

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報

第 2 号

平成 19 年度

Bulletin

Of

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.2 (2007)

青森県原子力センター

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

はじめに

青森県原子力センターは、青森県環境保健センターの旧放射能部（青森市）及び六ヶ所放射線監視局（六ヶ所村）の機能を再編成し、総合的な原子力施設に係る監視機関として平成15年度に設置されました。

当センターは、これまで所管してきた環境放射線モニタリング業務に、新たに日常的に原子力施設に立ち入りし安全を確認する業務を加え、また、研究業務の強化のため独立した研究部門としての青森市駐在を設け、安全監視課、分析課、青森市駐在及び東通村駐在の体制としています。

調査研究については、青森市駐在が中心となってモニタリング結果の評価上の課題となっているものについて取り組んでおり、また、各課ではモニタリングや補足調査等で得られた知見について解析するなどの取り組みを行っています。

これらのモニタリングに関する調査研究は、モニタリング調査結果の評価に関する職員の技術能力の維持・向上につながるものであり、また、得られた研究成果をモニタリング結果の評価に資することができる観点から、環境放射線モニタリングを行う機関として欠かすことができない重要な業務と考えています。

調査研究の成果については、当センター設立前において、青森県環境保健センター所報等への投稿や学会等での発表を行ってきており、新組織となってからも積極的に学会等で発表し、また、昨年度は青森県原子力センター所報を創刊しました。

今回、所報第2号を発刊するに当たり、新たに当該年度の調査研究事業報告を加え、「研究報告」、「技術報告」、「学会等発表要旨」、「年度調査研究事業報告」の四つの構成を基本とすることとしました。御高覧の上、御意見、御教示を賜りたくお願い申し上げます。

なお、年度調査研究事業報告については、調査研究事業の年度計画に基づいて実施した当該年度の内容あるいは得られた結果をとりまとめたものであり、これまではホームページで概要を公表してきておりました。今後、それぞれのテーマごとに成果が得られたものから順次、研究報告等としてまとめて参ります。

平成20年3月

青森県原子力センター
所長 齋藤 稔

目 次

I 研究報告

1. 空間放射線量率測定結果に基づく施設起因の線量の推定・評価方法の検討・・・・・・・・ 3
大久保英樹 庄司博光 木村秀樹 齋藤 稔 工藤英嗣
永井 進

2. 六ヶ所再処理工場周辺環境における Pu 同位体及び Am-241 濃度調査
ー施設操業前のバックグラウンド調査ー・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 17
工藤達晃 木村芳伸 木村秀樹 齋藤 稔

II 技術報告

1. 牧草地土壌中の放射性物質等分布調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 27
三浦誓也 工藤俊明

III 学会等発表要旨・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 33

IV 平成 19 年度調査研究事業報告・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 39

I 研 究 報 告

空間放射線量率測定結果に基づく施設起因の線量の推定・評価方法の検討

大久保英樹 庄司博光 木村秀樹
齋藤 稔 工藤英嗣*1 永井 進*2

平成18年3月31日から開始された六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験(使用済燃料による総合試験)による使用済燃料のせん断・溶解に伴い、環境における空間放射線量率の測定値に施設起因と考えられる変動が認められている。

このため、空間放射線量率と Bi-214 から放出される γ 線 (1.76MeV 等) の計数率に着目した SCA (Bi) 及び Tl-208 から放出される γ 線 (2.62MeV) の計数率に着目した SCA (Tl) との関係から求めた重回帰式により、空間放射線量率の自然寄与分を推定し、空間放射線量率測定値から差し引くことにより施設からの寄与分を弁別する方法を開発した¹⁾。

また、本弁別方法を六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験中のモニタリング結果に適用した結果、空間放射線量率の施設寄与分を良く弁別できること及び施設起因の線量の推定・評価方法として有効であることを確認した。

1. はじめに

1.1 再処理工場と環境モニタリング

下北半島の付け根に位置する青森県六ヶ所村には、原子燃料サイクル施設が立地しており、その一翼を担う六ヶ所再処理工場は、平成20年の本格操業に向け、平成18年3月31日から使用済燃料を用いた総合試験であるアクティブ試験を開始している。

六ヶ所再処理工場は、原子力発電所で使用した核燃料を一定期間冷却し、せん断・溶解した後、溶媒抽出によりウラン(U)及びプルトニウム(Pu)を取り出す施設であり、年間800t・Uの使用済燃料の処理能力を持つ、我が国初の商業用大型再処理施設である。同工場は、国内外の最良の技術を用いて、再処理に伴い発生する廃棄物をできる限り取り除く設計とされているが、その一部は排気又は排水とともに大気、海洋へ放出される。国の安全審査において、操業に伴い放出される放射性物質による施設周辺住民等が受ける線量は年間約0.022mSvと評価されており、国が定めている年線量限度の1mSvを十分下回るものである。

青森県は、再処理工場周辺地域の安全確保及び環境の保全を図るため、平成元年4月から環境放射線等に係るモニタリング(以下、「モニタリング」という。)を実施してきており、その一環として、環境における空間放射線量率の常時監視を行っている。

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*2：日本原燃㈱

1.2 測定値の変動要因

γ 線を測定する空間放射線量率の主な起源とその変動要因は図1のとおりであり、通常環境における空間放射線量率への寄与は、大地や建築物からの放射線、宇宙線や大気中の放射性物質からの放射線であり、変動要因として、雨や雪に取り込まれて地表面に落下したラドンの壊変生成物や原子力施設から放出された放射性物質の影響等による上昇、積雪により大地からの放射線が遮へいされることによる低下がある。

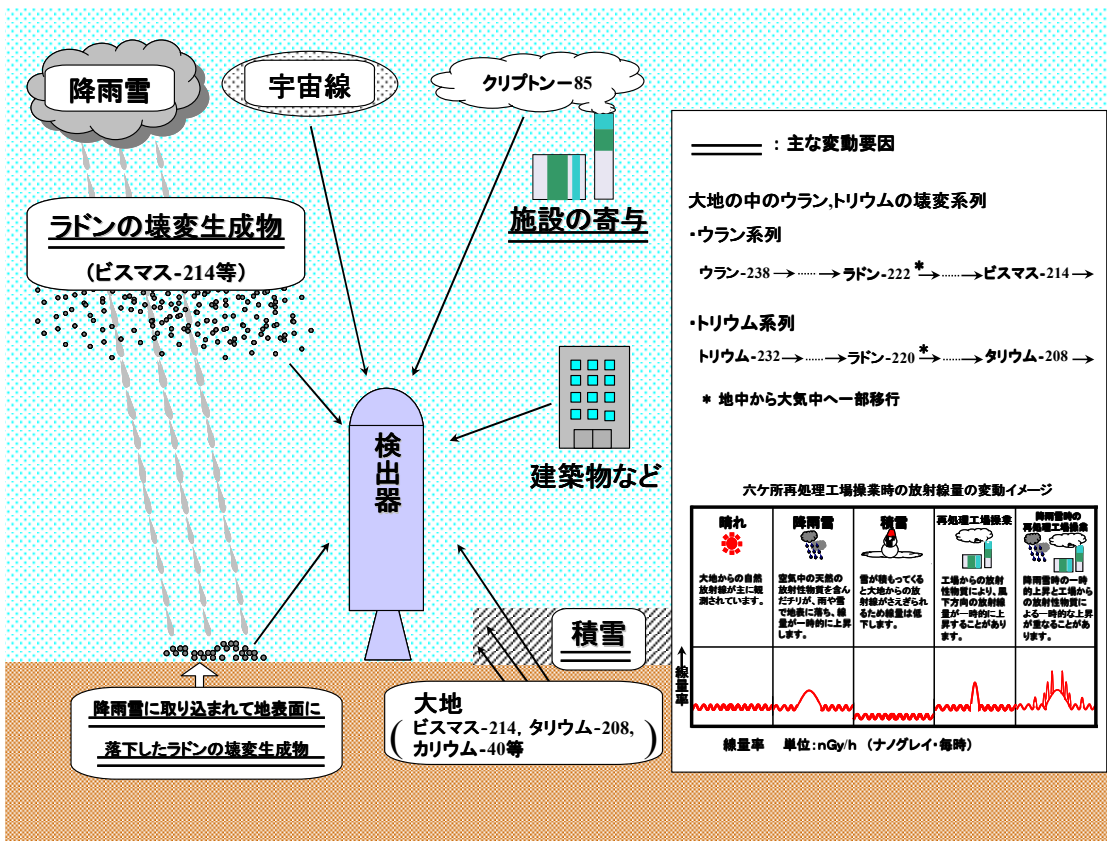


図1 空間放射線量率の主な起源と変動要因

再処理工場における使用済燃料のせん断・溶解に伴い、最も多く放出される放射性物質²⁾である Kr-85 は、主として β 線を、わずかに γ 線も放出する放射性希ガスである。

再処理工場から Kr-85 が放出された場合のモニタリングステーションにおける測定値の変動状況は図2のとおりであり、空間放射線量率は、検出器に到達した γ 線を測定するため、Kr-85 の放射性プルーム（雲）がモニタリングステーション周辺に到達した場合のほか、上空を通過した場合にも上昇する。また、降雨時には、降雨と施設からの影響が同時に見られることがある。

一方、大気中の気体状 β 放射能は、モニタリングステーション付近の空気に含まれる気体状の放射性物質（ β 線）を測定することから、プルームがモニタリングステーション付近に到達することにより初めて上昇し、降雨等の自然からの影響による変動はみられない。

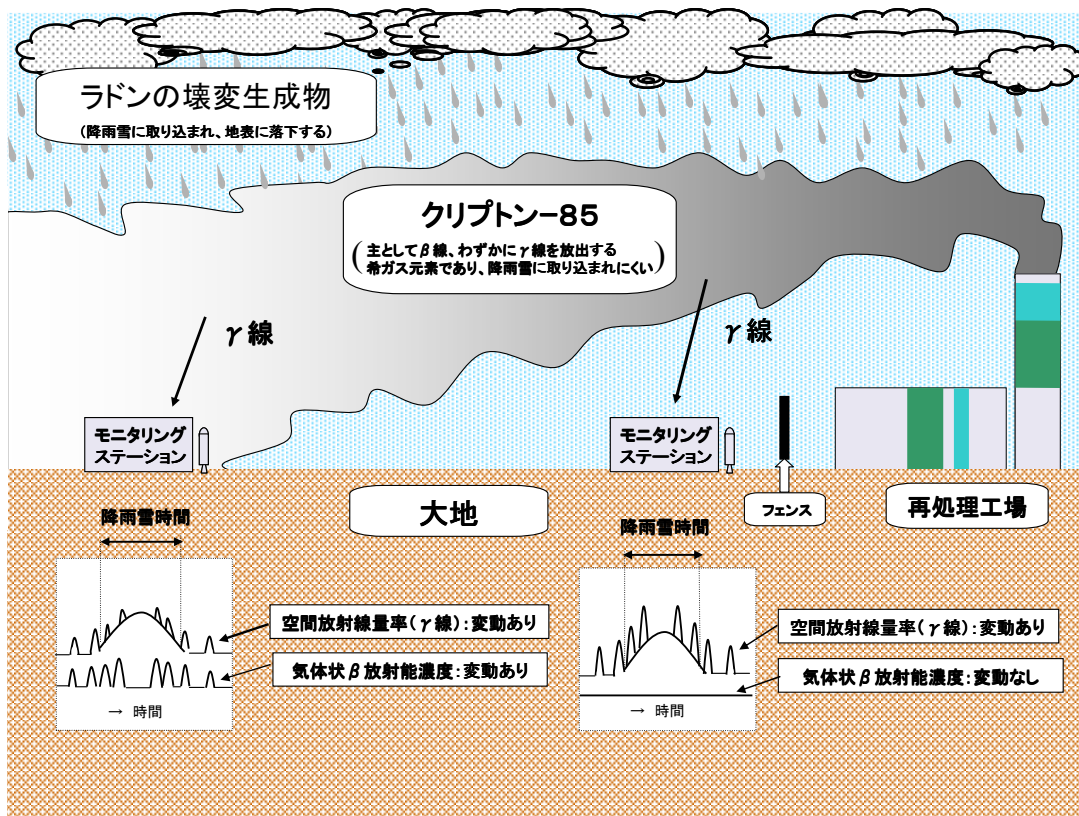


図2 モニタリングステーションにおける測定値の変動状況

1.3 本研究の目的

六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験開始以降、モニタリング結果に変動が認められており³⁾、特に、空間放射線量率は、降雪などの自然現象によっても大きく変化することから、施設からの影響を把握し、住民等の線量を現実的に評価するためには、空間放射線量率モニタリング結果における施設寄与分を、環境のバックグラウンド放射線から弁別する必要がある。

空間放射線量率の弁別については、空間γ線スペクトルをレスポンスマトリックス法で処理し得られる線量率から、天然放射性核種起因の推定バックグラウンド線量率を差し引いて人工放射線寄与を評価する方法⁴⁾が開発され、環境放射線モニタリングに活用されているが、本県のような多雪地域においては、積雪等により散乱線の状況が変化するため、推定バックグラウンド線量率の誤差が大きくなる。

本研究においては、六ヶ所再処理工場操業前の空間放射線モニタリング結果を解析することにより、簡便な方法で空間放射線量率の自然寄与分を推定し、空間放射線量率測定値から差し引くことで同工場に起因する放射線を弁別しリアルタイムで監視するとともに、γ線による施設起因の実効線量を推定・評価する方法を確立することを目的として検討を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地点

原子燃料サイクル施設周辺地域における県 5 局、事業者（日本原燃㈱）3 局のモニタリングステーションの配置状況を図 3 に示す。

各モニタリングステーションにおいては、連続モニタにより、空間放射線量率、大気中の気体状 β 放射能の測定を行っており、本研究においては、これらの測定結果を用いて検討した。

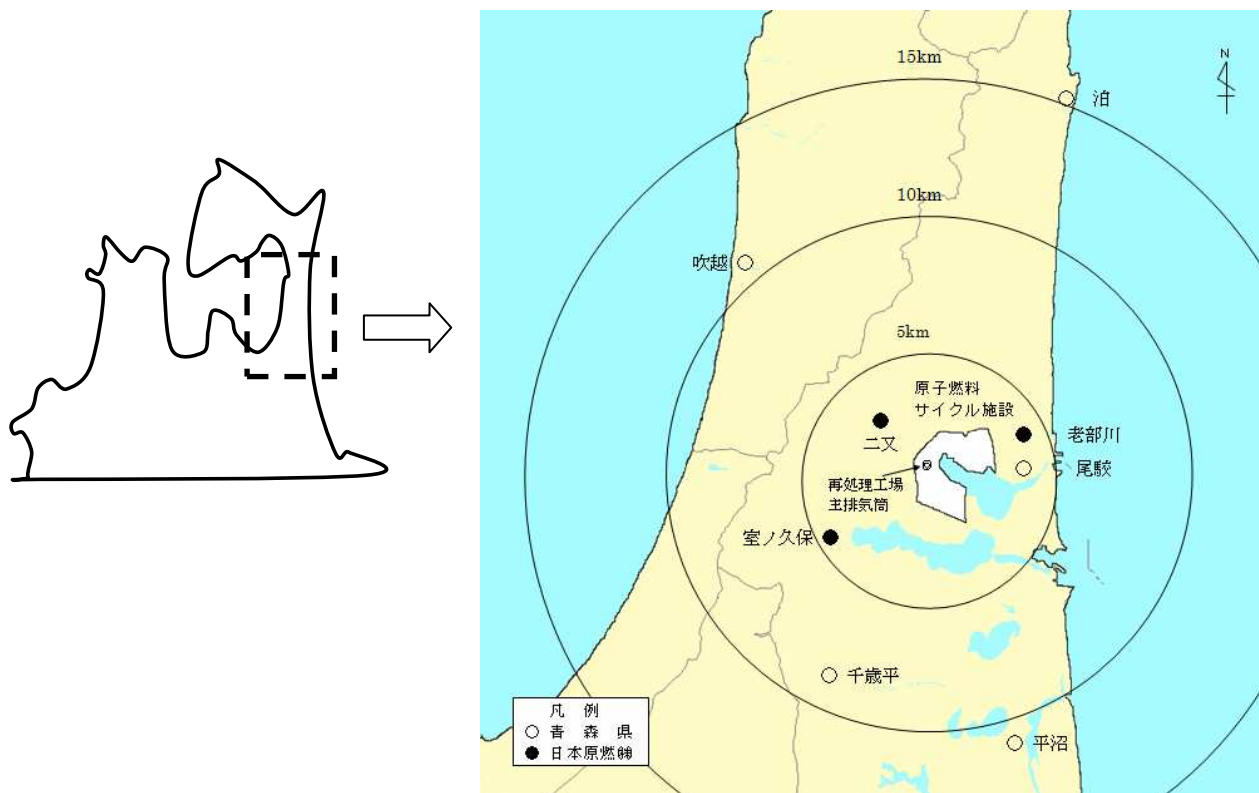


図 3 モニタリングステーション配置図

2.2 測定装置

モニタリングステーションにおける空間放射線量率及び大気中の気体状 β 放射能の測定装置及び測定方法は、表 1 のとおりである。

表 1 空間放射線量率、大気中の気体状 β 放射能の測定装置及び測定方法

項 目	測 定 装 置	測定方法
空間放射線量率	<ul style="list-style-type: none"> 低線量率計 3inΦ×3inNaI(Tl)シンチレーション検出器 (温度補償方式加温装置付)、G(E)関数荷重演算方式 	検出器実効中心 地上 1.8m
大気中の気体状 β 放射能	<ul style="list-style-type: none"> β線ガスモニタ プラスチックシンチレーション検出器 (350×300×2mm)、検出槽容量 約 30L 	大気吸引量：約 6.5L/分 吸引口位置：地上1.5~2.0m

空間放射線量率測定装置には、 γ 線による空間放射線量率のほか、特定のエネルギー範囲の γ 線を計数するシングルチャンネルアナライザ（SCA）を備えている。

晴天時・降雨時における環境 γ スペクトルと Bi-214 から放出される γ 線（1.76MeV,2.20MeV）を含むエネルギー領域に設定した SCA (Bi) 及び Tl-208 から放出される γ 線（2.62MeV）を含む領域に設定した SCA (Tl) のエネルギー範囲を図 4 に示す。

降雨時においては、SCA (Bi) 計数値が高くなっており、また、Bi-214 の 1.76MeV 及び 2.20MeV の γ 線のコンプトン散乱により、SCA (Bi) の低エネルギー側で全体的にスペクトルが高くなって

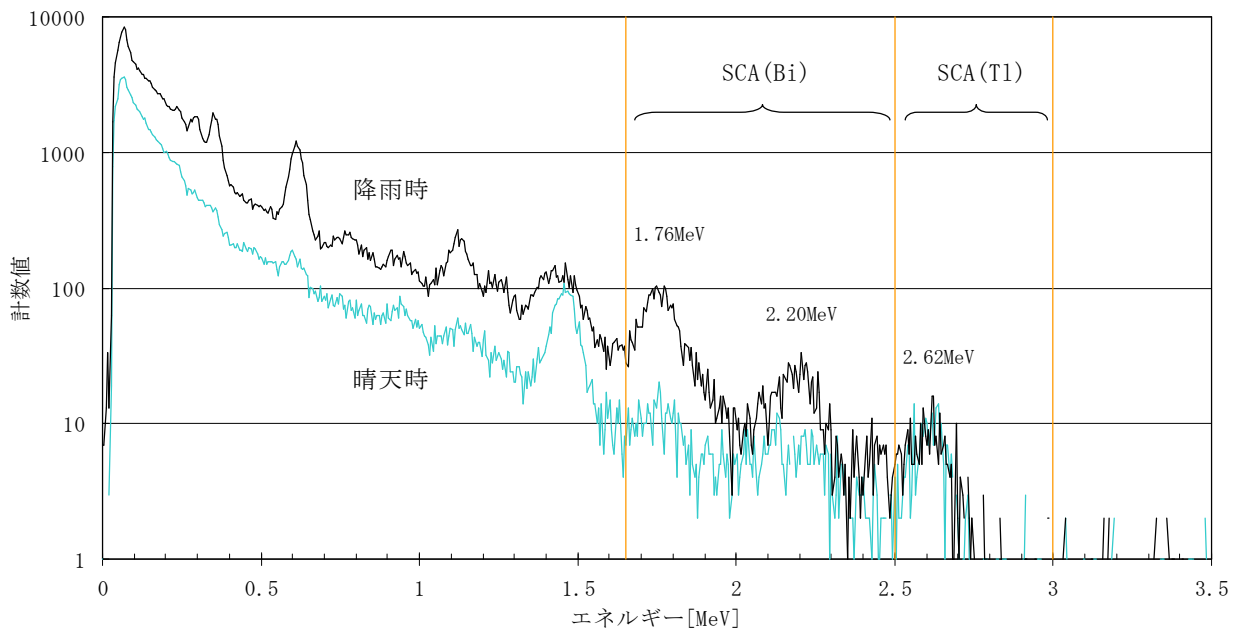


図 4 環境 γ スペクトルにおける SCA (Bi)・SCA (Tl) のエネルギー範囲

2.3 収集装置

測定装置から得られた空間放射線量率などの測定データは、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し、2分間の平均値（2分値）5個を平均して10分値を、さらに10分値6個を平均して1時間値を求めた。

