

青森県原子力センター所報

第13号

平成30年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.13 (2018)

青森県原子力センター

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

は じ め に

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

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

東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故から 8 年が経過しましたが、環境放射線モニタリング、とりわけ緊急時モニタリング体制の充実・強化については現在、取組みを進めています。今年度は、青森県緊急時モニタリングマニュアルを作成し、緊急時における具体的な活動内容を整理しています。

人事異動等により職員が常に入れ替わる中、組織としての技術レベルを維持・向上させていくためには、専門研修の受講、学会・セミナー等への参加、実践的な原子力防災訓練の実施等を通じて、職員の知識・技術の習得を図るとともに、個々の意識を高めていくことが重要だと考えています。当センターの所報は、これまで実施してきた調査研究の成果や日常のモニタリングで得られた知見についてとりまとめたものであり、職員の意識や資質向上の成果であると考えております。

所報第 13 号のとりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員をはじめ多くの専門家の方々からご意見・ご指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。今後とも、職員一人一人が研鑽を積みながら一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご教示を賜りますようお願い申し上げます。

平成 31 年 3 月

青森県原子力センター

所 長 竹 ヶ 原 仁

目 次

I	技術報告	
	1. 空間放射線と積雪の関係について	3
	大坂直人 鈴木将文	
	2. ストロンチウム-90 分析の回収率低下事例の原因及び対策	11
	檜山宝孝 田村麻衣子 工藤 翔 吹越恵里子 木村芳伸	
	3. トリチウムの共沸蒸留法による分析法の検討	21
	檜山宝孝 米内山愛望 神 俊雄 木村芳伸	
	4. 牧草地の土壤中セシウム-137 濃度調査結果	29
	吹越恵里子 檜山宝孝 木村芳伸	
	5. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査	37
	—平成 29 年度調査結果—	
	和田浩司 大山 勝 木村芳伸	
	東山愛生 沼山 聡 佐々木耕一	
II	学会発表等要旨	59
III	平成 30 年度調査研究事業報告	
	1. 青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査	63
	玉熊義久 神 俊雄	
	2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査	75
	(平成 30 年度実施内容)	
	和田浩司 大山 勝 木村芳伸	
	東山愛生 沼山 聡 佐々木耕一	
	3. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討	77
	安積 潔 神 俊雄 木村芳伸	
	4. 表土中ヨウ素-129 分布調査	89
	大山 勝 神 俊雄 木村芳伸	

原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

技 術 報 告

空間放射線と積雪の関係について

大坂直人 鈴木将文

1. はじめに

県は、原子力施設の周辺に連続モニタ及び蛍光ガラス線量計（以下「RPLD」という。）を配置し、周辺の空間放射線の測定・監視を行っている。

連続モニタによる空間放射線量率（以下「線量率」という。）及びRPLDによる積算線量（以下、線量率と積算線量を合わせて「線量率等」という。）の測定結果には、測定地点・時期により差異が見られている。特に冬季には、積雪が多くなるにつれ線量率等が低下する事象が知られており、これは、積雪による大地からの放射線の遮へい効果によるものと考えられている。

環境放射線モニタリングにおける RPLD 測定結果に基づく原子力施設起因の線量の推定・評価にあたり、第 1～3 四半期の各四半期の積算線量に占めるバックグラウンド分については、過去の第 1～3 四半期の施設起因分を含まない積算線量の平均値とすることとしているが、第 4 四半期のバックグラウンド分については、算出方法が未検討であることから、積雪深を考慮したバックグラウンド分がどの程度なのかを把握しておくことが重要である。

そこで今回、「積雪による線量率等の低下傾向」及び「任意の積雪深に対応する線量率等のとりうる範囲」について検討を行ったので、その結果を報告する。

2. 検討方法

2.1 検討地点

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測定地点のうち、今回の検討地点の位置を図 1 に示す。

2.2 項目及び測定装置等

(1) 線量率（連続モニタ）

測定装置：3" φ × 3" NaI(Tl)シンチレーション検出器（アロカ製 ADP-1132）

測定位置：地上 1.8 m

測定エネルギー範囲：50 keV～3 MeV

エネルギー補償方式：G(E)関数荷重演算方式

(2) 積算線量

測定装置：RPLD（AGC テクノグラス(株)製 SC-1）

リーダ（AGC テクノグラス(株)製 FGD-201S）

測定位置：地上 1.8 m

測定エネルギー範囲：32 keV～3 MeV

エネルギー補償方式：カプセルに組み込まれたエネルギー補償用フィルターによる

(3) 積雪深（連続モニタ又は定規）

測定装置：光電式積雪計（連続モニタ）又はステンレス製 1 m 定規



図1 線量率等と積雪深の関係に係る検討地点の位置
 (●: 積雪深を連続モニタで測定、○: 積雪深を月1回ステンレス製1m定規で測定)

2.3 測定方法及びデータ処理方法

(1) 連続モニタによる線量率及び積雪深の測定

連続モニタから得られた線量率 (nGy/h) 及び積雪深 (cm) の測定データは、テレメータシステムにより青森県原子力センターに収集され、統計処理により1時間値としている。

(2) 積算線量の測定

積算線量の測定については、文部科学省編「蛍光ガラス線量計を用いた環境 γ 線量測定法」(平成14年)に準拠した方法で実施しており、91日当たりの積算線量 ($\mu\text{Gy}/91\text{日}$) を四半期毎に算出している。

(3) 定規による積雪深の測定

測定項目がRPLDによる積算線量のみ地点では、毎月1回、収納箱正面から前後左右にそれぞれ50cm離れた位置において、ステンレス製1m定規を積雪に刺して地面に届いたのを確認してから積雪深を測定し、それら4か所の積雪深の算術平均により当該月の積雪深を求めている。

なお、定規を刺しても地面に届かない場合は、刺した場所の近傍における1m分の積雪を取り除いてから再度定規を刺し、地面に届いたのを確認してから測定した深さと1mを合計したものを積雪深とした。

2.4 調査期間及び調査用データ

(1) 線量率と積雪深の関係

測定装置の更新に伴い、平成 23 年度以降、全測定局において同一条件で線量率測定を行っていることから、調査の対象年度を平成 23～29 年度とし、時期を例年積雪のある 12～3 月とした。

また、線量率及び積雪深の調査用データとして、テレメータシステム上の 1 時間値の月平均値を用いた。

(2) 積算線量と積雪深の関係

平成 15 年度以降、RPLD による積算線量測定を実施していることから、調査期間を平成 15～29 年度の第 4 四半期とした。

また、積算線量の調査用データについては、RPLD 測定結果 ($\mu\text{Gy}/91$ 日) を用い、積雪深の調査用データについては、連続モニタによる測定地点の場合はテレメータシステム上の 1 時間値の四半期平均値を、ステンレス製 1 m 定規による測定地点の場合は各月の積雪深の四半期平均値をそれぞれ用いた。

2.5 調査方法

各調査地点について、線量率等 D_k 及び積雪深 t_k のデータを用いて線量率等—積雪深の相関図を作成し、相関図に近似曲線を実線で描画した。

なお、近似曲線については、積雪により大地からの放射線が遮へいされることを踏まえ、コリメート（進路及び入射面積が制限）された γ 線の遮へいによる減衰式

$$I_k = I_0 e^{-\mu t_k} \quad k = 1, 2, \dots, n \quad \dots \dots \dots (1)$$

ただし、 I_k ： 積雪通過後の線量率等
 I_0 ： 積雪通過前の線量率等
 μ ： 積雪による線量率等の減衰係数
 t_k ： 積雪深
 n ： データ数

を適用した。 μ は、積雪による線量率の減衰度合いを示す指標であり、値が大きいほど単位積雪深あたりの線量率の減衰度合いも大きいと言える。 I_0 及び μ は、線量率等実測値 D_k と(1)式で得られる線量率等推定値 I_k との偏差二乗和が最小となるよう、最小二乗法により求めた。

次に、各地点について、積雪深の値が t_k の時にとり得る線量率等の平均値を I_k とみなし、標準偏差 σ を(2)式のとおり算出した。

$$\sigma = \sqrt{\sum(D_k - I_k)^2 / (n - 1)} \quad k = 1, 2, \dots, n \quad \dots \dots \dots (2)$$

最後に、各地点の相関図における近似曲線の上下に、近似曲線 $\pm 3\sigma$ の曲線を点線で描画した。

以上の調査方法の概略を図2に示す。

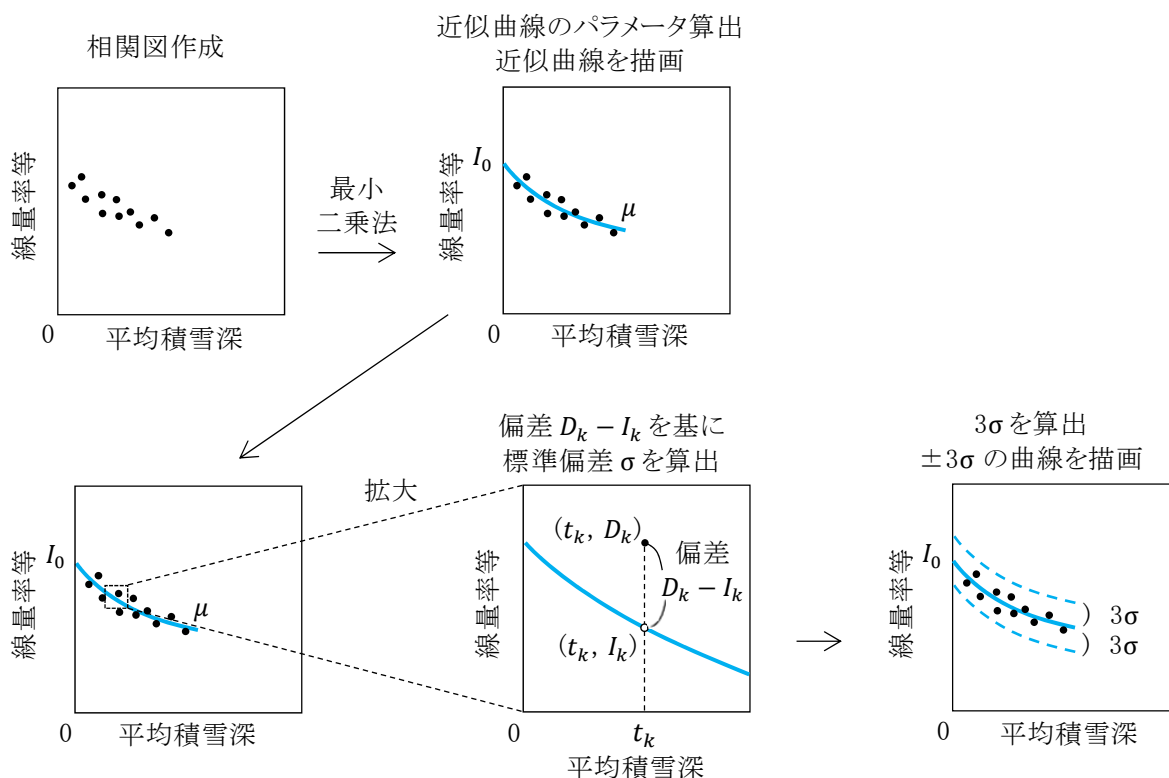


図2 線量率等と積雪深の関係における近似曲線及び近似曲線 $\pm 3\sigma$ の曲線の作成手順

3. 調査結果

3.1 線量率と積雪深の関係

図1において黒丸(●)で示した7地点について、平成23~29年度の12~3月における月平均線量率と月平均積雪深の関係を図3に示す。

積雪が多くなると近似曲線に対する決定係数 R^2 が高くなり線量率が指数関数的に低下する傾向が見られた。また、 μ の値の範囲は 0.0057~0.0102、 R^2 の値の範囲は 0.66~0.92、 3σ の値の範囲は 2.8~5.3 であった。

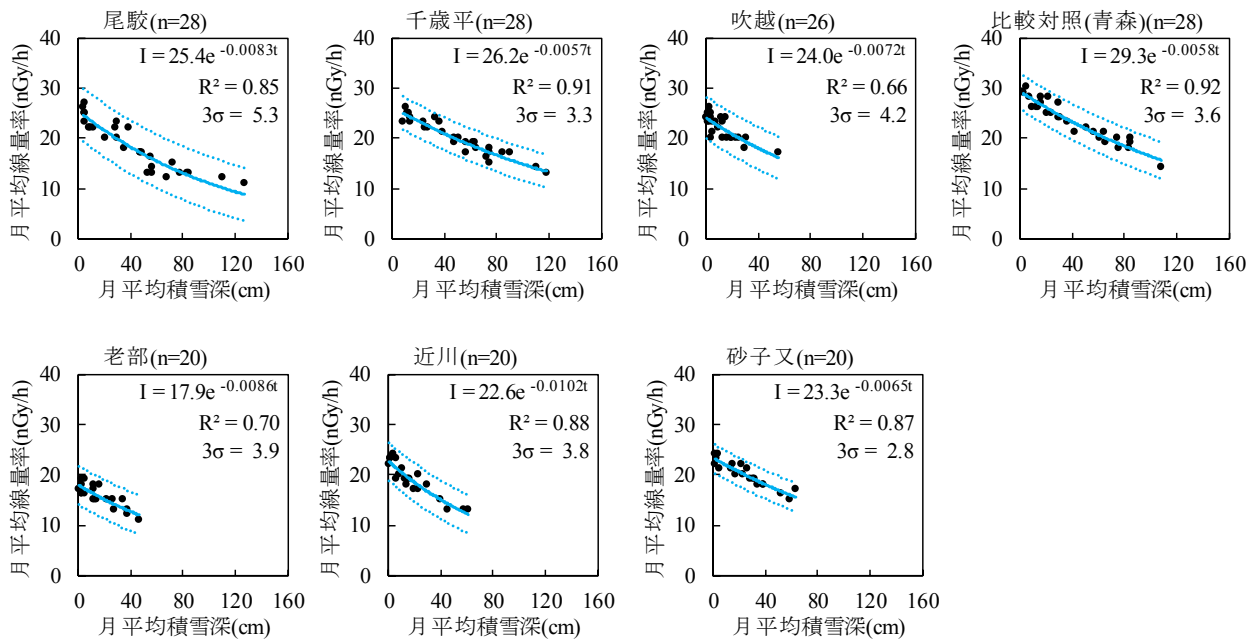


図3 月平均線量率と月平均積雪深の関係 (n: データ数)

以上により、連続モニタによる線量率測定地点について、積雪期の線量率のバラツキ (3σ) を把握することができた。

3.2 積算線量と積雪深の関係

(1) 連続モニタによる積雪深測定地点の場合

図 1 において黒丸(●)で示した 7 地点について、平成 15~29 年度の第 4 四半期における積算線量測定値と平均積雪深の関係を図 4 に示す。

積雪が多くなると R^2 が高くなり積算線量が指数関数的に低下する傾向が見られた。また、 μ の値の範囲は 0.0022~0.0032、 R^2 の値の範囲は 0.72~0.95、 3σ の値の範囲は 3.8~7.8 であった。

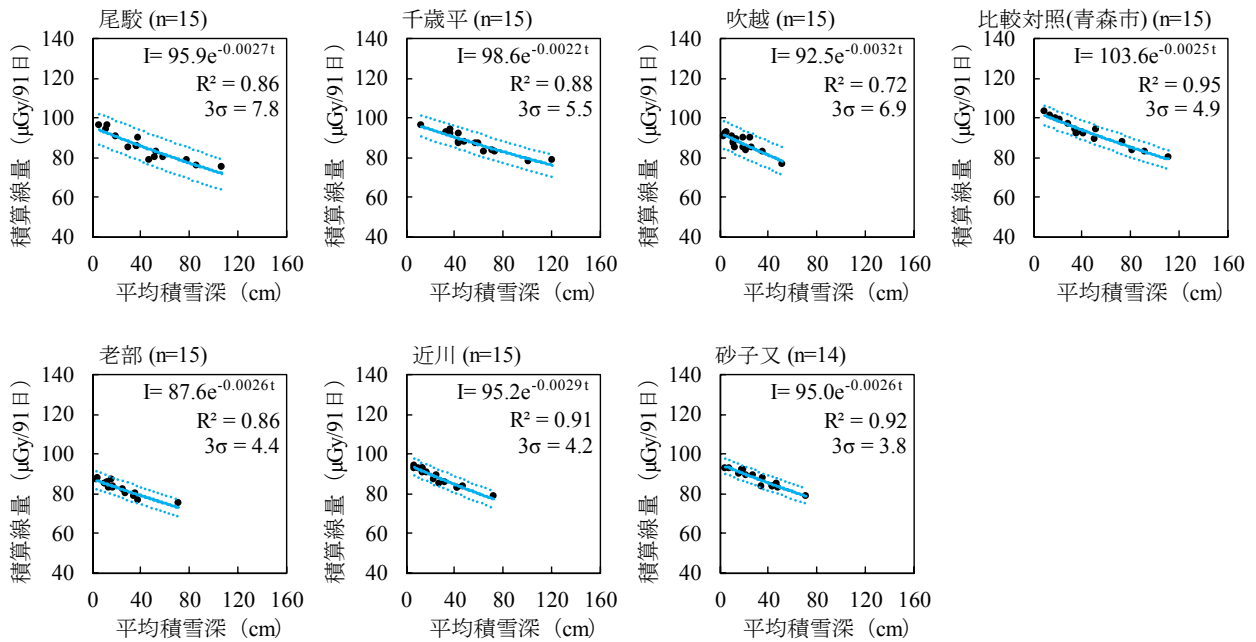


図 4 積算線量測定値と平均積雪深（連続モニタにより測定）の関係

以上により、連続モニタによる積雪深測定地点について、第 4 四半期の積算線量のバラツキ (3σ) を把握することができた。

(2) 定規による積雪深測定地点の場合

図 1 において白丸(○)で示した 20 地点について、平成 15~29 年度の第 4 四半期における積算線量測定値と平均積雪深の関係を図 5 に示す。

3.2(1)の測定地点に比べ近似曲線に対するバラツキが大きくなっているものの、積雪が多くなると積算線量が概ね指数関数的に低下する傾向が見られた。また、 μ の値の範囲は 0.0017~0.0045、 R^2 の値の範囲は 0.22~0.86、 3σ の値の範囲は 4.3~16.7 であった。

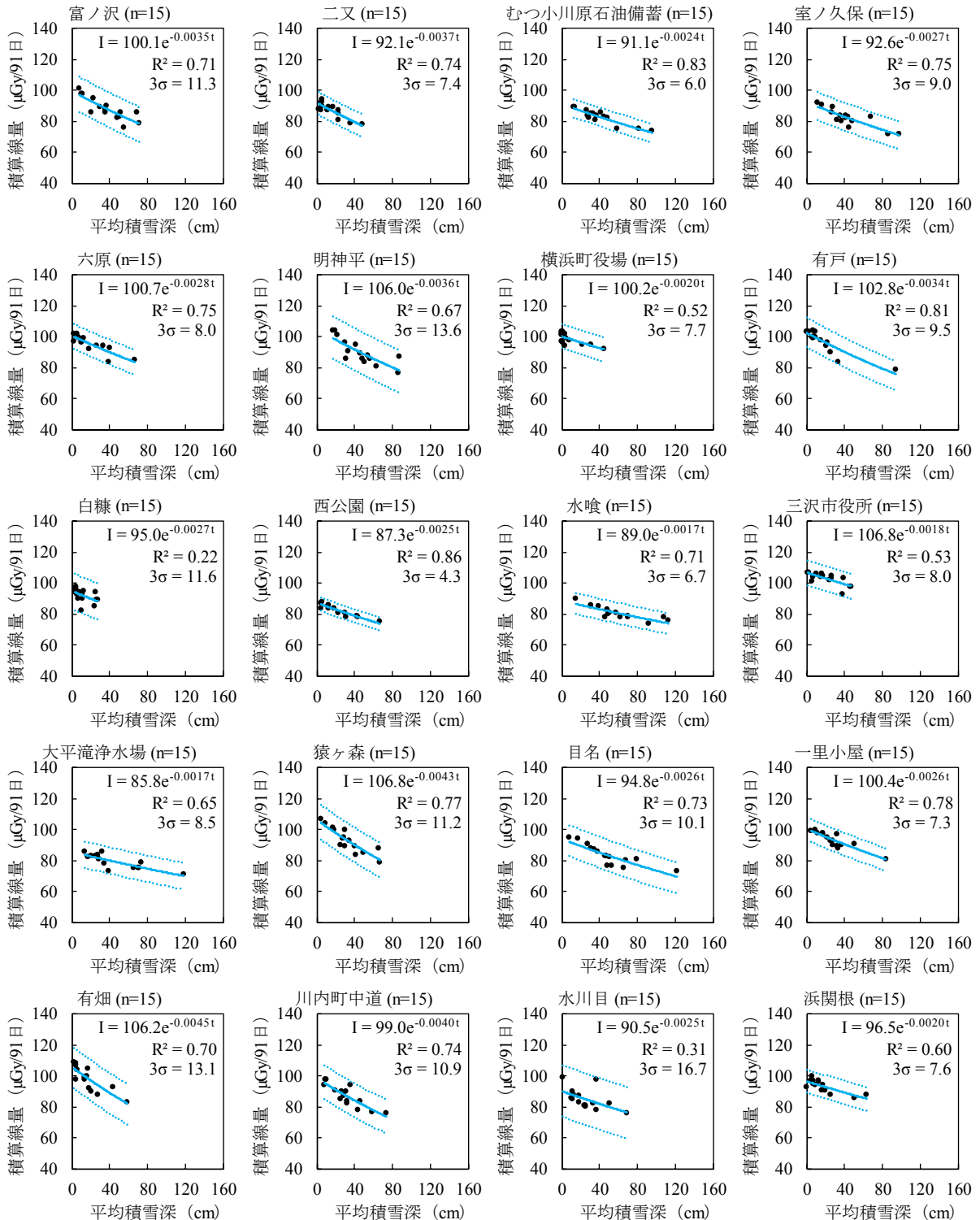


図 5 積算線量測定値と平均積雪深（定規により測定）の関係

以上により、定規による積雪深測定地点についても、第 4 四半期の積算線量のバラツキ (3σ) を把握することができた。

4. まとめ及び考察

4.1 線量率と積雪深の関係

連続モニタによる線量率・積雪深測定地点について、積雪が多くなると線量率が指数関数的に低下することを確認できたほか、積雪期における線量率のバラツキ (3σ) 及び任意の積雪深 t_k に対応する線量率のとりうる範囲 ($I_k \pm 3\sigma$) を把握することができた。

線量率と積雪深の相関図において、縦軸方向に一定程度のバラツキが見られたが、これは線量率測定値に降雨雪等による上昇分が含まれるほか、時期によって積雪の密度が異なること等によるものと考えられる。

また、SCA(TI)計数率と線量率の関係をいなくとも、線量率と積雪深の関係を示すことにより、一般県民に対し積雪の影響をわかりやすく説明することが可能となると考えられる。

4.2 積算線量と積雪深の関係

連続モニタによる積雪深測定地点、定規による積雪深測定地点のそれぞれについて、積雪が多くなると第 4 四半期の積算線量が概ね指数関数的に低下することを確認できたほか、第 4 四半期における積算線量のバラツキ (3σ) 及び任意の積雪深 t_k に対応する積算線量のとりうる範囲 ($I_k \pm 3\sigma$) を把握することができた。

積算線量と積雪深の相関図において、3.2(1)の場合と 3.2(2)の場合とで近似曲線に対するバラツキの度合いに違いが見られたが、これは積雪深の測定方法及びその精確さが異なることによるものと考えられる。

県内原子力施設の操業・運転開始後における第 4 四半期の積算線量については、平常の変動幅（前年度までの 5 年間の測定値の「最小値～最大値」）の範囲内であっても、測定値に施設寄与分が含まれる場合が考えられることから、

- ・施設寄与の有無については、積雪深を考慮した第 4 四半期の積算線量推定値 $+3\sigma$ の値を超過したかどうかを考慮して検討する
- ・測定結果に施設寄与が認められた場合、その測定値から積算線量推定値 ((1)式の t_k に評価対象年度第 4 四半期の平均積雪深の値を代入し得られる I_k の値) を差し引くことにより、施設寄与分を算出し、測定結果に基づく施設起因の線量の推定・評価を行えるものと考えられる。

文 献

- 1) 長岡和則、宮野敬治：空間 γ 線量測定について（環境 γ 線連続モニタによる線量率測定）、日本分析センター広報, **27**, 63-75(1995)

ストロンチウム-90 分析の回収率低下事例の原因及び対策

檀山宝孝 田村麻衣子 工藤 翔^{*1} 吹越恵里子 木村芳伸

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリングの一環として、海底土（放出口北 20 km（以下「北 20 km」という。）及び放出口付近（以下「放出口」という。）並びに放出口南 20 km（以下「南 20 km」という。））中のストロンチウム-90（以下「Sr-90」という。）濃度調査を行っている。

図 1 に示すとおり、土壌試料の Sr-90 分析は酸抽出、炭酸塩沈殿分離、シュウ酸塩沈殿分離、陽イオン交換分離、スカベンジングにより Sr-90 を精製した後、放射平衡に達した Sr-90 の娘核種である Y-90 のβ線を測定することにより、Sr-90 濃度を求めるという工程となっている。このうち、シュウ酸塩沈殿分離の工程では①炭酸塩沈殿を HCl で溶解、②シュウ酸二水和物を添加、③アンモニア水により pH を 4.0~4.2 付近に調整、鉄をシュウ酸錯体イオンとして上澄みに保持し、ストロンチウム、カルシウム、バリウム、ラジウムをシュウ酸塩として沈殿させている。このとき、鉄は錯体として溶解しており、沈殿と分離される。なお、この pH 調整の確認方法については、BCG 溶液及び pH 試験紙により判断している。

今回、平成 27 年度及び平成 28 年度の海底土（南 20 km）のシュウ酸塩沈殿分離工程の③の pH 調整において、本来は白色の沈殿が生じるどころ、図 2（左）に示すように褐色の沈殿が生じ、溶液が懸濁し、Sr の回収率が低下した事例（以下「回収率低下事例」という。）があったことから、原因及び対策について検討を行い、その結果を取りまとめた。

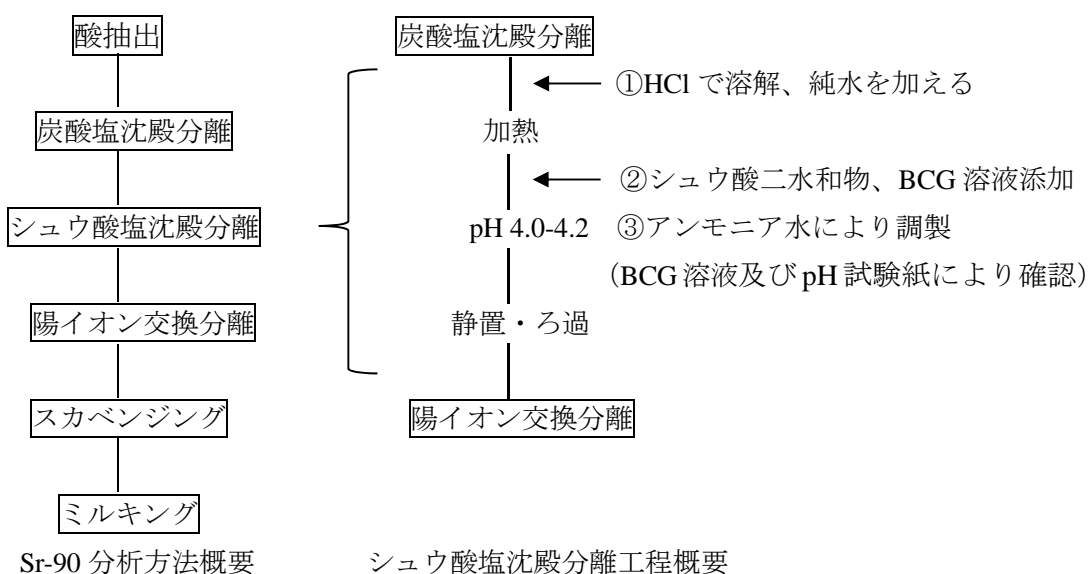
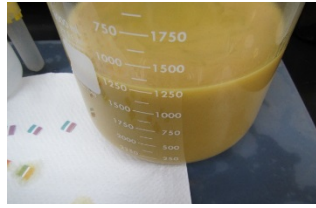
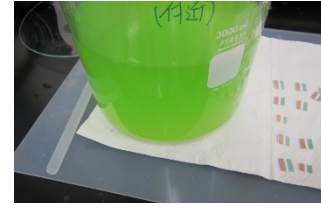


図 1 Sr-90 分析方法概要及びシュウ酸塩沈殿分離工程の概要

*1：現青森県環境生活部環境保全課



平成 28 年度海底土（南 20 km）



<参考>平成 28 年度海底土（放出口）

図 2 回収率低下事例の状況比較（pH4 付近）

2. 調査方法

2.1 試料採取地点

試料採取地点の概略は図 3 のとおりであり、再処理工場の海洋放出口付近の海底土（放出口）、そこから南北に 20 km の地点の海底土（北 20 km）及び海底土（南 20 km）の 3 地点である。

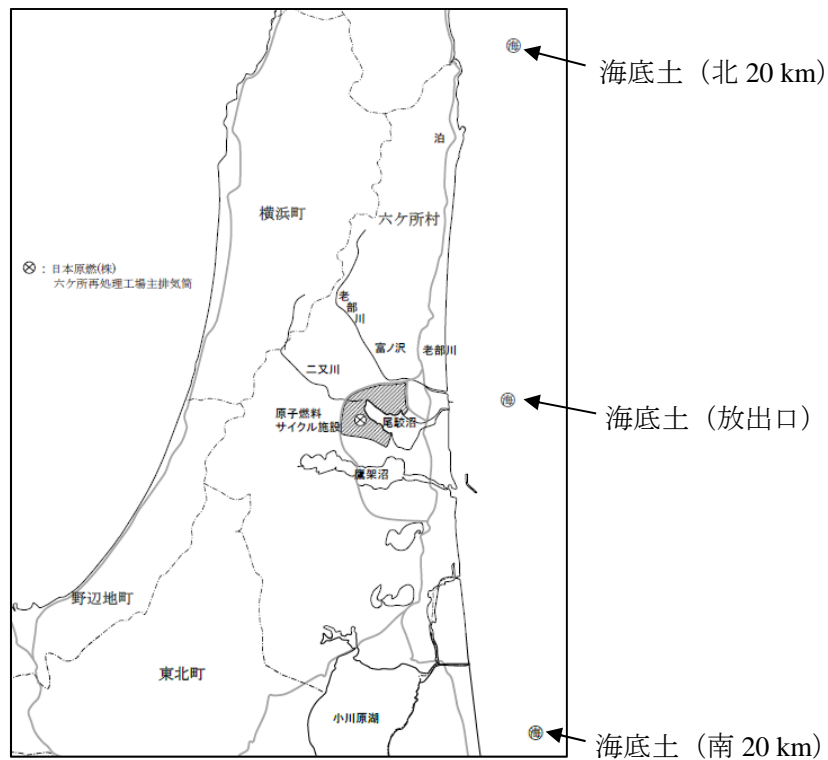


図 3 試料採取地点

2.2 試料採取及び前処理方法

試料採取方法については、文部科学省「環境試料採取法」（昭和 58 年）¹⁾に準拠し、スミス・マッキンタイヤ型採泥器を用いて採取した。

前処理方法については、文部科学省「環境試料採取法」（昭和 58 年）¹⁾に準拠し、No.5B ろ紙を用いて吸引ろ過、105℃で 24 時間以上乾燥した後、2 mm のふるいを通したものを分析試料とした。

2.3 測定方法

(1) pH 及び強熱減量

環境省 水・大気環境局「底質調査方法」(平成 24 年 8 月)²⁾に準拠した方法により行った。

(2) Sr-90 分析

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 年改訂)³⁾に準拠した方法により行った。

(3) 元素分析

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 年改訂)³⁾の安定ストロンチウムの定量に準拠し、試料約 10 g を 550°C で 3 時間加熱、HCl で 3 時間以上加熱後、GA200 ガラス繊維ろ紙及び No.5C ろ紙を用いて吸引ろ過した。また、残留物は温水で洗浄し、ろ液と洗液を合わせ、500 mL メスフラスコを用いて酸抽出液 (10 g/500 mL) とした。当該溶液を必要に応じて希釈し、ICP 発光分光分析法によりストロンチウム、カルシウム、バリウム、鉄の定量分析を行った。なお、内部標準物質としてイットリウムを用いた。

