

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 4 号

平成 21 年度

Bulletin

Of

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.4 (2009)

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー

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

は じ め に

現在、青森県内では六ヶ所村でウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センター、再処理工場の一部である使用済燃料受入れ・貯蔵施設が操業しており、再処理工場本体においては試験運転の最終段階であるアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が行われています。また、東通村では東北電力（株）東通原子力発電所1号機が営業運転しております。このほか、大間町では全炉心MOX燃料の大間原子力発電所の建設工事が進められており、むつ市の使用済燃料中間貯蔵施設及び六ヶ所村のMOX燃料工場については国の安全審査が行われております。

このように青森県内では多くの原子力施設が稼動・計画されていたことから、平成15年4月にそれまで環境放射線モニタリング業務を実施していた青森県環境保健センター放射能部及び六ヶ所放射線監視局を再編成し、新たに原子力施設への立ち入り業務の追加や調査研究の強化を図り、原子力施設の総合的な監視機関として青森県原子力センターが設置されました。

当センターでは原子力施設周辺の環境放射線モニタリングを引き続き着実に実施するとともに、モニタリング結果の評価に資することを目的として調査研究事業を青森市駐在を中心として安全監視課及び分析課において実施しており、関係各位からのご助言、ご指導を頂きながらも着実に成果が得られております。また、日常のモニタリング業務からも貴重な知見が得られております。

当センターの業務が順調に推移しておりますのも、ひとえに関係各位のご指導、ご鞭撻の賜と感謝しております。特に、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会、青森県原子力施設環境放射線等監視評価会議及び調査結果検討会の委員の皆様方には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原子力センター設立の目的達成のため職員一同全力をつくす所存でございますので、引き続きご支援いただきたくよろしくお願い申し上げます。

本所報は、当センターが実施している調査研究事業の成果を取りまとめるとともに、環境放射線モニタリングから得られた知見や補足調査結果について取りまとめたものです。

ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご指摘を賜れば幸いに存じます。

平成22年3月

青森県原子力センター

所長 工藤英嗣

目 次

I 技術報告

1. トリチウムの液体シンチレーション測定における測定バイアル・・・ 3
及びシンチレータの検討
大下内 伸 竹ヶ原 仁 奥野直子 木村秀樹
2. 六ヶ所再処理工場周辺地域におけるクリプトン-85の拡散・分布状況・・・ 11
武藤逸紀 高橋秀昭 三浦誓也 安田 浩
木村秀樹 佐々木耕一 外川洋一
3. 環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査・・・ 23
－平成20年度調査結果－
五十嵐飛鳥 大下内 伸 木村秀樹
田中義也 尾形哲司 住谷秀一
4. 老部川における河底土中フッ素濃度の変動・・・ 33
北畠 茂 斉藤 陽 五十嵐飛鳥 齋藤 稔

II 学会等発表要旨・・・ 45

III 平成21年度調査研究事業報告

1. 青森県における大気中クリプトン-85濃度調査・・・ 49
2. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・ 55
3. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・ 71
4. 環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査・・・ 78
5. ICP質量分析法による環境試料中のプルトニウム同位体調査・・・ 79
6. 表土中ヨウ素-129分布調査・・・ 84
7. 河底土中フッ素濃度の変動に係る原因調査・・・ 87
8. 東通原子力発電所に係る空間 γ 線スペクトル測定調査・・・ 88

I 技 術 報 告

トリチウムの液体シンチレーション測定における 測定バイアル及びシンチレータの検討

大下内 伸 竹ヶ原 仁 奥野直子*¹ 木村秀樹

1. はじめに

青森県の環境放射線モニタリングにおいて、最も重要な核種の一つであるトリチウムについては、大気中湿分、雨水、水道水及び海水などの環境試料中の濃度を液体シンチレーション計測法により測定している。測定では、測定バイアルにテフロンバイアルを、シンチレータに Aquasol 2 を使用している。測定バイアルとしてテフロンバイアルを用いると、測定の初期段階で比較的大きな計数率の変動がみられることがあり、静電気帯電の影響による疑似計数と考えられている。佐藤ら¹⁾は、テフロンバイアルによる測定結果への静電気帯電の影響や疑似計数を除く方法の一つとしてテフロンバイアルの代替品について検討を行っており、POLYVIALS 145 の有用性について報告した。また、磯貝ら²⁾は、文部科学省測定法シリーズ「トリチウム分析法」の改訂のために、Aquasol 2 や Ultima Gold LLT など種々のシンチレータについて性能指数を比較するとともに、テフロンバイアルや POLYVIALS 145 などを用いバックグラウンド（以下「BG」という。）計数率の安定性の検討などを行っており、Ultima Gold LLT の性能指数が比較的高いことなどを報告している。

本研究では、環境放射線モニタリングにおけるトリチウム測定がより効率的かつ安定的に行えるよう、測定バイアルとシンチレータについて検討を行った。測定バイアルとしては、現在使用しているテフロンバイアル、ポリエチレンバイアル及び外側がポリエチレン製で内側がテフロン製の POLYVIALS 145 の3種類、シンチレータとしては、現在使用している Aquasol 2 及び製造ロットの異なる2つの Ultima Gold LLT の3種類を用い、計9種類の測定バイアル-シンチレータの組合せで計数効率及び BG 計数率を測定し性能指数を比較した。また、当センターでの測定時間は、通常1試料あたり3000分間であり、複数の試料と BG を測定するため、2～3週間の連続測定になることが多い。そこで、測定試料の長期的な安定性を検証するため、測定試料調製後数か月放置し、試料の重量変化、変形及び変色等の有無を確認するとともに、計数効率及び BG 計数率の変化などについても検討した。

*1：現青森県企画政策部原子力施設安全検証室

2. 調査方法

2.1 測定バイアル

- ①テフロンバイアル（(株) 東北マテリアルス TM-3000N）：以下、「Tef」という。
PFA 製、外観は透明、容量は 100mL
- ②ポリエチレンバイアル（(有) プラス川口、アロカ(株)から BIN-P100 として入手可）
：以下、「Poly」という。
ポリエチレン製、外観は白色、容量は 100mL
- ③POLYVIALS 145（ZINSSER ANALYTIC 社、アロカ(株)から BIN-PT145 として入手可）
：以下、「PolyTef」という。
外側が超高密度ポリエチレン製、内側がテフロン製、外観は白色、容量は 145mL

2.2 シンチレータ

- ①Aquasol 2：以下、「A」という。
溶媒としてキシレンを用いており、引火点は 25℃、蒸気圧は 8mmHg（25℃）である。水分保持量は 50%以下であり、測定試料作製時に加温が必要である。
- ②Ultima Gold LLT（製造ロットの異なるもの 2 種類）
：以下、「U」又はそれぞれのロットを「U1」及び「U2」という。
溶媒としてジイソプロピルナフタレンを用いており、引火点が 140℃、蒸気圧が 1mmHg（25℃）と A に比較して安全性が高い。水分保持量は 54%以下であり、測定試料作製時に加温の必要がないため操作が容易である。

2.3 測定試料調製

上記に示した測定バイアル 3 種類、シンチレータ 3 種類の計 9 種類の組合せで、それぞれ標準試料及び BG 試料を 1 個ずつ作製しグループ 1 とした。その後、同様の試料を各組合せについてもう 1 個ずつ作製しグループ 2 とした。水試料の供試量は、シンチレータとして A を用いた場合は 40 mL、U を用いた場合は 50 mL とし、シンチレータと混合して全体量を 100mL とした。

2.4 液体シンチレーション測定

測定器は、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（アロカ（株）製 LSC-LB5）を使用した。標準試料及び BG 試料を用い、測定ウィンドウ範囲の決定、計数効率の測定及び BG 計数率の測定を行った。

図 1 にグループ 1 の測定フローを示す。

1-①最適ウィンドウ決定

各組合せについて標準試料を 20 分間、BG 試料を 900 分間測定し、測定器付属の「最適ウィンドウ決定機能」を用いて、性能指数（FOM）^{*}が最大になるようにウィンドウ範囲を決定した。

^{*}性能指数 = (供試量(mL)×計数効率(%))²/BG 計数率(cpm)

1-②BG 試料測定

1 試料あたり 50 分間測定を 15 回繰り返し、試料を交換して 9 種類の試料を測定した。これを 1 サイクルとし、計 4 サイクル測定を行った。

1-③測定器内放置

測定試料を約 14℃の測定器内に放置した。

1-④BG 試料測定

②と同様の測定を行った。

1-⑤標準試料測定

1 試料あたり 20 分間測定を 3 回繰り返し、試料を交換して 9 種類の試料を測定した。

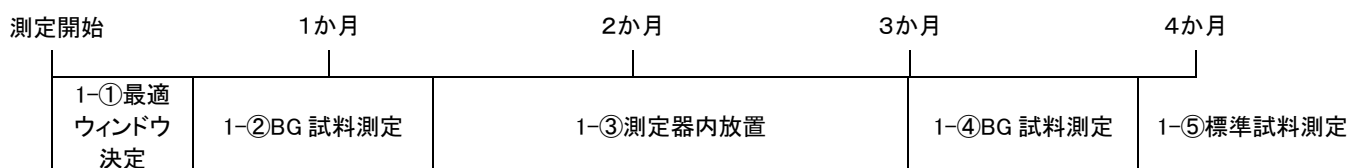


図 1 測定フロー（グループ 1）

図 2 にグループ 2 の測定フローを示す。

2-①最適ウィンドウ決定

各組合せについて標準試料を 20 分間、BG 試料を 900 分間測定し、測定器付属の「最適ウィンドウ決定機能」を用いて、性能指数（FOM）が最大になるようにウィンドウ範囲を決定した。

2-②測定器内放置

測定試料を約 14℃の測定器内に放置した。

2-③BG 試料測定

1 試料あたり 900 分間測定を 1 回行い、試料を交換して 9 種類の試料を測定した。

2-④標準試料測定

1 試料あたり 20 分間測定を 3 回繰り返し、試料を交換して 9 種類の試料を測定した。

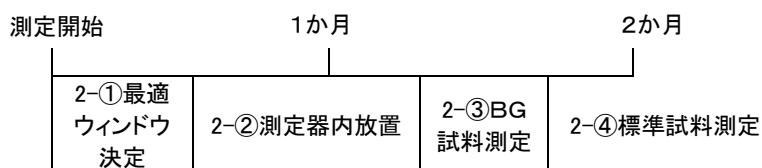


図 2 測定フロー（グループ 2）

3. 結果と考察

3.1 BG 計数率の変動

グループ 1 の BG 試料を用い、1 試料あたり 50 分間測定を 15 回繰り返した後、順次試料を交換しながら 4 サイクル測定した。図 3 は、9 種類の測定試料について BG 計数率の経時変化を示したものである。Tef を用いた場合のみ、各測定サイクルの初期段階で静電気帯電によると考えられる比較的大きな計数率の変動がみられた。Poly 及び PolyTef を用いた場合は、計数率の大きな変動はなく k シグマ検定 (k=3) による棄却データはなかった。表 1 は、9 種類の測定試料それぞれの BG 計数率データ (n=60) の変動係数を示したものである。測定バイアルとして Tef を用いた場合は、変動係数が 26.8~61.0%と高く、Poly 及び PolyTef を用いた場合は、10%程度と比較的低い結果となった。

本県でのトリチウム測定では、静電気帯電による疑似計数を除去する目的で、各サイクルの 15 回の測定のうち最初の 5 回の測定データを無条件に棄却している。Poly 及び PolyTef を使用することでこの最初の 5 回の測定が不要となり、測定時間の短縮につながるものと考えられる。

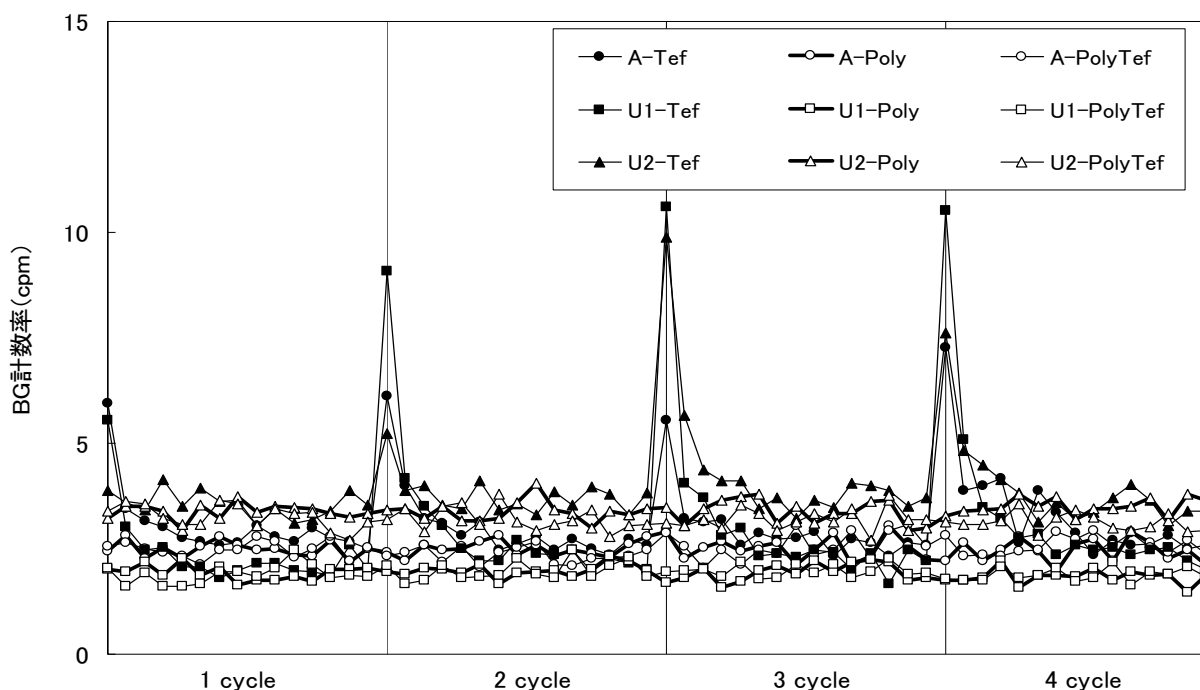


図 3 BG 計数率の経時変化

表 1 BG 計数率の変動係数 (%) (n=60)

測定バイアル	シンチレータ		
	A	U1	U2
Tef	30.9	61.0	26.8
Poly	9.3	9.6	6.9
PolyTef	10.0	10.0	8.1

3.2 シンチレータ及び測定バイアルの組合せによる測定値の比較

表 2 に、グループ 1 及びグループ 2 におけるそれぞれの試料の測定ウィンドウ範囲、計数効率、BG 計数率及び性能指数を示す。上段は図 1 及び図 2 における最適ウィンドウ決定での測定結果（1 回目測定）、下段は測定器内放置後の BG 試料測定及び標準試料測定の結果（2 回目測定）である。

最適ウィンドウ決定機能により設定した測定ウィンドウ範囲は、測定試料により異なっている。グループ 1 では低エネルギー側が 0.65～1.00 keV、高エネルギー側が 4.25～5.70 keV であり、グループ 2 では低エネルギー側が 0.60～1.00 keV、高エネルギー側が 4.15～5.65 keV であった。ウィンドウ幅は、グループ 1 では 3.35～4.95 keV、グループ 2 では 3.40～4.90 keV であり、Tef が Poly よりやや大きく PolyTef が最も小さい。このウィンドウ幅を反映して、計数効率、BG 計数率ともに Tef が大きく、Poly、PolyTef の順に小さくなる傾向が見られた。

シンチレータについては、グループ 1 及びグループ 2 いずれにおいても計数効率にあまり違いは見られなかったが、BG 計数率は U2 が最も大きく U1 が最も小さくなった。BG 計数率には、シンチレータの種類より製造ロットの違いの方が影響しているものと考えられる。

性能指数には計数効率、BG 計数率に加え供試量も寄与しており、グループ 1 及びグループ 2 いずれにおいても、シンチレータとしては U1、U2、A の順、測定バイアルとしては Tef、Poly、PolyTef の順に大きい傾向が見られた。

1 回目測定と 2 回目測定の時間間隔は、グループ 1 は 3 か月から 4 か月であったが、いずれの組合せにおいても計数効率、BG 計数率及び性能指数にほとんど変化は見られず、測定試料の変形や変色も認められなかった。一方、グループ 2 については、1 回目測定と 2 回目測定の時間間隔は 1 か月程度であり、測定試料の変形や変色は認められなかったものの、A-Poly において明らかな計数効率の低下が見られた。

表 3 に、グループ 2 の 1 回目測定と 2 回目測定における測定試料の重量測定結果を、図 4 には測定試料重量の経時変化を示す。A-Poly は、1 回目測定と 2 回目測定の間に測定試料重量が 4.4% 減少しており、表 2 において計数効率の低下も認められていることから、測定試料の損失が考えられる。その他の組合せについては重量の減少はほとんど見られず、計数効率及び BG 計数率にも変化が認められないことから、長期的な安定性が確保されているものと考えられる。

表2 シンチレータ及び測定バイアルの各組合せにおける測定ウィンドウ範囲、
計数効率、BG 計数率及び性能指数

(上段：1 回目測定 下段：2 回目測定)

測定試料	ウィンドウ範囲 (keV) [ウィンドウ幅]	計数効率 (%)	BG 計数率 (cpm)	性能指数
A-Tef	グループ 1 0.95~5.70 [4.75]	33.2 32.9	2.87 3.03	6.16×10^5 5.72×10^5
	グループ 2 0.75~5.65 [4.90]	33.6 32.9	3.23 3.66	5.60×10^5 4.73×10^5
A-Poly	グループ 1 1.00~5.05 [4.05]	29.4 29.4	2.65 2.62	5.20×10^5 5.26×10^5
	グループ 2 1.00~5.20 [4.20]	30.7 28.6	2.78 2.91	5.42×10^5 4.50×10^5
A-PolyTef	グループ 1 0.90~4.25 [3.35]	24.7 24.5	2.18 2.12	4.48×10^5 4.53×10^5
	グループ 2 0.80~4.40 [3.60]	24.2 23.3	2.32 2.39	4.03×10^5 3.65×10^5
U1-Tef	グループ 1 0.85~5.15 [4.30]	30.4 30.4	2.11 2.12	1.10×10^6 1.09×10^6
	グループ 2 0.80~4.95 [4.15]	29.2 29.2	2.04 1.99	1.05×10^6 1.07×10^6
U1-Poly	グループ 1 0.85~5.00 [4.15]	28.5 28.3	2.00 2.04	1.02×10^6 9.81×10^5
	グループ 2 0.90~4.80 [3.90]	27.1 27.0	1.90 2.03	9.66×10^5 9.01×10^5
U1-PolyTef	グループ 1 0.75~4.45 [3.70]	23.9 23.2	1.77 1.77	8.04×10^5 7.60×10^5
	グループ 2 0.75~4.15 [3.40]	20.4 19.8	1.61 1.63	6.46×10^5 5.98×10^5
U2-Tef	グループ 1 0.65~5.60 [4.95]	31.5 31.6	3.93 3.90	6.32×10^5 6.40×10^5
	グループ 2 0.75~5.05 [4.30]	29.5 29.3	3.46 3.61	6.26×10^5 5.94×10^5
U2-Poly	グループ 1 0.80~5.40 [4.60]	29.6 29.2	3.76 3.73	5.82×10^5 5.70×10^5
	グループ 2 0.60~5.45 [4.85]	29.5 29.2	3.82 3.95	5.68×10^5 5.41×10^5
U2-PolyTef	グループ 1 0.80~4.90 [4.10]	24.6 23.9	3.27 3.19	4.64×10^5 4.46×10^5
	グループ 2 0.70~4.30 [3.60]	22.1 21.6	2.89 2.93	4.22×10^5 3.98×10^5

表3 グループ2における測定試料の重量測定結果（バイアル重量除く）

	測定試料								
	A-Tef	A-Poly	A-PolyTef	U1-Tef	U1-Poly	U1-PolyTef	U2-Tef	U2-Poly	U2-PolyTef
1回目(g)	96.1	96.1	96.8	99.5	99.2	99.2	99.8	99.9	99.7
2回目(g)	96.1	91.8	96.5	99.5	99.2	99.2	99.8	99.9	99.7
損失率(%)	0.0	4.4	0.3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

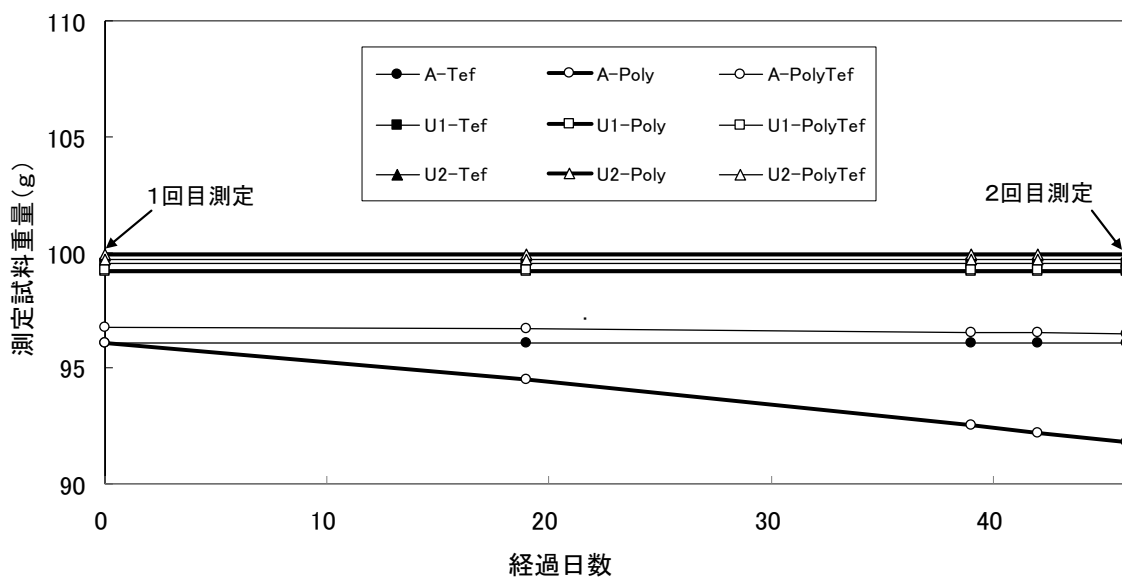


図4 グループ2における測定試料重量の経時変化（バイアル重量除く）

3.3 測定バイアル及びシンチレータの選定

シンチレータについては、性能指数が比較的大きい、測定試料調製時の加温が不要、取扱い上の安全性が高いなどの利点があるUの優位性が高い。

測定バイアルについては、次のような知見が得られた。

- ① 静電気による疑似計数が少ない点では、Tefと比較してPoly及びPolyTefが優れている。
- ② トリチウム測定の感度の指標となる性能指数については、PolyTefがやや小さく、Tefの6~7割程度、Polyの7~8割程度であった。
- ③ A-Polyの組合せ以外は試料作製から数か月後の性能指数や試料重量等にほとんど変化がなく、測定試料の長期的な安定性が確認された。グループ2のA-Polyにおいて計数効率及び試料重量に減少が認められ測定試料の損失が考えられたことから、Polyは特にシンチレータとしてAを用いた場合、長期的な安定性に問題があると考えられる。
- ④ 測定バイアルは環境放射線モニタリングで大量に消費するため、価格も選定の要件として考慮する必要がある。Tefは2,000円程度であるのに対し、Poly及びPolyTefはそれぞれ100円及び700円と安価である。

以上のように、シンチレータに U を使用する場合は、測定感度が高く価格も安い Poly が有利と言える。しかし、A との組合せで測定試料の損失が認められたことを考慮すれば、測定感度はやや低いものの、シンチレータに対する耐久性が高く、これまで使用していた Tef に比較して経済性が高い PolyTef が、環境放射線モニタリング用測定バイアルとしてより適切であると考えられる。

4. まとめ

3 種類の測定バイアル及び 3 種類のシンチレータの計 9 種類の組合せで、性能指数、バックグラウンド計数率の変動、長期的な安定性、経済性などについて比較検討した。その結果、シンチレータとしては U (Ultima Gold LLT) の優位性が高く、環境放射線モニタリングで用いる測定バイアルとしては PolyTef (POLYVIALS 145) がより適切と考えられる。

文 献

- 1) 佐藤兼章、小野容子、新田 濟、前山健司、磯貝啓介、樋口英雄：液体シンチレーション測定によるトリチウム分析結果の信頼性および測定バイアルの検討、RADIOISOTOPE,46,135～143(1997)
- 2) 磯貝啓介、新田 濟：科学技術庁放射能測定シリーズ「トリチウム分析法」改訂原案について、JCAC No.36,48～56(2000)

六ヶ所再処理工場周辺地域におけるクリプトン-85の拡散・分布状況

武藤逸紀 高橋秀昭 三浦誓也^{*1} 安田 浩
木村秀樹 佐々木耕一^{*2} 外川洋一^{*2}

1. はじめに

青森県では、再処理工場の操業後における環境への影響の評価に資するため、平成15年度から平成17年度まで気象研究所との共同研究として、再処理工場から放出される主要な核種の一つであるKr-85の調査を実施し青森市におけるバックグラウンドレベルについて報告した¹⁾。

平成18年3月31日には六ヶ所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、大気中にKr-85が放出されたことから、平成18年度から平成20年度にかけて、施設周辺地域におけるKr-85の拡散・分布状況調査を実施した。大気中Kr-85濃度の測定は、モニタリングステーションに設置したβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタにより行った。

また、本県が構築している環境放射能拡散シミュレーションシステム（以下「シミュレーションシステム」という。）の精度向上のための基礎資料とするため、平成18年度から平成20年度の調査結果を用いてシミュレーションシステムによる計算結果との比較・検討を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地点

再処理工場及び調査地点を図1に示す。

調査当日に再処理工場主排気筒の風下方向に位置する以下の地点を選定した。

第1回調査

地点1：モニタリングステーション尾駸局

第2回及び第3回調査

地点1：モニタリングステーション尾駸局

地点2：六ヶ所村大字尾駸字沖付 モニタリングカー測定地点5

地点3：六ヶ所村大字尾駸字沖付 国道338号線と県道180号線の交差点

*1：現青森県中南地域県民局

*2：日本原燃株式会社

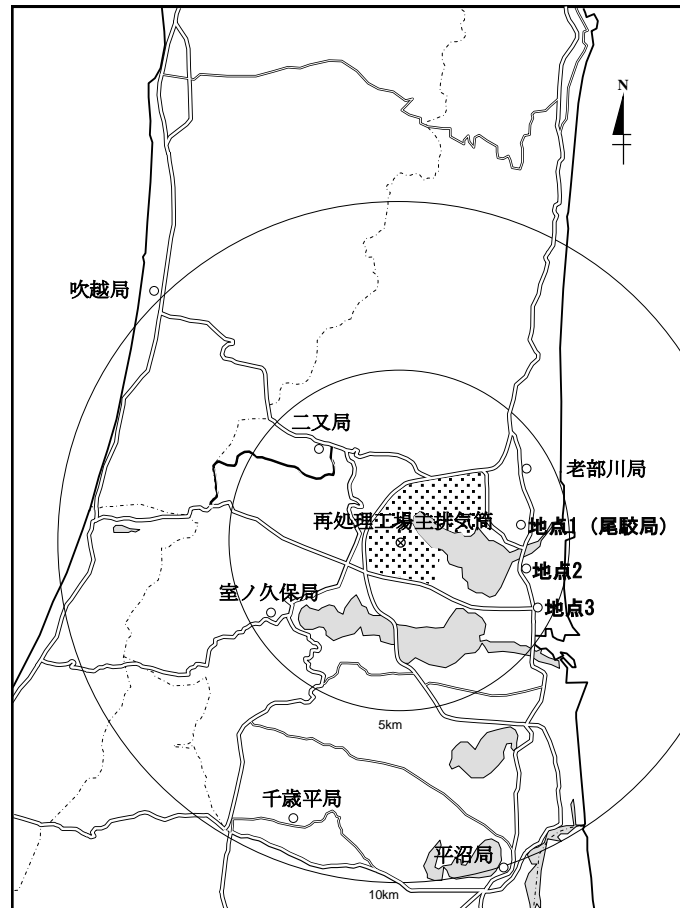


図1 再処理工場周辺における調査地点の位置

2.2 調査日時

- 第1回 平成18年10月18日 9:40～12:20
- 第2回 平成19年12月21日 12:00～13:00
- 第3回 平成20年9月17日 10:40～11:50

2.3 β線ガスモニタを用いたKr-85測定

Kr-85の測定は、モニタリングステーションに設置しているβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタを用いて実施した。モニタリングステーションは施設から概ね10kmの圏内に7局配置しており、これを補間するために可搬型β線ガスモニタを活用した。どちらのモニタもKr-85の検出感度は気象研究所が開発した分析法²⁾より低い。が、現地で連続してKr-85の測定ができる利点を有している。

ガスモニタの仕様を表1に示す。大気をポンプで吸引し、検出槽に設置したプラスチックシンチレーション検出器によりβ線の計測を行う。検出器1枚当たり光電子増倍管が2本使用されており、同時計数によりバックグラウンド計数を低減する工夫がなされている。また、可搬型β線ガスモニタについては、検出器を2枚使用し逆同時計数回路を設けることにより、主に高エネルギーの外部放射線の影響を低減している。検出感度はモニタリングステーションに設置したβ線ガスモニタの方がやや高いが、検出槽容積が大きいと考えられる。

表1 β線ガスモニタ仕様

	モニタリングステーション 設置β線ガスモニタ	可搬型β線ガスモニタ
メーカー・型番	アロカ(株)製 MGR-R42-21403	アロカ(株)製 MGR-R48-21208
検出器	プラスチックシンチレーション検出器1枚	プラスチックシンチレーション検出器2枚
検出槽容積	約30L	約12L (2分割: 6L×2)
光電子増倍管	2本	4本 (検出槽それぞれに各2本)
鉛遮へい	約1.5cm	約1.5cm
サンプリング流量	6.5 L/min	5 L/min
測定下限濃度	0.1 kBq/m ³	0.5 kBq/m ³
測定間隔 (最小)	2分	1分

2.4 気象要素の計測

モニタリングステーション尾駸局、千歳平局、二又局において地上に熱電対式日射計及び熱電対式放射収支計を、地上10mにプロペラ式の風向風速計を設置している。日本原燃(株)濃縮埋設事業所において地上10mに超音波式風向風速計を、同再処理事業所において地上に熱電対式日射計及び熱電対式放射収支計、地上10mに超音波式風向風速計を設置しており、またドップラーソーダにより地上150mの風向風速を計測している。これらの気象要素の計測結果は、10分間隔で青森県環境放射線テレメータシステムに送信されている。大気安定度については、風速、日射量、放射収支量の計測結果を用いて分類している。

3. 調査結果

3.1 六ヶ所再処理工場周辺におけるKr-85の分布・拡散状況

モニタリングステーションに設置したβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタを用い、六ヶ所再処理工場で使用済燃料のせん断・溶解作業が行われている時間帯に、施設の風下に位置する地点においてKr-85濃度の測定を行った。この測定結果とその時間帯の気象の状況から、施設から放出されたKr-85の拡散・分布状況について考察した。また、この測定結果を、県が保有する環境放射能拡散シミュレーションシステム(以下、「シミュレーションシステム」という。)のパフモデルによる施設周辺の大気中Kr-85濃度計算結果との比較・検討に用いた。

(1) 第1回調査結果(平成18年10月18日9:40~12:20)

第1回調査においては、モニタリングステーション尾駸局(以下、「MS尾駸局」という。)に設置しているβ線ガスモニタを用いて測定を行った。測定結果(2分値)を図2に、気象状況を表2に示す。

Kr-85濃度は10:20頃まではほとんど検出されなかったが、10:30頃から上昇し、10:50頃に2.4 kBq/m³と最大になった後、0.5~1.0 kBq/m³程度の濃度が12:20まで継続した。この時間帯において風向はNNW~WNWが卓越しており、風速は3m/s未満が支配的で、大気安定度はA~B(強不安定~並不安定)であった。