3. 結果と考察

3.1 回帰分析による自然放射線の推定

(1) 測定値の変動状況

アクティブ試験開始前である平成 17 年度 1 年間の尾駈局における空間放射線量率、積雪深、SCA (Bi) 及び SCA (Tl) の 1 時間値の推移を図 5 に示す。

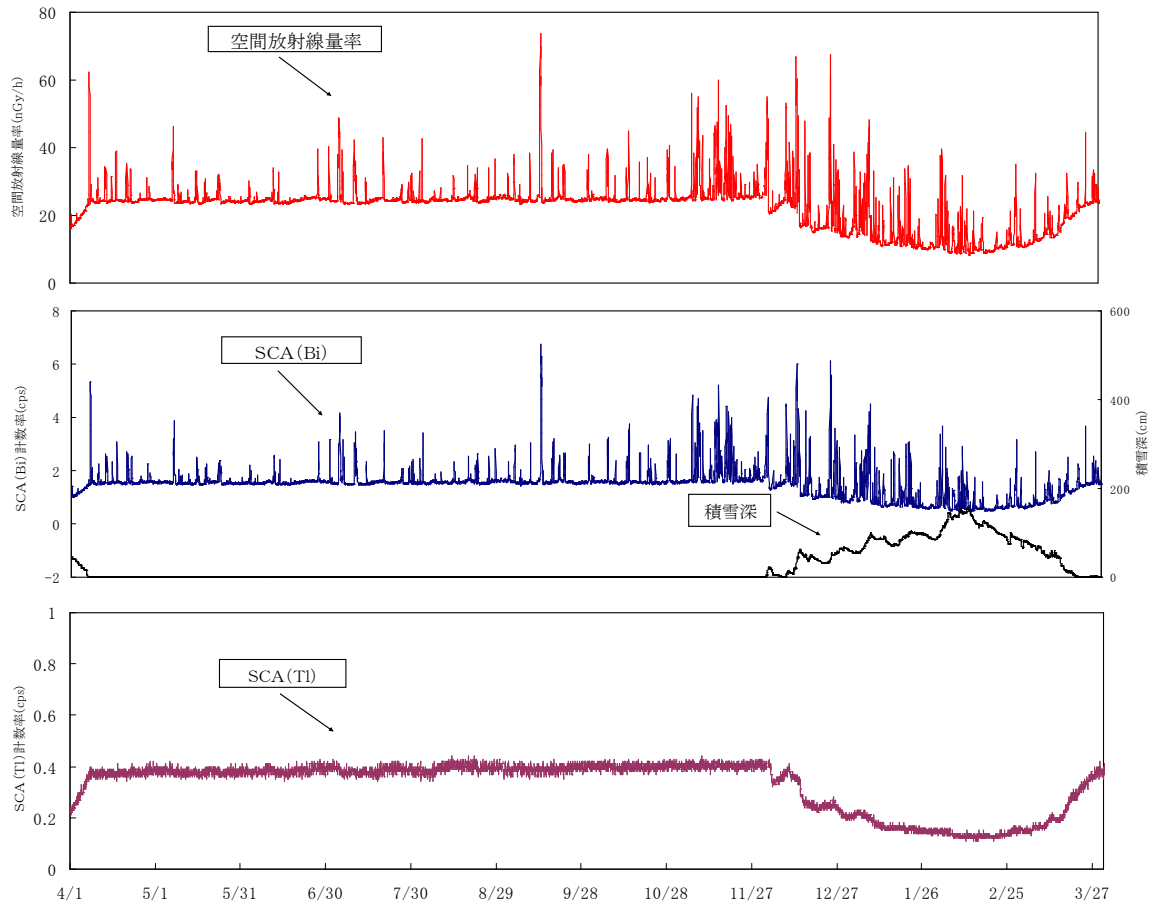


図5 空間放射線量率、積雪深、SCA(Bi)及びSCA(Tl)の推移（尾駁局・平成17年度）

空間放射線量率とSCA(Bi)は、年間を通じて、降雨雪の影響を受けて短時間で大きな変動を示すとともに、積雪期には、大地からの放射線が遮へいされるため、積雪が多いほどベースラインが低下している。Rn-222の壊変系列を図6に示す。空間放射線量率の上昇については、大地などから散逸したウラン系列のRn-222の半減期が比較的長いことから大気中に広く拡散しており、その壊変生成物（主としてBi-214）が降雨雪とともに、地上へ落下することによるものと考えられる⁵⁾。

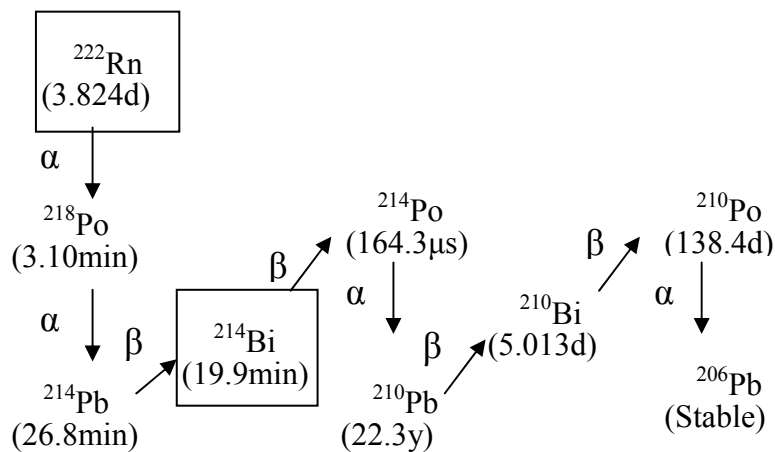


図6 Rn-222の壊変系列

SCA(Tl)は、降雨や降雪による変動はほとんどなく、積雪が多いほどベースラインが低下する変動を示している。Rn-220の壊変系列を図7に示す。降雨雪により変動しないのは、大地などから散逸するトリウム系列であるRn-220の半減期が55.6sと短く大気中に広く分布できないため、その壊変生成物であるTl-208は、降雨雪とともに地上に落下することがほとんどないためと考えられる。また、Tl-208は、Bi-214と同様、土壤中に多く存在することから、積雪による遮へい効果が見られている。

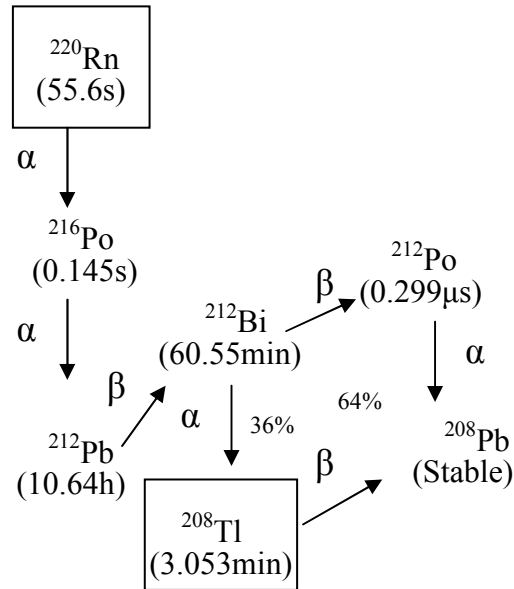


図7 Rn-220の壊変系列

(2) 回帰分析

空間放射線量率とSCA(Bi)は、同様の変動を示していることから、空間放射線量率の自然寄与分を推定する指標として、SCA(Bi)を変数とする回帰分析により単回帰式を求め、この式から算出される値を「単回帰線量率」とした。

$$\text{単回帰線量率} = a \times \text{SCA (Bi)} + b \quad \dots \textcircled{1}$$

[a, b : 単回帰分析により求めた定数
SCA(Bi) : Bi-214領域の計数率(cps)]

アクティブ試験開始前の平成17年度尾駸局の空間放射線量率及びSCA(Bi)計数率を用いて①式を作成し、この式とSCA(Bi)計数率から単回帰線量率を求める。空間放射線量率の測定値から、この単回帰線量率を差し引いた値を1年分プロットしたのが図8である。

単回帰線量率が空間放射線量率の自然寄与分を良く表している場合には、これらの差は0に近似すると考えられるが、ベースラインが積雪のない時期にはプラス側に、積雪期にはマイナス側にシフトしている。また、降雨雪により空間放射線量率が高くなった場合にはマイナスとなる場合が多い。

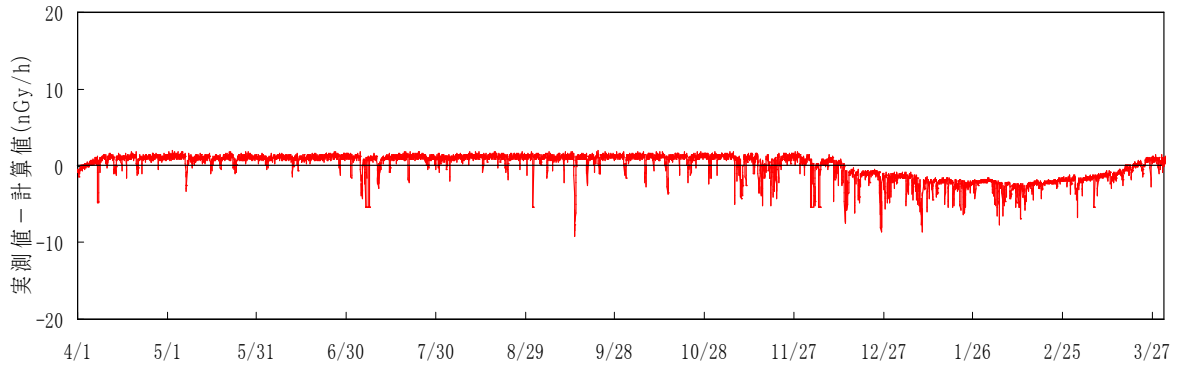


図 8 空間放射線量率と単回帰線量率（計算値）の差

平成 17 年度尾駮局における空間放射線量率と SCA (Bi) 計数率の関係を図 9 に示した。

両者の間には、全体的に正の相関が認められるが、積雪のない時期と積雪期で異なる関係となっている。また、降雨雪のない場合の空間放射線量率は、積雪のない時期には約 25nGy/h 程度であるが、積雪により約 10nGy/h まで低下している。

年間のデータによる回帰式に SCA (Bi) の値を代入して得られる単回帰線量率は、降雨雪がない状況では、積雪のない時期で実際の測定値より低めに、積雪期で実際より高めになっている。また、降雨雪により空間放射線量率が高くなるほど実際の測定値より高く外れている。このようなことが、空間放射線量率と単回帰線量率の差の原因と考えられる。

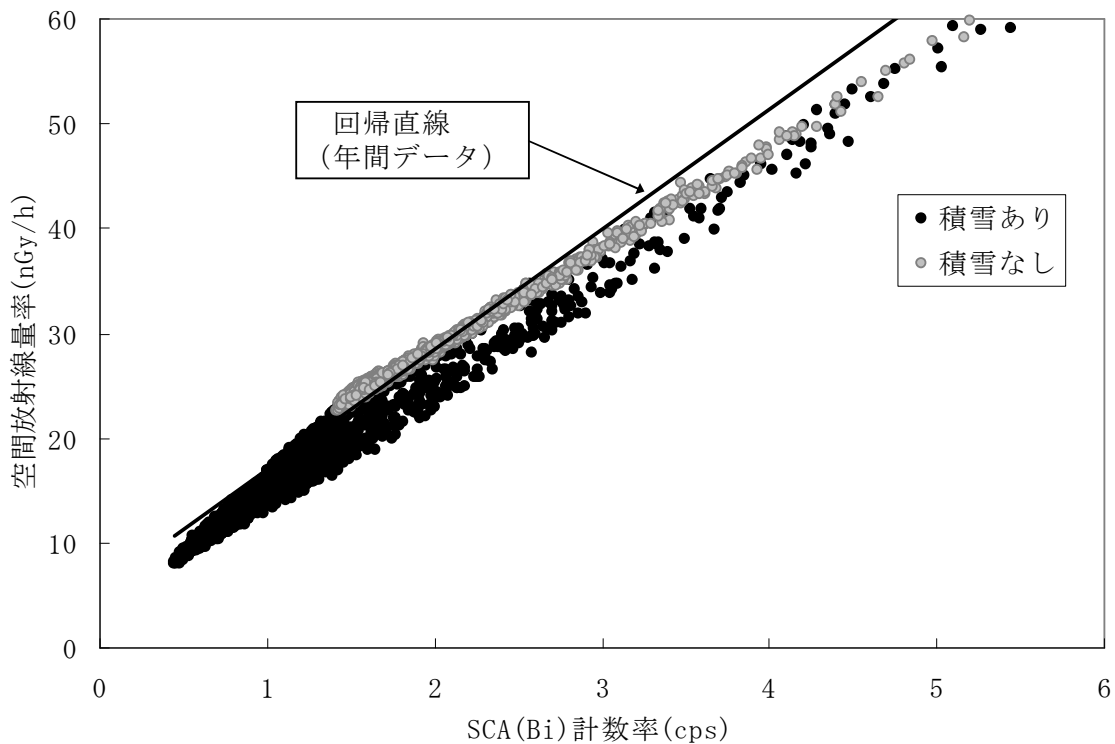


図 9 空間放射線量率と SCA (Bi) 計数率の関係（尾駮局・平成 17 年度）

次に、図 5 に示すとおり、SCA (TI) 計数率が積雪による空間放射線量率の低下の指標になると考えられることから、SCA (Bi) 計数率及び SCA (TI) 計数率を変数とする重回帰分析により、自然放射線を推定することとし、重回帰式から求めた値を「重回帰線量率」とした。

$$\text{重回帰線量率} = (c \times \text{SCA (Bi)}) + (d \times \text{SCA (TI)}) + e \quad \dots \textcircled{2}$$

$$\left[\begin{array}{l} c, d, e : \text{重回帰分析により求めた定数} \\ \text{SCA (Bi)} : \text{Bi-214 領域の計数率 (cps)} \\ \text{SCA (TI)} : \text{TI-208 領域の計数率 (cps)} \end{array} \right]$$

①の場合と同様に、平成 17 年度尾駈局における測定値に適用し、空間放射線量率の測定値から、重回帰線量率を差し引いた値を 1 年分プロットしたのが図 10 である。

年間をとおして、大地からの放射線、降雨雪の影響による上昇分及び積雪の影響による低下が除かれており、ほぼ 0 に近似している。表 2 は、空間放射線量率と重回帰線量率の差の変動分布をまとめたものであり、平均値は $0.00 \pm 0.010 \text{ nGy/h}$ (99%信頼区間)、標準偏差は 0.36、最小値～最大値は $-1.5 \text{ nGy/h} \sim 2.7 \text{ nGy/h}$ 、全データの 99%以上が 1 nGy/h の範囲内であり、重回帰線量率は空間放射線量率測定値とよく一致している。また、尾駈局を含む他のモニタリングステーションにおける平成 15 年度から平成 17 年度のモニタリング結果に適用したところ、ほぼ同様の結果が得られた。

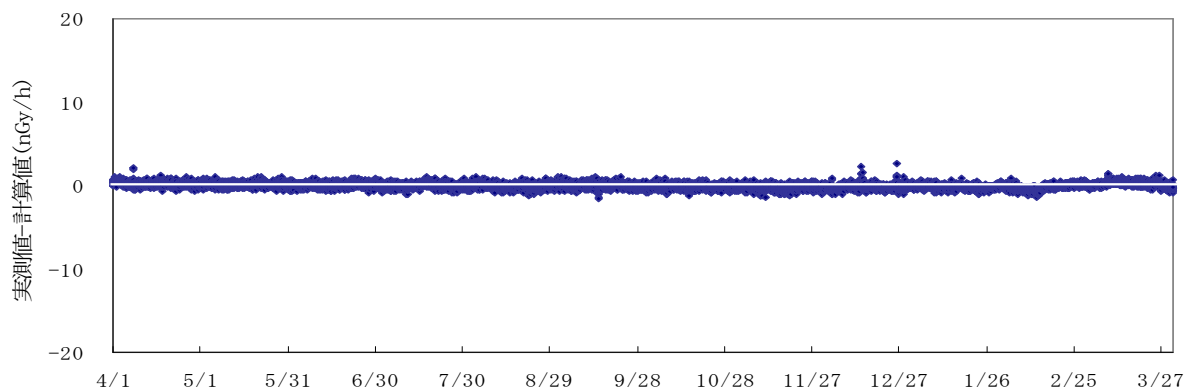


図 10 空間放射線量率と重回帰分析による推定自然線量率（計算値）の差

表 2 空間放射線量率測定値と重回帰線量率の差の変動分布 (nGy/h)

平均値	標準偏差	最小値	最大値	差		
				0～1	1～2	2～3
0.00 ± 0.010 (99%信頼区間)	0.36	-1.5	2.7	8,636個 (99.1%)	73個 (0.8%)	4個 (0.1%)

以上より、重回帰線量率は、空間放射線量率の自然寄与分の推定方法として有効と考えられることから、これを「推定自然線量率」とし、施設寄与分の弁別及び線量の推定・評価を行うこととした。

なお、表 2 に示す差が 1nGy/h 以上となった時間には比較的強い降雨雪が観測されている。降雨雪による空間放射線量率の上昇には、雨や雪に取り込まれて地表面に落下したラドンの壊変生成物である Bi-214、Pb-214 が寄与しており、これら核種の寄与率の比が変化したことが原因と考えられる。差が 1nGy/h 以上の個数は全データの 0.9%と少ないものの、この場合の弁別方法あるいは評価方法については今後の検討課題として取り組むこととする。

3.2 アクティブ試験による影響の弁別事例

施設影響の可能性がない期間の空間放射線量率、SCA (Bi) 計数率及び SCA (TI) 計数率の関係から求めた推定自然線量率は、空間放射線量率の自然寄与分とよく一致し、空間放射線量率測定値から推定自然線量率から差し引くことにより、施設寄与分を弁別することができると考えられる。この方法を SCA 計数率による弁別方法とする。

図 11 に、再処理工場においてアクティブ試験が行われていた平成 18 年 10 月の尾駸局における空間放射線量率等の 10 分値の推移を示す。

Case1 は、降雨時に再処理工場からの影響があったと考えられる場合で、降雨の影響を示す② SCA (Bi) の上昇と、施設寄与を示す気体状 β 放射能の上昇が同時にみられており、①「空間放射線量率」には、降雨による上昇分と施設に起因する上昇分が含まれる。一方、③「SCA 計数率による弁別結果」は、大地からの寄与分や降雨による上昇分は取り除かれ、施設寄与分が弁別されている。

Case2 は、降雨がない時期に再処理工場からの影響があったと考えられる場合で、② SCA (Bi) の変動はなく、①「空間放射線量率」及び気体状 β 放射能が上昇していることから、①には、施設に起因する上昇分のみが含まれる。この①の上昇分と施設寄与分としての③「SCA 計数率による弁別結果」は、よく一致している。

Case3 は、Case2 と同様に、降雨がない時期に再処理工場からの影響があったと考えられる場合で、①「空間放射線量率」の上昇分と③「SCA 計数率による弁別結果」の上昇分はよく一致している。ただし、Case2 の場合に同時期に上昇していた気体状 β 放射能が変動していない。

