

青森県原子力センター所報

第14号

令和元年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.14 (2019)

青森県原子力センター

<http://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/genshisenta/>

は じ め に

青森県では、六ヶ所村に日本原燃(株)の原子燃料サイクル施設、東通村に東北電力(株)の東通原子力発電所 1 号機、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、及び大間町に電源開発(株)の大間原子力発電所の立地等が進められており、現在、国において新規規制基準に係る適合性審査が行われているところです。

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、そ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。

東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故から 9 年が経過しましたが、環境放射線モニタリング、とりわけ緊急時モニタリング体制の充実・強化については現在、取組を進めています。今年度は、緊急時モニタリング計画について、核燃料施設に係る所要の見直しを行っているほか、平常時モニタリング計画についても、緊急事態が発生した場合への平常時からの備えのために必要なモニタリング項目等を追加しています。

人事異動等により職員が常に入れ替わる中、組織としての技術レベルを維持・向上させていくためには、専門研修の受講、学会・セミナー等への参加、実践的な原子力防災訓練の実施等を通じて、職員の知識・技術の習得を図るとともに、個々の意識を高めていくことが重要だと考えています。当センターの所報は、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たものであり、職員の意識や資質向上の成果であると考えております。

所報第 14 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。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、御高覧のうえ、忌憚のない御意見、御教示を賜りますようお願い申し上げます。

令和 2 年 3 月

青森県原子力センター

所 長 竹 ヶ 原 仁

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

ICP 質量分析法による葉菜中のヨウ素-129 分析の検討

安積 潔 神 俊雄 五十嵐飛鳥 *1 木村芳伸

ICP 質量分析装置を用いた葉菜中 I-129 の分析法について検討した。分析は、水酸化テトラメチルアンモニウムによるアルカリ抽出と固相抽出ディスクによる分離精製を組み合わせた手法により行った。アルカリ抽出工程における葉菜中ヨウ素の抽出率は 95~100 % と良好であったが、分離精製工程における固相抽出ディスクによる葉菜由来のヨウ素の回収率は 60~80 % 程度と低く、また安定しないことが分かった。また、固相抽出ディスクによる葉菜由来のヨウ素の回収率は、担体として用いるヨウ化ナトリウムのヨウ素の回収率よりも低いことが確認された。葉菜中 I-129 濃度を計算する方法として、あらかじめ葉菜にヨウ素担体を添加したうえで分析し、その回収率を用いて I-129 濃度を補正する方法が考えられるが、本分析法に適用した場合は過小評価となるおそれがある。ただし、 10^{-2} Bq/kg 生オーダーの I-129 の濃度レベルを把握し、おおよその線量評価を行うためには有効な分析法であると考えられた。

1. はじめに

本県は、「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 I-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」¹⁾（以下「ヨウ素-129 分析法」という。）の放射化学分析法（ β 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」²⁾（以下「迅速分析法」という。）では、前処理工程にアルカリ抽出及び固相抽出法を、測定に ICP 質量分析法を用いた分析法が採用されている。

迅速分析法の分析条件における検出限界値（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、安定ヨウ素の二水素化物イオン ($^{127}\text{IH}_2^+$) 及びキャリアガス（アルゴン）に不純物として含まれる Xe-129 によるスペクトル干渉を低減する機構を備えた ICP 質量分析装置を用いることで、検出限界値を低減させることが可能であることから³⁾、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こととした。

平成 22 年度に ICP 質量分析装置を整備し、平成 23 年度は標準溶液を用いた測定条件の検討を、平成 24 年度は土壌中 I-129 分析に係る検討を、平成 25 年度は海藻及び葉菜中 I-129 分析に係る検討を行った。葉菜については、水酸化テトラメチルアンモニウム（以下「TMAH」という。）によるヨウ素の抽出と固相抽出ディスクによるヨウ素の分離精製を組み合わせた手法（本分析法を以下「TMAH アルカリ抽出-分離精製法」という。）により分析した。平成 26 年度以降は、葉菜中 I-129 分析について、ヨウ素含有量が既知である葉菜試料を用いてヨウ素回収率に係る詳細な検討を行うとともに、分析条件及び測定条件の最適化、各元素によるスペクトル干渉の確認等を行った。

本報では、平成 26 年度から令和元年度にかけて得られた検討結果について報告する。

*1：現青森県環境生活部環境保健センター

2. 調査方法

2.1 リアクションガスの最適流量の確認

ICP 質量分析装置は、パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e を用いた。本装置による I-129 測定においては、キャリアガスに含まれる Xe-129 によるスペクトル干渉を低減するため、リアクションセルに酸素を導入している。当該ガスについて、I-129 に対する検出感度が最大となる最適流量の検討を行った。

ヨウ化ナトリウム (Wako) を 1 %TMAH (精密分析用、Wako) で希釈して I-127 濃度が 8.5×10^{-9} g/mL 及び 1.0×10^{-3} g/mL の標準溶液を調製し、ICP 質量分析装置により、酸素流量を変化させながら m/z127 及び m/z129 の計数率を測定した。

ヨウ素の 2 つの同位体 (I-127 及び I-129) の感度応答が等しいと仮定し、測定した I-127 の感度応答から I-129 のバックグラウンド相当濃度 (以下「I-129BEC」という。) を(1)式により算出し、最も低い I-129BEC が得られる流量を最適な酸素流量とした。

$$\text{I-129BEC}[\text{g/mL}] = \text{I-127 濃度}[\text{g/mL}] \times \frac{\text{m/z129 計数率}[\text{cps}]}{\text{m/z127 計数率}[\text{cps}]} \times \frac{129}{127} \dots\dots\dots (1)$$

2.2 I-129 測定におけるスペクトル干渉の確認

ICP 質量分析装置による I-129 の測定において、Xe-129 の他にスペクトル干渉の原因となる可能性のある元素として、I-127 ($^{127}\text{I}^+\text{H}_2^+$)、Mo-97 ($^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^+$)、Cd-113 ($^{113}\text{Cd}^{16}\text{O}^+$)、Te-128 ($^{128}\text{Te}^+\text{H}^+$) が挙げられる。これらによる m/z129 へのスペクトル干渉について、標準溶液を用いて確認した。標準溶液は、ヨウ化ナトリウム溶液、モリブデン標準液 (wako)、カドミウム標準液 (ICP 分析用、wako) 又はテルル標準液 (ICP 分析用、wako) にそれぞれ内標準元素としてロジウム (原子吸光分析用、Wako) を加え、1 %TMAH で希釈し調製した。

2.3 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の回収率の確認

2.3.1 葉菜中ヨウ素の回収率の確認

TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の回収率を確認するため、ヨウ素含有量が既知である Tomato Leaves (NIST SRM1573a、値付け値：ヨウ素 $0.85 \mu\text{g/g}$) 中の I-127 を分析・測定し、値付け値との比較により回収率を求めた。

TMAH アルカリ抽出-分離精製法の分析から測定までのフローを図 1 に示す。迅速分析法では、生の葉菜に炭酸ナトリウムを加えて振とうし、試料表面に付着したヨウ素を抽出する方法を用いているが、本調査では、乾燥・粉碎した試料を TMAH に溶解させ、試料内部に取り込まれたヨウ素も抽出する方法を用いることとした。また、TMAH に溶解後の溶液は、固相抽出ディスク (Empore 2252-Anion、47 mmφ、3M) を用いてヨウ素の分離・精製を行った。分析条件については、安定的にヨウ素を抽出でき、かつ分析時間が過大とならないよう検討した。

(1) アルカリ抽出

PFA 容器に乾燥させた葉菜試料約 1 g 乾を秤取し、12.5 %TMAH 10 mL を加え密栓した上で十分に攪拌し、80 °C に設定した恒温槽内で 1 晩 (16 時間以上) 加熱して試料中のヨウ素を抽出した。再度攪拌して容器壁面に付着した試料を洗い落とした後、80 °C で 3 時間加熱した。

ここで、アルカリ抽出に用いる TMAH の液量は、少なすぎると葉菜試料と十分に混合できず、

ヨウ素の抽出が不十分となる場合がある。TMAH の液量を増やすことでこの問題は解決できるが、抽出後のろ過時には、発泡低減のため抽出液を純水で希釈し TMAH 濃度を下げる必要があり、ろ過液量の増加が懸念される。このため、定量的にヨウ素を抽出できる最低限の液量及び濃度について検討した結果、液量は葉菜 1 g 乾に対し 10 mL とし、濃度は 12.5 % とすることとした。

(2) ろ過

放冷後、純水（メルク社超純水製造装置 Milli-Q Advantage で製造、以下同）で希釈して遠心分離し、上澄み液を孔径 1.0 μm の PTFE 製メンブランフィルター（ADVANTEC、47 mmφ）を用いて吸引ろ過した。残渣は純水で洗浄し、アルカリ抽出液にあわせた。

(3) 固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離精製

アルカリ抽出液に還元剤として 10 w% 亜硫酸ナトリウム（特級、Wako）を加え、固相抽出ディスクに通液しヨウ素を保持させ、1 M 硝酸溶液（超微量分析用、Wako）でヨウ素を溶離した。

(4) 測定用試料の調製

固相抽出ディスクの溶離液に、酸化剤として次亜塩素酸ナトリウム溶液（化学用、Wako）及び内標準元素としてロジウムを加えた後、TMAH を加えアルカリ性とし、純水で定容して測定溶液とした。

(5) 測定

ICP 質量分析装置（パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e）を用い、内標準法により I-127 及び I-129 の定量を行った。検量線用の溶液は、I-127 についてはヨウ化ナトリウムを、I-129 については I-129 標準溶液（Eckert&Ziegler Isotope Products 社製）をそれぞれ 1.25 % TMAH で希釈し調製した。測定条件を表 1 に示す。

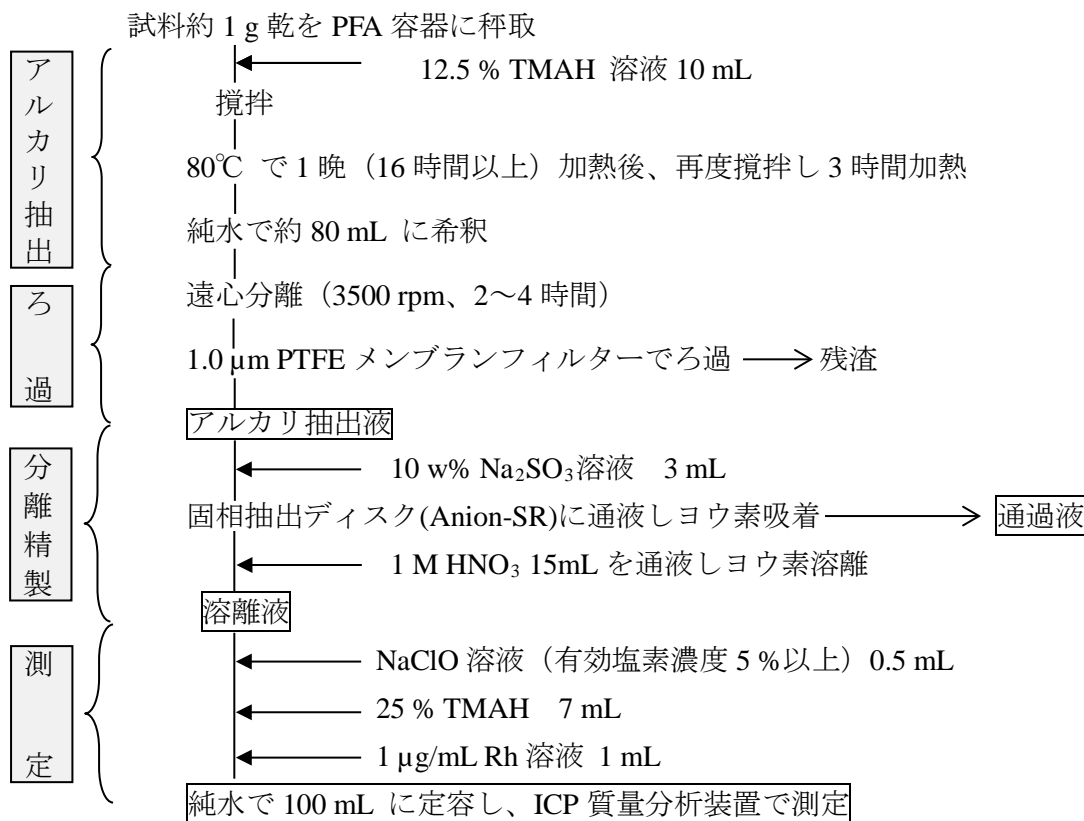


図 1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法 分析フロー図

表 1 測定条件

項 目	設 定 値	
	I-127	I-129
ネブライザーガス流量	0.92～1.08 L/min	0.92～1.08 L/min
補助ガス流量	0.70～0.80 L/min	0.70～0.80 L/min
プラズマガス流量	17 L/min	17 L/min
リアクションガス流量	—	O ₂ : 0.6 mL/min
ICPRF 出力	1500 W	1500 W
積分時間	5 秒	20 秒
繰返し回数	3 回	5 回

2.3.2 ヨウ素の損失が生じている分析工程の確認

2.3.1 の結果、TMAH アルカリ抽出-分離精製法による Tomato Leaves 中ヨウ素の回収率が 58～64%であったことから、ヨウ素の損失が考えられ、その分析工程を特定するため、アルカリ抽出工程におけるヨウ素の抽出率及び分離精製工程におけるヨウ素の回収率をそれぞれ確認した。

2.3.3 分離精製工程におけるヨウ素回収率低下の原因の検討

2.3.2 の結果、Tomato Leaves のアルカリ抽出液を固相抽出ディスクにより分離精製する工程において、通常廃棄する通過液にヨウ素の一部が存在していることが分かった。この原因について検討するため、分離精製工程において使用する固相抽出ディスクを 1 枚から 2 枚に増やし、それぞれのディスクによるヨウ素の回収率を確認した。

2.4 分離精製工程における葉菜由来のヨウ素と NaI 溶液のヨウ素の回収率の比較

葉菜から抽出したヨウ素と、ヨウ化ナトリウム状態で添加したヨウ素の挙動に違いがないか確認するため、Na¹²⁹I を添加した Tomato Leaves のアルカリ抽出液を 2.3.1(3)により分離精製し、I-127 及び I-129 を測定し、ヨウ素の回収率を比較した。

2.5 分離精製工程におけるヨウ素回収率改善に向けた検討

固相抽出ディスクによるヨウ素の回収率を向上させるか、またはヨウ素の由来や化学形によりヨウ素の回収率が変化することがないようにすることを目的として、分析条件の検討を行った。

3. 結果と考察

3.1 リアクションガスの最適流量の確認

ICP 質量分析装置に I-127 (8.5×10^{-9} g/mL 及び 1.0×10^{-3} g/mL) を含む溶液を導入し、酸素流量を変化させながら m/z127 及び m/z129 の計数率を測定した結果を図 2 に示す。m/z129 に干渉による計数が確認されたが、酸素流量増加に伴い低下 (=干渉が低減) した。しかし、同時に m/z127 の計数も低下 (=感度が低下) したことから、最も低い I-129BEC が得られる酸素流量を求めたところ、0.6 mL/min であった。

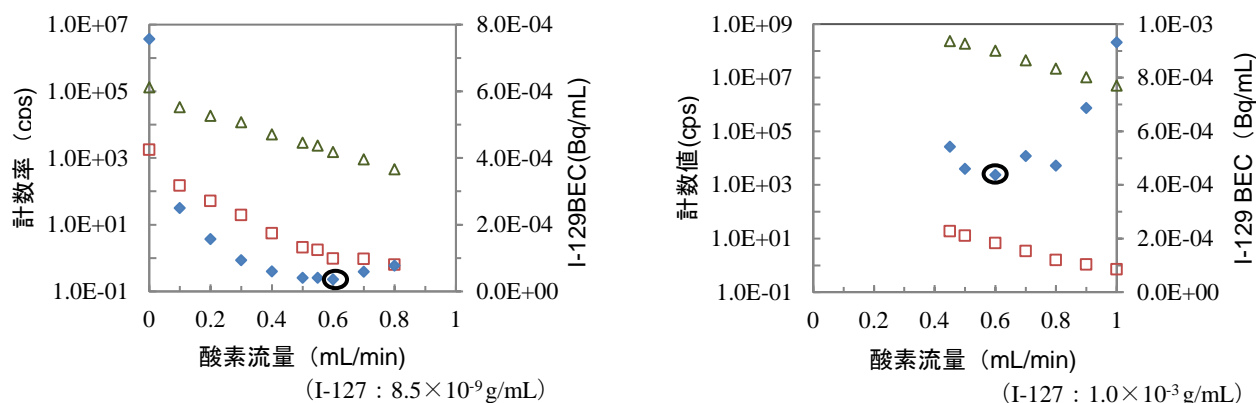


図 2 酸素流量に対する m/z 127、129 の計数率及び I-129 バックグラウンド相当濃度 (I-129BEC) の関係

(Δ : m/z127 計数率 (左軸)、 \square : m/z129 計数率 (左軸)、 \blacklozenge : I-129 BEC (右軸))

3.2 I-129 測定におけるスペクトル干渉の確認

3.2.1 I-127 によるスペクトル干渉

I-129 の測定条件における I-127 による m/z129 に対するスペクトル干渉について確認した結果を図 3 に示す。I-127 1 g/mL あたりの干渉の大きさ (I-129 換算) は 0.080 Bq/mL (= 1.2×10^{-8} g/mL) であった。

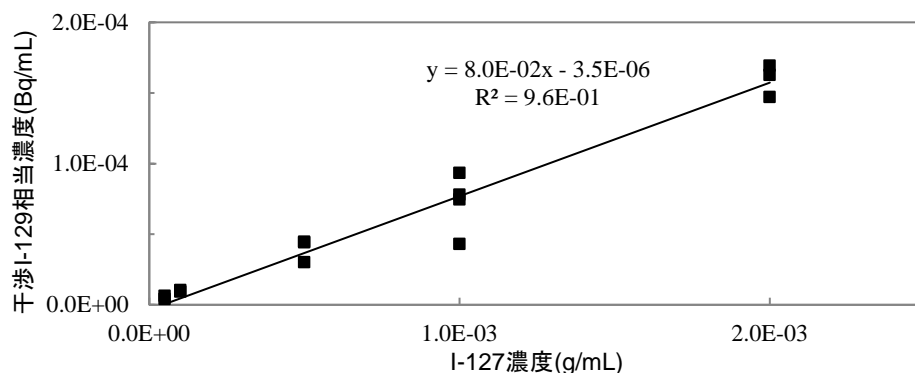


図 3 I-129 測定条件における I-127 による干渉

(リアクションガス : 酸素 0.6 mL/min)

3.2.2 Mo-97、Cd-113、Te-128 によるスペクトル干渉

I-127 の測定条件におけるモリブデン、カドミウム及びテルルによる m/z127 に対するスペクトル干渉を図 4-1 に、I-129 の測定条件における m/z129 に対するスペクトル干渉を図 4-2 に示す。

I-129 の測定条件において、特にモリブデンによる m/z129 への干渉が大きく現れた。低いモリブデン濃度 (2×10^{-9} g/mL) で干渉が検出され、モリブデン 1 g/mL あたりの干渉の大きさ (I-129 換算) は 4.1×10^4 Bq/mL ($=6.3 \times 10^{-3}$ g/mL) であった。

天然における Mo-97 の存在度 (9.55 %) は Mo-95 (15.92 %) より小さいが⁴⁾、 $^{97}\text{MoO}_2^+$ による m/z129 への干渉は $^{95}\text{MoO}_2^+$ による m/z127 への干渉より 200 倍程度大きかった。この理由は、I-129 の測定条件ではリアクションセルに酸素を導入するため、セル内でモリブデンの酸化物が生成しやすくなるためと考えられる。

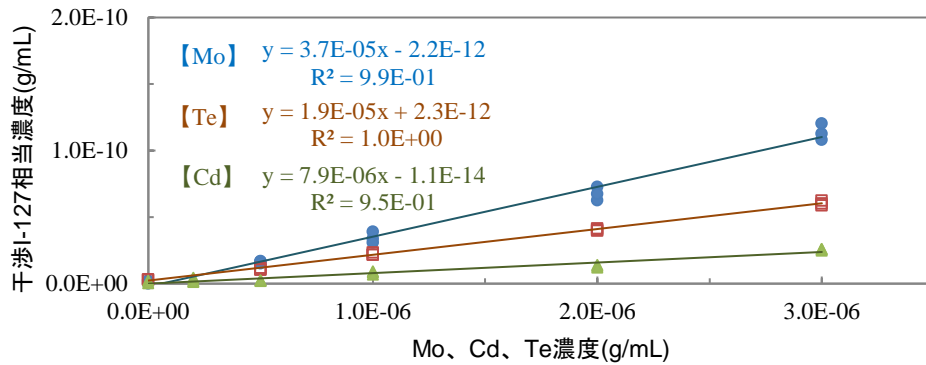


図 4-1 I-127 測定条件における Mo、Cd、Te による干渉
(● : Mo による干渉、□ : Te による干渉、▲ : Cd による干渉)
(リアクションガス : なし)

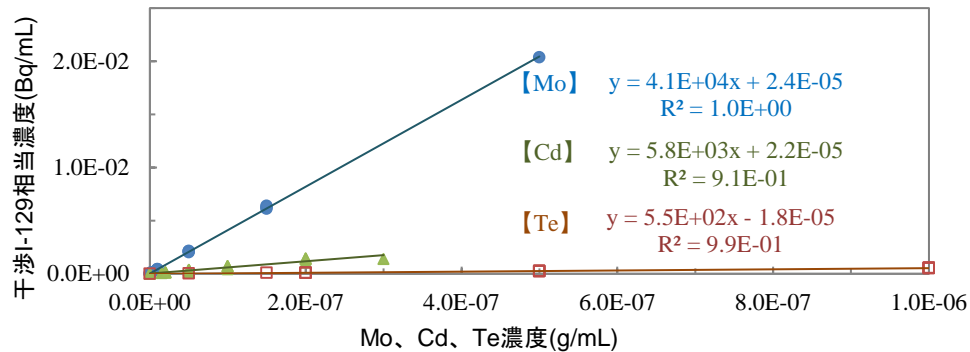


図 4-2 I-129 測定条件における Mo、Cd、Te による干渉
(● : Mo による干渉、□ : Te による干渉、▲ : Cd による干渉)
(リアクションガス : 酸素 0.6 mL/min)

※近似式は検出限界以下の値も用いて求めた。

また、Mo、Cd、Te の濃度 (g/mL) あたりの干渉を I-129 の重量濃度 (g/mL) で表すと以下のとおりとなる。

$$\text{Mo} : y = 6.3\text{E-}03x + 3.7\text{E-}12$$

$$\text{Cd} : y = 8.8\text{E-}04x + 3.4\text{E-}12$$

$$\text{Te} : y = 8.4\text{E-}05x - 2.7\text{E-}12$$

3.3 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の回収率の確認

3.3.1 葉菜中ヨウ素の回収率の確認

ヨウ素含有量が既知である Tomato Leaves 中の I-127 濃度を TMAH アルカリ抽出-分離精製法により測定した結果を表 2 に示す。Tomato Leaves からの I-127 の回収率は 58~64 %であった。

表 2 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による Tomato Leaves 中 I-127 測定結果

試料名	溶離液中 I-127 量 ※ (μg)	I-127 回収率 (%)
Tomato Leaves (n=4)	0.53 \pm 0.006	58 \pm 0.6
	0.56 \pm 0.004	61 \pm 0.5
	0.58 \pm 0.003	64 \pm 0.3
	0.56 \pm 0.007	61 \pm 0.8

※ 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

※ Tomato Leaves に含まれる I-127 が全て測定溶液に移行すると仮定した場合の溶離液中ヨウ素量 : 0.911 μg

3.3.2 ヨウ素の損失が生じている分析工程の確認

3.3.1 の結果、Tomato Leaves 中のヨウ素の回収率が 58~64 %であったことから、ヨウ素の損失が生じている分析工程を確認することとした。

3.3.2.1 アルカリ抽出工程におけるヨウ素抽出率の確認

アルカリ抽出工程におけるヨウ素の抽出率について確認するため、2.3.1(1)(2)に示す方法により Tomato Leaves のアルカリ抽出を行い、アルカリ抽出液中の I-127 量を測定した。

測定結果を表 3 に示す。I-127 の抽出率は 95~100 %と概ね良好であった。

表 3 アルカリ抽出法による Tomato Leaves 中 I-127 測定結果

試料名	アルカリ抽出液中 I-127 量 (μg)	I-127 抽出率 (%)
Tomato Leaves (n=6)	0.78 \pm 0.011	95 \pm 1.4
	0.78 \pm 0.006	95 \pm 0.8
	0.81 \pm 0.009	99 \pm 1.1
	0.82 \pm 0.007	100 \pm 0.9
	0.81 \pm 0.007	99 \pm 0.9
	0.80 \pm 0.003	98 \pm 0.3

※ 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

※ Tomato Leaves に含まれる I-127 が全て測定溶液に移行すると仮定した場合のアルカリ抽出液中ヨウ素量 : 0.815 μg

3.3.2.2 分離精製工程におけるヨウ素回収率の確認

分離精製工程におけるヨウ素の回収率について確認するため、Tomato Leaves のアルカリ抽出液について 2.3.1 (3)に示す方法により分離精製を行い、アルカリ抽出液、溶離液及び通過液中の

I-127 量を測定した。

測定結果を表 4 に示す。固相抽出ディスクによるヨウ素の回収率（溶離液中 I-127 量/アルカリ抽出液中 I-127 量）は 77～78 % と低く、通常は廃棄する通過液に 11～15 % の I-127 が存在していた。また、9～11 % の I-127 が未回収となった。未回収のヨウ素は、固相抽出ディスクから溶離されず、保持されたままとなっている可能性が考えられる。

表 4 分離精製工程における Tomato Leaves アルカリ抽出液からの I-127 回収率

上段：I-127 量、下段：回収率（分離精製前（アルカリ抽出液）の I-127 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 ※ (μg)
	アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
Tomato Leaves (n=4)	0.39±0.003 (100 %)	0.30±0.001 (78 %)	0.048±0.0008 (12 %)	0.04±0.003 (9 %)
		0.30±0.003 (78 %)	0.058±0.0007 (15 %)	0.03±0.004 (7 %)
		0.30±0.001 (77 %)	0.045±0.0001 (11 %)	0.04±0.003 (12 %)
		0.30±0.002 (77 %)	0.045±0.0003 (12 %)	0.04±0.004 (11 %)

※ 未回収 = アルカリ抽出液中 I-127 量 - 溶離液中 I-127 量 - 通過液中 I-127 量

※ 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

3.3.2.3 分離精製工程におけるヨウ素回収率低下の原因の検討

分離精製工程においてヨウ素の一部が通過液に抜け出す原因について検討するため、Tomato Leaves のアルカリ抽出液の分離精製工程において、使用する固相抽出ディスクを 1 枚から 2 枚に増やし、それぞれのディスクによるヨウ素の回収率を比較した。

測定結果を表 5-1～表 5-2 に示す。1 枚目の固相抽出ディスクの回収率が 62 % であったのに対して、2 枚目のディスクの回収率はわずか 12～14% であった。

2 枚目のディスクの回収率が 1 枚目より大幅に低いことから、ディスクに捕集されず通過液に抜け出しているヨウ素は、ディスクに捕集されにくい化学形になっている可能性が考えられる。

表 5-1 固相抽出ディスク (1 枚目) の I-127 回収率

上段：I-127 量、下段：回収率（ディスク (1 枚目) による分離精製前の I-127 量との比）

試料名	【通液前】	【通液後】	【通液後】	未回収 (μg)
	アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	ディスク (1 枚目) 溶離液中 I-127 量(μg)	ディスク (1 枚目) 通過液中 I-127 量(μg)	
Tomato Leaves (n=2)	0.82±0.003 (100 %)	0.51±0.006 (62 %)	0.20±0.005 (25 %)	0.10±0.008 (13 %)
		0.51±0.004 (62 %)		0.11±0.007 (13 %)

表 5-2 固相抽出ディスク (2 枚目) の I-127 回収率

上段 : I-127 量、下段 : 回収率 (ディスク (2 枚目) による分離精製前の I-127 量との比)

試料名	【通液前】	【通液後】	【通液後】	未回収 (μg)
	ディスク (1 枚目)	ディスク (2 枚目)	ディスク (2 枚目)	
	通過液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
Tomato Leaves (n=2)	0.20 \pm 0.005	0.024 \pm 0.0003 (12 %)	0.15 \pm 0.001 (74 %)	0.028 \pm 0.005 (14 %)
	(100 %)	0.029 \pm 0.0007 (14 %)	0.14 \pm 0.001 (69 %)	0.033 \pm 0.005 (16 %)

※ 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

3.4 分離精製工程における葉菜由来のヨウ素と NaI 溶液のヨウ素の回収率の比較

葉菜から抽出したヨウ素と、ヨウ化ナトリウムの状態で添加したヨウ素の挙動に違いがないか確認するため、 Na^{129}I を添加した Tomato Leaves のアルカリ抽出液を 2.3.1 (3) により分離精製し、I-127 と I-129 の回収率を比較した。

なお、I-129 を添加していない Tomato Leaves 1 g 乾を 2.3.1 により分析したところ、アルカリ抽出液及び通過液については m/z129 に Mo のスペクトル干渉によると考えられる計数が確認されたため (アルカリ抽出液 : I-129 換算で 0.014 ± 0.002 Bq、通過液 : I-129 換算で 0.012 ± 0.003 Bq)、本項においては、これらの値をバックグラウンドとして差し引くこととした。

測定結果を表 6-1～表 6-2 に示す。I-127 (Tomato Leaves から抽出) の回収率が 61～67 % であったのに対し、I-129 (ヨウ化ナトリウムの形で添加) の回収率は 88～94% と比較的高い値となった。

以上の結果から、Tomato Leaves から抽出されたヨウ素と、ヨウ化ナトリウム溶液の形で添加したヨウ素では、固相抽出ディスクによる回収率が異なることが分かった。このことから、ヨウ素の化学形により回収率が異なる可能性が示唆される。

葉菜中 I-129 濃度を計算する方法として、あらかじめ葉菜にヨウ素担体 (I-127) を添加したうえで分析し、その回収率を用いて I-129 濃度を補正する方法が考えられるが、本分析法に適用した場合は過小評価となるおそれがある。

表 6-1 分離精製工程における Na¹²⁹I 添加 Tomato Leaves 抽出液からの I-127 回収率
 上段：I-127 量、下段：回収率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
	アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
I-129 添加 Tomato Leaves (n=5)	0.77±0.0009 (100 %)	0.52±0.003 (67±0.4 %)	0.16±0.0006 (21±0.08 %)	0.10±0.003 (12±0.4 %)
		0.52±0.005 (67±0.7 %)	0.15±0.0009 (20±0.1 %)	0.10±0.005 (13±0.7 %)
		0.64±0.006 (62±0.6 %)	0.21±0.001 (20±0.1 %)	0.18±0.006 (17±0.6 %)
	1.03±0.002 (100 %)	0.63±0.009 (61±0.9 %)	0.22±0.002 (22±0.2 %)	0.18±0.009 (17±0.9 %)
		0.64±0.006 (62±0.6 %)	0.23±0.001 (22±0.1 %)	0.17±0.006 (16±0.6 %)

表 6-2 分離精製工程における Na¹²⁹I 添加 Tomato Leaves 抽出液からの添加 I-129 の回収率
 上段：I-129 量、下段：回収率（分離精製前の I-129 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (Bq)
	アルカリ抽出液中 I-129 量(Bq)	溶離液中 I-129 量(Bq)	通過液中 I-129 量(Bq)	
I-129 添加 Tomato Leaves (n=5)	0.27±0.007 (100 %)	0.25±0.007 (94±2 %)	*	*
		0.25±0.006 (93±2 %)	*	*
		0.32±0.01 (89±3 %)	*	*
	0.36±0.01 (100%)	0.32±0.009 (88±2 %)	*	*
		0.33±0.01 (89±3 %)	*	*

※ アルカリ抽出液及び通過液の I-129 のデータは、I-129 を添加していない Tomato Leaves 1 g 乾を分析して得られた測定値（Mo のスペクトル干渉によるものと考えられる）をバックグラウンドとして差し引いた値（補正值 アルカリ抽出液：-0.014±0.002 Bq、通過液：-0.012±0.003 Bq）

※誤差は、5 個の測定値から求めた標準偏差。濃度が誤差の 3 倍以下の場合「*」と表示した。

3.5 分離精製工程におけるヨウ素回収率改善に向けた検討

固相抽出ディスクによるヨウ素の回収率を向上させるか、またはヨウ素の化学形によりヨウ素の回収率が変化することがないようにすることを目的として、分析条件の検討を行った。

3.5.1 pHの違いがヨウ素回収率に及ぼす影響の確認

固相抽出ディスクの説明書によると、ディスクに通液する溶液の pH は 2~12 が推奨されている（ただし、短時間であればこの範囲外でも可と思われるとの記載あり）。2.3.1(3)に示す分離精製工程において、ディスクに通液するアルカリ抽出液の pH は通常 13 以上であり、ディスクの推奨使用範囲を外れている。

そこで、アルカリ抽出液の pH を塩酸によりディスクの推奨使用範囲内に調整した後分離精製を行い、pH を調整しない場合の回収率と比較した。

測定結果を表 7 に示す。pH の違いにより、測定値に大きな差は認められなかった。このことから、溶液の pH を固相抽出ディスクの推奨使用範囲に調整しても、ヨウ素の回収率の改善は期待できないと考えられる。

表 7 pH の違いが固相抽出ディスクのヨウ素回収率に及ぼす影響

上段：I-127 量、下段：回収率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	ディスクに通液する溶液の pH	【分離精製前】 アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	【分離精製後】 溶離液中 I-127 量(μg)	【分離精製後】 通過液中 I-127 量(μg)
Tomato Leaves	9.6 (pH 調整) (n=2)	0.71±0.002 (100 %)	0.59±0.006 (84 %)	0.17±0.001 (24 %)
	13.2 (pH 調整せず) (n=2)		0.58±0.001 (82 %)	0.16±0.001 (22 %)
			0.57±0.006 (81 %)	0.17±0.0006 (23 %)
			0.57±0.008 (80 %)	0.17±0.001 (24 %)

※ 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

3.5.2 固相抽出ディスクの長期保管によるヨウ素回収率低下の有無の確認

固相抽出ディスクの説明書によると、ディスクはデシケータ内で保管すべきとされている。固相抽出ディスクをデシケータに入れず長期保管することによりヨウ素の回収率が低下することがないか確認するため、購入日、ロット及び保管方法が異なるディスク（平成 29 年 12 月に購入後 1 年間実験室内で保管したディスク（以下「H29 ディスク」という。）及び平成 30 年 7 月に購入後デシケータ内で 5 か月間保管したディスク（以下「H30 ディスク」という。））を用いて Tomato Leaves アルカリ抽出液の分離精製を行い、ヨウ素の回収率を比較した。

測定結果を表 8 に示す。Tomato Leaves のアルカリ抽出液について分離精製を行った結果、H29 ディスクと H30 ディスクで I-127 の回収率に大きな差は認められなかった。

表 8 固相抽出ディスクの保管期間が回収率に及ぼす影響

上段：I-127 量、下段：回収率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	ディスク	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
		アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
Tomato Leaves	H29 ディスク (n=2)	0.77±0.0009 (100 %)	0.53±0.002 (69 %)	0.18±0.0007 (23 %)	0.07±0.002 (8 %)
	H30 ディスク (n=2)		0.52±0.0009 (68 %)	0.18±0.001 (23 %)	0.07±0.002 (9 %)
Tomato Leaves	H29 ディスク (n=2)	0.77±0.0009 (100 %)	0.52±0.003 (67 %)	0.16±0.0006 (21 %)	0.10±0.003 (12 %)
	H30 ディスク (n=2)		0.52±0.005 (67 %)	0.15±0.0009 (20 %)	0.10±0.005 (13 %)

※ 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

3.5.3 アルカリ抽出時間の違いが Tomato Leaves 中ヨウ素の回収率に及ぼす影響の確認

3.4 の結果、Tomato Leaves 由来の I-127 と、ヨウ化ナトリウム溶液の I-129 では、固相抽出ディスクによる回収率が異なることが確認されたが、仮に、アルカリ抽出工程において I-127 と I-129 が十分に同位体交換されれば、I-127 と I-129 の回収率は同程度となることが期待される。そこで、アルカリ抽出を通常 1 晩（16 時間以上）行うところ約 4 日間行い、I-127 及び I-129 の回収率を比較した。

測定結果を表 9-1 及び表 9-2 に示す。アルカリ抽出時間を約 4 日として分析した結果、固相抽出ディスクによるヨウ素回収率は、I-127（Tomato Leaves 由来）については 67～68 %、I-129（ヨウ化ナトリウム溶液由来）については 94～97 % となり、抽出時間 16 時間の場合と大差ない結果となった。

このことから、アルカリ抽出時間を長くしても、Tomato Leaves 由来のヨウ素とヨウ化ナトリウム溶液のヨウ素回収率を同程度とすることはできないと考えられる。

表 9-1 分離精製工程における Na¹²⁹I 添加 Tomato Leaves 抽出液からの I-127 回収率

上段：I-127 量、下段：回収率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
	アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
I-129 添加 Tomato Leaves (4 日間抽出) (n=3)	0.92±0.005 (100%)	0.63±0.002 (68±0.2 %)	0.15±0.001 (16±0.1 %)	0.15±0.006 (16±0.6 %)
		0.62±0.003 (67±0.3 %)	0.15±0.001 (16±0.1 %)	0.16±0.006 (17±0.6 %)
I-129 添加 Tomato Leaves (4 日間抽出) (n=3)	0.92±0.005 (100%)	0.63±0.006 (68±0.7 %)	0.14±0.0001 (15±0.01 %)	0.15±0.008 (16±0.8 %)
		0.63±0.006 (68±0.7 %)	0.14±0.0001 (15±0.01 %)	0.15±0.008 (16±0.8 %)

表 9-2 分離精製工程における Na¹²⁹I 添加 Tomato Leaves 抽出液からの添加した I-129 の回収率
 上段：I-129 量、下段：回収率（分離精製前の I-129 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (Bq)
	アルカリ抽出液中 I-129 量(Bq)	溶離液中 I-129 量(Bq)	通過液中 I-129 量(Bq)	
I-129 添加 Tomato Leaves (4 日間抽出) (n=3)		0.31±0.007 (97±2 %)	*	*
	0.32±0.008 (100%)	0.30±0.007 (94±2 %)	*	*
		0.31±0.01 (95±3 %)	*	*