このように、調査時はやや北寄りの西風が優勢であり、施設から放出されたKr-85は主に調査地点の南側に分布したが、10:40頃から11:00頃にかけて南風に転じたため、一時的に調査地点方向へ拡散したものと考えられる。

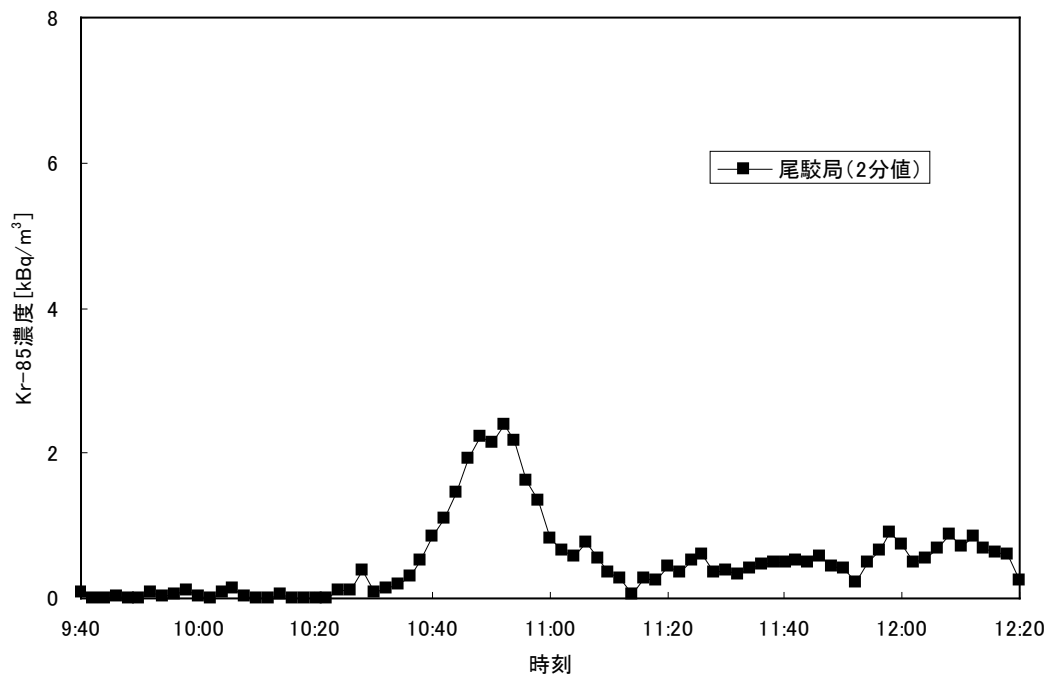


図2 β線ガスモニタによる測定値の推移（平成18年10月18日）

表2 平成18年10月18日の気象状況

時刻	MS 尾駱局（地上10m）			再処理事業所（地上10m）			再処理事業所（地上150m）	
	風向	風速 (m/s)	大気安定度	風向	風速 (m/s)	大気安定度	風向	風速 (m/s)
9:40	NNE	1.9	B	NW	2.3	B	ENE	0.5
9:50	N	1.8	B	WNW	1.9	A-B	NNW	1.8
10:00	NNW	0.9	A-B	ENE	1.0	A	NW	1.9
10:10	NW	1.4	A	WSW	2.6	A-B	NNE	0.8
10:20	W	1.4	A	NNW	1.6	A-B	WNW	1.8
10:30	NW	1.0	A	NNW	1.4	A	NW	2.5
10:40	W	1.9	A	WNW	2.3	A-B	NNE	2.4
10:50	S	1.5	A	N	2.6	A-B	WNW	2.5
11:00	WSW	1.7	A	WNW	3.0	B	NNW	3.1
11:10	WNW	1.1	A	WNW	1.4	A	WNW	3
11:20	NNW	1.9	A	NNW	2.0	A-B	NNW	2.2
11:30	SW	1.3	A	WNW	2.9	A-B	NW	2.5
11:40	SW	1.0	A-B	WNW	3.2	B	W	3.8
11:50	WSW	1.2	A-B	WNW	3.1	B	WNW	3.8
12:00	S	2.1	A	WNW	3.0	B	WNW	4.4
12:10	S	1.4	A	WNW	2.7	A-B	WNW	4
12:20	S	2.3	A	WNW	3.9	B	WNW	4.1

図3は、β線ガスモニタによる測定値の10分平均値とシミュレーションシステムによる地上での大気中Kr-85濃度の計算値(10分値)の推移を示したものである。測定結果に見られる10:50から11:00のピークは、計算結果には見られなかった。測定値が最も高くなった11:00におけるKr-85の拡散・分布状況をシミュレーションシステムにより推定した結果を図4に、この推定に用いた10:50における第1層(地上0m~地上約25m)の風速場を図5に示す。風速場では施設から南東方向に吹く風がMS尾駁局付近で北向きに変わっているが、拡散・分布図ではその効果が十分に反映されていないことがわかる。

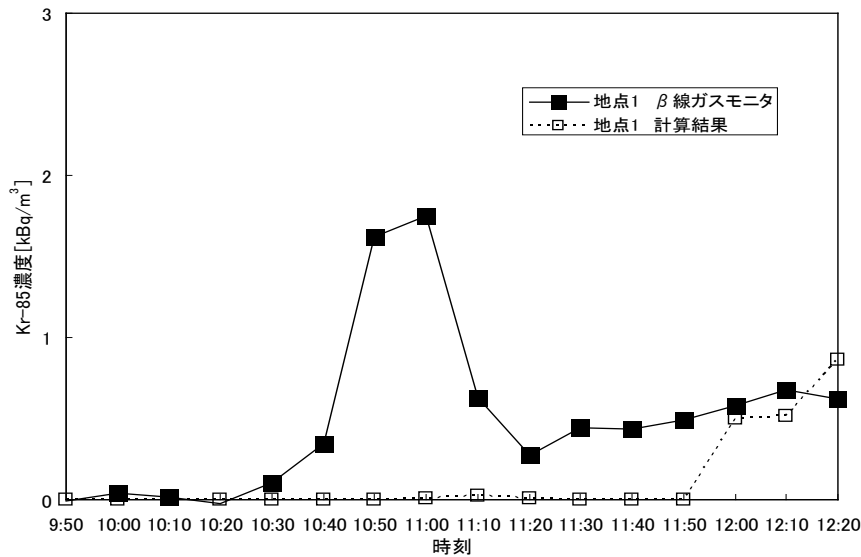


図3 β線ガスモニタの測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較
(平成18年10月18日)

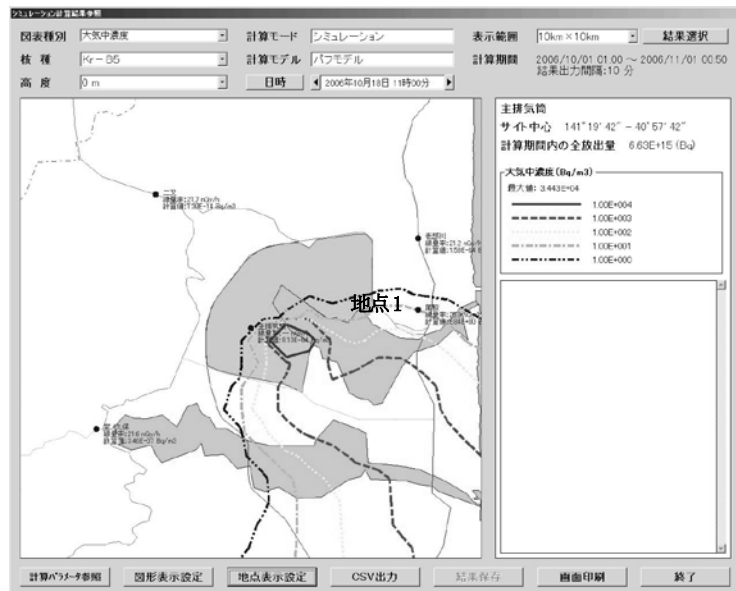


図4 シミュレーションシステムによる大気中Kr-85の拡散・分布状況
(平成18年10月18日11:00)

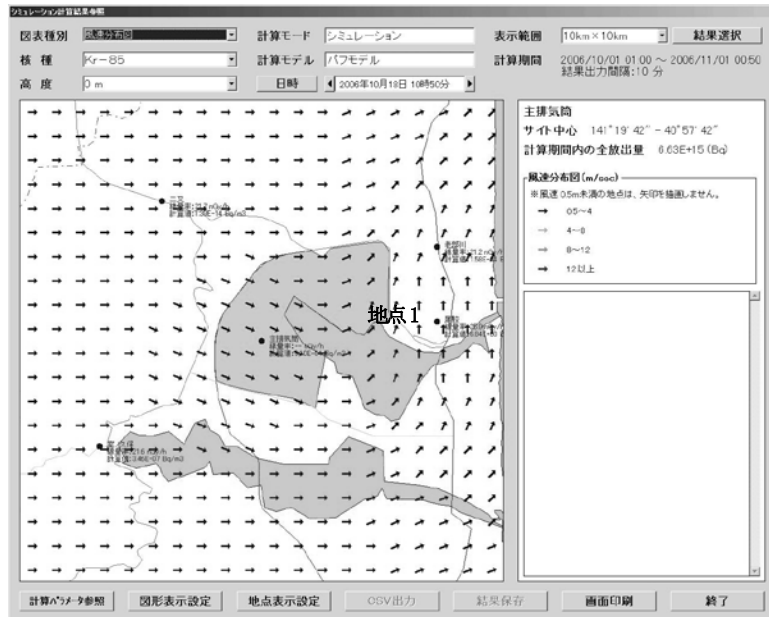


図5 再処理工場周辺地域における第1層（地上0m～地上約25m）の風速場（平成18年10月18日10:50）

(2) 第2回調査結果（平成19年12月21日12:00～13:00）

第2回調査は、MS尾駮局に設置したβ線ガスモニタ（地点1）及び可搬型β線ガスモニタ（地点2及び地点3）により測定を行った。測定結果（1分値又は2分値）を図6に、気象状況を表3に示す。

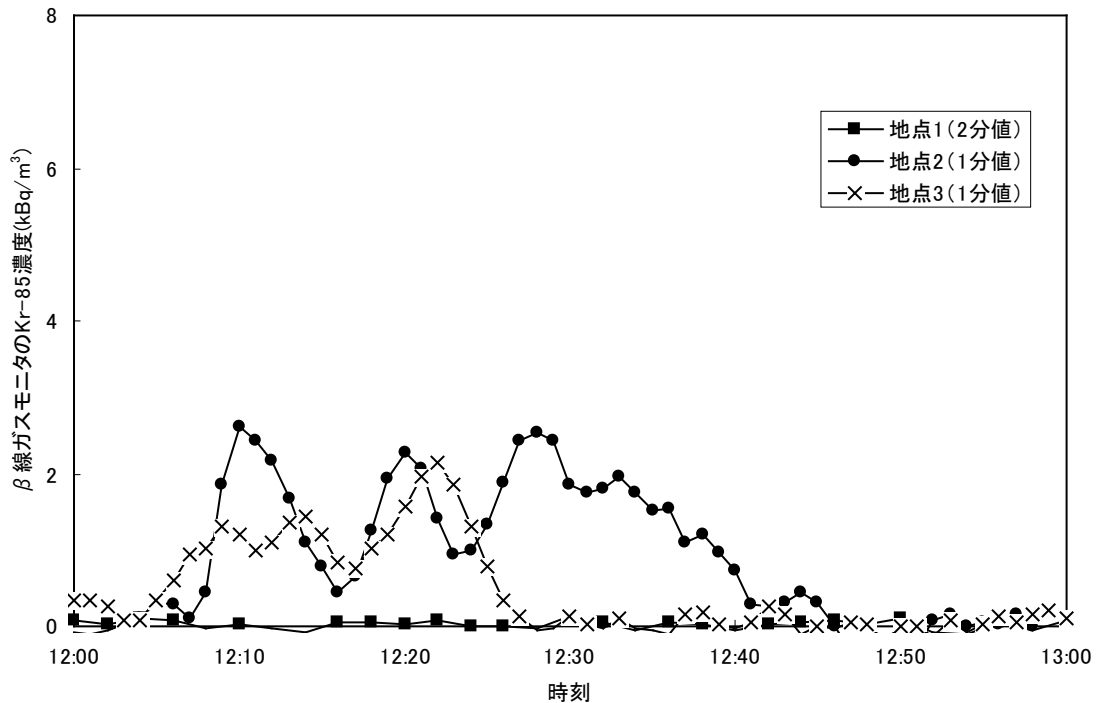


図6 β線ガスモニタによる測定値の推移（平成19年12月21日）

表3 平成19年12月21日の気象状況

時刻	MS 尾駸局 (地上 10m)			再処理事業所 (地上 10m)			再処理事業所 (地上 150m)	
	風向	風速 (m/s)	大気 安定度	風向	風速 (m/s)	大気 安定度	風向	風速 (m/s)
12:00	WNW	5.9	D	WNW	7.9	D	WNW	12.1
12:10	NW	6.6	D	WNW	8.4	D	WNW	13.6
12:20	NW	6.3	D	WNW	8.2	D	WNW	14.3
12:30	WNW	6.4	D	WNW	7.7	D	WNW	13.1
12:40	NW	7.9	D	WNW	9.7	D	WNW	12.6
12:50	WNW	5.0	D	W	8.6	D	WNW	15.1
13:00	WNW	7.4	D	WNW	7.8	D	WNW	13.6

図6を見ると、3つの地点の最も北側にある地点1ではKr-85が検出されていないのに対し、中央に位置する地点2においては12:10頃から12:45頃まで、最も南側に位置する地点3においては12:05頃から12:25頃まで、継続してKr-85が検出されている。測定値のピークは、地点2で12:10頃、12:20頃及び12:28頃に、地点3では12:10前後と12:20頃に見られている。この時間帯における風向は、再処理事業所は地上10mも地上150mもWNWでほぼ一定であり、MS尾駸局もWNW~NWと大きな変化がなかった。風速は地上10mで5~10m/s、地上150mでは12~15m/sとやや強く、大気安定度はD(中立)であった。

このように、一定した気象状況であったため、地点2及び3において比較的長い時間、施設から放出されたKr-85のプルームをとらえることができたものと考えられる。測定値のピークの間隔は約10分であり、使用済燃料のせん断・溶解の間隔(20分)には一致しなかった。また、測定結果は全体的に地点2が最も高く、プルームの大部分が地点1から地点3の間に入っていたことを示唆している。

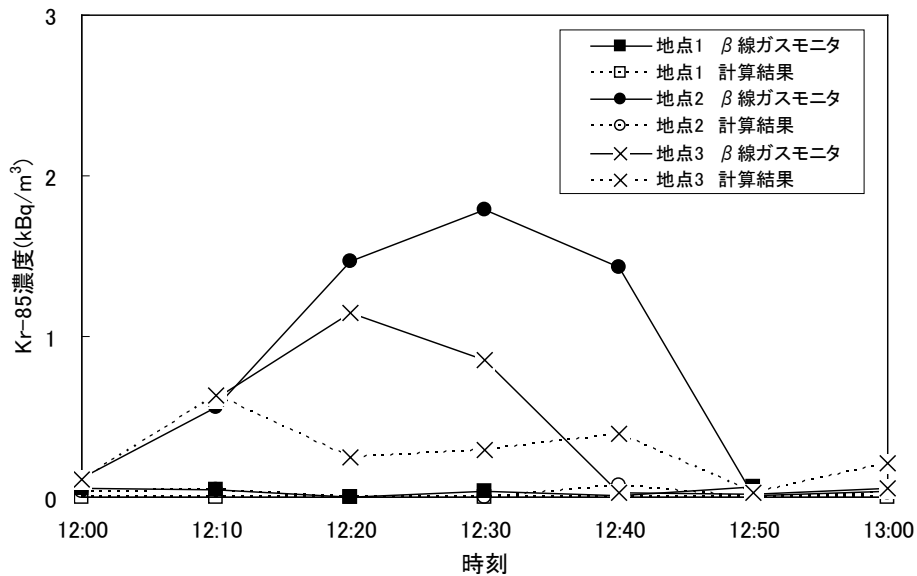


図7 β線ガスモニタの測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較
(平成19年12月21日)

図7は、図3と同様にβ線ガスモニタによる測定値（10分平均値）とシミュレーションシステムによる計算値（10分値）の推移を示したものである。地点2においては、Kr-85が継続して検出されているのに対し、計算結果はほぼゼロであった。地点3においては、計算結果にある程度Kr-85濃度の上昇が見られている。地点3における測定値が最も高くなった12:20におけるKr-85の拡散・分布状況をシミュレーションシステムにより推定した結果を図8に、この推定に用いた12:10における第1層（地上0m～地上約25m）の風速場を図9に示す。この時刻には地点2の測定値が地点3より高くなっているにもかかわらず、拡散・分布図ではプルームが地点3よりさらに南側に分布している。図9の風速場を見ても、測定地点付近では一様に西北西の風であり、拡散・分布図と矛盾はない。このようなことから、今回のシミュレーションシステムによる計算結果には、風向軸のずれがあるものと考えられる。



図8 シミュレーションシステムによる大気中Kr-85の拡散・分布状況
(平成19年12月21日12:20)

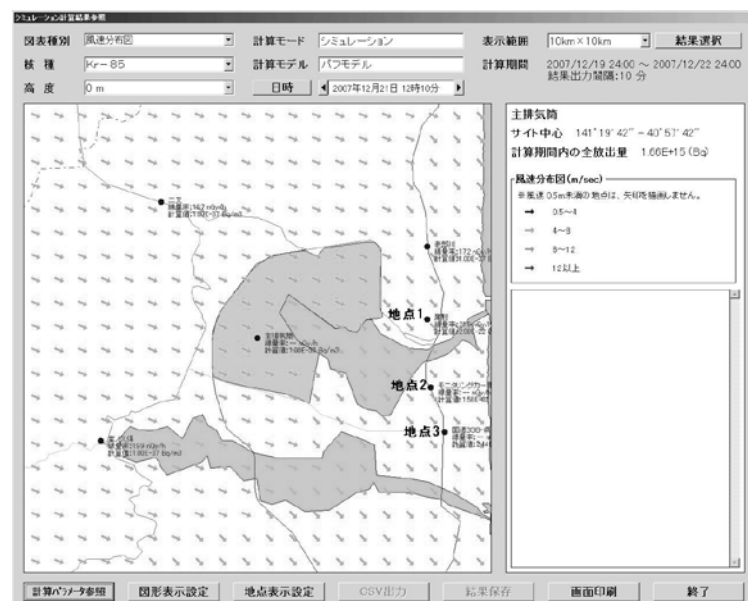


図9 再処理工場周辺地域における第1層（地上0m～地上約25m）の風速場（平成19年12月21日12:10）

(3) 第3回調査結果（平成20年9月17日10:40~11:50）

第3回調査も、MS尾駮局に設置したβ線ガスモニタ（地点1）及び可搬型β線ガスモニタ（地点2及び地点3）により測定を行った。測定結果（1分値又は2分値）を図10に、気象状況を表4に示す。

今回は、3つの地点の中央に位置する地点2で10:50頃から11:40頃まで継続してKr-85が検出されており、地点1及び地点3では検出されなかった。地点2における測定値のピークは11:00頃と11:20頃の2回あり、その間隔は使用済燃料のせん断・溶解の間隔（20分）とほぼ一致した。この時間帯における風向は、再処理事業所では地上10mでNW~Wとやや変化が見られたが、地上150mではWでほぼ一定であり、MS尾駮局においてもWNWでほぼ一定であった。風速は地上10mで4m/s前後、地上150mでも5m/s前後であり、大気安定度はB（並不安定）又はC（弱不安定）であった。

今回も第2回調査と同様に一定した気象状況であったため、比較的長い時間、施設から放出されたKr-85のプルームをとらえることができたと考えられる。また、今回の調査では中央の地点2でのみKr-85が検出されており、プルームの拡散方向を確実に把握することができた。

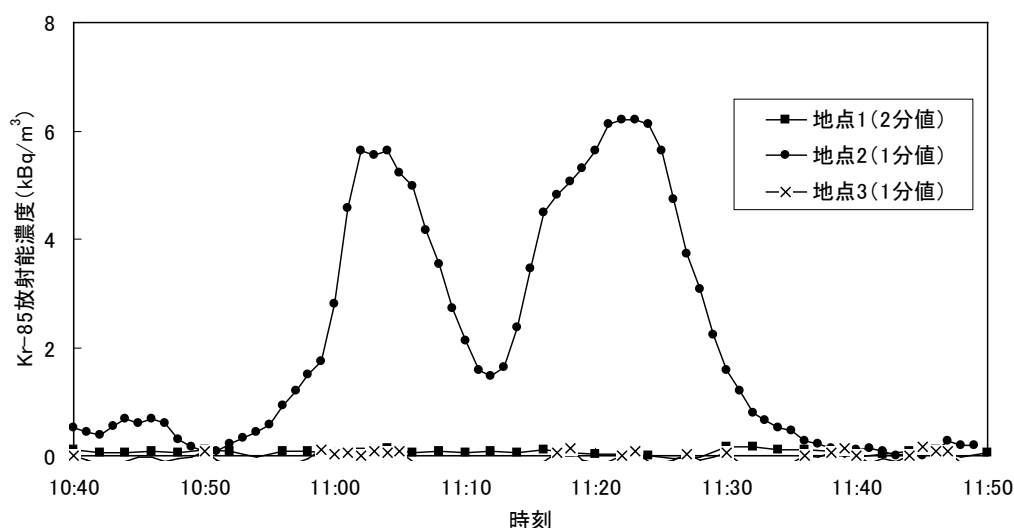


図10 β線ガスモニタによる測定値の推移（平成20年9月17日）

表4 平成20年9月17日の気象状況

時刻	MS尾駮局（地上10m）			再処理事業所（地上10m）			再処理事業所（地上150m）	
	風向	風速 (m/s)	大気 安定度	風向	風速 (m/s)	大気 安定度	風向	風速 (m/s)
10:40	WNW	4.0	B	WNW	4.7	C	W	5.3
10:50	WNW	4.7	C	WNW	3.7	B	W	5.4
11:00	WNW	3.5	C	NW	3.9	B	WNW	5.2
11:10	WNW	4.0	B	WNW	4.4	C	W	5.1
11:20	WNW	4.3	C	W	4.6	C	W	4.6
11:30	WNW	4.0	C	W	4.6	C	W	5.5
11:40	NW	4.2	C	WNW	4.4	C	W	6.0
11:50	WNW	3.5	C	WNW	4.9	C	W	6.4

図11は、図3及び図7と同様にβ線ガスモニタによる測定値（10分平均値）とシミュレーションシステムによる計算値（10分値）の推移を示したものである。今回はいずれの地点においても、両者の値はほぼ一致した。地点2で測定値が高くなっている11:20におけるKr-85の拡散・分布状況をシミュレーションシステムにより推定した結果を図12に、この推定に用いた11:10における第1層（地上0m～地上約25m）の風速場を図13に示す。風速場では、施設上空で西方向であった風が測定地点付近において西北西にやや方向を変えており、拡散・分布図ではこれを反映して、プルームの中心が地点2を通過するように分布していることが示されている。

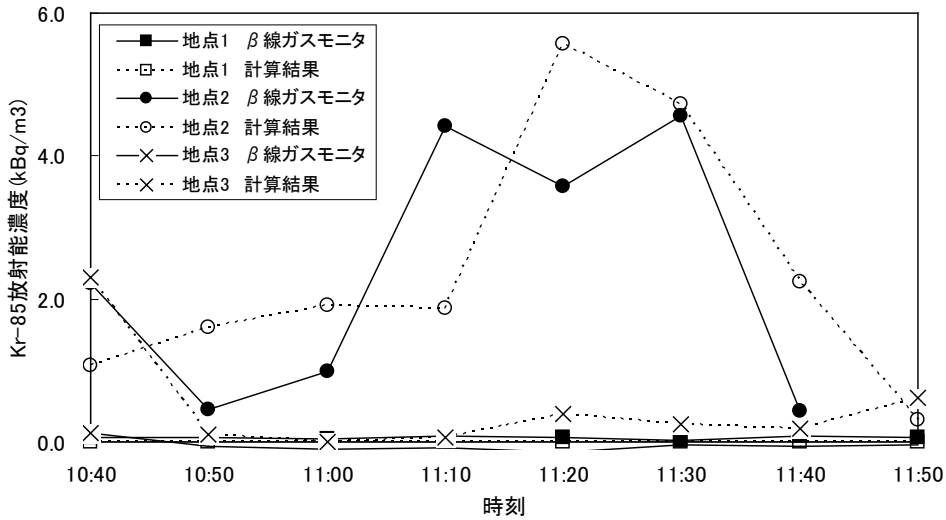


図11 β線ガスモニタの測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較
(平成20年9月17日)

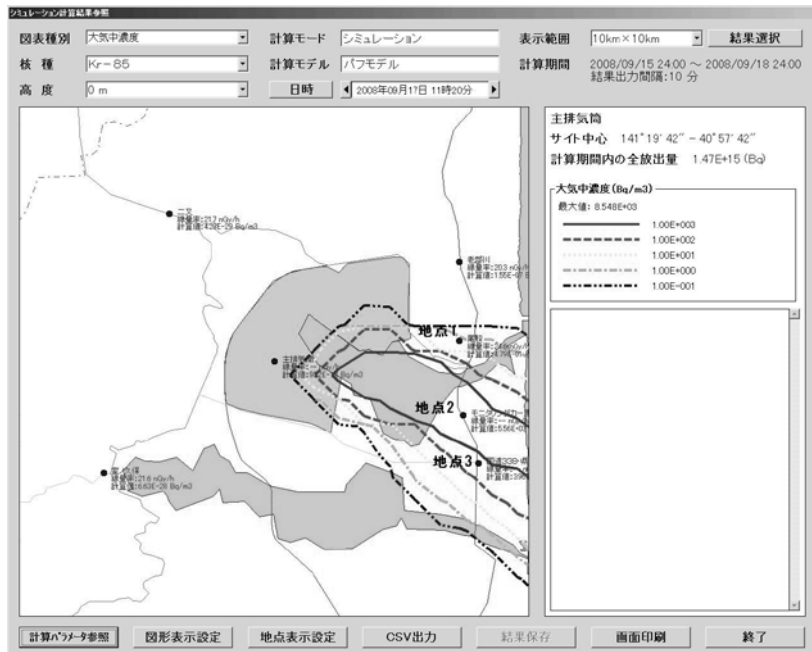


図12 シミュレーションシステムによる大気中Kr-85の拡散・分布状況
(平成20年9月17日11:20)



図13 再処理工場周辺地域における第1層（地上0m～地上約25m）の風速場（平成20年9月17日11:10）

4. まとめと展望

平成18年度から平成20年度にかけて、モニタリングステーションに設置しているβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタを用い、再処理工場から放出されたKr-85の拡散・分布状況を調査した。施設における使用済燃料のせん断・溶解時に、施設の風下方向の3地点において大気中Kr-85濃度を測定することにより、プルームの拡散方向やKr-85濃度の経時的な変化を把握することができた。今後も、シミュレーションシステムの精度向上に資するため、いろいろな気象条件においてβ線ガスモニタを用いた調査を実施し、シミュレーションシステムによる計算結果との比較・検討を継続して行う計画である。

文 献

- 1) 三浦誓也、具森優希、工藤英嗣、野呂幸男、時枝隆之、広瀬勝己：青森県原子力センター所報 第1号，43-44(2006)
- 2) Yasuhito Igarashi, Michio Aoyama, Kazuhiro Nemoto, Katsumi Hirose, Takashi Miyao, Katsuhiko Fushimi, Mikihiko Suzuki, Shigeo Yasui, Yasuhiro Asai, Iwao Aoki, Kenji Fujii, Shigeo Yamamoto, Hartmut Sartorius and Wolfgang Weiss: ⁸⁵Kr measurement system for continuous monitoring at the Meteorological Research Institute, Japan. Journal of Environmental monitoring, **3**, 688-696(2001)

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 20 年度調査結果—

五十嵐飛鳥 大下内 伸 木村秀樹
田中義也*1 尾形哲司*1 住谷秀一*2

1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成 18 年 3 月 31 日からアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が行なわれており、クリプトン-85、トリチウム、炭素-14 及びヨウ素-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(^3H)、炭素-14(^{14}C)及びヨウ素-129(^{129}I)、131 (^{131}I) について調査を行なっている。

本調査は平成 19 年度から開始しており、平成 20 年度からはヨウ素-131 (^{131}I) を追加し実施している。本報告は平成 20 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),2)}における農畜産物及び海産生物の中から選定し、表 1 のとおりとした。これらの調査地点を図 1 に示す。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

文部科学省放射能測定法シリーズ「トリチウム分析法」³⁾ 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トリチウム (TFWT) と有機結合型トリチウム (OBT) に分別し、それぞれの試料水中トリチウム濃度（水分中トリチウム濃度(Bq/L)）を測定した。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBT のみ測定した。この水分中トリチウム濃度と、TFWT の場合は真空凍結乾燥により得られた水分量 (L/kg 生)、OBT の場合は乾燥試料を燃焼して得られた水分量 (L/kg 生) から、試料中トリチウム濃度 (Bq/kg 生) を求めた。

なお、OBTは非交換型OBTと交換型OBTに分類されるが、これらのOBTは、生物体内での挙動が異なることや、交換型OBTが分析室内空気中のトリチウムや試料中TFWTの影響を受ける可能性があることから、近年においては試料を凍結乾燥後に無トリチウム水で洗浄して交換型OBTを除去し、非交換型OBTのみ分析することを推奨する研究⁴⁾もある。本調査においては、

*1：日本原燃株式会社

*2：現独立行政法人 日本原子力研究開発機構

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 20 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	OBT		
牛乳（原乳）	富ノ沢	4	○	○	○	—
	横浜町		○	○	○	—
	二又		○	○	○	—
	豊原		○	○	○	—
精米	尾駸	1	—	○	○	—
	千樽		—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	二又①		—	○	○	—
	二又②		—	○	○	—
	戸鎖		—	○	○	—
	平沼		—	○	○	—
ハクサイ	出戸	1	○	○	○	○
	千樽		○	○	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	出戸		○	○	○	—
パレイショ	尾駸		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類（ヒラメ）	六ヶ所村前面海域	8	○	○	—	—
海藻類（コンブ）		2	—	—	—	○

TFWT：組織自由水トリチウム

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

平成 21 年度から魚類の非交換型 OBT についても分析することとしているが、今回は交換型 OBT を除去しない従来型の OBT について報告する。

(2) 炭素-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」⁵⁾ に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

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

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

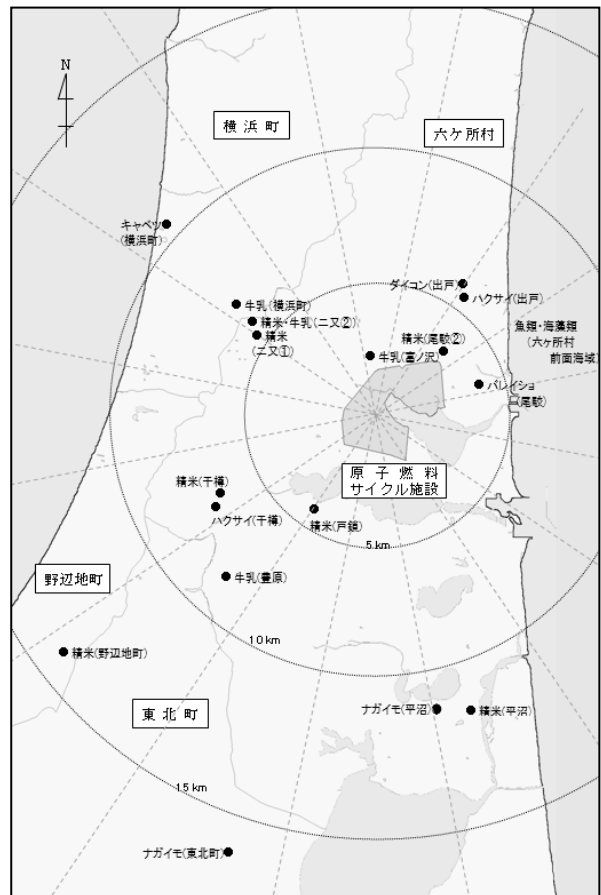


図 1 調査地点図

(3) ヨウ素-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素からヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置(AMS)を用いてヨウ素-129(^{129}I)とヨウ素-127(^{127}I)の原子数比を測定した。また、乾燥試料を次亜塩素酸ナトリウム溶液で分解し、ICP質量分析法によって安定ヨウ素(^{127}I)を定量した。これらによって求めた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中のヨウ素-129濃度を求めた⁶⁾。

