)
- 7) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 19 年度放出放射能環境分布調査報告書, 105 (平成 20 年)
- 8) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 20 年度放出放射能環境分布調査報告書, 309 (平成 21 年)
- 9) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 21 年度放出放射能環境分布調査報告書, 345 (平成 22 年)
- 10) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 22 年度排出放射能環境分布調査報告書, 218 (平成 23 年)
- 11) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 23 年度排出放射能環境分布調査報告書, 193 (平成 24 年)

## 青森県における空間放射線量率特性調査

大坂直人 大久保英樹 木村秀樹

青森県における太平洋側地域、内陸地域、陸奥湾側地域及び津軽海峡側地域の4地点で測定している空間放射線量率と気象データを用い、降水量1 mm当たりの線量上昇分について、季節的な違いや降雨と降雪による違いなどを検討した。

調査地域に流入する気団の違い及び降雨と降雪の違いをみるため、7～8月、10～11月、12月の3期に区分し比較・検討を行った。降水量1 mm当たりの線量上昇分は、海洋性気団が優勢となった場合の降雨(7～8月)より大陸性気団が優勢となった場合の降雨(10～11月)で大きく、降雪(12月)ではさらに大きくなることがわかった。この原因として、海洋性気団より大陸性気団の方がラドン壊変生成物の濃度が高いこと、降雨より降雪の方が、大気中の粒子状物質を取り込む効果が高いことなどが考えられる。

また、海洋性気団が優勢な期間は、降水量1 mm当たりの線量上昇分に対する測定地点近傍の大地から放出されたラドンの寄与が比較的現れやすいと考えられることから、7～8月について調査地点ごとに降水量1 mm当たりの線量上昇分を比較したが、地点による違いはみられなかった。

### 1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所及び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において、空間放射線量率(NaI)(以下、「線量率」という)の連続測定を実施している。線量率は、降雨及び降雪がないときは、大地からの放射線による寄与が支配的であり、同じ地点ではほぼ一定の値となるが、降雨時及び降雪時には、大気中に含まれるラドンの壊変生成物が雨や雪とともに地表面に落下するため、一時的に上昇する。また、積雪があると、大地からの放射線が遮へいされるため、線量率は低下する<sup>1)</sup>。

本調査では、線量率測定地点のうち、それぞれ特徴的な地理的条件にある4地点における平成21年度及び平成22年度の測定データを用い、降水量1 mm当たりの線量上昇分(以下、「線量上昇率」という)について、季節的な違いや降雨と降雪による違いなどを検討した。

## 2. 調査方法

### 2.1 調査地点

線量率の連続測定を実施している地点の位置を図1に示す。線量率測定地点のうち、特徴的な地理的条件にある、尾駁（太平洋側地域）、千歳平（内陸地域）、近川（陸奥湾側地域）及び関根（津軽海峡側地域）の4地点の測定結果を検討に用いた。

### 2.2 線量率測定装置

測定装置：3" φ×3" NaI(Tl)シンチレーション検出器

測定位置：地上 1.8 m

測定エネルギー範囲：50 keV～3 MeV

エネルギー補償方式：G(E)関数荷重演算方式

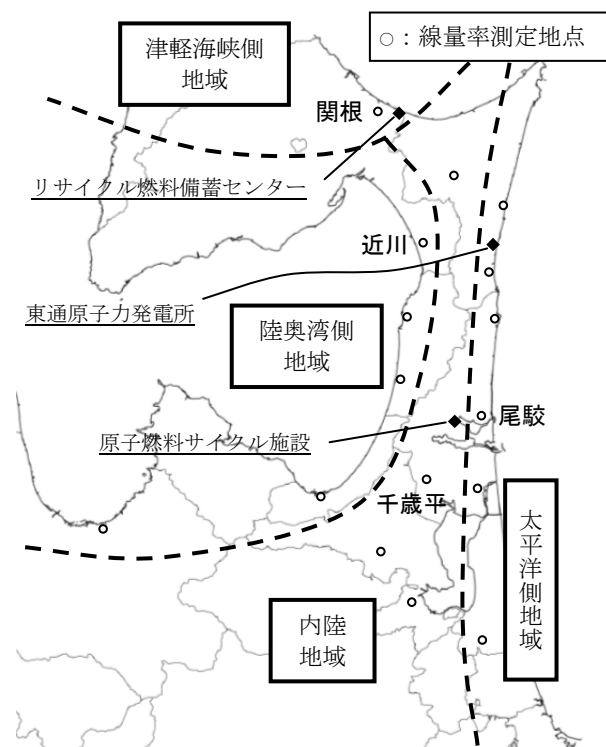


図1 線量率測定地点の位置  
(ゴシック体は調査地点)

### 2.3 収集装置

測定装置から得られた線量率の測定データは、テレメータシステムにより青森県原子力センターに収集し、2分間の平均値（2分値）5個を平均して10分値を、さらに10分値6個を平均して1時間値を求めた。解析データには1時間値を用いた。

### 2.4 調査期間及び調査方法

「調査地域に流入する気団の違い」及び「降雨と降雪の違い」を比較・検討するため、調査期間を次の3期に区分した。

第Ⅰ期：海洋性の気団が優勢となる7～8月の降雨期

第Ⅱ期：大陸性の気団が優勢となる10～11月の降雨期

第Ⅲ期：大陸性の気団が優勢となる12月の降雪期

なお、第Ⅲ期については、積雪により雪面と検出器が近くなる効果をできるだけ排除するため、積雪深が比較的小さい12月を対象とした。各調査地点における12月（平成21、22年度）の積雪深月平均値は1～25 cmであった。

また、調査方法は次のとおりとする。

(1) 第Ⅰ期から第Ⅲ期の各期間について、降水量が0.5 mm以上観測され、降雨（または降雪）の影響が連続している期間を下記のとおり抽出する。なお、第Ⅰ期から第Ⅲ期の各期間について、通常的气象条件とは異なる台風の日々のデータは全調査地点から削除した。

(a) 第Ⅰ期における期間抽出

日降水量が全調査地点で0.5 mm以上の日を選定する。さらに、その前日から翌日までの3日間から、条件A「期間中は感雨有が連続し、期間の開始前1時間及び終了後1時間

は感雨無」をみたす期間を調査地点ごとに抽出する。また、条件 A をみたす雨が、選定した日に複数回ある場合は別々の雨として抽出する。

(b) 第Ⅱ期における期間抽出

第Ⅰ期と同じ条件で期間を抽出した。ただし、いずれかの調査地点で積雪が確認された場合は、降雪の可能性があるため、その時のデータは全調査地点から削除した。

(c) 第Ⅲ期における期間抽出

第Ⅲ期の調査時期は 12 月の 1 か月のみであり、第Ⅰ・Ⅱ期に比べてデータ数が少なくなることから、全地点共通の期間にこだわらず、条件 A 及び条件 B「期間中に積雪深が上昇」をみたす期間を調査地点ごとに抽出した。

(2) (1)で抽出した各期間について、降水量と線量上昇分それぞれの積算値を求める。第Ⅰ期及び第Ⅱ期については、各抽出期間の線量上昇分を下記のとおり算出した。

(a) 各抽出期間について、抽出期間を含む日から降雨の影響がない（感雨有が連続していた場合、感雨無となってから 1 時間経過後の）線量率測定値の平均値を算出する。

(b) 抽出期間における線量率の各実測値から、(a)で算出した平均値（BG 線量率）を差し引き、これを線量上昇分とする。

第Ⅲ期については、積雪による大地からの放射線の遮へい効果を考慮し、線量上昇分を算出した（詳細は、3.1 参照）。

(3) (2)で求めた各積算値を用いて、第Ⅰ期から第Ⅲ期の期間毎に降水量と線量上昇分の関係を示す回帰直線を求め、その傾きから線量上昇率を求めた。

### 3. 調査結果及び考察

#### 3.1 線量率と SCA(Tl) 計数率の関係<sup>2)</sup>

線量率の測定に用いている低線量率計（NaI(Tl)シンチレーション検出器）は、 $\gamma$ 線による線量率のほか、特定のエネルギー範囲の $\gamma$ 線の計数率（SCA 計数率）を測定する機能を有している。SCA の一つとして、トリウム系列の壊変生成物である Tl-208 から放出される $\gamma$ 線（2.62 MeV）に着目して、SCA(Tl)（エネルギー範囲：2.51～3.00 MeV）を設定している。

図 2 に示すとおり、SCA(Tl)計数率は降雨や降雪による変動がほとんどなく、積雪が多いほどベースラインが低下する変動を示している。降雨雪により変動しないのは、大地などから散逸するトリウム系列である Rn-220 の半減期が 55.6 s と短く大気中に広く分布できないことにより、その壊変生成物である Tl-208 が、降雨雪とともに地上に落下することがほとんどないためと考えられる。また、Tl-208 は、土壤中に多く存在することから、積雪による遮へい効果がみられている。

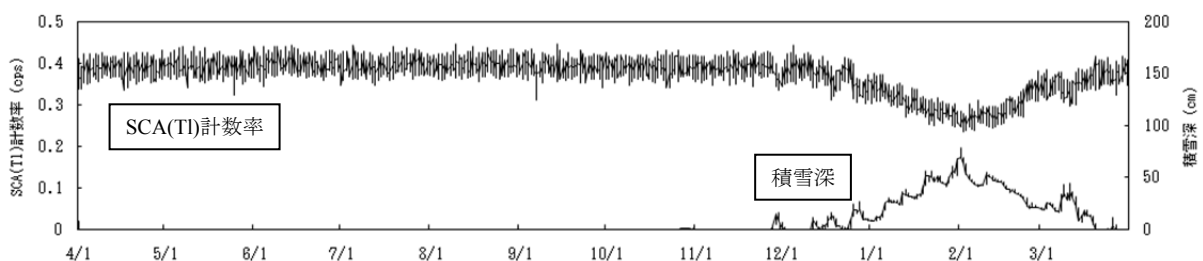


図 2 平成 22 年度関根局における SCA(Tl) 計数率及び積雪深の推移(1 時間値)

図3に、平成21年10月から平成22年2月において降雨雪による影響がない時の線量率とSCA(TI)計数率の関係を調査地点ごとに示す。図3をみると、各地点において線量率とSCA(TI)計数率との間に直線関係が認められており、 $R^2$ (決定係数)の値は0.926~0.972であった。

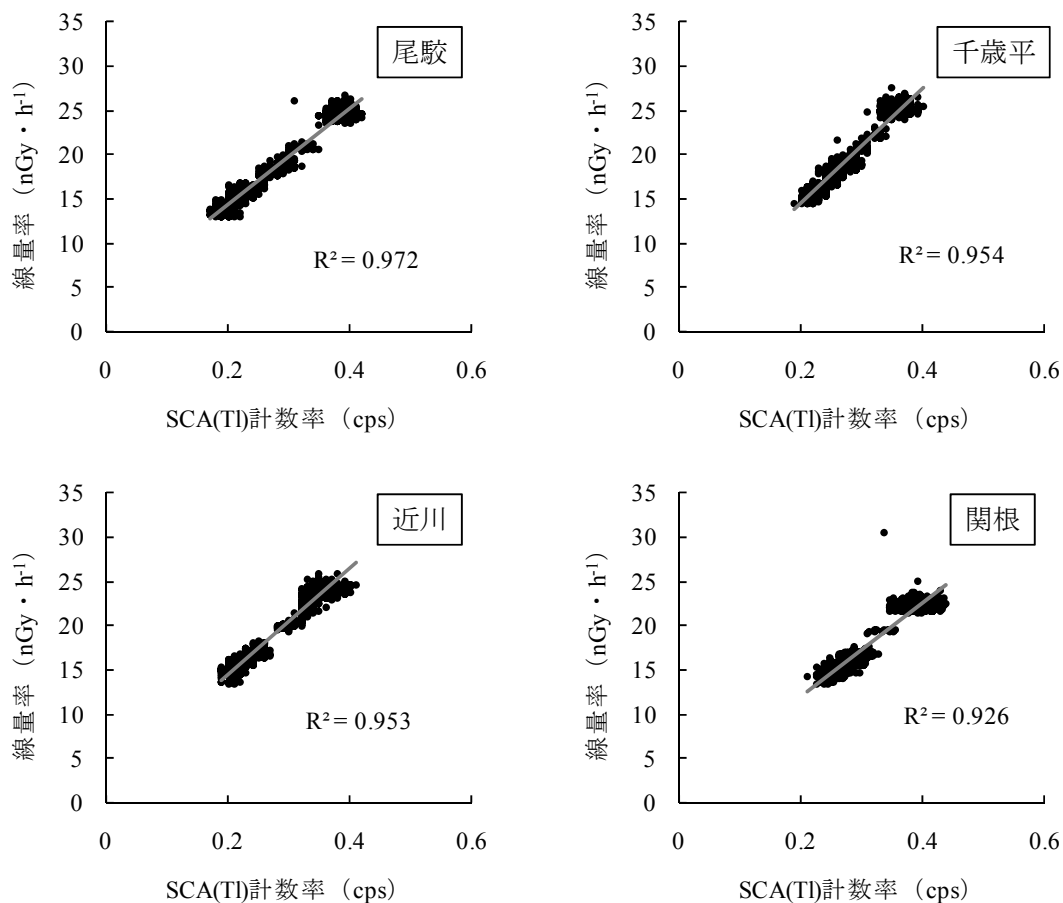


図3 線量率とSCA(TI)計数率の関係（平成21年10月～平成22年2月）

積雪による大地からの放射線の遮へい効果は、積雪の深さと密度に比例するが、積雪の密度は必ずしも均一ではないため、積雪深のみでは十分説明できない場合がある。SCA(TI)計数率は、積雪の深さと密度双方を併せた効果により変化すると考えられ、図3のように、降雨雪による影響がない時の線量率と直線関係を示すことから、積雪による線量率の遮へい効果の指標として有効と考えられる。

第Ⅲ期は、積雪により大地からの放射線が遮へいされ、線量率のベースラインが低くなるため、SCA(TI)計数率を用いて、式(1)及び(2)により線量上昇分を算出した：

$$\text{線量上昇分} = \text{線量率実測値} - \text{推定自然 (BG) 線量率} \cdots \cdots (1)$$

$$\text{推定自然 (BG) 線量率} = \beta_1 \text{TI} + \beta_2 \cdots \cdots (2)$$

TI : SCA(TI)計数率の実測値  
 $\beta_1, \beta_2$  : 単回帰分析により得られた回帰係数及び定数項



### 3.2 線量上昇率の比較

第Ⅰ期から第Ⅲ期の各期間における降水量と線量上昇分の関係を図4に示す。また、各調査期間の線量上昇率及び第Ⅰ期における各調査地点の線量上昇率をそれぞれ表1、表2に示す。なお、表1及び表2における線量上昇率及びその誤差はそれぞれ、回帰分析における回帰係数及びその標準誤差である。

第Ⅲ期については、積雪により雪面と検出器が近くなる効果をできるだけ排除するため、積雪深が比較的小さい12月を対象としたが、図4(c)にプロットしたデータの中には、平均積雪深が最大で約50cmの期間のデータも含まれている。そのため、雪面と検出器が近くなる効果を完全には除外できていない可能性が考えられる。

線量上昇率は、図4及び表1のように第Ⅰ期が $2.80 \text{ nGy} \cdot \text{mm}^{-1}$ 、第Ⅱ期が $3.71 \text{ nGy} \cdot \text{mm}^{-1}$ 、第Ⅲ期が $20.3 \text{ nGy} \cdot \text{mm}^{-1}$ となり、海洋性気団が優勢となった場合の降雨より大陸性気団が優勢となった場合の降雨で大きく、降雪ではさらに大きくなることがわかった。この原因として、夏に優勢な海洋性気団より冬に優勢な大陸性気団の方がラドン壊変生成物の濃度が高いこと<sup>3)</sup>、降雨より降雪の方が、大気中の粒子状物質を取り込む効果が高いことなどが考えられる<sup>4)</sup>。

海洋性気団は、大陸性気団に比べて大気中ラドン壊変生成物濃度が低い傾向があるため、線量上昇率に対する測定地点近傍の大地から放出されたラドンの寄与が比較的現れやすいと考えられる。そこで、海洋性気団が優勢な第Ⅰ期について、測定地点ごとに線量上昇率を比較したが、表2に示すように、今回の検討では地点による違いはみられなかった。

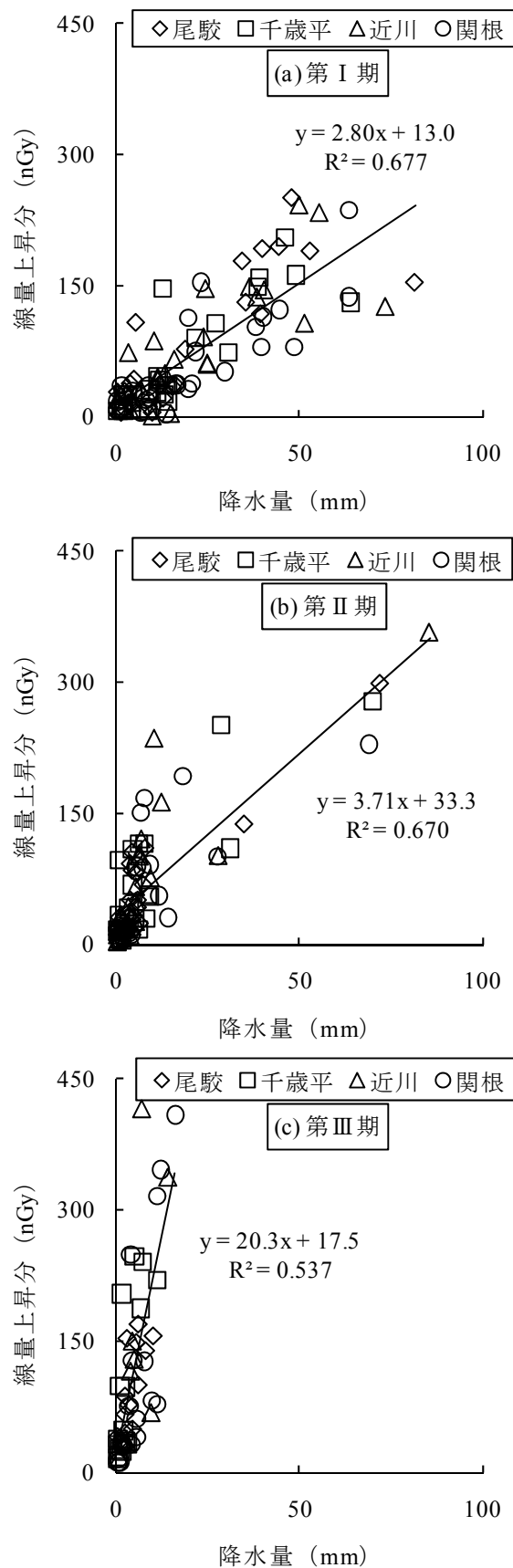


図4 降水量と線量上昇分の関係

表 1 各調査期間の線量上昇率

	(nGy・mm <sup>-1</sup> )
	線量上昇率
第Ⅰ期	2.80 ± 0.19
第Ⅱ期	3.71 ± 0.28
第Ⅲ期	20.3 ± 2.5

表 2 各調査地点の線量上昇率  
(第Ⅰ期)

	(nGy・mm <sup>-1</sup> )
	線量上昇率
尾 駁	3.02 ± 0.39
千歳平	3.02 ± 0.41
近 川	2.75 ± 0.39
関 根	2.50 ± 0.36

#### 4. まとめ

- 1) 青森県の太平洋側地域、内陸地域、陸奥湾側地域及び津軽海峡側地域の4地点における平成21年度及び平成22年度の線量率及び気象データを用いて、線量上昇率について、季節的な違いや降雨と降雪による違いなどを考察した。
- 2) 線量上昇率は、7～8月、10～11月、12月の順に大きくなり、海洋性気団が優勢となった場合の降雨より大陸性気団が優勢となった場合の降雨で大きく、降雪ではさらに大きくなることがわかった。この原因として、海洋性気団より大陸性気団の方がラドン壊変生成物の濃度が高いこと、降雨より降雪の方が、大気中の粒子状物質を取り込む効果が高いことなどが考えられる。なお、12月の線量上昇率については、雪面と検出器が近くなる効果を完全には除外できていない可能性が考えられる。
- 3) 海洋性気団が優勢な7～8月について調査地点ごとに線量上昇率を比較したが、地点による違いはみられなかった。

#### 文 献

- 1) 藤波直人、江阪忍：空間γ線量率の変動原因について，京都府衛公研年報，第26号，101-106(1978)
- 2) 大久保英樹、庄司博光、木村秀樹、齋藤稔、工藤英嗣、永井進：青森県原子力センター所報，第2号，3-16(2007)
- 3) 吉田勝廣、飯田孝夫：大気中ラドン濃度の周期性長期変動の主要な影響因子－海洋と陸地の違い－，保健物理，42(1)，53-62(2007)
- 4) 藤波直人、江阪忍：空間γ線量率の変動原因に関する研究－浮遊じん中のラドン娘核種の連続測定と線量率への寄与－，京都府衛公研年報，第26号，111-118(1981)

## II 技 術 報 告



## 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 —平成 23 年度調査結果—

二瓶祐介 工藤俊明 今 壽貴 竹ヶ原 仁<sup>\*1</sup>  
幸 進<sup>\*2</sup> 岡 光昭<sup>\*2</sup> 武石 稔<sup>\*2</sup>

### 1. はじめに

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

本報告は平成 23 年度の調査結果についてとりまとめたものである。

### 2. 調査方法

#### 2.1 対象試料及び調査地点

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

#### 2.2 測定方法

##### (1) トリチウム

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

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを組織自由水トリチウム（TFWT）濃度とした。乾燥物については、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、これを有機結合型トリチウム（OBT）濃度とした。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBTのみ測定した。牛乳の採取地点においては、乳牛の飲料水についても調査を行った。試料は、減圧蒸留法により精製したのち、トリチウム濃度（Bq/L）を測定した。

なお、OBT は非交換型 OBT と交換型 OBT に分類されるが、これらの OBT は、生物体内での挙動が異なることや、交換型 OBT が分析室内空気中のトリチウムや試料中 TFWT の影響を受ける可能性があることから、近年においては試料を凍結乾燥後に無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去し、非交換型 OBT のみ分析することを推奨する研究<sup>3)</sup>もある。本調査においては、

\*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

\*2：日本原燃株式会社

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 23 年度）

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

TFWT：組織自由水トリチウム

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

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

※ 魚類はヒラメ及びカレイ

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

## (2) 炭素-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」<sup>4)</sup> に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

