

# 青森県原子力センター所報

第18号

令和5年度

Bulletin  
of  
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.18(2023)

青森県原子力センター

<https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/genshisenta/center-home.html>



## は　じ　め　に

青森県原子力センターは、県内原子力施設周辺住民の安全の確保及び環境の保全を図るため、放射能の調査・原子力施設の監視機関として、六ヶ所村に設置されました。

主な業務は、環境放射線等の監視に関すること及び立地した原子力施設の安全性に関することであり、このうち環境放射線等の監視については、測定する項目、地点及び調査する環境試料の種類等を原子力施設毎に定めたモニタリング計画に基づき、空間放射線の測定・監視及び環境試料の分析・測定を行っています。

当センター所報は、これら日常のモニタリングで得られた知見や関連して実施している調査研究の成果をとりまとめたものです。とりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会委員の皆様から貴重な御意見・御指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。

現在県内の主要な原子力施設については、東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故以降、未だ再稼働・操業に至っておりませんが、来るべき時期に向け、職員1人1人が研鑽を積み、一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、引き続きの御指導・御鞭撻のほどよろしくお願い申し上げます。

令和6年3月

青森県原子力センター

所　長　奥　野　直　子



## 目 次

### I 技術報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査  
ー令和4年度調査結果ー・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3  
大久保 匠 檜山宝孝 大下内 伸 幸 進 沼山 聡  
佐々木耕一
2. 空間線量率計（低線量率計）更新前後の測定結果の比較・・・・・・・・ 21  
谷地俊一郎 神 俊雄
3. GAGG シンチレーション検出器を用いた空間線量率計の測定結果・・・・・・・・ 27  
三浦 太 谷地俊一郎 神 俊雄
4. KURAMA-II を用いた走行サーベイにおける車両遮へい係数の検討・・・・・・・・ 33  
高森舜弥 神 俊雄
5. 可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定調査・・・・・・・・ 41  
大久保 匠 奈良和久 檜山宝孝 大下内 伸

### II 学会発表等要旨

1. GAGG シンチレーション検出器を用いた空間線量率計の測定・・・・・・・・ 55  
三浦 太

### III 令和5年度調査研究事業報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査  
ー令和5年度調査内容ー・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 59  
大久保 匠 檜山宝孝 大下内 伸 幸 進 沼山 聡  
佐々木耕一
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・・・・・・・・ 61  
葛西邦生
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  
木村芳伸 堀田智史 檜山宝孝 芦野真央子 神 俊雄

## 原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

# I 技 術 報 告





## 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 —令和 4 年度調査結果—

大久保 匠 檜山宝孝 大下内 伸  
幸 進\* 沼山 聡\* 佐々木耕一\*

### 1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、その運転に伴い、Kr-85、トリチウム (H-3)、C-14 及び I-129 などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が放出される。青森県では、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について (平成 18 年 2 月 7 日 青森県)」において、測定結果に基づく線量の推定・評価方法について基本的な考え方を示しており、この線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、日本原燃株式会社と共同で調査研究を実施している。

この一環として、平成 19 年度から環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を、平成 20 年度からは I-129 と同様に施設から放出される核種として I-131 について調査を開始している。また、有機結合型トリチウム (OBT) について、調査開始当初は組織自由水トリチウム (TFWT) と容易に交換する形態の OBT (交換型 OBT) を含む全 OBT を対象としていたが、平成 21 年度から、より詳細な線量評価手法の検討のため、試験的に魚類について非交換型 OBT を追加実施し、平成 26 年度からは OBT をすべて非交換型 OBT として調査を行っている。さらに、平成 27 年度からは海藻の TFWT 及び OBT を追加し実施している。

本報告は令和 4 年度の調査結果について、とりまとめたものである。

### 2. 調査方法

#### 2.1 対象試料及び調査地点

対象試料及び調査地点等については、調査実施時点の青森県の原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング基本計画<sup>1)</sup>における農畜産物及び海産生物の中から選定し、表 1 のとおりとした。また、これらの調査地点については、図 1 に示す。

なお、令和 4 年度からはこれまでのデータの蓄積状況を踏まえ、複数回採取していた試料については年 1 回の採取、同一種類において複数の地点で採取していた試料については施設からの距離がより近い地点を優先し、検体数の削減を行っている。

#### 2.2 測定方法

##### (1) トリチウム

放射能測定法シリーズ No.9 「トリチウム分析法」<sup>2)</sup> に準拠し、液体シンチレーション計測法を用いた。

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを TFWT 濃度とした。乾燥物については、無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去後、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを非交換型 OBT 濃度とした。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。精米につい

\* : 日本原燃株式会社

ては、含まれる水分量が少ないため、OBTのみ測定した。

牛乳の採取地点においては、乳牛の飲料水についても調査を行った。試料は、蒸留により精製した後、トリチウム濃度 (Bq/L) を測定した。測定条件は表2のとおりである。

(2)C-14

放射能測定法シリーズ No.25 「放射性炭素分析法」<sup>3)</sup> に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

試料を真空凍結乾燥後、高圧酸素下で燃焼し、生成した二酸化炭素から触媒によりベンゼンを合成した。これを液体シンチレーション計測法により測定し、C-14 比放射能を算出した。また、乾燥試料の燃焼による二酸化炭素量の測定によって、試料中の全炭素量を算出した。これらによって求めた C-14 比放射能と全炭素量から、試料中の C-14 濃度を算出した。測定条件は表2のとおりである。

表1 対象試料及び調査地点・核種 (令和4年度)

試料	実施者	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
				<sup>3</sup> H		<sup>14</sup> C	<sup>129</sup> I・ <sup>131</sup> I
				TFWT	非交換型 OBT		
牛乳 (原乳)	事業者	六原	1	○	○	○	—
	県	二又		○	○	○	—
	事業者	豊原		○	○	○	—
	県	千樽		—	○	○	—
精米	事業者	室ノ久保	1	—	○	○	—
	事業者	二又		—	○	○	—
	事業者	戸鎖		—	○	○	—
ハクサイ	事業者	千樽		○	○	○	○
キャベツ	県	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	県	出戸	1	○	○	○	—
バレイショ	事業者	尾駸		○	○	○	—
ナガイモ	事業者	平沼		○	○	○	—
魚類 (ヒラメ等)	県	六ヶ所村前面海域	1	○	○	—	—
	事業者						
海藻類 (コンブ)	事業者	六ヶ所村前面海域	1	○	○	—	○

表2 トリチウム及び炭素-14の測定条件

項目	<sup>3</sup> H	<sup>14</sup> C
測定機器	日立製作所 (現:アロカ) LSC-LB7	Perkin Elmer 1220 QUANTULUS
試料容器	外側ポリエチレン、内側テフロン 145 mL 又はテフロン 100 mL	テフロン 3 mL
シンチレータ	Ultima Gold LLT 50 mL	5w/v%ブチル PBD-トルエン溶液 0.5 mL
測定供試量	50 mL	2 mL
測定時間	500分	500分



図1 調査地点図

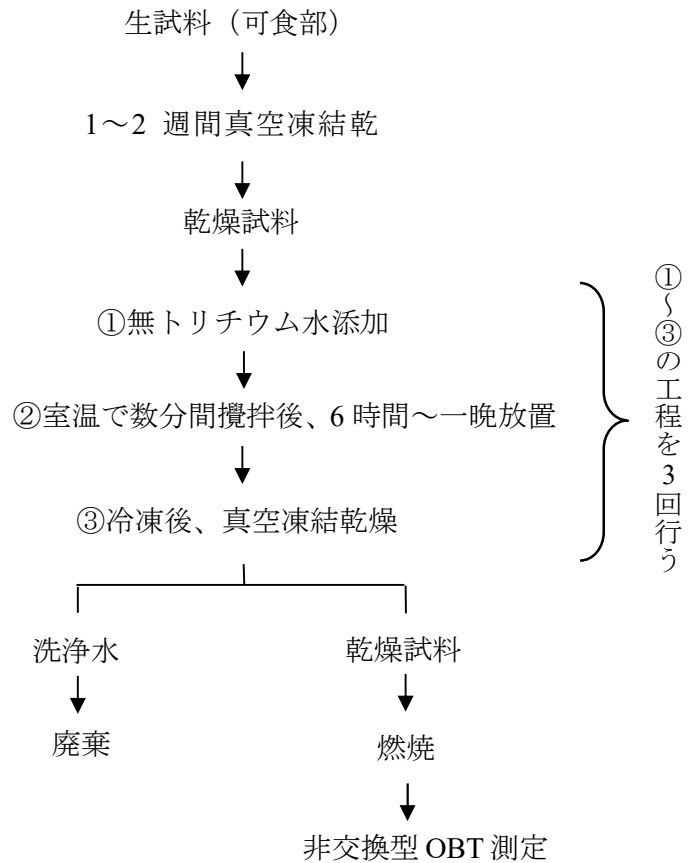


図2 非交換型 OBT の分析工程

### (3) I-129

試料を真空凍結乾燥後に燃焼させ、発生したヨウ素を水酸化テトラメチルアンモニウム溶液に捕集し、一部を分取して安定ヨウ素 (I-127) 測定用試料とした。残りの溶液を溶媒抽出後、銀担体を添加してヨウ化銀を調製し、I-129 測定用試料とした。加速器質量分析装置 (AMS) を用いて I-129 と I-127 の原子数比を測定し、ICP 質量分析計を用いて安定ヨウ素量を定量し、これらの値から環境試料中の I-129 濃度を求めた<sup>4)</sup>。

### (4) I-131

放射能測定法シリーズ No.4「放射性ヨウ素分析法」<sup>5)</sup> に準拠し、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 月から令和 5 年 3 月にかけて放出された放射性気体廃棄物 (トリチウム、C-14 及び I-129・131) の月間放出量を図 3 に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図 4 に示す。平成 18 年から実施されている使用済燃料を用いたアクティブ試験については、予定されていた使用済燃料のせん断・溶解処理が平成 20 年 10 月で終了しているため、それ以降の放出量は大きく減少している。

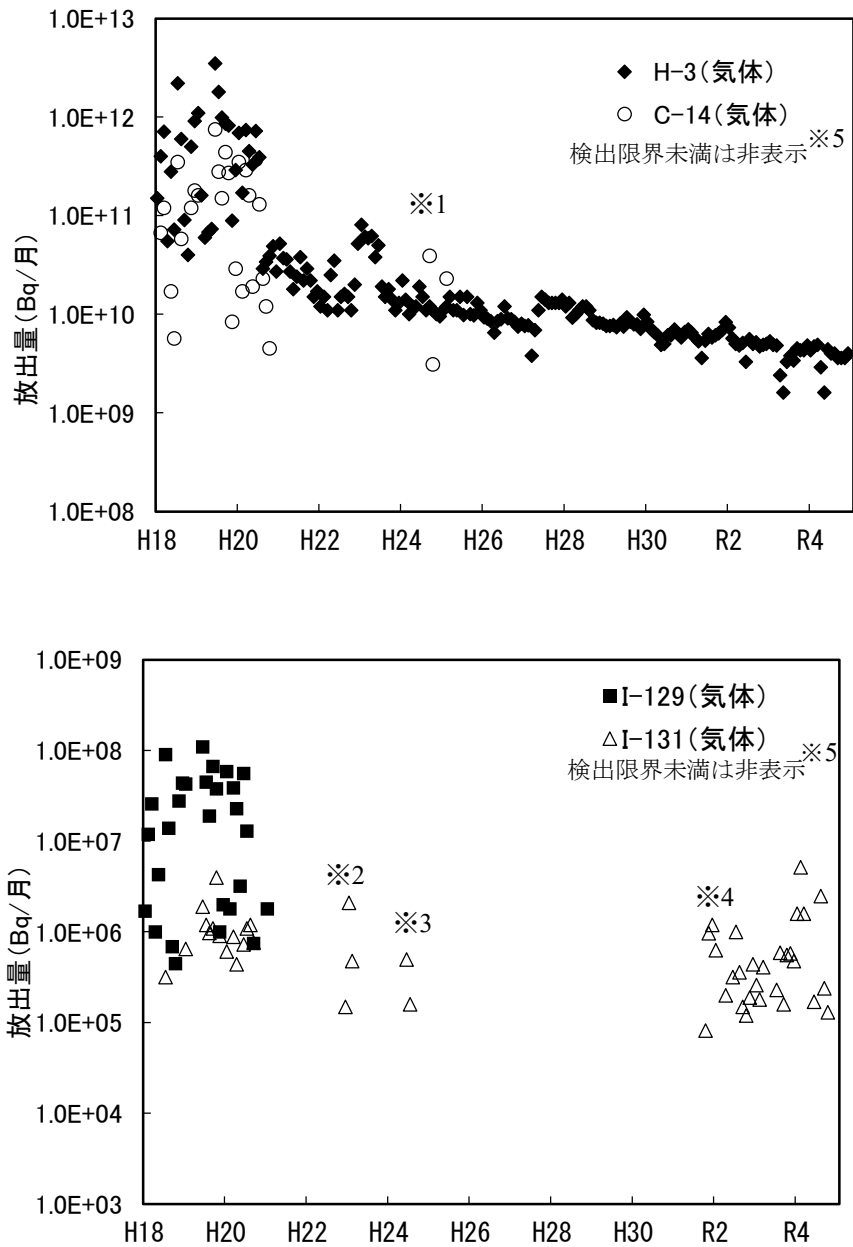


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量  
(平成18年4月～令和5年3月)

- ※1 ガラス固化試験等の影響。詳細は青森県原子力センター所報第8号 (p49) に記載。
- ※2 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所事故の影響と考えられる。詳細は青森県原子力センター所報第7号 (p25) に記載。
- ※3 ガラス固化試験等の影響。詳細は青森県原子力センター所報第8号 (p49) に記載。
- ※4 設備の保守管理に伴う放出。
- ※5 検出限界値は概算で、<sup>3</sup>H (気体) : ~10<sup>9</sup> (Bq/月) 程度、<sup>14</sup>C (気体) : ~10<sup>10</sup> (Bq/月) 程度、<sup>129</sup>I (気体) : ~10<sup>6</sup> (Bq/月) 程度、<sup>131</sup>I (気体) : ~10<sup>5</sup> (Bq/月) 程度。

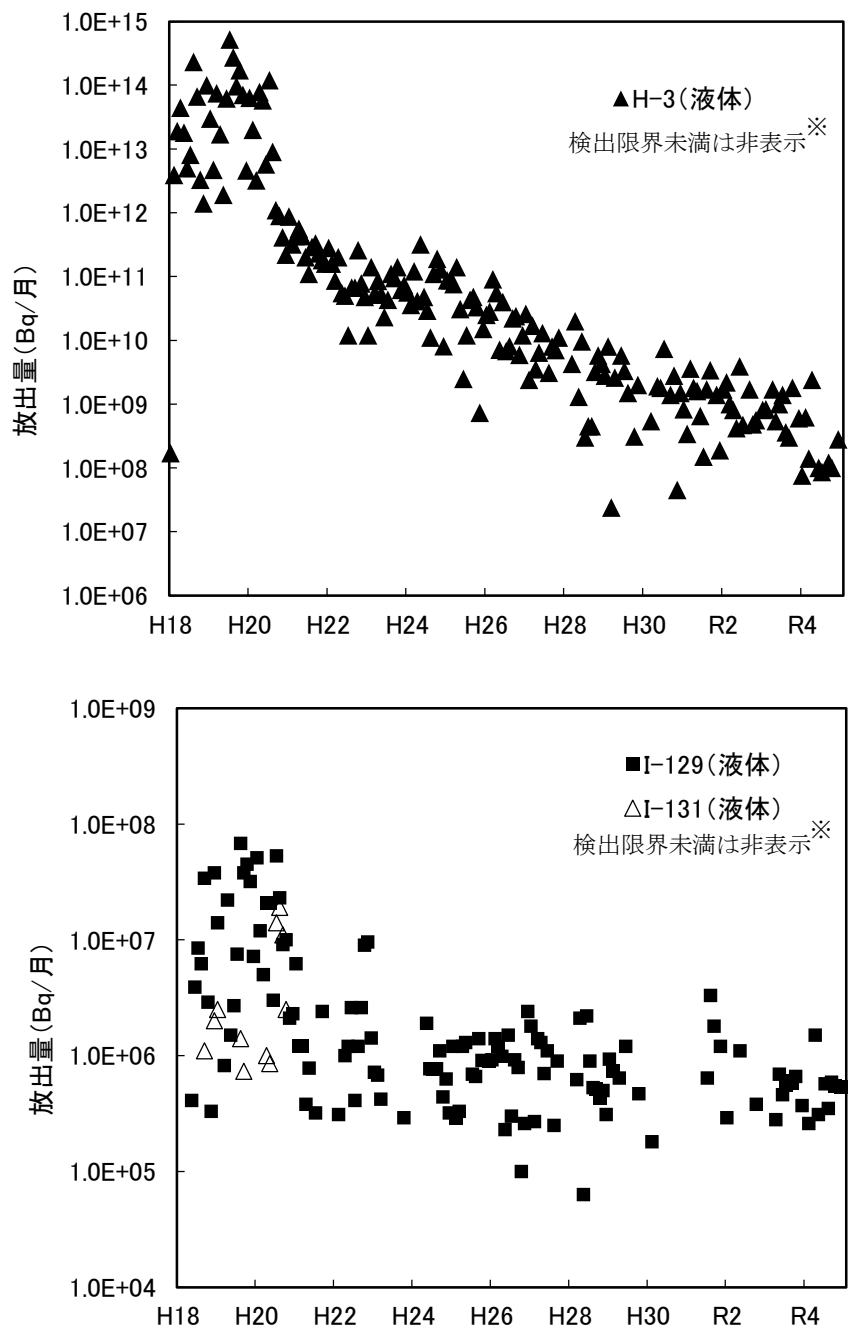


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量  
(平成18年4月～令和5年3月)

※ 検出限界値は概算で、 $^3\text{H}$  (液体) :  $\sim 10^7$  (Bq/月) 程度、 $^{129}\text{I}$  (液体) :  $\sim 10^5$  (Bq/月) 程度、 $^{131}\text{I}$  (液体) :  $\sim 10^5$  (Bq/月) 程度。

#### 4. 調査結果

##### 4.1 トリチウム

牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表 3 及び図 5 に示す。牛乳については、TFWT で検出限界以下、非交換型 OBT で検出限界以下～0.47 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下であり、牛乳及び飲料水ともこれまでの測定値と同程度であった。

表 3 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（令和 4 年度）

採取地点	採取月	R4 年度調査結果			(参考) H19~R3 年度 調査結果		
		牛乳（原乳）		飲料水 <sup>※1</sup> (Bq/L)	牛乳（原乳）		飲料水 <sup>※1</sup> (Bq/L)
		TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT <sup>※2</sup> (Bq/L)	
六原 <sup>※3</sup>	4 月	*	*	*	*~0.63	*~0.61	*~0.46
二 又	4 月	*	0.45±0.10	*	*~0.57	*~0.63	*~0.34
豊 原	4 月	*	0.47±0.10	*	*~0.73	*~0.77	*~0.59

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお、令和 4 年度の検出限界は TFWT で 0.33~0.36 Bq/L、非交換型 OBT で 0.45 Bq/L、飲料水で 0.23~0.33 Bq/L であった。

※1 平成 22 年度から調査開始。

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

※3 平成 25 年度から調査開始。

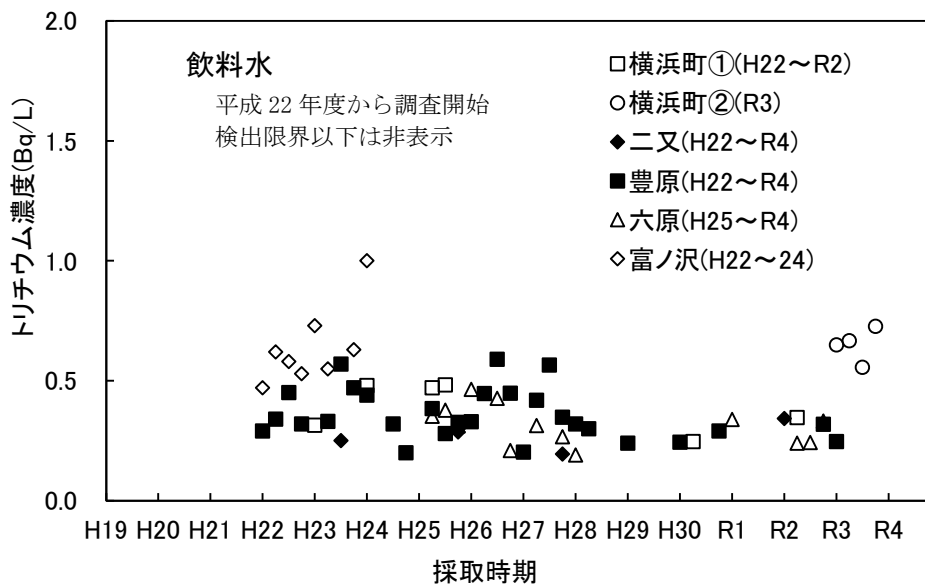
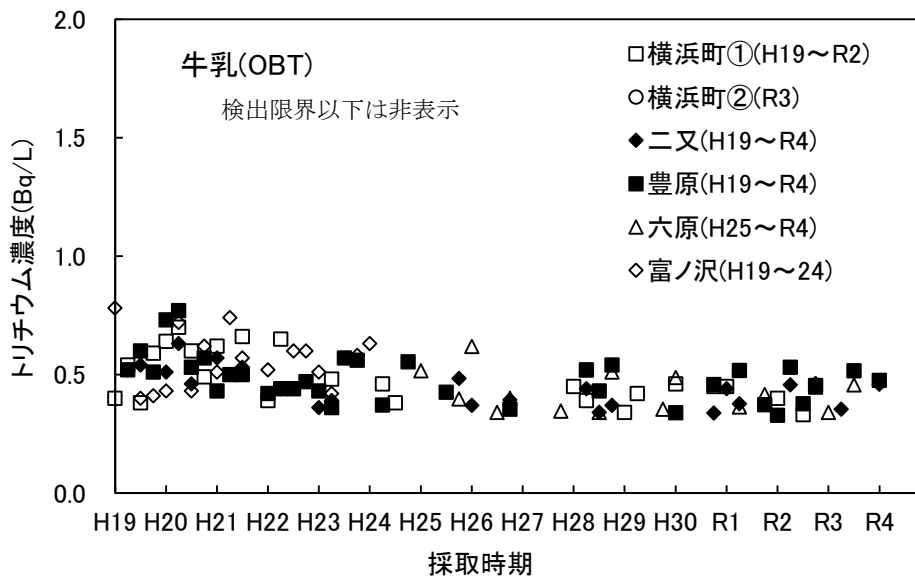
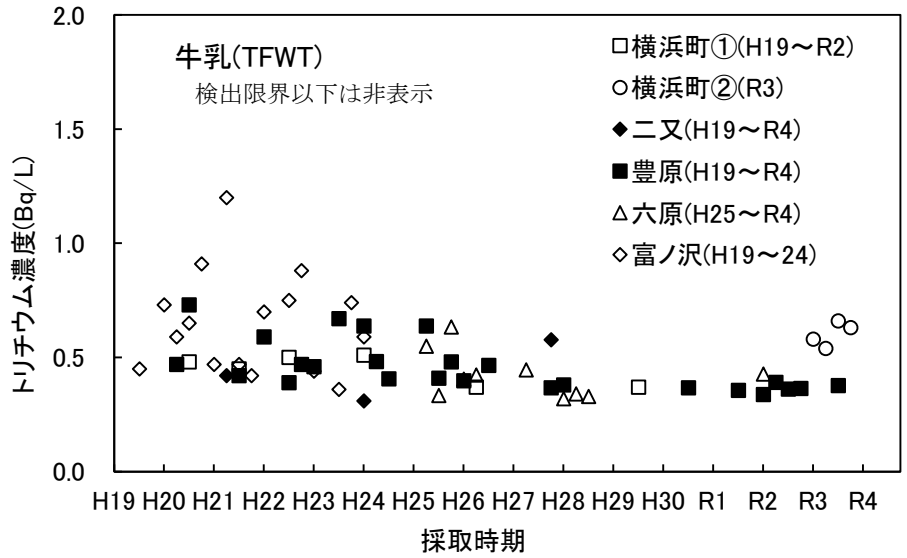


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

精米におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表 4 及び図 6 に示す。精米の非交換型 OBT は検出限界以下～0.40 Bq/L であり、これまでの測定値と同程度であった。

表 4 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (令和 4 年度)

試料名	採取地点	採取月	R4 年度調査結果		(参考) H19~R3 年度
			調査結果		調査結果
			非交換型 OBT (Bq/L)		OBT <sup>※1</sup> (Bq/L)
精米	千 樽	10 月	0.40±0.12		*~0.89
	室ノ久保 <sup>※2</sup>	10 月	*		*~0.44
	二 又	10 月	*		*~1.0
	戸 鎖	10 月	*		*~0.66

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお、令和 4 年度の検出限界は 0.32~0.36 Bq/L であった。

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

※2 平成 30 年度から調査開始。

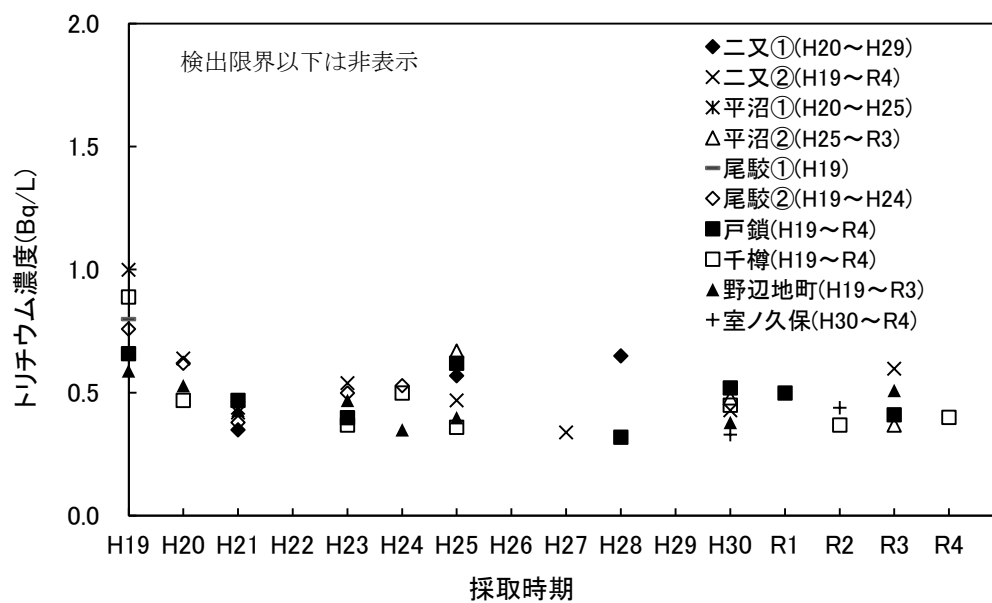


図 6 精米におけるトリチウム濃度 (OBT) の経年変化

※凡例において、青森県と日本原燃株式会社の調査地点が同じものについては、①が青森県、②が日本原燃株式会社調査分。



野菜におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表 5 及び図 7 に示す。野菜については TFWT で検出限界以下～0.59 Bq/L、非交換型 OBT で検出限界以下であり、これまでの測定値と同程度であった。