(4) ヨウ素-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁷⁾に準拠し、生試料又は乾燥試料をGe半導体検出器により測定した。

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21年3月にかけて放出された放射性気体廃棄物(トリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131)の月間放出量を図2に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図3に示す。平成20年度における月ごとの放出量の推移は、気体、液体のいずれも平成19年度に比較すると全体的に少なかった。また、平成20年度は、平成19年の9月から10月のように突出して高い放出量の月はなかったが、春から秋にかけて、ある程度の放出があったことが示されている。

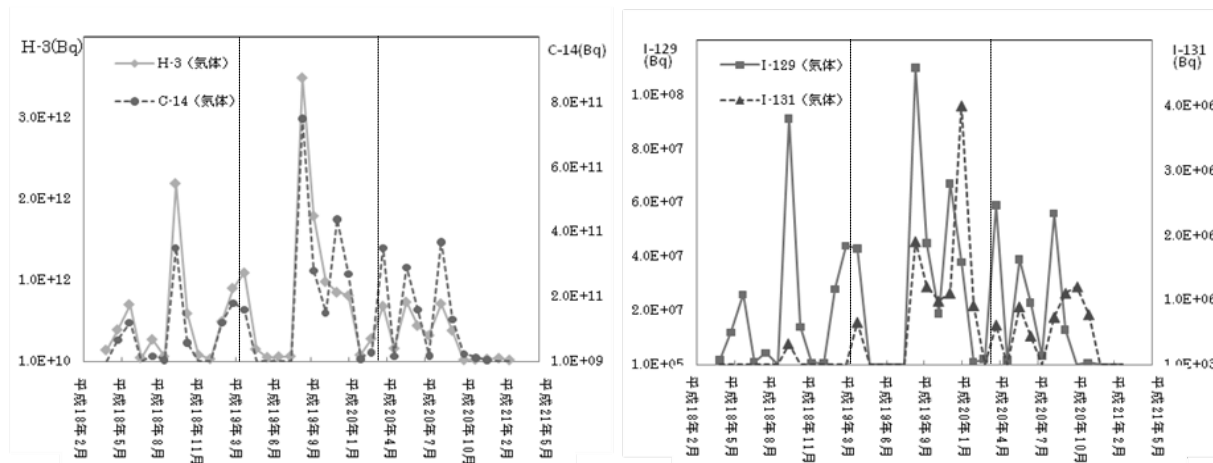


図2 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成21年3月 日本原燃株式会社 HP のデータを使用して作成)

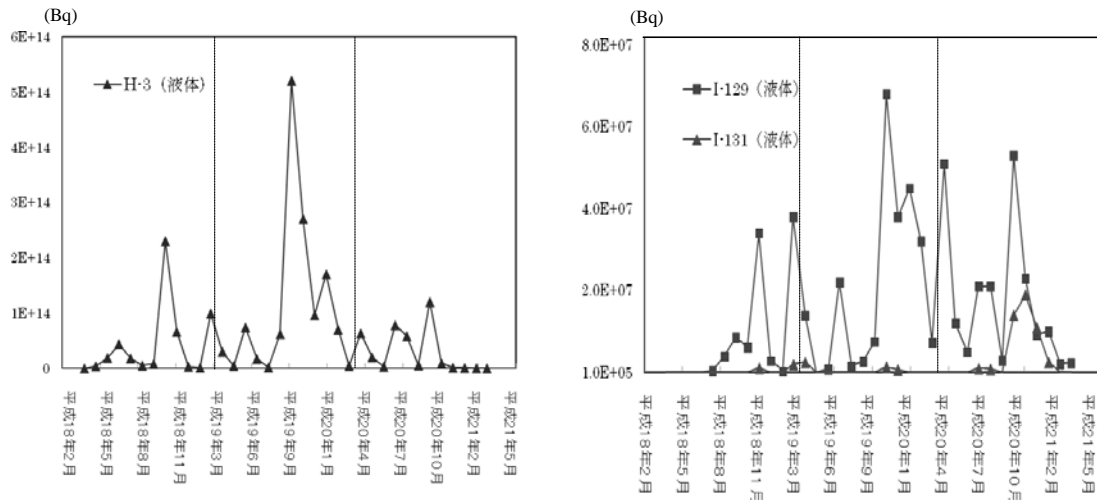


図3 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成21年3月 日本原燃株式会社 HPのデータを使用して作成)

4. 結果と考察

4.1 トリチウム

環境試料中のトリチウム (TFWT 及び OBT) の測定結果を表 2 に示す。陸上試料である牛乳、精米、葉菜及び根菜・いも類については、TFWT で検出限界以下～0.91 Bq/L、OBT で検出限界以下～0.79 Bq/L となり、近年の大气及び降水中トリチウム濃度と同程度であった。TFWT と OBT に大きな差は見られなかった。

一方、海洋試料については、10月14日に六ヶ所村前面海域で採取された魚類のTFWTが3.3 Bq/L、OBTが1.4 Bq/Lであり、海洋試料のバックグラウンドレベルと比較して高い値となった。試料採取前、表 3 に示すように再処理工場から断続的に液体廃棄物 (トリチウム) の海洋放出があり、(財)日本海洋科学振興財団が観測している海洋放出口付近の海況では、図 4 に示すように、この時期は北向きの海流が卓越していたことが確認されている。^{1)・2)} 魚類の採取場所は海洋放出口の北側に位置しており、これらのトリチウムの測定結果には再処理工場からの寄与があったものと推定された。なお、平成 19 年度においても魚類中のトリチウム濃度に今回と同程度の変動が認められており、再処理工場からの放出状況や当該海域の海況も今回と同様であった。

表2 環境試料中のトリチウム (TFWT 及び OBT) 濃度

試料名	採取地点	平成 20 年度調査結果		(参考) 平成 19 年度調査結果		
		TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	
牛乳 (原乳)	富ノ沢	Q1	0.73±0.13	0.43±0.14	*	0.78±0.11
		Q2	0.59±0.13	0.72±0.13	*	*
		Q3	0.65±0.12	0.43±0.12	0.40±0.13	0.41±0.12
		Q4	0.91±0.15	0.62±0.14	*	0.40±0.12
	横浜町	Q1	*	0.64±0.12	*	0.40±0.12
		Q2	*	0.70±0.12	*	0.54±0.12
		Q3	0.42±0.10	0.60±0.12	*	0.38±0.12
		Q4	*	0.49±0.12	*	0.59±0.12
	二又	Q1	*	0.51±0.12	*	*
		Q2	*	0.63±0.14	*	0.52±0.11
		Q3	*	0.46±0.12	*	0.54±0.12
		Q4	*	*	*	*
	豊原	Q1	*	0.73±0.12	*	*
		Q2	0.47±0.13	0.77±0.14	*	0.52±0.11
		Q3	0.73±0.15	0.53±0.12	*	0.60±0.12
		Q4	*	0.57±0.17	*	0.51±0.12
精米	尾駸①	-	-	-	0.80±0.14	
	尾駸②	-	0.62±0.17	-	0.76±0.12	
	千樽	-	0.47±0.14	-	0.89±0.11	
	野辺地町	-	0.53±0.12	-	0.59±0.11	
	二又①	-	*	-	-	
	二又②	-	0.64±0.14	-	1.0±0.13	
	戸鎖	-	*	-	0.66±0.12	
	平沼	-	*	-	-	
ハクサイ	出戸	0.69±0.14	0.73±0.14	0.63±0.14	0.80±0.14	
	千樽	0.89±0.15	0.45±0.11	0.55±0.14	0.56±0.12	
キャベツ	横浜町	0.66±0.14	0.79±0.14	0.94±0.14	1.2±0.15	
ダイコン	出戸	0.58±0.12	0.45±0.14	*	0.66±0.12	
パレイショ	尾駸	0.86±0.13	0.72±0.12	0.50±0.14	0.84±0.12	
ナガイモ	東北町	0.66±0.14	0.44±0.14	0.67±0.14	0.42±0.11	
	平沼	0.63±0.14	0.79±0.12	0.89±0.14	0.52±0.12	
魚類(ヒラメ)	六ヶ所村 前面海域	*~3.3±0.14	*~1.4±0.15	*~2.3±0.13	0.40±0.12 ~1.2±0.12	

・「-」は調査対象外

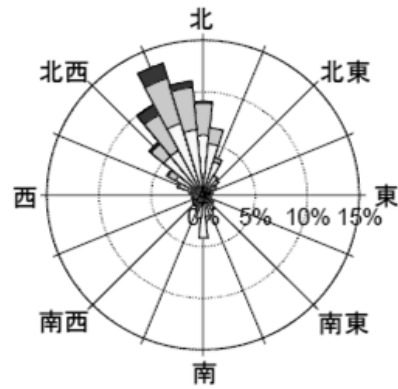
・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。

・Q1, Q2, Q3 及び Q4 は、採取時期がそれぞれ第1、第2、第3 及び第4 四半期であることを示す。

表3 平成20年10月における液体廃棄物
(トリチウム) 放出状況

※魚類採取日：平成20年10月14日

月/日	トリチウム 放出量 (Bq)	トリチウム放出 濃度 (Bq/L)
10/1	2.3×10^{11}	4.0×10^5
10/2	2.4×10^{12}	4.2×10^6
10/8	1.2×10^{13}	2.1×10^7
10/10	1.9×10^{13}	3.3×10^7



平成20年10月1日～10月15日

・図中の流向は海流が向かう方向を示す。
・県が(財)日本海洋科学振興財団に委託している「六ヶ所村海洋沖合海洋放射能等調査」の一環として得られた観測データである。

図4 流向別流速出現頻度

4.2 炭素-14

環境試料中の炭素-14比放射能の測定結果は表4に示すとおり、精米が0.235～0.254 Bq/g炭素、葉菜が0.236～0.243 Bq/g炭素、根菜・いも類が0.236～0.249 Bq/g炭素であった。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炭素-14比放射能の推移を図5に示す。炭素-14のモニタリングを開始した平成7年度から平成18年度まで、炭素-14比放射能には減少傾向が認められている。大気圏内核実験によって増加した炭素-14は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。県のモニタリングで得られた炭素-14比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値0.228 Bq/g炭素⁸⁾を差し引き、核実験起源の炭素-14の半減時間を求めると9.5年となった。これは府馬ら⁹⁾による核実験起源の炭素-14の1963年

表4 環境試料中の炭素-14比放射能 (Bq/g炭素)

試料名	採取地点	H20年度 調査結果	(参考) H19年度 調査結果	試料名	採取地点	H20年度 調査結果	(参考) H19年度 調査結果	
牛乳 (原乳)	富ノ沢	Q1	0.238±0.002	0.231±0.002	精米	尾駁①	-	0.240±0.003
		Q2	0.247±0.003	0.253±0.003		尾駁②	0.254±0.003	0.258±0.003
		Q3	0.241±0.002	0.249±0.002		千樽	0.240±0.003	0.248±0.003
		Q4	0.237±0.003	0.256±0.003		野辺地町	0.235±0.002	0.249±0.003
	横浜町	Q1	0.236±0.002	0.242±0.002		二又①	0.241±0.003	-
		Q2	0.238±0.002	0.245±0.002		二又②	0.250±0.003	0.251±0.003
		Q3	0.239±0.002	0.237±0.002		戸鎖	0.247±0.003	0.255±0.003
		Q4	0.238±0.002	0.238±0.002		平沼	0.239±0.003	-
	二又	Q1	0.248±0.003	0.244±0.003	ハクサイ	出戸	0.236±0.003	0.245±0.003
		Q2	0.252±0.003	0.248±0.003	千樽	0.243±0.003	0.260±0.003	
		Q3	0.249±0.003	0.256±0.003	キャベツ	横浜町	0.240±0.003	0.267±0.003
		Q4	0.235±0.003	0.262±0.003	ダイコン	出戸	0.236±0.003	0.238±0.003
	豊原	Q1	0.247±0.003	0.242±0.003	バレイショ	尾駁	0.244±0.003	0.244±0.003
		Q2	0.245±0.003	0.266±0.003	ナガイモ	東北町	0.236±0.003	0.243±0.003
		Q3	0.256±0.003	0.253±0.003	平沼	0.249±0.003	0.258±0.003	
		Q4	0.233±0.003	0.262±0.003				

・Q1, Q2, Q3及びQ4は、採取時期がそれぞれ第1、第2、第3及び第4四半期であることを示す。

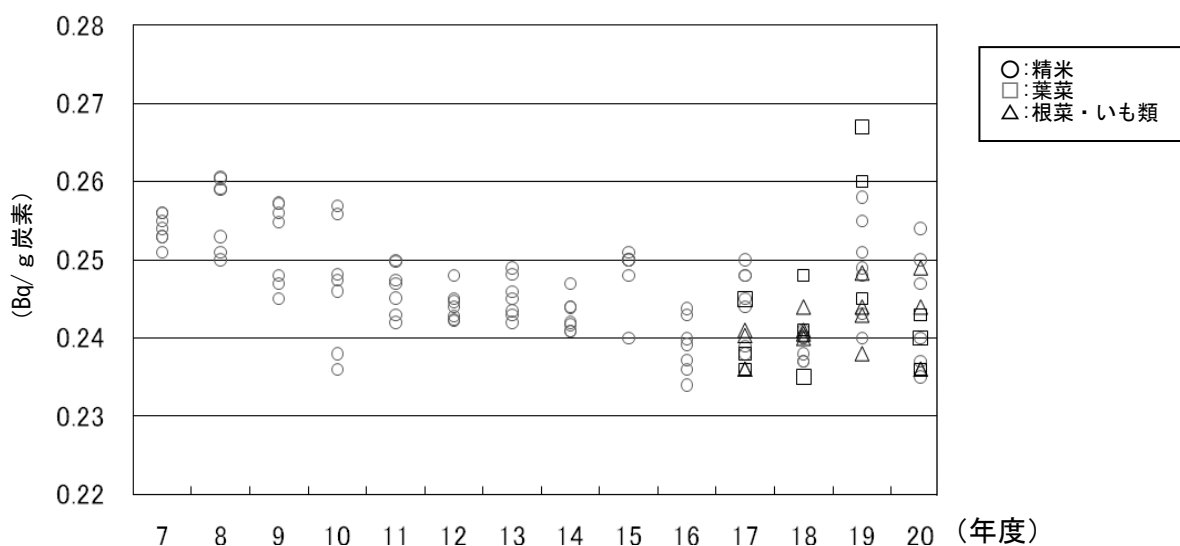


図5 農作物（精米、葉菜及び根菜・いも類）中の炭素-14 比放射能の経年変化（平成7年度～平成20年度）

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。これに対し、平成19年度の測定結果には、この平成18年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルを上回るものが見られ、再処理工場からの寄与があったものと推定された。今年度の調査結果は、ほとんどが平成19年度の値より低くなっているが、上記のバックグラウンドレベルと比較するとやや高めのものもあった。

4.3 ヨウ素-129 及びヨウ素-131

環境試料中のヨウ素-129濃度及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比を表5に示す。ヨウ素-129濃度については、葉菜類で $4.2 \times 10^{-6} \sim 1.2 \times 10^{-5} \text{ Bq/kg}$ 生、海藻類で 6.9×10^{-4} 及び $2.1 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg}$ 生であった。海藻類は葉菜類に比べて安定ヨウ素濃度が高く、このためヨウ素-129濃度についても海藻類の方が高くなっているものと考えられる。一方、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は葉菜類で $8.7 \times 10^{-8} \sim 5.0 \times 10^{-7}$ 、海藻類で 4.9×10^{-10} 及び 4.1×10^{-10} であった。大気圏内核実験後の環境中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比（フォールアウトバックグラウンド）は、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$ 程度と報告されている¹⁰⁾。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、これらと比較してやや高めであり、平成19年度と比較すると、ハクサイはやや高めであったが、キャベツは同程度、海藻類（コンブ）はやや低めであった。

ヨウ素-131については、すべての試料において検出限界以下であった。

表5 環境試料中のヨウ素-129 濃度及び¹²⁹I/¹²⁷I原子数比

試料名	採取地点	平成20年度調査結果		(参考)平成19年度調査結果		
		ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	
ハクサイ	出戸	$9.7 \times 10^{-6} \pm 0.2 \times 10^{-6}$	8.7×10^{-8}	$1.4 \times 10^{-6} \pm 0.3 \times 10^{-7}$	3.0×10^{-8}	
	千樽	$4.2 \times 10^{-6} \pm 0.2 \times 10^{-6}$	1.4×10^{-7}	$8.8 \times 10^{-7} \pm 0.3 \times 10^{-7}$	2.4×10^{-8}	
キャベツ	横浜町	$1.2 \times 10^{-5} \pm 0.3 \times 10^{-6}$	5.0×10^{-7}	$5.1 \times 10^{-6} \pm 0.2 \times 10^{-6}$	6.0×10^{-7}	
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	①	$6.9 \times 10^{-4} \pm 0.4 \times 10^{-4}$	4.9×10^{-10}	$2.8 \times 10^{-3} \pm 0.6 \times 10^{-4}$	9.1×10^{-10}
		②	$2.1 \times 10^{-3} \pm 0.2 \times 10^{-4}$	4.1×10^{-10}	$9.3 \times 10^{-4} \pm 0.1 \times 10^{-4}$	5.9×10^{-10}

5. 実効線量の試算

本調査結果に基づき、「環境放射線モニタリング指針（平成20年3月 原子力安全委員会）」¹¹の線量推定評価法を用いて、核種・食品等の種類ごとに、経口摂取による預託実効線量の試算を行った。試算は再処理工場からの寄与が考えられる試料について行うこととし、トリチウムについては魚類を、炭素-14については、平成16年度から平成18年度までのモニタリングにおいて測定した試料の比放射能の平均値0.241 Bq/g炭素をバックグラウンドとみなし、比放射能がこの値を上回った試料を対象とした。また、ヨウ素-129については、¹²⁹I/¹²⁷I原子数比がフォールアウトバックグラウンドを上回った試料を対象とした。

試算では、炭素-14についてはバックグラウンドが試料によらずほぼ一定であり、測定値に占める割合が大きいことから、比放射能測定値から0.241 Bq/g炭素を差し引いた値を用いた。一方、トリチウム及びヨウ素-129については、測定値に占めるバックグラウンドの割合が比較的小さいと考えられることから、測定値をそのまま用いて線量を試算した。

核種・食品等の種類ごとに、試算結果が最も大きくなった値を表6に示す。試算には、食品の種類ごとの1日当たりの摂取量（成人）は、青森県が実施した食品摂取量調査による値を、経口摂取による成人の預託実効線量係数は環境放射線モニタリング指針の値を用いた。試算結果は、法令に定める周辺監視区域外の線量限度（1 mSv/年）に比べ、極めて低い値であった。

表6 経口摂取による預託実効線量試算結果

食品等の種類	預託実効線量 (mSv/年)			
	トリチウム		炭素-14	ヨウ素-129
	TFWT	OBT		
牛乳 (原乳)	—	—	5.0×10^{-5}	—
精米	—	—	3.4×10^{-4}	—
葉菜	—	—	2.9×10^{-6}	1.2×10^{-7}
根菜・いも類	—	—	3.0×10^{-5}	—
魚類	3.3×10^{-6}	5.4×10^{-7}	—	—
海藻類	—	—	—	2.2×10^{-6}

6. まとめ

平成20年度の調査において、トリチウムの測定結果には、魚類について平成19年度と同程度の施設寄与が見られた。炭素-14比放射能は、多くの試料で平成19年度の値より低くなっている

が、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと比較するとやや高めの測定値もあった。ヨウ素-129 は、葉菜類、海藻類ともに¹²⁹I/¹²⁷I原子数比がフォールアウトバックグラウンドレベルと比較してやや高めであり、平成 19 年度と比較すると、ハクサイはやや高めであったが、キャベツは同程度、海藻類（コンブ）はやや低めであった。

これらの調査結果に基づき試算した預託実効線量は、法令に定める周辺監視区域外の線量限度（1 mSv/年）に比べ、極めて低い値であった。

文 献

- 1) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書（平成 19 年度報）
- 2) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書（平成 20 年度報）
- 3) 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）
- 4) F. Pointurier, N.Baglan, G.Alanic and R.Chiappini : Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France, *Journal of Environmental Radioactivity*, **68**, 171-189(2003)
- 5) 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）
- 6) 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）
- 7) 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）
- 8) Inoue, Y. and Iwakura, T. : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiocarbon Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 9) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、檜田義彦、一政祐輔：1990 年代の日本における¹⁴Cの環境バックグラウンドレベル, *RADIOISOTOPES*, **51**, 381-391 (2002)
- 10) Xiaolin. Hou : Application of ¹²⁹I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)
- 11) 原子力安全委員会：環境放射線モニタリング指針（平成 20 年 3 月）

老部川における河底土中フッ素濃度の変動

北島 茂 齊藤 陽 五十嵐飛鳥 齋藤 稔*¹

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングの一環として、ウラン濃縮工場による環境への影響を把握することを目的とし、河底土(老部川上流及び下流)中のフッ素濃度調査を行っている。本調査は平成元年度から実施しており、平成12年度までは経年変動があるもののほぼ一定の水準で推移していたが、平成13～15年度にそれ以前の変動範囲を外れる高めの調査結果となった。

フッ素化合物は地殻中に広く分布しており、土壌中にも種々の形の鉱物として含まれている¹⁾。したがって、上流から流れてきた土砂の堆積状況や河川の周辺の表層土壌(以下、「表土」という。)の河川への流入状況等により、フッ素濃度は変動するものと考えられる。本調査における採取地点の近傍において、近年農地開発工事や森林の伐採が行われており、このような周辺環境の変化も考慮して、河川に流入する表土の河底土への影響を検討する必要がある。そのためには、モニタリング地点の河底土及びその起源になると考えられる周辺地域の表土等について土質等を把握し、比較検討することが重要である。

このようなことから、モニタリング地点近傍にある支流の河底土やモニタリング地点周辺の表土などを採取し、フッ素濃度の分析を行うとともに、過去に採取したモニタリング試料も対象として、蛍光X線分析による元素組成の半定量を行った。これらのデータについて濃度相関マトリックスや主成分分析を行い、モニタリング地点の河底土とモニタリング地点周辺の土壌との類似性について検討したので報告する。

2. 調査方法

2.1 試料採取方法

2.1.1 試料採取地点

調査地点の概略は図1のとおりであり、老部川上流地点(R1)及び老部川下流地点(R2)がモニタリング地点である。

(1) モニタリング地点

河底土2試料(老部川上流地点(R1)、老部川下流地点(R2))

(2) 老部川橋地点(モニタリング地点から約1.5 km上流)

河底土1試料(老部川橋地点(R3))、表土1試料(老部川橋周辺(G2))

(3) モニタリング地点近傍

河底土3試料(支流地点(R4)、支流流入部斜面地点(R5)、支流流入部本流地点(R6))

表土2試料(支流周辺(G1)、老部川上流周辺(G3))

*1: 現青森県環境保健センター

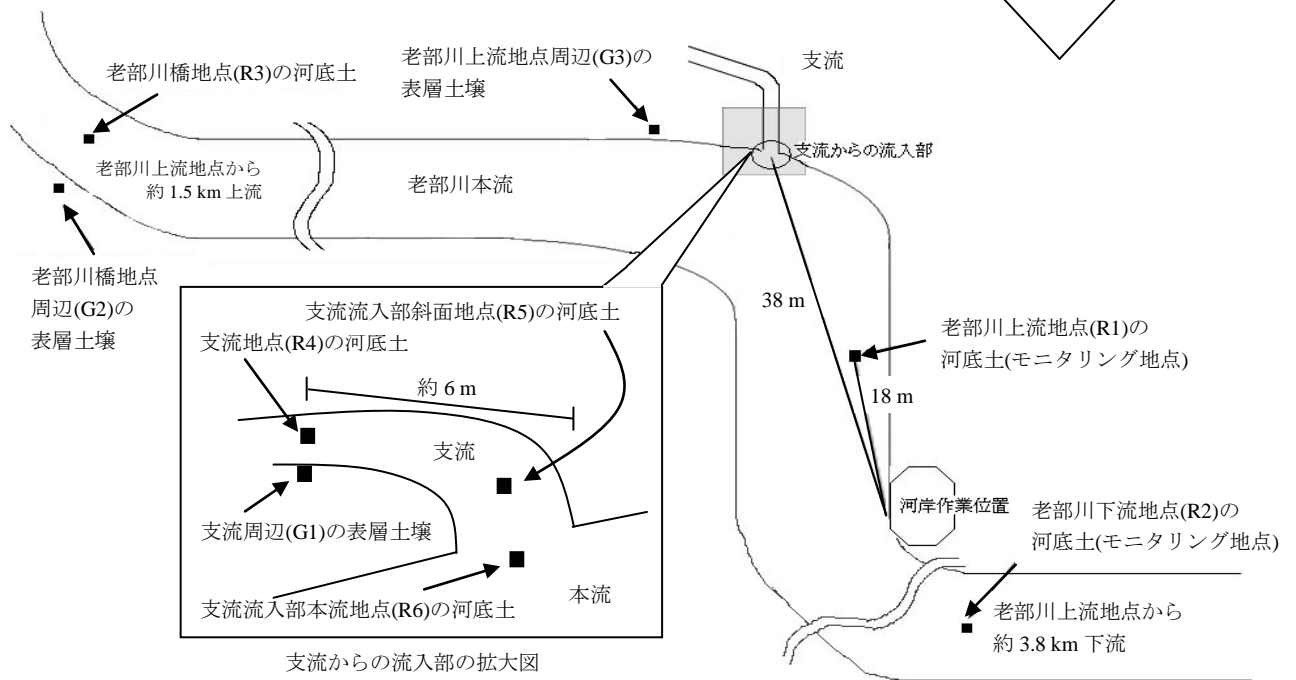
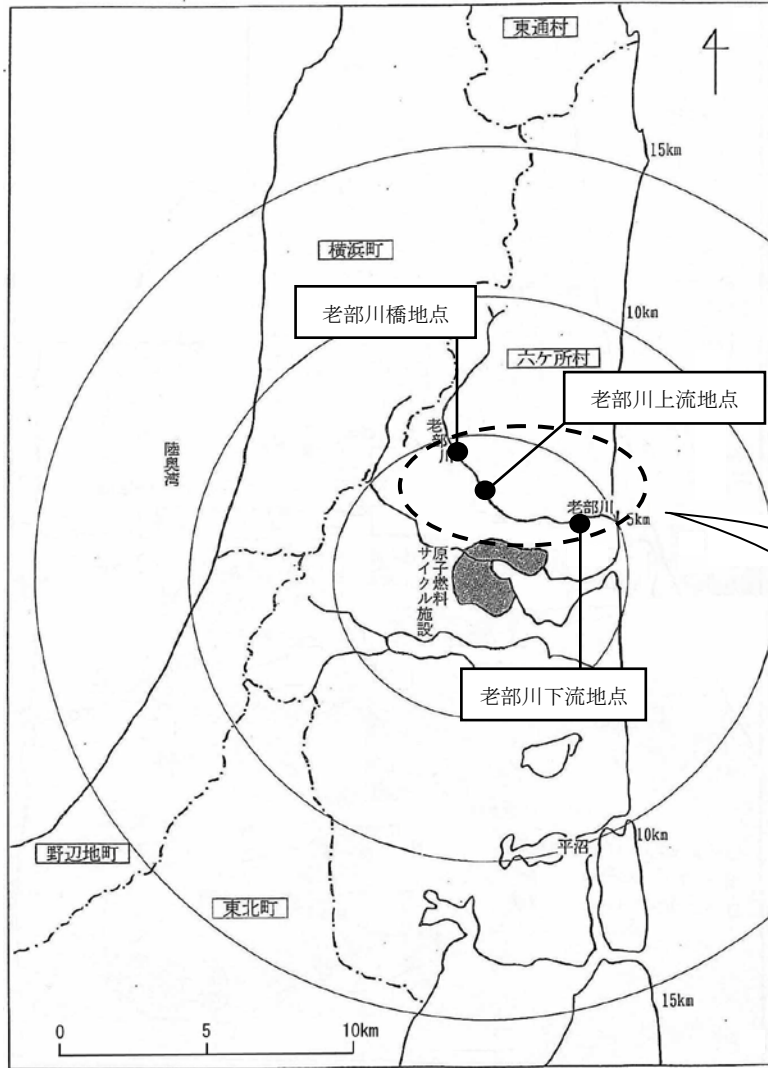


図1 六ヶ所村における老部川の位置図

2.1.2 試料採取方法

河底土については、底質表面をスコップを用いて採取し、現地で2 mm のふるいを通した。表土についてはスコップを用いて表層土壌を採取した。

2.2 分析方法

2.2.1 前処理

河底土については、105°Cで乾燥した後、磁製乳鉢で塊をほぐす程度に粉砕した。表土については、105°Cで乾燥した後、磁製乳鉢で塊をほぐす程度に粉砕し、2 mm のふるいを通した。モニタリングの目的は砂粒の表面に付着したフッ素であり、鉱物中フッ素ではないので、河底土及び表土ともに微粉砕は行わなかった。

2.2.2 フッ素分析

直接蒸留法により分離精製を行い、イオン電極法で定量した²⁾。

分析試料1 gに70%過塩素酸40 mLと98%リン酸1 mLを加え145°C、蒸留速度3 mL/minで水蒸気蒸留を行った。分離精製した溶液に緩衝溶液を加えてpHを約5.0~5.5に調整し、イオンメータ(東亜電波工業社製IM-40S及びサーモエレクトロン社製Orion EA940)によりフッ素を定量した。

2.2.3 蛍光X線分析法による半定量分析

分析試料を105°Cで乾燥後、150 μm のふるいを通し、ペレットを作成して蛍光X線測定を行い、ケイ素、アルミニウム、鉄、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、チタン、カリウム、マンガン、リン、硫黄の半定量分析を行った。

3. 結果と考察

3.1 モニタリング地点及び周辺地域におけるフッ素濃度

3.1.1 モニタリング地点における河底土中フッ素濃度の経年変化

図2にモニタリング地点における河底土中フッ素濃度の経年変化を示す^{3)、4)}。老部川上流地点(R1)について平成12年度までは経年変動があるもののほぼ一定の水準で推移していたが、平成13年度から15年度にはそれ以前の変動範囲より高い値となっている。老部川下流地点(R2)においても平成15年度にはフッ素濃度が高くなった。平成16年度以降は、平成18年度にやや高くなっているものの、老部川上流地点(R1)及び下流地点(R2)ともに再び平成12年度までとほぼ同じ水準となっている。

