

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 6 号

平成 23 年度

Bulletin

Of

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.6 (2011)

青森県原子力センター

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

は じ め に

青森県内の原子力施設の現在の状況は、六ヶ所村において、日本原燃(株)のウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、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・貯蔵施設が操業中、再処理工場本体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）中であり、東通村において、東北電力(株)東通原子力発電所1号機が定期検査中となっています。また、六ヶ所村に日本原燃(株)のMOX燃料加工施設（平成28年3月しゅん工予定）、東通村に東京電力(株)東通原子力発電所1号機（平成29年3月運転開始予定）、大間町に全炉心MOX燃料装荷可能な電源開発(株)の大間原子力発電所（平成26年11月運転開始予定）、むつ市に使用済燃料中間貯蔵施設であるリサイクル燃料貯蔵(株)のリサイクル燃料備蓄センター（平成25年10月事業開始予定）が建設中であります。

原子力センターでは、多様な原子力施設に係る環境放射線モニタリングを着実に実施するため、環境放射能分析に係る専門研修を受講し、関係する学会等から最新の技術的課題に関する情報を収集することで、職員のモニタリング技術と意欲の維持・向上を図ってきております。また、モニタリング結果の評価上の課題となっているものについては、調査研究事業として取り組んでいるところであり、モニタリングにおける線量評価の妥当性を確認し、必要に応じて改善に資する観点から、モニタリングを実施する上で欠かすことのできない重要な業務となっています。

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、日常の環境放射線モニタリング業務から得られた技術的知見を取りまとめたものです。ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご指摘をいただければ幸いに存じます。

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全力で業務を進めて参る所存でございますので、関係各位におかれましては、引き続きご支援いただきますようよろしくお願い申し上げます。

平成24年3月

青森県原子力センター

所 長 庄 司 博 光

目 次

I 技術報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・・・ 3
ー平成 22 年度調査結果ー
今 壽貴 竹ヶ原 仁 成田 俊 大下内 伸
幸 進 岡 光昭 武石 稔
2. ICP 質量分析法による環境試料中のプルトニウム同位体調査・・・・・・・・・・ 13
成田 俊 工藤俊明 西堀祐司
3. 環境放射線モニタリングにおける松葉中 Sr-90 濃度の変動事例について・・・・・・・・ 29
山口和貴 二瓶祐介 西堀祐司 今 壽貴
竹ヶ原 仁

II 学会等発表要旨・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 39

III 平成 23 年度調査研究事業報告

1. 環境放射能拡散シミュレーションシステム・・・・・・・・・・・・・・・・ 43
2. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査・・・・・・・・ 51
3. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 57
4. 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・・・・・・・・ 59
5. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討・・・・・・・・ 61
6. 環境放射線モニタリングにおける土試料の特性調査・・・・・・・・ 65
7. 青森県における空間放射線量率特性調査・・・・・・・・・・・・・・・・ 83

I 技 術 報 告

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 —平成 22 年度調査結果—

今 壽貴 竹ヶ原 仁 成田 俊 大下内 伸
幸 進*¹ 岡 光昭*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(⁸⁵Kr)、トリチウム(³H)、炭素-14(¹⁴C)及びヨウ素-129(¹²⁹I)などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成 18 年 2 月 7 日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成 19 年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 について調査を開始した。平成 20 年度からはヨウ素-131(¹³¹I)を追加し、平成 21 年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）を追加し実施している。

本報告は平成 22 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。

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、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを有機結合型トリチウム（OBT）濃度とした。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBTのみ測定した。

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³⁾もある。本調査においては、

*1：日本原燃株式会社

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 22 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	非交換型 OBT		
牛乳（原乳）	富ノ沢	4	○	○	—	○	—
	横浜町		○	○	—	○	—
	二又		○	○	—	○	—
	豊原		○	○	—	○	—
精米	尾駸	1	—	○	—	○	—
	千樽		—	○	—	○	—
	野辺地町		—	○	—	○	—
	二又①		—	○	—	○	—
	二又②		—	○	—	○	—
	戸鎖		—	○	—	○	—
	平沼		—	○	—	○	—
ハクサイ	出戸	1	○	○	—	○	○
	千樽		○	○	—	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	—	○	○
ダイコン	出戸		○	○	—	○	—
バレイショ	尾駸		○	○	—	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	—	○	—
	平沼		○	○	—	○	—
魚類(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）

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

※魚類の非交換型 OBT については、7 試料について行った。

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

(2) 炭素-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」⁴⁾ 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。

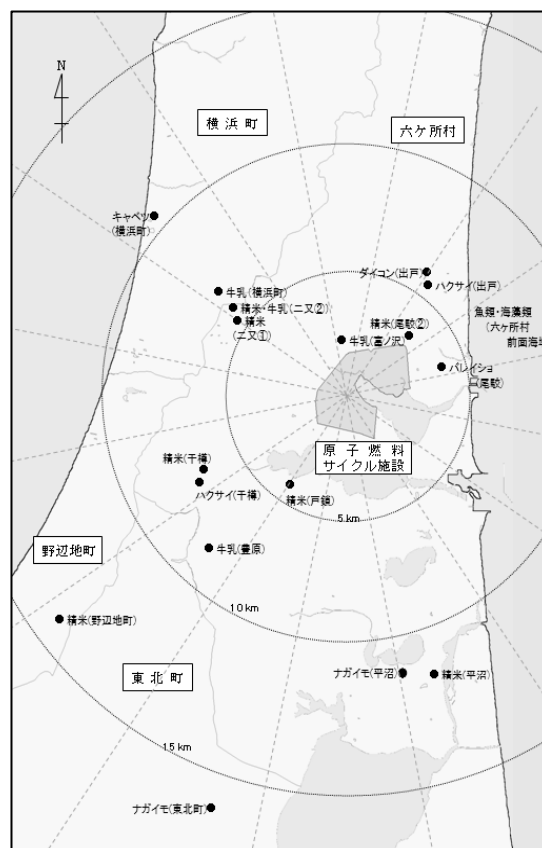


図 1 調査地点図

(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⁵⁾。

(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」⁶⁾に準拠し、生試料又は乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。

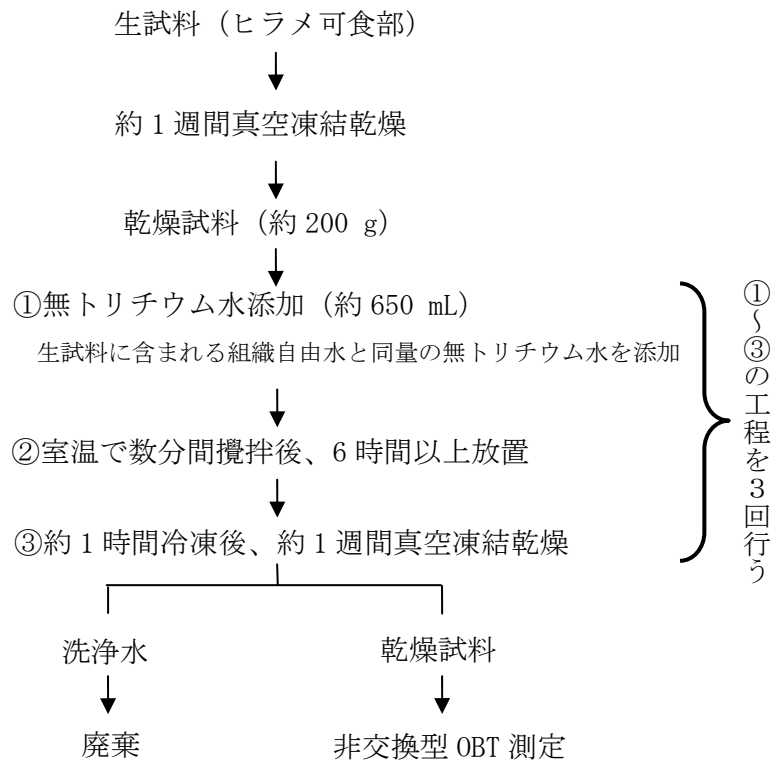


図2 非交換型 OBT の分析工程

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成 18 年 4 月から平成 23 年 3 月にかけて放出された放射性気体廃棄物（トリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131）の月間放出量を図 3 に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図 4 に示す。平成 22 年度における月ごとの放出量は、平成 21 年度と同程度であり、気体、液体のいずれも平成 19 及び 20 年度に比較して少なかった。

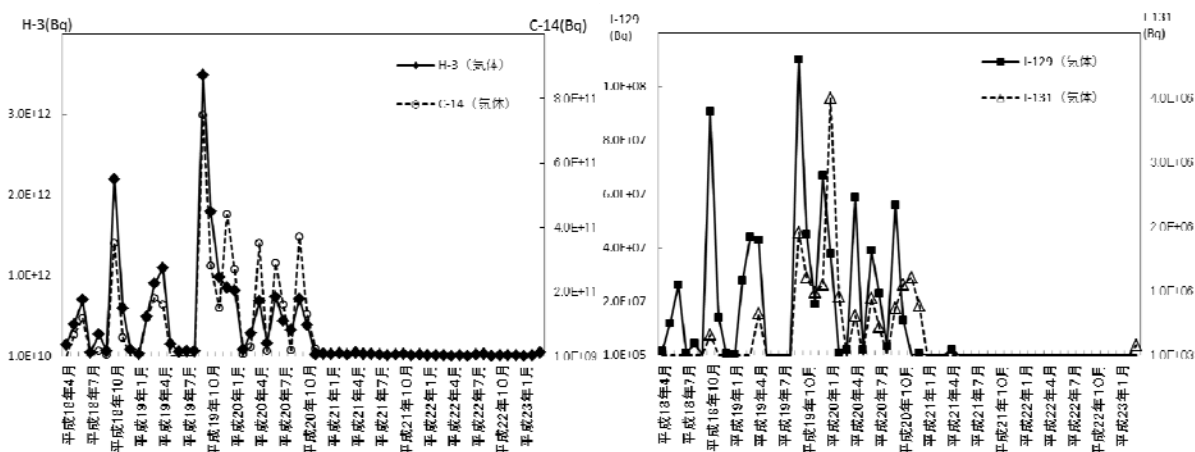


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成23年3月)

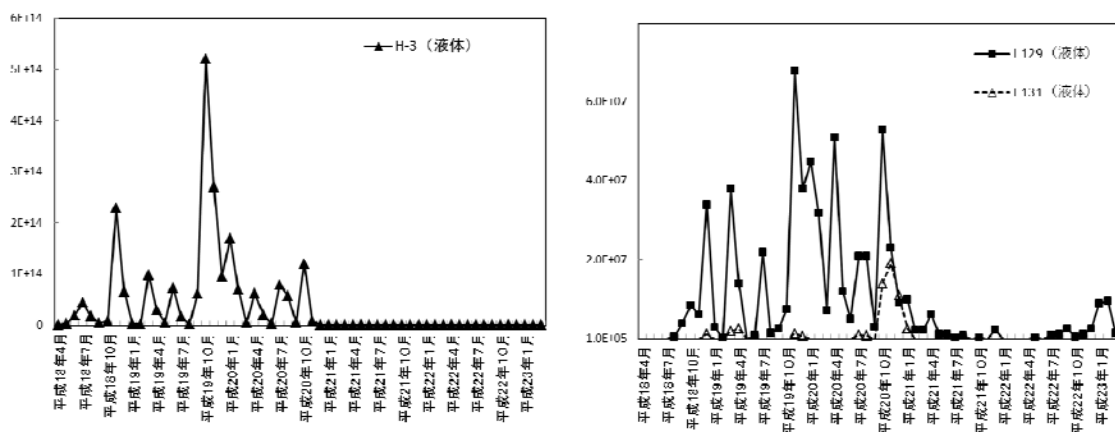


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成23年3月)

4. 結果と考察

4.1 トリチウム

環境試料中のトリチウムの測定結果を表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～0.88 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.65 Bq/Lとなり、近年の大気及び降水中トリチウム濃度と同程度であった。海洋試料である魚類については、TFWTで検出限界以下、OBTで検出限界以下～0.48 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比べ低い値であった。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1～0.2 Bq/L程度と報告されている⁷⁾。平成21年度から調査を開始した非交換型OBTについては、検出限界以下であった。

表2 環境試料中のトリチウム (TFWT、OBT 及び非交換型 OBT) 濃度 (平成 22 年度)

試料名	採取地点	平成 22 年度調査結果			(参考) 平成 19~21 年度調査結果		
		TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	
牛乳 (原乳)	富ノ沢	Q1	0.70±0.12	0.52±0.11	-	*, 0.73, 0.47	0.78, 0.43, 0.51
		Q2	*	0.44±0.11	-	*, 0.59, 1.2	*, 0.72, 0.74
		Q3	0.75±0.14	0.60±0.14	-	0.40, 0.65, 0.47	0.41, 0.43, 0.57
		Q4	0.88±0.12	0.60±0.13	-	*, 0.91, 0.42	0.40, 0.62, *
	横浜町	Q1	*	0.39±0.11	-	*	0.40, 0.62, 0.64
		Q2	*	0.65±0.14	-	*	0.54, 0.70, *
		Q3	0.50±0.13	*	-	*, 0.42, 0.45	0.38, 0.60, 0.66
		Q4	*	*	-	*	0.59, 0.49, *
	二又	Q1	*	*	-	*	*, 0.51, 0.57
		Q2	*	*	-	*, *, 0.42	0.52, 0.63, *
		Q3	*	0.44±0.14	-	*	0.54, 0.46, 0.53
		Q4	*	*	-	*	*
	豊原	Q1	0.59±0.11	0.42±0.10	-	*	*, 0.73, 0.43
		Q2	*	0.44±0.11	-	*, 0.47, *	0.52, 0.77, 0.50
		Q3	0.39±0.12	0.44±0.14	-	*, 0.73, 0.42	0.60, 0.53, 0.50
		Q4	0.47±0.12	0.47±0.11	-	*	0.51, 0.57, 0.57
精米	尾駸① ^{※1}	-	-	-		0.80	
	尾駸②	-	*	-		0.76, 0.62, 0.38	
	千樽	-	*	-		0.89, 0.47, *	
	野辺地町	-	*	-		0.59, 0.53, 0.43	
	二又① ^{※2}	-	*	-		*, 0.35	
	二又②	-	*	-		1.0, 0.64, 0.42	
	戸鎖	-	*	-		0.66, *, 0.47	
	平沼 ^{※2}	-	*	-		*, 0.44	
ハクサイ	出戸	*	*	-	0.63, 0.69, 0.58	0.80, 0.73, 0.78	
	千樽	0.41±0.11	*	-	0.55, 0.89, *	0.56, 0.45, 0.68	
キャベツ	横浜町	0.61±0.14	0.48±0.14	-	0.94, 0.66, 0.70	1.2, 0.79, 0.63	
ダイコン	出戸	0.34±0.11	0.37±0.11	-	*, 0.58, 0.46	0.66, 0.45, 0.68	
パレイショ	尾駸	0.42±0.11	*	-	0.50, 0.86, 0.83	0.84, 0.72, 0.58	
ナガイモ	東北町	0.45±0.13	0.62±0.13	-	0.67, 0.66, 0.41	0.42, 0.44, 0.46	
	平沼	0.58±0.12	0.38±0.11	-	0.89, 0.63, 0.49	0.52, 0.79, 0.49	
魚類 (ヒラメ)	六ヶ所村 前面海域	*	*~0.48	*	*~3.3	*~1.4	

・「-」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。

・(参考) 平成 19~21 年度調査結果は、左から平成 19 年度、平成 20 年度、平成 21 年度の調査結果順に示す。

※1 平成 19 年度で調査終了 ※2 平成 20 年度から調査開始

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 3 に示すとおり、牛乳が 0.232~0.245 Bq/g 炭素、精米が 0.228~0.242 Bq/g 炭素、葉菜が 0.230~0.236 Bq/g 炭素、根菜・いも類が 0.236~0.240 Bq/g 炭素であった。牛乳については、平成 22 年度の測定値は、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。環境放射線モニタリングで測定している精米、葉菜、根菜・いも類の炭素-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。アクティブ試験の影響が認められなかった平成 7 年から平成 18 年度までに県のモニタリングで得られた炭素-14 比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値 0.228 Bq/g 炭素⁸⁾を差し引き、時間に

表 3 環境試料中の炭素-14 比放射能 (Bq/g 炭素)

試料名	採取地点	H22 年度調査結果	(参考) H19~21 年度調査結果
牛乳 (原乳)	富ノ沢	Q1	0.239±0.003 0.231, 0.238, 0.237
		Q2	0.234±0.003 0.253, 0.247, 0.232
		Q3	0.232±0.002 0.249, 0.241, 0.235
		Q4	0.245±0.003 0.256, 0.237, 0.244
	横浜町	Q1	0.238±0.003 0.242, 0.236, 0.241
		Q2	0.236±0.003 0.245, 0.238, 0.240
		Q3	0.232±0.002 0.237, 0.239, 0.236
		Q4	0.232±0.003 0.238, 0.238, 0.237
	二又	Q1	0.242±0.003 0.244, 0.248, 0.238
		Q2	0.235±0.003 0.248, 0.252, 0.236
		Q3	0.236±0.003 0.256, 0.249, 0.236
		Q4	0.242±0.003 0.262, 0.235, 0.241
	豊原	Q1	0.243±0.003 0.242, 0.247, 0.236
		Q2	0.236±0.003 0.266, 0.245, 0.238
		Q3	0.232±0.003 0.253, 0.256, 0.246
		Q4	0.241±0.003 0.262, 0.233, 0.250
精米	尾駸① ^{※1}	-	0.240
	尾駸②	0.238±0.003	0.258, 0.254, 0.237
	千樽	0.234±0.003	0.248, 0.240, 0.233
	野辺地町	0.236±0.003	0.249, 0.235, 0.229
	二又① ^{※2}	0.237±0.003	0.241, 0.231,
	二又②	0.238±0.003	0.251, 0.250, 0.237
	戸鎖	0.242±0.003	0.255, 0.247, 0.237
	平沼 ^{※2}	0.228±0.002	0.239, 0.232
ハクサイ	出戸	0.230±0.002	0.245, 0.236, 0.230
	千樽	0.236±0.003	0.260, 0.243, 0.237
キャベツ	横浜町	0.234±0.002	0.267, 0.240, 0.236
ダイコン	出戸	0.236±0.003	0.238, 0.236, 0.228
パレイショ	尾駸	0.240±0.003	0.244, 0.244, 0.236
ナガイモ	東北町	0.238±0.003	0.243, 0.236, 0.239
	平沼	0.236±0.003	0.258, 0.249, 0.230

・ 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。

・ (参考) 平成 19~21 年度調査結果は、左から平成 19 年度、平成 20 年度、平成 21 年度の調査結果を順に示す。

※ 1 平成 19 年度で調査終了 ※ 2 平成 20 年度から調査開始

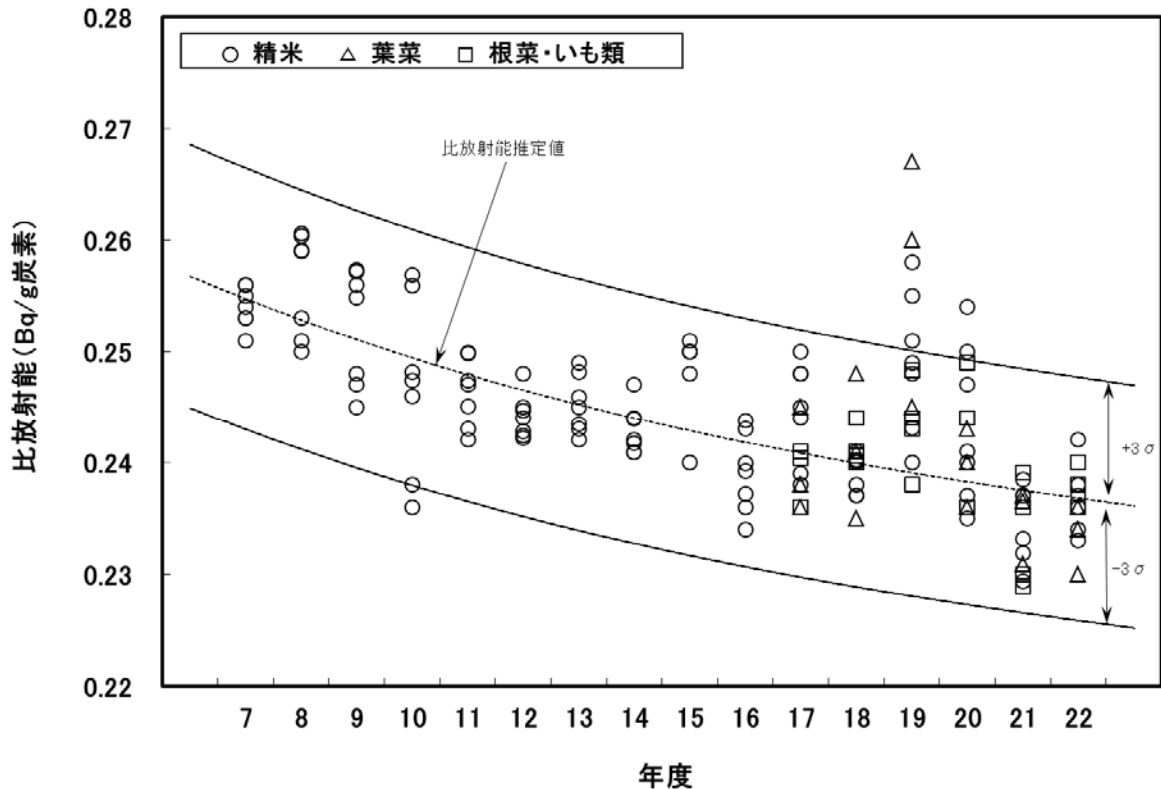


図5 炭素-14比放射能の経年変化(平成7年度～平成22年度)

炭素-14比放射能推定値及び変動幅の算出方法

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

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

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

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

λ : フォールアウト起源の炭素-14の環境における減衰定数 (1/年) $\lambda = \ln 2 / T = 0.0318$ (1/年)

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

t : 平成6年度からの経過年数 (年)

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

変動係数 : 平成7～18年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

よる減衰式を求めた。核実験起源の炭素-14の半減時間を求めると9.5年となり、これは府馬ら⁹⁾による核実験起源の炭素-14の1963年から1976年までの半減時間9.0年、1984年から2000年までの半減時間10.3年とほぼ一致した。また、平成7年度から平成18年度まで各年度ごとに測定値の変動係数を算出し、その平均値を求めた。先に得られた減衰式と変動係数から平成7年度から平成18年度までの各年度における比放射能の推定値と変動幅 (3σ) を求め、これらを用い施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推移を推定し、図5に示した。平成22年度の測定値には、平成19及び20年度のような高い値がみられず、バックグラウンドレベルと考えられる比放射能推定値と比較しても、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。

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 4 に示す。ヨウ素-129 濃度については、葉菜類で $6.2 \times 10^{-6} \sim 1.7 \times 10^{-5}$ Bq/kg 生、海藻類で 9.6×10^{-4} 及び 2.2×10^{-3} 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 $2.3 \times 10^{-7} \sim 4.9 \times 10^{-7}$ 、海藻類で 2.3×10^{-10} 及び 6.5×10^{-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るが、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに同程度であった。

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

試料名	採取地点	平成 22 年度調査結果		(参考) 平成 19~21 年度調査結果		
		ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比	ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比	
ハクサイ	出戸	$1.7 \times 10^{-5} \pm 0.1 \times 10^{-5}$	4.9×10^{-7}	$1.4 \times 10^{-6}, 9.7 \times 10^{-6}, 1.9 \times 10^{-7}$	$3.0 \times 10^{-8}, 8.7 \times 10^{-8}, 6.4 \times 10^{-9}$	
	千樽	$1.6 \times 10^{-5} \pm 0.4 \times 10^{-6}$	2.3×10^{-7}	$8.8 \times 10^{-7}, 4.2 \times 10^{-6}, 8.6 \times 10^{-7}$	$2.4 \times 10^{-8}, 1.4 \times 10^{-7}, 2.8 \times 10^{-8}$	
キャベツ	横浜町	$6.2 \times 10^{-6} \pm 0.6 \times 10^{-6}$	3.7×10^{-7}	$5.1 \times 10^{-6}, 1.2 \times 10^{-5}, 1.8 \times 10^{-6}$	$6.0 \times 10^{-7}, 6.0 \times 10^{-7}, 3.0 \times 10^{-8}$	
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	①	$9.6 \times 10^{-4} \pm 0.2 \times 10^{-4}$	2.3×10^{-10}	$2.8 \times 10^{-3}, 6.9 \times 10^{-4}, 2.5 \times 10^{-4}$	$9.1 \times 10^{-10}, 4.9 \times 10^{-10}, 8.0 \times 10^{-11}$
		②	$2.2 \times 10^{-3} \pm 0.3 \times 10^{-4}$	6.5×10^{-10}	$9.3 \times 10^{-4}, 2.1 \times 10^{-3}, 2.1 \times 10^{-4}$	$5.9 \times 10^{-10}, 4.1 \times 10^{-10}, 7.2 \times 10^{-11}$

・(参考) 平成 19~21 年度調査結果は、左から平成 19 年度、平成 20 年度、平成 21 年度の調査結果を順に示す。

5. 実効線量の試算

平成 22 年度の調査結果については、再処理工場からの寄与が認められなかったことから、実効線量の試算は省略した。

6. まとめ

平成 22 年度の調査において、トリチウムは、陸上試料については、近年の大気及び降水中トリチウム濃度と同程度であり、海洋試料である魚類については、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBT については、検出限界以下であった。炭素-14 比放射能は、牛乳については、平成 22 年度の測定値は、平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。平成 7 年度から環境モニタリングで測定している精米、葉菜、根菜・いも類については、平成 22 年度の測定値には、平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。ヨウ素-129 は、葉菜類、海藻類ともに $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比が大気圏内核実験後のバックグラウンドレベルと比較してやや高めであるが、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに同程度であった。ヨウ素-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

文 献

- 1) 青森県：環境放射線モニタリング（平成 21 年 4 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（平成 14 年）
- 3) F. Pointurier, N. Baglan, G. Alanic and R. Chiappini : Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France, *Journal of Environmental Radioactivity*, **68**, 171-189(2003)
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（平成 5 年）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法（平成 16 年）
- 6) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 4 放射性ヨウ素分析法（平成 8 年改訂）
- 7) 中野政尚、國分祐司、武石稔：東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの海水中濃度及び拡散状況、*保健物理*, **44**(1), 60~65(2009)
- 8) Y. Inoue and T. Iwakura : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiocarbon Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 9) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、檜田義彦、一政祐輔：1990年代の日本における ^{14}C の環境バックグラウンドレベル, *RADIOSOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 10) Xiaolin. Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)

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

成田 俊 工藤俊明 西堀祐司*1

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を α 線スペクトロメトリ¹⁾により実施している。この測定法においては、Pu-239とPu-240が放出するそれぞれの α 線のエネルギーがほぼ等しく、区別して定量できないことから、両核種の合計量として定量している。

プルトニウムの同位体組成はその発生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有効である。

一方、 α 線スペクトロメトリとは別の分析法であるICP質量分析法²⁾(以下、「ICP-MS」という)は、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、通常的环境モニタリングや緊急時における再処理工場からの影響の評価に資するため、プルトニウム濃度の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平成18年度までの湖底土、表土、海底土について、ICP-MSによりPu-239とPu-240濃度及びその原子数比を調査した。

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

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

2.2 前処理

試料は 105 °C 乾燥後、2 mm ふるい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²⁾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) 0.03 Bq 及び 10 M 硝酸-1 M 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（超音波ネブライザー CETAC U-5000AT 併用）及び SPQ9400 を用いた（平成 21 年度に更新）。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 測定条件の検討等

(1) 試料導入方法

装置への試料溶液の導入方法について、標準装備の同軸形ネブライザーと、超音波ネブライザー (CETAC U-5000AT+) を検討した。一般には超音波ネブライザーの方が高感度であるが、試料溶液の消費量が多くなるという欠点も併せ持つ。両者を比較するため、超純水と高純度硝酸を用いて希釈した Pu-242 標準溶液を測定し、m/z (質量数/電荷) が 239 及び 240 の強度から、Pu-239 と Pu-240 の装置検出限界濃度³⁾を算出した。

検討の結果、SPQ9000 では Pu-239、Pu-240 とともに超音波ネブライザーの方が同軸型ネブライザーより検出限界濃度が低く、SPQ9400 はその中間程度の値を示した。本調査においては、SPQ9000+超音波ネブライザーまたは SPQ9400 を用いることとした。

表 2 装置検出限界濃度

試料導入方法	²³⁹ Pu			²⁴⁰ Pu		
	強度 ^{※1}	装置検出限界濃度		強度 ^{※1}	装置検出限界濃度	
	(cps)	(Bq/ml) ^{※2}	(Bq/kg 乾) ^{※3}	(cps)	(Bq/ml) ^{※2}	(Bq/kg 乾) ^{※3}
SPQ9000 同軸形 ネブライザー	0.30±0.67	6.7×10 ⁻⁵	0.33	0.10±0.32	1.1×10 ⁻⁴	0.56
SPQ9000 超音波 ネブライザー	0.10±0.32	2.9×10 ⁻⁶	0.014	0.20±0.42	1.5×10 ⁻⁵	0.073
SPQ9400 同軸形 ネブライザー	1.3±1.3	1.2×10 ⁻⁵	0.062	1.0±1.2	4.1×10 ⁻⁵	0.203
モニタリング 試料の濃度 ^{※4}		0.026~0.48			0.017~0.31	

※1：Pu-242 標準溶液(NIST-4334D 1.2 mBq/ml)を導入し、積分時間 1 秒、繰返回数 10 回で測定した。誤差は、繰返測定標準偏差を示す。

※2：強度の平均値+標準偏差の3倍に相当する濃度。

※3：分析条件を供試量 10 g、化学回収率 50%、メスアップ容量 25 ml と仮定した場合における試料中濃度。

※4：α線スペクトロメトリで測定された原子燃料サイクル調査における県実施分の表土(尾駸、千歳平、横浜町、比較対象(青森市))中²³⁹⁺²⁴⁰Pu測定結果(平成元年~平成18年。なお、定量下限値未満のものは除く。)について、原子数比を²⁴⁰Pu/²³⁹Pu=0.176¹⁾と仮定した場合の²³⁹Pu及び²⁴⁰Puの放射能濃度範囲を示す。

(2) U-238 の影響

試料溶液中に U-238 が存在すると、その水素化物 (²³⁸UH⁺) が生成し Pu-239 のピークに影響する。本分析法には、酢酸系陰イオン交換カラムによりウランを除去する工程が含まれているが、試料溶液中に U-238 が残存した場合の影響を把握するため、ウラン標準溶液を測定し m/z 238 と m/z 239 の強度の比から、Pu-239 のピークへの寄与を確認した。

検討の結果、²³⁸UH⁺生成率はおよそ 1.2×10⁻⁴であった。m/z 238 と m/z 239 の強度比が 10³程度に達する場合は ²³⁸UH⁺の影響が無視できないと考えられるため、試料の測定にあたり必ず m/z 238 の強度をモニターすることが必要である。