なお、陸上試料である牛乳（原乳）、精米及び野菜のトリチウム濃度は、近年の大気及び雨水中トリチウム濃度\*と同程度であった。参考として、東京・千葉及び青森における降水中トリチウム濃度の経年変化を図 8 に示す。大気圏内核実験の影響により、降水中のトリチウム濃度は昭和 30 年台には 100 Bq/L を超えていたが、その後はゆるやかに減少し、現在は 1 Bq/L を下回る水準である<sup>6,7)</sup>。また、降水中のトリチウム濃度は、青森が東京・千葉に比べやや高め傾向が見られる。

- \* 青森県実施の環境放射線モニタリング（平成 19～令和 4 年度）における大気及び雨水のトリチウム濃度は以下のとおり。  
 大気：検出限界（0.21～0.36 Bq/L）以下～1.09 Bq/L  
 雨水：検出限界（0.23～0.36 Bq/L）以下～1.37 Bq/L

表 5 野菜のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 4 年度）

試料名	採取地点	採取月	R4 年度調査結果		(参考) H19～R3 年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT <sup>※1</sup> (Bq/L)
ハクサイ	千 樽	10 月	0.41±0.11	*	*~0.89	*~0.68
キャベツ	横浜町	10 月	0.37±0.12	*	*~0.94	*~1.2
ダイコン	出 戸	9 月	*	*	*~0.61	*~0.68
バレイショ	尾 駁	7 月	0.59±0.11	*	0.41~0.88	*~0.84
ナガイモ	平 沼	11 月	0.43±0.11	*	*~0.89	*~0.79

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお、令和 4 年度の検出限界は TFWT で 0.30 Bq/L、非交換型 OBT で 0.33~0.51 Bq/L であった。

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

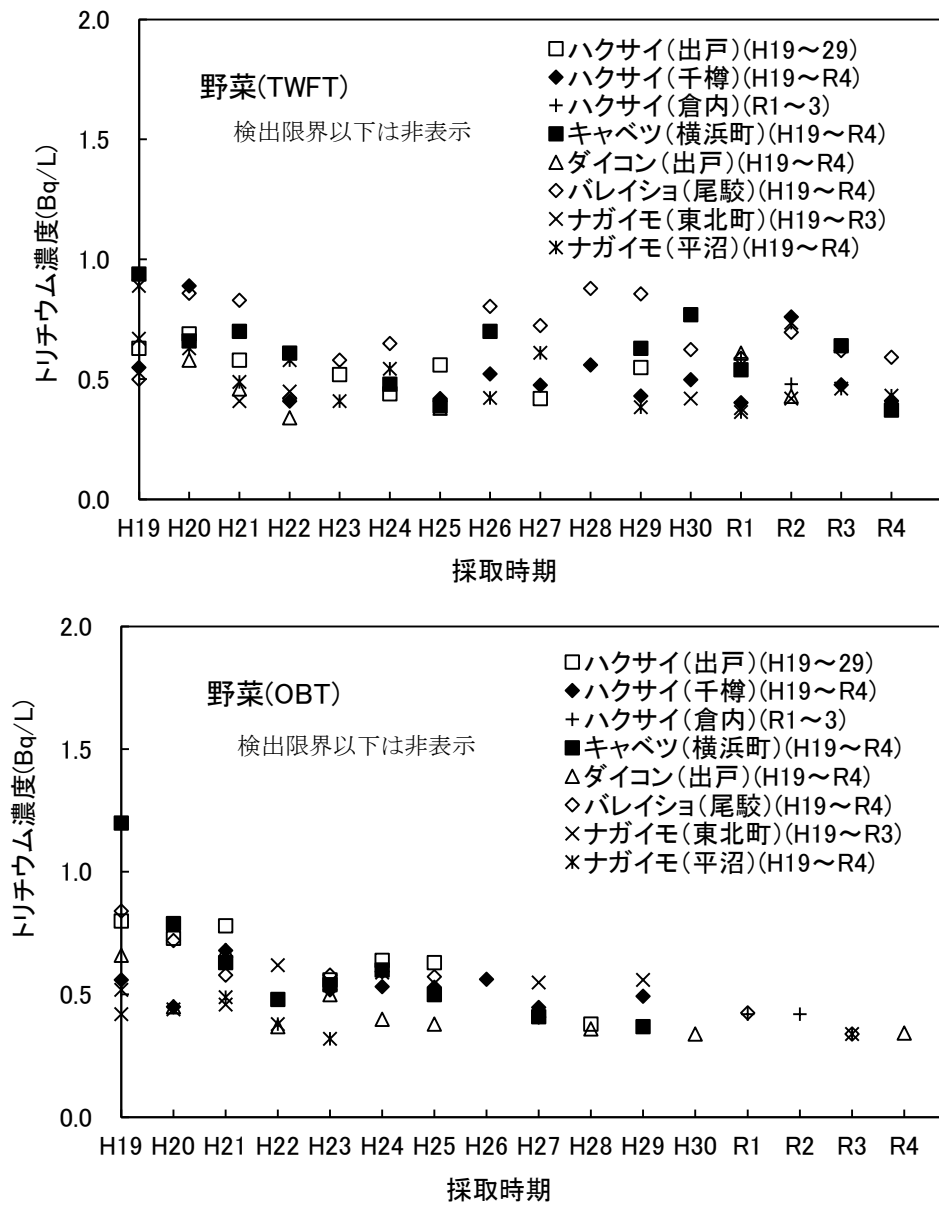


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

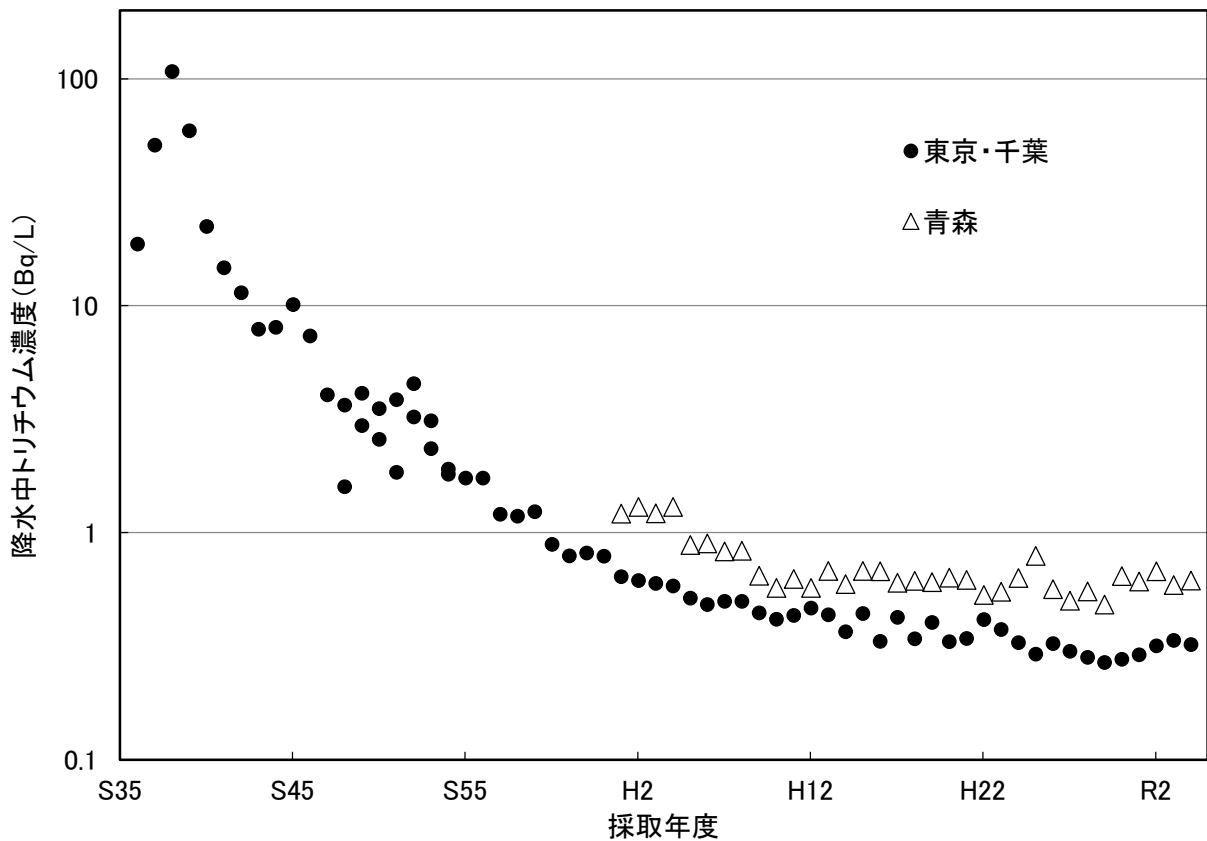


図8 東京・千葉及び青森における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・引用元、測定年度及び測定地点は以下のとおり。<sup>6-7)</sup>  
 (国研)量子科学技術研究開発機構量子生命・医学部門放射線医学研究所  
 環境中のトリチウム測定調査データベース  
 「環境中トリチウム-降水測定データ」  
 昭和 36~54 年度 東京・気象庁  
 昭和 48~54 年度 千葉市稲毛区穴川  
 昭和 54~平成 19 年度 千葉市稲毛区山王町  
 (公財)日本分析センター  
 環境放射線データベース  
 「身のまわりなどの一般環境」  
 1.調査対象：大気  
 2.調査年度：平成 19 年度~  
 3.調査地域：千葉  
 4.調査カテゴリー：降下物  
 5.調査試料：月間降下物  
 6.調査核種：H-3  
 平成 19~令和 4 年度 千葉市稲毛区山王町
- ・青森のデータは、青森県実施の環境放射線モニタリング（平成元~令和 4 年度）の六ヶ所村千歳平における年間平均値。

海洋試料である魚類（ヒラメ等）の測定結果及びその経年変化を表 6 及び図 9 に示す。TFWT は検出限界以下であり、近年は横ばいで推移している。また、平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBT については、検出限界以下～0.39 Bq/L であった。なお、（公財）海洋生物環境研究所による平成 23 年度から令和 4 年度までの核燃料サイクル施設沖合海域における海水中トリチウム濃度は検出下限値以下～0.25 Bq/L 程度と報告されている<sup>8)</sup>。

平成 27 年度から調査を開始した海藻類（コンブ）の測定結果を表 7 に示す。TFWT 及び非交換型 OBT はすべて検出限界以下であった。

表 6 魚類（ヒラメ等）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 4 年度）

試料名	採取地点	採取月	魚種	R4 年度調査結果		（参考）H19~R3 年度調査結果		
				TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
魚類 (ヒラメ等)	六ヶ所村 前面海域	7月 11月	ヒラメ	*	* 0.39±0.10	*~3.2	*~1.4	*~0.48

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお、令和 4 年度の検出限界は TFWT 0.32 Bq/L、非交換型 OBT は 0.33 Bq/L であった。

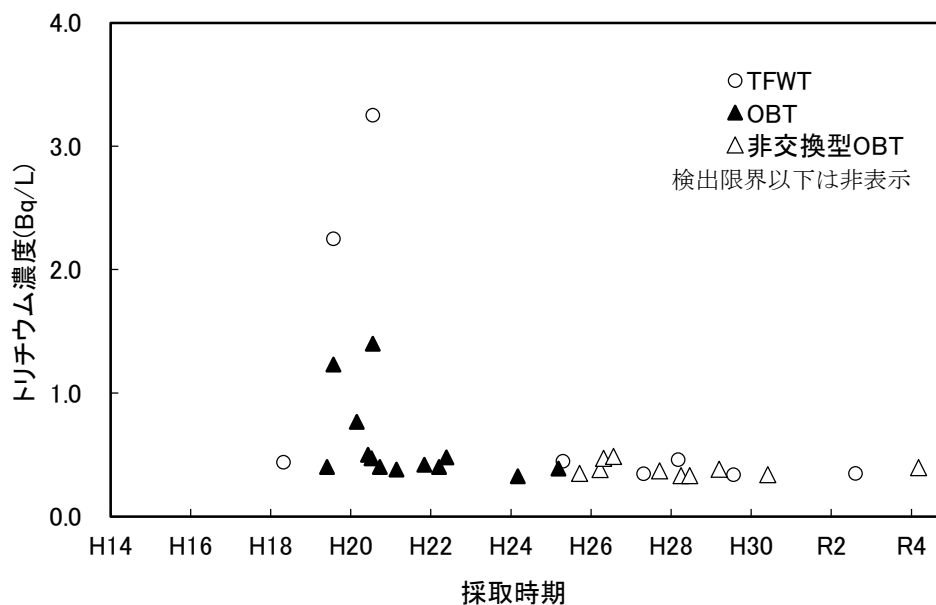


図 9 魚類（ヒラメ等）におけるトリチウム濃度（TFWT、OBT、非交換型 OBT）の経年変化  
※平成 14~18 年度は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

表 7 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 4 年度）

試料名	採取地点	採取月	R4 年度調査結果		H27~R3 年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	8月	*	*	*	*~0.42

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお、令和 4 年度の検出限界は TFWT で 0.32 Bq/L、非交換型 OBT で 0.35 Bq/L であった。

## 4.2 C-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物の C-14 比放射能の測定結果を表 8 に示す。農産物については精米で 0.226~0.232 Bq/g 炭素、葉菜で 0.229~0.230 Bq/g 炭素、根菜・いも類で 0.221~0.227 Bq/g 炭素であった。

参考として、環境放射線モニタリングで測定している農産物と（公財）環境科学技術研究所（以下、「環境研」という。）による平成 18 年度から令和 4 年度までの六ヶ所村内における農産物（精米、葉菜、根菜）の C-14 比放射能の経年変化を図 10 に示す<sup>9-25</sup>）。大気圏内核実験によって増加した C-14 は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られており、アクティブ試験の影響が認められた平成 19 年度から平成 21 年度までの期間は一時的に上昇しているものの、その後は減少傾向を示している。また、C-14 比放射能は両機関とも同様の挙動を示している。

表 8 農産物の C-14 比放射能（令和 4 年度）

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	R4 年度調査結果	(参考) H19~R3 年度調査結果
				(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
米	精米	千 樽	10 月	0.232 ± 0.002	0.229 ~ 0.248
		室ノ久保 <sup>※1</sup>	10 月	0.227 ± 0.002	0.226 ~ 0.233
		二 又	10 月	0.226 ± 0.002	0.223 ~ 0.251
		戸 鎖	10 月	0.226 ± 0.002	0.225 ~ 0.255
葉菜	ハクサイ	千 樽	10 月	0.229 ± 0.002	0.221 ~ 0.260
	キャベツ	横浜町	10 月	0.230 ± 0.002	0.226 ~ 0.267
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	9 月	0.223 ± 0.002	0.223 ~ 0.239
	バレイショ	尾 駁	7 月	0.227 ± 0.002	0.223 ~ 0.244
	ナガイモ	平 沼	11 月	0.221 ± 0.002	0.226 ~ 0.249

※1 平成 30 年度から調査開始。



牛乳の C-14 比放射能の測定結果を表 9 に示す。牛乳については 0.224～0.229 Bq/g 炭素であった。

参考として、環境放射線モニタリングで測定している牛乳と環境研による平成 19 年度から令和 4 年度までの六ヶ所村内における牛乳の C-14 比放射能の経年変化を図 11 に示す。農産物においてアクティブ試験の影響が認められた平成 19 年度から平成 21 年度までは高めの傾向ではあったものの、その後は減少傾向を示している。なお、乳牛に与えられる飼料は生産者によって異なっており、周辺地域で生産されたものに限られないため、必ずしも同じ挙動を示すものではないと考えられる。

表 9 牛乳の C-14 比放射能（令和 4 年度）

試料名	採取地点	採取月	R4 度調査結果	(参考) H19～R3 度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原 <sup>※1</sup>	4月	0.224 ± 0.002	0.222 ~ 0.241
	二又	4月	0.229 ± 0.002	0.223 ~ 0.262
	豊原	4月	0.227 ± 0.002	0.225 ~ 0.266

※1 平成 25 年度から調査開始。

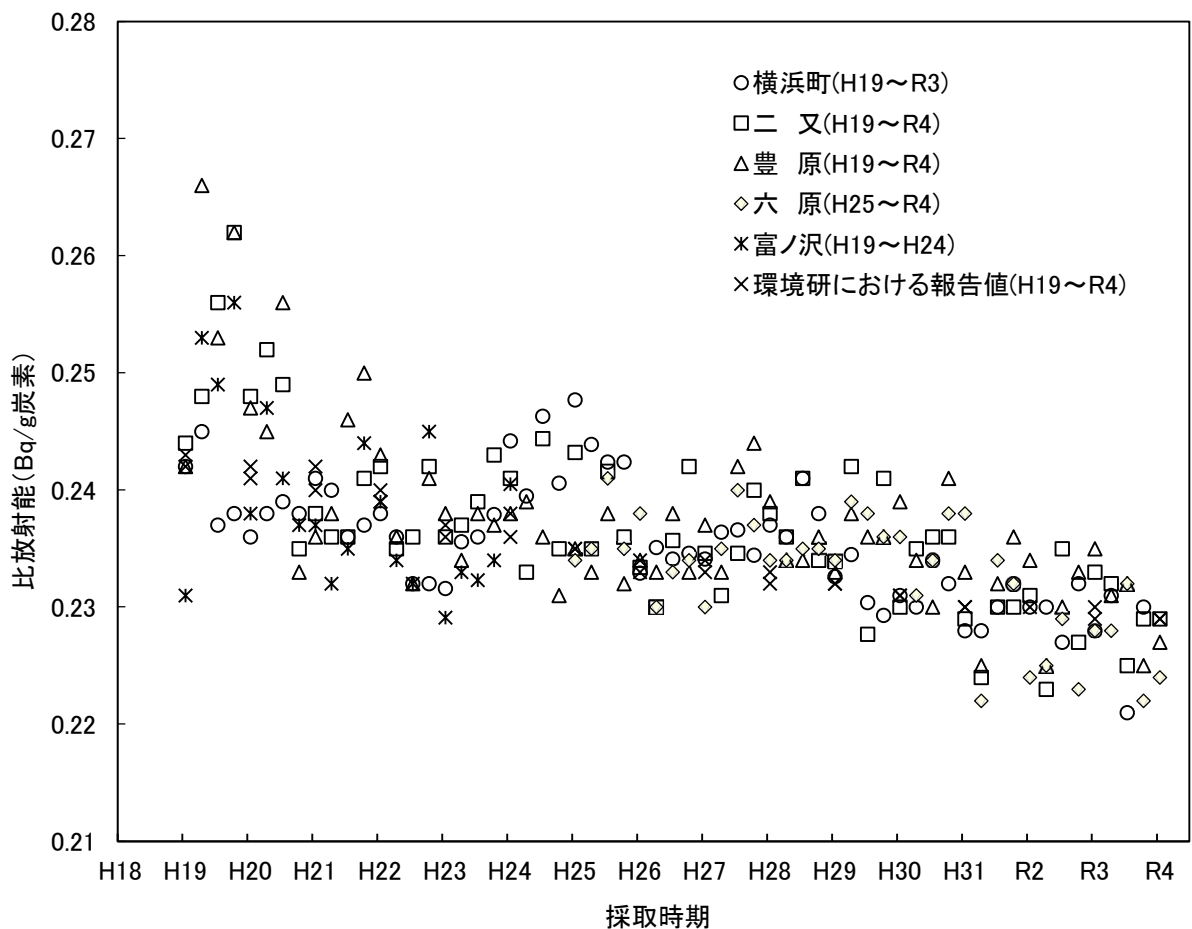


図 11 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

### 4.3 I-129 及び I-131

環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比を表 10 に、その経年変化を図 12 に示す。平成 19 年度以降、全体として減少傾向が見られるが、近年は横ばいで推移している。

なお、再処理施設周辺における I-129/I-127 原子数比については、アクティブ試験前の陸圏試料で  $10^{-9}$ ~ $10^{-8}$ 、水圏試料で  $10^{-10}$  程度であり、使用済燃料のせん断・溶解処理に伴い上昇したが、近年は試験前のバックグラウンドレベルで推移していると報告があり<sup>25-26)</sup>、本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の I-129/I-127 原子数比は、これらと同程度であった。

I-131 は、表 11 に示すとおり、すべての試料において検出限界以下であった。

表 10 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比（令和 4 年度）

試料名	採取地点	採取月	R4 年度調査結果		(参考) H19~R3 年度調査結果	
			<sup>129</sup> I 濃度 (Bq/kg 生)	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I 原子数比	<sup>129</sup> I 濃度 (Bq/kg 生)	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I 原子数比
ハクサイ	千 樽	10 月	$(9.9 \pm 2.6) \times 10^{-8}$	$(2.7 \pm 0.7) \times 10^{-9}$	$4.8 \times 10^{-8}$ $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	$2.2 \times 10^{-9}$ $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10 月	$(7.9 \pm 1.8) \times 10^{-8}$	$(2.2 \pm 0.4) \times 10^{-9}$	*	*
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	8 月	$(5.1 \pm 0.1) \times 10^{-4}$	$(1.20 \pm 0.02) \times 10^{-10}$	$8.5 \times 10^{-5}$ $\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$4.6 \times 10^{-11}$ $\sim 9.1 \times 10^{-10}$

・ <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 原子数比が検出限界 ( $1 \times 10^{-13}$ ) 以下の場合、「\*」と表示した。

表 11 環境試料中の I-131 濃度（令和 4 年度）

試料名	採取地点	採取月	R4 年度調査結果	(参考) H23~R3 年度調査結果
			(Bq/kg 生)	(Bq/kg 生)
ハクサイ	千 樽	10 月	*	*
キャベツ	横浜町	10 月	*	*
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	9 月	*	*

・ 測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお、令和 4 年度の検出限界は 0.055~0.65 Bq/kg 生であった。



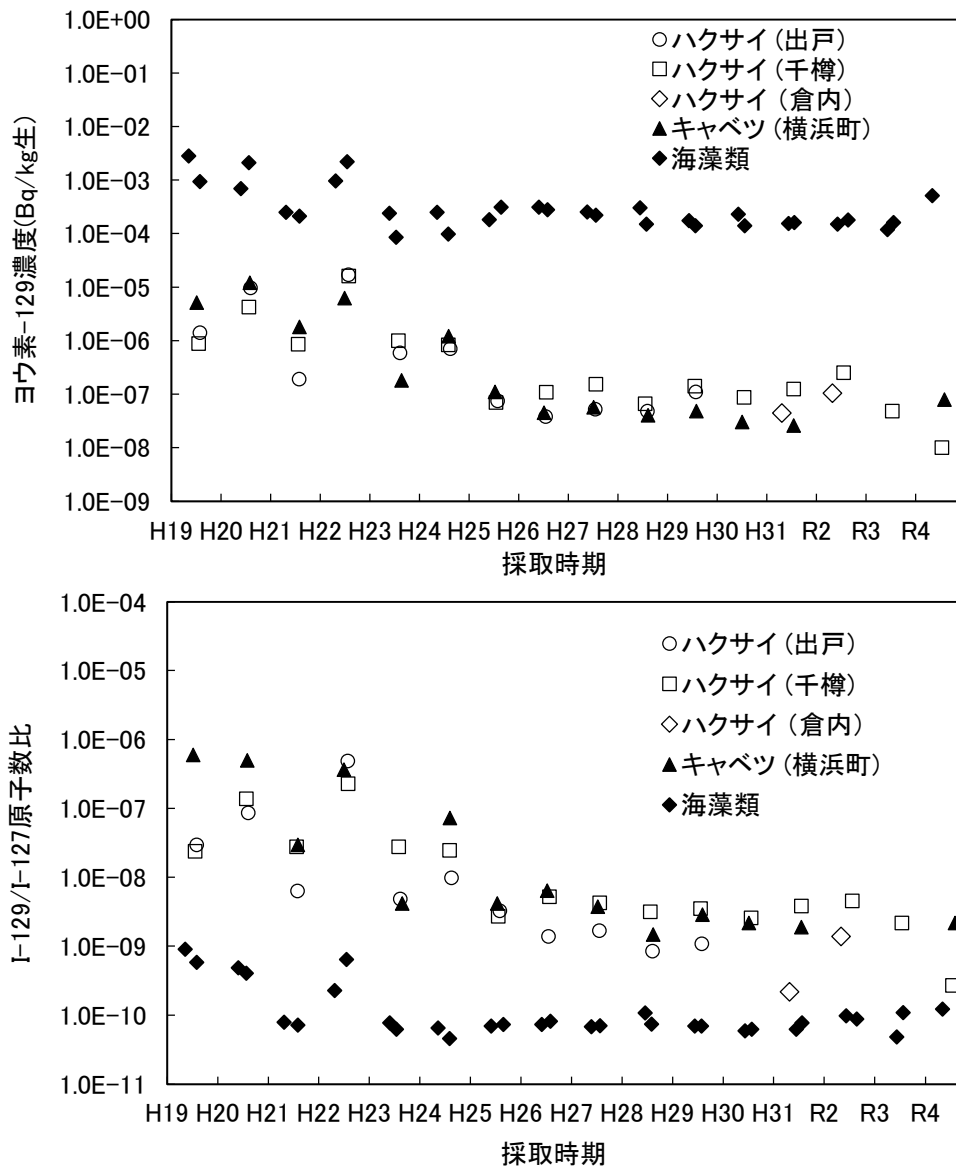


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

## 5. まとめ

- 1) 陸上試料中トリチウムについては、近年の大气及び雨水中トリチウム濃度と同程度であり、すべての試料において、再処理施設において行われた使用済燃料のせん断・溶解処理の影響が認められた平成 19 及び 20 年度より低いレベルであった。また、海洋試料である魚類及び海藻類については、非交換型 OBT については検出限界を超える試料があったが、TFWT についてはすべての試料において検出限界以下であった。
  - 2) C-14 比放射能については、農産物では、アクティブ試験の影響が認められた平成 19 年度から平成 21 年度の期間は一時的に上昇し、その後は減少傾向であった。また、牛乳でも同期間高めの傾向であった。
  - 3) I-129 については、すべての試料において I-129/I-127 原子数比がアクティブ試験前のバックグラウンドレベルと同程度であった。また、平成 19 年度以降減少傾向にあり、近年は横ばいで推移している。
- I-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

## 文 献

- 1) 青森県：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画（令和2年3月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ No.9 トリチウム分析法（平成14年）
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ No.25 放射性炭素分析法（平成5年）
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ No.32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法（平成16年）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ No.4 放射性ヨウ素分析法（平成8年改訂）
- 6) (国研) 量子科学技術研究開発機構量子生命・医学部門放射線医学研究所  
：環境中のトリチウム測定調査データベース  
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html>（最終アクセス：平成29年9月15日）
- 7) (公財)日本分析センター：環境放射線データベース  
<http://www.kankyo-hoshano.go.jp/>（最終アクセス：令和6年2月16日）
- 8) (公財)海洋生物環境研究所：令和4年度原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業 調査報告（令和5年3月）
- 9) (公財)環境科学技術研究所 平成18年度排出放射能環境分布調査報告書（平成19年3月）
- 10) (公財)環境科学技術研究所 平成19年度排出放射能環境分布調査報告書（平成20年3月）
- 11) (公財)環境科学技術研究所 平成20年度排出放射能環境分布調査報告書（平成21年3月）
- 12) (公財)環境科学技術研究所 平成21年度排出放射能環境分布調査報告書（平成22年3月）
- 13) (公財)環境科学技術研究所 平成22年度排出放射能環境分布調査報告書（平成23年3月）
- 14) (公財)環境科学技術研究所 平成23年度排出放射能環境移行調査報告書（平成24年3月）
- 15) (公財)環境科学技術研究所 平成24年度排出放射能環境移行調査報告書（平成25年3月）
- 16) (公財)環境科学技術研究所 平成25年度排出放射能環境移行調査報告書（平成26年3月）
- 17) (公財)環境科学技術研究所 平成26年度排出放射能環境移行調査報告書（平成27年3月）
- 18) (公財)環境科学技術研究所 平成27年度排出放射能環境移行調査報告書（平成28年3月）
- 19) (公財)環境科学技術研究所 平成28年度排出放射能環境動態調査報告書（平成29年3月）
- 20) (公財)環境科学技術研究所 平成29年度排出放射能環境動態調査報告書（平成30年3月）
- 21) (公財)環境科学技術研究所 平成30年度排出放射能環境動態調査報告書（平成31年3月）
- 22) (公財)環境科学技術研究所 令和元年度排出放射能環境動態調査報告書（令和2年3月）
- 23) (公財)環境科学技術研究所 令和2年度排出放射能環境動態調査報告書（令和3年3月）
- 24) (公財)環境科学技術研究所 令和3年度大気・海洋排出放射性物質影響調査報告書（令和4年3月）
- 25) (公財)環境科学技術研究所 令和4年度大気・海洋排出放射性物質影響調査報告書（令和5年3月）
- 26) Y. Satoh, H. Kakiuchi, S. Ueda, N. Akata and S. Hisamatsu : Concentrations of iodine-129 in livestock, agricultural, and fishery products around spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, Japan, during and after its test operation, *Environmental Monitoring and Assessment*, 191:61(2019)