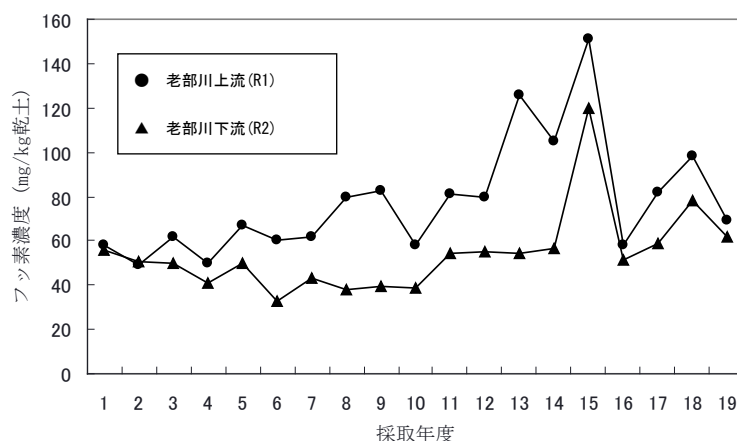


図2 モニタリング地点における河底土中フッ素濃度の経年変化

3.1.2 モニタリング地点周辺の河底土及び表土中のフッ素濃度

モニタリング地点である老部川上流地点(R1)の周辺地域におけるフッ素濃度レベルを把握するため、さらに上流の地点(老部川橋地点(R3))やモニタリング地点近傍にある支流の河底土、これらの地点周辺の表土等について、フッ素濃度の調査を行った。結果を表1に示す。支流地点の河底土及び表土(R4~R6、G1)と老部川上流地点周辺の表土(G3)中フッ素濃度は老部川上流地点(R1)よりも高い値となった。また、老部川橋地点(R3)及びその周辺の表土(G2)は老部川上流地点(R1)と同程度であった。これらのことは、老部川上流地点(R1)の河底土中のフッ素濃度の変動要因として、本流に流れ込む支流の河底土及びその周辺地域の表土の影響の可能性を示唆している。

表1 河底土及び表土中フッ素濃度測定結果

採取年度	試料名	地点名	フッ素濃度 (mg/kg 乾土)
16	河底土	老部川橋地点 (R3)	47
17	河底土	老部川橋地点 (R3)	61
18	河底土	老部川橋地点 (R3)	88
19	河底土	老部川橋地点 (R3)	60
18	河底土	支流地点 (R4)	116
19	河底土	支流地点 (R4)	118
18	河底土	支流流入部斜面地点 (R5)	134
19	河底土	支流流入部斜面地点 (R5)	121
18	河底土	支流流入部本流地点 (R6)	84
19	河底土	支流流入部本流地点 (R6)	125
18	表土	支流地点周辺 (G1)	175
19	表土	支流地点周辺 (G1)	243
19	表土	老部川橋地点周辺 (G2)	81
19	表土	上流地点周辺 (G3)	131

3.2 統計解析手法を用いた検討

3.2.1 蛍光 X 線分析による半定量分析結果

平成18年度までに採取した老部川上流地点(R1)及び老部川橋地点(R3)の河底土、支流地点の河底土及び表土(R4~R6、G1)について、蛍光 X 線分析法を用いケイ素、アルミニウム、鉄、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、チタン、カリウム、マンガン、リン及び硫黄の半定量分析を実施した。結果をフッ素濃度とともに表2に示す。老部川上流地点(R1)への支流の河底土及びその周辺地域の表土の影響を評価するため、これらの測定結果をもとに、2つの統計解析手法を用いて各地点及び試料の類似性について検討した。

表2 河底土及び表土の蛍光X線による半定量分析結果

(%)

番号	試料名	地点名	年度	F ^{※1}	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	TiO ₂	K ₂ O	MnO	P ₂ O ₅	SO ₃
1	河底土	老部川上流地点(R1)	5	67	50.1	19.1	13.0	9.19	4.70	1.78	0.943	0.593	0.287	0.0850	0.0374
2	河底土	老部川上流地点(R1)	7	62	49.5	20.2	13.7	8.00	4.62	1.60	1.020	0.649	0.273	0.1020	0.0692
3	河底土	老部川上流地点(R1)	13	126	50.6	24.2	12.3	6.54	2.91	1.19	1.000	0.721	0.258	0.1090	0.0424
4	河底土	老部川上流地点(R1)	14	105	50.8	24.5	11.4	6.70	2.80	1.39	0.978	0.769	0.251	0.1140	0.0428
5	河底土	老部川上流地点(R1)	15	151	50.5	24.6	12.0	6.39	2.74	1.34	1.050	0.781	0.295	0.1350	0.0695
6	河底土	老部川上流地点(R1)	16	58	51.0	21.3	11.9	8.12	3.80	1.71	0.912	0.709	0.239	0.0977	0.0393
7	河底土	老部川上流地点(R1)	17	82	51.4	22.2	10.9	8.18	3.33	1.80	0.878	0.757	0.249	0.0941	0.0350
8	河底土	老部川上流地点(R1)	18	98	50.8	22.4	11.5	8.07	3.38	1.63	0.970	0.721	0.217	0.1100	0.0616
9	河底土	老部川橋地点(R3)	16	47	49.6	17.9	13.4	9.54	5.43	2.10	0.912	0.604	0.177	0.0898	0.0172
10	河底土	老部川橋地点(R3)	17	61	49.3	18.2	14.0	9.13	5.37	1.82	1.000	0.601	0.159	0.0829	0.0217
11	河底土	老部川橋地点(R3)	18	88	50.5	21.1	11.5	8.78	3.93	1.94	0.944	0.760	0.264	0.1040	0.0345
12	河底土	支流地点(R4)	18	116	49.2	23.1	13.4	6.92	3.25	1.37	1.210	0.755	0.318	0.1660	0.1690
13	表土	支流地点周辺(G1)	18	175	49.7	24.3	12.8	5.72	2.80	1.31	1.150	1.100	0.275	0.3310	0.3130
14	河底土	支流流入部斜面地点(R5)	18	134	49.8	23.8	11.7	7.42	2.84	1.50	1.160	0.916	0.155	0.2620	0.3470
15	河底土	支流流入部本流地点(R6)	18	84	49.1	20.4	13.7	8.47	4.38	1.59	1.090	0.600	0.278	0.1070	0.0884

※1 フッ素濃度は水蒸気蒸留-イオン電極法により測定(単位: mg/kg 乾土)

3.2.2 濃度相関マトリックスによる各地点間の類似性^{5)、6)、7)、8)}

濃度相関マトリックスは各地点間の類似性を各成分比の一致性から調べる方法であり、濃度の大小には直接関係しない。すなわち、ある構成成分をもつものに対し、単なる希釈効果を行っただけではその構成成分の各成分比は変化しないため、この方法では著しい類似となる。

濃度相関マトリックスは次の手順により作成する。A地点とB地点でn成分の濃度(A : a₁、a₂、a₃、・・・、a_n、B : b₁、b₂、b₃、・・・、b_n)が測定された場合、まずA地点の各成分濃度間の比をとる。

$$X_A = \begin{bmatrix} a_1/a_1 \\ a_2/a_1 & a_2/a_2 \\ a_3/a_1 & a_3/a_2 & a_3/a_3 \\ \dots & \dots & \dots & a_n/a_n \end{bmatrix}$$

B地点についても同様にX_Bを作る。次にX_AとX_Bとの各要素の比をとる。

$$Y_{AB} = \begin{bmatrix} X_A \\ X_B \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_1/a_1 \\ b_1/b_1 \\ a_2/a_1 & a_2/a_2 \\ b_2/b_1 & b_2/b_2 \\ a_3/a_1 & a_3/a_2 & a_3/a_3 \\ b_3/b_1 & b_3/b_2 & b_3/b_3 \\ \dots & \dots & \dots & a_n/a_n \\ & & & b_n/b_n \end{bmatrix}$$

このうち、対角要素の値は1となり、他の要素も濃度比が類似していれば1に近い値となる。Y_{AB}において判定基準をMとし、Mと1/Mの範囲内にある数値の数を数える。Mとしては一般的に1.3又は1.5が使われているが、本報では1.3を用いた。この範囲内にある数をY_{AB}の対角要素を除いた全体の数で割ったものが相関数Z_{AB}であり、次の式により表される。

$$Z_{AB} = \frac{1/1.3 \sim 1.3 \text{の範囲内の数}}{\text{行列中の全要素の数(対角要素は除く)}}$$

この相関数を各地点(A、B、C、・・・)で求め濃度相関マトリックスを作成する。

$$Z = \begin{bmatrix} Z_{AA} \\ Z_{AB} & Z_{BB} \\ Z_{AC} & Z_{BC} & Z_{CC} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{bmatrix}$$

相関数は0～1までの範囲で示され、この値の大小によって試料相互の関連性を知ることができる。全成分比が一致すると1となる。

表2の測定結果を用いて濃度相関マトリックス解析を行った結果を表3に示す。また表3について1.0 ≥ 相関数 ≥ 0.8、0.8 > 相関数 ≥ 0.6、0.6 > 相関数 ≥ 0.4、0.4 > 相関数 ≥ 0.3、0.3 > 相関数 ≥ 0

の範囲にある相関数をそれぞれ◎、○、△、▲、×と表した。この表から各試料間の類似性について以下のことが読みとれる。

- 1) 老部川上流地点(R1)の平成 5、7、13～18 年度の河底土(No.1～8)については、フッ素濃度が高かった平成 13～15 年度の河底土(No.3～5)のグループ及びフッ素濃度が低かった平成 5、7、16～18 年度の河底土(No.1、2、6～8)のグループで互いに類似性が見られる。
- 2) 平成 18 年度の河底土(No.8)については、どちらのグループにも類似性が見られる試料がある。
- 3) フッ素濃度が高かった平成 13～15 年度の河底土(No.3～5)と平成 18 年度の支流地点(R4)の河底土(No.12)に類似性が見られる。
- 4) 老部川橋地点(R3)の平成 18 年度の河底土(No.11)については、モニタリング地点(R1)の平成 16～18 年度の河底土(No.6～8)と類似性が見られる。

以上のことから、老部川上流地点(R1)において河底土中フッ素濃度が高くなった平成 13～15 年度(No.3～5)は土質が他の年度と異なっており、この要因として支流地点の河底土(R4)の影響が考えられる。この地点での平成 16～18 年度(No.6～8)については、老部川橋地点の平成 18 年度の河底土(No.11)と類似性が認められており、より上流からの土砂の流入の影響が考えられる。

表 3 老部川上流付近の河底土及び表土についての濃度相関マトリックス

地点	R1	R1	R1	R1	R1	R1	R1	R1	R3	R3	R3	R4	G1	R5	R6
年度	5	7	13	14	15	16	17	18	16	17	18	18	18	18	18
F 濃度	67	62	126	105	151	58	82	98	47	61	88	116	175	134	84
番号	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
1	-	◎	△	△	▲	◎	○	△	△	○	○	×	×	×	○
2	0.803	-	△	△	△	◎	△	○	△	○	○	▲	×	×	◎
3	0.409	0.470	-	◎	◎	△	△	○	×	×	△	○	△	△	△
4	0.439	0.424	0.985	-	○	△	○	◎	×	×	○	○	△	△	△
5	0.303	0.515	0.818	0.727	-	△	▲	△	×	×	▲	○	△	△	△
6	0.833	0.818	0.530	0.591	0.409	-	◎	○	△	△	◎	▲	×	×	○
7	0.667	0.591	0.591	0.727	0.394	0.833	-	○	▲	△	◎	△	×	▲	○
8	0.485	0.667	0.667	0.803	0.545	0.697	0.788	-	▲	▲	◎	△	×	△	○
9	0.561	0.455	0.273	0.288	0.227	0.500	0.379	0.348	-	◎	△	×	×	×	▲
10	0.697	0.636	0.273	0.288	0.212	0.561	0.470	0.348	0.833	-	△	×	×	×	△
11	0.727	0.636	0.530	0.606	0.379	0.833	1.000	0.803	0.470	0.470	-	△	×	×	○
12	0.288	0.348	0.682	0.697	0.712	0.394	0.409	0.561	0.167	0.242	0.409	-	△	△	△
13	0.182	0.242	0.455	0.439	0.576	0.242	0.227	0.273	0.152	0.136	0.242	0.485	-	○	×
14	0.197	0.258	0.500	0.515	0.515	0.273	0.333	0.439	0.212	0.227	0.288	0.485	0.621	-	×
15	0.742	0.864	0.439	0.439	0.439	0.682	0.621	0.636	0.394	0.515	0.712	0.455	0.288	0.227	-

判定基準(M = 1.3)

- ◎ : 1.0 ≥ 相関数 ≥ 0.8 ○ : 0.8 > 相関数 ≥ 0.6 △ : 0.6 > 相関数 ≥ 0.4
 ▲ : 0.4 > 相関数 ≥ 0.3 × : 0.3 > 相関数 ≥ 0

3.2.3 主成分分析による各地点間の類似性

多変量解析に係る代表的な方法の一つである主成分分析法を用い測定結果の解析を行った。

表2の測定結果を用いて主成分分析を行った結果を表4に示す。固有値が1.0以上の主成分の数は3つあり、第3主成分までの累積寄与率が92.2%であることから、第3主成分までで全変動の約9割を説明できることがわかる。

第1主成分と第2主成分の得点をプロットしたものを図3に、第1主成分と第3主成分の得点をプロットしたものを図4に示す。これらの図から各試料間の類似性について以下のことが読みとれる。

- 1) 老部川上流地点(R1)の平成5、7、13～18年度の河底土(No.1～8)については、フッ素濃度が高くなる前の平成5年度(No.1)と平成7年度(No.2)のグループ、フッ素濃度が高くなった平成13～15年度(No.3～5)のグループ及びフッ素濃度が再び低くなった平成16～18年度(No.6～8)のグループの3つのグループ内で互いに類似性が見られることから、土質はそれぞれ異なっているものと考えられる。
- 2) 平成16～18年度の河底土(No.6～8)と平成18年度の老部川橋地点(R3)の河底土(No.11)に類似性が見られることから、平成16～18年度の河底土(No.6～8)はより上流からの土砂の流入の影響が考えられる。
- 3) フッ素濃度が高かった平成13～15年度の河底土(No.3～5)と老部川橋地点(R3)の平成16～18年度の河底土(No.9～11)、支流地点(R4～6、G1)の河底土及び表土(No.12～15)との間に類似性は見られていない。3.2.2の濃度相関マトリックスによる解析結果では平成13～15年度の河底土(No.3～5)は平成18年度の支流地点(R4)の河底土(No.12)と類似性が見られたが、主成分分析法ではそのような関係は明確でなかった。

表 4 主成分分析結果

番号	地点	年度	主成分得点		
			第 1 主成分	第 2 主成分	第 3 主成分
1	R1	5	-2.675	-0.195	0.736
2	R1	7	-1.533	-1.373	1.074
3	R1	13	1.673	1.246	1.286
4	R1	14	1.440	2.028	0.460
5	R1	15	2.523	1.082	1.292
6	R1	16	-1.295	1.667	-0.318
7	R1	17	-0.691	2.907	-0.688
8	R1	18	-0.138	1.534	-0.616
9	R3	16	-4.300	-1.071	-1.245
10	R3	17	-3.519	-1.976	-0.707
11	R3	18	-1.255	1.264	-0.546
12	R4	18	2.142	-2.045	1.687
13	G1	18	5.465	-1.777	-0.847
14	R5	18	3.354	-1.272	-2.819
15	R6	18	-1.190	-2.017	1.251
固有値			6.832	2.801	1.441
寄与率(%)			56.9	23.3	12.0
累積寄与率(%)			56.9	80.2	92.2

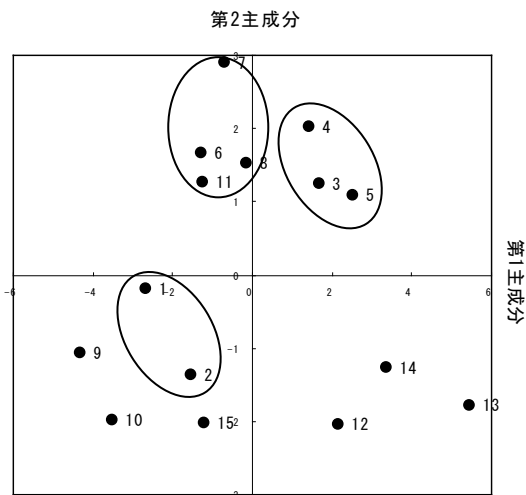


図 3 第 1 主成分と第 2 主成分の得点

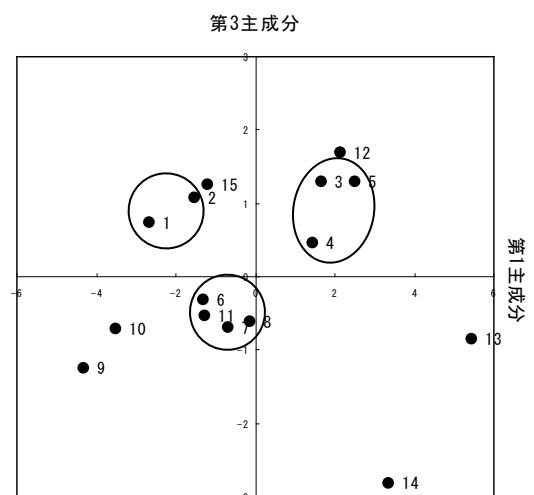


図 4 第 1 主成分と第 3 主成分の得点

4. まとめ

老部川上流地点(R1)及び老部川橋地点(R3)の河底土、支流地点の河底土及び表土(R4～R6、G1)のフッ素濃度及び蛍光 X 線分析法によるケイ素、アルミニウム、鉄、カルシウム、マグネシウム、ナトリウム、チタン、カリウム、マンガン、リン及び硫黄の半定量分析結果をもとに濃度相関マトリックス及び主成分分析による統計解析を行い、老部川における河底土中フッ素濃度の変動について考察した。

老部川上流地点(R1)の河底土(No.1～8)については、濃度相関マトリックスによる解析でも主成分分析法による解析でもフッ素濃度が高かった平成 13～15 年度の河底土(No.3～5)は互いに類似性が見られ、またフッ素濃度が低かった平成 5、7、16～18 年度の河底土(No.1、2、6～8)とは類似性が見られないことから、それぞれのグループの河底土は土質が異なっていたものと考えられる。フッ素濃度が高くなった河底土に対する老部川橋地点(R3)の河底土(No.9～11)、支流地点の河底土及び周辺地域の表土(R4～6、G1)(No.12～15)の影響については、濃度相関マトリックスによる解析では支流地点(R4)との類似性が見られたが、主成分分析法による解析ではそれらの影響は明確に認められなかった。

文 献

- 1) 大喜多敏一, 森正樹, 金田和子: 環境汚染分析法 11 ハロゲン, 7, 大日本図書, (1973)
- 2) JIS K 0102, 工場排水試験方法
- 3) 青森県: 原子燃料サイクル施設環境放射線等調査報告書(平成 1-14 年度報)
- 4) 青森県: 原子力施設環境放射線調査結果報告書(平成 15-19 年度報)
- 5) 木羽敏泰, 松本健: 濃度相関マトリックスによる解析, 水汚染の機構と解析 - 環境科学特論 -, 53-83, 産業図書, (1978)
- 6) 中村稔: 早瀬野ダム建設に伴う関連水域調査結果, 青森県公害調査事務所所報, No.6, 67-75(1984)
- 7) 水上和子, 竹内庸夫: 濃度比類似性による降水成分の解析, 埼玉県公害センター年報 第 12 号, 38-44(1985)
- 8) 高木靖弘, 近野誠二, 松田漸: 双子を有する家族の頭髪中重金属について, 福井県衛生研究所調査研究報告, 昭和 53 年 4 月-昭和 54 年 11 月第 14-17 集, 168-179

Ⅱ 学 会 等 发 表 要 旨

青森県における原子力施設環境放射線モニタリング結果 (平成20年度)

竹ヶ原 仁 堀田智史 木村秀樹 安田 浩 工藤英嗣
佐々木耕一*1 武石 稔*1 金 泰裕*2 島 茂樹*3

第51回環境放射能調査研究成果発表会, 東京都千代田区, 2009.12.3

青森県及び日本原燃株式会社が、原子燃料サイクル施設周辺地域において実施した平成20年度における環境放射線モニタリング結果のうち、空間 γ 線量率、大気中気体状 β 放射能、環境試料中H-3等の調査結果について報告した。

空間 γ 線量率については、本県が開発したSCA弁別法をモニタリングステーション及びモニタリングポストの測定値(1時間値)に適用したところ、測定値と自然放射線寄与分の差が1 nGy/h以上であり、エネルギー情報、気象状況等から再処理工場からの寄与があったと考えられる測定値は、7測定局で27個あった。

大気中気体状 β 放射能(^{85}Kr)については、1時間値が定量下限値(2 kBq/m³)以上となった測定値は、4測定局で13個あった。これらの測定値は、再処理工場から ^{85}Kr が放出されている時期に風下に位置した測定局で得られており、施設寄与によるものと推定された。

環境試料中の ^3H については、六ヶ所村前面海域で採取した魚類(自由水)中 ^3H 濃度が3 Bq/kg生、東通原子力発電所の放水口周辺海域において採取した海水中 ^3H 濃度が4 Bq/Lであり、バックグラウンドレベルと比較して高い値となった。どちらの場合も、再処理工場から ^3H の海洋放出があった時期に再処理工場の放出口付近から試料採取地点へ向かう海流が卓越しており、施設寄与によるものと推定された。

これらの測定結果に基づき施設起因の線量を試算したところ、法令に定める周辺監視区域外の線量限度(1 mSv/年)に比べ極めて低い値であった。

*1: 日本原燃株式会社

*2: 東北電力株式会社

*3: 財団法人 日本海洋科学振興財団

トリチウムの液体シンチレーション測定における 測定バイアル及びシンチレータの検討

大下内 伸 竹ヶ原 仁 奥野直子*¹ 木村秀樹

平成 21 年度放射能分析確認調査技術検討会，東京都千代田区，2010. 3. 17

青森県の環境放射線モニタリングにおいて、環境試料中のトリチウム測定は液体シンチレーション計測法により行っており、測定バイアルにテフロンバイアルを、シンチレータに Aquasol 2 を使用している。テフロンバイアルを用いると、測定の初期段階で比較的大きな計数率の変動がみられることがあり、静電気帯電の影響による疑似計数と考えられている。

本研究では、環境放射線モニタリングにおけるトリチウム測定がより効率的かつ安定的に行えるよう、測定バイアルとシンチレータについて検討を行った。測定バイアルとしては、現在使用しているテフロンバイアル、ポリエチレンバイアル、外側がポリエチレン製で内側がテフロン製の POLYVIALS 145 の 3 種類、シンチレータとしては、現在使用している Aquasol 2 及び製造ロットの異なる 2 つの Ultima Gold LLT の 3 種類を用い、計 9 種類の測定バイアル-シンチレータの組合せで、性能指数、バックグラウンド計数率の変動、測定試料の長期的な安定性、経済性について比較検討した。その結果、シンチレータとしては性能指数が比較的大きく、取扱い上の安全性が高いなどの利点のある Ultima Gold LLT の優位性が高く、測定バイアルとしては、性能指数がやや小さいものの、静電気による疑似計数が少なく、シンチレータに対する耐久性が高いなどの利点のある POLYVIALS 145 が環境放射線モニタリングにはより適切と考えられた。

*1：現青森県企画政策部原子力施設安全検証室

Ⅲ 平成 21 年度調査研究事業報告

青森県におけるクリプトン-85 濃度調査

武藤逸紀 高橋秀昭 三浦誓也*¹ 安田 浩
木村秀樹 佐々木耕一*² 外川洋一*²

1. はじめに

青森県では、再処理工場の操業後における環境への影響の評価に資するため、平成15年度から平成17年度まで気象研究所との共同研究として、再処理工場から放出される主要な核種の一つであるKr-85の調査を実施し青森市におけるバックグラウンドレベルについて報告した¹⁾。

平成18年3月31日には六ヶ所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、大気中にKr-85が放出されたことから、平成18年度から平成20年度にかけて、施設周辺地域におけるKr-85の拡散・分布状況調査を実施した。大気中Kr-85濃度の測定は、モニタリングステーションに設置したβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタを用いるとともに、気象研究所が開発した分析法（以下、「気象研法²⁾」という。）に当センターが開発した前処理法³⁾を併用して行った。

このうち、モニタリングステーションに設置したβ線ガスモニタ及び可搬型β線ガスモニタによる測定結果については、本県が構築している環境放射能拡散シミュレーションシステムの精度向上のための基礎資料とするため、平成18年度から平成20年度の結果を用いてこのシステムによる計算結果との比較・検討を行い、本所報の技術報告としてとりまとめた。

また、気象研法とβ線ガスモニタの測定値について比較検討したところ、前処理工程で大気試料の希釈に用いた純空気が原因と考えられる誤差が認められたため、その状況についてとりまとめた。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査当日に再処理工場主排気筒の風下方向に位置する以下の地点を選定した。

第1回調査

地点1：モニタリングステーション尾駸局

第2回及び第3回調査

地点1：モニタリングステーション尾駸局

地点2：六ヶ所村大字尾駸字沖付 モニタリングカー測定地点5

地点3：六ヶ所村大字尾駸字沖付 国道338号線と県道180号線の交差点

再処理工場及び調査地点は技術報告の図1に示した地点と同一である。

*1：現青森県中南地域県民局

*2：日本原燃株式会社

2.2 調査日時

第1回 平成18年10月18日 9:40～12:20

第2回 平成19年12月21日 12:00～13:00

第3回 平成20年9月17日 10:40～11:50

2.3 気象研法を用いたKr-85分析

気象研法はバックグラウンドレベルの濃度を対象としており、大気試料 10 m^3 を供試量としたとき測定範囲が $1\sim 10\text{ Bq/m}^3$ であることから、この範囲を超えると予想される試料については、当所で開発した前処理法により希釈を行った後に分析した。Kr-85前処理及び分析の概略を図1に示す。試料採取から前処理までの操作は以下のとおりである。

調査地点において、ポンプを用いて 25 L/min の流速で20分間大気試料をアルミニウムバッグ(容量 0.5 m^3)に捕集した。同時に実施した β 線ガスモニタによる測定値を参考にして、別のアルミニウムバッグを用いKr-85濃度が約 $10\sim 100\text{ Bq/m}^3$ となるように、純空気^{*}で希釈した。この希釈試料を、流速 2 L/min で活性炭吸着容器に吸着させ、その後、ヒーターで加温しながらヘリウムガスで追い出し、 1 L アルミ容器に封入した。この試料を気象研法によるKr-85分析に供した。

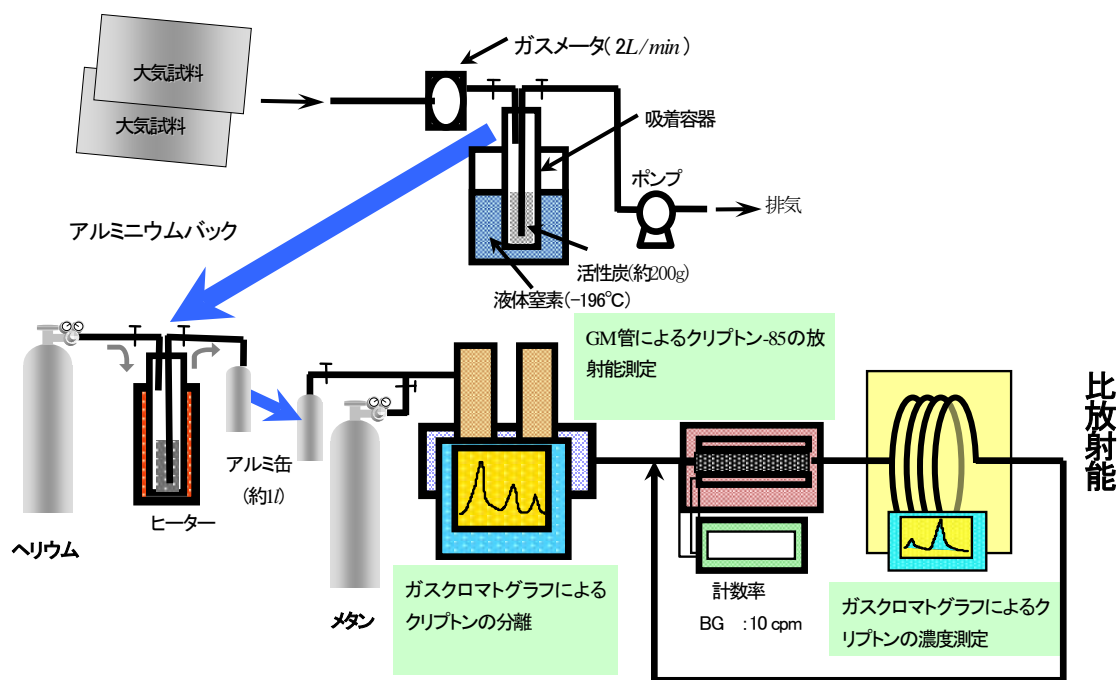


図1 Kr-85前処理及び分析装置の概略

^{*}大陽日酸株製。環境大気から CO 、 CO_2 、 THC 、 H_2O を除去し、 14.7 MPa (at 35°C)でボンベに充填したもの。

大気中 Kr-85 濃度は、希釈倍率 N 倍の場合に、安定クリプトンとの比を用いて次式により算出する。

$$A = N_s \times \frac{1}{E} \times \frac{1}{C \times 10^{-2} \times V} \times M \times N \quad \dots (1) \text{式}$$

(A	: 大気中Kr-85 濃度 [Bq/m ³]	N _s	: 正味計数率 [cps]
	E	: GM 計数効率 [cps/Bq]	C	: 試料の安定 Kr 濃度 [%]
	V	: GM管を含む閉鎖系の体積 [ml]	M	: 大気中安定Kr存在比 1.14 [mL/m ³]
	N	: 希釈倍率		

希釈に使用した純空気にはバックグラウンドレベルの Kr-85 が含まれる。このため、用いた量に応じて純空気からの寄与分を差し引き Kr-85 濃度の算出を行った。

2.4 β線ガスモニタを用いた Kr-85 測定

モニタリングステーションに設置している β線ガスモニタ及び可搬型 β線ガスモニタを用いて大気中 Kr-85 濃度の測定を行った。これらの仕様等については技術報告の 2.3 に示した。

3. 調査結果

3.1 β線ガスモニタによる測定結果と気象研法による測定結果の比較

β線ガスモニタ及び当センターの前処理法を併用した気象研法による測定結果を表 1 に示す。β線ガスモニタにおける誤差は計数誤差から算出し、気象研法における誤差 (1σ) は分析に係る不確かさから算出した。β線ガスモニタによる測定値は測定下限濃度未満～4.1 kBq/m³、気象研法による測定値は測定下限濃度未満～5.6 kBq/m³であった。純空気中の Kr-85 濃度は平成 18 年度及び平成 19 年度に使用したものが 1.4 Bq/m³、平成 20 年度に使用したものが 1.8 Bq/m³であった。

β線ガスモニタによる測定において有意な測定値が得られた試料を用いて、β線ガスモニタと気象研法による Kr-85 濃度の比較を行った。結果を図 2 に示す。回帰直線の傾きは 0.68 であり、β線ガスモニタの測定値に対して気象研法の測定値が高い傾向となったが、Kr-85 濃度が高い平成 20 年度の 2 つの測定値に起因しているものと考えられる。

表1 β 線ガスモニタ及び気象研法による大気中Kr-85測定結果

年度	地名	採取日時	β 線ガスモニタ			気象研法			希釈倍率
			[kBq/m ³]			[kBq/m ³]			
H18	地点1	10月18日	10:20 ~ 10:40	0.27 ± 0.02	0.55 ± 0.02	10			
			10:40 ~ 11:00	1.7 ± 0.02	1.9 ± 0.05	40			
			11:00 ~ 11:20	0.42 ± 0.02	0.36 ± 0.01	10			
H19	地点1	12月21日	12:20 ~ 12:40	<0.1	0.0018 ± 0.0005	—			
			12:20 ~ 12:40	1.0 ± 0.1	1.1 ± 0.02	22			
	地点2	12月21日	12:00 ~ 12:20	1.6 ± 0.1	1.0 ± 0.02	34			
			12:20 ~ 12:40	0.83 ± 0.1	0.22 ± 0.01	22			
	地点3	12月21日	12:00 ~ 12:20	<0.5	0.22 ± 0.01	10			
			12:20 ~ 12:40	<0.5	0.015 ± 0.005	11			
H20	地点1	9月17日	10:50 ~ 11:10	<0.1	<0.014 (3 σ)	11			
			10:50 ~ 11:10	2.7 ± 0.08	3.9 ± 0.1	58			
	地点2	9月17日	11:10 ~ 11:30	4.1 ± 0.09	5.6 ± 0.1	88			
			11:10 ~ 11:30	<0.5	0.040 ± 0.005	11			
	地点3	9月17日	10:50 ~ 11:10	<0.5	0.015 ± 0.005	9			
			11:10 ~ 11:30	<0.5	0.015 ± 0.005	9			