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

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

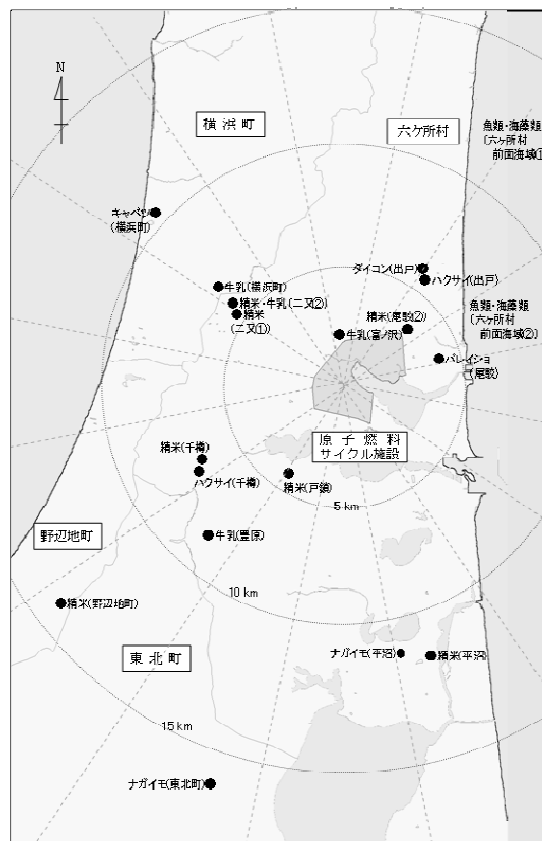


図 1 調査地点図

### (3) ヨウ素-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素からヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置（AMS）を用いてヨウ素-129( $^{129}\text{I}$ )とヨウ素-127( $^{127}\text{I}$ )の原子数比を測定した。また、乾燥試料を次亜塩素酸ナトリウム溶液で分解し、ICP 質量分析法によって安定ヨウ素( $^{127}\text{I}$ )を定量した。これらによって求めた  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中のヨウ素-129 濃度を求めた<sup>5)</sup>。

### (4) ヨウ素-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」<sup>6)</sup>に準拠し、生試料又は乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。

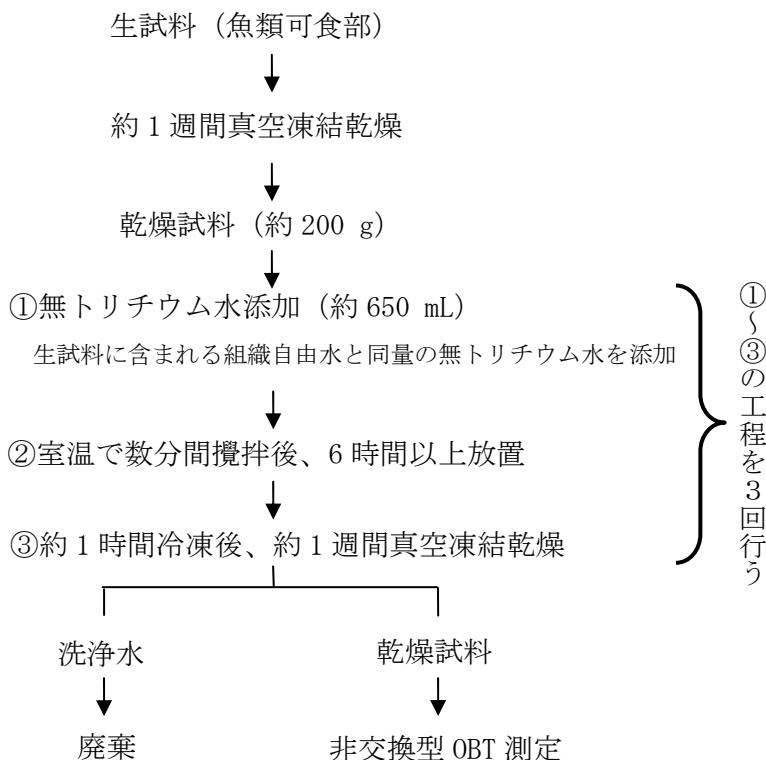


図2 非交換型 OBT の分析工程

## 3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成 18 年 4 月から平成 24 年 3 月にかけて放出された放射性気体廃棄物（トリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131）の月間放出量を図 3 に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図 4 に示す。平成 23 年 3 月から 5 月の放射性気体廃棄物中ヨウ素-131 の放出量が直近の約 2 年間と比べて高めとなった。この期間において、東京電力（株）福島第一原子力発電所の事故の影響と考えられるヨウ素-131 が再処理工場周辺で検出されていることから、放出量には、平成 23 年 3 月 11 日に発生した東京電力（株）福島第一原子力発電所の事故の影響と考えられるヨウ素-131 が施設内に取り込まれ、排出されたものが含まれていることも考えられるが、再処理工場に起因するものと定量的に分離できないため、安全側にすべて再処理工場に起因するものとして管理されている。トリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 に係る平成 23 年度の月間放出量については、平成 22 年度と同程度であった。放射性液体廃棄物の月間放出量は、いずれの核種も平成 22 年度と同程度であった。

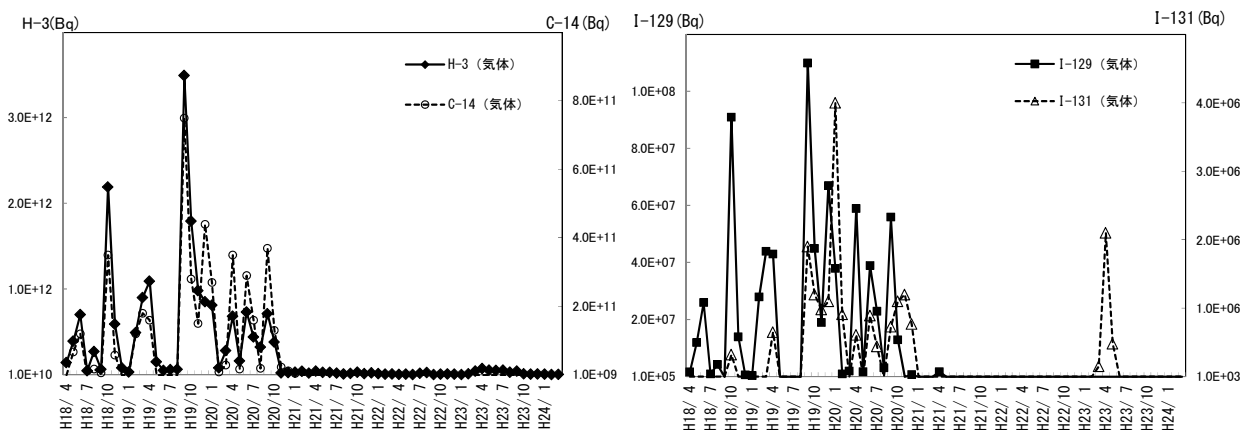


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量  
(平成18年4月～平成24年3月)

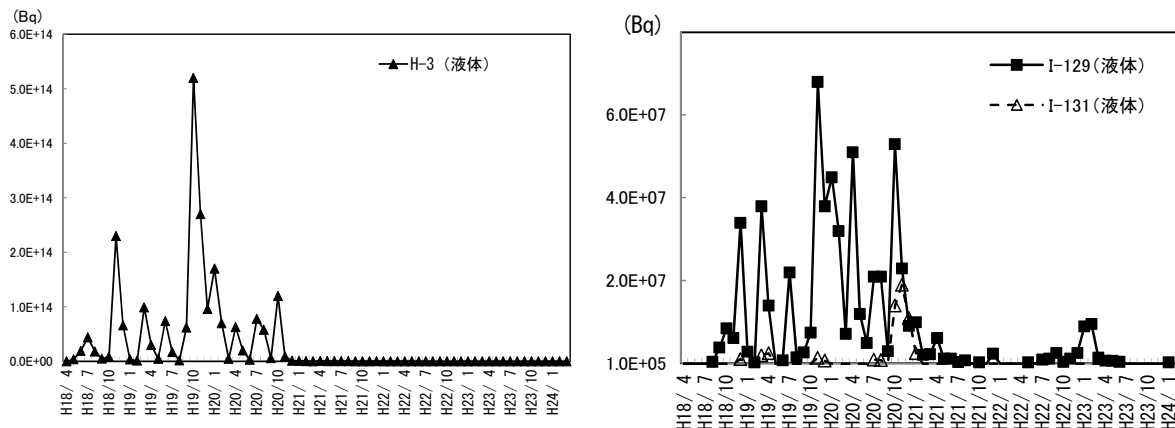


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量  
(平成18年4月～平成24年3月)

#### 4. 調査結果

##### 4.1 トリチウム

環境試料中のトリチウムの測定結果及びその経年変化を表2～4及び図5～8に示す。陸上試料である牛乳、精米、葉菜及び根菜・いも類については、TFWTで検出限界以下～0.74 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.58 Bq/Lとなり、近年の大気及び降水中トリチウム濃度<sup>\*1</sup>と同程度であった。

個別にみると、牛乳ではTFWT、OBTともに富ノ沢、豊原が比較的高めであり横浜町、二又は検出限界以下が多い。表4に示すこれらの地点の乳牛の飲料水中のトリチウム濃度をみると同様の傾向が見られていることから、牛乳中のトリチウム濃度は乳牛の飲料水中のトリチウム濃度を反映していると考えられる。精米についてはこれまでの値と同程度であった。野菜についてはTFWTもOBTもやや減少傾向がみられるが、さらにデータを蓄積して検討する必要がある。

海洋試料である魚類については、TFWT、OBTともに検出限界以下であり、平成19及び20年



度と比べ低い値であった。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は 0.1~0.2 Bq/L 程度と報告されている<sup>7)</sup>。平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBТ については、検出限界以下であった。

※1 青森県実施の環境放射線モニタリング（平成 20~22 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(0.27~0.36 Bq/L)以下~1.0 Bq/L  
 雨水：検出限界(0.33~0.36 Bq/L)以下~0.90 Bq/L

表2 牛乳、精米及び野菜のトリチウム（TFWT、OBТ）濃度（平成 23 年度）

試料名	採取地点	採取月	平成 23 年度調査結果		(参考) 平成 19~22 年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	OBТ (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBТ (Bq/L)
牛乳 (原乳)	富ノ沢	4月	0.44±0.13	0.51±0.13		
		7月	*	0.42±0.11	*~1.2	*~0.78
		10月	0.36±0.12	*		
		1月	0.74±0.10	0.58±0.14		
	横浜町	4月	*	*		
		7月	*	0.48±0.12	* ~ 0.50	*~0.70
		10月	*	*		
		1月	*	*		
	二又	4月	*	0.36±0.11		
		7月	*	0.39±0.11	* ~ 0.42	*~0.63
		10月	*	*		
		1月	*	*		
	豊原	4月	0.46±0.12	0.43±0.11		
		7月	*	0.36±0.11	* ~ 0.73	*~0.77
		10月	0.67±0.12	0.57±0.12		
		1月	*	0.56±0.14		
精米	尾駸① <sup>*1</sup>	-	-	-	0.80	
	尾駸②	9月	-	0.50±0.12	-	*~0.76
	千樽	10月	-	0.37±0.12	-	*~0.89
	野辺地町	10月	-	0.47±0.12	-	*~0.59
	二又① <sup>*2</sup>	10月	-	*	-	*~0.35
	二又②	10月	-	0.54±0.12	-	*~1.0
	戸鎖	10月	-	0.40±0.11	-	*~0.66
	平沼 <sup>*2</sup>	9月	-	*	-	*~0.44
ハクサイ	出戸	11月	0.52±0.12	0.56±0.12	*~0.69	*~0.80
	千樽	10月	*	0.52±0.14	*~0.89	*~0.68
キャベツ	横浜町	11月	*	0.54±0.14	0.61~0.94	0.48~1.2
ダイコン	出戸	11月	*	0.50±0.11	* ~ 0.58	0.37~0.68
パレイショ	尾駸	8月	0.58±0.12	0.58±0.11	0.42~0.86	*~0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	*	0.41~0.67	0.42~0.62
	平沼	11月	0.41±0.12	0.32±0.10	0.49~0.89	0.38~0.79

・「-」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。なお検出限界は、TFWT で0.31~0.49 Bq/L、OBТ で0.31~0.51 Bq/Lであった。

※1 平成 19 年度で調査終了 ※2 平成 20 年度から調査開始

表3 魚類のトリチウム (TFWT、OBT) 濃度 (平成23年度)

試料名	採取地点	採取月	平成23年度調査結果			(参考) 平成19~22年度調査結果		
			TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
魚類 <sup>※1</sup>	六ヶ所村 前面海域①	6月	*	*	*	*~3.3	*~1.4	*
		8月	*	*	*			
		11月	*	*	*			
		12月	*	*	*			
	六ヶ所村 前面海域②	6月 <sup>※2</sup>	*	*	*	*	*~0.77	*
		7月	*	*	*			
		10月	*	*	*			
		2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。なお検出限界は、TFWTで0.27~0.46 Bq/L、OBTで0.30~0.45 Bq/L、非交換型OBTで0.30~0.45 Bq/Lであった。

※1 魚類はヒラメ及びカレイ ※2 非交換型OBTの試料の採取月は4月

表4 乳牛の飲料水中のトリチウム濃度 (単位: Bq/L)

採取時期	地点							
	富ノ沢		横浜		二又		豊原	
平成22年度	4月	0.47 ± 0.07	*	*	0.29 ± 0.07			
	7月	0.62 ± 0.07	-	*	0.34 ± 0.07			
	10月	0.58 ± 0.09	*	*	0.45 ± 0.07			
	1月	0.53 ± 0.08	-	*	0.32 ± 0.07			
平成23年度	4月	0.73 ± 0.09	0.32 ± 0.10	*	*			
	7月	0.55 ± 0.08	*	*	0.33 ± 0.07			
	10月	*	*	0.25 ± 0.07	0.57 ± 0.08			
	1月	0.63 ± 0.07	*	*	0.47 ± 0.07			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお検出限界は、0.21~0.30 Bq/Lであった。

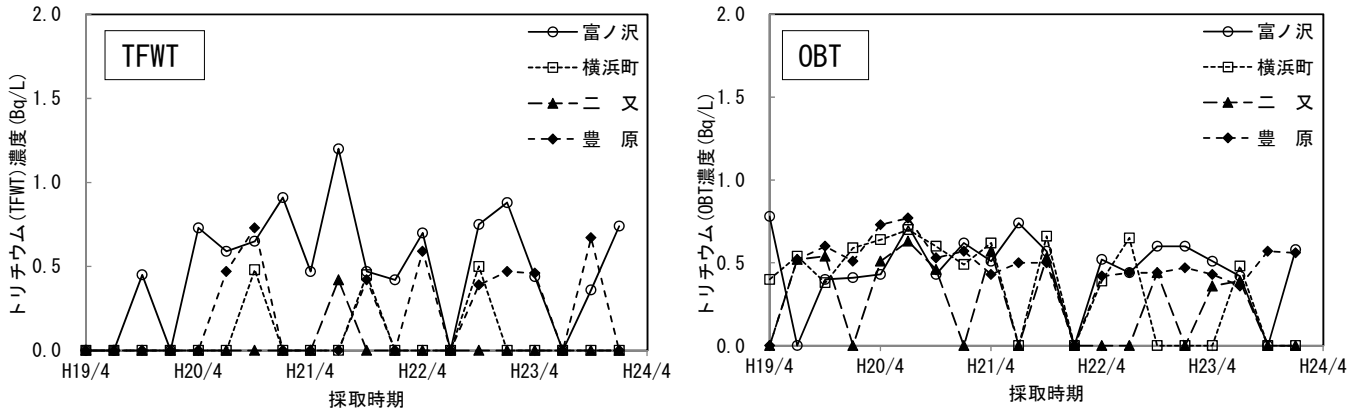


図5 牛乳におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化  
 ※検出限界以下は0としてプロットした。なお検出限界はTFWTで0.31~0.49 Bq/L、  
 OBTで0.31~0.51 Bq/L。

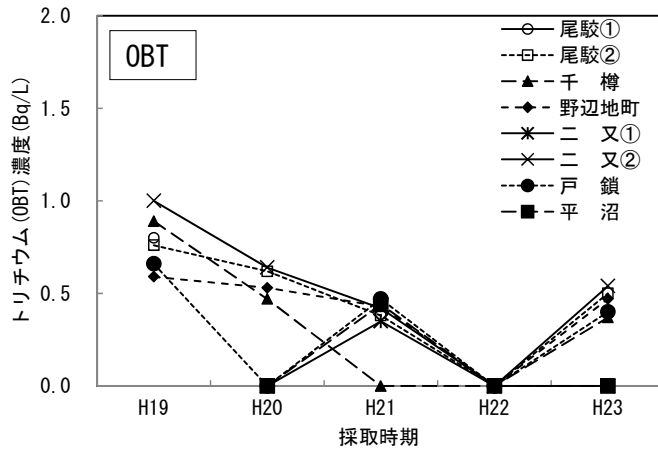


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化  
 ※検出限界以下は0としてプロットした。なお検出限界は0.31~0.50 Bq/L。

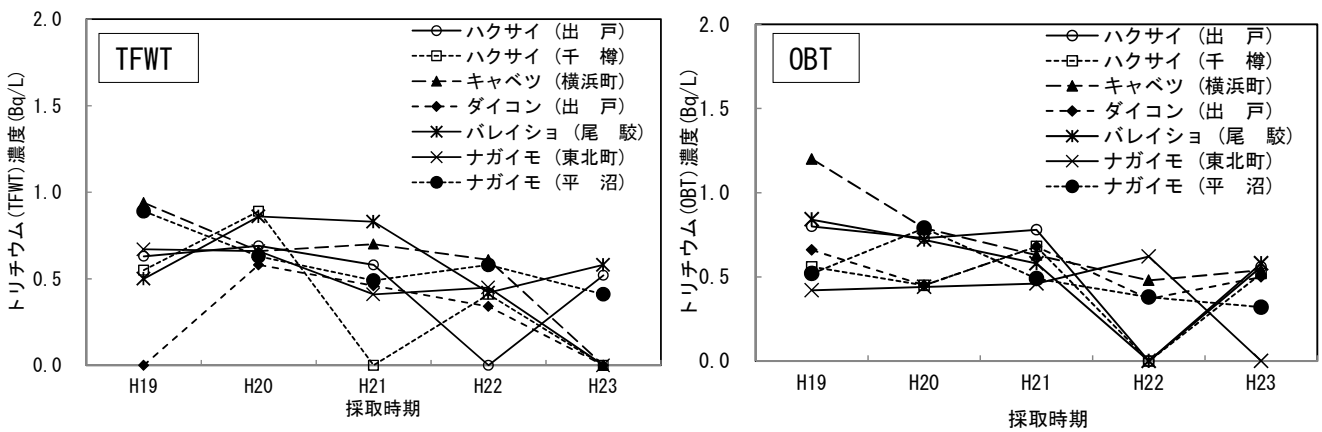


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化  
 ※検出限界以下は0としてプロットした。なお検出限界はTFWTで0.33~0.45 Bq/L、  
 OBTで0.34~0.45 Bq/L。

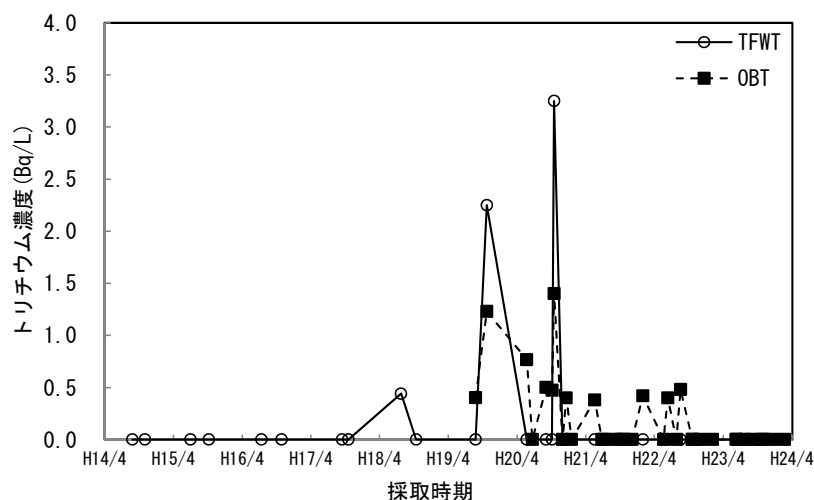


図8 魚類におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

※1 検出限界以下は0としてプロットした。なお検出限界は TFWT で0.27~0.54 Bq/L、OBT で0.30~0.45 Bq/L。

※2 平成18年度以前は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

## 4.2 炭素-14

環境試料中の炭素-14比放射能の測定結果は表5に示すとおり、精米が0.233~0.243 Bq/g炭素、葉菜が0.227~0.238 Bq/g炭素、根菜・いも類が0.229~0.234 Bq/g炭素、牛乳が0.229~0.243 Bq/g炭素であった。

図9に環境放射線モニタリングで測定している農産物（精米、葉菜及び根菜・いも類）の炭素-14比放射能の推移を示す。炭素-14のモニタリングを開始した平成7年度から平成18年度まで炭素-14比放射能には減少傾向が認められている。大気圏内核実験によって増加した炭素-14は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。アクティブ試験の影響が認められなかった平成7年度から平成18年度までに県のモニタリングで得られた炭素-14比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値0.228 Bq/g炭素<sup>8)</sup>を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源の炭素-14の半減時間を求めると9.5年となり、これは府馬ら<sup>9)</sup>による核実験起源の炭素-14の1963年から1976年までの半減時間9.0年、1984年から2000年までの半減時間10.3年とほぼ一致した。また、平成7年度から平成18年度まで年度ごとに測定値の変動係数を算出し、その平均値を求めた。先に得られた減衰式と変動係数から平成7年度から平成18年度までの各年度における比放射能の推定値と変動幅(3σ)を求め、これらを用い施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推移を推定し、図に示した。平成23年度の測定値には、すべての試料において平成19及び20年度のような高い値がみられず、施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推定値±3σの範囲内にあった。

図10には牛乳の炭素-14比放射能の推移を示す。牛乳はアクティブ試験前の測定結果がないため、参考として農産物の値から求めた比放射能の推定値と変動幅も併せて記載した。牛乳においても、図9に示す農産物と同様に平成19及び20年度は高い値がみられているが、平成23年度の測定値は、すべて推定値±3σの範囲内であった。なお、農産物の値から求めた比放射能推定値と変動幅を牛乳に適用できるか確認するため、アクティブ試験の影響が考えられる平成19及び

20年度の牧草を飼料として使用している平成19年度から平成21年度を除き、年度毎に平均値及び分散の差の検定<sup>※2</sup>を行った(表6)。その結果、平成22及び23年度の測定値において有意差は認められなかった(有意水準5%)。このことから、農産物の比放射能推定値及び変動幅を牛乳において適用することは妥当であると考えられる。