## 空間線量率計（低線量率計）更新前後の測定結果の比較

谷地俊一郎 神 俊雄

### 1. はじめに

本県では県内に立地する原子燃料サイクル施設、原子力発電所及び使用済燃料中間貯蔵施設を対象として環境放射線モニタリングを実施しており<sup>1)2)3)</sup>、その一環として、施設周辺において、空間放射線量率の連続測定を実施している。周辺住民等の線量評価及び施設からの予期しない放出の早期検知を目的とする低線量率計には、NaI(Tl)シンチレーション検出器（以下「NaI」という。）を用いている。

令和4年度に、原子燃料サイクル施設に係る調査地点のうち5地点（尾駸、千歳平、平沼、泊、吹越）の空間放射線量率測定器を更新し、低線量率計の結晶サイズを変更した（更新前「3インチφ×3インチ（以下「3インチNaI」という。）」、更新後「2インチφ×2インチ（以下「2インチNaI」という。）」）。また、高線量率計は、従来の電離箱検出器から、セリウム添加ガドリニウムアルミニウムガリウムガーネット（Ce:Gd<sub>3</sub>(Ga,Al)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>、GAGG(Ce)）シンチレーション検出器に変更した。本報では、低線量率計の更新前後の仕様及び測定結果等について報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1 検出器

更新前後の検出器の仕様を表1に示す。検出器結晶サイズ以外の仕様は基本的に同一である。

表1 検出器仕様

	更新後	更新前
整備年度	令和4年度	平成22年度
メーカー	アロカ(株)	アロカ(株)
結晶サイズ・形状	2インチφ×2インチ円柱	3インチφ×3インチ円柱
測定範囲（μGy/h）	BG～10	同左
測定エネルギー範囲（keV）	50～3000	同左
データ伝送間隔	2分毎	同左
スペクトルデータ取得機能	有り	同左
エネルギー分解能（ <sup>137</sup> Cs）	10%以内	同左
<sup>40</sup> Kによるゲイン設定の自動補正機能	有り	同左
加温装置	有り	同左

## 2.2 測定場所

機器を更新した5地点を含む、原子燃料サイクル施設に係る空間放射線量率測定地点を図1に示す。測定値の比較検討には、機器を更新した5地点の更新前後の測定器により得た値を用いた。

降雨等及び積雪による影響がないと考えられる測定値のふり分けには、空間放射線量率測定器に併設している気象観測装置（感雨、降水量、積雪深）の値を用いた。



図1 原子燃料サイクル施設に係る空間放射線量率測定地点  
(国土地理院電子地形図に追記)

## 2.3 測定条件

本県における積雪深を考慮し、機器更新前後とも検出器高さは1.8 mとした。

空間放射線量率の測定値は、算術平均により2分値（生データ）から10分値を、10分値から1時間値を算出し、比較には1時間値を用いた。

スペクトルデータは、10分間の積算値を6個合算した1時間分の積算値を用いた。

## 3. 調査結果

### 3.1 3インチ NaI と2インチ NaI の測定値の比較

降雨等及び積雪による影響がないと考えられる測定値（いわゆるベースライン）を機器更新前後それぞれ抽出し、比較した。更新前後の機器のセルフドーズの差と併せ、表2に結果を示す。

各地点における“ベースラインを形成する1時間値の集合”の標準偏差は更新前後で同程度であった。更新後の2インチ NaI は結晶サイズが小さくなったことで3インチ NaI より計数率が減少するものの、1時間値を評価する観点からは影響がないことがわかる。

表 2 機器更新前後における降雨積雪の影響のない測定値（1 時間値）の比較

地点	期間	データ数*	平均値 ± 標準偏差 (nGy/h)	平均値の差 (更新後-更新前) (nGy/h)	セルフドーズの差 (更新後-更新前) (nGy/h)
尾駁	更新前 R4.4 月	391	21.7 ± 0.3	-0.2	-0.4
	更新後 R5.4 月	358	21.5 ± 0.2		
千歳平	更新前 R4.4 月	375	22.8 ± 0.3	-0.2	-0.3
	更新後 R5.4 月	346	22.6 ± 0.2		
平沼	更新前 R4.4 月	386	20.4 ± 0.3	-0.1	-0.3
	更新後 R5.4 月	352	20.3 ± 0.3		
泊	更新前 R4.4 月	380	20.6 ± 0.3	-0.7	-0.3
	更新後 R5.4 月	334	19.9 ± 0.2		
吹越	更新前 R4.4 月	389	21.0 ± 0.2	-1.1	-0.3
	更新後 R5.4 月	334	19.9 ± 0.2		

※ 1 時間値のうち、以下のすべての条件を満たす値を用いた。  
 ・感雨有が連続していた場合、感雨無となった 1 時間経過後  
 ・降水量 0 mm が 2 時間連続した後  
 ・積雪深 0 cm

セルフドーズは更新前（3 インチ NaI）より更新後（2 インチ NaI）の方が低く、これは主として結晶のサイズの違いによるものと考えられる。吹越を除く 4 地点では、更新前後のベースラインの差は概ねセルフドーズの差と同程度であったが、吹越ではセルフドーズの差と比較してベースラインの差が大きめであった。

図 2 に、吹越及び比較対象として尾駁の空間放射線量率測定器周辺のレイアウトを示す。吹越は敷地スペースの都合上、他地点と比較して非常用発電機や局舎が測定器に近接しており、周辺の地表面の露出が少ない。このため、NaI 結晶サイズが小さくなったことに起因して検出器に対する基部構造物の立体角が増大し、地表面からの放射線の遮蔽が増加した影響が、他地点と比較して大きく表れたものと考えられる。このような他地点との周辺状況の違いにより、空間放射線量率の低下幅が大きくなったものと考えられる。

なお、吹越では空間放射線量率測定器の更新と並行し、気象観測装置パンザーマストの場所変更や中性子線量率計の撤去も行っており、ベースラインの変動には、これらの要因も複合しているものと考えられる。

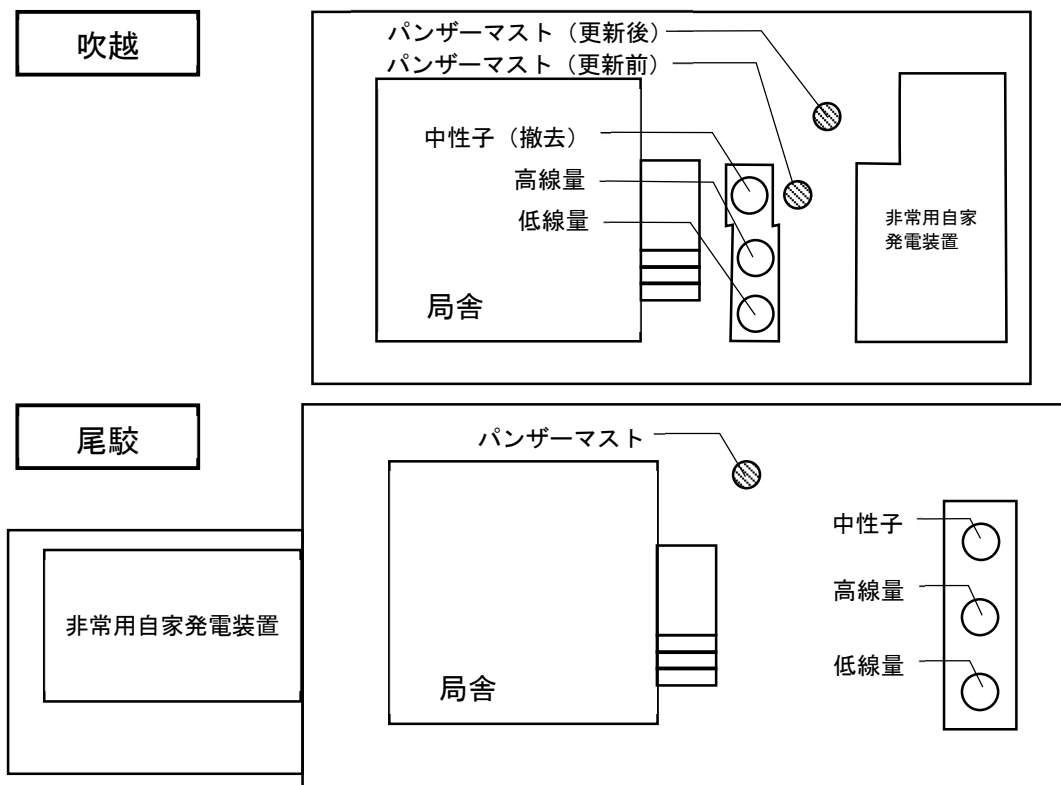


図2 検出器周辺のレイアウト（吹越、尾駁）

### 3.2 3インチ NaI と2インチ NaI の推定人工線量率の比較

空間放射線量率の測定により、 $\gamma$ 線による施設起因の線量を推定・評価するため、本県ではSCA弁別法\*を用いて人工放射性核種による線量率（以下「推定人工線量率」という。）を算出している<sup>4)</sup>。人工放射性核種の影響がない場合、推定人工線量率は0付近で正負方向に変動する。

#### ※SCA 弁別法による推定人工線量率算出方法

空間放射線量率を目的変数、SCA(Bi)及びSCA(Tl)を説明変数とする重回帰分析を行い、得られた重回帰式(式(1))から自然放射性核種寄与分の線量率（以下「推定自然線量率」という。）を求め、空間放射線量率から推定自然線量率を差し引いて推定人工線量率を算出する（式(2)）。

重回帰式の定数（式(1)のa,b,c）は、使用済燃料のせん断・溶解期間以外で施設寄与を含まない測定値から、原則として四半期ごとに算出する。

$$\text{推定自然線量率(nGy/h)} = a \times \text{SCA(Bi)} + b \times \text{SCA(Tl)} + c \quad \dots \text{式(1)}$$

$$\left[ \begin{array}{l} \text{SCA(Bi)} : \text{Bi-214 エネルギー領域(1.65} \sim \text{2.5 MeV)の計数率(cps)} \\ \text{SCA(Tl)} : \text{Tl-208 エネルギー領域(2.51} \sim \text{3 MeV)の計数率(cps)} \\ \text{a,b,c} : 1 \text{時間値を用いた重回帰分析により求めた定数} \end{array} \right]$$

$$\text{推定人工線量率(nGy/h)} = \text{空間放射線量率(nGy/h)} - \text{推定自然線量率(nGy/h)} \quad \dots \text{式(2)}$$

更新前後の機器の測定値から算出した推定人工線量率と、その標準偏差を表3に示す。これらの期間、測定値に原子力施設からの影響は認められていない。更新後の平均値が更新前より大きい、これは重回帰式の算出に用いているデータに積雪期のデータが含まれておらず、SCA(Tl)項係数の不確かさが相対的に大きいことに起因していると考えられるが、本報における検討には影響しない。

NaI 結晶サイズの違いにより、更新後の 2 インチ NaI では計数率が減少して標準偏差が大きくなるが、平均値は更新前後ともほぼ 0 であり、年間を通じた測定結果をもとに、施設起因の線量が十分小さいことを確認する目的を達成することに支障はない。

なお、推定人工線量率の振れ幅は広がるものの、その幅は標準偏差の 3 倍として 2 インチ NaI においても～2 nGy/h 程度であり、予期しない放出の早期検知の観点においても十分な性能を有している。

表 3 機器更新前後における推定人工線量率（1 時間値）の比較

地点	更新前	期間	データ数	平均値 (nGy/h)	標準偏差 (nGy/h)
尾駸	更新前	R4.4 月～6 月	2152	<0.001	0.246
	更新後	R5.4 月～6 月	2086	0.013	0.503
千歳平	更新前	R4.4 月～6 月	2152	<0.001	0.231
	更新後	R5.4 月～6 月	2092	0.007	0.485
平沼	更新前	R4.4 月～6 月	2153	<0.001	0.232
	更新後	R5.4 月～6 月	2096	0.003	0.482
泊	更新前	R4.4 月～6 月	2154	<0.001	0.247
	更新後	R5.4 月～6 月	2088	0.003	0.512
吹越	更新前	R4.4 月～6 月	2154	<0.001	0.206
	更新後	R5.4 月～6 月	2094	0.004	0.464

### 3.3 3 インチ NaI と 2 インチ NaI のスペクトルの比較

図 3 に、2 インチ NaI と 3 インチ NaI のスペクトル（1 時間分の積算値）の例を示す。各チャンネルの計数は 2 インチ NaI の方が少ないものの、核種ごとのピークは確認できており、バックグラウンドレベルにおいて線量率に影響する核種を判別することに支障はないと考えられる。

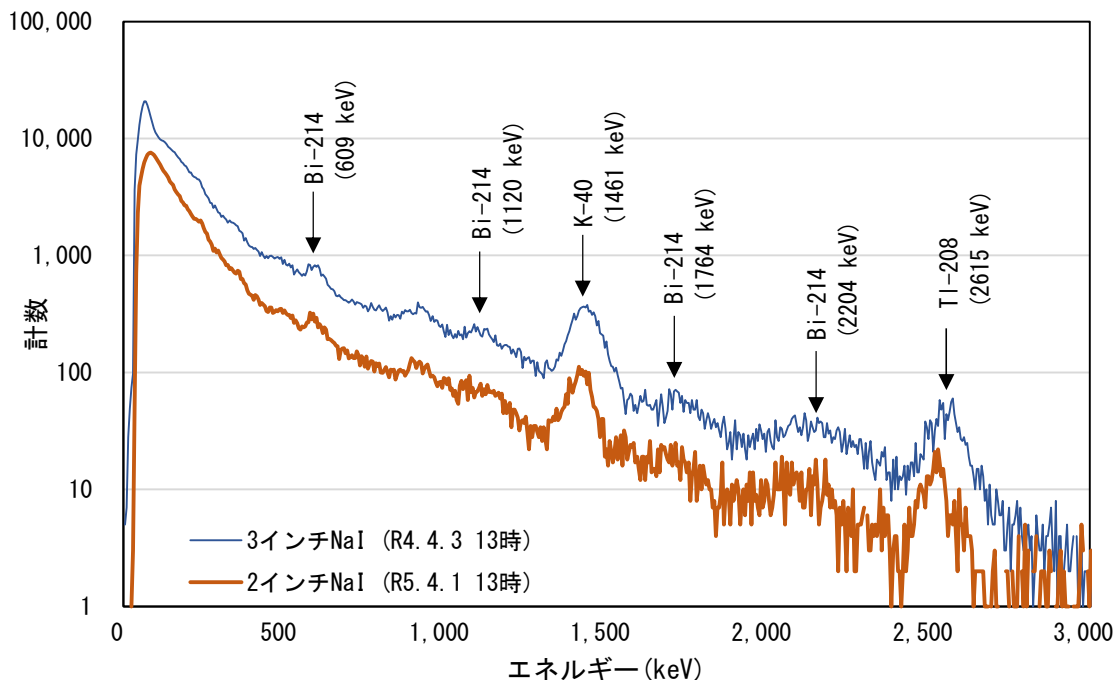


図 3 2 インチ NaI 及び 3 インチ NaI のスペクトル（1 時間値）の例

#### 4. まとめ

- ・更新後の2インチ NaI の測定値は、更新前の3インチ NaI と比較して同程度であった。1時間値のばらつきには更新前後で差が見られず、平常時の空間放射線量率の評価に問題はなかった。
- ・SCA 弁別法による推定人工線量率のばらつきは、更新後の2インチ NaI で更新前と比較して2～3倍程度となったが、周辺住民等の線量評価の目的を達成することに支障はなく、予期しない放出の早期検知の目的の観点からも問題のない水準であった。
- ・スペクトルのチャンネルごとの計数は、更新後の2インチ NaI で更新前と比較して減少したが、平常時の空間線量率に寄与している核種の弁別に支障を及ぼすものではなかった。

#### 文献

- 1) 青森県：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング計画  
[https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor\\_plan\\_cycle.html](https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor_plan_cycle.html)
- 2) 青森県：東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング計画  
[https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor\\_plan\\_higashidori.html](https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor_plan_higashidori.html)
- 3) 青森県：リサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線モニタリング計画  
[https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor\\_plan\\_rfs.html](https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor_plan_rfs.html)
- 4) 青森県：測定結果に基づく線量算出要領  
<https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/files/sansyutuyoryo-R503.pdf>



## GAGG シンチレーション検出器を用いた空間線量率計の測定結果

三浦 太 谷地俊一郎 神 俊雄

### 1. はじめに

本県では県内に立地する原子燃料サイクル施設、原子力発電所及び使用済燃料中間貯蔵施設を対象として環境放射線モニタリングを実施しており<sup>1)2)3)</sup>、その一環として、施設周辺において、空間放射線量率の連続測定を実施している。従来、低線量率計としてNaI(Tl)シンチレーション検出器（以下「NaI」という。）を、高線量率計として電離箱検出器（以下「電離箱」という。）またはシリコン半導体検出器をそれぞれ用いてきた。

今般、「平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）」（平成30年4月4日策定、原子力規制庁監視情報課）及び「緊急時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）」（平成26年1月29日策定、原子力規制庁監視情報課）（以下「緊急時補足参考資料」という。）の記載内容を踏まえた仕様により空間放射線量率計を更新し、高線量率計として「セリウム添加ガドリニウムアルミニウムガリウムガーネット（Ce:Gd<sub>3</sub>(Ga,Al)<sub>5</sub>O<sub>12</sub>）シンチレーション検出器（以下「GAGG」という。）」を整備した。ガドリニウムアルミニウムガリウムガーネットは、吸湿性、潮解性及び自己放射線がないシンチレータであり<sup>4)</sup>、コンプトンカメラ<sup>5)</sup>やサーベイメータ<sup>6)</sup>として実用化されている。本報では、GAGGの特性を調べるため、NaIとの測定結果を比較し、概要を取りまとめた。

### 2. 空間放射線量率測定（高線量率）

原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所を対象とした高線量率計による空間放射線量率測定地点を図1及び図2に示す<sup>1)2)</sup>。固定観測局14地点（県8地点、事業者6地点）及び簡易型電子線量計42地点で測定を行っている。県の固定観測局で令和4～5年度にかけて機器更新を行い、高線量率計は全て電離箱からGAGGに変更した。

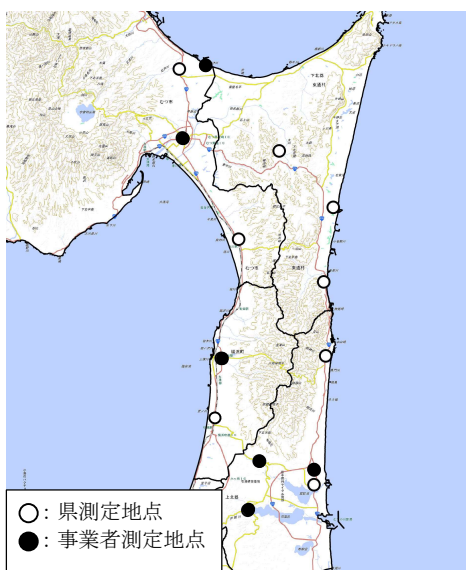


図1 高線量率測定地点（固定観測局）  
（国土地理院電子地形図に追記）

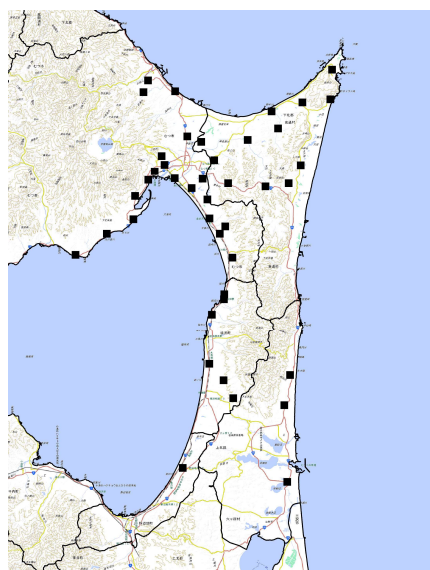


図2 高線量率測定地点（簡易型電子線量計）  
（国土地理院電子地形図に追記）

### 3. 調査方法

#### 3.1 検出器

今回比較する GAGG と NaI の仕様を表 1 に示す。

表 1 検出器仕様

仕様	GAGG	NaI
メーカー	アロカ株式会社	アロカ株式会社
結晶サイズ・形状	5 mm 角立方体	2 インチφ×2 インチ円柱
測定範囲 (μGy/h)	0 ~ 999999	BG ~ 10
測定エネルギー範囲 (keV)	50 ~ 5000	50 ~ 3000
データ伝送間隔	2 分毎	2 分毎
スペクトルデータ取得機能	有り	有り
加温装置	有り	有り

#### 3.2 測定場所及び測定条件

測定地点は図 3 のとおり GAGG と NaI を併設している尾駁地点（六ヶ所村）とした。GAGG と NaI の位置関係は図 4 のとおり互いに隣接している。検出器の高さは、GAGG、NaI とも 1.8m である。

空間放射線量率の測定値は、算術平均により 2 分値（生データ）から 10 分値を、10 分値から 1 時間値を算出し、比較には 1 時間値を用いた。

スペクトルデータは、10 分間の積算値を 31 日分合算した積算値を用いた。

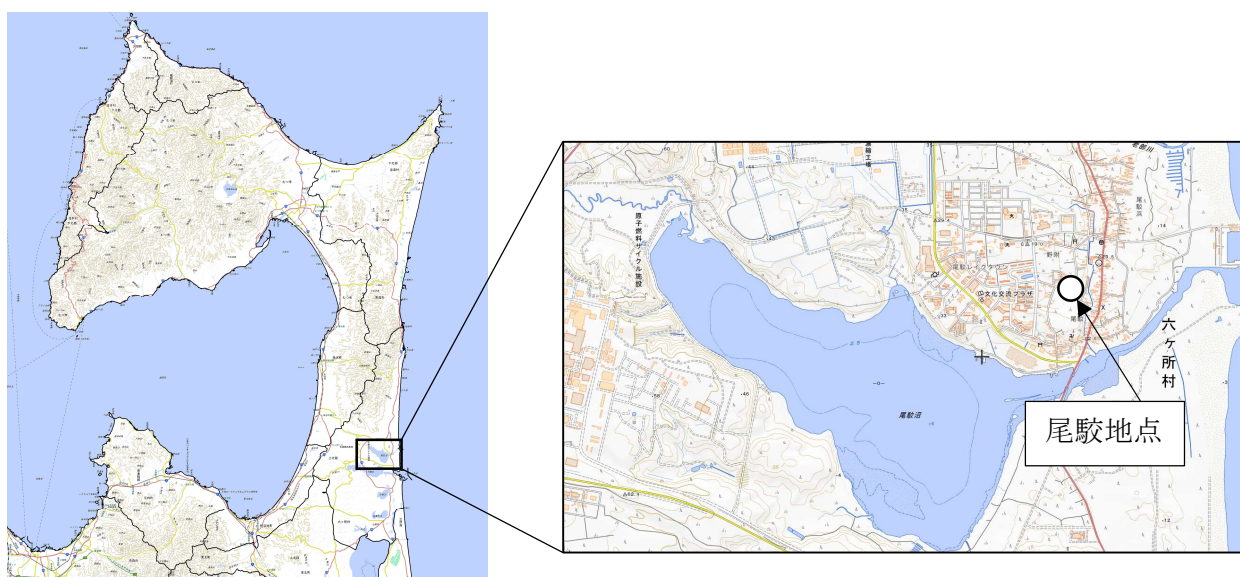


図 3 測定地点位置図（国土地理院電子地形図を利用）



図4 測定器の位置関係

#### 4. 調査結果

##### 4.1 測定値の推移

令和5年9月1日から9月30日までの期間のGAGG及びNaIの測定値を図5に示す。GAGGとNaIの測定値は降雨時に上昇するなど同様の変動を示した。なお、GAGGはベースラインがNaIより30 nGy/h程度高いが、これは3 MeV以上のエネルギーをカットしているNaIと異なり、宇宙線の影響を含むためである。

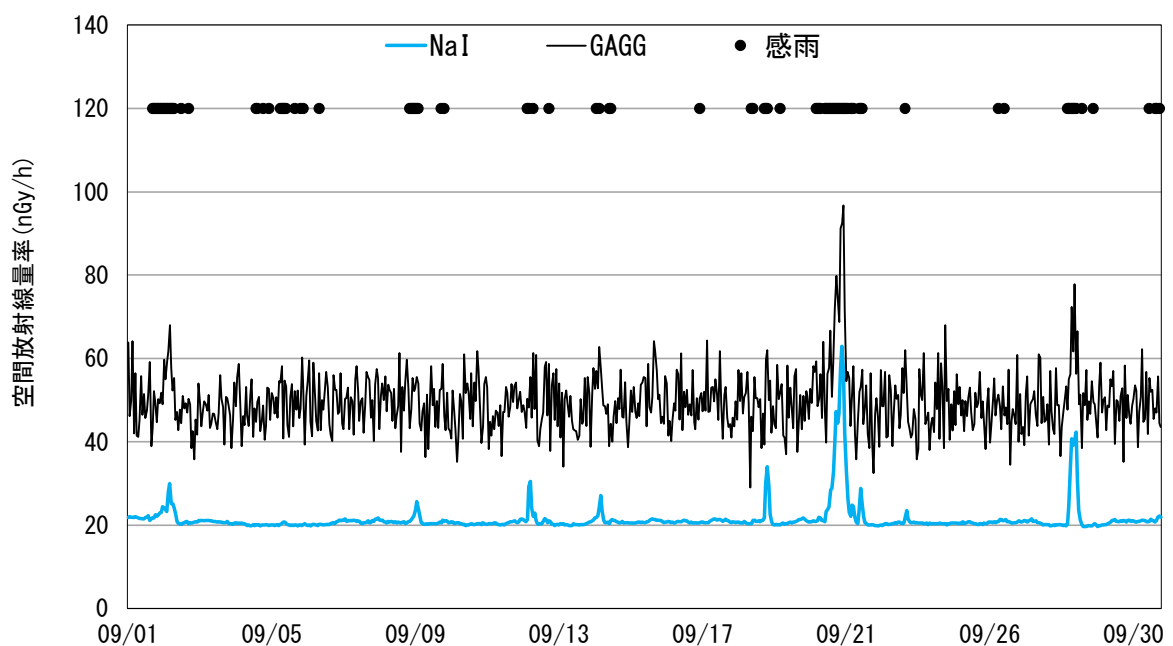


図5 NaIとGAGGの測定値(1時間値)の推移(R5.9.1~9.30)