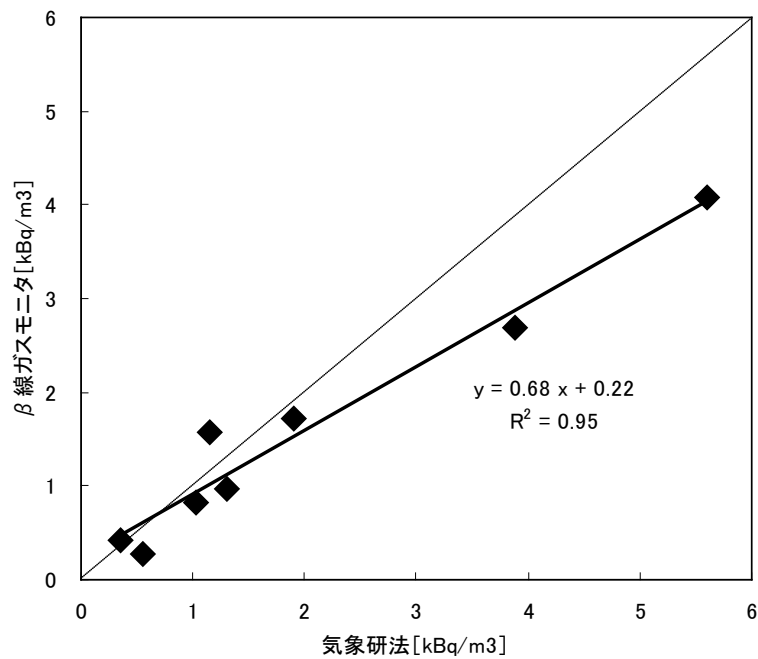


図2 β 線ガスモニタと気象研法による大気中Kr-85測定結果の比較

3.2 気象研法と併用した前処理法に係る誤差の検討

平成20年度の気象研法による測定値が β 線ガスモニタによる測定値より高くなったことから、その原因について検討した。気象研法においてはKr-85の β 線の計数率と安定Kr濃度を同時に測定し、(1)式のように大気中安定Kr存在比 1.14 mL/m^3 を用いて大気中Kr-85濃度を算出している。測定試料中の大気中安定Kr存在比に変動があれば大気中Kr-85濃度が正確に求められないことになるため、平成20年度の試料の希釈に用いた純空気中の安定Kr濃度を分析したところ、 0.7 mL/m^3 であり、算出に用いている文献値の6割程度し

かないことがわかった。このことについてメーカーに問い合わせたが、原因は不明ということであった。

平成20年度の測定結果について、純空気中の安定Kr濃度を 0.7 mL/m^3 とし、希釈倍率を考慮して補正した結果を表2に示す。大気中Kr-85濃度は $0.015 \sim 5.6 \text{ kBq/m}^3$ であったものが $<0.012 \sim 3.5 \text{ kBq/m}^3$ に、純空気中濃度は 1.8 Bq/m^3 から 1.1 Bq/m^3 になった。測定値の誤差 (1σ) は分析に係る不確かさ及び純空気中の安定Krの測定結果の誤差 (10%) から算出したものである。

表2の測定結果及び表1の平成18年度及び平成19年度の測定結果を用い、β線ガスモニタによる測定において有意な測定結果が得られた試料について、β線ガスモニタと気象研法によるKr-85濃度の測定結果の比較を行った。結果を図3に示す。気象研法の測定値 (H20補正後) はβ線ガスモニタの測定値に対してやや低めになり、回帰直線の傾きは1.2となったが、誤差を考慮すれば概ね一致しているものと考えられる。

以上のように、当センターの前処理法を併用した気象研法の測定結果については、前処理工程で用いる純空気中の安定Kr濃度の誤差を考慮する必要があることが判明した。

表2 β線ガスモニタと気象研法による大気中Kr-85測定結果 (補正後)

年度	地名	採取日時	β線ガスモニタ [kBq/m ³]	気象研法 [kBq/m ³]	希釈 倍率
H20	地点1	9月17日 10:50 ~ 11:10	<0.1	<0.014 (3σ)	11
		9月17日 10:50 ~ 11:10	2.7 ± 0.08	2.4 ± 0.2	58
	11:10 ~ 11:30		4.1 ± 0.09	3.5 ± 0.4	88
	地点3	9月17日 10:50 ~ 11:10	<0.5	0.026 ± 0.004	11
		11:10 ~ 11:30	<0.5	<0.012 (3σ)	9

※測定値の誤差 (1σ) は分析に係る不確かさ及び純空気中の安定Kr測定結果の誤差 (10%) から算出

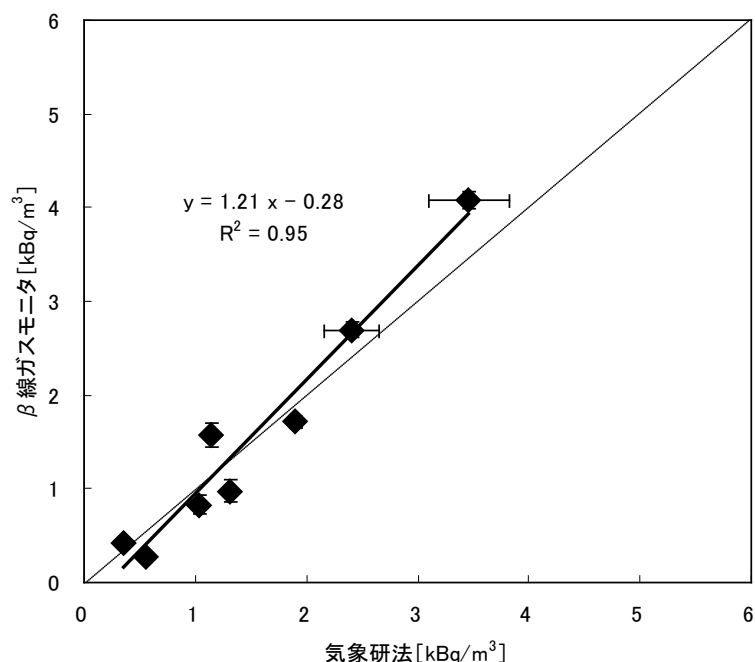


図3 β線ガスモニタと気象研法による大気中Kr-85測定結果の比較 (H20補正後)

4. まとめ

平成 18 年度から平成 20 年度にかけて、再処理工場から放出された Kr-85 の拡散・分布状況を調査するとともに、β線ガスモニタによる測定結果と当センターの前処理法を併用した気象研法による測定結果を比較した。気象研法による測定結果には前処理に用いた純空气中安定 Kr 濃度の変動に起因する誤差が含まれることが半明したため、安定 Kr 濃度の分析結果を用いて補正したところ、β線ガスモニタによる測定結果と概ね一致した。

文 献

- 1) 三浦誓也、貝森優希、工藤英嗣、野呂幸男、時枝隆之、広瀬勝己：青森県原子力センター所報 第 1 号, 43-44 (2006)
- 2) Yasuhito Igarashi, Michio Aoyama, Kazuhiro Nemoto, Katsumi Hirose, Takashi Miyao, Katsuhiko Fushimi, Mikihiko Suzuki, Shigeo Yasui, Yasuhiro Asai, Iwao Aoki, Kenji Fujii, Shigeo Yamamoto, Hartmut Sartorius and Wolfgang Weiss : ⁸⁵Kr measurement system for continuous monitoring at the Meteorological Research Institute, Japan. *Journal of Environmental monitoring*, **3**, 688-696(2001)
- 3) 高橋秀昭、工藤俊明、貝森優希、堀田智史、木村秀樹、安積 潔、北畠 茂、佐々木耕一、外川洋一、泉 淳、小向幼菜：青森県原子力センター所報, 第 2 号, 41-47 (2007)

環境放射能拡散シミュレーションシステム

武藤逸紀 安田 浩 木村秀樹
松村浩治*1 今井慎一*2 根本 誠*3

1. はじめに

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

平成17年度から平成18年度は、環境モニタリングにおけるKr-85濃度及び空間放射線量率の調査結果を用いてシステムの検証を行い、平成19年度は精度向上及び機能の追加を目的として検討を行った。平成20年度はこれらの検討をもとに風速場評価機能の精度向上、降水等による地表沈着計算機能の追加、被ばく線量評価計算機能の追加、トリチウム拡散評価計算機能の追加によるシステムの高度化を行った。また、平成18年10月の測定値と計算結果の比較・検討及び気象庁数値解析予報システムから提供されるメソ数値予報モデルGPVの地上データ（以下、「GPVデータ」という。）の取り込みの検討を行った。

平成21年度は高度化したシミュレーションシステムを用い、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた期間についてシミュレーションシステムによる計算結果との比較・検討を行うとともに、パラメータ調整等によりシステムの最適化を行った。

本報告は、平成20年度に実施した平成18年10月の測定値と計算結果の比較・検討及びGPVデータ取り込みの検討についてとりまとめたものである。

2. 調査方法

平成20年度に高度化したシミュレーションシステムを用いて、モニタリング等の測定値に六ヶ所再処理工場の寄与が認められた平成18年10月の測定値について、空間放射線量率の施設寄与分、大気中Kr-85濃度、大気中I-129濃度及びI-129降下量、大気中トリチウム濃度の計算を行い、測定結果と計算結果の比較・検討を行った。また、GPVデータを取り込んで作成した風速場に基づく計算結果について、空間放射線量率の施設寄与分との比較・検討を行った。

平成20年度に高度化したシステムの概要を以下に示す。

2.1 データの取得

青森県環境放射線監視テレメータシステム（以下、「テレメータシステム」という。）から気象データ及び放出源情報をリアルタイムで取得し、データベースに保存する。

2.2 風速場計算

パフモデル、トリチウムモデルは地形データに沿った座標系の風速場を作成し、質量保存則で補正する（MASCONEモデル）。

*1：日本電気株式会社 *2：NEC ソフトウェア東北株式会社

*3：株式会社ヴィジブルインフォメーションセンター

2.3 移流・拡散計算及び大気中濃度計算

- ・プルームモデルは放出点の風速を用い、核種の物理的半減期を考慮して計算する。
- ・パフモデルは 2.2 で作成した風速場を用い、核種の物理的半減期、乾性沈着、湿性沈着を考慮して計算する。
- ・トリチウムモデルは 2.2 で作成した風速場を用い、乾性沈着、湿性沈着、HTO の再放出を考慮して計算する。

2.4 外部被ばく線量及び内部被ばく線量の計算

- ・プルームモデル、パフモデルは放射性雲による γ 線外部被ばく線量、吸入による内部被ばく線量を計算する。
- ・トリチウムモデルは吸入摂取及び経皮摂取による内部被ばく線量を計算する。

2.5 結果の出力

2.2～2.4 までの結果を出力する。

3. 調査結果

3.1 空間放射線量率の施設寄与分を用いた比較・検討

(1) 青森県モニタリングステーション

シミュレーションシステム（パフモデル使用）により放出情報や気象情報等から空間放射線量率の施設寄与分を 10 分間隔で算出し、青森県がモニタリングステーション（以下、「MS」という。）において調査している空間放射線量率（10 分値）について SCA 弁別法¹⁾を用いて求めた施設寄与分と比較した。また、1 時間あたりの γ 線による外部被ばく実効線量の分布計算も行った。比較検討の対象としたのは MS 尾駮局と MS 吹越局の空間放射線量率に施設寄与が認められた期間とした。

SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分と、シミュレーションシステムにより算出した空間放射線量率の施設寄与分の経時変化について図 1～4 に示す。

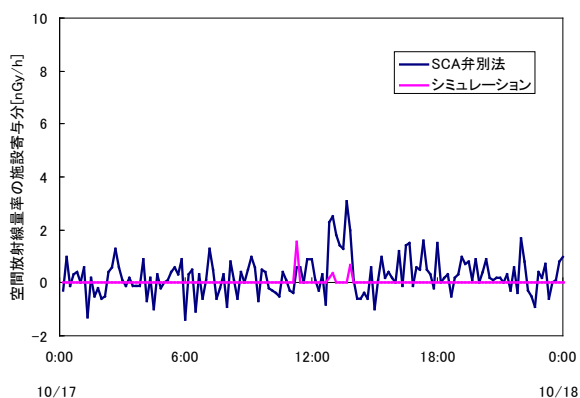


図 1 尾駮局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化 (1) (10 月 17 日 0:00～10 月 18 日 0:00)

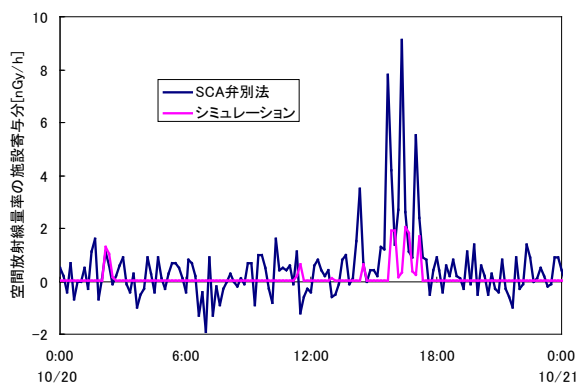


図 2 尾駮局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化 (2) (10 月 20 日 0:00～10 月 21 日 0:00)

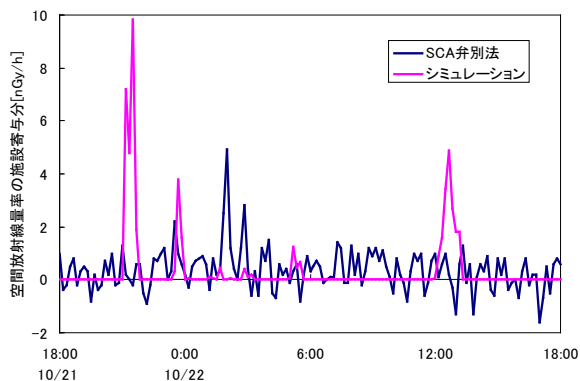


図3 尾駱局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化 (3)
(10月21日18:00~10月22日18:00)

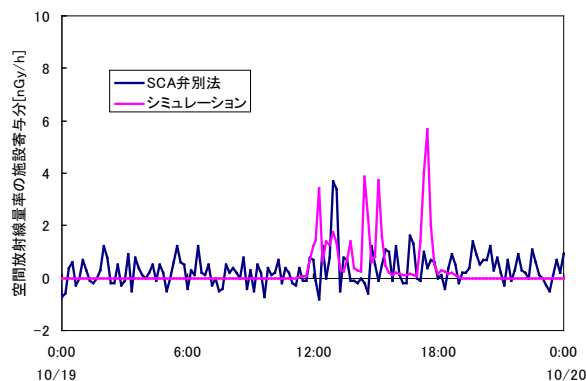


図4 吹越局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化
(10月19日0:00~10月20日0:00)

シミュレーションシステムによる計算結果は SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分を概ね再現しているが、尾駱局における10月22日2:00の空間放射線量率の施設寄与(図3)については再現できなかった。10月22日1:50における第1層(地上0m~地上約25m)の風速場を図5に、同日時の気象状況を表1に示す。また、10月22日2:00の1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量の分布図を図6に示す。

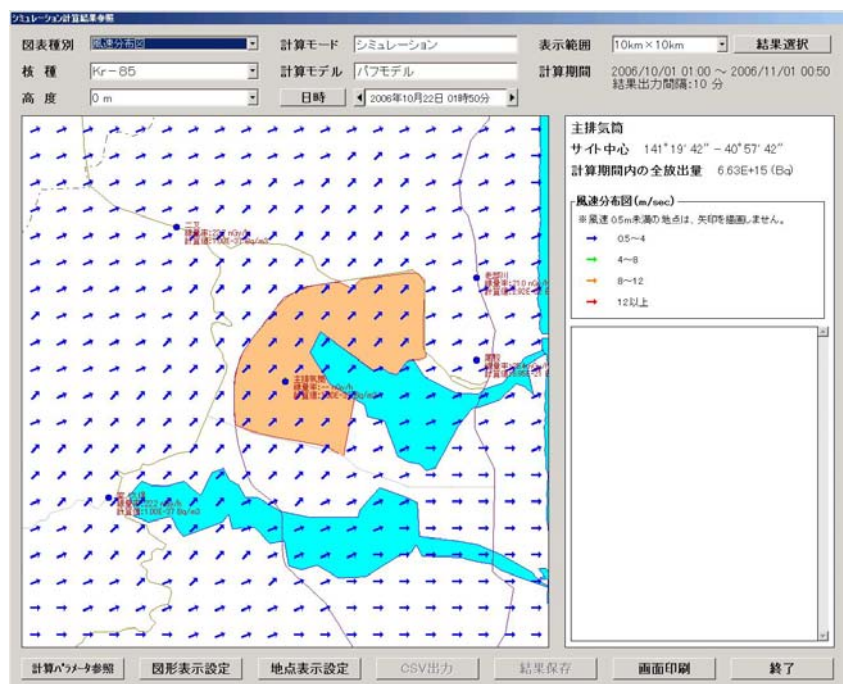


図5 10月22日 1:50 第1層(地上0m~地上約25m)の風速場

表1 10月22日1:50の気象状況

観測地点	風向	風速[m/s]	大気安定度
主排気筒(地上150m)	W	2.8	F
尾駱(地上10m)	N	0.9	F
千歳平(地上10m)	WSW	2.8	F
二又(地上10m)	NW	0.5	F

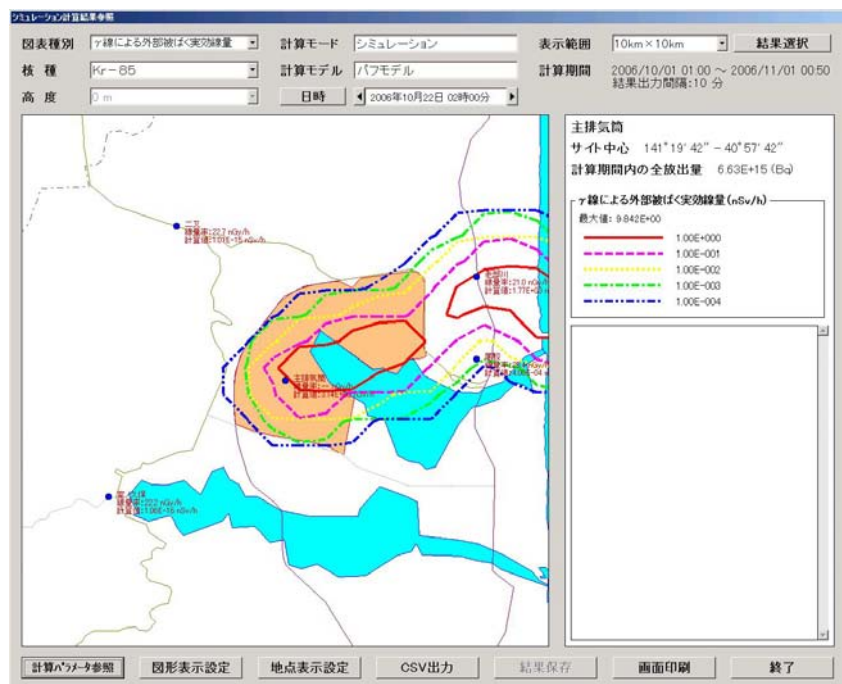


図6 10月22日 2:00 1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量の分布図

尾駮局における10月22日2:00のSCA弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与(図3)について、シミュレーションシステムで再現できなかったのは以下の原因と考えられる。

①風速場計算に対する千歳平局の風向・風速の影響

再処理施設主排気筒の風向(地上150m)の実測値はWだが、シミュレーションシステムによる第1層地 上0m～地上約25m)の風速場では主排気筒周辺の風向はSWとなっている。これは千歳平局(地上10m)におけるWSWの風の影響を受けているためである。また、尾駮局周辺では、尾駮局(地上10m)の風向Nの影響を受け風向きはWSWとなっている。この風速場の計算結果により、1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量計算結果では、プルームが尾駮局を避けるように移動している。この計算結果においては、計算地点に対して遠隔の地点である千歳平局の測定値の影響が過大である可能性がある。

②風向の16方位内での変化

10月22日1:50における大気安定度はFと安定であり、プルームが移動する際はあまり拡散しないため、放射性物質の分布は風向の影響を大きく受ける。

風向の測定値は16方位であり、16方位の軸を中心とした22.5°の範囲での風向の変化を計算に細かく反映することができないため、SCA弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与を再現することができなかったと考えられる。

(2) 日本原燃株MS

シミュレーションシステム(PAFモデル使用)により放出情報や気象情報等から空間放射線量率の施設寄与分を1時間間隔で算出し、日本原燃株がMSにおいて調査している空間放射線量率の測定値(1時間値)についてSCA弁別法¹⁾を用いて求めた施設寄与分と比較した。また、1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量の分布計算も行った。比較検討の対象としたのは、MS二又

局、MS室ノ久保局、MS老部川局の空間放射線量率に施設寄与が認められた期間とした。

SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分と、シミュレーションシステムにより算出した空間放射線量率の施設寄与分の経時変化について図 7～10 に示す。

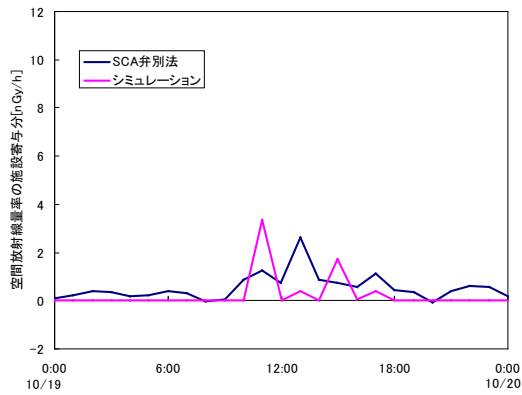


図 7 ニ又局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化 (10月19日0:00～10月20日0:00)

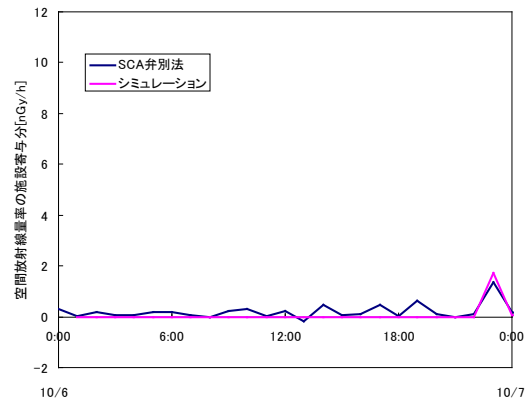


図 8 室ノ久保局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化(1) (10月6日0:00～10月7日0:00)

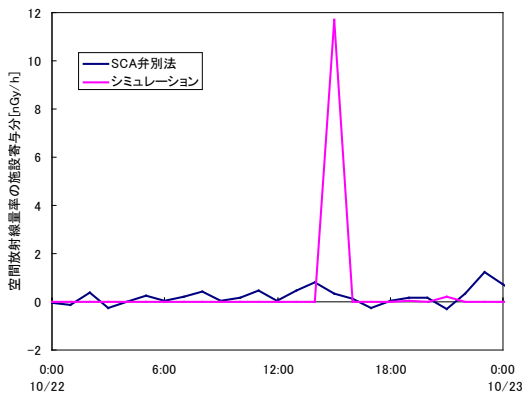


図 9 室ノ久保局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化(2) (10月22日0:00～10月23日0:00)

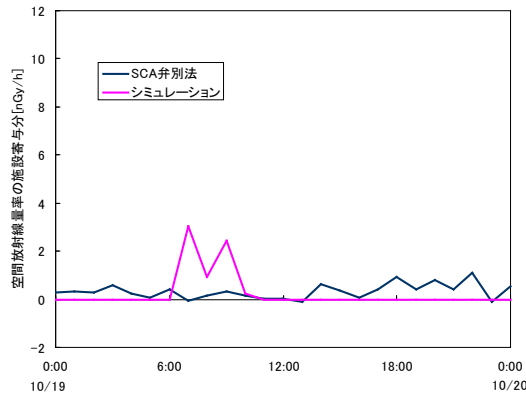


図 10 老部川局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化 (10月19日0:00～10月20日0:00)

シミュレーションシステムによる計算結果は図 7 及び図 8 に示した SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分については、概ねよく再現できた。

室ノ久保局における 10 月 22 日 15:00 (図 9) 及び老部川局における 10 月 19 日 7:00 (図 10) のシミュレーションシステムによる計算結果は SCA 弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分に対し過大となった。

10 月 22 日 14:00 における第 1 層 (地上 0 m～地上約 25 m) の風速場の計算結果を図 11 に、同日時の気象状況を表 2 に示す。また、10 月 22 日 15:00 の 1 時間あたりの γ 線による外部被ばく実効線量の計算結果を図 12 に示す。

10 月 19 日 6:00 における第 1 層 (地上 0 m～地上約 25 m) の風速場を図 13 に、同日時の気象状況を表 3 に示す。また、10 月 19 日 7:00 の 1 時間あたりの γ 線による外部被ばく実効線量の分布図を図 14 に示す。

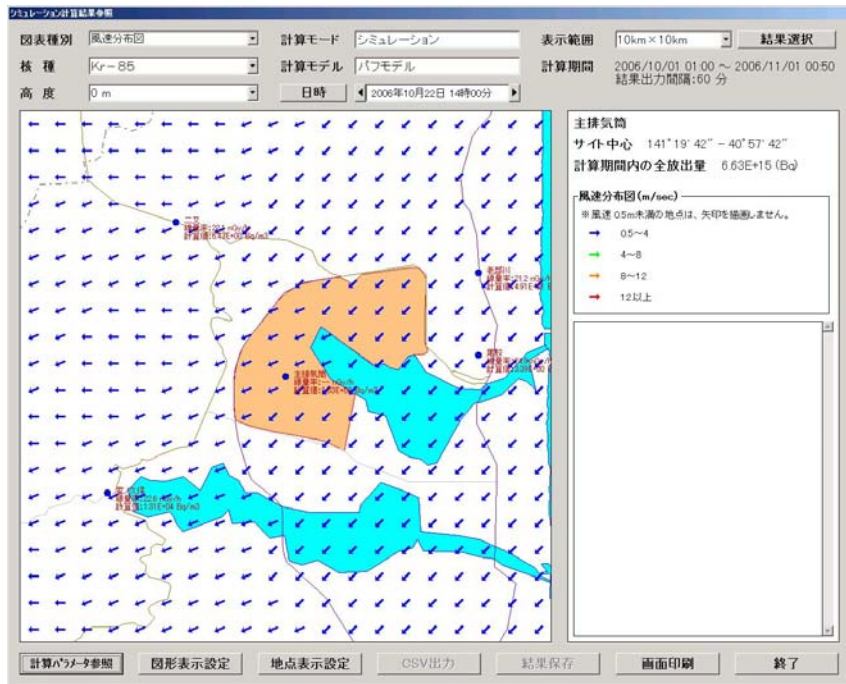


図 11 10月22日 14:00 第1層(地上0m~地上約25m)の風速場

表 2 10月22日の気象状況

時刻	主排気筒(地上150m)			尾駸(地上10m)			千歳平(地上10m)			二又(地上10m)		
	風向	風速	大気	風向	風速	大気	風向	風速	大気	風向	風速	大気
		(m/s)	安定度		(m/s)	安定度		(m/s)	安定度		(m/s)	安定度
11:00	WSW	2.7	D	SW	0.9	D	WS	0.6	D	Calm	0.3	D
12:00	WNW	2.4	D	Calm	0.4	D	Calm	0.3	D	Calm	0	D
13:00	NNE	1	D	E	0.6	D	SSE	0.7	D	SE	0.8	D
14:00	NE	2.9	D	NNE	1.3	D	E	1.4	D	ESE	0.9	D

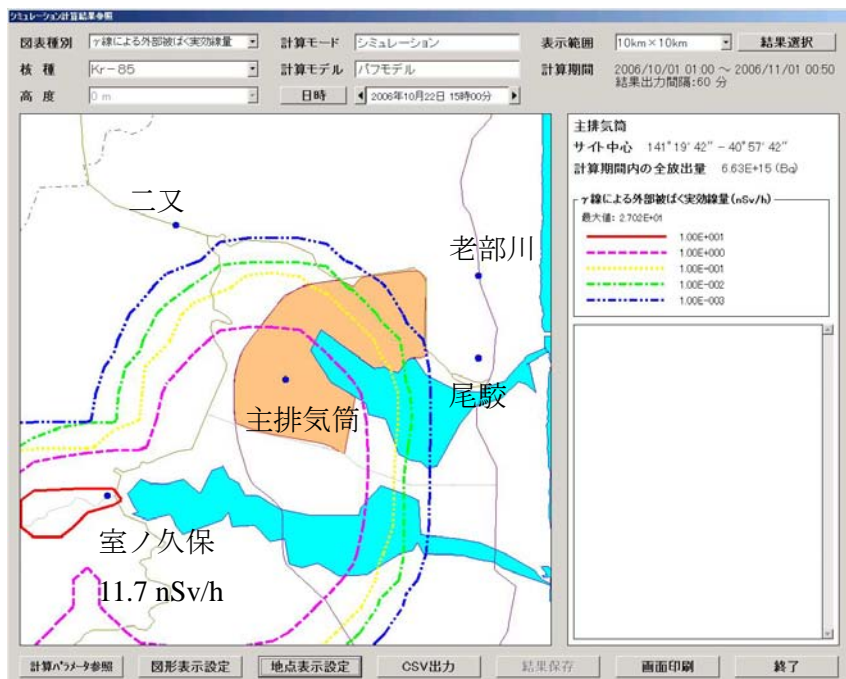


図 12 10月22日 15:00 1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量の分布図

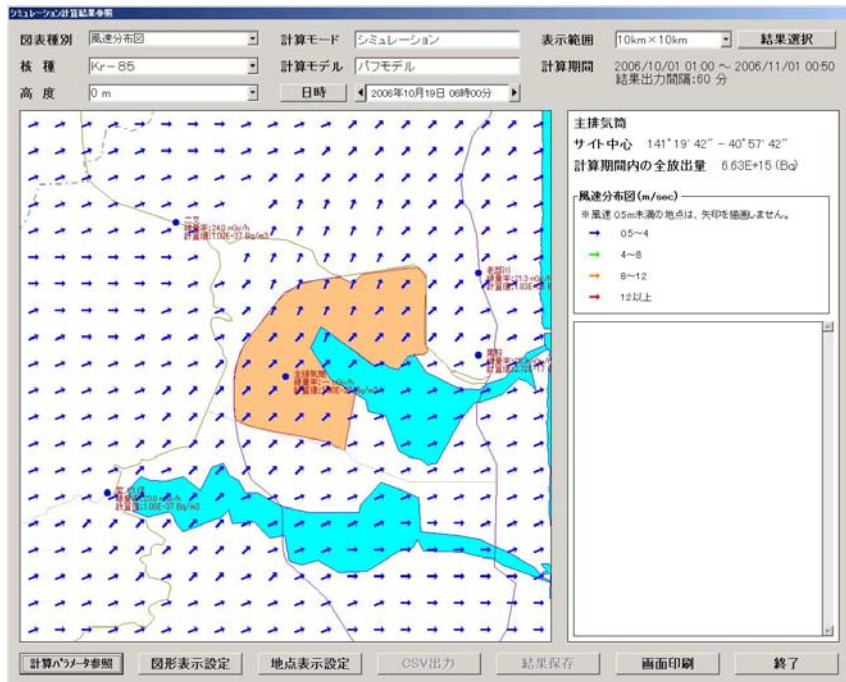


図 13 10月19日 6:00 第1層(地上0m~地上約25m)の風速場

表 3 10月19日6:00の気象状況

時刻	主排気筒(地上150m)			尾駁(地上10m)			千歳平(地上10m)			二又(地上10m)		
	風向	風速	大気	風向	風速	大気	風向	風速	大気	風向	風速	大気
		(m/s)	安定度		(m/s)	安定度		(m/s)	安定度		(m/s)	安定度
4:00	W	6	G	NW	0.9	G	W	1.8	G	Calm	0	G
5:00	W	3.8	G	WSW	1	G	SW	1.1	G	NW	0.5	G
6:00	W	3.3	F	Calm	0.2	D	WSW	2.3	D	Calm	0	G
7:00	SSW	0.9	D	WSW	1.5	D	SW	0.7	D	Calm	0	D