※2 2つの測定結果の平均値及び分散に差があるかないかを判定する統計的手法。それぞれの平均値、バラツキ(分散)等からt値及びF値を算出し、基準値と比較して判定する。

表5 環境試料中の炭素-14比放射能(Bq/g炭素)

試料名	採取地点	採取月	H23年度調査結果	(参考) H19~22年度調査結果
	尾駸① <sup>※1</sup>	-	-	0.240
精米	尾駸②	9月	0.236±0.003	0.237~0.258
	千樽	10月	0.236±0.003	0.233~0.248
	野辺地町	10月	0.237±0.003	0.229~0.249
	二又① <sup>※2</sup>	10月	0.233±0.003	0.231~0.241
	二又②	10月	0.235±0.003	0.237~0.251
	戸鎮	10月	0.243±0.003	0.237~0.255
	平沼 <sup>※2</sup>	9月	0.234±0.003	0.228~0.239
ハクサイ	出戸	11月	0.234±0.003	0.230~0.245
	千樽	10月	0.238±0.003	0.236~0.260
キャベツ	横浜町	11月	0.227±0.002	0.234~0.267
ダイコン	出戸	11月	0.230±0.003	0.228~0.238
バレイショ	尾駸	8月	0.234±0.003	0.236~0.244
ナガイモ	東北町	11月	0.229±0.002	0.236~0.243
	平沼	11月	0.234±0.003	0.230~0.258
牛乳 (原乳)	富ノ沢	4月	0.229±0.003	0.231~0.256
		7月	0.233±0.003	
		10月	0.232±0.003	
		1月	0.234±0.003	
	横浜町	4月	0.232±0.003	0.232~0.245
		7月	0.236±0.003	
		10月	0.236±0.003	
		1月	0.238±0.003	
	二又	4月	0.236±0.003	0.235~0.262
		7月	0.237±0.003	
		10月	0.239±0.003	
		1月	0.243±0.003	
豊原	4月	0.238±0.003	0.232~0.266	
	7月	0.234±0.003		
	10月	0.238±0.003		
	1月	0.237±0.003		

※1 平成19年度で調査終了 ※2 平成20年度から調査開始

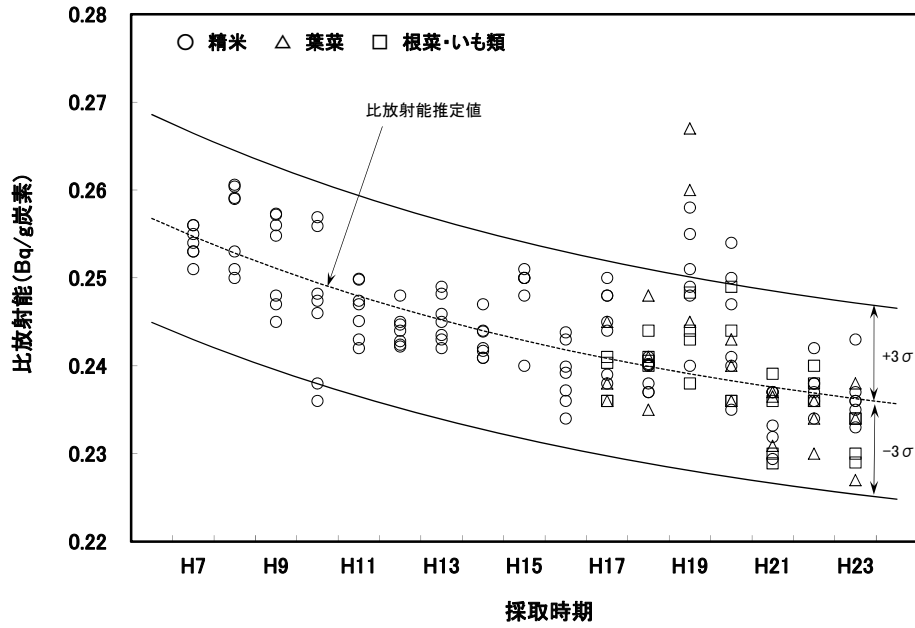


図9 農産物における炭素-14 比放射能の経年変化

炭素-14 比放射能推定値及び変動幅の算出方法

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

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

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

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

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

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

$t$ : 平成6年度からの経過年数 (年)

・変動幅 ( $3\sigma$ ) = 比放射能推定値・変動係数・3

変動係数: 平成7~18年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

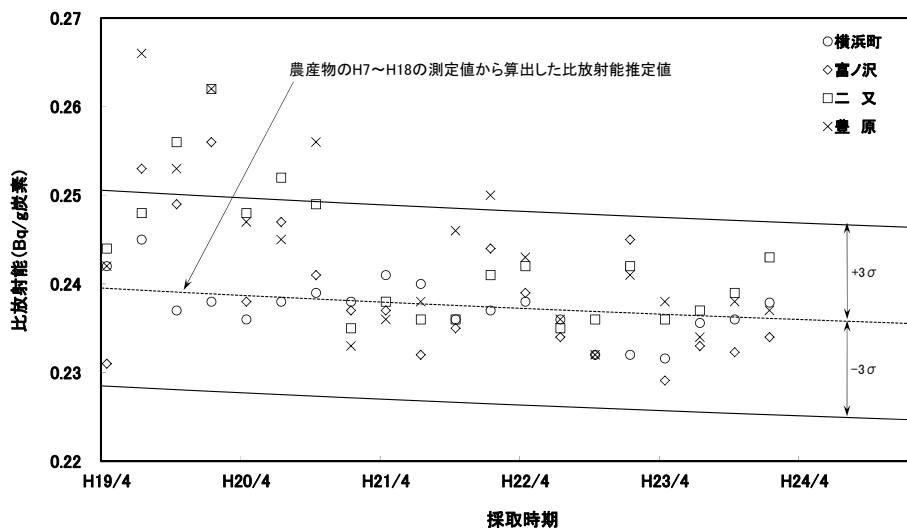


図10 牛乳における炭素-14 比放射能の経年変化

表6 農産物と牛乳の測定値における平均値と分散の比較

採取時期	データ数	平均値	標準偏差	最大値	最小値	t 値	F 値	
						(0.05)	(0.05)	
H22	農産物	15	0.236	0.004	0.242	0.228	1.01	1.48
	牛乳	16	0.237	0.004	0.245	0.229	<2.05	<2.95
H23	農産物	15	0.234	0.004	0.243	0.227	1.13	1.31
	牛乳	16	0.236	0.003	0.243	0.229	<2.05	<2.89

### 4.3 ヨウ素-129 及びヨウ素-131

環境試料中のヨウ素-129 濃度及び  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比を表7に、その経年変化を図11に示す。ヨウ素-129 濃度については、葉菜類で  $1.8 \times 10^{-7} \sim 1.0 \times 10^{-6}$  Bq/kg 生、海藻類で  $2.4 \times 10^{-4}$  及び  $8.5 \times 10^{-5}$  Bq/kg 生であった。海藻類は葉菜類に比べて安定ヨウ素濃度が高く、このためヨウ素-129 濃度についても海藻類の方が高くなっているものと考えられる。一方、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は葉菜類で  $4.2 \times 10^{-9} \sim 2.8 \times 10^{-8}$ 、海藻類で  $7.8 \times 10^{-11}$  及び  $6.3 \times 10^{-11}$  であった。大気圏内核実験後の環境中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、陸上試料で  $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で  $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$  程度と報告されている<sup>10)</sup>。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、これらと同程度であり、また、平成19及び20年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに低めであった。

ヨウ素-131 は、すべての試料において検出限界以下であった。

表7 環境試料中のヨウ素-129 濃度及び  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比

試料名	採取地点	採取月	平成23年度調査結果		(参考)平成19~22年度調査結果	
			ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比	ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比
ハクサイ	出戸	11月	$5.9 \times 10^{-7} \pm 0.3 \times 10^{-7}$	$4.9 \times 10^{-9}$	$1.9 \times 10^{-7} \sim 1.7 \times 10^{-5}$	$6.4 \times 10^{-9} \sim 4.9 \times 10^{-7}$
	千樽	10月	$1.0 \times 10^{-6} \pm 0.5 \times 10^{-7}$	$2.8 \times 10^{-8}$	$8.6 \times 10^{-7} \sim 1.6 \times 10^{-5}$	$2.4 \times 10^{-8} \sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	11月	$1.8 \times 10^{-7} \pm 0.2 \times 10^{-7}$	$4.2 \times 10^{-9}$	$1.8 \times 10^{-6} \sim 1.2 \times 10^{-5}$	$3.0 \times 10^{-8} \sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域 ①	8月	$2.4 \times 10^{-4} \pm 0.7 \times 10^{-5}$	$7.8 \times 10^{-11}$	$2.1 \times 10^{-4} \sim 2.8 \times 10^{-3}$	$7.2 \times 10^{-11} \sim 9.1 \times 10^{-10}$
		10月	$8.5 \times 10^{-5} \pm 0.3 \times 10^{-5}$	$6.3 \times 10^{-11}$		

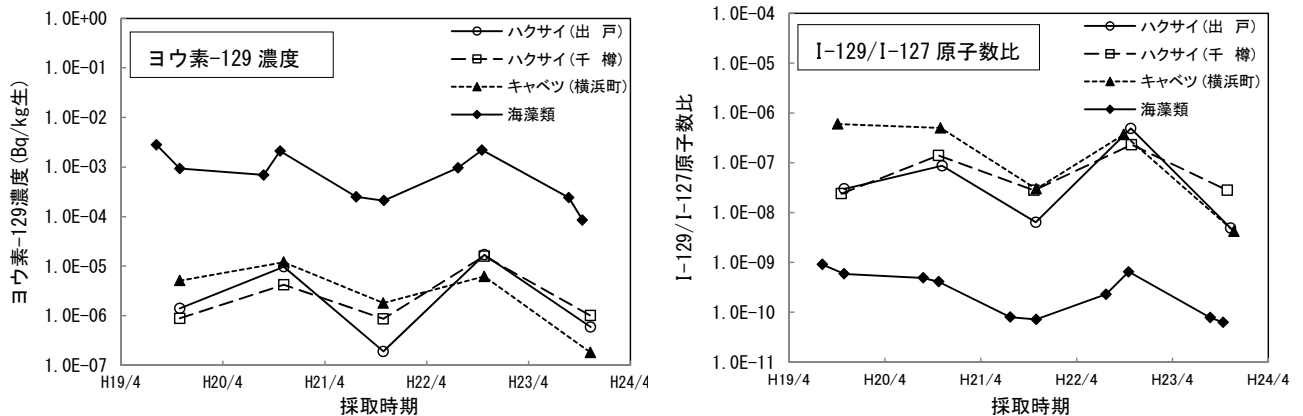


図 1.1 ヨウ素-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

## 5. まとめ

平成 23 年度の調査において、トリチウムは、陸上試料については、近年の大気及び降水中トリチウム濃度と同程度であり、海洋試料である魚類については、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBТ については、検出限界以下であった。炭素-14 比放射能は、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。ヨウ素-129 は、葉菜類、海藻類ともに  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比が大気圏内核実験後のバックグラウンドレベルと比較して同程度であり、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに低めであった。ヨウ素-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

## 文 献

- 1) 青森県：環境放射線モニタリング（平成 21 年 4 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（平成 14 年）
- 3) F. Pointurier, N. Baglan, G. Alanic and R. Chiappini : Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France, *Journal of Environmental Radioactivity*, **68**, 171-189(2003)
- 4) 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）
- 5) 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）
- 6) 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）
- 7) 中野政尚、國分祐司、武石稔：東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの海水中濃度及び拡散状況、*保健物理*, **44**(1), 60~65(2009)
- 8) Y. Inoue and T. Iwakura : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiocarbon Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 9) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、檜田義彦、一政祐輔：1990 年代の日本における  $^{14}\text{C}$  の環境バックグラウンドレベル, *RADIOISOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 10) Xiaolin. Hou : Application of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)



## 青森県の環境放射線モニタリング及び環境放射能水準調査における 東京電力（株）福島第一原子力発電所事故の影響について

五十嵐 健 工藤俊明 山口和貴 葛西邦生 二瓶祐介  
田中義也\*1 佐々木耕一\*1 安藤史孝\*2 深堀雄基\*2

### 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基本計画」、「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」及び「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」に基づき県内の原子力施設に係る環境放射線モニタリング（以下、「モニタリング」という。）を実施している。また、文部科学省からの委託事業として、県内全域の環境放射能の水準を把握するために環境放射能水準調査（以下、「水準調査」という。）を実施している。平成23年3月に発生した東京電力（株）福島第一原子力発電所事故（以下、「東電事故」という。）に伴い、青森県においても一部の環境試料にI-131、Cs-134等比較的半減期の短い放射性核種が検出されるとともに、Cs-137及びSr-90濃度の上昇が見られた。本報では、平成23年3月から平成24年9月までに採取した環境試料のうち、当該事故の影響が考えられる測定結果についてとりまとめた。

### 2. 調査方法

#### 2.1 モニタリング及び水準調査における調査計画の概要

モニタリング及び水準調査における採取試料、採取頻度及び放射性物質の測定項目をそれぞれ表1及び表2に示す。

表1 調査計画の概要

#### 【モニタリング】

採取試料	頻度	測定項目
大気	1回/週	I-131
大気(水蒸気状) ※1	1回/月	H-3
大気浮遊じん	1回/週※1、1回/3h※2	全α、全β
	1回/3月※1、1回/月※2	γ線放出核種、Sr-90※1、Pu※1、U※1
月間降下物、雨水※1	1回/月	γ線放出核種、H-3※1
	1回/年	Sr-90、Pu、U※1
河川水、湖沼水※1、水道水、井戸水、海水	1~4回/年	γ線放出核種、H-3、Sr-90※1、Pu※1、U ※1
河底土※1、湖底土※1、土壌(0~5cm)、海底土	1回/年	γ線放出核種、Sr-90※1、I-129※1、Pu、Am-241※1、Cm-244※1、U※1
農畜産物、淡水産食品※1、海産食品、指標生物	1~4回/年	γ線放出核種、H-3※1、C-14※1、I-131、Sr-90、Pu、U※1

※1 原子燃料サイクル施設 ※2 東通原子力発電所

\*1：日本原燃株式会社 \*2：東北電力株式会社

## 【水準調査】

採取試料	頻度	測定項目
定時降下物 [平成 23 年 3～12 月]	1 回/日	
大気浮遊じん[平成 24 年 4 月～]	1 回/3 月	
月間降下物	1 回/月	
上水 (蛇口水)	1 回/年	
上水 (蛇口水) [平成 23 年 3～12 月]	1 回/日	γ線放出核種、I-131
上水 (蛇口水) [平成 24 年 1 月～]	1 回/3 月	
土壌 (0-5cm,5-20cm)、	1 回/年	
海水、海底土	1 回/年	
牛乳 (原乳)、野菜、精米、貝類、海藻類	1 回/年	

## 2.2 試料採取及び測定方法

試料採取及び測定方法は、モニタリング及び水準調査の中で、測定結果に東電事故の影響が認められた試料及び測定項目について記載した。

### (1) 大気浮遊じん

原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所の周辺地域、並びに比較対照地点の青森市に設置したモニタリングステーション (以下、「MS」という。) において、ダストモニタにより試料を採取した。図 1 に MS の位置を示す。ダストモニタによる採取・測定条件は以下のとおりである。

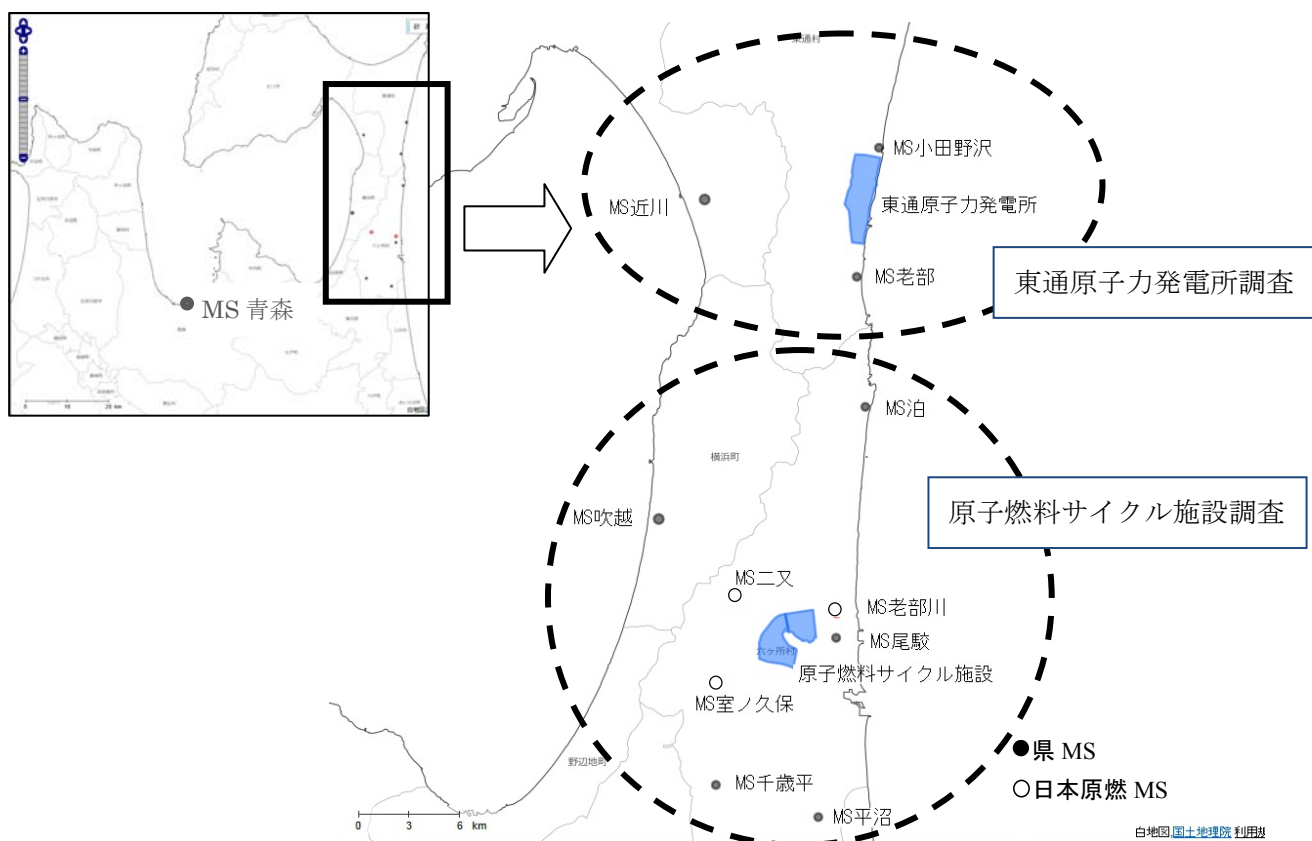


図 1 モニタリングステーション (MS) の位置

(電子国土ポータル <http://portal.cyberjapan.jp/index.html>)

#### ア 原子燃料サイクル施設に係る調査（比較対照地点含む）

- ・吸引量 100L/min で大気を吸引し、ろ紙（HE-40）に大気浮遊じんを 1 週間捕集。
- ・72 時間放置後、ZnS(Ag)+プラスチックシンチレーション検出器で全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能を同時に 1 時間測定<sup>1)</sup>。

#### イ 東通原子力発電所に係る調査

- ・吸引量 200L/min で大気を吸引し、ろ紙（HE-40）に大気浮遊じんを 3 時間捕集。
- ・捕集直後、ZnS(Ag)+プラスチックシンチレーション検出器を用いて全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能を同時に 10 分間測定<sup>1)</sup>。

大気浮遊じん中の放射性物質として、通常は Rn-222 及び Rn-220 の壊変生成物が支配的である。しかし、原子燃料サイクル施設に係る調査（以下、「サイクル調査」という。）では、捕集後 72 時間放置し短寿命核種からの寄与を除いているため、捕集直後に測定する東通原子力発電所に係る調査（以下、「東通原発調査」という。）に比較して、測定値は  $10^2 \sim 10^3$  小さくなっている。

全 $\alpha$ 放射能及び全 $\beta$ 放射能の測定後、サイクル調査は 3 カ月分のろ紙を集積したものを、東通原発調査は 1 カ月分のろ紙を集積して 450°C で灰化したものを測定試料とし、ゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種を測定した<sup>2)3)</sup>。

#### (2) 大気中 I-131

大気中 I-131 については、ダストモニタで大気浮遊じん採取後の大気を吸引量 50L/min で 1 週間活性炭カートリッジ（CHC-50）に通すことにより捕集した<sup>2)4)</sup>。サイクル調査では、捕集後の試料を回収してゲルマニウム半導体検出器により 80000 秒測定した<sup>2)</sup>。定量下限値は 0.2 mBq/m<sup>3</sup> である。東通原発調査では、捕集後の試料を自動的に 2"  $\phi$  × 2" NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータに移動し 1 時間測定した<sup>1)</sup>。定量下限値は 20 mBq/m<sup>3</sup> である。

#### (3) 月間降下物

六ヶ所村千歳平、東通村砂子又、東通原子力発電所の周辺監視区域境界付近及び青森市において採取した。降水及びじん埃を大型水盤（採取面積 0.466 m<sup>2</sup>）により 1 カ月ごとに採取し蒸発乾燥させ、まずゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種の測定を行った<sup>2)3)</sup>。その後、測定済試料 12 カ月分を 1 試料として、酸分解後、化学分離し、低バックグラウンド 2 $\pi$  ガスフロー計数装置を用いて Sr-90 を、シリコン半導体検出器を用いて Pu-239+240 をそれぞれ測定した<sup>5)6)</sup>。

#### (4) 定時降下物

定時降下物については、青森市において、雨水採取器（採取面積 995 cm<sup>2</sup>）により前日 9 時から当日 9 時までの降水及びじん埃を採取した。降水がない場合は、採取器の開口部を純水で洗浄して洗浄水を試料とした。試料をそのまま用い、ゲルマニウム半導体検出器により $\gamma$ 線放出核種を測定した<sup>2)4)</sup>。

#### (5) 土壌

モニタリングでは地表～5cm の深さまでの土壌を 10 cm  $\phi$  × 5 cm ステンレス製採土器を用いて、水準調査では地表～5 cm と、5～20 cm の 2 層を 5 cm  $\phi$  × 30 cm ステンレス製採土器を用いて採取した。草、小石等を除き、100°C で 24 時間以上乾燥し、乳鉢で軽く摩砕後、2 mm ふるいでふる

い分けし、ゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種を測定した<sup>2)3)</sup>。