## 4.2 測定値の統計

GAGG 及び NaI の測定値のうち、降雨雪及び積雪のない期間の測定結果を表 3 に示す。降雨雪及び積雪による変動を除外しているため、測定条件が概ね均一になり、ほぼ一定の値を示す。GAGG は、前述の宇宙線の影響により平均、最大、最小いずれも NaI より高めの傾向が見られた。また、GAGG は結晶サイズが小さいため計数が少なく、これに起因してばらつきが大きい。

緊急時補足参考資料では、高線量率計の仕様として

- ・エネルギー情報は必要ではなく、バックグラウンド付近の空間放射線量率の測定について、数時間で精度の良いデータを取得できることで十分
- ・環境放射線の状況に関する情報収集及び OIL に基づく防護措置の実施の判断材料の提供を適切に行うため、東京電力（株）福島第一原子力発電所事故の敷地外における測定結果を踏まえ、0.5  $\mu\text{Sv/h}$  から 10  $\text{mSv/h}$  までを測定できる必要がある。

とされており、GAGG はそれらを十分に満たしているものと考えられる。

表 3 GAGG 及び NaI の測定値の統計値 (n=516)  
(9 月 1 日～9 月 30 日のうち降雨雪及び積雪のない期間の 1 時間値)

統計値	GAGG	NaI
最大 (nGy/h)	68.0	22.0
最小 (nGy/h)	32.5	19.6
平均 (X) (nGy/h)	48.5	20.6
標準偏差 ( $\sigma$ ) (nGy/h)	5.9	0.4
変動係数 ( $\sigma/X$ ) (%)	12.2	1.9

## 4.3 スペクトル

令和 5 年 10 月 1 日から 10 月 31 日までのデータを用いた GAGG のスペクトルを図 6 に示す。高線量測定用の検出器であり、結晶サイズが小さい検出器のため明確なエネルギーピークは見られなかった。

図 7 に Cs-137 線源を用いて照射した際のスペクトルを示す。本スペクトルは分解能評価のため 662 keV のピークが約 800 ch で確認できるよう増幅率等を調整したものである。照射に用いた Cs-137 のピークが明確に認められており、高線量域では GAGG のスペクトルデータから線量率の上昇に寄与している核種を推定することが可能と考えられる。なお、220 ch 付近に見られるピークは後方散乱によるものと考えられる。

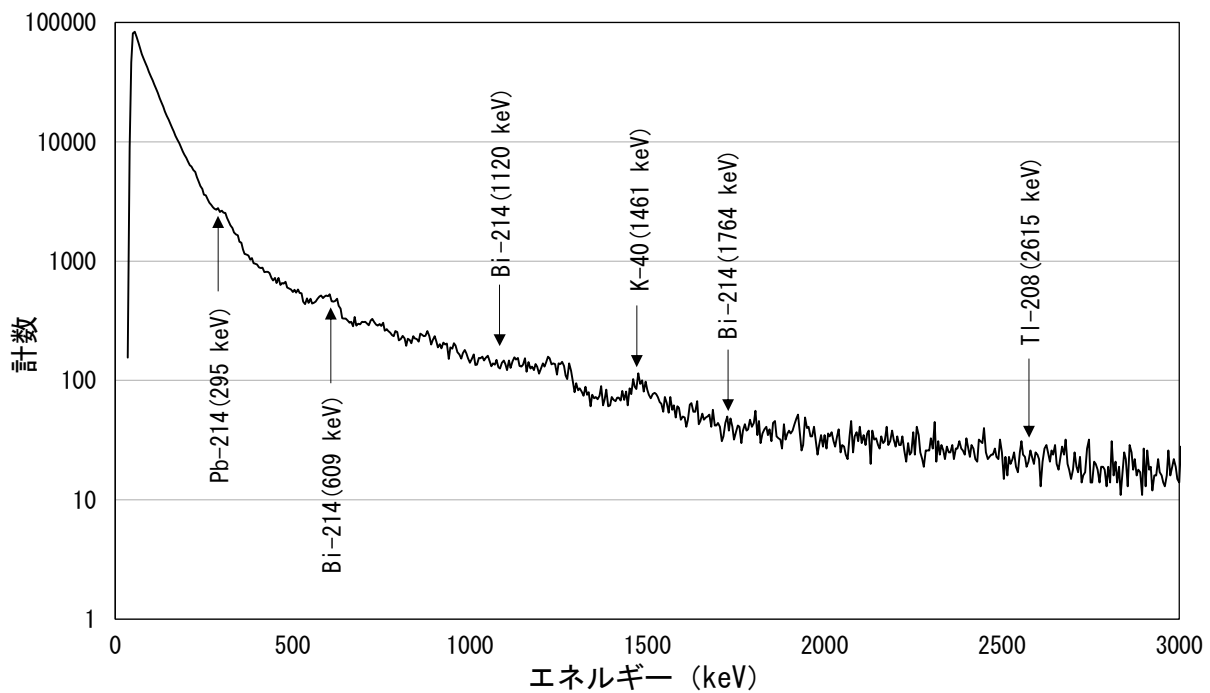


図 6 GAGG のスペクトルデータ (10 月 1 日～10 月 31 日に得られたデータを積算したもの)

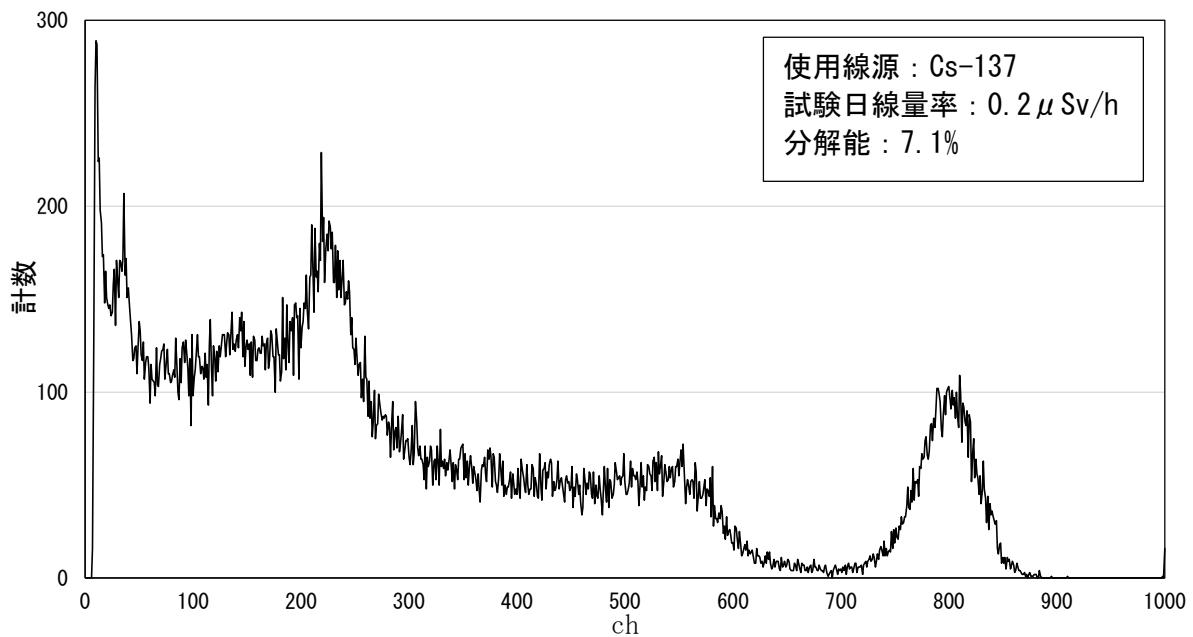


図 7 Cs-137 線源により照射した際のスペクトル (令和 5 年 10 月 15 日 10 時 40 分～50 分)

#### 4. まとめ

- バックグラウンドレベルの測定において、NaI と比較すると GAGG は若干バラつきが大きい  
が、高線量測定用に小さなシンチレータを採用していることが原因であり、補足参考資料の  
要求する性能は十分満たしている。
- 高線量率領域の測定において、GAGG のスペクトルデータから線量率に寄与している人工放  
射性核種を把握することが可能である。

## 文 献

- 1) 青森県：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング計画  
[https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor\\_plan\\_cycle.html](https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor_plan_cycle.html)
- 2) 青森県：東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング計画  
[https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor\\_plan\\_higashidori.html](https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor_plan_higashidori.html)
- 3) 青森県：リサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線モニタリング計画  
[https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor\\_plan\\_rfs.html](https://www.pref.aomori.lg.jp/soshiki/kikikanri/atom/monitor_plan_rfs.html)
- 4) 京都大学 谷垣実：令和3年度原子力規制庁放射線対策委託費（放射線安全規制研究戦略的推進事業費）環境放射線モニタリングに適した半導体受光素子ベースの検出器の開発（2022）
- 5) 曾根宏、氏家博輝：宮城県産業技術センター研究報告 No.16 セラミックスシンチレータに関する研究開発
- 6) 東北経済産業局：Ce:GAGG シンチレータ結晶における大型結晶製造プロセスの低コスト化研究開発成果等報告書

## KURAMA-II を用いた走行サーベイにおける車両遮蔽係数の検討

高森 舜弥 神 俊雄

### 1. はじめに

青森県では、空間放射線量率の分布を把握し緊急時の基礎情報とするため、県内に立地する原子力施設周辺において、平常時から走行サーベイを実施している。走行サーベイに用いる車両は2台整備しており、従来は2台とも、低線量率計として NaI(Tl)シンチレーション検出器（以下「NaI 検出器」という。）、高線量率計としてシリコン半導体検出器（以下「半導体検出器」という。）をそれぞれ採用していた。

令和4年度に車両1台を更新し、新たに CsI(Tl)シンチレーション検出器（以下「CsI 検出器」という。）を備えた機器を導入した。今回導入した CsI 検出器は、放射能測定法シリーズ No.17「連続モニタによる環境γ線測定法」<sup>1)</sup>に記載されている「可搬型タイプ」の走行モニタリングシステムであり、原子力災害時に車体が汚染した場合でも、測定器を別の車両へ載せ替えることで、走行サーベイを継続できる利点がある。車両間での載せ替えに当たっては、車体による遮蔽の影響を車両ごとにあらかじめ確認しておく必要がある。

本報では、固定観測局に設置した NaI 検出器と今般整備した CsI 検出器の並行測定を実施し、測定値の比較を行うとともに、当所が保有する複数の車両に CsI 検出器を積載し、車両ごとの遮蔽の影響を比較検討した結果を報告する。

### 2. 調査方法

#### 2.1 走行サーベイ用機器

CsI 検出器は、(株)松浦電弘社製「KURAMA-II」を用いた。測定部の機器構成を図1に示す。当該機器は、低線量率用の C12137-01 型と高線量率用の C12137-00 型の2つの検出器（いずれも浜松ホトニクス(株)製）を有する。CsI 検出器及び当所で保有するもう1台の走行サーベイ機器に搭載された検出器の仕様を表1及び表2に示す。

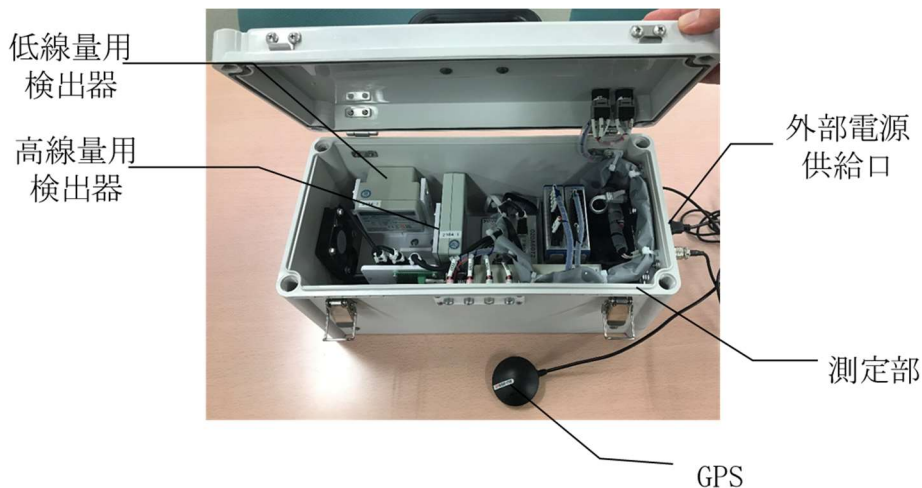


図1 測定部機器構成

表 1 検出器仕様（低線量率用）

検出器の種類	CsI(Tl)シンチレーション検出器	(参考) NaI(Tl)シンチレーション検出器
	検出器品名	C12137-01
メーカー	㈱松浦電弘社	アロカ㈱
結晶サイズ・形状	38×38×25 mm 八角柱	2 インチ φ×2 インチ円柱
検出器高さ	0.83 m（トヨタ RAV4 車載時）	1.95 m
測定範囲	10 nGy/h～100 μGy/h	10 nGy～10 μGy/h
測定エネルギー範囲	60 keV～3 MeV	50 keV～3 MeV
線量演算	G(E)関数法	G(E)関数法
スペクトルデータ取得機能	有り	有り

表 2 検出器仕様（高線量率用）

検出器の種類	CsI(Tl)シンチレーション検出器	(参考) 半導体検出器
	検出器品名	C12137-00
メーカー	㈱松浦電弘社	アロカ㈱
サイズ・形状	13×13×20 mm	板状
検出器高さ	0.83 m（トヨタ RAV4 車載時）	1.95 m
測定範囲	200 nGy/h～2 mGy/h	10 μGy/h～100 mGy/h
測定エネルギー範囲	50 keV～3 MeV	50 keV～
スペクトルデータ取得機能	有り	無し

## 2.2 CsI 検出器と NaI 検出器の測定値の比較

車両による遮蔽の影響を検討するに当たっては、複数の同種の検出器により並行測定を行い、その測定値を比較することが望ましいが、現時点で当所が保有する CsI 検出器は 1 台のみである。また、車外に配置した状態及び車載した状態の 2 つの検出器で並行測定する場合、車外に配置した検出器の測定値に、車体による遮蔽の影響が及ぶことが想定される。

このため、あらかじめ固定観測局の NaI 検出器と、車外に配置した CsI 検出器とで並行測定を行い、NaI 検出器の測定値から車外に配置した CsI 検出器の測定値を推定し、車内に設置した CsI 検出器の測定値と比較することとした。

なお、並行測定にあたり、固定観測局 千歳平（六ヶ所村倉内字笹崎 521-2）の NaI 検出器の近傍に、検出器中心の高さが地上約 1 m となるよう CsI 検出器を脚立上に設置した。両測定器の位置関係は図 2 のとおり。また、両検出器の仕様を表 3 に示す。なお、CsI 検出器は、表 1 に掲載した仕様と同一の機器である。



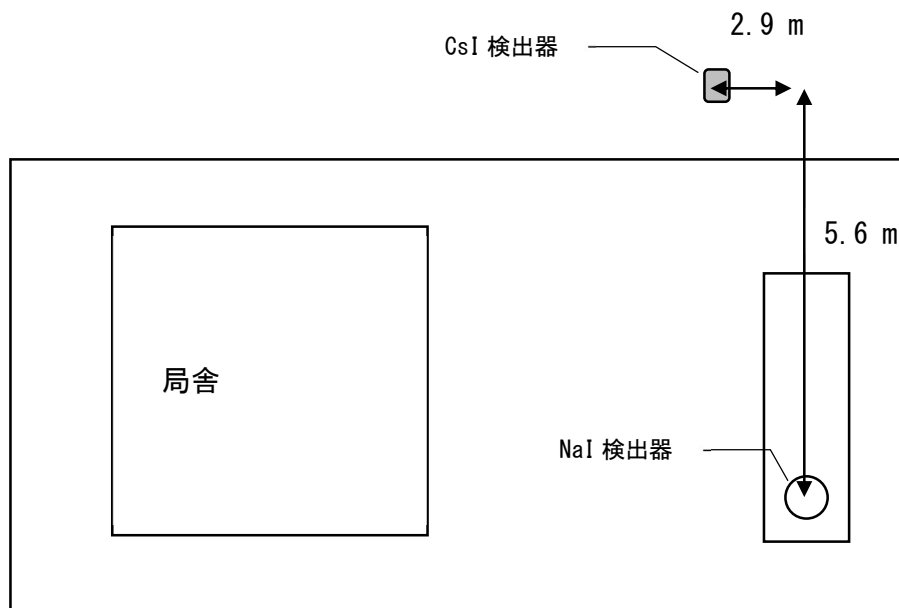


図2 固定観測局 千歳平におけるNaI 検出器とCsI 検出器設置位置の関係

表3 検出器仕様（低線量率用）

検出器の種類	CsI(Tl)シンチレーション検出器 (再掲)	NaI(Tl)シンチレーション検出器 (固定観測局)
検出器品名	C12137-01	ADP-1132
メーカー	㈱松浦電弘社	アロカ㈱
結晶サイズ・形状	38×38×25 mm 八角柱	2 インチ φ×2 インチ円柱
検出器高さ	0.95 m (屋外用脚立設置時)	1.8 m
測定範囲	10 nGy/h～100 μGy/h	BG～10 μGy/h
測定エネルギー範囲	60 keV～3 MeV	50 keV～3 MeV
線量演算	G(E)関数法	G(E)関数法
スペクトルデータ取得機能	有り	有り

今回導入したCsI 検出器は、測定目的に合わせて任意の測定周期（1～60秒）を設定できる。本検討ではCsI 検出器の測定周期を60秒とし、算術平均により60秒間の平均値（1分値）から10分値を算出した。車載しない状態のCsI 検出器の10分値（以下「CsI（車外）」という。）とNaI 検出器の10分値（以下「NaI（千歳平）」という。）との関係を、(1)式として近似した。

$$[\text{CsI (車外)}] = A \cdot [\text{NaI (千歳平)}] + B \cdots \cdots (1)$$

（ただし、A、Bは定数）

### 2.3 車両ごとの車両遮蔽係数の算出

各車両について、CsI（車外）と、車載した状態の測定値（以下「CsI（車内）」という。）の比として、車両遮蔽係数を、(2)式のとおり定義する。

$$\text{車両遮蔽係数} = [\text{CsI (車外)}] / [\text{CsI (車内)}] \cdots (2)$$

1) 式及び2) 式より、車両遮蔽係数は、以下の(3)式で表される。

$$\text{車両遮蔽係数} = \{A \cdot [\text{NaI (千歳平)}] + B\} / [\text{CsI (車内)}] \cdots (3)$$

CsI 検出器を車載した状態で、CsI 検出器の位置が図 2 と一致するよう車両を配置し、空間放射線量率を測定した。

CsI 検出器による測定周期は 60 秒とし、算術平均により 60 秒間の平均値 (1 分値) から 10 分値を算出した。24 時間以上連続して並行測定を行い、(3)式により、正 10 分ごとに車両遮蔽係数を算出した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 CsI 検出器と NaI 検出器の測定値の比較

NaI 検出器と CsI 検出器の測定結果を表 4 に、経時変化を図 3 に示す。降雨時の線量率上昇は、NaI 検出器と CsI 検出器で概ね同等の挙動を示した。既報<sup>2)</sup>と同様に、CsI 検出器による測定値のベースラインは、NaI 検出器よりも若干高め傾向を示している。

バックグラウンドレベルにおいて、主たる放射線源は地表面であることを踏まえると、脚立上に設置した CsI 検出器は、コンクリート基礎及び架台上に設置された NaI 検出器と比較し真下方向の遮蔽が小さいこと及び NaI 検出器より低い位置にあることから、ベースラインが若干高めになっているものと推定される。

両検出器の測定値の関係は図 4 のとおりであり、強い正の相関が見られる。ここで得られる関係式から、(1)式のパラメータは  $A=0.875$ 、 $B=4.74$  とした。なお、これはバックグラウンドレベルの環境における測定から得られた値であり、線源分布やエネルギーが異なる原子力災害時には、異なるパラメータが得られると考えられる。

表 4 CsI (車外) 及び NaI (千歳平) の測定値の統計

統計値	CsI (車外)	NaI (千歳平)
データ数	149	149
最大 (nGy/h)	35.5	35.5
最小 (nGy/h)	21.7	20.6
平均 (X) (nGy/h)	24.7	22.8
標準偏差 ( $\sigma$ ) (nGy/h)	2.9	3.3

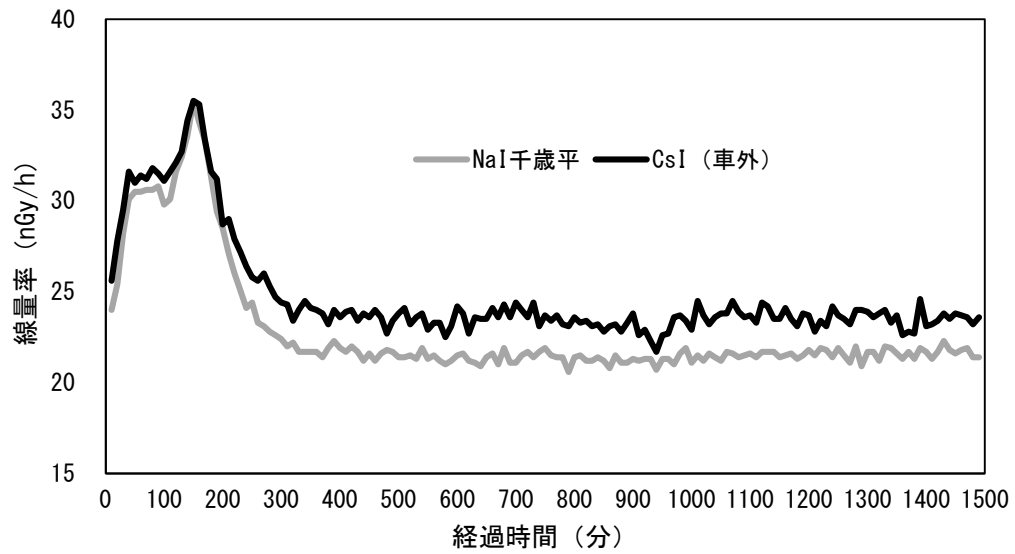


図3 CsI 検出器と NaI 検出器の測定値の経時変化  
 (測定期間:2023/10/17 10:00 ~ 2023/10/19 17:00)

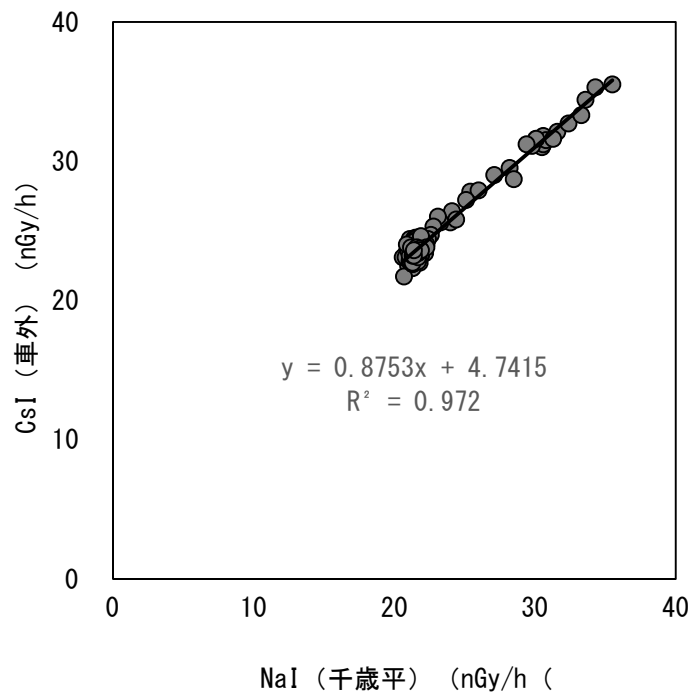


図4 CsI 検出器と NaI 検出器の測定値の関係

### 3.2 車両遮蔽係数の算出

表5に使用した車両と車内の検出器設置位置、検出器中心の高さ及び測定期間を示す。(3)式により得た車両遮蔽係数を表6に示す。

表5 車両ごとの検出器設置条件

設置場所・車両	設置位置	中心高さ (m)	NaI との並行測定期間
車外	-	0.95	2023/10/17~2023/10/19
トヨタ RAV4	右側後部座席	0.83	2023/10/24~2023/10/26
トヨタ エスティマ	助手席※	1.05	2023/10/20~2023/10/22
スバル XV	右側後部座席	0.81	2023/11/2~2023/11/4
トヨタ ハイエース	右側後部座席	1.07	2023/11/21~2023/11/23
トヨタ アルファード	右側後部座席	1.02	2023/12/8~2023/12/10
トヨタ アルファード HV	右側後部座席	1.05	2024/1/5~2024/1/7

※右側後部座席位置に測定機器等が設置されているため、助手席に設置

表6 車両ごとの車両遮蔽係数

車両	データ数 (10 分値)	車両遮蔽係数 ± 標準偏差
トヨタ エスティマ	282	1.70 ± 0.04
トヨタ RAV4	294	1.74 ± 0.04
スバル XV	321	1.61 ± 0.04
トヨタ ハイエース	288	1.52 ± 0.03
トヨタ アルファード	287	1.62 ± 0.04
トヨタ アルファード HV	288	1.64 ± 0.05

青森県が保有する車両のバックグラウンドレベルにおける車両遮蔽係数は 1.52 ~ 1.74 であり、表7に示す他機関での先行研究<sup>3), 4), 5), 6)</sup> (算出方法は本報と異なる) と概ね同程度の値であった。

本調査では、車両によって車両遮蔽係数に差が見られた。これは先行研究でも議論されているとおり、測定器を取り巻く遮蔽物の状況が異なることに起因すると考えられる。本報における例として、車長、車高、車幅及び車両重量が類似しているトヨタ RAV4 (車両遮蔽係数: 1.74 ± 0.04) とスバル XV (車両遮蔽係数: 1.61 ± 0.04) の車両遮蔽係数が異なるのは、RAV4 の車体底部にある HV 用のバッテリーが、地表面からの放射線をより強く遮蔽しているためと考えられる。

原子力災害時等において CsI 検出器を別車両に載せ替えて走行サーベイを行う際は、車両遮蔽係数の差異に留意する必要がある。

表 7 先行研究における車両遮蔽係数の例

機関	車両遮蔽係数	検出器の種類(型名)	備考
(独法) 日本原子力研究開発機構	1.30	NaI 検出器 (TCS-161)	1 $\mu$ Sv/h 以上の場合
宮城県環境放射線監視センター	1.92 ~ 2.70	CsI 検出器 (HDS-101G)	換算方向 (車内 $\leftrightarrow$ 車外) が異なるため、逆数として示す
福井県原子力環境監視センター	1.39 ~ 1.59	NaI 検出器 (TCS-172B)	バックグラウンドの値から算出
(公財) 日本分析センター	1.17 ~ 1.50	CsI 検出器 (C12137-01)	福島県内での測定値から算出

#### 4. まとめ

- ・ 走行サーベイ用の CsI 検出器と固定観測局に設置した NaI 検出器の測定値には強い正の相関がみられた。
- ・ CsI 検出器を車載した際の車両遮蔽係数は、遮蔽物の配置状況の違いにより車両間で差が見られたが、先行研究での値と同程度であった。