これは、気体状 β 放射能は、測定局周囲の空気に含まれる気体状の放射性物質 (β 線) を測定することから Kr-85 が測定局付近まで移流・拡散しないと上昇しないが、 γ 線の飛程は β 線と比べて長いため、再処理工場から放出された Kr-85 が測定局の上空を通過したような場合に、このような現象が起こるものと考えられる。

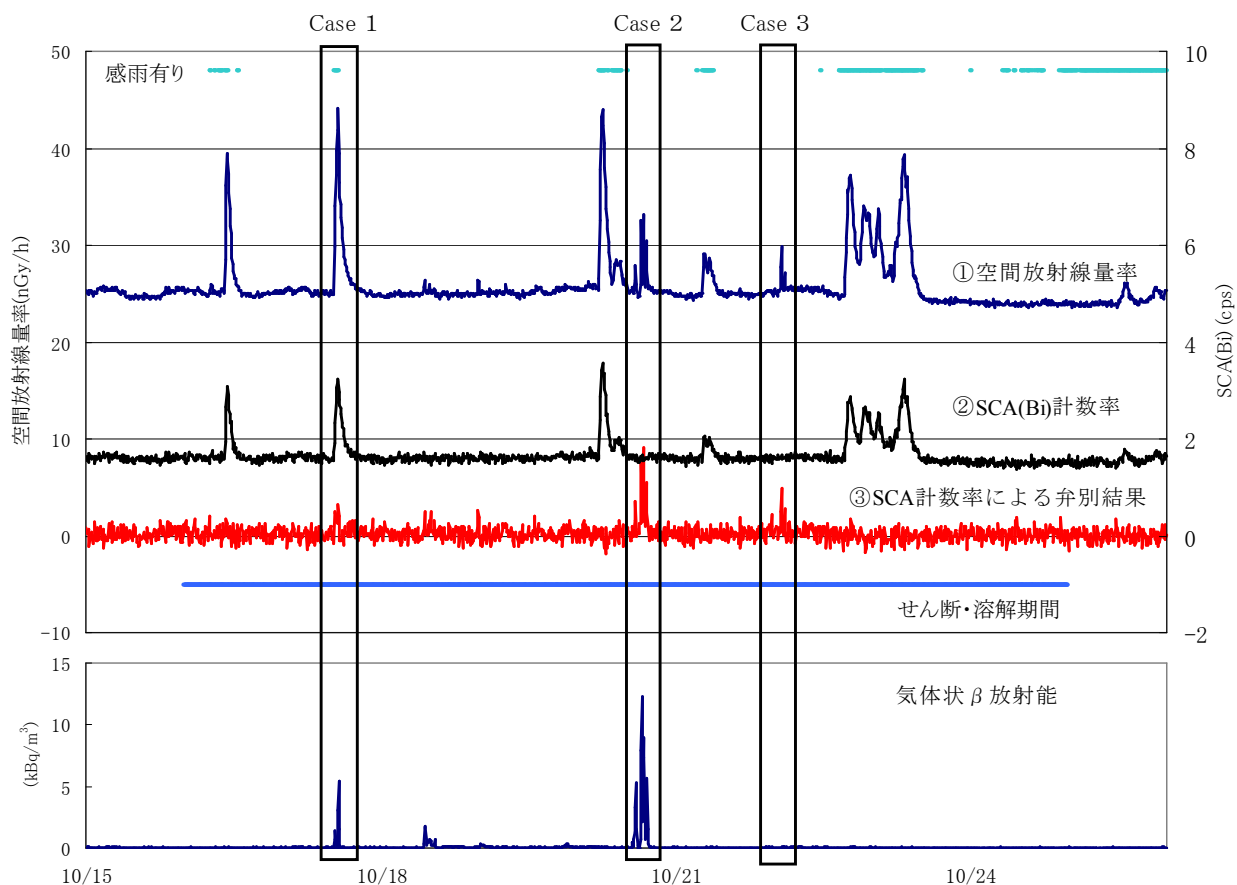


図 11 尾駱局におけるアクティブ試験の影響（平成 18 年 10 月・10 分値）

3.3 実効線量の推定・評価

(1) 推定・評価方法

SCA 計数率による弁別方法を用いて得られた値を施設寄与分とみなし、これを全て積算することにより実効線量を推定する。本推定方法を③式に示す。

$$\text{実効線量}(\mu\text{Sv}) = \sum^n \{ (\text{測定値} - \text{推定自然線量率})(\text{nGy/h}) \} \times H/60(\text{h}) \times 0.8(\text{Sv/Gy})/1000 \cdots \textcircled{3}$$

積算値(nGy)

H:1 時間値の場合は 60, 10 分値の場合は 10
n:データ個数

〔「測定値－推定自然線量率」の平均値(nGy/h)〕 × n × H/60(h)

平成 17 年度は再処理工場において使用済燃料のせん断・溶解の行われていない年度であり、表 2 に示す 17 年度 1 年間の期間の尾駱局の測定結果について③式により試算すると、 $0.00 \pm 0.070 \mu\text{Sv}$ (99%信頼区間)であった。このことから、本法では概ね $1 \mu\text{Sv}$ 以下のレベルまで評価できると考えられる。なお、実効線量の有意な最小値については、今後の試算結果を踏まえながら検討を進めることとする。

(2) 実効線量の試算（1 時間値）

平成 18 年度の使用済燃料のせん断・溶解が行われた期間について③式により実効線量を試算し、平成 18 年度 1 年間の実効線量として表 3 に示す。モニタリングステーション各測定局における試算結果は 0.1 μ Sv/年未満（0.093～-0.026 μ Sv/年）であり、極めて低い値であった。なお、推定自然線量率を算出するための重回帰式は、測定局毎に、平成 18 年度 1 年間の使用済燃料のせん断・溶解期間を除いた測定値から求めた。

表 3 実効線量の試算結果（1 時間値）

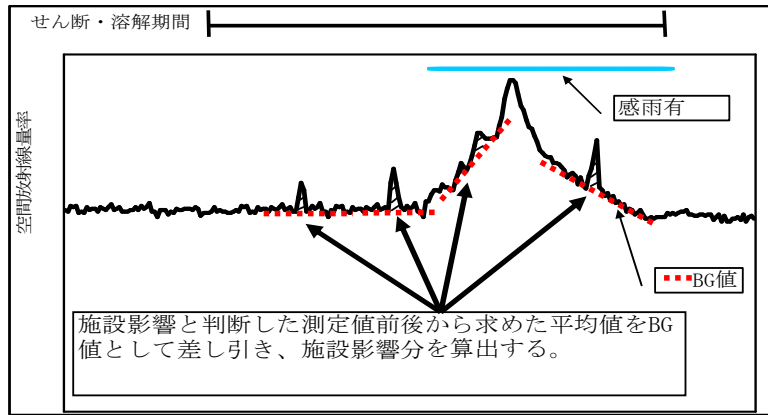
モニタリング ステーション	SCA 計数率による弁別結果(測定値－推定自然線量率)					実効線量 (μ Sv/年)
	平均値 (nGy/h)	標準偏差 (nGy/h)	最小値 (nGy/h)	最大値 (nGy/h)	積算値 (nGy/年)	
尾駁（県）	0.041	0.34	-1.0	3.7	57	0.045
千歳平（県）	-0.004	0.33	-1.3	0.9	-6	-0.005
平沼（県）	0.083	0.26	-0.9	0.9	116	0.093
泊（県）	0.000	0.31	-1.3	1.0	0	0.000
吹越（県）	0.022	0.28	-1.1	1.4	30	0.024
老部川（事）	0.043	0.32	-1.0	2.1	60	0.048
二又（事）	-0.023	0.38	-1.5	2.4	-32	-0.026
室ノ久保（事）	-0.001	0.37	-1.4	1.4	-2	-0.002

県：青森県設置 事：日本原燃(株)設置

(3) 簡易的な作図法との比較

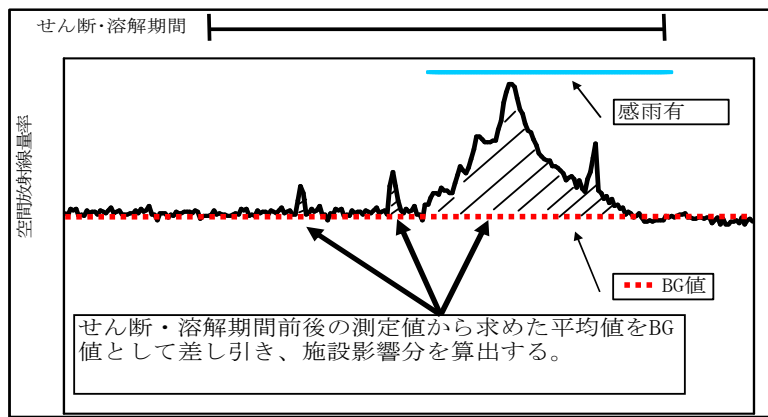
図 12 に示す簡易的な作図法により、降雨雪による上昇分を簡易的に弁別する方法（A 法）と降雨雪による上昇分を含める方法（B 法）により、県のモニタリングステーションを対象として、平成 18 年度 1 年間における実効線量を試算した。これらの方法は、測定値の上昇分を目視により求めることから、より測定値の変動状況を把握しやすい 10 分値の詳細なデータを用いて行った。試算結果は表 4 に示す。表 4 には、比較のため、10 分値を用いた SCA 計数率弁別方法による実効線量を C 法として併せて記載した。

○ 降雨雪による上昇分を簡易的に弁別する方法（A法）



施設寄与分として算出した線量率にGyからSvの換算係数である0.8(Sv/Gy)を乗じ、実効線量を算出する。

○ 降雨雪による上昇分を含める方法（B法）



施設寄与分として算出した線量率にGyからSvの換算係数である0.8(Sv/Gy)を乗じ、実効線量を算出する。

図 12 実効線量の試算に係る算出方法（10分値）

表 4 実効線量の試算結果の比較（10分値）

($\mu\text{Sv}/\text{年}$)

	降雨雪による上昇分を簡易的に弁別する方法(A法)	降雨雪による上昇分を含める方法(B法)	SCA計数率による弁別方法(C法)
尾駸局	0.013	6.5	0.057
千歳平局	0.001	4.8	0.012
平沼局	0.002	3.6	0.10
泊局	0.000	5.0	0.012
吹越局	0.001	5.9	0.032

降雨雪による上昇分を簡易的に弁別したA法は、C法と同様に、降雨雪による上昇分を含めたB法に比較し極めて低く、施設寄与分は降雨雪による自然影響に比べ極めて低い値であった。

なお、A法がC法より低くなっている。これは、A法では降雨雪による影響に隠れるような小さな施設寄与による変動については弁別不可能であるが、一方、A法では、これらを弁別し積算していると考えられ、SCA計数率による弁別方法の有効性が認められた。

5. まとめ

- 1) 環境における空間放射線量率の自然寄与分について、SCA (Bi) 及び SCA (Ti) を指標とする重回帰分析を行い、得られた重回帰式により求めた値を推定自然線量率とした。本法により平成 17 年度尾駸局の測定結果 (1 時間値) を用いて算出した推定自然線量率と実測値との差の平均値は $0.00 \pm 0.010 \text{ nGy/h}$ (99%信頼区間) でありよく一致した。
- 2) 実測値から推定自然線量率を差し引く方法を SCA 計数率による弁別方法として、六ヶ所再処理工場のアクティブ試験期間である平成 18 年 10 月のモニタリング結果について、本弁別方法を適用した結果、施設寄与分を良く推定できることを確認した。
- 3) SCA 計数率による弁別方法を用いて、平成 18 年度 1 年間における実効線量の試算を行い、簡易的な作図法と比べ、その有効性を確認した。

文 献

- 1) 大久保英樹, 庄司博光, 木村秀樹, 齋藤稔, 工藤英嗣, 永井進: 空間放射線量率の施設寄弁別方法の開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, F39(2007)
- 2) 日本原燃株式会社: 再処理事業指定申請書 (平成元年 3 月)
- 3) 青森県: 原子力施設環境放射線調査報告書 (平成 18 年度報)
- 4) 今野達也, 木立博, 石川陽一, 加賀谷秀樹: レスポンスマトリクス法を活用した人工放射線寄与線量率の測定に関する検討, 宮城県原子力センター年報, 19, 46-52(2001)
- 5) (財) 原子力安全研究協会: 環境放射線モニタリング (昭和 62 年 7 月)

六ヶ所再処理工場周辺環境における Pu 同位体及び Am-241 濃度調査 —施設操業前のバックグラウンド調査—

工藤達晃 木村芳伸 木村秀樹 齋藤 稔

青森県は、六ヶ所村に立地されている原子燃料サイクル施設の周辺地域において、環境放射線等モニタリングを実施しており、その一環として環境試料中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度の調査を行っている。平成 18 年度までの調査結果をもとにこれら核種の表土、湖底土及び海底土中の放射能濃度レベル及び放射能比についてとりまとめた。

放射能濃度レベルは、いずれの核種においても表土及び海底土より湖底土において高い傾向が見られた。放射能比は、Pu-238/Pu-239+240、Am-241/Pu-239+240 ともに我が国の他の地域における調査結果と同程度であり、また Pu-238/Pu-239+240 放射能比は北半球におけるグローバルフォールアウトと同程度であった。

1. はじめに

プルトニウムはアクチノイドに属する元素であり、現在環境中に存在する主な同位体は Pu-238、Pu-239、Pu-240、Pu-241 である。このうち、Pu-238、Pu-239、Pu-240 は α 放射体である。Pu-241 は、半減期 14.4 年で β 壊変し α 放射体である Am-241 を生成する。

現在環境中に存在する Pu-238、Pu-239、Pu-240、Pu-241 及び Am-241 の起源はほとんどが大気圏内核実験によるグローバルフォールアウトとされている。また、Am-241 は Pu-241 から生成されるため、環境中において Am-241 が増加することが予想されている¹⁾。

青森県六ヶ所村には日本原燃株式会社の原子燃料サイクル施設が立地されている。そのうちの再処理工場は原子力発電所で使用した原子燃料を一定期間冷却し、せん断・溶解した後溶媒抽出によりウラン及びプルトニウムを取り出す施設であり、Pu-238、Pu-239、Pu-240、Am-241 の環境への放出が想定されている²⁾。

このため、青森県は、原子燃料サイクル施設の周辺地域において、環境放射線等モニタリングを実施しており、その一環として Pu-238 については平成 5 年度から、Pu-239+240 については平成元年度から、Am-241 については平成 14 年度から、環境試料中の放射能濃度の調査を行っている。

環境放射線の調査において、同位体比を求めることは、その起源を推定するために有効である。これまでに我が国における環境試料中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 の放射能比については、福嶋らによる全国の表土の Pu-238/Pu-239+240³⁾、森澤らによる茨城県東海村周辺の表土の Am-241/Pu-239+240⁴⁾、藤田らによるサイクル機構東海事業所周辺の表土の Pu-238/Pu-239+240 及び Am-241/Pu-239+240¹⁾、Yamamoto らによる福井県三方湖、久々子湖の湖底土及び福井県丹生湾の海底土の Pu-238/Pu-239+240 及び Am-241/Pu-239+240⁵⁾、水谷らによる東海再処理施設海洋放出口周辺海域の海底土の Pu-238/Pu-239+240⁶⁾、住谷らによる茨城県東海村沿岸の海底土の Am-241/Pu-239+240⁷⁾が報告されている。

福嶋ら、藤田ら及び水谷らにより、環境試料中の Pu-238/Pu-239+240 放射能比は、大気圏内核実験によるグローバルフォールアウトと同程度であることが報告され^{1)、3)、6)}、また、水谷らにより、使用済燃料及び東海再処理工場からの海洋廃液と大きく異なることが報告されている⁶⁾。これらのことは施設からの寄与の検知に有用であると考えられる。

このようなことから、今後六ヶ所再処理工場から環境への影響評価に資するため、施設周辺地域における表土、湖底土及び海底土中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度レベル、Pu-238 と Pu-239+240 及び Am-241 と Pu-239+240 の放射能比についてとりまとめたので報告する。

2. 調査方法

2.1 試料採取地点

表土は、六ヶ所再処理工場の半径 10km 以内の、施設から東に位置する尾駁、北西に位置する横浜町明神平（以下、横浜町という。）、南西に位置する千歳平、また比較対照として青森市の計 4 地点において採取した。採取地点は、尾駁は六ヶ所村尾駁水道排水施設敷地内、千歳平は千歳平児童公園、横浜町は牧草地、青森市は平成 13 年度までは雲谷小学校跡地、平成 14 年度以降は青森県青年の家の広場である。

湖底土は、六ヶ所再処理工場周辺の湖沼である尾駁沼、鷹架沼及び小川原湖の最深部において採取した。ただし、鷹架沼については平成 3 年度に沼の中央部に防潮堤が建設されたため、平成 4 年度以降は防潮堤より西側、沼の淡水部の最深部において採取した。水深は、尾駁沼では 3.0～4.7m、鷹架沼では平成 3 年度までは 5.7～6.4m、平成 4 年度以降は 0.5～3.0m、小川原湖では 22.7～28.0m であった。

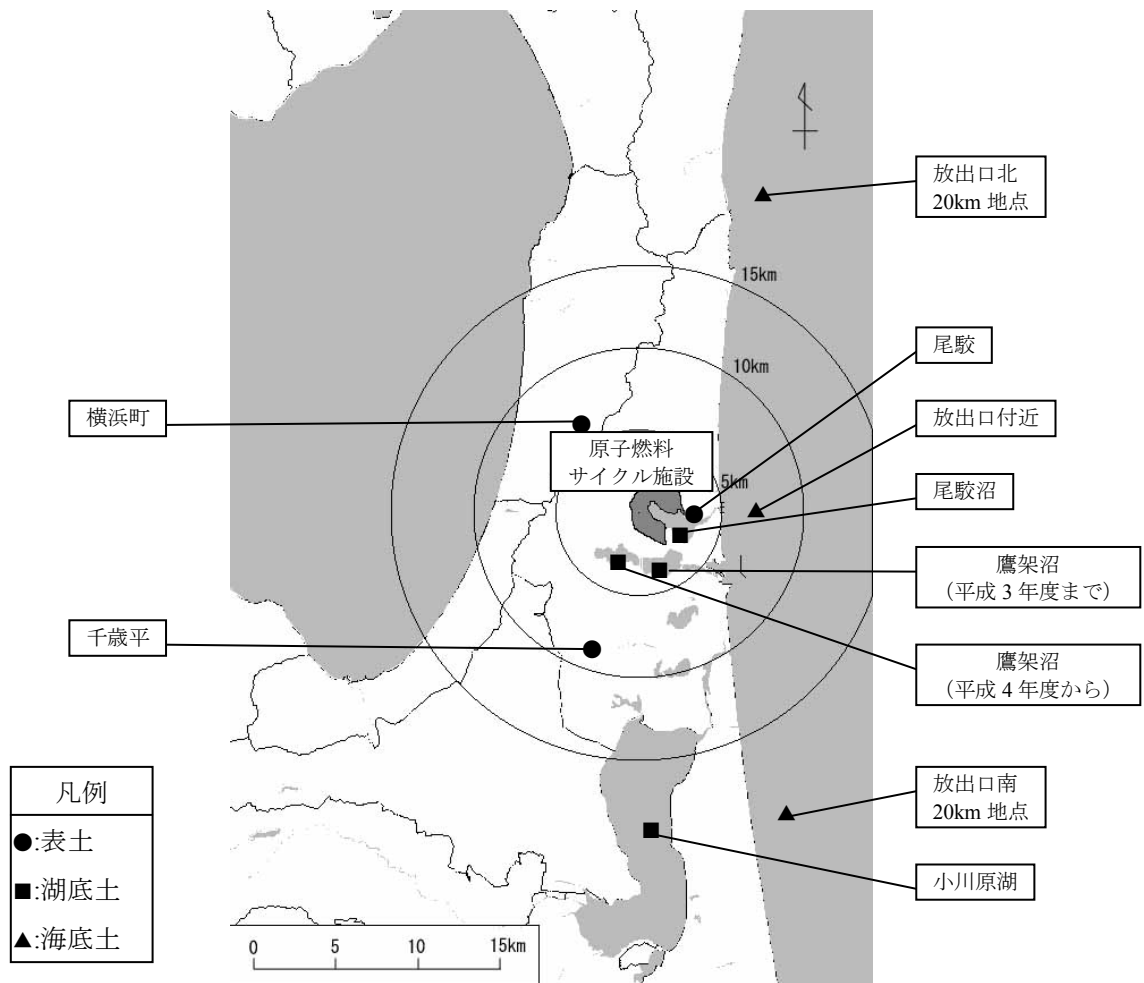
海底土は、六ヶ所再処理工場の放出口付近、また比較対照としてその南北 20km 地点にて採取した。水深は、放出口付近では 37～50m、放出口北 20km 地点では 40～62m、放出口南 20km 地点では 20～40m であった。