#### (6) 湖沼水・海水

湖沼水及び海水とも、調査船上から表面水を採取した。共沈法(AMP-MnO<sub>2</sub>法)による沈殿物を試料とし、ゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種の測定を行った<sup>2)3)</sup>。

#### (7) 海底土

スミスマッキンタイヤ採泥器あるいはエクマンバージ採泥器を用いて表面底質を採取した。100℃で24時間以上乾燥し、2mmふるいでふるい分けし、ゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種を測定した<sup>2)3)</sup>。

#### (8) 牛乳（原乳）

牛舎内のクーラータンクから原乳を採取した。試料を100℃で24時間以上乾燥し、450℃で24時間灰化させた後、ゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種を測定した<sup>2)3)</sup>。またI-131については、試料を生のままゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した<sup>2)4)</sup>。

#### (9) 農畜産物・指標生物・海産食品

農畜産物及び海産食品については、水洗後可食部を取り出し試料とした。指標生物については原則として水洗せず、そのまま試料とした。試料を100℃で24時間以上乾燥し、450℃で24時間灰化させた後、ゲルマニウム半導体検出器を用いて $\gamma$ 線放出核種を測定した<sup>2)3)</sup>。またI-131については、試料を生のままあるいは乾燥させた後、ゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した<sup>2)4)</sup>。

### 3. 調査結果及び考察

#### 3.1 調査結果の概要

東電事故の影響が考えられる測定結果の概要は次のとおりである。個々の試料の測定値については、末尾に付録として取りまとめた。

##### (1) 大気浮遊じん中全 $\beta$ 放射能

サイクル調査の各地点における測定値の最大値は1.7～4.9 mBq/m<sup>3</sup>であり、比較対照の青森市を含むすべての地点において東電事故前の測定値の範囲（検出限界以下～1.7 mBq/m<sup>3</sup>）を上回った。

##### (2) 大気中I-131（半減期8日）

サイクル調査の各地点における測定値の最大値は、1.1～2.0 mBq/m<sup>3</sup>であり、比較対照の青森市を含むすべての地点において東電事故前の測定値の範囲（<0.2 mBq/m<sup>3</sup>）を上回った。2.0 mBq/m<sup>3</sup>は、法令<sup>7)</sup>に定める周辺監視区域外における空气中濃度限度 $5 \times 10^3$  mBq/m<sup>3</sup>の $1 / (2.5 \times 10^3)$ であった。大気中I-131は平成23年7月以降検出されていない。

##### (3) 大気浮遊じん中 $\gamma$ 線放出核種

サイクル調査及び東通原発調査において、Cs-134(半減期2年)、Cs-137(半減期30年)及び

Nb-95(半減期 35 日)が検出された。それぞれの最大値は 1.1 mBq/m<sup>3</sup>、1.0 mBq/m<sup>3</sup> 及び 0.013 mBq/m<sup>3</sup> であり、法令<sup>7)</sup>に定める周辺監視区域外における空气中濃度限度(Cs-134 : 2×10<sup>4</sup> mBq/m<sup>3</sup>、Cs-137 : 3×10<sup>4</sup> mBq/m<sup>3</sup>、Nb-95 : 7×10<sup>4</sup> mBq/m<sup>3</sup>) のそれぞれ 1/(1.8×10<sup>4</sup>)、1/(3×10<sup>4</sup>)及び 1/(5.3×10<sup>6</sup>)であった。平成 23 年 7 月以降、これらの核種は検出されていない。

#### (4) 降下物

月間降下物中の I-131、Cs-134 及び Cs-137 の最大値は、いずれも東通原子力発電所の周辺監視区域境界付近における 4 月分の 150 Bq/m<sup>2</sup>であった。また、定時降下物中の I-131、Cs-134 及び Cs-137 の最大値は、いずれも平成 23 年 4 月 28 日採取分で、それぞれ 45 Bq/m<sup>2</sup>、38 Bq/m<sup>2</sup> 及び 36 Bq/m<sup>2</sup>であった。

平成 23 年 3 月～平成 24 年 9 月における放射性セシウム (Cs-134 と Cs-137 の合計) の累積降下量は最大の地点で 420 Bq/m<sup>2</sup>であった。これがすべて 0～5 cm の土壤に沈着したと仮定し、土壤密度を 1.3 g/cm<sup>3</sup><sup>8)</sup>とすれば、土壤中濃度は約 6.5 Bq/kg となり、全国で実施している水準調査における東電事故前(平成 19～21 年度)の Cs-137 の測定値 (検出されず～65 Bq/kg 乾 (n=147)、検出された測定値の平均値 13.4 Bq/kg 乾 (n=133)) の範囲内であった。

この他の γ 線放出核種として、半減期の短い I-131、Nb-95、Ag-110m、Sb-125、Te-129m、Cs-136 が平成 23 年 4～5 月分の試料で検出されたが、平成 23 年 6 月以降これらの核種は検出されていない。

月間降下物中 Sr-90 は平成 23 年度 1 年分の測定値で、最大値は東通原子力発電所の周辺監視区域境界付近の 0.74 Bq/m<sup>2</sup> であった。放射性セシウムと同様に、Sr-90 0.74 Bq/m<sup>2</sup> がすべて 0～5 cm の土壤に沈着したと仮定して計算すると、土壤中濃度は約 0.011 Bq/kg となり、水準調査における東電事故前(平成 19～21 年度)の Sr-90 の測定値 (検出されず ～ 14 Bq/kg 乾(n=147)、検出された測定値の平均値 2.0 Bq/kg 乾(n=125) )と比較して低い値であった。

#### (5) 湖沼水

六ヶ所村前面海域に接する尾駱沼の湖沼水中 Cs-134 及び Cs-137 はそれぞれ最大 14 mBq/L 及び 15 mBq/L であり (平成 23 年 5 月採取)、法令<sup>7)</sup>に定める周辺監視区域外における水中濃度限度 (Cs-134 : 60 Bq/L、Cs-137 : 90 Bq/L) のそれぞれ 1/(4.2×10<sup>3</sup>)及び 1/(6×10<sup>3</sup>)であった。尾駱沼は海水が流入する汽水湖であるが、湖沼水の採取月前後の 4 月及び 7 月に採取した六ヶ所村前面海域の海水からこれらの核種が検出されていないこと、六ヶ所村における 4 月及び 5 月の降下物から Cs-134 及び Cs-137 が検出されていることから、降雨や河川等からの流入の影響が考えられる。

#### (6) 土壌

Cs-134 及び Cs-137 の測定値は、それぞれ最大 4 Bq/kg 乾及び 42 Bq/kg 乾であった (平成 24 年 7 月採取)。これらの値は、上述の水準調査における東電事故前(平成 19～21 年度)の Cs-137 測定値の範囲内であった。

#### (7) 牛乳

Cs-134 及び Cs-137 の測定値は、それぞれ最大 0.6 Bq/L 及び 0.8 Bq/L であった (平成 23 年 7 月

採取)。2核種の合計の最大値は1.4 Bq/Lであり、1 L=1 kg とすれば、食品衛生法の基準値 50 Bq/kg の 1/35 であった。

#### (8) 牧草

Cs-134 及び Cs-137 の測定値は、それぞれ最大 5.2 Bq/kg 生及び 5.9 Bq/kg 生であった（平成 23 年 8 月採取）。2核種の合計の最大値は 11.1 Bq/kg 生であり、牧草の暫定許容値 100 Bq/kg の 1/9 であった。

#### (9) アブラナ

Cs-134 及び Cs-137 の測定値は、ともに最大 2.0 Bq/kg 生であった（平成 23 年 4 月採取）。2核種の合計の最大値は 4 Bq/kg 生であり、食品衛生法の基準値 100 Bq/kg の 1/25 であった。また、半減期の短い I-131、Zr-95 及び Nb-95 が検出され、それぞれ 0.7 Bq/kg 生、0.32 Bq/kg 生及び 0.37 Bq/kg 生であった。経口摂取した場合の実効線量係数については I-131 は放射性セシウムと同程度であり、Zr-95 と Nb-95 は放射性セシウムに比べて小さい。放射性セシウムに係る食品衛生法の基準値 100 Bq/kg と比較した場合でも、それぞれ 1/140、1/310 及び 1/270 であった。

#### (10) 指標生物(松葉)

Cs-134 及び Cs-137 の測定値は、ともに最大 35 Bq/kg 生であった（平成 23 年 5 月採取）。また、半減期の短い I-131、Nb-95、Ag-110m、Sb-125、Te-129m、Cs-136 及び La-140 が検出された。平成 23 年 10 月以降、これら半減期の短い核種は Sb-125 を除き、検出されていない。

#### (11) 海水

Cs-134 及び Cs-137 の測定値はそれぞれ最大 7 mBq/L 及び 8 mBq/L であり（平成 23 年 10 月採取）、法令<sup>7)</sup>に定める周辺監視区域外における水中濃度限度（Cs-134：60 Bq/L、Cs-137：90 Bq/L）のそれぞれ  $1/(8.5 \times 10^3)$  及び  $1/(1.1 \times 10^4)$  であった。

#### (12) 海底土

海底土については、Cs-134 が検出されなかったものの、Cs-137 の測定値が 0.97 Bq/kg 乾となり、過去 3 カ年の測定値（検出限界以下）を上回った。

#### (13) 海産食品及び指標生物(チガイソ)

Cs-134 及び Cs-137 の最大値は、いずれもヒラメ(平成 23 年 7 月に採取)で、それぞれ 12 Bq/kg 生及び 13 Bq/kg 生であった。2核種の合計の最大値は 25 Bq/kg 生であり、食品衛生法の基準値 100 Bq/kg の 1/4 であった。また、チガイソ(平成 23 年 4 月採取)から I-131 が、ホタテ（平成 23 年 9 月採取）及びヒラツメガニ(平成 24 年 7 月採取)から Ag-110m が検出され、それぞれ 3.1 Bq/kg 生、0.093 Bq/kg 生及び 0.22 Bq/kg 生であった。経口摂取した場合の実効線量係数については I-131 は放射性セシウムと同程度であり、Ag-110m は放射性セシウムに比べて小さい。放射性セシウムに係る食品衛生法の基準値 100 Bq/kg と比較した場合でも、それぞれ 1/32、 $1/(1 \times 10^3)$  及び 1/450 であった。

### 3.2 大気浮遊じん中全β放射能及び大気中I-131

サイクル調査における大気浮遊じん中全β放射能濃度の推移及び大気中I-131濃度の推移を図2及び図3に示す。大気浮遊じん中全β放射能濃度は、4月4～17日と4月25日～5月1日に比較的大きな上昇が見られた。大気中I-131濃度は、3月22日から定量下限値0.2mBq/m<sup>3</sup>を超えており、大気浮遊じん中全β放射能濃度と同様に4月4～18日と4月25日～5月2日に大きな上昇が見られた。

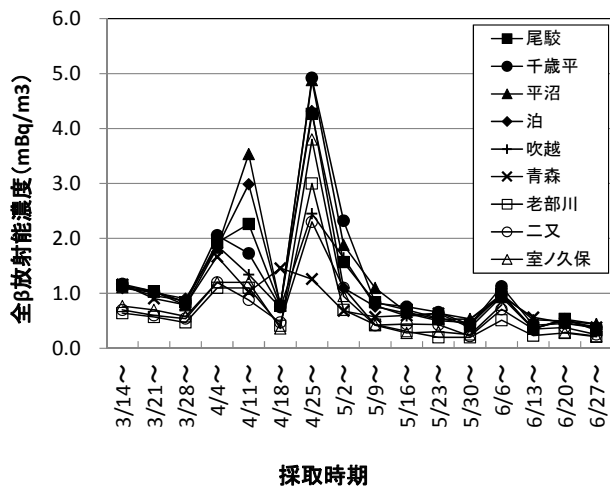


図2 大気浮遊じん中全β放射能濃度の推移(原子燃料サイクル施設)

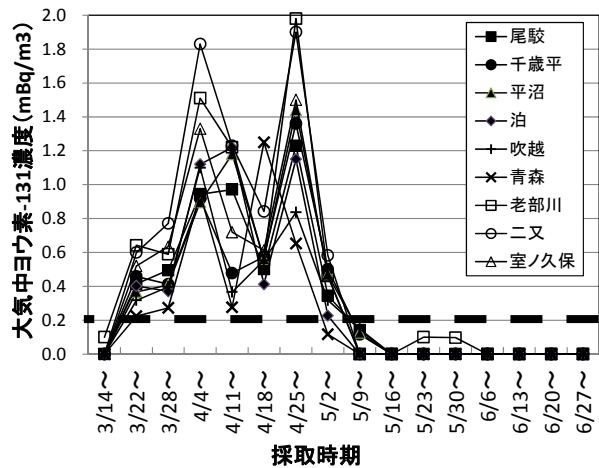


図3 大気中I-131濃度の推移(原子燃料サイクル)  
※図中の点線は定量下限値0.2mBq/m<sup>3</sup>

福島第一原子力発電所1～3号機からの放射性物質(セシウム)の1時間当たりの放出量は、事故時800兆Bq/hであったが、4月はその1/2700に減少している<sup>9)</sup>。本県における大気浮遊じん中全β放射能濃度及び大気中I-131濃度は、放出量が多かった3月ではなく、4月に比較的高い値を示していたため、後方流跡線解析により、東電事故に起因する放射性物質の本県への流入状況等について検討した。

(独)国立環境研究所地球環境研究センターが開発したCGER-METEXを用いて3月11日から6月30日にかけて後方流跡線解析を行った<sup>10)</sup>。表2に解析条件を示す。尾駈MSの高度200mを起点とし、1日1回12時(協定世界時3時)から120hの後方流跡線を描画した。

3月においては、図4aに示すように中国やロシアなどの大陸から季節風が六ヶ所村に流入するケースが多く、福島第一原子力発電所上空付近を通過したものは見られなかった。

4月からは、中国、ロシア、朝鮮半島などの大陸から日本列島を縦断し、六ヶ所村に流入したものがみられるようになった。4月26日から27日にかけて流跡線を1時間ごとに描画させたところ、概ね4月27日14時～17時にかけて六ヶ所村に流入した大気は福島第一原子力発電所付近上空を通過しており、大気浮遊じん中全β放射能濃度及び大気中I-131濃度が上昇した時期と一致した。図4bに4月27日15時の流跡線を示す。ただし、同様に大気浮遊じん中全β放射能濃度、大気中I-131濃度の上昇が見られた4月4日～17日において、大気が福島第一原子力発電所付近上空を通過し六ヶ所村に流入した状況は見られなかった。

表2 後方流跡線に係る解析諸元

尾駈MSの緯度	40.965°
経度	141.37°
高度	200m
トラジェクトリー長さ	120時

以上のように、本県における大気浮遊じん全β放射能濃度及び大気中 I-131 濃度の変動には、メソスケールでの大気の流れが関連していたことが示唆される。

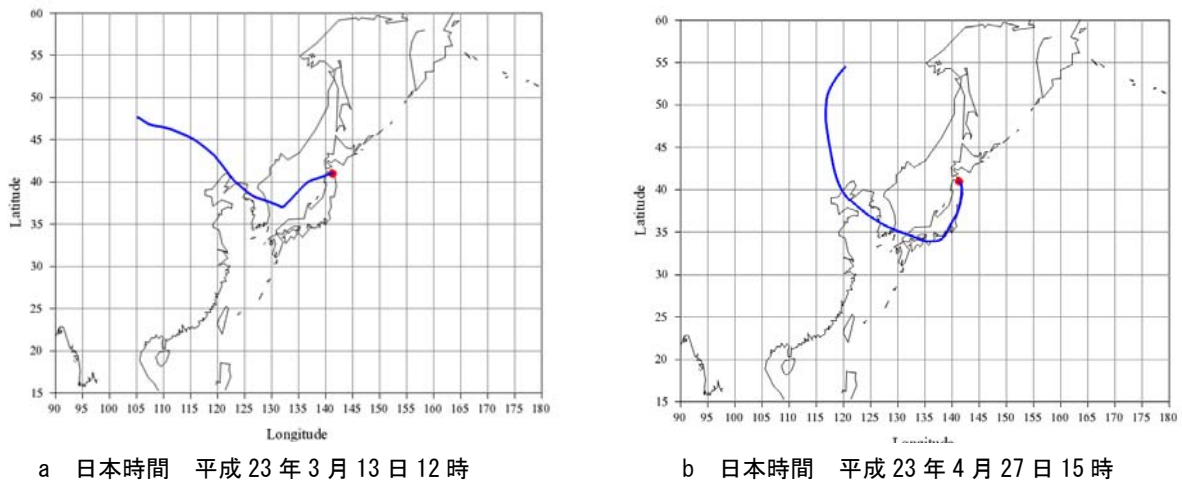


図 4 後方流跡線解析結果

### 3.3 降下物

#### (1) 月間降下物と定時降下物

月間降下物は六ヶ所村千歳平、東通村砂子又、周辺監視区域境界付近（東通原子力発電所内）及び青森市の 4 地点で採取している。図 5 に平成 23 年 3 月～8 月の月間降下物中放射性セシウム の推移を示す。3 月の測定値に事故の影響はほとんど見られていないが、4 月にすべての地点で 大きな上昇を示し、6 月以降は低い値で推移している。

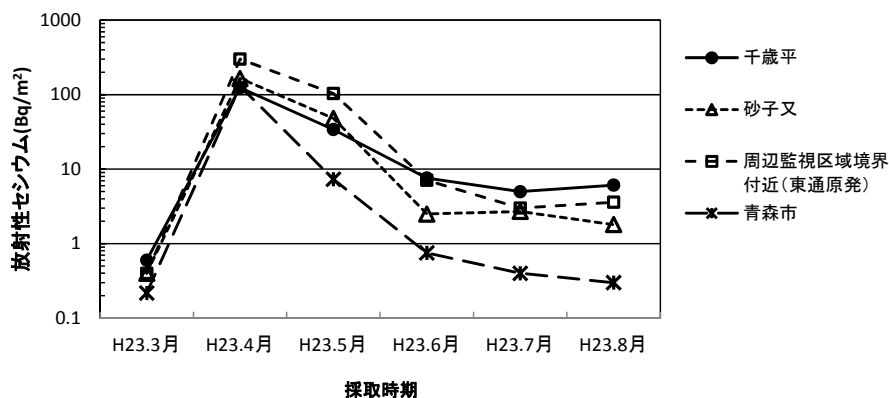


図 5 降下物中放射性セシウムの推移

定時降下物は青森市 1 地点で採取している。図 6 に定時降下物中の I-131 及び放射性セシウム と降水量の推移を示す。I-131 は、3 月 24 日に初めて検出された後 3 回検出され、4 月 28 日に最大値を示したが、放射性セシウムは、4 月 27 日に初めて検出され、翌 4 月 28 日に最大値を示した。I-131 及び放射性セシウムとも 4 月 29 日以降は検出されていない。

青森市における大気中 I-131 濃度は 4 月 4 日～11 日及び 4 月 18 日～5 月 2 日に比較的高い値を示したが、定時降下物中 I-131 についても 4 月 10 日に小さいピーク、4 月 28 日に大きいピークが見られ、両者の推移は概ね一致した。ただし、大気中 I-131 濃度は 4 月 18 日～25 日に最大値を示しており、この期間に降水があったが、定時降下物中 I-131 に上昇が認められていない。この理由としては、ちょうど大気中 I-131 濃度が高かった時間帯に降水がなかったことなどが考え



られるが、大気中濃度と降水量の関係を明確に把握するためには、試料採取期間を一致させることが必要である。

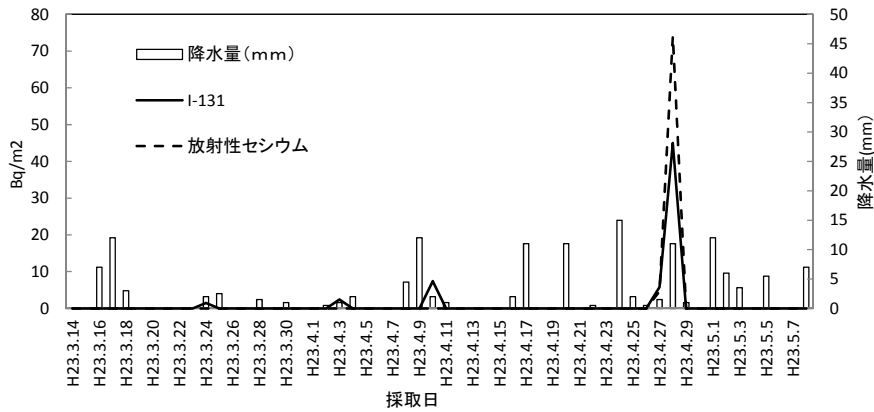
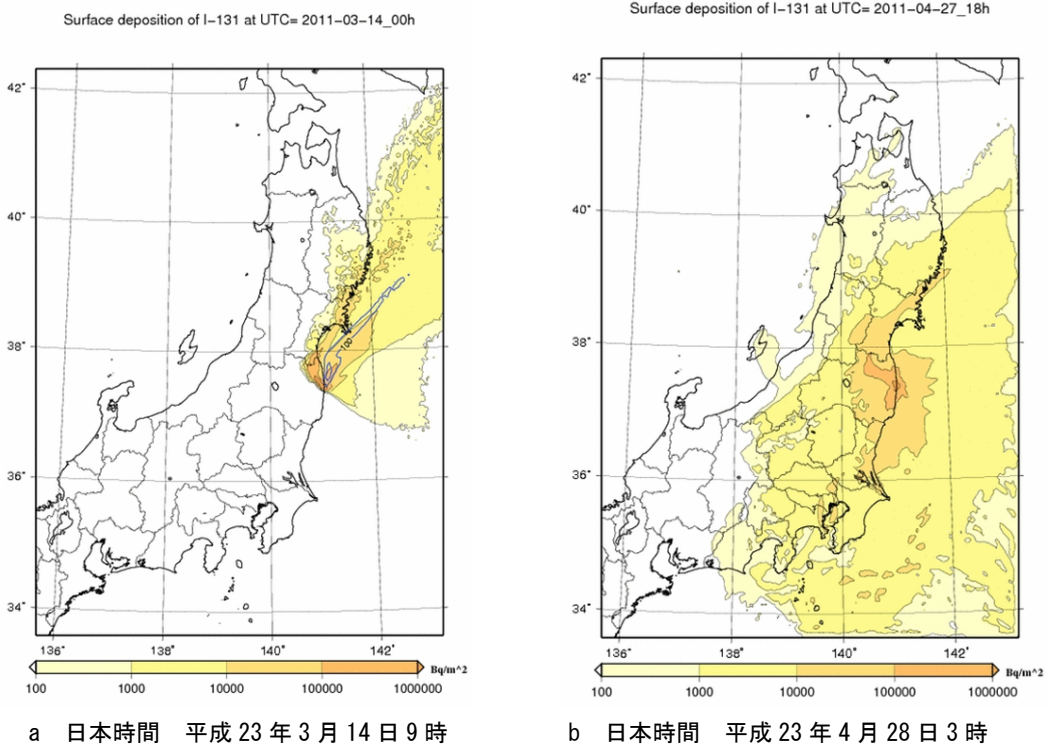