※ アルカリ抽出液及び通過液の I-129 のデータは、I-129 を添加していない Tomato Leaves 1 g 乾を分析して得られた測定値 (Mo のスペクトル干渉によるものと考えられる) をバックグラウンドとして差し引いた値

(補正值 アルカリ抽出液：-0.014±0.002 Bq、通過液：-0.012±0.003 Bq)

※誤差は、5 個の測定値から求めた標準偏差。濃度が誤差の 3 倍以下の場合「*」と表示した。

3.6 葉菜中 I-129 の検出限界値の試算

これまでの検討により、TMAH アルカリ抽出-分離精製法により葉菜中 I-129 を分析した場合、分離精製工程においてヨウ素全量が捕集されず、また、ヨウ素の化学形により回収率が異なる可能性があることが分かった。葉菜中 I-129 濃度を計算する方法として、あらかじめ葉菜にヨウ素担体 (I-127) を添加したうえで分析し、その回収率を用いて I-129 濃度を補正する方法が考えられるが、本分析法に適用した場合は過小評価となるおそれがある。

ただし、固相抽出ディスクによる分離精製工程は、マトリクスを除去するとともにヨウ素を濃縮し、検出限界値を低減できるメリットがある。仮に固相抽出ディスクによるヨウ素の回収率を 60% とし、表 10 に示す条件で葉菜中 I-129 の検出限界値を試算すると 0.04 Bq/kg 生となることから、TMAH アルカリ抽出-分離精製法は、10⁻² Bq/kg 生オーダーの I-129 の濃度レベルを把握し、おおよその線量評価を行うためには有効な分析法であると考えられる。

正確な定量を行う場合は、図 1 に示す分析フローのうち固相抽出ディスクによる分離精製工程を省いた手法 (以下「TMAH アルカリ抽出法」という。) により分析する。この場合の葉菜中 I-129 の検出限界値を試算すると 0.24 Bq/kg 生となる。この値は、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」に記載の野菜中 I-129 の分析目標レベル (2 Bq/kg 生) と比較して、約 8 分の 1 に相当する。

表 10 I-129 検出限界値の試算条件

	TMAH アルカリ抽出 -分離精製法	TMAH アルカリ抽出法
葉菜供試料量	10 g 乾	2 g 乾
測定溶液の容量	50 mL	100 mL
葉菜の水分率	90 %	90 %
アルカリ抽出工程における ヨウ素回収率	100 %	100 %
分離精製工程における ヨウ素回収率	60 %	-
ICP 質量分析装置の 検出限界値*	0.048 mBq/mL	0.048 mBq/mL

※計算条件は、平成 25 年度に検討したキャベツ中 I-129 の分析条件等⁶⁾を参考とした。

※ICP 質量分析装置の検出限界値は、キャベツ 10 g 乾を TMAH アルカリ抽出-分離精製法により分析、測定して得られた 5 個の測定値から求めた標準偏差の 3 倍⁶⁾

4. まとめ

- 1) ICP 質量分析装置による I-129 の測定において測定の妨害となるスペクトル干渉について確認した。Xe-129 による干渉を低減するためにリアクションセルに導入する酸素の最適流量は、0.6 mL/min であった。

ただし、測定溶液にモリブデンが含まれる場合は、その濃度によっては、リアクションセルに酸素を導入することにより Mo-97 ($^{97}\text{MoO}_2^+$) による干渉が強く現れることから、モリブデンの化学分離又は干渉補正を行う必要がある。

- 2) Tomato Leaves 中のヨウ素の分析を TMAH アルカリ抽出-分離精製法により行ったところ、アルカリ抽出工程におけるヨウ素の抽出率は 95~100 % と良好であったが、分離精製工程における固相抽出ディスクによるヨウ素の回収率は 60~80 % 程度と低く、また安定しないことが分かった。回収率の向上に向けて分析条件の検討を行ったが、向上させることはできなかった。

また、固相抽出ディスクに捕集されずに通過液に抜け出すヨウ素は、ディスクに捕集されにくい化学形になっている可能性が示唆された。

- 3) Tomato Leaves 由来のヨウ素とヨウ化ナトリウムのヨウ素では、固相抽出ディスクによる回収率が異なることが分かった。

- 4) 2)、3)から、TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中 I-129 の分析は、固相抽出ディスクによる分離精製工程において葉菜由来のヨウ素が全量捕集されず、また、ヨウ素の化学形により回収率が異なる可能性がある。葉菜中 I-129 濃度を計算する方法として、あらかじめ葉菜にヨウ素担体 (I-127) を添加したうえで分析し、その回収率を用いて I-129 濃度を補正する方法が考えられるが、本分析法に適用した場合は過小評価となるおそれがある。

ただし、分離精製工程は、マトリクスを除去するとともにヨウ素を濃縮し検出限界値を低減できるメリットがある。本分析法は、 10^2 Bq/kg 生オーダーの I-129 の濃度レベルを把握し、お

およその線量評価を行うためには有効な手法であると考ええる。

正確な定量を行う場合は、TMAH アルカリ抽出法により分析する。この場合の葉菜中 I-129 の検出限界値は 0.24 Bq/kg 生と試算された。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26 「ヨウ素-129 分析法」(平成 8 年)
- 2) 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)
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)
- 4) 社団法人日本アイソトープ協会: アイソトープ手帳第 10 版, p93(2002)
- 5) Xiaolin. Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)
- 6) 木村芳伸、木村秀樹 : 青森県原子力センター所報, 第 8 号, 3-10(2013)

表土中ヨウ素-129 分布調査

神 俊雄 大山 勝* 武藤逸紀 木村芳伸

日本原燃(株)六ヶ所再処理工場のしゅん工を控え、本格操業前の水準把握を目的として、平成29年から令和元年にかけて、施設周辺の23地点で表土中I-129濃度調査を行った。平成21年度に実施した調査において施設影響が見られた地点では、地点状況の変化等に伴う変動はあるものの、概ね同じ水準で施設影響が残存していた。I-129/I-127原子数比は、施設影響があると考えられる地点も含め、大気圏内核実験後の環境のバックグラウンドと同程度であった。調査対象地点のうち3地点において下方移行状況の調査を行ったところ、I-129の移行状況が異なっており、土質や調査地点周辺の状況の違いによるものと考えられた。

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、平常運転においてI-129などの放射性気体廃棄物が放出されることから、青森県では環境におけるI-129の蓄積状況を把握するため、再処理工場周辺の表土中I-129の分布調査を実施している。

平成11～12年度に20地点の調査（以下、「バックグラウンド調査」という。）を実施した。平成18年3月31日から再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が開始され、使用済燃料のせん断・溶解が行われた平成20年度にかけて、 7.4×10^8 Bq程度のI-129が気体放出されたことから、その影響を把握するため、平成21年度にバックグラウンド調査と同地点の表土中I-129の分布調査（以下、「前回調査」という。）を実施した。

今般、再処理工場しゅん工前の蓄積状況を把握するため、平成29年度、平成30年度にかけて前回調査の地点状況を確認の上、再調査を実施した。さらに、令和元年度は前回調査結果と今回調査結果の比較検討結果を踏まえ、調査対象地点として適切でない地点や結果の解釈が困難と考えられる地点について代替地点を選定し、補足調査を実施した（以下、「今回調査」という。）。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点を表1及び図1に示す。基本的にバックグラウンド調査及び前回調査と同一の地点としているが、地点状況の変化等により、以下のとおり一部の地点で採取場所の変更と、代替地点の選定・追加調査を行っている。

15:豊原、11:尾駮沼南畔については、土地の改変があったことから、それぞれ近傍の15:美須々及び11:尾駮沼東畔を採取地点として選定した。

9:尾駮及び20:青森市については、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における表土採取地点と同一地点としており、土地の改変によるモニタリング計画の変更に伴い、地点を変更した。

3:出戸については、採取場所を60m程度移動した。

1:吹越、2:横浜町、10:沖付については、前回調査と今回調査の結果及び土地の利用状況を踏まえ、今後の調査におけるバックグラウンドとして活用するため、新たに1:吹越MS、2:烏帽子平、10:先端分子生物科学研究センター（以下、「10:AMBIC」という。）を代替地点（補足調

*：現青森県危機管理局原子力安全対策課

査地点)として選定した。

2.2 試料採取・前処理・分析方法

(1) 試料採取

補足調査対象3地点を含む23地点において、直径10 cm×深さ5 cmのステンレス製採土器を用いて9点で地表面から0-5 cmの土壌を採取した。

4:はまなす公園、8:弥栄平及び10':AMBICにおいては、I-129の沿直方向の移行状況を確認するため、0-5 cmに加え、5-10 cm、10-20 cmの2試料を採取した。5-10 cmについては直径10 cm×深さ5 cmのステンレス製採土器を、10-20 cmについては直径10 cm×深さ10 cmのステンレス製採土器を用いて、1地点につき1点で採取した。試料の採取に当たっては、下層の試料に上層の試料が混入しないよう留意した(図2)。

(2) 前処理

採取後の土壌から植物等の異物を取り除き、70°Cで24時間乾燥後、2 mmふるいを通過したものを分析対象試料とした。

(3) 分析

燃焼法により試料からヨウ素を分離後、ヨウ化銀の沈殿を生成し、加速器質量分析装置を利用してI-129濃度及びI-129/I-127比を求めた。また、ICP-MSにより安定ヨウ素を分析し、試料中I-127濃度を求めた。

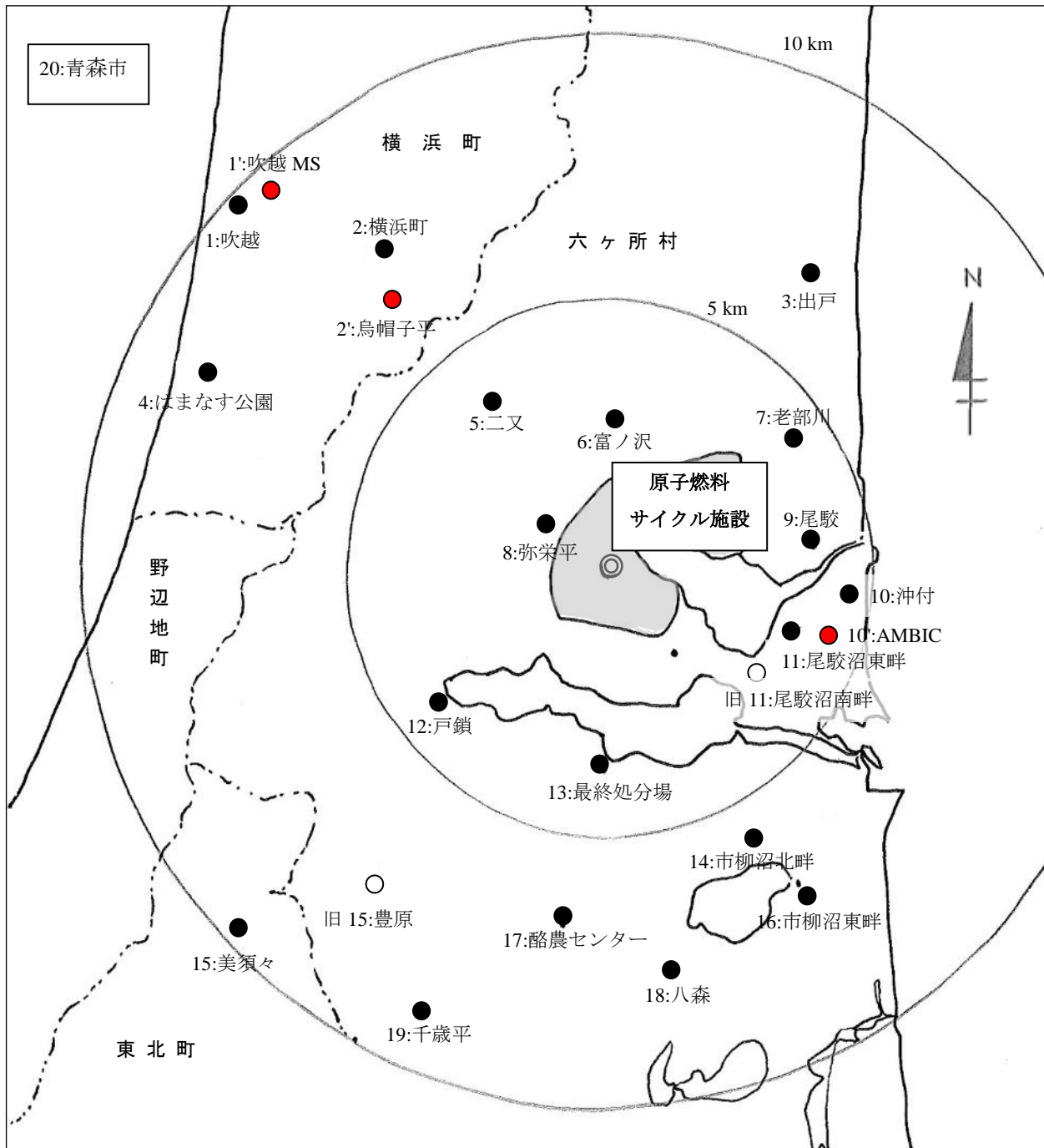


図1 調査地点図

表1 調査地点一覧

調査地点	調査年度	地点状況等
1:吹越	H12、H21、H29	個人所有畑地 キャベツ採取地点
1':吹越 MS	R1	県モニタリングステーション敷地内 1:吹越の約 600 m 西北西
2:横浜町 [※]	H11、H21、H29	個人所有牧草地 牧草採取地点
2':烏帽子平	R1	集会場（旧小学校校庭） 2:横浜町の約 700 m 南
3:出戸	H12、H21、H29	屯所裏空き地 H29：南東側に 60 m 程度採取地点を移動
4:はまなす公園	H12、H21、H30	公園内
5:二又	H12、H21、H29	旧小学校校庭隅
6:富ノ沢	H12、H21、H29	個人宅
7:老部川	H12、H21、H29	個人宅
8:弥栄平	H12、H21、H30	道路脇草地
9:尾駮 [※]	H11、H21、H29	県一般環境大気測定局裏（H11、H21） 尾駮診療所東側（H29）
10:沖付	H12、H21、H30	松葉採取地点
10':AMBIC	R1	(公財)環境科学技術研究所 敷地内草地 10:沖付の約 500 m 南南東
11:尾駮沼南畔 → 尾駮沼東畔	H12、H21 H30	旧道脇草地 尾駮沼南畔の約 600 m 北東
12:戸鎖	H12、H21、H30	小学校（跡地）校庭隅
13:最終処分場	H12、H21、H30	処分場擁壁外側
14:市柳沼北畔	H12、H21、H30	国道脇草地
15:豊原 → 美須々	H12、H21 H29	集会場（H12、H21） 美須々生涯学習センター（H29）
16:市柳沼東畔	H12、H21、H30	国道脇草地
17:酪農センター	H12、H21、H30	敷地内草地
18:八森	H12、H21、H30	集会場（跡地）
19:千歳平 [※]	H11、H21、H29	児童公園
20:青森市 [※]	H11、H21、H29	小学校跡地（H11） 青年の家跡地内敷地（H21） 動物愛護センター（H30）

※：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング対象地点

(1) 0-5 cm 試料の採取



深さ 5 cm の採土器を打ち込んだ後、採土器周辺の土壌を移植ベラで除去してから試料を回収した。

(2) 5-10 cm 試料の採取



0-5 cm の試料を採取した点に深さ 5 cm の採土器を打ち込み、採土器周辺の土壌を移植ベラで除去してから試料を回収した。

(3) 10-20 cm 試料の採取



5-10 cm の試料を採取した点に深さ 10 cm の採土器を打ち込んで試料を採取した。

図 2 鉛直分布確認用試料の採取方法

3. 結果と考察

3.1 前回調査と今回調査の結果比較

表2に前回調査と今回調査（補足調査を含まない）の調査結果を示す。また、表3に両調査結果の比を示す。これら比較結果と採取地点の状況等から、今後の調査対象地点としての適否について検討した。

表2 今回調査と前回調査の測定結果比較

調査地点	試料採取量 (kg乾)		¹²⁹ I濃度 (Bq/kg乾)		¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比		¹²⁹ I存在量 (Bq/m ²)	
	H21	H29-30	H21	H29-30	H21	H29-H30	H21	H29-H30
1: 吹越	3.83	3.31	(1.7 ± 0.06) × 10 ⁻⁴	(1.7 ± 0.045) × 10 ⁻⁴	(2.8 ± 0.12) × 10 ⁹	(2.1 ± 0.056) × 10 ⁹	(9.2 ± 0.33) × 10 ⁻³	(8.0 ± 0.21) × 10 ⁻³
2: 横浜町	2.03	1.64	(1.5 ± 0.04) × 10 ⁻⁴	(8.8 ± 0.20) × 10 ⁻⁴	(1.1 ± 0.033) × 10 ⁹	(3.5 ± 0.076) × 10 ⁹	(4.3 ± 0.12) × 10 ⁻³	(2.0 ± 0.04) × 10 ⁻²
3: 出戸 (場所移動)	5.07	2.63	(5.3 ± 0.16) × 10 ⁻⁴	(2.6 ± 0.061) × 10 ⁻⁴	(2.9 ± 0.10) × 10 ⁸	(9.2 ± 0.21) × 10 ⁹	(3.8 ± 0.11) × 10 ⁻²	(9.7 ± 0.23) × 10 ⁻³
4: はまなす公園	2.57	1.34	(2.3 ± 0.04) × 10 ⁻³	(1.9 ± 0.047) × 10 ⁻³	(2.0 ± 0.037) × 10 ⁸	(1.8 ± 0.044) × 10 ⁸	(8.4 ± 0.15) × 10 ⁻²	(3.6 ± 0.08) × 10 ⁻²
5: 二又	1.84	1.97	(2.0 ± 0.03) × 10 ⁻³	(1.9 ± 0.046) × 10 ⁻³	(9.1 ± 0.15) × 10 ⁹	(8.7 ± 0.20) × 10 ⁹	(5.2 ± 0.08) × 10 ⁻²	(5.3 ± 0.13) × 10 ⁻²
6: 雷ノ沢	1.20	1.06	(1.0 ± 0.02) × 10 ⁻³	(9.6 ± 0.21) × 10 ⁻⁴	(7.2 ± 0.16) × 10 ⁹	(6.6 ± 0.14) × 10 ⁹	(1.7 ± 0.03) × 10 ⁻²	(1.4 ± 0.03) × 10 ⁻²
7: 老部川	3.26	1.95	(3.8 ± 0.1) × 10 ⁻⁴	(6.3 ± 0.16) × 10 ⁻⁴	(5.2 ± 0.17) × 10 ⁹	(8.9 ± 0.21) × 10 ⁹	(1.8 ± 0.05) × 10 ⁻²	(1.7 ± 0.04) × 10 ⁻²
8: 弥栄平	3.52	2.34	(1.0 ± 0.02) × 10 ⁻³	(1.5 ± 0.029) × 10 ⁻³	(3.2 ± 0.080) × 10 ⁸	(3.4 ± 0.064) × 10 ⁸	(5.0 ± 0.10) × 10 ⁻²	(5.0 ± 0.10) × 10 ⁻²
9: 尾駮 (場所移動)	3.20	3.45	(7.8 ± 0.24) × 10 ⁻⁵	(6.8 ± 0.16) × 10 ⁻⁴	(1.5 ± 0.051) × 10 ⁹	(2.4 ± 0.054) × 10 ⁸	(3.5 ± 0.11) × 10 ⁻³	(3.3 ± 0.08) × 10 ⁻²
10: 沖付 (場所移動)	2.97	2.20	(1.6 ± 0.04) × 10 ⁻³	(4.2 ± 0.089) × 10 ⁻⁴	(8.0 ± 0.24) × 10 ⁸	(1.5 ± 0.032) × 10 ⁸	(6.7 ± 0.17) × 10 ⁻²	(1.3 ± 0.03) × 10 ⁻²
11: 尾駮沼南畔 → 尾駮沼東畔 (場所移動)	1.91	2.49	(1.3 ± 0.04) × 10 ⁻³	(1.7 ± 0.035) × 10 ⁻³	(6.5 ± 0.24) × 10 ⁸	(1.4 ± 0.029) × 10 ⁷	(3.5 ± 0.11) × 10 ⁻²	(6.0 ± 0.12) × 10 ⁻²
12: 戸嶺	3.41	1.99	(6.7 ± 0.12) × 10 ⁻⁴	(4.4 ± 0.10) × 10 ⁻⁴	(1.9 ± 0.038) × 10 ⁸	(2.8 ± 0.062) × 10 ⁸	(3.2 ± 0.06) × 10 ⁻²	(1.2 ± 0.02) × 10 ⁻²
13: 最終処分場	3.74	2.32	(5.4 ± 0.13) × 10 ⁻⁴	(4.9 ± 0.11) × 10 ⁻⁴	(1.4 ± 0.038) × 10 ⁸	(1.1 ± 0.022) × 10 ⁻⁸	(2.9 ± 0.07) × 10 ⁻²	(1.6 ± 0.03) × 10 ⁻²
14: 市柳沼北畔	3.90	1.88	(1.3 ± 0.05) × 10 ⁻⁴	(8.8 ± 0.18) × 10 ⁻⁴	(1.3 ± 0.061) × 10 ⁸	(4.0 ± 0.082) × 10 ⁹	(7.2 ± 0.28) × 10 ⁻³	(2.3 ± 0.04) × 10 ⁻²
15: 豊原 → 美須々 (場所移動)	1.87	1.57	(8.8 ± 0.2) × 10 ⁻⁴	(2.1 ± 0.05) × 10 ⁻³	(5.5 ± 0.14) × 10 ⁹	(7.2 ± 0.15) × 10 ⁹	(2.3 ± 0.05) × 10 ⁻²	(4.7 ± 0.11) × 10 ⁻²
16: 市柳沼東畔	1.37	1.81	(3.4 ± 0.14) × 10 ⁻⁴	(7.4 ± 0.19) × 10 ⁻⁴	(1.1 ± 0.054) × 10 ⁸	(1.1 ± 0.025) × 10 ⁸	(6.6 ± 0.27) × 10 ⁻³	(1.9 ± 0.05) × 10 ⁻²
17: 船農振興センター	2.63	1.71	(3.1 ± 0.06) × 10 ⁻⁴	(2.8 ± 0.063) × 10 ⁻⁴	(3.6 ± 0.075) × 10 ⁹	(3.1 ± 0.067) × 10 ⁹	(1.2 ± 0.02) × 10 ⁻⁴	(6.8 ± 0.15) × 10 ⁻³
18: 八森	3.12	1.07	(1.2 ± 0.03) × 10 ⁻⁴	(1.9 ± 0.047) × 10 ⁻⁴	(2.1 ± 0.055) × 10 ⁹	(1.8 ± 0.043) × 10 ⁹	(5.3 ± 0.13) × 10 ⁻³	(2.9 ± 0.07) × 10 ⁻³
19: 千歳平	4.08	2.71	(3.2 ± 0.11) × 10 ⁻⁵	(3.8 ± 0.089) × 10 ⁻⁴	(1.2 ± 0.045) × 10 ⁹	(1.4 ± 0.030) × 10 ⁸	(1.8 ± 0.06) × 10 ⁻³	(1.5 ± 0.03) × 10 ⁻²
20: 青森市 (場所移動)	1.56	1.50	(2.6 ± 0.05) × 10 ⁻⁴	(3.0 ± 0.077) × 10 ⁻⁴	(1.3 ± 0.028) × 10 ⁹	(2.2 ± 0.053) × 10 ⁹	(5.7 ± 0.11) × 10 ⁻³	(6.4 ± 0.02) × 10 ⁻³

表 3 前回調査と今回調査の結果比較

調査地点	今回調査結果 / 前回調査結果 *2					
	¹²⁹ I 濃度		¹²⁹ I/ ¹²⁷ I		¹²⁹ I 存在量(0-5 cm)	
1:吹越	1.0	± 0.04	0.75	± 0.04	0.86	± 0.16
2:横浜町	<u>5.9</u>	± 0.2	<u>3.2</u>	± 0.1	<u>4.7</u>	± 0.8
3:出戸 *1	0.49	± 0.02	0.32	± 0.01	0.25	± 0.04
4:はまなす公園	0.83	± 0.02	0.90	± 0.03	<u>0.43</u>	± 0.06
5:二又	0.95	± 0.03	0.96	± 0.03	1.0	± 0.1
6:富ノ沢	0.96	± 0.03	0.92	± 0.03	0.85	± 0.12
7:老部川	1.7	± 0.06	1.7	± 0.07	0.99	± 0.16
8:弥栄平	1.5	± 0.04	1.1	± 0.03	1.0	± 0.1
9:尾駮 *1	8.7	± 0.34	16	± 0.65	9.4	± 1.7
10:沖付	<u>0.26</u>	± 0.01	<u>0.19</u>	± 0.01	<u>0.20</u>	± 0.03
11: 尾駮沼南畔 → 尾駮沼東畔 *1	1.3	± 0.05	2.2	± 0.09	1.7	± 0.3
12:戸鎖	0.66	± 0.02	1.5	± 0.04	<u>0.38</u>	± 0.05
13:最終処分場	0.91	± 0.03	0.79	± 0.03	0.56	± 0.09
14:市柳沼北畔	<u>6.8</u>	± 0.29	<u>0.31</u>	± 0.02	<u>3.3</u>	± 0.6
15:豊原 → 美須々 *1	2.4	± 0.08	1.3	± 0.04	2.0	± 0.31
16:市柳沼東畔	<u>2.2</u>	± 0.11	1.0	± 0.05	<u>2.9</u>	± 0.6
17:酪農振興センター	0.90	± 0.03	0.86	± 0.03	0.59	± 0.08
18:八森	1.6	± 0.06	0.86	± 0.03	0.54	± 0.09
19:千歳平 *1	12	± 0.5	12	± 0.5	7.9	± 1.5
20:青森市 *1	1.2	± 0.04	1.7	± 0.05	1.1	± 0.2

*1 採取場所が異なるものを灰塗りした。

*2 採取場所が概ね同一の地点において、両調査の結果が2倍以上異なるものを枠囲いした。

(1) 調査対象として適切でない地点

10:沖付については、今回調査の試料採取時に表層土壌の攪乱や客土が確認されており、調査地点として適切でないと考えられる。

(2) 調査結果の解釈が困難と考えられる地点

1:吹越については、I-129 濃度、原子数比、面積当たりの存在量ともほぼ変わらない結果が得られているが、調査地点はモニタリング対象試料であるハクサイを栽培する畑地であり、定期的に表層土壌が攪乱される地点である。また施肥等の影響も想定されることから、本調査の目的である I-129 の沈着量把握の観点からは、結果の解釈が困難な地点であると考えられる。

2:横浜町については、I-129 濃度、原子数比とも、今回調査の測定値が高く、結果として面積当たりの存在量も増加している。同地点は牧草地であり、数年に1回の草地更新により土壌が攪乱されるほか、施肥等の影響も考えられることから、本調査の目的である I-129 の沈着量把握の観点からは、結果の解釈が困難な地点であると考えられる。

(3) 地点状況の変化により濃度等が変動したと考えられる地点

4:はまなす公園については、I-129 濃度、原子数比とも大きな変化はないが、採取した土壌量が

少ないため、存在量が減少している。図3上段に示すとおり、調査地点付近は樹木の生育が進んでおり、根等の増加により相対的に0-5 cm層の土壌量が減少したものと考えられる。

12:戸鎖については、I-129濃度がやや減少したほか、採取した土壌の量が減少しており、面積当たりの存在量が減少している。図3中段に示すとおり、旧小学校校舎や遊具が撤去されるなど、周辺状況が若干変化しており、表層土壌の攪乱があったものと推測される。

17:酪農振興センターについては、主に採取した土壌量の減少により、今回調査における面積当たりの存在量が減少しているが、図3下段に示すとおり、採取地点付近にササ等が生育しており、植物体の増加により0-5 cm層の土壌量が相対的に減少したためと考えられる。

(4) 今後の調査において注意を要する地点

14:市柳沼北畔及び16:市柳沼東畔は、いずれも道路脇の土地であるが、前回採取地点にはレキが増加していたことから採取地点を数m移動している。除雪の影響が若干あると考えられる。

3.2 補足調査地点の選定

今回調査の結果を踏まえ、調査地点として適切でないと考えられる1地点(10:沖付)及び調査結果の解釈が困難と考えられる2地点(1:吹越、2:横浜町)の代替地点として、3地点(1':吹越MS、2':烏帽子平、10':AMBIC)を選定した。

なお、10:沖付は前回調査時にアクティブ試験の影響が認められていたことから、当初は0-5 cmの表土に加え、5-10 cm、10-20 cmの試料を採取し、移行の状況を確認することとしていたが、表層土壌の攪乱や客土が疑われることから、下層の試料採取は行っていない。

一方、10':AMBICは平成19年度に完成しており、それに先立つ敷地の造成は客土を入れて行われていることから、アクティブ試験における使用済燃料のせん断・溶解により放出されたI-129の影響とその移行状況が確認可能であると期待されることから、0-5 cmの表土に加え、5-10 cm、10-20 cmの試料を採取することとした。



4:はまなす公園 (H21)



4:はまなす公園 (H30)



12:戸鎖 (H21)



12:戸鎖 (H30)



17:酪農振興センター (H21)



17:酪農振興センター (H30)

図3 前回調査時との地点状況比較 (抜粋)

3.3 結果と考察

(1) 過去の調査結果との比較

調査結果を表4、調査ごとの測定値の範囲を図4、5、全体の I-129 濃度（採取深度 0-5 cm）と I-129/I-127 原子数比の関係を図6に示す。I-129 濃度（採取深度 0-5 cm）の範囲は、バックグラウンド調査で $<2.0 \times 10^{-4} \sim 1.4 \times 10^{-3}$ Bq/kg 乾、前回調査で $3.2 \times 10^{-5} \sim 2.3 \times 10^{-3}$ Bq/kg 乾、今回調査で $1.7 \times 10^{-4} \sim 2.1 \times 10^{-3}$ Bq/kg 乾であり、I-129/I-127 原子数比（採取深度 0-5 cm）は、バックグラウンド調査が $9.6 \times 10^{-10} \sim 1.2 \times 10^{-8}$ 、前回調査が $1.1 \times 10^{-9} \sim 8.0 \times 10^{-8}$ 、今回調査が $1.8 \times 10^{-9} \sim 1.4 \times 10^{-7}$ であった。

今回調査対象試料の I-129/I-127 原子数比は、アクティブ試験開始後に実施した前回調査と同程度であり、バックグラウンド調査より高めであることから、せん断・溶解が行われてから 10 年程度経過している今回調査においても、アクティブ試験の影響が残留しているものと考えられる。

大気圏内核実験後の環境における I-129/I-127 原子数比としては、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ との報告がある^りが、前回調査及び今回調査の結果は、アクティブ試験の影響があると考えられる地点も含め、この報告と同程度であった。

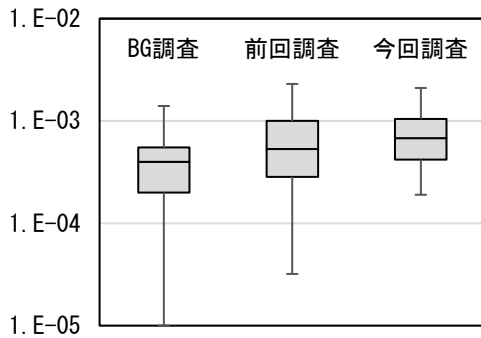


図4 ^{129}I 濃度の範囲比較

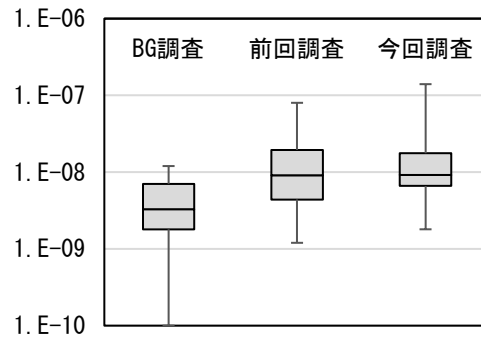


図5 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ の範囲比較

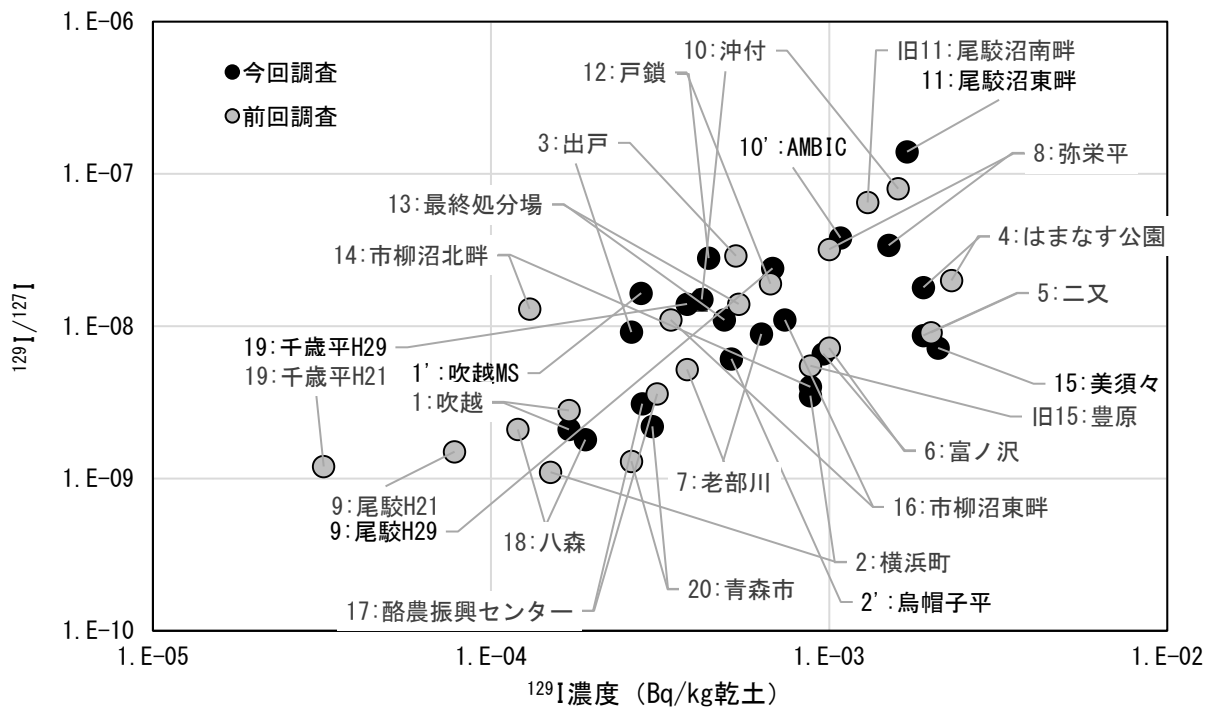


図6 表土中 ^{129}I 濃度と $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比の関係

表 4 表土中 ^{129}I 濃度と原子数比

調査地点	採取深度 (cm)	^{129}I 濃度 (Bq/kg乾)			$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比		
		H11-12	H21	H29-R1	H11-12	H21	H29-R1
1: 吹越	0~5	$(2.0 \pm 1.0) \times 10^{-4}$	$(1.7 \pm 0.06) \times 10^{-4}$	$(1.7 \pm 0.045) \times 10^{-4}$	$(3.2 \pm 1.6) \times 10^{-9}$	$(2.8 \pm 0.12) \times 10^{-9}$	$(2.1 \pm 0.056) \times 10^{-9}$
1': 吹越MS	0~5	—	—	$(2.8 \pm 0.078) \times 10^{-4}$	—	—	$(1.7 \pm 0.044) \times 10^{-8}$
2: 横浜町	0~5	$(3.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(1.5 \pm 0.04) \times 10^{-4}$	$(8.8 \pm 0.20) \times 10^{-4}$	$(9.6 \pm 6.4) \times 10^{-10}$	$(1.1 \pm 0.033) \times 10^{-9}$	$(3.5 \pm 0.076) \times 10^{-9}$
2': 烏帽子平	0~5	—	—	$(5.1 \pm 0.11) \times 10^{-4}$	—	—	$(6.1 \pm 0.13) \times 10^{-9}$
3: 出戸 (場所移動)	0~5	$< 2 \times 10^{-4}$	$(5.3 \pm 0.16) \times 10^{-4}$	$(2.6 \pm 0.061) \times 10^{-4}$	—	$(2.9 \pm 0.10) \times 10^{-8}$	$(9.2 \pm 0.21) \times 10^{-9}$
4: はまなす公園	0~5	$(3.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(2.3 \pm 0.04) \times 10^{-3}$	$(1.9 \pm 0.047) \times 10^{-3}$	$(5.9 \pm 3.9) \times 10^{-9}$	$(2.0 \pm 0.037) \times 10^{-8}$	$(1.8 \pm 0.040) \times 10^{-8}$
	5~10	—	—	$(3.6 \pm 0.075) \times 10^{-4}$	—	—	$(3.0 \pm 0.062) \times 10^{-9}$
	10~20	—	—	$(4.3 \pm 0.16) \times 10^{-5}$	—	—	$(5.0 \pm 0.19) \times 10^{-10}$
5: 二又	0~5	$(4.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(2.0 \pm 0.03) \times 10^{-3}$	$(1.9 \pm 0.046) \times 10^{-3}$	$(4.6 \pm 2.3) \times 10^{-9}$	$(9.1 \pm 0.15) \times 10^{-9}$	$(8.7 \pm 0.20) \times 10^{-9}$
6: 富ノ沢	0~5	$(7.0 \pm 1.0) \times 10^{-4}$	$(1.0 \pm 0.02) \times 10^{-3}$	$(9.6 \pm 0.21) \times 10^{-4}$	$(4.6 \pm 0.66) \times 10^{-10}$	$(7.2 \pm 0.16) \times 10^{-9}$	$(6.6 \pm 0.14) \times 10^{-9}$
7: 老部川	0~5	$(2.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(3.8 \pm 0.1) \times 10^{-4}$	$(6.3 \pm 0.16) \times 10^{-4}$	$(2.2 \pm 2.2) \times 10^{-9}$	$(5.2 \pm 0.17) \times 10^{-9}$	$(8.9 \pm 0.21) \times 10^{-9}$
8: 弥栄平	0~5	$(2.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(1.0 \pm 0.02) \times 10^{-3}$	$(1.5 \pm 0.029) \times 10^{-3}$	$(7.3 \pm 7.3) \times 10^{-9}$	$(3.2 \pm 0.080) \times 10^{-8}$	$(3.4 \pm 0.064) \times 10^{-8}$
	5~10	—	—	$(1.9 \pm 0.12) \times 10^{-5}$	—	—	$(9.5 \pm 0.60) \times 10^{-10}$
	10~20	—	—	$(6.4 \pm 0.92) \times 10^{-6}$	—	—	$(2.9 \pm 0.41) \times 10^{-10}$
9: 尾駮 (場所移動)	0~5	$(7.0 \pm 1.0) \times 10^{-4}$	$(7.8 \pm 0.24) \times 10^{-5}$	$(6.8 \pm 0.16) \times 10^{-4}$	$(8.0 \pm 1.3) \times 10^{-9}$	$(1.5 \pm 0.051) \times 10^{-9}$	$(2.4 \pm 0.054) \times 10^{-8}$
10: 沖付 (場所移動)	0~5	$(4.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(1.6 \pm 0.04) \times 10^{-3}$	$(4.2 \pm 0.089) \times 10^{-4}$	$(1.1 \pm 0.54) \times 10^{-8}$	$(8.0 \pm 0.24) \times 10^{-8}$	$(1.5 \pm 0.032) \times 10^{-8}$
10': AMBIC	0~5	—	—	$(1.1 \pm 0.0023) \times 10^{-3}$	—	—	$(3.8 \pm 0.074) \times 10^{-8}$
	5~10	—	—	$(1.8 \pm 0.043) \times 10^{-4}$	—	—	$(6.7 \pm 0.15) \times 10^{-9}$
	10~20	—	—	$(2.5 \pm 0.016) \times 10^{-5}$	—	—	$(1.1 \pm 0.070) \times 10^{-9}$
11: 尾駮沼南畔 → 尾駮沼東畔 (場所移動)	0~5	$(5.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(1.3 \pm 0.04) \times 10^{-3}$	$(1.7 \pm 0.035) \times 10^{-3}$	$(2.1 \pm 0.84) \times 10^{-9}$	$(6.5 \pm 0.24) \times 10^{-8}$	$(1.4 \pm 0.029) \times 10^{-7}$
12: 戸鎖	0~5	$(4.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(6.7 \pm 0.12) \times 10^{-4}$	$(4.4 \pm 0.10) \times 10^{-4}$	$(1.2 \pm 0.61) \times 10^{-8}$	$(1.9 \pm 0.038) \times 10^{-8}$	$(2.8 \pm 0.062) \times 10^{-8}$
13: 最終処分場	0~5	$(1.4 \pm 0.2) \times 10^{-3}$	$(5.4 \pm 0.13) \times 10^{-4}$	$(4.9 \pm 0.11) \times 10^{-4}$	$(8.8 \pm 1.3) \times 10^{-9}$	$(1.4 \pm 0.038) \times 10^{-8}$	$(1.1 \pm 0.022) \times 10^{-8}$
14: 市柳沼北畔	0~5	$(6.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(1.3 \pm 0.05) \times 10^{-4}$	$(8.8 \pm 0.18) \times 10^{-4}$	$(3.3 \pm 1.1) \times 10^{-9}$	$(1.3 \pm 0.061) \times 10^{-8}$	$(4.0 \pm 0.082) \times 10^{-9}$
15: 豊原 → 美須々 (場所移動)	0~5	$(1.1 \pm 4.0) \times 10^{-3}$	$(8.8 \pm 0.2) \times 10^{-4}$	$(2.1 \pm 0.05) \times 10^{-3}$	$(3.0 \pm 1.1) \times 10^{-9}$	$(5.5 \pm 0.14) \times 10^{-9}$	$(7.2 \pm 0.15) \times 10^{-9}$
16: 市柳沼東畔	0~5	$< 2 \times 10^{-4}$	$(3.4 \pm 0.14) \times 10^{-4}$	$(7.4 \pm 0.19) \times 10^{-4}$	—	$(1.1 \pm 0.054) \times 10^{-8}$	$(1.1 \pm 0.025) \times 10^{-8}$
17: 酪農振興センター	0~5	$(4.0 \pm 2.0) \times 10^{-4}$	$(3.1 \pm 0.06) \times 10^{-4}$	$(2.8 \pm 0.063) \times 10^{-4}$	$(1.5 \pm 0.77) \times 10^{-9}$	$(3.6 \pm 0.075) \times 10^{-9}$	$(3.1 \pm 0.067) \times 10^{-9}$
18: 八森	0~5	$< 2 \times 10^{-4}$	$(1.2 \pm 0.03) \times 10^{-4}$	$(1.9 \pm 0.047) \times 10^{-4}$	—	$(2.1 \pm 0.055) \times 10^{-9}$	$(1.8 \pm 0.043) \times 10^{-9}$
19: 千歳平	0~5	$(2.0 \pm 1.0) \times 10^{-4}$	$(3.2 \pm 0.11) \times 10^{-5}$	$(3.8 \pm 0.089) \times 10^{-4}$	$(6.8 \pm 3.4) \times 10^{-9}$	$(1.2 \pm 0.045) \times 10^{-9}$	$(1.4 \pm 0.030) \times 10^{-8}$
20: 青森市 (場所移動)	0~5	$< 2 \times 10^{-4}$	$(2.6 \pm 0.05) \times 10^{-4}$	$(3.0 \pm 0.077) \times 10^{-4}$	—	$(1.3 \pm 0.028) \times 10^{-9}$	$(2.2 \pm 0.053) \times 10^{-9}$