表 3 $^{238}\text{UH}^+$ の影響の検討

ウラン濃度 (ppb)	強度 ^{※1} (cps)		$^{238}\text{UH}^+$ 生成率 ^{※2}
	m/z 238	m/z 239	
0.5	376731.4	45.8	1.22×10^{-4}
1.0	706433.2	82.4	1.17×10^{-4}
2.0	1474946.0	167.9	1.14×10^{-4}

※1：積分時間 1 秒、繰返回数 5 回で測定。

※2：m/z 238 の強度に対する m/z 239 の強度。

(3) 比較標準試料の分析結果

分析・測定の信頼性及び精度を確認するため、比較標準試料として NIST SRM-4350b (RiverSediment)、IAEA-135(SeaSediment)を分析して Pu-239+240 放射能濃度及び Pu-240/Pu-239 原子数比を算出し、成績書の値と比較した。なお、IAEA-135 の Pu-240/Pu-239 原子数比については IAEA より推奨値が出されていないため、文献値⁴⁾と比較した。

分析の結果、Pu-239+240 放射能濃度、Pu-240/Pu-239 原子数比ともに成績書の値、文献値と概ね一致し、分析値に影響を与える質量差別効果（元素の質量数によって元素イオンの透過効率が異なること）について、補正の必要はないと考えられる。

表 4 比較標準試料の測定結果

試料	$^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ (Bq/kg 乾)		$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (原子数比)		備考
	分析値 ^{※1}	成績書の値	分析値 ^{※1}	成績書または文献値 ^{※2}	
NIST SRM-4350b	0.504±0.019	0.508	0.109±0.007	0.105	SPQ9000 使用
	0.510±0.022		0.108±0.011		SPQ9400 使用
IAEA-135	191±7	213	0.212±0.011	0.211±0.006	SPQ9400 使用

※1：8 M 硝酸で約 5 時間浸出。誤差は繰返測定（3 回）の標準偏差を示す。

※2：8 M 硝酸で約 4~8 時間浸出。誤差は試料間（n=3）の標準偏差を示す。

3.2 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 5 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。各試料は検討基準内で一致したが、表土は En 数が 1 となったため検討することとした。

※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 5 クロスチェック結果

試料名	測定結果※ ¹		En 数※ ²		参考 (²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu 原子数比)	
	(単位: Bq/kg 乾)		²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu		
	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu				
湖底土 (尾駱沼 H7. 10. 9)	JCAC	1.7±0.03	1.1±0.02	0.3	0.4	0.176±0.004
	県	1.6±0.03	1.0±0.01			0.171±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			0.157±0.001
表土 (横浜町 H14. 7. 1)	JCAC	0.35±0.012	0.22±0.008	1.0	1.0	0.171±0.009
	県	0.41±0.021	0.28±0.029			0.215±0.017
表土 (横浜町 H14. 7. 1)	JCAC	0.32±0.005	0.19±0.010	0.7	0.5	0.162±0.009
	※JCAC、県ともに再分析した結果	県	0.40±0.059			0.24±0.044

※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。

En 数が大きくなった要因を検討するため、標準の土壌試料の酸抽出溶液を3段階に分取し、25 mL に定容して試料1~3を作成し測定した(分取量; 試料1: 1 mL、試料2: 4 mL、試料3: 10 mL)。県は同一試料につき4回、分析センターは1回測定した。測定結果を表6に示す。また、放射能濃度、Pu-240/Pu-239 原子数比結果を図1に、分取量と信号強度の関係を図2に示す。県の測定値は概ね分析センターの測定値と一致したが、低濃度の試料を測定した場合、誤差が大きく測定値がばらつく傾向があることが判明した。Pu-240/Pu-239 原子数比も同様の傾向がみられた。また、分取量と信号強度の間には直線関係が認められるが、信号強度が1桁程度の試料では誤差が大きくなった。表2に示した装置検出限界濃度(Pu-239: 0.062 Bq/kg 乾、Pu-240: 0.203 Bq/kg 乾)に対応する信号強度はPu-239及びPu-240でそれぞれ5.2及び4.6 cpsであり、信号強度が1桁程度となる低濃度の試料の測定は誤差が大きいことから測定値の信頼性は低いと考えられる。クロスチェックに用いた表土も信号強度が1桁であり、測定値の信頼性が低かったためEn数が大きくなったものと考えられる。なお、分析センターの誤差が小さいのは県が四重極型 ICP-MS を使用しているのに対し、より測定感度の高い二重収束型 ICP-MS を使用しているためである。

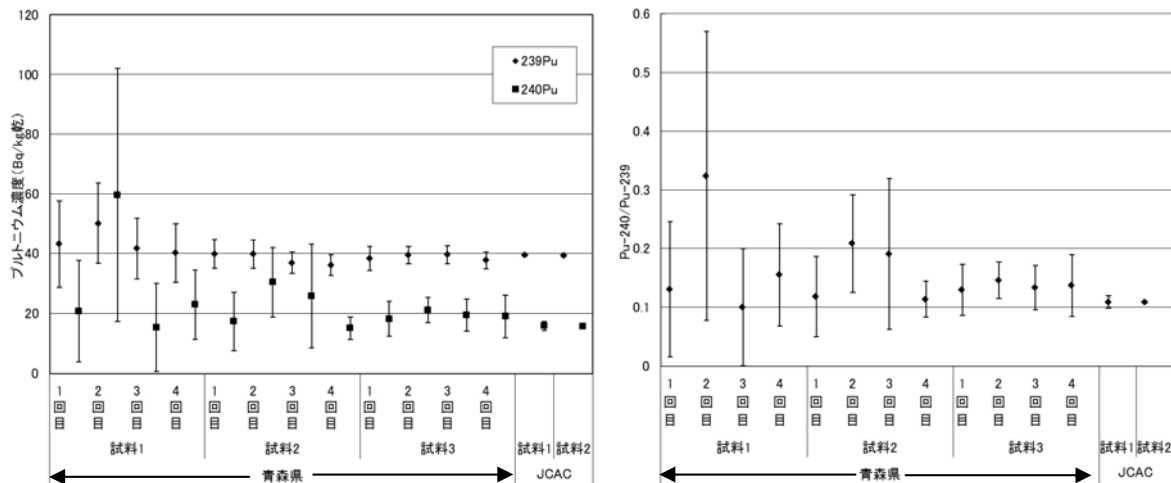


図 1 酸抽出溶液測定結果 (左: 放射能濃度 右: Pu-240/Pu-239 原子数比)

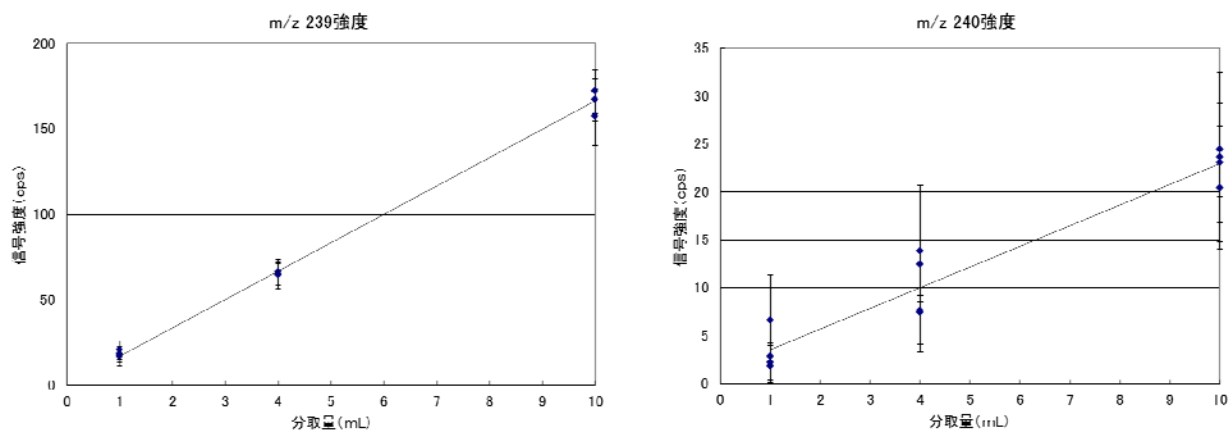


図2 m/z 239 および m/z 240 信号強度 (左 : m/z 239 右 : m/z 240)

3.3 モニタリング対象環境試料の測定結果

ICP-MS により分析したモニタリング対象環境試料の分析結果を表 7~9 に示す。また、ICP-MS による Pu-239 及び Pu-240 放射能濃度が装置検出限界濃度以上となった試料の分析結果と α 線スペクトロメトリーによるモニタリング結果との関係を図 3 に示す。ICP-MS での分析結果と α 線スペクトロメトリーによるモニタリング結果との間には強い相関が認められる。また、本法の測定値がモニタリング結果より高い傾向にあるが、これはモニタリングにおける分析ではプルトニウムの浸出に硝酸を用いているのに対し、ICP-MS では硝酸-フッ化水素酸混合溶液を用いており、より抽出効率が高いためと考えられる。なお、 α 線スペクトロメトリーによる Pu-239+240 放射能濃度が低い地点 (~ 0.4 Bq/kg 乾程度) では、ICP-MS では装置検出限界濃度を満たすことができないものがあった。

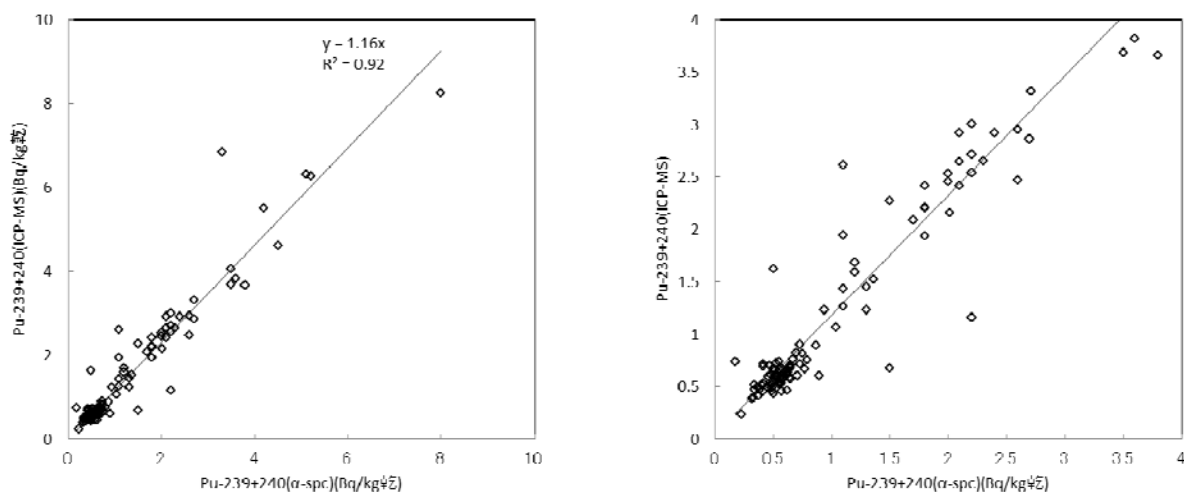


図3 ICP-MS による分析結果とモニタリング結果との関係 (左 : 全体 右 : 拡大図)

プルトニウムの起源の推定の指標となる Pu-240/Pu-239 原子数比の推移を図 4 に示す。原子数比の評価についても Pu-239 および Pu-240 放射能濃度がともに装置検出限界濃度以上であった試料について行った。

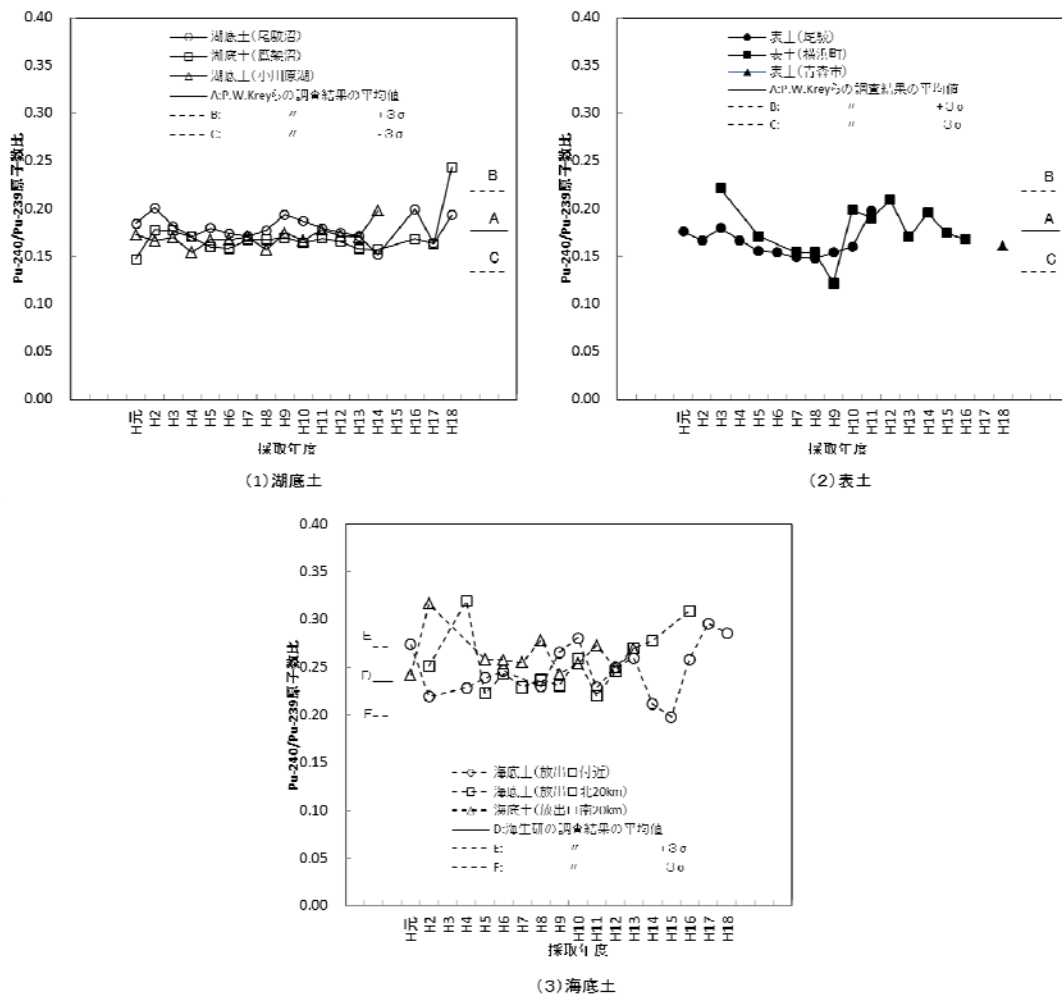


図 4 Pu-240/Pu-239 原子数比の推移

(1) 湖底土

湖底土の Pu-240/Pu-239 原子数比の範囲は 0.147~0.243、平均値は 0.173 ± 0.016 であり、P.W.Krey らが世界の土壌 60 試料を測定した結果から得たフォールアウトの平均値 0.176 ± 0.014 ⁵⁾ と同程度であった。

(2) 表土

表土の Pu-240/Pu-239 原子数比の範囲は 0.122~0.221、平均値は 0.171 ± 0.023 であり、P.W.Krey らが世界の土壌 60 試料を測定した結果から得たフォールアウトの平均値 0.176 ± 0.014 ⁵⁾ と同程度であった。

(3) 海底土

海底土の Pu-240/Pu-239 原子数比の範囲は 0.198~0.319、平均値は 0.255 ± 0.028 であり、本調査における湖底土や表土の分析結果、フォールアウトの平均値に比べ高めであった。(財)海洋生物環境研究所(以下、「海生研」という)による日本周辺の海底土の調査結果(原子数比: 0.212~0.268 平均値: 0.235 ± 0.012)⁶⁾ や、Z.Liu らによる長江河口での調査結果 0.216~0.263⁷⁾ と比べると同程度であった。

4. まとめ

モニタリングを開始した平成元年度から平成 18 年度までの湖底土、表土、海底土について、ICP-MS により Pu-239 及び Pu-240 濃度及びその同位体比を調査した。

放射能濃度については、海底土、湖底土では概ね α 線スペクトロメトリーによるモニタリング結果と一致した。表土の一部の試料は装置検出限界濃度未満となった。

Pu-240/Pu-239 原子数比については、湖底土、海底土では P.W.Krey らによるフォールアウトの平均値と、海底土では海生研及び Z.Liu らの調査結果と同程度であった。

今回の検討により、ICP-MS による分析法における定量可能な放射能レベルは Pu-239+240 放射能濃度で 0.4 Bq/kg 乾程度であり α 線スペクトロメトリーに比べ高くなるが、 α 線スペクトロメトリーと比べ分析時間が短いことや Pu-239 と Pu-240 の弁別が可能であることから、モニタリングにおける評価方法の有効な手段となると考えられる。

文 献

- 1)文部科学省：放射能測定法シリーズ 12 プルトニウム分析法（平成 2 年）
- 2)文部科学省：放射能測定法シリーズ 28 環境試料中プルトニウム迅速分析法（平成 14 年）
- 3)日本工業規格 高周波プラズマ質量分析通則 JIS K 0133（平成 12 年）
- 4)村松康行、吉田 聡：ICP-MS を用いた環境試料中の Pu、U、Th の分析, Radioisotopes, 48, 472-487
- 5) 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)
- 6)文部科学省：第 52 回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成 21 年度）, 61-62
- 7)Z.Liu, J.Zheng, S.Pan, W.Dong, M.Yamada, T.Aono, and Q.Guo : Pu and ¹³⁷Cs in the Yangtze River Estuary Sediments: Distribution and Source Identification, Environmental Science & Technology, 45, 1805-1811(2011)

表 6 酸抽出溶液測定結果

分取量 (mL)	定容 (mL)	放射能濃度 (Bq/kg 乾) *2, 3			²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	信号強度 (cps) *2		
		²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²³⁹ Pu + ²⁴⁰ Pu	原子数比	m/z 239	m/z 240	
1	25	43.3±15	20.8±17	64.1±22	0.131±0.115	16.8±5.6	2.2±1.8	
		50.2±14	59.7±42	110±45	0.324±0.246	20.4±5.5	6.6±4.7	
		41.7±10	15.3±15	57.0±18	0.100±0.099	18.0±4.4	1.8±1.7	
		40.2±9.9	23.0±12	63.2±15	0.156±0.087	18.0±4.4	2.8±1.4	
県	4	39.9±4.9	17.4±9.7	57.3±11	0.118±0.068	64.2±7.8	7.6±4.2	
		39.8±4.8	30.5±12	70.3±13	0.208±0.083	66.2±7.9	13.8±5.2	
		36.9±3.5	25.9±17	62.8±18	0.191±0.129	65.0±6.2	12.4±8.3	
		36.0±3.5	15.1±3.8	51.1±5.1	0.114±0.030	65.0±6.2	7.4±1.8	
10	25	38.3±4.0	18.2±5.7	56.5±7.0	0.130±0.043	157±17	20.4±6.4	
		39.4±2.9	21.1±4.2	60.5±5.1	0.146±0.031	167±12	24.4±4.8	
		39.6±3.0	19.5±5.3	59.1±6.1	0.134±0.038	172±13	23.0±6.2	
		37.7±2.8	19.0±7.1	56.7±7.6	0.137±0.052	172±13	23.6±8.8	
JCAC*1	1	25	39.5±0.3	15.8±1.5	55.4±1.6	0.109±0.010	47.7±0.2	5.2±0.5
	4	25	39.4±0.4	15.7±0.2	55.1±0.4	0.109±0.001	193±1.3	21.0±0.2

※1：「JCAC」は分析センターを示す。

※2：誤差は繰返測定の標準偏差を示す。

※3：濃度は回収率を100%と仮定した場合。

表 7-1 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果 (湖底土)

試料名 (地点)	採取 年度	放射能濃度 (Bq/kg 乾) ※1		$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比※1	$^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ (Bq/kg 乾)		測定装置	
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法※2	モニタリング 結果※3,4		
湖底土 (尾駁沼)	H 元	2.75±0.16	1.86±0.24	0.184±0.025	4.60	4.5	SPQ9400	
	H2	2.20±0.14	1.62±0.19	0.201±0.027	3.82	3.6	SPQ9400	
	H3	1.72±0.14	1.14±0.15	0.181±0.027	2.86	2.7	SPQ9400	
	H4	1.37±0.02	0.85±0.05	0.171±0.011	2.21	1.8	SPQ9000	
	H5	1.46±0.04	0.95±0.05	0.180±0.010	2.41	2.1	SPQ9000	
	H6	0.78±0.06	0.49±0.06	0.174±0.026	1.26	1.1	SPQ9000	
	H7	1.63±0.03	1.01±0.01	0.171±0.003	2.64	2.1	SPQ9000	
	H8	1.77±0.02	1.14±0.03	0.177±0.005	2.92	2.4	SPQ9000	
	H9	0.73±0.01	0.51±0.01	0.194±0.004	1.24	1.3	SPQ9000	
	H10	0.85±0.03	0.58±0.04	0.187±0.014	1.43	1.1	SPQ9000	
	H11	1.81±0.08	1.19±0.10	0.179±0.017	3.00	2.2	SPQ9000	
	H12	1.27±0.03	0.81±0.02	0.175±0.006	2.08	1.7	SPQ9000	
	H13	1.04±0.03	0.65±0.02	0.171±0.007	1.69	1.2	SPQ9000	
	H14	0.44±0.07	0.23±0.13	0.151±0.081	0.68	1.5	SPQ9400	
	H15	※5	-	-	-	-	-	-
	H16	1.92±0.08	1.40±0.26	0.199±0.037	3.32	2.7	SPQ9400	
	H17	0.96±0.10	0.56±0.20	0.163±0.058	1.52	1.4	SPQ9400	
	H18	1.27±0.18	0.89±0.17	0.193±0.044	2.16	2.0	SPQ9400	
湖底土 (鷹架沼)	H 元	1.43±0.10	0.77±0.18	0.147±0.036	2.20	1.8	SPQ9400	
	H2	1.65±0.10	1.07±0.06	0.178±0.013	2.71	2.2	SPQ9400	
	H3	2.23±0.19	1.44±0.22	0.177±0.030	3.67	3.8	SPQ9400	
	H4	-	-	-	-	-	-	
	H5	1.60±0.05	0.94±0.04	0.160±0.009	2.54	2.0	SPQ9000	
	H6	1.55±0.05	0.90±0.04	0.158±0.009	2.45	2.0	SPQ9000	
	H7	1.51±0.02	0.91±0.03	0.167±0.007	2.42	1.8	SPQ9000	
	H8	1.42±0.03	0.85±0.02	0.167±0.006	2.27	1.5	SPQ9000	
	H9	1.65±0.07	1.00±0.03	0.170±0.009	2.65	2.3	SPQ9000	
	H10	1.64±0.02	0.97±0.02	0.164±0.004	2.62	1.1	SPQ9000	
	H11	1.53±0.02	0.94±0.02	0.169±0.004	2.47	2.6	SPQ9000	
	H12	1.22±0.01	0.73±0.02	0.166±0.006	1.95	1.1	SPQ9000	
	H13	0.94±0.02	0.52±0.01	0.158±0.005	1.45	1.3	SPQ9000	
	H14	0.80±0.02	0.44±0.04	0.157±0.015	1.24	0.94	SPQ9000	
	H15	-	-	-	-	-	-	
	H16	0.56±0.10	0.33±0.13	0.168±0.067	0.89	0.87	SPQ9400	
	H17	0.67±0.13	0.39±0.06	0.163±0.040	1.07	1.0	SPQ9400	
	H18	0.37±0.08	0.32±0.18	0.243±0.14	0.69	0.65	SPQ9400	

※1：誤差は繰り返し測定時の標準偏差。

※2：10M 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。

※3：8M 硝酸で浸出し、化学分離後 α 線スペクトロメトリで定量。

※4：誤差は α 線スペクトロメトリにおける係数誤差。

※5：欠測を表す。

表 7-2 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果 (湖底土)

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}Pu ± ^{240}Pu (Bq/kg 乾)		測定装置
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法	モニタリング 結果	
湖底土 (小川原湖)	H 元	3.85±0.24	2.43±0.30	0.173±0.023	6.28	5.2	SPQ9400
	H2	2.52±0.21	1.53±0.29	0.166±0.034	4.05	3.5	SPQ9400
	H3	5.09±0.18	3.16±0.32	0.170±0.018	8.25	8.0	SPQ9400
	H4	4.07±0.13	2.28±0.07	0.154±0.007	6.35	5.1	SPQ9000
	H5	3.45±0.05	2.10±0.03	0.168±0.003	5.54	4.2	SPQ9000
	H6	2.32±0.03	1.40±0.04	0.167±0.005	3.72	3.5	SPQ9000
	H7	0.99±0.02	0.61±0.02	0.171±0.006	1.59	1.2	SPQ9000
	H8	4.35±0.03	2.49±0.02	0.157±0.001	6.84	3.3	SPQ9000
	H9	1.56±0.05	0.98±0.05	0.174±0.010	2.54	2.2	SPQ9000
	H10	0.73±0.01	0.43±0.03	0.167±0.011	1.16	2.2	SPQ9000
	H11	0.56±0.01	0.34±0.03	0.178±0.014	0.91	0.73	SPQ9000
	H12	1.20±0.03	0.73±0.04	0.172±0.011	1.94	1.8	SPQ9000
	H13	0.33±0.01	0.18±0.01	0.170±0.007	0.51	0.41	SPQ9000
	H14	1.71±0.17	1.23±0.21	0.198±0.038	2.95	2.6	SPQ9400
	H15	-	-	-	-	-	-
	H16	0.20±0.04	(0.18±0.06) ※6	(0.239±0.097) ※7	(0.381)	0.29	SPQ9400
	H17	0.18±0.07	(0.14±0.06)	(0.214±0.122)	(0.326)	0.23	SPQ9400
	H18	0.17±0.02	(0.03±0.05)	(0.056±0.076)	(0.199)	0.31	SPQ9400

※6：括弧は装置検出限界濃度未満のもの。

※7：括弧は ^{239}Pu もしくは ^{240}Pu 濃度が装置検出限界濃度未満のもの。

表 8-1 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果 (表土)

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}Pu ± ^{240}Pu (Bq/kg 乾)		測定装置
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法	モニタリング 結果	
表土 (尾駁)	H 元	0.459±0.060	0.296±0.086	0.176±0.048	0.755	0.79	SPQ9400
	H2	0.375±0.052	0.230±0.023	0.167±0.016	0.604	0.52	SPQ9400
	H3	0.367±0.128	0.242±0.079	0.179±0.067	0.608	0.48	SPQ9400
	H4	0.283±0.023	0.173±0.014	0.167±0.000	0.457	0.49	SPQ9400
	H5	0.427±0.065	0.244±0.063	0.156±0.044	0.671	0.57	SPQ9400
	H6	0.313±0.045	0.177±0.009	0.154±0.020	0.489	0.46	SPQ9400
	H7	0.481±0.019	0.254±0.013	0.149±0.009	0.735	0.55	SPQ9000
	H8	0.355±0.019	0.182±0.008	0.148±0.010	0.537	0.42	SPQ9000
	H9	0.373±0.012	0.201±0.012	0.154±0.010	0.574	0.65	SPQ9000
	H10	0.154±0.002	0.081±0.008	0.160±0.016	0.235	0.23	SPQ9000
	H11	0.298±0.013	0.217±0.019	0.198±0.019	0.514	0.55	SPQ9400
	H12	0.139±0.039	(0.120±0.094)	(0.235±0.194)	(0.259)	0.25	SPQ9400
	H13	0.164±0.032	(0.135±0.121)	(0.224±0.205)	(0.298)	0.23	SPQ9400
	H14	0.161±0.087	(0.114±0.137)	(0.191±0.253)	(0.275)	0.28	SPQ9400
	H15	0.148±0.018	(0.125±0.047)	(0.229±0.091)	(0.273)	0.26	SPQ9400
	H16	0.168±0.049	(0.129±0.090)	(0.210±0.158)	(0.297)	0.24	SPQ9400
	H17	0.218±0.065	(0.136±0.061)	(0.170±0.091)	(0.354)	0.27	SPQ9400
	H18	0.158±0.043	(0.143±0.078)	(0.247±0.149)	(0.301)	0.31	SPQ9400
表土 (千歳平)	H 元	0.092±0.046	(0.085±0.052)	(0.250±0.198)	(0.177)	0.13	SPQ9400
	H2	0.073±0.023	(0.097±0.045)	(0.360±0.202)	(0.170)	0.11	SPQ9400
	H3	0.083±0.069	(0.102±0.093)	(0.333±0.410)	(0.185)	0.14	SPQ9400
	H4	0.079±0.056	(0.061±0.061)	(0.209±0.255)	(0.140)	0.14	SPQ9400
	H5	0.065±0.032	(0.018±0.025)	(0.077±0.112)	(0.083)	0.14	SPQ9400
	H6	(0.052±0.022)	(0.064±0.041)	(0.333±0.256)	(0.116)	0.09	SPQ9400
	H7	(0.044±0.013)	(0.025±0.048)	(0.250±0.270)	(0.069)	0.15	SPQ9400
	H8	0.082±0.052	(0.060±0.068)	(0.250±0.256)	(0.142)	0.078	SPQ9400
	H9	(0.056±0.018)	(0.052±0.069)	(0.332±0.317)	(0.108)	0.085	SPQ9400
	H10	(0.056±0.019)	(0.093±0.074)	(0.455±0.392)	(0.149)	0.075	SPQ9400
	H11	0.069±0.028	(0.098±0.055)	(0.387±0.266)	(0.168)	0.075	SPQ9400
	H12	0.069±0.029	(0.075±0.054)	(0.296±0.246)	(0.144)	0.12	SPQ9400
	H13	0.065±0.033	(0.053±0.020)	(0.222±0.139)	(0.119)	0.098	SPQ9400
	H14	0.065±0.016	(0.058±0.053)	(0.240±0.227)	(0.123)	0.14	SPQ9400
	H15	0.082±0.028	(0.058±0.037)	(0.194±0.141)	(0.140)	0.13	SPQ9400
	H16	0.081±0.031	(0.078±0.068)	(0.262±0.250)	(0.160)	0.10	SPQ9400
	H17	0.086±0.022	(0.063±0.060)	(0.200±0.196)	(0.150)	0.11	SPQ9400
	H18	(0.052±0.035)	(0.071±0.050)	(0.370±0.362)	(0.123)	0.13	SPQ9400

表 8-2 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果 (表土)