2.4 測定機器

ICP 発光分光分析装置は、株式会社島津製作所製 ICPS-7510 を用いた。

3. 調査結果

3.1 試料の性状の比較

表 1 に海底土 (北 20 km) 及び海底土 (放出口) 並びに海底土 (南 20 km) の平成 27 年度から平成 29 年度の試料の性状及び pH、強熱減量の測定結果を示す。土質については、全ての地点及び年度において砂質であった。また、pH 及び強熱減量については、試料採取地点による大きな差はなく、回収率低下事例のあった平成 27 年度及び平成 28 年度の海底土 (南 20 km) と、平成 29 年度の同地点の試料の性状に大きな差はなかった。

表 1 海底土の性状及び pH、強熱減量の測定結果

年度	北 20 km			放出口			南 20 km		
	土質	pH	強熱減量 (%)	土質	pH	強熱減量 (%)	土質	pH	強熱減量 (%)
H27	砂	9.07	1.4	-	8.88	1.2	砂	8.76	0.8
H28	砂	8.89	1.6	砂	8.80	1.8	砂	8.73	1.7
H29	砂	9.17	1.4	砂	8.80	1.1	砂	8.75	1.2

※「 」は、回収率低下事例の見られた試料を示す。

3.2 酸抽出液の定性及び定量分析

試料採取地点ごとの海底土に含まれる金属成分の組成の違いを把握するため、平成 28 年度 of 海底土（北 20 km）及び海底土（放出口）並びに海底土（南 20 km）の酸抽出液（10 g/500 mL）について、純水を用いて 100 倍希釈し、ICP 発光分光分析法により定性分析を行った。表 2 に測定結果を示す。海底土（南 20 km）の鉄の濃度が、他地点と比べ 4 倍程度高い濃度であったこと、また、鉄はシュウ酸塩沈殿分離の工程に係る元素であることから、次に鉄の定量分析を行った。

図 4 に平成 27 年度から平成 29 年度 of 海底土（北 20 km）及び海底土（放出口）並びに海底土（南 20 km）の鉄の定量分析の測定結果を示す。回収率低下事例のあった平成 27 年度及び平成 28 年度 of 海底土（南 20 km）の鉄の濃度が他地点及び他年度と比べて、4～5 倍程度高い濃度であったことがわかった。

表 2 海底土の酸抽出液の定性分析による半定量値

(単位:ppm)

濃度※	北 20 km			放出口			南 20 km		
10 ppm 以上	Al 11	Ca 26		Al 20	Ca 16	<u>Fe 13</u>	Al 16	Ca 13	Ti 48
1 ppm 以上	Na 6.0	Ti 5.0	<u>Fe 9.5</u>	Na 9.0	Ti 5.7	Er 2.8	<u>Fe 48</u>	Er 22	Tl 25
0.1 ppm 以上	Er 2.3	Tl 2.8		Tl 3.3	Bi 1.1		Na 7.4	Ru 1.4	Bi 8.6
0.1 ppm 未満	Mg 0.54	Si 0.31	Sr 0.15	Mg 0.51	Si 0.29	V 0.10	Mg 0.60	Si 0.25	V 0.38
	Nb 0.39	Bi 0.92		Nb 0.39			Mn 0.33	Zn 0.10	Nb 0.37
	Be 0.056	V 0.099	Mn 0.093	Be 0.054	Mn 0.096	Zn 0.039	Be 0.057	Sr 0.070	Ba 0.013
	Zn 0.029	Ba 0.014		Sr 0.089	Ba 0.024				

※元素 半定量値（測定スペクトルのピーク強度と装置データベースを比較して算出した値。）

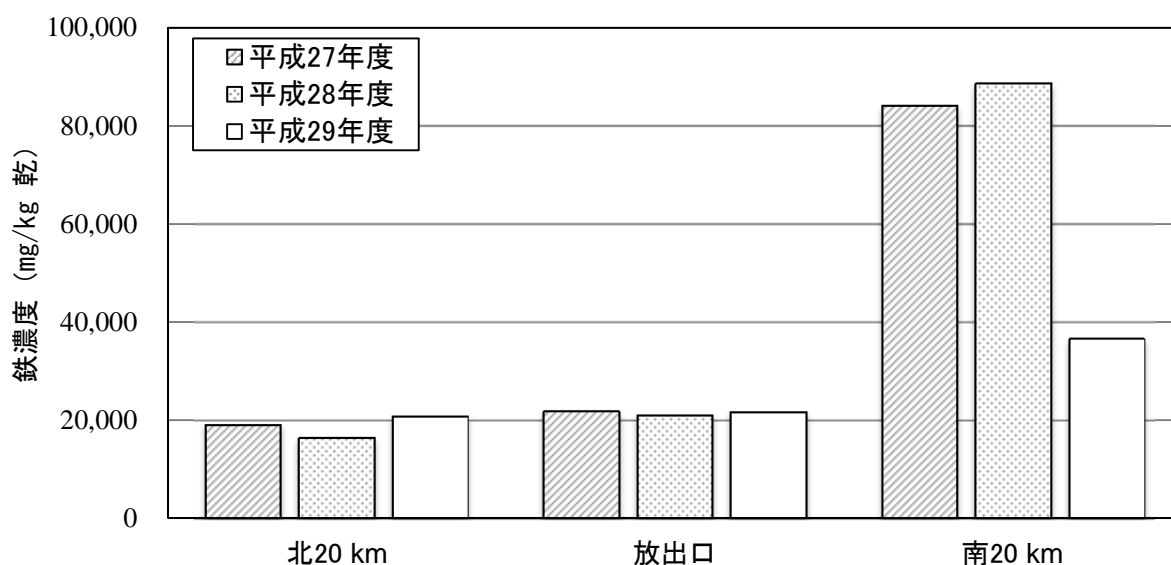
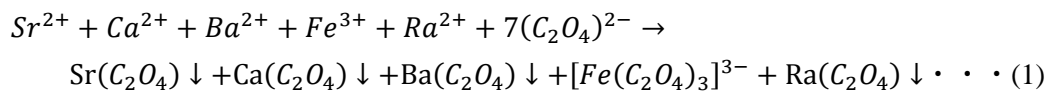


図 4 海底土の酸抽出液の鉄濃度（平成 27 年度～平成 29 年度）

3.3 シュウ酸二水和物の必要量の確認及び鉄の添加試験

シュウ酸塩沈殿分離の工程では、(1)式の反応により、鉄はシュウ酸イオンと 1:3 で反応し錯体として溶解し、Ⅱ価のアルカリ土類金属はシュウ酸塩として沈殿する。鉄は、アルカリ土類金属よりもシュウ酸二水和物の必要量が相対的に多いことから、土壌試料の鉄の濃度が特異的に高い場合、シュウ酸イオンが不足する可能性が考えられる。各年度の海底土について、ストロンチウム、カルシウム、バリウム、鉄の定量分析の測定結果をもとに、シュウ酸二水和物の必要量を計算した。表 3 に計算結果を示す。当所の土壌試料の分析において、土壌試料にはシュウ酸二水和物を 50 g 添加することとしているが、回収率低下事例の見られた平成 27 年度及び平成 28 年度の海底土(南 20 km)では 60 g 以上必要であることから、添加量が不足していたことがわかった。



このことから、回収率低下事例はシュウ酸二水和物の添加量が不足していたことにより、鉄が錯体を形成せず、水酸化鉄として沈殿するとともに、アルカリ土類金属のシュウ酸塩沈殿が十分に生成しなかったことが原因であると推測された。そこで、シュウ酸二水和物の添加量を 50 g から 80~90 g に増やし再分析を行ったところ、図 5 に示すように褐色の沈殿は生じず、シュウ酸塩沈殿の生成も確認された。ただし、通常、pH 調整後生成した沈殿は速やかに沈降し、上澄みは透明になるが、再分析時には上澄みが不透明であり、シュウ酸塩沈殿以外の不純物が生成していると考えられた。

なお、回収率低下事例の起こらなかった平成 28 年度の海底土(放出口)の酸抽出後に鉄 100 mg/mL 溶液を 35 mL 添加し、回収率低下事例のあった平成 28 年度の海底土(南 20 km)と鉄の濃度が同程度となるように調整し、再分析を行ったところ、図 6 に示すように回収率低下事例と同様にシュウ酸塩沈殿分離の工程において褐色の沈殿が生じ、溶液が懸濁したことを確認した。

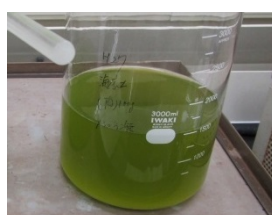
表3 海底土における各元素のシュウ酸二水和物の換算による必要量の計算結果

上段 元素濃度 (単位:mg/kg 乾)、下段 シュウ酸二水和物換算量 (単位:g)

採取場所	年度	Sr	Ca	Ba	Fe	合計
北 20 km	H27	179	23,100	9.64	19,100	-
		0.1	7.2	0.0	12.9	20.2
	H 28	168	28,300	10.8	16,300	-
		0.1	8.9	0.0	11.1	20.1
	H 29	173	28,900	15.3	20,700	-
		0.1	9.0	0.0	14.0	23.1
放出口	H 27	79.8	19,900	12.5	21,800	-
		0.1	4.5	0.0	14.7	19.3
	H 28	86.7	14,100	14.6	21,000	-
		0.1	3.1	0.0	14.2	17.4
	H 29	63.4	12,700	9.94	21,700	-
		0.1	2.8	0.0	14.7	17.6
南 20 km	H 27	167	11,100	9.91	84,000	-
		0.1	3.5	0.0	56.9	60.5
	H 28	55.1	12,400	10.8	88,600	-
		0.1	3.9	0.0	60.0	64.0
	H 29	82.8	15,500	13.8	36,500	-
		0.1	4.8	0.0	24.7	29.6

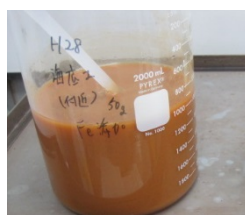
※Ra は、ICP 発光分光分析装置で測定できない元素であるため測定していない。

Sr のシュウ酸二水和物換算量は、回収率計算のための担体 (Sr 100 mg) も含めた値である。



平成 27 年度海底土 (南 20 km)

図 5 シュウ酸塩二水和物の添加量増加による再分析の状況 (pH4 付近)



平成 28 年度海底土 (放出口) 鉄添加

図 6 鉄添加による再分析の状況 (pH4 付近)

3.4 不溶性ケイ酸の除去の対策の検討

一般的に土壌・海底土試料特有の問題として、ケイ酸の析出によるストロンチウムの取り込み、試料溶液のろ過時のフィルターの目詰まり等があり、ケイ酸は水溶性になったり不溶性になったり変化し、その割合も一定せず、分析操作上やっかいな物質である⁴⁾とされている。当所の土壌試料の分析において、ケイ酸の析出の対策を行っていなかったことから、メンブランフィルターを用いて不溶性ケイ酸をろ過し除去する方法⁴⁾を検討することとした。

回収率低下事例のあった平成28年度の海底土(南20 km)で不溶性ケイ酸のろ過及びシュウ酸二水和物の追加の操作を加えた分析方法により再分析をしたところ、図7に示すように不透明な溶液の濁りが改善され、pH調整がより確認しやすくなったことを確認した。



図7 不溶性ケイ酸のろ過及びシュウ酸二水和物の追加による再分析の状況

3.5 Srの回収率の確認

図8に従来の分析方法と、不溶性ケイ酸のろ過及び褐色の沈澱が生じた場合のシュウ酸二水和物の追加する操作を加えた分析方法(以下「改良後の分析方法」という。)を示す。3.3、3.4の検討結果を踏まえ、改良後の分析方法によるSrの回収率を確認した。表4に従来の分析方法及び改良後の分析方法を行った場合の回収率の計算結果を示す。回収率低下事例のあった平成27年度及び平成28年度の海底土(南20 km)について、過去3回分析を行っており、その回収率はそれぞれ0、16、55%、0、44、75%であり、今回検討した分析方法を行った場合の回収率はそれぞれ66~90%、82、95%と従来の分析方法と比べて、Srの回収率が向上したことを確認した。

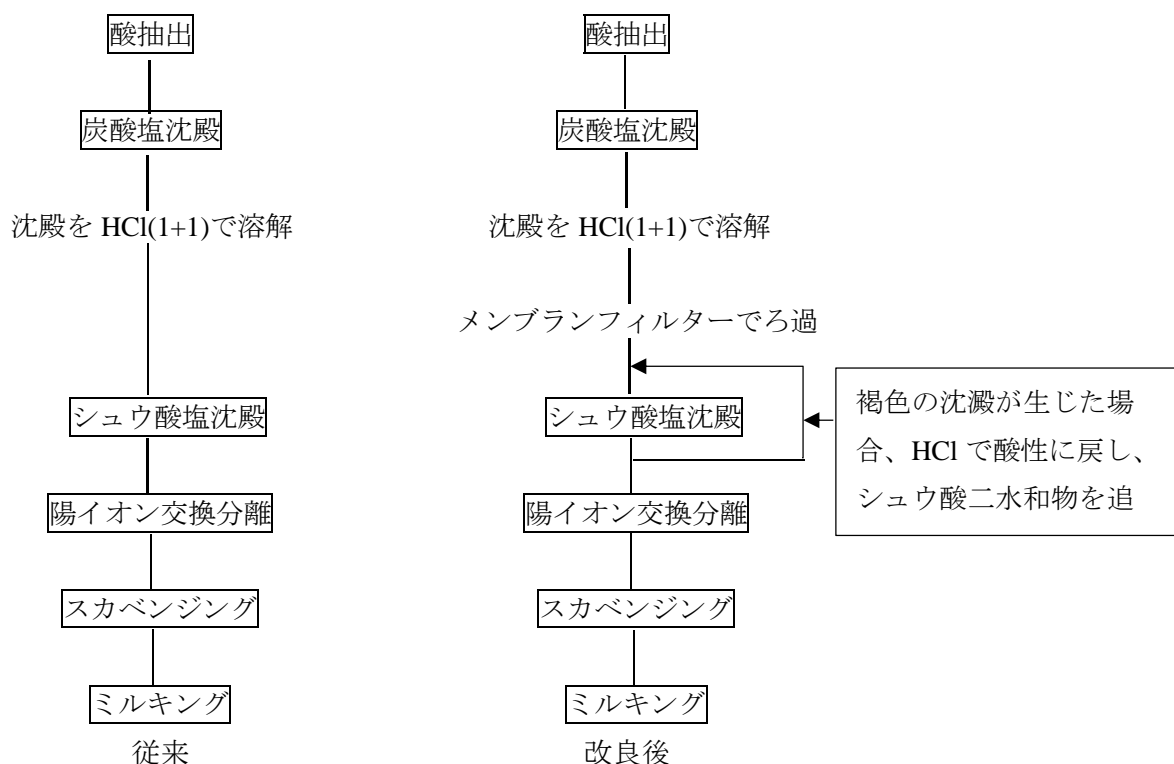


図8 従来の分析方法及びろ過とシュウ酸二水和物の追加の操作を加えた分析方法

表4 Srの回収率の計算結果

	従来の分析方法 回収率 (%)			改良後の分析方法 回収率 (%)			<参考>平成29年度の海底土 (北20 km、放出口、南20 km)の回収率 (%)
	1回目	2回目	3回目				
平成27年度海底土 (南20 km)	0	16.3	55.4	66.6 (74.1)	89.3	90.9 (88.0)	91.2~94.2 (このうち、南20 kmの回収率は、91.2%)
平成28年度海底土 (南20 km)	0	44.4	75.3	82.3	95.9		

※下段の()は、不溶性ケイ酸のろ過の操作をせず、シュウ酸二水和物の追加のみの操作を行った場合の回収率を示す。

4. まとめ

- 平成27年度及び平成28年度の海底土(南20 km)の鉄の濃度は、他地点及び他年度と比べて、4~5倍程度高い濃度であった。
- 回収率低下事例のあった平成27年度及び平成28年度の海底土(南20 km)の原因は、鉄をシュウ酸錯体イオン([Fe(C₂O₄)₃]³⁻)とするためのシュウ酸二水和物の添加量が当所の分析方法では不足しており、このため、鉄が錯体を形成せず、褐色の沈澱である水酸化鉄(Fe(OH)₃)として沈殿するとともに、シュウ酸塩沈殿が十分に生成しなかったことが原因であると推測された。
- 平成27年度及び平成28年度の海底土(南20 km)は、同年度の他地点の海底土と比べ、不

溶性ケイ酸も多いと考えられた。

- 4) 以上のことを踏まえ、シュウ酸二水和物を追加する操作を加えたことにより、Sr の回収率が向上した。また、ゲル状の不溶性ケイ酸のろ過・除去の操作により、pH 調整が確認しやすくなり操作性が向上した。

文 献

- 1) 文部科学省：環境試料採取法（昭和 58 年）
- 2) 環境省 水・大気環境局：底質調査方法（平成 24 年 8 月）
- 3) 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 年改訂）
- 4) 財団法人 日本分析センター：環境放射能分析研修事業 放射性ストロンチウム分析法解説（平成 16 年 3 月 31 日）

トリチウムの共沸蒸留法による分析法の検討

檜山宝孝 米内山愛望 神 俊雄 木村芳伸

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリングの一環として、魚類（ヒラメ）の組織自由水中トリチウム（以下「H-3」という。）濃度調査を行っている。

生物試料の H-3 分析は、前処理後、真空凍結乾燥法による組織自由水の回収、試料水の精製として湿式分解（還流）、常圧蒸留を行い、液体シンチレーション測定により、H-3 濃度を求めるという工程からなる。このうち、真空凍結乾燥法による組織自由水の回収に 7～10 日程度の期間を要する。一方、共沸蒸留法は真空凍結乾燥法と比べ、簡易な装置で、かつ迅速に組織自由水を回収できる利点があり^{1,2)}、短時間に多くの試料を処理することが可能であることから、その有効性について検討を行った。

2. 調査方法

2.1 前処理方法

ハクサイ、タラ、ニンジン、ヒラメの各試料の可食部をフードプロセッサーにより、均質化したものを分析試料とした。また、リンゴジュース及びヨーグルトについては、そのまま分析試料とした。

2.2 測定方法

(1) 真空凍結乾燥法による組織自由水の回収

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年改訂)³⁾に準拠し、前処理した試料をジッパー付き袋に板状に伸ばし、冷凍庫で一晩以上凍結させた。その後、凍結した試料を予め風袋重量を測定した容器に入れ、一定期間、真空凍結乾燥した後、全体重量を秤量し、試料重量がほぼ恒量となるまで真空凍結乾燥を繰り返した。その際、前日との重量差が 0.1 g 未満となった場合を恒量とした。真空凍結乾燥機は、EYELA 社製 FDU-830 を用いた。

(2) 共沸蒸留法による組織自由水の回収

五十嵐らの報告¹⁾及び「トリチウム分析法解説」⁴⁾を参考とした。図1に装置図等を示す。分析試料約 100 g を 1000 mL ニツロフラスコに分取し、トルエン約 300 mL と沸騰石を入れ、トルエンと水の共沸点である 85℃を目安としてマンテルヒーターの温度を徐々に上げた。分離ロートに溜まった水層を適宜回収し、これを組織自由水とした。温度計の温度が 85℃を超え、冷却管と丸底フラスコの間ガラス枝管がトルエンの蒸気のみになり、透明感を示した時点で加熱を終了した。

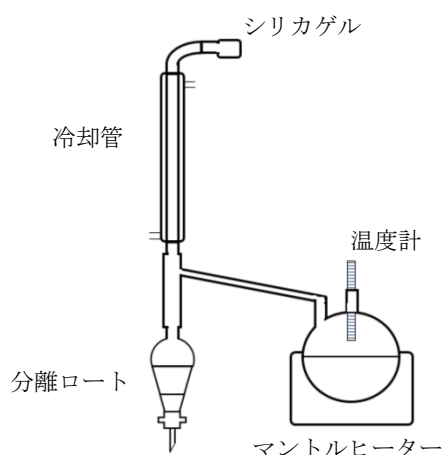


図1 装置図等

(3) 湿式分解（還流）

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年改訂）³⁾に準拠し、回収した組織自由水約100 mLに過マンガン酸カリウム約0.5 gと沸騰石を入れ加熱した。また、ジムロート冷却管の上部にシリカゲルを充填したカラムをセットした。4時間以上湿式分解（還流）を行い、その後ナス型フラスコに密栓をし、一晩放置した。

(4) 常圧蒸留による精製

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年改訂）³⁾に準拠し、湿式分解（還流）後の試料約100 mLに過酸化ナトリウムを加えアルカリ性にした後、沸騰石を入れ、試料を乾固寸前まで加熱した。また、得られた水に過マンガン酸カリウムの着色が残っていた場合、再度同じ操作を繰り返した。

(5) 減圧蒸留による精製

湿式分解（還流）後の試料約100 mLに過酸化ナトリウムを加えアルカリ性にした後、ロータリーエバポレーター及びウォーターバスを用いて減圧蒸留を行った。得られた水に過マンガン酸カリウムの着色が残っていた場合、再度同じ操作を繰り返した。ロータリーエバポレーターはEYELA社製N-1210、ウォーターバスはEYELA社製SB-1300を用い、ウォーターバスの設定温度は約60℃とした。

(6) H-3 標準原液の希釈方法

（公社）アイソトープ協会から購入したH-3標準原液 1.00×10^2 Bq/g（基準日2017.2.7）をピペットにより、100 mLメスフラスコに2.5 mL分取、定容し、(i)高濃度用約2.5 Bq/gのH-3希釈溶液とした。さらに、(i)をピペットにより、100 mLメスフラスコに10 mL分取、定容し、(ii)低濃度用約0.25 Bq/gのH-3希釈溶液とした。なお、定容及びバックグラウンド(BG)水の調製には、（公財）日本分析センターから提供された地下水に過マンガン酸カリウム及び過酸化ナトリウムを加え、減圧蒸留したものをを用いた。

2.3 測定機器等

試料水 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。また、混合した測定試料は、ケミルミネッセンス等による擬似計数発生 の低減のため、測定機器サンプルチェンジャ内に一晚置いた後、測定を開始した。測定容器は POLYVIALS145 (BIN-PT145、ZINSSER ANALYTIC)、測定機器は株式会社日立製作所製低バックグラウンド液体シンチレーションシステム Accu FLEX LSC-LB7 を用い、測定時間は 2,000 分 (50 分×10 回×4 サイクル) とした。

3. 調査結果

3.1 組織自由水の回収

表 1 に真空凍結乾燥法及び共沸蒸留法により回収した組織自由水の量から算出した水分率と各試料を乾燥機に入れ、温度 105°C で 24 時間以上乾燥 (以下「加熱乾燥法」という。) を行った後の乾物重量から算出した水分率との比を示す。真空凍結乾燥法と加熱乾燥法の水分率の比は、共沸蒸留法と加熱乾燥法の水分率の比と同程度であったことから、組織自由水の回収量について、真空凍結乾燥法と共沸蒸留法に大きな差はないと考えられた。なお、表 2 に示すように組織自由水の回収に要した期間は、真空凍結乾燥法が 5 日～11 日程度であり、共沸蒸留法が 4～5 時間程度であった。

表 1 試料の水分率及び組織自由水の水分率の比

試料名	I 加熱乾燥法	II 真空凍結乾燥法		III 共沸蒸留法	
	水分率	水分率	II / I ※	水分率	III / I ※
リンゴジュース	0.90	0.89	0.99	0.86	0.96
ハクサイ	0.95	0.94	0.99	0.93	0.99
タラ	0.83	0.82	0.99	0.81	0.98
ニンジン	0.87	0.87	1.0	0.85	0.98
ヨーグルト	0.85	0.86	1.0	0.84	0.99
ヒラメ	0.75	0.75	1.0	0.73	0.98

※ II 真空凍結乾燥法又は III 共沸蒸留法の水分率を I 加熱乾燥法の水分率で除した値。

表 2 試料の組織自由水の回収に要した期間

試料名	真空凍結乾燥法	共沸蒸留法
リンゴジュース	11 日	
ハクサイ	10 日	
タラ	7 日	
ニンジン	5 日	4～5 時間
ヨーグルト	6 日	
ヒラメ	9 日	

3.2 回収した組織自由水中に含まれる不純物が測定に与える影響の検討

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年改訂)³⁾では、回収した組織自由水に含まれる有機物等を湿式分解(還流)、常圧蒸留し、測定試料としている。また、当所においては、有機物等の分解の目安として、電気伝導率7~8 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 程度、吸光度が190~230 nmの波長において、0.3 abs未満であることとしている。図2に示すように共沸蒸留法により回収した組織自由水には、着色や濁りは認められなかったものの、臭気を感じる場合があり、また、電気伝導率及び吸光度を測定したところ、この目安を大きく上回り、試料中に含まれる有機物等が共沸により混入していると考えられた。測定試料中に不純物が存在すると、クエンチング等の影響により計数効率が低下するほか、擬似計数により正確な測定ができない場合がある一方で、回収した組織自由水の精製にも時間を要することから、回収した組織自由水中に含まれる不純物が、測定に対して与える影響を検討することとした。

表3に共沸蒸留法により回収した組織自由水の精製前後の電気伝導率、吸光度及び測定機器に内蔵の ^{133}Ba 線源を用いた外部標準(ESCR)法により求めた計数効率(以下「計数効率」という。)並びに試料の測定結果を示す。なお、精製に当たっては湿式分解(還流)を実施した後、当所の分析方法では常圧蒸留を行うとしているが、迅速性を考慮し減圧蒸留を行った。また、精製前後の電気伝導率と吸光度を比較し、精製後の電気伝導率と吸光度が、当所の有機物等の分解の目安まで低下していることを確認した。

精製前後の計数効率を比較すると、リンゴジュース及びハクサイで若干、タラでは精製前の試料で計数効率が低く、これらの試料では状況に応じて精製が必要となる場合があると考えられた。測定試料中のH-3はバックグラウンドレベルであり、精製前の試料においても一時的な計数の変動はなく、測定に影響を与える擬似計数等は見られなかった。また、図3に共沸蒸留法により回収した組織自由水の精製前後の測定回数と計数率の測定結果を示すが、精製前後の試料において、計数率に明確な違いは見られなかった。



ヒラメ

図2 共沸蒸留法により回収した組織自由水

表3 精製前後の電気伝導率、吸光度及び計数効率並びに試料の測定結果

上段：精製前、下段：精製後

試料名	電気伝導率 ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	吸光度 (abs)	計数効率 (%)	測定 回数 [※]	計数平均値 (count/50 min)	計数最大/最小 (count/50 min)	標準 偏差
リンゴジ	116	3.8	23.8	38	96.5	121/76	8.0
ユース	2	0.01	24.9	39	92.8	108/78	5.7
ハクサイ	69	3.8	24.0	39	104.8	120/90	7.1
	6	0.02	24.8	39	104.2	124/86	8.5
タラ	270	3.9	17.4	38	103.8	123/85	7.1
	11	0.06	25.1	39	90.1	120/60	9.9
ニンジン	64	3.7	24.9	39	100.7	119/86	6.4
	6	-0.03	24.6	38	98.5	123/78	8.8
ヨーグル	270	3.8	24.5	38	98.6	117/77	7.3
ト	2	-0.05	24.8	38	97.9	113/82	6.4

※t検定 (p値=0.05) により棄却。

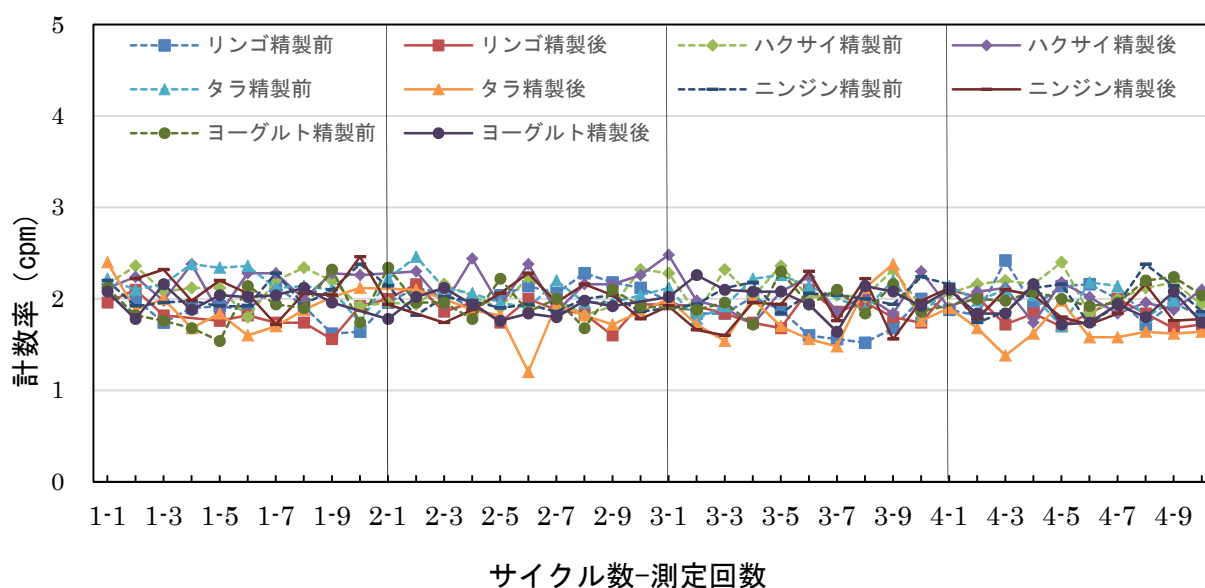


図3 測定回数と計数率の測定結果

3.3 H-3 の添加試料の測定

3.2において、共沸蒸留法により回収した組織自由水を精製せずに測定した場合、一部の試料で計数効率の低下が見られたことから、実際に定量可能なH-3を含む試料を調製、測定し、測定値への影響の有無を確認することとした。

図4にH-3の添加フローを示す。2.2(6)の(i)高濃度用及び(ii)低濃度用H-3希釈溶液を、共沸蒸留法により回収した組織自由水と参考として真空凍結乾燥法による精製後の試料水49gにそれぞれ1gずつ添加し測定した。また、比較試験用として、(iii)バックグラウンド(BG)水を同組織自由水及び同試料水に1gずつ添加し測定した。表4に各H-3添加試料の測定値、計数効率及び添

加量に対する割合の結果を示す。3.2 と同様、未精製の共沸蒸留法の試料水を測定した場合、計数効率の低下が見られたが、(i)高濃度用及び(ii)低濃度用 H-3 希釈溶液の添加試料の H-3 濃度については、どちらも真空凍結乾燥法による精製後の試料水と同程度であり、また、添加量に対する割合も同程度であった。このことから、ある程度の H-3 を含む試料を短時間に処理しなければならない場合には、共沸蒸留法により回収した組織自由水を精製せずに測定する方法は、有効であると考えられた。