平成11~12年度調査は中性子放射化学分析法、平成21年度調査および平成29年度~令和元年度調査は加速器質量分析法により ^{129}I を定量した。

(2) 再処理工場のアクティブ試験の影響

アクティブ試験後の前回調査、今回調査の I-129/I-127 原子数比の範囲は、平成 11～12 年度調査に比べて高めの傾向となっており、特に高い地点は、4:はまなす公園、8:弥栄平、10:沖付、10':AMBIC 及び 11:尾駈沼南畔（東畔）であった。

4:はまなす公園、8:弥栄平は再処理工場から見て西北西の方位に、10:沖付、10':AMBIC、11:尾駈沼南畔（東畔）は南東～東南東の方位にあり、同工場の主排気筒の地上 150 m における気象観測結果によると、年間の主な風向の風下に位置している。図 7 及び図 8 に示すように気体廃棄物における I-129 放出量が特に多い時期（平成 18 年 10 月、平成 19 年 9 月、平成 19 年 12 月、平成 20 年 4 月、平成 20 年 9 月）においても同様の傾向が見られることから、同工場から放出された気体廃棄物の影響と考えられる²⁾。各地点の表土中 I-129 濃度を調査地点図上に記載したものを図 9 に示す。

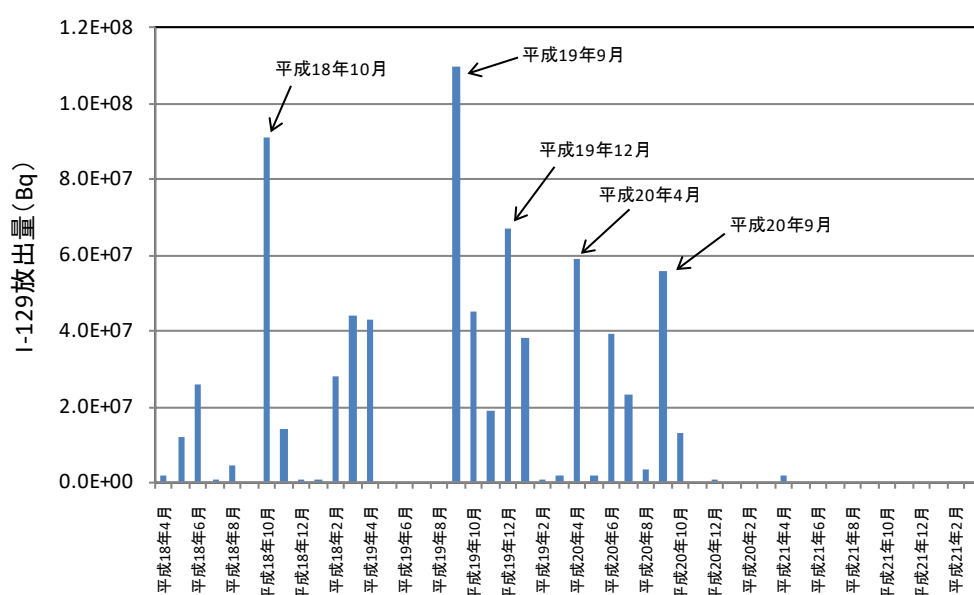


図 7 再処理工場の気体廃棄物中 I-129 放出量の推移 (H18～H21)

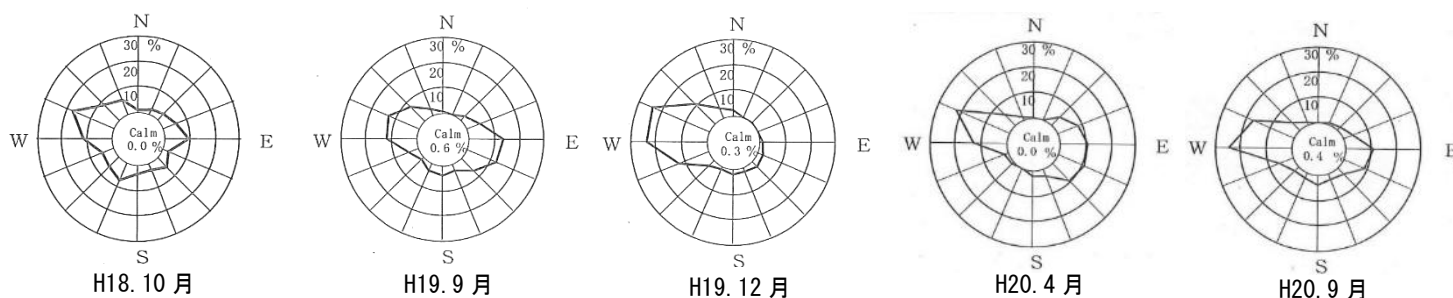


図 8 再処理工場気象観測結果における風配図（地上 150m）

(3) 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

前回調査及び今回調査の間となる平成 23 年 3 月 11 日に福島第一原子力発電所事故が発生し、六ヶ所村尾駈において事故により放出された I-129 が、平成 23 年 3 月から 5 月の降下物試料中に検出されており、当該期間の I-129 沈着速度は $2.7\sim 5.2\times 10^6$ Bq/m²d とされている³⁾。事故影響が検出された期間の I-129 降下量は 3.3×10^4 Bq/m²程度と推定されるが、この値は本調査における各地点の表土中 I-129 存在量と比較すると 0.6～11%であった。

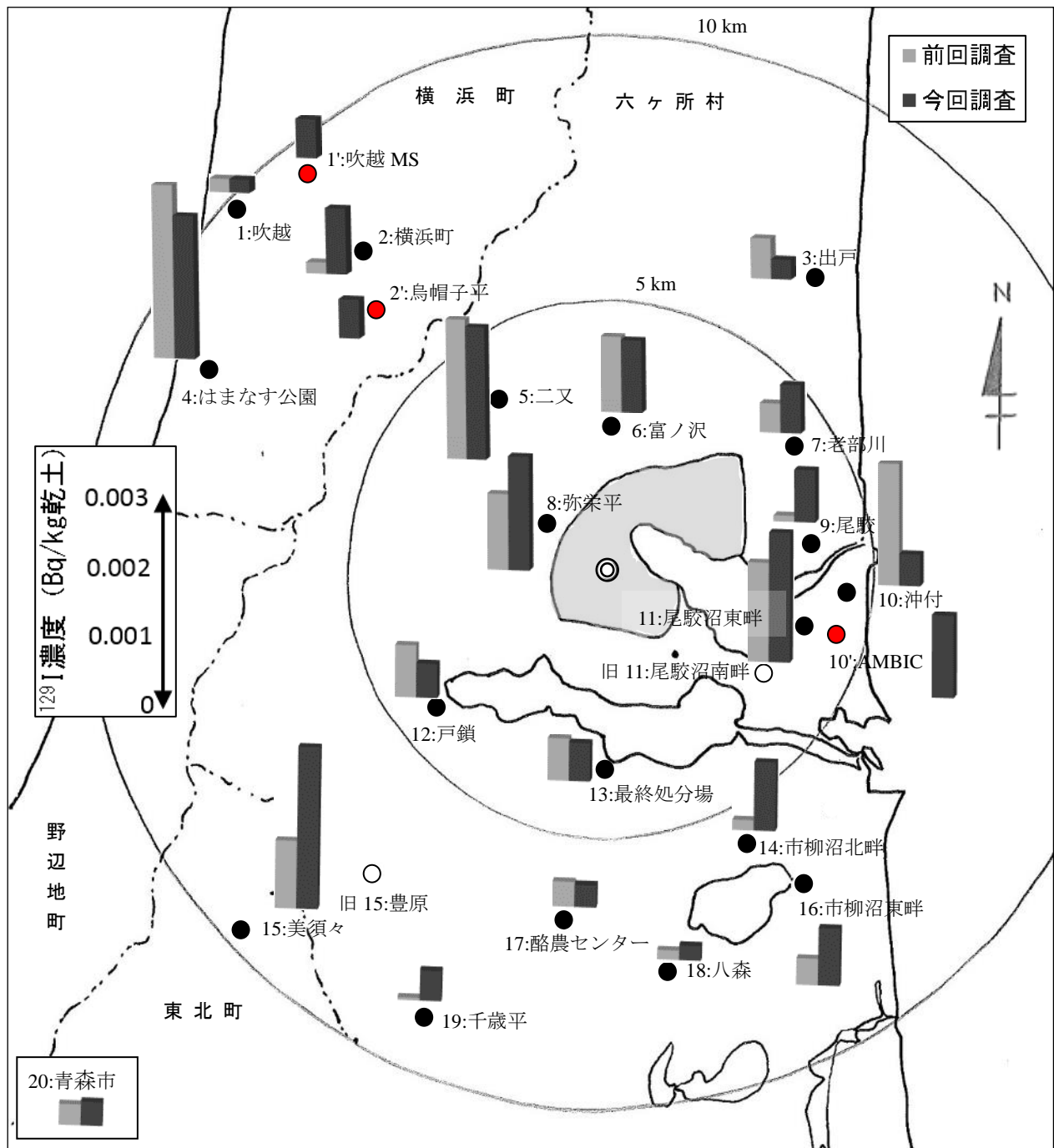


図9 0~5 cm 土壤中 ^{129}I 濃度 (Bq/kg 乾土)

(4) 鉛直方向への移行状況

I-129 濃度と I-129/I-127 同位体比の鉛直分布の測定結果を図 10 に示す。今回調査の 4:はまなす公園における各層の I-129 存在比は 0-20 cm 濃度の合計に対し、0-5 cm が 82.5%、5-10 cm が 15.6%、10-20 cm が 1.9%であり、前回調査で表層に蓄積したアクティブ試験由来の I-129 が鉛直方向に移行していると考えられる。また今回調査の 0-20 cm 濃度を合計した値は 2.3×10^{-3} Bq/kg 乾であり、前回調査の 0-5 cm 濃度 2.3×10^{-3} Bq/kg 乾とほぼ等しかった。また、補足調査地点である 10': AMBIC においても、4:はまなす公園と同様の深度分布が見られており、敷地造成後に地表面に降下した I-129 が移行している状況が確認された。

地点 8: 弥栄平における各層の I-129 存在比は 0-20 cm 濃度の合計に対し、0-5 cm が 98.3%、

5-10 cm が 1.3%、10-20 cm が 0.4% であり、鉛直方向への移行はほとんど見られなかった。なお今回調査の合計濃度 1.5×10^{-3} Bq/kg 乾と前回調査の濃度 1.0×10^{-3} Bq/kg 乾の違いについては、図 3 に示したとおり当該地点の I-129/I-127 原子数比が今回調査と前回調査で同程度であるため、採取場所における濃度のばらつきによるものと考えられる。

I-129/I-127 同位体比についても I-129 濃度と同様に、いずれの地点においても上層が高く下層が低い傾向を示しており、アクティブ試験由来の I-129 の移行状況が認められる。

図 11 に 4:はまなす公園、8:弥栄平及び 10':AMBIC の調査地点周辺の状況と試料の外観を示す。4:はまなす公園は現在使用されておらず、草木が生い茂った状態であった。10':AMBIC は定期的に草刈が行われている。8:弥栄平は、山を切り崩して整地した場所であり、その後は植生の伐採のほかには手を加えられていない状態であるとのことであった。4:はまなす公園及び 10':AMBIC の試料は黒褐色の黒ボク土で、植物の根などの有機物が多く含まれる。一方、8:弥栄平の試料は黄褐色の粘土質土壌であった。これらの地点における土質の違いが、I-129 の鉛直方向への移行状況に影響しているものと考えられる。

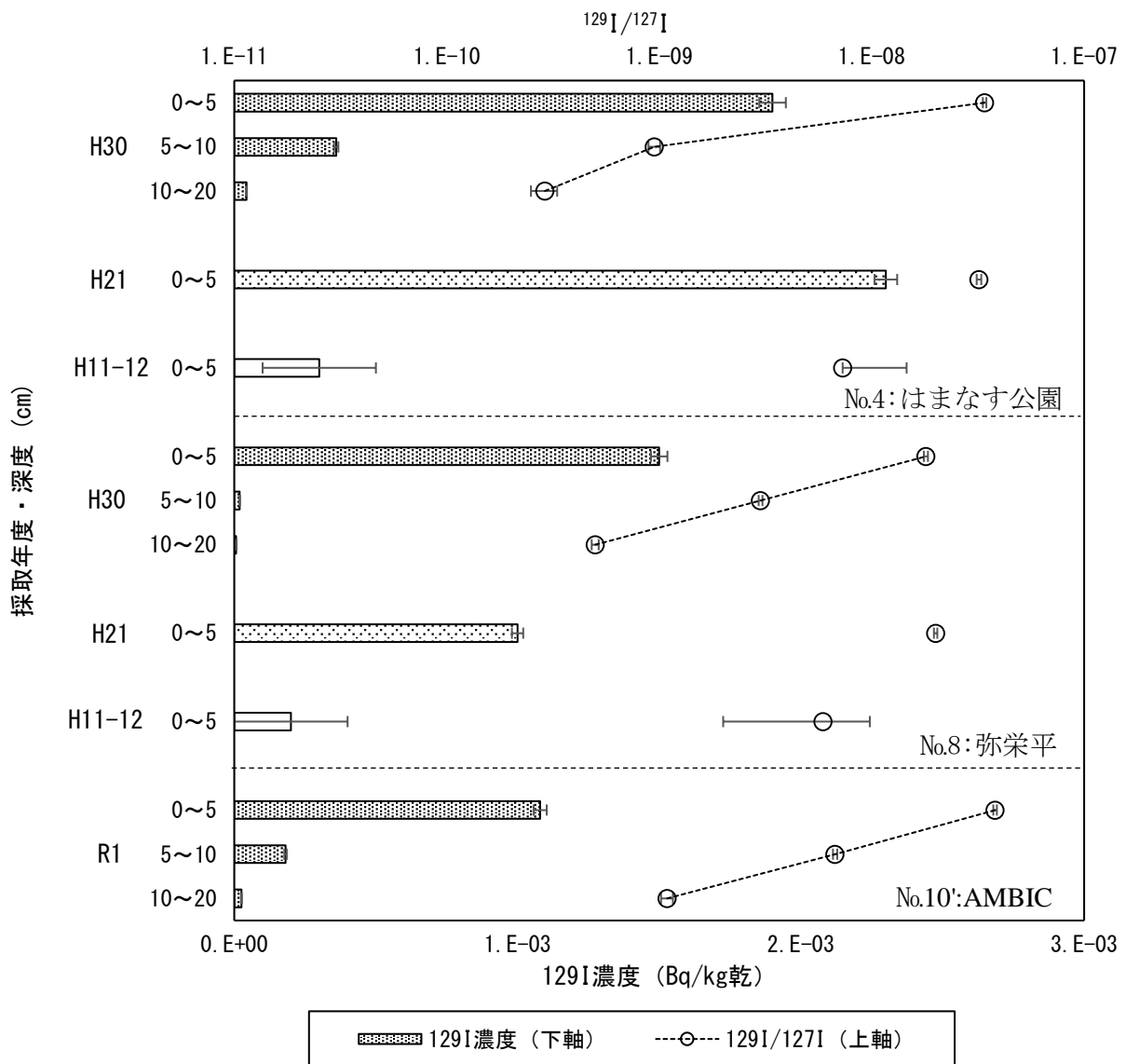


図10 表土中 ^{129}I 濃度と同位体比の鉛直分布

4:はまなす公園



採取地点周辺 (H30)



0-5 cm 試料

8:弥栄平



採取地点周辺 (H30)



0-5 cm 試料

10':AMBIC



採取地点周辺 (R1)



0-5 cm 試料

図 11 採取地点周辺の状況と試料の外観

4. まとめ

- 1) 日本原燃(株)六ヶ所再処理工場のしゅん工を控え、本格操業前の水準把握を目的として、施設周辺の 20 地点で調査を行った。また、前回調査からの地点状況の変化や土地の利用状況を踏まえ、2 地点で地点変更を行ったほか、3 地点の代替地点を選定し、補足調査を実施した。
- 2) 前回調査において施設影響が見られた地点では、地点状況の変化等に伴う変動はあるものの、概ね同じ水準で施設影響が残存していた。なお、I-129/I-127 原子数比は、施設影響があると考えられる地点も含め、大気圏内核実験後の環境のバックグラウンドと同程度であった。
- 3) 4:はまなす公園及び 10:AMBIC では I-129 の鉛直方向への移行が見られたが、8:弥栄平では移行がほとんど見られなかった。土質や調査地点周辺の状況の違いにより I-129 の移行状況が異なると考えられる。

文 献

- 1) Xiaolin. Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)
- 2) 青森県：表土中ヨウ素-129 分布調査 青森県原子力センター所報 第 5 号,35-42(2010)
- 3) Hidenao Hasegawa, Hideki Kakiuchi, Naofumi Akita, Yoshihito Ohtsuka, Shun'ichi Hisamatsu : Regional and global contributions of anthropogenic iodine-129 in monthly deposition samples collected in North East Japan between 2006 and 2015, *Journal of Environmental Radioactivity*, **171**, 65-73 (2017)

(参考) 試料の採取実績と性状

調査地点	採取深度 (cm)	試料採取日	湿土密度 (kg/m ³)	水分率 (%)	歩留り (%)	強熱減 量(%)	土色	土質
1:吹越	0-5	H29.11.10	1.14×10 ³	15.6	96.9	7.0	黒褐色	黒ボク土
1':吹越 MS	0-5	R1.5.27	2.20×10 ³	7.7	99.2	7.2	褐色	黒ボク土
2:横浜町	0-5	H29.7.5	9.50×10 ²	46.0	90.4	30.9	褐色	黒ボク土
2':烏帽子自然の家	0-5	R1.5.24	1.06×10 ³	28.5	99.9	14.3	褐色～黒 褐色	黒ボク土
3:出戸	0-5	H29.11.16	1.12×10 ³	25.1	89.2	6.8	褐色	砂
	0-5		7.49×10 ²	33.7	76.6	17.4	黒褐色	黒ボク土
4:はまなす公園	5-10	H30.5.21	1.26×10 ³	27.4	100.0	9.7	黒褐色	黒ボク土
	10-20		1.60×10 ³	19.1	100.0	6.1	黒褐色	黒ボク土
5:二又	0-5	H29.11.16	1.04×10 ³	40.2	90.1	25.5	褐色	黒ボク土
6:富ノ沢	0-5	H29.11.16	8.77×10 ²	53.2	73.4	34.4	黒褐色	黒ボク土
7:老部川	0-5	H29.11.16	8.50×10 ²	32.4	96.1	12.8	褐色	黒ボク土
	0-5		1.23×10 ³	34.9	82.8	11.1	黄褐色	粘土
8:弥栄平	5-10	H30.5.21	1.77×10 ³	33.8	100.0	9.7	黄褐色	粘土
	10-20		1.62×10 ³	33.2	100.0	9.5	黄褐色	粘土
9:尾駁	0-5	H29.7.14	1.02×10 ³	2.8	98.9	4.7	褐色	砂
10:沖付	0-5	H30.5.11	1.00×10 ³	15.6	73.7	5.1	黄褐色、 褐色	黒ボク土、 レキ
	0-5		1.01×10 ³	14.4	98.2	6.1	黒褐色	黒ボク土
10':AMBIC	5-10	R1.5.24	1.32×10 ³	15.6	98.4	4.2	褐色	黒ボク土
	10-20		1.91×10 ³	14.2	99.3	3.5	褐色	黒ボク土
11:尾駁沼東畔	0-5	H30.5.11	9.06×10 ²	19.4	96.4	7.6	黒褐色	黒ボク土
12:戸鎖	0-5	H30.5.24	8.88×10 ²	24.8	84.1	5.9	褐色	黒ボク土
13:最終処分場	0-5	H30.5.24	9.78×10 ²	21.0	84.8	7.7	褐色	レキ
14:市柳沼北畔	0-5	H30.5.2	8.93×10 ²	30.3	85.4	26.9	褐色	黒ボク土
15:美須々	0-5	H29.11.10	1.09×10 ³	55.0	90.5	55.5	黒褐色	黒ボク土
16:市柳沼東畔	0-5	H30.5.2	8.63×10 ²	33.7	89.6	18.3	黒褐色	黒ボク土
17:酪農センター	0-5	H30.5.24	9.89×10 ²	29.5	69.3	13.3	赤褐色	粘土
18:八森	0-5	H30.5.2	8.73×10 ²	37.5	55.4	15.5	黒褐色	レキ
19:千歳平	0-5	H29.7.10	1.00×10 ³	18.4	93.8	7.7	黒褐色	黒ボク土
20:青森市	0-5	H29.7.13	8.05×10 ²	32.2	77.9	23.2	黒褐色	黒ボク土

II 技 術 報 告

蛍光ガラス線量計の感度低下について

赤石 新 松倉祐介*¹ 鈴木将文

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の環境放射線等モニタリングにおいて、蛍光ガラス線量計（以下「RPLD」という。）による積算線量測定を四半期ごとにモニタリング対象地域の41地点で測定している。RPLDでの測定は平成15年度に開始しているが、平成23年度第1四半期の測定結果に低めの傾向が見られたことから、RPLD素子の感度試験を行ったところ、環境に配置するRPLD（以下「環境用RPLD」という。）及び屋内でデシケータ内に保管している校正用のRPLD（以下「校正用RPLD」という。）の感度の低下が確認された。さらに、環境用RPLDの感度が校正用RPLDの感度と比較してより低下する傾向が見られた。

平成29年度の既報¹⁾では、これらの感度の推移について、平成16年度に購入し、平成24年度から平成28年度までモニタリングに使用していたRPLD（以下「H16RPLD」という。）及び平成27年度に購入し、平成29年度からモニタリングに使用しているRPLD（以下「H27RPLD」という。）を用いて調査を行い、その調査結果から、使用年数の経過につれて感度が低下するとともに、環境用RPLDと校正用RPLDの感度に差が出てくることが確認された。また、文部科学省放射能測定法シリーズ「蛍光ガラス線量計による積算線量測定法」（平成14年改訂）（以下「測定法シリーズ」という。）によると、RPLDは高温多湿により、素子表面の状態が変化し、測定値に影響を及ぼす可能性があるとされていることから、RPLDの梱包材による防湿性の違いについても調査を行い、ポリチューブとアルミニウム袋ではアルミニウム袋の方が防湿性が高いことが確認された。

積算線量の測定は、環境用RPLDと校正用RPLDの感度差が生じないことを前提としており、この感度差は積算線量の測定値に影響を及ぼすことから、これらの調査の結果を踏まえ、積算線量測定におけるRPLDの運用を以下のとおり見直した。

- ・RPLDの使用期間については10年から5年とし、購入時に感度試験を行い、購入の翌年から並行測定に1年、モニタリングに4年使用する。
- ・環境用RPLDを環境配置する際の梱包材をポリチューブからアルミニウム袋に変更する。
- ・年1回、全RPLDに対して感度試験を実施し、RPLD毎の感度を把握した上で、校正用RPLDとの感度比が0.95未満のRPLDについては予備品との交換を行う。

本報ではH16RPLDのその後の感度推移について継続調査した結果と、新たに梱包材の違いによる感度への影響を調査した結果についてとりまとめ、見直し後の運用の妥当性について確認を行った。

*1：現青森県危機管理局原子力安全対策課

2. RPLDの使用状況

RPLDは、環境に配置する環境用RPLD、測定値を算出するための校正式を作成する校正用RPLD及びクロスチェック、調査研究、予備等に使用するその他のRPLDと、それぞれの用途を定め使用している。

環境用RPLDは奇数四半期設置用と偶数四半期設置用の2グループに分け、該当四半期にま
ず400℃、1時間の加熱による再生処理を行い、ガラス線量計リーダに初期値を登録した後、約
91日間環境に配置する。回収後は70℃、1時間の加熱によるビルドアップを行い、ガラス線量
計リーダで線量を読み取る。環境に配置されない期間は屋内のデシケータで保管している。対し
て、校正用RPLDは四半期ごとに400℃、1時間の加熱による再生処理を行い、ガラス線量計リ
ーダに初期値を登録した後、校正式を作成するために線量照射（4つのグループに分け、Cs-137
線源を用いて4点（約20μGy、約40μGy、約90μGy、約170μGy））を行う。照射後は70℃、1
時間の加熱によるビルドアップを行い、ガラス線量計リーダで線量を読み取る。使用しない期間
は屋内のデシケータで保管している。

また、RPLDを環境に設置する際、平成28年度まではRPLDをポリチューブで梱包し、平成29
年度以降はRPLDをアルミニウム袋で梱包している。

3. 調査方法

3.1 試験概要

環境用RPLDと校正用RPLDの使用状況の違いによる感度への影響を確認することと環境に
設置する際の梱包材の違いによる感度への影響を確認することを目的として、図1に示す①～④
のRPLDを使用し、測定法シリーズに基づき、3.1.1及び3.1.2のとおり感度試験を実施した。こ
こでの感度は以下の式で算出した。

$$\text{感度} = \frac{\text{照射後のRPLD読取値}}{\text{照射線量}}$$

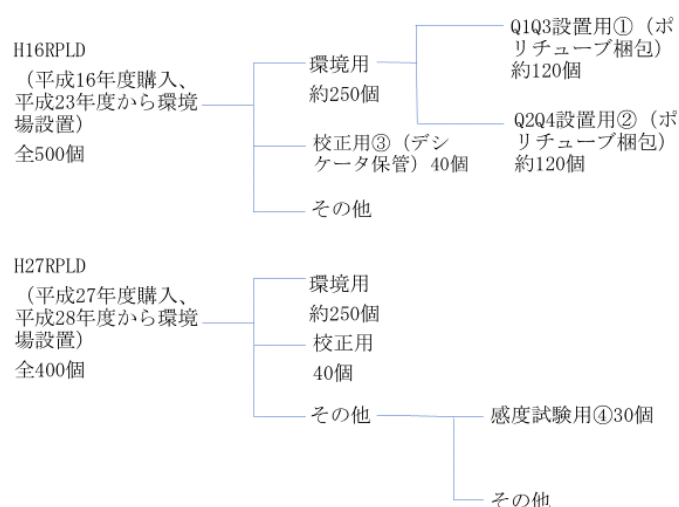


図1 試験に使用したRPLDの使用状況

3.1.1 環境用 RPLD と校正用 RPLD の比較試験

H16RPLD のうち、奇数四半期設置用の環境用 RPLD、偶数四半期設置用の環境用 RPLD 及び校正用 RPLD に対して、年 1 回（校正用 RPLD については年 2 回）の頻度で感度試験を行い、環境用 RPLD と校正用 RPLD の経年的な感度変化の違いを調査した。環境用 RPLD は環境場への設置時はポリチューブで梱包した。

3.1.2 保管条件の違いによる比較試験

H27RPLD のうち、モニタリングに使用する環境用 RPLD 及び校正用 RPLD とは別に、本試験用に年間を通して以下の 3 種類の条件で使用する RPLD を用意し、これらに対して四半期ごとに感度試験を行い、3 種類の条件における感度変化の違いを調査した。

- ・ポリチューブに梱包し環境に設置する RPLD
- ・アルミニウム袋に梱包し環境に設置する RPLD
- ・梱包せずデシケータ内に設置する RPLD

3.2 測定装置

- ・ H16RPLD（AGC テクノグラス株式会社、SC-1、ロット番号 FD7040825-1）
- ・ H27RPLD（AGC テクノグラス株式会社、SC-1、ロット番号 FD7131212-2）
- ・ ガラス線量計リーダ（AGC テクノグラス株式会社、FGD201S、固体レーザー式）

3.3 試験方法

- (1) 対象とする RPLD について、400°C、1 時間の加熱による再生処理を行う。
- (2) ガラス線量計リーダで、再生処理直後の RPLD の読み取りを行い、初期値を登録する。
- (3) 初期登録した RPLD を鉛運搬容器に入れ、環境保健センター（青森県原子力センター青森市駐在）に運搬し、照射装置（Cs-137 線源 2.22 GBq）を用いて、約 100 μ Gy の照射を行う。
- (4) 照射した RPLD を原子力センターに運搬後、70°C、1 時間の加熱によるビルドアップを行い、室温まで放冷する。
- (5) 放冷後、ガラス線量計リーダで読み取り（5 回連続読み取りによる平均）を行い、感度を算出する。

4. 調査結果

4.1 環境用 RPLD と校正用 RPLD の比較試験結果

H16RPLD のうち、奇数四半期設置用の環境用 RPLD、偶数四半期設置用の環境用 RPLD 及び校正用 RPLD について感度を算出した結果を図 2 及び図 3 に示す。奇数四半期設置用の環境用 RPLD 及び偶数四半期設置用の環境用 RPLD のいずれについても、購入直後の平成 17 年度及び環境への配置開始直前の平成 22 年度は、環境用 RPLD と校正用 RPLD の感度に大きな差はなく、どちらも 1 付近の値であった。その後、両者の感度には平成 29 年度 1 回目の試験まで低下傾向が見られ、かつ感度差も大きくなっているが、平成 29 年度 2 回目の試験で感度の上昇が見られた。また、環境用 RPLD と校正用 RPLD の感度に対して t 検定（有意水準 5%）を実施したところ、平成 23 年度以降、全ての年度で有意差が見られた。

感度の上昇については原因調査を行い、ガラス線量計リーダの状態の変化が要因として推察されたが、原因の特定には至らなかった。

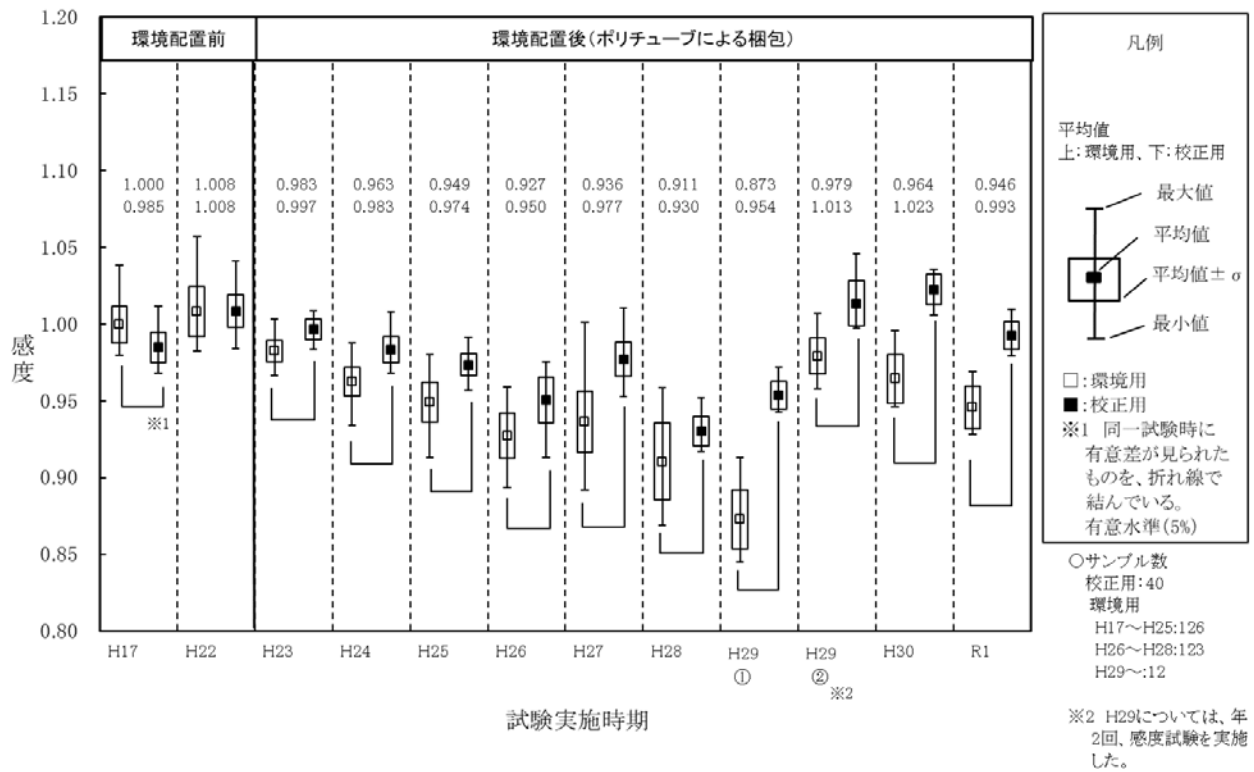


図 2 H16RPLD (環境用 RPLD① (Q1Q3 設置用) 及び校正用) の感度推移

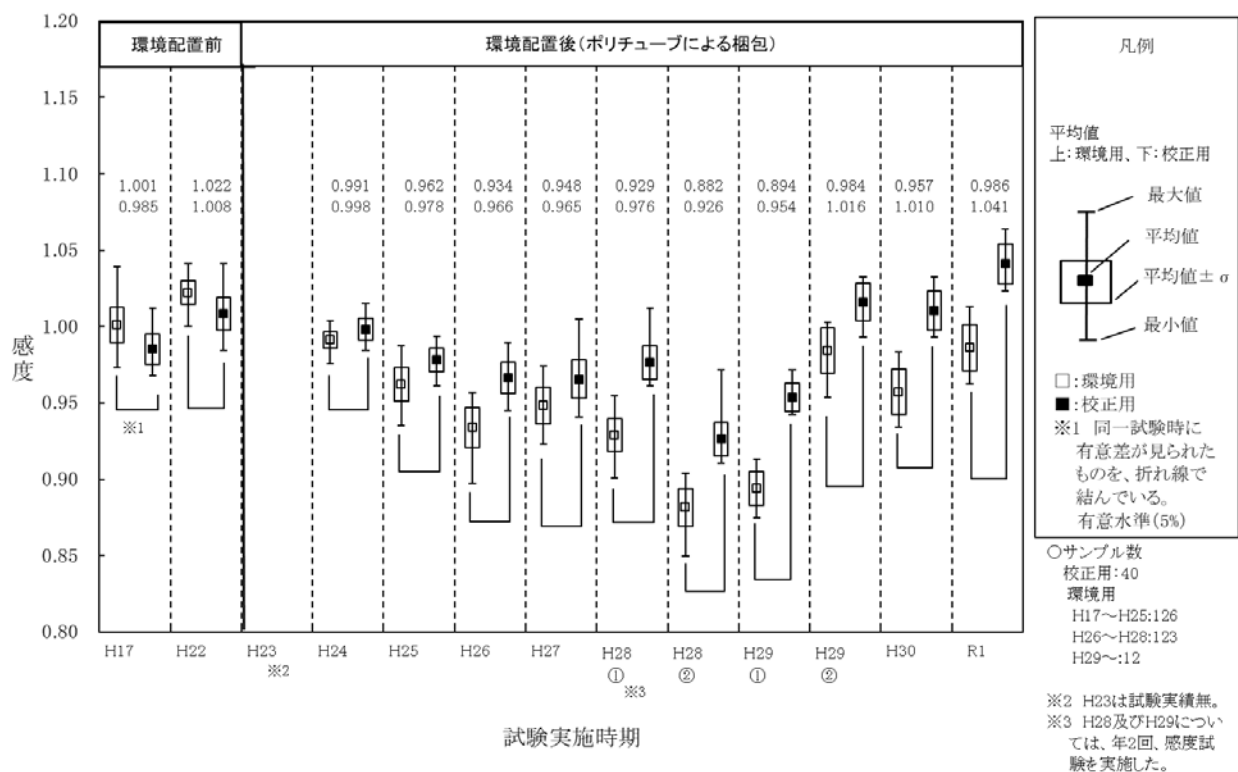


図 3 H16RPLD (環境用 RPLD② (Q2Q4 設置用) 及び校正用) の感度推移

4.2 保管条件の違いによる比較試験結果

H27RPLDのうちポリチューブに梱包し環境に設置するRPLD、アルミニウム袋に梱包し環境に設置するRPLD、梱包せずデシケータ内に設置するRPLDについて感度を算出した結果を図4に示す。それぞれの感度は平成29年度第2四半期の試験まで低下傾向が見られるが、3.1と同様に平成29年度第3四半期の試験で感度の上昇が見られた。また、四半期ごとの結果を見ると、デシケータ内に設置するRPLD、アルミニウム袋に梱包し環境に設置するRPLD、ポリチューブに梱包し環境に設置するRPLD、の順に感度が高くなっている傾向が見られる。