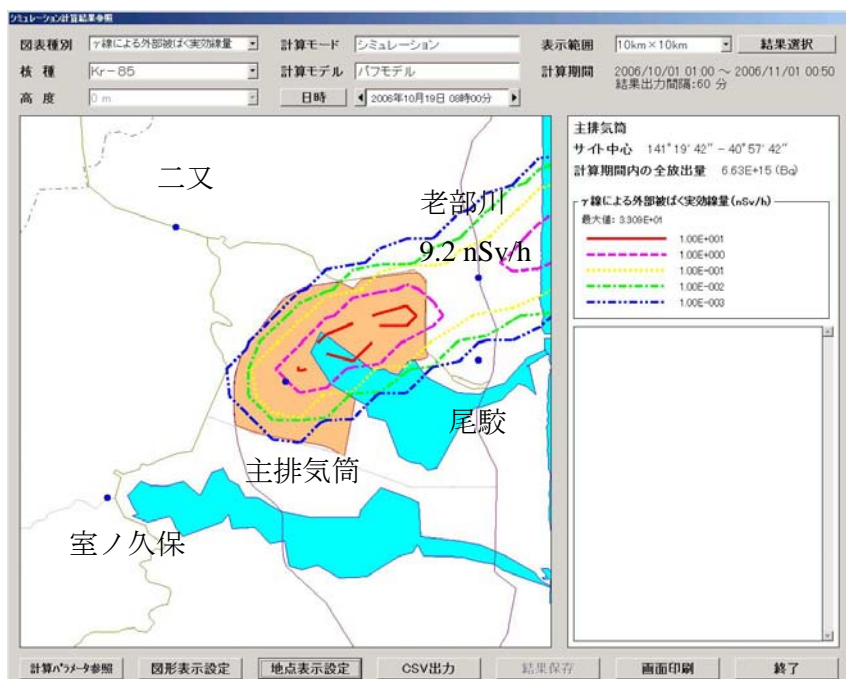


図 14 10月19日 7:00 1時間あたりのγ線による外部被ばく実効線量の分布図

10月22日では、11:00～14:00にかけて尾駸局、千歳平局、二又局（地上10m）では風速1m/s未満の気象条件が支配的であった。また、10月19日では、4:00～7:00にかけて風速1m/s未満の気象条件が支配的であった。

パフモデルで使用する拡散幅は、風下距離に対する関数であるため、無風、弱風時の場合はほとんど拡散せずにとどまることになる。このような気象条件では計算結果はSCA弁別法により算出した空間放射線量率の施設寄与分に対して過大となる。

3.2 大気中 Kr-85 濃度を用いた比較・検討

(1) 日本原燃(株)MS

シミュレーションシステム（パフモデル使用）により放出情報や気象情報等から大気中 Kr-85 濃度を10分間隔で算出し、日本原燃(株)がMSにおいて調査しているβ線ガスモニタの測定結果（10分値）と比較した。また、大気中 Kr-85 濃度の分布計算も行った。比較検討の対象としたのはMS二又局、MS室ノ久保局、MS老部川局のβ線ガスモニタの測定結果に施設寄与が認められた期間とした。

MSにおいて調査しているβ線ガスモニタの測定結果と、シミュレーションシステムにより算出した大気中 Kr-85 濃度の経時変化について図15～20に示す。

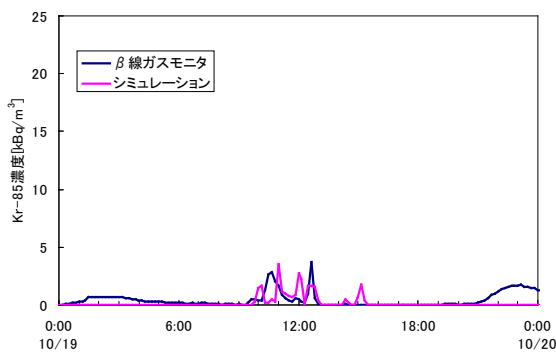


図15 二又局における Kr-85 濃度及び計算結果の経時変化
(10月19日0:00～10月20日0:00)

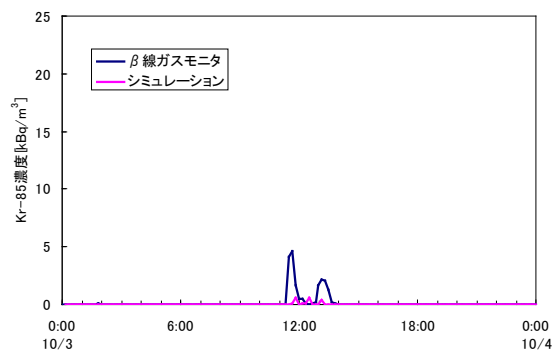


図16 室ノ久保局における Kr-85 濃度及び計算結果の経時変化(1)
(10月3日0:00～10月4日0:00)

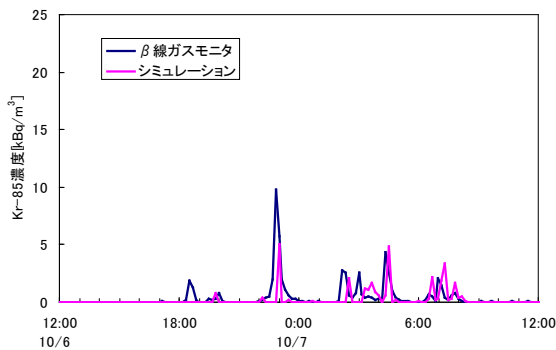


図17 室ノ久保局における Kr-85 濃度及び計算結果の経時変化(2)
(10月6日12:00～10月7日12:00)

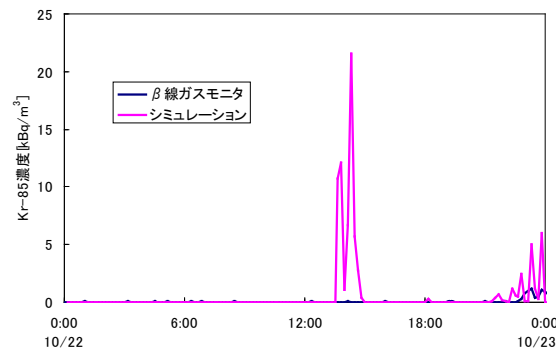


図18 室ノ久保局における Kr-85 濃度及び計算結果の経時変化(3)
(10月22日0:00～10月23日0:00)

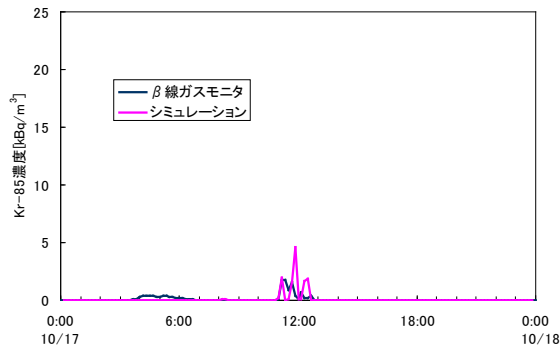


図 19 老部川における Kr-85 濃度及び
計算結果の経時変化(1)
(10月17日0:00~10月18日0:00)

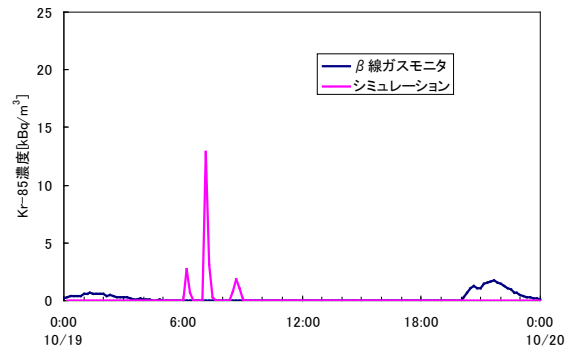


図 20 老部川における Kr-85 濃度及び
計算結果の経時変化(2)
(10月19日0:00~10月20日0:00)

シミュレーションシステムによる計算結果は再処理工場の寄与と考えられる Kr-85 濃度の上昇について概ねよく再現できた。図 15 及び図 20 に示したような早朝及び深夜に見られる静穏時の高濃度については計算結果では再現されなかった。

原因として、上空に逆転層が形成されていることが考えられる。逆転層は蓋のような役割をするため、上空に広がったプルームは地表面へ降り、地上付近で高濃度となる。本シミュレーションシステムではこの現象は再現しない。

なお、室ノ久保局における 10月22日13:50 (図 18) 及び老部川局における 10月19日7:10 (図 20) のシミュレーションシステムによる計算結果は大気中 Kr-85 濃度に対し過大となった。この原因は 3.1 で記述したとおり、風速 1 m/s 未満の気象条件が支配的であったことである。

3.3 大気中 I-129 濃度及び I-129 降下量を用いた比較・検討

(財)環境科学技術研究所 (以下、「環境研」という。) が平成 18 年に行った放出放射能分布調査で報告している再処理工場から放出された I-129 の大気中濃度及び降下量²⁾について、シミュレーションシステム (パフモデル使用) により放出情報や気象情報等から算出した I-129 大気中濃度及び沈着量と比較した。また、I-129 大気中濃度及び沈着量の分布計算も行った。なお、I-129 の放出情報は 1 週間毎の測定結果であるため、再処理工場から 1 週間均等に放出されたものとして算出し、計算間隔は 1 時間毎とした。

(1) I-129 大気中濃度

I-129 大気中濃度の分布図 (平成 18 年 10 月) を図 21 に示す。

シミュレーションシステムにより計算した環境研における平成 18 年 10 月の I-129 の平均濃度は 322 nBq/m³となった。環境研による報告値によると大気中粒子状 I-129 濃度及びガス状 I-129 濃度の和は 17.0 nBq/m³であるが、この値の約 20 倍となった。今後平成 18 年 10 月以外の期間についても検討を行う。

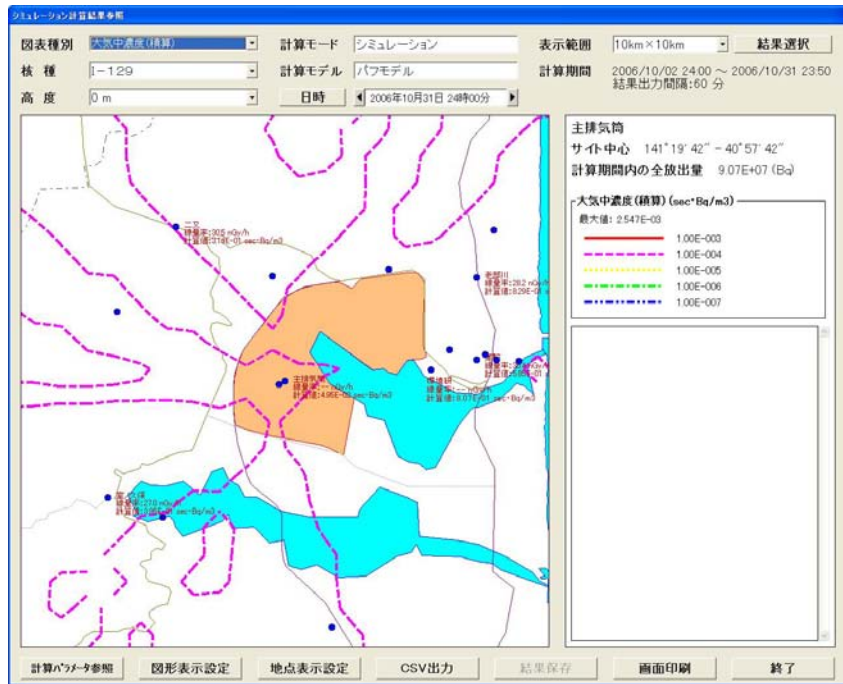


図 21 I-129 大気中濃度の分布図（平成 18 年 10 月）

※10 分ごとに計算した I-129 大気中濃度を 29 日間積算したもの

(2) I-129 沈着量

I-129 地表沈着量の分布図（平成 18 年 10 月）を図 22 に示す。

シミュレーションシステムにより計算した環境研における平成 18 年 10 月の I-129 の沈着量は 2.50 mBq/m^2 となり、環境研による報告値による I-129 の降下量 1.83 mBq/m^2 の約 1.4 倍となった。大気中濃度と沈着量は沈着係数等のパラメータを介して関連しているため、今後大気中濃度とともに平成 18 年 10 月以外の期間についても検討を行う。



図 22 I-129 地表沈着量の分布図（平成 18 年 10 月）

3.4 大気中トリチウム濃度を用いた比較・検討

(1)HTO 濃度

青森県及び日本原燃(株)MSにおいて調査している大気中水蒸気状トリチウム濃度の平成 18 年 10 月の分析結果及び環境研が平成 18 年に行った放出放射能分布調査で報告されている大気中形態別³H濃度のうち平成 18 年 10 月の大気中HTO濃度について、シミュレーションシステム（トリチウムモデル使用）により放出情報や気象情報等から算出した大気中HTO濃度と比較した。トリチウムの放出情報は 1 週間毎の測定結果であるため、再処理工場から 1 週間均等に放出されたものとして算出した。検討の対象としたのは、分析結果に施設寄与が認められた期間である。また、大気中HTO濃度の分布計算も行った。なお、気象データのうち、気圧については八戸気象官署の観測値を使用した。

青森県及び日本原燃(株)MSにおける大気中水蒸気状トリチウム濃度測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較を図 23 に示す。また、環境研における大気中HTO濃度測定結果とシミュレーションシステムによる計算結果の比較を図 24 に示す。図において、大気中HTO濃度の測定値は、本県におけるバックグラウンド 4.6 mBq/m³を差し引いたものをプロットしている。本県におけるバックグラウンドは次のように計算した。県のHTO濃度調査地点（尾駁、横浜町、青森市）の平成 17 年度～19 年度における平均のHTO水分中濃度 0.54 Bq/Lに、同地点の 10 月の平均大気中水分量 8.6 g/m³を乗じ、大気中HTOのバックグラウンド濃度 4.6 mBq/m³とした。なお、計算では施設寄与が認められた測定値は除外した。

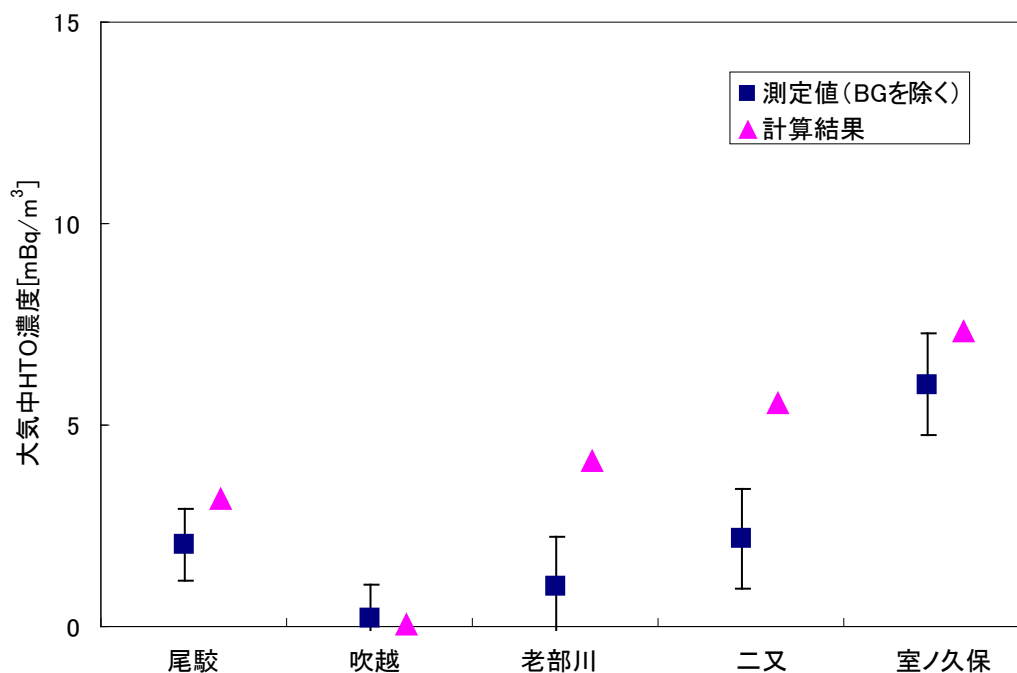


図 23 青森県及び日本原燃(株)MS における大気中 HTO 濃度の測定値と計算結果の比較（平成 18 年 10 月）
（測定値は本県における大気中HTOのバックグラウンド（BG）濃度 4.6 mBq/m³を差し引いたもの）

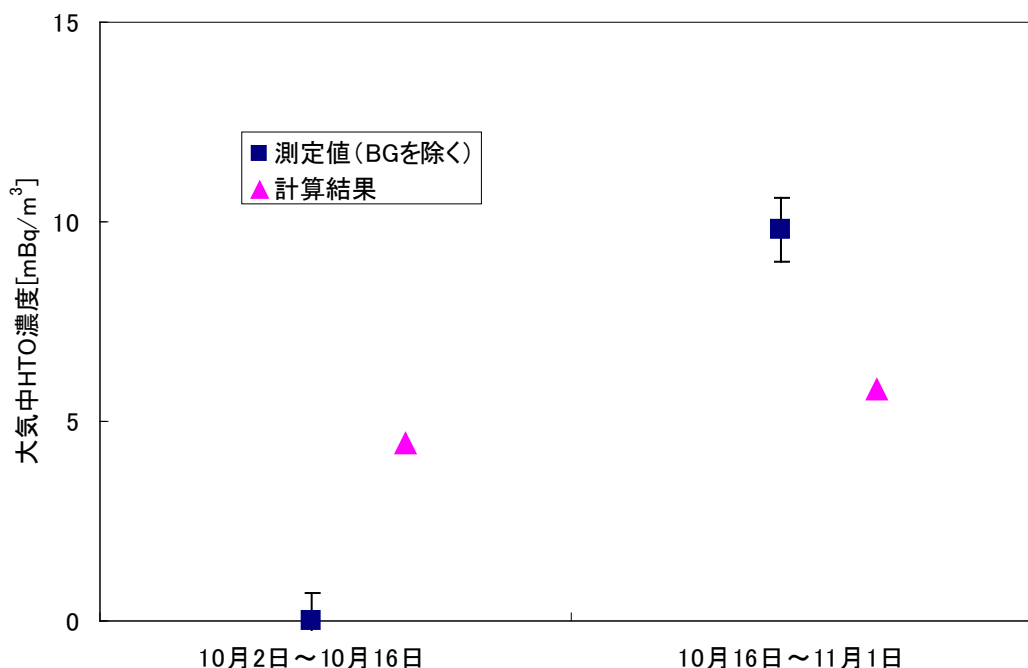


図 24 環境研における大気中 HTO 濃度の測定値と計算結果の比較（平成 18 年 10 月）
 （測定値は本県における大気中 HTO のバックグラウンド（BG）濃度 4.6 mBq/m³ を差し引いたもの）

MS 尾駱局、MS 吹越局及び MS 室ノ久保局における測定値とシミュレーションシステムによる計算結果はほぼ一致したが、他の地点での一致度は比較的低かった。

3.5 GPV データ適用の検討

シミュレーションシステムの計算範囲は全県であるのに対し、シミュレーションシステムの風速場計算に用いている気象観測結果は六ヶ所村内等の限られた地点におけるものである。そのため、十分な観測結果がない地点では、実現象と乖離した風速場を導く可能性がある。この問題点を解消するため、テレメータに取り込んでいる気象観測結果と GPV データを併用して一次推定場を計算することを検討した。

(1) GPV データについて

今回の風速場の計算に取り込む GPV データの予報に用いるメソモデル（以下「MSM」という。）の計算領域を図 25、概要を表 7、詳細を表 8 に示す。MSM データには気圧面データと地上データがあり、より空間・時間解像度の高い地上データを用いた。地表面のデータは、風速は地上 10 m、気温、気圧は地上 1.5 m となっている。なお、MSM 地上データは配信時間間隔が 3 時間であるため、その間は 1 時間間隔で収録されている予報値を用いた。

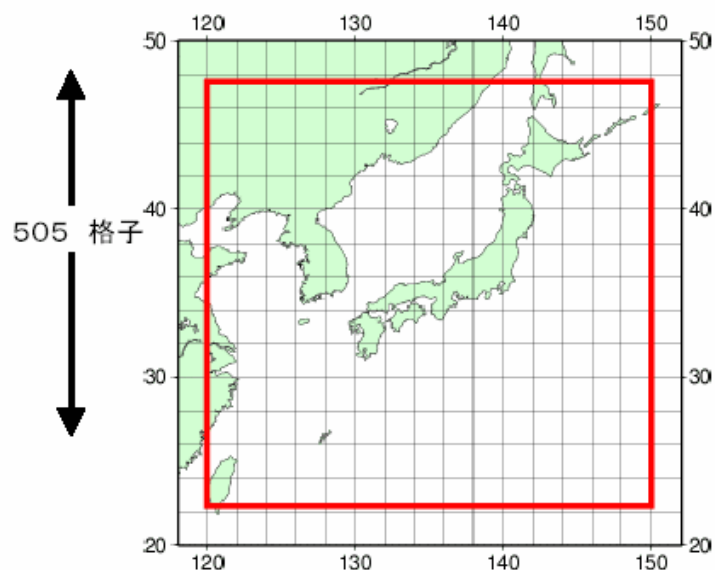


図 25 MSMの計算領域⁴⁾

表 7 MSM 地上データ概要

項目	内容
データ範囲	北緯 22.4° ~47.6°、東経 120° ~150°
投影法	等緯度経度
水平方向解像度	東西方向 0.0625° (481 格子点)
	南北方向 0.05° (505 格子点)
収録気象要素	海面気圧[hPa]、地上気圧[hPa]、ジオポテンシャル高度(m)、x方向風速(m/s)、y方向風速(m/s)、気温(K)、相対湿度(%)、下層雲量、中層雲量、上層雲量、全雲量、時間降水量※
	※予報値のみ
初期値 配信時間	3 時間ごと、一日 8 回 0,3,6,9,12,15,18,21[UTC]
予報値 収録時間	1 時間ごと、初期値から 33 時間。
ファイル形式	GRIB2

表 8 MSM 地上データ詳細

略号	名称	単位	意味	測定高度	収録時間
PRMSL	Pressure reduced to MSL	Pa	海面気圧	平均海面	初期値、予報値
PRES	Pressure	Pa	地上気圧	地上	初期値、予報値
UGRD	U wind	m/s	風速 u 成分	地上 10m	初期値、予報値
VGRD	V wind	m/s	風速 v 成分	地上 10m	初期値、予報値
TMP	Temperature	K	気温	地上 1.5m	初期値、予報値
RH	Relative Humidity	%	相対湿度	地上 1.5m	初期値、予報値

(2) 計算結果

青森県が MS 泊局において調査している空間放射線量率について、SCA 弁別法を用いて施設寄与分を求め、シミュレーションシステム（パフモデル使用）により放出情報や気象情報等から算出した施設寄与分と比較した。また、空間放射線量率の施設寄与分の分布計算も行った。なお、施設寄与が認められた平成 18 年 10 月 16 日 12:00～10 月 17 日 12:00 における測定値を比較の対象とした。

計算は①気象データ、②気象データ+MSM 地上データの 2 パターンで行い、結果を比較した。計算領域は 80 km 四方で行った。計算間隔は 10 分とするが、MSM 地上データは毎正時にのみ反映されており、その間の時間内挿は行っていない。空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化について図 26 に示す。また、①気象データ、②気象データ+MSM 地上データの 2 パターンについて、10 月 16 日 22:00 の風速場及び 10 月 16 日 22:10 の空間放射線量率の施設寄与分の分布図の比較を図 27 に示す。

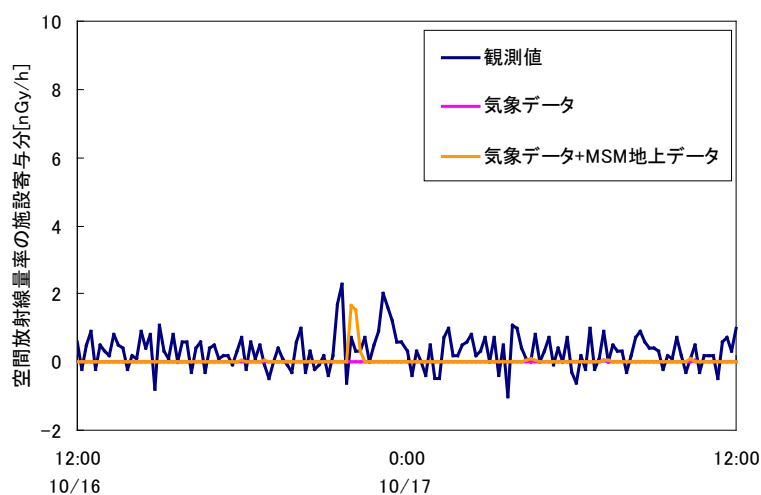
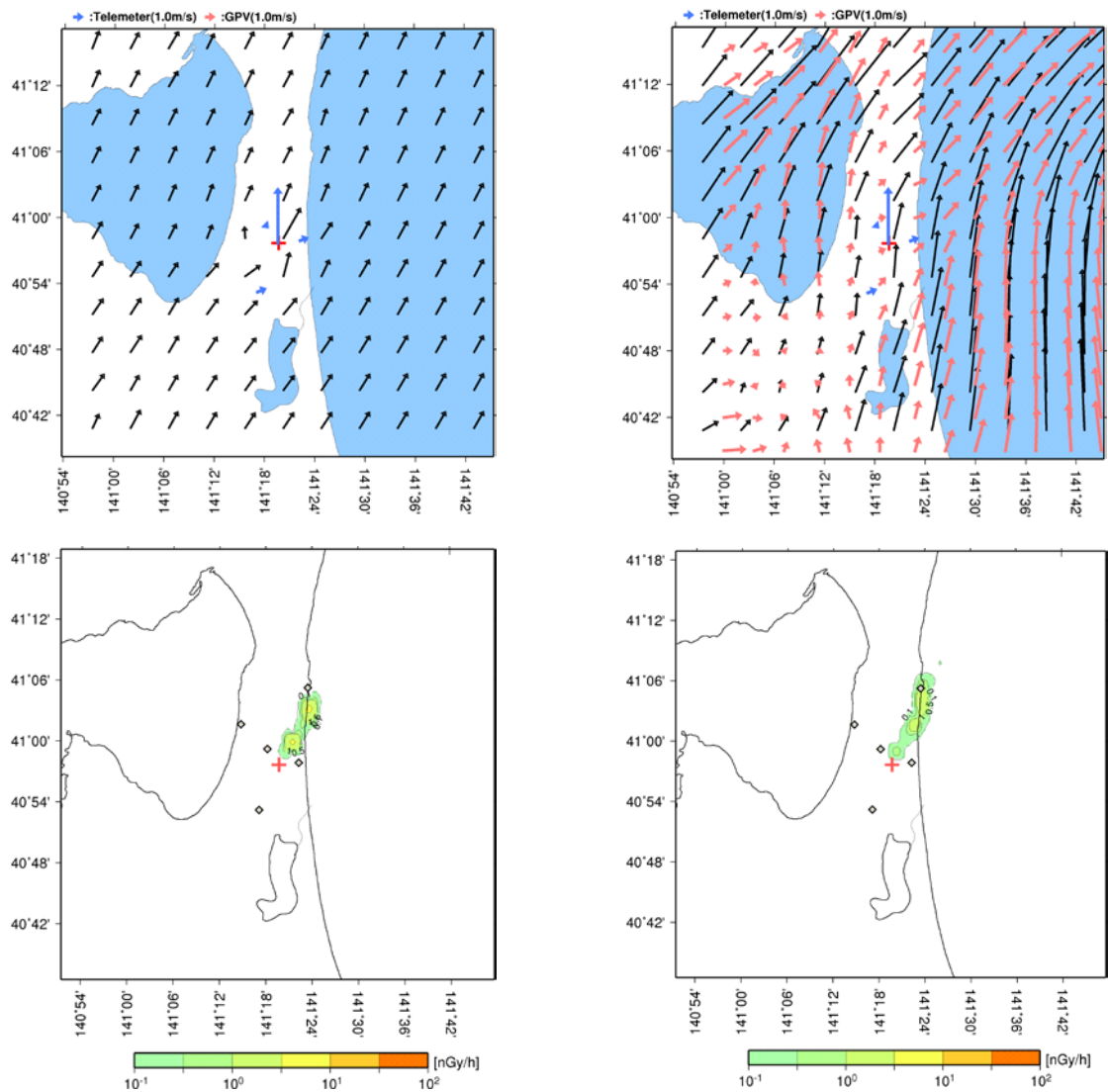


図 26 泊局における空間放射線量率の施設寄与分及び計算結果の経時変化
(10 月 16 日 12:00～10 月 17 日 12:00)



(a) 気象データ

(b) 気象データ+GPV データ

上: 風速場 (2006年10月16日22:00)、下: 空間放射線量率の施設寄与分 [nGy/h] (2006年10月16日22:10)

図 27 泊局における風速場及び空間放射線量率の施設寄与分の分布図の比較

GPV データを適用してシミュレーションシステムによる計算を行った場合は、図 26 に示したように泊局で空間放射線量率の施設寄与分のピークが見られ、GPV データを使用せずに気象データのみで計算を行った場合は見られなかった。GPV データを適用した場合は、海上の強い南風が取り入れられたため、気象データのみで計算された風速場より強風場となり、プルームが泊まで到達する結果となった。今回の計算結果においては、GPV データの適用は有効であると認められるが、今後他の期間を用いてさらに検討を行う。

4. まとめと展望

- 空間放射線量率の施設寄与分及び大気中 Kr-85 濃度についてはパフモデルでよく再現できた。気象条件等により測定結果とは異なる計算結果となる場合があるため、今後パラメータ調整や計算モデルの改良について検討する。
- I-129 の大気中濃度に対し計算結果が過大であった。今後、平成 18 年 10 月以外の期間についても計算を行うとともに、環境中での大気中 I-129 の挙動及び放出量について検討する。
- 平成 18 年 10 月のトリチウム濃度については、MS 尾駸局、MS 吹越局及び MS 室ノ久保局において大気中 HTO 濃度を概ね再現できた。今後は他の期間についても計算を行い検討する。
- 本報告で行った計算結果においては、GPV データの適用は有効であると認められるが、今後事例を積み重ねて検討を行う。

文献

- 1) 堀田智史、庄司博光、齋藤稔：青森県原子力センター所報，第 3 号，19-25(2008)
- 2) (財)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，135-189(2007)
- 3) 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)
- 4) 気象業務支援センターWebサイト <http://www.jmbnc.or.jp/index.html>
- 5) 日本原燃株式会社：再処理事業指定申請書

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

五十嵐飛鳥 佐々木久美子*¹ 工藤俊明 木村秀樹

1. はじめに

トリチウム (T) は、成層圏において空気と宇宙線の相互作用で生成する自然放射性核種であり、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH₃T等) の3種の化学形で存在することが知られている。現在、HTO濃度は核実験前のレベルまで減少しているが、現在の環境トリチウムレベルに影響を与えるものとして、原子力発電所や核燃料再処理施設からのトリチウムの放出が考えられる。