図 6 定時降下物中 I-131 及び放射性セシウムと降水量の推移(青森市)

(独) 日本原子力研究開発機構は、同機構ホームページにおいて WSPEEDI (世界版 SPEEDI) による中部・関東・東北地方での I-131 及び Cs-137 の大気降下の試算結果を公表している<sup>11)</sup>。この WSPEEDI による I-131 及び Cs-137 の降下量は、3 時間おきの気象庁 GPV (MSM) 解析データと核種放出率 (日本原子力研究開発機構が原子力安全委員会に報告した推定値) により、平成 23 年 3 月 12 日 18 時から 5 月 1 日 9 時 (協定世界時 3 月 12 日 9 時～5 月 1 日 0 時) にかけて 3 時間ごとに解析したものである。

図 7 のように、東電事故後の 3 月 14 日、I-131 は宮城県沿岸、岩手県沿岸及び北西方向の太平洋側に降下したと推定されており、本県には影響は見られていない。その後、山形県や関東地方に広がり、平成 23 年 4 月 28 日 3 時 (協定世界時 4 月 27 日 18 時) から本県の青森市、下北半島などでも降下したと推定されており、定時降下物中 I-131 濃度が最も高かった 4 月 28 日と一致した。なお、Cs-137 に係る WSPEEDI の推定結果では、本県への影響は見られなかった。



a 日本時間 平成 23 年 3 月 14 日 9 時

b 日本時間 平成 23 年 4 月 28 日 3 時

図 7 WSPEEDI による I-131 降下量の解析結果

## (2) 降下物中 Sr-90

### ア 年間降下量の推移

モニタリングにおいて、月間降下物は、 $\gamma$ 線放出核種を測定した後、12カ月分を1試料として Sr-90 及び Pu-239+240 の測定を行っている。Sr-90、Cs-134、Cs-137 及び Pu-239+240 の年間降下量の推移を図 8 に示す。Cs-134 及び Cs-137 については、正の測定値を 12 カ月分積算した。

Sr-90 は平成 22 年度まで全地点とも同じレベルで推移していたが、平成 23 年度に全地点で上昇し、過去の測定値の範囲を上回った。Cs-134 は平成 22 年度に初めて全地点で検出され、平成 23 年度はさらに高い値となった。Cs-137 は平成 22 年度まで全地点ともこれまでと同じレベルで推移したが、平成 23 年度に全地点において過去の測定値の範囲を上回った。Pu-239+240 は平成 23 年度まで同じレベルで推移していた。

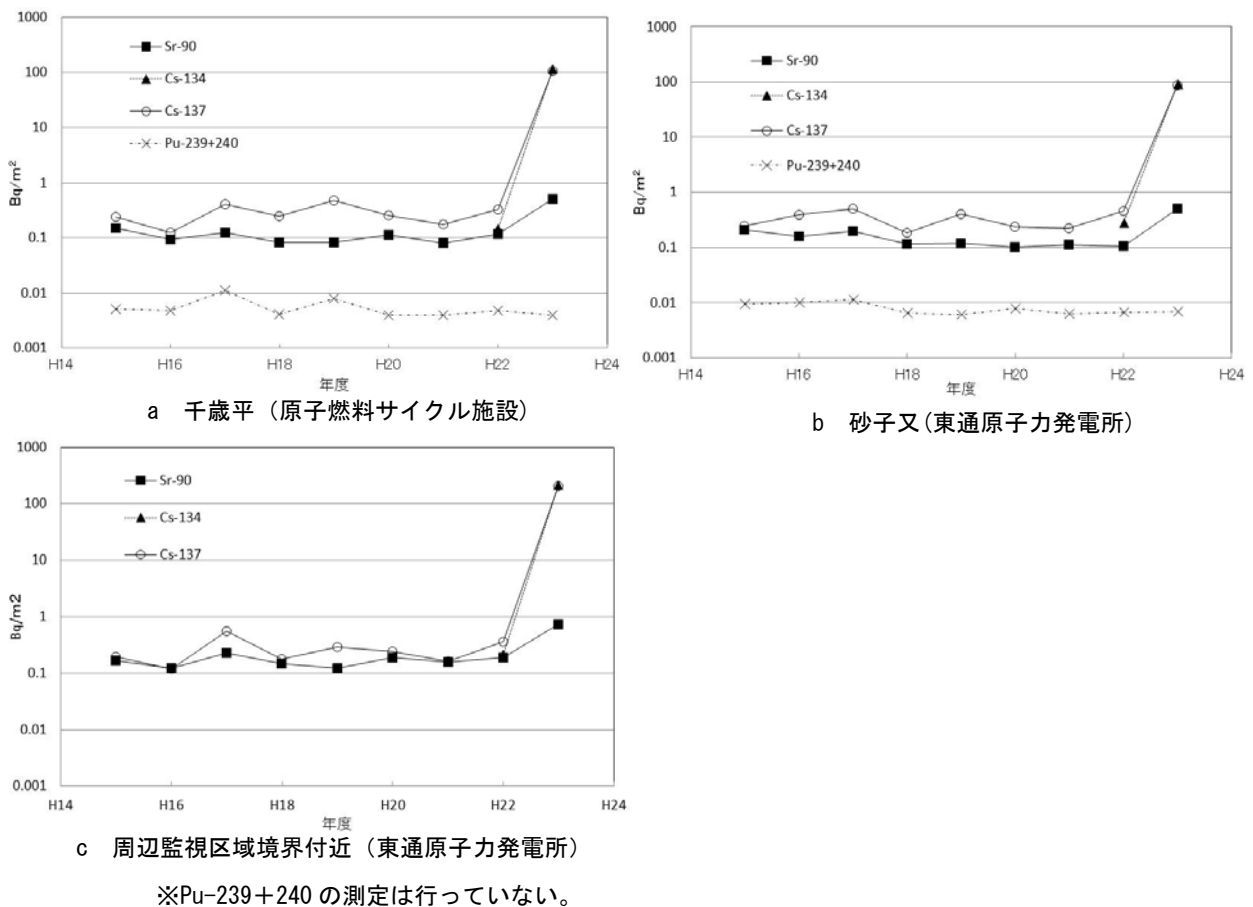


図 8 降下物中の Sr-90、Cs-134、Cs-137 及び Pu-239+240 の推移

### イ 他都県の状況

水準調査で実施しているすべての都道府県の月間降下物中 Sr-90 測定結果は、文部科学省の「環境放射線データベース」に掲載されている<sup>12)</sup>。図 9 に平成 22 年 11 月～平成 23 年 8 月の関東・東北地方及び新潟県における月間降下物中 Sr-90 の推移を示す。平成 23 年 2 月までほぼ同じレベルであったが、事故が発生した平成 23 年 3 月は関東地方のほとんどの県、山形県及び岩手県で測定値の上昇が認められ、福島県に近い県ほど測定値が高くなる傾向が見られた。

本県においては、平成 23 年 3 月より 4 月に月間降下物中 Sr-90 濃度が高くなっているが、モニ

タリングにおける年間の降水量が平成 23 年度に高くなったことと一致する。

以上のことから、降水物中 Sr-90 濃度についても、東電事故の影響があったものと考えられる。

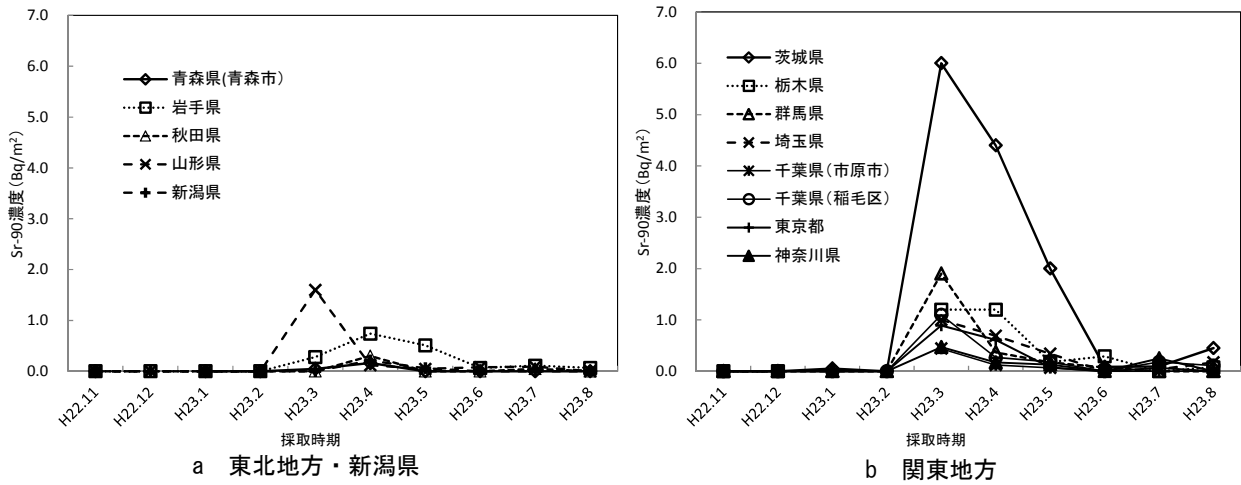


図9 環境放射能水準調査に係る月間降水物中 Sr-90 の推移

### 3.4 農畜産物・指標生物・海産食品の測定結果

#### (1) 牛乳中 Cs-137 と飼料との関係

図 10 に県がモニタリングで測定した牛乳中 Cs-137 濃度の推移を示す。平成 23 年度第 1 四半期まではすべての地点で < 0.4 Bq/kg 生であったが、平成 23 年度第 2 四半期～平成 24 年度 1 四半期には六ヶ所村富ノ沢で、平成 23 年度第 3 四半期には六ヶ所村豊原で、平成 23 年度第 4 四半期には東通村東栄でそれぞれ Cs-137 が検出された。これらの酪農家から給餌の情報を聞き取りした結果、Cs-137 が検出された時期には東電事故後に収穫した牧草（平成 23 年 1 番草及び 2 番草）を乳牛に与えているとのことだった。また富ノ沢及び豊原では牧草も調査しており、平成 23 年 1 番草及び 2 番草において過去の測定値の範囲を上回る Cs-137 が測定されていることから、牛乳中の Cs-137 が高くなったのは、東電事故の影響を受けた牧草を給餌したためと考えられる。

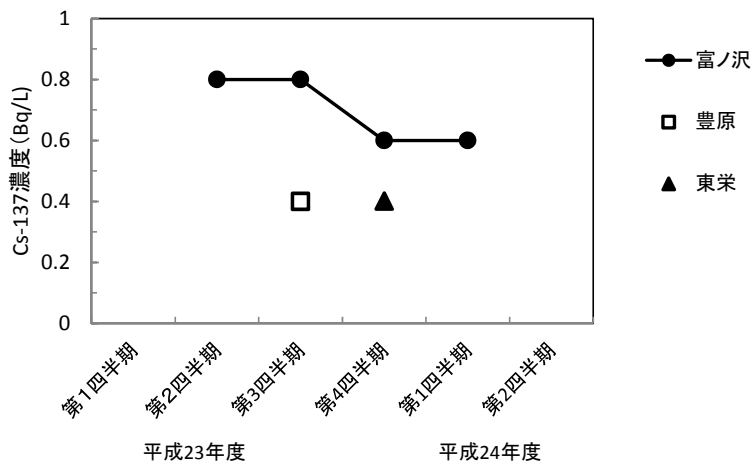


図 10 牛乳中 Cs-137 濃度の推移

※定量下限値 (< 0.4 Bq/L) 未滿はプロットしていない。

※富ノ沢については酪農家が廃業したため、平成 24 年度第 2 四半期で調査終了。

## (2) 農畜産物・指標生物・海産食品中の Cs-134 と Cs-137 の関係

図 11 に県がモニタリングで実施した農畜産物・指標生物・海産食品中の Cs-134 及び Cs-137 の関係を示す。試料採取日が約 1 年半にわたっているため、それぞれの放射能濃度を事故発生日（平成 23 年 3 月 11 日）に減衰補正した値をプロットした。ここでは定量下限値未満の測定値も用いて解析した。また東電事故前の Cs-137 のバックグラウンドは牛乳で <math>0.4 \text{ Bq/kg 生}</math>、野菜及び海産食品で <math>0.4 \text{ Bq/kg 生}</math>、牧草は <math>0.4 \sim 0.5 \text{ Bq/kg 生}</math> であり、その寄与は十分小さいものとする。

Cs-137 に対する Cs-134 の傾きを求めたところ Cs-134/C-137 比は 0.96~1.0 と見積もられた。文部科学省の調査結果では、Cs-137 に対する Cs-134 の比を平成 23 年 6 月 14 日時点で 0.92 と示しており<sup>13)</sup>、この値を事故発生日に減衰補正するとほぼ 1.0 となる。本研究における Cs-134/C-137 比はこの値とほぼ一致しており、福島第一原子力発電所から 380~430 km 離れた青森県においても、Cs-134/Cs-137 比は変わらないことが確認された。

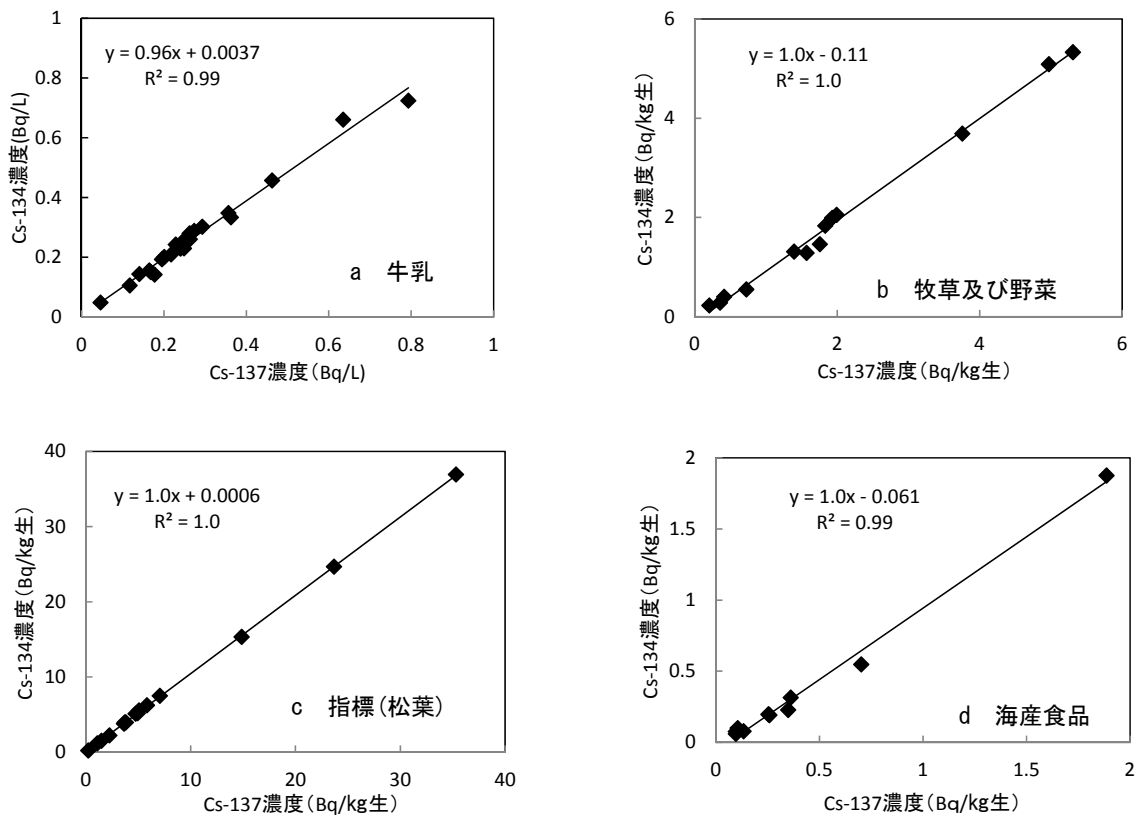


図 11 生物試料中の Cs-137 濃度と Cs-134 濃度の関係

※放射能濃度は平成 23 年 3 月 11 日に減衰補正

## 4. まとめ

1) 平成 23 年 3 月に発生した東京電力（株）福島第一原子力発電所事故に伴い、青森県においても一部の環境試料に I-131、Cs-134 等比較的半減期の短い放射性核種が検出されるとともに、Cs-137 及び Sr-90 濃度の上昇が見られた。I-131 及び放射性セシウムの測定結果に、法令<sup>7)</sup>に定める周辺監視区域外における空気中及び水中の濃度限度、食品衛生法の基準値及び牧草の暫定許容値を超えたものはなかった。

2) 後方流跡線解析により、大気浮遊じん中全  $\beta$  放射能濃度及び大気中 I-131 濃度が上昇した時期

に、東京電力(株)福島第一原子力発電所付近の上空を通過した大気が六ヶ所村に流入した可能性があることを確認した。

3) 本県において、WSPEEDIによるI-131の降下が見られた時期と定時降下物中I-131濃度が最も高かった時期が一致した。

4) 牛乳、野菜、魚類、牧草におけるCs-134/Cs-137比は事故発生日に補正するとほぼ1となり、文部科学省の調査結果と一致した。

## 文 献

- 1)文部科学省編：「全ベータ放射能測定法」（昭和51年改訂）
- 2)文部科学省編：「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」（平成4年改訂）
- 3)文部科学省編：「ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法」（昭和57年）
- 4)文部科学省編：「放射性ヨウ素分析法」（平成8年改訂）
- 5)文部科学省編：「放射性ストロンチウム分析法（平成15年改訂）
- 6)文部科学省編：「プルトニウム分析法」（平成2年改訂）
- 7)経済産業省：実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示（平成13年3月21日 経済産業省告示第187号）
- 8) 原子力安全委員会:福島県内の学校等の校舎・校庭等の利用判断における暫定的考え方の取りまとめに際し検討した内部被ばくに関する算定結果と根拠（第31回臨時会議資料）（平成23年5月12日）
- 9) 原子力災害対策本部政府・東京電力統合対策室：東京電力福島第一原子力発電所・事故の収束に向けた道筋(平成23年11月17日)
- 10) (独) 国立環境研究所地球環境研究センター：CGER-METEX  
<http://db.cger.nies.go.jp/metex/index.jp.html>
- 11) 独立行政法人日本原子力研究開発機構：東京電力福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された放射性物質の拡散シミュレーションの動画  
<http://nsed.jaea.go.jp/ers/environment/envs/fukushima/index.htm>
- 12)文部科学省：環境放射線データベース <http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top>（平成25年2月1日参照）
- 13)文部科学省 農林水産省：東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に伴い放出された放射性物質の分布状況等に関する調査研究結果（平成24年3月）

付録 東京電力（株）福島第一原子力発電所事故の影響が考えられる測定結果

○大気浮遊じん中全β放射能測定結果(原子燃料サイクル施設) 単位：mBq/m<sup>3</sup>

実施者	地点名	採取期間	測定結果	過去の測定値の範囲
県	尾駸	H23.4.4～4.17、4.25～5.1	1.9～4.3	*～1.7
	千歳平	H23.4.4～4.17、4.25～5.8	1.7～4.9	*～1.6
	平沼	H23.4.4～4.17、4.25～5.8	1.8～4.9	*～1.7
	泊	H23.4.4～4.17、4.25～5.1	1.8～4.3	*～1.5
	吹越	H23.4.4～4.10、4.25～5.8	1.6～2.4	*～1.4
	比較対照(青森市)	H23.4.4～4.10	1.7	*～1.6
日本原燃	老部川	H23.4.25～5.2	3.0	*～1.1
	二又	H23.4.25～5.2	2.3	*～1.3
	室ノ久保	H23.4.25～5.2	3.8	*～1.3

○大気中 I-131測定(原子燃料サイクル施設) 単位：mBq/m<sup>3</sup>

実施者	地点名	採取期間	測定結果	過去の測定値の範囲
県	尾駸	H23.3.22～5.9	0.3～1.2	< 0.2
	千歳平	H23.3.22～5.9	0.5～1.4	
	平沼	H23.3.22～5.9	0.5～1.4	
	泊	H23.3.22～5.9	0.2～1.2	
	吹越	H23.3.22～5.9	0.3～1.1	
	比較対照(青森市)	H23.3.22～5.2	0.3～1.3	
日本原燃	老部川	H23.3.22～5.9	0.5～2.0	< 0.2
	二又	H23.3.22～5.9	0.5～1.5	
	室ノ久保	H23.3.22～5.9	0.6～1.9	

○大気浮遊じん中γ線放出核種測定結果 単位：mBq/m<sup>3</sup>

試料名	実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲	
				<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種		
大気浮遊じん (3カ月ごと)	県	尾駸	H23.4.4～7.4	—	0.42	0.43	—	< 0.02	
		千歳平	H23.4.4～7.4	—	0.51	0.56	—		
		平沼	H23.4.4～7.4	—	0.54	0.55	—		
		泊	H23.4.4～7.4	—	0.42	0.42	—		
		吹越	H23.4.4～7.4	—	0.31	0.32	—		
		比較対照(青森市)	H23.4.4～7.4	—	0.21	0.21	—		
	日本原燃	老部川	H23.4.4～7.4	—	0.36	0.36	<sup>95</sup> Nb:0.0030	< 0.02	
		二又	H23.4.4～7.4	—	0.34	0.34	<sup>95</sup> Nb:0.0042		
		室ノ久保	H23.4.4～7.4	—	0.44	0.44	<sup>95</sup> Nb:0.0032		
大気浮遊じん (1カ月ごと)	県	小田野沢	H23.4.1～4.30	—	0.64	0.63	—	< 0.02	
			H23.5.1～5.31	—	0.70	0.71	—		
			H23.6.1～6.30	—	0.06	0.06	—		
		老部	H23.4.1～4.30	—	0.52	0.51	—		
			H23.5.1～5.31	—	0.69	0.70	—		
			H23.6.1～6.30	—	0.06	0.07	—		
	東北電力	周辺監視区域境界付近(西側)		H23.4.1～4.30	—	0.28	0.28	—	< 0.02
				H23.5.1～5.31	—	0.50	0.52	—	
				H23.6.1～6.30	—	0.06	0.06	—	
		周辺監視区域境界付近(南側)		H23.4.1～5.2	—	0.90	0.85	<sup>95</sup> Nb:0.0093	
				H23.5.2～6.1	—	0.19	0.19	—	
				H23.6.1～7.1	—	0.05	0.05	—	
	H23.4.1～5.2	—	1.1	1.0	<sup>95</sup> Nb:0.013				
	H23.5.2～6.1	—	0.20	0.21	—				
	H23.6.1～7.1	—	0.06	0.06	—				