また、ポリチューブに梱包し環境に設置するRPLDの感度と梱包せずデシケータ内に設置するRPLDの感度に対してt検定（有意水準1%）を実施したところ、平成28年度第2四半期以降はほぼ毎四半期に有意差が見られた。同様の検定をアルミニウム袋に梱包し環境場に設置するRPLDと梱包せずデシケータ内に設置するRPLDの感度に対して実施したところ、初めて有意差が見られたのは平成29年度第2四半期であり、ポリチューブに梱包し環境に設置するRPLDの感度と梱包せずデシケータ内に設置するRPLDの場合と比較して、有意差が見られる頻度は少ない。

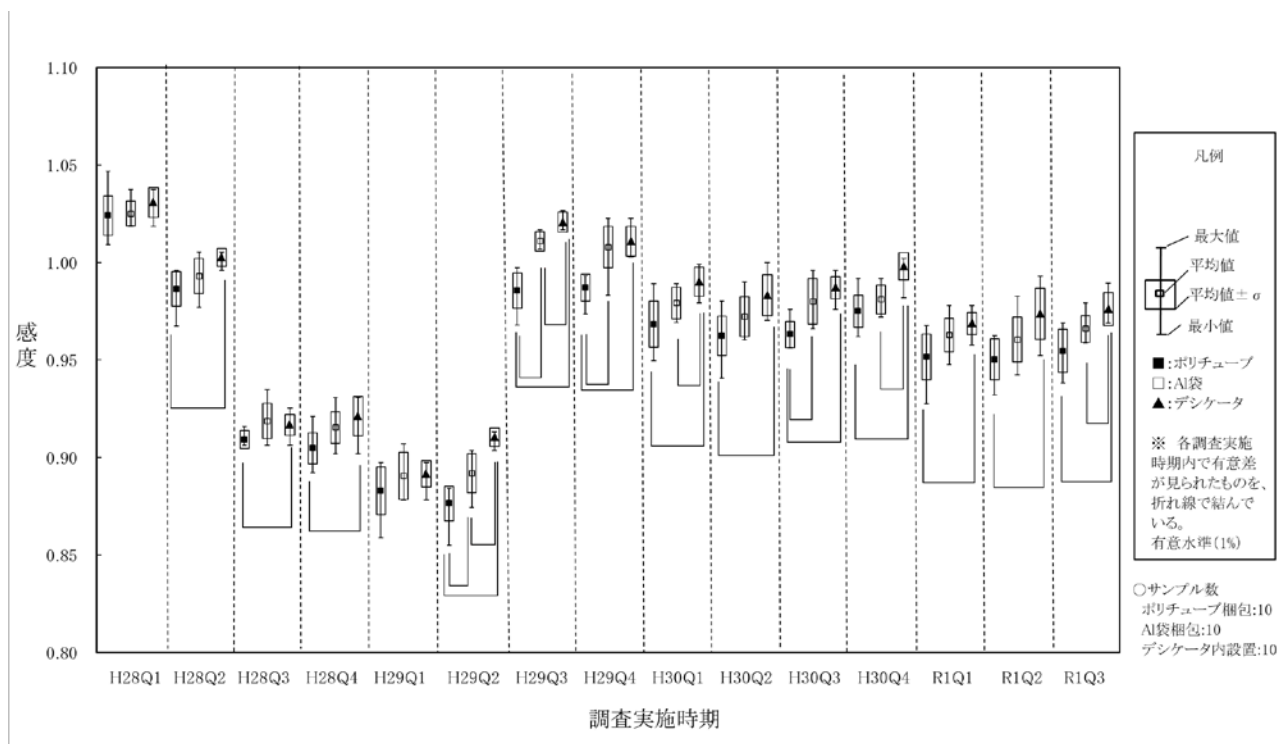


図4 H27RPLDの感度推移

5. 考察

5.1 環境用 RPLD と校正用 RPLD の比較試験結果について

4.1 で見られた感度変化の要因の 1 つとして、調査期間中にガラス線量計リーダの状態が変化していることが確認されている。そこで、ガラス線量計リーダの状態変化を無視し、RPLD の状態に焦点をあてて論じるため、感度試験ごとの環境用 RPLD と校正用 RPLD の感度比をとり、その変化について確認した。

H16RPLD のうち環境用 RPLD と校正用 RPLD について感度を算出後、校正用 RPLD に対する奇数四半期設置用の環境用 RPLD、偶数四半期設置用の環境用 RPLD それぞれの感度比を求めた結果を図 5 及び図 6 に示す。奇数四半期設置用の環境用 RPLD、偶数四半期設置用の環境用 RPLD いずれについても購入直後の平成 17 年度及び環境への配置開始直前の平成 22 年度は、環境用及び校正用 RPLD の感度に大きな差はなく、感度比はどちらも 1 付近の値であった。その後は感度比が低下する傾向が見られ、その傾向は継続した。

校正用 RPLD の感度に対する環境用 RPLD の感度は、環境への設置開始から年々低下傾向にあり、この感度低下は屋内のデシケータと環境場との環境要因の違いによるものと考えられる。

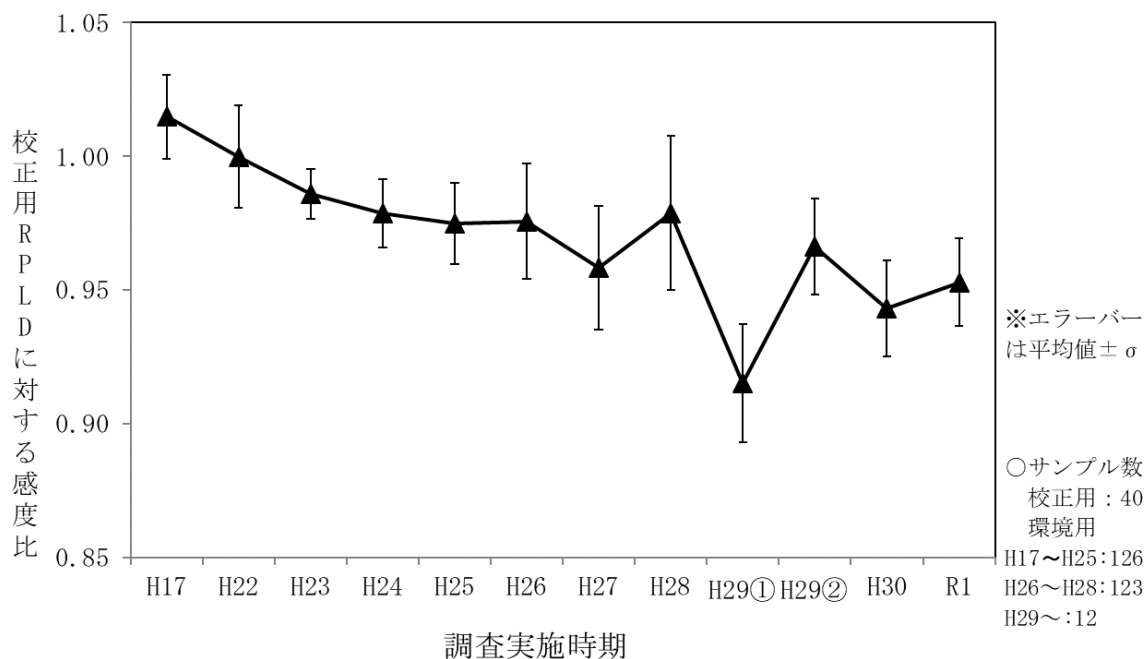


図 5 H16RPLD の校正用 RPLD に対する環境用 RPLD① (Q1Q3 設置用) の感度比の推移

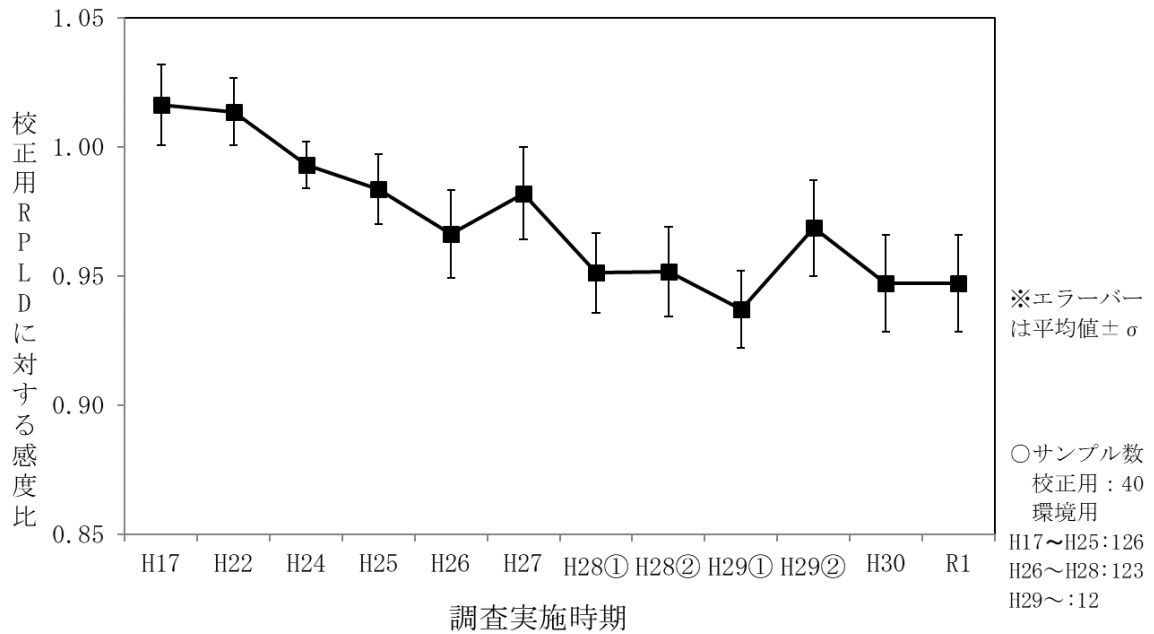


図6 H16RPLDの校正用RPLDに対する環境用RPLD②（Q2Q4設置用）の感度比の推移

5.2 保管条件の違いによる比較試験結果

5.1と同様に梱包せずデシケータ内に設置するRPLD⑥の感度を基準とした感度比をとり、その変化について確認した。

3種類の条件で使用するRPLDについて感度を算出後、梱包せずデシケータ内に設置するRPLD⑥に対するポリチューブに梱包し環境に設置するRPLD④、アルミニウム袋に梱包し環境に設置するRPLD⑤、それぞれの感度比を求めた結果を図7に示す。環境への配置を開始した平成28年度第1四半期は、両者の感度比に大きな差は見られないが、その後の四半期では、全てアルミニウム袋に梱包し環境に設置するRPLD⑤の方が感度比が1に近い結果となった。

過去の調査においてアルミニウム袋とポリチューブについては、アルミニウム袋の方が防湿性に優れるという結果が得られており、測定法シリーズによると、RPLDは高温多湿の環境下ではガラス表面が劣化しやすく、これが感度に影響を及ぼす可能性があるとされている。

このことから、アルミニウム袋による梱包はポリチューブに比べ、RPLDの感度低下を抑制できると考えられる。

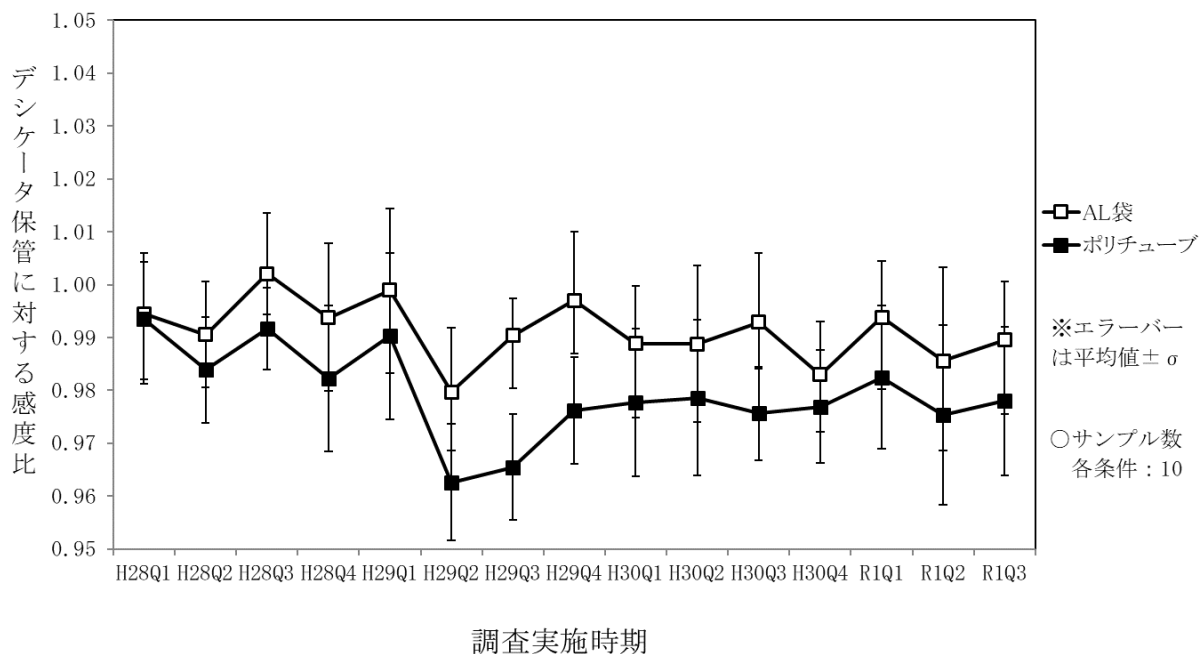


図7 H27RPLDのデシケータ内に設置するRPLD⑥に対する感度比の推移

6. まとめ

これまでの調査結果を踏まえ、県では平成29年度から積算線量測定におけるRPLDの使用期間等についてRPLDの運用を見直している。

ポリチューブ梱包で使用了した場合、環境設置を開始した平成23年度から校正用RPLDに対する環境用RPLDの感度比が低下し、その後も低下傾向が継続した。また、RPLDをアルミニウム袋で梱包することにより、従来のポリチューブでの梱包と比較してRPLDの感度低下が抑制された。

これらのことから、RPLDの使用期間を5年に改め、かつ、環境設置時のRPLDの梱包をアルミニウム袋とする運用の見直しは、測定結果の精度を保つ上で妥当なものであると確認できた。

文 献

- 1) 阿部真之 鈴木将文 佐々木耕一：蛍光ガラス線量計の感度低下について 青森県原子力センター所報,第12号,3-8(2017)

固相抽出法を用いたストロンチウム-90 分析方法の検討

檜山宝孝 蒔苗慧亮 米内山愛望 吹越恵里子 木村芳伸

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所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、農畜産物中の Sr-90 を調査対象としている。

当所の Sr-90 分析方法(以下「従来法」という。)は、放射能測定法シリーズ2「放射性ストロンチウム分析法」(文部科学省 平成15年改訂)に準拠し、対象試料を乾燥・灰化、酸分解し、酸抽出後に、①炭酸塩沈殿、②シュウ酸塩沈殿、③陽イオン交換により、ストロンチウムを分離し、水酸化鉄共沈により、Y-90 を取り除き Sr-90 を精製(④スカベンジング)した後、期間をおいて Sr-90 から生成した Y-90 を水酸化鉄共沈により分離(⑤ミルクキング)し、Y-90 のβ線を測定して、Sr-90 濃度を算出する工程としている。図1に示すとおり、各工程に要する期間は、①炭酸塩沈殿に約1日、②シュウ酸塩沈殿に約1日、③陽イオン交換に約2日、④スカベンジングの操作期間及び Sr-90 と Y-90 の放射平衡に要する期間が約14日、⑤ミルクキングに約0.5日であり、①～⑤の全工程では最短でも約19日を要する。

一方、田副らにより海水を対象として DGA レジンを用いた固相抽出法が報告されており、本手法は、分析開始時点で Y-90 が Sr-90 と放射平衡に達しているという仮定のもとで、Sr-90 濃度を算出する。本手法を、本県のモニタリングの対象試料である農畜産物に適用した場合、従来法の①～⑤に当たる期間が約1日と迅速であることから、分析方法の検討を行った。

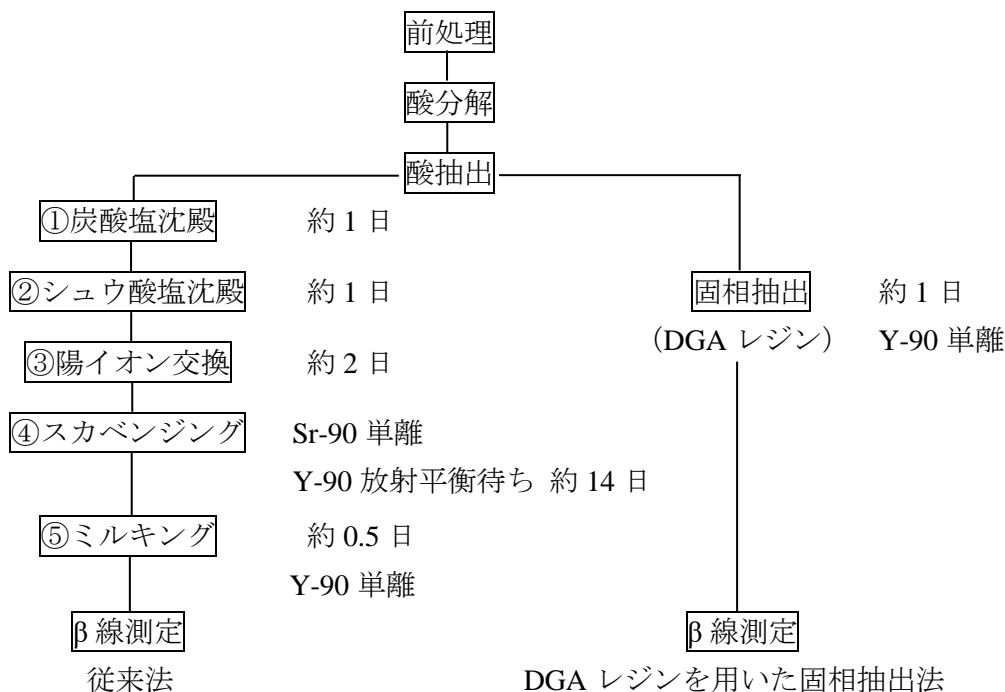


図1 各分析方法概要

2. 調査方法

2.1 対象試料

モニタリング対象試料である農畜産物のうち、平成 30 年度に採取した牛乳、ハクサイ、バレイショ、ダイコン、アブラナ、牧草を用いた。

2.2 前処理方法

葉菜類及び根菜類については、放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」（文部科学省 昭和 58 年）に準拠し、対象試料を水洗いした後、水切りし、食用に供さない部分を取り除くとともに、適当な大きさに細断した。その後、105℃で 24 時間以上乾燥した後、450℃で 24 時間灰化した。また、牛乳については、攪拌後、105℃で 7 日以上乾燥した後、450℃で 24 時間灰化した。

2.3 分析・測定方法

(1) 従来法による Sr-90 分析方法

放射能測定法シリーズ 2「放射性ストロンチウム分析法」（文部科学省 平成 15 年改訂）に準拠した方法（イオン交換法）により行った。

(2) DGA レジンを用いた固相抽出法による Sr-90 分析方法

灰試料の酸分解から DGA レジン導入直前までの分析方法については鍋師らの報告²⁾、その後の DGA レジンによるイットリウムの分離・精製方法については田副らの報告¹⁾を参考とした。図 2 に今回検討した DGA レジンを用いた固相抽出法（以下「DGA レジン法」という。）のフローを示すとともに、操作概要を以下に示す。また、図 3 に固相抽出に用いる装置図を示す。なお、添加するイットリウム担体量の検討については、3.1 に示す。

灰試料約 3～10 g（生 0.5～1 kg 相当）に、イットリウム担体を加え、有機物を湿式分解した後、8 M 硝酸で加熱抽出し、No.5C ろ紙によりろ過したものを試料溶液とした。なお、操作性の観点から試料溶液は 50 mL 以下とした。

あらかじめ、8 M 硝酸 15 mL、8 M 塩酸 10 mL、3 M 硝酸+0.3 M フッ化水素酸 20 mL、0.02 M 硝酸 20 mL、0.1 M 塩酸 20 mL、8 M 硝酸 15 mL の順に通液し、コンディショニングした DGA レジン（Eichrom Technologies 社製 DGA レジンカートリッジ（粒径 50～100 μm、容量 1 mL））に試料溶液を通液し、8 M 硝酸 15 mL、8 M 塩酸 10 mL、3 M 硝酸+0.3 M フッ化水素酸 20 mL、0.02 M 硝酸 20 mL を通液し、洗浄した。0.1 M 塩酸 20 mL で、イットリウムを溶出し、これを溶出液とした。DGA レジンへの試料溶液通液直後から Sr-90 と Y-90 が分離するため、試料溶液を通液し始めた日時を Y-90 単離時刻とした。溶出液の一部を分取し、安定イットリウム測定用試料とした。残りの溶出液に塩化鉄(III)溶液（5 mg/mL）1 mL、塩化アンモニウム 1 g、フェノールフタレイン溶液 1 mL を加え、加熱沸騰した後、アンモニア水を 1～2 mL 加え、水酸化鉄(III)沈殿を生かさせた。放冷後、水酸化鉄(III)沈殿を No.5C ろ紙によりろ別、沈殿を固定するためコロジオン-エタノール溶液を滴下、乾燥し、β線測定用試料とした。

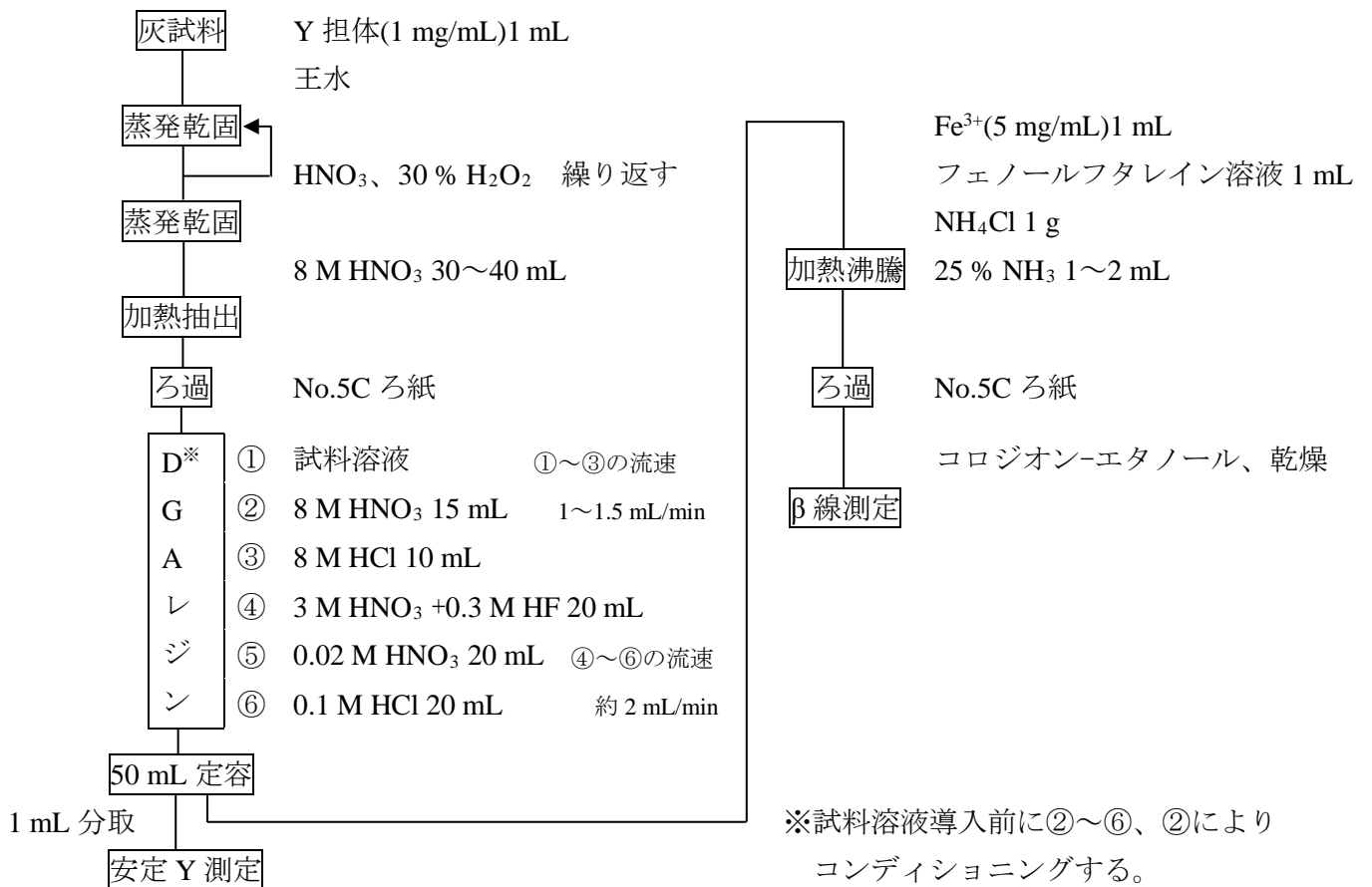


図 2 DGA レジン法のフロー

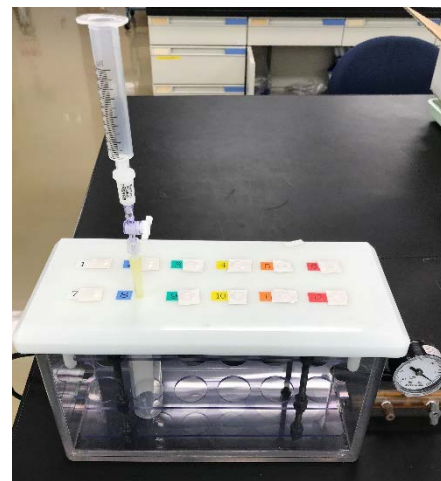
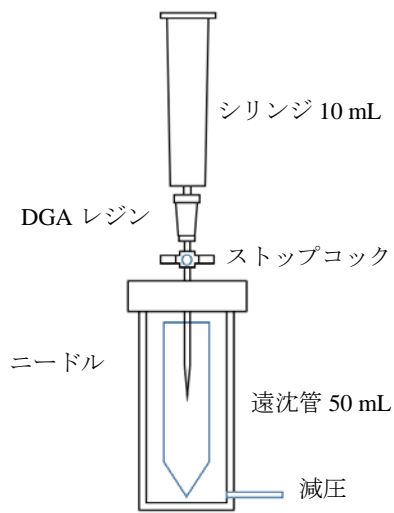


図 3 装置図

(3) 元素分析

放射能測定法シリーズ 2「放射性ストロンチウム分析法」(文部科学省 平成 15 年改訂) の安定ストロンチウムの定量を参考に、灰試料約 2 g を湿式分解後、8 M 硝酸で加熱抽出し、メンブランフィルターを用いて吸引ろ過した。残さがあった場合は、温水で洗浄し、ろ液と洗液を合わせて定容し、元素分析用の試料溶液 (2 g/100 mL) とした。この試料溶液を必要に応じて希釈し、イットリウム、カルシウムの定量用試料とした。

2.4 試薬及び測定機器等

試薬類については、和光純薬株式会社製の試薬特級又は試薬一級、原子吸光分析用グレードを用いた。

β線測定には、日立メディカル株式会社製低バックグラウンド2πガスフローβ線測定装置LBC-4201Bを用いた。安定元素の定量には、株式会社島津製作所製ICP発光分光分析装置ICPS-7510を用いた。

3. 調査結果

3.1 イットリウム担体添加量の検討

DGA レジン法では、試料中の Y-90 の保持担体としての目的と回収率計算のため、灰試料に既知量の安定イットリウムを添加する。E.P.Horwitz らにより、DGA レジン 1 mL 当たりのユーロピウムの最大保持量が報告³⁾されている。硝酸条件下において、ユーロピウムとイットリウムの分配係数が同程度である(3~8 M 硝酸:Eu(III)分配係数 1~2×10⁴、Y(III)分配係数 6×10⁴~1×10⁵)³⁾ことから、(1) 式に示すとおりイットリウムの最大保持量は DGA レジン 1 mL 当たり 3 mg 程度と推測される。一方で、表 1 に示すとおり、試料中のイットリウムが検出されない試料もあることから、回収率の不確かさを考慮し、灰試料に添加するイットリウム担体量は 1 mg 以上とし、イットリウム担体添加量 1~5 mg (一部試料は 1~3 mg) における、イットリウムの回収率を確認した。なお、イットリウムの回収率については、(2) 式により算出した。

$$6.3 \text{ mg(レジン 1 mL 当たりの Eu 最大保持量)} \times \frac{88.91 \text{ g/mol(Y 原子量)}}{152 \text{ g/mol(Eu 原子量)}} = 3.6 \text{ mg} \cdots (1)$$

$$\text{回収率} = \frac{\text{DGA レジン法の溶出液中の Y 量(mg)}}{\text{Y 担体添加量(mg)+分析に供した灰試料中の Y 量(mg)}} \cdots (2)$$

表 2 に牛乳、ハクサイ、バレイショのイットリウム担体回収率を示す。イットリウム担体の添加量が 1 mg の場合、回収率は 90%以上であるが、2 mg を超えるといずれの試料においても、回収率が低下していることから、回収率が最も良好であった 1 mg をイットリウム担体添加量として、以降の検討を行った。

表 1 対象試料中のイットリウム濃度

試料名	定量用試料中	標準偏差 (n=3) ※2	灰試料中 Y 濃度
	Y 濃度 (μg/mL) ※1		(μg/g) ※3
牛乳 (東北町)	0.0136	0.000014	1.36
ハクサイ (上田屋)	不検出	-	不検出
バレイショ	0.0162	0.000012	1.62
ダイコン (出戸)	不検出	-	不検出
アブラナ	0.0145	0.000074	1.45
牧草 (横浜町)	不検出	-	不検出

※1 「不検出」は、0.01 μg/mL 未満を示す。

※2 定量用試料を ICP 発光分光分析により 3 回測定した標準偏差を示す。

※3 「不検出」は、1 μg/g 未満を示す。

表 2 各イットリウム担体添加量における回収率

試料名	灰試料重量 (生試料相当量)	Y 担体回収率			
		1 mg	2 mg	3 mg	5 mg
牛乳 (東北町)	3.87 g (0.5 L)	0.97	0.83	0.60	-
ハクサイ (上田屋)	2.89 g (0.5 kg)	0.90	0.80	0.69	0.44
バレイショ	8.98~8.99 g (1.0 kg)	0.90	0.78	0.64	0.42

3.2 負荷可能なカルシウム濃度範囲の確認

DGA レジンを用いたアメリシウム分析において、試料溶液の硝酸濃度によっては、DGA レジンに通液する試料溶液中のカルシウム濃度が 0.05 mol/L 付近から分配係数が低下することが報告⁴⁾されている。硝酸条件下において、アメリシウムとイットリウムの分配係数が同程度である (3~5 M 硝酸 : Am(III)分配係数 $3\sim6\times 10^4$ 、Y(III)分配係数 $9\times 10^4\sim 1\times 10^5$)³⁾ことから、試料のカルシウム濃度 (mg/g 灰) とイットリウムの回収率について確認を行った。表 3 にカルシウム濃度 (mg/g 灰) とイットリウムの回収率の結果を示す。通液する試料溶液のカルシウム濃度が最大 (0.38 mol/L) である牛乳においても、イットリウムの回収率の低下は見られなかった。モニタリング対象試料の農畜産物のうち、牛乳は灰中のカルシウム濃度が最大であることから、モニタリング対象試料への DGA レジン法適用に当たっては、試料溶液中のカルシウムによるイットリウム担体の回収率低下の可能性は低いと考えられる。

表 3 カルシウム濃度の異なる試料におけるイットリウム担体回収率

試料名	Ca 濃度 (mg/g 灰)	灰試料重量 (生試料相当量)	試料溶液量 (mL)	通液時 Ca 濃度 (mol/L)	Y 担体 回収率
牛乳 (東北町)	159	3.87 g (0.5 L)	40	0.38	0.97
ハクサイ (上田屋)	56.1	2.89 g (0.5 kg)	40	0.10	0.90
バレイショ	3.22	8.99 g (1.0 kg)	40	0.018	0.90

3.3 DGA レジン法及び従来法による測定結果の比較

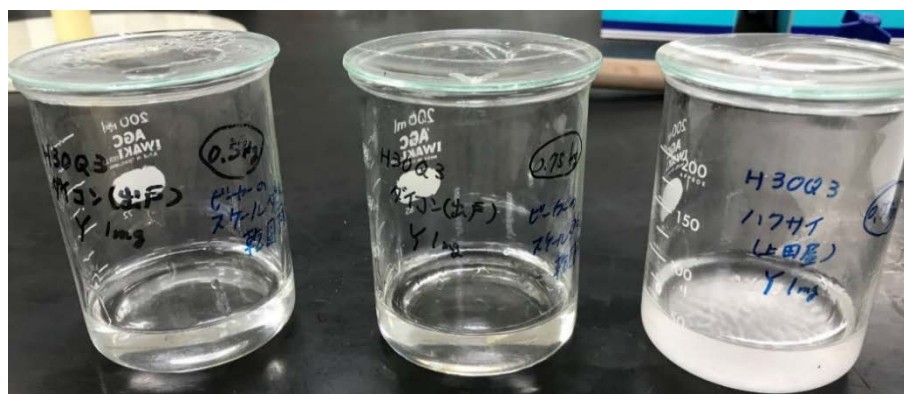
表4に従来法とDGAレジン法による測定結果を示す。従来法(I)とDGAレジン法(II)による測定値の比(II/I)は、 $0.750 \pm 0.12 \sim 1.05 \pm 0.12$ であり、同程度の測定値が得られている。検出限界は、 $0.0234 \sim 0.0512$ Bq/kg 生であり、本県が定める農畜産物中のSr-90の定量下限値(0.04 Bq/kg 生)と同程度であった。

DGAレジン法によるイットリウム回収率は0.67~0.95であった。このうち回収率が低めであったアブラナ、牧草(横浜町)については、8M硝酸による加熱抽出時の残さが他試料と比べ、明らかに多く(図4、5)、残さへのイットリウムの取り込みにより回収率が低下したものと考えられる。

表5に示すように、酸抽出後のY-90分離に要した期間は、従来法が23~31日程度であり、DGAレジン法が1日程度であった。

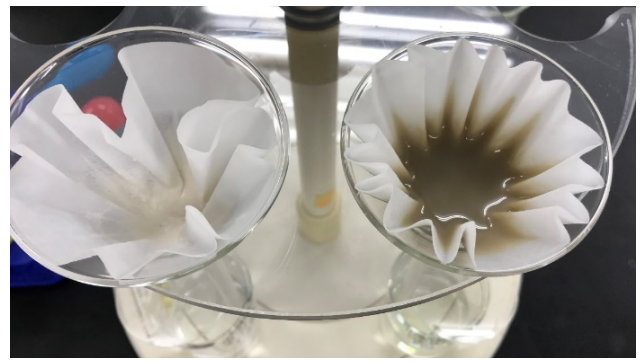
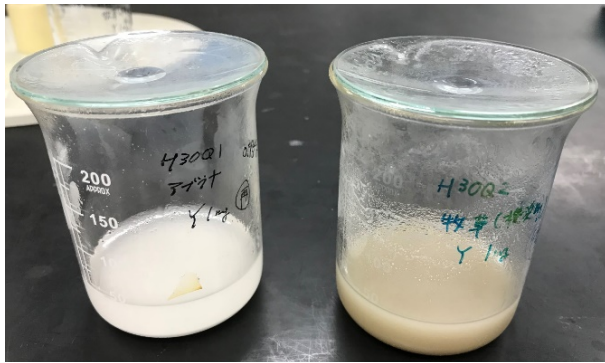
表4 従来法とDGAレジン法の測定結果