2.2 試料採取方法

表土については、年 1 回、7 月に地表から 5cm の深さまでの土壌を 10cm φ × 5cm ステンレス製採土器を用いて採取した。尾駁では 3×3m 四方の 9 ポイント、千歳平では 10×10m 四方の 9 ポイント、横浜町では 20×30m 四方の 12 ポイント、青森市では 20×20m 四方の 9 ポイントについて採取した。

湖底土については、年 1 回、10 月に表面底質を、エクマンバージ採泥器を用いて採取した。

海底土については、年 1 回、7 月に表面底質を、スミスマッキンタイヤ採泥器を用いて採取した。



※この他青森市の表土を採取した。

図1 試料採取地点

2.3 前処理方法

表土については、草、小石等を除き、100℃で24時間以上乾燥し、乳鉢で軽く摩砕後、2mmふるいでふるい分けし、さらにモーターグラインダーを用いて微粉砕した。

湖底土については、吸引ろ過し、100℃で24時間以上乾燥し、乳鉢で軽く摩砕後、2mmふるいでふるい分けし、さらにモーターグラインダーを用いて微粉砕した。

海底土については、吸引ろ過し、100℃で24時間以上乾燥後、2mmふるいでふるい分けし、ふるいを通らない試料について乳鉢で軽く摩砕後に再度2mmふるいでふるい分けした。砂質の試料であるので微粉砕は行わなかった。

2.4 分析方法

(1) Pu-238、Pu-239+240

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年改訂)⁸⁾に準じて行った。試料50gを分取し、電気炉を用い500℃で4時間加熱して有機物を分解した。Pu-242トレーサー0.030Bq及び8M硝酸を加え、ホットプレートを用いて200℃で2時間加熱してプルトニウムを抽出した。陰イオン交換樹脂カラムを用いてプルトニウムを分離・精製した。ステンレス板に電着

し、測定試料とした。

(2) Am-241

文部科学省放射能測定法シリーズ 21「アメリカシウム分析法」(平成 2 年制定)⁹⁾に準じて行った。試料 50 g を分取し、電気炉を用い 500℃で 4 時間加熱して有機物を分解した。Am-243 トレーサー 0.037Bq 及び 8M 硝酸を加え、ホットプレートを用いて 200℃で 3 時間加熱してアメリカシウムを抽出した。水酸化物沈殿及びシュウ酸塩沈殿を生成しアメリカシウムを粗分離し、陰イオン交換樹脂カラムによる分離・精製を塩酸系、硝酸系、メタノール系及び硝酸系の計 4 工程について行った。ステンレス板に電着し、測定試料とした。

2.5 測定方法

測定には α 線スペクトロメトリを用いた。装置は ORTEC 社製 Octete PLUS ALPHASPECTROMETER を用いた。試料中の放射能濃度についてはトレーサーとの計数率の比より算出した。検出限界はいずれの核種においても 0.01~0.02 Bq/kg 乾であった。測定値が計数誤差の 3 倍を超えたものについて、検出されたデータとして取り扱った。

なお、Pu-239 と Pu-240 については、 α 線のエネルギーが近接しているため、合算値として定量した。

3. 結果と考察

3.1 放射能濃度レベル

表土、湖底土及び海底土中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度測定結果を表 1 に示す。Pu-238 が検出された試料数は湖底土で 36、表土で 4、海底土では 0 であった。Pu-239+240 については表土を除いて全て検出され、Am-241 は全ての試料について検出された。

検出されたデータを用いて求めた平均値は、Pu-238 については、表土では 0.017Bq/kg 乾、湖底土では 0.055Bq/kg 乾であった。Pu-239+240 については、表土では 0.31Bq/kg 乾、湖底土では 2.1Bq/kg 乾、海底土では 0.50Bq/kg 乾であった。Am-241 については、表土では 0.11Bq/kg 乾、湖底土では 0.45Bq/kg 乾、海底土では 0.18Bq/kg 乾であった。このように、放射能濃度レベルはいずれの核種においても表土及び海底土より湖底土において高い傾向が見られた。

土壌中プルトニウム濃度の全国調査²⁾の、平成 11~17 年度における調査結果により、Pu-238 放射能濃度は ND (検出されず) ~0.16Bq/kg 乾、Pu-239+240 放射能濃度は ND~5.1Bq/kg 乾であり、本調査で得られた六ヶ所再処理工場周辺の表土の Pu-238 及び Pu-239+240 放射能濃度はこの全国調査結果と同レベルであった。

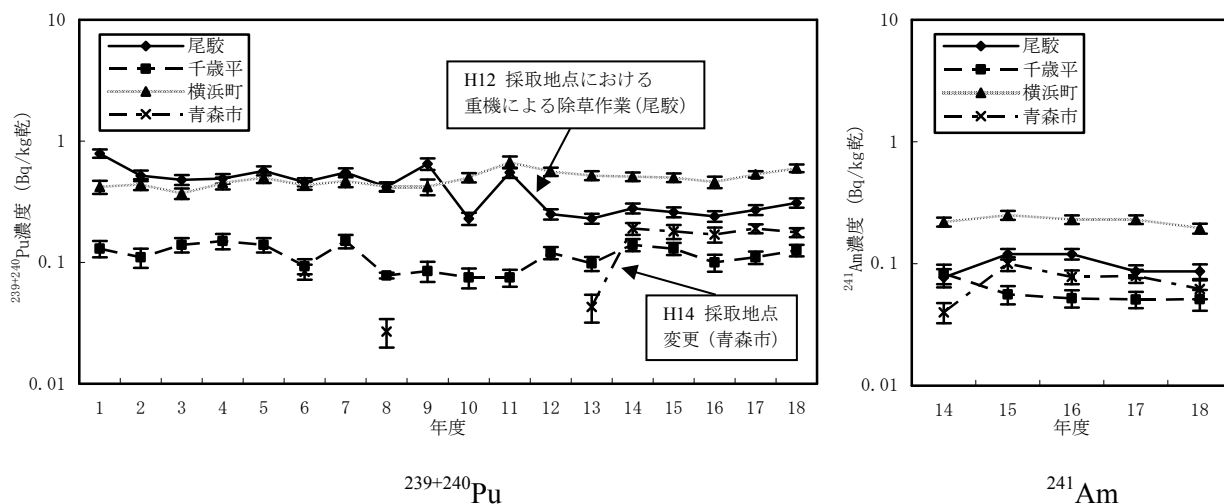
文部科学省による海洋環境放射能総合評価事業の海洋放射能調査¹⁰⁾の、平成 12~17 年度における調査結果により、核燃料サイクル施設沖合海域の海底土の Pu-239+240 濃度は 0.35~4.9Bq/kg 乾であり、本調査で得られた六ヶ所村前面海域における海底土の Pu-239+240 濃度はこれより低めの値であった。

表 1 表土、湖底土及び海底土中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度測定結果

核種	試料	試料数	検出された 試料数	放射能濃度 (Bq/kg 乾)	
				平均値*±標準偏差*	最小値*~最大値*
²³⁸ Pu	表土	56 (4 地点×14 年)	4	0.017±0.0052	0.011~0.022
	湖底土	42 (3 地点×14 年)	36	0.055±0.028	0.013~0.12
	海底土	42 (3 地点×14 年)	0	—	—
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	表土	72 (4 地点×18 年)	62	0.31±0.20	0.027~0.79
	湖底土	54 (3 地点×18 年)	54	2.1±1.5	0.23~8.0
	海底土	54 (3 地点×18 年)	54	0.50±0.18	0.14~0.90
²⁴¹ Am	表土	20 (4 地点×5 年)	20	0.11±0.070	0.040~0.25
	湖底土	15 (3 地点×5 年)	15	0.45±0.28	0.12~1.1
	海底土	15 (3 地点×5 年)	15	0.18±0.093	0.055~0.34

※放射能濃度のうち検出されたものを使用して算出した。

表土中の Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度の推移を図 2 に示す。青森市について、平成 14 年度に地点変更を行っており、変更後に放射能濃度レベルが高くなっている。尾駈については、平成 12 年度から放射能濃度レベルが低くなっているが、平成 12 年度の試料採取前に重機による除草作業が行われ採取地点の土壌の表面が削り取られた状態となった。藤田らにより、プルトニウムは土壌中で表層により多く存在しているということが報告されており¹⁾、放射能濃度レベルが低くなったのは、この除草作業が原因と考えられる。



注) 誤差棒は計数誤差 (1σ) を表す。

図 2 表土中の Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度の推移

3.2 放射能比

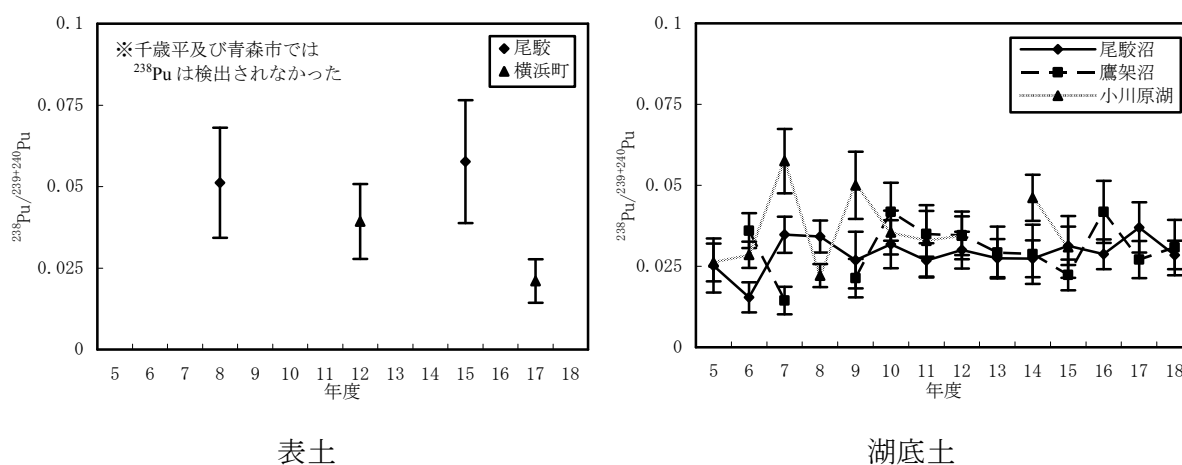
(1) Pu-238/Pu-239+240 放射能比

Pu-238 が検出された表土と湖底土について算出した Pu-238/Pu-239+240 放射能比及び文献値を表 2 に示す。本調査で得られた Pu-238/Pu-239+240 放射能比は、我が国の他の地域における調査結果及び北半球におけるグローバルフォールアウトと同程度であった。これに対し、使用済燃料及び東海再処理施設の海洋放出廃液の放射能比は 2 けた高い値であった。

表 2 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比

		データ数	平均値±標準偏差	最小値～最大値
本調査	表土	4	0.042±0.016	0.021～0.058
	湖底土	42	0.031±0.0086	0.014～0.058
文献値				
	表土 (全国) ³⁾			0.03
	表土 (サイクル機構東海事業所周辺) ¹⁾			0.019～0.068
	湖底土 (福井県三方湖、久々子湖) ⁵⁾			0.036～0.043
	海底土 (東海再処理施設海洋放出口周辺海域) ⁶⁾			0.016～0.034
	海底土 (福井県丹生湾) ⁵⁾			0.034
	北半球におけるグローバルフォールアウト ¹¹⁾			0.025
	使用済燃料 (PWR 28GWD/t) ⁶⁾			1.9
	使用済燃料 (PWR 35GWD/t) ⁶⁾			3.0
	海洋放出廃液 (東海再処理施設) ⁶⁾			1.5～3.5

Pu-238/Pu-239+240 放射能比の推移を図 3 に示す。使用済燃料等の放射能比が現状の環境に比較して 100 倍程度大きく、この比を施設から環境への影響を把握する指標とすることができると考えられる。



注) 誤差棒は放射能比の計数誤差 (1σ) について、誤差の伝播則から算出した値を表す。

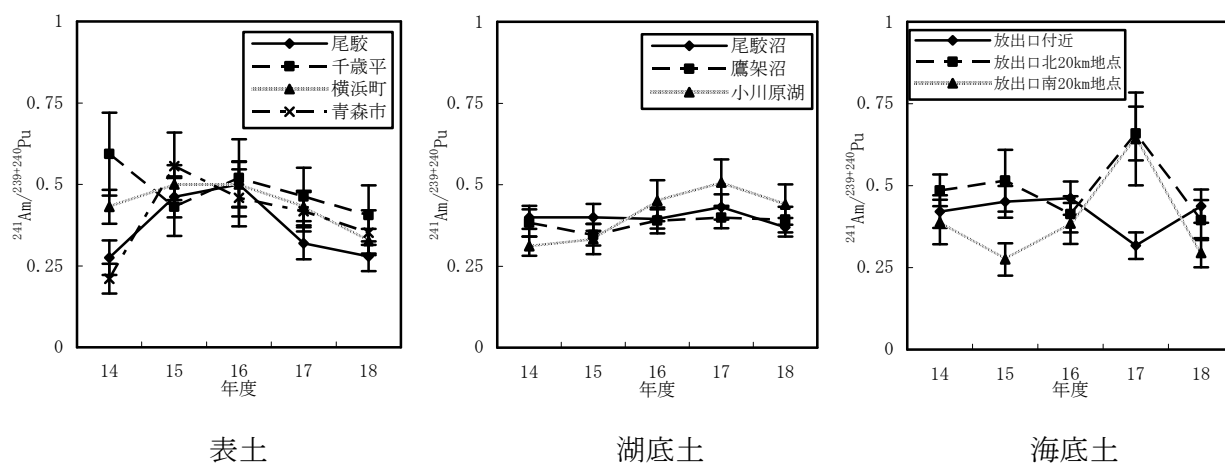
図 3 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比の推移

(2) Am-241/Pu-239+240 放射能比

表土、湖底土及び海底土について算出した Am-241/Pu-239+240 放射能比及び文献値を表 3 に示す。本調査で得られた Am-241/Pu-239+240 放射能比は、我が国の他の地域における調査結果と同程度であった。

		データ数	平均値±標準偏差	最小値～最大値
本調査	表土	20	0.42±0.10	0.21～0.59
	湖底土	15	0.40±0.048	0.31～0.51
	海底土	15	0.44±0.11	0.28～0.66
文献値	表土 (茨城県東海村周辺) ⁴⁾			0.23～0.38
	表土 (サイクル機構東海事業所周辺) ¹⁾			0.048～0.76
	湖底土 (福井県三方湖、久々子湖) ⁵⁾			0.32～0.34
	海底土 (茨城県東海村沿岸) ⁷⁾			0.4 程度
	海底土 (福井県丹生湾) ⁵⁾			0.35

Am-241/Pu-239+240 放射能比の推移を図 4 に示す。Am-241 は Pu-241 から生成されるため、環境中において Am-241 が増加することが予想されている ²⁾。また、六ヶ所再処理工場から放出される気体及び液体廃棄物における Pu-239+240、Am-241 等の組成は明確になっていない。このようなことから、Am-241/Pu-239+240 放射能比については、今後も引き続き推移を注視していくことが必要であると考えられる。



注) 誤差棒は放射能比の計数誤差 (1σ) について、誤差の伝播則から算出した値を表す。

図 4 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比の推移

4. まとめ

- 1) 六ヶ所再処理工場周辺地域における表土、湖底土及び海底土中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度レベルは、いずれの核種においても表土及び海底土より湖底土において高い傾向が見られた。
- 2) 放射能比は、Pu-238/Pu-239+240、Am-241/Pu-239+240 とともに我が国の他の地域における調査結果と同程度であり、また Pu-238/Pu-239+240 放射能比は北半球におけるグローバルフォールアウトと同程度であった。

文 献

- 1) 藤田博喜、渡辺均、武石稔：環境における Pu 同位体及び Am の濃度の経年変化について. サイクル機構技報, 25, 45-48 (2004).
- 2) 日本原燃株式会社：再処理事業所再処理事業指定申請書. 7-5-61, 日本原燃株式会社(2002).
- 3) 福嶋浩人、武田健治、室井隆彦：土壤中プルトニウム濃度の全国調査. 第 49 回環境放射能調査研究成果論文抄録集, 29-30 (2007).
- 4) 森澤正人、渡辺均、圓尾好宏、篠原邦彦：環境中 Pu および Am の挙動に関する研究. 動燃技報, 81, 118-121(1992).
- 5) M.YAMAMOTO, Y.YAMAUCHI, K.CHATANI, S.IGARASHI, K.KOMURA, K.UENO, M.SAKANOUE : DISTRIBUTION OF FALLOUT ²³⁷Np, Pu ISOTOPES, AND ²⁴¹Am IN LAKE AND SEA SEDIMENTS. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 147, 167-176(1991).
- 6) 水谷朋子、宮河直人、武石稔：東海再処理施設における液体廃棄物の放出モニタリングについて. サイクル機構技報, 28, 21-25(2005).
- 7) 住谷秀一：沿岸における ^{239,240}Pu 及び ²⁴¹Am の分布と挙動. 超半減期核種の環境動態と線量評価 -超ウラン元素、¹²⁹I および ⁹⁹Tc を中心に-. 放医研環境セミナーシリーズ, 23, 14-23(1996).
- 8) 文部科学省：プルトニウム測定法（平成 2 年改訂）
- 9) 文部科学省：アメリシウム測定法（平成 2 年制定）
- 10) 文部科学省 科学技術・学術政策局 防災環境対策室：平成 17 年度海洋環境放射能総合評価事業海洋放射能調査結果, 12-13(2006).
- 11) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation : IONIZING RADIATION: SOURCES AND BIOLOGICAL EFFECTS, 238(1982).