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}Pu ± ^{240}Pu (Bq/kg 乾)		測定装置
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法	モニタリング 結果	
表土 (横浜町)	H 元	0.307±0.062	(0.171±0.134)	(0.152±0.122)	(0.479)	0.42	SPQ9400
	H2	0.259±0.054	(0.185±0.081)	(0.194±0.094)	(0.444)	0.44	SPQ9400
	H3	0.272±0.031	0.221±0.199	0.221±0.200	0.493	0.37	SPQ9400
	H4	0.270±0.074	(0.180±0.126)	(0.182±0.136)	(0.450)	0.45	SPQ9400
	H5	0.360±0.102	0.226±0.120	0.171±0.103	0.586	0.50	SPQ9400
	H6	0.334±0.055	(0.131±0.114)	(0.107±0.095)	(0.464)	0.43	SPQ9400
	H7	0.453±0.048	0.246±0.048	0.154±0.023	0.699	0.47	SPQ9400
	H8	0.465±0.016	0.252±0.017	0.154±0.012	0.717	0.42	SPQ9400
	H9	0.477±0.039	0.213±0.106	0.122±0.061	0.690	0.42	SPQ9400
	H10	0.939±0.191	0.686±0.191	0.199±0.068	1.625	0.50	SPQ9400
	H11	0.450±0.059	0.314±0.123	0.190±0.078	0.764	0.67	SPQ9400
	H12	0.303±0.065	0.233±0.128	0.209±0.123	0.535	0.56	SPQ9400
	H13	0.360±0.072	0.225±0.108	0.170±0.088	0.585	0.52	SPQ9400
	H14	0.398±0.059	0.242±0.044	0.195±0.027	0.640	0.51	SPQ9400
	H15	0.410±0.076	0.262±0.081	0.174±0.063	0.672	0.50	SPQ9400
	H16	0.371±0.042	0.229±0.179	0.168±0.132	0.599	0.46	SPQ9400
	H17	0.369±0.077	(0.181±0.057)	(0.133±0.051)	(0.550)	0.53	SPQ9400
	H18	0.115±0.043	(0.102±0.111)	(0.240±0.276)	(0.217)	0.59	SPQ9400
表土 (青森市)	H 元	(0.020±0.016)	(0)	-	(0.020)	(0.017) ^{※8}	SPQ9400
	H2	(0.032±0.041)	(0.043±0.040)	(0.375±0.594)	(0.075)	(0.0064)	SPQ9400
	H3	(0)	(0.031±0.028)	(0)	(0.038)	(0.0023)	SPQ9400
	H4	(0.008±0.007)	(0.056±0.051)	(2.000±2.582)	(0.063)	0.02	SPQ9400
	H5	(0.002±0.005)	(0.018±0.024)	(2.000±5.244)	(0.020)	(0.014)	SPQ9400
	H6	0.065±0.030	(0.085±0.042)	(0.355±0.241)	(0.150)	0.084	SPQ9400
	H7	(0.024±0.019)	(0.031±0.029)	(0.353±0.421)	(0.056)	(0.0071)	SPQ9400
	H8	0.069±0.020)	(0.038±0.038)	(0.147±0.153)	(0.107)	0.027	SPQ9400
	H9	(0.023±0.017)	(0.043±0.070)	(0.500±0.889)	(0.066)	(0.0083)	SPQ9400
	H10	(0.003±0.008)	(0.013±0.028)	(1.000±3.162)	(0.016)	(0.016)	SPQ9400
	H11	(0.040±0.021)	(0.046±0.032)	(0.312±0.273)	(0.086)	(0.012)	SPQ9400
	H12	(0.035±0.021)	(0.030±0.067)	(0.231±0.533)	(0.065)	(0.013)	SPQ9400
	H13	(0.041±0.046)	(0.068±0.038)	(0.444±0.550)	(0.109)	0.043	SPQ9400
	H14	0.136±0.074)	(0.124±0.042)	(0.247±0.159)	(0.260)	0.19	SPQ9400
	H15	0.156±0.045	(0.080±0.051)	(0.140±0.098)	(0.236)	0.18	SPQ9400
	H16	0.124±0.023	(0.114±0.058)	(0.250±0.135)	(0.238)	0.17	SPQ9400
	H17	0.138±0.044	(0.158±0.124)	(0.312±0.264)	(0.296)	0.19	SPQ9400
	H18	0.463±0.051	0.274±0.132	0.161±0.080	0.737	0.18	SPQ9400

※8：括弧は係数誤差の3倍未満のもの。

表 9-1 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果 (海底土)

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}Pu ± ^{240}Pu (Bq/kg 乾)		測定装置
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法	モニタリング 結果	
海底土 (放出口付近)	H 元	0.329±0.045	0.330±0.048	0.274±0.053	0.659	0.59	SPQ9400
	H2	0.319±0.067	0.257±0.145	0.219±0.132	0.576	0.59	SPQ9400
	H3	-	-	-	-	-	-
	H4	0.363±0.039	0.305±0.138	0.228±0.106	0.668	0.62	SPQ9400
	H5	0.302±0.035	0.266±0.031	0.239±0.028	0.568	0.57	SPQ9400
	H6	0.284±0.016	0.257±0.055	0.246±0.053	0.540	0.55	SPQ9400
	H7	(0.012±0.011)	(0.030±0.017)	(0.667±0.714)	(0.042)	0.55	SPQ9400
	H8	0.245±0.043	0.207±0.026	0.230±0.040	0.453	0.57	SPQ9400
	H9	0.217±0.020	0.212±0.028	0.265±0.043	0.429	0.50	SPQ9400
	H10	0.264±0.022	0.273±0.034	0.281±0.034	0.537	0.56	SPQ9400
	H11	0.333±0.032	0.280±0.030	0.229±0.027	0.613	0.62	SPQ9400
	H12	0.239±0.023	0.220±0.028	0.250±0.032	0.459	0.62	SPQ9400
	H13	0.333±0.019	0.318±0.032	0.260±0.023	0.651	0.61	SPQ9400
	H14	0.339±0.037	0.264±0.045	0.212±0.038	0.603	0.57	SPQ9400
	H15	0.351±0.044	0.256±0.109	0.198±0.088	0.607	0.71	SPQ9400
	H16	0.300±0.044	0.285±0.035	0.258±0.049	0.585	0.59	SPQ9400
	H17	0.265±0.035	0.288±0.074	0.296±0.085	0.553	0.49	SPQ9400
	H18	0.320±0.042	0.336±0.095	0.286±0.088	0.656	0.56	SPQ9400
海底土 (放出口 北 20km 地点)	H 元	0.093±0.022	(0.156±0.055)	(0.457±0.194)	(0.249)	0.17	SPQ9400
	H2	0.422±0.046	0.390±0.132	0.251±0.089	0.812	0.75	SPQ9400
	H3	-	-	-	-	-	-
	H4	0.216±0.066	0.254±0.077	0.319±0.137	0.470	0.34	SPQ9400
	H5	0.295±0.050	0.241±0.049	0.222±0.049	0.536	0.57	SPQ9400
	H6	0.313±0.053	0.279±0.064	0.243±0.059	0.591	0.64	SPQ9400
	H7	0.248±0.031	0.208±0.035	0.229±0.044	0.456	0.42	SPQ9400
	H8	0.276±0.031	0.241±0.063	0.237±0.062	0.517	0.48	SPQ9400
	H9	0.381±0.039	0.323±0.018	0.231±0.020	0.704	0.65	SPQ9400
	H10	0.310±0.049	0.295±0.082	0.259±0.069	0.605	0.54	SPQ9400
	H11	0.345±0.085	0.279±0.063	0.220±0.053	0.624	0.59	SPQ9400
	H12	0.356±0.033	0.321±0.047	0.246±0.033	0.678	0.65	SPQ9400
	H13	0.362±0.037	0.359±0.070	0.270±0.048	0.722	0.52	SPQ9400
	H14	0.407±0.067	0.415±0.079	0.278±0.063	0.822	0.70	SPQ9400
	H15	0.180±0.070	(0.183±0.056)	(0.276±0.138)	(0.362)	0.33	SPQ9400
	H16	0.192±0.046	0.217±0.043	0.309±0.096	0.409	0.38	SPQ9400
	H17	0.149±0.011	(0.154±0.038)	(0.281±0.072)	(0.304)	0.35	SPQ9400
	H18	0.180±0.061	(0.152±0.047)	(0.231±0.106)	(0.332)	0.32	SPQ9400

表 9-2 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 調査結果 (海底土)

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}Pu ± ^{240}Pu (Bq/kg 乾)		測定装置
		^{239}Pu	^{240}Pu		本法	モニタリング 結果	
海底土 (放出口 南 20km 地点)	H 元	0.321±0.029	0.286±0.096	0.242±0.084	0.607	0.90	SPQ9400
	H2	0.310±0.052	0.360±0.120	0.317±0.118	0.670	0.77	SPQ9400
	H3	-	-	-	-	-	-
	H4	0.092±0.031	(0.051±0.024)	(0.153±0.087)	(0.143)	0.14	SPQ9400
	H5	0.083±0.007	(0.079±0.018)	(0.258±0.058)	(0.162)	0.18	SPQ9400
	H6	0.202±0.010	0.191±0.020	0.258±0.029	0.394	0.33	SPQ9400
	H7	0.198±0.020	0.185±0.025	0.255±0.043	0.383	0.32	SPQ9400
	H8	0.257±0.008	0.263±0.027	0.279±0.029	0.519	0.34	SPQ9400
	H9	0.251±0.013	0.224±0.023	0.243±0.028	0.474	0.39	SPQ9400
	H10	0.371±0.036	0.346±0.039	0.253±0.029	0.717	0.73	SPQ9400
	H11	0.249±0.014	0.249±0.010	0.273±0.011	0.498	0.45	SPQ9400
	H12	0.332±0.015	0.305±0.006	0.250±0.010	0.637	0.63	SPQ9400
	H13	0.242±0.012	0.240±0.025	0.270±0.030	0.483	0.49	SPQ9400
	H14	-	-	-	-	-	-
	H15	0.119±0.026	(0.088±0.042)	(0.203±0.106)	(0.207)	0.20	SPQ9400
	H16	0.109±0.029	(0.127±0.080)	(0.317±0.216)	(0.236)	0.20	SPQ9400
	H17	0.101±0.041	(0.085±0.064)	(0.229±0.195)	(0.186)	0.15	SPQ9400
	H18	0.160±0.063	(0.149±0.068)	(0.253±0.153)	(0.309)	0.32	SPQ9400

環境放射線モニタリングにおける松葉中 Sr-90 濃度の変動事例について

山口和貴 二瓶祐介 西堀祐司 今 壽貴 竹ヶ原 仁

1. はじめに

青森県では、東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリングの一環として、松葉中のストロンチウム-90(以下、Sr-90)濃度を測定している。

むつ市川内町における松葉中の Sr-90 濃度の推移(図 1)は、調査を開始した平成 15 年度から緩やかな減少傾向で推移していたが、平成 20 年度第 3 四半期の測定値は 1.4 Bq/kg 生となり、平成 15 年度～平成 19 年度の測定値の範囲である 0.35～1.1 Bq/kg 生を上回った。

本調査地点では松葉を採取する範囲が広く、その範囲内であっても場所により Sr-90 濃度に違いがあることが考えられたため、これまでの測定値の推移とサンプリング状況から Sr-90 濃度に違いがあると推定される採取場所 2 箇所を松葉及び松周辺の表土を採取し、Sr-90 濃度と安定ストロンチウム(以下、安定 Sr)濃度、安定カルシウム(以下、安定 Ca)濃度を測定し比較検討を行ったので報告する。

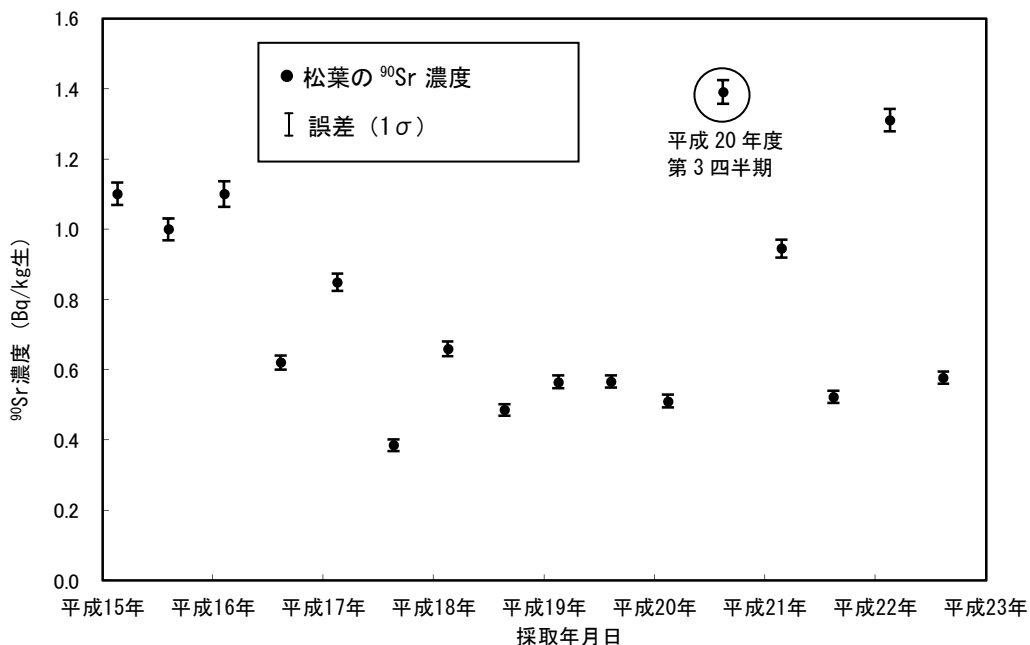


図1 松葉(むつ市川内町)中の Sr-90 濃度の推移

2. 調査方法

2.1 松葉

2.1.1 試料採取場所

むつ市川内町の調査地点における松葉の採取地点を図 2 に示す。採取場所による Sr-90 濃度の違いを把握するため、平成 22 年 5 月に、国道 338 号線沿いの斜面側の松葉と国道 338 号線から山側に入った奥側の松葉を分けて採取した。

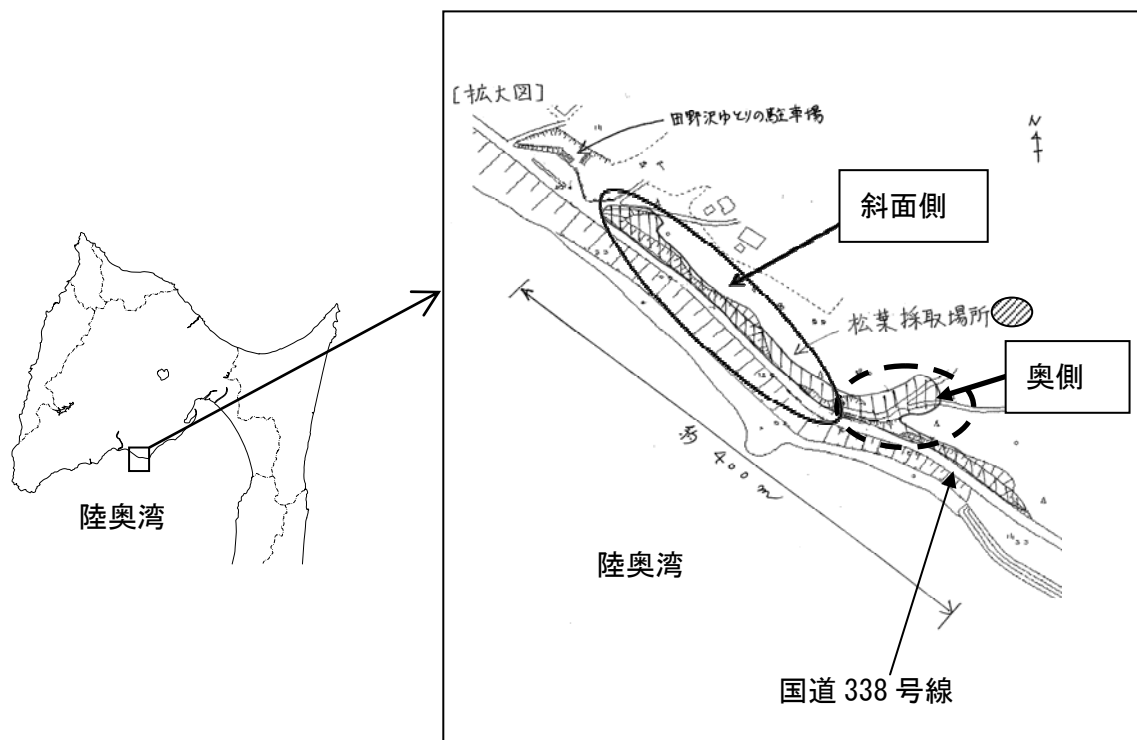


図 2 むつ市川内町における松葉の調査地点

2.1.2 採取方法

松葉の2年生葉を約5kg採取した。採取後に枯れた葉は取り除いた。

2.1.3 前処理方法

採取した松葉は、105℃で乾燥した後、450℃で24時間灰化し、0.35mmのふるいを通した。

2.1.4 分析方法

分析操作は文部科学省 放射能測定法シリーズ2 放射性ストロンチウム分析法(平成15年)¹⁾に準拠して行った。

安定Sr及び安定Caの測定は、ICP発光分光分析装置を用いて行った。

Sr-90濃度の測定は、Y-90をミルキングし、低バックグラウンドβ線測定装置を用いて行った。

2.2 表土

表土の分析は、土壌粒子に吸着するすべてのカルシウム及びストロンチウムを抽出する表土全量抽出と、植物に移行しやすい状態のカルシウム及びストロンチウムを抽出する可給態部分抽出の二つの方法で行った。

2.2.1 試料採取場所

松葉を採取した斜面側と奥側の表土をそれぞれ約2kg採取した。

2.2.2 採取方法

ステンレス製採土器(直径10cm)により深さ5cmの表土を6ポイントで採取した。

2.2.3 前処理方法

表土は、105℃で乾燥した後、2 mm のふるいを通し、表土全量抽出する試料は微粉碎を行い、可給態部分抽出する試料はそのままとした。表土全量抽出では、土壌粒子に吸着するすべてのストロンチウム及びカルシウムを抽出するため、微粉碎を行い、可給態部分抽出では、植物にストロンチウム及びカルシウムが移行する状態に近い形態(可給態)で抽出するため微粉碎を行わなかった。

2.2.4 分析方法

表土全量抽出の分析は、文部科学省 放射能測定法シリーズ 2 放射性ストロンチウム分析法(平成 15 年)に準拠して行った。

可給態部分抽出の分析操作は、前処理後の表土 100 g に 1 M 酢酸アンモニウム 1 L を加え、3 時間攪拌して抽出し²⁾、その後の操作は文部科学省 放射能測定法シリーズ 2 放射性ストロンチウム分析法(平成 15 年)に準拠して行った。

安定 Sr 及び安定 Ca の測定は、ICP 発光分光分析装置を用いて行った。

Sr-90 濃度の測定は、Y-90 をミルキングし、低バックグラウンドβ線測定装置を用いて行った。

3. 調査結果

3.1 松葉の調査結果

調査地点を斜面側と奥側の 2 つに分けて松葉を採取し、Sr-90 及び安定 Sr、安定 Ca について分析した。測定結果を表 1 及び図 3、図 4、図 5 に示す。

Sr-90 濃度は、斜面側が奥側より高く、約 2.3 倍であった。

安定 Sr 濃度は、斜面側が奥側より高く、約 1.6 倍であった。

安定 Ca 濃度は、斜面側と奥側で大きな差は認められなかった。

表 1 松葉の測定結果

採取場所	Sr-90		安定 Sr	安定 Ca
	(Bq/kg 生)		(mg/kg 生)	(g/kg 生)
斜面側	1.9	± 0.04	20	1.3
奥側	0.82	± 0.02	13	1.4

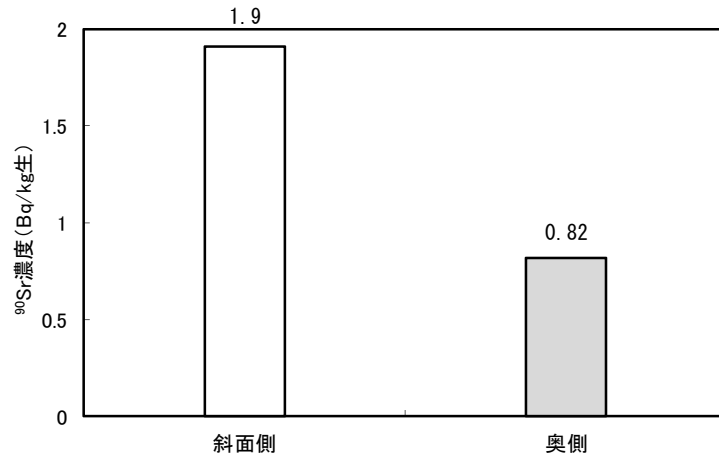


図3 松葉中の Sr-90 濃度

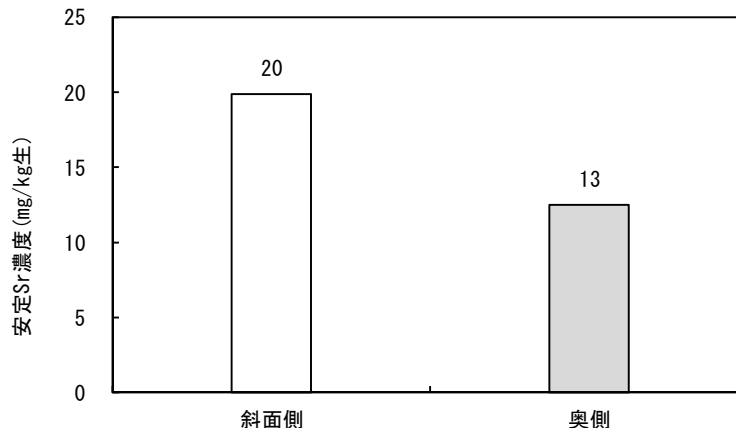


図4 松葉中の安定 Sr 濃度

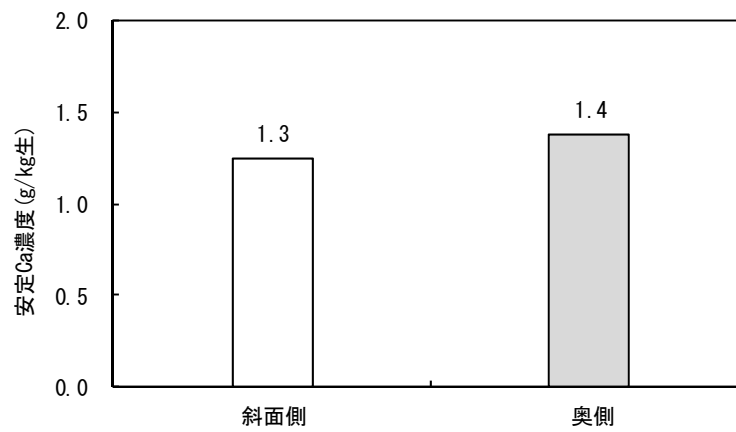


図5 松葉中の安定 Ca 濃度

3.2 表土の調査結果

調査地点の斜面側と奥側の表土を採取し、表土全量抽出と可給態部分抽出の二つの方法で Sr-90、安定 Sr、安定 Ca について分析した。測定結果を表 2 及び図 6、図 7、図 8 に示す。

Sr-90 濃度は、いずれの抽出方法においても斜面側と奥側の表土で大きな差は認められなかった。

安定 Sr 濃度は、表土全量抽出した試料は斜面側と奥側で大きな差は認められなかったが、可給態部分抽出した試料は斜面側が奥側より低く、約 0.6 倍であった。

安定 Ca 濃度は、どちらの抽出方法においても斜面側が奥側より低かった。

表 2 表土の測定結果

試料		Sr-90		安定 Sr	安定 Ca
		Bq/kg 乾土		mg/kg 乾土	g/kg 乾土
表土全量抽出	斜面側	0.82	± 0.11	24	0.88
	奥側	0.78	± 0.08	25	2.2
可給態部分抽出	斜面側	0.40	± 0.06	5.3	0.057
	奥側	0.54	± 0.09	8.7	0.62

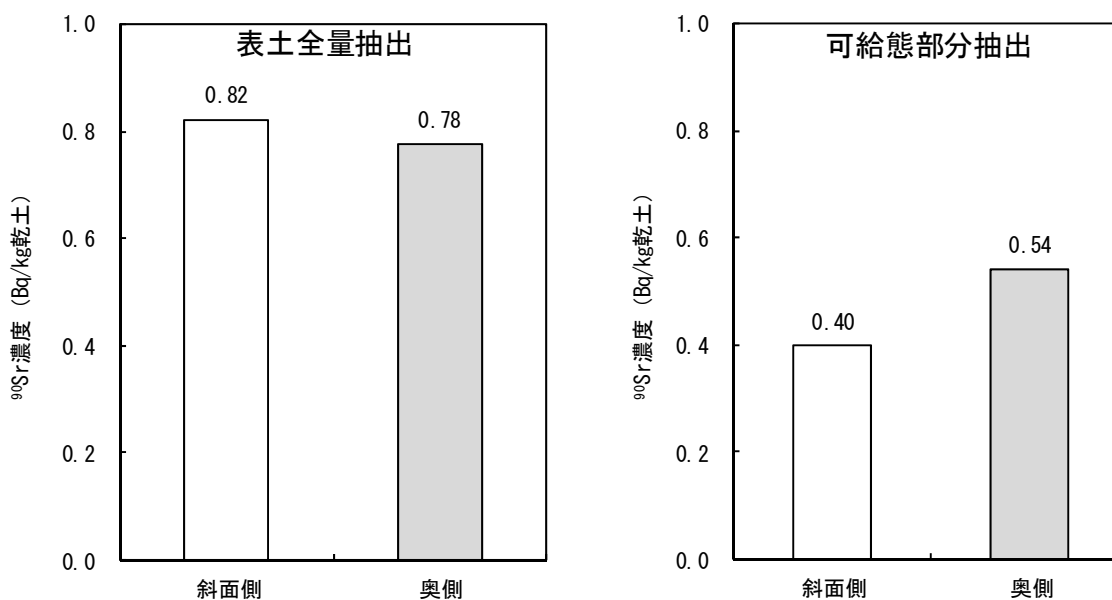


図 6 表土中の Sr-90 濃度

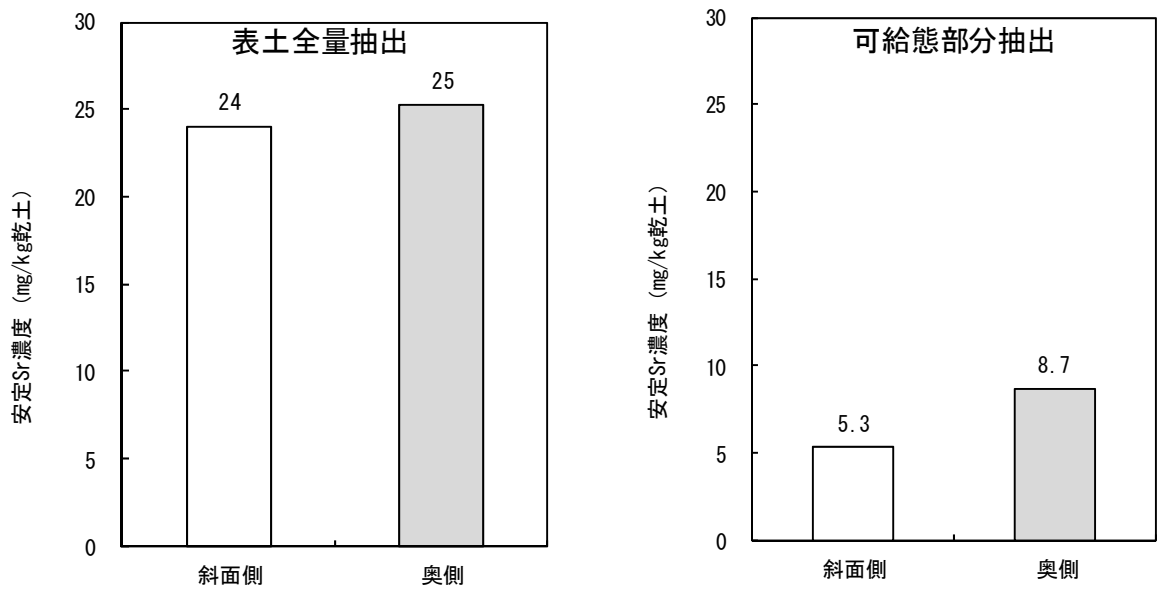


図 7 表土中の安定 Sr 濃度

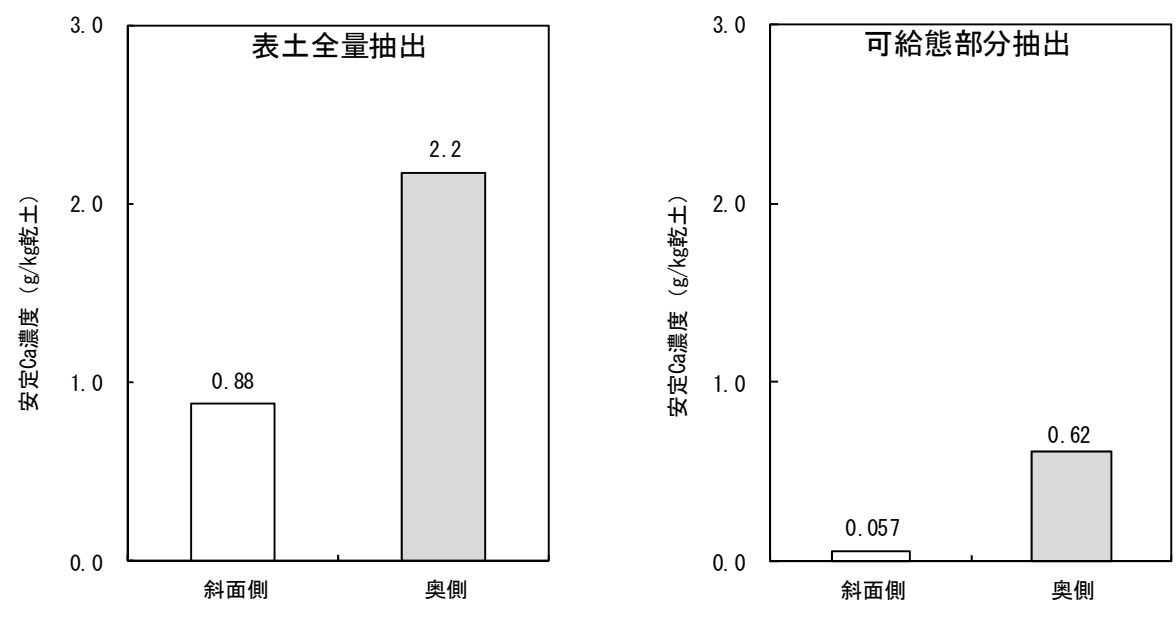


図 8 表土中の安定 Ca 濃度

4. 考察

松葉の調査結果から、斜面側の松葉は奥側の松葉と比較して Sr-90 濃度が高く、採取時に斜面側の松葉の混合割合が多いと、Sr-90 濃度の測定値が高くなると考えられる。平成 20 年度第 3 四半期の測定値が平常の変動幅を上回ったのは、このことによるものと推測される。今後、測定値のばらつきを小さくするため、分析試料の確保が容易であり、長期間継続して採取することが可能である奥側の松葉を調査することとする。

可給態部分抽出した表土の安定 Ca に対する Sr-90 の濃度比を図 9 に示す。斜面側が奥側より高く、約 8.1 倍の値となった。このことから、斜面側の松葉の Sr-90 濃度が高くなった要因としては、表土中の可給態の安定 Ca に対する Sr-90 の割合が高いため、松葉により多くの Sr-90 が移行することが考えられる。