青森県では、平成17年12月に東通原子力発電所が営業運転を開始し、六ヶ所再処理工場については平成18年3月からアクティブ試験を開始している。トリチウムは、これらの原子力施設から大気及び海洋へ放出される。再処理工場や原子力発電所からの多くはHTOの形で放出されるが、東海再処理施設から大気中へ放出された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¹⁾もある。

このため、環境における大気中トリチウムの化学形別濃度調査を実施し、その挙動を把握することは、原子力施設から放出される放射性物質による環境への影響の評価に資するための重要な情報となる。

平成16年度から化学形別の試料採取条件を検討しているが、従来用いられてきた方法²⁾は可燃性ガスを用いている。そのため、安全性の観点から、平成19年度及び平成20年度は、可燃性ガスの代わりに加湿カラムを用いる方法^{3,4)}による採取装置を組み立て、大気中トリチウムを化学形別に捕集できることを確認した。平成21年度は、この採取装置を用いて現地調査を実施するための条件である、採取流量、期間、無トリチウム水の供給量等について検討した。

2. 調査方法

2.1 採取装置

化学形別トリチウム採取装置 (以下「採取装置」という。) の概略を図1に示す。大気は、採取装置の出口側に設置した真空ポンプ (DA-30D、ULVAC) で吸引し装置に導入した。入口側には焼結金属性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した。化学形別トリチウムは、モレキュラーシーブ3Aを充填したHTOカラム、HTカラム及びCH₃Tカラムに捕集した。

まず電子除湿器 (出口露点 1~3 °C) により水分 (HTO) の一部を捕集した後、残りのHTOをHTOカラムに捕集した。次に、HTは100 °Cに加熱したPt触媒 (Ptを担持させたメタルハニカム触媒、Pt 0.12 g/L、25 mmΦ × 50 mm、3個) で酸化し、水としてHTカラムに捕集した。HTカラムを通過した大気試料は、300 °Cに加熱したPd触媒 (DASH-220D、0.24 wt%、3 mmΦ、NECHEMCAT) で酸化し、水としてCH₃Tカラムに捕集した。各触媒カラムの前には、図2に示した無トリチウム水蒸気を供給するカラム (以下、「加湿カラム」という。) を設置した。

*1: 現青森県健康福祉部医療薬務課

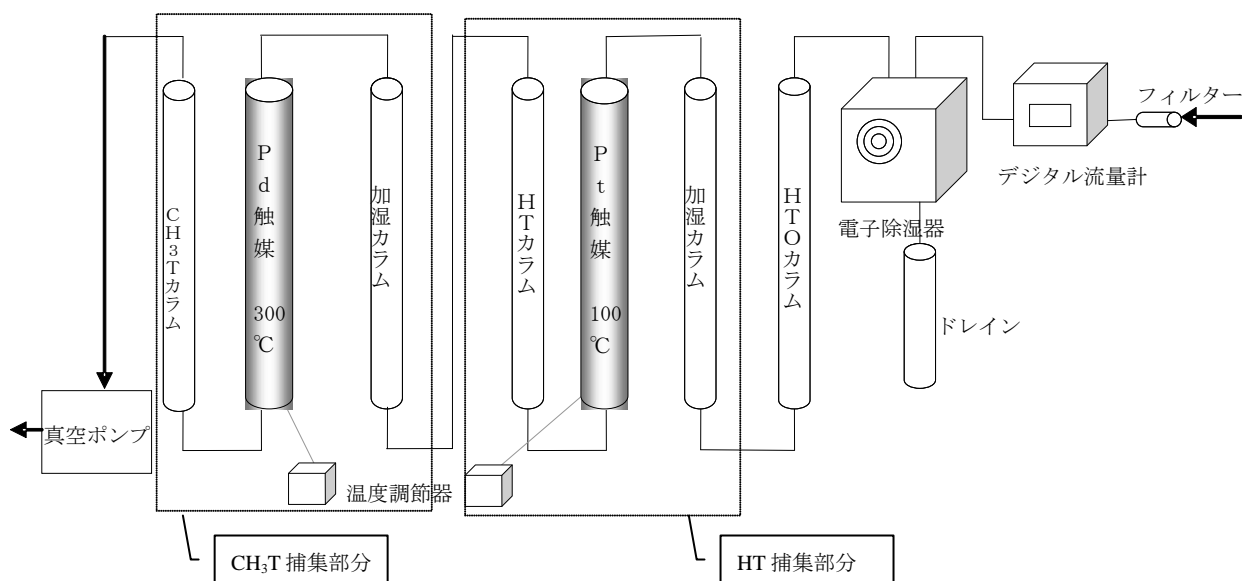


図1 化学系別トリチウム採取装置
(可燃性ガスを使用しない)

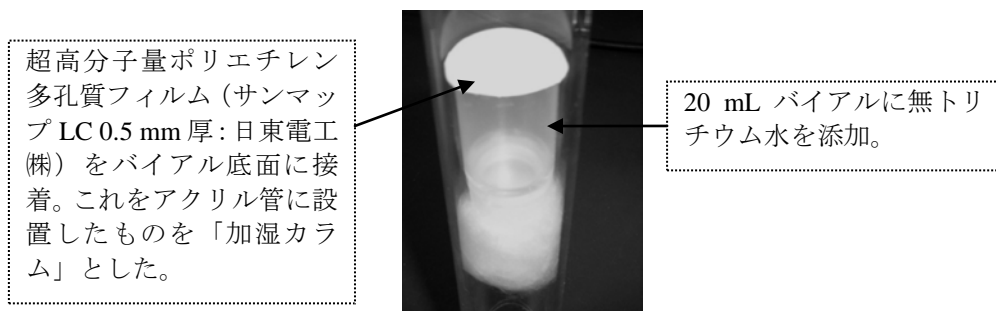


図2 加湿カラムの概略

採取流量は、モニタリングで実施している大気中水蒸気状トリチウム調査の青森局における月別の流量に合わせて実施した。採取期間は、これまでの青森局における湿度の観測結果から、HTO 捕集カラム 2 本が飽和しないように設定した。

2.2 分析方法

捕集用のモレキュラーシーブカラムを管状炉で 400 °C に加熱して試料水を回収した。試料水 10 mL を 20 mL 低拡散ポリエチレンバイアルに入れ、それぞれ液体シンチレータ Perkin Elmer Japan 社製 Ultima Gold LLT を同量混合し、測定試料とした。測定は液体シンチレーション計数装置 (アロカ製 LSC-LB5) により行い、測定時間は 1000 分 (50 分 × 20 回) とした。

HTO、HT 及び CH₃T 用の捕集カラムから回収した試料水中のトリチウム測定結果をもとにそれぞれの大気中濃度を算出した。

3. 調査結果

3.1 HTO の捕集

現地調査をする場合、採取装置の設置場所はモニタリングで大気中水蒸気状トリチウムの調査をしているモニタリングステーションの局舎が考えられる。局舎内のスペースは限られているので装置のコンパクト化が必要となり、HTO カラム等はできるだけ少ない本数であることが望ましい。

カラム 1 本あたりの最大水分捕集量は 70~80 mL であるため、本調査で用いた装置 (図 3) のように HTO カラムを 2 本設置した場合、約 160 mL までの水分量に抑える必要がある。月間の絶対湿度の範囲を地点ごとに示したのが表 1 である。観測結果には、夏に高く冬に低い季節変動が見られる。県のモニタリングではこの表 1 のデータをもとに、月ごとの採取流量を表 2 のように調整している。これと同じ流量を用いた場合、2 本の HTO 捕集カラムで約 14 日間の採取が可能となる。



図 3 化学系別トリチウム採取装置

表 1 月ごとの大気中絶対湿度 (mL/m³) の変動
(H9~H11 年度)

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

表 2 モニタリングにおける大気水分中トリチウム採取流量
(L/min)

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

3.2 加湿カラムからの無トリチウム水供給速度

HT及びCH₃Tの採取における大気採取流量や気温に対する加湿カラムからの無トリチウム水の供給量を検討した。県環境保健センター（青森市）の1階実験室内及びテレメーター室に本採取装置を設置して、実験室内空気及び屋外大気を採取した際の無トリチウム水の供給速度を測定した結果は表3のとおりであった。供給速度は、加湿カラムの減量と採取時間から算出した。

無トリチウム水は蒸発により供給されるため温度依存性があるとされており、機器の設置場所の温度が16℃の場合やや供給速度が小さめとなっているが、今回の検討温度範囲では明確な温度依存性は見られなかった。また、大気採取流量が0.3 L/minから1.2 L/minまで異なる場合でも、19~24℃の温度変化内では供給速度に違いは見られなかった。一方で、アクリル管内の加湿カラム用バイアルの個数を2個から3個に増やした場合、供給速度はほぼ1.5倍に増加した。

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

表3 無トリチウム水供給速度の検討結果

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

※1 装置は一定温度に保たれているテレメーター室内に設置した

※2 上段はHT用、下段はCH₃T用の加湿カラムにおける減量

3.3 大気中トリチウム濃度測定結果

本採取装置によって、前項までの条件で採取流量を季節ごとに変えて大気を採取し、それぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表4に示した。8月に流量0.3 L/minで約12日間採取した試料については、測定値はいずれの化学形も検出下限値以下となった。このとき、HTカラム及びCH₃Tカラムの増加量が比較的大きくなっているのは、採取期間を長くしたため途中で加湿カラムのバイアル数を2個から3個に増加させたことによるものである。一方、11月~12月に流量1.2 L/minで約7日間採取した試料については、HTOは検出下限値以下であったが、HTが6.2±0.8及び7.7±0.6 mBq/m³、CH₃Tが2.3±0.7及び3.9±0.6 mBq/m³と有意な値になった。これ

らの値は、平成 19 年度及び平成 20 年度に、県環境保健センター実験室内の空気について、化学形ごとの捕集状況を検討した際のHT濃度（6.2～8.5 mBq/m³）及びCH₃T 濃度（1.6～3.5 mBq/m³）⁴⁾、また、柿内らによる青森県六ヶ所村における平成 18 年の調査結果⁵⁾と同程度であった。

表 4 加湿カラム捕集法による大気中HTO, HT及びCH₃T測定結果

No.	1	2	3
採取期間	2009.8.17 ～8.28	2009.11.25 ～12.1	2009.12.22 ～12.28
採取時間 (min)	17350	10080	9770
採取流量 (L/min)	0.3	1.2	1.2
積算流量 (m ³)	5.273	12.198	11.691
HTO カラム増加量 (g)	43.80	65.23	50.57
除湿水 (g)	54.10	3.32	0
HTO濃度 (mBq/m ³)	(9.7±5.8)	(4.7±1.8)	(1.4±1.3)
湿分*1 (g/m ³)	18.6	5.6	4.3
絶対湿度*2 (g/m ³)	17.6	5.8	3.7
加湿カラム減少量 (g)	60.31	30.61	18.38
HT カラム増加量 (g)	61.15	30.85	18.80
HT濃度 (mBq/m ³)	(9.0±3.7)	6.2±0.8	7.7±0.6
加湿カラム減少量 (g)	60.80	29.26	20.45
CH ₃ Tカラム増加量 (g)	61.25	29.85	20.75
CH ₃ T濃度 (mBq/m ³)	(2.8±3.6)	2.3±0.7	3.9±0.6

*1 湿分 (g/m³) = (HTOカラム増加量 (g) + 除湿水 (g)) / 積算流量 (m³)

*2 絶対湿度は青森局の気温と相対湿度から算出。

なお、No.1 は採取途中に加湿カラム用バイアルを 2 個から 3 個に増加し、無トリチウム水を補給している。

3.4 現地調査に対する採取条件の検討

8 月の調査でHT及びCH₃Tの測定値がいずれも検出下限値以下となったのは、HTOカラムの飽和を防ぐために流量を小さくした結果、大気採取量が少なくなったことに加え、加湿カラムのバイアルを途中で 3 個に増加したことによって無トリチウム水による希釈率が大きくなったためと考えられる。このように、本採取装置では、大気中水分量が多くなる夏季に、できるだけ大気採取量を多くしながら、無トリチウム水の供給量を少なくすることがポイントとなる。

まず、試料採取期間は、再処理工場からの放出量データが 1 週間単位であることやカラム交換などの作業のしやすさを考慮して 7 日間（約 10000 min）とする。年間の大気中水分量の範囲は 2～20 mL/m³であるため、HTOについては 1.5 L/min（冬季）から 0.6 L/min（夏季）の範囲で大気を採取すれば試料水量が 30～120 mLとなり、2 本のカラムを飽和させず測定に必要な量を確保することができる。HT及びCH₃Tについては、加湿カラムのバイアル 1 個当たりの無トリチウム水供給量が 0.0010-0.0015 g/minであるため、測定に必要な試料水量を確保するにはバ

イアル2個とするのが安全である。ただし、大気採取量が少なくなる夏季においては、無トリチウム水の供給量をできるだけ少なくするため、バイアルを1個とするか、多孔質フィルムの面積を減少させるなどの措置が必要と考えられる。

以上のようなことから設定した採取条件を表5に示す。HTOについては、冬季以外は試料水を50 mL以上確保することが可能であるため、100 mLの測定バイアルを使用し供試量を50 mLとすることにより、検出下限値を水分中濃度として0.5 Bq/L、大気中濃度として10 mBq/m³以下にすることができる。HT及びCH₃Tの場合は、測定の供試量が10 mLであり試料水の検出下限濃度は約1 Bq/Lであるため、大気採取量が最も小さくなる夏季に、加湿カラムのバイアルを1個とし流量0.6 L/minで7日間(10000 min)採取したとすると、大気中濃度の検出下限レベルは式(1)のとおり2.5 mBq/m³となる。これまでの測定結果では、青森市及び六ヶ所村における大気中HT濃度は6.2~10 mBq/m³、CH₃T濃度は1.0~3.9 mBq/m³である。HTは十分検出が可能であるため加湿カラムのバイアルは2個でもよいと考えられるが、CH₃Tはこの条件でも検出されないことがあることが予想される。CH₃Tも確実に検出するためには、今後、夏季に除湿器及びHTOカラムで捕集される試料水の量を確認しながら、採取流量を0.6 L/minより大きくすることを検討する必要がある。

$$\frac{1 \text{ (Bq/L)} \times 0.0015 \text{ (mL/min)} \times 10^3 \times 10^4 \text{ (min)}}{0.6 \text{ (L/min)} \times 10^4 \text{ (min)}} = 2.5 \times 10^{-6} \text{ (Bq/L)} = 2.5 \text{ (mBq/m}^3\text{)} \cdots (1)$$

※水の比重を1とする。(1g=1mL)

表5 現地調査における採取条件

採取期間	約7日間(約10000 min)
	0.6~1.5 L/min
大気採取流量(L/min)	(原則としてモニタリングにおける月ごとの採取流量に合わせる。 ただし、採取流量を0.6 L/min未満としない。)
HTOカラム本数	2本
HT用加湿カラムの バイアル数	2個(無トリチウム水 約30 mL:ポリ瓶+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)) ※:フィルムの面積を小さくしたものの使用も検討)
CH ₃ T用加湿カラムの バイアル数	1個(無トリチウム水 約15 mL:ポリ瓶+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)) ※:又は、多孔質フィルムの面積を小さくしたもの2個)

4. まとめと展望

加湿カラムを用いる方法により採取を行う場合の採取流量、期間、加湿カラムからの無トリチウム水供給量等について検討を行い、現地調査を実施するための採取条件をとりまとめた。この条件によりモニタリングステーションに設置するための採取装置の設計が可能となった。

今後、現地調査用の採取装置を組み立て、まずモニタリングステーション青森局で実証試験を行った後、再処理工場の操業状況を確認しながら施設周辺において調査を行う。

文 献

- 1) 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)
- 2) 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)
- 3) 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)
- 4) 佐々木久美子 : 青森県原子力センター所報 第 2 号, 51-57(2007)
- 5) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓 : 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323(2007)

環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131 調査

五十嵐飛鳥 大下内 伸 大坂直人 木村秀樹
田中義也*1 尾形哲司*1 武石 稔*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（使用済燃料を用いた総合試験）が行なわれており、クリプトン-85、トリチウム、炭素-14及びヨウ素-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(^3H)、炭素-14(^{14}C)及びヨウ素-129(^{129}I)、131 (^{131}I) について調査を行なっている。

本調査は平成19年度から開始しており、平成20年度からはヨウ素-131 (^{131}I) を追加し実施している。平成21年度からは魚類の非交換型OBTについての測定も併せて実施し、検討を開始した。平成20年度の調査結果等については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

2. 平成21年度の調査計画と今後の進め方

平成21年度の調査計画を表1に示した。平成21年度は、平成20年度に引き続き同じ試料について調査を継続するとともに、モニタリングで施設寄与と考えられる測定値の変動が認められた魚類を対象に、非交換型OBTについても調査を行った。これらの調査結果については平成22年度にとりまとめることとしている。平成22年度以降については、表1の調査計画を基本として引き続き調査を継続することとし、その調査結果を踏まえ、適宜見直しを行う。

表1 対象試料及び調査地点・核種（平成21年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種				
			^3H			^{14}C	^{129}I ・ ^{131}I
			TFWT	OBT	非交換型 OBT		
牛乳（原乳）	富ノ沢	4	○	○	—	○	—
	横浜町		○	○	—	○	—
	二又		○	○	—	○	—
	豊原		○	○	—	○	—
精米	尾駸	1	—	○	—	○	—
	千樽		—	○	—	○	—
	野辺地町		—	○	—	○	—
	二又①		—	○	—	○	—
	二又②		—	○	—	○	—
	戸鎖		—	○	—	○	—
ハクサイ	平沼	1	—	○	—	○	—
	出戸		○	○	—	○	○
キャベツ	千樽		○	○	—	○	○
ダイコン	横浜町		○	○	—	○	○
バレイショ	出戸		○	○	—	○	—
ナガイモ	尾駸		○	○	—	○	—
	東北町		○	○	—	○	—
魚類(ヒラメ)	平沼		○	○	—	○	—
海藻類(コンブ)	六ヶ所村	8	○	○	○	—	—
	前面海域	2	—	—	—	—	○

*1：日本原燃株式会社

ICP 質量分析法による環境試料中のプルトニウム同位体調査

工藤俊明

1.はじめに

本県では、平成元年度から「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画」に基づき、原子力施設から環境へ放出される放射性物質の蓄積状況を把握するため、表土、湖底土、海底土中のプルトニウムの分析測定を国（文部科学省）が定めた方法である α 線スペクトロメトリにより実施している。本測定法においては、Pu-239 と Pu-240 が放出するそれぞれの α 線のエネルギーが近接しており弁別定量できないことから、両核種の合計量（Pu-239+240）として定量している。

一方、プルトニウムの同位体組成はその起源により特徴づけられ、環境中の濃度と併せて同位体比を調べることはその起源の推定に役立つ。

前測定法とは別に国が定めているプルトニウムの迅速分析法は、ICP 質量分析法を用いることとしており、Pu-239 と Pu-240 を弁別して定量することが可能であり、その濃度及び同位体比を迅速に把握できることから緊急時環境モニタリングにおける手法として有用な手法である。

以上を踏まえ、緊急時環境モニタリングにおける再処理工場からの影響の評価に資するため、バックグラウンドレベルを把握することを目的として、モニタリングを開始した平成元年度からこれまでのモニタリング対象環境試料（表土、湖底土、海底土）について、ICP 質量分析法により Pu-239 及び Pu-240 濃度及びその同位体比を調査する。

平成19年度は測定条件の検討等を行った。平成20年度は分析測定の信頼性・精度確認のため標準物質の分析を行うとともに、モニタリング対象環境試料のうち湖底土の一部について分析を実施した。

平成21年度は引き続きモニタリング対象環境試料の分析を実施し、併せて、平成20年度に実施したモニタリング対象環境試料の一部を財団法人日本分析センターと相互比較分析（以下、クロスチェック）した結果について報告する。

なお、本調査は平成18年度までに採取したモニタリング対象試料について実施するものであり、平成19年度以降の試料については、モニタリングの一環として継続実施していくこととしている。

2. 調査方法

2.1 調査地点及び試料

調査対象試料を下表に示す。

表 1 調査対象試料一覧

種 別	採取地点	採取年度	備 考
湖底土	尾 駁 沼	平成元～18 年度	
	鷹 架 沼		
	小 川 原 湖		
海底土	放 出 口 付 近	平成元～18 年度	
	放出口北 20km 地点		
	放出口南 20km 地点		
表 土	尾 駁 平	平成元～18 年度	表層土(0～5cm)
	千 歳 町		
	横 浜 町 比較対照 (青森市)		

2.2 前処理

試料は 105℃乾燥後、2mm ふりを通過したものを対象とし、砂質である海底土を除いてモーターグラインダーで微粉碎した。

2.3 分析方法

分析法は、文部科学省放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法」¹⁾に準じて行った。試料 10 gを分取し、マッフル炉を用い 500 °Cで 4 時間加熱して有機物を分解し、Pu-242 標準溶液 (NIST 4334D) 0.03Bq及び 10M硝酸-1Mフッ化水素酸混合溶液 60 mlを加え、マイクロウェーブ分解装置によるプルトニウム浸出を 30 分間×2 回行った。浸出液中のプルトニウムを亜硝酸ナトリウムでPu⁴⁺に調整した後、陰イオン交換法によりプルトニウムを分離・精製し硝酸溶液としたものを測定試料とした。陰イオン交換樹脂は、文部科学省放射能測定法シリーズで示されるダウエックス樹脂と同等品であるBio-Rad Laboratories製AG樹脂を使用した。

2.4 測定方法

ICP 質量分析装置は、SII ナノテクノロジー製 SPQ9000 及び SPQ9400 を用いた。定量は、質量数/電荷 (以下、m/z と記載) が 239 及び 240 の強度と、242 の強度の比から Pu-239 と Pu-240 の量を定量する Pu-242 トレーサー法で行った。

3. 調査結果及び考察

3.1 クロスチェック

モニタリング対象試料の一部 (湖底土 2 試料、表土 1 試料) を用いて、財団法人日本分析センター (以下、「分析センター」という。) と相互比較分析した結果を表 2 に示す。分析センターにおける分析方法も、2.3 分析方法と同様である。結果の評価は、分析センターが「放射能分析確認調査^{*1}」において採用しているEn数^{*2}による手法により行った。表土 (横浜町 H14.7.1) でやや検討基準を外れたが、湖底土は検討基準内で一致した。検討基準を外れた表土

については、測定値に差を与える要因について検討中である。本調査においては、酸抽出時、同時に6試料処理可能なマイクロウェーブ分解装置を使用している。クロスチェック対象試料の分析時、湖底土については、同時に処理した試料は6試料であったが、表土については3試料（再分析時は1試料）であった。マイクロウェーブ分解装置は、同時処理数が少ないほど試料に与える熱が大きく、抽出効率に影響を与える可能性があると考えられるため、酸抽出時の同時処理数を変えて検討中である。なおPu-240/Pu-239 原子数比は、誤差を考慮すると県、分析センターとも同程度であった。

※1：国（文部科学省）からの受託により、各都道府県の放射能調査機関と分析センターとが相互に試料の分析を行い、放射能分析の信頼性を確認する調査。

※2：技術的な検討を開始するための統計的規準。具体的には、分析機関（県）と分析専門機関（分析センター）の分析・測定結果の差を、各々の分析・測定に係る拡張不確かさの2乗和の平方根で除した値である。この数値が1より大きくなった場合に、技術的検討を行う。

表2 クロスチェック結果

試料名	測定結果※1 (単位:Bq/kg 乾)		En数※2		参考 (²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu 原子数比)
	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	
	湖底土 (尾駸沼 H7. 10. 9)	JCAC 1.7±0.03	1.1±0.02	0.3	
	県 1.6±0.03	1.0±0.008			0.169±0.003
湖底土 (小川原湖 H8. 10. 16)	JCAC 4.1±0.02	2.3±0.03	0.9	0.9	0.156±0.001
	県 4.3±0.03	2.5±0.02			0.153±0.002
表土 (横浜町 H14. 7. 1)	JCAC 0.35±0.012	0.22±0.008	1.1	1.3	0.171±0.009
	県 0.41±0.020	0.28±0.021			0.185±0.017
表土 (横浜町 H14. 7. 1)	JCAC 0.32±0.005	0.19±0.010	0.7	0.7	0.162±0.009
※JCAC、県ともに再分析した結果	県 0.40±0.056	0.24±0.034			0.166±0.033

※1：誤差は繰返測定標準偏差を示す。また、「JCAC」は分析センターを示す。

※2：En数算出に用いた拡張不確かさは、測定時のばらつき、試料の秤量、²⁴²Pu標準溶液の調整及び添加、試料の均質性である。検討基準は1である。

3.2 モニタリング対象環境試料の測定結果

モニタリング対象環境試料のうち、これまで分析した結果を表3に示す。平成20年度は湖底土の一部、平成21年度は表土の一部について分析した。なお、表土の測定にはSII ナノテクノロジー製SPQ9000より高感度な同社製SPQ9400（超音波ネブライザー併用）を使用した。

Puの起源の推定の指標となる²⁴⁰Pu/²³⁹Pu原子数比について、図1に示す。今年度分析した表土は0.148~0.160であり、湖底土の0.154~0.178と比べ若干低めであるが、概ねフォールアウトの平均値0.176±0.014¹⁾と同程度であった。

表 3 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果

試料名 (地点)	採取 年度	放射能濃度 (Bq/kg 乾)		$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比	$^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ (Bq/kg 乾)	
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法 ^{※1}	モニタリング ^{※2} 結果
湖底土 (尾駁沼)	H4	1.37±0.02	0.85±0.05	0.171±0.011	2.21	1.80
	H5	1.46±0.04	0.95±0.05	0.180±0.010	2.41	2.10
	H6	0.78±0.06	0.49±0.06	0.174±0.026	1.26	1.10
	H7	1.63±0.03	1.01±0.01	0.171±0.003	2.64	2.10
	H8	1.77±0.02	1.14±0.03	0.177±0.005	2.92	2.40
	H9	0.73±0.01	0.51±0.01	0.194±0.004	1.24	1.30
	H10	0.85±0.03	0.58±0.04	0.187±0.014	1.43	1.10
	H11	1.81±0.08	1.19±0.10	0.179±0.017	3.00	2.20
	H12	1.27±0.03	0.81±0.02	0.175±0.006	2.08	1.70
湖底土 (鷹架沼)	H13	1.04±0.03	0.65±0.02	0.171±0.007	1.69	1.20
	H5	1.60±0.05	0.94±0.04	0.160±0.009	2.54	2.00
	H6	1.55±0.05	0.90±0.04	0.158±0.009	2.45	2.00
	H7	1.51±0.02	0.91±0.03	0.167±0.007	2.42	1.80
	H8	1.42±0.03	0.85±0.02	0.167±0.006	2.27	1.50
	H9	1.65±0.07	1.00±0.03	0.170±0.009	2.65	2.30
	H10	1.64±0.02	0.97±0.02	0.164±0.004	2.62	1.10
	H11	1.53±0.02	0.94±0.02	0.169±0.004	2.47	2.60
湖底土 (小川原湖)	H12	1.22±0.01	0.73±0.02	0.166±0.006	1.95	1.10
	H13	0.94±0.02	0.52±0.01	0.158±0.005	1.45	1.30
	H14	0.80±0.02	0.44±0.04	0.157±0.015	1.24	0.94
	H4	4.07±0.13	2.28±0.07	0.154±0.007	6.35	5.10
	H5	3.45±0.05	2.10±0.03	0.168±0.003	5.54	4.20
	H6	2.32±0.03	1.40±0.04	0.167±0.005	3.72	3.50
	H7	0.99±0.02	0.61±0.02	0.171±0.006	1.59	1.20
	H8	4.35±0.03	2.49±0.02	0.157±0.001	6.84	3.30
	H9	1.56±0.05	0.98±0.05	0.174±0.010	2.54	2.20
表土 (尾駁)	H10	0.73±0.01	0.43±0.03	0.167±0.011	1.16	2.20
	H11	0.56±0.01	0.34±0.03	0.178±0.014	0.91	0.73
	H12	1.20±0.03	0.73±0.04	0.172±0.011	1.94	1.80
	H13	0.33±0.01	0.18±0.01	0.170±0.007	0.51	0.41
表土 (横浜町)	H7	0.481±0.019	0.254±0.013	0.149±0.009	0.735	0.55
	H8	0.355±0.019	0.182±0.008	0.148±0.010	0.537	0.42
表土 (尾駁)	H9	0.373±0.012	0.201±0.012	0.154±0.010	0.574	0.65
	H10	0.154±0.002	0.081±0.008	0.160±0.016	0.235	0.23
表土 (横浜町)	H7	0.453±0.048	0.246±0.048	0.154±0.023	0.699	0.47
	H8	0.465±0.016	0.252±0.017	0.154±0.012	0.717	0.42

※1：10M 硝酸-1M フッ化水素酸の混酸で浸出し、化学分離後 ICP 質量分析法で定量。

※2：8M 硝酸で浸出し、化学分離後 α 線スペクトロメトリで定量。

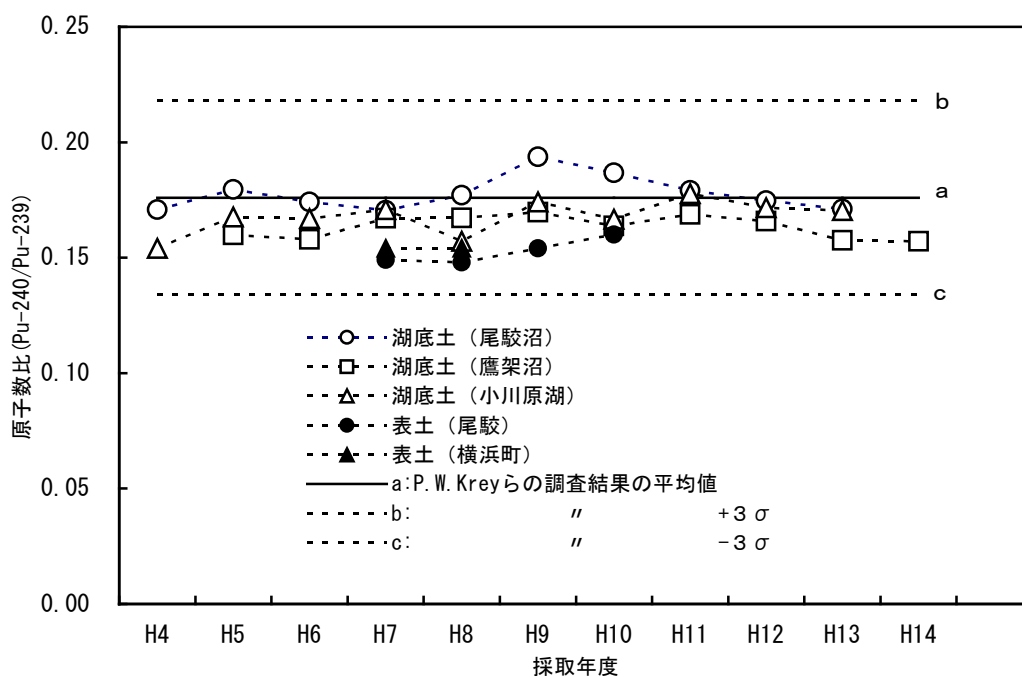


図1 環境試料における原子数比 (Pu-240/Pu-239)

文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 28 環境試料中プルトニウム迅速分析法（平成 14 年）
- 2) P.W.Krey, E.P.Hardy, C.Pachucki, F.Rourke, J.Coluzza, and W.K.Benson : Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil, Proceedings of a Symposium on Transuranium Nuclides in the Environment, IAEA-SM-199-39,671-678(1976)

表土中ヨウ素-129 分布調査

工藤俊明 五十嵐飛鳥

1. はじめに

青森県では、再処理工場から放出される核種の一つであるヨウ素-129について、環境における分布状況と蓄積状況を把握するため、原子燃料サイクル施設周辺地域の多数の地点において、表土中のヨウ素-129の測定を行っている。