II 技 術 報 告

牧草地土壌中の放射性物質等分布調査

三浦誓也*1 工藤俊明

1. はじめに

リン鉱石を原料とするリン酸肥料の施肥により、土壌中にウラン(U)が蓄積することが知られている¹⁾⁴⁾。原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングにおいて、平成 11 年頃から横浜町の牧草地土壌中の U 濃度に上昇傾向がみられることから、リン酸肥料由来の U が影響しているものと考えられた。

当所では、今後のモニタリング結果の評価に資するため、平成 13 年度から牧草地土壌及びリン酸肥料中の放射性物質等に関する調査研究を実施してきた。平成 17 年度からは誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS 法) による U 及びトリウム(Th)の定量を行い、U/Th 濃度比から肥料起源の U 量の経年変化を推定するとともに、施肥が行われていない非農耕地土壌及び遠隔地の牧草地土壌と比較検討を行った。

2. 調査方法

2.1 調査地点及び調査試料

調査試料の概要は表 1 のとおりである。

表 1 調査試料の概要

	調査地点名	試料の区分	採取年度
1	横浜町牧草地 (環境モニタリング対象地点)	表層土(0~5cm)	平成 9~18 年度
		肥料	平成 17 年度
2	横浜町非農耕地 (環境モニタリング対象地点の近傍)	表層土(0~5cm)	平成 17 年度
3	十和田市牧草地 (遠隔地の牧草地)	表層土(0~5cm)	平成 17 年度
		肥料	

2.2 分析方法

試料は風乾後、粉碎・混合したものから 100mg をテフロン容器に精秤し、硝酸及びフッ化水素酸を各 7ml ずつ添加後、マイクロウェーブ分解装置(マイルストーンゼネラル社製、ETHOS PLUS)にて全分解した。次に過塩素酸 1ml を添加し、ホットプレート上で蒸発乾固し、さらに、その残さに硝酸 1ml と過酸化水素水 0.5ml を加えて再び蒸発乾固した。乾固物に硝酸を加えて溶解し、100ml ポリエチレン容器に 3%硝酸溶液になるように調整したものを試料原液とした。試料原液は測定前に 3%硝酸溶液で 10 倍に希釈し、U-238 及び Th-232 を誘導結合プラズマ質量分析計 (SII 社製、SPQ9400) で定量した。

*1：現青森県中南地域県民局地域連携部弘前環境管理事務所

標準溶液は Accu Standard 社製の混合スタンダード溶液（Calibration Standard I）を希釈して用いた。また、シグナル強度の変動を補正するための内部標準として Bi を添加した。

3. 調査結果

3.1 原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリング結果

原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングにおける土壌調査結果を図 1 に示す。横浜町牧草地は他の調査地点に比較して U-234,235,238(全 U)放射能濃度が高く推移しており、また、緩やかな上昇傾向がみられた。

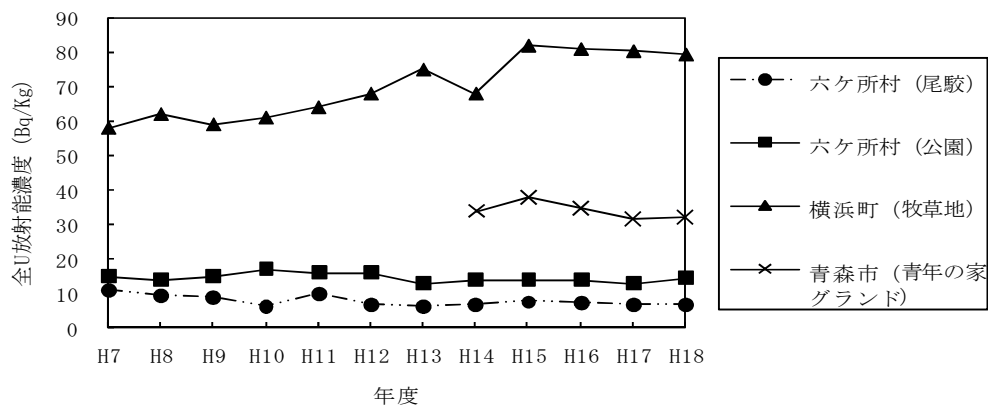


図 1 原子燃料サイクル施設に係るモニタリングにおける土壌調査結果(全U)

3.2 肥料中U含量から試算した牧草地調査地点におけるU増加量

施肥状況の聞き取り結果を表 2 に、肥料の ICP-MS 測定結果を表 3 に示す。横浜町牧草地では、農家の協力により調査地点の耕起は行っていない。また、十和田市牧草地では聞き取りにより耕起を行っていない地点を選定し、土壌採取を行った。

表 2 牧草地調査地点における施肥状況

採取場所	横浜町牧草地	十和田市牧草地
肥料の名称	牧草追肥苦土入り 826	くみあい草地 826 号
製造者	日産アグリ(株)NSHK	片倉チッカリン(株)青森工場
施肥時期	4 月、7 月 (年 2 回施肥)	5 月、10 月 (年 2 回施肥)
施肥量	40~50 k g / 10 a	25~30 k g / 10 a

表 3 肥料の ICP-MS 測定結果

調査地点名	試料区分	U 濃度 (mg/kg)	Th 濃度 (mg/kg)	U/Th 濃度比
横浜町・牧草地	肥料	13	0.52	25
十和田市・牧草地	肥料	31	0.77	40

本調査では、肥料中の U 全量が表層土（0～5cm）にとどまっていると仮定して、肥料中の U 含量から横浜町及び十和田市の牧草地に負荷される年間 U 量を試算した。

牧草地土壌 1kg あたりの年間 U 負荷量は次式で与えられる。

$$\left[\begin{array}{l} \text{土壌1kgあた} \\ \text{りのU負荷量} \end{array} \right] = \left[\begin{array}{l} \text{牧草地単位面積} \\ \text{あたりのU負荷量} \end{array} \right] \times \left[\text{土壌採取面積} \right] / \left[\text{1回の土壌採取量} \right] \cdots \text{①}$$

横浜町牧草地の単位面積あたりの U 負荷量は、

$$\left[\text{肥料1kg中のU濃度} \right] \times \left[\text{牧草地への年間施肥量} \right] \text{ であることから、}$$

$$13(\text{mg/kg}) \times 100(\text{kg}/10\text{a/y}) = 130(\text{mg/a/y}) \quad [1.3(\text{mg}/\text{m}^2/\text{y})]$$

土壌の採取面積は、

$$\left[\text{採土器の半径} \right]^2 \times \pi \times \left[\text{採取ポイント数} \right] \text{ であることから}$$

$$[0.05(\text{m})]^2 \times \pi \times 9 = 0.07065(\text{m}^2) \quad [0.071(\text{m}^2)]$$

土壌の採取重量は実績より約 2kg であることから、これらを①式に当てはめると、

$$1.3(\text{mg}/\text{m}^2/\text{y}) \times 0.071(\text{m}^2) / 2(\text{kg}) = 0.046(\text{mg}/\text{kg}/\text{y}) \text{ となる。}$$

以上の結果から、横浜町牧草地の 1 年間の土壌 1kg あたりの U 負荷量は、0.046(mg/kg/y)と試された。

同様に十和田市牧草地についても①式により計算すると、1 年間の土壌 1kg あたりの U 負荷量は 0.065(mg/kg/y)となった。

3.3 横浜町牧草地と非農耕地の比較

非農耕地の U 濃度は 1.2mg/kg であり、横浜町牧草地の 3.3～4.0 mg/kg に比べて低かった。また、非農耕地の U/Th 比は 0.30 であり、横浜町牧草地の 0.46～0.65 に比べて低かった。この比は、田上らの報告⁵⁾における一般的な非農耕地土壌の U/Th 比 0.23 と同程度であった。

表 4 非農耕地土壌の ICP-MS 測定結果

調査地点名	試料区分	U 濃度 (mg/kg)	Th 濃度 (mg/kg)	U/Th 濃度比
横浜町非農耕地	表層土	1.2	4.0	0.30

3.4 横浜町牧草地土壌における経年変化

土壌中の U 濃度及び U/Th 比は、H9 年から緩やかな上昇傾向を示していた（図 2、図 3）。これは前述した原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリング結果と同様の傾向を示していた。

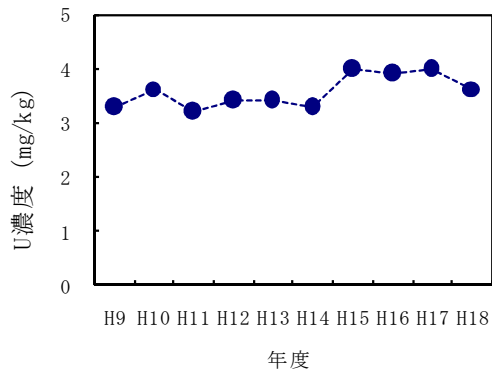


図2 横浜町牧草地土壌におけるU濃度の経年変化

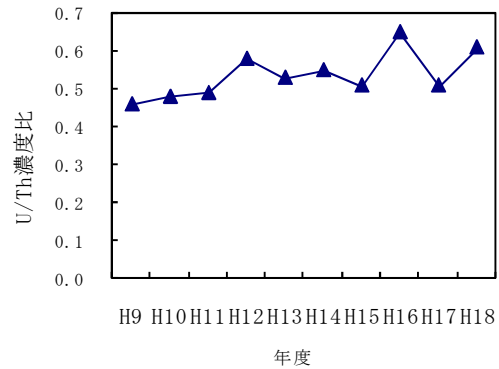


図3 横浜町牧草地土壌におけるU/Th比の経年変化

表3はICP-MSによる測定結果を示したものである。リン酸肥料はU/Th比が非常に高く、Th濃度が低いことから、施肥によりTh量は増加しないと考えられている。すなわち、近傍の非農耕地土壌におけるU/Th比を用いれば、土壌中のTh量から元々含まれていたU量を推定することができる。表3の「負荷されたU濃度」は、非農耕地土壌のU/Th比(0.30)を用いて下式により算出した。

$$[\text{負荷されたU濃度}] = [\text{U実測値}] - [\text{Th実測値}] \times [\text{非農耕地土壌のU/Th比}(0.30)]$$

本法により横浜町牧草地土壌の「負荷されたU量(施肥によるU量)」を算出したところ、H9年度は35%であったU量がH18年度には51%まで増加していると推定された。

荻沼ら⁴⁾も、牧草地の土壌中ウラン濃度の半分以上がリン酸肥料由来であり、長期にわたってウランが蓄積されたものと推定している。

表5 横浜町牧草地土壌における経年変化

採取年度	U 濃度 (mg/kg)	Th 濃度 (mg/kg)	U/Th 濃度比	負荷された U 濃度 (mg/kg)	負荷された U 量 (%)
H9	3.3	7.2	0.46	1.2	35
H10	3.6	7.5	0.48	1.3	37
H11	3.2	6.5	0.49	1.2	38
H12	3.4	5.9	0.59	1.6	48
H13	3.4	6.4	0.53	1.5	43
H14	3.3	6.0	0.55	1.5	45
H15	4.0	7.9	0.51	1.6	40
H16	3.9	6.0	0.64	2.1	53
H17	4.0	7.8	0.51	1.6	41
H18	3.6	5.9	0.62	1.9	52

<土壌中U含量から試算した肥料由来のU蓄積量>

図4から負荷されたU濃度の年平均増加量は約0.077 (mg/kg/y)であった。これは、前述の肥料中U含量から試算した結果 (0.046(mg/kg/y)) と同程度であった。

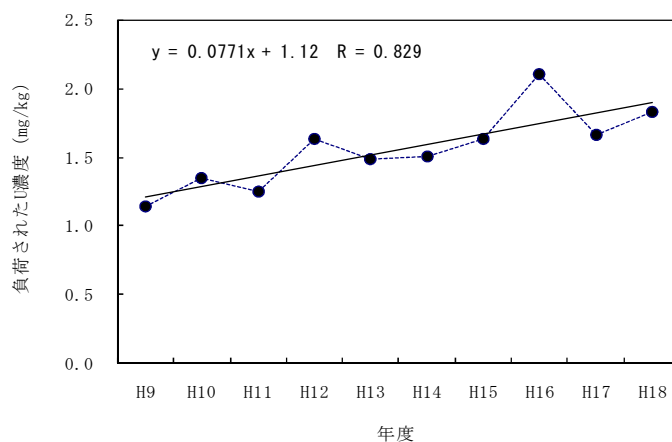


図4 横浜町牧草地土壌における負荷されたU濃度の経年変化

3.5 横浜町牧草地と十和田市牧草地の比較

土壌の U/Th 比及び肥料の U/Th 比は、いずれも十和田市の方が高かった。近傍で非耕作地土壌の採取を行っていないため、横浜町非農耕地土壌の U/Th 比 (0.30) を用いて同様に U 蓄積量の算出を行ったところ、負荷された U 濃度は 2.4(mg/kg)、負荷された U 量は 69%であった。原子燃料サイクル施設からの環境影響がない遠隔地の十和田市牧草地においても土壌中への肥料由来の U の蓄積が推定される結果となった。

表6 十和田市牧草地土壌の ICP-MS 測定結果

調査地点名	試料区分	U 濃度 (mg/kg)	Th 濃度 (mg/kg)	U/Th 濃度比
十和田市・牧草地	表層土	3.5	3.8	0.92

4. まとめ

本調査により、原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングの横浜町牧草地の土壌における U 濃度の上昇原因は、人為的に負荷されたリン酸肥料に含まれる U の蓄積によるもので、約 50% が肥料由来の U であると推定された。また、年平均増加量は約 0.077(mg/kg/y) であり、肥料中ウラン含量から試算した年平均増加量 0.046(mg/kg/y) と同程度であった。

本調査にご協力いただきました北里大学獣医学部伊藤教授をはじめ関係者の方々に厚く謝意を表します。

文 献

- 1) 村松康行、吉田聡：ICP-MS を用いた環境試料中の Pu,U,Th の分析. *Radioisotopes*,48,472-487 (1999)
- 2) A.Takeda,H.Tsukada,M.Nanzyo,Y.Takaku,T.Uemura,S.Hisamatsu,J.Inaba：Effect of Long-term Fertilizer Application on the Concentration and Solubility of Major and Trace Elements in a Cultivated Andisol. *Soil Sci.Plant Nutr.*,51(2),251-260(2005)
- 3) 田上恵子、内田滋夫：リン酸肥料施肥により農耕地土壌に負荷されたウラン量の推定. *Proceedings of the Seventh Workshop on Environmental Radioactivity*,26-29(2006)
- 4) 荻沼美保、対馬唯子、福島瑠美子、伊藤伸彦、和田誠一、柿崎竹彦：青森県内の牧草地土壌におけるリン酸肥料由来のウラン濃度の推定. 第 44 回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集(2007)
- 5) 田上恵子、内田滋夫：U/Th 比を用いたリン鉱石原料のリン酸肥料施用による農耕地土壌中ウラン増加割合の推定. *Radioisotopes*,55,71-78(2006)

Ⅲ 学 会 等 发 表 要 旨

空間放射線量率の施設寄与弁別方法の開発

大久保英樹 庄司博光 木村秀樹
齋藤 稔 工藤英嗣*¹ 永井 進*²

日本原子力学会「2007 秋の大会」，福岡県北九州市，2007.9.27-9.29

平成 18 年 3 月 31 日から開始された六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験（使用済燃料による総合試験）による使用済燃料のせん断・溶解に伴い、環境における空間放射線量率の測定値に施設起因と考えられる変動が認められている。

このため、空間放射線量率と Bi-214 から放出される γ 線（1.76MeV 等）の計数率に着目した SCA(Bi)及び TI-208 から放出される γ 線（2.62MeV）の計数率に着目した SCA(TI)との関係から求めた重回帰式により、空間放射線量率の自然寄与分を推定し、実測値から差し引くことにより施設からの寄与分を弁別する方法を開発し、六ヶ所再処理工場におけるアクティブ試験中の測定結果に適用し、その有効性を確認した。

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*2：日本原燃(株)

原子燃料サイクル施設周辺環境における Pu 同位体及び Am-241 濃度調査

工藤達晃 木村芳伸 木村秀樹 齋藤 稔

第 49 回環境放射能調査研究成果発表会，東京都港区，2007.12.4

青森県は、六ヶ所村に立地されている原子燃料サイクル施設の周辺地域において、環境放射線等モニタリングを実施しており、その一環として環境試料中の Pu-238、Pu-239+240 及び Am-241 放射能濃度の調査を行っている。平成 18 年度までの調査結果をもとにこれら核種の表土、湖底土及び海底土中の放射能濃度レベル及び放射能比についてとりまとめた。

放射能濃度レベルは湖底土が表土及び海底土に比べ高い傾向にあった。Pu-238/Pu-239+240 及び Am-241/Pu-239+240 の放射能比は、試料や地点等によらず、他調査及び北半球におけるグローバルフォールアウトの値と同程度であった。

モニタリングカーによる空間放射線量率の走行測定

堀田 智史 安積 潔 庄司博光
工藤 英嗣*¹ 鈴木 将文*² 齋藤 稔

平成 19 年度放射能分析確認調査技術検討会，東京都千代田区，2008. 3. 25

モニタリングカーの走行測定において、走行速度が測定値のばらつきや空間放射線量率分布の把握に及ぼす影響について調査した。併せて、原子燃料サイクル施設周辺地域において実施した走行測定結果について報告を行った。

計数誤差から変動係数を試算した結果、線量率 20nGy/h、走行速度 60km/h、500m 区間平均線量率において 9%以下と推定された。実際に 20～60km/h で走行測定を行い、実測値から 500m 区間平均線量率の変動係数を算出した結果は、走行速度が速くなるほど増加する傾向がみられ 1～5%程度であった。

調査区間の中間点に照射線量率基準 γ 線源を置き高い線量場を設け、20～60km/h で走行測定を行った結果、同一区間で 500m 区間平均線量率はいずれの走行速度でもほぼ同程度となり、照射線量率基準 γ 線源付近の線量率は走行速度が速くなるほど減少した。

また、原子燃料サイクル施設周辺地域において平成 19 年度に四半期毎に実施した走行測定結果は、積雪がない期間は 12～26nGy/h、積雪がある期間は 8～18nGy/h であり、積雪時には線量率の低下がみられた。

*1：現青森県環境生活部原子力安全対策課

*2：現青森県エネルギー総合対策局原子力立地対策課

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計画

齋藤輝夫 木村秀樹 齋藤 稔

日本原子力学会「春の年会」，大阪府吹田市，2008. 3. 26-3. 28

青森県は、昭和 60 年度から、科学技術庁（当時）の委託により、「原子燃料サイクル施設環境放射能総合調査」を実施し、「原子燃料サイクル施設環境放射能総合調査検討会及び同ワーキンググループ会議」の指導、助言の下に最適なモニタリングのあり方を検討し、平成元年に「原子燃料サイクル施設環境放射線等モニタリング基本計画」等を策定した。青森県ではこれら基本計画等に基づき、平成元年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を実施し、分析方法が定められたことによる精米中の炭素-14 の追加を行うなど随時見直しを行っている。

モニタリング結果の評価については、平成 2 年度に「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結果の評価方法」、平成 6 年度に「自然放射線等による線量算出要領」、平成 17 年度にモニタリング結果の評価方法に記載されている測定結果に基づく線量の推定・評価の、より具体的な方法について、その基本的な考え方を示した「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について」を策定し、測定結果の評価や測定結果に基づく線量の推定・評価を行っている。

大気浮遊じん中全 α 及び全 β 放射能の起源の推定

木村秀樹 高橋秀昭 齋藤 稔

保健物理 43 巻 1 号 (2008)

青森県では、原子燃料サイクル施設周辺地域における環境放射線モニタリングの一環として、大気浮遊じん中全 α 及び全 β 放射能の連続測定を実施している。測定条件等から、全 α 及び全 β 放射能測定値への寄与核種はそれぞれ Po-210 及び Bi-210 と推定される。大気中濃度の季節変動は、全 β 放射能が秋と冬に全体的に高く、夏に低くなるのに対し、全 α 放射能は春と秋は変動が大きく、夏と冬に安定して低くなっている。

土壌中の Po-210 /Pb-210 放射能比が大気中における値より高いこと、大地が積雪により覆われる冬季には全 α 放射能濃度と全 β 放射能の比 (α/β 比) の低下がみられることから、表土が全 α 放射能の主要な起源の一つとなっているものと考えられる。

全 α 放射能濃度及び α/β 比の特異的な上昇がみられた 2003 年 5 月、ロシアのバイカル湖付近で森林火災が発生していることが衛星画像から確認され、流跡線解析の結果、バイカル湖付近を通過した大気が六ヶ所村へ流入したと推定された。六ヶ所村へ流入した大気がバイカル湖付近を通過した頻度と全 α 放射能濃度との間には正の相関関係があり、全 α 放射能濃度及び α/β 比の特異的な上昇はこの森林火災に起因しているものと推定される。

IV 平成 19 年度 調査研究事業報告

1. 青森県における大気中クリプトン-85 濃度調査

高橋秀昭 工藤俊明 貝森優希 堀田智史
木村秀樹 安積 潔 北島 茂 佐々木耕一*1
外川洋一*1 泉 淳*1 小向幼菜*1

1. はじめに

Kr-85 は再処理工場から放出される主要な核種の一つであり、六ヶ所再処理工場の安全審査においても、放出量が最も多い核種として評価されている。青森県では、再処理工場の操業後における環境への影響の評価に資するため、平成 15 年 6 月から平成 18 年 3 月まで気象庁気象研究所（以下、「気象研」という。）との共同研究として、青森市において Kr-85 のバックグラウンド調査を実施した。

また、六ヶ所再処理工場は、平成 18 年 3 月 31 日からアクティブ試験（使用済燃料による総合試験）を開始したことから、平成 18 年度からの 3 年間は施設周辺地域において、Kr-85 濃度の分布調査を実施することとした。