可給態部分抽出した表土の Sr-90 と安定 Ca の濃度比は、移行する植物の Sr-90 濃度に比例するという報告²⁾があるが、今回の調査では、斜面側が奥側に比べて、表土中の可給態の安定 Ca に対する Sr-90 の濃度比は約 8.1 倍、松葉の Sr-90 濃度は約 2.3 倍となり(図 3)、比例関係が得られなかった。原因としては、本調査では地表付近(5cm)の表土のみを採取したが、松の根は地表深くにまで張っているため、深い部分の土の影響が評価できなかったことが考えられる。

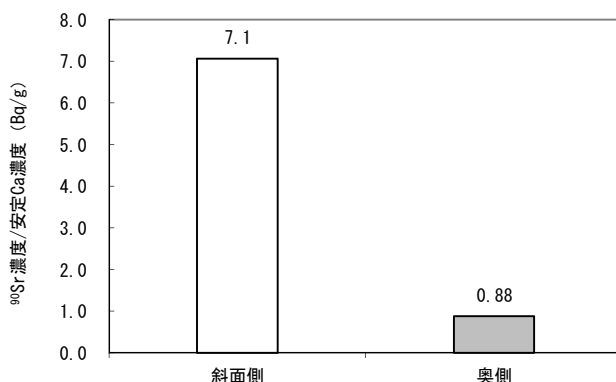


図 9 表土(可給態部分抽出)の Sr-90 と安定 Ca の濃度比

5. まとめ

平成 20 年第 3 四半期の環境モニタリングにおける松葉の Sr-90 濃度が平常の変動幅を上回った原因としては、試料採取の際に Sr-90 を多く含有する斜面側の松葉の混合割合が大きかったためと考えられる。今後、測定値のばらつきを小さくするため、分析試料の確保が容易であり、長期間継続して採取することが可能である奥側の松葉を調査することとする。

斜面側の松葉の Sr-90 濃度が奥側と比べ高くなる要因としては、表土中の可給態の安定 Ca に対する Sr-90 の割合が高いため、松葉により多くの Sr-90 が移行することが考えられる。

文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ2 放射性ストロンチウム分析法(平成15年)
- 2) Tsukada H., Takeda A., Hisamatsu S. and Inaba J. (2008) : Prediction of soil-to plant transfer of ^{90}Sr by means of concentration ratio of $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ in exchangeable fraction, extended abstract of International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity, Bergen, Norway

Ⅱ 学会等发表要旨

青森県における環境放射線モニタリング（2007～2010）

竹ヶ原 仁 今 壽貴 幸 進*¹ 武石 稔*¹

京都大学原子炉実験所専門研究会「環境放射能モニタリングと移行挙動研究」，
大阪府熊取町，2011. 12. 8－12. 9

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成 2006 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(⁸⁵Kr)、トリチウム(³H)、炭素-14(¹⁴C)及びヨウ素-129(¹²⁹I)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、2007 年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 等について調査を開始した。調査の結果、アクティブ試験の影響が考えられる測定値がみられたが預託実効線量の試算を行ったところいずれも法令に定める周辺監視区域外の実効線量限度（1mSv/年）に比べ極めて低い値であった。

*1：日本原燃株式会社

Ⅲ 平成 23 年度調査研究事業報告

環境放射能拡散シミュレーションシステム

佐々木 守 安田 浩 竹ヶ原 仁
松村浩治^{*1} 今井慎一^{*2} 根本 誠^{*3} 城戸寛子^{*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クリプトン-85濃度及び空間放射線量率の調査結果を用いてシステムの検証を行い、平成19年度は精度向上及び機能の追加を目的として検討を行った。平成20年度はこれらの検討をもとに風速場評価機能の精度向上、トリチウム（HT、HTO）やヨウ素-129等のシミュレーションシステムによる計算を目的とした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、トリチウム計算モデルの追加によるシステムの高度化を行った。

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。

平成22年度は、高度化及び最適化を行ったシミュレーションシステムを用いて行った計算結果と測定値との比較・検討について本所報の研究報告として取りまとめた。

平成23年度は、モニタリング等の測定値で再処理工場からの寄与が認められた期間のうち、まだシミュレーションシステムによる計算を行っていない期間について、計算結果と測定値の比較・検討を行い、精度向上のための課題抽出を行っている。

2. 調査方法及び調査結果

常時監視している気体状β放射能（Kr-85換算）の測定値（10分値）に再処理工場のアクティブ試験の影響が認められた期間は表1に示すとおりであり、そのうち、平成22年度までに、2006年10月3日～2006年10月9日、2006年10月16日～10月23日、2007年4月9日～4月12日及び2007年9月10日～9月20日の期間について、パフモデルを用いて計算を行っている。

平成23年度は、表1の全ての期間についてプルームモデルにより計算を行い、実測値との比較、検討を行うとともに、平成22年度までに実施したパフモデルの計算結果と比較を行った。

*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

表 1 再処理工場のアクティブ試験の影響が認められた気体状β放射能測定値(10分値)

施設寄与が認められた期間	せん断期間	施設寄与が認められた測定局	測定局 最大値 (kBq/m ³)	N	施設寄与が認められた期間	せん断期間	施設寄与が認められた測定局	測定局 最大値 (kBq/m ³)	N
2006/04/01	2006/4/1~4/3	尾駁	0.6	-			尾駁	19	24
2006/04/07	2006/4/7~4/8	-(敷地境界 MP)	-	-			平沼	0.9	-
2006/5/3~5/5	2006/5/3~5/5	尾駁	1.5	-	2007/9/08~9/30	2007/9/07~9/30	吹越	18	46
		吹越	0.9	-			老部川	3.7	10
2006/5/14~5/16	2006/5/13~5/16	尾駁	0.8	-			二又	6.0	15
		吹越	0.6	-			室ノ久保	9.7	7
		老部川	0.7	-			尾駁	9.3	7
2006/6/8~6/10	2006/6/7~6/10	二又	0.1	-	2007/10/26~11/04	2007/10/25~11/8	千歳平	11	4
		室ノ久保	8.8	6			平沼	1.5	-
2006/8/18~8/19	2006/8/18~8/19	尾駁	2.3	2			吹越	3.6	5
		二又	0.7	-			二又	7.1	4
		室ノ久保	3.4	2			室ノ久保	13	6
2006/10/3~10/9	2006/10/3~10/9	尾駁	0.7	-	2007/12/19~12/31	2007/12/17~12/31	尾駁	3.9	12
		千歳平	2.6	2			老部川	5.7	14
		平沼	3.3	2			二又	2.1	1
		室ノ久保	9.8	13	2008/4/3~4/12	2008/4/1~4/13	尾駁	2.9	2
		尾駁	12	12	なし	2008/04/29	-	-	-
2006/10/17~10/23	2006/10/16~10/24	平沼	2.9	1	2008/6/16~6/20	2008/6/14~6/20	尾駁	4.6	5
		吹越	5.7	4			吹越	6.4	16
		老部川	1.8	-			二又	13	18
		二又	3.7	4	2008/07/01	2008/7/1~7/2	二又	1.9	-
		室ノ久保	1.2	-			千歳平	2.0	1
2006/11/15~11/19	2006/11/15~11/20	尾駁	0.9	-	2008/7/25~7/29	2008/7/24~7/29	吹越	2.3	2
		平沼	1.0	-			二又	13	4
		老部川	4.3	4			室ノ久保	12	11
		二又	1.2	-	2008/9/15~9/18	2008/9/15~9/19	尾駁	0.4	-
2007/02/06	2007/2/5~2/7	尾駁	1.2	-			吹越	4.6	4
		尾駁	3.0	2	2008/9/26~9/30	2008/9/25~9/30	二又	3.4	1
		老部川	2.3	2			尾駁	6.2	28
2007/2/26~3/7	2007/2/25~3/8	二又	1.0	-	2008/10/01	2008/10/1~10/2	老部川	2.0	1
		室ノ久保	2.2	1			尾駁	3.9	2
		尾駁	9.1	27			吹越	0.8	-
2007/4/9~4/12	2007/4/8~4/15	吹越	5.2	3					
		二又	5.6	2					

N:2 kBq/m³以上となった測定値の数 (2 kBq/m³: 定量下限値(1時間値))

今年度行った計算条件は次のとおり。

- ・ 計算期間：再処理工場のアクティブ試験においてせん断が行われた期間
- ・ 計算モデル：プルームモデル
- ・ 計算範囲：50×50 メッシュ 25 km 四方
- ・ 測定間隔：10 分
- ・ 対象核種：⁸⁵Kr
- ・ 風向データ：16 方位

局舎の実測値(10 分値)で 2 kBq/m³ を上回ったデータ数 (N) は 0~102 であり、パフモデルを用いて計算を行っている期間中で N が多い次の地点についてプルームモデルの計算結果と比較を行った。(図 1~図 5)

比較にあたっては、(独)日本原子力研究開発機構¹⁾及び(財)環境科学技術研究所²⁾の大气拡散モデルの検証、評価に用いられている次の関数を用いた。

「ファクター2 及びファクター5 の一致度」

実測値が N 個 (Mes₁, Mes₂, …, Mes_i, …, Mes_N) あり、それぞれに対応する計算値 (Cal₁, Cal₂, …, Cal_i, …, Cal_N) が求まっているとする。ある計算値 Cal_i を、対応する実測値 Mes_i で割った値を R_i とすると、

- ・ ファクター2 での一致度：1/2 ≤ R_i ≤ 2 となる i の個数が N に占める割合 (%)
- ・ ファクター5 での一致度：1/5 ≤ R_i ≤ 5 となる i の個数が N に占める割合 (%)

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

この関数を用いて、同期間におけるプルームモデルの計算結果及びパフモデルの計算結果を比較したところ、パフモデルの計算結果のほうが一致度が高かった(表 2)。

表2 プルームモデルとパフモデルの計算結果の比較

計算期間	せん断期間	施設寄与が認められた測定局	測定局最大値 (kBq/m ³)	N	ファクター2(%)		ファクター5(%)	
					プルームモデル	パフモデル	プルームモデル	パフモデル
2006/10/3~10/9	2006/10/3~10/9	室ノ久保	9.8	13	0	0	0	15
2006/10/17~10/23	2006/10/16~10/24	尾駁	12	12	0	0	0	4.8
2007/4/9~4/12	2007/4/8~4/15	尾駁	9.1	26	0	0	0	3.8
2007/9/10~9/20	2007/9/07~9/30	尾駁	19	18	5.6	22	5.6	33
		吹越	18	29	6.9	14	14	24

3. 今後の展望

今後、パフモデルについても計算を進めるとともに、平成 21 年度に行ったパラメータ調整を適応し、一致度の変化を確認する。

また、平成 24 年度のテレメータシステム更新時に、16 方位より詳細な角度データでの伝送が可能となることから、平成 24 年度以降に風向の角度データを取得し計算に用いるため、シミュレーションシステムを改良する。

文 献

- 1) 竹安正則、武石稔、中野政尚、清水武彦：放出放射性物質による緊急時線量シミュレーションシステム (SIERRA-II) の開発, サイクル機構技法, No.23(2004)
- 2) (財)環境技術研究所：平成 22 年度排出放射能環境分布調査報告書 158-228 (2011)

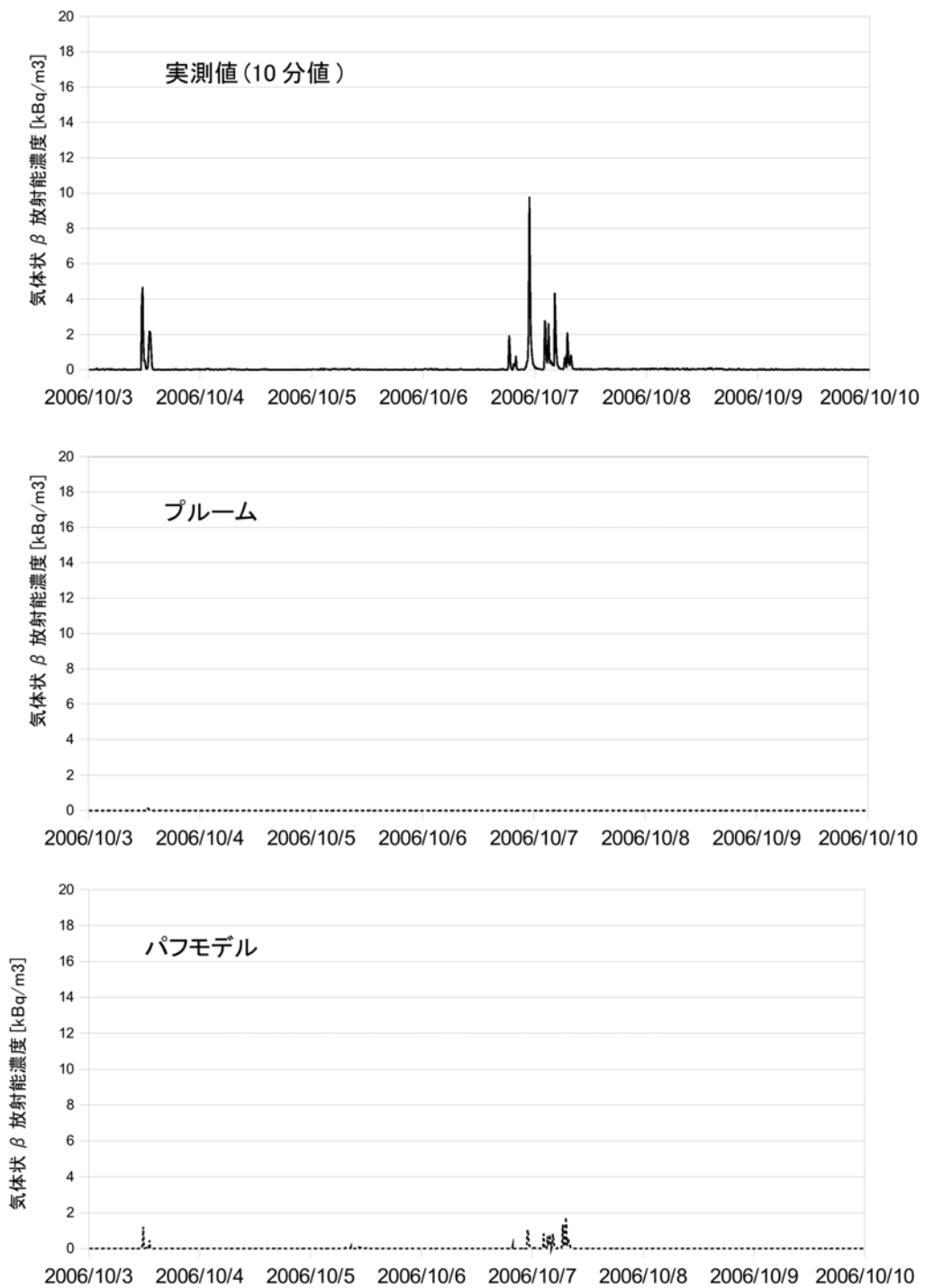


図1 実測値とプルームモデルとパフモデルの比較
(2006年10月3日～10月9日室ノ久保局)

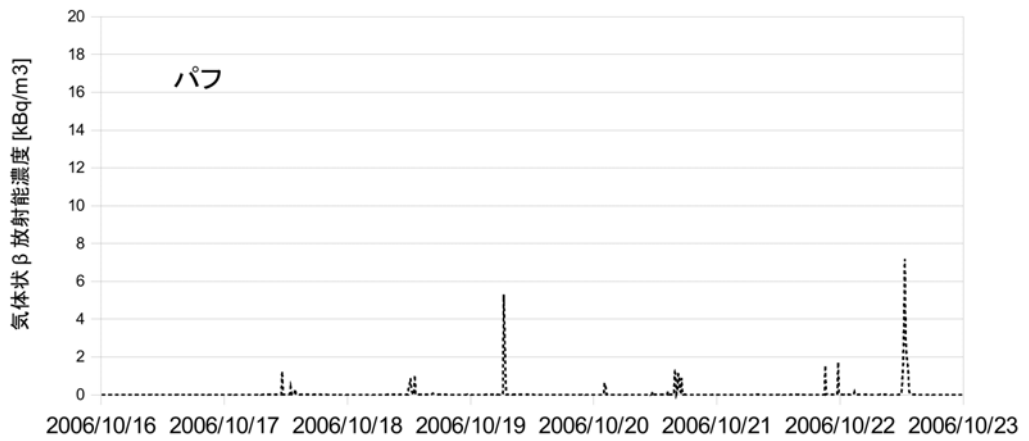
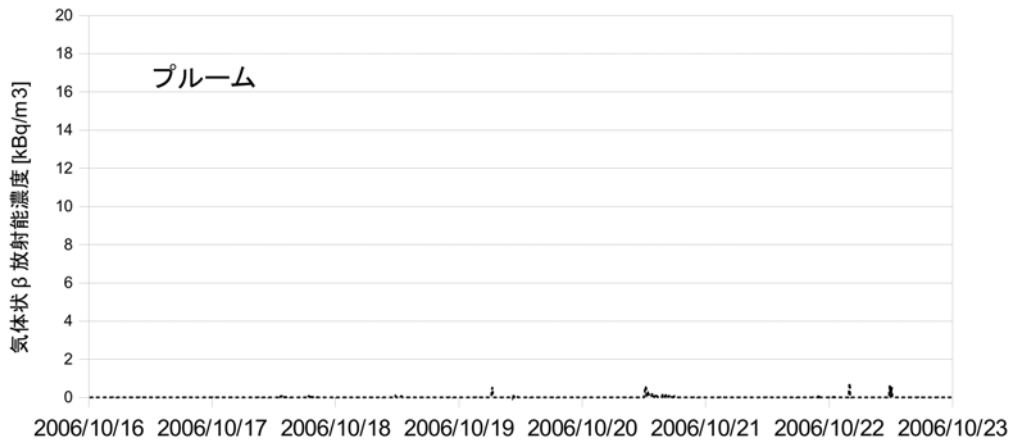
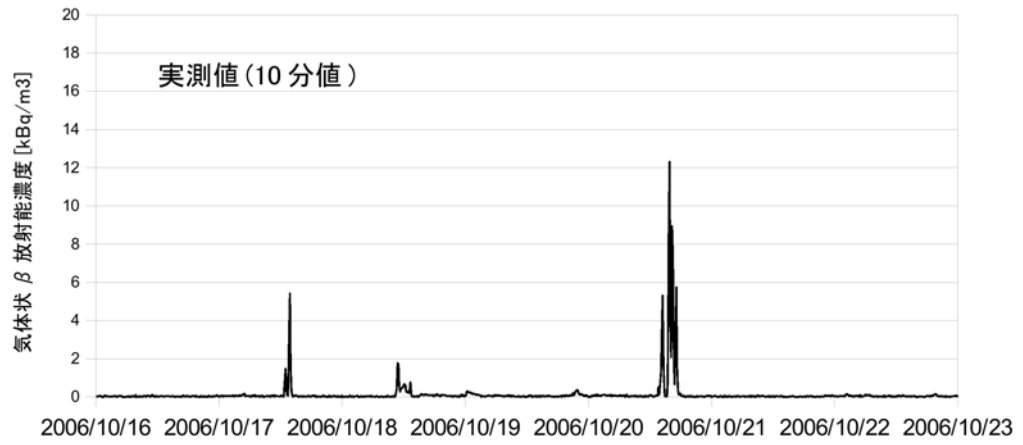


図2 実測値とブルームモデルとパフモデルの比較
(2006年10月16日～10月23日尾駁局)

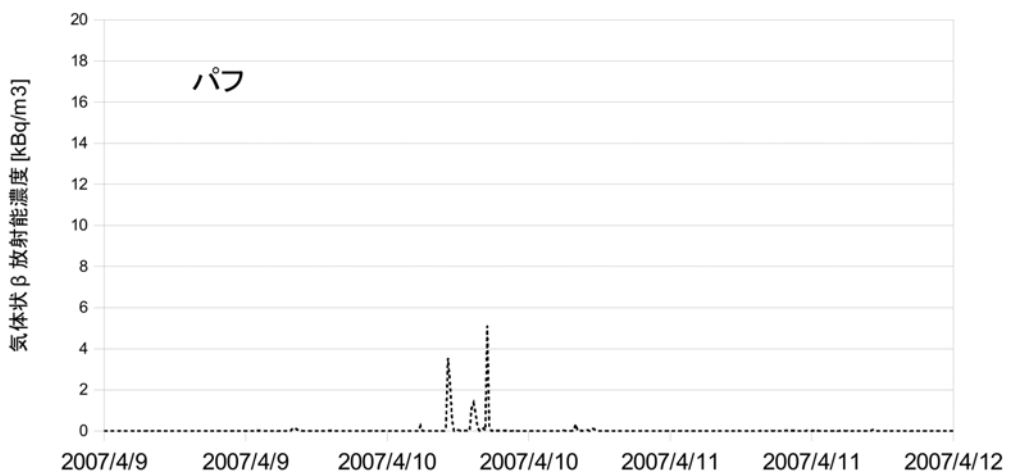
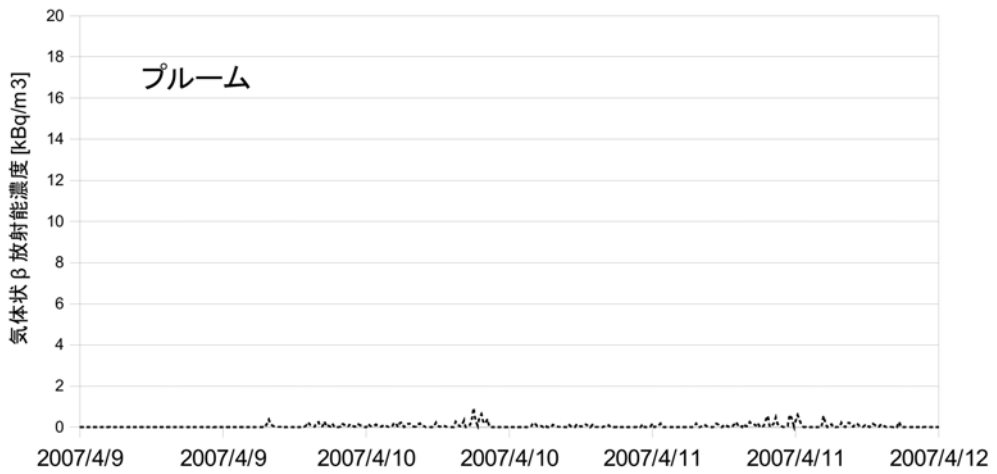
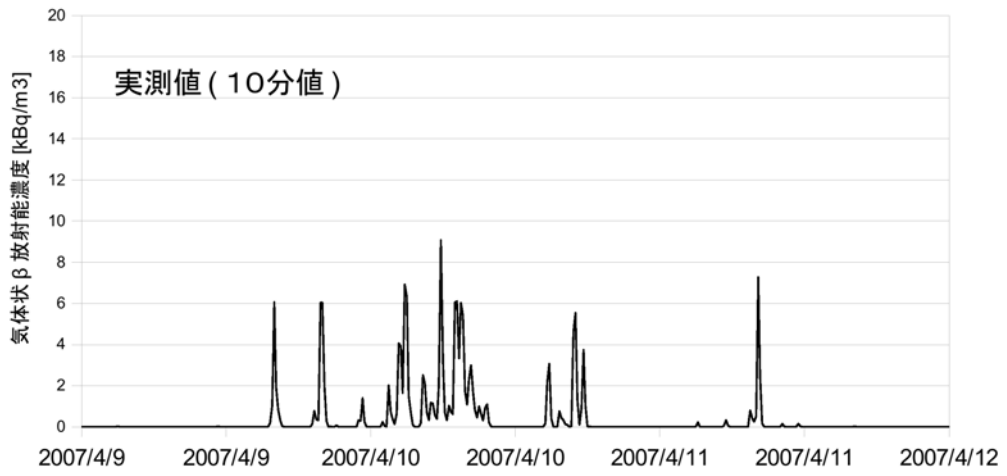


図3 実測値とプルームモデルとパフモデルの比較
(2007年4月9日～4月12日 尾駁局)

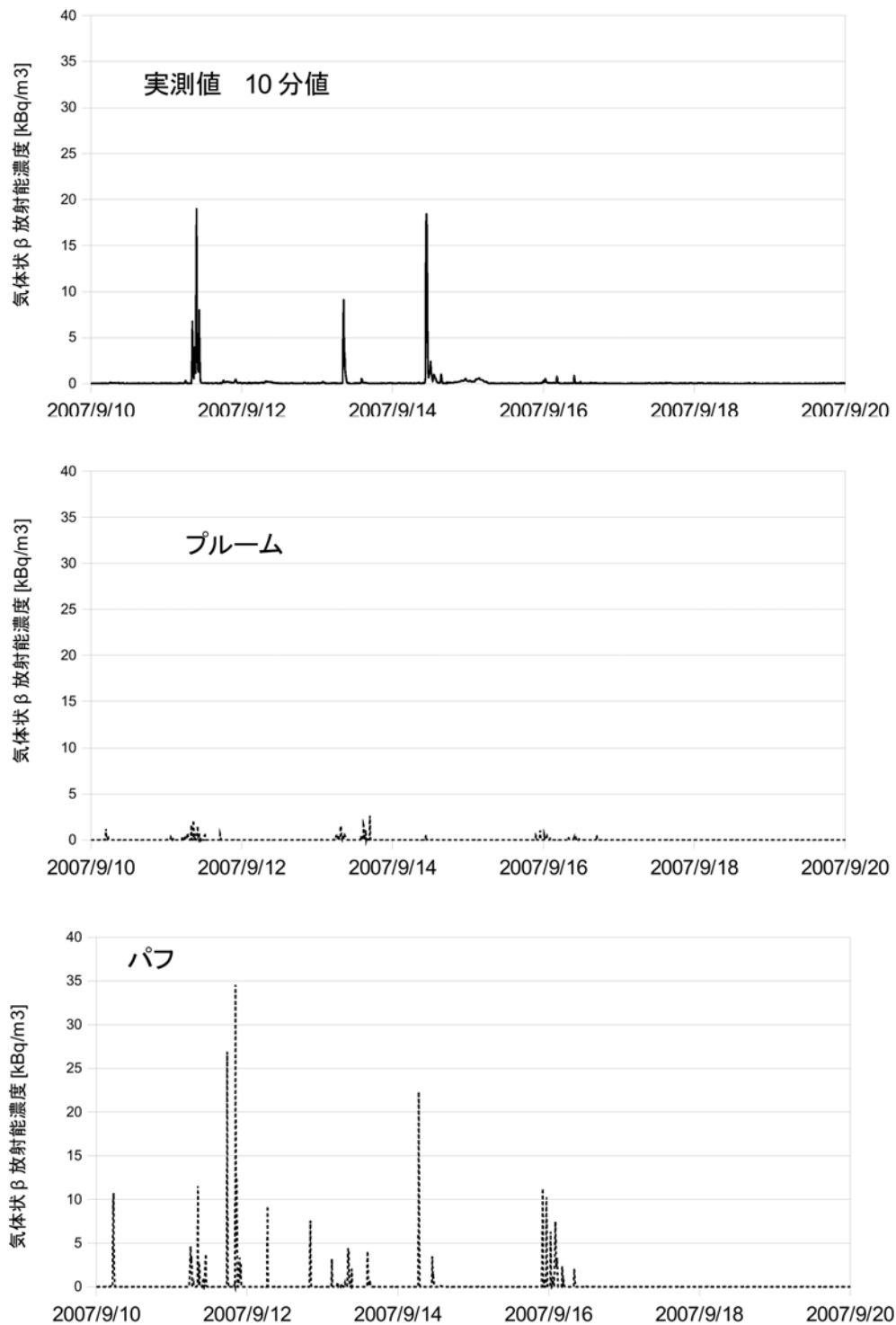


図4 実測値とプルームモデルとパフモデルの比較
(2007年9月10日～9月20日尾駁局)

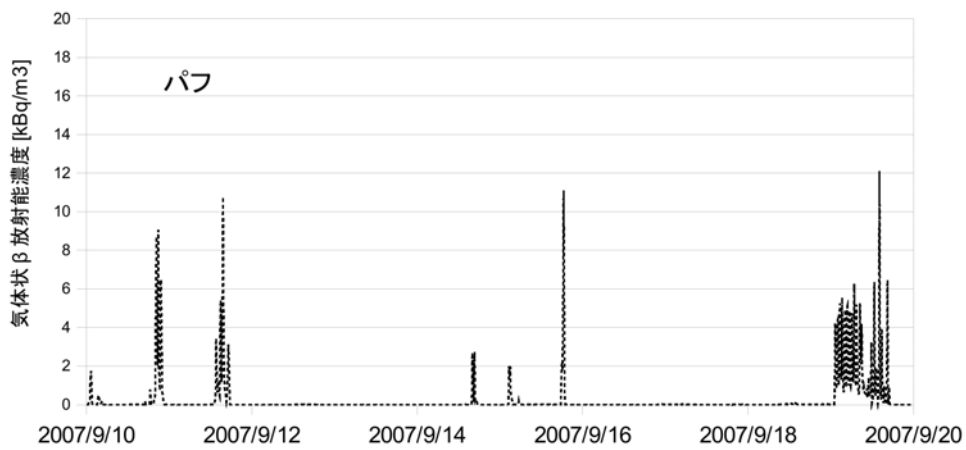
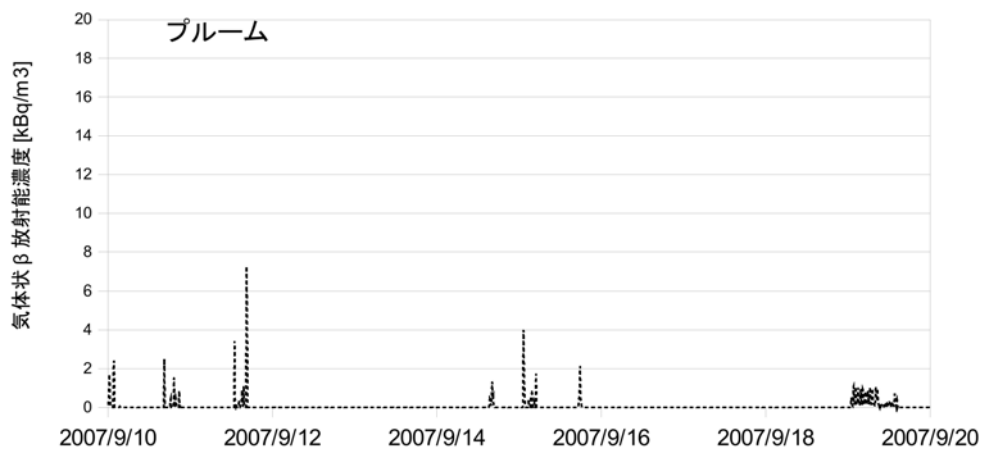
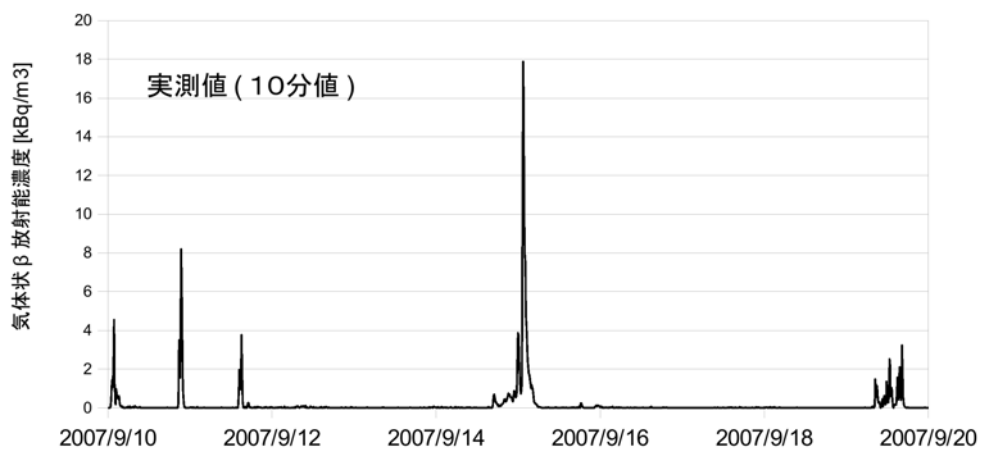