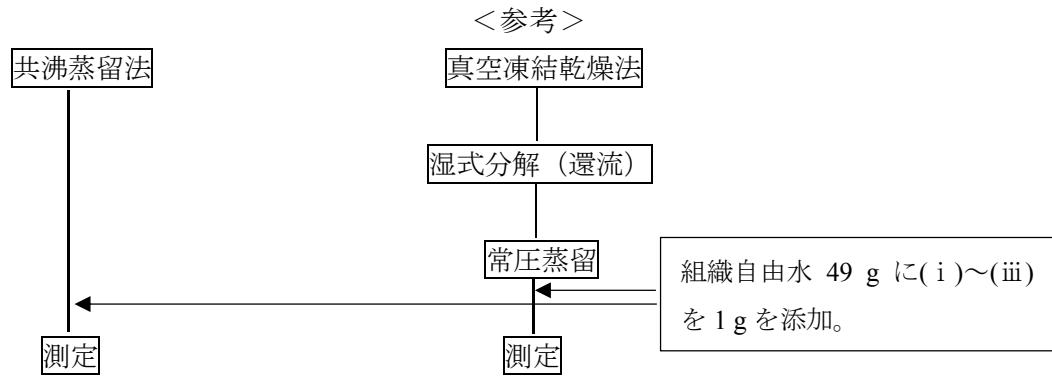


図 4 H-3 希釈溶液の添加フロー

表 4 H-3 添加試料の測定値、計数効率及び添加量に対する割合

試料名	組織自由水の 回収方法	添加量 (Bq)	測定試料量 (mL)	測定値 (Bq/L)	計数効率 (%)	添加量に対する割合*
ヒラメ	共沸蒸留法	(i) 2.5	50	44.2 ± 0.22	17.9	0.950 ± 0.005
		(ii) 0.25		5.02 ± 0.10	18.6	1.01 ± 0.02
		(iii) 0		0.324 ± 0.091	15.5	-
	<参考> 真空凍結乾燥法	(i) 2.5	50	46.2 ± 0.19	23.3	0.993 ± 0.004
		(ii) 0.25		4.95 ± 0.085	23.3	1.01 ± 0.02
		(iii) 0		0.243 ± 0.062	23.2	-

※「添加量に対する割合」は、((i)濃度又は(ii)濃度 - (iii)濃度) / H-3 希釈溶液の添加量 (試料採取日に減衰補正した値) × 0.05 L) とした。

4. まとめ

- 1) 今回の試験において、共沸蒸留法の加熱乾燥法の水分率との比は、真空凍結乾燥法の加熱乾燥法の水分率との比と同程度であり、組織自由水の回収量について、真空凍結乾燥法と共沸蒸留法に大きな差はないと考えられた。また、回収に必要な装置は簡易であり、回収に要する期間は、共沸蒸留法は真空凍結乾燥法と比べて数日間迅速であった。
- 2) 共沸蒸留法により回収した組織自由水には、試料中に含まれる有機物等が共沸により混入していると考えられた。また、共沸蒸留法により回収した組織自由水には、一時的な計数の変動や測定に影響を与える擬似計数等は見られず、精製前後の計数率にも明確な違いは見られなかった。
- 3) 共沸蒸留法により回収した組織自由水に H-3 を添加した試料の測定結果は、真空凍結乾燥法

により回収し精製した後の組織自由水に H-3 を同量添加したものと同程度であり、添加値とよく一致したことから、ある程度の H-3 を含む試料を短時間に処理しなければならない場合には、共沸蒸留法により回収した組織自由水を精製せずに測定する方法は、有効であると考えられた。なお、今回共沸蒸留法により回収した組織自由水を精製せずに測定した場合（H-3 添加試料を含む。）の検出下限値は、0.147～0.260 Bq/L であった。

文 献

- 1) 五十嵐修一、北川貞治：トリチウム分析のための植物中水分の分離法、福井県衛生研究所 調査研究報告(第 23 集)、58-61(1985)
- 2) 曾我慶介、亀井俊之、蜂須賀暁子、最上（西巻）知子：食品中自由水に含まれるトリチウムの共沸蒸留による分離・分析法、食品衛生学雑誌(Vol.57)、81-88(2016)
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（平成 14 年改訂）
- 4) 財団法人 日本分析センター：環境放射能分析研修事業 トリチウム分析法解説（平成 12 年 3 月）

牧草地の土壌中セシウム-137 濃度調査結果

吹越恵里子 檜山宝孝 木村芳伸

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設及び東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリングの一環として、牧草中の γ 線放出核種等の調査を行っている。平成23年3月に発生した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後、牧草中Cs-137濃度は一時上昇し、その後経年とともに低下したが、一部の試料については事故前の測定値に比べ高めの値で推移している。この要因には土壌中Cs-137濃度が関係していると考え、平成26年度及び29年度の牧草採取時に同地点の土壌を採取し、 γ 線放出核種等の調査を行ったのでその結果を報告する。

2. 調査方法

2.1 牧草(モニタリング対象試料)

(1) 試料採取場所

牧草の採取地点を図1に示す。第三団地及び横浜町は年2回(第1四半期、第2四半期)、小田野沢及び野牛は年1回(第1四半期)に採取した。

(2) 採取方法

20 m四方の範囲において地上約10 cmで刈り取り混合した。

(3) 前処理方法

採取した牧草は、105℃で乾燥した後、450℃で24時間灰化し、0.35 mmのふるいを通し、分析に供する試料とした¹⁾。

(4) 分析方法

γ 線放出核種は、試料をU-8容器に充填し、文部科学省の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 γ 線スペクトロメトリー」(平成4年改訂)に基づき、Ge半導体検出器により80,000秒測定した²⁾。

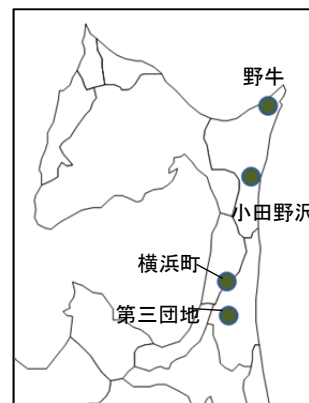


図1 牧草採取地点

2.2 土壌

(1) 円型採土器による採取

平成26年度及び平成29年度に、2.1(1)と同地点において、牧草を採取した20 m四方と同じ範囲で採取した。採取方法は、20 m四方の9ポイントでステンレス製採土器(10 cm ϕ ×5 cm)を用いて、深さ5 cmの表土を採取したものを混合した。採取は牧草採取後に行った。

(2) スクレーパープレートによる採取

平成26年度に2.1(1)と同地点において、牧草を採取した20 m四方の中央1ポイントで採取した。採取方法は、中央1ポイントでスクレーパープレート(15 cm×30 cm)により5 cmごとに20 cmの深さまで採取した。採取は牧草採取後に行った。

(3) 前処理方法

表土は、可給態 Cs-137 の調査も考慮し、60℃で24時間以上乾燥した後、2 mm のふるいを通し、 γ 線放出核種分析の試料とした¹⁾。

(4) 分析方法

γ 線放出核種は、試料をU-8容器に充填し、文部科学省の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 γ 線スペクトロメトリー」(平成4年改訂)に基づき、Ge半導体検出器により80,000秒測定した²⁾。

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³⁾、その後安定Csを添加して上澄みを濃縮した後U-8容器に移し、Ge半導体検出器により80,000秒測定した。

3. 調査結果

3.1 牧草の調査結果

牧草中Cs-137濃度の測定結果(平成20年度～平成29年度)を図1に示す。

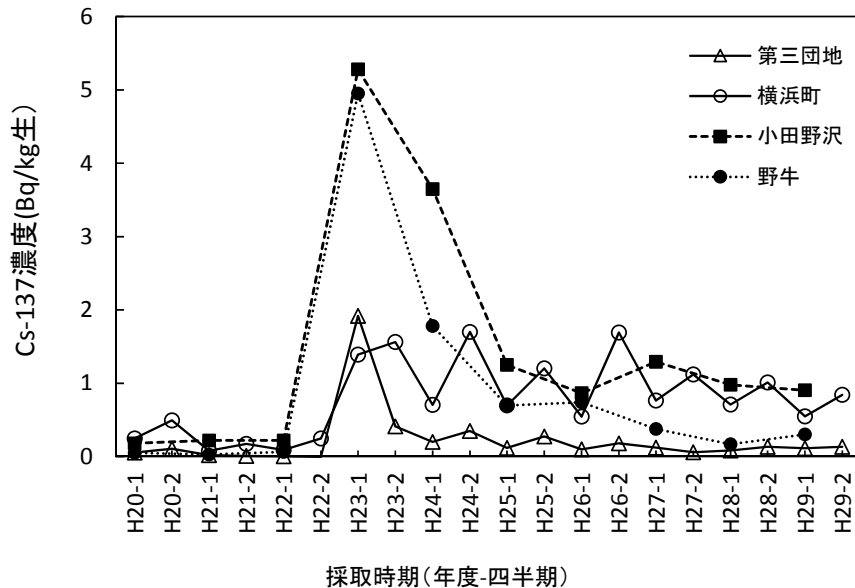


図1 牧草中Cs-137濃度の推移

平成23年3月に発生した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直後(平成23年度第1四半期)に採取した牧草中のCs-137濃度は、事故前に比べて大きく上昇し第三団地と横浜町は2 Bq/kg生程度、小田野沢と野牛は5 Bq/kg生程度と同程度の測定値を示した。その後の減少傾向はそれぞれ異なり、第三団地、野牛においては事故前の測定値に近づいているが、横浜町と小田野沢においては比較的高めの値で推移しており、事故前の測定値には戻っていない。同時に検出された牧草中Cs-134濃度を用いて、牧草中Cs-137濃度における事故寄与分のCs-137濃度を計算した結果を図2-1、図2-2に示す。事故後の上昇分はほとんどが事故寄与分であった。

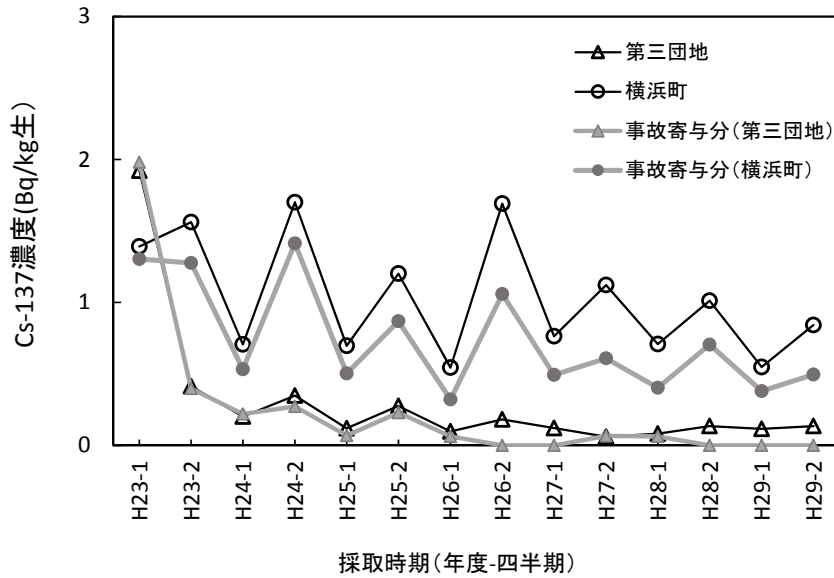


図 2-1 牧草中 Cs-137 濃度の推移と事故寄与分の推移（第三団地、横浜町）

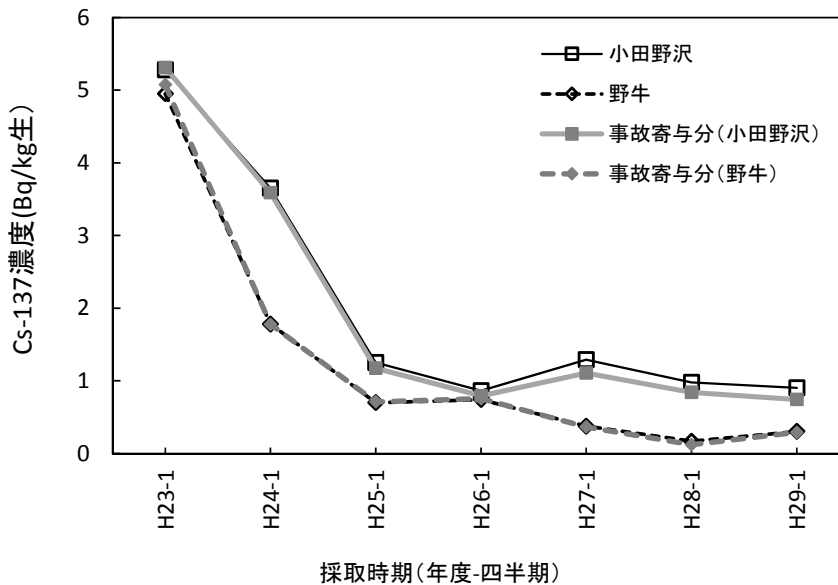


図 2-2 牧草中 Cs-137 濃度の推移と事故寄与分の推移（小田野沢、野牛）

3.2 土壌の調査結果

円型採土器により採取した土壌中Cs-137濃度（平成26年度、平成29年度）を表1-1に示す。また、同時に測定したK-40濃度を表1-2に示す。牧草中Cs-137濃度が比較的高い地点（横浜町、小田野沢）が、土壌中のCs-137濃度も比較的高い傾向を示した。また、K-40濃度については、平成26年度と平成29年度で大きな変化は見られず、全地点の中では野牛が低めであった。

表 1-1 土壤中 Cs-137 濃度（平成 26 年度、平成 29 年度）円型採土器採取

採取時期	¹³⁷ Cs 濃度(Bq/kg 乾)			
	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
平成 26 年度第 1 四半期	3.22 ± 0.3	12.8 ± 0.5	22.4 ± 0.7	5.03 ± 0.3
第 2 四半期	4.68 ± 0.3	13.1 ± 0.4	—	—
平成 29 年度第 1 四半期	4.69 ± 0.3	13.2 ± 0.4	27.3 ± 0.6	3.46 ± 0.2

・測定値は試料採取日に補正した値。

表 1-2 土壤中 K-40 濃度（平成 26 年度、平成 29 年度）円型採土器採取

採取時期	⁴⁰ K 濃度(Bq/kg 乾)			
	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
平成 26 年度第 1 四半期	303 ± 7	273 ± 8	245 ± 10	183 ± 6
第 2 四半期	278 ± 7	285 ± 7	—	—
平成 29 年度第 1 四半期	326 ± 7	317 ± 8	250 ± 8	213 ± 5

・測定値は試料採取日に補正した値。

表2-1には平成26年度にスクレーパープレートで深さ5cmずつ採取した土壤のCs-137測定結果を示す。4地点とも表層0～5 cmのCs-137濃度は表1に示した円型採土器により採取した土壤中Cs-137濃度と同程度であった。また、横浜町、小田野沢において、5 cm以深の下層に比較的高い濃度が見られた。なお、すべての地点で深度0～5 cmにおいてCs-134は検出されていたが、5 cm以深では検出されなかった。

表 2-1 土壤中 Cs-137 濃度（平成 26 年度）スクレーパープレート採取

深度	¹³⁷ Cs 濃度(Bq/kg 乾)			
	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
0～5cm	4.49 ± 0.30	15.9 ± 0.5	22.1 ± 0.5	5.31 ± 0.28
5～10cm	2.65 ± 0.27	20.8 ± 0.5	18.3 ± 0.5	ND(0.62)
10～15cm	3.17 ± 0.28	23.1 ± 0.5	5.97 ± 0.34	ND(0.56)
15～20cm	2.43 ± 0.29	25.0 ± 0.5	ND(1.0)	ND(0.56)

・測定値は試料採取日に補正した値。

・ND：検出限界以下。（ ）内は検出限界値。

スクレーパープレートで深さ5cmずつ採取した土壤の前処理前後の重量変化を表2-2に示す。各層とも同じ体積で採取しているが、表層0～5 cmの重量は、5cm以深のもの比べて明らかに軽い。これは採取した土壤中に多くの根が含まれており、前処理の際、根などを取り除いた結果、さらに重量が軽くなったものであり、特に横浜町、小田野沢においては強固なルートマットが形成されていたと考えられる。

表 2-2 スクレーパープレートで採取した試料の重量変化（平成 26 年度）

深度	前処理前→前処理後 重量(g) (重量変化 (%))			
	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
0～5cm	2885 → 1517(47.4)	1604 → 763(52.4)	1927 → 934(51.5)	2651 → 1649(37.8)
5～10cm	3133 → 1827(41.8)	2610 → 1596(38.8)	2727 → 1484(45.6)	3545 → 2384(32.7)
10～15cm	3082 → 1834(40.5)	2586 → 1616(37.5)	2958 → 1655(44.0)	3776 → 2542(32.6)
15～20cm	2662 → 1522(42.8)	2338 → 1412(39.6)	2838 → 1553(45.3)	3548 → 2488(30.5)

3.3 移行係数の算出

牧草中Cs-137濃度が比較的高い地点（横浜町、小田野沢）は、土壤中Cs-137濃度も比較的高い。しかし、平成26年度の野牛については、牧草中Cs-137濃度は高めであったが、土壤中Cs-137濃度は第三団地と同程度であった。そこで、土壤濃度と牧草濃度を比較するために土壤から牧草への移行係数を求めた結果を、表3-1、表3-2に示す。濃度は試料採取の際、大部分の根が表層5 cmに存在していたことから、表層5 cmまでの乾燥土壤濃度を用いた。牧草は、乾燥重量を求め、乾燥物重量の濃度（Bq/kg乾）とした。

表3-1 Cs-137移行係数（平成26年度）土壤：円型採土器採取

	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
牧草中 Cs-137 濃度 (Bq/kg 乾)	0.572 0.823	2.86 6.68	4.33	2.64
土壤中 Cs-137 濃度 (Bq/kg 乾)	3.22 4.68	12.8 13.1	22.4	5.03
移行係数	0.18 0.18	0.22 0.51	0.19	0.52

・第三団地、横浜町については上段が第1四半期、下段が第2四半期採取のもの。

表3-2 Cs-137移行係数（平成29年度）土壤：円型採土器採取

	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
牧草中 Cs-137 濃度 (Bq/kg 乾)	0.663	2.70	4.30	1.26
土壤中 Cs-137 濃度 (Bq/kg 乾)	4.69	13.2	27.3	3.46
移行係数	0.14	0.20	0.16	0.36

一般に、土壌から農作物への移行係数を求める際、土壌中濃度に関しては根圏域の深さの平均濃度を用いるが、不明の場合の標準値として牧草地は0～10 cmを用いることが多い⁴⁾ことから、参考として平成26年度については、スクレーパープレートで採取した0～5 cm及び5～10 cm層の土壌平均濃度を用いて移行係数を算出し、結果を表3-3に示した。

表3-3 Cs-137移行係数（平成26年度）土壌：スクレーパープレート採取

	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
牧草中 Cs-137 濃度 (Bq/kg 乾)	0.572	2.86	4.33	2.64
土壌中 Cs-137 (0～10cm 平均) 濃度 (Bq/kg 乾)	3.57	18.4	20.2	2.78
移行係数	0.16	0.16	0.21	0.95

表3-1、表3-2、表3-3における移行係数は、土壌から農作物への移行係数の文献値⁵⁾ 0.18（粘土質）～0.76（有機質）と比較して、特に異なるものではなかったが、事故後Cs-137濃度が高めで推移している横浜町と小田野沢について特に移行係数が高いといった傾向は認められなかった。なお、表3-3では、野牛においては0.95と表3-1に比べ高くなった。これは、0～5 cmの土壌中Cs-137濃度に比べて5～10 cmの濃度が低かったためである。

3.4 土壌中可給態 Cs-137 の調査

平成26年度と平成29年度採取の土壌を用いて、植物に移行しやすい形態である可給態Cs-137を調査した。土壌中の可給態Cs-137濃度を表4-1に、また可給態K-40の測定結果を表4-2に示す。また、土壌中可給態Cs-137濃度と牧草中Cs-137濃度との関係を図3に示す。野牛を除くと、土壌中可給態Cs-137濃度が高い方が、牧草中Cs-137濃度も高い傾向にあった。野牛における平成26年度の牧草中Cs-137濃度が比較的高かった要因として、土壌中の可給態Kによる影響が考えられたがそのK-40濃度は他地点と比較しても同程度であり、要因は不明であった。なお、土壌中の全体のK濃度は、他地点に比べて低いこと（表1-2）から、土質等他の要因による可能性も考えられる。

表4-1 土壌中可給態Cs-137濃度（平成26、29年度）

採取時期	¹³⁷ Cs 濃度(Bq/kg 乾)			
	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
平成 26 年度第 1 四半期	0.495 ± 0.06	0.935 ± 0.08	1.59 ± 0.09	0.398 ± 0.07
平成 29 年度第 1 四半期	0.495 ± 0.08	0.783 ± 0.07	1.63 ± 0.09	0.301 ± 0.06

・測定値は試料採取日に補正した値。

表 4-2 土壤中可給態 K-40 濃度 (平成 26、29 年度)

採取時期	⁴⁰ K 濃度(Bq/kg 乾)			
	第三団地	横浜町	小田野沢	野牛
平成 26 年度第 1 四半期	4.19 ± 1.1	4.39 ± 1.1	3.77 ± 1.0	3.87 ± 1.0
平成 29 年度第 1 四半期	4.20 ± 1.1	ND(3.4)	4.82 ± 1.2	5.03 ± 1.1

・測定値は試料採取日に補正した値。
 ・ND：検出限界以下。() 内は検出限界値。

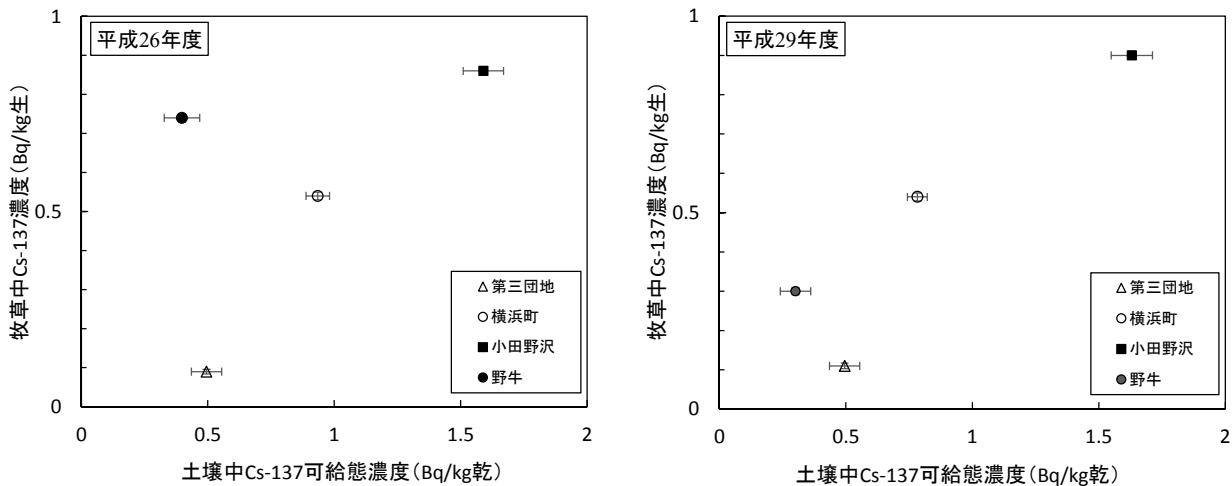


図 3 土壤中可給態 Cs-137 濃度と牧草中 Cs-137 濃度の関係

4 まとめ

平成 23 年 3 月に発生した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直後 (平成 23 年度第 1 四半期) に採取した牧草中の Cs-137 濃度は、事故前に比べて大きく上昇し、第三団地と横浜町、小田野沢と野牛が同程度の測定値を示していた。その後の減少傾向はそれぞれ異なり、第三団地、野牛においては事故前の測定値に近づいているが、横浜町と小田野沢においては比較的高めの値で推移しており、事故前の測定値には戻っていない。そこで、牧草地の土壤中 Cs-137 濃度を調査し、移行係数を求めたところ、野牛を除いて各地点とも同程度であり、牧草中 Cs-137 濃度が比較的高い地点 (小田野沢、横浜町) は、土壤中 Cs-137 濃度も比較的高い傾向であった。次に、土壤中可給態 Cs-137 濃度を調査したところ、その傾向は同様で、野牛を除けば牧草中 Cs-137 濃度と土壤中可給態 Cs-137 濃度には、一定の相関があると考えられた。また、横浜町及び小田野沢の土壤中 Cs-137 濃度が高い原因については、表層土壤に強固なルートマットが形成されているためと考えられた。野牛において、平成 26 年度の牧草中 Cs-137 濃度が土壤中可給態 Cs-137 濃度の割に比較的高かった要因としては、土壤中の全体の K 濃度が他地点に比べて低いことから、土質等他の要因による可能性も考えられた。

文 献

- 1) 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等を用いる機器分析のための試料の前処理法」（昭和 57 年）
- 2) 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」（平成 4 年改訂）
- 3) 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
- 4) 稲葉次郎：放射性核種の環境移行パラメータ, *RADIOISOTOPES*, **64**, 335-349 (2016)
- 5) IAEA ,Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, IAEA Technical Report Series No.472,IAEA(2010)
- 6) 塚田祥文：農作物への放射性核種の移行と分布に関する研究、日本土壤肥科学雑誌, 84, 337-340(2013)

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 29 年度調査結果—

和田浩司 大山 勝 木村芳伸
東山愛生*¹ 沼山 聡*¹ 佐々木耕一*¹

1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、平常運転においても Kr-85、トリチウム(H-3)、C-14 及び I-129 などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が放出される。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について（平成 18 年 2 月 7 日 青森県）」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成 19 年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を開始した。平成 20 年度からは I-131 を追加し、平成 21 年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム（非交換型 OBT）を追加、平成 26 年度からは OBT をすべて非交換型 OBT とし、平成 27 年度からは海藻の TFWT・OBT を追加して実施している。

本報告は平成 29 年度の調査結果についてとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

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

海藻試料について、平成 27 年度から TFWT・非交換型 OBT を分析対象とした。その他については、平成 26 年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

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

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを組織自由水トリチウム (TFWT) 濃度とした。乾燥物については、無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去後、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを非交換型有機結合型トリチウム (非交換型 OBT) 濃度とした。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBT のみ測定した。牛乳の採取地点においては、乳牛の飲料水についても調査を行った。試料は、蒸留により精製したのち、トリチウム濃度 (Bq/L) を測定した。

*1：日本原燃株式会社

(2)C-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」³⁾に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

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

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

表1 対象試料及び調査地点・核種（平成29年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			³ H		¹⁴ C	¹²⁹ I・ ¹³¹ I
			TFWT	非交換型 OBT		
牛乳 (原乳)	六原	4	○	○	○	—
	横浜町	4	○	○	○	—
	二又	4	○	○	○	—
	豊原	4	○	○	○	—
精米	千樽		—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	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	尾駁		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類*	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②	4	○	○	—	—
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村前面海域①	2	○	○	—	○

※ 魚類はヒラメ及びカレイ。

TFWT：組織自由水トリチウム

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

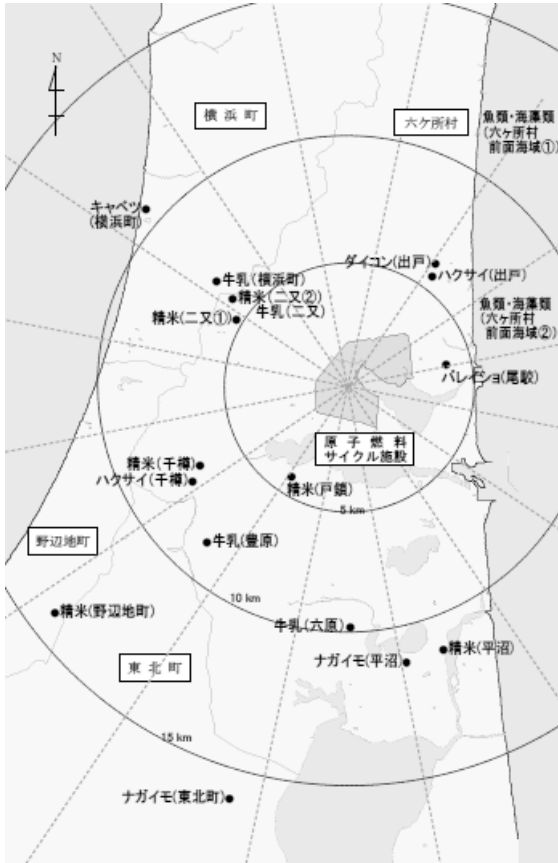


図1 調査地点図

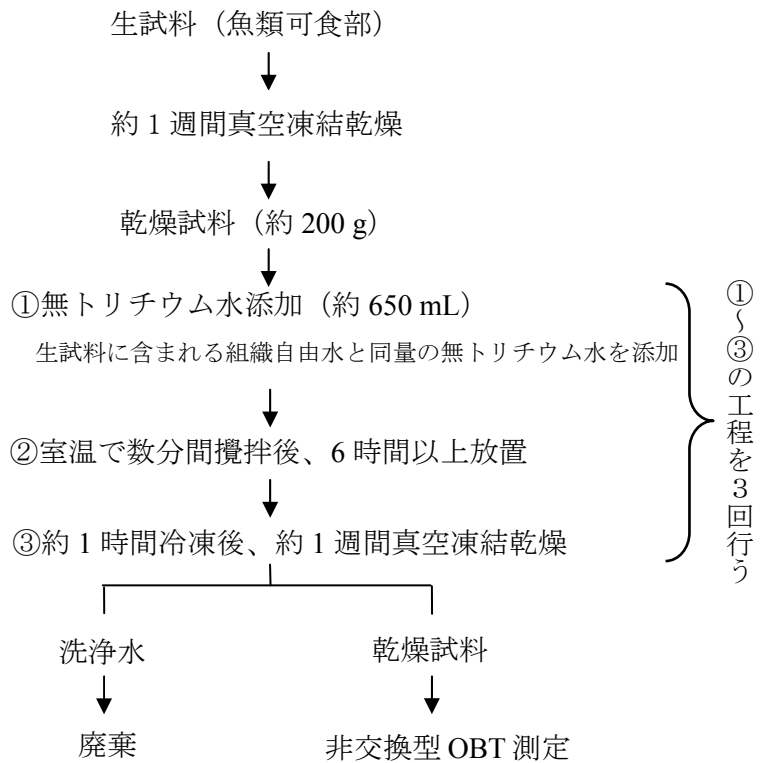


図2 非交換型 OBT の分析工程

(3) I-129

試料を真空凍結乾燥後、燃焼法によって回収したヨウ素から安定ヨウ素(I-127)測定用試料を分取した後、ヨウ化銀を調製し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置 (AMS) を用いて I-129 と I-127 の原子数比を測定した。また、ICP 質量分析法によって安定ヨウ素を定量した。これらによって求めた I-129/I-127 原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中の I-129 濃度を求めた⁴⁾。

(4) I-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁵⁾ に準拠し、乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成18年4月から平成30年3月にかけて放出された放射性気体廃棄物（トリチウム、C-14及びI-129・131）の月間放出量を図3に、放射性液体廃棄物の月間放出量を図4に示す。平成18年から実施された使用済燃料を用いたアクティブ試験については、試験で予定されていた使用済燃料のせん断・溶解処理が平成20年10月で終了しているため、それ以降の放出量は大きく減少している。