平成 18 年度から分布調査をするにあたっては、気象研がバックグラウンド調査に用いている Kr-85 分析法（以下「気象研法」という。）は Kr-85 濃度の分析可能範囲が狭いことから、比較的濃度の高い試料に適用するための試料前処理法について検討を行い、分析可能範囲を超えると予想される試料については、大気試料の採取量を少なくするとともに標準空気で希釈する前処理法を行った。その結果、再処理工場からの寄与が認められる大気試料について、本前処理法と気象研法を併用して定量した Kr-85 濃度は、モニタリングステーションに設置している β 線ガスモニタの測定値とほぼ一致することを確認した。

本年度（平成 19 年度）は、再処理工場から放出された Kr-85 のプルームを横断するように大気試料の採取地点を設定し、本前処理法と気象研法により Kr-85 を分析して、プルームの広がりを調査する。

これらの調査結果のうち、調査地点、気象状況、β 線ガスモニタによる Kr-85 濃度及び大気試料の前処理（大気試料の標準空気による希釈）についてとりまとめた。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点は、調査当日の風向風速に基づき図 1 のとおり決定した。

- (1) 地点 1：モニタリングステーション尾駸局
- (2) 地点 2：六ヶ所村大字尾駸字沖付 モニタリングカー測定地点 5
- (3) 地点 3：六ヶ所村大字尾駸字沖付 国道 338 号線と県道 180 号線の交差点

*1：日本原燃(株)

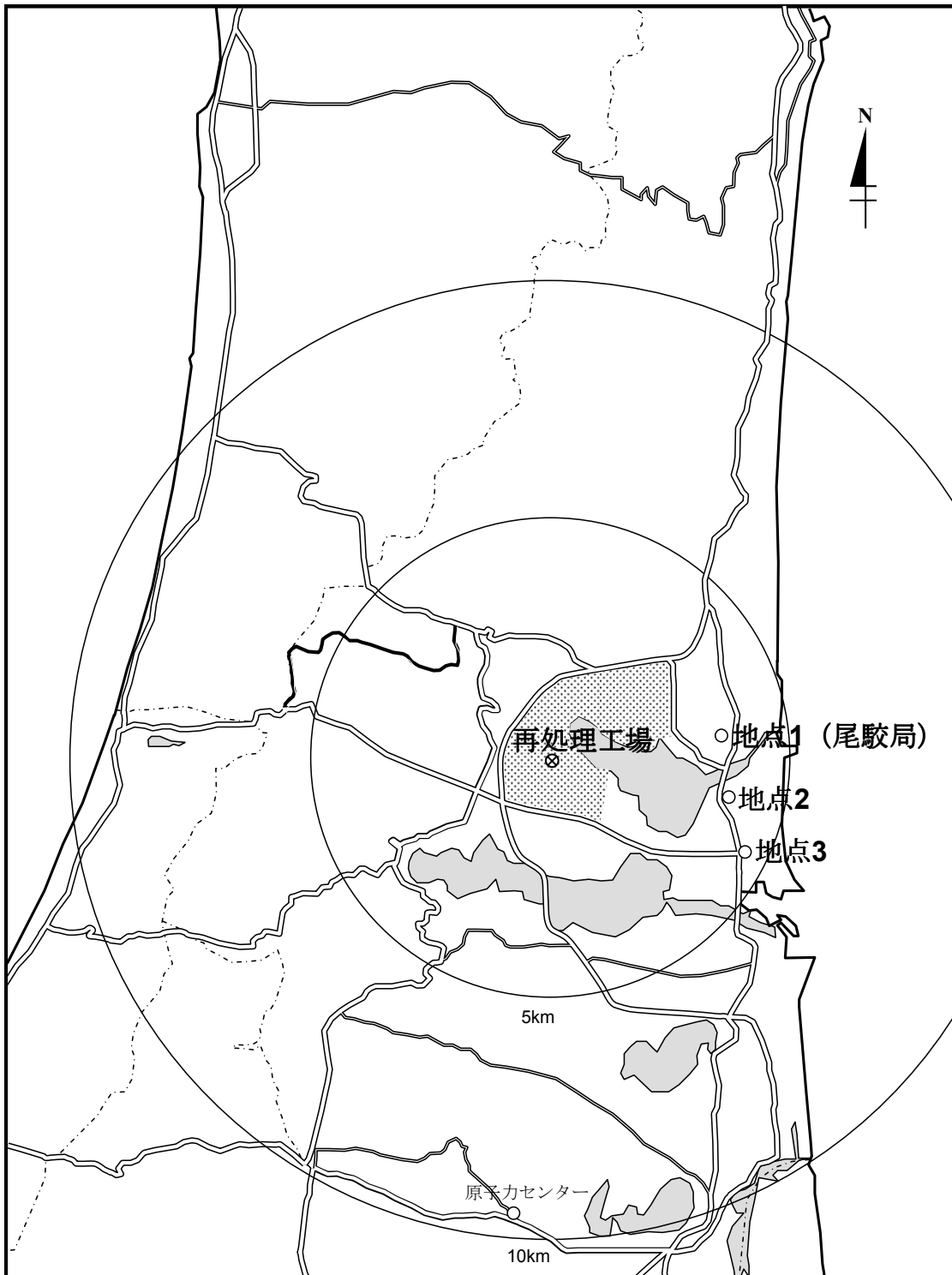


図1 調査地点

2.2 採取日時 平成 19 年 12 月 21 日 (地点 1、2、3 で、同時刻にそれぞれ採取した。)
 試料 1 : 12:00~12:20
 試料 2 : 12:20~12:40

2.3 採取方法

- (1) 地点1 尾駮局舎内にアルミニウムバッグ(容量 0.5m^3)を設置し、ポンプを用いて $25\text{L}/\text{min}$ の流速で連続的に捕集する(20min/袋)。大気試料捕集口は β 線ガスモニタの捕集口と同一の位置とした。
- (2) 地点2、3 屋外においてアルミニウムバッグ(容量 0.5m^3)を設置し、ポンプを用いて $25\text{L}/\text{min}$ の流速で連続的に捕集する(20min/袋)。大気試料捕集口は地上1mとした。

2.4 β 線ガスモニタ

アロカ製 MGR-R42-21043 型で、尾駮局に設置してある β 線ガスモニタを使用した。
定量下限は、 $2\text{ kBq}/\text{m}^3$ である。

2.5 可搬型 β 線ガスモニタ

アロカ製 MGR-R48-21208 型の可搬型 β 線ガスモニタを使用した。
サンプリング流量は $5\text{L}/\text{min}$ 、測定範囲は $1\sim 1,000\text{ kBq}/\text{m}^3$ である。
地点2、3において、大気中 Kr-85 濃度を測定した。

2.6 気象計

尾駮局の風向風速は、地上10mにおいて風向風速計(プロペラ型)で測定している。
濃縮埋設事業所の風向風速は、地上10mにおいて風向風速計(超音波式)で、再処理事業所の風向風速は、地上10mは風向風速計(超音波式)、地上150mはドップラーソーダで測定している。

2.7 前処理及び分析方法

前処理は、大気試料の希釈、活性炭吸着容器への吸着及び1Lアルミ容器への回収である。
分析可能範囲に希釈した大気試料を、流速 $2\text{L}/\text{min}$ で活性炭吸着容器に吸着させた。活性炭に吸着させた大気試料は、ヒーターで加温しながらヘリウムガスで加圧し、1Lアルミ容器に回収した。この1Lアルミ容器を、Kr-85分析装置による分析に供した。

Kr-85前処理及び分析装置の概略を図2に示す。

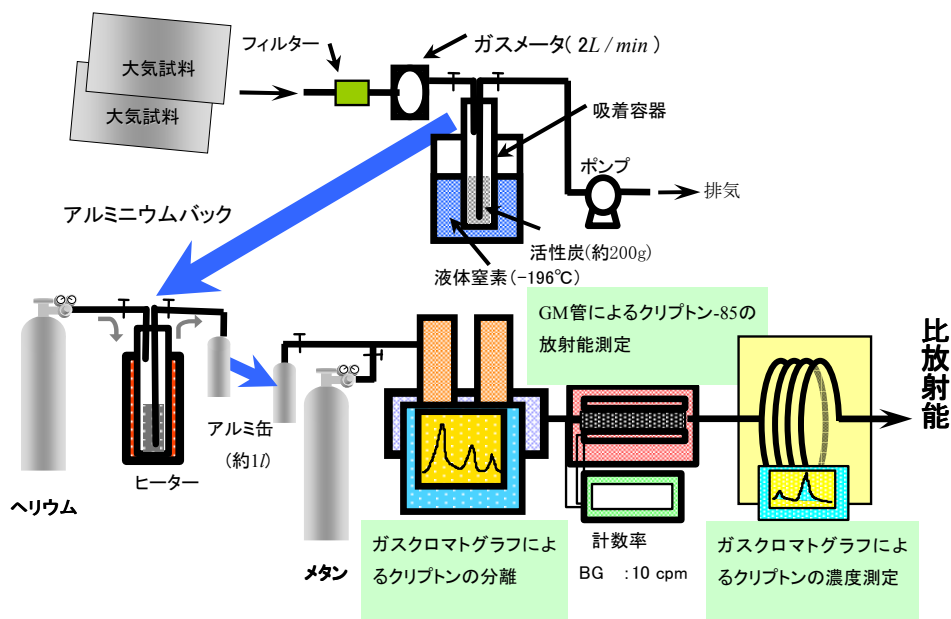


図2 Kr-85前処理及び分析装置の概略

大気中 Kr-85 濃度は、安定クリプトンとの比を用いて下式により算出する。

$$\text{大気中 Kr-85 濃度 (Bq/m}^3\text{)} = \frac{\text{GM管内放射能 (Bq)}}{\text{GM管内Kr量 (m}^3\text{)}} \times \text{GM管内放射能} \times \text{＜大気中の Kr 組成比＞}$$

3. 調査結果

3.1 気象状況

採取日時の気象状況は、表 1、2 のとおりである。当日の風向は西～北北西であり、採取時間帯には大きな変化は見られなかった。

このことから、再処理工場の東側の 3 地点で試料採取することとした。

表 1 平成 19 年 12 月 21 日の気象状況 (地上 10m)

測定局	時刻	風向	風速 (m/s)	大気安定度
尾駁	12:00	WNW	5.9	D
	12:10	NW	6.6	D
	12:20	NW	6.3	D
	12:30	WNW	6.4	D
	12:40	NW	7.9	D
	12:50	WNW	5.0	D
	13:00	WNW	7.4	D
濃縮埋設 事業所	12:00	W	7.0	D
	12:10	WNW	7.6	D
	12:20	WNW	8.1	D
	12:30	WNW	8.9	D
	12:40	WNW	7.9	D
	12:50	W	7.3	D
	13:00	WNW	7.5	D
再処理 事業所	12:00	WNW	7.9	D
	12:10	WNW	8.4	D
	12:20	WNW	8.2	D
	12:30	WNW	7.7	D
	12:40	WNW	9.7	D
	12:50	W	8.6	D
	13:00	WNW	7.8	D

表 2 平成 19 年 12 月 21 日の気象状況 (地上 150m)

測定局	時刻	風向	風速 (m/s)
再処理 事業所	12:00	WNW	12.1
	12:10	WNW	13.6
	12:20	WNW	14.3
	12:30	WNW	13.1
	12:40	WNW	12.6
	12:50	WNW	15.1
	13:00	WNW	13.6

3.2 β 線ガスモニタによる Kr-85 濃度

地点 1（尾駁局）では、Kr-85 濃度は検出下限（ $2\text{kBq}/\text{m}^3$ ）以下で推移していた。

大気試料採取時に可搬型 β 線ガスモニタで検出された地点 2 及び地点 3 の Kr-85 濃度をそれぞれ図 3、図 4 に示す。

地点 2 では 12:10 頃から 12:40 頃まで、地点 3 では 12:05 頃から 12:30 頃まで Kr-85 濃度のピークが見られた。

気象研法による分析用の大気試料は、12:00 から 20 分間ずつ採取していたため、これらのピークの部分を含む 12:00～12:20（試料 1）、12:20～12:40（試料 2）採取分を分析に供することとした。

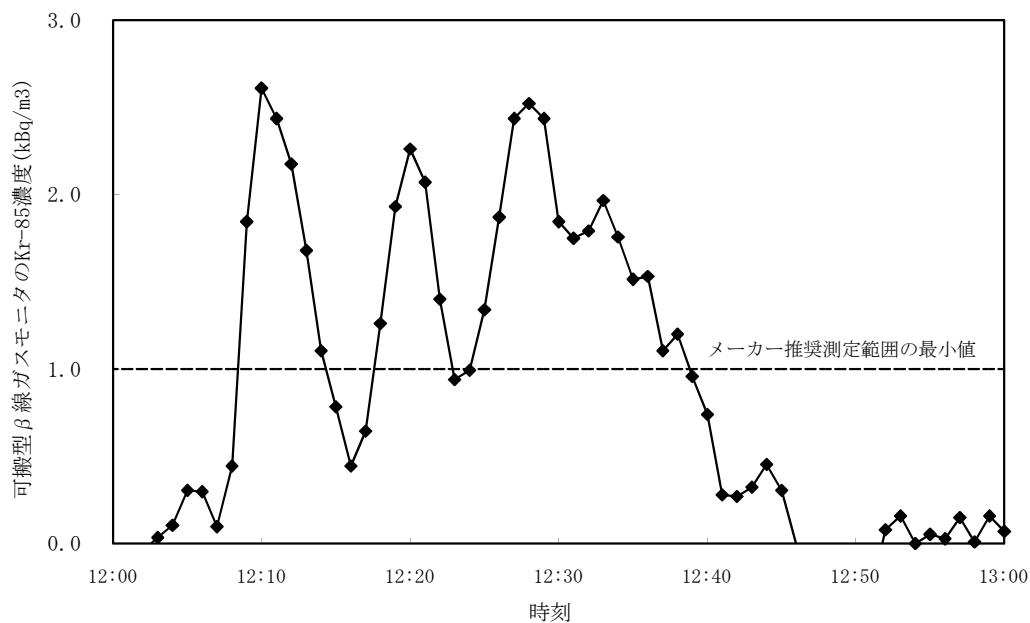


図3 地点2のKr-85濃度

B G : 7.5cps

最大 : 10.5cps

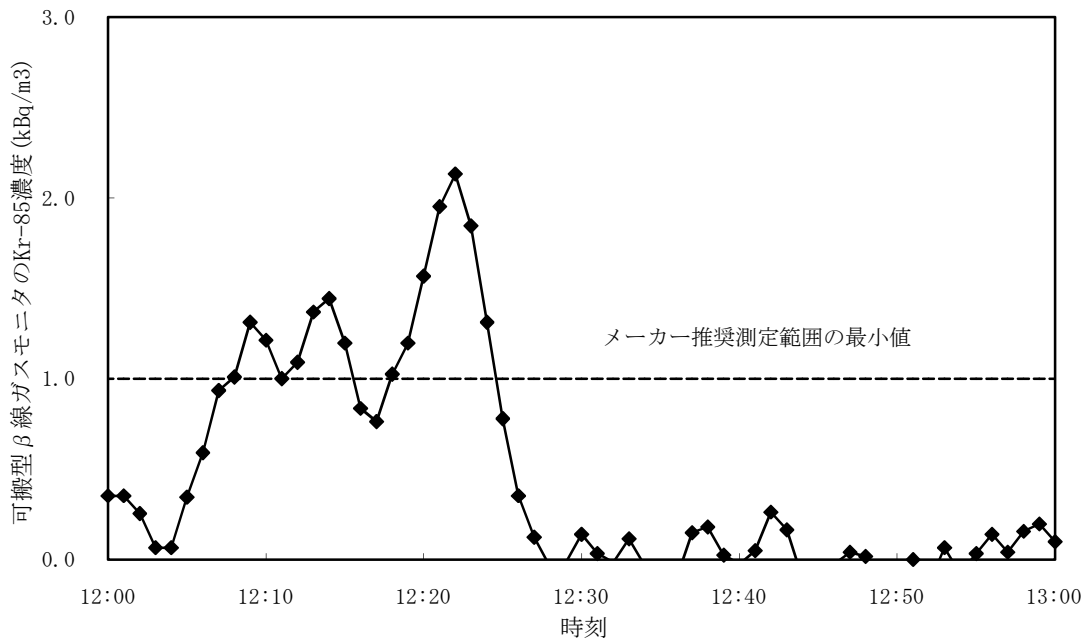


図4 地点3のKr-85濃度

B G : 6.1cps

最大 : 8.7cps

3.3 大気試料の標準空気による希釈

気象研法における Kr-85 分析装置の分析可能範囲は、約 10~100Bq であることから、β線ガスモニタによる Kr-85 濃度を参考に、大気試料中の Kr-85 濃度が分析可能範囲にはいるように、標準空気で希釈した。

地点 1 は、Kr-85 濃度が低かったため希釈は行わなかった。地点 2 は、それぞれ 20 倍、33 倍に希釈した。地点 3 は、それぞれ 20 倍、10 倍に希釈した。

この後、以上の 6 試料をそれぞれ活性炭吸着容器に吸着させ、1L アルミ容器に回収した。

2. 環境放射能拡散シミュレーションシステム

高橋秀昭 大久保英樹

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係るモニタリングの一環として、モニタリングステーション（県6局、事業者3局）において、空間放射線量率及び大気中の気体状ベータ放射能の連続測定をテレメータシステムによりリアルタイムで収集・監視を行っており、平成15年度から、これらの連続測定データから、実効線量を求めるシステムの構築を行ってきた。

平成19年度は、本システムの高度化を行うための検討結果をとりまとめたので報告する。なお、これらの検討に基づくシステムの改造は平成20年度に実施することとしている。

2. これまでのシステムの開発の経緯と予定

(1) 平成15年度

システム構築調査

(2) 平成16年度

システム構築

(3) 平成17年度～平成19年度

実データとの比較・検討及びシステム高度化のための検討

(4) 平成20年度

システム高度化のための改良

3. システムの高度化のための概念

3.1 項目

(1) 風速場計算機能高度化

ア 地形の影響を考慮した風速場計算機能

イ 気象庁の風況（GPV）データの取り込みによる精度向上の検討

(2) 降水等による地表沈着及び拡散計算機能

ア H-3 拡散計算機能

イ C-14 拡散計算機能

(3) 積算被ばく線量評価機能

3.2 風速場計算機能高度化

(1) 地形の影響を考慮した風速場計算機能

現在のシステムは地表面を水平面として風速場の計算を行っている。一方、六ヶ所再処理施設北側には標高500m程度の山があり、気流はこの地形の影響を受けると考えられ、特に南風、北風の場合はその影響が大きいことが推測される。

そこで、地形データを取り込んだ風速場計算機能を追加する。

(2) 気象庁の風況 (GPV) データの取り込みによる精度向上の検討

本システムの風速場は、テレメータシステムの測定値から初期場を推定し(1次推定場)、得られた1次推定場が質量保存則を満たすよう補正を行うことで得られる。

本システムでは、モニタリングステーション尾駸局、千歳平局及び二又局(地上10m)、再処理事業所(地上10m及び150m)、濃縮埋設事業所(地上10m)の風向、風速、大気安定度をテレメータシステムの測定値から取り込んでいる。

今回、風速場の計算の更なる高精度化に資するため、GPV(Grid Point Value)データの取り込み機能を追加する。

3.3 降水等による地表沈着及び拡散計算機能

本システムの主たる評価対象核種である Kr-85 は、化学的に不活性なガスであるため地表への沈着は生じない。しかし、放出が想定されるその他の核種(H-3、C-14、I-129、I-131等)については、乱流拡散等による地表沈着(乾性沈着)及び降水による除去(湿性沈着)過程を考慮する必要がある。

このことから、これらの核種(H-3、C-14、I-129、I-131等)について、本システムに降水等による地表沈着計算機能を追加する。

また、吸入摂取及び経皮摂取による内部被ばくとしての H-3 及び C-14 を計算するための拡散計算機能を追加する。

(1) H-3 拡散計算機能

大気放出される H-3 の化学形は主として、トリチウムガス(HT)及びトリチウム水(HTO)が考えられる。また、地表沈着した HT は即座に酸化され、HTO として再び大気中に放出されるという性質を持つ(再放出)。HT、HTO の線量換算係数はそれぞれ 1.8×10^{-15} 、 1.8×10^{-11} (Sv/Bq) であり、HTO は HT の約 10,000 倍となっている。そのため、HT 放出の場合はこの再放出過程が線量評価上重要となる。(図 1)