○降下物中γ線放出核種分析結果

単位：Bq/m<sup>2</sup>

試料名	実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
				<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
降下物(月間)	県	千歳平	H23.2.28～3.31	—	0.3	0.3	—	< 0.2～0.2
			H23.3.31～4.28	42	63	61	<sup>95</sup> Nb:0.37 <sup>110m</sup> Ag:0.19	
			H23.4.28～5.31	*	17	17	—	
			H23.5.31～6.30	*	3.6	4.0	—	
			H23.6.30～7.29	*	2.4	2.6	—	
			H23.7.29～8.31	*	2.9	3.2	—	
			H23.8.31～9.30	*	0.4	0.4	—	
			H23.9.30～10.31	—	0.3	0.3	—	
			H23.10.31～11.30	—	0.2	0.2	—	
			H23.11.30～12.28	—	0.3	0.3	—	
	H24.3.30～H24.4.27	—	0.4	0.6	—			
	H24.4.27～H24.5.31	—	0.5	0.6	—			
	砂子又	H23.3.31～4.28	42	85	80	<sup>95</sup> Nb:0.28 <sup>110m</sup> Ag:0.34 <sup>125</sup> Sb:0.88 <sup>129m</sup> Te:12	—	
		H23.4.28～5.31	*	24	24	—		
		H23.5.31～6.30	*	1.2	1.3	—		
		H23.6.30～7.29	*	1.3	1.4	—		
		H23.7.29～8.31	*	0.9	0.9	—		
		H24.2.29～3.30	—	0.2	0.3	—		
		H23.3.31～H24.4.27	—	1.3	2.0	—		
		H24.5.31～H24.6.29	—	0.5	0.6	—		
東北電力	周辺監視区域境界付近	H23.2.28～3.31	—	0.2	0.2	—	< 0.2～0.2	
		H23.3.31～4.28	150	150	150	<sup>95</sup> Nb:1.5 <sup>125</sup> Sb:0.97 <sup>129m</sup> Te:20 <sup>136</sup> Cs:1.7		
		H23.4.28～5.31	*	52	52	—		
		H23.5.31～6.30	*	3.5	3.6	—		
		H23.6.30～7.29	*	1.5	1.5	—		
		H23.7.29～8.31	*	1.8	1.8	—		
		H23.8.31～9.30	*	0.4	0.5	—		
		H23.9.30～10.31	—	0.5	0.5	—		
		H23.10.31～11.30	—	0.3	0.3	—		
		H23.11.30～12.28	—	0.3	0.3	—		
		H24.1.31～2.29	—	0.3	0.3	—		
		H24.3.30～H24.4.27	—	0.3	0.4	—		
降下物(月間) [水準調査]	県	青森市	H23.2.28～3.31	1.0	0.12	0.097	—	*～0.18
			H23.3.31～4.28	20	67	63	<sup>95</sup> Nb:0.61 <sup>110m</sup> Ag:0.24 <sup>136</sup> Cs:0.73	
			H23.4.28～5.31	0.34	3.7	3.6	—	
			H23.5.31～6.30	*	0.38	0.37	—	
			H23.6.30～7.29	*	0.21	0.19	—	
			H23.7.29～8.31	*	0.17	0.13	—	
			H23.8.31～9.30	*	0.084	0.086	—	
			H23.9.30～10.31	—	0.077	*	—	
			H24.2.29～3.30	—	0.070	*	—	
H24.3.30～H24.4.27	—	0.26	0.41	—				
定時降下物 (毎日採取) [水準調査]	県	青森市	H23.3.24	1.5	*	*	—	
			H23.4.3	2.4	*	*	—	
			H23.4.10	7.4	*	*	—	
			H23.4.27	5.8	4.7	*	—	
			H23.4.28	45	38	36	—	

○湖沼水中γ線放出核種分析結果

単位：mBq/L

実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
日本原燃	尾駸沼1	H23.5.12	*	14	16	—	< 6
	尾駸沼2	H23.5.12	*	14	15	—	

○土壤中γ線放出核種分析結果							単位：Bq/kg乾
実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	小田野沢	H24.7.9	—	<3	4	—	<3～47
	関根	H23.7.11	*	4	10	—	4～5
		H24.7.19	—	<3	9	—	
	水川目	H24.7.19	—	<3	8	—	4～6
	浜ノ平	H24.7.19	—	<3	23	—	17～21
東北電力	老部	H23.7.19	*	3	39	—	37～47
		H24.7.11	—	4	42	—	

○牛乳中γ線放出核種分析結果							単位：Bq/L
実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	富ノ沢	H23.10.3	—	0.6	0.8	—	
		H24.4.4	—	0.5	0.6	—	
	東栄	H24.1.12	<0.4	<0.4	0.5	—	<0.4
日本原燃	富ノ沢	H23.7.5	*	0.6	0.8	—	
		H24.1.11	—	0.4	0.6	—	
	豊原	H23.10.12	*	<0.4	0.4	—	
県[水準調査]	青森市	H23.8.23	*	*	0.15	—	*
		H24.8.9	*	0.1	0.23	—	

○牧草中γ線放出核種分析結果							単位：Bq/kg生
実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	第3団地	H23.6.2	—	1.8	1.9	—	<0.4
		H23.6.2	*	1.2	1.4	—	
	横浜町	H23.7.28	*	1.1	1.6	—	<0.4～0.5
		H24.6.4	—	<0.4	0.7	—	
	小田野沢	H24.8.21	—	0.9	1.7	—	
		H23.6.8	<0.4	4.9	5.3	—	<0.4
	野牛	H24.6.15	<0.4	2.4	3.7	—	
		H23.5.27	*	4.7	5.0	—	<0.4
	富ノ沢	H24.6.19	—	1.2	1.8	—	
		H23.6.7	*	1.7	1.9	—	<0.4～0.5
日本原燃	富ノ沢	H23.8.10	*	1.3	1.5	—	
		H24.6.8	—	0.8	1.3	—	
	H24.8.22	—	0.4	0.8	—		
	二又	H23.6.2	*	1.2	1.2	—	<0.4
	豊原	H23.6.7	*	1.0	1.0	—	<0.4～0.5
六原	H23.8.1	H23.8.1	*	2.5	3.1	—	
		H23.6.2	*	1.8	2.1	—	
	H23.8.4	*	5.2	5.9	—	<0.4～0.5	
	H24.6.1	*	0.4	0.6	—		
東北電力	金谷沢	H24.8.2	—	0.9	1.5	—	
		H23.5.19	*	1.5	1.6	—	<0.4
		H23.8.11	*	0.5	0.5	—	

○アブラナ中γ線放出核種分析結果							単位：Bq/kg生
実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	横浜町	H23.4.28	0.7	2.0	2.0	<sup>95</sup> Zr:0.32 <sup>95</sup> Nb:0.37	<0.4



○指標生物(松葉)中γ線放出核種分析結果

単位: Bq/kg生

実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	尾駸	H23.10.11	—	5.1	5.8	<sup>125</sup> Sb:0.11	< 0.4
		H24.4.20	—	2.6	3.6	—	
	比較対照(青森市)	H23.4.14	*	1.1	1.1	—	
		H23.10.27	—	1.8	2.2	—	
		H24.4.24	—	1.0	1.5	—	
			—	—	—	—	
	小田野沢	H23.5.11	*	35	35	<sup>95</sup> Nb:0.23 <sup>110m</sup> Ag:0.11 <sup>136</sup> Cs:0.18 <sup>140</sup> La:0.050	
		H23.11.1	—	4.1	4.7	<sup>125</sup> Sb:0.11	
	H24.5.17	—	—	2.6	3.7	—	
		—	—	—	—	—	
	浜ノ平	H23.5.11	*	23	24	<sup>95</sup> Nb:0.15 <sup>110m</sup> Ag:0.13 <sup>140</sup> La:0.033	
		H23.11.1	—	6.0	7.0	<sup>125</sup> Sb:0.12	
	H24.5.17	—	—	3.7	4.9	<sup>125</sup> Sb : 0.12	
		—	—	—	—	—	
比較対照(むつ市川内町)	H23.5.17	*	14	15	<sup>95</sup> Nb:0.086 <sup>129m</sup> Te:1.3 <sup>136</sup> Cs:0.072		
	H23.11.8	—	4.1	4.9	—		
	H24.5.18	—	—	2.6	3.6	—	
		—	—	—	—	—	
東北電力	老部	H23.5.11	1.8	30	30	<sup>95</sup> Nb:0.21 <sup>110m</sup> Ag:0.15 <sup>136</sup> Cs:0.24	
		H23.11.9	< 0.4	6.2	7.2	—	
	H24.5.22	< 0.4	4.7	6.6	—		
	大豆田	H23.5.10	*	8.0	7.9	—	
		H23.11.10	—	1.9	2.2	—	
	H24.5.21	—	—	1.0	1.4	—	
リサイクル燃料貯蔵	北関根	H23.5.11	*	24	25	—	
		H23.11.11	—	4.9	5.8	—	
		H24.5.14	—	3.1	4.2	—	

○海水中γ線放出核種分析結果

単位: mBq/L

実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	再処理工場放出口付近	H23.10.12	—	< 6	8	—	< 6 ~ 6
	再処理工場放出口北20km地点	H23.10.12	—	< 6	8	—	
	再処理工場放出口南20km地点	H23.10.12	—	7	8	—	
東北電力	東通原子力発電所放水口沖	H23.10.12	—	< 6	7	—	< 6

○海底土中γ線放出核種分析結果(水準調査)

単位: Bq/kg乾

実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
			<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
県	深浦町(風合瀬沖)	H23.8.3	*	*	0.97	—	*

○海産食品等γ線放出核種分析結果

単位: Bq/kg生

試料名	実施者	地点名	採取日	γ線放出核種				Cs-137の過去の測定値の範囲
				<sup>131</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	その他検出された核種	
ヒラメ	日本原燃	六ヶ所村前面海域	H23.11.1	—	1.5	1.9	—	< 0.4
			H23.7.25	*	12	13	—	< 0.4
			H24.9.7	—	0.6	1.0	—	< 0.4
ヒラメ	東北電力	東通村太平洋側海域	H23.7.7	*	2.3	2.5	—	< 0.4
			H24.7.23	—	2.8	4.2	—	< 0.4
ウスメバル	県	東通村太平洋側海域	H24.5.30	—	< 0.4	0.7	—	< 0.4
ホタテ	県	陸奥湾(横浜町前面海域)	H23.7.29	*	1.4	1.7	—	< 0.4
			H23.9.9	*	< 0.4	< 0.4	<sup>110m</sup> Ag:0.093	< 0.4
チガイソ	県	六ヶ所村前面海域	H23.4.27	3.1	< 0.4	< 0.4	—	< 0.4
ヒラツメガニ	日本原燃	六ヶ所村前面海域	H24.7.25	—	< 0.4	< 0.4	<sup>110m</sup> Ag : 0.22	< 0.4
ムラサキイガイ [水準調査]	県	深浦町	H23.5.17	*	*	0.050	—	*
カレイ [水準調査]			H23.7.25	*	0.17	0.23	—	* ~ 0.10
H24.8.8			—	0.062	0.16	—	—	

○降下物(年間)中Sr-90分析結果				単位: Bq/m <sup>2</sup>	
実施者	地点名	採取期間	測定結果	過去の測定値の範囲	
県	千歳平	H23.3.31~H24.3.30	0.51	0.1~0.26	
	砂子又	H23.3.31~H24.3.30	0.51	< 0.08 ~ 0.15	
東北電力	周辺監視区域境界付近	H23.3.31~H24.3.30	0.74	0.12~0.23	

1)\* : 検出限界以下を示す。

2) - : I-131の欄では測定対象外であること、その他検出された核種の欄では検出されていないこと、定時降下物の過去の測定値の範囲の欄では測定値がないことを示す。

3) I-131は生試料での測定値。但し降下物中I-131は蒸発乾固させた後に測定した。

4) 子孫核種(Nb-95, La-140)の測定値は、環境放射能水準調査と同様、試料採取日に補正せず、測定日の値とした。

5) 過去の測定値の範囲は下記のとおり。

- ・ 水準調査に係る各試料の過去の測定値の範囲は平成20~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 大気浮遊じん中全β放射能の過去の測定値の範囲は平成2年~22年度の「最小値~最大値」。ただし、尾駸局、二又局については平成元年~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 大気中I-131の過去の測定値の範囲は県実施分は平成17~22年度、事業者実施分は平成10~22年度の「最小値~最大値」。ただし、福島第一原子力発電所事故の影響がみられた測定値は含んでいない。
- ・ 大気浮遊じん(3カ月ごと)の過去の測定値の範囲は平成2年~22年度の「最小値~最大値」。ただし、尾駸、二又については平成元年~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 大気浮遊じん(1カ月ごと)の過去の測定値の範囲は平成15~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 降下物の過去の測定値の範囲は、千歳平が平成元~22年度、砂子又及び周辺監視区域境界付近が平成15~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 湖沼水の過去の測定値の範囲は平成元~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 土壌の過去の測定値の範囲は、小田野沢及び老部が平成15年~22年度、その他の地点が平成20~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 牛乳の過去の測定値の範囲は、富ノ沢が平成8~22年度、豊原が平成14~22年度、東栄が平成15~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 牧草の過去の測定値の範囲は、第3団地が平成22年度、横浜町が平成7~22年度、小田野沢及び野牛が平成18~22年度、富ノ沢が平成8~22年度、二又が平成17~22年度、豊原が平成14~22年度、六原が平成14~22年度、金谷沢が平成15~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ アブラナの過去の測定値の範囲は平成15~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 指標生物(松葉)の過去の測定値の範囲は尾駸が、平成元~22年度、小田野沢、比較対照(むつ市川内町)、老部及び大豆田が平成15~22年度、浜ノ平及び北関根が平成20~22年度の「最小値~最大値」。比較対照(青森市)については平成23年度に採取場所を変更したため東電事故前の測定値はない。
- ・ 海水の過去の測定値の範囲は、再処理工場の3地点は平成元~22年度、東通原子力発電所放水口は平成15~22年度の「最小値~最大値」。
- ・ 海産食品等の過去の測定値の範囲は、六ヶ所村前面海域及び陸奥湾で採取した試料が平成元~22年度、東通村太平洋側海域で採取した試料が平成15~22年度の「最小値~最大値」。

### Ⅲ 学 会 等 发 表 要 旨



## 青森県における空間放射線量率の変動特性

大坂直人 大久保英樹 木村秀樹

第14回「環境放射能」研究会，茨城県つくば市，2013.2.26-2.28

青森県における太平洋側地域、内陸地域、陸奥湾側地域及び津軽海峡側地域の4地点で測定している空間放射線量率と気象データを用い、降水量1mm当たりの線量上昇分について、季節的な違いや降雨と降雪による違いなどを検討した。

降水量1mm当たりの線量上昇分は、7～8月、10～11月、12月の順に大きくなり、海洋性気団が優勢となった場合の降雨より大陸性気団が優勢となった場合の降雨で大きく、降雪ではさらに大きくなることがわかった。この原因として、海洋性気団より大陸性気団の方がラドン壊変生成物の濃度が高いこと、降雨より降雪の方が、大気中の粒子状物質を取り込む効果が高いことなどが考えられる。

また、海洋性気団が優勢な期間は、降水量1mm当たりの線量上昇分に対する測定地点近傍の大地から放出されたラドンの寄与が比較的現れやすいと考えられることから、7～8月について調査地点ごとに降水量1mm当たりの線量上昇分を比較したが、地点による違いはみられなかった。

## 青森県の環境放射線モニタリング及び環境放射能水準調査における 東京電力（株）福島第一原子力発電所事故の影響について

五十嵐 健 工藤俊明 山口和貴 葛西邦生 二瓶祐介  
田中義也\*1 佐々木耕一\*1 安藤史孝\*2 深堀雄基\*2

平成24年度放射線監視結果収集調査検討会，東京都，2013.3.27

青森県では、県内の原子力施設に係る環境放射線モニタリング及び文部科学省からの委託事業として県内全域の環境放射能の水準を把握するために環境放射能水準調査を実施している。平成23年3月に発生した東京電力（株）福島第一原子力発電所事故に伴い、青森県においても一部の環境試料にI-131、Cs-134等比較的半減期の短い放射性核種が検出されるとともに、Cs-137及びSr-90濃度の上昇が見られた。これらの測定結果に、法令\*1、食品衛生法の基準値及び暫定許容値を超えたものはなかった。後方流跡線解析により、大気浮遊じん中全β放射能濃度及び大気中I-131濃度が上昇した時期に、東京電力(株)福島第一原子力発電所付近の上空を通過した大気が六ヶ所村に流入した可能性があることを確認した。

\*1：日本原燃株式会社 \*2：東北電力株式会社

※1 経済産業省：実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示（平成13年3月21日 経済産業省告示第187号）



## IV 平成 24 年度調査研究事業報告





## 環境放射能拡散シミュレーションシステム

佐々木 守 大久保英樹 工藤俊明  
松村浩治<sup>\*1</sup> 今井慎一<sup>\*2</sup> 根本 誠<sup>\*3</sup> 城戸寛子<sup>\*3</sup>

### 1. はじめに

六ヶ所再処理工場から放出される放射性物質による環境への影響の評価に資することを目的として、環境放射能拡散シミュレーションシステム（以下、「シミュレーションシステム」という。）を構築することとし、平成15年度に仕様の検討を行い、平成16年度にシステムを構築した。

平成17年度から平成18年度は、環境モニタリングにおけるクリプトン-85濃度及び空間放射線量率の調査結果を用いてシステムの検証を行い、平成19年度は精度向上及び機能の追加を目的として検討を行った。

平成20年度から平成21年度は、これらの検討をもとに風速場評価機能の精度向上、降水等による地表沈着計算機能の追加、積算被ばく線量評価計算機能の追加、トリチウム拡散評価計算機能の追加を行い、平成22年度にその結果を研究報告としてとりまとめた。また、シミュレーションの結果を通常業務で活用するため、リアルタイム計算の結果を事務室に表示させる機能を追加した。

平成23年度はモニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間（平成18～20年度）について、プルームモデルを用いた計算結果の比較・検討を行った。

今年度は同じ期間について、パフモデルを用いた計算結果の比較・検討を行った。

### 2. 調査方法及び調査結果

常時監視している気体状 $\beta$ 放射能（Kr-85換算）の測定値（10分値）に再処理工場のアクティブ試験の影響が認められた期間について、今年度パフモデルを用いた計算を実施した。

そのうち、次の期間について、計算を実施するとともにパラメータ調整による実測値との一致度の比較・検討を行った。なお、計算条件については次のとおり。

- ・ 計算期間：再処理工場のアクティブ試験においてせん断が行われた期間のうち、測定局における $^{85}\text{Kr}$ 濃度が1時間値の定量下限値（ $2\text{ kBq/m}^3$ ）以上となった期間
- ・ 計算範囲： $50 \times 50$ メッシュ 25km 四方
- ・ 測定間隔：10分
- ・ 対象核種： $^{85}\text{Kr}$

---

\*1：日本電気株式会社 \*2：NEC ソフトウェア東北株式会社

\*3：株式会社ヴィジブルインフォメーションセンター

当該期間について、10分値と1時間値で一致度の比較を行うにあたっては、(独)日本原子力研究開発機構<sup>1)</sup>及び(財)環境科学技術研究所<sup>2)</sup>の大気拡散モデルの検証、評価に用いられている次の関数を用いた。

「ファクター2及びファクター5の一致度」

実測値が N 個 ( $Mes_1, Mes_2, \dots, Mes_i, \dots, Mes_N$ ) あり、それぞれに対応する計算値 ( $Cal_1, Cal_2, \dots, Cal_i, \dots, Cal_N$ ) が求まっているとする。ある計算値  $Cal_i$  を、対応する実測値  $Mes_i$  で割った値を  $R_i$  とすると、

・ファクター2での一致度： $1/2 \leq R_i \leq 2$ となる  $i$  の個数が N に占める割合 (%)

・ファクター5での一致度： $1/5 \leq R_i \leq 5$ となる  $i$  の個数が N に占める割合 (%)

と定義される。なお、実測値  $Mes_i=0$ となるケースは、ファクター2及びファクター5の一致度の計算には含まない。

また、計算値の系統的な偏りを表す、平均誤差 ME と計算値と測定値の差の大きさを表す、二乗平均平方根誤差 RMSE は、

$$ME = \frac{\sum_{i=1}^N (Cal_i - Mes_i)}{N}$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (Cal_i - Mes_i)^2}{N}}$$

と定義される<sup>3)</sup>。

今年度の計算条件に合致する9期間、延べ21地点について拡散シミュレーションによる予測計算を行った結果(表1)、ファクター2の平均値が10分値で34%、1時間値で45%、ファクター5の平均値が10分値で7.0%、1時間値で11%となり、1時間値の方が一致度が高くなった。また、平均誤差 ME は10分値で0.086、1時間値で0.12、二乗平均平方根誤差 RMSE は10分値で0.022、1時間値で0.072となった。