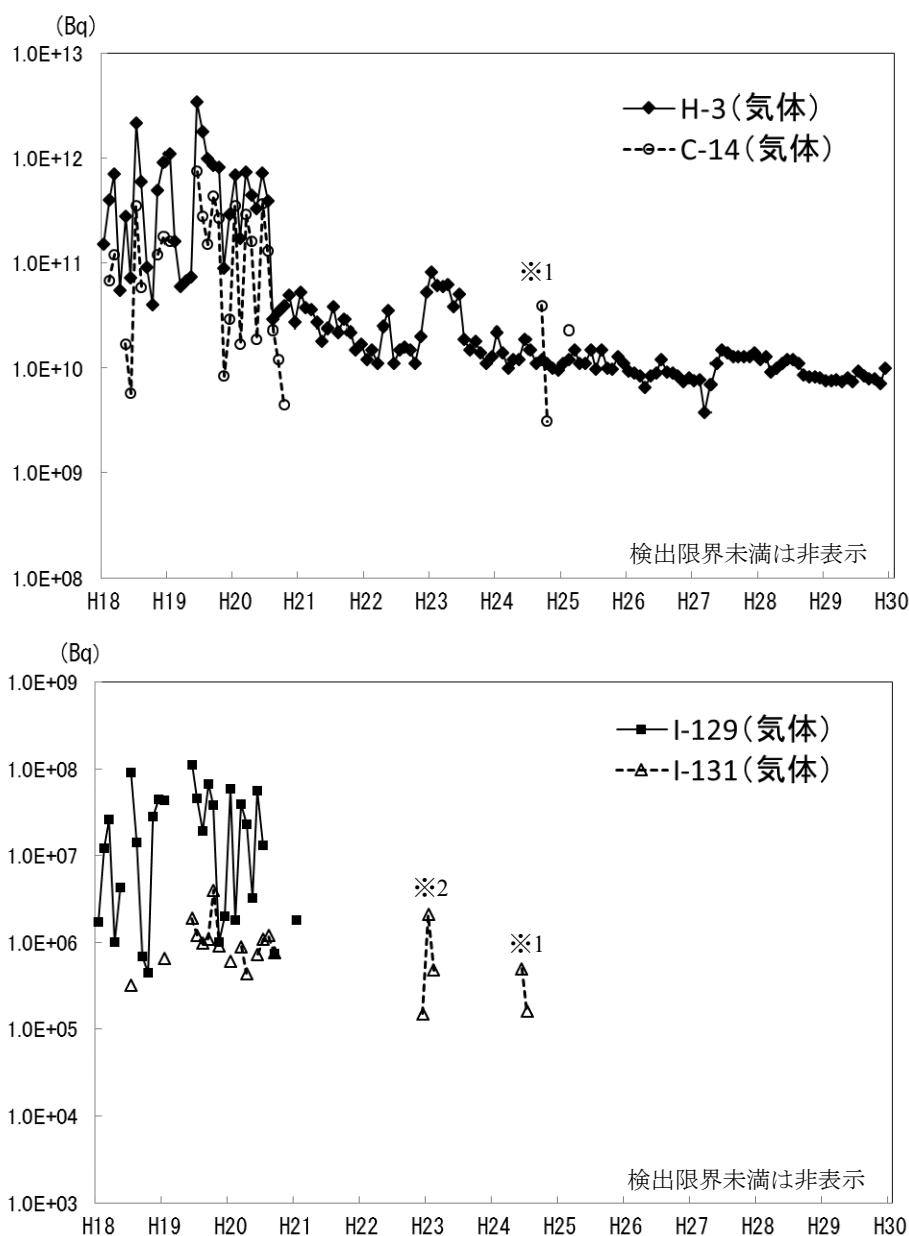


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成30年3月)

※1 ガラス固化試験等の影響。詳細は青森県原子力センター所報第8号(p49)に記載。

※2 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所事故の影響と考えられる。詳細は青森県原子力センター所報第7号(p25)に記載。

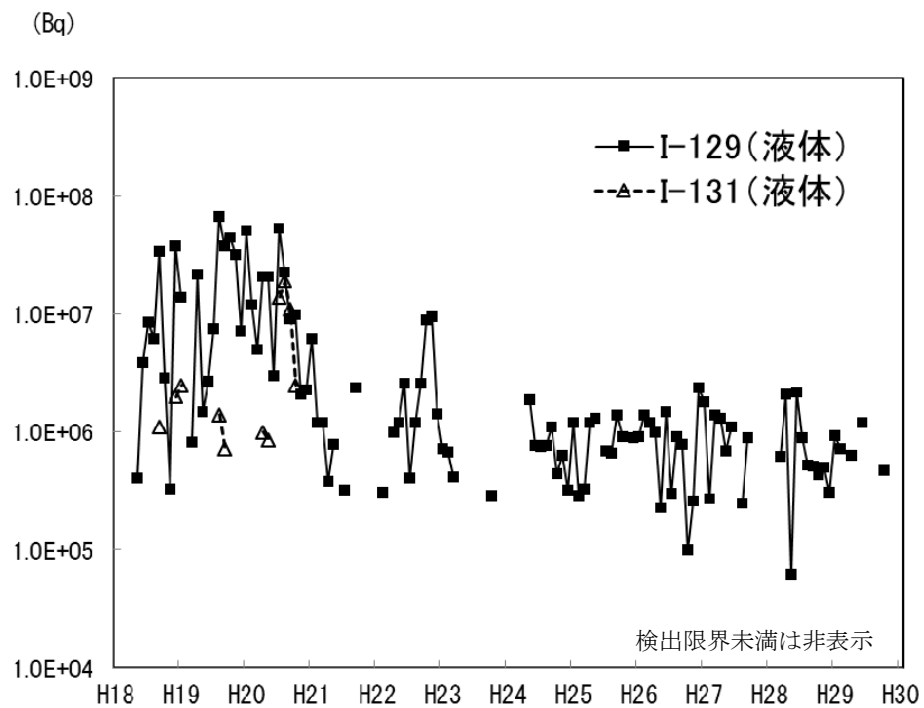
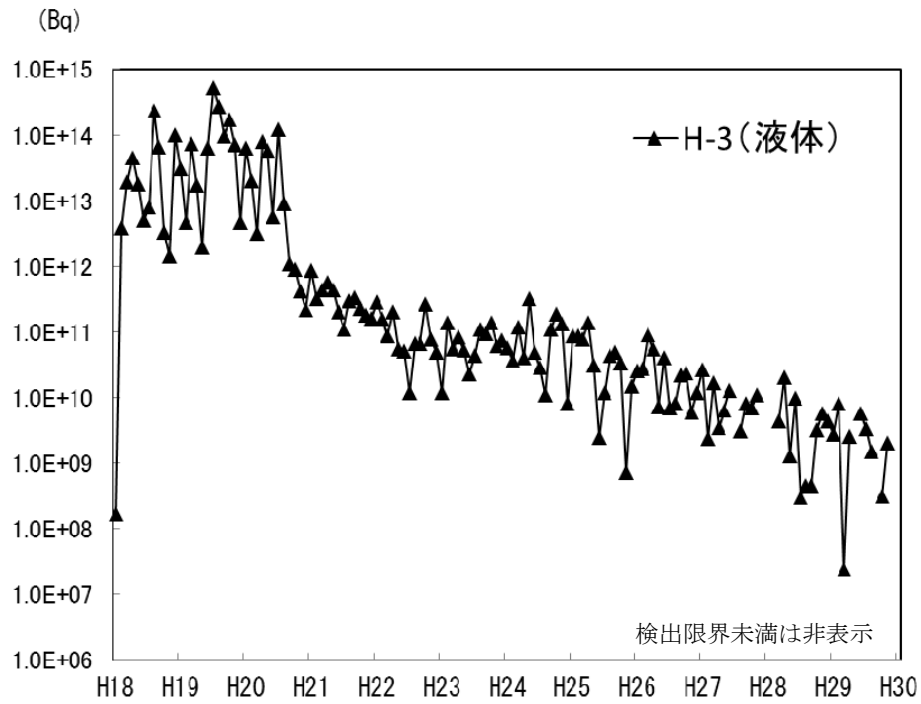


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成30年3月)

4. 調査結果

4.1 トリチウム

牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表2及び図5に示す。牛乳についてはTFWTで検出限界以下～0.37 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.42 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.24 Bq/Lであり、牛乳及び飲料水ともにこれまでの測定値の範囲内であった。

表2 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（平成29年度）

採取地点	採取月	平成29年度調査結果			(参考)		
					平成19～28年度 調査結果	平成22～ 28年度 調査結果	
		牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)	牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)
	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT ^{※2} (Bq/L)		
六原 ^{※1}	4月	*	*	*	*～0.63	*～0.62	*～0.46
	7月	*	*	*			
	10月	*	*	*			
	1月	*	035±0.11	*			
横浜町	4月	*	0.34±0.11	*	*～0.51	*～0.70	*～0.48
	7月	*	0.42±0.13	*			
	10月	0.37±0.11	*	*			
	1月	*	*	*			
二又	4月	*	*	*	*～0.58	*～0.63	*～0.29
	7月	*	*	*			
	10月	*	*	*			
	1月	*	*	*			
豊原	4月	*	*	0.24±0.07	*～0.73	*～0.77	*～0.59
	7月	*	*	*			
	10月	*	*	*			
	1月	*	*	*			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.29～0.38 Bq/L、非交換型OBTで0.31～0.41 Bq/L、飲料水で0.20～0.27 Bq/Lであった。

※1 平成25年度から調査開始

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

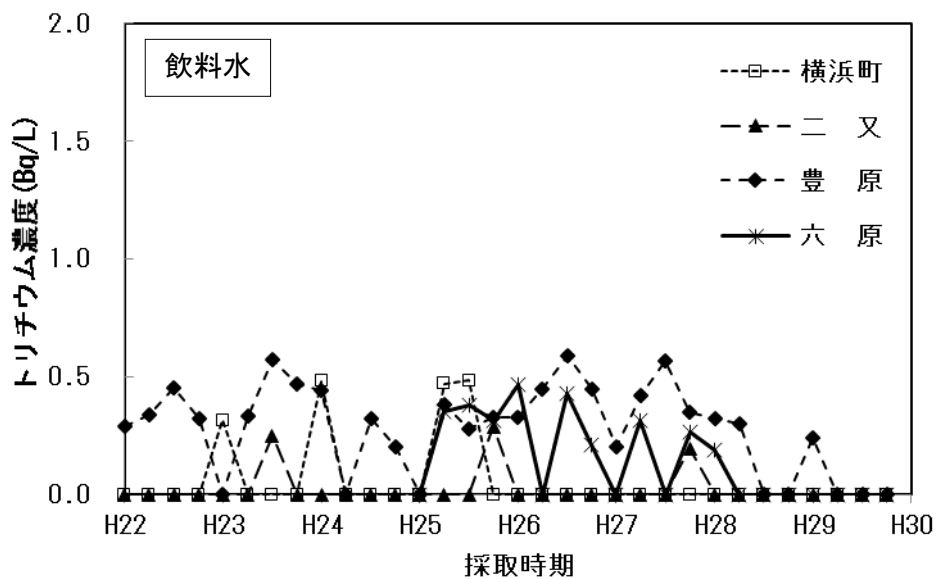
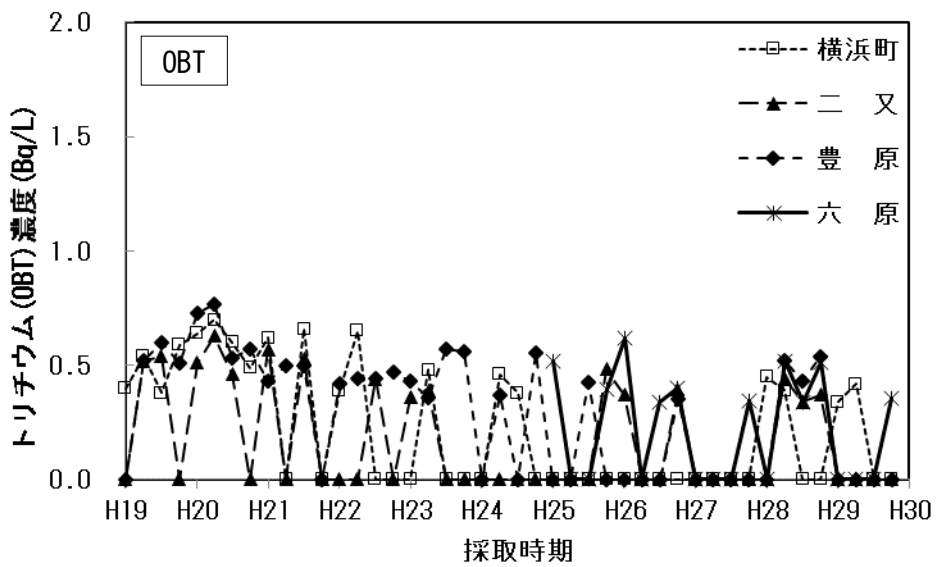
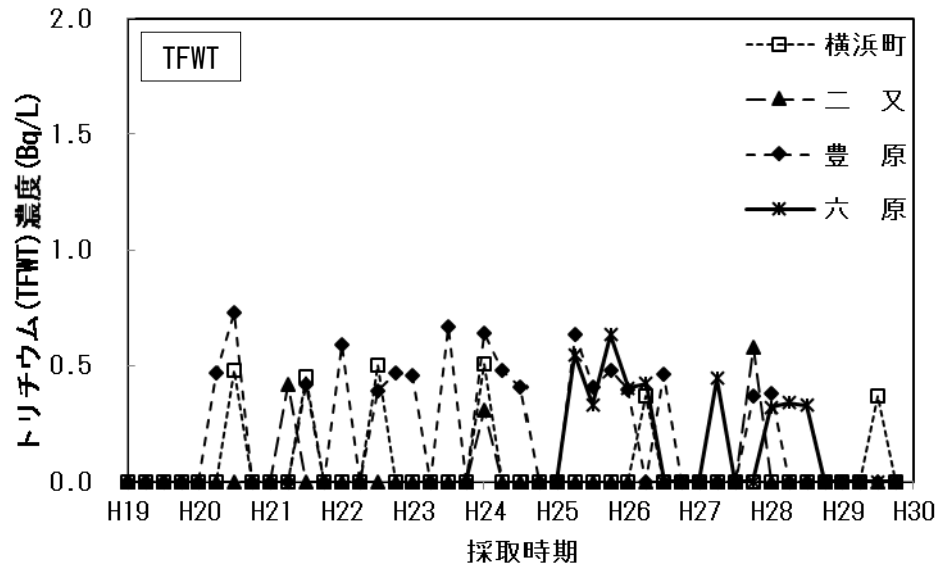


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

精米におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表3及び図6に示す。精米の非交換型OBTはすべて検出限界以下であった。

表3 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (平成29年度)

試料名	採取地点	採取月	平成29年度調査結果	
			非交換型 OBT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)
精米	千樽	10月	*	*~0.89
	野辺地町	10月	*	*~0.59
	二又① ^{※2}	10月	*	*~0.65
	二又②	10月	*	*~1.0
	戸鎖	10月	*	*~0.66
	平沼 ^{※3}	10月	*	*

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、0.37~0.41 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20年度から調査開始

※3 平成25年度から調査開始

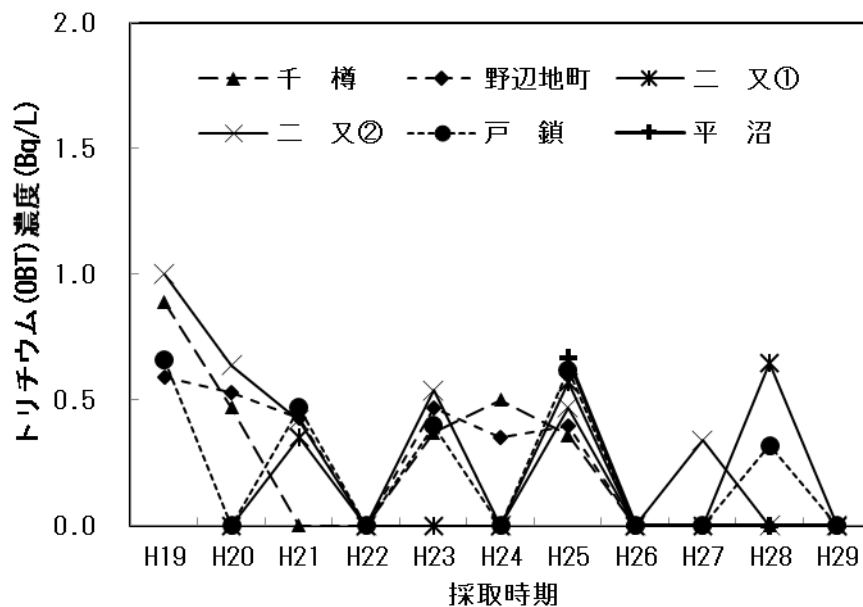


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

野菜におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表4及び図7に示す。野菜についてはTFWTで検出限界以下～0.86 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.56 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点もあるが、全体的な傾向としては明確でない。

なお、陸上試料である牛乳(原乳)、精米及び野菜のトリチウム濃度は、近年の大気及び雨水中トリチウム濃度*と同程度であった。東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化を図8に示す。大気中核実験の影響により、降水中のトリチウム濃度は1960年台には100 Bq/Lを超えていたが、その後はゆるやかに減少し、現在は1 Bq/Lを下回る水準である⁶⁾⁷⁾。

※ 青森県実施の環境放射線モニタリング(平成20～29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～1.0 Bq/L

雨水：検出限界(0.22～0.36 Bq/L)以下～1.2 Bq/L

表4 野菜のトリチウム(TFWT、OBT)濃度(平成29年度)

試料名	採取地点	採取月	平成29年度調査結果		(参考)平成19～28年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT* (Bq/L)
ハクサイ	出戸	10月	0.55±0.12	*	*～0.69	*～0.80
	千樽	10月	0.43±0.11	0.49±0.13	*～0.89	*～0.68
キャベツ	横浜町	10月	0.63±0.12	0.37±0.11	*～0.94	*～1.2
ダイコン	出戸	10月	*	*	*～0.58	*～0.68
バレイショ	尾駸	8月	0.86±0.11	*	0.41～0.88	*～0.84
ナガイモ	東北町	12月	*	0.56±0.13	*～0.67	*～0.62
	平沼	11月	0.39±0.10	*	*～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。なお検出限界は、TFWTで0.30～0.34 Bq/L、OBTで0.32～0.41 Bq/Lであった。

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

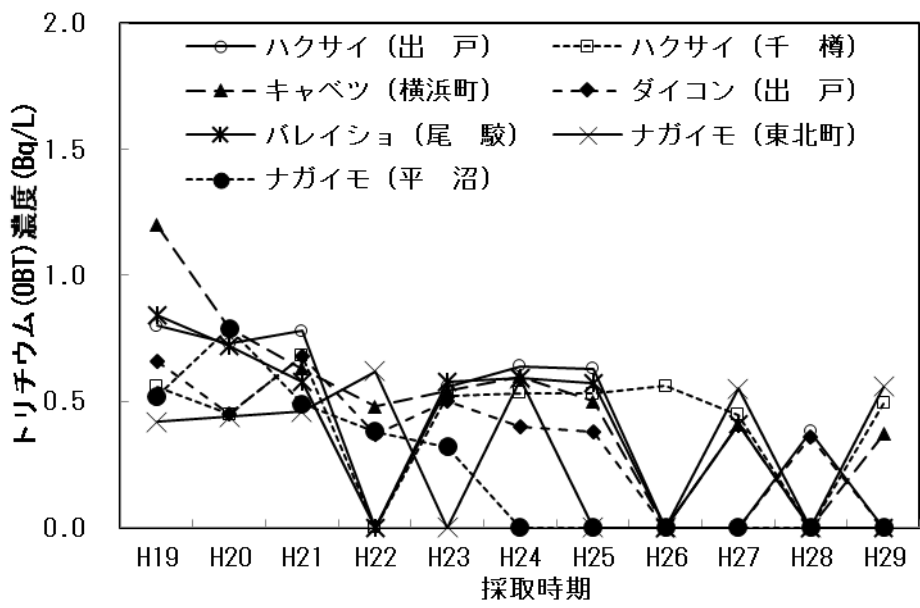
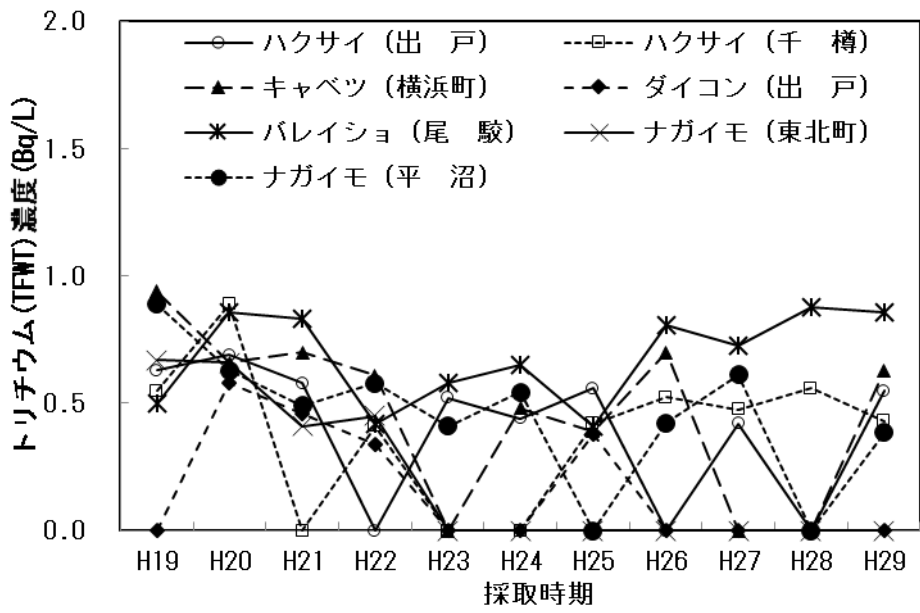


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化
 ※検出限界以下は0としてプロットした。

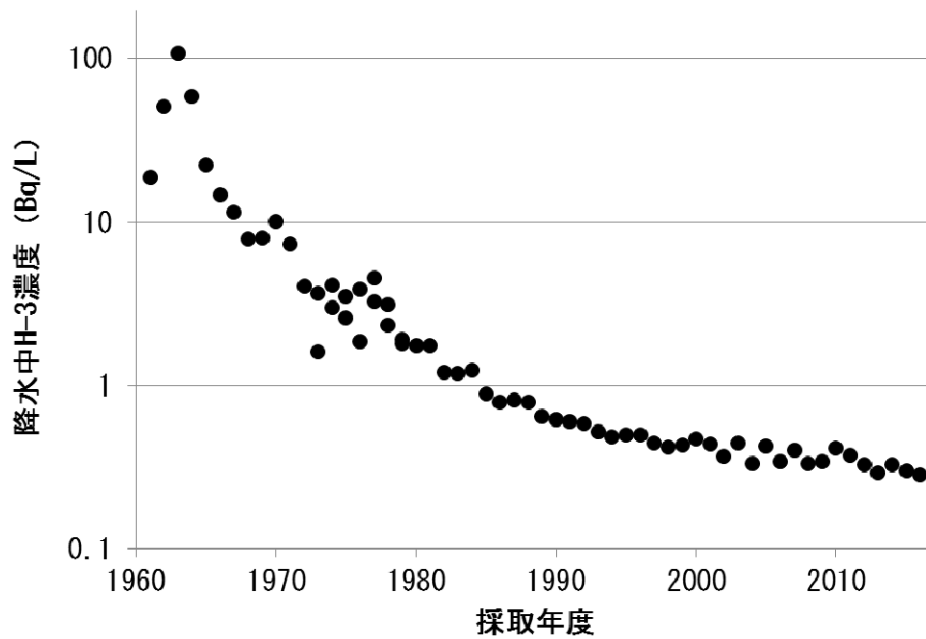


図8 東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・引用元、測定年度及び測定地点は以下のとおり。
- (国研)量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所
環境中のトリチウム測定調査データベース
「環境中トリチウム-降水測定データ」
- 1961～1979年度 東京・気象庁
- 1973～1979年度 千葉市稲毛区穴川
- 1979～2007年度 千葉市稲毛区山王町
- (公財)日本分析センター
環境放射線データベース
「身のまわりなどの一般環境」
- 1.調査対象：大気
- 2.調査年度：2007年度～
- 3.調査地域：千葉
- 4.調査カテゴリー：降下物
- 5.調査試料：月間降下物
- 6.調査核種：H-3
- 2007～2016年度 千葉市稲毛区山王町

海洋試料である魚類（ヒラメ等）の測定結果を表5及び図9に示す。TFWTは検出限界以下～0.34 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比べ低い値であった。平成21年度から調査を開始した非交換型OBTについては、検出限界以下～0.38 Bq/Lであり、平成24年度まで検出限界以下であったが、平成25～29年度と続けて、検出限界を超える試料が出ている。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1～0.2 Bq/L程度と報告されている⁸⁾。

平成27年度から調査を開始した海藻類（コンブ）の測定結果を表6に示す。TFWTは検出限界以下、非交換型OBTは検出限界以下～0.42 Bq/Lであった。

表5 魚類（ヒラメ等）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成29年度）

試料名	採取地点	採取月	平成29年度調査結果		(参考)平成19～28年度調査結果		
			TFWT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)
魚類 (ヒラメ等)	六ヶ所村 前面海域①	6月	*	*	*～3.3	*～1.4	*～0.38
		8月	*	*			
		10月	0.34±0.11	*			
		12月	*	*			
	六ヶ所村 前面海域②	6月	*	0.38±0.11	*～0.46	*～0.77	*～0.49
		8月	*	*			
		10月	*	*			
		2月	*	*			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.30～0.41 Bq/L、非交換型OBTで0.33～0.41 Bq/Lであった。

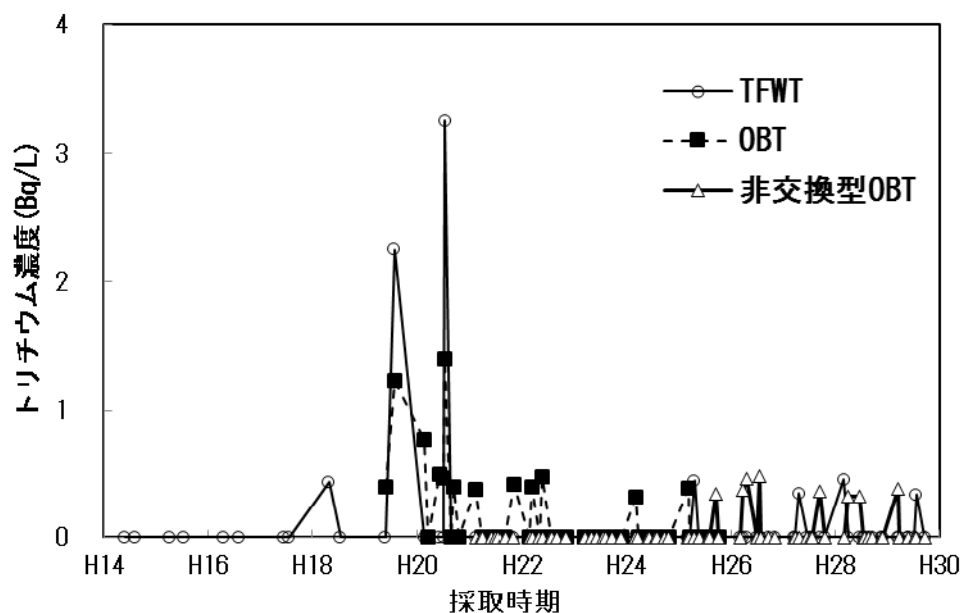


図9 魚類（ヒラメ）におけるトリチウム濃度（TFWT、OBT、非交換型OBT）の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

※平成18年度以前は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

表 6 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成 29 年度）

試料名	採取地点	採取月	平成 29 年度調査結果		平成 27、28 年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	9 月	*	0.42±0.14	*	*、0.39
		10 月	*	*		

- 測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWT で 0.29～0.34 Bq/L、非交換型 OBT で 0.32～0.41 Bq/L であった。

4.2 C-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物のC-14比放射能の測定結果は表7に示すとおり、精米が0.229～0.235 Bq/g 炭素、葉菜が0.228～0.233 Bq/g 炭素、根菜・いも類が0.225～0.232 Bq/g 炭素であった。

図10に環境放射線モニタリングで測定しているこれらの試料のC-14比放射能の推移を示す。C-14のモニタリングを開始した平成7年度から平成18年度までC-14比放射能には減少傾向が認められている。大気圏内核実験によって増加したC-14は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。アクティブ試験の影響が認められなかった平成7年度から平成18年度及び平成22年度から平成29年度までの期間に得られたC-14比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値0.228 Bq/g 炭素⁹⁾を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源のC-14の半減時間を求めると8.5年となり、これは府馬ら¹⁰⁾による核実験起源のC-14の1963年から1976年までの半減時間9.0年、1984年から2000年までの半減時間10.3年とほぼ一致した。

また、平成7年度から平成18年度及び平成22年度から平成29年度まで年度ごとに測定値の変動係数を算出し、その平均値を求めた。先に得られた減衰式と変動係数から当該期間の各年度における比放射能の推定値と変動幅(3σ)を求め、これらを用い施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推移を推定し、図に示した。平成29年度の測定値には、すべての試料において平成19及び20年度のような高い値がみられず、施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推定値±3σの範囲内にあった。

表7 農産物のC-14比放射能(平成29年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	H29年度調査結果	(参考) H19～28年度
				(Bq/g 炭素)	調査結果
				(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
米	精米	千 樽	10月	0.231 ± 0.002	0.229 ~ 0.248
		野辺地町	10月	0.233 ± 0.002	0.229 ~ 0.249
		二又① ^{※1}	10月	0.229 ± 0.002	0.230 ~ 0.241
		二又②	10月	0.233 ± 0.003	0.229 ~ 0.251
		戸 鎖	10月	0.235 ± 0.003	0.231 ~ 0.255
		平 沼 ^{※2}	10月	0.233 ± 0.003	0.232 ~ 0.234
葉菜	ハクサイ	出 戸	10月	0.229 ± 0.002	0.227 ~ 0.245
		千 樽	10月	0.233 ± 0.003	0.230 ~ 0.260
	キャベツ	横浜町	10月	0.228 ± 0.002	0.227 ~ 0.267
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	10月	0.231 ± 0.002	0.228 ~ 0.239
	バレイショ	尾 駁	8月	0.225 ± 0.003	0.225 ~ 0.244
	ナガイモ	東北町	11月	0.229 ± 0.002	0.225 ~ 0.243
		平 沼	11月	0.232 ± 0.003	0.230 ~ 0.258

※1 平成20年度から調査開始

※2 平成25年度から調査開始

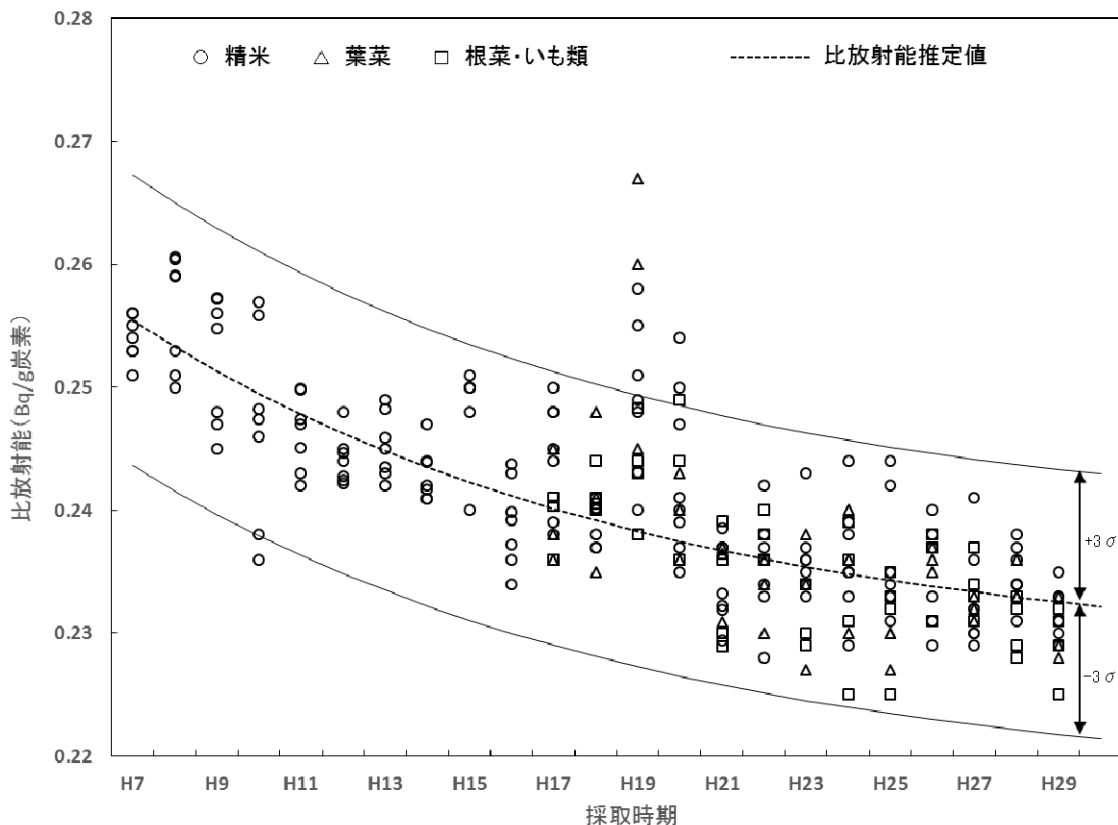


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

炭素-14 比放射能推定値及び変動幅の算出方法

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

F_c : フォールアウト寄与分の比放射能計算値 (Bq/g 炭素)。平成 7 年度からの経過年数 t との関係を次式のとおりとし、平成 7~18 年度及び平成 22~29 年度の測定値から自然平衡レベルを差し引いた値を用いて回帰分析を行い、定数 A 及び λ を求めた。