#### 文 献

- 1) 原子力規制庁監視情報課：放射能測定法シリーズ No.17「連続モニタによる環境  $\gamma$  線測定法」(平成 29 年 12 月改訂)
- 2) 青森県原子力センター：CsI(Tl)シンチレーション検出器を用いた空間線量率計と既設機器との測定結果の比較検討, 青森県原子力センター所報第 17 巻, 39-48, (2022)
- 3) 独立行政法人日本原子力研究開発機構福島技術本部福島環境安全センター：走行サーベイシステム KURAMA-II を用いた測定の基盤整備と実測への適用, JAEA-Technology 2013-037, (2013)
- 4) 宮城県環境放射線監視センター：走行サーベイ用 CsI(Tl)線量計の遮蔽係数の測定, 宮城県環境放射線監視センター年報 第 4 巻, 30-33, (2018)
- 5) 福井県原子力環境監視センター：走行サーベイによる福井県内全域の環境放射線レベル評価 (最終評価), 令和 2 年度福井県原子力環境監視センター所報第 27 巻, 45-52, (2020)
- 6) 公益財団法人日本分析センター：種々の走行モニタリングシステムに係る技術的仕様の調査, 令和元年度原子力規制庁放射線安全規制研究戦略的推進事業成果報告書, (2020)



## 可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定調査

大久保 匠 奈良和久 檜山宝孝 大下内 伸

### 1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所及びリサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線等モニタリング（以下、「モニタリング」という。）において、年1回表土を採取し前処理したのち、ゲルマニウム半導体検出器により $\gamma$ 線放出核種濃度を測定（以下、「据置型Geによる測定」という。）している。

また、「緊急事態が発生した場合への平常時からの備え」を目的として、県及び事業者の固定観測局、簡易型電子線量計設置地点（以下、「平常時からの備えを目的とした土壤調査地点」という。）について放射性物質濃度把握のため土壤中の放射性物質濃度を調査しており、このうち県が固定観測局を設置している地点（以下、「緊急時における表土採取地点」という。）については表土を採取し前処理したのち、据置型Geによる測定を実施している。

「平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）」（平成30年4月4日策定、原子力規制庁監視情報課）において、地表に沈着した人工放射性物質濃度の測定の際には可搬型ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定（以下、「可搬型 Ge による in-situ 測定」という。）が有効であるとされていることから、令和2年度から令和5年度に、モニタリングの表土採取地点及び平常時からの備えを目的とした土壤調査地点において可搬型 Ge による in-situ 測定を実施した。

本報告では、平常時からの備えを目的とした土壤調査地点での可搬型Geによるin-situ測定の結果をとりまとめるとともに、モニタリングの表土採取地点及び緊急時における表土採取地点での可搬型Geによるin-situ測定と据置型Geによる測定結果の比較を行い、可搬型Geによるin-situ測定の特性を把握することとした。

### 2. 調査方法

#### 2.1 測定地点及び表土採取地点

##### (1) 可搬型 Ge による in-situ 測定地点

平常時からの備えを目的とした土壤調査地点を図1に、モニタリングの表土採取地点を図2に示す。可搬型 Ge による in-situ 測定地点は、図1で示す57地点及び図2で示す10地点である。

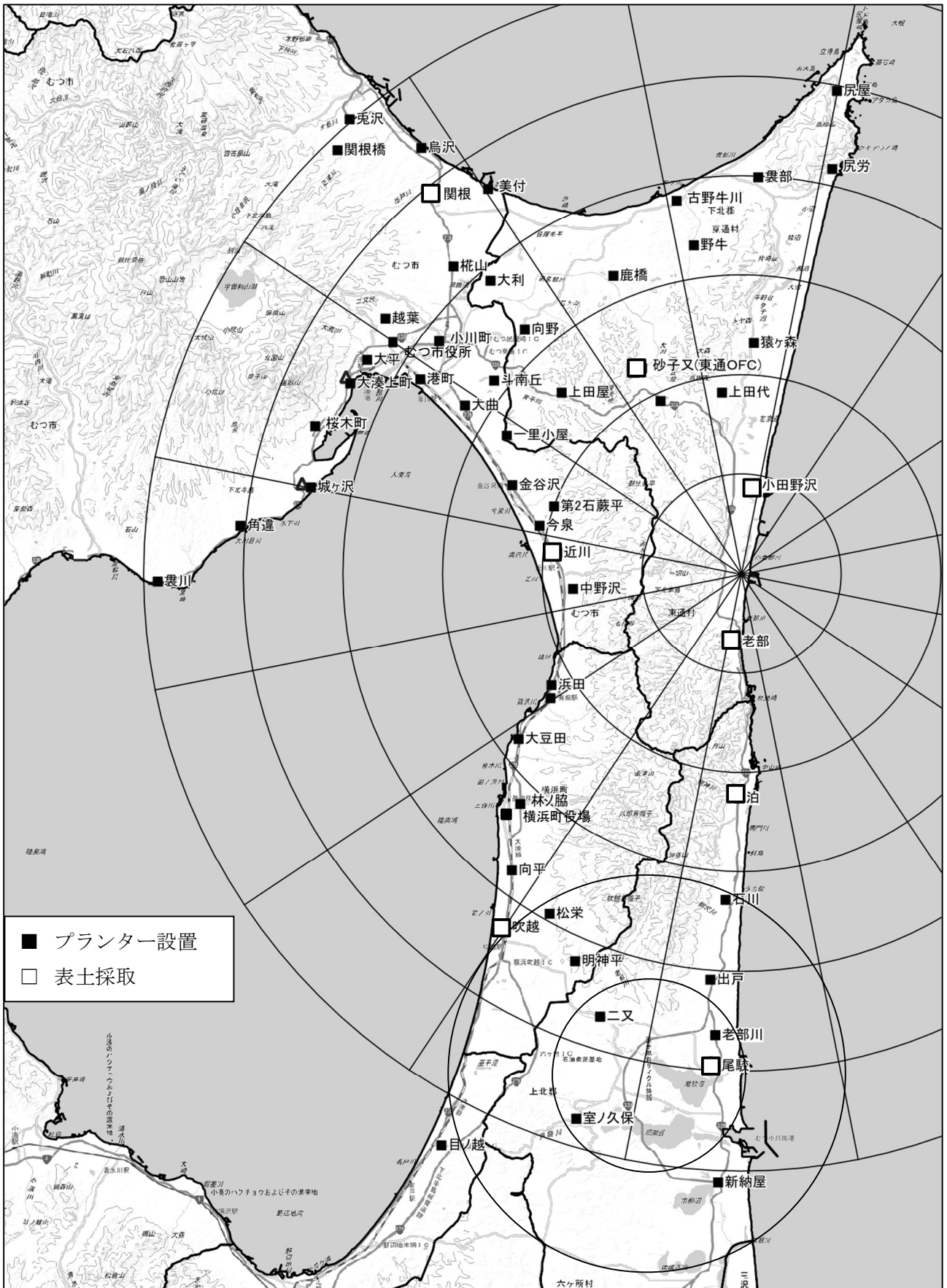
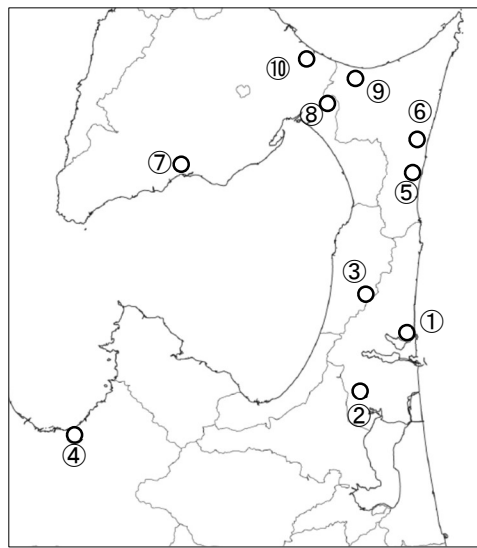


図1 平常時からの備えを目的とした土壌調査地点





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

※ 令和2年度から令和4年度まで

図2 モニタリングの表土採取地点

## (2) 表土採取地点

表土採取地点は、図1で示す平常時からの備えを目的とした土壌調査地点のうち、緊急時における表土採取地点である8地点及び図2で示す10地点である。

なお、平常時からの備えを目的とした土壌調査地点のうち、緊急時における表土採取地点を除いた残りの地点については、土地の利用状況等から表土採取が困難な地点があることから、土壌を入れたプランターを設置し、緊急時にはプランター内の土壌を採取することとしている。

## 2.2 測定方法等

### (1) 可搬型 Ge による in-situ 測定

放射能測定法シリーズ No.33「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」<sup>1)</sup>に準拠し、地上高1mに可搬型ゲルマニウム半導体検出器を設置し、1,800秒間測定を行った。

解析法については、前述の「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」に準拠し、Beckらが開発したHASLの解析法を用いて土壌中の放射性物質濃度を算出した。解析に当たっては、以下の条件を仮定した。

- ・周囲の地形は無限に開かれた平らな地形（無限平面）であること。
- ・天然放射性核種は土壌中で均一分布、人工放射性核種は(1)式に示すとおり鉛直方向に指数関数分布であること。なお、天然放射性核種のウラン系列及びトリウム系列の測定値については、分岐比を考慮した。
- ・土壌中鉛直分布を表すパラメータ $\beta$ （重量緩衝深度）については、過去の大気圏内核実験に起因するセシウム-137を考慮し、「発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について」（原子力安全委員会 平成13年）に示されている浸透係数 $\alpha = 0.33 \text{ cm}^{-1}$ と土壌密度 $\rho = 1.6 \text{ g/cm}^3$ を用いて、 $\beta$ （重量緩衝深度） $= 4.85 \text{ g/cm}^2$ （ $\beta = \rho/\alpha$ ）とした。

$$A(Z) = A_0 \times \exp\left(-\frac{Z}{\beta}\right) \cdots (1)$$

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

天然放射性物質の濃度は土壌中で一様に分布しているものとして、単位量当たりで算出され、人工放射性物質の濃度は土壌中で指数分布しているものとして、単位面積当たりで算出される。このため、据置型 Ge による測定結果を土壌採取器の採取面積と前処理後の乾土の全重量を用いて、(2)式により沈着量 (Bq/m<sup>2</sup>) に換算し、両者の測定値を比較した。

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

可搬型ゲルマニウム半導体検出器は、令和 2 年度にはミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社製 Falcon5000 を、令和 3 年度から令和 5 年度には ORTEC 社製 Trans-SPEC-DX-100T を用いた。

## (2) 据置型 Ge による測定

試料採取は、放射能測定法シリーズ No.16「環境試料採取法」<sup>2)</sup> に準拠し、ステンレス製土壌採取器 (10 cm φ × 5 cm) により、緊急時における表土採取地点では 1 地点当たり 2 ポイント、モニタリングの表土採取地点では 1 地点当たり 9 ポイントにおいて表土を採取した。

前処理は、前述の「環境試料採取法」に準拠し、採取した表土 (新鮮土) から植物根や石礫等の異物を取り除き (湿土)、105 °C で 24 時間以上乾燥した後、磨砕しながら 2 mm のふるいにより再度異物を取り除き、モーターグラインダーにより粉砕し、これを分析試料 (乾土) とした。

測定は、放射能測定法シリーズ No.7「ゲルマニウム半導体検出器による  $\gamma$  線スペクトロメトリー」<sup>3)</sup> に準拠し、分析試料 (乾土) を U-8 容器に充填し、測定した。測定時間は 80,000 秒とした。

可搬型 Ge による in-situ 測定は現場での測定であることから、測定結果は新鮮土当たりの値で得られる。一方、据置型 Ge による測定結果は乾土当たりの値で得られる。檜山らの調査報告<sup>4)</sup> において、据置型 Ge による測定結果を湿土当たりに換算したものと新鮮土当たりに換算したものについて同程度の測定結果が得られていたことから、本報告では、表土の含水率を (3) 式のとおり算出し湿土当たりに換算して、両者の測定結果を比較した (算出結果は付録 表 1、2 参照)。

$$\text{含水率(\%)} = \frac{\text{湿土重量(g)} - \text{乾土重量(g)}}{\text{湿土重量(g)}} \times 100 \cdots (3)$$

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

### 3. 調査結果

#### 3.1 平常時からの備えを目的とした調査地点での可搬型 Ge による in-situ 測定結果

表 1 に平常時からの備えを目的とした調査地点での可搬型 Ge による in-situ 測定結果を示す。可搬型 Ge による in-situ 測定結果は、Pb-214 が 4.59～117 Bq/kg、Bi-214 が <5.06～114 Bq/kg、Tl-208 が <1.21～26.7 Bq/kg、Ac-228 が <3.84～19.2 Bq/kg、K-40 が 72.1～229 Bq/kg、Cs-137 が <66.1～816 Bq/m<sup>2</sup> の範囲であった。

各地点におけるこれらの放射性物質濃度は、小田野沢（鈴懸神社）、老部（旧老部小学校教員住宅）及び砂子又（東通 OFC）の 3 地点を除いて概ね同程度の値を示していた。当該 3 地点においては、トリウム系列（Tl-208、Ac-228）、K-40 及び Cs-137 は他地点と同程度の値を示したものの、ウラン系列（Pb-214、Bi-214）は高い値を示した。これは測定実施日の天候が雨天であったため、その影響によるものと考えられる。このため、3.2 以降においては当該 3 地点を除いて検討を行った。

#### 3.2 可搬型 Ge による in-situ 測定と据置型 Ge による測定結果の比較

##### (1) 土壌中の天然放射性物質濃度（Pb-214、Bi-214、Tl-208、Ac-228、K-40）

表 2、3 に可搬型 Ge による in-situ 測定及び据置型 Ge による測定結果を示し、図 3 にウラン系列及びトリウム系列の、図 4 に K-40 の据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定結果の関係を示す。

ウラン系列及びトリウム系列についての近似直線の傾きと決定係数  $R^2$  は 0.931、0.905、K-40 についての近似直線の傾きと決定係数  $R^2$  は 0.944、0.967 であり、可搬型 Ge による in-situ 測定と据置型 Ge による測定結果はよく一致していた。

表1 平常時からの備えを目的とした土壌調査地点での可搬型 Ge による in-situ 測定結果

地点名(地点詳細)	測定年月日	放射能濃度 <sup>※1,2</sup>						〈参考〉 空間放射線 量率(nGy/h)
		U系列		Th系列		K-40 (1461kev)	Cs-137 (661kev)	
		Pb-214 (351kev)	Bi-214 (609kev)	Tl-208 (583kev)	Ac-228 (911kev)			
小田野沢(鈴懸神社)	2020/11/9	72.5	79.2	2.62	*	102	*	45.1
老部(旧老部小学校教員住宅)	2020/11/9	117	114	*	*	72.1	*	54.3
砂子又(東通OPC)	2020/11/9	27.8	29.6	4.78	9.42	126	*	34.1
尾駮(尾駮診療所)	2020/9/9	9.79	7.91	4.52	12.3	143	149	18.2
泊(泊小学校)	2020/9/9	10	*	26.7	*	155	*	16.3
近川(むつ養護学校付近)	2020/9/28	9.92	9.99	3	*	115	*	14.4
関根(関根中学校隣)	2020/9/23	10.1	12.6	4.88	9.67	102	*	16.8
吹越(湧水亭隣)	2020/9/28	7.68	8.76	3.95	*	142	*	17.2
古野牛川(しおさいの館)	2020/9/23	7.84	8.1	*	*	101	*	12.8
尻旁(尻旁漁村センター)	2020/9/23	8.59	11	3.24	9.1	116	*	16.5
上田代(田代地区多目的集会施設)	2023/8/24	12.3	11.6	2.47	6.32	103	*	13.6
猿ヶ森(旧猿ヶ森小学校)	2023/8/24	9.18	10.3	6	16.9	185	262	23.5
野牛(旧野牛小学校)	2023/8/18	10.4	9.24	2.1	5.04	84.8	80.3	11.8
農部(農部第2取水場)	2023/8/18	11.7	11.6	3.18	7.7	194	*	18.7
尻屋(旧尻屋幼稚園)	2023/8/18	12.2	12.5	2.64	6.17	119	*	14.8
砂子又(ふれあいの館)	2023/8/24	11.1	9.19	3.7	8.99	138	121	17.1
鹿橋(鹿橋集会所)	2023/8/18	11	16	2.35	6.01	103	66.1	13.3
上田屋(上田屋共同墓地)	2023/8/24	10.2	9.98	4.99	11.5	199	*	20.6
向野(向野ふれあいセンター)	2023/8/24	11	10.6	2.87	9.26	143	*	16.4
大利(ふるさと伝承館)	2022/8/8	9.35	8.65	2.77	6.08	81	155	12.2
一里小屋(一里小屋婦人ホーム)	2023/9/4	11.1	11.9	4.2	10.8	134	*	17.7
老部川(R338号老部橋付近)	2021/9/21	7.93	8.95	2.75	7.75	150	229	15.4
二又(二又夢はぐ館付近)	2021/9/21	8.08	9.32	4.78	12.8	157	183	19.5
室ノ久保(室ノ久保地区学習等供用センター付近)	2021/9/21	8.53	9.45	3.28	7.92	183	*	17.3
石川(石川集会所)	2022/8/17	7.47	7.04	3.84	9.3	171	179	17.7
出戸(地域交流ホーム)	2023/8/4	7.4	7.63	4.85	11	192	142	19.1
新納屋(R338号尾駮バイパスと現道南川交差点)	2023/8/4	9.22	9.56	4.13	10.4	229	*	21.1
桜木町(大湊中学校)	2020/9/23	5.73	*	1.87	*	110	*	10.8
小川町(東北電力(株)むつ営業所)	2021/8/20	12.3	11.5	1.96	6.05	100	*	16.1
中野沢(旧中野沢小学校)	2022/8/17	8.14	9.48	5.57	15.3	157	304	20.3
今泉(今泉石蔵集会所)	2022/8/4	8.73	7.3	3.8	9.38	145	129	17.3
第2石蔵平(第2石蔵平集会所)	2022/8/4	13.3	13.2	4.56	11.5	127	813	22
金谷沢(旧金谷沢小学校)	2022/8/4	6.96	*	2.94	6.78	111	227	13.5
大曲(大曲コミュニティセンター)	2022/8/8	8.9	7.61	3.2	6.78	155	78.1	15.5
斗南丘(斗南丘陵農協同組合)	2022/8/8	14.1	13	8.4	17.5	202	299	29
港町(むつ下水浄化センター)	2022/8/8	6.57	5.84	2.93	6.76	131	168	13.2
むつ市役所(むつ警察署隣地(市役所向かい側))	2022/8/4	5.38	6.29	2.83	7.15	132	142	13
越葉(むつ市墓地公園)	2023/9/8	6.35	8.21	4.85	10.8	132	248	17
大平(大平小学校)	2023/9/8	10.9	*	5.67	13.9	176	251	22.5
大湊上町(上町児童公園)	2023/9/8	5.99	6.53	2.69	7.03	115	117	13.3
城ヶ沢(旧城ヶ沢小学校)	2023/9/11	11.2	10.6	2.87	8.46	102	190	15.3
角達(旧角達小学校)	2023/9/11	5.93	6.67	2.5	6.49	100	105	11.9
袋川(袋川地区公民館)	2023/9/11	11.3	11.8	4.81	10.8	206	*	21.6
樺山(むつ市公民館樺山分館)	2023/9/8	12.9	*	3.55	9.1	154	106	18.5
鳥沢(鳥沢小学校)	2023/9/4	9.57	9.22	6	19.2	166	816	23
関根橋(旧関根橋小学校)	2023/9/4	4.59	5.06	1.21	3.84	123	116	10.2
兎沢(大畑中学校)	2023/9/4	7.15	8.76	4.09	8.81	158	90.4	17.4
林ノ脇(道の駅よこはま付近)	2021/8/20	7.8	8.11	3.53	8.39	184	*	17.9
松栄(松栄婦人ホーム)	2021/8/19	7.21	6.89	2.57	6.3	144	196	14.9
明神平(鳥帽子自然の家)	2021/8/19	8.62	10.2	6.1	14	190	154	25.3
向平(第一分団第四部向平屯所)	2021/8/19	11.8	11.8	3.88	9.27	172	*	19.3
大豆田(旧大豆田小学校)	2021/8/19	9.52	8.3	5.28	12.1	174	545	20.7
有畑(旧有畑小学校)	2022/8/17	9.68	9.85	5.13	12.3	188	97.3	22.3
浜田(浜田集会所)	2022/8/17	11.6	11.6	5.21	14.2	229	324	24.8
目ノ越(目ノ越集会場)	2021/8/19	9.08	10	2.97	8.36	167	*	16.9
美付	2021/8/20	9.84	11	3.09	7.95	117	175	14.6
横浜町役場	2020/9/28	8.88	10.5	5.21	*	178	134	21.2

※1 「\*」は、検出限界未満を示す。

※2 天然放射性核種についてはBq/kg、人工放射性核種についてはBq/m<sup>2</sup>

表 2 可搬型 Ge による in-situ 測定及び据置型 Ge による測定結果（モニタリングの表土採取地点）

地点名(市町村)	可搬型Geによるin-situ測定 <sup>※1,2</sup>										据置型Geによる測定(Bq/kg表土)									
	U系列			Th系列			表土採取年月日	U系列			Th系列									
測定年月日	Pb-214 (351kev)	Bi-214 (609kev)	Th-208 (583kev)	Ac-228 (911kev)	K-40 (1461kev)	Ce-137 (661kev)		Pb-214 (351kev)	Bi-214 (609kev)	Th-208 (583kev)	Ac-228 (911kev)	K-40 (1461kev)	Ce-137 (661kev)							
尾敷(六ヶ所村)	2020/7/6	4.43~7.33	<4.95~7.30	5.92~9.81	<4.63~9.08	109~172	176~204	3.35~5.20	2.74~4.48	1.75~2.11	5.15~6.84	135~143	42.8~78.8							
	2021/7/1																			
	2022/7/6																			
	2023/7/4																			
千歳平(六ヶ所村)	2020/7/20	5.11~8.08	<6.19~7.11	10.4~12.3	8.01~10.2	125~139	<85.3~160	7.28~9.86	6.57~8.08	3.48~4.00	10.9~12.0	171~185	49.9~64.4							
	2021/7/21																			
	2022/7/11																			
	2023/7/5																			
明神平(横浜町)	2020/7/20	9.78~15.3	<11.7~16.4	18.5~27.5	<24.9~25.6	160~217	171~480	17.3~26.3	15.7~22.5	9.66~11.2	26.6~33.1	282~320	39.5~292							
	2021/7/21																			
	2022/7/5																			
	2023/7/4																			
宮田(青森市)	2020/7/31	6.91~7.62	7.39~8.00	15.2~18.7	12.7~16.9	182~186	<135.215	17.3~21.5	15.2~17.5	7.71~8.54	21.8~24.5	246~264	34.9~60.6							
	2021/7/20																			
	2022/7/14																			
	2023/7/17																			
周辺監視区域境界付近(東通村)	2020/7/17	4.25~6.18	5.52~6.65	8.23~9.41	7.50~8.93	141~164	169~216	8.18~9.04	7.14~7.87	3.09~3.38	9.70~10.6	206~214	62.6~106							
	2021/7/19																			
	2022/7/21																			
	2023/7/18																			
小田野沢(東通村)	2020/7/17	6.71~9.26	<7.06~8.18	11.7~13.3	7.73~14.8	128~181	<253~309	4.04~7.69	3.48~5.77	2.77~3.85	8.44~11.4	149~178	166~210							
	2021/7/19																			
	2022/7/21																			
	2023/7/18																			
川内町中道(むつ市)	2020/7/29	6.68~8.18	8.04~9.13	14.0~15.1	12.8~15.6	153~171	265~380	16.0~24.9	14.1~21.4	6.49~9.64	24.8~30.4	273~286	123~151							
	2021/7/14																			
	2022/7/21																			
	2023/7/6																			
水川目(むつ市)	2020/7/29	6.06~8.73	7.87~9.04	11.6~16.1	<10.1~13.2	139~162	334~410	4.49~7.16	3.90~6.40	2.95~3.61	7.53~9.23	123~139	141~224							
	2021/7/14																			
	2022/7/12																			
	2023/7/6																			
浜ノ平(東通村)	2020/7/17	6.42~7.42	<7.39,7.48	14.0~18.2	<11.9~12.6	149~165	264~378	13.2~17.4	10.7~13.3	7.22~7.88	20.2~23.1	230~277	92.4~167							
	2021/7/14																			
	2022/7/12																			
	2023/7/6																			
岡根(むつ市)	2020/7/29	9.54~11.3	9.48~12.2	16.9~21.0	15.6~20.7	174~197	257~326	18.5~20.1	15.4~16.9	8.70~10.3	25.4~30.2	274~309	137~173							
	2021/7/26																			
	2022/7/12																			
	2023/7/6																			

※1 「数値」は、検出限界未満を示す。

※2 天然放射性核種はBq/kg、人工放射性核種はBq/m<sup>2</sup>

表 3 可搬型 Ge による in-situ 測定及び据置型 Ge による測定結果（緊急時における表土採取地点）

地点名(地点詳細)	可搬型Geによるin-situ測定※1,2										据置型Geによる測定(Bq/kg乾土)									
	測定年月日	U系列			Th系列			表土採取年月日	U系列			Th系列			Cs-137 (66.1kev)	K-40 (146.1kev)	Ac-228 (91.1kev)	Cs-137 (66.1kev)	K-40 (146.1kev)	Ac-228 (91.1kev)
		Ph-214 (35.1kev)	Bi-214 (609kev)	Tl-208 (583kev)	Ac-228 (91.1kev)	K-40 (146.1kev)	Cs-137 (66.1kev)		Ph-214 (35.1kev)	Bi-214 (609kev)	Tl-208 (583kev)	Ac-228 (91.1kev)	Ph-214 (35.1kev)	Bi-214 (609kev)						
小田野沢(鈴懸神社)	2020/11/9	72.5	79.2	2.62	*	102	*	10.8	9.55	2.91	8.47	155	*							
老部(旧老部小学校教員住宅)	2020/11/9	117	114	*	*	72.1	*	13.3	13.4	3.56	11.9	188	*							
砂子又(東通07C)	2020/11/9	27.8	29.6	4.78	9.42	126	*	13.1	12.0	5.36	15.8	206	*							
尾駱(尾駱診療所)	2020/9/9	9.79	7.91	4.52	12.3	143	149	19.5	18.3	8.85	24.7	240	148							
泊(泊小学校)	2020/9/9	10	*	26.7	*	155	*	10.7	11.2	2.94	9.43	237	*							
近川(むつ葉護学校付近)	2020/9/28	9.92	9.99	3	*	115	*	12.5	10.2	3.83	11.3	199	47.5							
開根(開根中学校隣)	2020/9/28	10.10	12.6	4.88	9.67	102	*	8.98	7.99	3.45	10.0	148	140							
吹越(清水亭隣)	2020/9/28	7.68	8.76	3.95	*	142	*	11.3	10.3	4.11	11.9	174	29.5							