したがって、HT、HTO またはその両方が放出された場合を想定し、HTO の再放出を考慮した拡散計算を行えるよう整備する。

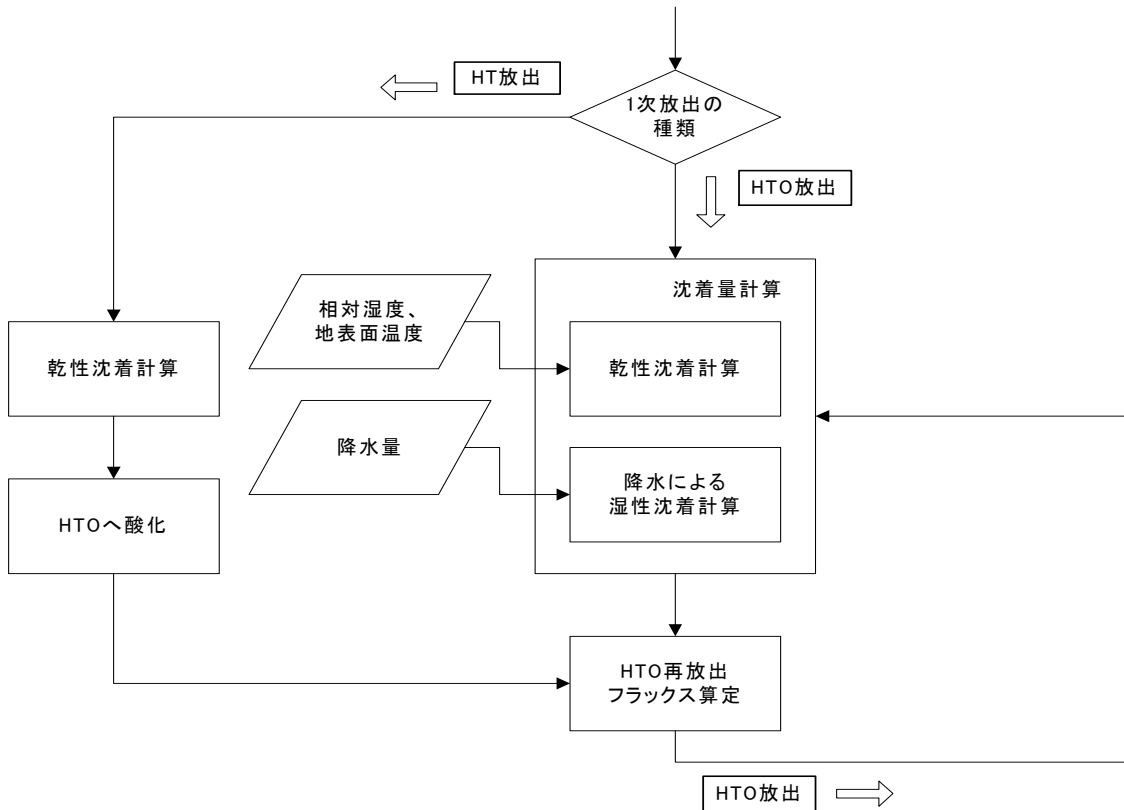


図1 H-3の評価システム

(2) C-14 拡散計算機能

C-14 は半減期が 5,730 年と長く、長期的に線量に寄与することが推測されるため、再処理施設の安全評価上重要と考えられる。大気放出時の化学形は二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) 及び炭化水素 (主にメタン) が考えられる。このことから、その環境動態を考慮した拡散計算を行えるよう整備する。

3.4 積算被ばく線量評価機能

本システムでは、Kr-85 による外部被ばく線量を 10 分ごとに計算することとしており、任意の期間の積算被ばく線量の計算機能がないことから、被ばく線量の積算計算機能を追加する。

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

佐々木久美子

1. はじめに

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

青森県では、平成17年12月に東通原子力発電所が営業運転を開始し、六ヶ所再処理工場については平成18年3月からアクティブ試験を開始している。トリチウムは、これらの原子力施設から大気及び海洋へ放出される。再処理工場や原子力発電所からの多くはHTOの形で放出されるが、東海再処理施設から大気中へ放出された全トリチウムのうち約26%がHT(CH₃T等を含む。)の化学形であったとの報告もある¹⁾。

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

平成18年度は、試料採取・測定条件を検討し、青森市1地点において調査を実施した。現在の試料採取方法は、可燃性ガスを使用しているため、安全性の観点から採取場所が限定されることから、平成19年度は、可燃性ガスを使用しない方式^{2),3)}と従来の方式⁴⁾を比較検討した。

2. 調査方法

2.1 採取方法

化学形別トリチウム採取装置(以下「採取装置」という。)の概略を図1に示す。大気は、採取装置の最後に設置した真空ポンプ(DA-30D,ULVAC)で吸引導入する。入口側には、大気中のごみを除くための7μmのフィルターを設置し、大気の採取速度と採取した大気の総量はデジタル流量計で測定する。化学形別トリチウムは、モレキュラーシーブ3Aを充填したHTO用カラム、HT用カラム及びメタン用カラムに捕集する。

具体的には、まず電子除湿器(出口露点1~3°C)によりあらかじめ水分(HTO)の一部を捕集し、HTOはそのままHTO用カラムに捕集する。次に、HTは100°Cに加熱したPt触媒(Ptを担持させたメタルハニカム触媒、Pt0.12g/L, 25mmΦ×50mm, 3個)で酸化し、水としてHTカラムに捕集する。HTカラムを通過した大気試料は、300°Cに加熱したPd触媒(DASH-220D, 0.24wt%, 3mmΦ, NECHEMCAT)で酸化し、水としてメタン用カラムに捕集する。この時、HT及びCH₃Tについては、従来の方法(図1(参考))では、キャリアーとして、低トリチウム水を電気分解によって得た水素ガス(H₂:0.62A, 4.32ml/min)及びボンベからのメタンガス(CH₄:2ml/min)を添加していた。この際に添加するH₂及びCH₄は可燃性ガスであるため、キャリアーとしてこれらのガスの

代わりに低トリチウム水蒸気を添加する実験を行った。

(1) H₂ を用いない方法の検討

H₂ を用いない方法²⁾による採取装置の概略図を図 1-(A)に示す。キャリアーとして電気分解によって得た H₂ の代わりに、低トリチウム水蒸気を添加し、流速 1.5L/min 以下で大気を採取した。この際、捕集効率への影響を検討するため、従来の方法に低トリチウム水蒸気を供給するカラム（以下「加湿カラム」という。）を追加設置する。加湿カラムは、超高分子量ポリエチレン多孔質フィルムを接着したポリエチレンバイアルに低トリチウム水を添加したものをアクリル管に 2 個設置し、外気温に応じて低トリチウム水が付与されるようにした。

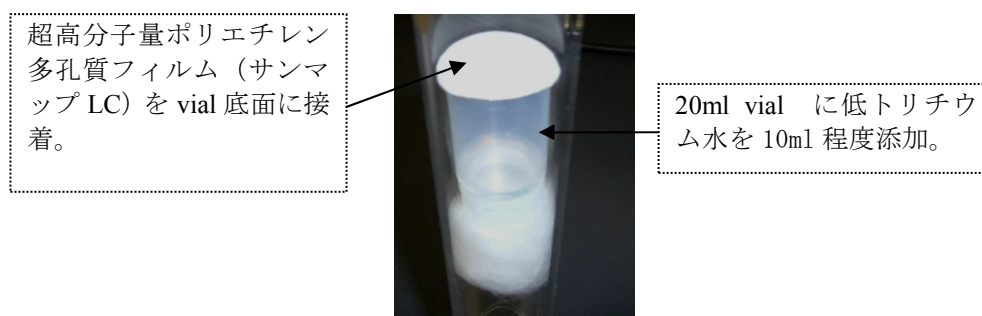


図 2 加湿カラムの概略

(2) CH₄ を用いない方法の検討

CH₄ を用いない方法³⁾による採取装置の概略図を図 1-(B)に示す。キャリアーとしてボンベからの CH₄ の代わりに、低トリチウム水蒸気を添加し、流速 1.5L/min 程度で大気を採取した。この際、捕集効率への影響を検討するため、従来の方法に加湿カラムを追加設置した。

(3) H₂ 及び CH₄ を用いない方法の検討

H₂ 及び CH₄ を用いない方法による採取装置の概略図を図 1-(C)に示す。キャリアーとして H₂、CH₄ の代わりに、低トリチウム水蒸気を添加し、流速 1.5L/min 以下で大気を採取した。

☐はキャリア添加。

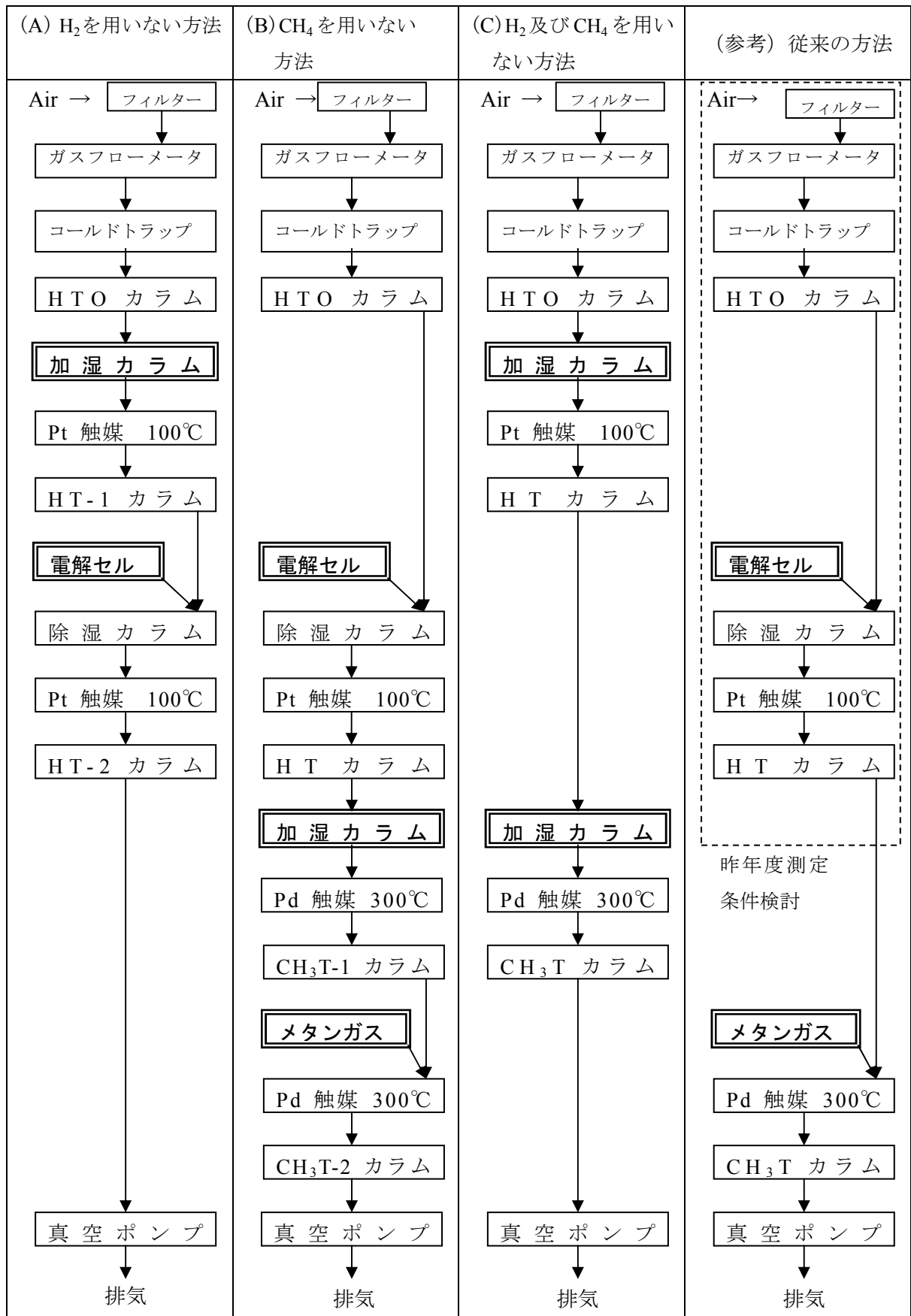


図1 大気中トリチウム採取装置の概略

2.2 分析方法

大気試料を捕集したモレキュラーシーブを管状炉で 400℃に加熱し水として回収し、試料水 10ml を 20ml 低拡散ポリエチレンバイアルに入れ、それぞれ液体シンチレータ Perkin Elmer Japan 社製 Ultima Gold LLT を同量混合し、測定試料とした。測定は液体シンチレーション計数装置（アロカ製 LSC-LB5）により行い、測定時間は 1000 分（50 分×20 回）とした。

3. 結果と考察

H₂ の代わりに水蒸気を添加した場合の大気中トリチウム捕集結果及びトリチウム濃度結果を表 1 に示す。

加湿カラムにより添加した水蒸気は、HT-1 カラムでほぼ全量回収されることを確認した。

HT 濃度は、水蒸気を添加した HT-1 カラムでは 6.2~8.5 mBq/m³、H₂ を用いた HT-2 カラムでは検出限界以下であったことから、水蒸気を添加することにより、大気中 HT を水として回収可能であることが確認された。なお、HT-1 濃度は、青森県六ヶ所村の 2006 年における濃度（約 10mBq/m³）³⁾ とほぼ同じレベルであった。

CH₄ の代わりに水蒸気を添加した場合の大気中トリチウム捕集結果及びトリチウム濃度結果を表 2 に示す。

加湿カラムにより添加した水蒸気は CH₃T-1 カラムでほぼ全量回収されることを確認した。CH₃T 濃度は、水蒸気を添加した CH₃T-1 カラムでは 2.0~3.4mBq/m³、CH₄ を用いた CH₃T-2 カラムでは検出限界以下~2.1mBq/m³ であった。計数誤差を考慮すると、水蒸気添加による大気中 CH₃T の回収の確認には、さらに採取量及び測定方法の検討が必要である。なお、CH₃T-1 濃度は、計数誤差を考慮すると、青森県六ヶ所村 2006 年における濃度（約 1mBq/m³）³⁾ とほぼ同じレベルであった。

表 1 H₂を用いない方法による大気中トリチウム捕集結果及びトリチウム濃度結果

No.	A-1	A-2	A-3	備考
採取時間(min)	5,506	4,082	4,237	
採取流量(L/min)	1.42	1.21	1.31	
積算流量(m ³)	7.813	4.931	5.540	
①HTO(除湿水)(g)	3.40	1.39	4.12	
②HTO カラム(g)	44.46	33.10	29.34	
HTO 捕集量(g):①+②	47.86	34.49	33.46	
湿分(g/m ³)* ¹	6.1	7.0	6.0	
絶対湿度 (g/m ³)* ²	5.9	5.7	6.2	
③加湿カラム減少量(g)	14.47	11.24	10.22	
④Pt カラム増加量(g)	0.00	0.00	0.11	HT-1 カラム
⑤HT-1 カラム増加量(g)	15.35	11.64	10.58	
HT 捕集量(g) : ④+⑤	15.35	11.64	10.69	
(④+⑤) /③×100(%)	106	104	105	
⑥電解セル減少量(g)	16.46	14.58	15.15	
⑦除湿カラム増加量(g)	0.69	0.43	1.11	
⑧Pt カラム増加量(g)	0.00	0.00	0.00	HT-2 カラム
⑨HT-2 カラム増加量(g)	15.23	14.89	14.89	
HT 捕集量(g) : ⑧+⑨	15.23	14.89	14.89	
酸化効率(%)* ³	96.6	105	106	
HTO 濃度(mBq/m ³ -air)	(2.5±1.9)	(2.4±2.2)	6.4±1.9	
HT-1 濃度(mBq/m ³ -air)	7.1±0.67	8.5±0.78	6.2±0.61	HT-1 カラム捕集
HT-2 濃度(mBq/m ³ -air)	(0.76±0.58)	(-0.85±1.1)	(0.96±0.83)	HT-2 カラム捕集

*1 湿分(g/m³)=HTO 捕集量(g)/積算流量(m³)

*2 絶対湿度は気温と相対湿度から算出。

*3 酸化効率 (%) = (⑧+⑨) / (⑥-⑦) × 100

表2 CH₄を用いない方法による大気中トリチウム捕集結果及びトリチウム濃度結果

No.	B-1	B-2	B-3	備考
採取時間(min)	2,917	4,204	5,973	
採取流量(L/min)	1.64	1.72	1.70	
積算流量(m ³)	4.883	7.246	10.162	
①HTO(除湿水)(g)	0.97	2.66	4.12	
②HTO カラム(g)	26.96	38.01	52.90	
HTO 捕集量(g):①+②	27.93	40.67	57.02	
湿分(g/m ³)* ¹	5.7	5.6	5.6	
絶対湿度 (g/m ³)* ²	5.4	5.5	5.5	
③電解セル減少量(g)	10.77	15.22	21.25	
④除湿カラム増加量(g)	0.43	0.41	1.31	
⑤Pt カラム増加量(g)	0.03	0.00	0.00	
⑥HT カラム増加量(g)	10.76	14.43	21.06	
HT 捕集量(g) : ⑤+⑥	10.79	14.43	21.06	
酸化効率(%)* ³	104	97.4	106	
⑦加湿カラム減少量(g)	8.25	9.19	11.23	
⑧Pd カラム増加量(g)	-0.46	0.00	0.09	CH ₃ T-1
⑨CH ₃ T-1 カラム増加量(g)	9.6	10.84	12.96	カラム
CH ₃ T-1 捕集量(g) : ⑧+⑨	9.14	10.84	12.96	
(⑧+⑨) / ⑦ × 100(%)	111	118	116	
⑩メタンガス供給量(g:HTO 換算)	10.11	14.33	20.35	
⑪Pd カラム増加量(g)	-0.22	0.00	-0.05	CH ₃ T-2
⑫CH ₃ T-2 カラム増加量(g)	11.45	14.85	21.26	カラム
CH ₃ T-2 捕集量(g) : ⑪+⑫	11.23	14.85	21.26	
酸化効率(%)* ⁴	111	104	104	
HTO 濃度(mBq/m ³ -air)	(4.1±1.4)	(4.2±1.7)	(4.0±1.7)	
HT 濃度(mBq/m ³ -air)	7.6±0.69	8.0±0.73	7.7±0.74	
CH ₃ T-1 濃度(mBq/m ³ -air)	3.4±1.0	2.1±0.46	2.0±0.39	CH ₃ T-1 カ ラム捕集
CH ₃ T-2 濃度(mBq/m ³ -air)	(1.1±0.66)	(0.79±0.64)	2.1±0.65	CH ₃ T-2 カ ラム捕集

*1 湿分(g/m³)=HTO 捕集量(g)/積算流量(m³)

*2 絶対湿度は気温と相対湿度から算出。

*3 酸化効率 (%) = (⑤+⑥) / ((③-④) × 100)

*4 酸化効率 (%) = (⑪+⑫) / ⑩ × 100

4. 今後の予定

H₂、CH₄を用いない方法の検討結果については平成 20 年度にとりまとめることとし、今後は、可燃性ガスを使用しない方式^{2),3)}で、大気中トリチウムを化学形別に捕集できることを確認し、モニタリング地点における実態調査に向けて、従来⁴⁾との比較検討を継続して行うとともに、採取条件の検討や採取装置の改良を行う。

文 献

- 1) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of 3H released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant , Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,262,569-572(2004)
- 2) 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 年秋の大会予稿集，299(2006)
- 3) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、管野邦昭、佐々木利拓：安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発，日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集，323(2007)
- 4) 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 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 調査

五十嵐飛鳥 木村芳伸 木村秀樹 住谷秀一^{*1}

1. はじめに

青森県では、平成元年度から「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画」（以下、「基本計画」とする）に基づき、原子燃料サイクル施設周辺における環境放射線モニタリングを実施している。

一方、放出される放射性物質に起因する放射線（能）が本県の環境放射線モニタリングにおいて施設からの影響の有無を把握可能なレベルのものと推定されている原子燃料サイクル施設の一施設である再処理工場は、平成 18 年 3 月 31 日から実際の使用済燃料を用いた総合試験（アクティブ試験）を開始した。このことを踏まえ、「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、施設周辺住民等の施設起因の線量を評価していくこととし、また、六ヶ所再処理工場から環境への影響をより詳細に把握し、県が実施する環境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、調査研究を実施することとした。