平成11～12年度にかけて、比較対照（青森市）1地点を含む20地点について、中性子放射化分析を用いてバックグラウンド調査を実施した。

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）が開始されたことから、以前バックグラウンド調査を実施した地点について、中性子放射化分析に比べ高感度な加速器質量分析により表土中のヨウ素-129調査を実施した。この調査結果については、平成22年度にとりまとめを行う。

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。調査対象試料は、平成11～12年度実施のバックグラウンド調査と同じ地点から今年度採取した20試料に、分析法の違いによるデータの比較検討を行うため平成11年度に採取した4試料（尾駸、千歳平、横浜町、青森市）を加えた24試料とした。

2.2 採取方法

直径10cm×深さ5cmのステンレス製採土器を用いて、1地点につき9点採取した。

2.3 測定方法

(1) 前処理

試料は70℃乾燥後、2mmふるいを通過したものを対象とした。

(2) 測定

燃焼法によって回収したヨウ素からヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構むつ事務所が保有する加速器質量分析装置（AMS）を用いて ^{129}I と安定ヨウ素（ ^{127}I ）の原子数比を測定した。この $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比とICP質量分析法により定量した安定ヨウ素（ ^{127}I ）から試料中のヨウ素-129濃度を求めた。

表 1 調査対象試料一覧

調査地点	採取日	備考
①富ノ沢	H21.9.8	個人宅
②出戸	H21.9.8	屯所裏空き地
③老部川	H21.9.8	個人宅
④沖付	H21.9.8	松葉採取地点
⑤尾駮沼南岬	H21.9.8	旧道脇草地
⑥市柳沼北岬	H21.8.27	国道脇草地
⑦市柳沼東岬	H21.8.27	国道脇草地
⑧酪農センター	H21.9.8	敷地内草地
⑨八森	H21.9.8	集会場
⑩最終処分場	H21.9.9	処分場擁壁外側
⑪戸鎖	H21.9.9	小学校校庭隅
⑫豊原	H21.9.9	集会場
⑬弥栄平	H21.9.8	道路脇草地
⑭はまなす公園	H21.9.9	公園内
⑮吹越	H21.9.9	個人宅
⑯二又	H21.9.9	旧小学校校庭隅
⑰尾駮 ^{※1}	H11.7.8 , H21.7.16	県一般環境大気測定局舎裏
⑱千歳平 ^{※1}	H11.7.8 , H21.7.16	個人所有牧草地
⑲横浜町 ^{※1}	H11.7.8 , H21.7.16	児童公園
⑳比較対照（青森市） ^{※1}	H11.7.21 , H21.7.21	小学校跡地（H11）、青年の家跡地 内敷地（H21）

※1：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（県実施分）

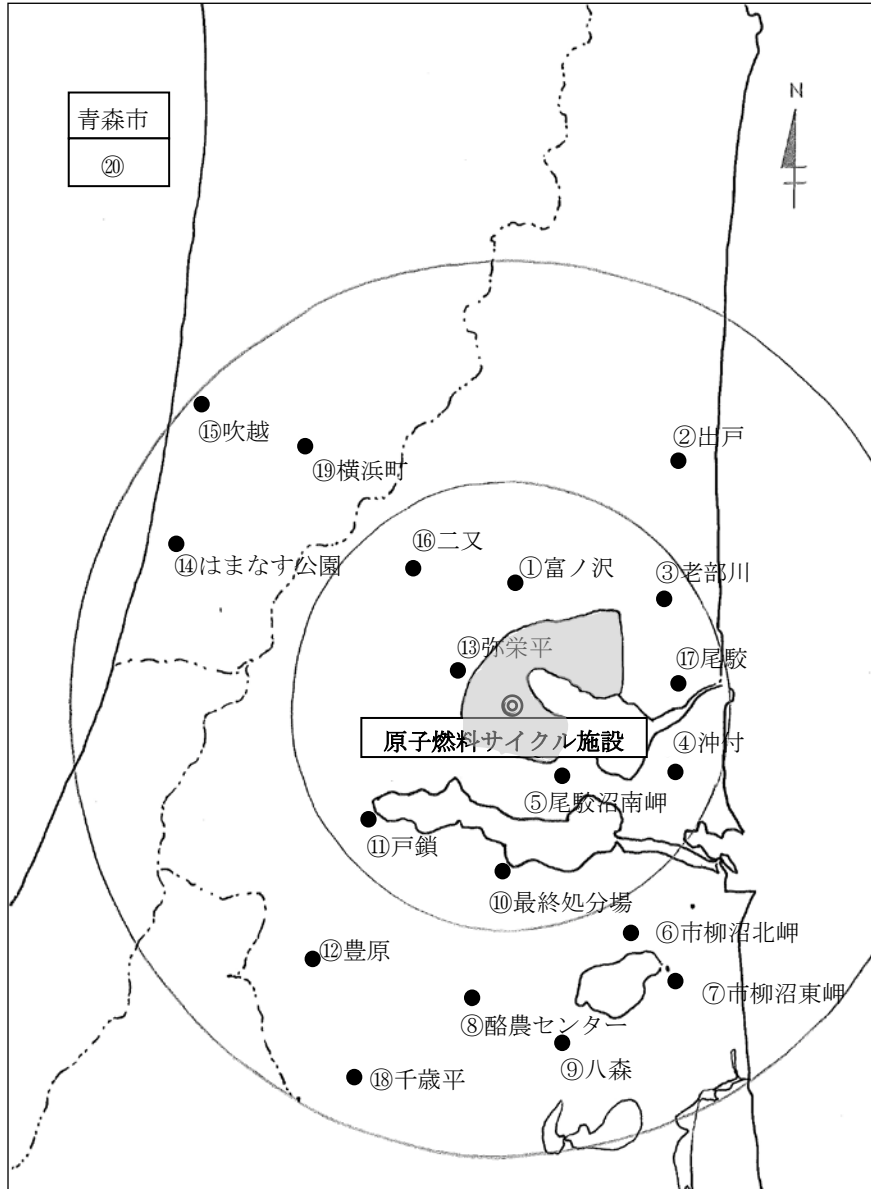


図1 表土調査地点

河底土中フッ素濃度の変動に係る原因調査

北島 茂 齊藤 陽 五十嵐飛鳥 齋藤 稔*¹

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングの一環として、ウラン濃縮工場による環境への影響を把握することを目的とし、河底土(老部川上流及び下流)中のフッ素濃度調査を行っている。本調査は平成元年度から実施しており、平成12年度までは経年変動があるもののほぼ一定の水準で推移していたが、平成13～15年度にそれ以前の変動範囲を外れる高めの調査結果となった。

フッ素化合物は地殻中に広く分布しており、土壌中にも種々の形の鉱物として含まれている。したがって、上流から流れてきた土砂の堆積状況や河川の周辺の表層土壌(以下、「表土」という。)の河川への流入状況等により、フッ素濃度は変動するものと考えられる。本調査における採取地点の近傍において、近年農地開発工事や森林の伐採が行われており、このような周辺環境の変化も考慮して、河川に流入する表土の河底土への影響を検討する必要がある。そのためには、モニタリング地点の河底土及びその起源になると考えられる周辺地域の表土等について土質等を把握し、比較検討することが重要である。

このようなことから、モニタリング地点近傍にある支流の河底土やモニタリング地点周辺の表土などを採取し、フッ素濃度の分析を行うとともに、過去に採取したモニタリング試料も対象として、蛍光X線分析による元素組成の半定量を行った。これらのデータについて濃度相関マトリックスや主成分分析を行い、モニタリング地点の河底土とモニタリング地点周辺の土壌との類似性について検討した。

調査結果等については、本所報の技術報告として取りまとめた。

*1：現青森県環境保健センター

東通原子力発電所周辺に係る空間 γ 線スペクトル測定調査

成田 俊 貝森優希*¹ 工藤俊明 安積 潔*² 斉藤 陽

1. はじめに

青森県では、平成17年12月に県内初の原子力発電所となる東北電力(株)東通原子力発電所1号機(以下「東通原子力発電所」という。)が営業運転を開始した。営業運転に先立ち、県では「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング実施計画」を策定し、平成15年4月から東通原子力発電所周辺地域において環境放射線モニタリングを実施している。

その一環として調査している積算線量(空間 γ 線)については、調査地点ごとに測定値が異なり、また、同一地点においても周辺環境の変化により測定値が変動することから、調査地点における空間 γ 線の構成成分を把握することは、モニタリング結果を評価する上で重要である。

このようなことから、平成18年度から19年度にかけて、東通原子力発電所周辺地域の21地点において可搬型Ge半導体検出器(以下、「in-situ Ge」という。)及びNaI(Tl)スペクトロメータ(以下「NaI」という)を用いた空間 γ 線スペクトル測定を実施し、各調査地点の空間 γ 線量率における核種・壊変系列ごとの寄与線量率及び土壤中の放射能濃度を求めた。また、調査地点の中から11地点を選定し、空間 γ 線の主な放出源となっている土壌を採取し、 γ 線放出核種分析を実施した。

平成20年度にin-situ Geのピーク効率の経年変化が確認されたため、平成21年度にピーク効率の経年変化に係る検討を行い、平成18年度時点での効率校正曲線を推定した。この効率校正曲線を用いて空間 γ 線スペクトルの再解析を行い、空間 γ 線量率の構成成分や測定器による違いなどについて検討を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地点

図1、表1に示すとおり、「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング実施計画」に定める積算線量調査地点(全21地点)において、in-situ Ge及びNaIにより空間 γ 線スペクトル測定を実施した。

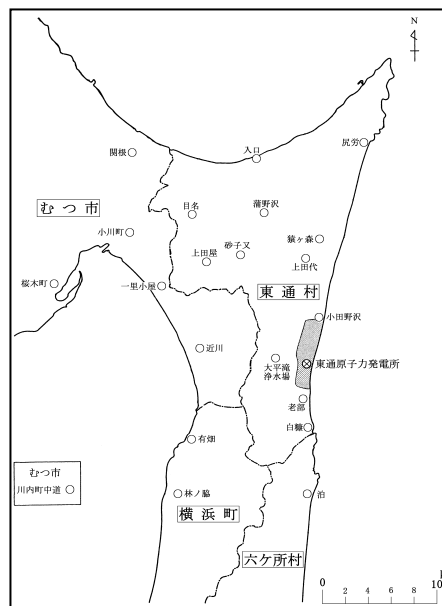


図1 調査地点

*1: 現青森県環境生活部環境政策課

*2: 現青森県環境生活部原子力安全対策課

表 1 測定状況

地名	測定年月日	地点の状況	土壌の採取
小田野沢	H18.10.5	モニタリングステーション敷地内	×
老 部	H18.9.22	モニタリングステーション敷地内	×
砂子又	H18.10.5	モニタリングステーション敷地内	×
大平滝浄水場	H18.8.31	浄水場入口脇の斜面	×
猿ヶ森	H18.11.2	草地	○
目 名	H18.10.27	草地	○
入 口	H18.10.24	グラウンド脇	○
尻 労	H18.11.17	近くに砂利がある	○
近 川	H18.8.31	モニタリングステーション敷地内	×
一里小屋	H18.10.18	周辺に壁がある	×
桜木町	H18.10.18	地面に石が多い	×
関 根	H18.10.25	草地	○
有 畑	H18.10.4	草地	○
泊	H18.11.2	モニタリングステーション敷地内	×
むつ市川内町	H18.8.31	草地、周辺に舗装された道路有り	○
小 川 町	H18.9.11	モニタリングステーション敷地内	×
林ノ脇	H18.10.4	モニタリングステーション敷地内	×
白 糠	H18.9.22	草地、周辺に石碑有り	○ (採取：H18.10.25)
上 田 代	H18.9.22	草地	○ (採取：H18.10.24)
上 田 屋	H18.11.10	草地	○
蒲野沢	H18.10.27	草地	○

2.2 装置及び測定方法

表 2 に測定に用いた装置及び測定条件の概要を示す。測定は平成 18 年 8 ～11 月の降水のない時間帯に行った。検出器は、積算線量計収納箱の近傍に、いずれも実効中心が地上 1 m の高さとなるよう下向きに設置した。

in-situ Geによる測定結果（以下、「in-situ Ge測定結果」という。）については、Beckらが開発した方法^{1),2),3)}（HASL方式）を用いて核種・壊変系列ごとに空間 γ 線量率及び土壌中の放射能濃度の算出を行った。NaIについては、レスポンスマトリクス法を用いたアンフォールディングにより空間 γ 線量率の算出を行った。HASL方式による解析は以下に示す仮定の下で行った。

- ①測定地点は周囲に建物等のない無限平面であること。
- ②土壌密度は 1.60 g/cm^3 であり、組成は、 Al_2O_3 : 13.5%、 Fe_2O_3 : 4.5%、 SiO_2 : 67.5%、 CO_2 : 4.5%、 H_2O : 10% であること。
- ③天然放射線核種は土壌中で均一分布、人工放射性核種は指数関数分布 ($\alpha = 0.33 \text{ cm}^{-1}$) であること。

また、測定対象核種は、Th 系列 (Tl-208、Ac-228)、U 系列 (Pb-214、Bi-214)、K-40、Cs-137 とした。

表 2 測定装置及び測定条件

	in-situ Ge	NaI
検出器	GC2519 (Canberra 製、相対効率 25%)	JSM-102 (Aloka 製、検出部 3cm φ × 3cm)
測定時間	80~100 分間	10 分間 (8~10 回測定)
MCA チャンネル数	4096ch	240ch

3. 調査結果

3.1 in-situ Ge のピーク効率の経年変化に係る検討

3.1.1 効率曲線の補正

平成 20 年度に調査結果をとりまとめる過程において、in-situ Ge のピーク効率に経年変化が確認された。本検出器のピーク効率は平成 18 年度には測定していなかったため、平成 14 年度及び平成 20 年度に作成した効率校正曲線を用いて平成 18 年度の効率校正曲線を推定し、空間 γ 線スペクトルの再解析を行うこととした。

平成 14 年度及び平成 20 年度に標準線源を用いて作成した効率校正曲線を図 2 に示す。標準線源を測定したエネルギー範囲においてピーク効率には経年的な低下が見られる。同軸型 P タイプ Ge 半導体検出器を常温で保管した場合のピーク効率の低下についてはメーカーからの情報があるが、その低下の速度については知見がない。このため、平成 14 年度に測定したエネルギーごとのピーク効率が平成 20 年度まで直線的に低下したものと仮定して、図 2 のとおり 18 年度時点での効率曲線の推定を行った。

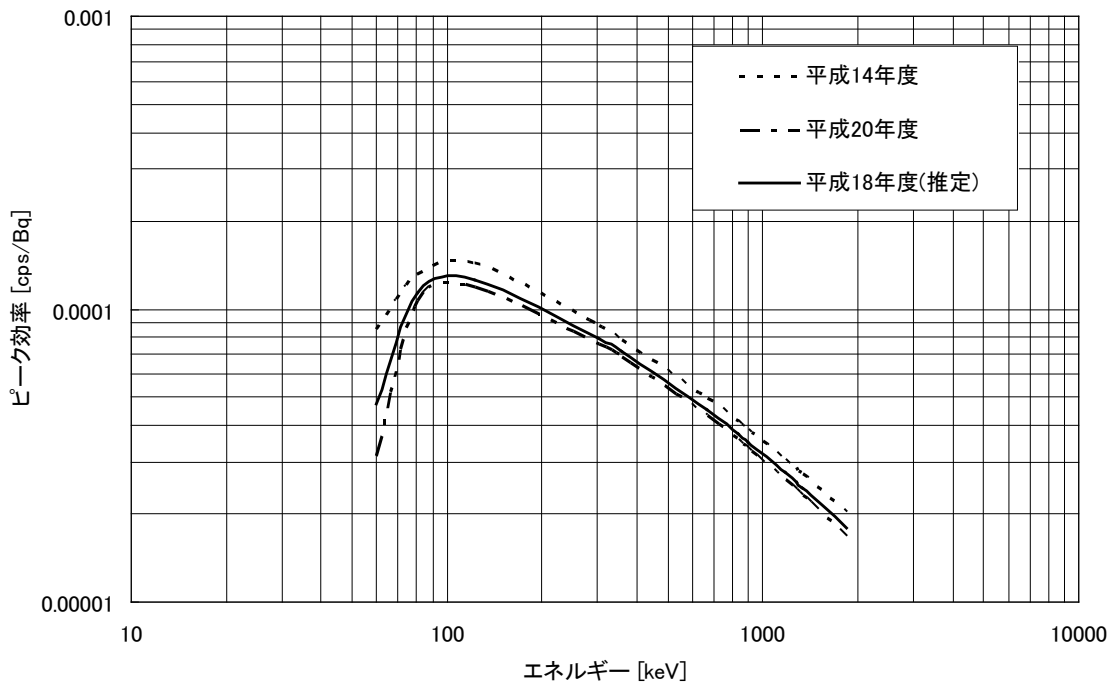


図 2 平成 14 年及び 20 年度の測定値から推定した平成 18 年度の効率校正曲線
(γ 線入射方向：検出器正面 (0°))

3.1.2 角度依存性の確認

検出器の角度依存性の経年変化の有無を確認するため、検出器のピーク計数効率の角度依存性と検出器位置における γ 線束の入射 γ 線角度依存性を考慮した補正係数である角度依存性補正項について、平成14年度及び平成20年度の値を図3に示す。

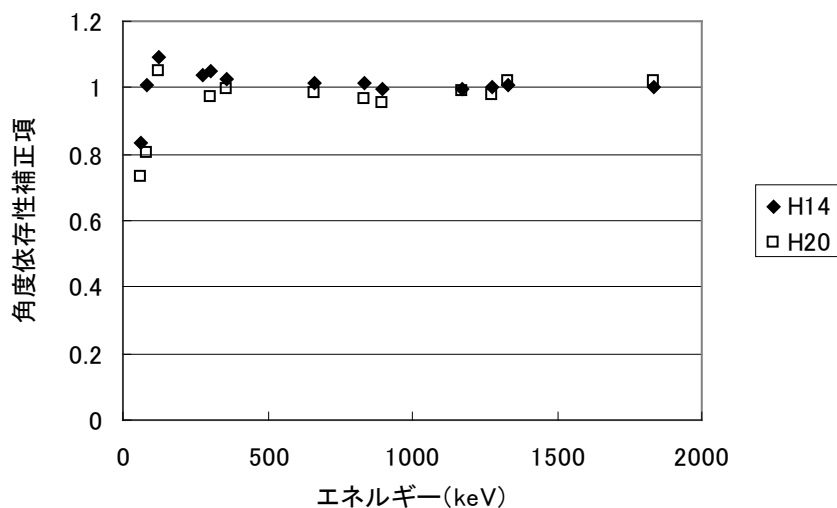


図3 平成14年度と平成20年度角度依存性の比較

平成20年度の角度依存性補正項は120 keV以下の低エネルギー側で若干低下しているものの、ほとんどの領域において平成14年度の値と一致した。低エネルギー側の領域においては本研究で対象としている放射性核種からのピークはほとんどみられなかった。このようなことから、本研究では平成14年度の角度依存性補正項の値を使用して解析を行うこととする。

3.2 空間 γ 線量率測定結果

各地点における壊変系列ごとの空間 γ 線量率について、3.1.1で推定した効率曲線を用いた再解析による in-situ Ge 測定結果、NaI による測定結果を表2、図4に示す。また、表2には RPLD による積算線量測定値(91日換算値)のうち、積雪の影響が小さい期間(平成15年～平成18年の4～12月)における平均値を1時間当たりの線量で表した値(以下、「RPLD線量率」という)を併せて記載した。

表2 各地点における壊変系列ごとの寄与線量率及び RPLD 線量率

(単位：nGy/h)

地 点 名	Th 系列		U 系列		^{40}K		^{137}Cs	総線量率		RPLD 線量率
	in-situ Ge	NaI	in-situ Ge	NaI	in-situ Ge	NaI	in-situ Ge	in-situ Ge	NaI	
小田野沢	3.2	2.7	4.1	4.8	4.6	5.3	—	12	15	39
老 部	3.1	3.3	4.7	5.7	4.1	4.9	—	12	15	40
砂 子 又	5.8	5.1	4.8	4.9	5.3	6.0	—	16	19	43
大平滝浄水場	5.1	4.7	3.6	4.1	5.7	6.6	0.11	14	17	43
猿ヶ森	9.6	10	4.5	5.6	7.8	8.0	0.18	22	27	50
目 名	5.2	5.5	4.5	5.3	4.8	5.8	0.28	15	19	44
入 口	12	11	4.0	5.0	6.4	7.4	0.25	23	26	50
尻 労	6.3	5.2	5.3	5.4	5.4	5.5	0.06	17	19	44
近 川	4.8	5.4	4.3	5.2	4.9	5.5	—	14	19	44
一里小屋	7.5	8.8	6.4	6.5	7.0	7.5	0.15	21	25	47
桜木町	6.0	6.2	4.2	4.6	5.3	5.9	0.14	16	19	43
関 根	5.3	5.0	3.0	3.5	5.7	6.5	0.24	14	18	46
有 畑	8.8	8.4	4.2	4.9	7.0	7.6	0.17	20	25	50
泊	5.4	5.2	4.0	4.7	6.7	7.4	0.16	16	19	44
むつ市川内町	7.2	7.8	3.5	4.6	5.7	7.4	0.25	17	22	46
小川町	3.4	4.4	5.8	6.4	4.6	5.8	—	14	18	39
林ノ脇	5.5	5.0	3.2	4.1	7.8	8.4	—	17	19	42
白 糠	9.3	7.1	4.7	5.0	6.0	6.2	0.20	20	20	41
上田代	6.9	7.4	4.2	4.7	6.9	7.4	—	18	23	44
上田屋	5.6	6.8	4.5	5.2	5.6	6.3	—	16	21	45
蒲野沢	4.9	4.8	4.6	5.2	4.7	5.3	0.08	14	18	43
最大	12	11	6.4	6.5	7.8	8.0	0.28	23	27	50
最小	3.1	2.7	3.0	3.5	4.1	4.9	—	12	15	39
平均	6.2	6.2	4.4	5.0	5.8	6.5	0.18	17	20	44

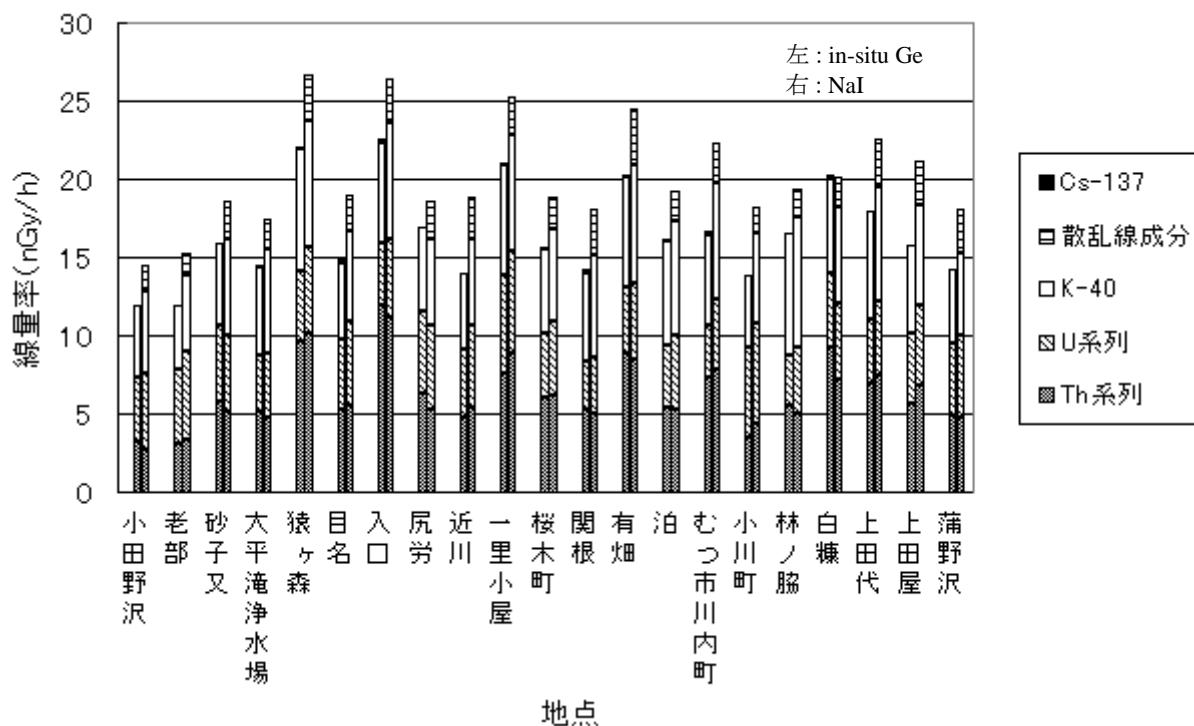


図4 各地点における空間γ線量率と構成成分

in-situ Ge 測定結果と NaI 測定結果を比較すると、壊変系列ごとの空間γ線量率は両者の間に差異はほとんど見られなかったが、総線量率では NaI の方が高い値となった。これは、in-situ Ge 測定では各壊変系列ごとの線量率の和により総線量率を求めるのに対し、NaI 測定では各壊変系列ごとの線量率の他に散乱線成分を加えて線量率を求めるためである。

in-situ Ge による空間γ線量率に対する、NaI による空間γ線量率及び RPLD 線量率の関係を図5の a-1 及び b-1 に示す。

in-situ Ge と NaI 測定結果 (a-1) の間には高い相関関係がみられている。回帰直線の傾きはほぼ1であり、y 切片 3.8 nGy/h は散乱線成分に対応している。一方、in-situ Ge 測定結果と RPLD 線量率 (b-1) についても正の相関はみられるが NaI の場合と比較して決定係数は小さい。

図5の a-1 及び b-1 において、丸で囲んだデータは他のデータと比較して in-situ Ge 測定値が高めになっている。このデータは白糠地点のものであり、測定時に in-situ Ge の近くに石碑があったことからこの影響を受けている可能性がある。白糠地点のデータを除いて同様にプロットしたのが、図5の a-2 及び b-2 である。

in-situ Ge と NaI 測定結果 (a-2) については、決定係数がより1に近くなった。回帰直線の傾きはやや大きくなったが、y 切片は 3.8 nGy/h から 2.7 nGy/h となり、表2に示しているそれぞれの総線量率の平均値の差 (3 nGy/h) に近い値となった。

in-situ Ge 測定結果と RPLD 線量率 (b-2) については、決定係数が1に近くなるとともに回帰直線の傾きも1にかなり近づいた。y 切片は宇宙線の寄与分と考えられる。

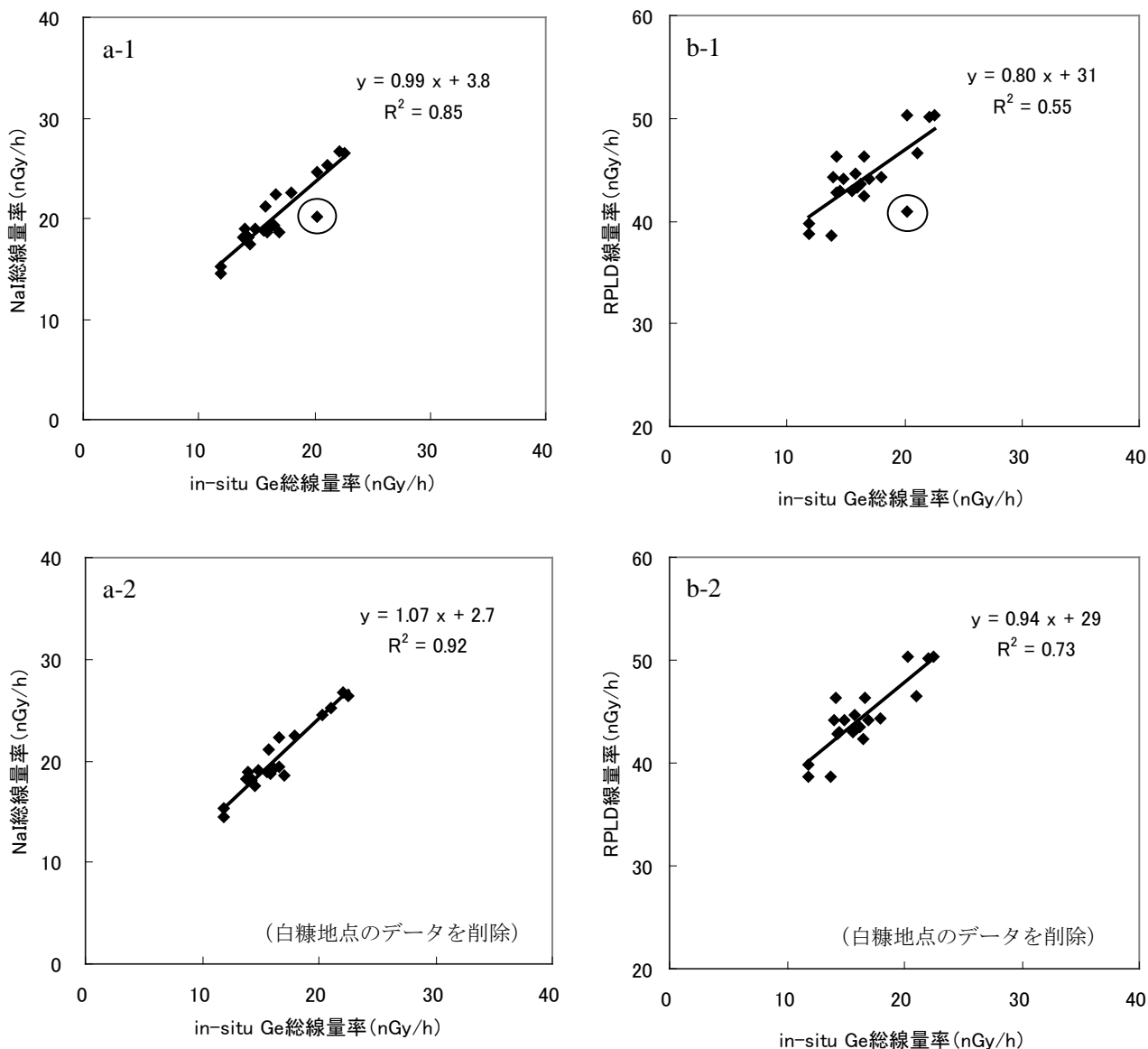


図5 空間γ線量率測定結果における in-situ Ge と NaI 及び RPLD の関係

4. まとめと展望

- 1) データをとりまとめる過程において、in-situ Ge のピーク効率に経年変化が確認されたことから、平成 14 年度及び平成 20 年度の効率曲線から平成 18 年度の効率曲線を推定した。
- 2) in-situ Ge 測定及び NaI 測定による空間γ線量率測定結果では、壊変系列ごとの線量率にほとんど差異がみられなかったが、総線量率は散乱線成分を含む NaI 測定結果の方が高くなった。
- 3) in-situ Ge 測定結果と NaI 測定結果及び RPLD 線量率の間には正の相関がみられた。回帰直線の傾きは 1 に近い値となり、y 切片は NaI 測定結果については散乱線成分に、RPLD 線量率については宇宙線寄与分に対応していると考えられる。
- 4) 土壌中のγ線放出核種分析について、ラドンの散逸を防ぐため測定試料を密封して再測定を行い、in-situ Ge 測定の結果と比較検討する予定である。

文 献

- 1) H. L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak: “*In Situ* Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-ray Spectrometry”, (1972).
- 2) 財日本分析センター編:「環境放射能分析研修 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定法解説」, 財日本分析センター(2006).
- 3) 文部科学省:放射能測定法シリーズ 33 ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法(平成 20 年).

編 集 委 員

工藤英嗣（委員長） 福井弘信（副委員長） 安田 浩
佐々木 守 木村秀樹 竹ヶ原 仁 工藤俊明
五十嵐飛鳥 武藤逸紀 西谷貴志

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 4 号 (2009)

平成 22 年 3 月 発行

編集・発行 青森県原子力センター

〒039-3215 青森県上北郡六ヶ所村大字倉内字笹崎 400 番 1 号

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

この印刷物は 210 部作成し、印刷経費は 1 部当たり 571.2 円です。