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

A : 平成 7 年度におけるフォールアウト寄与分の比放射能計算値 (Bq/g 炭素) 0.0275

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

T : フォールアウト起源の C-14 の環境における半減期計算値 (年) 8.48 (標準誤差 0.40)

t : 平成 7 年度からの経過年数 (年)

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

変動係数: 平成 7~18 年度及び平成 22~29 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

牛乳の C-14 比放射能の測定結果は表 8 に示すとおり、0.227~0.242 Bq/g 炭素であった。図 11 に牛乳の C-14 比放射能の推移を示す。牛乳についても参考として農産物の値から求めた比放射能の推定値と変動幅を併せて記載した*。牛乳においても、図 10 に示す農産物と同様に平成 19 及び 20 年度は高い値がみられている。平成 29 年度の測定値は、横浜町の 10 月採取分及び 1 月採取分並びに二又の 10 月採取分において平成 19~28 年度の測定値を下回ったが、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。

* 農産物が成長の過程で大気中の C-14 を取り込むのに対し、牛乳中の C-14 は飼料に由来するものであり、環境における C-14 濃度の影響は異なると考えられる。

表 8 牛乳の C-14 比放射能 (平成 29 年度)

試料名	採取地点	採取月	H29 年度調査結果	(参考) H19~28 年度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原*	4 月	0.234 ± 0.003	0.230 ~ 0.241
		7 月	0.239 ± 0.003	
		10 月	0.238 ± 0.003	
		1 月	0.236 ± 0.003	
	横浜町	4 月	0.232 ± 0.002	0.232 ~ 0.248
		7 月	0.234 ± 0.002	
		10 月	0.230 ± 0.002	
		1 月	0.229 ± 0.002	
	二 又	4 月	0.233 ± 0.002	0.230 ~ 0.262
		7 月	0.242 ± 0.003	
		10 月	0.227 ± 0.002	
		1 月	0.241 ± 0.003	
	豊 原	4 月	0.233 ± 0.003	0.231 ~ 0.266
		7 月	0.238 ± 0.003	
		10 月	0.236 ± 0.003	
		1 月	0.236 ± 0.003	

※ 平成 25 年度から調査開始

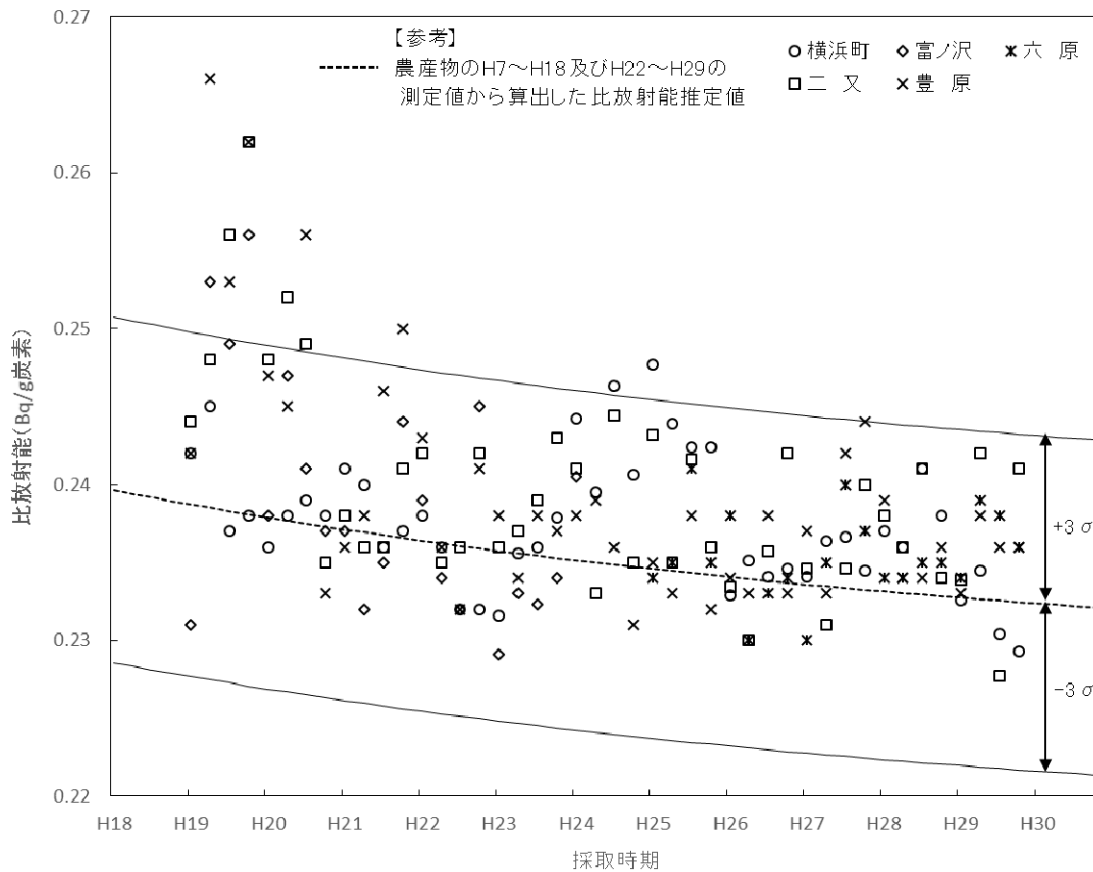


図 11 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

4.3 I-129 及び I-131

環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比を表 9 に、その経年変化を図 12 に示す。葉菜類については、I-129 濃度は $4.8 \times 10^{-8} \sim 1.4 \times 10^{-7}$ Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は $1.1 \times 10^{-9} \sim 3.6 \times 10^{-9}$ 、海藻類については、I-129 濃度は 1.4×10^{-4} 及び 1.7×10^{-4} Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は 7.0×10^{-11} であり、平成 19 年度以降、全体として低下傾向が見られるが、近年は横ばいで推移している。

I-129 の環境への放出量については、大気中核実験によるものが 57 kg であるのに対し、仏国 La Hague 及び英国 Sellafield の 2 つの再処理施設からの 2007 年までの放出量は、それぞれ海洋に 3800 kg 及び 1600 kg、大気中に 75 kg 及び 180 kg であり、再処理施設からの放出によるものが大部分を占める¹¹⁾。I-129/I-127 原子数比については、大気圏内核実験後の環境において、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$ 程度と報告されている¹²⁾。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の I-129/I-127 原子数比は、これらと同程度であった。

I-131 は、すべての試料において検出限界以下であった。

表 9 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比 (平成 29 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 29 年度調査結果		(参考) 平成 19~28 年度調査結果	
			¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比
ハクサイ	出戸	10 月	1.1×10^{-7} $\pm 0.15 \times 10^{-7}$	1.1×10^{-9}	3.8×10^{-8} $\sim 1.7 \times 10^{-5}$	8.6×10^{-10} $\sim 4.9 \times 10^{-7}$
	千樽	10 月	1.4×10^{-7} $\pm 1.7 \times 10^{-8}$	3.6×10^{-9}	6.6×10^{-8} $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	2.8×10^{-9} $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10 月	4.8×10^{-8} $\pm 1.3 \times 10^{-8}$	2.9×10^{-9}	4.0×10^{-8} $\sim 1.2 \times 10^{-5}$	1.5×10^{-9} $\sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	9 月	1.7×10^{-4} $\pm 6.0 \times 10^{-6}$	7.0×10^{-11}	8.5×10^{-5}	4.6×10^{-11}
		10 月	1.4×10^{-4} $\pm 0.05 \times 10^{-4}$	7.0×10^{-11}	$\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$\sim 9.1 \times 10^{-10}$

表 10 環境試料中の I-131 濃度 (平成 29 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 29 年度調査結果	(参考) 平成 20~28 年度調査結果
			(Bq/kg 生)	(Bq/kg 生)
ハクサイ	出戸	10 月	*	*
	千樽	10 月	*	*
キャベツ	横浜町	10 月	*	*
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	9 月	*	*
		10 月	*	*

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、0.058 ~ 0.20 Bq/kg 生であった。

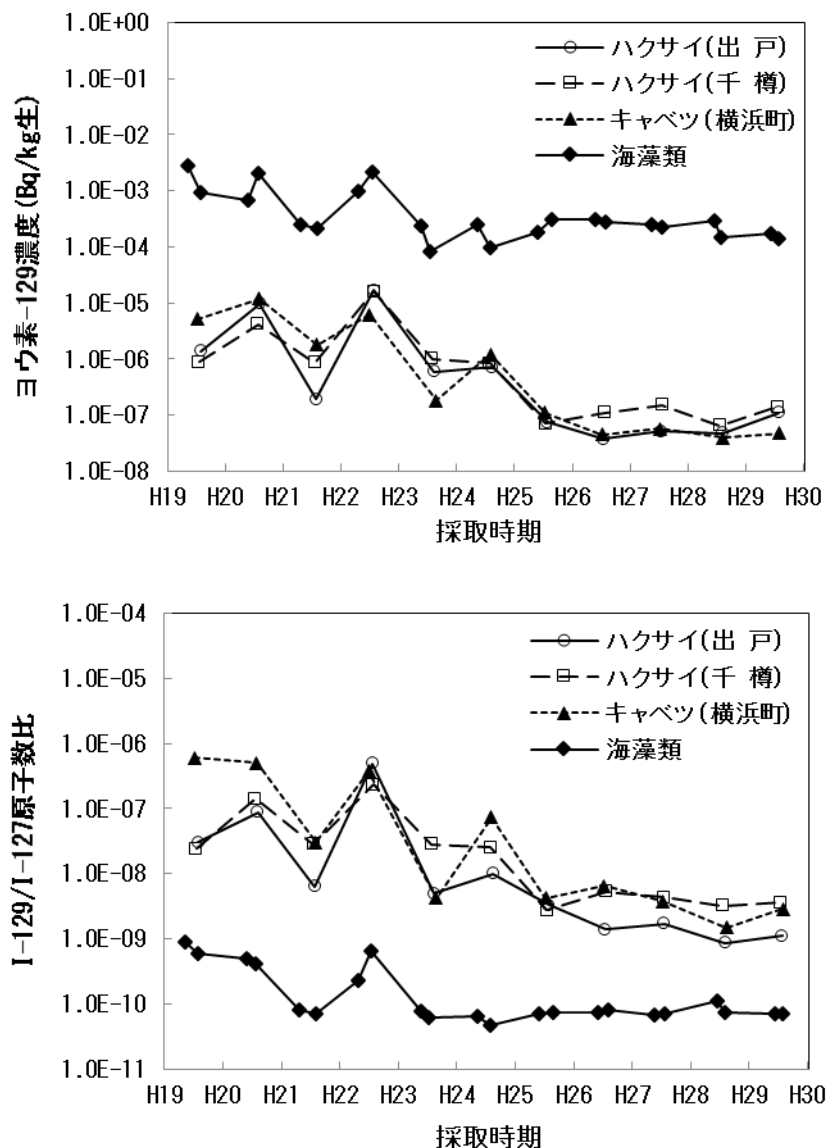


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

平成 29 年度の調査において、陸上試料中トリチウムについては、近年の大气及び雨水中トリチウム濃度と同程度であり、全体として、平成 19 及び 20 年度より低めであった。また、海洋試料である魚類では、TFWT では検出限界を超える試料が 1 試料あったが、他はすべて検出限界以下であった。一方、平成 21 年度から調査を開始した魚類の非交換型 OBT については、平成 24 年度まで検出限界以下であったが、平成 25～29 年度と続けて、検出限界を超える試料があった。C-14 比放射能は、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、アクティブ試験の影響が認められなかった期間の経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。I-129 は、葉菜類、海藻類ともに I-129/I-127 原子数比が大气圏内核実験後のバックグラウンドレベルと同程度であり、平成 19 及び 20 年度より低下傾向にあった。I-131 については、すべての試料において検出限界以下であった。

文 献

- 1) 青森県：環境放射線モニタリング（平成 21 年 4 月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 9 トリチウム分析法（平成 14 年）
- 3) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 25 放射性炭素分析法（平成 5 年）
- 4) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 32 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法（平成 16 年）
- 5) 文部科学省：放射能測定法シリーズ 4 放射性ヨウ素分析法（平成 8 年改訂）
- 6) (国研) 量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所
：環境中のトリチウム測定調査データベース
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html>（最終アクセス：平成 29 年 9 月 15 日）
- 7) (公財)日本分析センター：環境放射線データベース
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/>（最終アクセス：平成 31 年 3 月 1 日）
- 8) 中野政尚、國分祐司、武石稔：東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの海水中濃度及び拡散状況, 保健物理, **44**(1), 60~65(2009)
- 9) Y. Inoue and T. Iwakura : The long-term trend of carbon-14 level in Japan, *Proceedings of Asia Congress on Radiation Protection*, 332-335, Beijing, China(1993)
- 10) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、樫田義彦、一政祐輔：1990 年代の日本における ^{14}C の環境バックグラウンドレベル, *RADIOSOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 11) Tania Jabbar, Gabriele Wallner, Peter Steiber : A review on ^{129}I analysis in air, *Journal of Environmental Radioactivity*, **126**, 45-54 (2013)
- 12) Xiaolin Hou : Application of ^{129}I as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)

II 学会発表等要旨

走行サーベイによる測定値の地上高1 m 値への換算 — 詳細検討とこれを用いた青森県全域調査結果の検討 —

鈴木将文 佐々木 守*¹ 菊池浩司
保健物理 53 巻 4 号 (2018)

サーベーカーによる測定とサーベイメータの測定を同じ場所で複数地点行い、得られた回帰式から走行サーベイによる測定値をサーベイメータによる地上高 1 m の空気吸収線量率に換算した。換算に当たり、それぞれの測定値の違いを要因別に詳細調査し、得られた調査結果を合成した式は、回帰式とほぼ一致した。

青森県全域を走行サーベイした測定値をサーベイメータによる地上高 1 m の空気吸収線量率に換算した値は 22 - 111 nGy/h であり、幾何平均値は 38 nGy/h であった。これは、ほかの青森県全域調査の値と大きな違いはなかった。

走行サーベイによる青森県全域の空気吸収線量率の分布図と地質図との比較を行った結果、空気吸収線量率の高い地域は花崗岩類、先第三系堆積岩類及び第三紀火山岩類の地域であり、空気吸収線量率の低い地域は第四紀火山の周辺地域であった。

県内全域の空気吸収線量率の幾何平均値から年間の実効線量を算出すると約 0.21 mSv/y と見積もられ、日本の大地からの放射線による実効線量 0.33 mSv/y に比べて低い値であった。

*1：現青森県環境生活部環境保全課

Ⅲ 平成 30 年度調査研究事業報告

青森県における大気中トリチウムの化学形別濃度調査

玉熊義久 神 俊雄

1. はじめに

トリチウム (T) は、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 (CH_3T 等) の3種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の200倍以上が環境中に放出され、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている¹⁾。

再処理施設から大気中へ放出されるトリチウムの化学形は、東海再処理施設主排気筒においては全トリチウムのうち約26%がHT (CH_3T 等を含む。) の化学形であったとの報告²⁾があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスをキャリアとして使用する方法³⁾⁴⁾が用いられている(以下「ガス添加法」という)。しかし、例えばモニタリングステーションのように、長期間採取状況を監視できない場所に対応するために、可燃性ガスの代わりにキャリアとして無トリチウム水を添加する加湿カラムを用いる方法(以下「加湿カラム法」という)が提案されている⁵⁾⁶⁾。

本調査では、平成16年度から加湿カラム法を用いた採取方法の検討を行っている。一方、公益財団法人環境科学技術研究所(以下「環境研」という)では、環境研敷地内において、ガス添加法を用いて大気試料を採取・測定^{7)~18)}しており、平成26年度以降、県の加湿カラム法の採取装置を環境研敷地内に設置して試料の並行採取を実施し、結果の比較検討を行っている。

平成29年度には、HT酸化用のPt触媒カラムの後で無トリチウム水を添加する装置(後加湿装置)を用いた場合、Pt触媒カラムにトリチウムが残留することが確認された。また、Pt触媒により酸化された後のHTを捕集するモレキュラーシーブカラム(HT捕集カラム)にも10%程度のトリチウムの残留が確認された。

平成30年度は、Pt触媒カラムの前で無トリチウム水を添加する装置(前加湿装置)を用いて環境研との並行採取を実施し、この試料採取方法の妥当性を検証した。また、Pt触媒カラムのHT酸化効率を評価したほか、HT捕集カラムへのトリチウムの残留の確認及び残留したトリチウムの除去方法について検討した。

2. 調査方法

2.1 採取装置

加湿カラム法による採取装置の概要を図1に示す。採取装置の終端に設置した真空ポンプ(DA-30D、ULVAC)で吸引し、大気を採取装置に導入する。入口側には、焼結金属製フィルターを設置し、大気の採取速度と総量はデジタル流量計で測定する。

HTO については、予め電子除湿器（出口露点 1~3°C）により一部を捕集した後、モレキュラーシーブ 3A を充填した HTO 捕集カラムに捕集する。

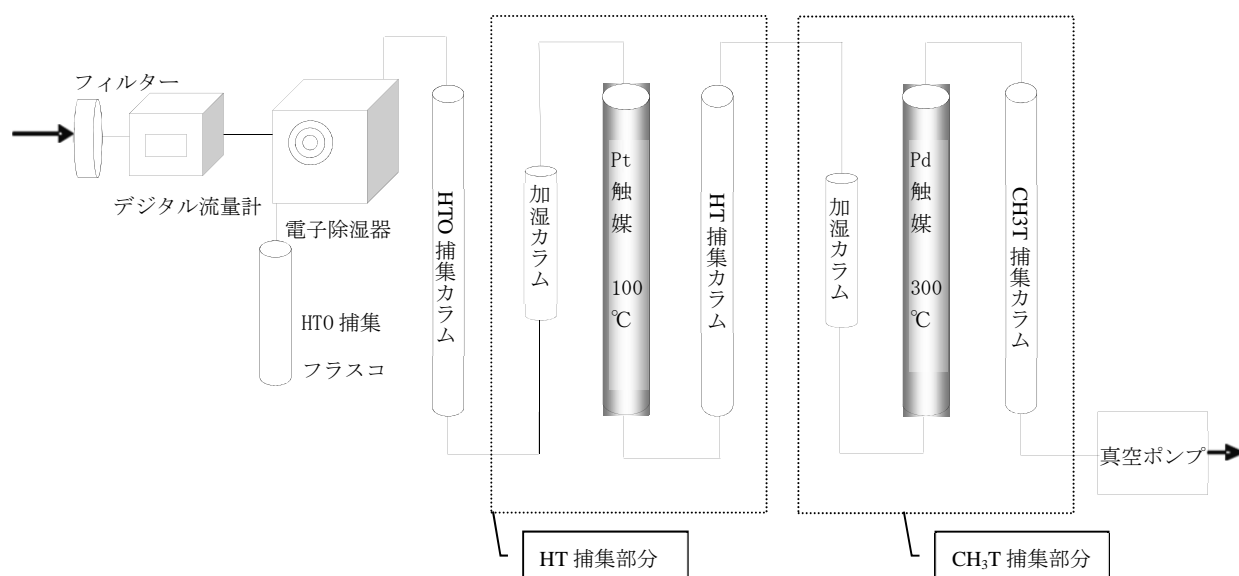


図 1 加湿カラム法による採取装置の概要

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

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

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

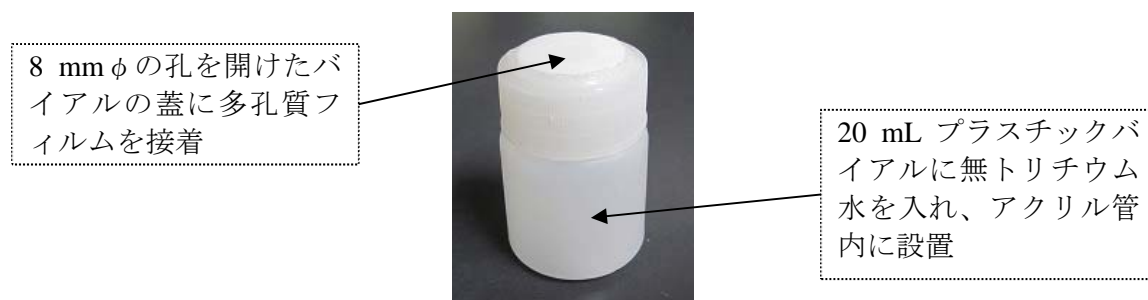


図 2 加湿バイアル外観

2.2 試料採取

(1) 環境研との並行採取

ア 採取条件

環境研が用いているガス添加法による採取装置¹⁷⁾と並行採取を行った。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：約1ヵ月間
- ・大気採取流量：1.5 L/min^{*1}
- ・大気採取量：約54 m³ (4月)、約65 m³ (5月、6月)

イ 採取地点

環境研構内

ウ 採取時期

平成30年4月(4/2~5/1)^{*2}、5月(5/1~5/31)、6月(5/31~7/2)

*1 環境研の採取流量は2.0 L/min

*2 4/13~4/16の間施設停電のため採取を中断した。

(2) HT 酸化効率の再確認

並行採取に用いた採取装置にHT捕集部をさらに追加して2段とした採取装置(図3)により、同時にHTO、HT及びCH₃Tの採取を行った。

ア 採取条件

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

イ 採取地点

青森市駐在計測室

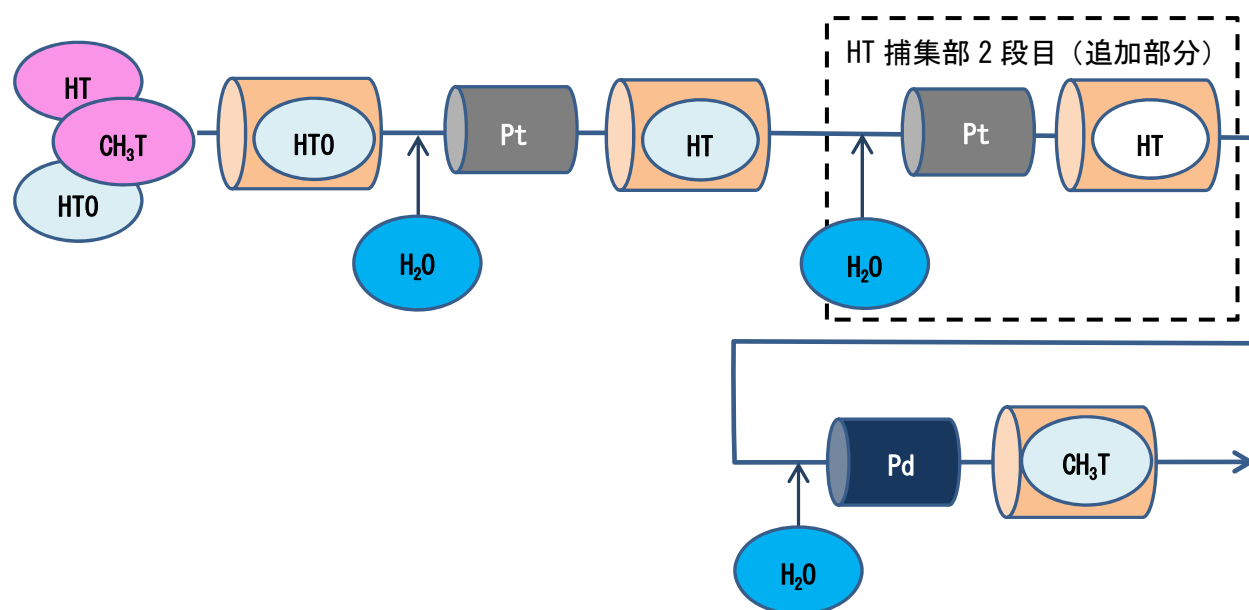


図3 HT 捕集部を二重化した採取装置略図

表 1 青森市駐在計測室での採取条件等

採取期間	日数	大気採取流量	採取量
8月 (8/7~9/4)	28日間	1.5 L/min	60 m ³
9月 (9/7~10/5)	28日間	1.1~3.0 L/min	56 m ³
10月 (10/17~11/7)	21日間	2.0 L/min	60 m ³

(3) Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の再確認

(2)でHT酸化に用いたPt触媒カラム(1段目)について、捕集終了直後に装置から取り外して行った。

(4) HT 捕集カラムへのトリチウム残留の確認及び除去方法の検討

環境研で5月及び6月に並行採取を行ったHT捕集カラム2本に加えて、(2)で採取したHT捕集カラム(1段目のみ)3本の計5本で行った。

2.3 分析方法

(1) 並行採取によるガス添加法との測定値の比較

試料採取後のモレキュラーシーブカラムは窒素ガスを流しながら400℃に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却管により冷却し、試料水として回収した。HTOについては、電子除湿器による捕集水とモレキュラーシーブカラムによる捕集水を混合して試料水とした。

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蒸留した後、試料水10 mLまたは50 mLに液体シンチレータ(Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan)を同量混合し、測定試料とした。試料水が10 mLに満たない場合は、無トリチウム水を加えて10 mLとした。測定容器は、試料水の量に応じて容量20 mLの低拡散ポリエチレンバイアル(6000477、Perkin Elmer Japan)又は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(LSC-LB5(HTO)又はLSC-LB7(HT、CH₃T)、共に日立製作所)により行い、測定時間は、4,000分(50分×20回×4サイクル)とした。

試料水中のトリチウム測定結果及び大気採取量をもとにHTO、HT及びCH₃Tの大気中濃度を算出した。

(2) HT 酸化効率の再確認

(1)と同様、試料採取後のモレキュラーシーブカラムは窒素ガスを流しながら400℃に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却管により冷却し、試料水として回収した。

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蒸留した後、試料水10 mLに液体シンチレータを同量混合し、測定試料とした。試料水が10 mLに満たない場合は、無トリチウム水を加えて10 mLとした。測定容器は、容量20 mLの低拡散ポリエチレンバイアルを用いた。測定は液体シンチレーション計数装置(LSC-LB5又はLSC-LB7、共に日立製作所)により行い、測定時間は、4,000分(50分×20回×4サイクル)とした。

HT捕集カラム1段目及び2段目のトリチウム量をもとに1段目の酸化効率を算出した。

(3) Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の再確認

Pt 触媒カラムの上流側に無トリチウム水 10 mL 程度を入れたバブラーを設置し、下流側には無トリチウム水 11 mL 程度を入れたバブラー（トラップ）を 2 段設置した。Pt 触媒カラムを 100°C に加熱し、上流側から窒素ガスを流しながら 1 時間程度無トリチウム水蒸気を供給して、下流側でトラップした水を試料とした。

1 段目、2 段目それぞれのトラップ水 10 mL に液体シンチレータを同量混合し、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を用いた。測定は液体シンチレーション計数装置（LSC-LB7、日立製作所）により行い、測定時間は、4,000 分（50 分×20 回×4 サイクル）とした。

試料水中のトリチウム測定結果及び試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。

(4) HT 捕集カラムへのトリチウム残留の確認及び除去方法の検討

ア 2.2(4)で採取した HT 捕集カラムについて、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して捕集水分を回収した後、カラムの上流側に無トリチウム水 10 mL 程度を入れたバブラーを 1 段、下流側に無トリチウム水 10 mL を入れたバブラー（トラップ）を 2 段設置した。HT 捕集カラムを 400°C に加熱し、1 時間程度窒素ガスを流しながら、無トリチウム水蒸気を供給して、下流側でトラップした水を試料とした。なお、無トリチウム水蒸気を供給時の窒素ガスの流量は、8 月分までは 190 mL/min、9 月分及び 10 月分は 300 mL/min とした。

トラップ水 10 mL に液体シンチレータを同量混合し、測定試料とした。トラップ水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアルを用いた。測定は液体シンチレーション計数装置（LSC-LB5 又は LSC-LB7、共に日立製作所）により行い、測定時間は、4,000 分（50 分×20 回×4 サイクル）とした。

試料水中のトリチウム測定結果及び試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。

イ アで用いたカラムについて、それぞれ無トリチウム水 12 mL を添加した。その後、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して捕集された水分を回収した。

添加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蒸留した後、試料水 10 mL に液体シンチレータを同量混合し、測定試料とした。試料水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアルを用いた。測定は液体シンチレーション計数装置（LSC-LB5 又は LSC-LB7、共に日立製作所）により行い、測定時間は、原則 4,000 分（50 分×20 回×4 サイクル）とした。

試料水中のトリチウム測定結果及び試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。

3. 調査結果

3.1 並行採取によるガス添加法との比較

平成 30 年 4 月、5 月及び 6 月の期間、環境研構内において並行採取した試料の測定結果の比を図 4 に、また、HTO、HT 及び CH₃T 濃度のこれまでの並行採取における経時変化を図 5～7 に示す。今年度は、HT については、県の測定値が環境研より 1.5 倍程度高めとなっているが、平成 28 年度以降見られていた、測定値が一連の採取において最初が低く、最後が高い傾向は改善され