図5 実測値とプルームモデルとパフモデルの比較
(2007年9月10日～9月20日 吹越局)

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

大下内 伸 工藤俊明

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もある¹⁾。

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方法について検討を行い、平成18年度まで、従来用いられてきた方法²⁾により HTO 及び HT の採取条件を検討した。本採取方法は可燃性ガスを用いているため、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、加湿カラムを用いる方法により、現地調査を実施するための採取条件を取りまとめた。平成22年度は、この条件をもとに採取装置を組み立て、モニタリングステーション青森局 (以下、青森 MS) で実証試験を行い、その後、再処理施設周辺 (モニタリングステーション尾駁局 (以下、尾駁 MS) 及び吹越局 (以下、吹越 MS)) において調査を行った。平成23年度は、引き続き四半期ごとに尾駁 MS 及び吹越 MS において調査を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地点及び調査時期

調査地点を図 1 に示す。

尾駁 MS 及び吹越 MS にて、四半期ごとに、1 週間毎の採取を各 2 回行った。

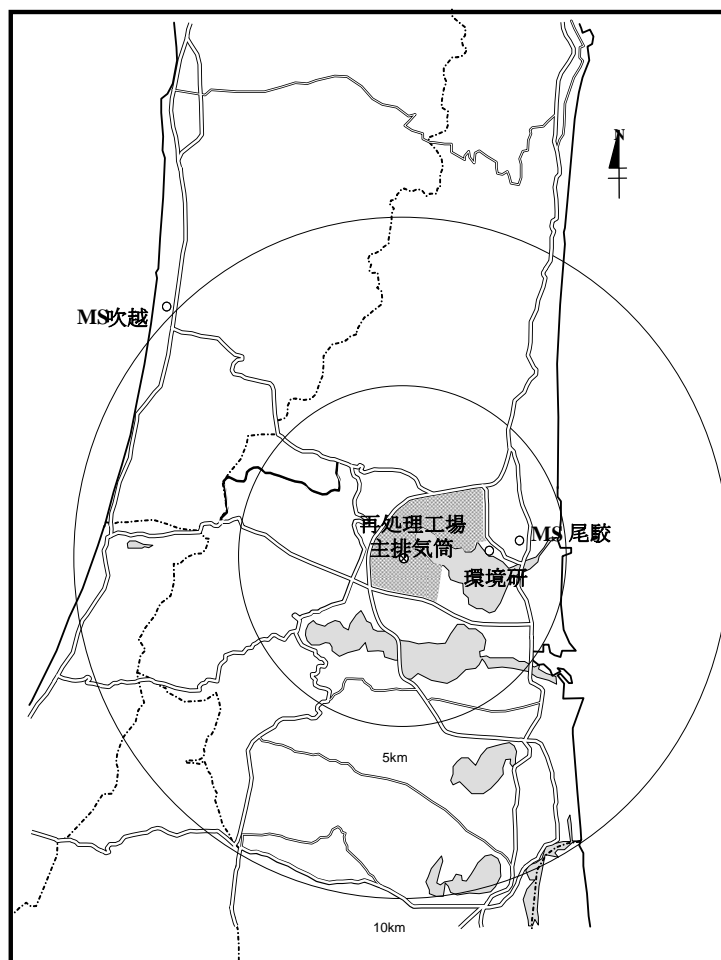


図 1 調査地点

2.2 採取装置

化学形別トリチウム採取装置（以下、採取装置）の概略を図 2 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）で吸引し採取装置に導入した。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（2 本）、HT カラム（1 本）及び CH_3T カラム（1 本）に捕集した。

まず電子除湿器（出口露点 $1\sim 3\text{ }^\circ\text{C}$ ）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 $100\text{ }^\circ\text{C}$ 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 、 $25\text{ mm}\Phi\times 50\text{ mm}$ 、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、 $300\text{ }^\circ\text{C}$ に加熱した Pd 触媒（DASH-220D、 $0.24\text{ wt}\%$ 、 $3\text{ mm}\Phi$ 、NECHEMCAT）で酸化し、水として CH_3T カラムに捕集した。各触媒カラムの前には、図 3 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）を設置し、HT 用の加湿カラムには、無トリチウム水入り（約 15 ml ）のバイアルを 2 個、 CH_3T 用には 1 個装填した。

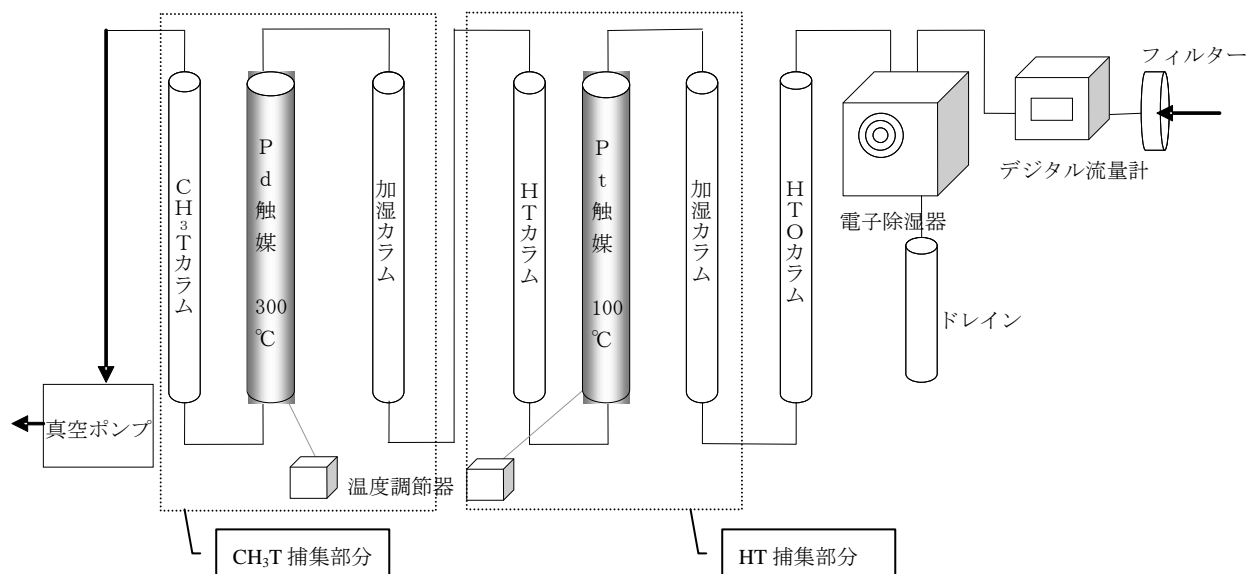


図2 化学系別トリチウム採取装置
(可燃性ガスを使用しない)

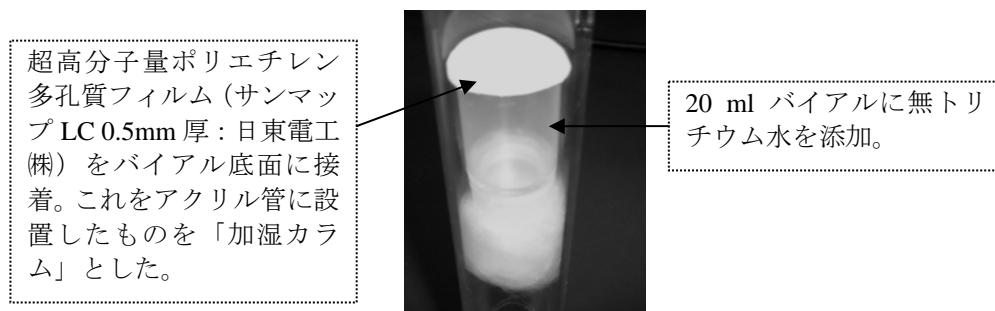


図3 加湿カラムの概略

2.3 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及び HTO については水分中濃度を算出した。

3. 調査結果

採取装置を尾駸 MS 及び吹越 MS に設置し大気を採取した。それぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表 1 に示す。HTO は、吹越 MS の 6 月及び 11 月採取分が 13 ± 3.3 、 18 ± 4.1 及び 6.3 ± 1.8 mBq/m³ (1.3 ± 0.32 、 1.3 ± 0.31 及び 0.94 ± 0.27 Bq/L) であり、それ以外は検出限界以下であった。HT は尾駸 MS で $3.7 \pm 0.54 \sim 6.8 \pm 0.71$ mBq/m³、吹越 MS で $4.1 \pm 0.55 \sim 7.4 \pm 0.78$ mBq/m³ であり、CH₃T は尾駸 MS で $2.4 \pm 0.29 \sim 4.2 \pm 0.31$ mBq/m³、吹越 MS で $1.3 \pm 0.29 \sim 3.0 \pm 0.48$ mBq/m³ であった。これらの値は、表 1 に示す平成 22 年度の測定結果⁵⁾と同程度であった。また、(財)環境科学技術研究所による青森県六ヶ所村における平成 18 年から平成 22 年の調査結果^{6)~10)}と同じレベルであった。

表 1 尾駸 MS 及び吹越 MS における大気中 HTO, HT 及び CH₃T 測定結果

地点	採取期間	採取時間 (min)	採取流量 (L/min)	積算流 量(m ³)	HTO 濃度 (mBq/m ³)	HTO 濃度 (Bq/L)	HT 濃度 (mBq/m ³)	CH ₃ T 濃度 (mBq/m ³)
尾駸 MS	H23.6.1~6.8	10015	1.02	10.237	(1.4±3.1)	(0.13±0.30)	6.8±0.71	4.1±0.48
	H23.6.8~6.15	10035	0.99	9.928	(9.9±4.0)	(0.75±0.30)	5.6±0.93	2.9±0.44
尾駸 MS	H23.8.18~8.25	10010	1.03	10.294	(12±6.2)	(0.60±0.30)	5.6±0.92	3.1±0.43
	H23.8.25~9.1	10070	1.02	10.263	(0.17±5.8)	(0.0085±0.29)	5.7±0.75	3.1±0.49
尾駸 MS	H23.11.2~11.9	10050	1.31	13.153	(1.8±2.5)	(0.19±0.27)	4.4±0.53	2.8±0.29
	H23.11.9~11.16	10025	1.33	13.344	(5.5±1.9)	(0.80±0.27)	3.7±0.54	2.4±0.29
尾駸 MS	H24.1.10~1.17	10030	1.29	12.911	(1.8±0.92)	(0.53±0.27)	5.9±0.64	3.9±0.30
	H24.1.17~1.24	10005	1.26	12.621	(0.31±1.3)	(0.061±0.26)	5.8±0.53	4.2±0.31
吹越 MS	H23.6.1~6.8	10020	1.03	10.348	13±3.3	1.3±0.32	7.4±0.78	2.7±0.43
	H23.6.8~6.15	10035	1.01	10.115	18±4.1	1.3±0.31	5.0±1.1	2.8±0.42
吹越 MS	H23.8.18~8.25	10050	0.97	9.745	(9.0±5.3)	(0.50±0.29)	6.3±1.0	3.0±0.48
	H23.8.25~9.1	10070	1.01	10.169	(12±5.6)	(0.63±0.30)	4.8±0.78	2.3±0.44
吹越 MS	H23.11.2~11.9	10030	1.28	12.873	(1.3±2.3)	(0.16±0.27)	4.1±0.55	1.3±0.29
	H23.11.9~11.16	10040	1.26	12.696	6.3±1.8	0.94±0.27	4.8±0.64	1.7±0.32
吹越 MS	H24.1.10~1.17	10025	1.30	13.080	(0.99±0.81)	(0.31±0.26)	5.4±0.73	2.3±0.31
	H24.1.17~1.24	10020	1.29	12.893	(2.9±1.0)	(0.78±0.27)	5.6±0.57	2.5±0.31
尾駸 MS	H22 年度	—	—	—	検出限界以下	検出限界以下	4.6~6.4	2.2~4.5
吹越 MS	H22 年度	—	—	—	検出限界以下	検出限界以下	4.7~7.1	1.4~3.7
環境研	H18~22 年度	—	—	—	1.1~37.5	0.2~7.1	1.9~13.0	0.4~4.8

() は、測定値がその計数誤差の 3 倍以下で検出限界以下であることを示す。

4. まとめ

加湿カラムを用いる方法により、尾駮 MS 及び吹越 MS において調査を行った。吹越 MS の 6 月及び 11 月採取分を除き HTO は検出下限値以下であったが、HT 及び CH₃T は有意な値となり、平成 22 年度の測定結果と同程度であった。また、(財)環境科学技術研究所による青森県六ヶ所村における平成 18 年から平成 22 年の調査結果と同じレベルであった。

平成 24 年度は、引き続きモニタリングステーション尾駮局及び吹越局において化学形ごとの大気中濃度を調査するとともに、一部採取条件の確認をした後、採取方法及び採取条件等について検討したこれまでの結果を取りまとめる。

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) N. Momoshima, M. Takamura, Y. Nagano, T. Toyoshima, T. Okai, T. 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) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、管野邦昭、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)
- 5) 大下内伸、工藤俊明、五十嵐飛鳥、佐々木久美子、木村秀樹：青森県原子力センター所報 第 5 号, 60-64(2010)
- 6) 財団法人環境科学技術研究所：平成 18 年度放出放射能環境分布調査報告書, 164(平成 19 年)
- 7) 財団法人環境科学技術研究所：平成 19 年度放出放射能環境分布調査報告書, 105(平成 20 年)
- 8) 財団法人環境科学技術研究所：平成 20 年度放出放射能環境分布調査報告書, 309(平成 21 年)
- 9) 財団法人環境科学技術研究所：平成 21 年度放出放射能環境分布調査報告書, 345(平成 22 年)
- 10) 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)

環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査

今 壽貴 竹ヶ原 仁 成田 俊 木村秀樹^{*1} 五十嵐飛鳥^{*2}
幸 進^{*3} 岡 光昭^{*3} 武石 稔^{*3}

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(⁸⁵Kr)、トリチウム(³H)、炭素-14(¹⁴C)及びヨウ素-129(¹²⁹I)などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成18年2月7日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成19年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129について調査を開始した。平成20年度からはヨウ素-131(¹³¹I)を追加し、平成21年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）を追加し実施している。平成22年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

2. 平成23年度の調査計画と今後の進め方

平成23年度の調査計画を表1に示した。平成23年度は、平成22年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。これらの調査結果については平成24年度にとりまとめることとしている。平成24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23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	非交換型 OBT		
牛乳（原乳）	富ノ沢	4	○	○	—	○	—
	横浜町		○	○	—	○	—
	二又		○	○	—	○	—
	豊原		○	○	—	○	—
精米	尾駸	1	—	○	—	○	—
	千樽		—	○	—	○	—
	野辺地町		—	○	—	○	—
	二又①		—	○	—	○	—
	二又②		—	○	—	○	—
	戸鎖		—	○	—	○	—
	平沼		—	○	—	○	—
ハクサイ	出戸	1	○	○	—	○	○
	千樽		○	○	—	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	—	○	○
ダイコン	出戸		○	○	—	○	—
バレイショ	尾駸		○	○	—	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	—	○	—
	平沼		○	○	—	○	—
魚類(ヒラメ)	六ヶ所村 前面海域		8	○	○	○	—
海藻類(コンブ)			2	—	—	—	○

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*2：現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

*3：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

成田 俊 工藤俊明 西堀祐司*1

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を α 線スペクトロメトリにより実施している。この測定法においては、Pu-239 と Pu-240 が放出するそれぞれの α 線のエネルギーがほぼ等しく、区別して定量できないことから、両核種の合計量として定量している。

プルトニウムの同位体組成はその発生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有効である。

一方、 α 線スペクトロメトリとは別の分析法である ICP 質量分析法（以下、「ICP-MS」という）は、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、通常的环境モニタリングや緊急時における再処理工場からの影響の評価に資するため、プルトニウム濃度の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平成18年度までの湖底土、表土、海底土について、ICP-MSによりPu-239とPu-240濃度及びその原子数比を調査した。

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：現青森県環境生活部原子力安全対策課

ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

木村芳伸 工藤俊明

1. はじめに

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

調査研究事業においては、表土、葉菜類及び海藻類中のヨウ素-129 濃度の調査を、蓄積状況等を詳細に把握するため超微量分析法である加速器質量分析法（以下、AMS 法）により実施している。

一方、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」（以下、「迅速分析法」）では迅速で簡便な ICP 質量分析法が採用されたが、プラズマガスとして使用するアルゴン中に存在するキセノン-129 及びプラズマ中でヨウ素-127 (^{127}I) から生成する水素化物 ($^{127}\text{I H}_2$) が、質量数の等しいヨウ素-129 の測定を妨害するため、検出感度が放射化学分析法（土壌試料中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比で $10^{-5}\sim 10^{-4}$ ）に及ばない状況であった。しかし最近、パーキンエルマー社製 ICP 質量分析装置が装備するリアクションセルによりこの妨害を除去することで、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比が $10^{-7}\sim 10^{-6}$ の測定を可能にしたとの報告があった¹⁾。

ICP 質量分析法は、検出感度では $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比で 10^{-14} まで検出できる AMS 法に及ばないが、一般には普及しておらず外部の装置を利用するしかない AMS 法のように利用時間等の制約を受けることもなく即応性の点で有利である。また、ICP 質量分析法が「ヨウ素 129 分析法」において正式採用されれば、モニタリングにおける分析法を ICP 質量分析法に変更する可能性がある。

このようなことから、ICP 質量分析法によるヨウ素-129 分析について、化学分離等の分析条件、装置による測定条件、種々の環境試料における検出可能レベル等について検討するものである。

平成 22 年度は検討に用いる ICP 質量分析装置を整備し、平成 23 年度は標準溶液を用いて測定条件の検討を行った。

2. 調査方法

2.1 装置

ICP 質量分析装置は、パーキンエルマー・ジャパン社 ELAN DRC-e を用いた。本装置が内蔵するダイナミックリアクションセル (DRC) は、DRC 内に導入した反応ガスと、測定イオンと質量数が等しい (= 測定の妨害となる) イオンを相互作用させることで、スペクトル干渉を除去又は低減することを可能としている。

測定に際しては、各種ガス流量及びイオンレンズ電圧等について、ヨウ素に対する検出感度が最大となるとともにバックグラウンド及び水素化物の生成

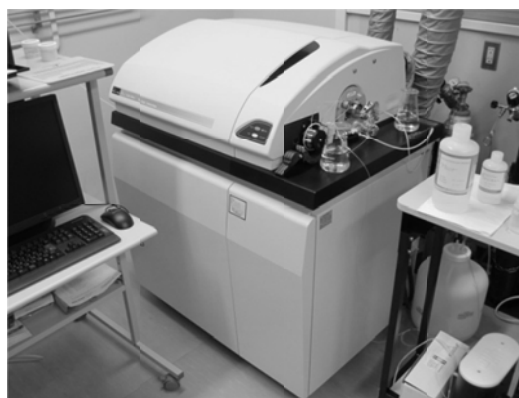


写真 パーキンエルマー・ジャパン社 ELAN DRC-e

が最小となるよう調整した。DRC 内に導入する反応ガスとしては酸素を使用した。これは酸素のイオン化ポテンシャルがキセノンのそれよりも小さいため、プラズマ中でイオン化したキセノンが DRC 内で酸素原子をイオン化することで電荷を失い、四重極を通過できなくなるためである。

2.2 測定

ヨウ素-129 標準溶液(Eckert&Ziegler Isotope Products 社より入手)を希釈し、これにヨウ化アンモニウムを一定量加え 1%水酸化テトラメチルアンモニウム水で希釈することで、ヨウ素-129 濃度が 0~0.0033 Bq/mL、ヨウ素-127 濃度が 1 mg/mL の標準溶液 (系列 A) を作成した。各標準溶液の濃度を表 1 に示す。

表 1 作成した標準溶液の濃度

系列	核種	単位	STD1	STD2	STD3	STD4
A	ヨウ素-127	mg/mL	1.0			
	ヨウ素-129	Bq/mL	0	0.00033	0.00067	0.0033

各標準溶液をそれぞれ 9 回ずつ測定し、得られたヨウ素-129 及びヨウ素-127 の計数率について平均値及び標準偏差を求めた。ヨウ素-129 濃度と計数率の関係 (検量線) を図 1 に示す。検出限界値 (ブランク試料の標準偏差の 3 倍に相当する濃度) はおよそ 0.00013 Bq/mL であった。

なお、同時に測定したヨウ素-127 の測定結果を図 2 に示す。共存する高濃度のヨウ素-127 も安定した測定ができていることが確認された。ヨウ素-127 については質量分析部のパルス計数値がオーバーフローしないよう、DRC 内の四重極電圧を調整し感度を落として測定している。

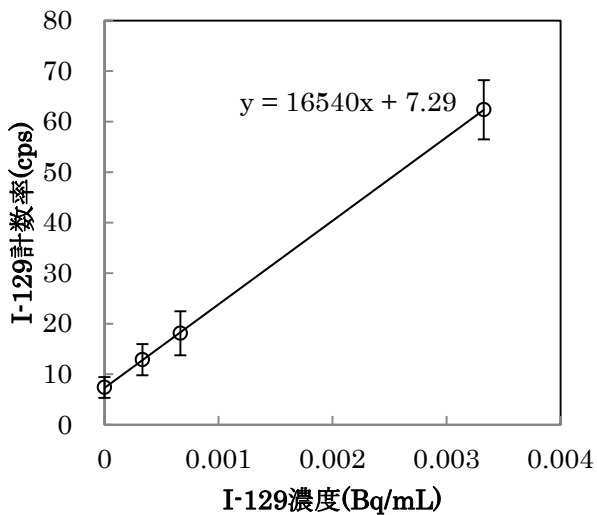


図 1 ヨウ素-129 濃度と計数率の関係

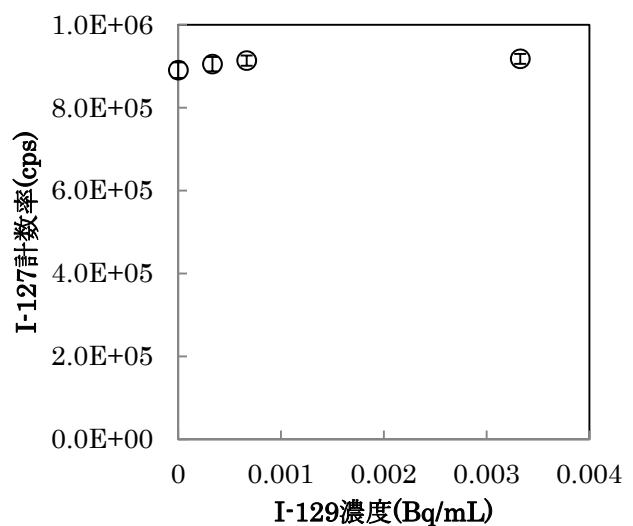


図 2 各標準溶液のヨウ素-127 計数率

次に、迅速分析法では、試料 (土壌及び葉菜) に由来含まれるヨウ素-127 及び分析の際に添加するヨウ素-127 担体の影響により、ICP 質量分析装置に導入する段階で試料溶液中のヨウ素-127 濃度は約 0.1 mg/mL となることから、ヨウ素-127 濃度が 0.05~0.5 mg/mL の標準溶液 (系列 B~D) を作成し、試料溶液中のヨウ素-127 濃度の変動による検出限界値への影響について確認した。作成した各標準溶液の濃度を表 2 に示す。

表 2 各標準溶液の濃度

系列	核種	単位	STD1	STD2	STD3	STD4
B	ヨウ素-127	mg/mL			0.50	
	ヨウ素-129	Bq/mL	0	0.00033	0.00067	0.0033
C	ヨウ素-127	mg/mL			0.10	
	ヨウ素-129	Bq/mL	0	0.00033	0.00067	0.0033
D	ヨウ素-127	mg/mL			0.050	
	ヨウ素-129	Bq/mL	0	0.00033	0.00067	0.0033

標準溶液（系列 B～D）のヨウ素-129 濃度と計数率の関係（検量線）を図 3 に示す。また、標準溶液（系列 A～D）の測定結果から求めた、ヨウ素-127 濃度とヨウ素-129 検出限界値の関係を図 4 及び表 3 に示す。

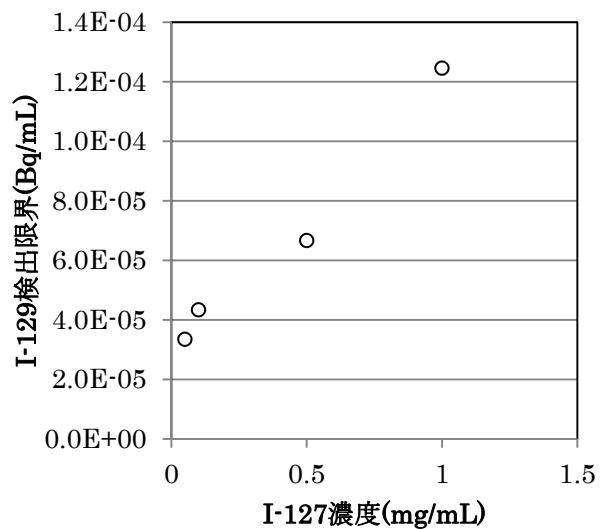
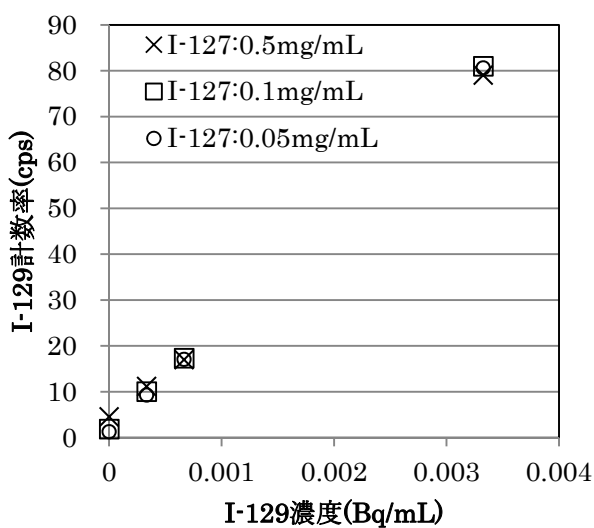


図 3 ヨウ素-129 濃度と計数率の関係

図 4 ヨウ素-127 濃度とヨウ素-129 検出限界値の関係

表 3 ヨウ素-127 濃度とヨウ素-129 検出限界値の関係

系列	I-127 濃度(mg/mL)	I-129 検出限界値(Bq/mL)	(参考) 検量線データ	
			傾き	切片
A	1.0	0.00013	16540	7.3
B	0.50	0.000067	22640	3.5
C	0.10	0.000044	23770	1.9
D	0.050	0.000034	23840	1.3

3. まとめ

ELAN DRC-e は独自の機構により、高濃度（1 mg/mL）のヨウ素-127 が共存する溶液においても安定したヨウ素-129 の測定が可能であり、検量線は良好な直線性を示すことが確認された。また、試料溶液中に含まれるヨウ素-127 濃度の変動による検出限界値への影響については、検出限界値のヨウ素-127 濃度への依存性が認められ、ヨウ素-127 濃度が低くなると検出限界値が下がる傾向が見られた。

ELAN DRC-e を用いて迅速分析法を行った場合の、ヨウ素-129 検出限界値(分析目標レベル)を表4に示す。ヨウ素-129 検出限界値は0.6 Bq/kg(土壤中の¹²⁹I/¹²⁷I原子数比で $2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-5}$)であり、県の環境放射線モニタリングの精度を十分担保できることが確認された。

表4 ヨウ素-129 検出限界値(分析目標レベル)※

試料	迅速分析法(ELAN DRC-e)	迅速分析法 ²⁾	ヨウ素-129 分析法 ³⁾
表土	0.6 Bq/kg 乾	9 Bq/kg 乾	5 Bq/kg 乾
葉菜	0.6 Bq/kg 生	9 Bq/kg 生	2 Bq/kg 生

※分析条件は以下のとおり

迅速分析法(ELAN DRC-e)

検出限界値 0.044 mBq/mL、回収率 80 %、希釈容量 100 mL、供試量 10 g

迅速分析法

検出限界値 0.65 mBq/mL、回収率 80 %、希釈容量 100 mL、供試量 10 g

ヨウ素-129 分析法

計数効率 4 % (ローバックガスフローカウンタ)、測定時間 100 分、回収率 60 %、供試量 100 g
(県の環境放射線モニタリングにおいて表土の分析に採用している方法である)

文 献

- 1)藤原 英司:ICP-DRC-MS によるヨウ素-129 の迅速測定 ,TX テクノロジー・ショーケース・イン・ツクバ 2008 環境
- 2)文部科学省 : 放射能測定シリーズ 32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法 (平成 16 年度)
- 3)文部科学省 : 放射能測定シリーズ 26 ヨウ素-129 分析法 (平成 8 年)

環境放射線モニタリングにおける土試料の特性調査

葛西邦生 竹ヶ原 仁

1. はじめに

環境放射線モニタリングにおける土試料の調査は原子力施設の影響の評価に資するため、原子力施設による放射性物質の蓄積状況の把握、大気圏内核爆発実験後のバックグラウンドレベルの長期的な変動及び放射性物質の分布等を把握するために行っている。

土試料については有機物含有量により、大気圏内核爆発実験等による人工放射性物質の吸着量に違いがみられることが知られている¹⁾。

また、土試料は粒径別に放射性物質の吸着量が異なることも考えられる²⁾ことから、土試料を粒径別に分類し、粒径や有機物含有量の指標となる強熱減量などと放射性核種濃度の関係について検討を行った。

本調査では、平成8年度から10年度にかけて河底土、湖底土、表土及び海底土を対象に調査を行った「土試料の粒度組成及び粒径別放射性核種濃度調査」と平成元年度から平成21年度までの環境放射線モニタリング結果³⁾等を用い、土試料のセシウム-137 (Cs-137) 等の放射能濃度と土の性状（有機物含有量及び粒径）の関係について整理を行った。

2. 調査方法

2.1 調査対象試料及び調査地点、項目

対象試料および調査地点は、現在青森県が実施している原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリングにおける土壌試料を対象として、表1のとおりとした。