表1 パフモデルにおける計算結果の一致度の比較

せん断期間	施設寄与が認められた測定局	10分値						1時間値					
		最大値 (kBq/m <sup>3</sup> )	N*	Factor2 (%)	Factor5 (%)	ME	RMSE	最大値 (kBq/m <sup>3</sup> )	N*	Factor2 (%)	Factor5 (%)	ME	RMSE
H18/6/7~6/10	室ノ久保	8.8	6	4.5	5.5	-0.13	0.012	2.1	1	12	12	-0.16	0.040
H18/10/3~10/9	室ノ久保	9.8	13	4.2	10	-0.14	0.0062	3.1	1	0	0	-0.14	0.015
H18/10/16~10/24	尾駁	12	12	1	2.2	-0.090	0.0029	4.2	2	1.7	3.9	-0.075	0.0056
H19/4/8~4/11	尾駁	9.1	27	2.6	9.2	-1.0	0.082	3.9	4	4.3	17	-1.0	0.22
	吹越	5.2	3	19	25	-0.40	0.071	2.1	1	0	33	-0.70	0.41
	二又	5.6	2	2.1	5.4	0.012	0.00048	2.4	1	3.4	10	0.057	0.0074
H19/9/07~9/30	尾駁	19	24	0.83	2.3	0.018	0.00033	8.8	8	4.4	9.4	0.029	0.0012
	吹越	18	46	2.3	3.9	0.015	0.00044	11	3	6.4	17	0.16	0.014
	老部川	3.7	10	2.1	5.5	0.18	0.0086	3.0	1	5.8	12	0.24	0.029
	二又	5.0	10	1.7	4.5	0.53	0.022	3.3	1	2.5	11	0.52	0.058
	室ノ久保	9.7	7	0.38	1.0	-0.026	0.00064	3.7	1	2.5	4.1	-0.016	0.0011
H19/10/25~11/8	尾駁	9.3	7	1.3	3	-0.069	0.0015	5.9	1	3.1	5.0	-0.067	0.0035
	千歳平	11	4	0.25	1.1	0.031	0.00089	4.3	1	0.92	2.3	0.036	0.0024
	吹越	3.6	5	0.71	2	-0.038	0.0011	2.0	1	1.7	3.0	-0.025	0.0017
	二又	7.1	4	1.9	3.6	3.7	0.17	2.4	1	5.5	9.6	4.5	0.53
	室ノ久保	13	6	0.62	1.2	-0.062	0.0017	3.9	2	0.43	1.7	-0.050	0.0033
H20/6/14~6/20	吹越	6.4	16	6.5	15	-0.055	0.0021	3.6	3	4.2	7.5	-0.087	0.0079
	二又	13	18	4.6	15	-0.30	0.023	8.1	5	7.7	27	-0.41	0.081
H20/7/24~7/29	二又	13	4	6.6	13	-0.32	0.042	5.6	1	17	17	-0.23	0.066
	室ノ久保	12	11	3.8	8.3	0.069	0.0034	5.6	2	2.4	11	0.032	0.0029
H20/9/25~9/30	尾駁	6.2	28	5.0	9.7	-0.12	0.0040	2.7	2	7.6	18	-0.12	0.0096
	平均値	-	-	3.4	7.0	0.086	0.022	-	-	4.5	11	0.12	0.072

※ N: 期間中に実測値が定量下限値 (2kBq/m<sup>3</sup>) 以上となった数

このうち、施設寄与が認められた測定局が多く、定量下限値以上となった測定値も多い、2007年9月10日~9月20日の期間について、次のパラメータについて調整を行いその結果を比較した(表2, 3, 図1~5)。

- ア パフモデルの放出パフごとの気象観測値の時間内挿の有無を選択する。(有→ +時)
- イ Briggs の式を参考に対象期間の平均値を用いて吹き上げ高さを求め、それをもとに対象期間における放出点の高さをを用いて計算する。(+高)
- ウ 大気安定度によって決定される計算パラメータ (べき指数 p) を用いて高度 z の風速を算出し、風速場の計算を行う。(+べ)

表2 パラメータ調整における一致度の比較

施設寄与が認められた測定局	調整無		パラメータ調整有							
	パフ (%)		+時 (%)		+時+べ (%)		+時+高 (%)		+時+べ+高 (%)	
	Factor2	Factor5	Factor2	Factor5	Factor2	Factor5	Factor2	Factor5	Factor2	Factor5
尾駁	4.4	9.4	4.4	9.6	4.0	10	2.9	8.3	5.0	10
吹越	6.4	17	8.5	15	5.0	13	5.0	15	6.4	13
老部川	5.8	12	5.8	13	2.9	16	2.9	13	8.7	17
二又	2.5	11	5	13	2.5	10	6.3	13	6.3	11
室ノ久保	2.5	4.1	1.7	3.7	2.9	4.1	1.2	3.3	1.2	2.9
平均値	4.3	11	5.1	11	3.5	11	3.7	11	5.5	11

表3 パラメータ調整における平均誤差 (ME)・二乗平均平方根誤差 (RMSE) の比較

施設寄与が認められた測定局	調整無		パラメータ調整有							
	パフ		+時		+時+ベ		+時+高		+時+ベ+高	
	ME	RMSE	ME	RMSE	ME	RMSE	ME	RMSE	ME	RMSE
尾駸	0.029	0.0012	0.029	0.0012	0.096	0.0041	-0.056	0.0024	-0.0051	0.00022
吹越	0.17	0.014	0.13	0.011	0.3	0.025	0.045	0.0038	0.077	0.0064
老部川	0.24	0.029	0.36	0.043	0.16	0.019	0.016	0.0019	0.085	0.010
二又	0.52	0.058	0.52	0.058	0.52	0.058	0.52	0.058	0.52	0.058
室ノ久保	-0.016	0.0011	-0.012	0.00074	-0.0031	0.00020	-0.035	0.0022	-0.018	0.0012
平均値	0.19	0.021	0.21	0.023	0.21	0.021	0.098	0.014	0.13	0.015

パラメータ調整の結果ファクター2の値はパラメータ調整なし(平均値4.3) に比べ、時間内挿を行った場合(平均値5.1) のほうが、一致度が上昇するが、ファクター5では大きく変化しなかった。また、ベキ指数による風速の補正や吹上高さの補正についてはそれぞれ単独では一致度の上昇が見られないが、両方行くとファクター2で一致度の上昇が見られた(平均値5.1)。

### 3. 今後の計画

他の期間についてもパラメータ調整を行い、一致度の変化及びその時の気象条件について検討を行う。また、平成24年度のテレメータシステム更新時に16方位より詳細な角度データでの伝送が可能となることから、平成25年度以降に、風向の角度データを取得し計算に用いる機能を追加する。

### 文 献

- 1) 竹安正則、武石稔、中野政尚、清水武彦：放出放射性物質による緊急時線量シミュレーションシステム (SIERRA-II) の開発, サイクル機構技法, No.23(2004)
- 2) (財)環境科学技術研究所：平成22年度排出放射能環境分布調査報告書158-228 (2011)
- 3) 嶋寺光、近藤明、加賀昭和、シュレスタクンダンラル、井上義雄：酸性霧生成過程の数値シミュレーション, 第22回数値流体力学シンポジウム講演論文集, L9-3(2008)

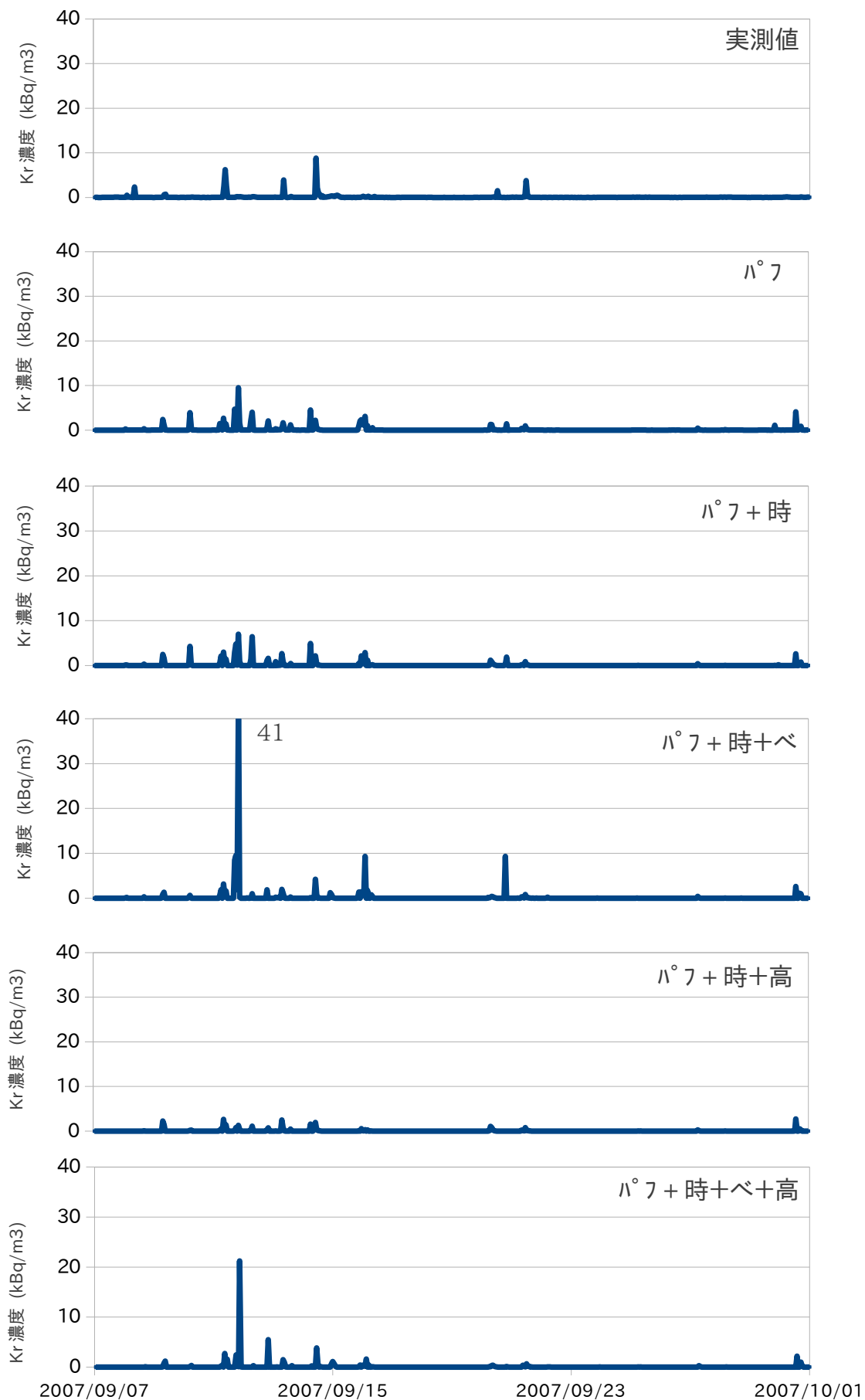


図1 パラメータ調整による計算結果と実測値の比較(平成19年9月7日～9月30日 尾駸局)

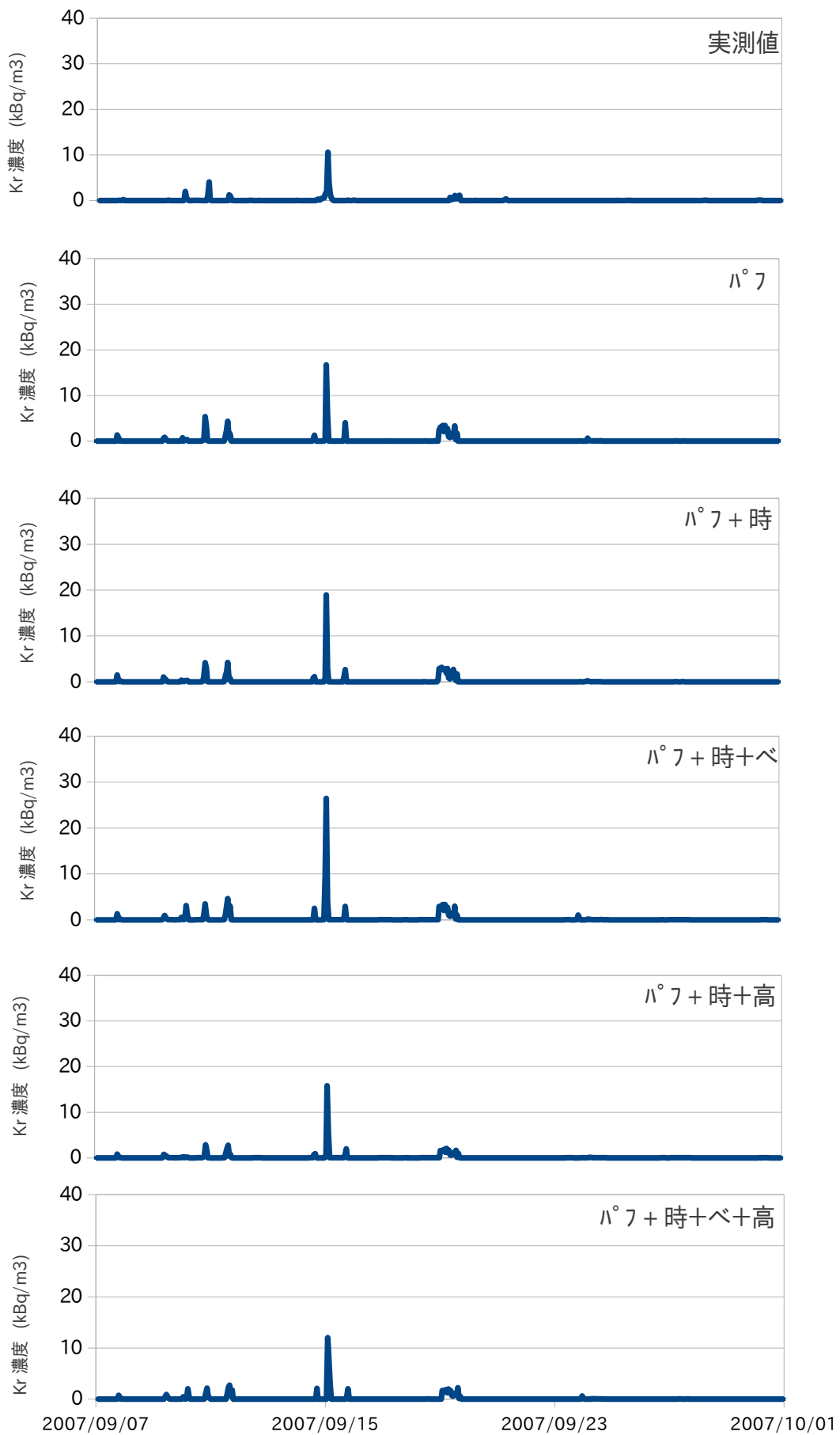


図2 パラメータ調整による計算結果と実測値の比較(平成19年9月7日～9月30日 吹越局)

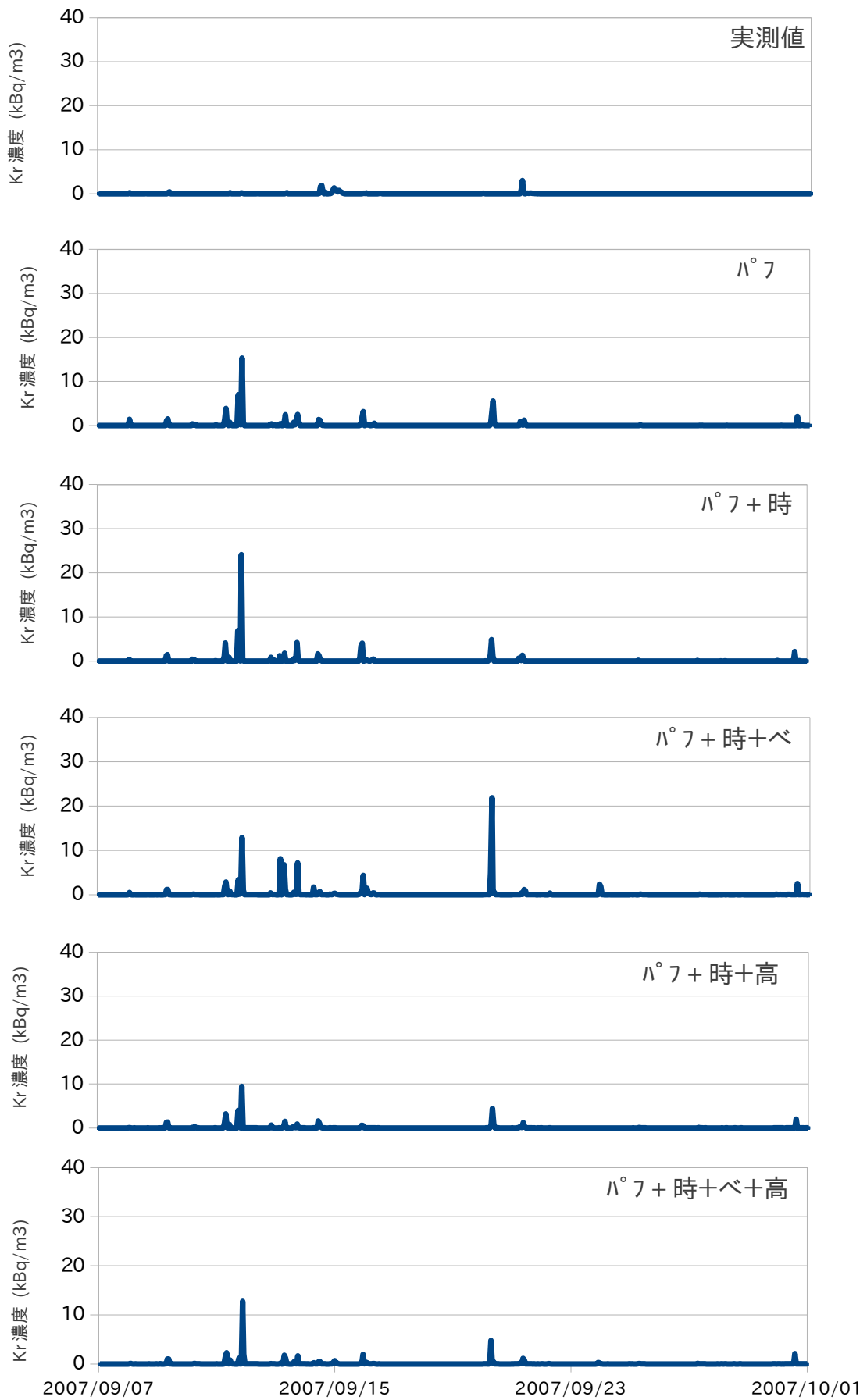


図3 パラメータ調整による計算結果と実測値の比較(平成19年9月7日～9月30日 老部川局)

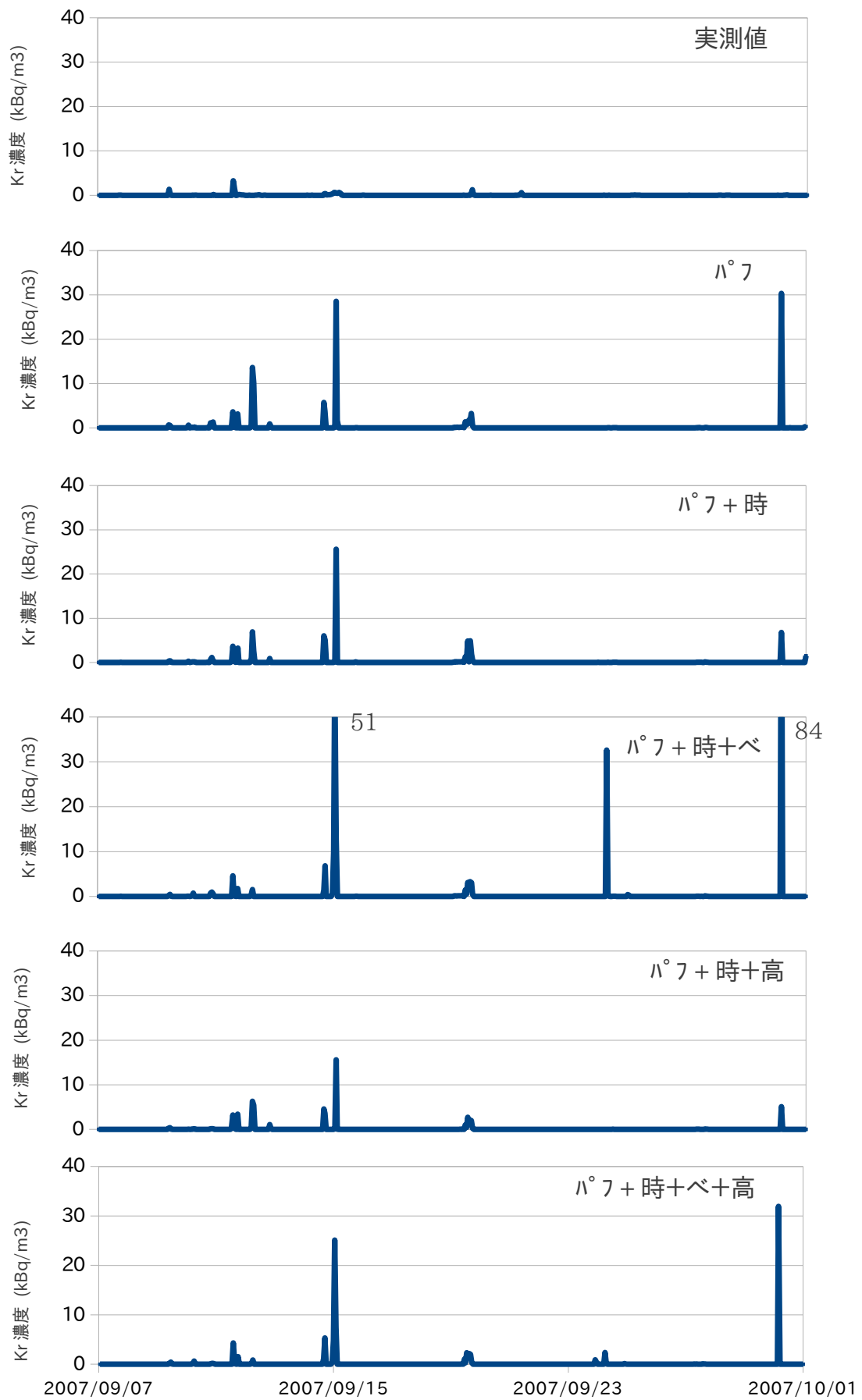


図4 パラメータ調整による計算結果と実測値の比較(平成19年9月7日～9月30日 二又局)