試料名	従来法 (I)	DGA レジン法 (II)			II/I	
	測定値 (Bq/kg 生)	灰試料重量 (生試料相当量)	Y 担体 回収率	測定値 (Bq/kg 生)		検出限界 (Bq/kg 生)
ハクサイ (上田屋)	0.142 ± 0.014	2.89 g (0.5 kg)	0.91	0.143 ± 0.022	0.0453	1.00 ± 0.18
			0.86	0.127 ± 0.021	0.0413	0.894 ± 0.17
		4.35 g (0.75 kg)	0.87	0.130 ± 0.016	0.0234	0.915 ± 0.14
ダイコン (出戸)	0.148 ± 0.015	7.00 g (0.5 kg)	0.95	0.129 ± 0.019	0.0382	0.871 ± 0.15
		10.5 g (0.75 kg)	0.92	0.111 ± 0.015	0.0269	0.750 ± 0.12
アブラナ	0.309 ± 0.022	5.25 g (0.5 kg)	0.79	0.287 ± 0.032	0.0499	0.928 ± 0.12
		7.35 g (0.7 kg)	0.68	0.255 ± 0.027	0.0396	0.825 ± 0.10
牧草 (横浜町)	0.351 ± 0.024	9.50 g (0.5 kg)	0.67	0.370 ± 0.037	0.0512	1.05 ± 0.12



ダイコン (出戸) ダイコン (出戸) ハクサイ (上田屋)
(生 0.5 kg 相当) (生 0.75 kg 相当) (生 0.75 kg 相当)

図4 ダイコン、ハクサイの8M硝酸40mLによる加熱抽出後の状況



アブラナ
(生 0.7 kg 相当)

牧草 (横浜町)
(生 0.5 kg 相当)

アブラナ
(生 0.7 kg 相当)

牧草 (横浜町)
(生 0.5 kg 相当)

図5 アブラナ、牧草の8 M 硝酸 40 mL による加熱抽出後及びろ過の状況

表5 酸抽出後の Y-90 分離に要した期間

試料名	従来法 [※]	DGA レジン法
ハクサイ (上田屋)	23 日	
ダイコン (出戸)	24 日	
アブラナ	31 日	1 日
牧草 (横浜町)	24 日	

※平成 30 年度のモニタリング分析時に要した期間。

4. まとめ

- 従来法 (I) と DGA レジン法 (II) により得られた測定値の比 (II/I) は、 $0.750 \pm 0.12 \sim 1.05 \pm 0.12$ であり、同程度であった。検出限界については、 $0.0234 \sim 0.0512$ Bq/kg 生と、本県が定める農畜産物中の Sr-90 の定量下限値 (0.04 Bq/kg 生) と同程度であった。
- DGA レジン法によるイットリウム回収率は $0.67 \sim 0.95$ であった。このうち 8 M 硝酸による加熱抽出時の残が多かった試料において、回収率がやや低めとなる傾向が見られた。
- 酸抽出後の Y-90 分離に要する期間については、DGA レジン法は従来法と比べ 3 週間程度迅速であった。
- モニタリングへの適用については、灰試料が多い場合の酸抽出の検討や酸抽出時に残が多い場合の回収率低下、検出限界の課題が考えられ、今後検討が必要である。

本分析方法の検討に当たり、ご指導及びご助言いただいた国立大学法人弘前大学被ばく医療総合研究所放射線化学部門 田副助教、国立医薬品食品衛生研究所食品部第二室 鍋師主任研究官に深く感謝の意を表します。

文 献

- HirofumiTazoe, HajimeObata, TakeyasuYamagata, Zin'ichiKarube, HisaoNagai, MasatoshiYamada :

Determination of strontium-90 from direct separation of yttrium-90 by solid phase extraction using DGA Resin for seawater monitoring, *Talanta*, **152**, 219-227 (2016)

- 2) 鍋師裕美、堤智昭、松田りえ子、蜂須賀暁子、穉山浩：ストロンチウム抽出カラムを用いた緊急時に適用可能な食品中のストロンチウム 90(Sr-90)迅速分析法の確立, *食品衛生学雑誌*, **60**, 7-15 (2019)
- 3) E. P. Horwitz, D. R. McAlister, A. H. Bond, and R. E. Barrans, Jr. : Novel Extraction Chromatographic Resins Based on Tetraalkyldiglycolamides: Characterization and Potential Applications, *Solvent Extraction & Ion Exchange*, **23**, 319-344 (2005)
- 4) Daniel McAlister, Ph.D. : Optimizing Choice of Preconcentration and Separation Chemistries, Eichrom User Group Meeting February 6, 2017
<http://www.eichrom.com/wp-content/uploads/2018/02/03-eichromugm-2017-mcalister.pdf> (最終アクセス : 2019.11.12)

可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定調査

檜山宝孝 和田浩司 原 和希 菅尾聡也*¹ 木村芳伸

1. はじめに

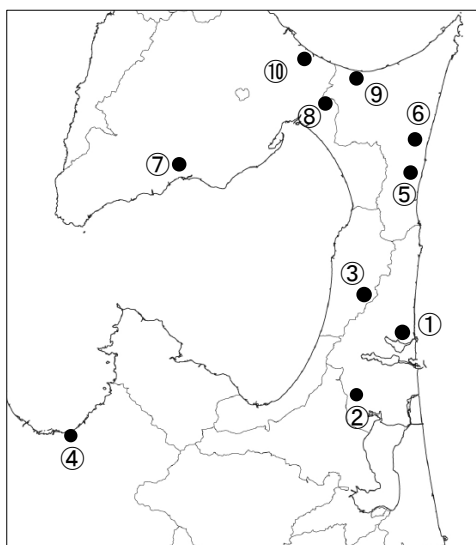
青森県では、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所及びリサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線等モニタリング（以下「モニタリング」という。）の一環として、表土中の γ 線放出核種を調査対象としている。

可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いたin-situ測定は、地表の平均的なCs-137沈着量を把握する上で有効な手段である。過去の研究において、原子力施設の事故による影響がフォールアウトによる影響よりも大きい場合には、適切な緩衝深度係数を用いることで精度良くCs-137の沈着量を推定できることが示されたほか、フォールアウトによる影響のみが考えられる地点においても、土壌中濃度と可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いたin-situ測定結果の間には正の相関が認められることが判明している¹。さらには、原子力災害対策指針補足参考資料「平常時モニタリングについて」（原子力規制庁監視情報課 平成30年4月4日）においても、土壌中の放射性物質の濃度測定の際には、可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いたin-situ測定が有効であるとされている。これらを踏まえ、平成29年度から令和元年度のモニタリングの表土試料採取に併せて行った可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いたin-situ測定（以下「可搬型Geによるin-situ測定」という。）結果を取りまとめるとともに、据置型ゲルマニウム半導体検出器で測定した表土測定（以下「据置型Geによる測定」という。）結果との比較を行った。

2. 調査方法

2.1 試料採取地点

試料採取地点は図1のとおりであり、原子燃料サイクル施設に係る4地点、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6地点の計10地点である。



対象施設	番号	地点名（市町村）
原子燃料サイクル施設	①	尾駁（六ヶ所村）
	②	千歳平（六ヶ所村）
	③	明神平（横浜町）
	④	宮田（青森市）
東通原子力発電所及びリサイクル燃料備蓄センター	⑤	周辺監視区域境界付近（東通村）
	⑥	小田野沢（東通村）
	⑦	川内町中道（むつ市）
	⑧	水川目（むつ市）
	⑨	浜ノ平（東通村）
	⑩	関根（むつ市）

図1 試料採取地点

*1：現青森県環境生活部環境保健センター

2.2 試料採取及び前処理方法

試料採取については、放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」(文部科学省 昭和 58 年)に準拠し、ステンレス製土壌採取器 (10 cm φ × 5 cm) により 1 地点当たり 9~12 ポイントで土壌を採取した。

前処理についても、同測定法シリーズに準拠し、採取した土壌 (生土) から植物根や石礫等の異物を取り除き (湿土)、105 °C で 24 時間以上乾燥した後、磨砕しながら 2 mm 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碎し、これを分析試料 (乾土) とした。

可搬型 Ge による in-situ 測定は現場での測定であることから、測定結果は生土当たりの値で得られる。一方、据置型 Ge による測定は乾土を対象とし、測定結果は乾土当たりで得られることから、両者の測定結果を比較するため、土壌の含水率を (1) 式のとおり算出した。また、土地の利用状況によっては、水分の他に石礫等が多い場合も考えられることから、水分を含む異物率を (2) 式のとおり算出した。

$$\text{含水率(\%)} = \frac{\text{湿土重量(g)} - \text{乾土重量(g)}}{\text{湿土重量(g)}} \times 100 \quad \dots (1)$$

$$\text{異物率(\%)} = \frac{\text{生土重量(g)} - \text{乾土重量(g)}}{\text{生土重量(g)}} \times 100 \quad \dots (2)$$

2.3 測定方法及び測定機器

(1) 可搬型 Ge による in-situ 測定及び解析法

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」(原子力規制庁 監視情報課 平成 29 年 3 月改訂)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、30~60 分間測定を行った。

解析法については、同測定法シリーズに準拠し、Beck らが開発した HASL の解析法を用いて土壌中の放射性物質濃度を算出した。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壌中で均一分布、人工放射性核種は (3) 式に示すとおり鉛直方向に指数関数分布であること。なお、天然放射性核種のウラン系列及びトリウム系列の測定値については、アイソトープ手帳 (11 版) ²⁾により、分岐比を考慮した。
- ・土壌中鉛直分布を表すパラメータ β (重量緩衝深度) については、過去の大気圏内核実験に起因するセシウム-137 を考慮し、「発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について」(原子力安全委員会 平成 13 年)に示されている浸透係数 $\alpha=0.33 \text{ cm}^{-1}$ と土壌密度 $\rho=1.6 \text{ g/cm}^3$ を用いて、 β (重量緩衝深度) = 4.85 g/cm^2 ($\beta=\rho/\alpha$) とした。

$$A(Z) = A_0 \times \exp\left(-\frac{Z}{\beta}\right) \quad \dots (3)$$

$A(Z)$: 重量深度 Z における放射能濃度 (Bq/g)
 Z : 重量深度 (g/cm^2)
 A_0 : 地表面における放射能濃度 (Bq/g)
 β : 重量緩衝深度 (g/cm^2)

可搬型ゲルマニウム半導体検出器は、ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社製 Falcon5000 を用いた。

(2) 据置型 Ge による測定

放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー」(文部科学省 平成4年改訂)に準拠し、分析試料(乾土)をU-8容器に充填し、測定した。測定時間は80,000秒とした。また、据置型 Ge による測定結果を湿土当たりに換算する場合は含水率を、生土当たりにする場合は異物率を用いた。

据置型ゲルマニウム半導体検出器は、ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社製 GC4020 を用いた。

3. 調査結果

3.1 土壌の性状

表1に平成29年度から令和元年度の含水率及び令和元年度の異物率を示す。土壌の含水率は7.9～55.6%の範囲であり、尾駁(六ヶ所村)及び小田野沢(東通村)が低く、明神平(横浜町)及び浜ノ平(東通村)が高かった。また、異物率は21.3～57.9%の範囲であり、小田野沢(東通村)が最も低く、明神平(横浜町)が最も高かった。このような傾向は、尾駁(六ヶ所村)が芝生、小田野沢(東通村)が旧小学校校庭であるのに対し、明神平(横浜町)が牧草地、浜ノ平(東通村)が雑草地と、土地の利用状況によるものと考えられる。

表1 含水率及び異物率

地点名(市町村)	含水率(%)※	異物率(%)※	(参考) 土地利用状況
尾駁(六ヶ所村)	9.4～9.9	36.4	芝生
千歳平(六ヶ所村)	23.3～27.4	34.0	芝生(公園)
明神平(横浜町)	48.0～55.6	57.9	牧草地
宮田(青森市)	23.6～43.3	34.1	芝生
周辺監視区域境界付近 (東通村)	20.2～27.5	39.0	雑草地
小田野沢(東通村)	7.9～15.0	21.3	旧小学校校庭
川内町中道(むつ市)	27.8～40.7	35.6	芝生(広場)
水川目(むつ市)	16.3～32.6	22.2	神社境内
浜ノ平(東通村)	40.3～41.5	46.3	雑草地
関根(むつ市)	30.3～35.3	36.1	芝生(小学校校庭脇)

※含水率については平成29年度から令和元年度。異物率については令和元年度のみ。

3.2 土壌中の天然放射性物質濃度(Pb-214、Bi-214、Tl-208、Ac-228)

表2に平成29年度から令和元年度の可搬型 Ge による in-situ 測定及び据置型 Ge による測定結果を示す。可搬型 Ge による in-situ 測定結果は、Pb-214 が< 5.13～15.5 Bq/kg、Bi-214 が< 2.90～

12.2 Bq/kg、Tl-208 が 1.97～7.73 Bq/kg、Ac-228 が < 4.91～19.2 Bq/kg、K-40 が 115～190 Bq/kg の範囲であった。

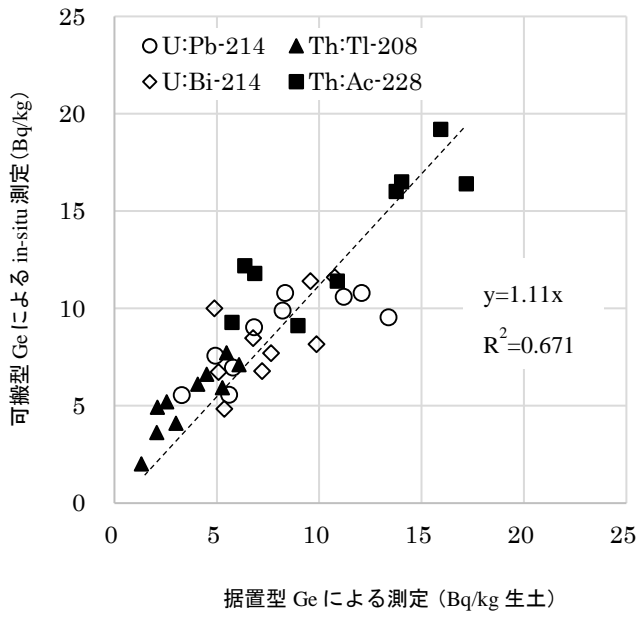
図 2、3 に据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定結果の関係を示す。ウラン系列及びトリウム系列についての近似直線の傾きと決定係数 R^2 は、異物率で補正した場合 1.11、0.671 であり、また含水率で補正した場合 0.981、0.668 であり、異物率及び含水率で補正した場合ともに決定係数 R^2 が高く、異物率で補正した場合、より高かった。参考として、平成 29 年度から令和元年度の含水率で補正した場合の近似直線の傾きと決定係数 R^2 は 0.963、0.652 であった。K-40 についての近似直線の傾きと決定係数 R^2 は、異物率で補正した場合 1.08、0.265 であり、また含水率で補正した場合 0.948、0.468 であり、いずれもウラン系列及びトリウム系列と比べ、決定係数 R^2 は低く、異物率で補正した場合、より低かった。参考として、平成 29 年度から令和元年度の含水率で補正した場合の近似直線の傾きと決定係数 R^2 は 0.939、0.153 であった。

表2 可搬型Geによるin-situ測定及び据置型Geによる測定結果（平成29年度から令和元年度）

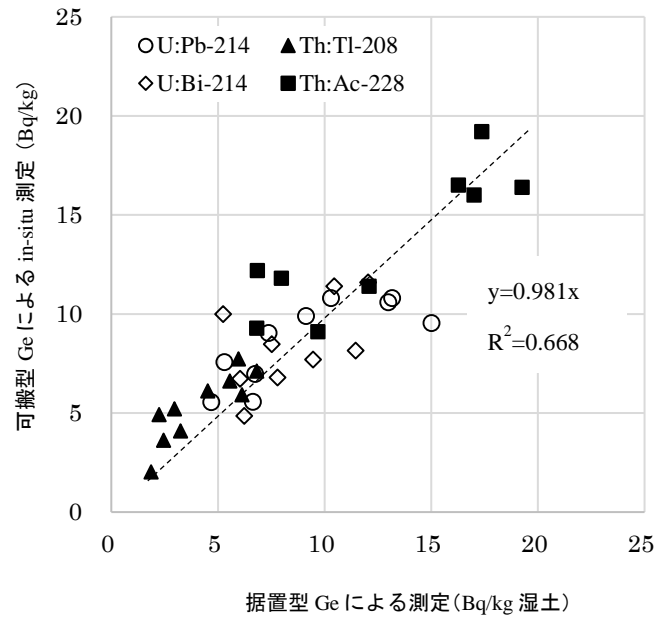
地点名（市町村）	据置型Geによる測定（Bq/kg乾土）															
	可搬型Geによるin-situ測定※1（Bq/kg）					U系列					Th系列					K-40 (1461 keV)
	Pb-214 (351 keV)	Bi-214 (609 keV)	Tl-208 (583 keV)	Ac-228 (911 keV)	K-40 (1461 keV)	Pb-214 (351 keV)	Bi-214 (609 keV)	Tl-208 (583 keV)	Ac-228 (911 keV)	Th系列	U系列	Th系列	Ac-228 (911 keV)	K-40 (1461 keV)		
尾駈（六ヶ所村）	5.55～7.06	<2.90～6.06	1.97～2.02	<4.91～4.74	115～121	4.54～5.17	3.98～4.29	1.91～2.07	5.02～5.44	137～146	8.79～9.71	7.43～8.82	3.86～4.35	10.4～12.6	169～190	
千歳平（六ヶ所村）	6.97～8.05	4.82～6.09	2.83～5.21	<6.31～11.8	129～139	8.79～9.71	7.43～8.82	3.86～4.35	10.4～12.6	169～190	8.79～9.71	7.43～8.82	3.86～4.35	10.4～12.6	169～190	
明神平（横浜町）※2	8.65, 10.8	<4.87, 7.70	6.11, 6.61	16.0, 17.1	150, 157	19.8～26.5	18.2～22.3	10.7～11.7	32.6～34.9	309～336	19.8～26.5	18.2～22.3	10.7～11.7	32.6～34.9	309～336	
宮田（青森市）	8.15～10.6	8.03～8.93	5.57～6.40	14.3～16.5	169～190	17.0～19.4	15.0～17.0	8.02～8.80	21.3～25.4	250～275	17.0～19.4	15.0～17.0	8.02～8.80	21.3～25.4	250～275	
周辺監視区域境界付近（東通村）	5.10～6.41	5.58～6.73	3.63～4.03	<6.68～9.65	137～163	7.94～9.17	6.87～8.34	3.38～3.64	9.41～11.2	215～233	7.94～9.17	6.87～8.34	3.38～3.64	9.41～11.2	215～233	
小田野沢（東通村）	<5.13～9.04	<4.14～7.21	3.11～4.10	<5.93～9.11	116～138	8.14～8.68	6.27～9.18	3.82～3.99	11.4～11.8	184～197	8.14～8.68	6.27～9.18	3.82～3.99	11.4～11.8	184～197	
川内町中道（むつ市）	6.17～10.4	<4.82～11.6	5.14～7.12	14.2～16.4	156～188	20.2～21.6	16.3～17.5	9.45～10.8	26.7～31.3	278～314	20.2～21.6	16.3～17.5	9.45～10.8	26.7～31.3	278～314	
水川目（むつ市）	7.58～11.8	9.04～11.1	4.31～4.92	<6.44～13.6	137～155	6.34～9.45	6.27～7.24	2.69～4.65	8.19～14.0	136～164	6.34～9.45	6.27～7.24	2.69～4.65	8.19～14.0	136～164	
浜ノ平（東通村）	9.69～11.4	8.11～8.48	4.20～6.11	11.4～14.3	151～164	15.3～16.4	12.6～14.3	7.46～8.24	20.3～24.1	237～258	15.3～16.4	12.6～14.3	7.46～8.24	20.3～24.1	237～258	
関根（むつ市）	10.8～15.5	<5.04～12.2	6.22～7.73	16.2～19.2	178～190	18.9～20.5	15.0～18.0	8.57～10.3	24.9～32.8	296～326	18.9～20.5	15.0～18.0	8.57～10.3	24.9～32.8	296～326	

※1「<数値」は、検出限界未満を示す。

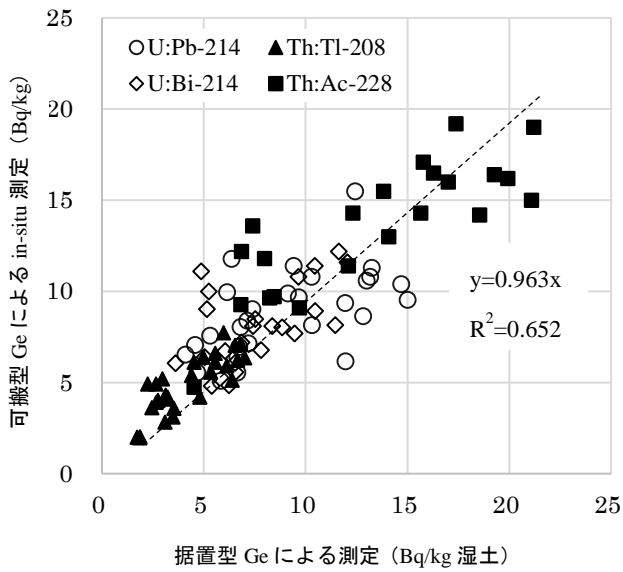
※2明神平（横浜町）の可搬型Geによるin-situ測定については、平成30年度及び令和元年度の2年間。



異物率で補正した据置型 Ge による測定との関係
(令和元年度)

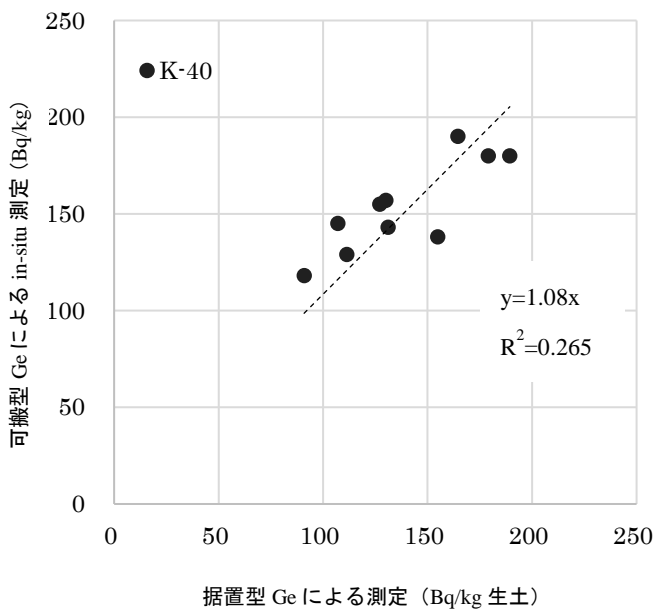


含水率で補正した据置型 Ge による測定との関係
(令和元年度)

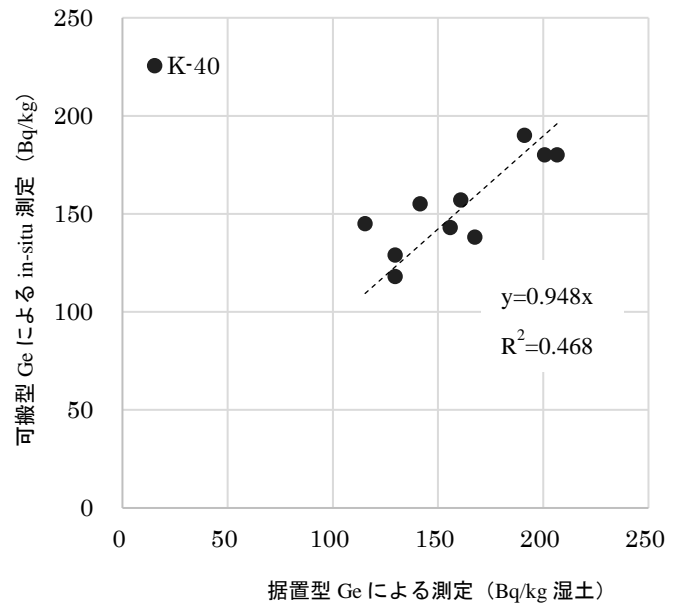


含水率で補正した据置型 Ge による測定との関係
(平成 29 年度から令和元年度)

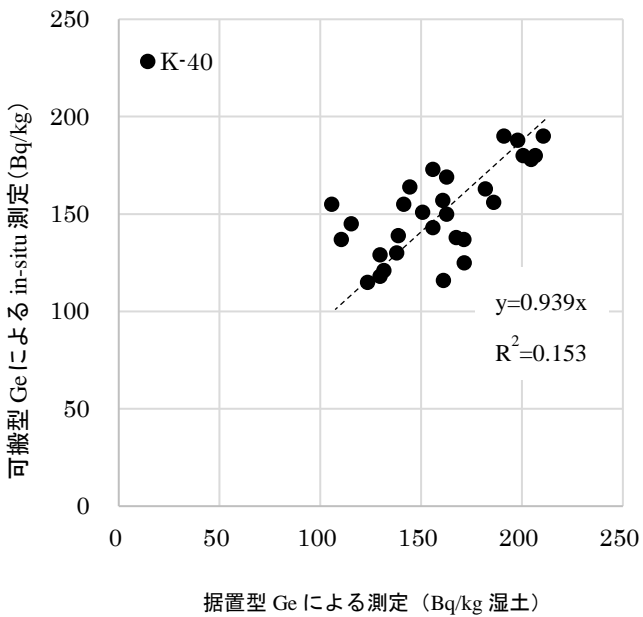
図 2 ウラン系列及びトリウム系列の据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定結果の関係



異物率で補正した据置型 Ge による測定との関係
(令和元年度)



含水率で補正した据置型 Ge による測定との関係
(令和元年度)



含水率で補正した据置型 Ge による測定との関係
(平成 29 年度から令和元年度)

図 3 K-40 の据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定結果の関係

3.2 土壌中の人工放射性物質濃度 (Cs-137)

可搬型 Ge による in-situ 測定において、人工放射性物質の濃度は土壌中で指数分布しているものとして、単位面積当たりで算出される。このため、据置型 Ge による測定結果を土壌採取器の採取面積と前処理後の乾土の全重量を用いて、(4)式により沈着量 (Bq/m²) に換算し、両者の測定値を比較した。

$$\text{沈着量(Bq/m}^2\text{)} = \text{濃度(Bq/kg 乾土)} \times \text{乾土全重量(kg)} \div \text{採取面積(m}^2\text{)} \cdots (4)$$

表 3 に Cs-137 の平成 29 年度から令和元年度の可搬型 Ge による in-situ 測定及び据置型 Ge による測定結果を示す。Cs-137 の可搬型 Ge による in-situ 測定結果は、< 127~810 Bq/m²の範囲であった。

図 4 に Cs-137 の据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定結果の関係を示す。Cs-137 についての近似直線の傾きと決定係数 R²は 1.68、0.159 であり、据置型 Ge による測定結果と比べ、可搬型 Ge による in-situ 測定結果が 1.7 倍程度高く、決定係数 R²も低かった。2.3(1)に示したとおり、今回、表土試料採取に併せて深度分布調査を行っていないことから、可搬型 Ge による in-situ 測定の解析条件として、β (重量緩衝深度) = 4.85 g/cm² (β=p/α) の指数分布を仮定したが、木村らの調査報告^りにもあるとおり、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寄与や、大気圏内核実験に起因するフォールアウト後の客土又はかく乱などにより、実際の β (重量緩衝深度) は青森県においても地点により異なり、一律に適用することは難しいと考えられる。特に、明神平 (横浜町) の可搬型 Ge による in-situ 測定結果が、据置型 Ge による測定結果の 3.3~3.5 倍程度高いが、吹越らにより明神平 (横浜町) の表層 0~20 cm までのスクレーパープレートによる深度分布が報告³⁾されており、同地点の Cs-137 濃度は下層に行くにしたがって高くなっている (図 5)。2.3(1)に示すとおり、人工放射性核種は鉛直方向に指数関数分布していることを仮定しており、同地点はこの仮定と大きく異なることから、他地点と異なる傾向を示したと考えられる。

表3 Cs-137の可搬型Geによるin-situ測定及び据置型Geによる測定結果
(平成29年度から令和元年度)

地点名(市町村)	可搬型Geによるin-situ測定※1 (Bq/m ²)	据置型Geによる測定 (Bq/m ²)
尾駁(六ヶ所村)	227~311	75.3~136
千歳平(六ヶ所村)	<196~214	92.0~115
明神平(横浜町)	701, 810	174~229
宮田(青森市)	<127~190	63.4~125
周辺監視区域境界付近 (東通村)	151~298	112~137
小田野沢(東通村)	204~385	135~215
川内町中道(むつ市)	295~415	176~237
水川目(むつ市)	312~490	293~311
浜ノ平(東通村)	307~350	177~257
関根(むつ市)	339~450	256~334

※1「< 数値」は、検出限界未満を示す。

※2 横浜町明神平の可搬型Geによるin-situ測定については、平成30年度及び令和元年度の2年間。

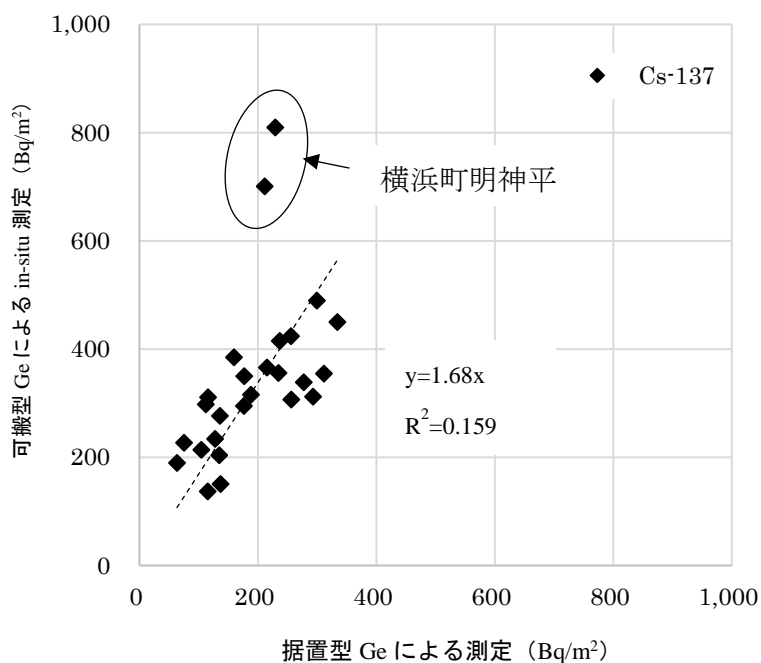


図4 Cs-137の可搬型Geによるin-situ測定及び据置型Geによる測定結果の関係

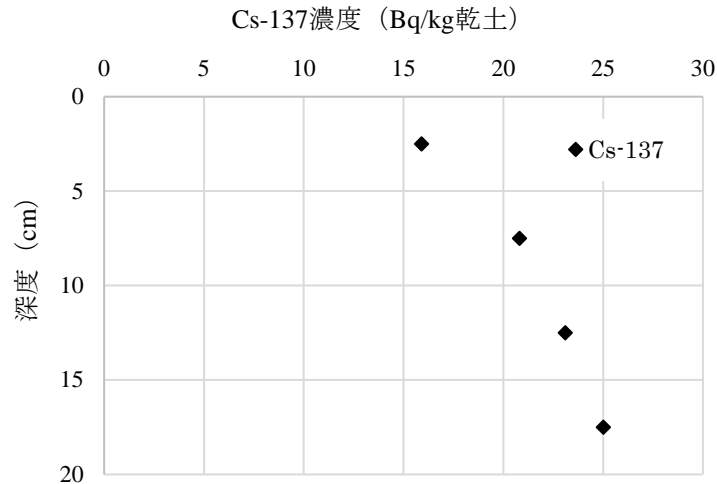


図5 吹越らの報告による明神平（横浜町）のCs-137の深度分布（平成26年度）

4. まとめ

- 平成29年度から令和元年度のモニタリングの表土中 γ 線放出核種濃度調査において、可搬型Geによるin-situ測定結果は、Pb-214が $<5.13\sim 15.5$ Bq/kg、Bi-214が $<2.90\sim 12.2$ Bq/kg、Tl-208が $1.97\sim 7.73$ Bq/kg、Ac-228が $<4.91\sim 19.2$ Bq/kg、K-40が $115\sim 190$ Bq/kgの範囲であった。また、ウラン系列及びトリウム系列については、異物率及び含水率で補正した場合ともに決定係数 R^2 が高く、異物率で補正した場合、より高かった。一方、K-40については、ウラン系列及びトリウム系列と比べ異物率及び含水率で補正した場合ともに決定係数 R^2 が低く、異物率で補正した場合、より低かった。
- Cs-137の可搬型Geによるin-situ測定結果は、 $<127\sim 810$ Bq/m²の範囲であった。Cs-137についての近似直線の傾きと決定係数 R^2 は1.68、0.159であり、据置型Geによる測定結果と比べ、可搬型Geによるin-situ測定結果が1.7倍程度高く、決定係数 R^2 も低かった。特に明神平（横浜町）において、可搬型Geによるin-situ測定結果が、据置型Geによる測定結果の3.3～3.5倍程度高かった。

文 献

- 木村芳伸、五十嵐飛鳥、工藤達晃、工藤翔、赤石新、松山大、木村秀樹：青森県原子力センター所報,第11号,19-36(2016)
- 社団法人 日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳（11版）,10-11(2011)
- 吹越恵里子、檜山宝孝、木村芳伸：青森県原子力センター所報,第13号,29-36(2018)

大気浮遊じん中のベリリウム-7、鉛-210の季節変動

檜山宝孝 安積 潔 吹越恵里子 木村芳伸

1. はじめに

青森県では、環境放射線モニタリング（以下「モニタリング」という。）の一環として、大気浮遊じん中の γ 線放出核種を調査対象としており、Cs-137等の人工放射性核種のほかに、Be-7等の天然放射性核種濃度を測定している。

大気中のBe-7は主に成層圏で大気成分である窒素または酸素と宇宙線の核破壊反応により生成され、エアロゾルに付着して存在している。一方、大気中のPb-210は、U-238を起源として地表から大気中に放出されたRn-222の壊変生成物であり、地表付近で生成された後、エアロゾルに付着して存在している。両核種は生成起源が異なるにも関わらず、類似した季節変動をすることが報告¹⁾⁶⁾されている。

本県では、モニタリングの一環として、大気浮遊じん中の全 α 及び全 β 放射能の連続測定を行っており、その測定結果は天然放射性核種の影響により、大きく変動する。よって、天然放射性核種濃度の季節変動を把握することはモニタリング結果の解釈に有益であると考えられることから、平成28年1月から令和元年12月の大気浮遊じん中のBe-7及びPb-210の測定結果を取りまとめるとともに、両核種の季節変動や相関について考察を行った。

2. 調査方法

2.1 試料採取地点

試料採取地点は図1のとおりであり、東通原子力発電所周辺の東通村小田野沢、東通村老部及びむつ市近川の3地点である。

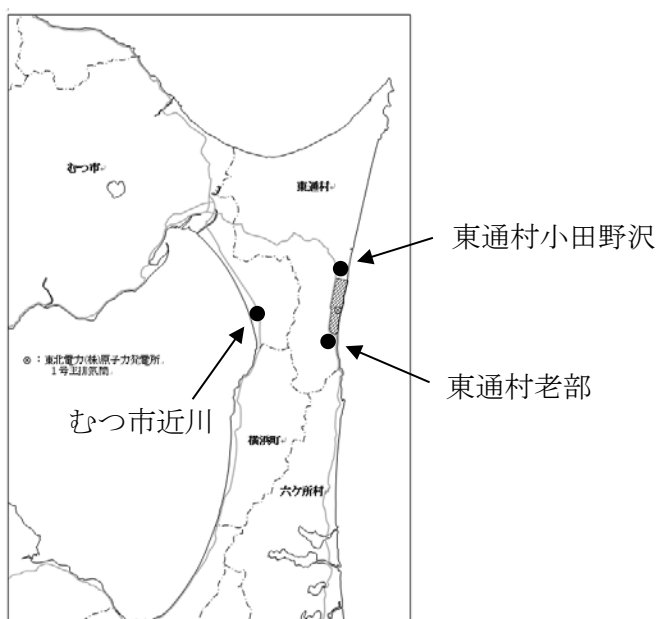


図1 試料採取地点

2.2 試料採取及び前処理方法

試料採取方法については、放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」(文部科学省 昭和 58 年)に準拠し、3 時間集じんのろ紙間欠自動移動方式とし、大気吸引量は約 200 L/min、1 ヶ月間の連続吸引とした。集じんろ紙は、HE-40T 長尺ろ紙を用いた。

前処理方法については、同測定法シリーズに準拠し、ろ紙のじん埃付着部以外の部分を適当な大きさに切り除いた。その後、105°C で 1 時間以上乾燥した後、450°C で 24 時間灰化した。

2.3 測定方法、解析方法及び測定機器

(1) γ 線放出核種分析

放射能測定法シリーズ 7「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」(文部科学省 平成 4 年改訂)に準拠し、試料を U-8 容器に充填し、測定した。

Be-7 については、478 keV のピークを用いて解析し、測定時間は 80,000 秒とした。ゲルマニウム半導体検出器は、ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社製 GC4020 を用いた。また、効率校正については、公益財団法人 日本アイソトープ協会製の Cd-109、Co-57、Ce-139、Cr-51、Sr-85、Cs-137、Mn-54、Y-88、Co-60 の 9 核種混合標準を使用した。

Pb-210 については、46.5 keV のピークを用いて解析し、測定時間は 40,000~60,000 秒とした。ゲルマニウム半導体検出器は、ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社製の低エネルギー領域まで測定可能なブロードエネルギーゲルマニウム半導体検出器 BE3820 を用いた。効率校正については、同 9 核種混合標準に含まれる核種の γ 線エネルギーに Pb-210 (46.5 keV) のエネルギー領域を含まないことから、近傍に γ 線エネルギーを持つ I-129 (39.6 keV) を既知量添加した試料を測定し、同 9 核種混合標準による測定結果と合わせた効率曲線を用いた。

(2) 全 α 及び全 β 放射能測定

放射能測定法シリーズ 1「全ベータ放射能測定法」(文部科学省 昭和 51 年改訂)に準拠し、測定時間は集じん終了直後 10 分間とした。測定器は株式会社日立製作所製 ADC-121R5 を用いた。