表 1 調査対象試料及び調査地点、項目

試料名	採取場所	試料採取時期等 (試料数)		調査項目	分画した粒径
		粒径別調査	モニタリング		
河底土	老部川上流	H9年7月 (1)		Cs-137、強熱減量 (Sr-90、Pu-239+240、Am-241 は粒径別調査のみ実施)	<0.25mm 0.25~0.425mm 0.425~0.85mm 0.85~2.0mm
	老部川上流	H9年7月 (1)			
湖底土	尾駿沼	H10年7月 (1)	H1~H21年10月 (21)	Cs-137、Sr-90、Pu-239+240、Am-241、強熱減量 (Am-241 については H14年~H21年)	<0.075mm 0.075~0.125mm 0.125~2.0mm
	鷹架沼		H3~H21年10月 (19)		
	小川原湖		H1~H21年10月 (21)		
表土	尾駿	H10年7月 (1)	H1~H21年7月 (21)		<0.125mm 0.125~0.25mm 0.25~0.85mm
	横浜町	H10年7月 (1)	H7~H21年7月 (15)		
	千歳平		H1~H21年7月 (21)		
	青森市		H14~H21年7月 (8)		
海底土	放出口付近	H8年7月 (1)	H1~H21年10月 (21)	Cs-137、Sr-90、Pu-239+240、Am-241 (Am-241 については H14年~H21年)	<0.125mm 0.125~0.212mm 0.212~0.425mm 0.425mm~0.85mm
	放出口北 2km	H8年7月 (1)			
	放出口南 2km	H8年7月 (1)			

2.2 試料採取方法

(1) 河底土

地図により場所を確認し、毎年同じ場所で河底土をスコップですくい、ふるいを用いて粒径 2 mm 以下の河底土のみ採取した。

(2) 湖底土

GPS を用いて緯度、経度を確認し、毎年同じ場所でエクマンバージ採泥器を用い湖底土を採取した。

(3) 表土

ア 尾駁

地図により場所を確認し、3×3 m の範囲から 9 ポイント選定し、10 cm φ×5 cm 深の採土器を用いて採取した。

イ 千歳平、青森市

地図により場所を確認し、10×10 m の範囲から 9 ポイント選定し、10 cm φ×5 cm 深の採土器を用いて採取した。

ウ 横浜町

地図により場所を確認し、20×30 m の範囲から 12 ポイント選定し、10 cm φ×5 cm 深の採土器を用いて採取した。

(4) 海底土

GPS を用いて緯度、経度を確認し、スミスマッキンタイヤ採泥器を用い海底土を採取した。

2.3 前処理

(1) 粒径別調査用試料

ア 河底土

採取した試料を現地の河川水を用いて 0.075 mm のふるいを通し、乾燥(105 °C)した。ふるい残留分は乾燥(105 °C)後、乾式でふるいにより粒径別に分画した。分画した試料は、さらに乾燥(105 °C)した。

イ 湖底土

採取した試料を現地の湖沼水を用い、ふるいにより粒径別に分画した。分画した試料を遠心分離(3000rpm、10min)し、水分を除いた。分画した試料を均一化した。

ウ 表土

採取した試料を乾燥機で乾燥(105°C)後、乾式ふるいにより粒径別に分画した。

エ 海底土

採取した試料を現地の海水を用い、ふるいにより粒径別に分画した。分画した試料を乾燥(105°C)し、試料とした。

(2) モニタリング試料

ア 河底土、海底土

採取した試料をろ過し水分を除き乾燥(105°C)後、2mm ふるいを通した。

イ 湖底土

採取した試料をろ過し水分を除き乾燥(105°C)後、モーターグラインダーを用いて微粉碎

した。

ウ 表土

採取した試料から異物を取り除き、2mmふるいを通し乾燥(105°C)後、モーターグラインダーを用いて微粉碎した。

2.4 測定方法

(1) Cs-137

文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」に準拠し、ゲルマニウム半導体検出器を用いた。

(2) Sr-90

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ストロンチウム分析法」に準拠し、低バックグラウンドベータ線測定装置を用いた。

(3) Pu-239+240

文部科学省放射能測定法シリーズ「プルトニウム分析法」に準拠し、シリコン半導体検出器を用いた。

(4) Am-241

文部科学省放射能測定法シリーズ「アメリシウム分析法」に準拠し、シリコン半導体検出器を用いた。

(5) 強熱減量

環境省「底質調査方法」(昭和63年)に準拠した。

3. 調査結果及び考察

粒径別調査における測定結果を表2に示す。

3.1 河底土

河底土試料については老部川上流、下流の2地点において、土壌粒子の分類⁴⁾で粒径(0.25 mm未満)の細砂・シルト相当と粒径(0.25~0.425 mm、0.425~0.85 mm、0.85~2.0 mm)の中砂・粗砂相当の比較を行った。粒径別の放射能濃度、強熱減量の関係を図1~5に示す。

老部川上流では、粒径0.25 mm未満の放射能濃度が粒径(0.25~2.0 mm)の大きい3試料に比べ、高く、強熱減量も粒径の小さい土が高くなる傾向がある。

老部川下流でも老部川上流と同じ傾向がみられ、上流と下流で比較すると同じ粒径の土では上流で放射能濃度が高く、下流で低い傾向が見られた。

また粒径別試料についてのCs-137とSr-90、Cs-137とPu-239+240の関係を図6、7に示す。河底土における決定係数はCs-137とSr-90の関係で0.76、Cs-137とPu-239+240の関係で0.91であり、相関がみられた。

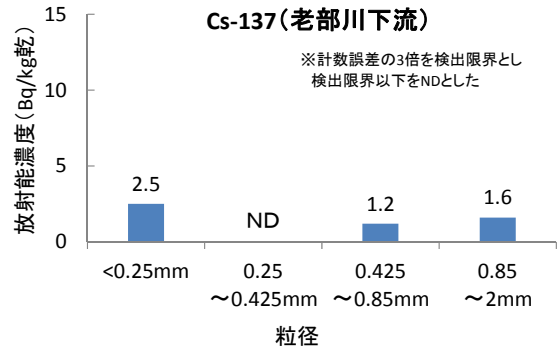
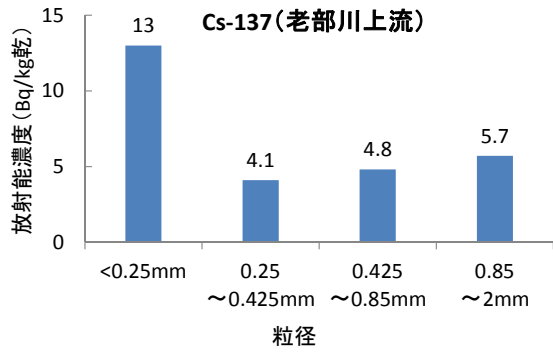


図1 粒径と Cs-137 の関係 (河底土)

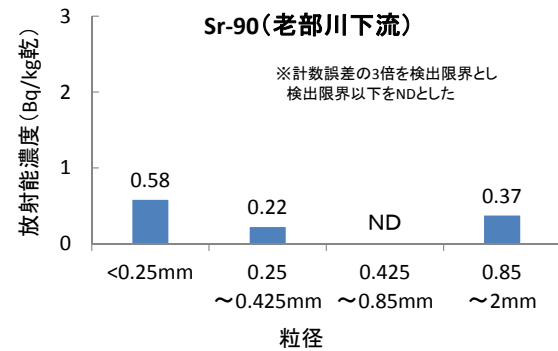
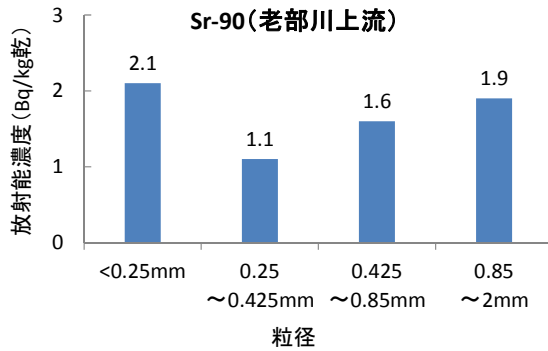


図2 粒径と Sr-90 の関係 (河底土)

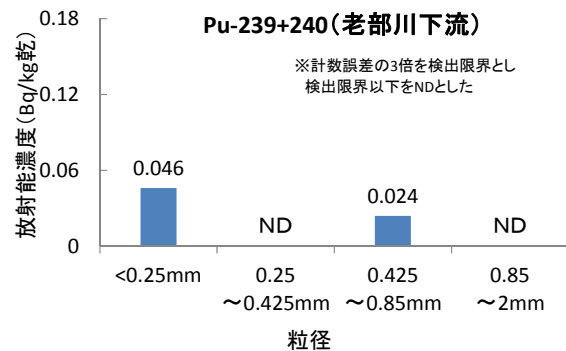
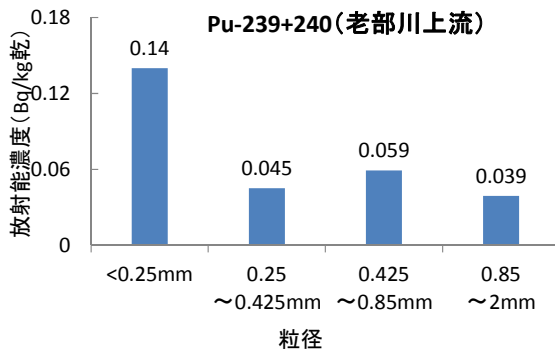


図3 粒径と Pu-239+240 の関係 (河底土)

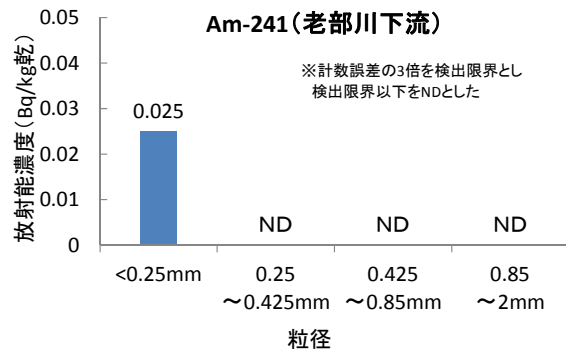
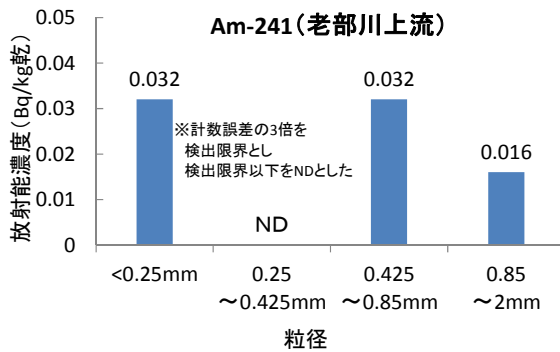


図4 粒径と Am-241 の関係 (河底土)

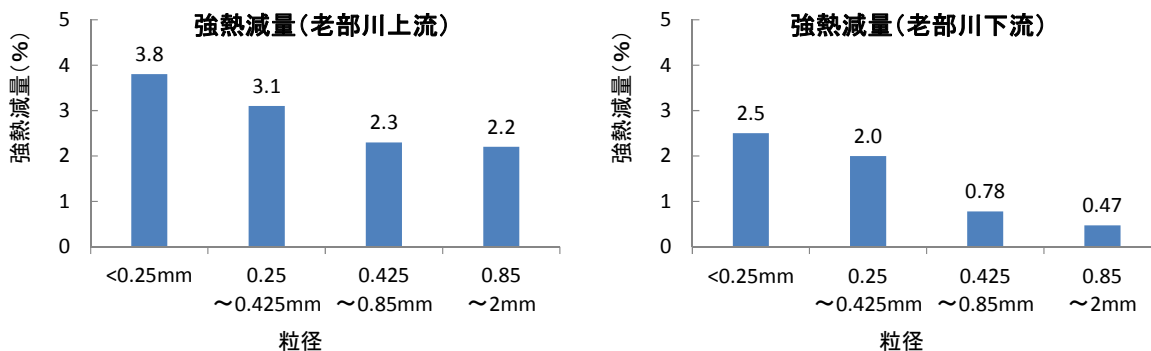


図5 粒径と強熱減量の関係（河底土）

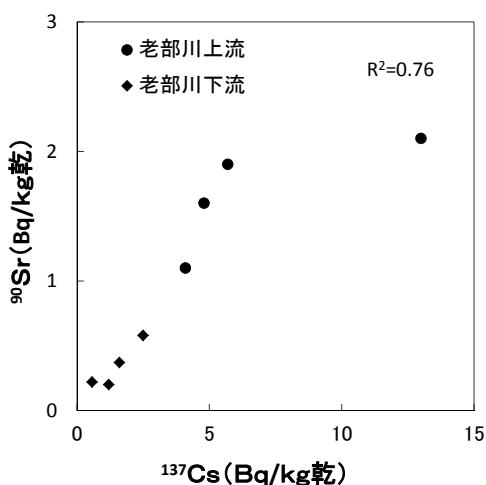


図6 Cs-137 濃度と Sr-90 濃度の関係
（河底土、粒径別調査）

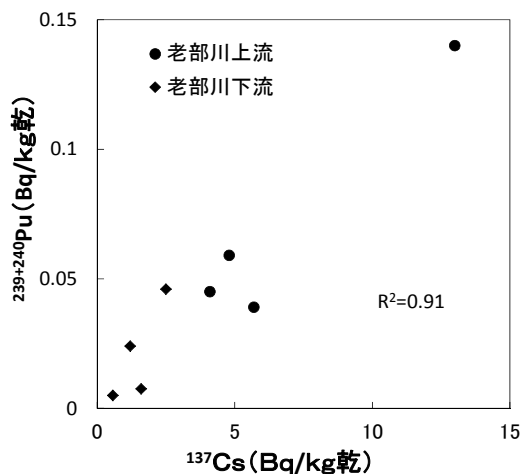


図7 Cs-137 濃度と Pu-239+240 濃度の関係
（河底土、粒径別調査）

3.2 湖底土

湖底土試料については尾駁沼において土壌粒子の分類で粒径（0.075 mm 未満）のシルト相当と粒径（0.075～0.125 mm）の細砂相当及び粒径（0.125～2.0 mm）の細砂・粗砂相当の比較を行った。粒径別の放射能濃度、強熱減量の関係を図8～12に示す。

尾駁沼では粒径の差による放射能濃度、強熱減量の違いはみられなかった。

湖底土についてのこれまでのモニタリング結果を用いて、Cs-137とSr-90、Cs-137とPu-239+240、Pu-239+240とAm-241の関係を図13～15に示す。尾駁沼、鷹架沼、小川原湖の湖底土における決定係数はCs-137とSr-90で0.78、0.69、0.91、Cs-137とPu-239+240で0.90、0.69、0.94、Pu-239+240とAm-241で0.98、0.96、0.99となり相関がみられた。Cs-137と強熱減量では湖底土においては相関がみられなかった。

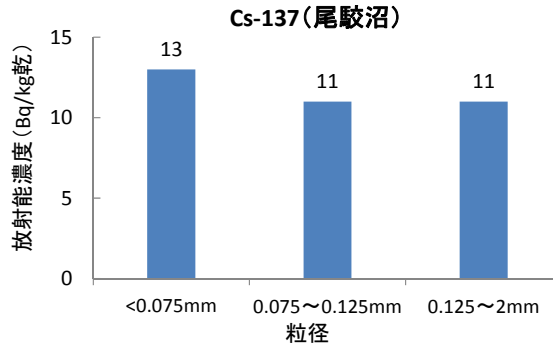


図8 粒径と Cs-137 の関係 (湖底土)

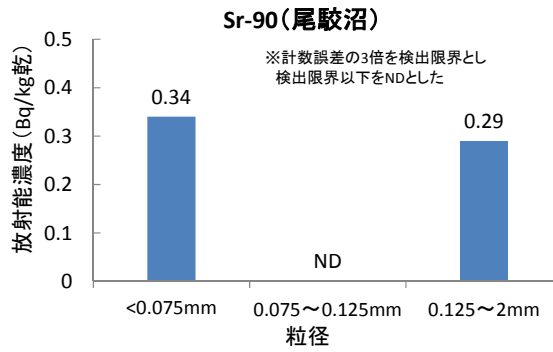


図9 粒径と Sr-90 の関係 (湖底土)

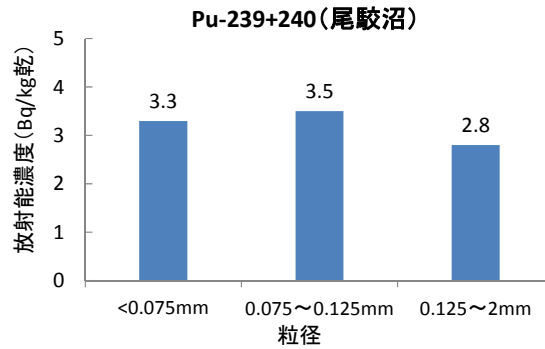


図10 粒径と Pu-239+240 の関係 (湖底土)

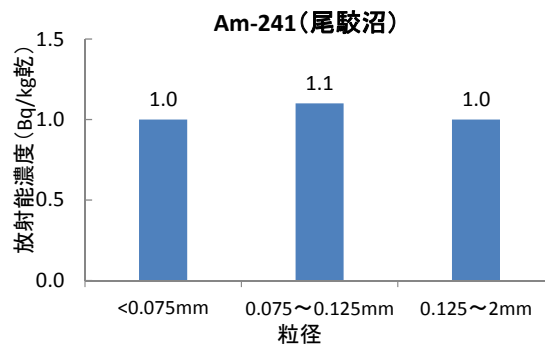


図11 粒径と Am-241 の関係 (湖底土)

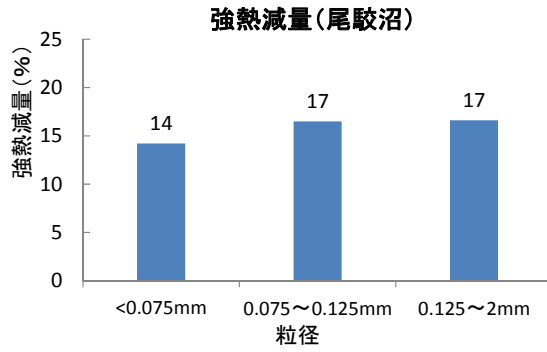


図 12 粒径と強熱減量の関係 (湖底土)

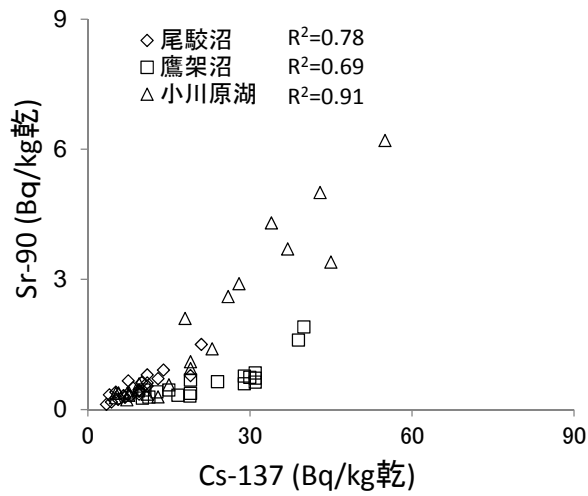


図 13 Cs-137 と Sr-90 濃度の関係 (湖底土、モニタリング)

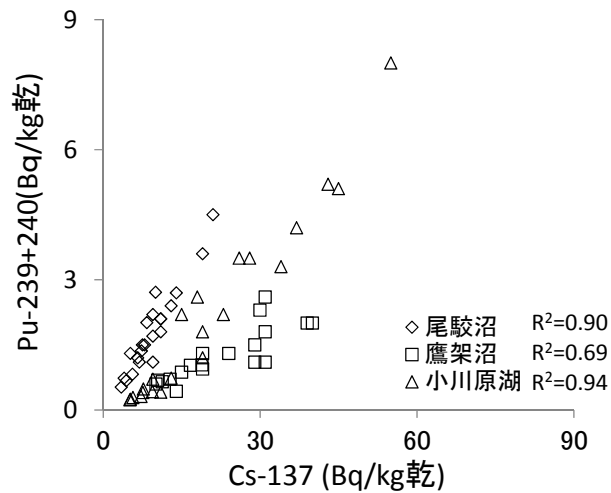


図 14 Cs-137 濃度及び Pu-239+240 濃度の関係 (湖底土、モニタリング)

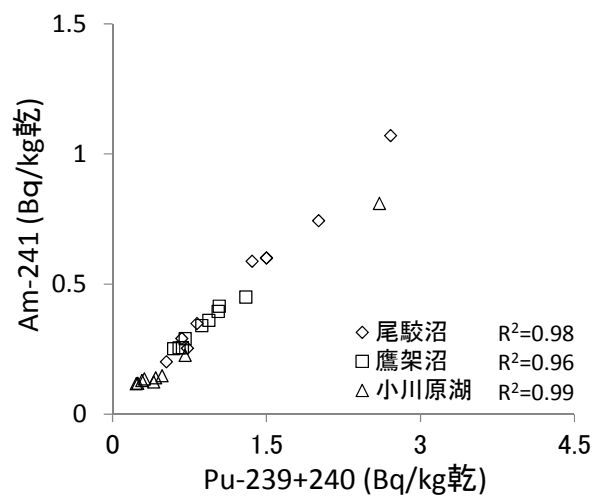


図 15 Pu-239+240 濃度及び Am-241 濃度の関係 (湖底土、モニタリング)

3.3 表土

表土試料については尾駸と横浜町の2地点で土壌粒子の分類で粒径（0.125 mm 未満）の細砂・シルト相当と粒径（0.125～0.25 mm）の細砂相当及び粒径（0.25～0.85 mm）の中砂相当の比較を行った。粒径別の放射能濃度、強熱減量の関係を図16～20に示す。

尾駸では、粒径0.125 mm 未満の放射能濃度が粒径（0.125～0.25 mm、0.25～0.85 mm）の大きい2検体に比べ、放射能濃度が高くなっている。強熱減量についても粒径0.125 mm 未満の試料が高くなっている。

横浜町では放射能濃度、強熱減量とも、粒径による差はあまりみられなかった。

表土についてのこれまでのモニタリング結果を用いてCs-137とSr-90、Cs-137とPu-239+240、Pu-239+240とAm-241の関係を図21～23に示す。表土における決定係数はCs-137とSr-90で0.72（図21）であり相関がみられた。Cs-137とPu-239+240では0.85（図22）であり相関がみられた。Pu-239+240とAm-241では0.89（図23）であり相関がみられた。

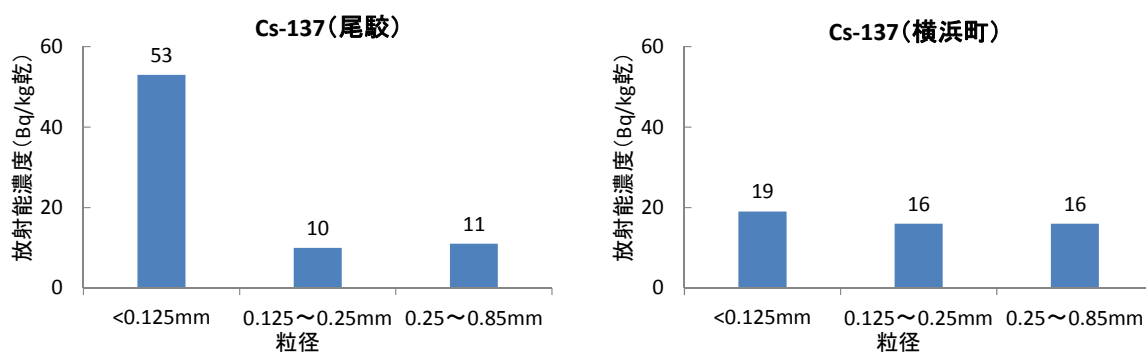


図16 粒径とCs-137濃度の関係（表土）

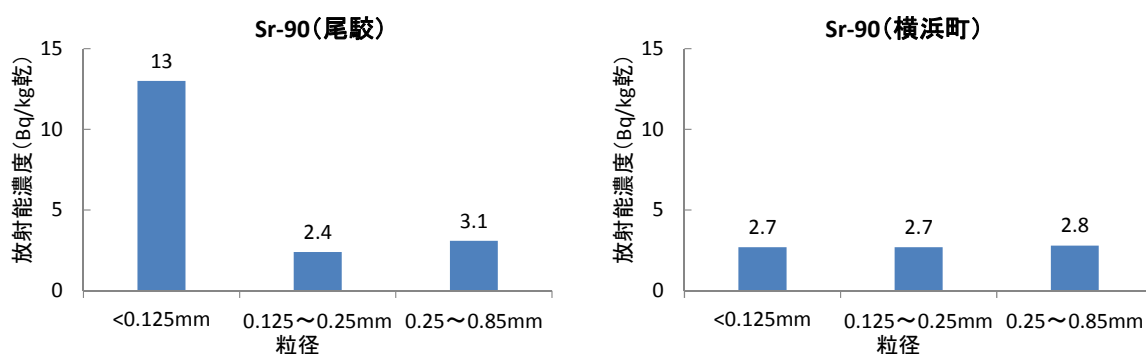


図17 粒径とSr-90濃度の関係（表土）

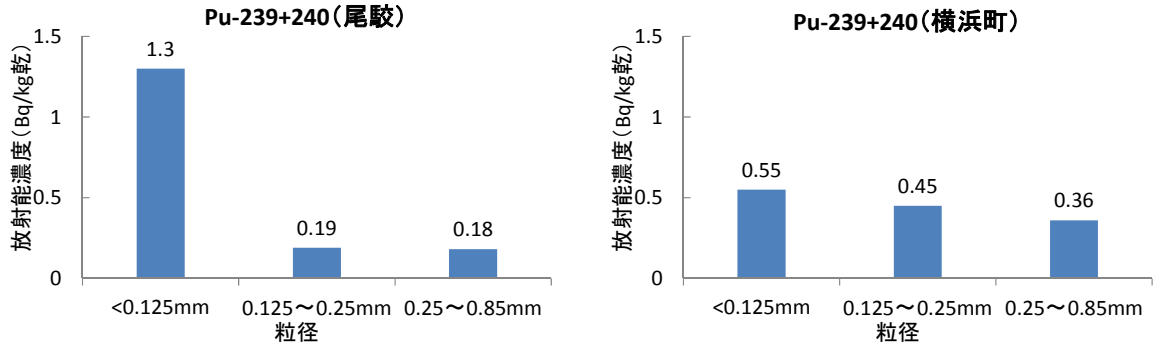


図 18 粒径と Pu-239+240 濃度の関係 (表土)

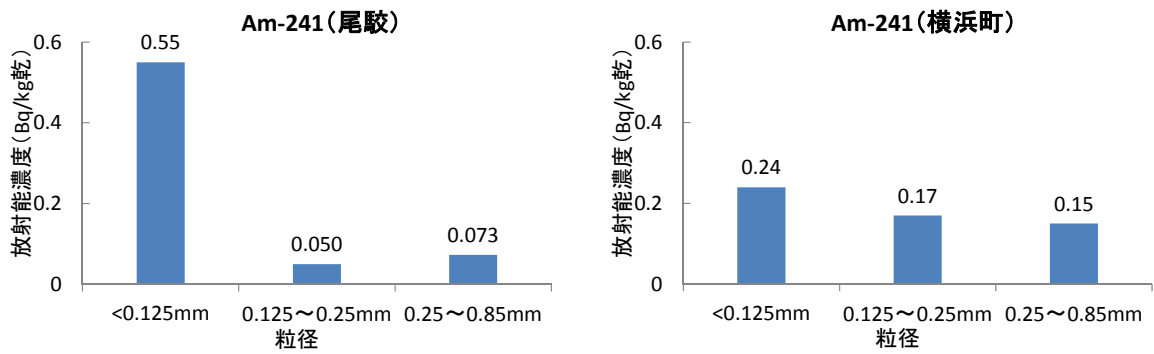


図 19 粒径と Am-241 濃度の関係 (表土)

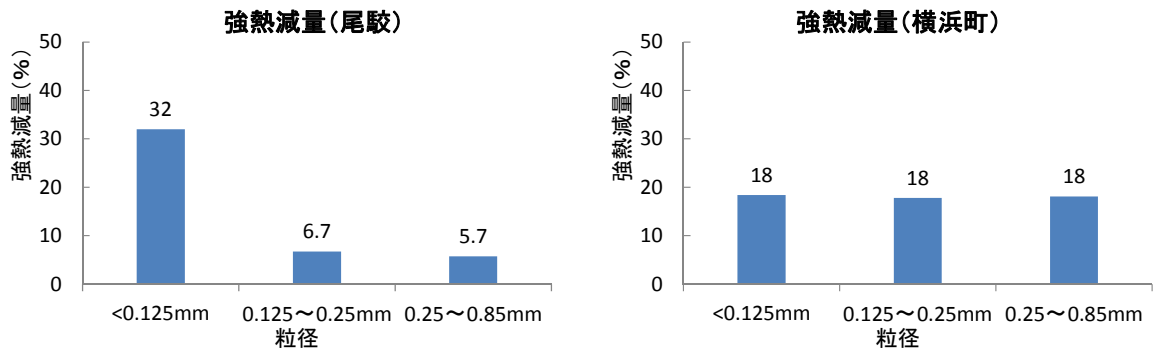


図 20 粒径と強熱減量の関係 (表土)

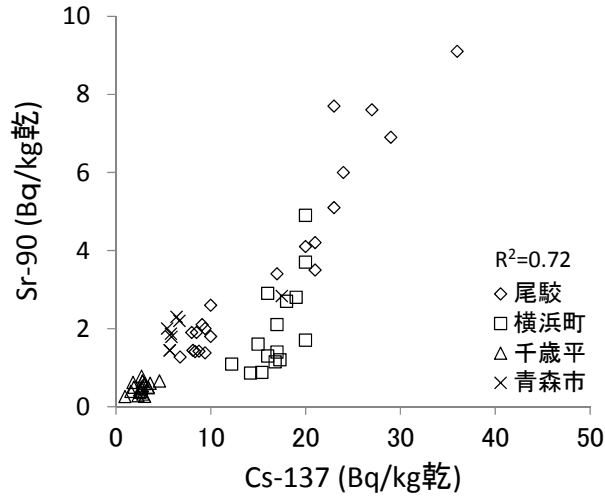


図 21 Cs-137 及び Sr-90 濃度の関係 (表土、モニタリング)

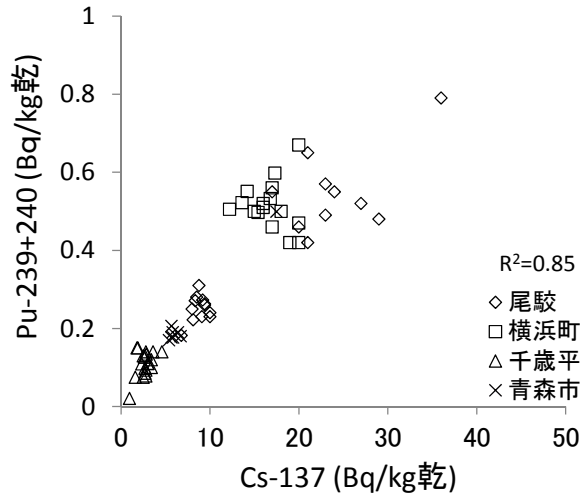


図 22 Cs-137 及び Pu-239+240 濃度の関係 (表土、モニタリング)