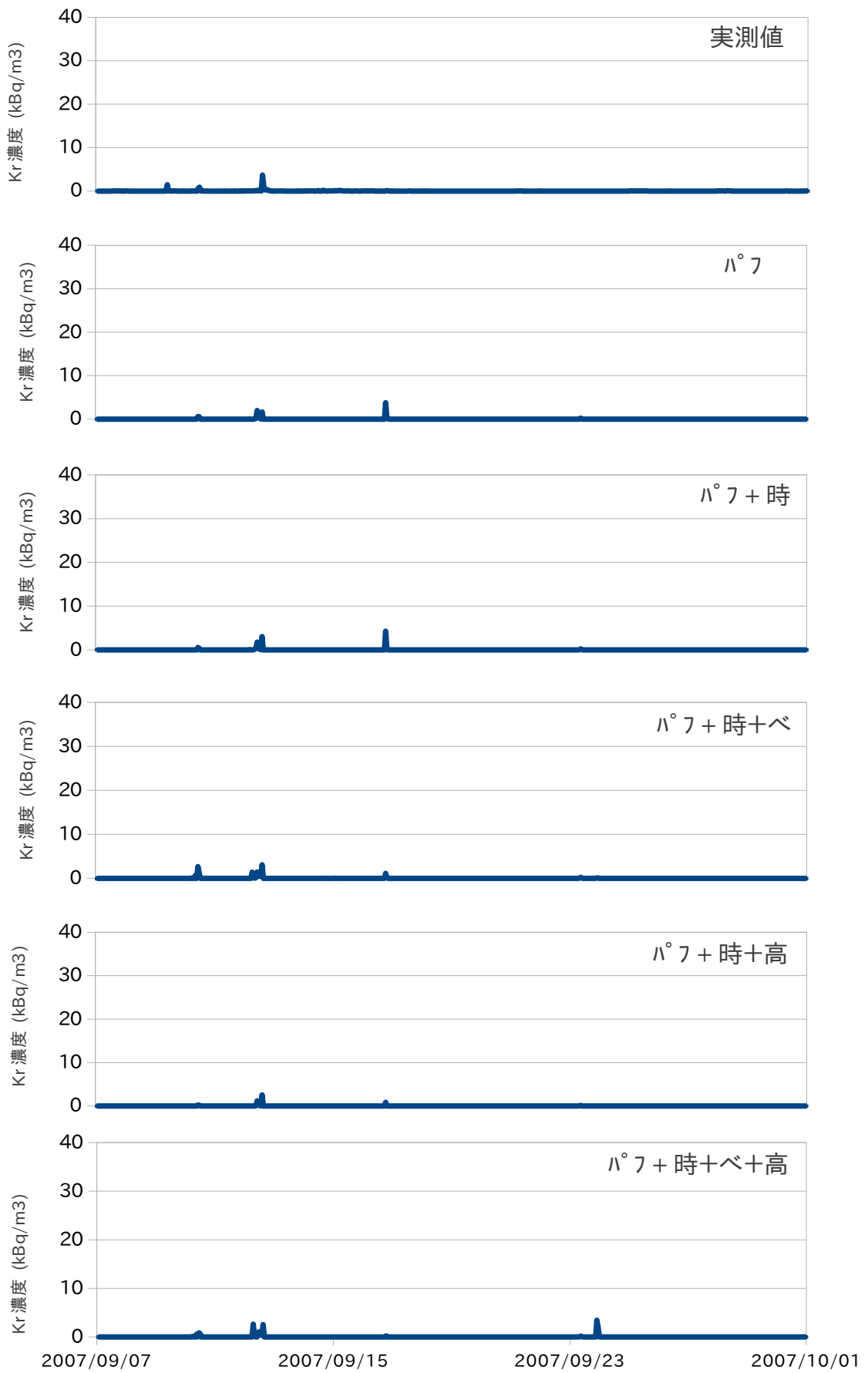


図5 パラメータ調整による計算結果と実測値の比較(平成19年9月7日～9月30日 室ノ久保局)



## 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

今 壽貴 木村芳伸

### 1. はじめに

トリチウム (T) は、成層圏において空気と宇宙線の相互作用で生成する自然放射性核種であり、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH<sub>3</sub>T 等) の3種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の200倍以上が環境中に放出されており、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている。

青森県では、平成17年12月に東通原子力発電所が営業運転を開始し、平成18年3月に六ヶ所再処理工場がアクティブ試験を開始しており、件は、トリチウムの放出量が比較的多いとされている六ヶ所再処理工場周辺地域のモニタリングステーションにおいて、大気中水蒸気状トリチウム (HTO) のモニタリングを継続して行っている。再処理施設から大気中へ放出されるトリチウムの化学形は、東海再処理施設では全トリチウムのうち約26%がHT (CH<sub>3</sub>T等を含む。)の化学形であったとの報告があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。

このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

平成16年度から化学形別の試料採取条件を検討しているが、従来用いられてきた方法は可燃性ガスを用いている。そのため、安全性の観点から、平成19年度及び平成20年度は、可燃性ガスの代わりに加湿カラムを用いる方法による採取装置を組み立て、大気中トリチウムを化学形別に捕集し分析した。平成21年度は、加湿カラムを用いる方法により、現地調査を実施するための採取条件を取りまとめた。平成22及び23年度は、この条件をもとに、まずモニタリングステーション青森局 (以下、青森 MS) で実証試験を行い、その後、再処理施設周辺 (モニタリングステーション尾駁局 (以下、尾駁 MS) 及び吹越局 (以下、吹越 MS)) において調査を行った。

平成24年度は、メタンガスを用いない方法の再検討とともに引き続き尾駁 MS 及び吹越 MS において調査を行った。これらの調査結果について、本所報の研究報告としてとりまとめた。



## 環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査

二瓶祐介 工藤俊明 今 壽貴 竹ヶ原 仁\*1  
幸 進\*2 岡 光昭\*2 武石 稔\*2

### 1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成18年3月31日からアクティブ試験が行なわれており、クリプトン-85(<sup>85</sup>Kr)、トリチウム(<sup>3</sup>H)、炭素-14(<sup>14</sup>C)及びヨウ素-129(<sup>129</sup>I)などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成18年2月7日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成19年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129について調査を開始した。平成20年度からはヨウ素-131(<sup>131</sup>I)を追加し、平成21年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム(非交換型OBT)を追加し実施している。平成23年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

### 2. 平成24年度の調査計画と今後の進め方

平成24年度の調査計画を表1に示した。富ノ沢の牛乳については、平成24年度の第2四半期から採取できなくなったため調査を終了した。その他については、平成23年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。これらの調査結果については平成25年度にとりまとめることとしている。平成25年度以降については、表1の調査計画を基本として引き続き調査を継続することとし、その調査結果を踏まえ、適宜見直しを行う。

表1 対象試料及び調査地点・核種（平成24年度）

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

\*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

\*2：日本原燃株式会社



## ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

木村芳伸 工藤俊明

### 1. はじめに

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

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

迅速分析法記載の検出限界値（分析目標レベル）はヨウ素 129 分析法に劣るが、供試量を増加させ、さらに、キャリアガスからの妨害が少ない特定の ICP 質量分析装置を用いることで、検出限界値を大幅に向上させることが可能であることから<sup>3)</sup>、最適な化学分離等の条件、装置による測定条件を確認し、環境放射線モニタリングにおける種々の環境試料への適用可能性を検討する。

平成 22 年度は、ヨウ素-129 の測定においてキャリアガスからの妨害が少ない ICP 質量分析装置として、ダイナミックリアクションセルを備えたパーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e を整備した。平成 23 年度に標準溶液を用いて装置の検出限界値を確認した結果、迅速分析法による表土中ヨウ素-129 の検出限界値は 0.55Bq/kg 乾であり、ヨウ素 129 分析法の 5Bq/kg 乾のおよそ 10 分の 1 程度であることが確認された。

そこで平成 24 年度は、東海再処理工場周辺で採取された表土試料中のヨウ素-129 濃度がおおよそ 2.5~23mBq/kg 乾であったと報告されていることから<sup>4)</sup>、表土試料について検出限界値を 20mBq/kg 乾まで向上させるため、①供試量の増加、②希釈工程の見直し、③担体添加量の低減について検討した。

### 2. 調査方法

#### 2.1 供試量の増加

迅速分析法では表土の供試量を 10g としているため、これを増加させることにより検出感度を向上させることができると考えられる。そこで、供試量を 10g から 150g まで数段階に増加させた場合の、固相抽出法によるヨウ素-127 の回収率を確認するとともに、供試量を増加したことによるヨウ素-129 測定値への影響の有無について確認する。なお、表土試料の前処理に用いる三連式管状型電気炉の容量から、1 回の前処理操作で用いることができる表土試料の上限は約 150g である。

##### 2.1.1 試料

六ヶ所村尾駱地区及び横浜町明神平地区で採取した表土を 70℃で 24 時間以上乾燥した後、2mm ふるいを通過したものをを用いた。

### 2.1.2 分析方法

分析法は、迅速分析法に準じて行った。表土試料を 10g から 150g 分取し、これに担体としてヨウ素-127 を 10mg 添加した後、三連式管状型電気炉を用い試料を 750℃で加熱し、発生した気体状のヨウ素を活性炭に捕集後、アルカリ溶液で浸出し固相抽出ディスクにより分離・精製したものを測定原液とした。また、供試量 150g の測定原液については、実際にヨウ素-129 を定量できることを確認するため、既知量のヨウ素-129 を測定原液に添加した溶液を作製した。

### 2.1.3 測定方法

作製した溶液について、ICP 質量分析装置によりヨウ素-127 及びヨウ素-129 の定量を行った。ICP 質量分析装置の測定条件を表 1 に示す。

表 1 測定条件

項 目	設 定 値	
	ヨウ素-127	ヨウ素-129
ネブライザーガス流量	1.04 L/min	1.01 L/min
補助ガス流量	1.4 L/min	1.6 L/min
プラズマガス流量	17 L/min	17 L/min
ICP RF 出力	1500 W	1600 W
DRC ガス流量	—	O <sub>2</sub> : 0.6 mL/min
積分時間	1 秒	2 秒
繰返し回数	1 回	10 回
測定回数	5 回	5 回

### 2.1.4 測定結果

供試量ごとの回収率を表 2 に示す。横浜町 1 回目の回収率が 73%と低かった原因として、牧草地の土試料であるため試料に有機物が多量に含まれており、これが完全に燃焼されず活性炭に吸着し、ヨウ素の吸着を妨げたことが考えられた。そこで、横浜町 2 回目及び 3 回目の試料については燃焼速度を下げたところ、回収率が改善した。尾駸地点の試料の回収率は 89~96%であり、迅速分析法に記載のヨウ素-127 回収率（85~92%）と同程度の回収率が得られた。

表 2 供試量ごとのヨウ素-127 回収率

地点名	供試量(g)	ヨウ素-127 回収率(%)			
		1 回目	2 回目	3 回目	平均
尾駸	10	90	91	96	92
	50	89	90	91	90
	100	89	92	94	92
	150	92	92	94	93
横浜町	150	73	82	87	81

次に、尾駸地点 150g の測定原液及び既知量のヨウ素-129 を添加した測定原液について、ヨウ素-129 濃度を測定した結果を表 3 に示す。ヨウ素-129 を添加していない原液の



測定値は検出限界値以下であり、ヨウ素-129 を添加した原液の測定値は添加濃度とほぼ一致した。また、各測定値の標準偏差から求めた表土中ヨウ素-129 の検出限界値は、どちらも本調査において目標としている 20mBq/kg 乾以下であった。

表 3 ヨウ素-129 測定結果

測定原液中ヨウ素-129 濃度 (mBq/mL)		測定値		検出限界値
		(mBq/mL)	(mBq/kg 乾) ※	(mBq/kg 乾) ※
-	(無添加)	0.0065±0.011	2.7±4.6	14
0.048	(添加)	0.045±0.0098	19±4.1	12

※分析条件は希釈容量 50mL、供試量 150g であり、回収率は 80%と仮定した。

なお、本検討において ICP 質量分析装置によりヨウ素-127 を測定していたところ、測定値（イオンカウント）が徐々に上昇する現象が見られたため、測定溶液の調製に 1%TMAH（水酸化テトラメチルアンモニウム）溶液を用い、液性をアルカリとすることでこれを解決した。また、液性の変更に伴い内標準元素を In から Rh に変更した。

## 2.2 希釈工程の見直し

次に検出限界値を向上させる方法として、希釈工程の見直しを検討した。迅速分析法（図 1）では、固相抽出ディスク溶離液からヨウ素-127 測定用に 0.5mL 分取する必要があることから、一度 50mL に定容した測定原液から 0.5mL 分取後、内標準元素を加えて再度 50mL に希釈・定容しヨウ素-129 測定用液としている。その結果、ヨウ素-129 測定溶液の希釈容量は 100mL となっている。

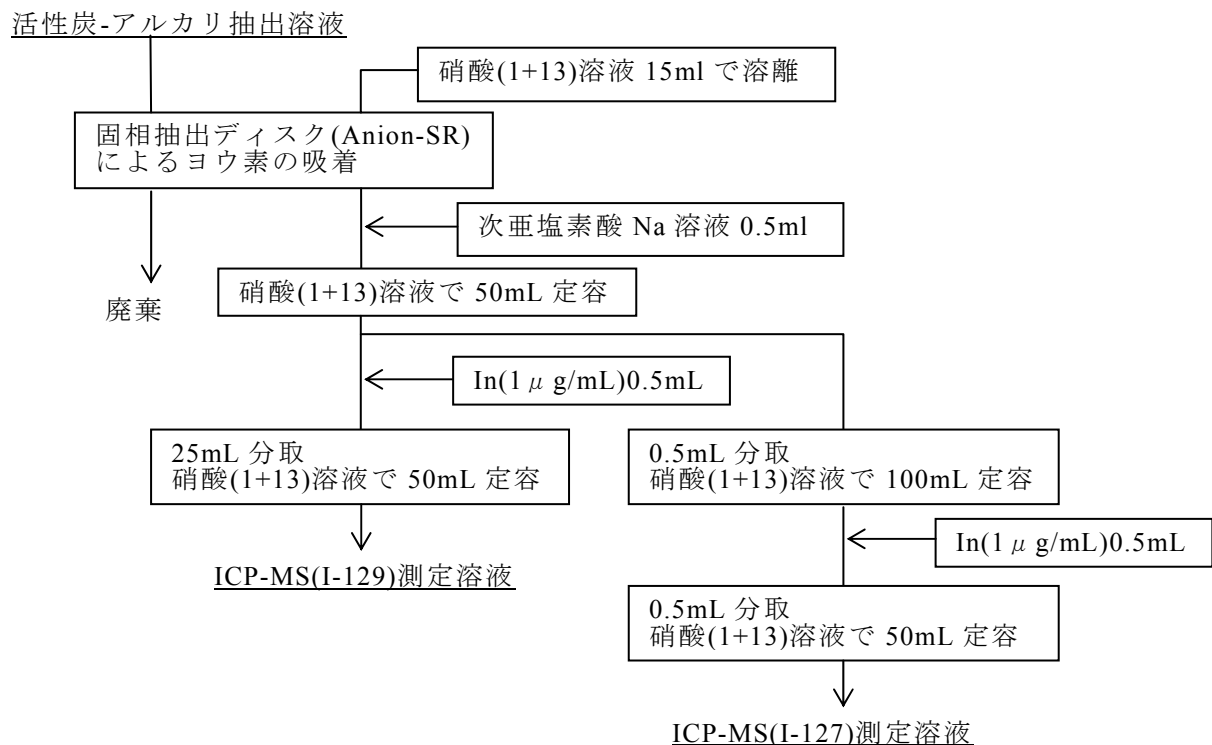


図 1 迅速分析法（従来法）における分析法

そこで本調査では、固相抽出ディスク溶離液に先に内標準元素を加えた後、50mL に定容した測定原液をそのままヨウ素-129 測定溶液とした(図 2)。これにより、ヨウ素-129 測定原液の希釈容量は 50mL となり、計算上ヨウ素-129 の検出限界値は従来法に比べて 2 倍向上する。ただしこの場合、共存するヨウ素-127 濃度も 2 倍となる。

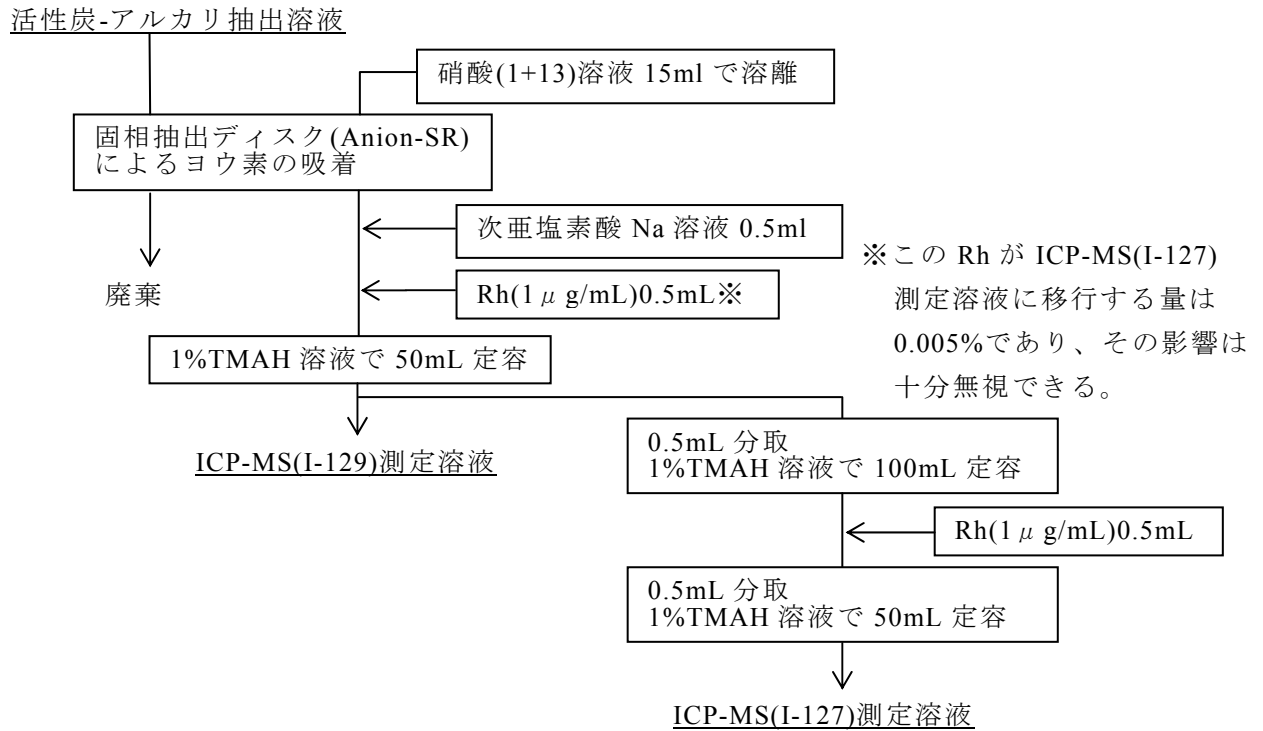
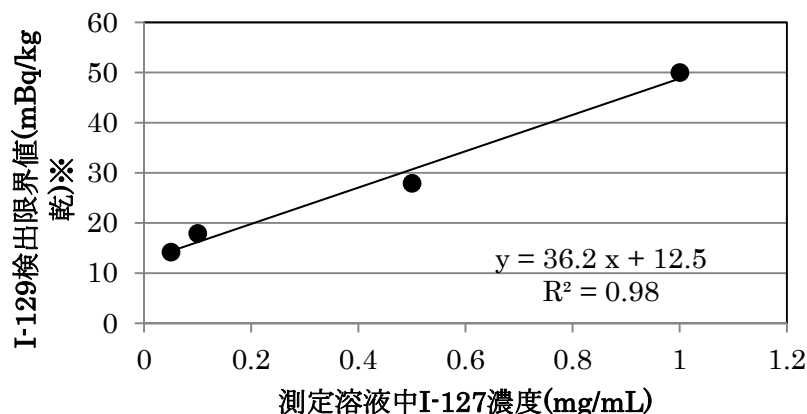


図 2 本調査における分析法

平成 23 年度の調査において図 3 のとおり、測定溶液中のヨウ素-127 濃度が増加するとヨウ素-129 の検出限界値が上昇することを確認した。測定溶液中のヨウ素-127 濃度は、表土試料に含まれるヨウ素-127 と担体添加量の合計で決まるため、担体添加量を調整し測定溶液中のヨウ素-127 量を 0.2mg/mL 以下に抑えることで、表土中ヨウ素-129 の検出限界値は 20mBq/kg 乾を達成できると考えられる(表 4)。



※平成 23 年度の調査結果をもとに、分析条件として希釈容量 50mL、供試量 150g、回収率 80%と仮定し表土中 I-129 検出限界値を算出した。

図 3 ヨウ素-127 濃度と表土中ヨウ素-129 検出限界値の関係

表 4 モニタリング対象試料に含まれるヨウ素-127 濃度及び予想される測定溶液中濃度

地点	I-127 濃度 (mg/kg 乾)	担体添加量 (mg)	予想される測定溶液中の I-127 濃度※ (mg/mL)
尾駁	7.8~14	10	0.18~0.19
千歳平	4.1~6.6	10	0.17~0.18
横浜町	22~43	5	0.13~0.18
青森市	16~22	5	0.12~0.13

※分析条件として希釈容量 50mL、供試量 150g、回収率 80%と仮定した。

### 2.3 担体添加量の低減

担体添加量を減少させることも検出限界値の向上につながるが、測定溶液中のヨウ素-127 濃度は、担体の他に表土試料に含まれるヨウ素-127 の影響を受ける。県が実施するモニタリングにおける表土試料のヨウ素-127 濃度は、最大 43mg/kg 乾(横浜町)であり、担体を添加しなかったとしても測定溶液中のヨウ素-127 濃度は 0.1mg/mL となることから、検出限界値向上の効果に乏しいと考えられる。

### 3. まとめと展望

供試量を 15 倍に増加させ、希釈工程を見直し測定溶液の希釈容量を半分にするにより、表土中ヨウ素-129 検出限界値を 20mBq/kg 乾まで向上できることを確認した。

今後は、葉菜及び海藻について前処理方法、測定条件等を検討し、「迅速分析法」に記載の検出限界値をさらに向上させるとともに、県の環境放射線モニタリングにおけるヨウ素-129 分析手法としての確立を目指す。

## 文 献

- 1)文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」(平成 8 年)
- 2)文部科学省放射能測定シリーズ「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」(平成 16 年)
- 3)藤原英司、木方展治： $^{129}\text{I}$  モニタリングのための分析法の確立,第 51 回環境放射能調査研究成果論文抄録集,平成 20 年度
- 4)村松康行、大桃洋一郎：環境中でのヨウ素の分布と挙動について,放射線科学,Vol.31,No.8(1988)

## 青森県における空間放射線量率特性調査

大坂直人 大久保英樹 木村秀樹

青森県では、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所及び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において、空間放射線量率（NaI）（以下、「線量率」という）の連続測定を実施している。線量率は、降雨及び降雪がないときは、大地からの放射線による寄与が支配的であり、同じ地点ではほぼ一定の値となるが、降雨時及び降雪時には、大気中に含まれるラドンの壊変生成物が雨や雪とともに地表面に落下するため、一時的に上昇する。また、積雪があると、大地からの放射線が遮へいされるため、線量率は低下する。

本調査では、線量率測定地点のうち、それぞれ特徴的な地理的条件にある4地点における平成21年度及び平成22年度の測定データを用い、降水量1 mm当たりの線量上昇分について、季節的な違いや降雨と降雪による違いなどを検討した。

調査結果等については、本所報の研究報告として取りまとめた。



編 集 委 員

木村秀樹（委員長） 小川政幸（副委員長） 大久保英樹 工藤俊明  
木村芳伸 今 壽貴 田中雄一

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 7 号 (2012)

平成 25 年 3 月 発行

編集・発行 青森県原子力センター

〒039-3215 青森県上北郡六ヶ所村大字倉内字笹崎 400 番 1 号

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

この印刷物は 210 部作成し、印刷経費は 1 部当たり 475 円です。