3. 調査結果

3.1 Be-7 の季節変動及び採取地点間による比較

図 2 に平成 28 年 1 月から令和元年 12 月までの大気浮遊じん中 Be-7 濃度の推移を、表 1 に同期間の大気浮遊じん中 Be-7 濃度の平均値、最小値及び最大値を示す。大気浮遊じん中 Be-7 濃度は、春頃と秋頃に増加し、夏頃に低下する季節変動を示していた。大気浮遊じん中 Be-7 濃度は $1.25 \pm 0.03 \sim 6.42 \pm 0.06$ mBq/m³ の範囲であり、平均濃度は約 3.8 mBq/m³ であった。赤田らにより 2000 年 7 月から 2006 年 3 月の六ヶ所村における大気浮遊じん中 Be-7 濃度が、1.28~6.90 mBq/m³ の範囲、平均濃度 4.15 mBq/m³ であることが報告⁴⁾されており、今回の測定結果と同程度であった。また、季節変動についても、同様の変動パターンであった。

図 3 に各地点間の大気浮遊じん中 Be-7 濃度の関係を示す。近似直線の傾きは 0.996~1.00、決定係数 R² は 0.974~0.984 の範囲であり、各地点の測定値はよく一致していた。これらは、成層圏の Be-7 の生成率や成層圏と対流圏の間での大気交換は緯度に依存しており^{3),7)}、下北半島における広域的な現象によるものと考えられる。

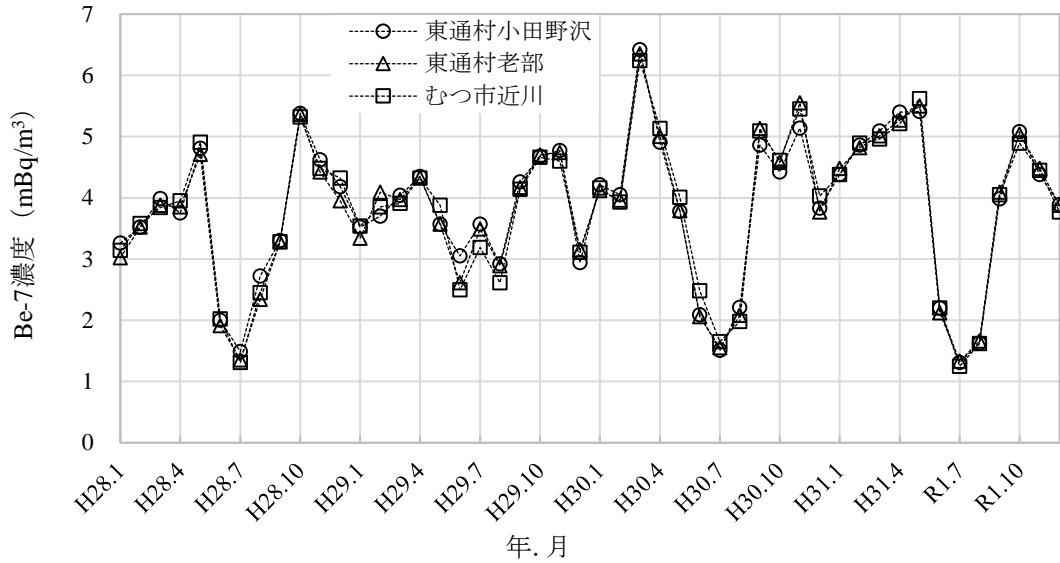


図2 大気浮遊じん中 Be-7 濃度の推移（平成 28 年 1 月から令和元年 12 月）

表 1 大気浮遊じん中 Be-7 の平均値、最小値及び最大値
（平成 28 年 1 月から令和元年 12 月）

地点	Be-7 濃度 (mBq/m ³)		
	平均値	最小値	最大値
東通村小田野沢	3.81	1.31±0.03	6.42±0.06
東通村老部	3.79	1.33±0.03	6.35±0.06
むつ市近川	3.81	1.25±0.03	6.24±0.06

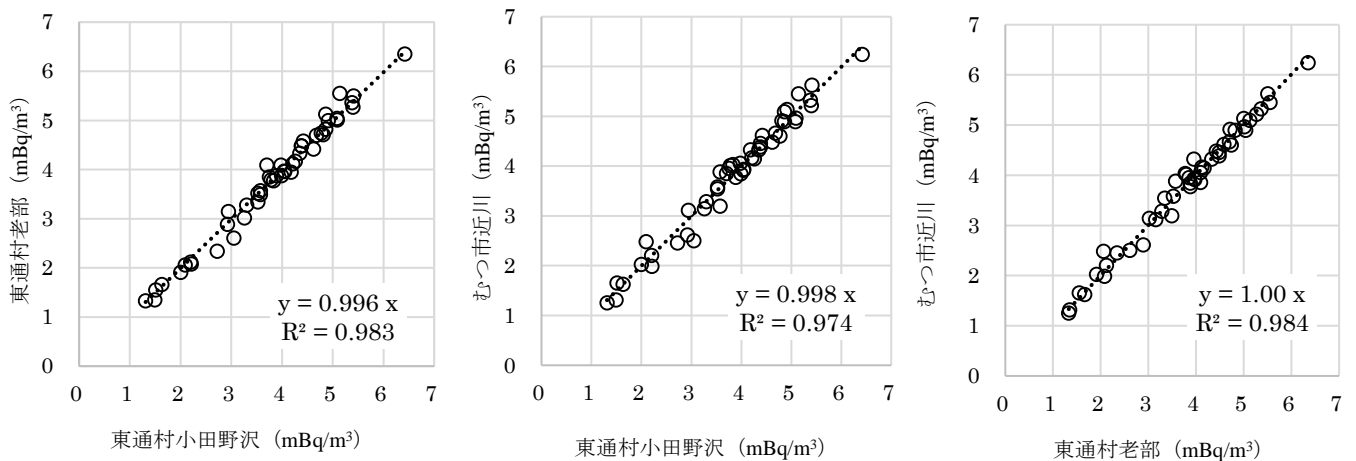


図3 各地点間の大気浮遊じん中 Be-7 濃度の関係

3.2 Pb-210 の季節変動及び採取地点間による比較

図 4 に平成 28 年 1 月から令和元年 12 月までの大気浮遊じん中 Pb-210 濃度の推移を、表 2 に同期間の大気浮遊じん中 Pb-210 濃度の平均値、最小値及び最大値を示す。大気浮遊じん中 Pb-210 濃度は、冬～春頃と秋頃に増加し夏頃に低下する Be-7 と類似した季節変動を示していた。また、

大気浮遊じん中 Pb-210 濃度は $0.226 \pm 0.022 \sim 1.32 \pm 0.04 \text{ mBq/m}^3$ の範囲であり、平均濃度は約 0.70 mBq/m^3 であった。赤田らにより 2000 年 7 月から 2006 年 3 月の六ヶ所村における大気浮遊じん中 Pb-210 濃度が、 $0.18 \sim 2.17 \text{ mBq/m}^3$ の範囲、平均濃度 1.01 mBq/m^3 であることが報告⁴⁾されており、同報告と比較した場合、今回の測定結果はやや低めの傾向であったがおおよそ一致しており、季節変動については同様の変動パターンであった。

図 5 に各地点間の大気浮遊じん中 Pb-210 濃度の関係を示す。近似直線の傾きは $0.981 \sim 1.00$ 、決定係数 R^2 は $0.971 \sim 0.982$ の範囲であり、Be-7 と同様に各地点間の測定値はよく一致していた。

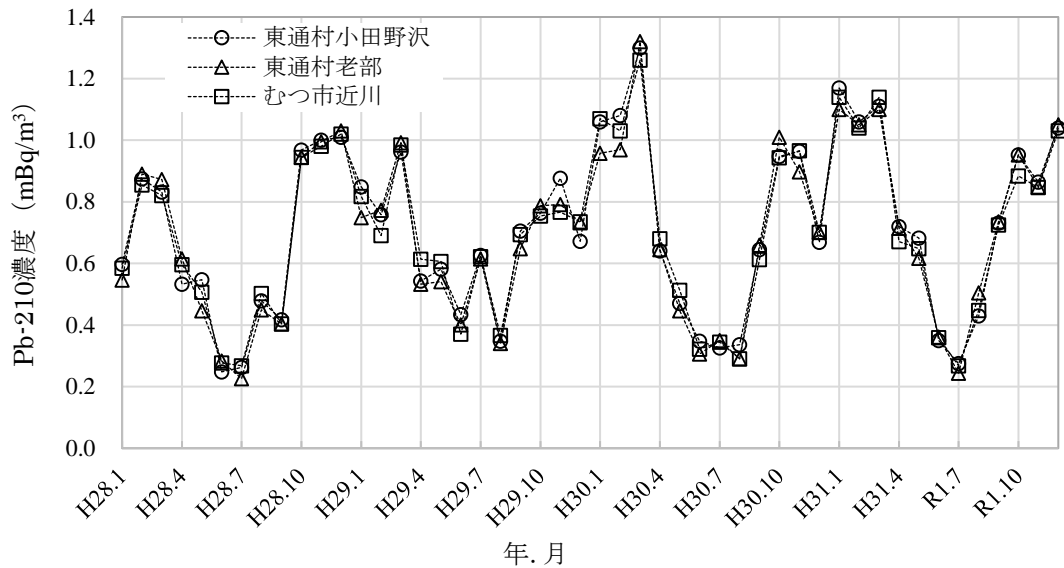


図 4 大気浮遊じん中 Pb-210 濃度の推移（平成 28 年 1 月から令和元年 12 月）

表 2 大気浮遊じん中 Pb-210 の平均値、最小値及び最大値
（平成 28 年 1 月から令和元年 12 月）

地点	Pb-210 濃度 (mBq/m ³)		
	平均値	最小値	最大値
東通村小田野沢	0.709	0.248 ± 0.023	1.30 ± 0.03
東通村老部	0.696	0.226 ± 0.022	1.32 ± 0.04
むつ市近川	0.702	0.268 ± 0.022	1.26 ± 0.03

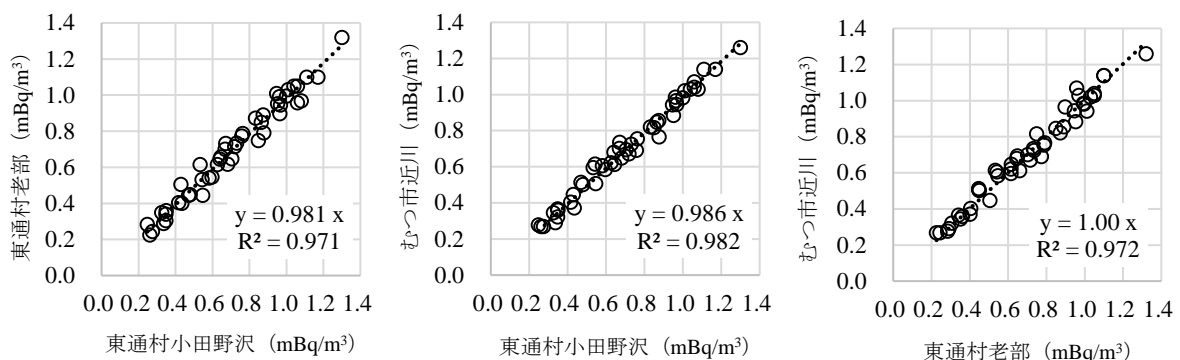


図 5 各地点間の大気浮遊じん中 Pb-210 濃度の関係

3.3 Be-7 及び Pb-210 の関係

3.1 及び 3.2 により、同一時期における各地点間の大気浮遊じん中 Be-7 濃度及び Pb-210 濃度はそれぞれ一致していることから、以降の検討では、東通村小田野沢の測定結果のみを示す。

図 6 に平成 28 年 1 月から令和元年 12 月までの大気浮遊じん中 Be-7 濃度、Pb-210 濃度及び月間降水量の推移を、図 7 に同期間の大気浮遊じん中 Be-7 濃度及び Pb-210 濃度と月間降水量の関係を示す。なお、降水量については、各地点に設置されている気象観測装置による月間値である。

前述したように、大気中の Be-7 及び Pb-210 は生成後、エアロゾルに付着して大気中に存在していることから、降雨雪の影響により、大気中から除去されると考えられるが、Be-7 濃度及び Pb-210 濃度と降水量の決定係数 R^2 は、それぞれ 0.129、0.150 と低かった。

図 8 に平成 28 年 1 月から令和元年 12 月までの大気浮遊じん中 Be-7 濃度及び Pb-210 濃度の関係を示す。Be-7 と Pb-210 は生成起源が異なるものの、類似した季節変動を示し、決定係数 R^2 が 0.583 と高かった。また 3～5 月を春季、6～8 月を夏季、9～11 月秋季、12～2 月を冬季とした場合、Be-7 濃度及び Pb-210 濃度は、特に春季に高く、夏季に低下する傾向にあった。

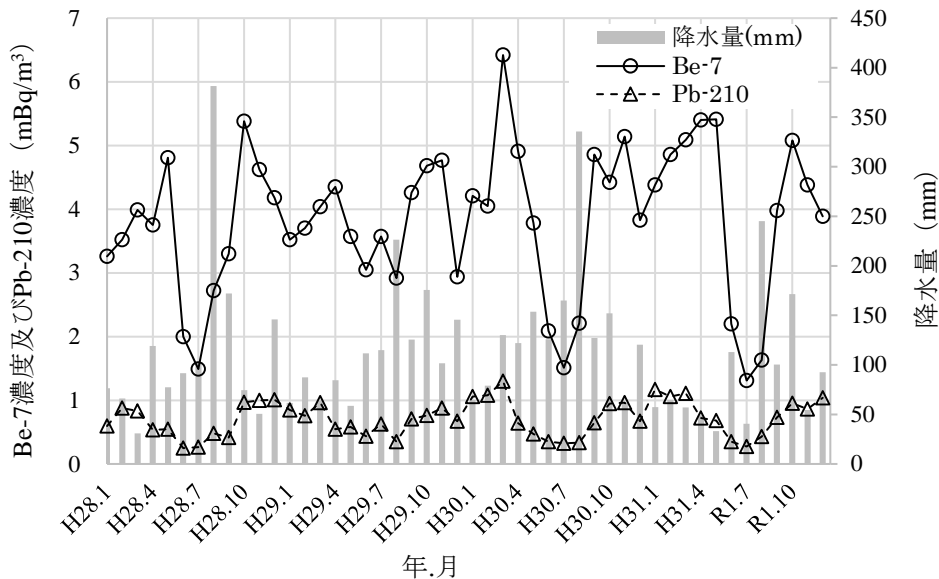


図 6 大気浮遊じん中 Be-7 濃度及び Pb-210 濃度と降水量の推移
(平成 28 年 1 月から令和元年 12 月)

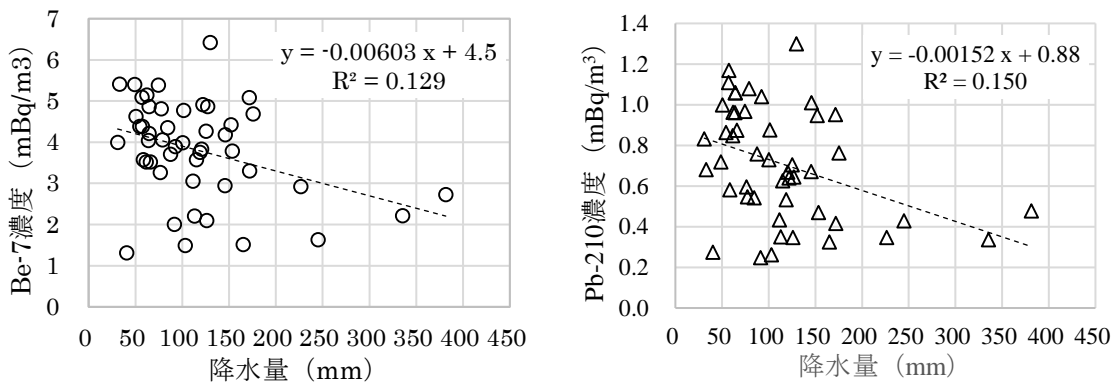


図 7 大気浮遊じん中 Be-7 濃度及び Pb-210 濃度と降水量の関係
(東通村小田野沢 平成 28 年 1 月から令和元年 12 月)

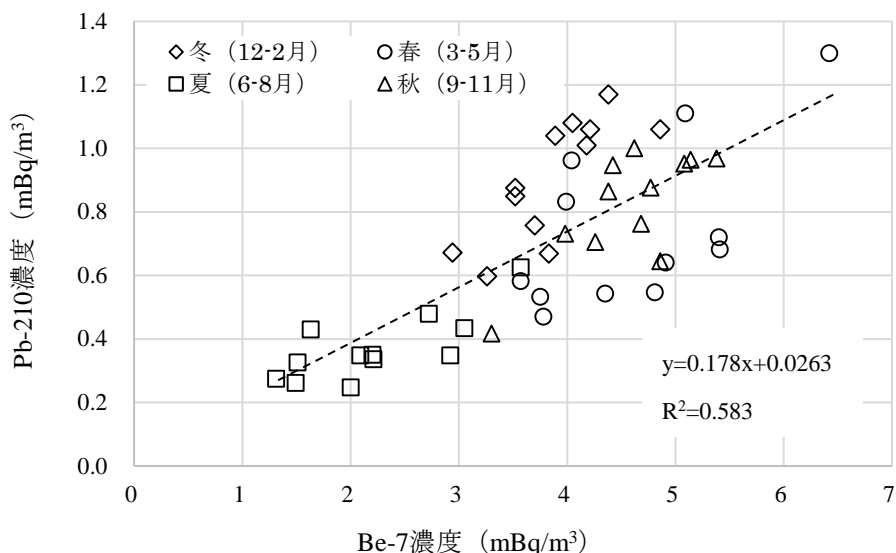


図8 大気浮遊じん中 Be-7 濃度及び Pb-210 濃度の関係
(東通村小田野沢 平成 28 年 1 月から令和元年 12 月)

3.4 全 α 及び全 β 放射能と Pb-210 の関係

図9に平成28年1月から令和元年12月までの大気浮遊じん中全 α 及び全 β 放射能濃度の月間平均値と Pb-210 濃度の関係を示す。大気浮遊じん中に存在する α 線及び β 線を放出する物質は、主に Rn-222 及び Rn-220 の壊変生成物であると考えられる。Pb-210 ($t_{1/2}=22.3$ 年、 β) は Rn-222 の壊変生成物であり、半減期が長く、続く壊変生成物の Bi-210 ($t_{1/2}=5.01$ 日、 β) 及び Po-210 ($t_{1/2}=138$ 日、 α) の半減期も比較的長い。また、Pb-210 の放出する主な β 線最大エネルギーは 0.017 MeV と小さいことから、全 α 及び全 β 放射能への寄与は、Pb-210 より前の親核種及び Rn-220 の壊変生成物の寄与が高いと考えられるが、全 α 及び全 β 放射能濃度の月間平均値と Pb-210 濃度の決定係数 R^2 は、それぞれ 0.703、0.710 と高かった。

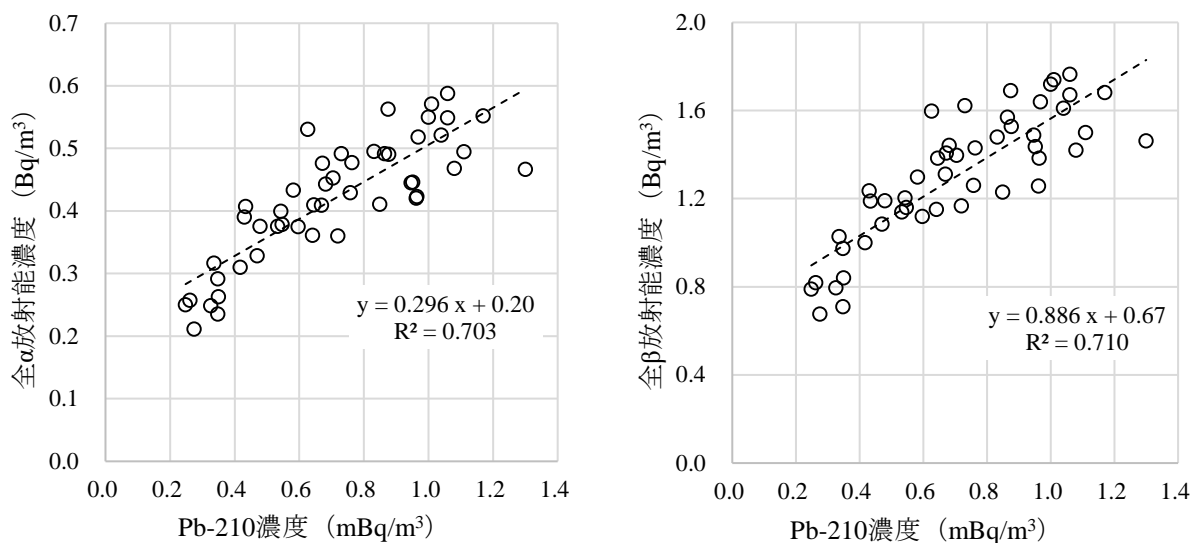


図9 大気浮遊じん中全 α 及び全 β 放射能濃度の月間平均値と Pb-210 濃度の関係
(東通村小田野沢 平成 28 年 1 月から令和元年 12 月)

4. まとめ

- 1) 平成 28 年 1 月から令和元年 12 月の大気浮遊じん中 Be-7 濃度は、春頃と秋頃に増加し、夏頃に低下する季節変動を示していた。また、大気浮遊じん中 Be-7 濃度は $1.25 \pm 0.03 \sim 6.42 \pm 0.06$ mBq/m³ の範囲であり、平均濃度は約 3.8 mBq/m³ であり、各地点間の近似直線の傾きは 0.996～1.00、決定係数 R² は 0.974～0.984 の範囲であった。
- 2) 大気浮遊じん中 Pb-210 濃度は、冬～春頃と秋頃に増加し、夏頃に低下する季節変動を示していた。また、大気浮遊じん中 Pb-210 濃度は $0.226 \pm 0.022 \sim 1.32 \pm 0.04$ mBq/m³ の範囲であり、平均濃度は約 0.70 mBq/m³ であり、各地点間の近似直線の傾きは 0.981～1.00、決定係数 R² は 0.971～0.982 の範囲であり、Be-7 と同程度であった。
- 3) Be-7 濃度及び Pb-210 濃度と月間降水量の決定係数 R² は、それぞれ 0.129、0.150 と低かった。Be-7 と Pb-210 は生成起源が異なるものの、類似した季節変動を示し、決定係数 R² が 0.583 と高かった。また、Be-7 濃度及び Pb-210 濃度は、特に春季（3～5 月）に高く、夏季（6～8 月）に低下する傾向にあった。
- 4) 全 α 及び全 β 放射能濃度の月間平均値と Pb-210 濃度の決定係数 R² は、それぞれ 0.703、0.710 と高かった。これは、大気浮遊じん中全 α 及び全 β 放射能濃度に寄与する核種の大部分が Rn-222 の壊変生成物であることを示している。

本測定結果取りまとめに当たり、ご指導及びご助言いただいた国立大学法人弘前大学被ばく医療総合研究所放射線化学部門 赤田教授に深く感謝の意を表します。

文 献

- 1) JunSato, TaekoDoi, ToruSegawa, Shin-ichiSugawara : Seasonal variation of atmospheric concentrations of ²¹⁰Pb and ⁷Be at Tsukuba, Japan, with a possible observation of ²¹⁰Pb originating from the 1991 eruption of Pinatubo volcano, Philippines, *Geochemical Journal*, **28**, 123-129 (1994)
- 2) 土井妙子、佐藤純：つくばにおける大気中 ²¹⁰Pb, ²¹²Pb, ⁷Be 濃度, 第 48 回放射化学討論会 (2004), 118
- 3) 独立行政法人 国立環境研究所：大気中の放射性核種濃度モニタリングデータ集 (国立環境研究所 1987-1999), 国立環境研究所研究報告 第 198 号 (平成 20 年 3 月)
- 4) N.Akata, H.Kawabata, H.Hasegawa, T.Sato, Y.Chikuchi, K.Kondo, S.Hisamatsu, J.Inaba : Total deposition velocities and scavenging ratios of ⁷Be and ²¹⁰Pb at Rokkasho, Japan, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **277**, 347-355 (2008)
- 5) 石川県環境保健センター：降下物と大気浮遊じん中の放射性核種濃度の変動, 東京電力 (株) 福島第一原子力発電所事故を踏まえた石川県内環境放射能の動態調査研究報告 (平成 30 年 3 月), 123-141
- 6) 迫田晃弘、田中裕史、神崎訓枝：岡山県人形峠における空気中 ²²²Rn, ²¹⁰Pb, ⁷Be 濃度の変動, 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 (2019)
- 7) W.Viezee, H.B.Singh : The distribution of beryllium-7 in the troposphere : Implications on stratospheric/tropospheric air exchange, *Geophysical Research Letters*, **7**, 805-808 (1980)

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30年度調査結果—

和田浩司 木村芳伸
幸進*1 沼山 聡*1 佐々木耕一*1

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、平常運転においても 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。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、C-14 及び I-129 について調査を開始した。平成20年度からは I-131 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、平成26年度からは OBT をすべて非交換型 OBT とし、平成27年度からは海藻の TFWT・OBT を追加して実施している。

本報告は平成30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。これらの調査地点を図1に示す。

海藻試料について、平成27年度から TFWT・非交換型 OBT を分析対象とした。その他については、平成26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。

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」²⁾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、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、これを非交換型有機結合型トリチウム (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。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のち、トリチウム濃度 (Bq/L) を測定した。

*1：日本原燃株式会社

(2)C-14

文部科学省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、C-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 C-14 比放射能と全炭素量から、試料中の C-14 濃度を算出した。

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 30 年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			³ H		¹⁴ C	¹²⁹ I・ ¹³¹ I
			TFWT	非交換型 OBT		
牛乳 (原乳)	六原	4	○	○	○	—
	横浜町	4	○	○	○	—
	二又	4	○	○	○	—
	豊原	4	○	○	○	—
精米	千樽		—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	室ノ久保		—	○	○	—
	二又		—	○	○	—
	戸鎖		—	○	○	—
	平沼		—	○	○	—
ハクサイ	出戸 ^{※1}	1	欠測	欠測	欠測	欠測
	千樽		○	○	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	出戸		○	○	○	—
バレイショ	尾駁		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類 ^{※2}	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 ハクサイ（出戸）については、採取できなかつたため欠測とした。

※2 魚類はヒラメ又はカレイ。

TFWT：組織自由水トリチウム

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）



図1 調査地点図

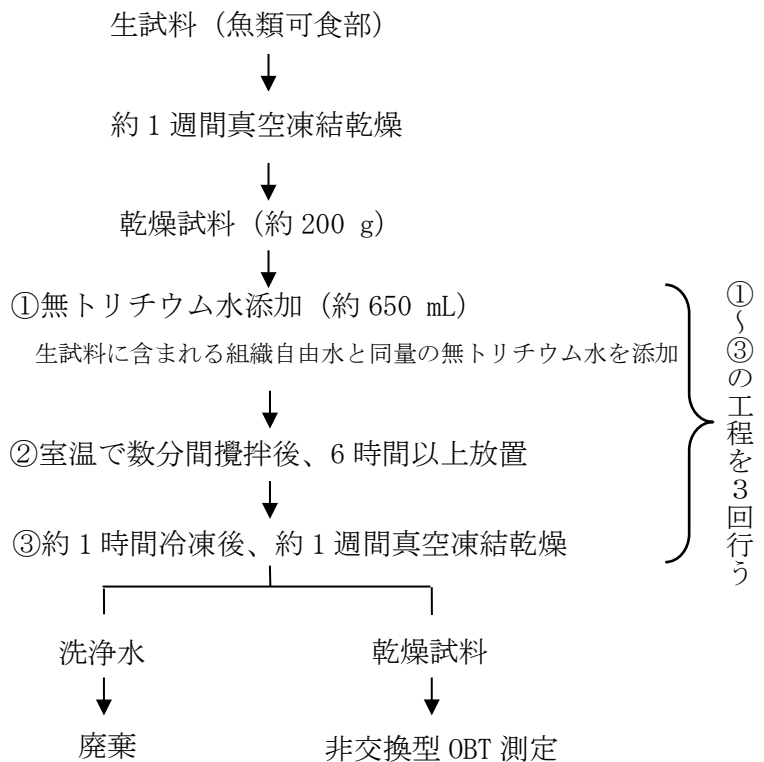


図2 非交換型 OBT の分析工程

(3) I-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素から安定ヨウ素(I-127)測定用試料を分取した後、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 I-129 と I-127 の原子数比を測定した。また、ICP 質量分析法によって安定ヨウ素を定量した。これらによって求めた I-129/I-127 原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中の I-129 濃度を求めた⁴⁾。

(4) I-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」⁵⁾ に準拠し、乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成 18 年 4 月から平成 31 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 年から実施された使用済燃料を用いたアクティブ試験については、試験で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。

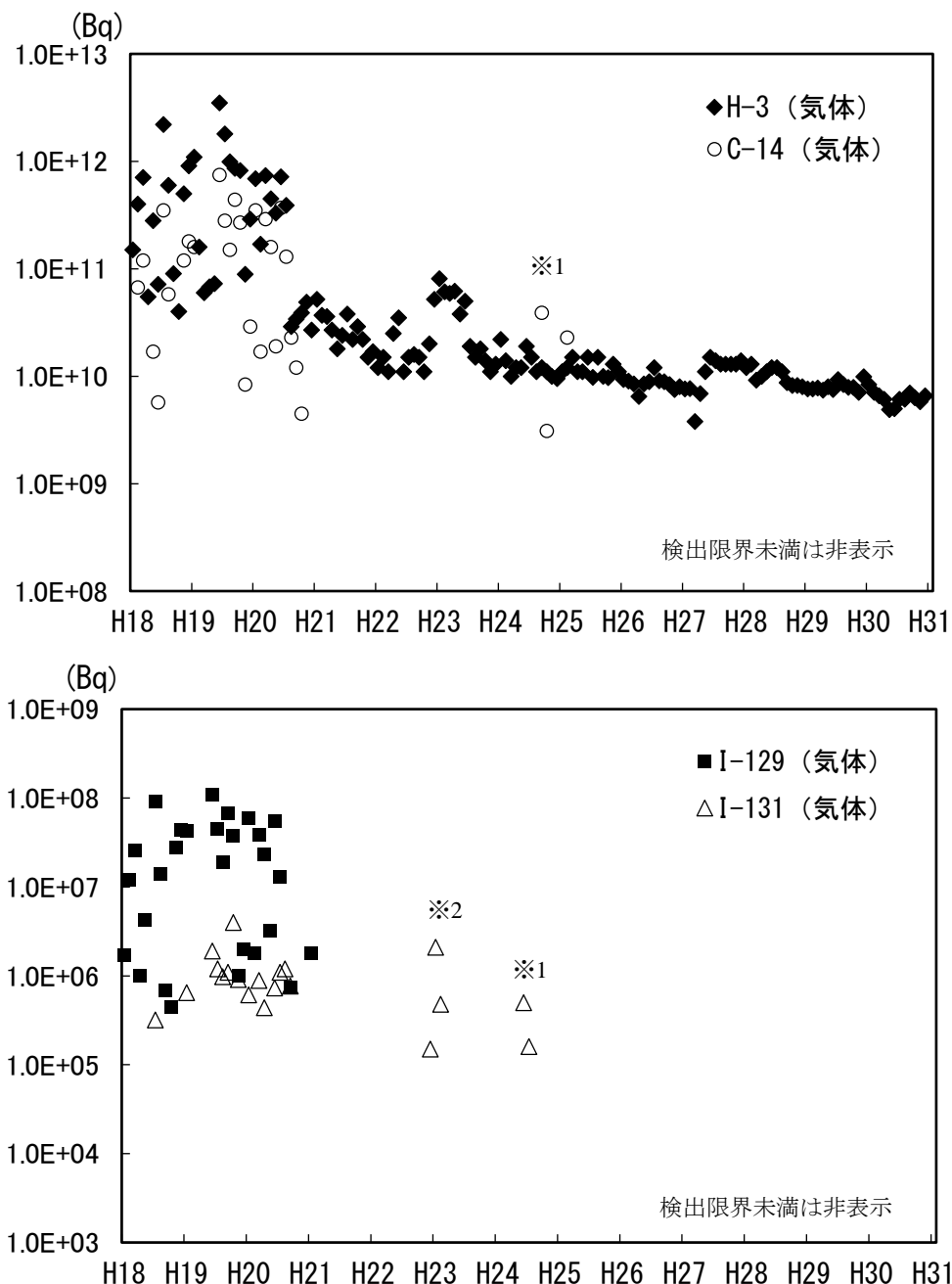


図 3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成 18 年 4 月～平成 31 年 3 月)

※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。

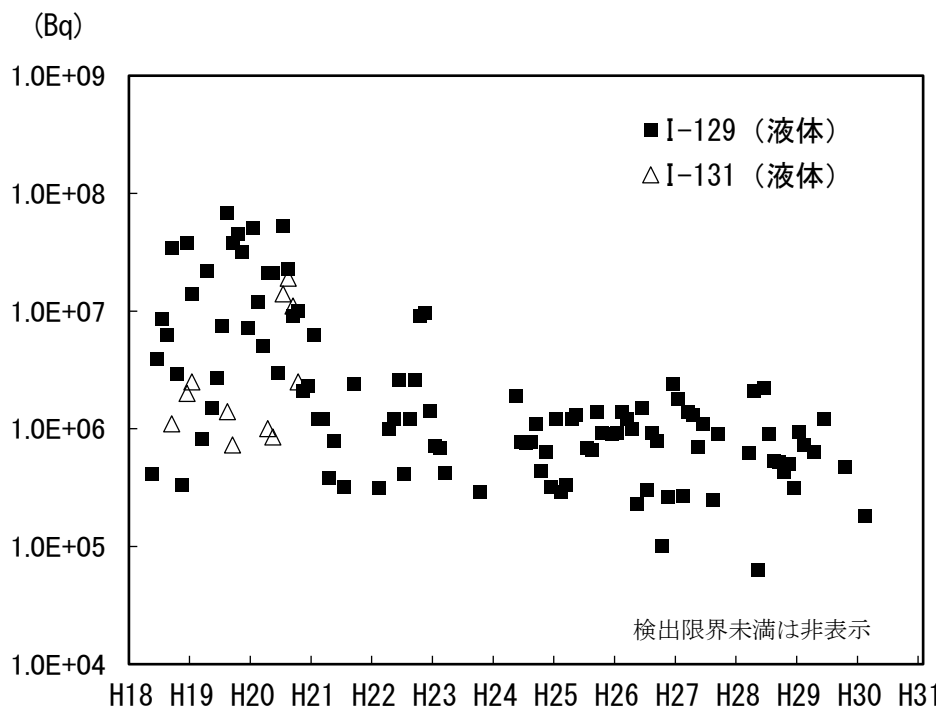
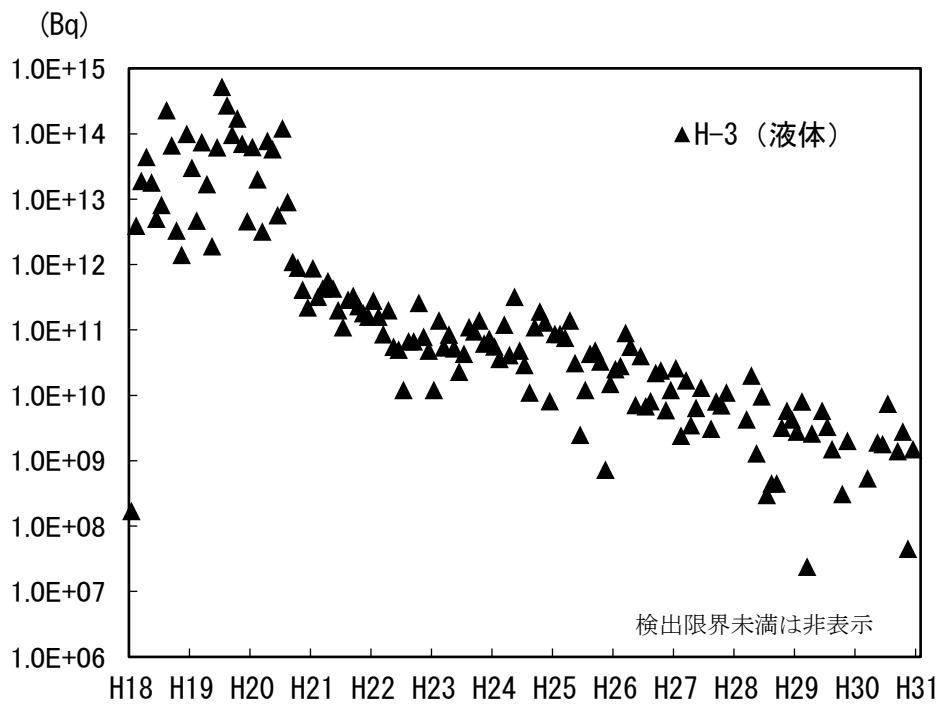


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成31年3月)

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 2 及び図 5 に示す。牛乳についてはTFWT で検出限界以下～0.37 Bq/L、非交換型 OBT で検出限界以下～0.49 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.29 Bq/L であり、牛乳及び飲料水ともにこれまでの測定値の範囲内であった。

表 2 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（平成 30 年度）

採取地点	採取月	平成 30 年度調査結果			(参考)		
		牛乳（原乳）			平成 20～29 年度 調査結果		平成 22～ 29 年度 調査結果
		TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	飲料水 (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT ^{※2} (Bq/L)	飲料水 (Bq/L)
六原 ^{※1}	4 月	*	0.49±0.11	*	*～0.63	*～0.62	*～0.46
	7 月	*	*	*			
	10 月	*	*	*			
	1 月	*	0.45±0.11	*			
横浜町	4 月	*	0.46±0.11	*	*～0.51	*～0.70	*～0.48
	7 月	*	*	0.25±0.08			
	10 月	*	*	*			
	1 月	*	*	*			
二 又	4 月	*	*	*	*～0.58	*～0.63	*～0.29
	7 月	*	*	*			
	10 月	*	*	*			
	1 月	*	0.34±0.11	*			
豊 原	4 月	*	0.34±0.11	0.24±0.06	*～0.73	*～0.77	*～0.59
	7 月	*	*	*			
	10 月	0.37±0.11	*	*			
	1 月	*	0.46±0.11	0.29±0.06			

・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 0.25～0.37 Bq/L、非交換型 OBT で 0.31～0.34 Bq/L、飲料水で 0.18～0.27 Bq/L であった。