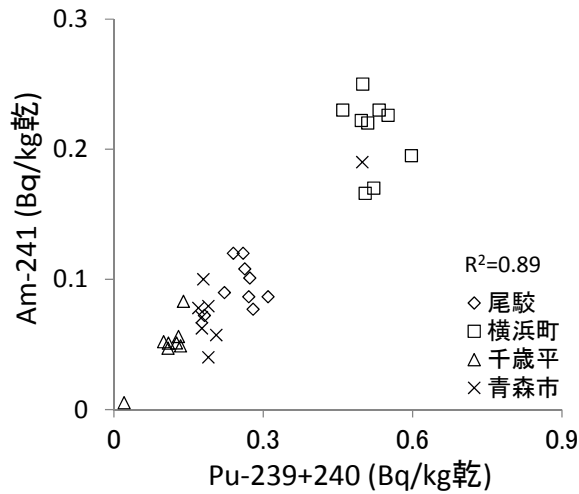


図 23 Pu-239+240 及び Am-241 濃度の関係 (表土、モニタリング)

3.4 海底土

海底土試料については放出口付近については土壌粒子の分類で粒径（0.125 mm 未満）の細砂・シルト相当、粒径（0.125～0.212 mm、0.212～0.425 mm、0.425～0.850 mm）の細砂、中砂相当について分析を行った。放出口北 20 km については粒径（0.212 mm 未満）の細砂・シルト相当、粒径（0.212～0.300 mm、0.300～0.425 mm）の粗砂、中砂相当について分析を行った。放出口南 20 km については粒径（0.075 mm 未満）のシルト相当、粒径（0.075～0.125 mm、0.125～0.212 mm）の細砂相当について分析を行った。粒径と放射能濃度の関係を図 24～26 に示す。

海底土試料の Cs-137 及び Sr-90 については、Cs-137 が検出されたのは海底土 10 試料中 2 試料であり、検出された 2 試料も検出限界に近い値であった（図 24）。Sr-90 についてはすべて検出限界以下であった。Pu-239+240 及び Am-241 についてはすべて検出された（図 25、26）。

海底土についてのこれまでのモニタリング結果を用いて Pu-239+240 と Am-241 の関係を図 27 に示す。海底土における決定係数は 0.87 であり相関がみられた。

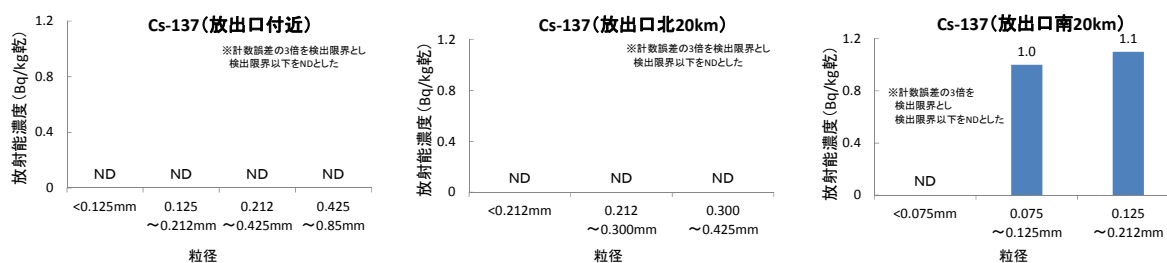


図 24 粒径と Cs-137 濃度の関係（海底土）

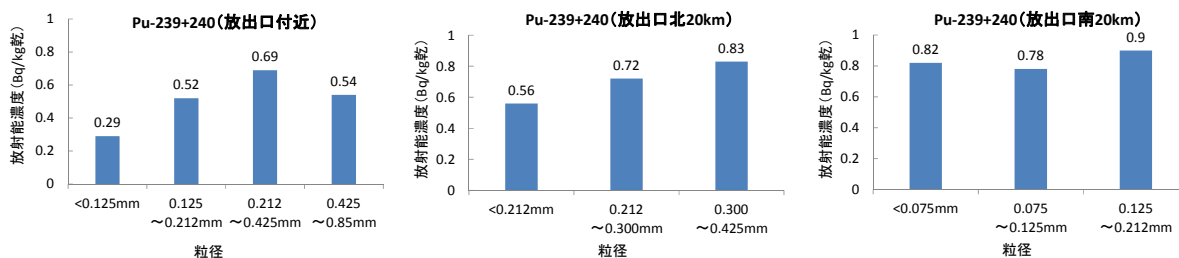


図 25 粒径と Pu-239+240 濃度の関係（海底土）

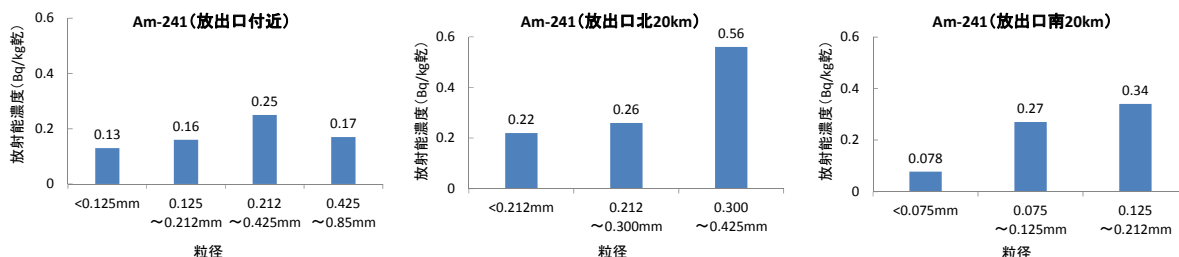


図 26 粒径と Am-241 濃度の関係（海底土）

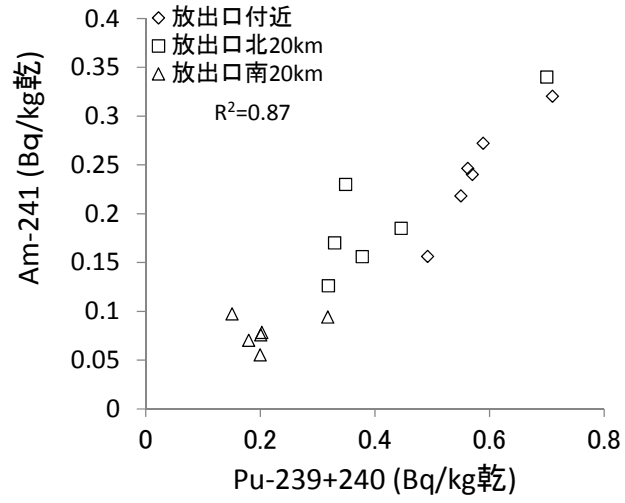


図 27 Pu-239+240 及び Am-241 の関係 (海底土、モニタリング)

表2 粒径別調査における測定結果

試料名	採取場所	採取日	粒径	土壌粒子の名称	分 析 項 目				
					Cs-137	Sr-90	Pu-239+240	Am-241	強熱減量(%)
河底土	老部川上流	H9.7.28	<0.25mm	シルト、細砂	13 ± 0.5	2.1 ± 0.18	0.14 ± 0.016	0.032 ± 0.0074	3.8
			0.25 ~0.425mm	中砂	4.1 ± 0.37	1.1 ± 0.14	0.045 ± 0.0092	(0.0062 ± 0.0036)	3.1
			0.425 ~0.85mm	中砂	4.8 ± 0.38	1.6 ± 0.17	0.059 ± 0.0086	0.032 ± 0.0066	2.3
			0.85 ~2mm	粗砂	5.7 ± 0.42	1.9 ± 0.17	0.039 ± 0.0081	0.016 ± 0.0047	2.2
	老部川下流	H9.7.28	<0.25mm	シルト、細砂	2.5 ± 0.3	0.58 ± 0.11	0.046 ± 0.009	0.025 ± 0.007	2.5
			0.25 ~0.425mm	中砂	(0.57 ± 0.28)	0.22 ± 0.07	(0.005 ± 0.0034)	(0.0049 ± 0.0045)	2.0
			0.425 ~0.85mm	中砂	1.2 ± 0.25	(0.2 ± 0.069)	0.024 ± 0.0078	(0.0029 ± 0.0037)	0.78
			0.85 ~2mm	粗砂	1.6 ± 0.32	0.37 ± 0.097	(0.0075 ± 0.0043)	(0.0048 ± 0.0039)	0.47
湖底土	尾駁沼	H10.7.8	<0.075mm	シルト	13 ± 0.8	0.34 ± 0.1	3.3 ± 0.16	1.0 ± 0.05	14
			0.075~0.125mm	細砂	11 ± 0.7	(0.22 ± 0.088)	3.5 ± 0.18	1.1 ± 0.05	17
			0.125~2mm	細砂、中砂、粗砂	11 ± 0.8	0.29 ± 0.09	2.8 ± 0.14	1.0 ± 0.05	17
表土	尾駁	H10.7.28	<0.125mm	シルト、細砂	53 ± 1.1	13 ± 0.4	1.3 ± 0.08	0.55 ± 0.031	32
			0.125~0.25mm	細砂	10 ± 0.5	2.4 ± 0.2	0.19 ± 0.021	0.050 ± 0.0073	6.7
			0.25~0.85mm	中砂	11 ± 0.5	3.1 ± 0.22	0.18 ± 0.019	0.073 ± 0.0097	5.7
	横浜町	H10.7.28	<0.125mm	シルト、細砂	19 ± 0.8	2.7 ± 0.22	0.55 ± 0.041	0.24 ± 0.017	18
			0.125~0.25mm	細砂	16 ± 0.8	2.7 ± 0.21	0.45 ± 0.028	0.17 ± 0.016	18
			0.25~0.85mm	中砂	16 ± 0.9	2.8 ± 0.25	0.36 ± 0.029	0.15 ± 0.014	18
海底土	放出口	H8.7.17	<0.125mm	シルト、細砂	(0.34 ± 0.3)	(0.11 ± 0.076)	0.29 ± 0.025	0.13 ± 0.011	
			0.125 ~0.212mm	細砂	(0.50 ± 0.3)	(0 ± 0.065)	0.52 ± 0.051	0.16 ± 0.015	
			0.212 ~0.425mm	細砂、中砂	(0.26 ± 0.39)	(0.026 ± 0.073)	0.69 ± 0.062	0.25 ± 0.02	
			0.425 ~0.85mm	中砂	(0 ± 0.67)	(0.13 ± 0.079)	0.54 ± 0.055	0.17 ± 0.018	
	放出口北	H8.7.17	<0.212mm	シルト、細砂	(0.13 ± 0.23)	(0.026 ± 0.066)	0.56 ± 0.04	0.22 ± 0.021	
			0.212 ~0.300mm	細砂、中砂	(0 ± 0.26)	(0.014 ± 0.073)	0.72 ± 0.047	0.26 ± 0.021	
			0.300 ~0.425mm	中砂	(0 ± 0.31)	(0.057 ± 0.061)	0.83 ± 0.055	0.56 ± 0.038	
			2mm以下		(0.12 ± 0.24)	(0.08 ± 0.073)	0.61 ± 0.044		
	放出口南	H8.7.17	<0.075mm	シルト	(0 ± 0.32)	(0.006 ± 0.05)	0.82 ± 0.054	0.078 ± 0.013	
			0.075 ~0.125mm	細砂	1.0 ± 0.31	(0.006 ± 0.051)	0.78 ± 0.051	0.27 ± 0.025	
			0.125 ~0.212mm	細砂	1.1 ± 0.35	(0.15 ± 0.08)	0.9 ± 0.059	0.34 ± 0.024	
			2mm以下		(0.26 ± 0.28)	(0 ± 0.052)	0.78 ± 0.051		

※()は検出限界以下

4. まとめ

土試料の放射性核種濃度と土の性状（強熱減量及び粒径）の関係を整理した結果、表3のとおりとなり、試料の核種毎に放射能濃度を評価する上で有効と考えられるいくつかの関係が認められた。

4.1 河底土

河底土試料は粒径が小さい場合について強熱減量が高くなり、放射能濃度も高くなる傾向にあった。また粒径別試料において Cs-137 と Pu-239+240、Cs-137 と Sr-90 の放射能濃度について相関がみられた。これらのことから粒径の大小、強熱減量、核種間の放射能濃度の関係について検討することは、河底土の放射能濃度の評価に有効であると考ええる。

4.2 湖底土

湖底土において Cs-137 と Pu-239+240、Cs-137 と Sr-90、Pu-239+240 と Am-241 の放射能濃度について湖沼ごとに核種間に相関がみられた。これらのことから核種間の放射能濃度の関係について検討することは、湖底土の放射能濃度の評価に有効であると考ええる。なお粒径、強熱減量については評価に有効な手段にならないと考える。

4.3 表土

表土において尾駸では粒径が小さい場合、強熱減量は大きくなり、放射能濃度も高くなる傾向にあるが、横浜町においては強熱減量、放射能濃度とも粒径による差はみられなかった。

Cs-137 と Sr-90、Cs-137 と Pu-239+240、Pu-239+240 と Am-241 の放射能濃度についてよい相関がみられた。これらのことから核種間の放射能濃度の関係について検討することは、表土の放射能濃度の評価に有効であると考ええる。

4.4 海底土

海底土において放出口付近、放出口北 20km、放出口南 20km 全地点において Cs-137 と Sr-90 の放射能濃度は検出限界以下もしくは検出限界に近い値であった。検出された Pu-239+240 と Am-241 についてはよい相関がみられた。これらのことから粒径の大小及び核種ごとの放射能濃度の関係について検討することは、放射能濃度の評価に有効であると考ええる。

表3 土試料の放射能濃度の評価に有効な検討手段 ()内は決定係数

項目	$^{137}\text{Cs}-^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}-\text{Pu}$	$\text{Pu}-^{241}\text{Am}$
河底土	○(0.76)	○(0.91)	—
湖底土(尾駁沼)	○(0.78)	○(0.90)	○(0.98)
湖底土(鷹架沼)	○(0.69)	○(0.69)	○(0.96)
湖底土(小川原湖)	○(0.91)	○(0.94)	○(0.99)
表土(尾駁)	○(0.72)	○(0.85)	○(0.89)
表土(横浜町)			
表土(千歳平)			
表土(青森市)			
海底土 (放出口付近)	—	—	○(0.87)
海底土 (放出口北 2km)			
海底土 (放出口南 2km)			

○：良い相関が認められる

×：相関が認められない

文 献

- 1) 天野光、松永武、上野隆、長尾誠也、柳瀬信之、渡辺美紀、半澤有希子：チェルノブイル事故炉周辺環境における長半減期放射性核種の分布と挙動、保健物理、36(4)、314-321(2001)
- 2) 樽崎幸範、松尾宏、永渕義孝、田上四郎、有田明人、佐々木重行：森林内の土壌移動に係る放射性核種の分布と特徴、RADIOISOTOPES、56、371-381(2007)
- 3) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書（平成元年～平成21年）
- 4) JIS A 1204 土の粒度試験

青森県における空間放射線量率特性調査

大坂直人 工藤俊明 安田 浩 伊藤摩耶*1

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モニタリングにおいて、空間放射線量率等の連続測定を実施している。本調査では、空間放射線量率等の連続測定地点を、それぞれ特徴的な気象条件にあると考えられる4つの地域に区分し、空間放射線量率の季節的な変動状況、気象要素との関係などについて詳細に検討し、今後のモニタリング結果の評価に資することを目的としている。

今年度は平成21年度から平成22年度までの測定データを用いて、気象条件と空間放射線量率との関係等について調査し検討を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地点

空間放射線量率等の連続測定を実施しているモニタリングステーション（以下「MS」という。）及びモニタリングポスト（以下「MP」という。）の調査地点を図1に示す。図1では、調査地点を、それぞれ特徴的な気象条件にあると考えられる下記の4地域に区分している。

太平洋側地域 : 尾駁、平沼、泊、小田野沢、老部、三沢市役所

内陸地域 : 千歳平、東北町役場、東北分庁舎、砂子又

陸奥湾側地域 : 吹越、横浜町役場、野辺地町役場、近川、青森

津軽海峡側地域 : 関根

また、各調査地点における測定項目を表1に示す。

2.2 調査項目

- (1) 風向・風速及び大気安定度毎に空間放射線量率の変動事例を集計し、気象条件と空間放射線量率との関係について検討を行う。
- (2) 降水量と空間放射線量率、Bi-214 計数率の関係を調査し検討を行う。
- (3) 積雪深と空間放射線量率、Tl-208 計数率の関係を調査し検討を行う。
- (4) 空間放射線量率の変動が見られた場合のガンマ線スペクトルを解析し、空間放射線量率の変動要因を推定する。
- (5) 以上のような検討を各 MS・MP ごと、また区分した4つの地域ごとにとりまとめて比較し、それぞれの地点・地域及び季節による特性を把握する。

今年度は上記の(2)、(3)及び(5)について調査し検討を行った。(2)では降水量と NaI(Tl)シンチレーション検出器による空間放射線量率（以下「空間放射線量率 (NaI)」という。）との関係について、(3)では積雪深と空間放射線量率 (NaI) との関係について、それぞれ1時間値の測定データを用いて調査し検討を行った。(5)では、(2)及び(3)での検討を各 MS・MP ごと、

*1: 財団法人 日本分析センター

また区分した4つの地域ごとにとりまとめて比較し、それぞれの地点・地域及び季節による特性について調査し検討を行った。

3. 調査結果

今年度調査した気象要素（降水量、積雪深）と空間放射線量率（NaI）との関係について、各地域区分から1～2地点ずつ選択（尾駈、千歳平、老部、近川、関根）して図2～図6に示す。降水量と空間放射線量率（NaI）の関係については、降水量0mmのデータを除いてグラフを作成し、積雪深と空間放射線量率（NaI）については、感雨有りのデータを除いてグラフを作成した。なお、平成22年度第4四半期における千歳平の降水量データについては、雨雪量計の不具合による欠測のためグラフには当該四半期のデータをプロットしていない。図7に千歳平の地上約10mにおける風配図（平成22年4月～平成23年3月）¹⁾を、図8及び図9に各測定局における気象要素（降水量、積雪深）と空間放射線量率（NaI）の関係を示す回帰式の傾きを地域区分ごとにプロットした。また、表2及び表3に各測定局における気象要素（降水量、積雪深）と空間放射線量率（NaI）の関係を示す回帰式の傾きとその誤差を示した。

3.1 降水量と空間放射線量率（NaI）との関係について

降水量と空間放射線量率（NaI）の関係（図2～図6）をみると、降水がある場合に空間放射線量率（NaI）が高くなることがあった。これは、降水中に放射性物質（ラドンまたはラドンの壊変生成物）が含まれているためと考えられる。一方、降水量が多くても空間放射線量率（NaI）が上昇しないことがあった。これは、降水中に放射性物質（ラドンまたはラドンの壊変生成物）が含まれていないためと考えられる。

第1・2四半期と第3・4四半期では降水による空間放射線量率（NaI）の上昇の度合いが異なった。これは、第1・2四半期は海洋由来、第3・4四半期は大陸由来の風が吹くためであると考えられる（図7）。

降水量と空間放射線量率（NaI）の回帰式の傾きは、全体的にみて、第1・2四半期に比べ第3四半期、第4四半期と徐々に大きくなる傾向がみられた（図8）。太平洋側地域の小田野沢では、平成22年度第3四半期の傾きが第1・2四半期に比べて大きくなる傾向がみられず、内陸地域の千歳平では、平成21年度は年間を通して傾きの変化が小さかった。また、陸奥湾側地域の近川では、平成22年度第4四半期の傾きが第3四半期に比べて大きくなり、津軽海峡側地域の関根では、第3四半期に傾きが大きくなる傾向がみられなかった。

3.2 積雪深と空間放射線量率（NaI）との関係について

積雪深と空間放射線量率（NaI）の関係（図2～図6）をみると、積雪がある場合には、空間放射線量率（NaI）が低くなることが確認された。これは大地からのγ線が積雪によって遮へいされるためと考えられる。

積雪深と空間放射線量率（NaI）の回帰式の傾きは、全体的にみて、第4四半期に比べ第3四半期が負の傾きが大きくなる傾向がみられた。太平洋側地域については、平成21年度の小田野沢及び平成22年度の全地点において、前述の傾向はみられなかった。

4. まとめ

平成 21 年度から平成 22 年度までの測定データを用いて、気象要素と空間放射線量率 (NaI) との関係について調査し検討を行った。

降水量と空間放射線量率 (NaI) との関係については、降水がある場合に空間放射線量率 (NaI) が高くなることがあった。また、第 1・2 四半期に比べて第 3・4 四半期のほうが降水による空間放射線量率 (NaI) の上昇の度合いが大きくなる傾向がみられた。

積雪深と空間放射線量率 (NaI) との関係については、積雪がある場合には、空間放射線量率 (NaI) が低くなることが確認された。

平成 24 年度は、平成 23 年度の測定データも用いて気象条件と空間放射線量率との関係等について調査及び検討を進め、地域及び季節による特性を把握する。また、今年度実施できなかった調査事項として、風向・風速及び大気安定度毎に線量率の変動事例を集計し、それら気象条件と空間放射線量率との関係について検討を行うほか、降水量と Bi-214 計数率、積雪深と Tl-208 計数率の関係等について調査し検討する。

文 献

- 1) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書（平成 22 年度報）

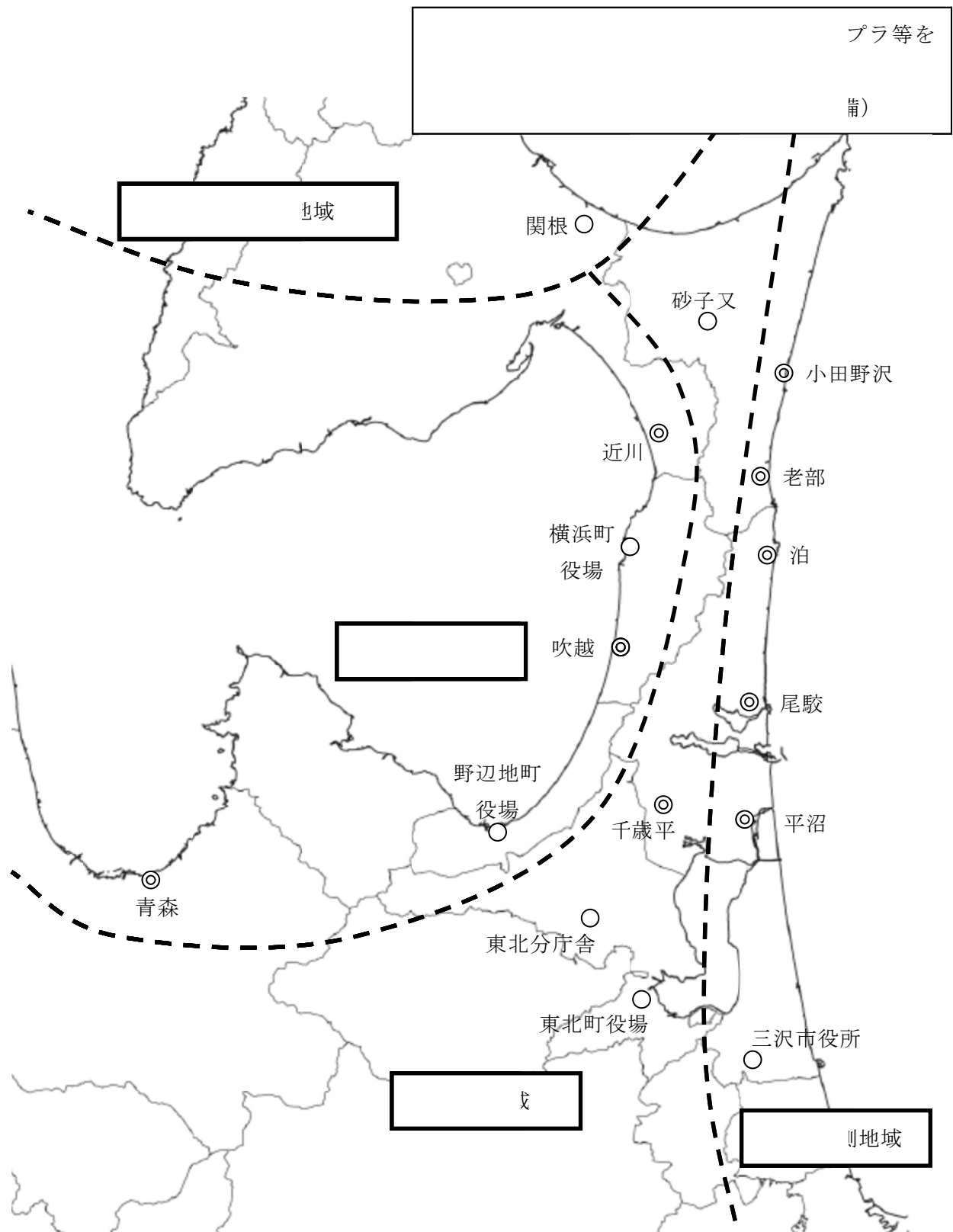


図1 調査地点図

表1 空間放射線等測定地点及び測定項目

市町村	測定地点	空間放射線量率		大気浮遊 じん中の 放射能	大気中の 気体状β 放射能	大気中 ヨウ素	大気中の 気体状 フッ素	気象									
		低線量 率計	高線量 率計					風向 風速	気温	降水量	感雨	積雪深	日射量	放射 収支量	湿度	大気 安定度	
六ヶ所村	尾駸	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	千歳平	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	平沼	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	泊	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
横浜町	吹越	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	横浜町役場	○															
野辺地町	野辺地町役場	○															
	東北町役場	○															
東北町	東北分庁舎	○															
	小田野沢	○		○		○											
東通村	老部	○		○		○											○
	砂子又	○		○		○											
三沢市	三沢市役所	○															
	近川	○		○		○											○
むつ市	関根	○		○		○											
	環境保健 センター	○		○		○											

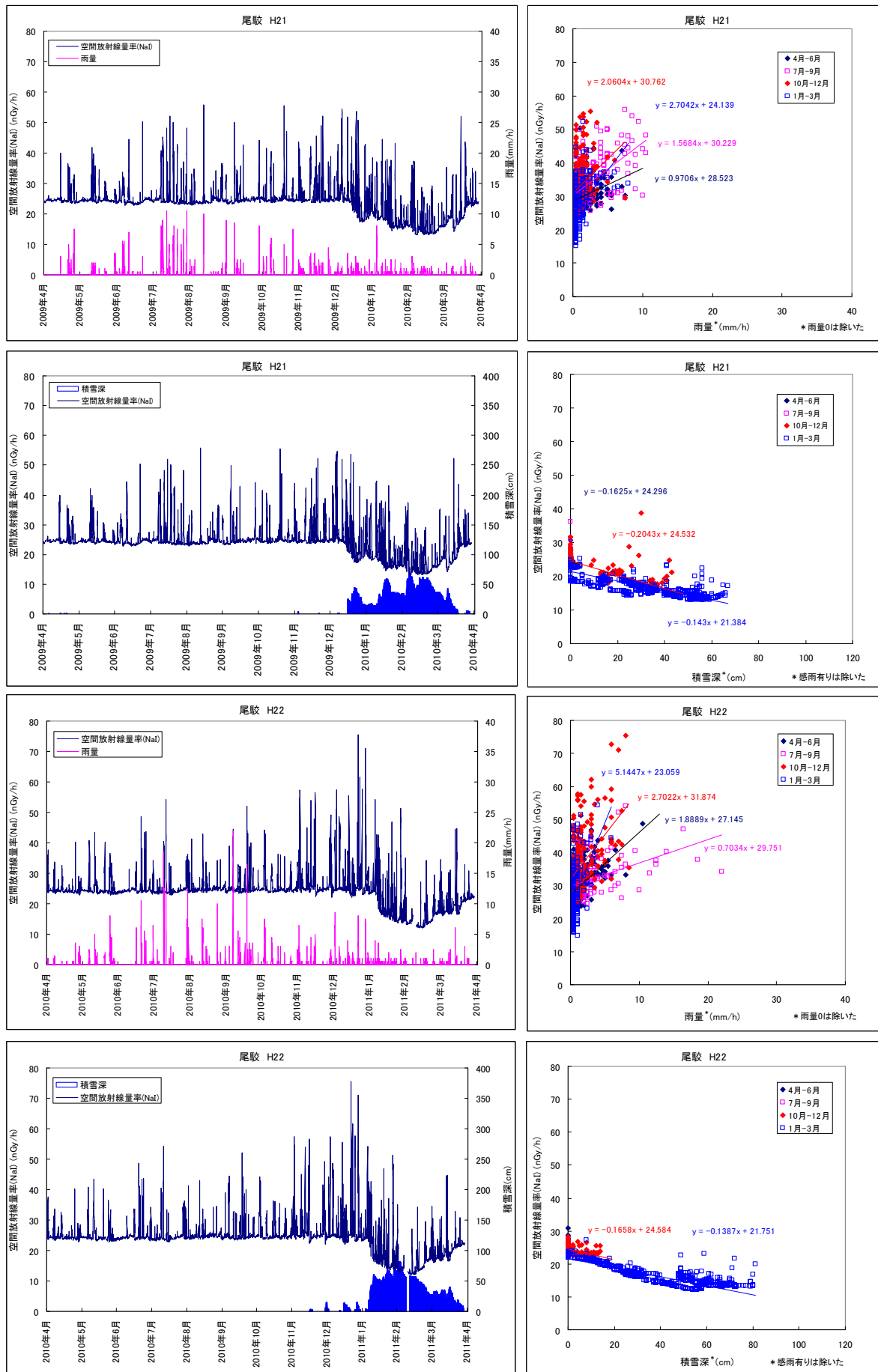


図2 気象要素と空間放射線量率 (NaI) との関係 (尾駁)