※1 「\*」は、検出限界未満を示す。

※2 天然放射性核種についてはBq/kg、人工放射性核種についてはBq/m<sup>2</sup>

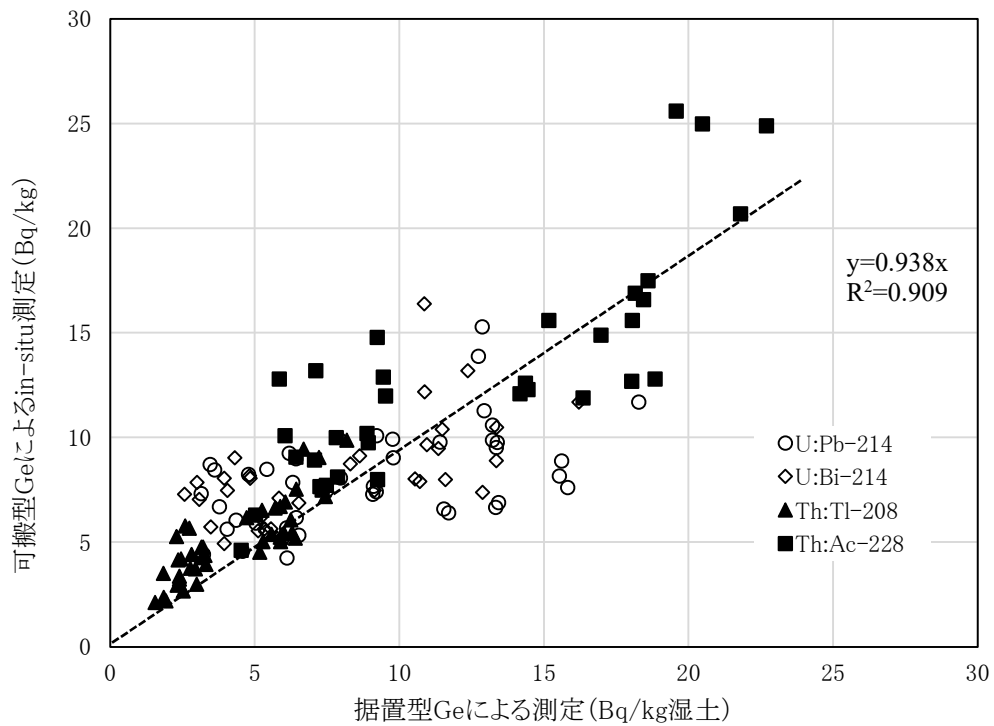


図3 ウラン系列及びトリウム系列の据置型 Ge による測定(含水率で補正)及び可搬型 Ge による in-situ 測定の関係

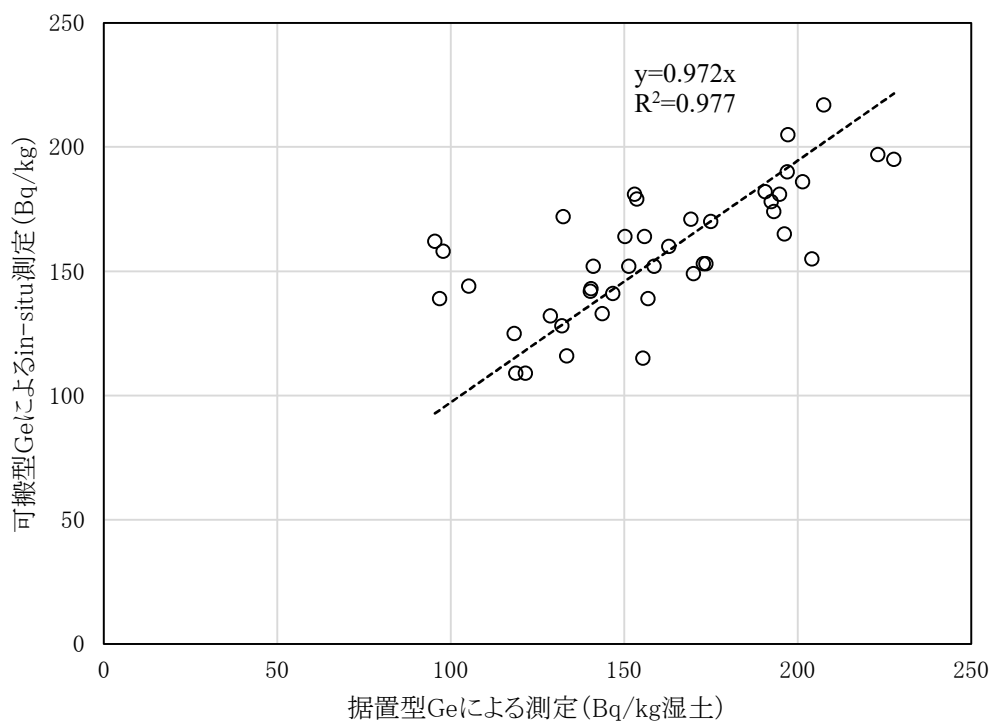


図4 K-40 の据置型 Ge による測定(含水率で補正)及び可搬型 Ge による in-situ 測定の関係

## (2) 土壌中の人工放射性物質濃度 (Cs-137)

表 2、3 に可搬型 Ge による in-situ 測定及び据置型 Ge による測定結果を示し、図 5 に Cs-137 の据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定結果の関係を示す。Cs-137 についての近似直線の傾きと決定係数  $R^2$  は 1.35、0.920 であり、据置型 Ge による測定結果と比べ、可搬型 Ge による in-situ 測定結果は 1.4 倍程度高かった。

このことについては、木村らの調査報告<sup>5)</sup>にもあるとおり、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所事故の寄与や、大気圏内核実験に起因するフォールアウト後の客土又はかく乱などにより、実際の  $\beta$  (重量緩衝深度) は青森県内で  $0.56 \sim 18 \text{ g/cm}^2$  と地点により異なっているものの、今回の調査ではすべての地点において  $\beta$  (重量緩衝深度)  $= 4.85 \text{ g/cm}^2$  の指数分布を仮定していることによる影響と考えられる。

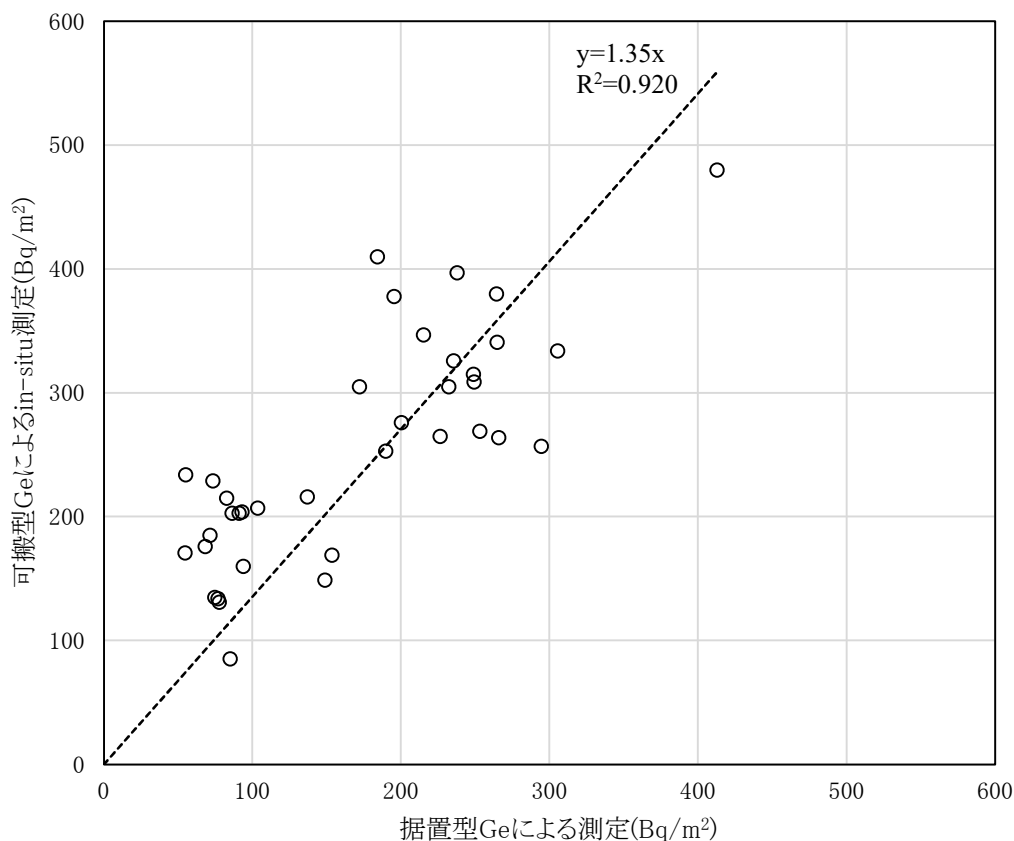


図 5 Cs-137 の据置型 Ge による測定及び可搬型 Ge による in-situ 測定の関係



#### 4. まとめ

- 1) 緊急時における土壌の採取地点での可搬型 Ge による in-situ 測定結果は、Pb-214 が 4.59～117 Bq/kg、Bi-214 が < 5.06～114 Bq/kg、Tl-208 が < 1.21～26.7 Bq/kg、Ac-228 が < 3.84～19.2 Bq/kg、K-40 が 72.1～229 Bq/kg、Cs-137 が < 66.1～816 Bq/m<sup>2</sup> の範囲であった。各地点の放射能濃度は、測定実施日の天候が雨天であった地点を除いて、概ね同程度の値を示した。
- 2) モニタリングの表土採取地点及び緊急時における表土採取地点での可搬型 Ge による in-situ 測定結果は、Pb-214 が 4.25～72.5 Bq/kg、Bi-214 が < 4.95～79.2 Bq/kg、Tl-208 が < 1.87～27.5 Bq/kg、Ac-228 が < 4.63～25.6 Bq/kg、K-40 が 72.1～217 Bq/kg の範囲であった。また、ウラン系列及びトリウム系列について据置型 Ge の測定結果と比較した近似直線の傾きと決定係数 R<sup>2</sup> は 0.931、0.905、同じく K-40 についての近似直線の傾きと決定係数 R<sup>2</sup> は 0.944、0.967 であり、可搬型 Ge による in-situ 測定と据置型 Ge による測定結果はよく一致していた。
- 3) Cs-137 の可搬型 Ge による in-situ 測定結果は、< 85.3～480 Bq/m<sup>2</sup> の範囲であった。Cs-137 について据置型 Ge の測定結果と比較した近似直線の傾きと決定係数 R<sup>2</sup> は 1.35、0.920 であり、据置型 Ge による測定結果と比べ、可搬型 Ge による in-situ 測定結果は 1.4 倍程度高かった。
- 4) 可搬型 Ge による in-situ 測定と据置型 Ge による測定の結果について、天然放射性物質濃度はよく一致し、人工放射性物質濃度はやや高め傾向であったが、天然放射性物質と人工放射性物質で解析条件が異なり、すべての調査地点において β (重量緩衝深度) = 4.85 g/cm<sup>2</sup> と仮定したためと考えられる。今回の調査における解析条件が測定結果へ与える影響の程度を把握することができた。

#### 文 献

- 1) 原子力規制庁監視情報課：放射能測定法シリーズ No.33 「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」(平成 29 年 3 月改訂)
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ No.16 「環境試料採取法」(昭和 58 年制定)
- 3) 原子力規制庁監視情報課：放射能測定法シリーズ No.7 「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」(令和 2 年 9 月改訂)
- 4) 檜山宝孝、和田浩司、原和希、菅尾聡也、木村芳伸：青森県原子力センター所報,第 14 号,55-64(2019)
- 5) 木村芳伸、五十嵐飛鳥、工藤達晃、工藤翔、赤石新、松山大、木村秀樹：青森県原子力センター所報,第 11 号,19-36(2016)

付録 表 1 含水率（モニタリングの表土採取地点）

地点名（市町村）	含水率（%）※ <sup>1</sup>	〈参考〉 土地利用状況
尾駁（六ヶ所村）	6.1～12.0	芝生
千歳平（六ヶ所村）	15.2～30.8	芝生（公園）
明神平（横浜町）	26.3～49.1	牧草地（令和 2 年度） 建屋脇広場（令和 3～5 年度）
宮田（青森市）※ <sup>2</sup>	23.7～34.4	芝生
周辺監視区域境界付近 （東通村）	25.2～29.3	雑草地
小田野沢（東通村）	10.0～16.5	旧小学校校庭
川内町中道（むつ市）※ <sup>2</sup>	37.6～38.8	芝生（広場）
水川目（むつ市）	21.9～24.3	神社境内
浜ノ平（東通村）	29.2～34.7	雑草地
関根（むつ市）	27.8～35.6	芝生（小学校校庭脇）

※<sup>1</sup> 令和 2 年度から令和 5 年度。

※<sup>2</sup> 宮田（青森市）及び川内町中道（むつ市）については令和 2 年度から令和 4 年度。

付録 表 2 含水率（緊急時における表土採取地点）

地点名（地点詳細）	含水率（%）	〈参考〉 地表面の状況
小田野沢（鈴懸神社）	17.1	マット敷き（一部砂利）
老部（旧老部小学校教員住宅）	24.0	一部マット敷き
砂子又（東通 OFC）	20.3	草地
尾駁（尾駁診療所）	41.5	草地
泊（泊小学校）	13.9	マット敷き（一部砂利）
近川（むつ養護学校付近）	21.9	草地
関根（関根中学校隣）	16.9	草地
吹越（湧水亭隣）	19.4	草地

## II 学会発表等要旨



## GAGG シンチレーション検出器を用いた空間放射線量率の測定

三浦 太

令和5年度環境放射能水準調査に係る技術検討会、  
TKP ガーデンシティ PREMIU004D 京橋 ホール 22C、2024. 3. 15

青森県では、県内原子力施設を対象とした環境放射線モニタリングにおいて空間放射線の連続測定を実施しており、低線量率計はNaI(Tl)シンチレーション検出器、高線量率計は電離箱検出器又はシリコン半導体検出器を用いている。

令和4年度の空間放射線量率計更新により、一部の地点で高線量率計が電離箱からGAGGシンチレーション検出器に変更になったため、測定器の概要について報告するもの。



### Ⅲ 令和5年度調査研究事業報告





## 環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査 —令和5年度調査内容—

大久保 匠 檜山宝孝 大下内 伸  
幸 進\* 沼山 聡\* 佐々木耕一\*

### 1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、その運転に伴い、Kr-85、トリチウム(H-3)、C-14及びI-129などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が放出される。青森県では、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について(平成18年2月7日 青森県)」において、測定結果に基づく線量の推定・評価方法について基本的な考え方を示しており、この線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、日本原燃株式会社と共同で調査研究を実施している。

この一環として、平成19年度から環境試料中のトリチウム、C-14及びI-129について調査を、平成20年度からはI-129と同様に施設から放出される核種としてI-131について調査を開始している。また、有機結合型トリチウム(OBT)について、調査開始当初は組織自由水トリチウム(TFWT)と容易に交換する形態のOBT(交換型OBT)を含む全OBTを対象としていたが、平成21年度から、より詳細な線量評価手法の検討のため、試験的に魚類について非交換型OBTを追加実施し、平成26年度からはOBTをすべて非交換型OBTとして調査を行っている。さらに、平成27年度からは海藻のTFWT及びOBTを追加し実施している。

令和4年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

### 2. 令和5年度調査内容

令和5年度の調査内容等を表1に示す。令和5年度は、六ヶ所再処理工場の状況を踏まえ、令和4年度調査のうち委託により実施している県実施分の核種(非交換型OBT及びI-129)について削減を行った。これらの調査結果については令和6年度にとりまとめることとしている。

なお、令和6年度以降については、同工場の操業状況を踏まえ、再度調査内容等を検討する。

---

\*: 日本原燃株式会社

表1 令和5年度の調査内容等（令和4年度との比較）

試料	実施者	調査地点	頻度 (回/年)	対象核種				
				TFWT	<sup>3</sup> H 非交換型 OBT	<sup>14</sup> C	<sup>129</sup> I	<sup>131</sup> I
牛乳 (原乳)	県	二又	1	○	○→-*	○	-	-
	事業者	六原	1	○	○	○	-	-
	事業者	豊原	1	○	○	○	-	-
精米	県	室ノ久保	1	-	○→-*	○	-	-
	県	千樽	1	-	○→-*	○	-	-
	事業者	二又	1	-	○	○	-	-
	事業者	戸鎖	1	-	○	○	-	-
ハクサイ	事業者	千樽	1	○	○	○	○	○
ダイコン	県	出戸	1	○	○→-*	○	-	-
ナガイモ	事業者	平沼	1	○	○	○	-	-
キャベツ	県	睦栄	1	○	○→-*	○	○→-*	○
バレイショ	事業者	尾駁	1	○	○	○	-	-
魚類 (ヒラメ等)	県	六ヶ所村前面海域	1	○	○→-*	-	-	-
	事業者	六ヶ所村前面海域	1	○	○	-	-	-
海藻類 (コンブ)	事業者	六ヶ所村前面海域	1	○	○	-	○	○

※ 委託により分析を行っていた核種について削減。

## 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

葛西邦生

### 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実施計画」及び「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」に基づき、環境放射線等の調査（以下、「環境放射線モニタリング」という。）を実施しており、その一環として、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 $\alpha$ 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（半減期：24110年、主な $\alpha$ 線エネルギー：5.157 MeV）とPu-240（半減期：6561年、主な $\alpha$ 線エネルギー：5.168 MeV）が放出するそれぞれの $\alpha$ 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。

一方、環境中におけるPu-239とPu-240を弁別して定量し、その原子数比（以下、「Pu-240/239」という。）を調べることは起源の推定に有効である。環境中におけるPu-240/239は世界平均で0.176、日本平均で0.173であると知られているが<sup>2)</sup>、これは大気圏内核実験等高濃度のPu-239が含まれるためPu-240/239が小さくなるプルトニウム爆弾の影響や、発電の際に長時間中性子場に置かれることによりPu-240量が多く生成されるためPu-240/239が大きくなる原子力発電所や再処理施設等の影響により決定されるものである。

Pu-239とPu-240を弁別して定量する方法としては、緊急時における分析法として採用されているICP質量分析法<sup>2)</sup>があり、この分析法によりPu-240/239を把握することができる。

以上を踏まえ、本県では平成23年度までに日本原燃（株）六ヶ所再処理施設（以下、「再処理施設」という。）からの影響のバックグラウンドレベルの把握を目的に、平成元年度から平成18年度までに採取した湖底土、表土、海底土を対象として、ICP質量分析法によりPu-239とPu-240の濃度及びPu-240/239を調査してきた<sup>3~7)</sup>。

平成18年からは再処理施設において、実際の使用済燃料を用いた総合試験であるアクティブ試験が行われており、その一環として平成20年10月までに使用済燃料のせん断・溶解処理が行われた。 $\alpha$ 線を放出する核種の放出実績はないものの現在も放射性液体廃棄物及び放射性気体廃棄物の放出が継続している。

本調査では、再処理施設の操業を見据えたバックグラウンドレベルの把握を目的として、平成19年度以降に採取した湖底土、表土、海底土を対象としたPu-239とPu-240濃度及びPu-240/239の調査を行う。

測定には、トリプル四重極型ICP質量分析装置を用いており、前回調査時から機器を更新していることから、測定条件を再検討することとした。

また、平成23年度までに実施した調査では、硝酸とフッ化水素酸の混合溶液により酸分解・浸出を行っていたが、本調査は環境放射線モニタリングにおける補足的な調査であることから、結果が比較できるよう環境放射線モニタリングで用いている硝酸による酸分解・浸出方法によりプルトニウムの浸出を行うことが望ましい。さらに、環境試料においてはプルトニウムの含有量が少なく、正確なPu-240/239を把握するためには検出下限値を低減する必要がある。これらのこと

から、分析方法を再検討することとした。

今年度は湖底土及び標準物質を対象として分析方法、測定条件の検討を行った。

## 2. 調査方法

### 2.1 対象試料

標準物質として、NIST より頒布されている SRM 4357 Ocean Sediment Environmental Radioactivity Standard (以下「SRM 4357」という。)(Pu-(239+240)の認証値  $10.4 \pm 0.2$  mBq/g) を用いた。

環境試料として、環境放射線モニタリングにおいて令和3年度に採取した湖底土(鷹架沼)(以下「湖底土(R3 鷹架沼)」という。)を用いた。

試料分取に先立ち、標準試料は  $40^{\circ}\text{C}$  で 24 時間以上乾燥した。環境試料は  $105^{\circ}\text{C}$  乾燥後、2mm ふるいを通したものを微粉碎した。

Pu-(239+240)について、SRM4357 の認証値及び湖底土(R3 鷹架沼)の環境放射線モニタリングにおける測定結果を表1に示す。

表1 SRM4357 の認証値及び湖底土(鷹架沼)の環境放射線モニタリングにおける測定結果

	Pu-(239+240) (Bq/kg 乾)
SRM4357	$10.4 \pm 0.2$
湖底土(R3 鷹架沼)	$0.480 \pm 0.036$

※ SRM4357 については認証値

※ 湖底土(R3 鷹架沼)については環境放射線モニタリングにおける調査結果

### 2.2 試薬・器具等

使用した試薬・器具等を表2に示す。

表 2 使用した試薬・器具等

名称	規格等	製造元
Pu-242 標準溶液	25.58 Bq/g (基準日 1989.12.18)	National Institute of Standards and Technology
硝酸	精密分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
塩酸	精密分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
酢酸	精密分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
水酸化ナトリウム	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
フッ化水素酸	超微量分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
亜硝酸ナトリウム	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
ほう酸	試薬特級	富士フイルム和光純薬 (株)
よう化アンモニウム	和光特級	富士フイルム和光純薬 (株)
タリウム標準液	ICP 分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
強塩基性陰イオン交換樹脂	No.6、架橋度 8 % 100-200 メッシュ、Cl 形	富士フイルム和光純薬 (株)
純水	Milli-Q Advantage により製造	メルク (株)
ガラス繊維ろ紙	GA-100	アドバンテック東洋 (株)
定量ろ紙	No.5C	アドバンテック東洋 (株)
メンブレンフィルター	セルロース混合エステル 孔径 0.45 $\mu\text{m}$	アドバンテック東洋 (株)
マイクロウェーブ分解装置	ETHOS PLUS	マイルストーンゼネラル (株)

### 2.3 分析方法

分析は、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」に準じて行った。迅速分析法の分析フローを図 1 に示す。

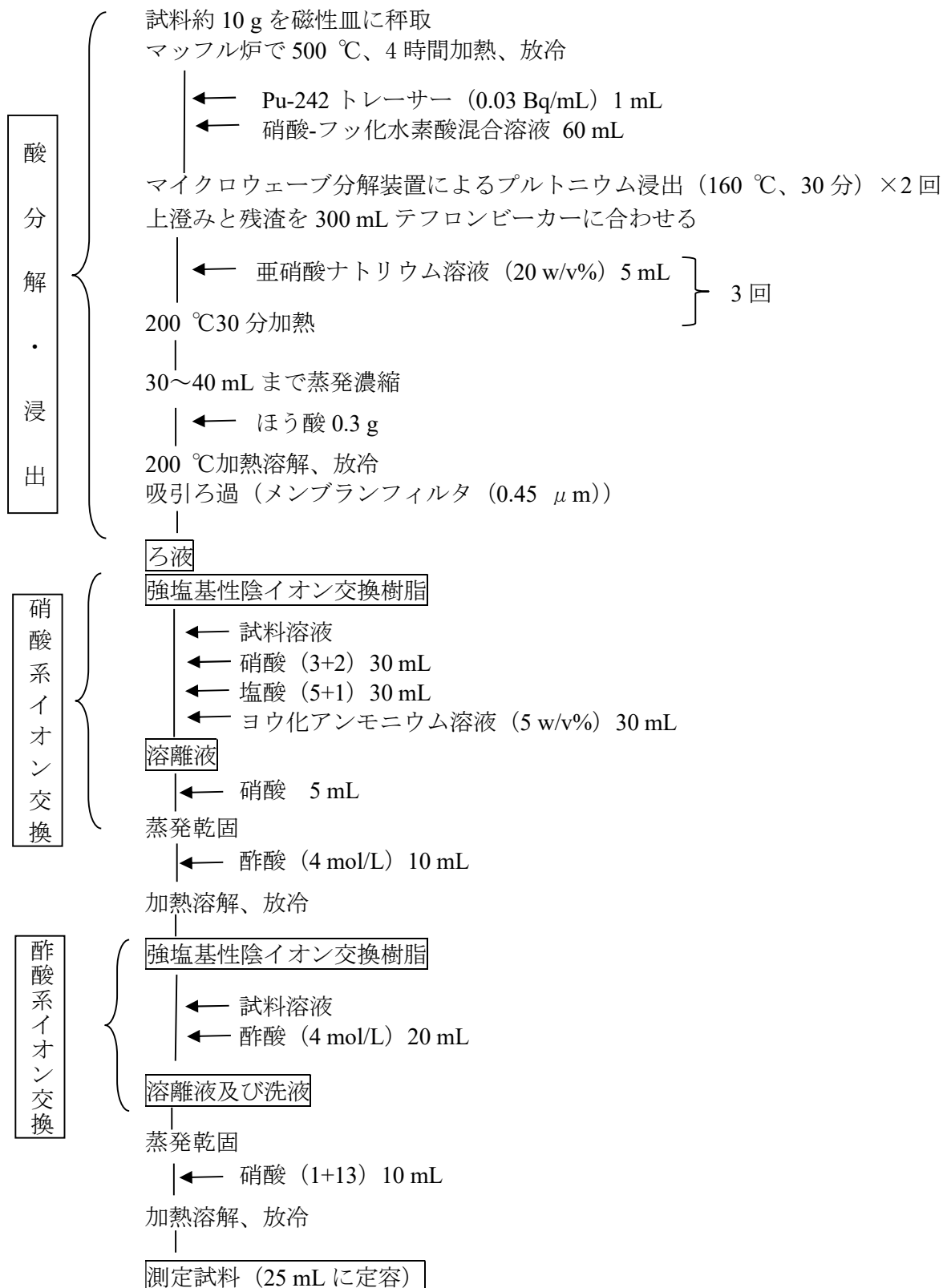


図 1 迅速分析法フロー図

## 2.4 測定方法

ICP 質量分析はアジレント・テクノロジー（株）製 Agilent8900（以下、「Agilent8900」という。）を用いた。測定条件は表3のとおりである。

質量分析では、信号は質量数と電荷の比（以下、「m/z」という。）として得られる。定量は、m/z=239 及び 240 の強度と、m/z=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。

表3 測定条件

項目	設定値
RF 出力	1550 W
プラズマガス流量	15 L/min
ネブライザーガス流量	1.07 L/min
補助ガス流量	0.9 L/min
スプレーチャンバー温度	2°C
サンプリング位置	8 mm
軸方向加速	0 V
スキャンタイプ	シングル四重極
積分時間	1 秒、5 秒、10 秒
スイープ回数	10 回、100 回
繰返し回数	10 回

## 3. 結果と考察

### 3.1 迅速分析法による標準試料及び環境試料の分析

平成 23 年度までに実施した調査において用いていた迅速分析法により、SRM4357 及び湖底土（R3 鷹架沼）の分析を行い、積分時間 1 秒、スイープ回数 10 回の条件で測定を行った。測定結果を表 4 に示す。

SRM4357 の SRM4357①と SRM4357③においては、Pu-(239+240)の認証値である  $10.4 \pm 0.2$  Bq/kg 乾によく一致していることから、分析、測定方法が妥当であることが示唆された。SRM4357②については、m/z=239 及び 240 の強度が SRM4357①と SRM4357③と同程度であるにもかかわらず m/z=242 の強度が少なかったことから、トレーサー添加量が少なかったものと考えられる。

湖底土（R3 鷹架沼）については、Pu-(239+240)の環境放射線モニタリングの調査結果である  $0.480 \pm 0.036$  Bq/kg 乾よりも高い結果となった。一般的に高温（概ね 1000 °C 以上）で焼結されたプルトニウムは硝酸のみでは溶出されないことが知られている<sup>8)</sup>。迅速分析法では硝酸及びフッ化水素酸の混合溶液で浸出を行うことにより焼結されたプルトニウムも溶出されるが、環境放射線モニタリングでは硝酸のみで浸出しているため、焼結されたプルトニウムが溶出しないことによるものと考えられる。