※1 平成 25 年度から調査開始

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

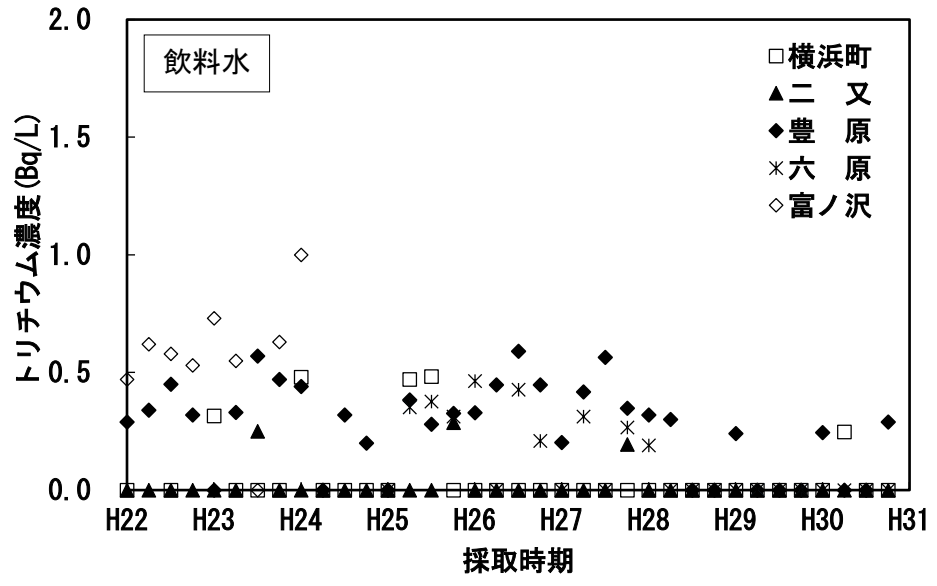
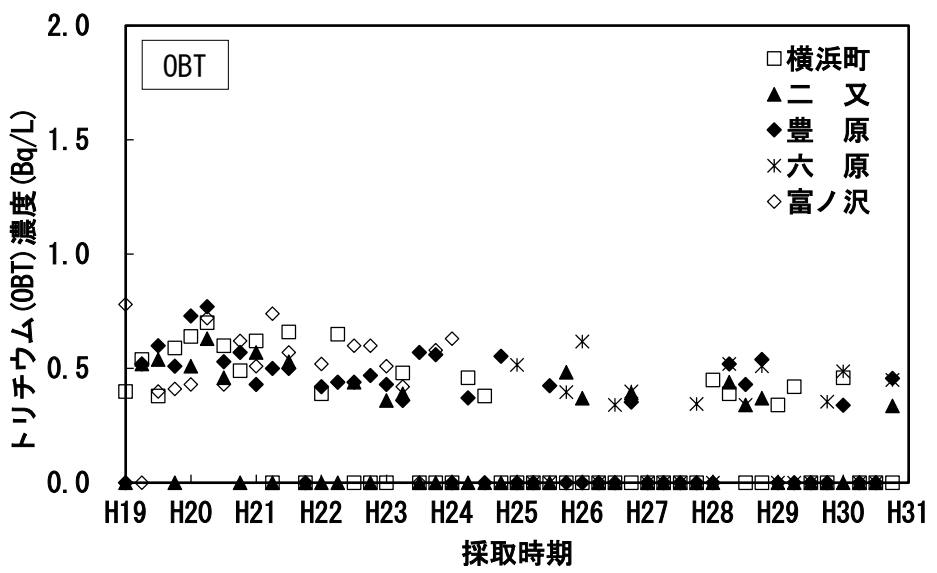
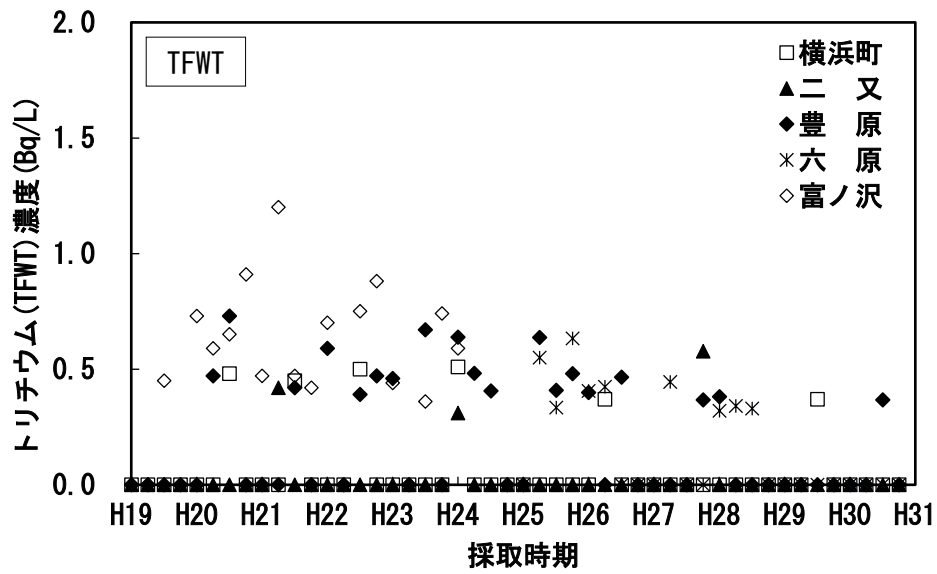


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化
 ※検出限界以下は0としてプロットした。

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3及び図6に示す。精米の非交換型OBTは0.33～0.52 Bq/Lであった。

表3 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (平成30年度)

試料名	採取地点	採取月	平成30年度調査結果	(参考)平成20～29年度調査結果
			非交換型 OBT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)
精米	千樽	10月	0.45±0.11	*～0.50
	野辺地町	9月	0.38±0.11	*～0.53
	室ノ久保 ^{※2}	10月	0.33±0.11	—
	二又	10月	0.43±0.11	*～0.6
	戸鎖	10月	0.52±0.11	*～0.62
	平沼 ^{※3}	10月	0.48±0.11	*

・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、0.32～0.33 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 平成30年度から調査開始

※3 平成25年度から調査開始

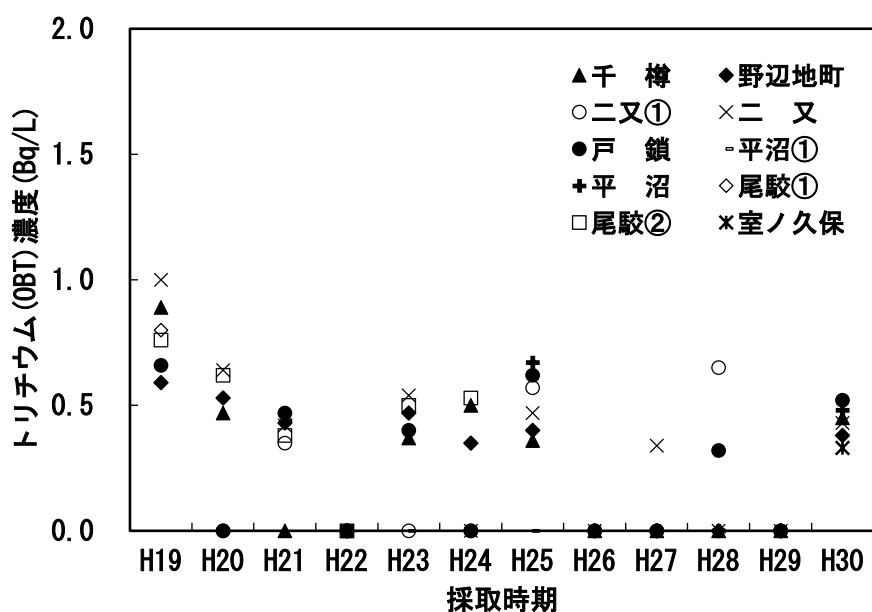


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

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4及び図7に示す。野菜についてはTFWTで検出限界以下～0.77 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.34 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点もあるが、全体的な傾向としては明確でない。

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。東京・千葉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。大気圏内核実験の影響により、降水中のトリチウム濃度は1960年台には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⁾。

※ 青森県実施の環境放射線モニタリング(平成21～30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(0.20～0.54 Bq/L)以下～0.92 Bq/L

雨水：検出限界(0.21～0.39 Bq/L)以下～1.2 Bq/L

表4 野菜のトリチウム(TFWT、OBT)濃度(平成30年度)

試料名	採取地点	採取月	平成30年度調査結果		(参考)平成20～29年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT** (Bq/L)
ハクサイ	出戸	10月	欠測	欠測	*～0.69	*～0.78
	千樽	10月	0.50±0.09	*	*～0.89	*～0.68
キャベツ	横浜町	10月	0.77±0.11	*	*～0.70	*～0.79
ダイコン	出戸	10月	*	0.34±0.11	*～0.58	*～0.68
バレイショ	尾駸	8月	0.62±0.09	*	0.41～0.88	*～0.72
ナガイモ	東北町	12月	0.42±0.11	*	*～0.66	*～0.62
	平沼	11月	*	*	*～0.63	*～0.79

・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0.27～0.34 Bq/L、OBTで0.32～0.34 Bq/Lであった。

※ 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。

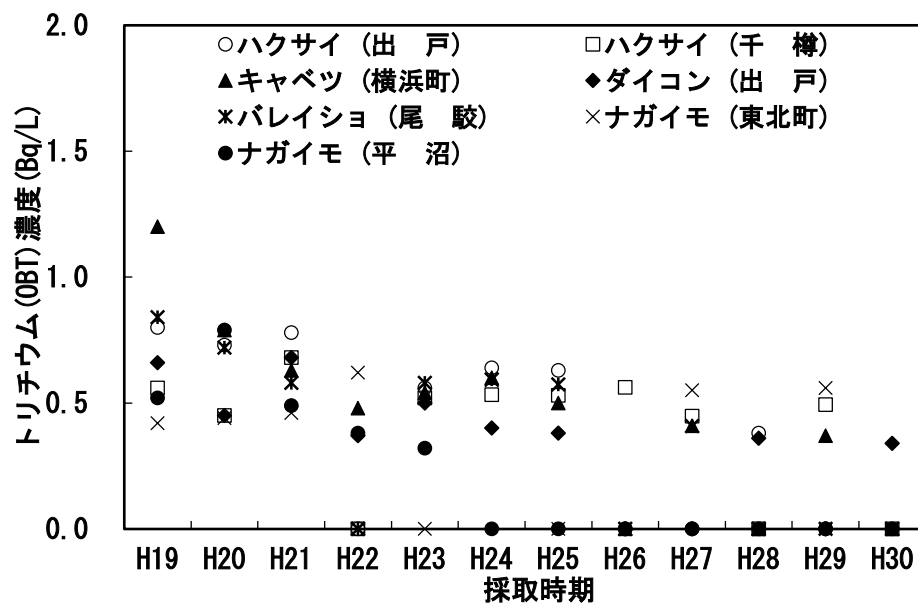
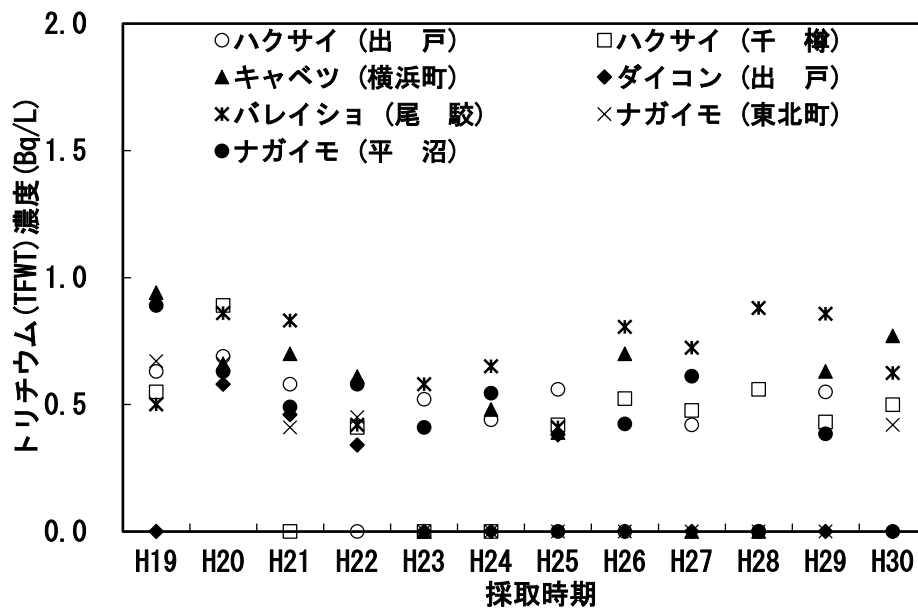


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化
 ※検出限界以下は0としてプロットした。

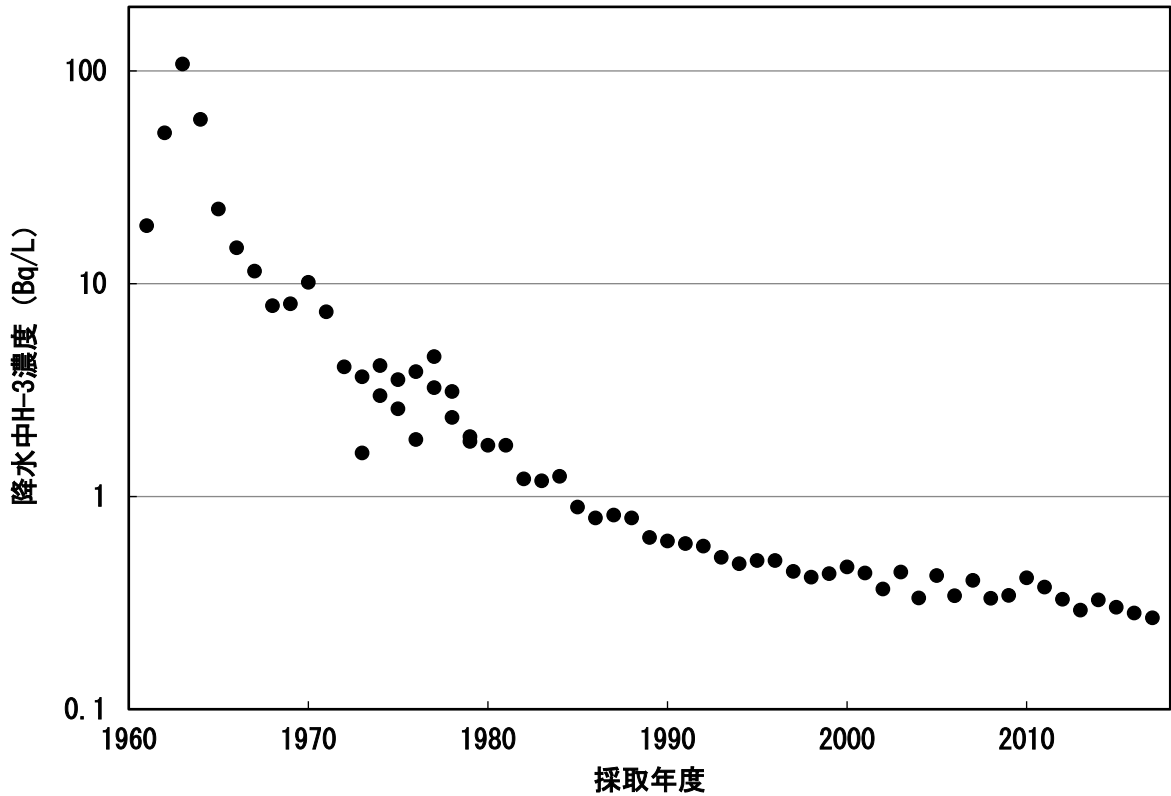


図8 東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・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放射線医学総合研究所
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」
- 1961～1979年度 東京・気象庁
- 1973～1979年度 千葉市稲毛区穴川
- 1979～2007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」
- 1.調査対象：大気
- 2.調査年度：2007年度～
- 3.調査地域：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
- 2007～2017年度 千葉市稲毛区山王町

海洋試料である魚類（ヒラメ等）の測定結果を表5及び図9に示す。TFWTはすべて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。平成21年度から調査を開始した非交換型OBTについては、検出限界以下～0.34 Bq/Lであり、平成24年度まで検出限界以下であったが、平成25～30年度と続けて、検出限界を超える試料が出ている。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1～0.2 Bq/L程度と報告されている⁸⁾。

平成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6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5 魚類（ヒラメ等）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成30年度）

試料名	採取地点	採取月	魚種	平成30年度調査結果		(参考)平成20～29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①	6月	ヒラメ	*	*	*～3.3	*～1.4	*～0.38
		8月		*	0.34±0.11			
		10月		*	*			
		12月		*	*			
	六ヶ所村 前面海域②	6月	ヒラメ	*	*	*～0.46	*～0.77	*～0.49
		8月	〃	*	*			
		10月	〃	*	*			
		2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。なお検出限界は、TFWTで0.32～0.34 Bq/L、非交換型OBTで0.32～0.37 Bq/Lであった。

※六ヶ所村前面海域② 2月採取分の魚種はマガレイ及びムシガレイ（地方名：ミズクサガレイ）。

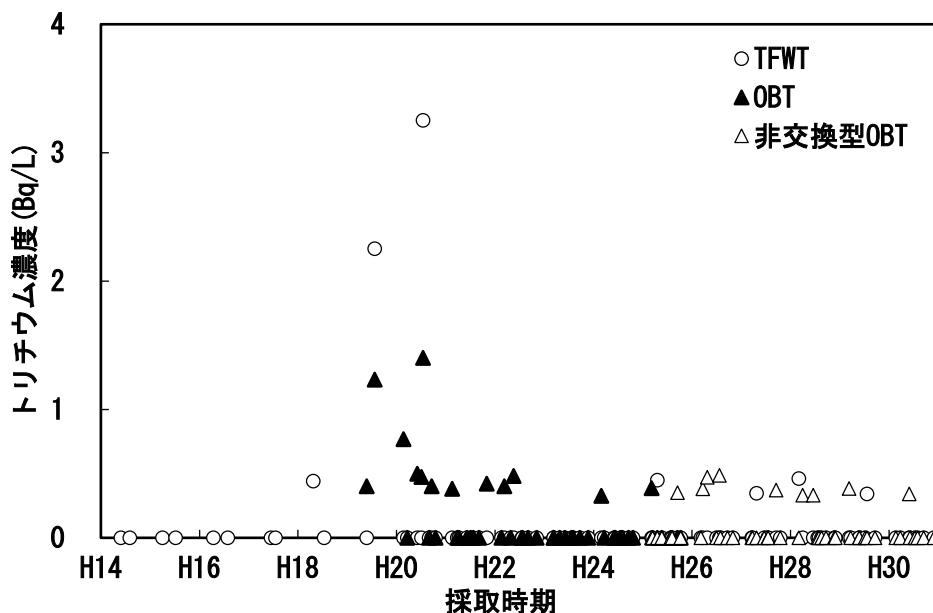


図9 魚類（ヒラメ等）におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT、非交換型OBT)の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

※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。

表 6 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成 30 年度）

試料名	採取地点	採取月	平成 30 年度調査結果		平成 27～29 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①	9 月	*	*	*	*~0.42
		10 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。なお検出限界は、TFWT で 0.25～0.32 Bq/L、非交換型 OBT で 0.33～0.37 Bq/L であった。

4.2 C-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物の C-14 比放射能の測定結果は表 7 に示すとおり、精米が 0.230～0.234 Bq/g 炭素、葉菜が 0.228～0.232 Bq/g 炭素、根菜・いも類が 0.230～0.242 Bq/g 炭素であった。

図 10 に環境放射線モニタリングで測定しているこれらの試料の C-14 比放射能の推移を示す。C-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 C-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 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。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 年度から平成 30 年度までの期間に得られた C-14 比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値 0.228 Bq/g 炭素⁹⁾を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源の C-14 の半減時間を求めると 8.5 年となり、これは府馬ら¹⁰⁾による核実験起源の C-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 年度及び平成 22 年度から平成 30 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当該期間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 30 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 $\pm 3\sigma$ の範囲内にあった。

表 7 農産物の C-14 比放射能 (平成 30 年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	H30 年度調査結果	(参考) H20～29 年度調査結果
				(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
米	精米	千 樽	10 月	0.230 ± 0.003	0.229 ～ 0.240
		野辺地町	10 月	0.230 ± 0.003	0.229 ～ 0.241
		室ノ久保 ^{※1}	10 月	0.233 ± 0.003	—
		二 又	10 月	0.234 ± 0.003	0.229 ～ 0.250
		戸 鎖	10 月	0.232 ± 0.003	0.231 ～ 0.247
		平 沼 ^{※2}	10 月	0.231 ± 0.003	0.231 ～ 0.234
葉菜	ハクサイ	出 戸 ^{※3}	10 月	欠測	0.227 ～ 0.240
		千 樽	10 月	0.232 ± 0.003	0.230 ～ 0.243
	キャベツ	横浜町	10 月	0.228 ± 0.003	0.227 ～ 0.240
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	10 月	0.231 ± 0.003	0.228 ～ 0.239
	バレイショ	尾 駁	8 月	0.230 ± 0.003	0.225 ～ 0.244
	ナガイモ	東北町	11 月	0.234 ± 0.003	0.225 ～ 0.239
		平 沼	11 月	0.242 ± 0.003	0.230 ～ 0.249

※1 平成 30 年度から調査開始

※2 平成 25 年度から調査開始

※3 ハクサイ (出戸) については、採取できなかつたため欠測とした。

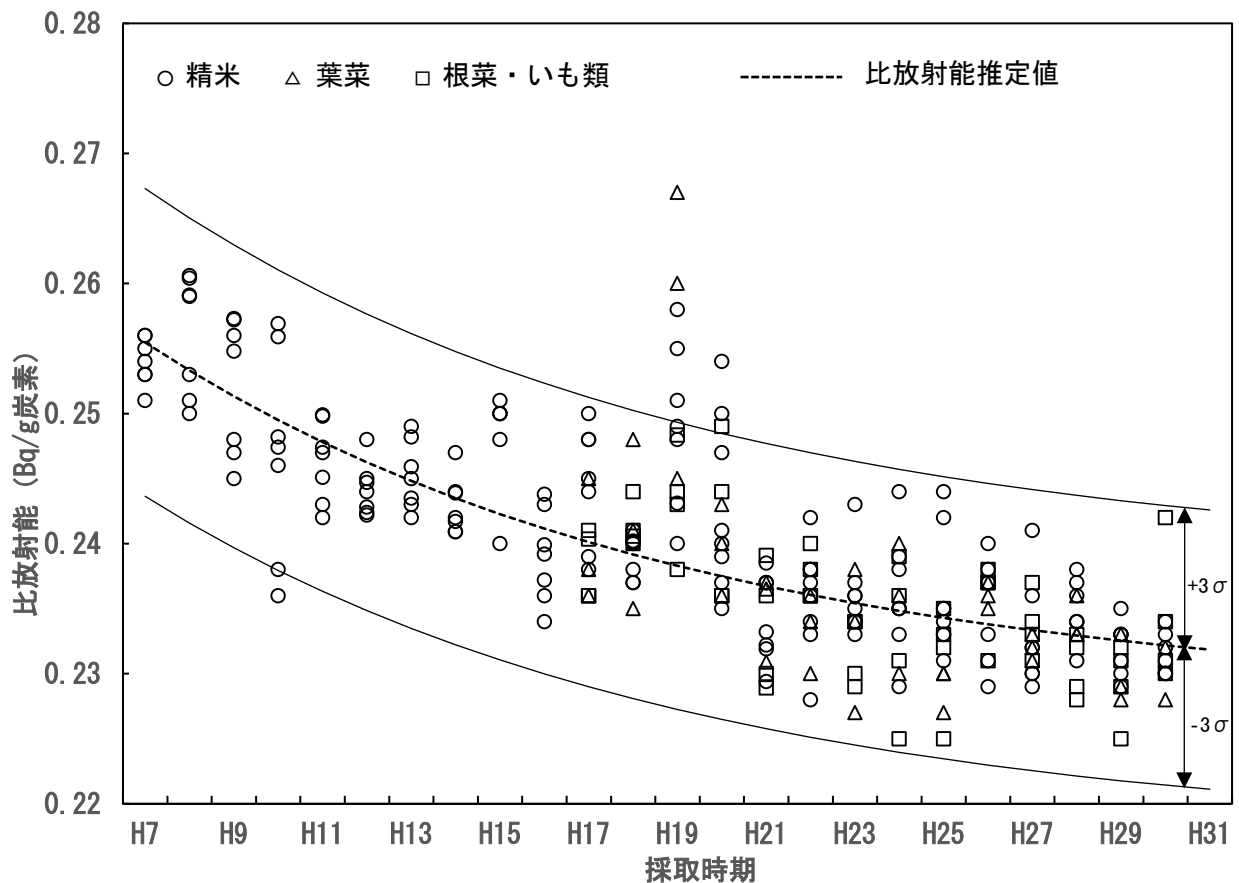


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

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 7 年度からの経過年数 t との関係下次式のとおりとし、平成 7~18 年度及び平成 22~30 年度の測定値から自然平衡レベルを差し引いた値を用いて回帰分析を行い、定数 A 及び λ を求めた。

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

A : 平成 7 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) 0.0275

λ : フォールアウト起源の C-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 C-14 の環境における半減期計算値 (年) 8.47 (標準誤差 0.38)

t : 平成 7 年度からの経過年数 (年)

・変動幅 (3σ) = 比放射能推定値 \cdot 変動係数 $\cdot 3$

変動係数 : 平成 7~18 年度及び平成 22~30 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

牛乳の C-14 比放射能の測定結果は表 8 に示すとおり、0.230～0.241 Bq/g 炭素であった。図 11 に牛乳の C-14 比放射能の推移を示す。牛乳についても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を併せて記載した。牛乳においても、図 10 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。平成 30 年度の測定値は、豊原の 10 月採取分において平成 20～29 年度の測定値を下回ったが、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。

表 8 牛乳の C-14 比放射能（平成 30 年度）

試料名	採取地点	採取月	H30 年度調査結果	(参考) H20～29 年度 調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛 乳 (原乳)	六原※	4 月	0.236 ± 0.003	0.230 ~ 0.241
		7 月	0.231 ± 0.003	
		10 月	0.234 ± 0.003	
		1 月	0.238 ± 0.003	
	横浜町	4 月	0.231 ± 0.003	0.229 ~ 0.248
		7 月	0.230 ± 0.003	
		10 月	0.234 ± 0.003	
		1 月	0.232 ± 0.003	
	二 又	4 月	0.230 ± 0.003	0.227 ~ 0.252
		7 月	0.235 ± 0.003	
		10 月	0.236 ± 0.003	
		1 月	0.236 ± 0.003	
	豊 原	4 月	0.239 ± 0.003	0.231 ~ 0.256
		7 月	0.234 ± 0.003	
		10 月	0.230 ± 0.003	
		1 月	0.241 ± 0.003	

※ 平成 25 年度から調査開始

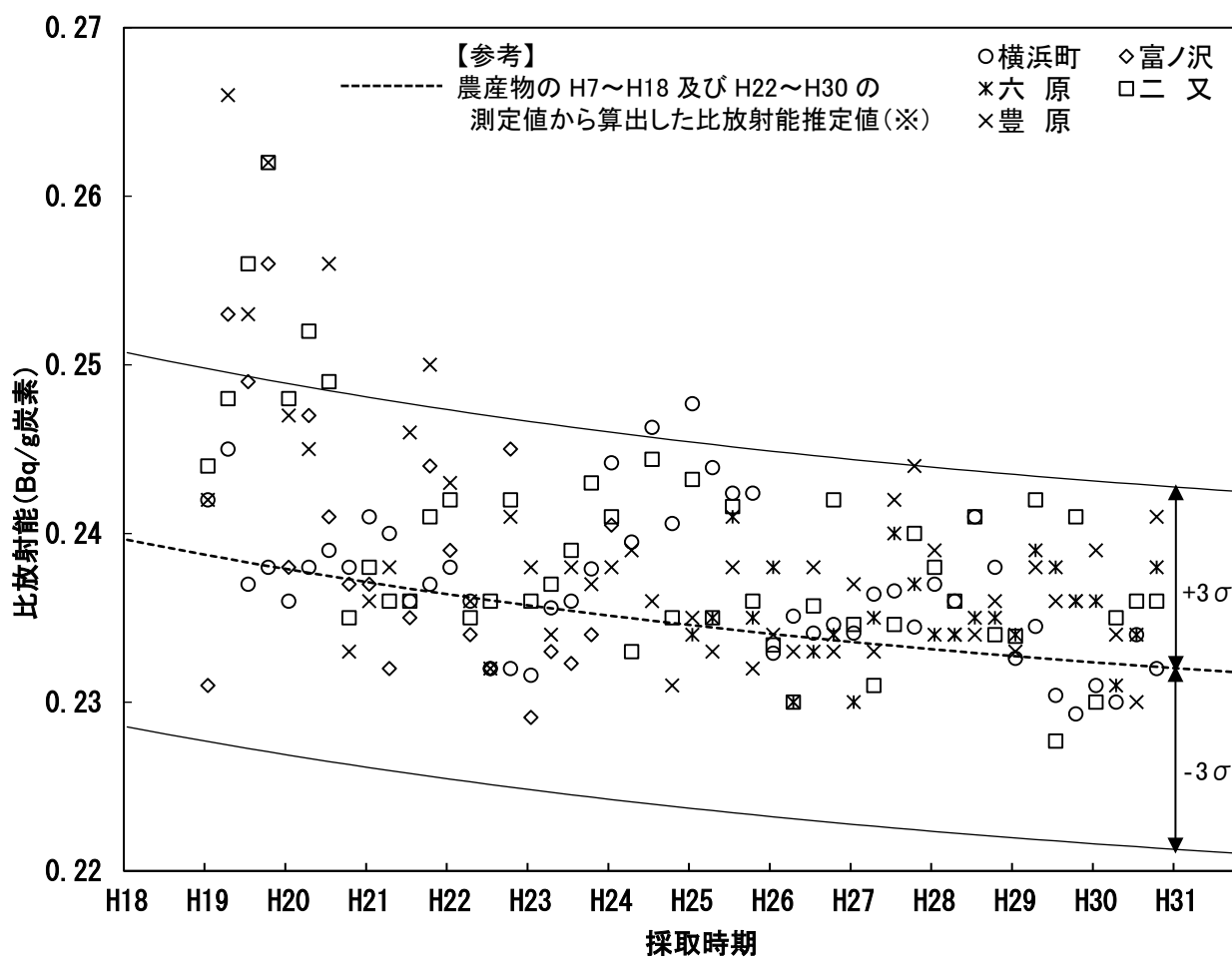


図 11 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

※ 農産物が成長の過程で大気中の C-14 を取り込むのに対し、牛乳中の C-14 は飼料に由来するものが大部分であり、環境における C-14 濃度の影響は異なると考えられる。なお、牛乳の平成 22 年度から平成 30 年度までの期間に得られた C-14 比放射能測定値を用いて回帰分析を行った結果は、平成 22 年度におけるフォールアウト寄与分の比放射能計算値が 0.00953 Bq/g 炭素、フォールアウト起源の C-14 の環境における半減期計算値は 18.2 (標準誤差 7.3) 年であった。

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 9 に、その経年変化を図 12 に示す。葉菜類については、I-129 濃度は 3.0×10^{-8} 及び 8.7×10^{-8} Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は 2.2×10^{-9} 及び 2.6×10^{-9} 、海藻類については、I-129 濃度は 2.3×10^{-4} 及び 1.4×10^{-4} Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は 5.9×10^{-11} 及び 6.3×10^{-11} であり、平成 19 年度以降、全体として低下傾向が見られるが、近年は横ばいで推移している。

I-129 の環境への放出量については、大気圏内核実験によるものが 57 kg であるのに対し、仏国 La Hague 及び英国 Sellafield の 2 つの再処理施設からの 2007 年までの放出量は、それぞれ海洋に 3800 kg 及び 1600 kg、大気中に 75 kg 及び 180 kg であり、再処理施設からの放出によるものが大部分を占める¹¹⁾。I-129/I-127 原子数比については、大気圏内核実験後の環境において、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¹²⁾。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、すべての試料において検出限界以下であった。

表 9 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比 (平成 30 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 30 年度調査結果		(参考) 平成 20~29 年度調査結果	
			¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比
ハクサイ	出戸	10月	欠測	欠測	3.8×10^{-8} ~ 1.7×10^{-5}	8.6×10^{-10} ~ 4.9×10^{-7}
	千樽	10月	$(8.7 \pm 1.2) \times 10^{-8}$	2.6×10^{-9}	6.6×10^{-8} ~ 1.6×10^{-5}	2.8×10^{-9} ~ 2.3×10^{-7}
キャベツ	横浜町	10月	$(3.0 \pm 1.1) \times 10^{-8}$	2.2×10^{-9}	4.0×10^{-8} ~ 1.2×10^{-5}	1.5×10^{-9} ~ 5.0×10^{-7}
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	9月	$(2.3 \pm 0.057) \times 10^{-4}$	5.9×10^{-11}	8.5×10^{-5}	4.6×10^{-11}
		10月	$(1.4 \pm 0.05) \times 10^{-4}$	6.3×10^{-11}	~ 2.2×10^{-3}	~ 6.5×10^{-10}

表 10 環境試料中の I-131 濃度 (平成 30 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 30 年度調査結果	(参考) 平成 20~29 年度調査結果
			(Bq/kg 生)	(Bq/kg 生)
ハクサイ	出戸	10月	欠測	*
	千樽	10月	*	*
キャベツ	横浜町	10月	*	*
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	9月	*	*
		10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。なお検出限界は、0.057~0.20 Bq/kg 生であった。

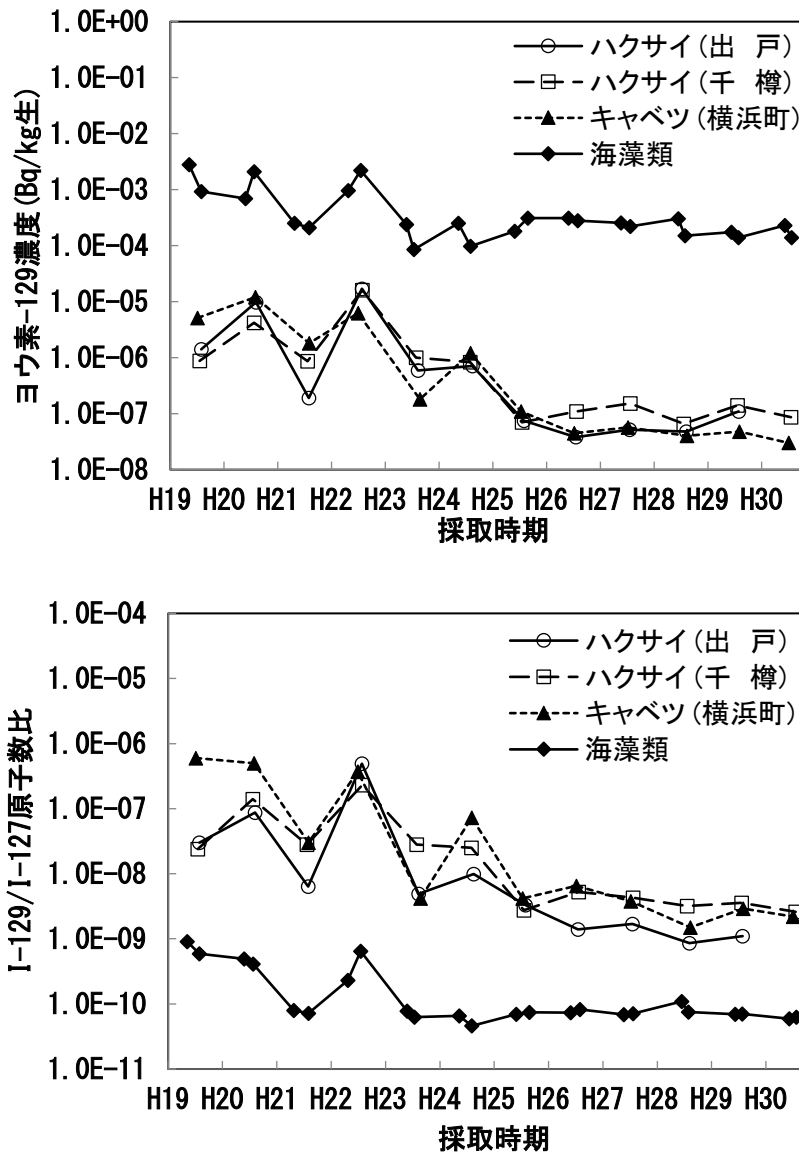


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

平成 30 年度の調査において、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、全体として、平成 19 及び 20 年度より低めであった。また、海洋試料である魚類では、TFWT ではすべての試料について検出限界以下であった。一方、平成 21 年度から調査を開始した魚類の非交換型 OBT については、平成 24 年度まで検出限界以下であったが、平成 25～30 年度と続けて、検出限界を超える試料があった。C-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、アクティブ試験の影響が認められなかった期間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。I-129 は、葉菜類、海藻類ともに I-129/I-127 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同程度であり、平成 19 及び 20 年度より低下傾向にあった。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：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) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（平成 5 年）
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法（平成 16 年）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 4 放射性ヨウ素分析法（平成 8 年改訂）
- 6) (国研) 量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所
：環境中のトリチウム測定調査データベース
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html>（最終アクセス：平成 29 年 9 月 15 日）
- 7) (公財)日本分析センター：環境放射線データベース
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/>（最終アクセス：令和元年 9 月 19 日）
- 8) 中野政尚、國分祐司、武石稔：東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの海水中濃度及び拡散状況, 保健物理, **44**(1), 60~65(2009)
- 9) 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)
- 10) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、樫田義彦、一政祐輔：1990 年代の日本における ^{14}C の環境バックグラウンドレベル, *RADIOSOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 11) Tania Jabbar, Gabriele Wallner, Peter Steiber : A review on ^{129}I analysis in air, *Journal of Environmental Radioactivity*, **126**, 45-54 (2013)
- 12) Xiaolin Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)

Ⅲ 学 会 发 表 等 要 旨

IV 令和元年度調査研究事業報告

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

玉熊義久 神 俊雄

1. はじめに

トリチウム(T)は、大気中では水蒸気状(HTO)、水素ガス状(HT)及び有機トリチウム状(CH₃T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、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¹⁾。

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、東海再処理施設主排気筒においては全トリチウムのうち約26%がHT(CH₃T等を含む。)の化学形であったとの報告²⁾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、従来可燃性ガスをキャリアとして使用する方法^{3,4)}が用いられている(以下「ガス添加法」という)。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所に対応するために、可燃性ガスの代わりにキャリアとして無トリチウム水を添加する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^{5)~7)}。

本調査では、平成16年度から加湿カラム法を用いた採取方法の検討を行っている。一方、公益財団法人環境科学技術研究所(以下「環境研」という)では、環境研敷地内において、ガス添加法を用いて大気試料を採取・測定^{8)~20)}しており、平成26年度以降、県の測定装置を環境研敷地内に設置して試料の並行採取を断続的に実施し、結果の比較検討を行っている。