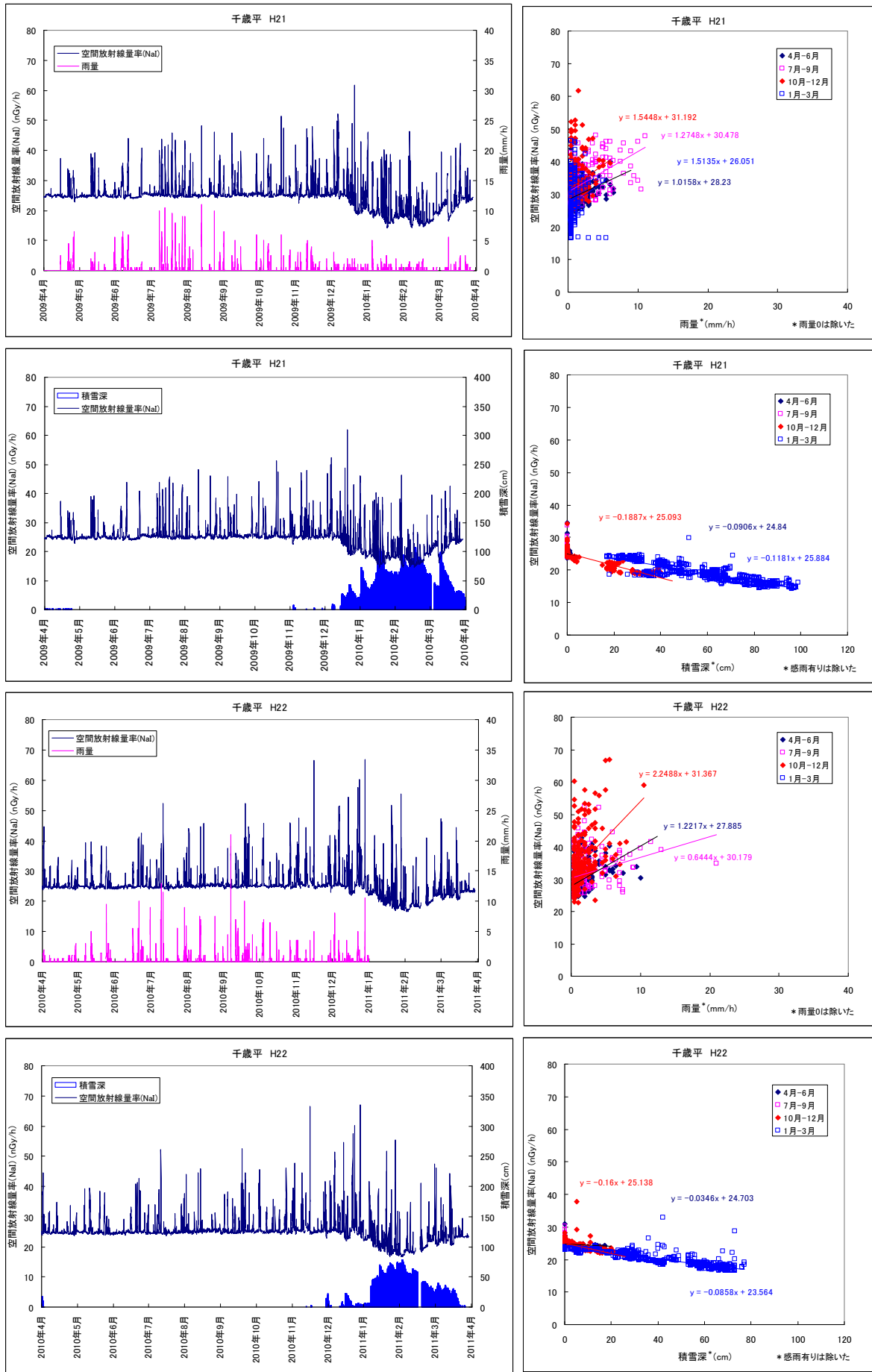


図3 気象要素と空間放射線量率 (NaI) との関係 (千歳平)

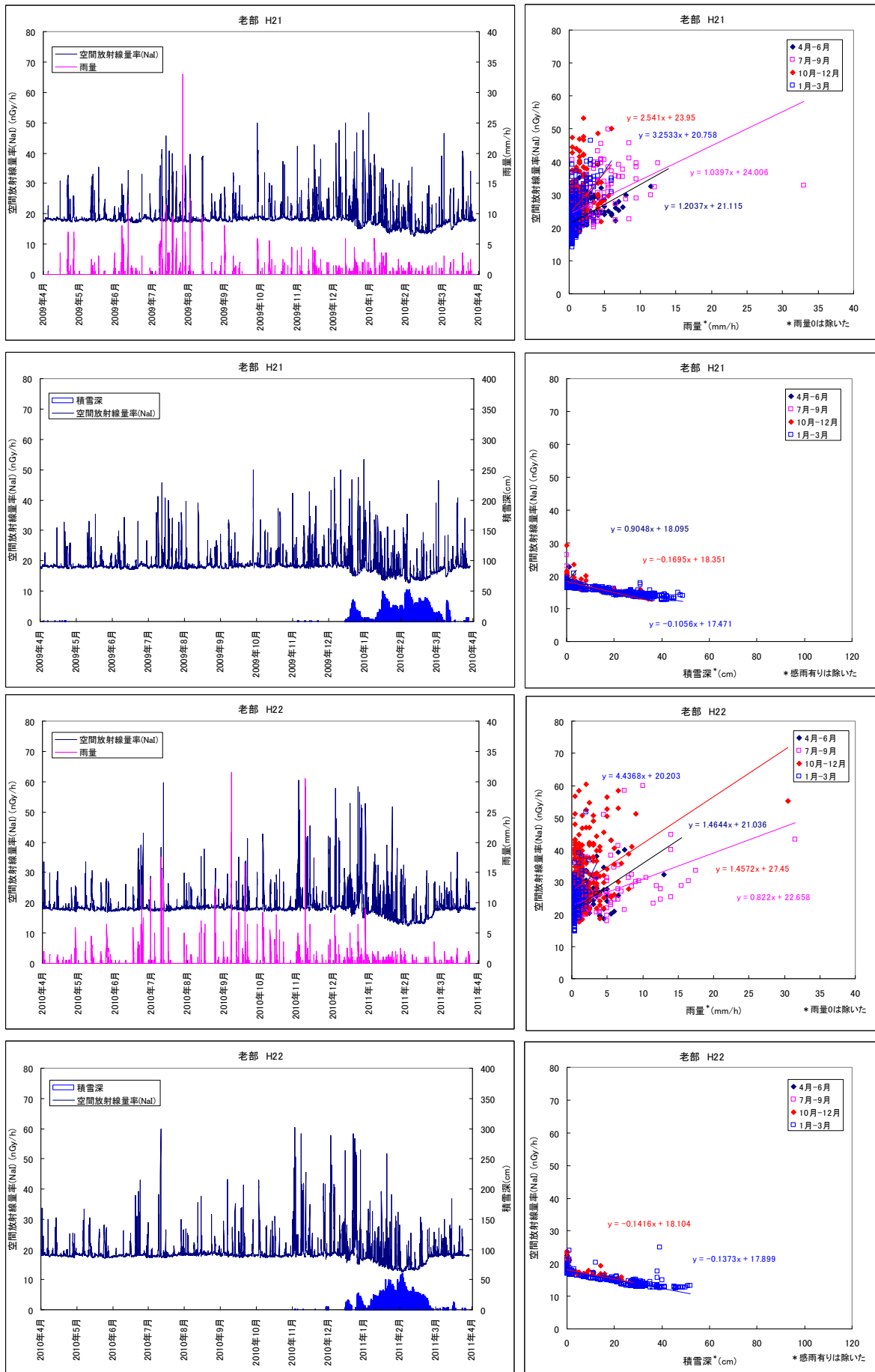


図4 気象要素と空間放射線量率 (NaI) との関係 (老部)

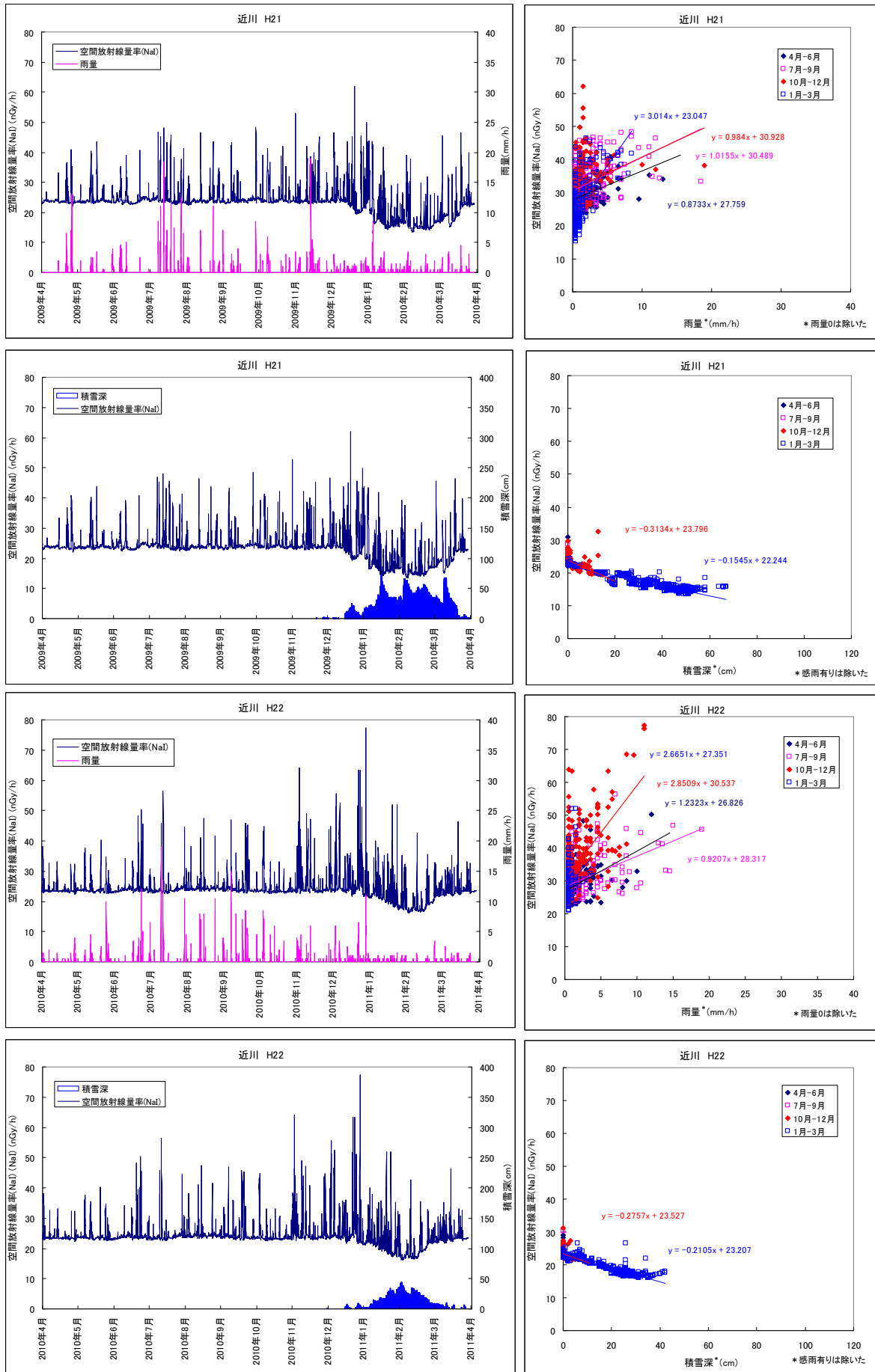


図5 気象要素と空間放射線量率 (NaI) との関係 (近川)

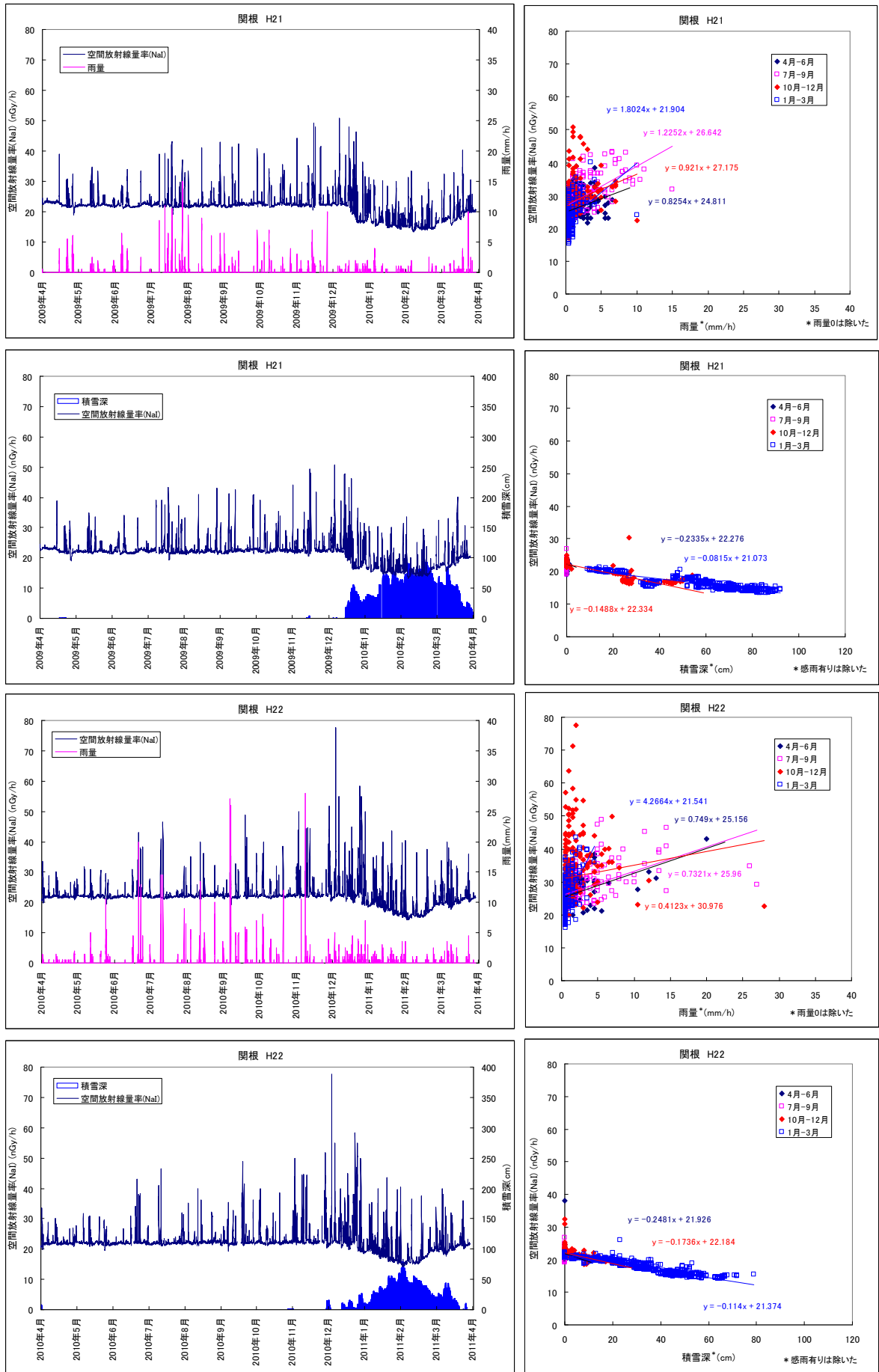


図6 気象要素と空間放射線量率 (NaI) との関係 (関根)

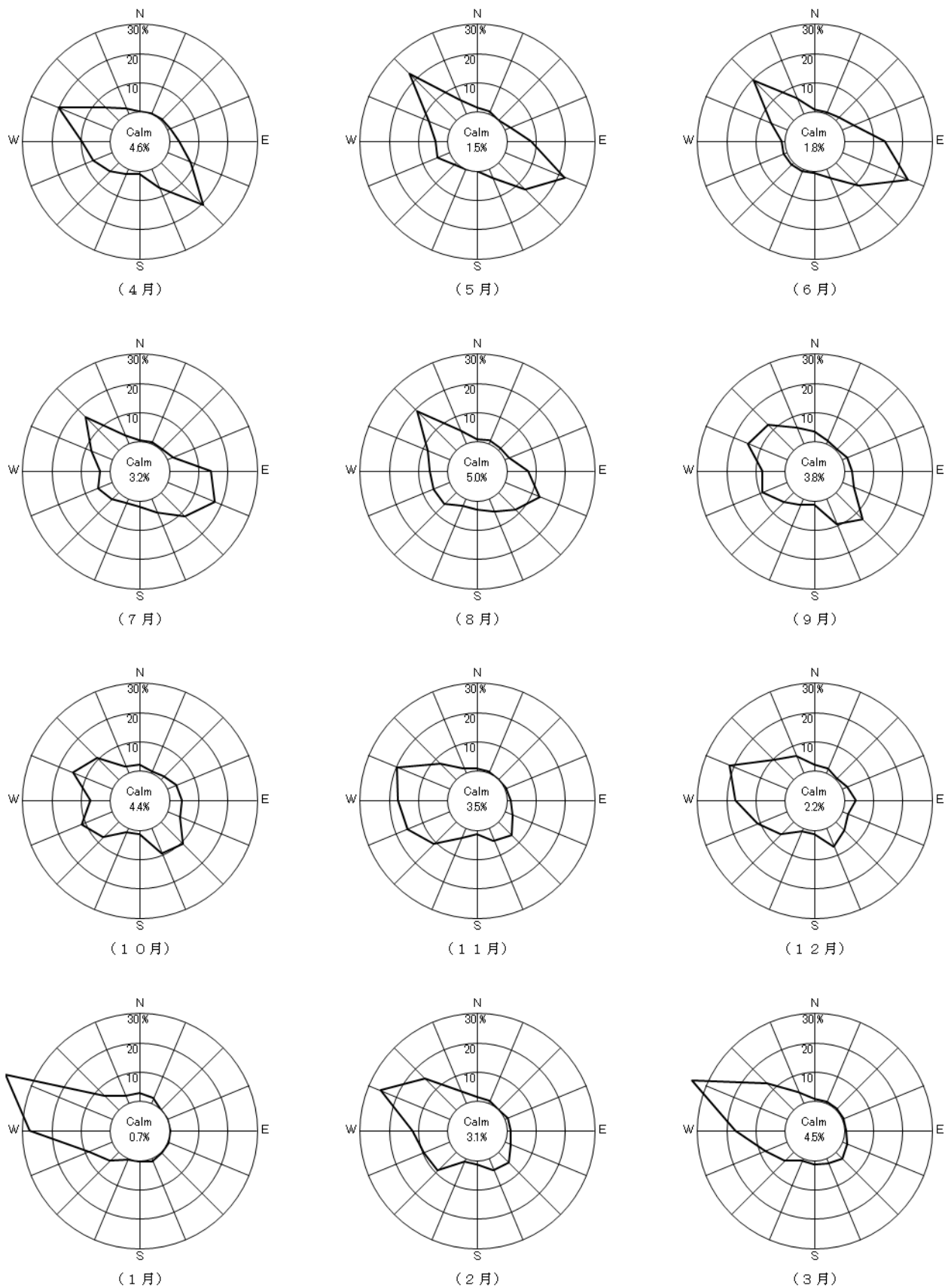


図7 千歳平(地上約10 m)における風配図(平成22年4月~平成23年3月)

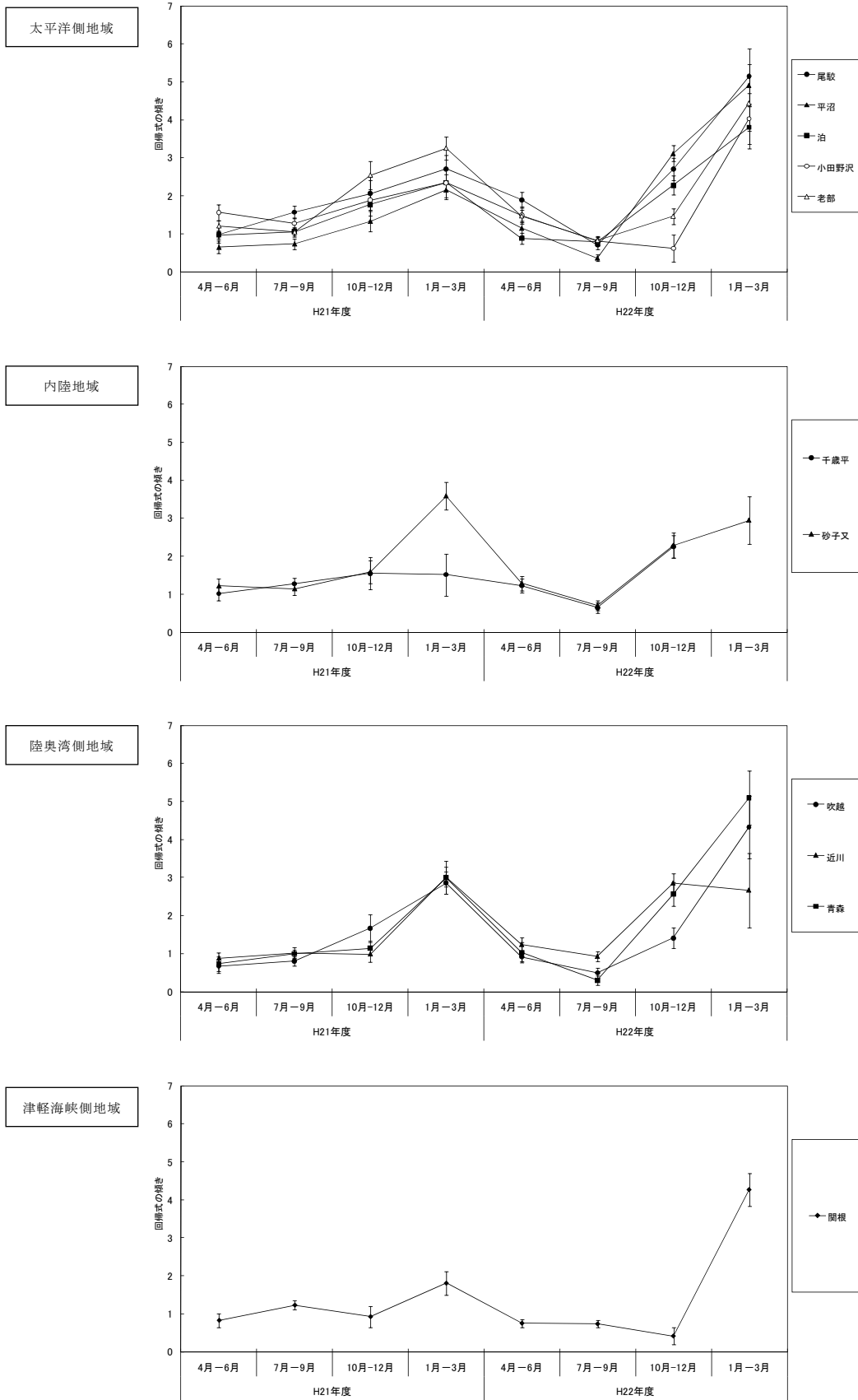


図8 降水量と空間放射線量率 (NaI) の関係を示す回帰式の傾きの比較図

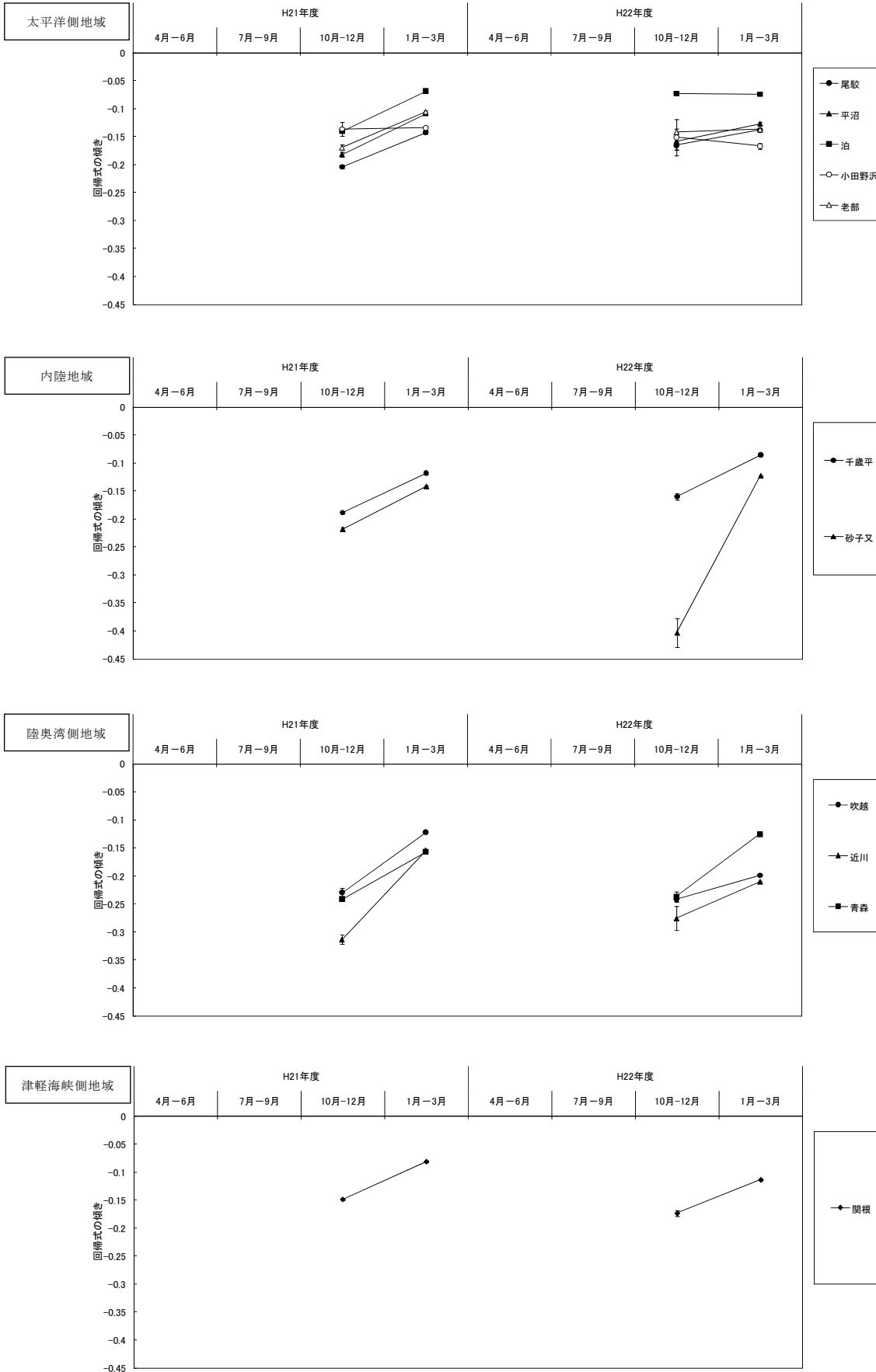


図9 積雪深と空間放射線量率 (NaI) の関係を示す回帰式の傾きの比較図

表2 降水量と空間放射線量率 (NaI) の関係を示す回帰式の傾きとその誤差

地域名	地点名	平成21年度				平成22年度			
		第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
太平洋側地域	尾駁	0.97 ± 0.20	1.57 ± 0.16	2.06 ± 0.43	2.70 ± 0.36	1.89 ± 0.21	0.70 ± 0.12	2.70 ± 0.30	5.14 ± 0.73
	平沼	0.64 ± 0.16	0.73 ± 0.14	1.33 ± 0.26	2.15 ± 0.24	1.15 ± 0.18	0.36 ± 0.09	3.11 ± 0.21	4.91 ± 0.56
	泊	0.97 ± 0.10	1.06 ± 0.11	1.77 ± 0.29	2.35 ± 0.22	0.88 ± 0.14	0.79 ± 0.11	2.27 ± 0.25	3.80 ± 0.57
	小田野沢	1.56 ± 0.21	1.28 ± 0.15	1.89 ± 0.53	2.34 ± 0.38	1.49 ± 0.22	0.80 ± 0.12	0.62 ± 0.36	4.03 ± 0.67
	老部	1.20 ± 0.14	1.04 ± 0.13	2.54 ± 0.38	3.25 ± 0.30	1.46 ± 0.17	0.82 ± 0.11	1.46 ± 0.21	4.44 ± 0.73
内陸地域	千歳平	1.02 ± 0.18	1.27 ± 0.14	1.54 ± 0.42	1.51 ± 0.55	1.22 ± 0.18	0.64 ± 0.14	2.25 ± 0.30	— ※
	砂子又	1.21 ± 0.19	1.14 ± 0.16	1.59 ± 0.30	3.59 ± 0.36	1.29 ± 0.19	0.70 ± 0.13	2.28 ± 0.33	2.95 ± 0.62
陸奥湾側地域	吹越	0.67 ± 0.18	0.80 ± 0.12	1.66 ± 0.36	2.85 ± 0.29	0.92 ± 0.12	0.49 ± 0.13	1.40 ± 0.27	4.32 ± 0.82
	近川	0.87 ± 0.15	1.02 ± 0.15	0.98 ± 0.21	3.01 ± 0.26	1.23 ± 0.19	0.92 ± 0.13	2.85 ± 0.25	2.67 ± 0.98
	青森	0.73 ± 0.19	0.99 ± 0.10	1.14 ± 0.19	3.00 ± 0.43	1.03 ± 0.27	0.30 ± 0.12	2.56 ± 0.32	5.09 ± 0.71
津軽海峡側地域	関根	0.83 ± 0.18	1.23 ± 0.12	0.92 ± 0.28	1.80 ± 0.31	0.75 ± 0.11	0.73 ± 0.09	0.41 ± 0.23	4.27 ± 0.43
平均		0.97	1.10	1.58	2.60	1.21	0.66	1.99	4.16
標準偏差		0.27	0.23	0.48	0.63	0.33	0.20	0.90	0.84
最大		1.56	1.57	2.54	3.59	1.89	0.92	3.11	5.14
最小		0.64	0.73	0.92	1.51	0.75	0.30	0.41	2.67

※ 雨雪量計の不具合による欠測。

表3 積雪深と空間放射線量率 (NaI) の関係を示す回帰式の傾きとその誤差

地域名	地点名	平成21年度		平成22年度	
		第3四半期	第4四半期	第3四半期	第4四半期
太平洋側地域	尾駁	-0.204 ± 0.004	-0.143 ± 0.003	-0.166 ± 0.008	-0.139 ± 0.002
	平沼	-0.182 ± 0.005	-0.109 ± 0.002	-0.159 ± 0.016	-0.128 ± 0.003
	泊	-0.141 ± 0.003	-0.069 ± 0.001	-0.073 ± 0.003	-0.075 ± 0.001
	小田野沢	-0.137 ± 0.012	-0.135 ± 0.003	-0.151 ± 0.033	-0.167 ± 0.006
	老部	-0.170 ± 0.005	-0.106 ± 0.001	-0.142 ± 0.005	-0.137 ± 0.002
内陸地域	千歳平	-0.189 ± 0.002	-0.118 ± 0.002	-0.160 ± 0.006	-0.086 ± 0.001
	砂子又	-0.218 ± 0.003	-0.142 ± 0.002	-0.403 ± 0.026	-0.123 ± 0.002
陸奥湾側地域	吹越	-0.230 ± 0.008	-0.122 ± 0.002	-0.241 ± 0.005	-0.199 ± 0.002
	近川	-0.313 ± 0.008	-0.155 ± 0.002	-0.276 ± 0.021	-0.211 ± 0.002
	青森	-0.241 ± 0.003	-0.157 ± 0.002	-0.237 ± 0.009	-0.126 ± 0.002
津軽海峡側地域	関根	-0.149 ± 0.002	-0.082 ± 0.001	-0.174 ± 0.005	-0.114 ± 0.001
平均		-0.198	0.005	-0.122	0.002
標準偏差		0.052	0.003	0.029	0.001
最大		-0.137	0.012	-0.069	0.003
最小		-0.313	0.002	-0.157	0.001

編 集 委 員

庄司博光（委員長） 小川政幸（副委員長） 安田 浩 工藤俊明
竹ヶ原 仁 五十嵐 健 木村芳伸 大下内 伸 佐々木隆文

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 6 号 (2011)

平成 24 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 円です。