表 4 迅速分析法による SRM4357 及び湖底土 (R3 鷹架沼) の測定結果  
(単位は放射能濃度 : Bq/kg 乾、回収率 : %、Pu-240/239 (原子数比) : 無次元)

	回収率	Pu-239		Pu-240		Pu-(239+240)	Pu-240/239 (原子数比)	
		放射能濃度	検出 下限値	放射能濃度	検出 下限値	放射能濃度	検出 下限値	
SRM4357①	81.3	5.60±0.48	1.44	4.90±0.47	1.41	4.90±0.47	0.239±0.031	0.093
SRM4357②	64.3	7.10±0.39	1.17	6.44±0.76	2.28	6.44±0.76	0.248±0.033	0.099
SRM4357③	79.0	5.43±0.35	1.05	4.77±0.79	2.37	4.77±0.79	0.240±0.043	0.129
R3 鷹架沼①	73.3	0.369±0.105	0.315	0.191±0.110	0.330	0.191±0.110	0.141±0.090	0.270
R3 鷹架沼②	71.0	0.389±0.112	0.336	0.213±0.117	0.351	0.213±0.117	0.149±0.092	0.276
R3 鷹架沼③	74.2	0.369±0.055	0.165	0.223±0.168	0.504	0.223±0.168	0.164±0.126	0.378

※ 誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差

※ 検出下限値は誤差の 3 倍

### 3.2 検出下限値の検討

3.1 における SRM4357 の分析・測定結果から、迅速分析法により Pu-239 及び Pu-240 を分析・測定できることが確認できた。一方で、環境試料である湖底土 (R3 鷹架沼) は、プルトニウムの含有量が少なく、特に Pu-240 は検出下限値未満 (検出下限値の平均 0.395 Bq/kg 乾) であった。

本調査では Pu-239 と Pu-240 濃度及び Pu-240/239 を得ることにより、プルトニウムの起源の推定を行うことで再処理施設からの施設影響の把握を目的としており、正確な Pu-240/239 を得るためには検出下限値の低減を図る必要がある。

平成 23 年度までに実施した調査において、Pu-239 より放射能濃度の低い Pu-240 のうち、装置の検出下限値以上で最も小さかった放射能濃度は、表土 (H10 尾駈) の 0.081 Bq/kg 乾である。このため、Pu-240 の検出下限値を少なくとも 3.1 で得られた値の 20%程度まで下げる必要があることから、検出下限値の低減について検討を行った。

#### 3.2.1 測定条件の検討

検出下限値を低減するために測定条件を見直すこととした。

SRM4357 を迅速分析法により分析し、積分時間を 1 秒、5 秒、10 秒、スイープ回数を 10 回、100 回として測定を行った。測定結果を表 5 に示す。

全ての Pu-(239+240) の測定結果は認証値である 10.4±0.2 Bq/kg 乾によく一致した。スイープ回数を変えても、測定値及び検出下限値に影響は見られなかった。また、積分時間を長くすることにより検出下限値が下がる傾向が見られ、積分時間 10 秒スイープ回数 10 回の条件では、Pu-240 の検出下限値が 0.99 となり、積分時間 1 秒の条件で測定した Pu-240 の検出下限値である 1.59 と比較して 62%程度に低減することができた。このことから、積分時間 10 秒、スイープ回数 10 回を測定条件とすることとした。



表5 迅速分析法によるSRM4357の測定結果（積分時間、スweep回数の検討）  
 （単位は放射能濃度及び検出下限値：Bq/kg 乾、Pu-240/239（原子数比）：無次元）

積分時間 (秒)	スweep 回数	Pu-239		Pu-240		Pu- (239+240)	Pu-240/239 (原子数比)	検出 下限値
		放射能 濃度	検出 下限値	放射能 濃度	検出 下限値	放射能 濃度		
1	10	5.31±0.31	0.93	4.94±0.53	1.59	10.3±0.6	0.253±0.032	0.096
	100	5.30±0.28	0.84	4.43±0.62	1.86	9.73±0.68	0.227±0.034	0.102
5	10	5.31±0.16	0.48	4.61±0.41	1.23	9.92±0.44	0.236±0.023	0.069
	100	5.18±0.23	0.69	4.67±0.32	0.96	9.85±0.39	0.245±0.021	0.063
10	10	5.32±0.10	0.30	4.57±0.33	0.99	9.89±0.34	0.234±0.017	0.051
	100	5.26±0.10	0.30	4.60±0.33	0.99	9.86±0.34	0.238±0.018	0.054

※ 誤差は繰り返し測定により得られた測定値（n=10）の標準偏差

※ 検出下限値は誤差の3倍

### 3.2.2 環境放射線モニタリングにおける手法の導入

検出下限値を改善するための1つの方法として、供試量を多くすることが挙げられる。

迅速分析法は緊急時の分析法として適用するため、少量の試料をマイクロウェーブ分解装置により加圧条件下で酸分解・浸出することで迅速に分析結果を得ることに主眼を置いたものであるが、マイクロウェーブ分解装置を用いるため供試量を増やすことが難しいという問題がある。

一方で、より低レベルの定量を目的とした放射能測定法シリーズ12「プルトニウム分析法」（以下、「プルトニウム分析法」という。）は、 $\alpha$ 線スペクトロメトリを用いて測定する手法であるため、Pu-239とPu-240を区別して定量することができないが、酸分解・浸出工程を常圧で行うことが可能であるため、供試量を比較的容易に増やすことができる。

また、本調査は環境放射線モニタリングにおける調査結果の評価に資することを目的としているため、環境放射線モニタリングと同様の酸分解・浸出工程を用いることにより、環境放射線モニタリングの結果の解釈に資することが容易になる。

これらのことから、迅速分析法を基に酸分解・浸出工程にプルトニウム分析法の硝酸浸出を採用した分析法（以下、「改良法」という。）により、供試量を50gに増加し湖底土（R3 鷹架沼）の分析・測定を行うこととした。測定条件は積分時間10秒、スweep回数10回とした。測定結果を表6に、改良法の分析フローを図2に示す。

Pu-240の検出下限値の平均は0.058 Bq/kg 乾となり、迅速分析法により分析し、積分時間1秒、スweep回数10回の条件で測定したPu-240の検出下限値の平均である0.395 Bq/kg 乾と比較して、15%程度に低減することができた。

また、改良法では浸出工程が環境放射線モニタリングの手法と同じく焼結されたプルトニウムが浸出されないため、環境放射線モニタリングの調査結果である $0.480 \pm 0.036$  Bq/kg 乾とよく一致した結果が得られた。

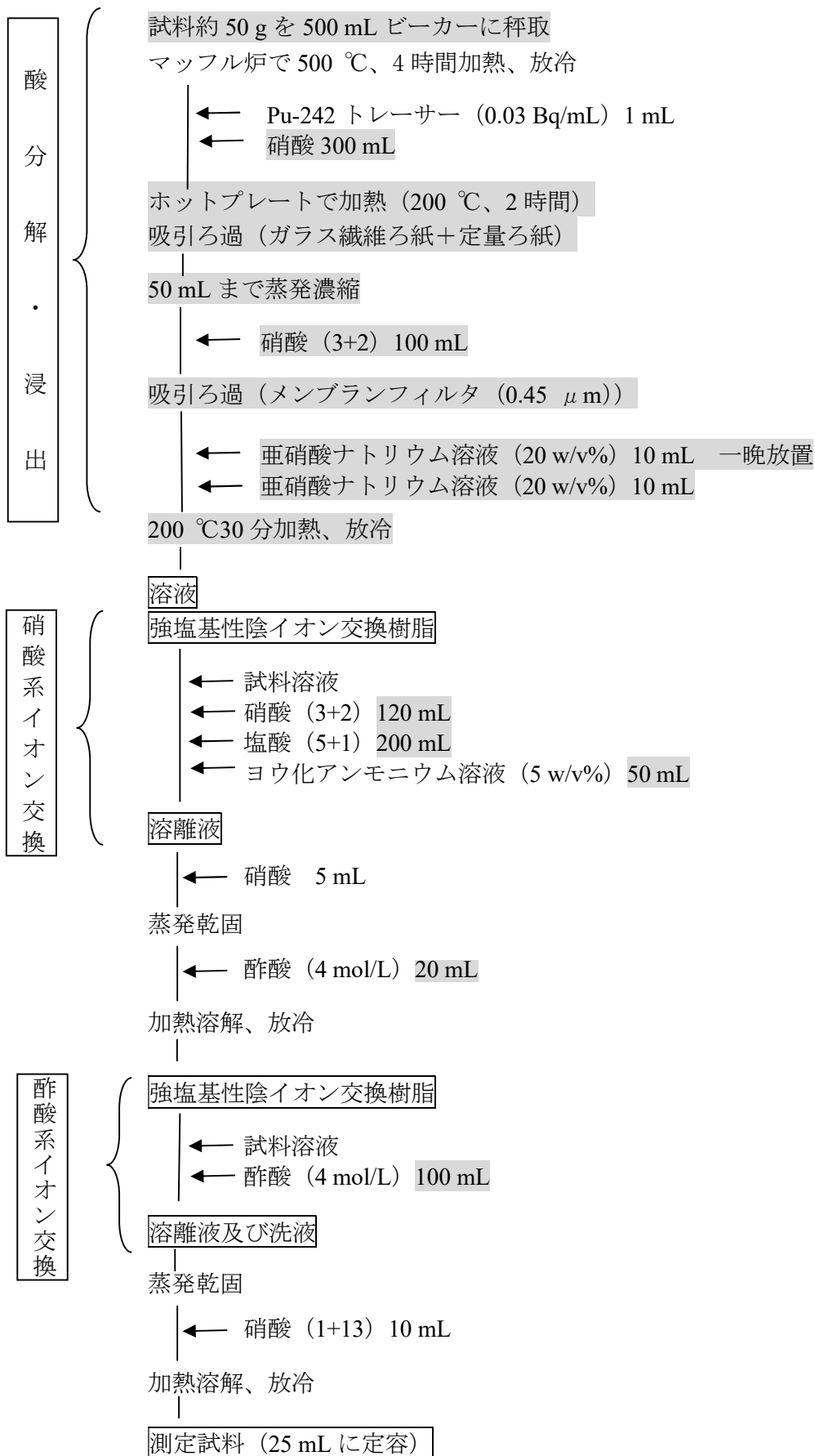


図 2 改良法フロー図 (迅速分析法からの変更点を網掛けで記載)

表 6 改良法による湖底土 (R3 鷹架沼) の測定結果 (積分時間 10 秒、スイープ回数 10 回)  
(単位は回収率: %、放射能濃度及び検出下限値: Bq/kg 乾、Pu-240/239 (原子数比): 無次元)

	回収率	Pu-239		Pu-240		Pu-(239+240)	Pu-240/239 (原子数比)	
		放射能濃度	検出 下限値	放射能濃度	検出 下限値	放射能濃度	検出 下限値	
R3 鷹架沼①	73.7	0.303±0.013	0.039	0.192±0.024	0.072	0.495±0.027	0.173±0.023	0.069
R3 鷹架沼②	77.2	0.302±0.007	0.021	0.198±0.010	0.030	0.501±0.012	0.178±0.013	0.039
R3 鷹架沼③	70.9	0.303±0.006	0.018	0.193±0.024	0.072	0.497±0.024	0.173±0.022	0.066

※ 誤差は繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差

※ 検出下限値は誤差の 3 倍

#### 4. まとめ

- 1) 迅速分析法により、標準試料の Pu-239 及び Pu-240 を分析、測定することができたが、バックグラウンドレベルの環境試料ではプルトニウムの含有量が少なく、特に Pu-240 は検出下限値を下回っているためプルトニウムの起源の推定は困難であった。
- 2) 迅速分析法により分析し積分時間を 1 秒として測定した場合と比較し、同分析法により分析し積分時間を 10 秒として測定した場合は、Pu-240 の検出下限値が 62%程度に、改良法により分析し積分時間を 10 秒として測定した場合は、Pu-240 の検出下限値が 15%程度に低減された。また、改良法による測定結果は環境放射線モニタリングの測定結果とよく一致した。
- 3) 本調査は、県が行う環境放射線モニタリングにおいて、再処理施設からの影響を把握しモニタリング結果の評価に資することを目的としており、環境放射線モニタリングと同様の酸分解・浸出方法を用いる改良法により今後の調査を行うこととする。
- 4) 令和 6 年度以降は、改良法により、平成 19 年度以降に採取した湖底土、表土、海底土を対象とした Pu-239 と Pu-240 濃度及び Pu-240/239 の調査を行うこととする。

#### 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) 工藤俊明：青森県原子力センター所報,第 2 号,60-61(2007)
- 4) 工藤俊明：青森県原子力センター所報,第 3 号,83-88(2008)
- 5) 工藤俊明：青森県原子力センター所報,第 4 号,79-83(2009)
- 6) 工藤俊明、西堀祐司：青森県原子力センター所報,第 5 号,66-70(2010)
- 7) 成田俊、工藤俊明、西堀祐司：青森県原子力センター所報,第 6 号,13-27(2010)
- 8) 坂上正信：環境プルトニウムの測定, *RADIOISOTOPES*, Vol.27, Np.7(1978)



## 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

木村芳伸 堀田智史 檜山宝孝 芦野真央子 神 俊雄

### 1. はじめに

トリチウム (T) は、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 ( $\text{CH}_3\text{T}$  等) の3種の化学形で存在することが知られている。日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、その運転に伴いトリチウムを含む放射性気体廃棄物が放出されるが、HTO、HT 及び  $\text{CH}_3\text{T}$  の比率は明らかになっていない。大気中トリチウムの化学形別採取については、公益財団法人環境科学技術研究所 (以下「環境研」という) が平成18年から同研究所内において実施しているが、大気中に極微量存在する HT 及び  $\text{CH}_3\text{T}$  を捕集するためのキャリアガスとして、可燃性の水素ガス及びメタンガスを使用している。本調査では、六ヶ所再処理工場周辺に設置している無人の放射線測定局舎内において安全に大気試料を採取し、トリチウムの化学形別濃度比を明らかにすることを目的として、可燃性ガスの代わりに水蒸気を使用した採取方法<sup>1)</sup>について検討している。

採取・分析方法の妥当性を確認するため、平成26年11月から平成27年4月にかけて環境研と同一地点において並行採取を行った結果、測定値に有意な差が認められた。さらにその後の調査で、触媒の酸化効率の不足や水分捕集カラムへのトリチウムの残留が確認されたが、採取・分析方法の改良により、令和2年度までには安定した HT 及び  $\text{CH}_3\text{T}$  の測定値を得ることに成功した。

そこで令和5年度は、大気中の HT がチューブなどを透過して装置内に混入していないか、また、採取した HT が確実に酸化・捕集されているかなどを確認したほか、青森市 (原子力センター青森市駐在) 及び六ヶ所村千歳平 (原子力センター本所) の2か所で常時採取を行い、大気中 HT 及び  $\text{CH}_3\text{T}$  濃度の時間的変動及び空間的差異について確認した。

### 2. 調査方法

#### 2.1 大気中の HT 混入の有無の確認

大気中の HT が、採取装置を構成するチューブ等を透過して混入していないことの確認に当たり、まずは従来の採取装置から  $\text{CH}_3\text{T}$  採取部分を省略した装置 (図1及び図2) を組み立て大気を採取した (この装置を“標準型”と呼称する)。

流速及び積算流量については従来、質量流量計により測定してきたが、センサー部分 (1.7 mm 四方のシリコンチップ) に Pt が使用されていることから、一時的に体積流量計を用いることとした。大気は、採取装置の終端に設置したダイヤフラム式ポンプで吸引した。ポンプの脈動による流量計などへの影響を抑えるためバッファータンクを設け、バルブにより流速を 1.5 L/min に調整した。大気は孔径 7  $\mu\text{m}$  のフィルターを通して採取した。

HTO については、モレキュラーシーブ 3A を充填した“HTO 捕集カラム”に捕集した。

HT については、およそ 100 °C に加熱した Pt 触媒 (D2SPT6S40C、田中貴金属工業株式会社、Pt 担持量 6.0 g/L、25 mmφ×40 mm) を 8 個充填した“Pt 触媒カラム”を使用して酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した“HT 捕集カラム”に水として捕集した。なお、大気中の水素濃度が

非常に低いため、キャリアガスとして無トリチウム水蒸気を Pt 触媒カラム通過前の大気に添加している。

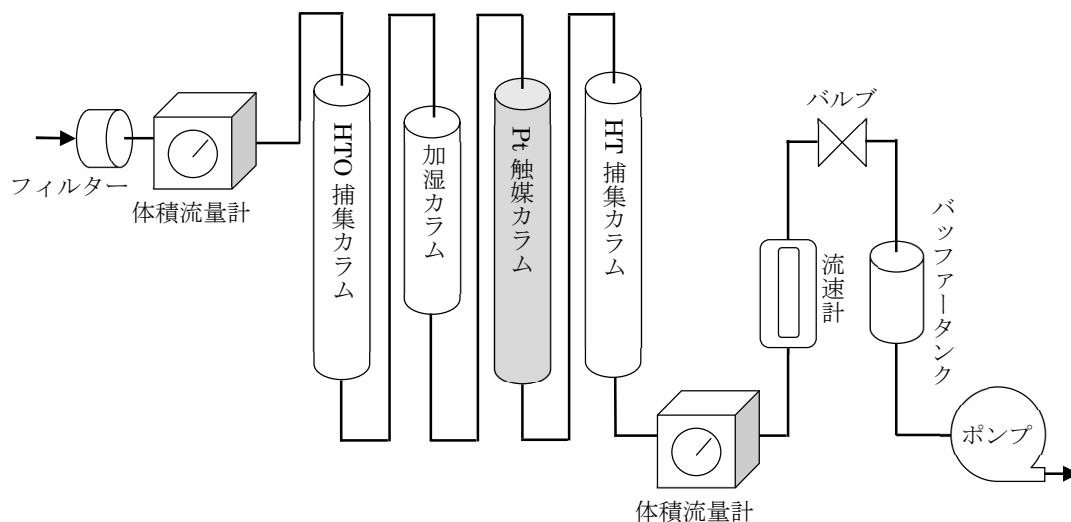


図1 “標準型”装置概要

無トリチウム水蒸気の添加は、ガラスカラムに加湿バイアル（図3）を複数個挿入した“加湿カラム”により行った。ポリプロピレンバイアル内の無トリチウム水が徐々に蒸発するよう、孔をあけた蓋の下に超高分子量ポリエチレン多孔質フィルム（サンマップ LC 0.5 mm 厚：日東電工株）が挟み込まれている（図3）。



図2 “標準型”装置外観

7~10 mm の孔を開けた蓋の下に多孔質フィルムが挟み込まれている。



図3 加湿バイアル

（左：今回使用したもの。右：従来品）

あわせて、従来認められていた HT 捕集カラムへの大気中水分混入対策として、加湿カラムをアクリル管から細身のガラス管に、下部シリコン栓をガラス栓に変更した（図4）。

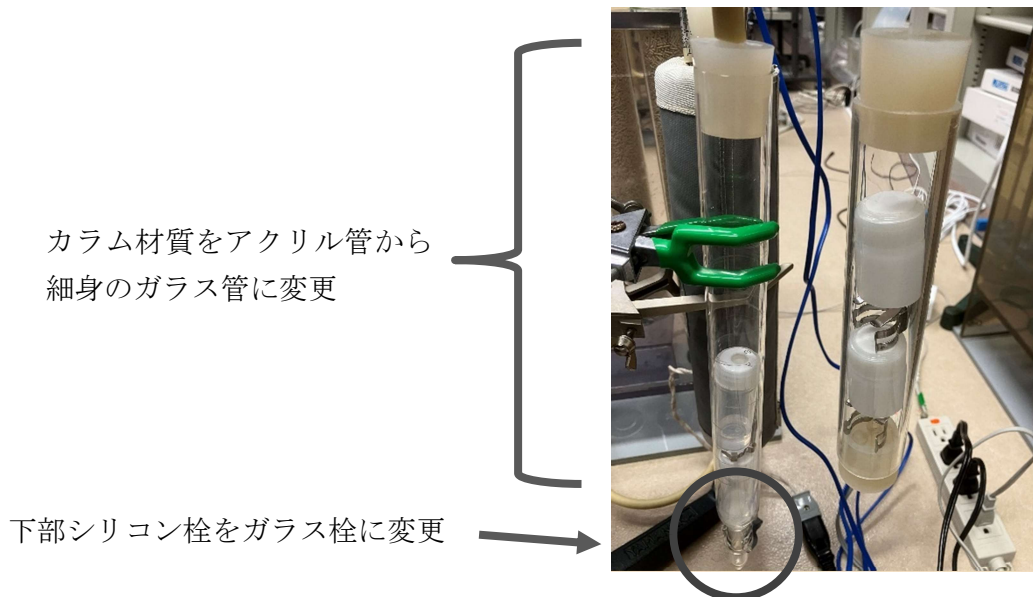


図4 加湿カラム

(左：今回使用したもの。右：従来品)

次に、大気中の HT が配管を浸透または接続部などから混入している可能性を考慮し、体積流量計（入口側）から Pt 触媒カラム直前までを密閉容器（デシケータを改造したもの）に収納した装置（図5及び図6）を組み立て大気を採取した（この装置を“密閉型”と呼称する）。

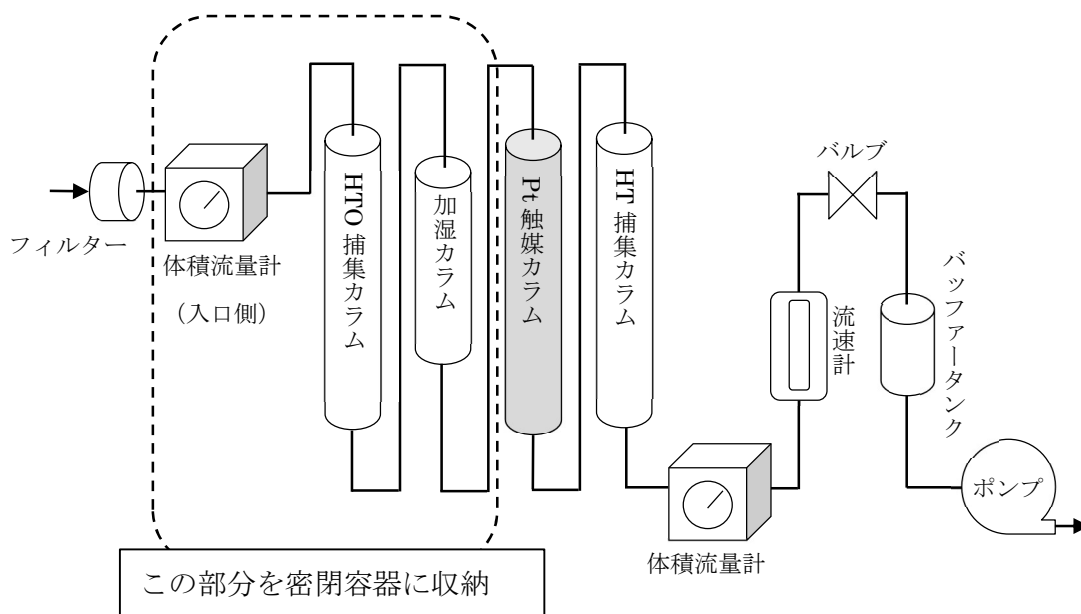


図5 “密閉型”装置概要

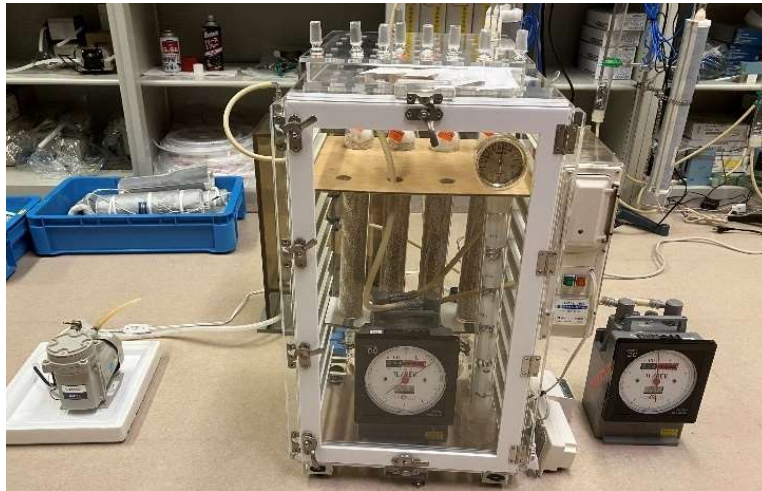


図6 “密閉型”装置外観

さらに、大気中のHTが配管を浸透または接続部などから混入していないことに加え、Pt触媒が完全にHTを酸化していることを確認するため、“標準型”のHTO捕集カラムの前にPt触媒カラムを追加した装置(図7)を組み立て採取した(この装置を“除去型”と呼称する)。もし大気中のHTが混入していたり、Pt触媒カラムによる酸化が不十分であった場合、HT捕集カラムに有意な濃度のトリチウムが捕集されることが予想される。

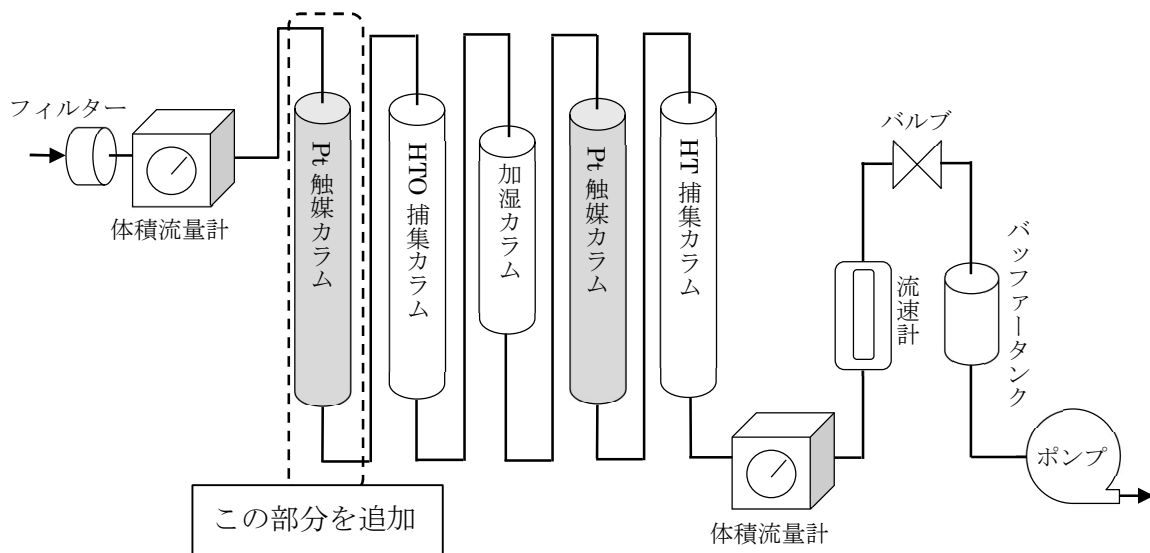


図7 “除去型”装置概要

また別の観点から、大気中のHTが配管を浸透または接続部などから混入していないことを確認するため、ポンプを入口側に配置し、流路を陽圧化した装置(図8)を組み立て採取した(この装置を“陽圧型”と呼称する)。