ている。CH₃Tについては、平成28年度以前よりも両機関の差が縮まったものの、まだ県の測定値が高めの傾向が見られている。

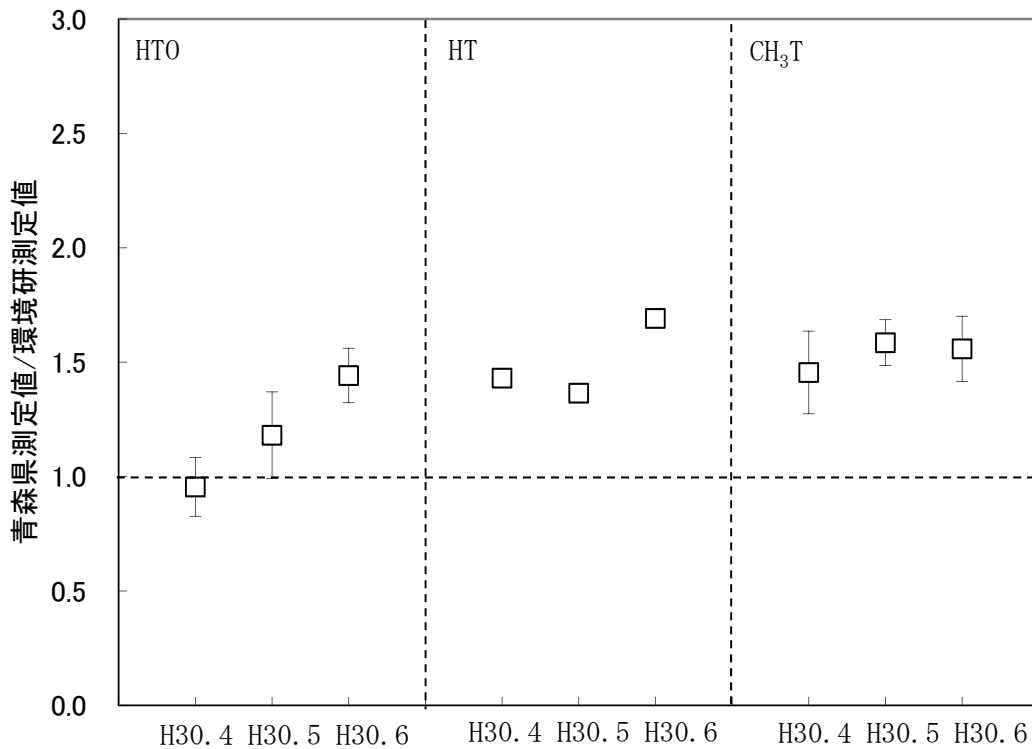


図4 並行採取による測定結果（県/環境研 県：加湿カラム法 環境研：ガス添加法）

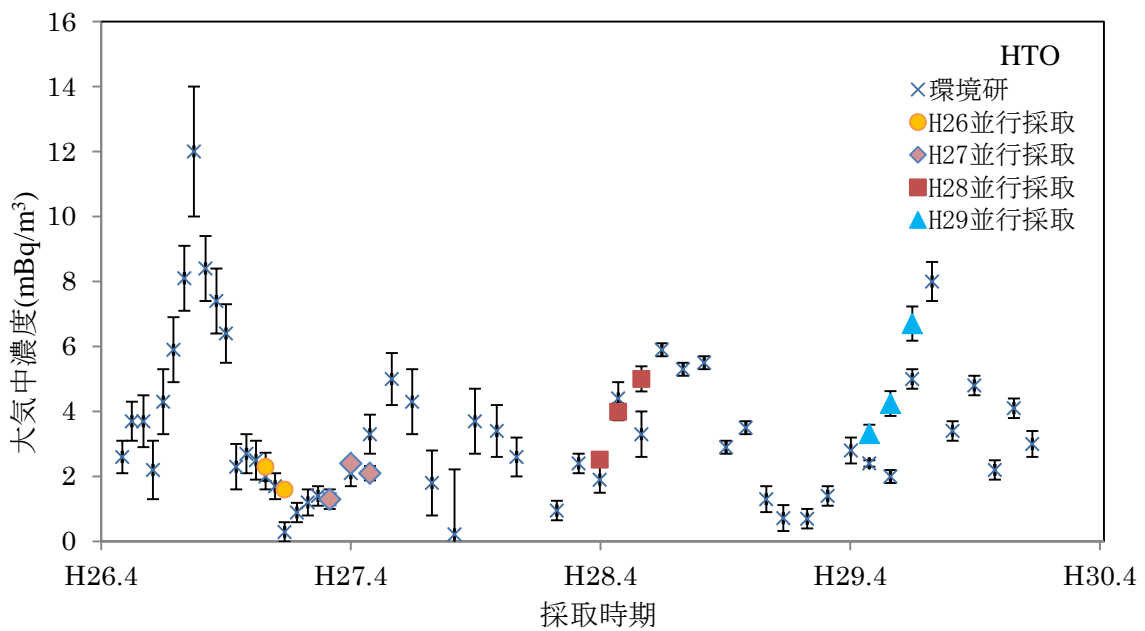


図5 並行採取におけるHTO濃度の経時変化

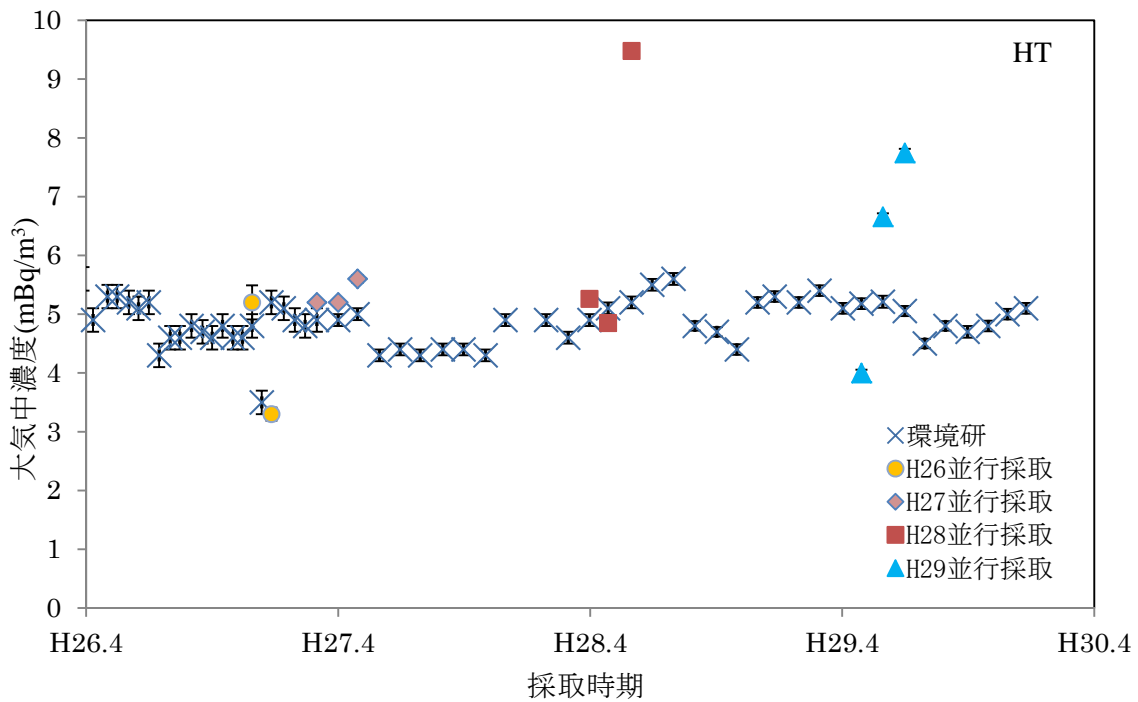


図6 HT 濃度の経時変化（県：加湿カラム法 環境研：ガス添加法）

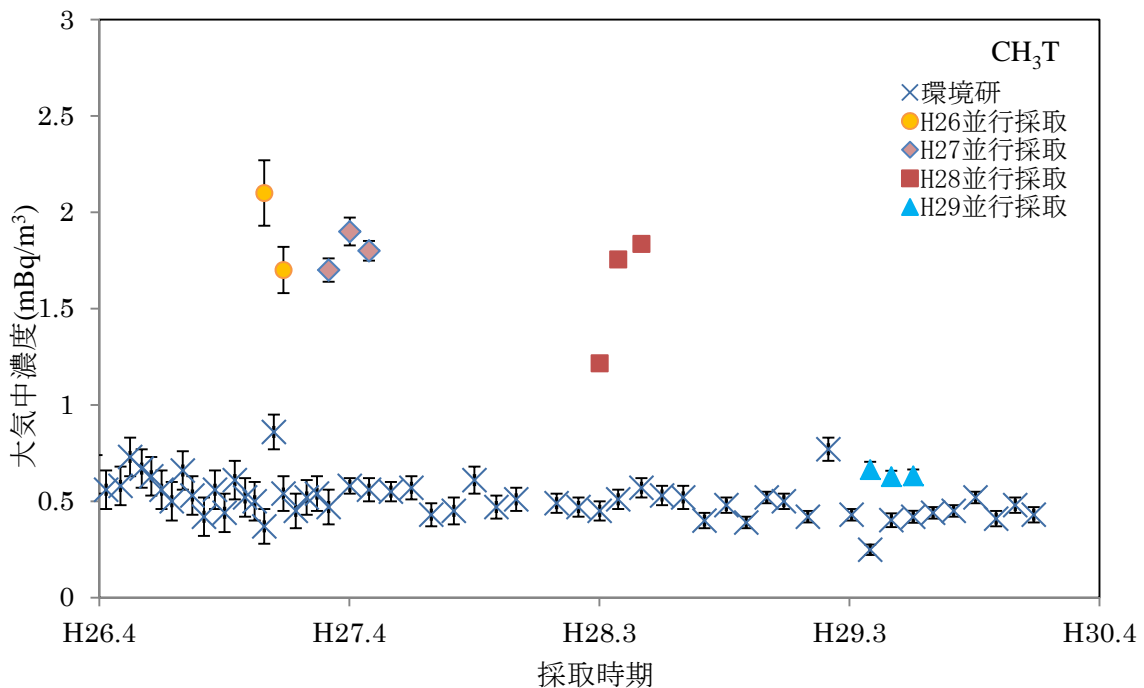


図7 CH₃T 濃度の経時変化（県：加湿カラム法 環境研：ガス添加法）

なお、5月分の試料については、5/21～31の期間、3本のHTO捕集カラムの2本目と3本目の間の接続部分でわずかにリークが発生しており、通常は水が捕集されない3本目のHTO捕集カラムに水が捕集されていたが、捕集量はモレキュラーシーブカラムの最大保持量に達しておらず、HT捕集カラムへの水蒸気（H₂O及びHTO）の混入は無いと考えられた。このため、捕集大気と

混入空気の絶対湿度は等しいとの仮定のもと、HTO 捕集カラム 3 本目の捕集水分量 (49.46 g) を大気中水分量 (8.581 g/m³) で除して求めた 5.764 m³ を混入空気量とし、5 月の HT 及び CH₃T に係る試料採取量は、装置最上流側に設置した積算流量計による採取量 (60.478 m³) にこの混入量を加え (66.242 m³)、大気中濃度を算出した。

3.2 HT 酸化効率の再確認

平成 28 年度に HT 捕集部を 2 段とした捕集装置により、1 段目の HT 酸化効率を評価したところであるが、当時の検討においては HT 酸化用の Pt 触媒にトリチウムが残留する後加湿装置を用いており、信頼性に乏しい。このため、前加湿方式で HT 捕集部を 2 段にした採取装置を用いて HT 酸化効率の再評価を行った。測定結果は表 3 のとおり。

表 3 HT 捕集部二重化装置による試料測定結果

試料	大気中濃度 (mBq/m ³)			トリチウム量 (Bq)		
8 月	HT1	6.62	± 0.063	0.397	± 0.0038	
	HT2	0.379	± 0.035	0.0227	± 0.0021	
	(CH ₃ T)	0.666	± 0.032	0.0399	± 0.0019	
9 月	HT1	7.17	± 0.071	0.402	± 0.0040	
	HT2	0.120	± 0.032	0.0067	± 0.0018	
	(CH ₃ T)	0.580	± 0.037	0.0325	± 0.0021	
10 月	HT1	6.88	± 0.065	0.416	± 0.0039	
	HT2	0.454	± 0.043	0.0275	± 0.0026	
	(CH ₃ T)	0.748	± 0.039	0.0453	± 0.0024	

* HTO は未測定、CH₃T は参考として掲載している

2 段目の HT 捕集部 (HT2) に捕集された試料からもトリチウムが検出されており、Pt 触媒 1 段で酸化されなかった HT が 2 段目で酸化され、捕集されたものと考えられる。HT1・HT2 の濃度から算出した 1 段目の Pt 触媒による HT の酸化効率は、8 月分が 94.6%、9 月分が 98.4%、10 月分が 93.8% だった。

HT の酸化効率は平成 28 年度よりは上昇しているが、まだ十分ではないことから、次年度は触媒カラムに入る前の空気を加熱する等してさらなる改善を図ることとする。

3.3 Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の再確認

表 4 に測定結果を示す。平成 29 年度には後加湿の採取装置では、Pt 触媒カラムに相当量のトリチウムが残留することが確認され、前加湿装置では残留が見られなかったが、前加湿装置での確認回数が少なかったため再確認したところ、今回も同様に、前加湿装置の Pt 触媒カラムに有意なトリチウムの残留は確認されなかった。

表4 Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の確認結果

前加湿	トラップ 1	トラップ 2
試料水量 (mL)	10.80	10.97
試料水中濃度 (Bq/L)	0.270 ± 0.187	0.047 ± 0.180
トリチウム量 (Bq)	0.0030 ± 0.0021	0.0005 ± 0.0020

3.4 HT 捕集カラムへのトリチウム残留の確認及び除去方法の検討

HT 捕集カラムに残留するトリチウムの除去について、2.3(4)ア及びイの方法により洗浄水を測定した結果を表5及び図8に示す。なお、トラップ2段目からは検出されていないため表は省略している。

平成29年度の検討においては、HT 捕集カラムには、捕集水として回収したトリチウム量に対して1割弱のトリチウムが残留しうること、また、無トリチウム水蒸気を1時間程度通気することによりこれを除去できることが確認されていた。しかし、今回の再検討ではHT 捕集カラムへのトリチウムの残留は確認されたが、水蒸気を供給するだけでは除去できず、その後に無トリチウム水を添加回収した試料水からもトリチウムが検出されていた。水蒸気供給でトラップに捕集されたトリチウム量は、捕集水として回収したトリチウム量に対して1~5%程度と少なかった。

また、9月及び10月分の試料では、水蒸気供給の際の窒素ガス流量を300 mL/minに上げているが、それでも完全には除去できなかった。

表5 HT 捕集カラムから回収されたトリチウム量

試料	試料水量 (mL)	試料水中濃度 (Bq/L)	トリチウム量 (Bq)	
H30.5月 並行	HT カラム捕集水	9.79	43.3 ± 0.448	0.424 ± 0.0044
	トラップ1段目	9.67	0.903 ± 0.189	0.0087 ± 0.0018
	水洗い*1	12	3.07 ± 0.449	0.0368 ± 0.0054
H30.6月 並行	HT カラム捕集水	10.13	47.3 ± 0.421	0.479 ± 0.0043
	トラップ1段目	9.55	0.470 ± 0.186	0.0045 ± 0.0018
	水洗い*2	12	2.07 ± 0.334	0.0248 ± 0.0040
H30.8月 青森	HT カラム捕集水	9.15	43.4 ± 0.413	0.397 ± 0.0038
	トラップ1段目	9.66	2.24 ± 0.159	0.0217 ± 0.0015
	水洗い	12	3.20 ± 0.170	0.0384 ± 0.0020
H30.9月 青森	HT カラム捕集水	14.12	28.5 ± 0.284	0.402 ± 0.0040
	トラップ1段目	9.71	1.12 ± 0.157	0.0109 ± 0.0015
	水洗い	12	1.76 ± 0.161	0.0211 ± 0.0019
H30.10月 青森	HT カラム捕集水	10.69	38.9 ± 0.367	0.416 ± 0.0039
	トラップ1段目	9.64	0.865 ± 0.199	0.0083 ± 0.0019
	水洗い	12	3.85 ± 0.210	0.0462 ± 0.0025

測定時間は4,000分であるが、水洗い*1及び水洗い*2についてはそれぞれの測定時間を2,000分及び1,000分とした。

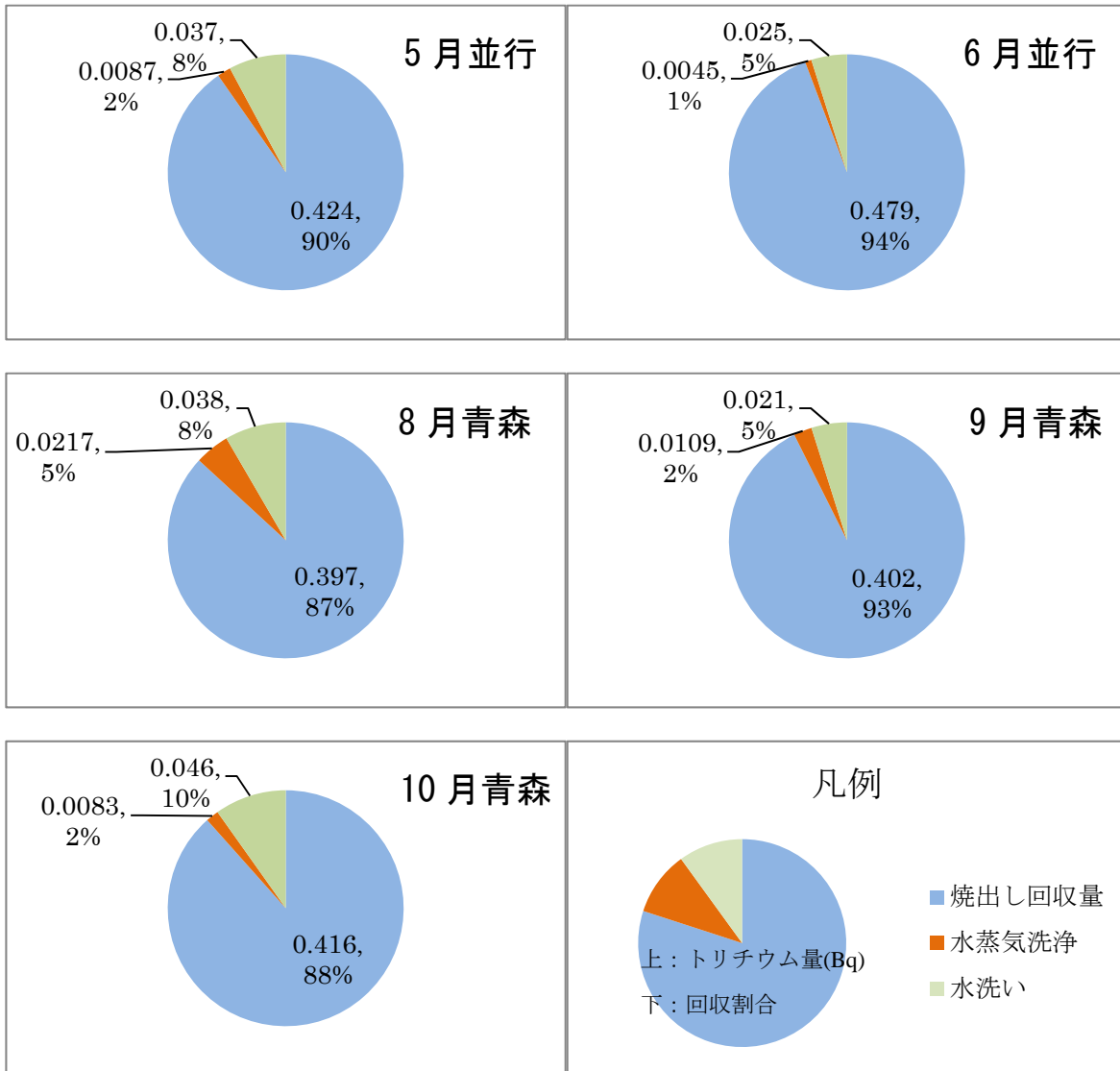


図8 HT 捕集カラムから回収されたトリチウム量

4. まとめ

- 1) 環境研との並行採取を実施したところ、これまでに比べると測定値のずれは改善されているが、HT、CH₃Tともに県の測定値の方が5割程度高い傾向が見られ、さらなる改善が必要である。
- 2) HT 捕集部を2段にした装置により採取したところ、2段目からもHTが検出され、1段目から1.6~6.2%程度の捕集漏れが確認された。捕集漏れがあると下流側のCH₃T測定値に影響を与えることから、HT酸化効率の改善を図ることとする。
- 3) Pt触媒カラムへのトリチウムの残留が起こらないことを確認し、前加湿装置の妥当性が再確認された。
- 4) 捕集水回収後のHT捕集カラムにトリチウムが残留することが再確認され、このトリチウムの除去について、無トリチウム水蒸気を通す方法だけでは完全にはできなかつたため、簡便な除去方法の検討を継続する。

文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, *Isotope News*, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of ^3H released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**,569-572(2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*, 416-420(2003)
- 4) Naofumi Akata, Hideki Kakiuchi, Nagayoshi Shima, Takashi Iyogi, Noriyuki Momoshima, Shun'ichi Hisamatsu : Tritium concentrations in the atmospheric environment at Rokkasho, Japan before the final testing of the spent nuclear fuel reprocessing plant, *Journal of Environmental Radioactivity*, **102**,837-842(2011)
- 5) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁: 核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中 ^3H 濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299(2006)
- 6) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓: 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323(2007)
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 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)
- 12) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 23 年度排出放射能環境移行調査報告書, 193(平成 24 年)
- 13) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 24 年度排出放射能環境移行調査報告書, 275(平成 25 年)
- 14) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 25 年度排出放射能環境移行調査報告書, 249(平成 26 年)
- 15) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 26 年度排出放射能環境移行調査報告書, 301(平成 27 年)
- 16) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 27 年度排出放射能環境移行調査報告書, 342(平成 28 年)
- 17) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 28 年度排出放射能環境動態調査報告書, 109(平成 29 年)
- 18) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 29 年度排出放射能環境動態調査報告書, 127(平成 30 年)

環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査 (平成30年度実施内容)

和田浩司 大山 勝 木村芳伸
東山愛生*¹ 沼山 聡*¹ 佐々木耕一*¹

1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成18年3月31日からアクティブ試験が行なわれており、Kr-85、トリチウム(H-3)、C-14及びI-129などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について(平成18年2月7日 青森県)」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成19年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、C-14及びI-129について調査を開始した。平成20年度からはI-131を追加し、平成21年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム(非交換型OBT)を追加、平成26年度からはOBTをすべて非交換型OBTとし、平成27年度からは海藻のTFWT・OBTを追加して実施している。平成29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30年度の調査計画と今後の進め方

平成30年度の調査計画を表1に示した。二又①の精米については生産者が作付けをやめたため平成29年度で調査を終了し、代替地点として室ノ久保を平成30年度調査計画に追加して調査した。また、出戸のハクサイについては不作により採取できなかったため欠測とした。その他については、平成29年度と同じ内容である。これらの調査結果については平成31年度にとりまとめることとしている。

*1：日本原燃株式会社

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 30 年度）

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			H-3		C-14	I-129・131
			TFWT	非交換型		
牛乳 (原乳)	横浜町	4	○	○	○	—
	二又		○	○	○	—
	豊原		○	○	○	—
	六原		○	○	○	—
精米	平沼	1	—	○	○	—
	千樽		—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	二又 ^{※1}		—	○	○	—
	戸鎖		—	○	○	—
	室ノ久保 ^{※2}		—	○	○	—
ハクサイ	出戸	1	欠測 ^{※3}	欠測 ^{※3}	欠測 ^{※3}	欠測 ^{※3}
	千樽		○	○	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	出戸		○	○	○	—
バレイショ	尾駸		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②		○	○	—	—
海藻類	六ヶ所村前面海域①	2	○	○	—	○

※1 平成 29 年度調査における“二又②”。

※2 平成 30 年度から調査開始。

※3 ハクサイ（出戸）については、不作により採取できなかったため、欠測とした。

ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

安積 潔 神 俊雄 木村芳伸

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実施要領」に基づき、環境試料（表土）中 I-129 の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素-129 分析法」¹⁾（以下、「ヨウ素-129 分析法」）の放射化学分析法（β線測定）により実施している。

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

迅速分析法の分析条件における検出限界値（分析目標レベル）はヨウ素-129 分析法に劣るが、供試量を増加させ、さらに、イオン-分子反応セルにより、安定ヨウ素の2水素化物イオン ($^{127}\text{IH}_2^{2+}$) 及びキャリアガス（アルゴン）に不純物として含まれる Xe-129 を除去する機構を備えた ICP 質量分析装置（DRC-ICP-MS）を用いることで、検出限界値を低減させることが可能であることから³⁾、最適な化学分離等の条件、装置による測定条件を確認し、環境放射線モニタリングにおける種々の環境試料への適用可能性を検討することとしている。

平成22年度のICP質量分析装置（パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e）整備以降、表土・葉菜・海藻中 I-129 の分析における検出限界値低減の検討を行ってきた。

平成30年度は、前年度に確認された葉菜中ヨウ素分析におけるヨウ素回収率低下の原因究明及び回収率向上に向けた検討を行った。

2. 調査方法

2.1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による Tomato leaves 中ヨウ素の測定

平成29年度の所報において、NIST SRM1547 peach leaves（以下「Peach leaves」）中の I-127 をテトラメチルアンモニウムヒドロキシド（以下「TMAH」）によるアルカリ抽出と固相抽出ディスク（Empore 2252-Anion、3M、47 mmφ）を用いたヨウ素の分離・精製を組み合わせ手法（以下、「TMAH アルカリ抽出-分離精製法」）により分析した結果、I-127 の回収率が 83、88 %となったことを報告した⁴⁾。平成26年度には、ほぼ同様の分析方法により 100 %近い回収率（91~105 %）が得られていたことから、何かしらの原因により回収率が低下したものと考えられ、その原因について検討することとした。

本検討は、まず、Peach leaves よりヨウ素濃度が高く、回収率に係る評価を行いやすい NIST SRM1573a Tomato leaves（以下「Tomato leaves」）を用いて行った。

2.1.1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法によるヨウ素回収率の確認

Tomato leaves 中の I-127 を TMAH アルカリ抽出-分離精製法により分析した。分析フローを図 1 に示す。

(1) アルカリ抽出・ろ過

容量 100 mL の PFA 瓶に Tomato leaves を秤取し、12.5 %TMAH 溶液（精密分析用、Wako）を

分取し密栓した上で、80℃に設定した恒温槽内で 16 時間以上加熱し、試料中のヨウ素を抽出した。放冷後、超純水で希釈して遠心分離し、上澄み液を孔径 1.0 μm の PTFE 製メンブレンフィルター (ADVANTEC、47 mmφ) を用いて吸引ろ過した。残渣は超純水で洗浄し、アルカリ抽出液にあわせた。

(2) 固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離精製

アルカリ抽出液に還元剤として 10 w%亜硫酸ナトリウム (特級、Wako) 溶液を加え、固相抽出ディスクに通液しヨウ素を保持させ、1 M 硝酸溶液 15 mL (超微量分析用、Wako) でヨウ素を分離した。

(3) 測定用試料の調製

固相抽出ディスクの溶離液に、酸化剤として次亜塩素酸ナトリウム溶液 (化学用、Wako) 0.5 mL 及び内標準元素としてロジウム (原子吸光分析用、Wako) 1 μg を加えた後、25 %TMAH 溶液 7 mL を加えアルカリ性とし、超純水で 100 mL に定容して測定用溶液とした。

なお、平成 29 年度の所報で、溶離液に (TMAH を添加しアルカリ性にした後) 次亜塩素酸ナトリウムを添加すると、ヨウ素の計数が徐々に上昇する現象がみられることから、添加しないこととした旨報告したところであるが⁴⁾、添加しない場合、測定溶液の調製後時間が経つにつれ、ロジウムの計数が安定しなくなる場合が多いことが分かった。このため、次亜塩素酸ナトリウムの添加について再度検討し、溶離液、次亜塩素酸ナトリウム、TMAH の順で添加するようにしたところ、ヨウ素及びロジウムの計数がともに安定するようになった。

次亜塩素酸ナトリウムの酸化力は酸性条件下でより強くなり、アルカリ性条件下では比較的安定である。本分析においては、酸性条件下で次亜塩素酸ナトリウムを添加する必要があるものとする。

(4) 測定

調製した測定溶液について、ICP 質量分析装置 (パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e) を用い、内標準法により I-127 の定量を行った。測定条件を表 1 に示す (2.2.4 の I-129 の測定条件も含む)。

表 1 測定条件

項 目	設 定 値	
	I-127	I-129
ネブライザーガス流量	0.93~1.04 L/min	0.98 L/min
補助ガス流量	0.72 L/min	0.72 L/min
プラズマガス流量	17 L/min	17 L/min
リアクションガス流量	—	O ₂ : 0.6 mL/min
ICP RF 出力	1500 W	1500 W
積分時間	1 秒	2 秒
繰返し回数	5 回	10 回
測定回数	3 回	5 回

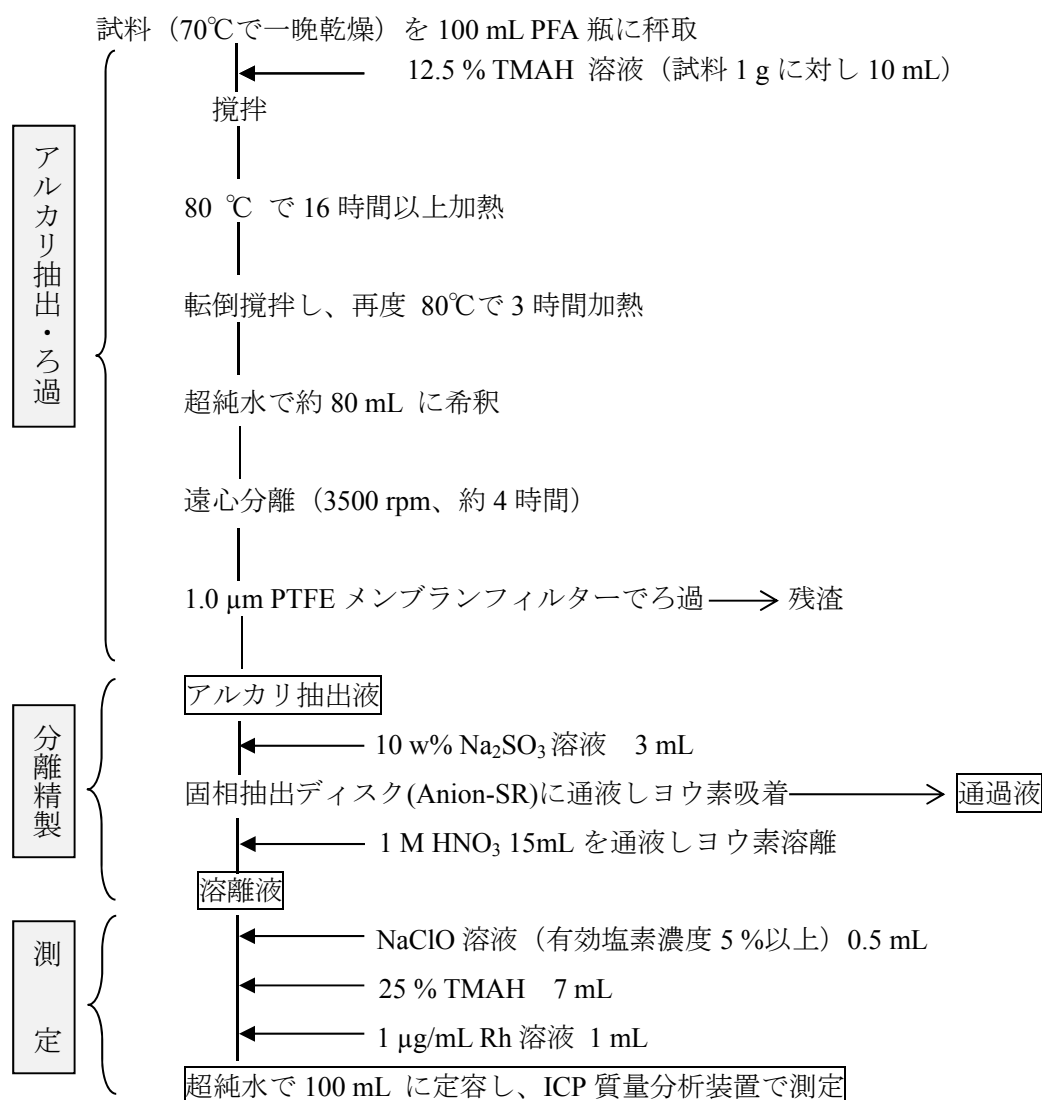


図 1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法 分析フロー図

2.1.2 アルカリ抽出工程におけるヨウ素回収率の確認

2.1.1 の結果から、Tomato leaves からの I-127 回収率が低くなった原因として、アルカリ抽出工程におけるヨウ素の抽出が不十分である可能性が疑われたことから、アルカリ抽出工程におけるヨウ素回収率について確認するため、2.1.1(1)に示す方法により Tomato leaves のアルカリ抽出を行い、アルカリ抽出液中の I-127 量を測定した。

2.1.3 分離精製工程におけるヨウ素捕集効率の確認

分離精製工程におけるヨウ素の捕集効率について確認するため、Tomato leaves のアルカリ抽出液について 2.1.1 (2)に示す方法により分離精製を行い、アルカリ抽出液、溶離液及び通過液中の I-127 量を測定した。

アルカリ抽出液及び通過液については、内標準元素としてロジウム 1 µg を加えた後、超純水で 100 mL に定容して測定用溶液とした。

2.2 固相抽出ディスクのヨウ素捕集効率向上に向けた検討

2.1の結果、Tomato leaves のアルカリ抽出液について固相抽出ディスクによる分離精製を行う工程において、通常廃棄する通過液にヨウ素が抜け出していることが分かったことから、固相抽出ディスクのヨウ素捕集効率向上に向けた検討を行うこととした。

2.2.1 亜硫酸ナトリウム添加量の違いがヨウ素捕集効率に及ぼす影響の確認

固相抽出ディスクによる分離精製を行う前に、ヨウ素の化学形を I⁻とするため、還元剤として亜硫酸ナトリウムを添加している。亜硫酸ナトリウムの経年劣化、又は量が不十分であることによりヨウ素が十分に還元されず、そのことにより固相抽出ディスクのヨウ素捕集効率が低下した可能性について検証するため、Tomato leaves のアルカリ抽出液について、2.1.1(2)に示す分離精製工程において亜硫酸ナトリウムの添加量を3倍に増やして分離精製を行い、2.1.1(2)のとおり分離精製した場合のヨウ素捕集効率と比較した。

2.2.2 酸性度の違いがヨウ素捕集効率に及ぼす影響の確認

固相抽出ディスクの説明書によると、ディスクに通液する溶液の酸性度は pH=2~12 が推奨されている（ただし、短時間であればこの範囲外でも可と思われるとの記載あり）。2.1.1(2)に示す分離精製工程において、ディスクに通液するアルカリ抽出液の酸性度は通常 pH=13 以上であり、ディスクの推奨使用範囲を外れている。