平成30年度に、環境研と並行採取を行ったところ、県の測定値が環境研の測定値より5割程度高かった。また、HTを捕集するモレキュラーシーブカラム(HT捕集カラム)には捕集水の回収後でも最大10%程度のトリチウム残留が確認されたが、無トリチウム水を添加して除去できることを確認した。さらに、Pt触媒カラムの酸化効率を確認したところ、十分な効率が得られていないことが判明したため、酸化効率の向上を図ることとしていた。

今年度は、HT捕集カラムへのトリチウム残留の低減について検討した。また、Pt触媒カラムの酸化効率向上について検討した。

2. 調査方法

2.1 採取装置

加湿カラム法による採取装置の概要を図1に示す。採取装置の終端に設置した真空ポンプ(DA-30D、ULVAC)で吸引し、大気を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。

HTOについては、予め電子除湿器(出口露点1~3℃)により一部を捕集した後、モレキュラー

シーブ 3A を充填した HTO 捕集カラムに捕集する。

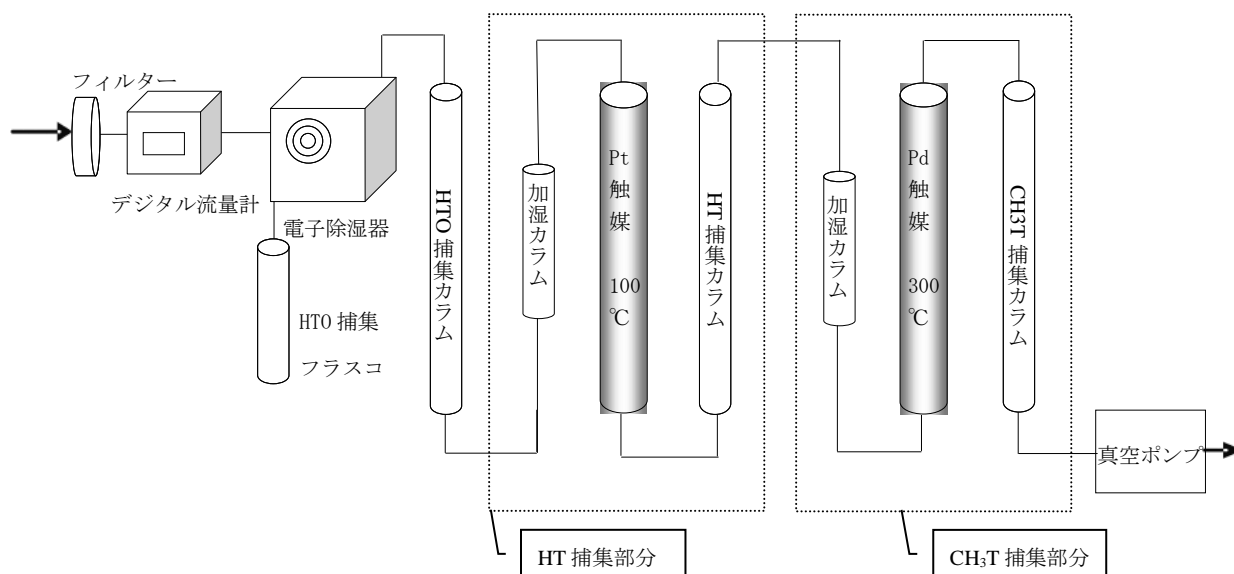


図 1 加湿カラム法による採取装置の概要

HT については、100°C に加熱した Pt 触媒(D2SPT6S40C、田中貴金属工業株式会社、Pt 担持量 6.0 g/L、25 mm φ × 40 mm) を 8 個使用して酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した HT 捕集カラムに水として捕集する。大気中の H₂ 濃度が低いため、キャリアとして無トリチウム水蒸気を添加する。

CH₃T については、300°C に加熱した Pd 触媒(DASH-220D、エヌ・イー ケムキャット株式会社、2-4 mm φ) 100 g により酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した CH₃T 捕集カラムに水として捕集する。大気中の CH₄ 濃度が低いため、キャリアとして無トリチウム水蒸気を添加する。

無トリチウム水蒸気の供給は、アクリル管に図 2 に示す加湿バイアルを設置した加湿カラムにより行った。プラスチックバイアル内の無トリチウム水は、超高分子量ポリエチレン多孔質フィルム (サンマップ LC 0.5 mm 厚：日東電工株) を通して徐々に蒸発する。

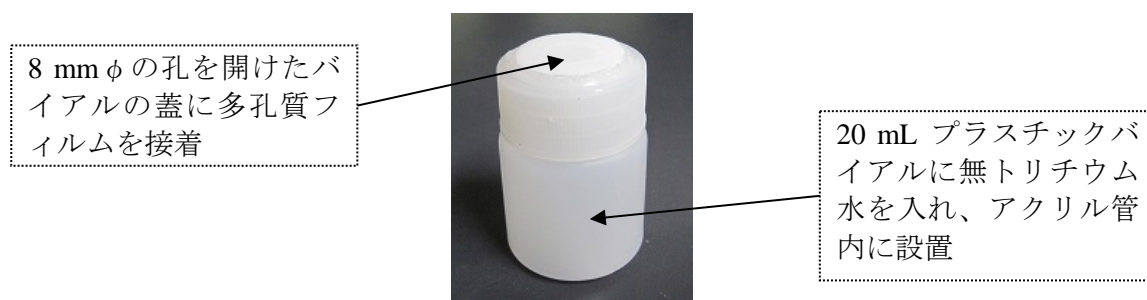


図 2 加湿バイアル外観

2.2 試料採取

(1) 採取条件等

ア 採取条件

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間、日数、大気採取流量、採取量：表1のとおり

イ 採取地点

青森市駐在計測室（室内の空気を採取）

表1 採取条件等

採取期間	日数	大気採取流量 (L/min)	採取量 (m ³)
H30.10月 (10/17~11/7) ※1	21	2	60
H30.11月 (11/7~12/5)	28	2	82
H30.12月 (12/5~12/27)	22	2	63
H31.1月 (1/15~2/1)	17	3	75
H31.3月 (3/7~3/28) ※1	21	2	61
H31.4月 (4/4~4/26) ※1	22	2	64
R1.5月 (5/9~5/24)	15	3	58
R1.6月 (6/3~6/25)	22	2	64
R1.7月 (7/4~7/25) ※2	21	2	61
R1.8月 (8/6~8/27) ※2	21	2	64
R1.9月 (9/5~9/27) ※2	22	2	63
R1.10月 (10/7~10/28) ※2	21	2	60
R1.11月 (11/1~11/22) ※2	21	2	60
R1.12月 (12/2~12/23) ※2	21	2	60

※1：HT捕集カラムの洗浄方法の検討にも利用

※2：触媒カラムのコンディショニング実施

(2) 採取方法

HT捕集カラムへのトリチウム残留の低減に加えてPt触媒カラムの酸化効率の向上についても検討するために、図1の採取装置にHT捕集部をさらに追加して2段とした採取装置（図3）により、同時にHTO、HT及びCH₃Tの採取を行った。

また、採取終了後に期間をあけて次の採取を開始する際、触媒の加熱時に、触媒カラムの出入口付近の一部に結露が確認されたことから、結露を除去することが必要と考え、採取前に触媒カラムを加熱しながら1時間程度空気又は窒素ガスを流すこととした。このため令和元年7月以降は、カラム内に溜まった結露を除去（触媒カラムのコンディショニング）してから採取を開始した。

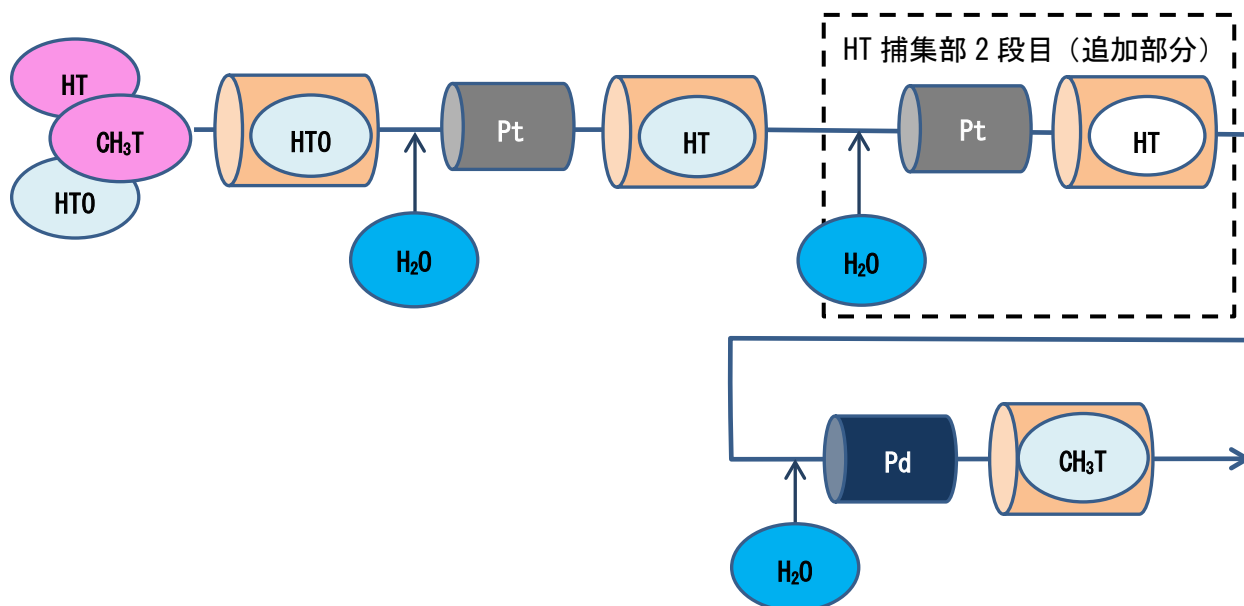


図 3 HT 捕集部を二重化した採取装置略図

2.3 分析方法

(1) HT 捕集カラムからの試料の回収等

捕集後の HT 捕集カラムについて、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却管により冷却し、捕集水を試料①（回収水）として回収した。

この回収水に過酸化ナトリウム及び過マンガン酸カリウムを添加し蒸留した後、試料水 10 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。試料水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアル（6000477、Perkin Elmer Japan）を用いた。測定は液体シンチレーション計数装置（LSC-LB7 日立製作所）により行い、測定時間は、4,000 分（50 分×20 回×4 サイクル）とした。

(2) HT 捕集カラムの効果的な洗浄方法の検討について

HT 捕集カラムの洗浄方法について、水蒸気で洗浄する方法の効果については再現性の検討が必要と考えられたため、平成 31 年 3 月及び 4 月に再確認した。

試料水が回収された後のカラムについて、上流側に無トリチウム水 10 mL 程度を入れたバブラーを、下流側にも無トリチウム水 10 mL 程度を入れたバブラー（トラップ）を設置し、400°C に加熱し、1 時間程度窒素ガスを流しながら無トリチウム水蒸気を供給した後、下流側のトラップ中の水を試料②（トラップ水）とした。

また、水蒸気で洗浄後のカラムに無トリチウム水 12 mL を加え、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して試料③（洗浄水）を回収した。

これらの試料のうち、トラップ水については、試料水 10 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。試料水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定容器及び測定装置は(1)と同様であり、測定時間も同様に、4,000 分（50 分×20 回×4 サイクル）とした。

また、洗浄水については、(1)と同様の前処理を行い、液体シンチレーション計数装置により測定を行った。測定時間も同様に、4,000分（50分×20回×4サイクル）とした。

測定試料のトリチウム測定結果及び試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。また、回収水、トラップ水及び洗浄水中のトリチウム量を比較し効果的な洗浄方法を検討した。

なお、水蒸気での洗浄を行っていない月においても、無トリチウム水を加えての洗浄を行っている。

(3) Pt 触媒カラムの酸化効率（2 段目への移行割合）について

HT 捕集カラムの 1 段目及び 2 段目について、窒素ガスを流しながら 400℃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管により冷却し、捕集水を試料（回収水）として回収した。

これらの試料について、(1)と同様の前処理を行い、液体シンチレーション計数装置により測定を行った。測定時間も同様に、4,000分（50分×20回×4サイクル）とした。

測定試料のトリチウム測定結果及び試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。また、HT 捕集カラムの 1 段目及び 2 段目から回収したトリチウム量をもとに 2 段目への移行割合を算出した。

3. 調査結果と考察

3.1 HT 捕集カラムへのトリチウム残留の低減及びその確認

(1) HT 捕集カラムへの残留低減について

HT 捕集カラムへのトリチウム残留については、図 4 のとおり、焼出し時の捕集水の位置関係が影響するのではないかという仮説を立てて検討した。つまり、捕集時にモレキュラーシーブカラムを通る空気中の水分は、上流側のモレキュラーシーブから順に吸着し、捕集水は上流側に偏在すると考えられ、捕集水回収のための焼出しの際に、偏在した捕集水を出口側に配置すれば、図 4 右に示すようにカラムへのトリチウム残留が低減できるのではないかと考え検討した。

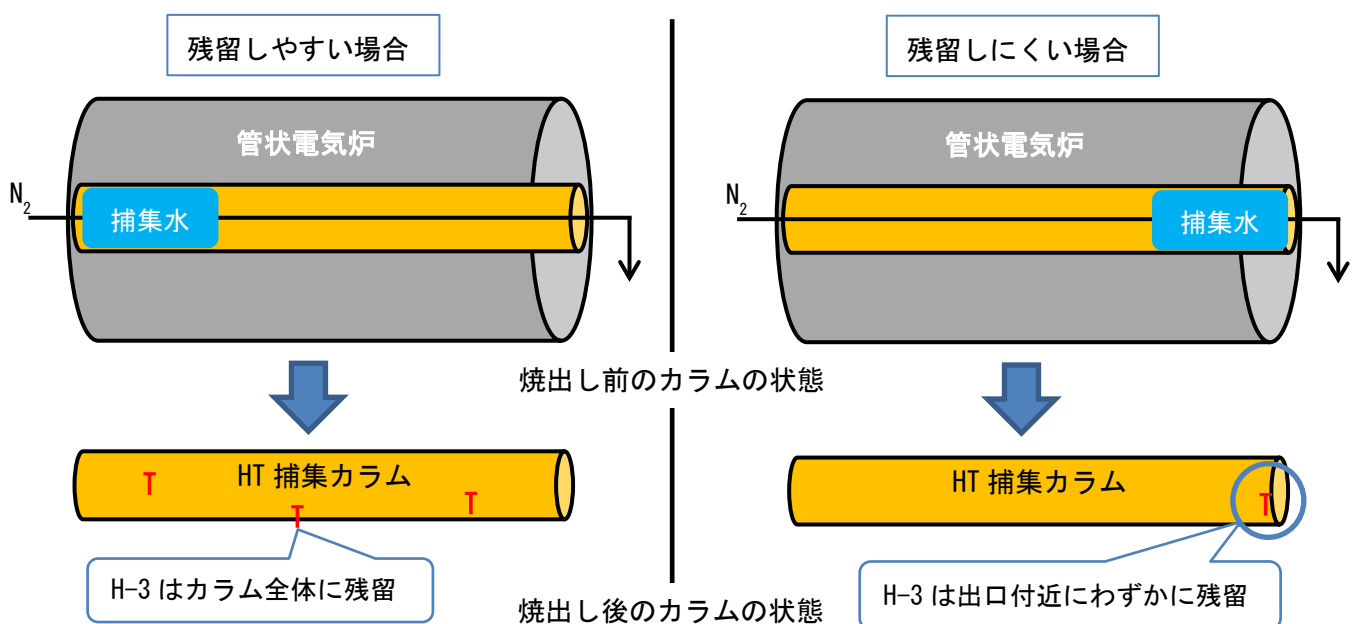


図 4 捕集水焼出し時の位置関係による残留量の違い（仮説）

平成 31 年 1 月以前は図 4 の左側、平成 31 年 3 月以降は右側の状態になるようにして焼出しを行っている。

HT 捕集カラムへの残留量及び残留割合を表 2 及び図 5 に示す。平成 31 年 3 月以降、捕集水を出口側に配置して焼出しを行ったところ、捕集カラムへのトリチウム残留が大幅に低減した。

表 2 HT 捕集カラムへのトリチウム残留割合

採取年月	回収水 (試料①) 中 トリチウム (Bq) (A)	洗浄水 (試料③) 中 トリチウム (Bq) (B)	残留割合 (%) (B/A×100)	焼出し時 の捕集水 の位置
H30.10 月	0.416 ± 0.004	0.046 ± 0.003	11.1 ± 0.61	入口側
H30.11 月	0.620 ± 0.005	0.055 ± 0.003	8.80 ± 0.40	入口側
H30.12 月	0.473 ± 0.004	0.053 ± 0.003	11.3 ± 0.57	入口側
H31.1 月	0.563 ± 0.004	0.064 ± 0.003	11.3 ± 0.46	入口側
H31.3 月	0.549 ± 0.005	(0.005 ± 0.002)	(0.84 ± 0.41)	出口側
H31.4 月	0.561 ± 0.005	(0.006 ± 0.002)	(1.05 ± 0.40)	出口側
R1.5 月	0.572 ± 0.005	(0.002 ± 0.002)	(0.37 ± 0.39)	出口側
R1.6 月	0.672 ± 0.006	0.007 ± 0.002	1.08 ± 0.33	出口側
R1.7 月	0.713 ± 0.005	0.014 ± 0.002	1.96 ± 0.32	出口側
R1.8 月	0.687 ± 0.006	(0.006 ± 0.002)	(0.84 ± 0.32)	出口側
R1.9 月	0.633 ± 0.006	0.007 ± 0.002	1.17 ± 0.35	出口側
R1.10 月	0.673 ± 0.006	0.008 ± 0.002	1.21 ± 0.33	出口側

※ () は不検出

※ ここでは試料②は考慮していない

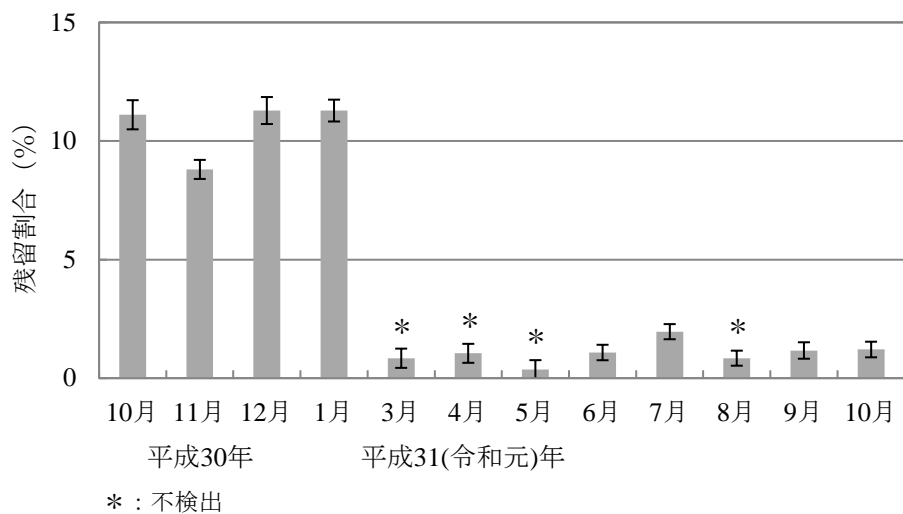


図 5 HT 捕集カラムへのトリチウム残留割合

(2) HT 捕集カラムの洗浄方法について

HT 捕集カラムからの回収水、トラップ水及び洗浄水について測定した結果を表 3 に示す。

焼出し時の捕集水の位置が入口側だった平成 30 年 10 月の試料では、水蒸気通気によりトラップ水からわずかにトリチウムが検出されたほか、洗浄水からは回収水の 10%程度のトリチウムが検出されている。一方、焼出し時の捕集水の位置を出口側にした平成 31 年 3 月、4 月の試料では、トラップ水、洗浄水ともトリチウムは検出されず、HT 捕集カラムへのトリチウム残留はほとんど起こらなかったと考えられる。

平成 29 年度の調査において、水蒸気通気後の洗浄水からトリチウムが検出されなかったことから、水蒸気通気により残留トリチウムが除去されたものと考察したが、今回の結果を踏まえれば、平成 29 年度の調査時も平成 31 年 3 月及び 4 月と同様に、捕集水が出口側にある状態で焼出しを行い、残留がほとんど起こっていなかったものと推測される。

これらのことから、HT 捕集カラムにはトリチウムが残留する場合があります、その場合は水蒸気による洗浄では不十分だとわかった。カラムの残留トリチウムを確実に除去するため、今後の HT 捕集カラムの洗浄については、無トリチウム水の添加によることとする。

表 3 HT 捕集カラムから回収されたトリチウム量

採取年月	試料名	試料水中濃度		トリチウム量	
		(Bq/L)		(Bq)	
H30.10 月	回収水 (試料①)	38.9	± 0.367	0.416	± 0.0039
	トラップ水 (試料②)	0.865	± 0.199	0.0083	± 0.0019
	洗浄水 (試料③)	3.85	± 0.210	0.0462	± 0.0025
H31.3 月	回収水 (試料①)	41.8	± 0.369	0.549	± 0.0049
	トラップ水 (試料②)	(0.222	± 0.183)	(0.0024	± 0.0020)
	洗浄水 (試料③)	(0.384	± 0.186)	(0.0046	± 0.0022)
H31.4 月	回収水 (試料①)	41.0	± 0.381	0.561	± 0.0052
	トラップ水 (試料②)	(0.458	± 0.185)	(0.0052	± 0.0020)
	洗浄水 (試料③)	(0.490	± 0.187)	(0.0059	± 0.0022)

※ () は不検出

3.2 Pt 触媒カラムの酸化効率の向上

平成 28 年度及び平成 30 年度にも HT 捕集部を 2 段とした捕集装置により、1 段目の HT 酸化効率を評価していたが、十分な効率が得られていないことが確認されていたため、酸化効率の向上を図ることとしていた。また、採取終了後に期間をあけて次の採取を開始する際、触媒の加熱時に、触媒カラムの出入口付近の一部に結露が確認されたことから、令和元年 7 月以降は採取開始前に触媒カラムのコンディショニングを行っている。測定結果及び 2 段目への移行割合は表 4 及び図 6 のとおり。

表 4 HT 捕集部二重化装置による試料測定結果

採取年月	HT 試料	トリチウム量 (Bq)			移行割合 (%)		
					(2 段目 / 1 段目 × 100)		
H30.10 月	1 段目	0.416	±	0.0039	6.60	±	0.62
	2 段目	0.0275	±	0.0026			
H30.11 月	1 段目	0.620	±	0.0046	(0.94	±	0.35)
	2 段目	0.0058	±	0.0022			
H30.12 月	1 段目	0.473	±	0.0040	(1.51	±	0.53)
	2 段目	0.0071	±	0.0025			
H31.1 月	1 段目	0.563	±	0.0043	6.95	±	0.44
	2 段目	0.0391	±	0.0024			
H31.3 月	1 段目	0.549	±	0.0049	3.55	±	0.48
	2 段目	0.0195	±	0.0026			
H31.4 月	1 段目	0.561	±	0.0052	5.88	±	0.52
	2 段目	0.0330	±	0.0029			
R1.5 月	1 段目	0.572	±	0.0047	8.62	±	0.44
	2 段目	0.0493	±	0.0025			
R1.6 月	1 段目	0.672	±	0.0057	9.70	±	0.98
	2 段目	0.0652	±	0.0066			
R1.7 月	1 段目	0.713	±	0.0059	(0.37	±	0.37)
	2 段目	0.0027	±	0.0026			
R1.8 月	1 段目	0.687	±	0.0053	(0.95	±	0.34)
	2 段目	0.0065	±	0.0023			
R1.9 月	1 段目	0.633	±	0.0055	(0.80	±	0.43)
	2 段目	0.0051	±	0.0027			
R1.10 月	1 段目	0.673	±	0.0055	(0.47	±	0.43)
	2 段目	0.0032	±	0.0029			
R1.11 月	1 段目	0.662	±	0.0053	2.55	±	0.68
	2 段目	0.0169	±	0.0045			
R1.12 月	1 段目	0.648	±	0.0055	(0.20	±	0.40)
	2 段目	0.0013	±	0.0026			

※ () は移行割合が誤差の 3 倍未満のもの

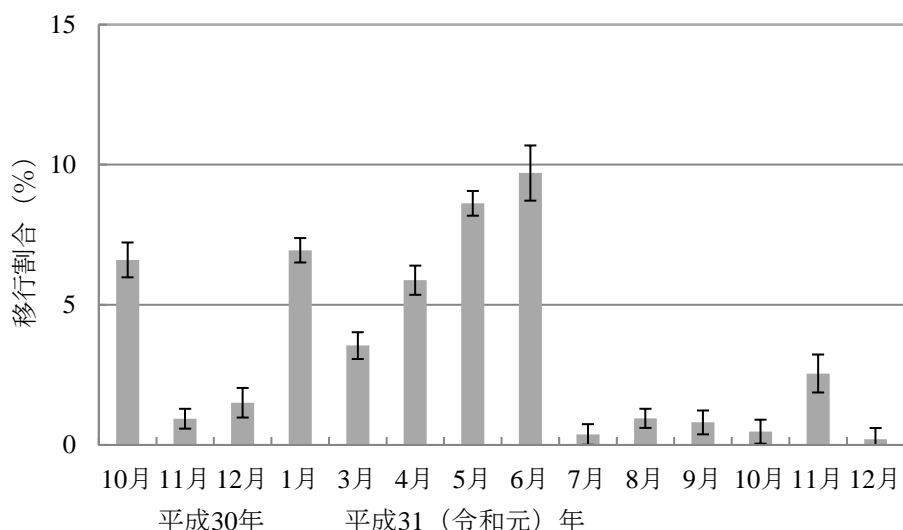


図6 HT 捕集カラム 2 段目への移行割合

平成 30 年 11 月及び 12 月の試料において、2 段目の HT が検出限界未満となっているが、この 2 試料については、その前月の採取終了後ただちに採取を開始しており、触媒の能力が低下せずに維持されていたと考えられる。また、令和元年 7 月から 10 月まで及び 12 月の試料においても 2 段目の HT が検出限界未満となっており、こちらは採取開始前に触媒をコンディショニングした効果と考えられる。ただし、令和元年 11 月の試料では 2 段目からわずかにトリチウムが検出されているが、このときは、系外から HT カラム 2 段目への空気の混入があり、混入空気中の HT が影響したと考えられるため、系外からの混入には留意して採取を行う必要がある。

また、コンディショニング時の流速等の条件は定めていなかったもので、今後、検討の余地がある。

4. まとめ

- 1) HT 捕集カラムの捕集水焼出しの際、捕集水を出口側に配置することで、回収が安定して行われ、焼出し後のカラムへのトリチウム残留が低減されることを明らかにした。
- 2) HT 捕集カラムは使用後にトリチウムが残留している場合があるため、無トリチウム水を添加して洗浄することとした。
- 3) Pt 触媒の酸化効率低下については、採取開始前のコンディショニングによって解消されることがわかった。また、流速等のコンディショニング条件については、今後検討を行う。

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) Naofumi Akata, Hideki Kakiuchi, Nagayoshi Shima, Takashi Iyogi, Noriyuki Momoshima, Shun'ichi Hisamatsu : Tritium concentrations in the atmospheric environment at Rokkasho, Japan before the final testing of the spent nuclear fuel reprocessing plant, *Journal of Environmental Radioactivity*, **102**,837-842(2011)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) Masahiro Tanaka, Hiromi Kato, Yukie Yamamoto, Chie Iwata : Development of an active tritium sampler for discriminating chemical forms without the use of combustion gases in a fusion test facility, *Applied Radiation and Isotopes*, **125**,53-59(2017)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 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)
- 12) 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)
- 13) 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移行調査報告書, 193(平成 24 年)
- 14) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 24 年度排出放射能環境移行調査報告書, 275(平成 25 年)
- 15) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 25 年度排出放射能環境移行調査報告書, 249(平成 26 年)
- 16) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 26 年度排出放射能環境移行調査報告書, 301(平成 27 年)
- 17) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 27 年度排出放射能環境移行調査報告書, 342 (平成 28 年)
- 18) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 28 年度排出放射能環境動態調査報告書, 109(平成 29 年)
- 19) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 29 年度排出放射能環境動態調査報告書, 127(平成 30 年)
- 20) 公益財団法人環境科学技術研究所 : 平成 30 年度排出放射能環境動態調査報告書, 160(平成 31 年)

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 (令和元年度実施内容)

和田浩司 木村芳伸

幸進^{*1} 沼山 聡^{*1} 佐々木耕一^{*1}

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、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、C-14 及び I-129 について調査を開始した。平成20年度からは I-131 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、平成26年度からは OBT をすべて非交換型 OBT とし、平成27年度からは海藻の TFWT・OBT を追加して実施している。平成30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. 令和元年度の調査計画と今後の進め方

令和元年度の調査計画を表1に示した。出戸のハクサイについては生産者が作付けをやめたため平成30年度で調査を終了し、代替地点として倉内を令和元年度調査計画に追加して調査した。その他については、平成30年度と同じ内容である。これらの調査結果については令和2年度にとりまとめることとしている。

*1：日本原燃株式会社

表1 対象試料及び調査地点・核種（令和元年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種				
			H-3		C-14	I-129・131	
			TFWT	非交換型			
牛乳 (原乳)	横浜町	4	○	○	○	—	
	二又		○	○	○	—	
	豊原		○	○	○	—	
	六原		○	○	○	—	
精米	平沼	1	—	○	○	—	
	千樽		—	○	○	—	
	野辺地町		—	○	○	—	
	二又		—	○	○	—	
	戸鎖		—	○	○	—	
	室ノ久保		—	○	○	—	
ハクサイ	倉内 ^{※1}	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			○	○	—	—
海藻類	六ヶ所村前面海域①		2	○	○	—	○

※1 令和元年度から調査開始。

ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

安積 潔 神 俊雄 木村芳伸

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実施要領」に基づき、環境試料（表土）中 I-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」¹⁾（以下「ヨウ素-129 分析法」という。）の放射化学分析法（ β 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」²⁾（以下「迅速分析法」という。）では、前処理工程にアルカリ抽出及び固相抽出法を、測定に ICP 質量分析法を用いた分析法が採用されている。

迅速分析法の分析条件における検出限界値（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、リアクションセルにより、安定ヨウ素の二水素化物イオン ($^{127}\text{IH}_2^+$) 及びキャリアガス（アルゴン）に不純物として含まれる Xe-129 を除去する機構を備えた ICP 質量分析装置（DRC-ICP-MS）を用いることで、検出限界値を低減させることが可能であることから³⁾、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こととしている。

平成 22 年度に ICP 質量分析装置（パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e）を整備し、平成 23 年度は標準溶液を用いた測定条件の検討を、平成 24 年度は土壤中 I-129 分析に係る検討を、平成 25 年度は海藻及び葉菜中 I-129 分析に係る検討を行った。平成 26 年度以降は、葉菜中 I-129 分析について、ヨウ素含有量が既知である葉菜試料を用いてヨウ素回収率に係る詳細な検討を行うとともに、分析条件及び測定条件の最適化、各元素によるスペクトル干渉の確認等を行った。令和元年度は、I-129 測定におけるスペクトル干渉及び固相抽出ディスクによるヨウ素回収率等について確認した。

平成 26 年度から令和元年度に得られた葉菜中 I-129 分析に係る検討結果について、本所報の研究報告としてとりまとめた。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26 「ヨウ素-129 分析法」（平成 8 年）
- 2) 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）
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)

トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いた 環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

安積 潔 神 俊雄 木村芳伸

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 I-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」¹⁾（以下「ヨウ素-129 分析法」という。）の放射化学分析法（ β 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」²⁾（以下「迅速分析法」という。）では、前処理工程にアルカリ抽出及び固相抽出法を、測定に ICP 質量分析法を用いた分析法が採用されている。

迅速分析法に記載された検出限界値（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、さらに同重体等によるスペクトル干渉を低減する機構を備えた ICP 質量分析装置を用いることにより、検出限界値を低減させることが可能である³⁾ことから、県は、平成 22 年度以降、ICP 質量分析装置を用いた環境試料（土、葉菜、海藻）中の I-129 分析法について検討してきた。

また、近年市販が開始されたトリプル四重極型 ICP 質量分析装置は、従来の装置と比較して I-129 の検出感度が大幅に向上しており、大野らは、同装置を用いて福島県内の土壌中 I-129 の測定を行っている⁴⁾。同装置を用いることにより、県内の環境試料中の I-129 についても測定できる可能性がある。

このようなことから、再処理施設からの影響評価及び今後のモニタリング手法の検討に資するため、トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いた環境試料中の I-129 分析について、分析条件、測定条件、環境試料における検出可能レベル等の検討を行うこととした。

令和元年度は、検討に用いるトリプル四重極型 ICP 質量分析装置を整備し、標準溶液を用いて装置の検出限界値を確認した。

2. 調査方法

2.1 装置

ICP 質量分析装置は、アジレント・テクノロジー(株)製 Agilent 8900 を用いた。本装置は、2つの四重極がコリジョンリアクションセルを挟んで搭載されているトリプル四重極型 ICP 質量分析装置であり、分析計内に取り込んだイオンを前段の四重極で質量選別した後、コリジョンリアクションセルでガスと衝突させ、さらに後段の四重極で質量選別することにより、高い干渉イオン除去能を有する。また、四重極を2つ持つため、高いアバundance感度を有する。

2.2 I-129 検出限界値

I-127 濃度 8.0×10^{-5} g/mL、I-129 濃度 $0 \sim 6.5 \times 10^{-4}$ Bq/mL の標準溶液を測定し、I-129 検出限界値

及びバックグラウンド相当濃度を確認した。

標準溶液は、I-129 標準溶液 (Eckert & Ziegler Isotope Products 社製) 及びヨウ化ナトリウム (Wako) を 1% 水酸化テトラメチルアンモニウム (精密分析用、Wako) で希釈して調製した。測定条件を表 1 に示す。

表 1 I-129 測定条件

設定項目\測定モード名	O ₂ モード	O ₂ +He モード
RF 出力	1550 W	同左
プラズマガス流量	15 L/min	同左
ネブライザーガス流量	1.08 L/min	同左
補助ガス流量	0.9 L/min	同左
コリジョンリアクションガス流量	O ₂ :1.05 mL/min	O ₂ :1.05 mL/min、He:2 mL/min
スプレーチャンバー温度	2 °C	同左
積分時間	10 秒	同左
繰返し回数	10 回	同左

3. 調査結果

3.1 I-129 検出限界値

標準溶液を測定して得られた I-129 濃度及び m/z129 の計数率の関係を図 1 に示す。I-129 検出限界値 (計数誤差の 3 倍) 及びバックグラウンド相当濃度は、表 2 のとおりであった。

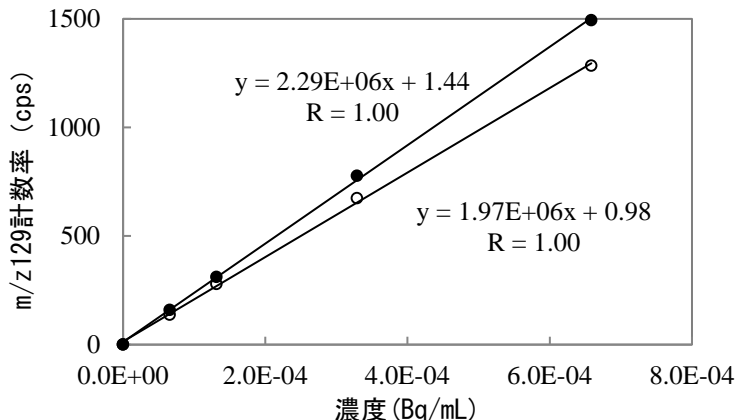


図 1 I-129 濃度と計数率の関係

(● : O₂モード、○ : O₂+He モード、I-127 濃度 : 8×10⁻⁵ g/mL)

表 2 I-129 検出限界値及びバックグラウンド相当濃度

項目\測定モード名	O ₂ モード	O ₂ +He モード
検出限界値	5.2×10 ⁻⁷ Bq/mL (=8.0×10 ⁻¹⁴ g/mL)	4.7×10 ⁻⁷ Bq/mL (=7.3×10 ⁻¹⁴ g/mL)
バックグラウンド相当濃度	6.3×10 ⁻⁷ Bq/mL (=9.6×10 ⁻¹⁴ g/mL)	5.0×10 ⁻⁷ Bq/mL (=7.6×10 ⁻¹⁴ g/mL)

※ 検出限界値及びバックグラウンド相当濃度は、I-127 濃度 8×10⁻⁵ g/mL、I-129 濃度 0 Bq/mL の溶液を測定して得られた測定値のそれぞれ標準偏差の 3 倍及び平均値

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26 「ヨウ素-129 分析法」(平成 8 年)
- 2) 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)
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)
- 4) Takeshi Ohno, Yasuyuki Muramatsu, Yasuyuki Shikamori, Chiaki Toyama, Nobuaki Okabe, Hiroyuki Matsuzaki : Determination of ultratrace ^{129}I in soil samples by Triple Quadrupole ICP-MS and its application to Fukushima soil samples, *J. Anal. At. Spectrom.*, **28**, 1283(2013)

表土中ヨウ素-129 分布調査

神 俊雄 大山 勝* 武藤逸紀 木村芳伸

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、平常運転において I-129 などの放射性気体廃棄物が放出されることから、青森県では環境における I-129 の蓄積状況を把握するため、再処理工場周辺の表土中 I-129 の分布調査を実施している。

平成 11～12 年度に 20 地点の調査（以下、「バックグラウンド調査」という。）を実施した。平成 18 年 3 月 31 日から再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が開始され、使用済燃料のせん断・溶解が行われた平成 20 年度にかけて、 7.4×10^8 Bq 程度の I-129 が気体放出されたことから、その影響を把握するため、平成 21 年度にバックグラウンド調査と同地点の表土中 I-129 の分布調査（以下、「前回調査」という。）を実施した。

今般、再処理工場しゅん工前の蓄積状況を把握するため、平成 29 年度、平成 30 年度にかけて前回調査の地点状況を確認の上、再調査（以下、「今回調査」という。）を実施した。さらに、令和元年度は前回調査結果と今回調査結果の比較検討結果を踏まえ、調査対象地点として適切でない地点や結果の解釈が困難と考えられる地点について代替地点を選定し、補足調査を実施した。

これらの調査結果については、本所報の研究報告として取りまとめた。

*：現青森県危機管理局原子力安全対策課

編 集 委 員

竹ヶ原 仁（委員長） 出貝 健（副委員長） 鈴木将文 木村芳伸
神 俊雄 玉熊義久 安積 潔

青森県原子力センター所報 第14号 (2019)

令和2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