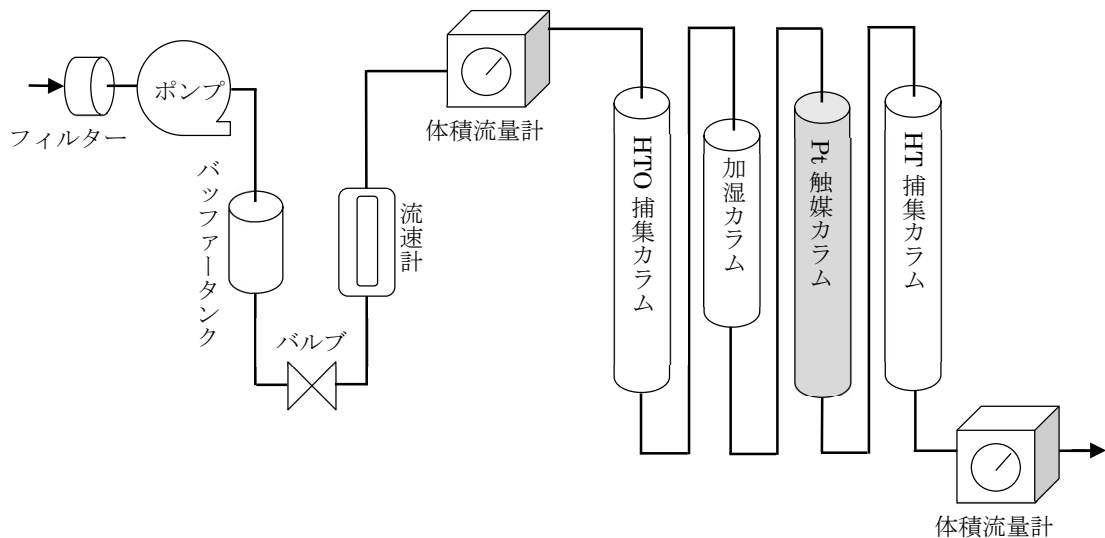


図8 “陽圧型”装置概要

最後に、従来使用してきた質量流量計による HT 測定値への影響の有無を確認するため、併せて流速が HT 測定値に与える影響の有無を確認するため、体積流量計を質量流量計に置き換え、さらに流速を“標準型”の6割(0.9 L/min)に落として大気を採取した(この装置を“低速型”と呼称する)。

## 2.2 青森市及び六ヶ所村千歳平での定常的な採取

大気中 HT 及び CH<sub>3</sub>T 濃度の時間的変動及び空間的差異を確認するため、2.1 の検討の結果得られた知見を踏まえつつ、前出の採取装置に CH<sub>3</sub>T 捕集部分を追加した装置(図9及び図10)を青森市(原子力センター青森市駐在)及び六ヶ所村千歳平(原子力センター本所)の2か所に設置し1か月単位での定常的な採取を行った。

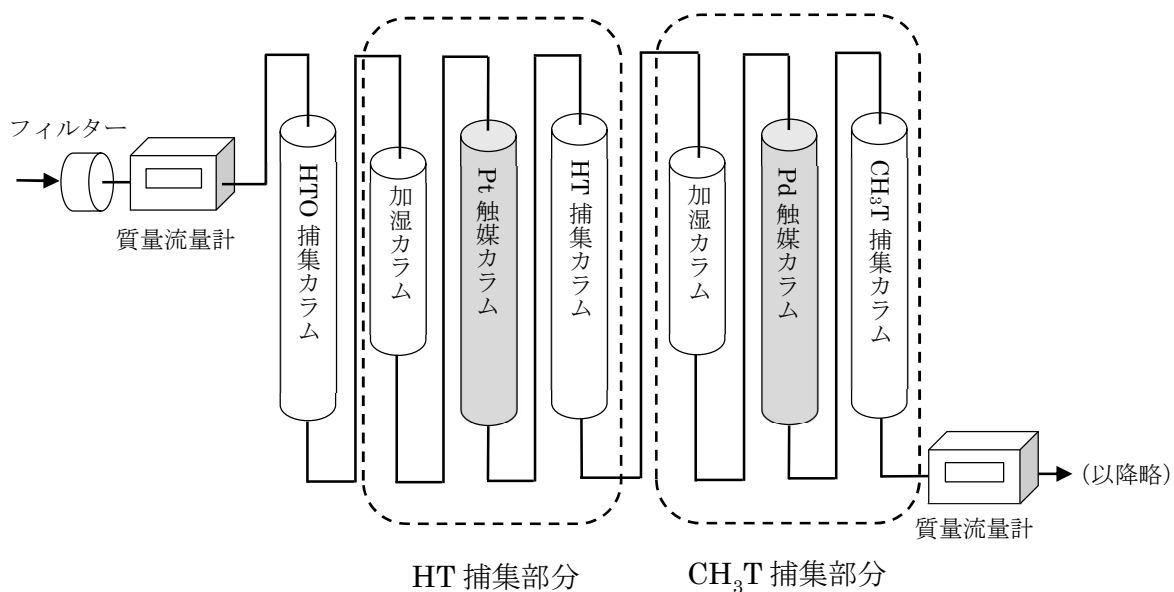


図9 定常的な採取装置概要



図 10 定常的な採取装置外観

体積流量計を質量流量計に置き換え、CH<sub>3</sub>Tについては、およそ 300 °Cに加熱した Pd 触媒 (DASH-220D、エヌ・イー ケムキャット株式会社、2-4 mmφ) 100 g を充填した “Pd 触媒カラム” により酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した “CH<sub>3</sub>T 捕集カラム” に水として捕集した。HT の場合と同様、大気中のメタン濃度が非常に低いためキャリアガスとして無トリチウム水蒸気を Pd 触媒カラム通過前の大気に添加している。

### 2.3 HT 捕集カラムの捕集と Pt 触媒カラムの酸化状況の確認

過去に行った環境研との並行採取において県の CH<sub>3</sub>T 濃度が環境研のそれより高い値を示した原因として、HT 捕集カラムが Pt 触媒カラムで酸化された HT を完全に捕集し切れず、取り逃がした一部が CH<sub>3</sub>T 捕集カラムに捕集されていることが考えられた。そこで、2.2 で青森市に設置した採取装置に、加湿-捕集カラムを追加した装置 (図 11) を組み立て、酸化された HT の取り逃がしがないか確認した (この装置を “重加湿型” と呼称する)。

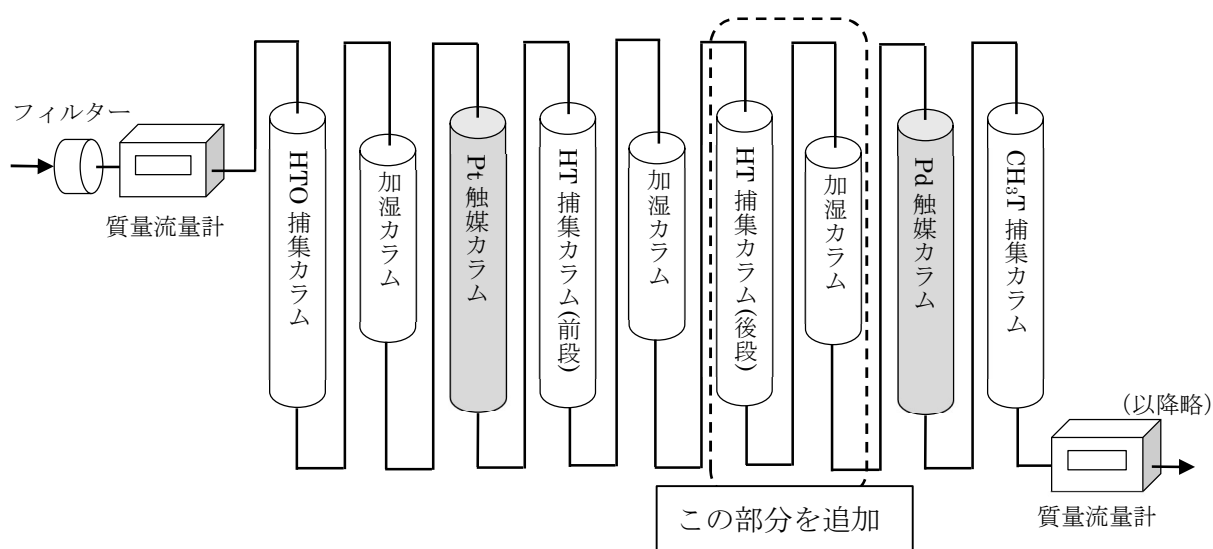


図 11 “重加湿型” 装置概要

さらに、採取装置に導入した HT が Pt 触媒カラムにおいて完全に酸化されておらず、一部が Pd 触媒カラムで  $\text{CH}_3\text{T}$  とともに酸化していることも考えられた。Pt 触媒カラムによる HT 酸化効率については、平成 30 年度から令和元年度にかけ本調査研究事業において詳細な検討が行われ、その結果、「触媒の個数は 8 個」とし、「前月の採取終了後ただちに次月の採取を開始」すれば、十分な酸化効率を有する旨報告しているが、念のためこのことを再確認することとし、2.2 で青森市に設置した採取装置に、Pt 触媒カラムを追加した装置（図 12）を組み立て、Pt 触媒カラムによる HT の酸化状況を確認した（この装置を“重酸化型”と呼称する）。もしこれまでの採取装置において未酸化の HT が Pd 触媒カラムで酸化されていたとすれば、本装置での  $\text{CH}_3\text{T}$  測定値に変化が認められると予想される。

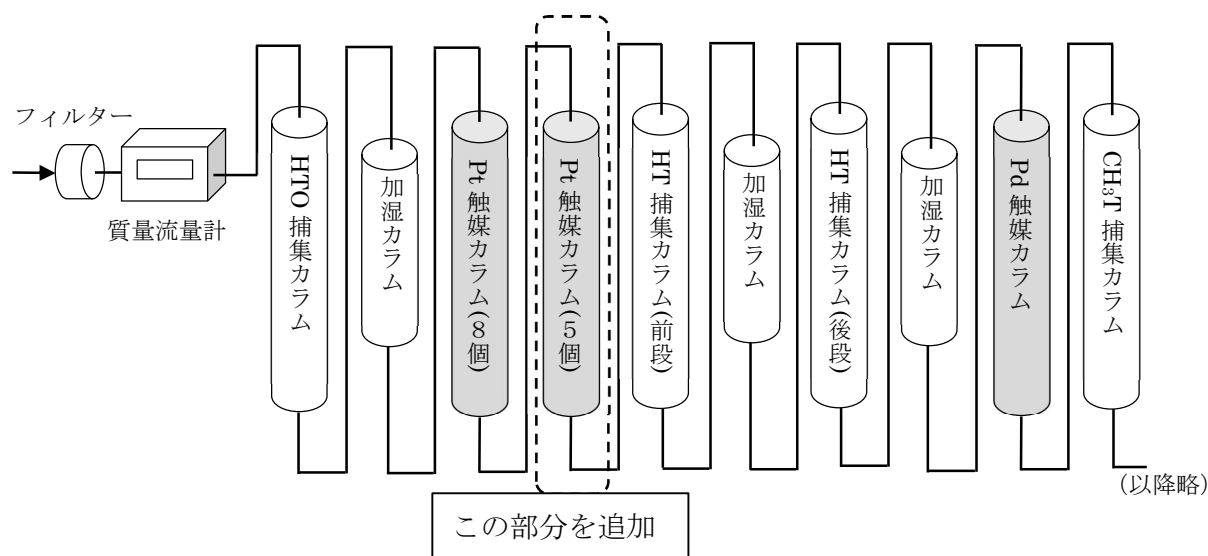


図 12 “重酸化型”装置概要

## 2.4 試料測定の妥当性の確認

原子力センター本所は環境放射線モニタリング用として、また原子力センター青森市駐在は調査研究用としてそれぞれ独自に液体シンチレーション計数装置を保有し測定に使用している。原子力センター本所については、年に 1 度国が実施する「都道府県における環境放射能水準調査、放射線監視等交付金事業の精度管理」事業の一環として、公益財団法人日本分析センターが各自治体に配布する分析比較試料を測定することにより、分析・測定の妥当性を確認している。このことを踏まえ、原子力センター青森市駐在において 6 月に採取した大気のうち、HT 捕集カラムから回収した試料水を分割し、それぞれが保有する液体シンチレーション計数装置で測定することで、試料測定の妥当性を確認することとした。

## 2.5 分析

HTO、HT、 $\text{CH}_3\text{T}$  すべての捕集カラムについてそれぞれ、窒素ガスを流しながら  $400\text{ }^\circ\text{C}$  に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却管により冷却し試料水として回収した。過去

の調査結果から、捕集水は捕集カラムの入口側に多く吸着されていることが判明しており、これを効率よく回収するため窒素ガスを捕集カラムの出口側から流した。なお、HT 捕集カラムについては念のため、放冷後無トリチウム水を 10 mL 程度加え、再度窒素ガスを流しながら 400 °C に加熱して試料水（洗浄水）を回収し、先に回収した試料水と混合した。

回収した試料水に過酸化ナトリウム及び過マンガン酸カリウムを添加して蒸留した後、蒸留液 10 mL または 50 mL に液体シンチレータ（Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan）を同量混合し、測定試料とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアル（6000477、Perkin Elmer Japan）または容量 100 mL の POLYVIALS145（BIN-PT145、ZINSSER ANALYTIC）を用いた。測定は液体シンチレーション計数装置（AccuFLEX LSC-LB7、ALOKA）により行い、測定時間は、1,000 分（50 分×20 回×1 サイクル）とした。

各試料の測定値と大気採取量などをもとに、大気中の HTO、HT、CH<sub>3</sub>T 濃度を算出した。

### 3. 調査結果

#### 3.1 大気中の水素ガス混入の有無の確認

各採取装置の採取条件及び測定結果を表 1 に示す。

表 1 各採取装置の採取条件及び測定結果

装置名	採取期間(日数)	流速 (L/min)	大気量 (m <sup>3</sup> )	測定結果(mBq/m <sup>3</sup> ) <sup>※1</sup>		
				HTO	HT	CH <sub>3</sub> T
標準型	4/18～4/26 (8)	1.5	17.3	(8.9±5.0) <sup>※2</sup>	11.4±0.5	-
密閉型	4/19～4/27 (8)	1.5	17.8	7.9±1.1	10.7±0.5	-
除去型	5/2～5/10 (8)	1.5	17.1	16.1±1.2	(1.1±0.4)	-
陽圧型	5/15～5/25 (10)	1.5	22.0	6.3±1.1	10.6±0.4	-
低速型	4/25～5/15 (20)	0.9	26.4	8.2±1.1	11.0±0.4	-

※1: 測定値の括弧書きは不検出を表す。誤差は測定装置の計数誤差。

※2: HTO は基本的に 100 mL バイアルで測定すべきところ、20mL バイアルで測定したため誤差が大きい。この試料以外は全て 100 mL バイアルで測定している。

標準型、密閉型、陽圧型の採取装置間において、HT 濃度に有意な差は認められなかった。これらの採取期間において大気中の HT 濃度が一定であったと仮定すれば、これらの測定結果は、大気中の HT を含む水素ガスが装置を構成するチューブ等を透過して混入していないことを示すと考えられる。また、除去型の HT が不検出であった。これは、最前段に設置した Pt 触媒カラムにより、大部分の HT が酸化されたことを示していると考えられる。低速型と標準型の採取装置間において、HT 濃度に有意な差が認められなかった。こちらについても、これらの採取期間において大気中の HT 濃度が一定であったと仮定すれば、流速の違いによる測定値への影響は無かったものと考えられる。なお、低速型の積算流量は質量流量計で測定したが、センサー部分に使用されている Pt による HT 測定値への影響は無かったと考えられる。

### 3.2 青森市及び六ヶ所村千歳平での定常的な採取

各地点の採取条件及び測定結果を表2及び表3に示す。

表2 青森市（原子力センター青森市駐在）の採取条件及び測定結果

採取期間(日数)	流速 (L/min)	大気量 (m <sup>3</sup> )	測定結果(mBq/m <sup>3</sup> ) <sup>※</sup>		
			HTO	HT	CH <sub>3</sub> T
6/30～7/31 (31)	1.5	66.4	8.6±1.6	10.6±0.1	1.39±0.08
7/31～8/31 (31)		67.1	(2.7±1.8)	10.0±0.1	1.13±0.07
8/31～9/29 (29)		62.5	4.7±1.2	9.6±0.1	1.38±0.08
9/29～10/31 (32)		69.1	5.8±0.8	10.0±0.1	1.08±0.07
10/31～11/30(30)		65.0	4.9±0.9	9.9±0.1	1.34±0.07
11/30～12/28(28)		60.8	8.0±1.0	10.2±0.1	0.92±0.08

※測定値の括弧書きは不検出を表す。誤差は測定装置の計数誤差。

表3 六ヶ所村千歳平（原子力センター本所）の採取条件及び測定結果

採取期間(日数)	流速 (L/min)	大気量 (m <sup>3</sup> )	測定結果(mBq/m <sup>3</sup> ) <sup>※</sup>		
			HTO	HT	CH <sub>3</sub> T
6/30～7/31 (31)	1.5	66.8	4.7±1.1	10.3±0.1	1.17±0.08
7/31～8/31 (31)		67.1	(1.6±1.1)	9.9±0.1	1.30±0.08
8/31～9/29 (29)		63.0	7.1±1.2	9.8±0.1	1.28±0.09
9/29～10/31 (32)		65.9	5.9±0.7	9.9±0.1	1.19±0.07
10/31～11/30(30)		64.8	1.8±0.5	9.9±0.1	1.55±0.08
11/30～12/28(28)		61.6	(0.5±0.3)	9.9±0.1	1.21±0.09

※測定値の括弧書きは不検出を表す。誤差は測定装置の計数誤差。

青森市及び六ヶ所村千歳平でのHT及びCH<sub>3</sub>T測定値はほぼ一定の値を示しており、採取期間において明確な時間的変動は認められなかった。また、地点間についても明確な差は認められなかった。参考として、六ヶ所村尾駁で環境研が行っている化学形別トリチウム濃度調査で得られたHT及びCH<sub>3</sub>T測定値と併せ、表2及び表3の測定結果を図13及び図14に示す。本調査で得られた測定値と、環境研における測定値は概ね一致していた。

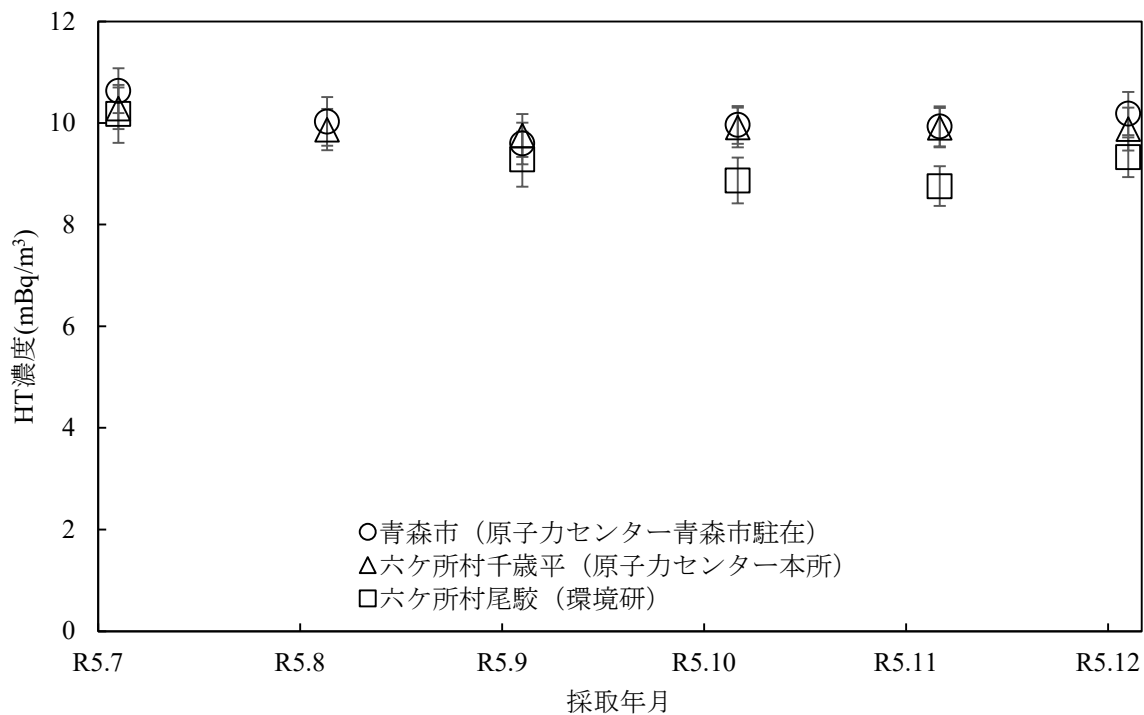


図 13 HT 測定値の推移 (誤差棒は計数誤差の 3 倍)

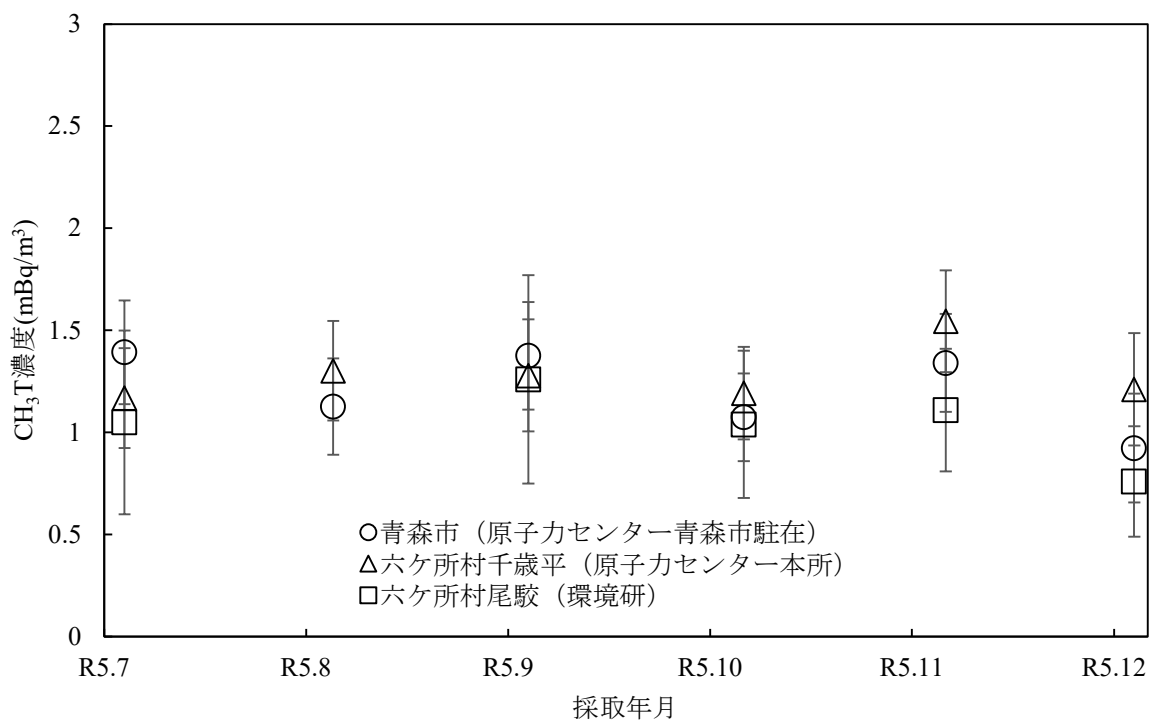


図 14 CH<sub>3</sub>T 測定値の推移 (誤差棒は計数誤差の 3 倍)

### 3.3 HT 捕集カラムの捕集と Pt 触媒カラムの酸化状況の確認

各採取装置の採取条件及び測定結果を表 4 に示す。なお、HTO 濃度は表 2 に記載したものと同一である。

表 4 各採取装置の採取条件及び測定結果

装置名	採取期間(日数)	流速 (L/min)	大気量 (m <sup>3</sup> )	測定結果(mBq/m <sup>3</sup> ) <sup>※</sup>		
				HT(前段)	HT(後段)	CH <sub>3</sub> T
重加湿型	9/29～10/31 (32)		69.1	10.0±0.1	(0.024±0.057)	1.08±0.07
	10/31～11/30(30)	1.5	65.0	9.9±0.1	(0.099±0.069)	1.34±0.07
	11/30～12/28(28)		60.8	10.2±0.1	(0.084±0.076)	0.92±0.08
重酸化型	10/31～11/30 (30)	1.5	65.0	9.9±0.1	(0.099±0.069)	1.34±0.07

※測定値の括弧書きは不検出を表す。誤差は測定装置の計数誤差。

重加湿型において HT 捕集カラム（後段）の HT が不検出であった。このことは、誤差を考慮した上で、HT 捕集カラムは十分な捕集効率を有していることを示していると考えられる。また、重酸化型において CH<sub>3</sub>T 濃度がほかの採取期間と比較して低下していなかった。このことは、Pt カラムが 1 段（触媒 8 個）で十分な酸化効率を有していることを示していると考えられる。

### 3.4 試料測定の妥当性の確認

原子力センター青森市駐在において 6 月に採取した大気のうち、HT 捕集カラムから回収した試料水を分割し両部署がそれぞれ保有する液体シンチレーション計数装置で測定した。測定結果を表 5 に示す。測定値に有意な差は認められなかったことから、トリチウムの測定に問題はないものと考えられる。

表 5 両部署の測定結果

部署名	採取期間(日数)	流速 (L/min)	大気量 (m <sup>3</sup> )	測定に供した	測定結果(mBq/m <sup>3</sup> ) <sup>※</sup>
				試料水量 (g)	
本所	6/1～6/30 (29)	1.5	63.2	22.7	10.3±0.1
青森市駐在				10.0	11.1±0.3

※誤差は測定装置の計数誤差。

## 4. まとめ

- 1) 大気中の HT を含む水素ガスが、採取装置を構成するチューブ等を透過して混入していないことを確認した。また、流速の違いによる測定値への影響がないことを確認した。
- 2) 青森市及び六ヶ所村千歳平の 2 地点で常時採取を行った結果、HT 及び CH<sub>3</sub>T 測定値はほぼ一定の値を示しており、採取期間において明確な時間的変動は認められなかった。また、両地点

間の測定値を比較しても明確な違いは認められなかった。

- 3) HT 捕集カラムによる捕集状況を確認した結果、十分な捕集効率を有していることを確認した。また、Pt 酸化カラムによる酸化状況を確認した結果、酸化効率に問題は確認されなかった。
- 4) 原子力センター本所と原子力センター青森市駐在が保有するそれぞれの液体シンチレーションカウンターで同一試料を分割し測定した結果、両機関の測定値に有意な差は認められなかった。

今後、引き続き離れた 2 地点間での常時採取を行い空間的差異の有無などを確認するとともに、県が設置している環境放射線測定局での試料採取を行う。

## 文 献

- 1) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓：安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発，日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集，323(2007)

## 謝 辞

本調査においては、青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課からの委託事業として、(公財)環境科学技術研究所が実施した「令和 5 年度 排出放射性物質による環境影響に関する調査」で得られた成果を、同課承認の下に利用しています。

成果の御提供に当たり御尽力頂いた関係者の皆様に対し、深く感謝いたします。



編 集 委 員

奥野直子（委員長） 奈良孔隆（副委員長） 神 俊雄 大下内 伸  
檜山宝孝 木村芳伸 葛西邦生

青森県原子力センター所報 第18号 (2023)

令和6年3月 発行

編集・発行 青森県原子力センター

〒039-3215 青森県上北郡六ヶ所村大字倉内字笹崎 400 番地 1

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