このことによりヨウ素捕集効率が低下した可能性について検証するため、アルカリ抽出液の酸性度を塩酸によりディスクの推奨使用範囲内に調整した後分離精製を行い、酸性度を調整しない場合のヨウ素捕集効率と比較した。

2.2.3 固相抽出ディスクのロットの違いによるヨウ素捕集効率の違いの確認

固相抽出ディスクの性能にロットによる違いまたは経年劣化がないか確認するため、購入日及びロットが異なるディスク（平成30年7月に購入したディスク（以下「H30 ディスク」）及び平成29年12月に購入したディスク（以下「H29 ディスク」））を用いて Tomato leaves アルカリ抽出液の分離精製を行い、ヨウ素捕集効率を比較した。

なお、100%近いヨウ素回収率が得られた平成26~27年度に使用していたディスクは、使い切っていたため試験できなかった。

2.2.4 ヨウ化ナトリウム溶液中ヨウ素の捕集効率の確認

Tomato leaves から抽出したヨウ素と、ヨウ化ナトリウムの状態で添加したヨウ素の挙動に違いがないか確認するため、Na¹²⁹I を添加した Tomato leaves のアルカリ抽出液並びに I-127 及び I-129 を含むヨウ化ナトリウム溶液を 2.1.1(2)に示す分離精製操作に供し、I-127 及び I-129 を測定し、ヨウ素の捕集効率を比較した。

2.2.5 複数の固相抽出ディスクを使用した場合のヨウ素捕集効率の確認

2.1.1(2)に示す分離精製工程において使用する固相抽出ディスクを1枚から2枚に増やし、ヨウ素捕集効率を向上させることができるか確認した。ディスク2枚を用いる場合の分析フローを図2に示す。

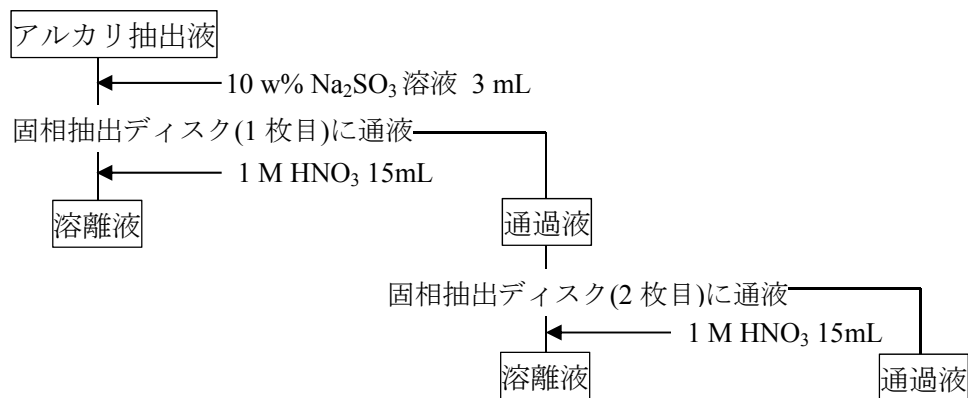


図2 ディスク2枚を用いる場合の分離精製工程 フロー図

2.3 Peach leaves アルカリ抽出液の分離精製工程におけるヨウ素捕集効率の確認

固相抽出ディスクによる分離精製工程において通過液にヨウ素が抜け出す現象が、Tomato leaves に特異的なものであるか確認するため、Peach leaves 中のヨウ素を 2.1.1 に準じて分析し、固相抽出ディスクによるヨウ素捕集効率を確認した。

2.4 ヨウ素測定におけるカドミウムによる干渉の確認

ICP 質量分析装置により I-127 及び I-129 を測定する際、高濃度のカドミウムが共存する場合は $^{111}\text{Cd}^{16}\text{O}$ (質量数 127) や $^{113}\text{Cd}^{16}\text{O}$ (質量数 129) による干渉について考慮する必要がある⁵⁾。

そこで、カドミウム濃度 0~300 ng/mL の溶液を表 1 に示す条件で測定し、 $m/z=127$ 及び $m/z=129$ に対する干渉の有無について確認した。確認用の溶液は、カドミウム溶液 (ICP 分析用、wako) に 1 M 硝酸 15 mL、次亜塩素酸ナトリウム 0.5 mL、25 %TMAH 7 mL 及び内標準元素としてロジウム 1 µg 加えた後、超純水で 100 mL にメスアップして調製した。

3. 調査結果及び考察

3.1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による Tomato leaves 中ヨウ素の測定

3.1.1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法によるヨウ素回収率の確認

測定結果を表 2 に示す。Tomato leaves からの I-127 回収率は 58~64 %となった。平成 27 年度には、ほぼ同じ分析条件で 97 %の I-127 回収率が得られており、何らかの理由により回収率が低くなったものと考えられる。

一方、ヨウ化ナトリウム溶液からの I-127 回収率は 87~94 %と比較的良好であった。

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

試料名	溶離液中 I-127 量 ^{※1} (μg)	I-127 回収率 ^{※2} (%)
Tomato leaves (n=4)	0.53 \pm 0.006	58 \pm 0.6
	0.56 \pm 0.004	61 \pm 0.5
	0.58 \pm 0.003	64 \pm 0.3
	0.56 \pm 0.007	61 \pm 0.8
NaI 溶液 (n=3)	0.82 \pm 0.003	90 \pm 0.3
	0.79 \pm 0.002	87 \pm 0.3
	0.86 \pm 0.002	94 \pm 0.2

※1 誤差は、3 個の測定値から求めた標準偏差

操作ブランクは検出限界以下であったため、操作ブランク補正は実施しなかった

※2 Tomato leaves またはヨウ化ナトリウム溶液に含まれる I-127 が全て測定溶液に移行すると仮定した場合の溶離液中ヨウ素量 : 0.911 μg

3.1.2 アルカリ抽出工程におけるヨウ素回収率の確認

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

このことから、3.1.1 において Tomato leaves からの I-127 回収率が低くなった原因は、アルカリ抽出工程以外にあるものと考えられた。

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

試料名	アルカリ抽出液中 I-127 量 ^{※1} (μg)	I-127 回収率 ^{※2} (%)
Tomato leaves (n=6)	0.78 \pm 0.011	95 \pm 1.4
	0.78 \pm 0.006	95 \pm 0.8
	0.81 \pm 0.009	99 \pm 1.1
	0.82 \pm 0.007	100 \pm 0.9
	0.81 \pm 0.007	99 \pm 0.9
	0.80 \pm 0.003	98 \pm 0.3

※1 誤差は 3 個の測定値から求めた標準偏差

操作ブランクは検出限界以下であったため、操作ブランク補正は実施しなかった。

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

3.1.3 分離精製工程におけるヨウ素捕集効率の確認

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

表4 分離精製工程における Tomato leaves アルカリ抽出液からの I-127 捕集効率
上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前（アルカリ抽出液）の I-127 量との比）

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

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

3.2 固相抽出ディスクのヨウ素捕集効率向上に向けた検討

3.2.1 亜硫酸ナトリウム添加量の違いがヨウ素捕集効率に及ぼす影響の確認

測定結果を表5に示す。固相抽出ディスクによる分離精製前に添加する亜硫酸ナトリウムの量を3倍として分離精製を行ったが、通常の添加量とした場合と比較してヨウ素捕集効率に大きな差は認められなかった。

このことから、添加する亜硫酸ナトリウムを増加しても、ヨウ素捕集効率の向上は期待できないと考えられる。

表5 亜硫酸ナトリウム添加量の違いが捕集効率に及ぼす影響の検討における I-127 測定結果
上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	10 w%Na ₂ SO ₃ 添加量	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
		アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
Tomato leaves 抽出液	3 mL (通常の添加量) (n=1)	0.77±0.005 (100 %)	0.57±0.002 (75 %)	0.16±0.003 (21 %)	0.04±0.006 (5 %)
	20 mL (n=1)		0.57±0.008 (74 %)	0.18±0.0009 (22 %)	0.03±0.009 (4 %)

3.2.2 酸性度の違いがヨウ素捕集効率に及ぼす影響の確認

測定結果を表6に示す。ディスクに通液する溶液の酸性度をディスクの推奨使用範囲内に調整した後分離精製を行ったが、酸性度を調整しない場合と比較して測定値に大きな差は認められなかった。

このことから、溶液の酸性度を固相抽出ディスクの推奨使用範囲に調整しても、ヨウ素捕集効率の向上は期待できないと考えられる。

なお、酸性度の調整は、ヨウ素捕集効率の向上が期待できないこと、溶液量を過剰とすることなく一定の酸性度に調整するのは困難であること、分析の手間が増えることから、以降の分析では実施しないこととした。

表 6 酸性度の違いが捕集効率に及ぼす影響の検討における I-127 測定結果

上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-127 量との比）

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

3.2.3 固相抽出ディスクのロットの違いによるヨウ素捕集効率の違いの確認

測定結果を表 7 に示す。Tomato leaves のアルカリ抽出液について分離精製を行った結果、H30 ディスクを使用した場合と H29 ディスクを使用した場合で I-127 の測定値に大きな差は認められなかった。

表 7 固相抽出ディスクのロット違いによる捕集効率の違いの検討における I-127 測定結果

上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	ディスク	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
		アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
I-129 添加 Tomato leaves 抽出液	H30 ディスク (n=2)	0.77±0.0009 (100 %)	0.52±0.003 (67 %)	0.16±0.0006 (21 %)	0.10±0.003 (12 %)
			0.52±0.005 (67 %)	0.15±0.0009 (20 %)	0.10±0.005 (13 %)
	H29 ディスク (n=2)		0.53±0.002 (69 %)	0.18±0.0007 (23 %)	0.07±0.002 (8 %)
			0.52±0.0009 (68 %)	0.18±0.001 (23 %)	0.07±0.002 (9 %)

3.2.4 ヨウ化ナトリウム溶液中ヨウ素の捕集効率の確認

測定結果を表 8-1～表 8-4 に示す。I-127 及び I-129 を含むヨウ化ナトリウム溶液について固相抽出ディスクによる分離精製を行ったところ、通過液中には I-127 及び I-129 は検出されなかった。ほぼ 100 % のヨウ素がディスクに捕集されたものと考えられる。

また、Na¹²⁹I 溶液を添加した Tomato leaves アルカリ抽出液について分離精製を行ったところ、I-127 (Tomato leaves から抽出) の捕集効率が 67 % であったのに対し、I-129 (ヨウ化ナトリウムの形で添加) の捕集効率は 88～89 % と比較的高い値となった。

以上の結果から、Tomato leaves から抽出されたヨウ素と、ヨウ化ナトリウム溶液の形で添加したヨウ素では、固相抽出ディスクによる捕集効率が異なる場合があることが分かった。

表 8-1 分離精製工程におけるヨウ化ナトリウム溶液からの I-127 捕集効率

上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
	NaI 溶液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
NaI 溶液 (n=2)	0.91 (100 %)	0.83±0.0007 (92 %)	不検出 (-)	0.08±0.0007 (8 %)
		0.81±0.0005 (89 %)	不検出 (-)	0.10±0.0006 (11 %)

表 8-2 分離精製工程におけるヨウ化ナトリウム溶液からの I-129 捕集効率

上段：I-129 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-129 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (Bq)
	NaI 溶液中 I-129 量 (Bq)	溶離液中 I-129 量 (Bq)	通過液中 I-129 量 (Bq)	
NaI 溶液 (n=2)	0.33 (100 %)	0.31±0.005 (93 %)	不検出 (-)	0.02±0.005 (7 %)
		0.30±0.01 (89 %)	不検出 (-)	0.04±0.01 (11 %)

表 8-3 分離精製工程における Na¹²⁹I 添加 Tomato leaves 抽出液からの I-127 捕集効率

上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
	アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
I-129 添加 Tomato leaves 抽出液 (n=2)	0.77±0.0009 (100 %)	0.52±0.003 (67 %)	0.16±0.0006 (21 %)	0.10±0.003 (12 %)
		0.52±0.005 (67 %)	0.15±0.0009 (20 %)	0.10±0.005 (13 %)

表 8-4 分離精製工程における Na¹²⁹I 添加 Tomato leaves 抽出液からの I-129 捕集効率

上段：I-129 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-129 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (Bq)
	アルカリ抽出液中 I-129 量 (Bq)	溶離液中 I-129 量 (Bq)	通過液中 I-129 量 (Bq)	
I-129 添加 Tomato leaves 抽出液 (n=2)	0.28±0.006 (100 %)	0.25±0.007 (89 %)	0.016±0.002 (6 %)	0.014±0.009 (5 %)
		0.25±0.006 (88 %)	0.014±0.002 (5 %)	0.019±0.009 (7 %)

3.2.5 複数の固相抽出ディスクを使用した場合のヨウ素捕集効率の確認

測定結果を表 9-1～表 9-2 に示す。1 枚目の固相抽出ディスクの捕集効率が 62 %であったのに対して、2 枚目のディスクの捕集効率はわずか 12～14%であり、複数のディスクを用いても、捕集効率の向上はさほど期待できないことが分かった。

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

表 9-1 固相抽出ディスク(1 枚目)の I-127 捕集効率

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

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

表 9-2 固相抽出ディスク(2 枚目)の I-127 捕集効率

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

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

3.3 Peach leaves アルカリ抽出液の分離精製工程におけるヨウ素捕集効率の確認

測定結果を表 9 に示す。Peach leaves のアルカリ抽出液について分離精製を行った結果、17～19 %の I-127 が通過液へ抜け出し、捕集効率は 62～63 %と Tomato leaves と同様に低い値となった。

表 9 分離精製工程における Peach leaves アルカリ抽出液からの I-127 捕集効率

上段：I-127 量、下段：捕集効率（分離精製前の I-127 量との比）

試料名	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 (μg)
	アルカリ抽出液中 I-127 量(μg)	溶離液中 I-127 量(μg)	通過液中 I-127 量(μg)	
Peach leaves		0.23 \pm 0.002	0.068 \pm 0.0001	0.065 \pm 0.003
抽出液	0.36 \pm 0.002	(63 %)	(19 %)	(18 %)
(n=2)	(100 %)	0.22 \pm 0.001 (62 %)	0.060 \pm 0.0005 (17 %)	0.075 \pm 0.002 (21 %)

3.4 ヨウ素測定におけるカドミウムによる干渉の確認

カドミウム濃度 0~300 ng/mL の範囲で、I-127 の測定条件で $m/z=127$ への干渉について確認したところ、干渉は確認されなかった。

一方、I-129 の測定条件で $m/z=129$ への干渉について確認したところ、図 3 のとおり、50 ng/mL 以上で干渉が確認された。

天然における ^{111}Cd 及び ^{113}Cd の存在度は同程度(それぞれ 12.80 %、12.22 %⁶⁾)であるが、 $m/z=129$ だけに干渉が確認された理由は、I-129 の測定では Xe-129 による干渉の低減を目的としてイオン-分子反応セルに酸素を導入しており、セル内で $^{113}\text{Cd}^{16}\text{O}$ (質量数 129) が生成したためと考えられる。

なお、本報告で用いている Tomato leaves 及び Peach leaves のカドミウム濃度は、成績書によるとそれぞれ $1.52 \pm 0.04 \mu\text{g/g}$ 及び $0.0132 \pm 0.0015 \mu\text{g/g}$ である。本報告の分析条件(供試料量 1 g、測定溶液 100 mL)では、仮に試料中のカドミウムが全て測定溶液に移行したとしても、測定溶液中の濃度はそれぞれ 15 ng/mL 及び 0.13 ng/mL となり、十分低濃度であることから、カドミウムによる干渉について考慮する必要はない。

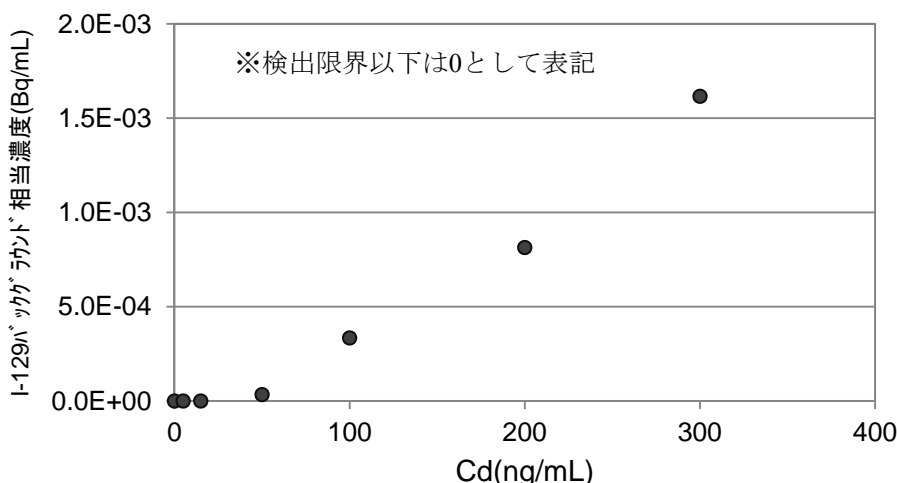


図 3 I-129 測定におけるカドミウムによる干渉

4. まとめ

- 1) Tomato leaves 中 I-127 の分析を TMAH アルカリ抽出-分離精製法により行ったところ、I-127 の回収率は 58~64 %であった。ヨウ素の損失が生じた工程について調査したところ、アルカリ抽出工程におけるヨウ素回収率は 95~100 %と良好であったが、固相抽出ディスクによる分離精製工程において、ヨウ素の捕集効率が 62~81 %と低く、また安定しないことが分かった。捕集効率の向上に向けて分析条件の検討を行ったが、向上させることはできなかった。
- 2) Tomato leaves から抽出されたヨウ素と、ヨウ化ナトリウム溶液の形で添加したヨウ素では、固相抽出ディスクによる捕集効率が異なる場合があることが分かった。
- 3) Tomato leaves のアルカリ抽出液について固相抽出ディスクによる分離精製を行う際、ディスクに捕集されずに通過液に抜け出すヨウ素は、ディスクに捕集されにくい化学形態になっている可能性が示唆された。
- 4) I-129 の測定条件(リアクションガスとして酸素を導入)におけるカドミウムによる $m/z=129$

への干渉について確認したところ、測定溶液中のカドミウム濃度が 50 ng/mL 以上の場合干渉が確認された。一方、I-127 の測定条件では、0~300 ng/mL の範囲で $m/z=127$ への干渉は確認されなかった。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26 「ヨウ素-129 分析法」(平成 8 年)
- 2) 文部科学省放射能測定法シリーズ 32 「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」(平成 16 年)
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)
- 4) 安積潔、神俊雄、木村芳伸、竹ヶ原仁 : 青森県原子力センター所報, 第 12 号, 53-59(2017)
- 5) K.Tagami, S.Uchida, I.Hirai, H.Tsukada, H.Takeda : Determination of chlorine,bromine and iodine in plant samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry after leaching with tetramethyl ammonium hydroxide under a mild temperature condition, *Analytica Chimica Acta*, **570**, 88-92(2006)
- 6) 公益社団法人日本アイソトープ協会: アイソトープ手帳第 11 版, p117(2017)

表土中ヨウ素-129 分布調査

大山 勝 神 俊雄 木村芳伸

1. はじめに

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

平成 11～12 年度に 20 地点のバックグラウンド調査を実施した。平成 18 年 3 月 31 日から再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が開始されたことから、その影響を把握するため、平成 21 年度に前バックグラウンド調査と同地点で表土中 I-129 の分布調査を実施した。

今般、再処理工場しゅん工前の蓄積状況を把握するため再度調査を実施することとし、平成 29 年度に地点状況の事前調査及び一部地点において試料採取を実施した。平成 30 年度は残る地点の試料採取及び前処理並びに分析・測定を実施した。本報告は、平成 29～30 年度調査結果及び平成 11～12 年度、平成 21 年度調査結果との比較検討について記載したものである。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点を表 1 及び図 1 に示す。調査地点は基本的に平成 11～12 年度調査及び平成 21 年度調査と同一の 20 地点とした。

平成 29 年度に実施した地点状況調査において採取不可能であることが確認された 3 地点のうち、地点 15:豊原については、新たな採取地点として美須々を選定した。また、地点 3:出戸、地点 11:尾駸沼南畔については、採取場所を移動した。

2.2 試料採取・前処理・分析方法

(1) 試料採取

全地点において、直径 10 cm×深さ 5 cm のステンレス製採土器を用いて 9 点で土壌を採取した。

さらに、平成 21 年度調査において再処理工場のアクティブ試験の影響が認められた地点のうち、土地の改変が認められなかった、はまなす公園・弥栄平の 2 地点については、I-129 の鉛直方向の移行状況を確認するため、0～5 cm の他に 5～10 cm、10～20 cm の 2 試料を追加で採取した。5～10 cm については直径 10cm×深さ 5cm のステンレス製採土器を、10～20 cm については直径 10 cm×深さ 10 cm のステンレス製採土器を用いて、1 地点につき 1 点で採取した。5～10 cm、10～20 cm の試料の採取に当たっては、下層の試料に上層の試料が混入しないよう留意して採取を行った（図 2）。

(2) 前処理

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

(3)分析

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

表 1 調査地点一覧

調査地点	過去の調査年度	地点状況等
1:吹越	H12、H21	個人宅
2:横浜町 ※	H11、H21	個人所有牧草地
3:出戸	H12、H21	屯所裏空き地 H30：南東側に 60 m 程度採取地点を移動
4:はまなす公園	H12、H21	公園内
5:二又	H12、H21	旧小学校校庭隅
6:富ノ沢	H12、H21	個人宅
7:老部川	H12、H21	個人宅
8:弥栄平	H12、H21	道路脇草地
9:尾駸 ※	H11、H21	県一般環境大気測定局裏 (H11、H21) 尾駸診療所東側 (H29)
10:沖付	H12、H21	松葉採取地点
11:尾駸沼南畔	H12、H21	旧道脇草地 H30：北東側に 600 m 程度採取地点を移動
12:戸鎖	H12、H21	小学校校庭隅
13:最終処分場	H12、H21	処分場擁壁外側
14:市柳沼北畔	H12、H21	国道脇草地
15:豊原 (H12、H21) →美須々 (H29)	H12、H21	集会場 (H12、H21) 美須々生涯学習センター (H29)
16:市柳沼東畔	H12、H21	国道脇草地
17:酪農センター	H12、H21	敷地内草地
18:八森	H12、H21	集会場
19:千歳平 ※	H11、H21	児童公園
20:青森市 ※	H11、H21	小学校跡地 (H11) 青年の家跡地内敷地 (H21) 動物愛護センター (H30)

※：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング対象地点

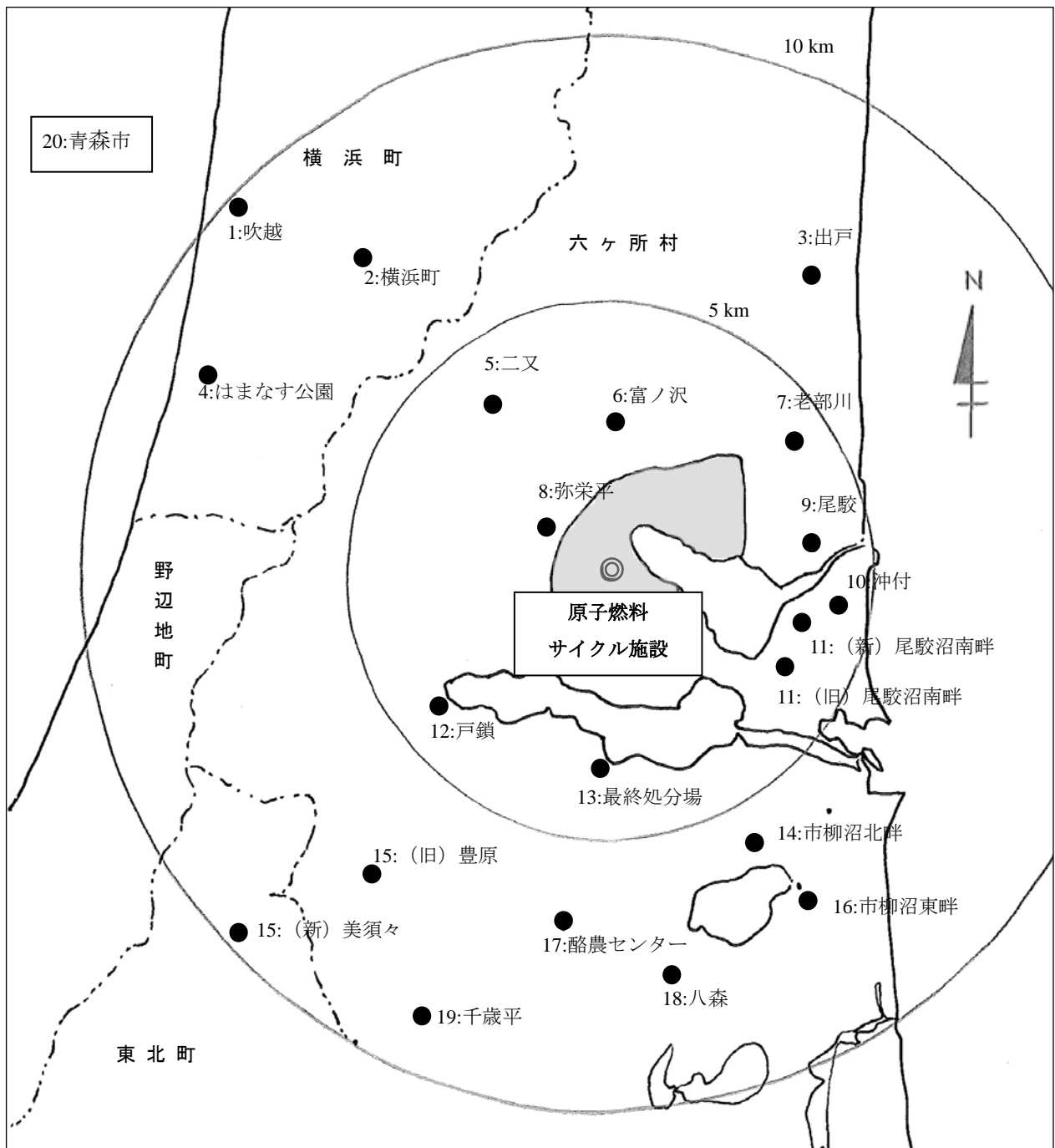


図1 調査地点図

(1)0～5 cm 試料の採取



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

(2)5～10 cm 試料の採取



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

(3)10～20 cm 試料の採取



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

図 2 鉛直分布確認用試料の採取方法

3. 調査結果

3.1 前処理結果

試料の前処理の結果を表2に示す。

表2 土壌試料の採取実績と性状

調査地点	採取深度 (cm)	試料採取日	湿土密度 (kg/m ³) ※1	水分率 (%) ※2	歩留り (%) ※3	土色	土質
1: 吹越	0~5	H29.11.10	1.14×10 ³	15.6	96.9	黒褐色	黒ボク土
2: 横浜町	0~5	H29.7.5	9.50×10 ²	46.0	90.4	褐色	黒ボク土
3: 出戸	0~5	H29.11.16	1.12×10 ³	25.1	89.2	褐色	砂
4: はまなす公園	0~5	H30.5.21	7.49×10 ²	33.7	76.6	黒褐色	黒ボク土
	5~10		1.26×10 ³	27.4	100.0	黒褐色	黒ボク土
	10~20		1.60×10 ³	19.1	100.0	黒褐色	黒ボク土
5: 二又	0~5	H29.11.16	1.04×10 ³	40.2	90.1	褐色	黒ボク土
6: 富ノ沢	0~5	H29.11.16	8.77×10 ²	53.2	73.4	黒褐色	黒ボク土
7: 老部川	0~5	H29.11.16	8.50×10 ²	32.4	96.1	褐色	黒ボク土
8: 弥栄平	0~5	H30.5.21	1.23×10 ³	34.9	82.8	黄褐色	粘土
	5~10		1.77×10 ³	33.8	100.0	黄褐色	粘土
	10~20		1.62×10 ³	33.2	100.0	黄褐色	粘土
9: 尾駁	0~5	H29.7.14	1.02×10 ³	2.8	98.9	褐色	砂
10: 沖付	0~5	H30.5.11	1.00×10 ³	15.6	73.7	黄褐色、 褐色	黒ボク土、 レキ
11: 尾駁沼南畔	0~5	H30.5.11	9.06×10 ²	19.4	96.4	黒褐色	黒ボク土
12: 戸鎖	0~5	H30.5.24	8.88×10 ²	24.8	84.1	褐色	黒ボク土
13: 最終処分場	0~5	H30.5.24	9.78×10 ²	21.0	84.8	褐色	レキ
14: 市柳沼北畔	0~5	H30.5.2	8.93×10 ²	30.3	85.4	褐色	黒ボク土
15: 美須々	0~5	H29.11.10	1.09×10 ³	55.0	90.5	黒褐色	黒ボク土
16: 市柳沼東畔	0~5	H30.5.2	8.63×10 ²	33.7	89.6	黒褐色	黒ボク土
17: 酪農センター	0~5	H30.5.24	9.89×10 ²	29.5	69.3	赤褐色	粘土
18: 八森	0~5	H30.5.2	8.73×10 ²	37.5	55.4	黒褐色	レキ
19: 千歳平	0~5	H29.7.10	1.00×10 ³	18.4	93.8	黒褐色	黒ボク土
20: 青森市	0~5	H29.7.13	8.05×10 ²	32.2	77.9	黒褐色	黒ボク土

$$\text{※1 湿土密度 (kg/m}^3\text{)} = \frac{\text{湿土 (kg)}}{\text{採土器の体積 (m}^3\text{)}}、\quad \text{※2 水分率 (\%)} = \frac{(\text{湿土 (g)} - \text{乾土 (g)}) \times 100}{\text{湿土 (g)}}$$

$$\text{※3 歩留り (\%)} = \frac{(\text{乾土 (g)} - \text{ふるい残渣 (g)}) \times 100}{\text{乾土 (g)}}$$

3.2 調査結果

(1) 過去の調査結果との比較

調査結果を表3に示す。I-129濃度（採取深度0～5 cm）の範囲は、平成11～12年度調査で $< 2.0 \times 10^{-4} \sim 1.4 \times 10^{-3}$ Bq/kg 乾、平成21年度調査で $3.2 \times 10^{-5} \sim 2.3 \times 10^{-3}$ Bq/kg 乾、平成29～30年度調査で $1.7 \times 10^{-4} \sim 2.1 \times 10^{-3}$ Bq/kg 乾であり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比（採取深度0～5 cm）は、平成11～12年度調査が $9.6 \times 10^{-10} \sim 1.2 \times 10^{-8}$ 、平成21年度調査が $1.1 \times 10^{-9} \sim 8.0 \times 10^{-8}$ 、平成29～30年度調査が $1.8 \times 10^{-9} \sim 1.7 \times 10^{-7}$ であった。

平成29～30年度調査で得られた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は、アクティブ試験開始後の平成21年度調査と同程度であり、平成11～12年度のバックグラウンド調査より高めであったことから、平成29～30年度調査においてもアクティブ試験の影響が残っているものと考えられた。

I-129は過去の大気圏内核実験等により広く環境にもたらされ、半減期が長いことから、環境中で安定ヨウ素(I-127)と同様な挙動をとると考えられている。環境中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比はある程度の幅内にあることが確認されており、大気圏内核実験後の環境では、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ との報告がある¹⁾。平成21年度調査及び平成29～30年度調査で得られた結果には、アクティブ試験の影響があったと考えられたものの、この報告と同程度であった。

表3 測定結果一覧 (平成11～12年度調査、平成21年度調査、平成29～30年度調査)

調査地点	採取深度 (cm)	¹²⁹ I濃度(Bq/kg乾)			¹²⁹ I/ ¹²⁷ I原子数比		
		H11～H12	H21	H29～H30	H11～H12	H21	H29～H30
1: 吹越	0～5	2.0×10 ⁻⁴ ±1.0×10 ⁻⁴	1.7×10 ⁻⁴ ±6.0×10 ⁻⁶	1.7×10 ⁻⁴ ±4.5×10 ⁻⁶	3.2×10 ⁻⁹ ±1.6×10 ⁻⁹	2.8×10 ⁻⁹ ±1.2×10 ⁻¹⁰	2.1×10 ⁻⁹ ±5.6×10 ⁻¹¹
2: 横浜町	0～5	3.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	1.5×10 ⁻⁴ ±4.0×10 ⁻⁶	8.8×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁵	9.6×10 ⁻¹⁰ ±6.4×10 ⁻¹⁰	1.1×10 ⁻⁹ ±3.3×10 ⁻¹¹	3.5×10 ⁻⁹ ±7.6×10 ⁻¹¹
3: 出戸(場所移動)	0～5	< 2.0×10 ⁻⁴	5.3×10 ⁻⁴ ±1.6×10 ⁻⁵	2.6×10 ⁻⁴ ±6.1×10 ⁻⁶	ND	2.9×10 ⁻⁸ ±1.0×10 ⁻⁹	9.15×10 ⁻⁹ ±2.1×10 ⁻¹⁰
4: はまなす公園	0～5	3.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻³ ±4.0×10 ⁻⁵	1.9×10 ⁻³ ±4.7×10 ⁻⁵	5.9×10 ⁻⁹ ±3.9×10 ⁻⁹	2.0×10 ⁻⁸ ±3.7×10 ⁻¹⁰	1.8×10 ⁻⁸ ±4.0×10 ⁻¹⁰
	5～10	—	—	3.6×10 ⁻⁴ ±7.5×10 ⁻⁶	—	—	3.0×10 ⁻⁹ ±6.2×10 ⁻¹¹
10～20	—	—	—	4.3×10 ⁻⁵ ±1.6×10 ⁻⁶	—	—	5.0×10 ⁻¹⁰ ±1.9×10 ⁻¹¹
	0～5	4.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	2.0×10 ⁻³ ±3.0×10 ⁻⁵	1.9×10 ⁻³ ±4.6×10 ⁻⁵	4.6×10 ⁻⁹ ±2.3×10 ⁻⁹	9.1×10 ⁻⁹ ±1.5×10 ⁻¹⁰	8.7×10 ⁻⁹ ±2.0×10 ⁻¹⁰
6: 富沢	0～5	7.0×10 ⁻⁴ ±1.0×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁻³ ±2.0×10 ⁻⁵	9.6×10 ⁻⁴ ±2.1×10 ⁻⁵	4.6×10 ⁻⁹ ±6.6×10 ⁻¹⁰	7.2×10 ⁻⁹ ±1.6×10 ⁻¹⁰	6.6×10 ⁻⁹ ±1.4×10 ⁻¹⁰
7: 老部川	0～5	2.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	3.8×10 ⁻⁴ ±1.0×10 ⁻⁵	6.3×10 ⁻⁴ ±1.6×10 ⁻⁵	2.2×10 ⁻⁹ ±2.2×10 ⁻⁹	5.2×10 ⁻⁹ ±1.7×10 ⁻¹⁰	8.9×10 ⁻⁹ ±2.1×10 ⁻¹⁰
	0～5	2.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁻³ ±2.0×10 ⁻⁵	1.5×10 ⁻³ ±2.9×10 ⁻⁵	7.3×10 ⁻⁹ ±7.3×10 ⁻⁹	3.2×10 ⁻⁸ ±8.0×10 ⁻¹⁰	3.4×10 ⁻⁸ ±6.4×10 ⁻¹⁰
8: 弥栄平	5～10	—	—	1.9×10 ⁻⁵ ±1.2×10 ⁻⁶	—	—	9.5×10 ⁻¹⁰ ±6.0×10 ⁻¹¹
	10～20	—	—	6.4×10 ⁻⁶ ±9.2×10 ⁻⁷	—	—	2.9×10 ⁻¹⁰ ±4.1×10 ⁻¹¹
9: 尾駸(場所移動)	0～5	7.0×10 ⁻⁴ ±1.0×10 ⁻⁴	7.8×10 ⁻⁵ ±2.4×10 ⁻⁶	6.8×10 ⁻⁴ ±1.6×10 ⁻⁵	8.0×10 ⁻⁹ ±1.3×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻⁹ ±5.1×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻⁸ ±5.4×10 ⁻¹⁰
10: 沖付(場所移動)	0～5	4.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻³ ±4.0×10 ⁻⁵	4.2×10 ⁻⁴ ±8.9×10 ⁻⁶	1.1×10 ⁻⁸ ±5.4×10 ⁻⁹	8.0×10 ⁻⁸ ±2.4×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻⁸ ±3.2×10 ⁻¹⁰
11: 尾駸沼南畔(場所移動)	0～5	5.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻³ ±4.0×10 ⁻⁵	1.7×10 ⁻³ ±3.5×10 ⁻⁵	2.1×10 ⁻⁹ ±8.4×10 ⁻¹⁰	6.5×10 ⁻⁸ ±2.4×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻⁷ ±2.9×10 ⁻⁹
12: 戸鎖	0～5	4.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	6.7×10 ⁻⁴ ±1.2×10 ⁻⁵	4.4×10 ⁻⁴ ±1.0×10 ⁻⁵	1.2×10 ⁻⁸ ±6.1×10 ⁻⁹	1.9×10 ⁻⁸ ±3.8×10 ⁻¹⁰	2.8×10 ⁻⁸ ±6.2×10 ⁻¹⁰
	0～5	1.4×10 ⁻³ ±2.0×10 ⁻⁴	5.4×10 ⁻⁴ ±1.3×10 ⁻⁵	4.9×10 ⁻⁴ ±1.1×10 ⁻⁵	8.8×10 ⁻⁹ ±1.3×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻⁸ ±3.8×10 ⁻¹⁰	1.1×10 ⁻⁸ ±2.2×10 ⁻¹⁰
13: 最終処分場	0～5	6.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻⁴ ±5.0×10 ⁻⁶	8.8×10 ⁻⁴ ±1.8×10 ⁻⁵	3.3×10 ⁻⁹ ±1.1×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻⁸ ±6.1×10 ⁻¹⁰	4.0×10 ⁻⁹ ±8.2×10 ⁻¹¹
14: 市柳沼北畔	0～5	1.1×10 ⁻³ ±4.0×10 ⁻⁴	8.8×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁵	2.1×10 ⁻³ ±5.0×10 ⁻⁵	3.0×10 ⁻⁹ ±1.1×10 ⁻⁹	5.5×10 ⁻⁹ ±1.4×10 ⁻¹⁰	7.2×10 ⁻⁹ ±1.5×10 ⁻¹⁰
15: 豊原→美須々(場所移動)	0～5	< 2.0×10 ⁻⁴	3.4×10 ⁻⁴ ±1.4×10 ⁻⁵	7.4×10 ⁻⁴ ±1.9×10 ⁻⁵	ND	1.1×10 ⁻⁸ ±5.4×10 ⁻¹⁰	1.1×10 ⁻⁸ ±2.5×10 ⁻¹⁰
16: 市柳沼東畔	0～5	4.0×10 ⁻⁴ ±2.0×10 ⁻⁴	3.1×10 ⁻⁴ ±6.0×10 ⁻⁶	2.8×10 ⁻⁴ ±6.3×10 ⁻⁶	1.5×10 ⁻⁹ ±7.7×10 ⁻¹⁰	3.6×10 ⁻⁹ ±7.5×10 ⁻¹¹	3.1×10 ⁻⁹ ±6.7×10 ⁻¹¹
17: 酪農振興センター	0～5	< 2.0×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻⁴ ±3.0×10 ⁻⁶	1.9×10 ⁻⁴ ±4.7×10 ⁻⁶	ND	2.1×10 ⁻⁹ ±5.5×10 ⁻¹¹	1.8×10 ⁻⁹ ±4.3×10 ⁻¹¹
18: 八森	0～5	2.0×10 ⁻⁴ ±1.0×10 ⁻⁴	3.2×10 ⁻⁵ ±1.1×10 ⁻⁶	3.8×10 ⁻⁴ ±8.9×10 ⁻⁶	6.8×10 ⁻⁹ ±3.4×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻⁹ ±4.5×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻⁸ ±3.0×10 ⁻¹⁰
19: 千歳平	0～5	< 2.0×10 ⁻⁴	2.6×10 ⁻⁴ ±5.0×10 ⁻⁶	3.0×10 ⁻⁴ ±7.7×10 ⁻⁶	ND	1.3×10 ⁻⁹ ±2.8×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻⁹ ±5.3×10 ⁻¹¹
20: 青森市(場所移動)	0～5	—	—	—	—	—	—

平成11～12年度調査は中性子放射化分析法、平成21年度調査および平成29～30年度調査は加速器質量分析法により¹²⁹Iを定量した。

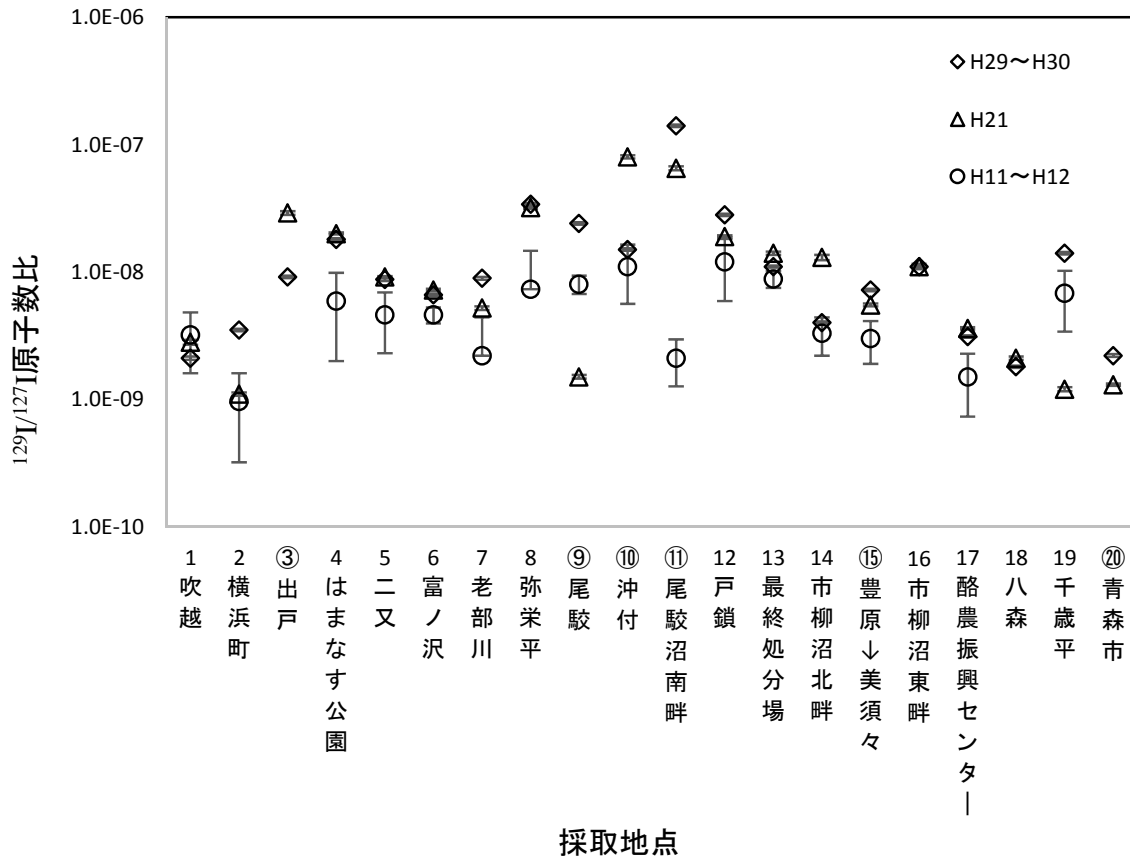


図3 129I/127I 原子数比（採取深度 0～5 cm）測定結果

- ※ 地点番号に○を付している箇所は採取場所を移動した地点を表す。
- ※ 平成 11～12 年度調査の地点 3、16、18、20 の 129I/127I 原子数比は ND のため、記載なし。
- ※ 平成 21 年度調査の地点 19 は採取地点が異なる。

(2) 再処理工場のアクティブ試験の影響

129I/127I 原子数比（採取深度 0～5 cm）の測定結果を図 3 に示す。アクティブ試験後の平成 21 年度、平成 29～30 年度調査の 129I/127I 原子数比の範囲は、平成 11～12 年度調査に比べて高めの傾向となっており、特に高い地点は、地点 4:はまなす公園、地点 8:弥栄平、地点 10:沖付及び地点 11:尾駮沼南畔であった。

調査地点の採取深度 0～5 cm における I-129 存在量 (Bq/m²) を表 4 に示す。存在量の範囲は、平成 21 年度調査で 1.9×10⁻³～8.4×10⁻² Bq/m²、平成 29～30 年度調査で 2.9×10⁻³～6.0×10⁻² Bq/m² であった。

はまなす公園、弥栄平は再処理工場から見て西北西の方位に、沖付、尾駮沼南畔は南東～東南東の方位にあり、同工場の主排気筒の地上 150 m における気象観測結果によると、年間の主な風向の風下に位置している。図 4 及び図 5 に示すように気体廃棄物における 129I 放出量が特に多い時期（平成 18 年 10 月、平成 19 年 9 月、平成 19 年 12 月、平成 20 年 4 月、平成 20 年 9 月）においても同様の傾向が見られることから、同工場から放出された気体廃棄物の影響と考えられる²⁾。表 4 の濃度 (Bq/m²) のグラフを調査地点図上に記載したものを図 6 に示す。

表4 採取深度0～5 cmにおけるI-129存在量 (Bq/m²)

調査地点	採取深度 (cm)	¹²⁹ I存在量(Bq/m ²) *		乾燥土(kg)	
		H21	H29～H30	H21	H29～H30
1: 吹越	0～5	9.2×10 ⁻³ ±3.3×10 ⁻⁴	8.0×10 ⁻³ ±2.1×10 ⁻⁴	3.83	3.31
2: 横浜町	0～5	4.3×10 ⁻³ ±1.2×10 ⁻⁴	2.0×10 ⁻² ±4.6×10 ⁻⁴	2.03	1.64
3: 出戸(場所移動)	0～5	3.8×10 ⁻² ±1.2×10 ⁻³	9.7×10 ⁻³ ±2.3×10 ⁻⁴	5.07	2.63
4: はまなす公園	0～5	8.4×10 ⁻² ±1.5×10 ⁻³	3.6×10 ⁻² ±8.9×10 ⁻⁴	2.57	1.34
5: 二又	0～5	5.2×10 ⁻² ±7.8×10 ⁻⁴	5.3×10 ⁻² ±1.3×10 ⁻³	1.84	1.97
6: 富ノ沢	0～5	1.7×10 ⁻² ±3.4×10 ⁻⁴	1.4×10 ⁻² ±3.2×10 ⁻⁴	1.20	1.06
7: 老部川	0～5	1.8×10 ⁻² ±4.6×10 ⁻⁴	1.7×10 ⁻² ±4.4×10 ⁻⁴	3.26	1.95
8: 弥栄平	0～5	5.0×10 ⁻² ±1.0×10 ⁻⁴	5.0×10 ⁻² ±9.6×10 ⁻⁴	3.52	2.34
9: 尾駁(場所移動)	0～5	3.5×10 ⁻³ ±1.1×10 ⁻⁴	3.3×10 ⁻² ±7.8×10 ⁻⁴	3.20	3.45
10: 沖付(場所移動)	0～5	6.7×10 ⁻² ±1.7×10 ⁻³	1.3×10 ⁻² ±2.8×10 ⁻⁴	2.97	2.20
11: 尾駁沼南畔(場所移動)	0～5	3.5×10 ⁻² ±1.1×10 ⁻³	6.0×10 ⁻² ±1.2×10 ⁻³	1.91	2.49
12: 戸鎖	0～5	3.2×10 ⁻² ±5.8×10 ⁻⁴	1.2×10 ⁻² ±2.8×10 ⁻⁴	3.41	1.99
13: 最終処分場	0～5	2.9×10 ⁻² ±6.9×10 ⁻⁴	1.6×10 ⁻² ±3.6×10 ⁻⁴	3.74	2.32
14: 市柳沼北畔	0～5	7.2×10 ⁻³ ±2.8×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻² ±4.8×10 ⁻⁴	3.90	1.88
15: 豊原→美須々(場所移動)	0～5	2.3×10 ⁻² ±5.3×10 ⁻⁴	4.7×10 ⁻² ±1.1×10 ⁻³	1.87	1.57
16: 市柳沼東畔	0～5	6.6×10 ⁻³ ±2.7×10 ⁻⁴	1.9×10 ⁻² ±4.9×10 ⁻⁴	1.37	1.81
17: 酪農振興センター	0～5	1.2×10 ⁻² ±2.2×10 ⁻⁴	6.8×10 ⁻³ ±1.5×10 ⁻⁴	2.63	1.71
18: 八森	0～5	5.3×10 ⁻³ ±1.3×10 ⁻⁴	2.9×10 ⁻³ ±7.1×10 ⁻⁵	3.12	1.07
19: 千歳平	0～5	1.9×10 ⁻³ ±6.4×10 ⁻⁵	1.5×10 ⁻² ±3.4×10 ⁻⁴	4.08	2.71
20: 青森市(場所移動)	0～5	5.7×10 ⁻³ ±1.1×10 ⁻⁴	6.4×10 ⁻³ ±1.6×10 ⁻⁴	1.56	1.50

* 平成11～12年度調査については試料採取量が不明であるため、算出していない。

(3) 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所事故の影響

平成21年度調査及び平成29～30年度調査の間である平成23年3月11日に福島第一原子力発電所事故が発生し、六ヶ所村尾駁において事故により放出されたI-129が、平成23年3月から5月の降下物試料中に検出されており、当該期間のI-129沈着速度は $2.7\sim 5.2\times 10^{-6}$ Bq/m² dとされている³⁾。事故影響が検出された期間のI-129降下量は 3.3×10^{-4} Bq/m²程度と推定されるが、この値は本調査における各地点の表土中I-129存在量と比較すると0.6～11%であった。

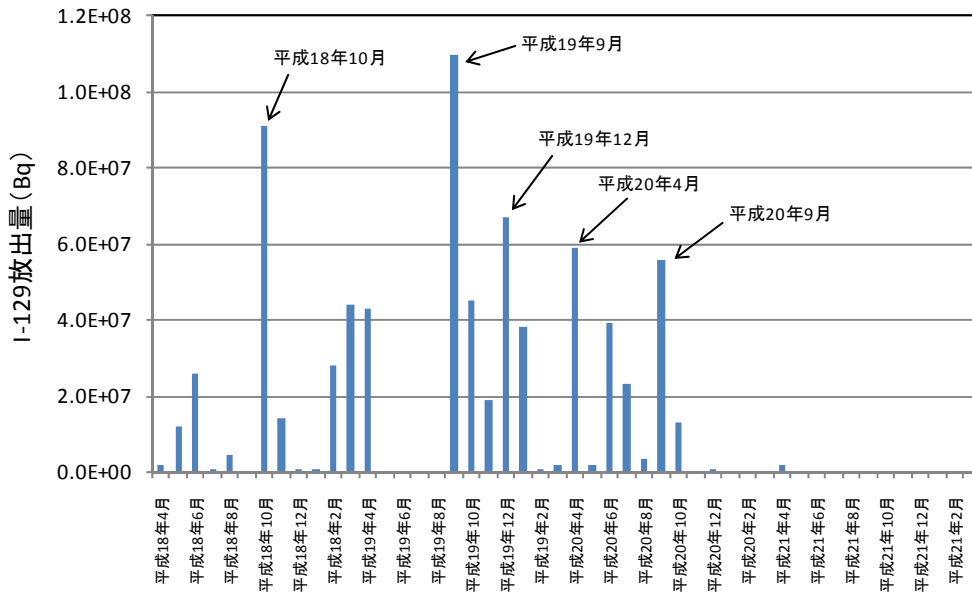


図4 再処理工場の気体廃棄物中 I-129 放出量の推移 (H18～H21)

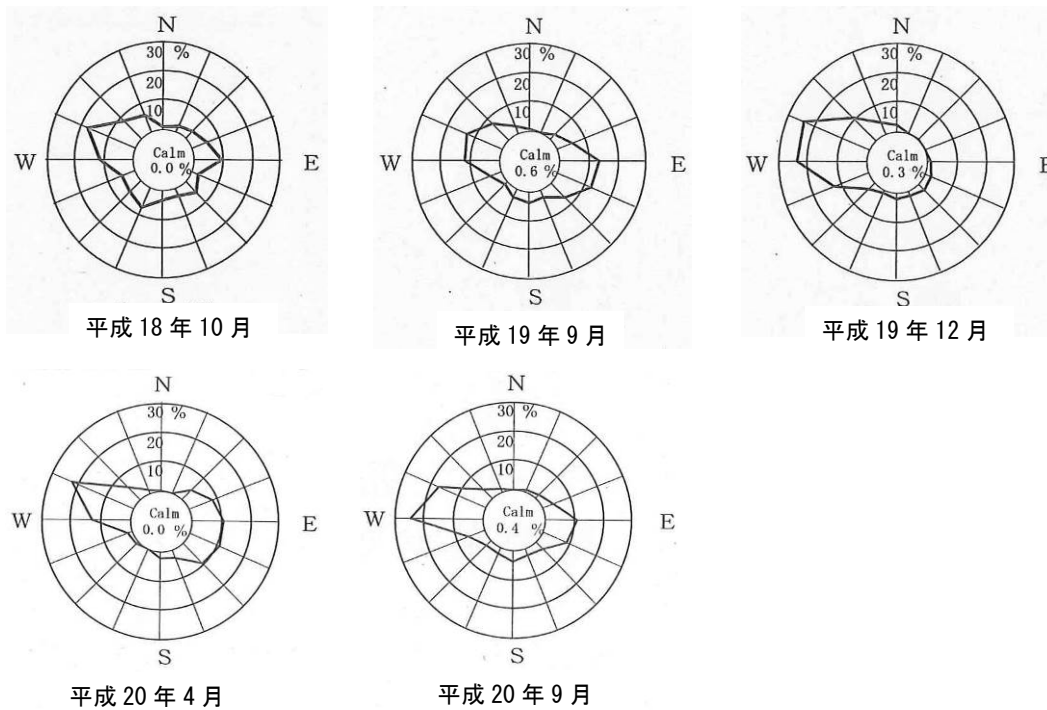


図5 再処理工場気象観測結果における風配図 (地上 150m)

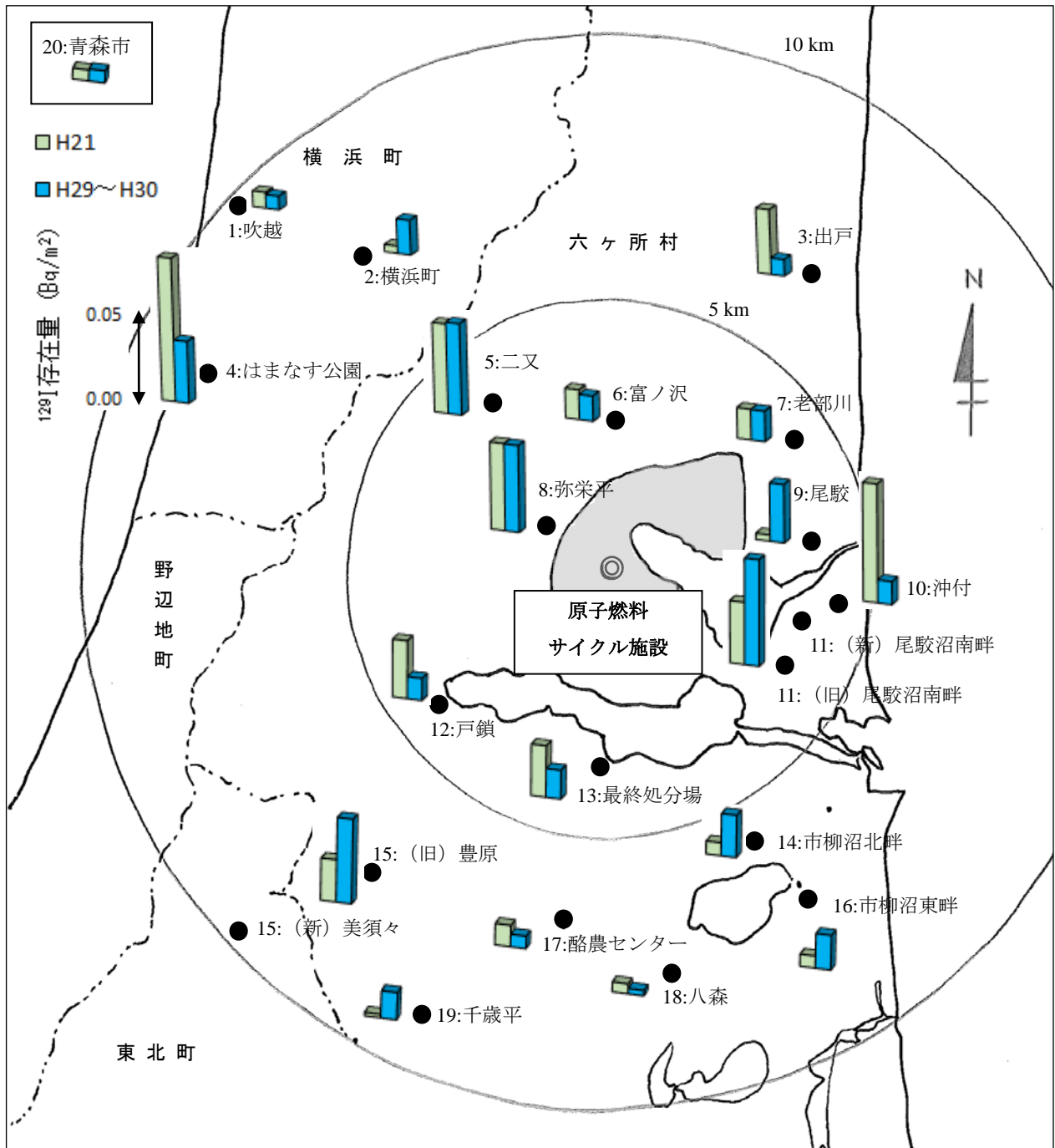


図6 調査地点の採取深度0~5 cmにおけるI-129存在量 (Bq/m²)

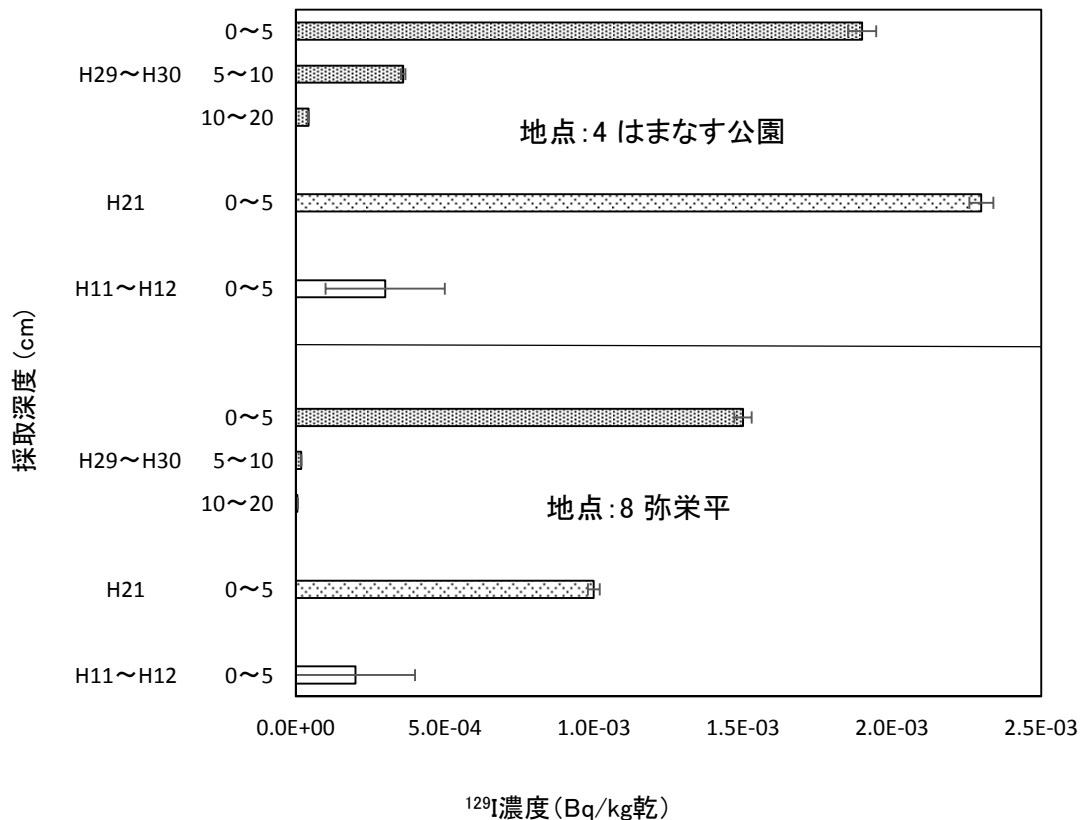


図 7 鉛直方向の I-129 濃度測定結果

(4) 鉛直方向への移行状況

I-129 濃度（鉛直方向）の測定結果を図 7 に示す。平成 29～30 年度調査の地点 4:はまなす公園における各層の I-129 存在比は 0～20 cm 濃度の合計に対し、0～5 cm が 82.5%、5～10 cm が 15.6%、10～20 cm が 1.9% であり、平成 21 年度調査で表層に蓄積したアクティブ試験由来の I-129 が鉛直方向に移行していると考えられる。また平成 29～30 年度調査の 0～20 cm 濃度を合計した値は 2.3×10^{-3} Bq/kg 乾であり、平成 21 年度調査の 0～5 cm 濃度 2.3×10^{-3} Bq/kg 乾とほぼ等しかった。

一方、地点 8:弥栄平における各層の I-129 存在比は 0～20 cm 濃度の合計に対し、0～5 cm が 98.3%、5～10 cm が 1.3%、10～20 cm が 0.4% であり、鉛直方向への移行はほとんど見られなかった。なお平成 29～30 年度調査の合計濃度 1.5×10^{-3} Bq/kg 乾と平成 21 年度調査の濃度 1.0×10^{-3} Bq/kg 乾の違いについては、図 3 に示したとおり当該地点の ¹²⁹I/¹²⁷I 原子数比が平成 29～30 年度調査と平成 21 年度調査で同程度であるため、採取場所における濃度のばらつきによるものと考えられる。

図 8 に地点 4:はまなす公園と地点 8:弥栄平の調査地点周辺の状況を示す。はまなす公園は現在使用されておらず、草木が生い茂った状態であった。一方、弥栄平については、山を切り崩して整地した場所であり、その後手を加えられていない状態であるとのことであった。

図 9 に各試料の外観を示す。はまなす公園の試料は黒褐色の黒ボク土で、植物の根などの有機物が多いものであったが、弥栄平の試料は黄褐色の粘土で、土壌の表面に苔が生える程度に水はけが悪いものであった。両地点の土質の違いにより、I-129 の鉛直方向への移行状況が異なっていると考えられる。



図8 地点4:はまなす公園(左)と地点8:弥栄平(右)調査地点周辺の状況



図9 地点4:はまなす公園(左)と地点8:弥栄平(右)の試料

4. まとめ

平成29～30年度の調査結果は、以下のとおりである。

- ・ $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比(採取深度0～5 cm)は、アクティブ試験開始後の平成21年度調査と同程度であり、平成11～12年度のバックグラウンド調査より高めであった。平成29～30年度調査においても再処理工場のアクティブ試験の影響が認められた。
- ・平成21年度調査と同様、再処理工場の年間の風向割合の高い風下方向となる地点で原子数比が高めとなる傾向が見られ、同工場から放出された気体廃棄物の影響と考えられる。なお、原子数比は大気圏内核実験後のバックグラウンドと同程度であった。
- ・地点4:はまなす公園ではI-129の鉛直方向への移行が見られたが、地点8:弥栄平では移行がほとんど見られなかった。土質や調査地点周辺の状況の違いによりI-129の移行状況が異なっていると考えられる。

文 献

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

編 集 委 員

竹ヶ原 仁（委員長） 秋庭雅彦（副委員長） 澤田 譲 木村芳伸
神 俊雄 玉熊義久 安積 潔

青森県原子力センター所報 第13号 (2018)

平成31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