これらの一環として、平成 19 年度から、環境モニタリング対象核種のうちトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129 を対象とし、県と事業者（日本原燃株式会社）が共同で調査研究を実施することとした。

平成 19 年度は対象試料及び調査地点の選定を行い、調査計画を策定するとともに、計画に基づき調査を行った。平成 19 年度の調査結果については次年度の平成 20 年度にとりまとめることとしている。

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、それぞれ基本計画から選定し、表 1 のとおりとする。

2.2 測定方法

(1) トリチウム

- ・試料を真空凍結乾燥により TFWT と OBT を分別して分析する。ただし、精米については含まれる水分が少ないことから、OBT のみを分析する。
- ・トリチウムの測定は、文部科学省マニュアル「トリチウム分析法」に準拠し、液体シンチレーション計測法とする。

(2) 炭素-14

- ・試料を真空凍結乾燥後、文部科学省マニュアル「放射性炭素分析法（ベンゼン合成法）」に準拠し、ベンゼン合成—液体シンチレーション計測法により分析する。

*1：日本原燃(株)

(3) ヨウ素-129

・試料を真空凍結乾燥後、燃焼－固相抽出法によりヨウ素を分離し、ヨウ化銀の沈殿を生成した後、加速器質量分析法でヨウ素-129の測定を行う。なお、測定は、日本原子力研究開発機構むつ事務所が保有する加速器質量分析装置（AMS）を利用する。

・ICP-MSにより安定ヨウ素を分析し、試料中ヨウ素濃度を求める。

表 1 調査計画

試料	区分	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
				³ H		¹⁴ C	¹²⁹ I
				TFWT*1	OBT*2		
牛乳 (原乳)	県	富ノ沢	2	○	○	○	—
		横浜町	4	○	○	○	—
	事業者	富ノ沢	2	○	○	○	—
		二又	4	○	○	○	—
		豊原		○	○	○	—
精米	県	尾駸	1	—	○	●	—
		千樽		—	○	●	—
		野辺地		—	○	●	—
	事業者	尾駸		—	○	●	—
		二又		—	○	●	—
		戸鎖		—	○	●	—
ハクサイ	県	出戸	○	○	●	○	
	事業者	千樽	○	○	●	○	
キャベツ	県	横浜町	○	○	●	○	
ダイコン		出戸	○	○	●	—	
バレイショ	事業者	尾駸	○	○	●	—	
ナガイモ	県	東北町	○	○	●	—	
	事業者	平沼	○	○	●	—	
魚類	県	六ヶ所村 前面海域	●	○	—	—	
	事業者		●	○	—	—	
海藻類	県	前面海域	—	—	—	○	
	事業者		—	—	—	○	

○：本調査で実施する項目

●：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で実施している項目

*1 TFWT：組織自由水トリチウム

*2 OBT：有機結合型トリチウム

5. ICP質量分析法による環境試料中のプルトニウム同位体調査

工藤俊明

1. はじめに

本県では、平成元年度から「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画」に基づき、原子力施設から環境へ放出される放射性物質の蓄積状況を把握するため、表土、湖底土及び海底土中のプルトニウムの分析測定を実施しており、分析測定方法として α 線スペクトロメトリを用いている。

本測定法においては、Pu-239とPu-240が放出するそれぞれの α 線のエネルギーが近接しており弁別定量できないことから、両核種の合計量(Pu239+240)として定量している。

一方、プルトニウムの迅速分析に用いられるICP質量分析法では、Pu-239とPu-240を弁別してそれぞれを定量することが可能であり、Pu-240とPu-239の比を求めることにより、施設寄与分のプルトニウムを推定することが可能である。

本研究では、再処理工場から放出される放射性物質による環境への影響の評価に資するため、モニタリングを開始した平成元年度からこれまでのモニタリング対象環境試料について、ICP質量分析法を用いてPu-239及びPu-240のバックグラウンドレベルを把握するとともにアクティブ試験開始後においても継続調査を行う。

平成19年度は、最適な測定条件を確立するため試料導入方法や積分時間・繰返回数検討等とともに、分析・測定の信頼性及び精度の確認のため、標準物質の分析を行う。これらの結果については、次年度の平成20年度にとりまとめることとしている。

2. 調査方法

2.1 分析方法

分析法は、文部科学省放射能測定法シリーズ28「環境試料中プルトニウム迅速分析法」¹⁾に準じて行う。試料10gを分取し、マッフル炉を用い500°Cで4時間加熱して有機物を分解し、Pu-242トレーサ0.030Bqを添加し、10M硝酸-1Mフッ化水素酸混合溶液60mlを加え、マイクロウェーブ分解装置によるプルトニウム浸出を30分間×2回行う。浸出液中のプルトニウムを亜硝酸ナトリウムでPu⁴⁺に調整した後、硝酸系次いで酢酸系の陰イオン交換法によりプルトニウムを分離・精製し硝酸溶液としたものを測定試料とする。陰イオン交換樹脂は、文部科学省放射能測定法シリーズで示されるダウエックス樹脂と同等品であるBio-Rad Laboratories製AG樹脂を使用する。

2.2 測定方法

ICP質量分析装置は、SIIナノテクノロジー製SPQ9000を用いた。Pu-239とPu-240の定量法は、同位体希釈法を用い、化学分離・精製の前に添加した既知量のPu-242トレーサとのイオンカウントの比から算出する。本定量法は化学収率の補正を要しないのが特徴であるが、別途化学収率を算出するため、試料溶液に内部標準として一定量のTIを添加する。

3. 測定条件の検討

3.1 試料導入方法

装置への試料溶液の導入方法について、標準装備の同軸形ネブライザーと、超音波ネブライザー（CETAC U-5000AT+）を検討した。一般には超音波ネブライザーの方が高感度であるが、試料溶液の消費量が多いことから測定時間と繰返回数を増やせないという欠点も併せ持つ。両者を比較するため、超純水と高純度硝酸を用いて希釈した Pu-242 標準溶液を装置に導入し、得られたイオンカウントから Pu-239 と Pu-240 の装置検出限界濃度²⁾を算出する。

3.2 積分時間及び繰返回数

積分時間及び繰返回数を増やすことにより、変動の少ない精度の良いデータを得られるものの、試料の消費量が増えるという欠点が出てくる。適した条件を検討するため、前項と同様に Pu-242 標準溶液を用い、標記の条件を変えて測定し、得られたイオンカウントから Pu-239 と Pu-240 の装置検出限界濃度を算出する。

3.3 U-238 の影響について

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

4. 標準物質の測定

分析・測定の信頼性及び精度を確認するため、標準物質を分析して Pu-239+240 放射能濃度、Pu-240/Pu-239 原子数比を求め、文献値³⁾と比較する。

5. 今後の予定

平成 20 年度は、ICP 質量分析装置の質量差別効果の補正方法の検討と、県が実施する環境放射線モニタリングにおいてこれまでに採取した試料（湖底土、海底土、表土）の分析を行うとともに、このうち一部の試料について財団法人日本分析センターとのクロスチェックを行うこととする。

文 献

- 1)文部科学省：環境試料中プルトニウム迅速分析法（平成 14 年制定）
- 2)日本工業規格：高周波プラズマ質量分析通則 JIS K 0133（平成 12 年制定）
- 3)Yoshihito Ohtsuka, Yuichi Takaku, Jyoji Kimura, Shun'ich Hisamatsu and Jiro Inaba : Development of Rapid Plutonium Analysis for Environmental Samples by Isotope Dilution/Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry with On-line Column, ANALYTICAL SCIENCES, 21, 205-208(2005)

6. 河底土中フッ素濃度の変動に係る原因調査

齊藤 陽 五十嵐飛鳥

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設に係る環境モニタリングの一環として、ウラン濃縮工場による環境への影響を把握することを目的とし、河底土（老部川上流及び下流）中のフッ素濃度調査を行っている。

本調査は平成元年度から実施しており、平成12年度までは経年変動があるものの同様の水準で推移してきたが、平成13～15年度にそれ以前の変動範囲をはずれる高めの調査結果となった。

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

以上の観点から、平成13年度から15年度における変動要因の把握のため、平成18年度に、モニタリング地点近傍の支流周辺の河底土及び表土から河底土への寄与について調査を実施した。引き続き平成19年度は、老部川流域の比較的広い地域における、表土から河底土への寄与について検討することとして調査を実施した。

2. 平成19年度までの成果と平成20年度以降の計画

調査地点の概略は図1のとおりであり、老部川上流地点（R1）及び老部川下流地点（R2）がモニタリング地点である。図2に河底土中フッ素濃度の経年変化を示す。老部川上流地点（R1）において平成13～15年度にそれ以前の変動範囲をはずれる高めの調査結果となっている。老部川下流地点（R2）においても平成15年度に老部川上流地点（R1）と同様の変動がみられる。

平成18年度は、モニタリング地点近傍において、支流地点（R4～R6）の河底土及び支流周辺（G1）の表土を採取し、フッ素濃度等の分析を行うとともに、これまで採取したモニタリング試料も対象として、AEC（陰イオン交換容量）測定及び蛍光X線分析による元素組成の半定量を行った。

各分析の結果、①老部川本流より、支流においてフッ素濃度が高いこと、②本流、支流ともに、河底土又は表土中のフッ素濃度とCa、Al、Mg等との相関が認められることが明らかとなった。

平成19年度は、新たに老部川上流地点周辺（G3）の表土及び上流地点よりさらに上流の地点（老部川最上流地点周辺（G2））の表土を採取し、フッ素濃度、強熱減量について調査した。

平成20年度は、これまで採取した試料について、安定元素濃度（Ca、Al、Mg等）とフッ素濃度との関連性を調査することで、老部川流域における表土から河底土への寄与を検討する。

なお、本調査結果については、平成20年度にとりまとめることとしている。

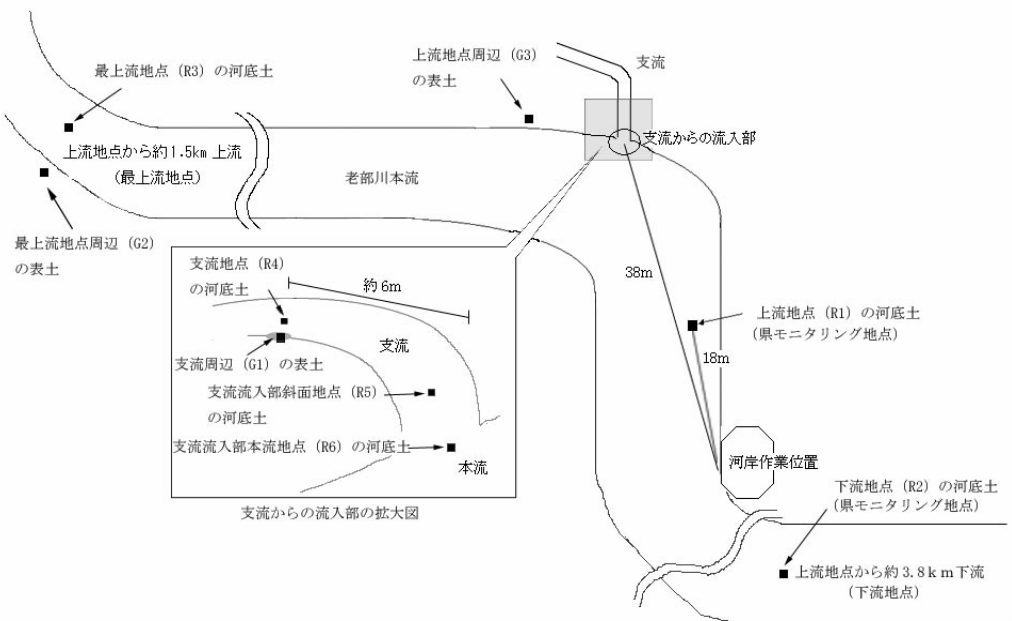


図1 老部川における河底土等採取地点

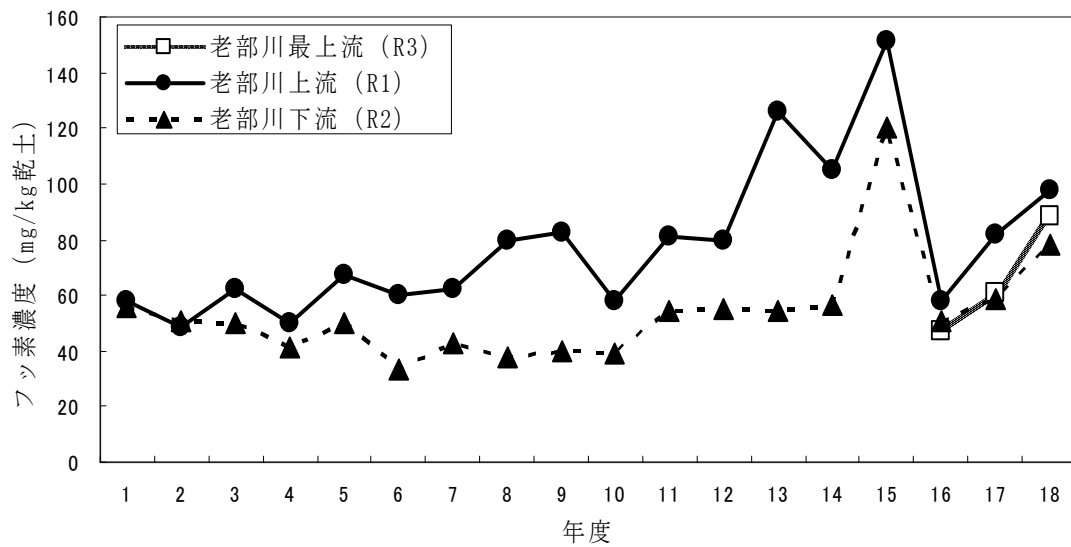


図2 河底土中フッ素濃度の経年変化

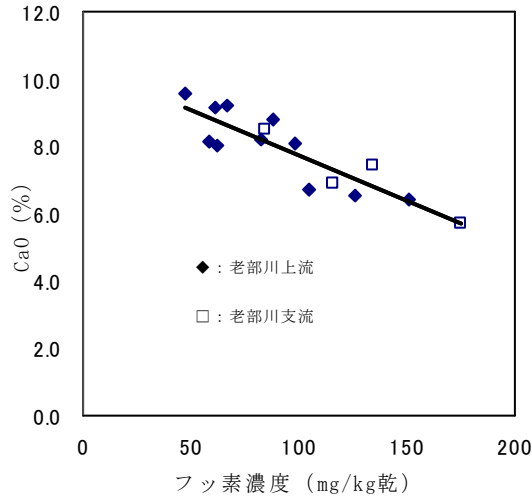


図3 フッ素濃度と全試料中 CaO の相関

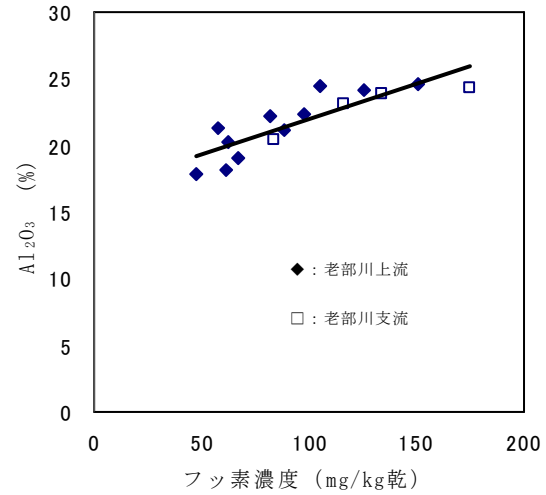


図4 フッ素濃度と全試料中 Al₂O₃ の相関

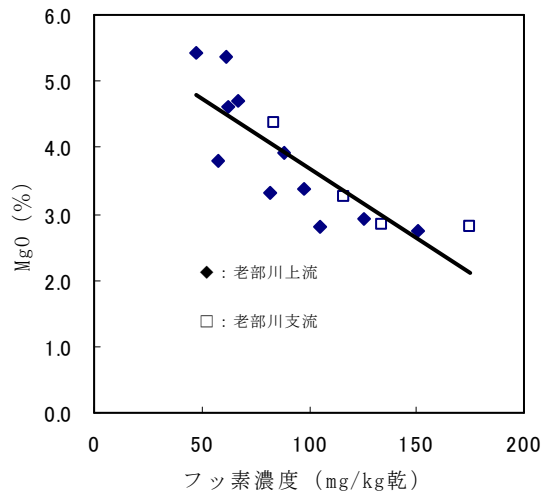


図5 フッ素濃度と全試料中 MgO の相関

表1 R1、R3~R6、G1 地点調査結果

	採取日	試料名	地点名	フッ素濃度 (mg/kg乾土)
1	H5. 10. 14	河底土	老部川上流地点 (R1)	67
2	H7. 10. 5	河底土	老部川上流地点 (R1)	62
3	H13. 10. 31	河底土	老部川上流地点 (R1)	126
4	H14. 10. 23	河底土	老部川上流地点 (R1)	105
5	H15. 10. 10	河底土	老部川上流地点 (R1)	151
6	H16. 10. 12	河底土	老部川上流地点 (R1)	58
7	H17. 10. 20	河底土	老部川上流地点 (R1)	82
8	H18. 10. 19	河底土	老部川上流地点 (R1)	98
9	H16. 10. 12	河底土	老部川最上流地点 (R3)	47
10	H17. 10. 20	河底土	老部川最上流地点 (R3)	61
11	H18. 10. 19	河底土	老部川最上流地点 (R3)	88
12	H18. 10. 19	河底土	支流地点 (R4)	116
13	H18. 10. 19	表土	支流周辺 (G1)	175
14	H18. 10. 19	河底土	支流流入部斜面地点 (R5)	134
15	H18. 10. 19	河底土	支流流入部本流地点 (R6)	84

3. 調査方法

3.1 調査地点・試料数

(1) モニタリング地点

河底土 2 試料（老部川上流地点（R1）、老部川下流地点（R2））

表土 1 試料（老部川上流周辺（G3））

(2) 老部川最上流地点（モニタリング地点から約 1.5km 上流）

河底土 1 試料（老部川最上流地点（R3））、表土 1 試料（老部川最上流周辺（G2））

(3) モニタリング地点近傍

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

表土 1 試料（支流周辺（G1））

3.2 分析項目

フッ素、強熱減量、安定元素（Ca、Al、Mg 等）

3.3 分析方法

(1) フッ素 直接蒸留ーイオン電極法

(2) 強熱減量 105℃乾土を 600℃で 2 時間加熱

(3) 安定元素 過塩素酸・フッ化水素酸分解法ーICP 発光分析法

文 献

- 1) 山縣登、大喜多敏一 編、大喜多敏一、森正樹、金田和子：環境汚染分析法 11 ハロゲン，7，大日本図書(1973)

7. 東通原子力発電所に係る空間 γ 線スペクトル測定調査

貝森優希 工藤俊明 安積 潔 齊藤 陽

1. はじめに

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

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

以上を踏まえ、平成 18 年度は、東通原子力発電所周辺地域において可搬型 Ge 半導体検出器及び NaI(Tl)スペクトロメータを用いた空間 γ 線スペクトル測定を実施し、各調査地点における核種・壊変系列ごとの空間 γ 線量率及び土壌中の放射能濃度の解析を行った。

また、空間放射線の主な起源となる表土について、その性状等を把握し、基礎資料とするため、調査地点において平成 18 年度に土壌を採取し、平成 19 年度に γ 線放出核種分析を実施した。

2. 平成 18 年度の調査内容

図 1 に示すとおり、「東通原子力発電所に係る環境放射線モニタリング実施計画」に定める積算線量調査地点（全 21 地点）において、可搬型 Ge 半導体検出器及び NaI(Tl)スペクトロメータにより空間 γ 線スペクトル測定を実施した。可搬型 Ge 半導体検出器による測定結果については、Beck が開発した方法¹⁾²⁾（HASL 方式）を用いて核種・壊変系列ごとに空間 γ 線量率及び土壌中の放射能濃度の算出を行った。

また、現地の状況から土壌の採取が可能と判断した 11 地点については、併せて土壌の採取（直径 5 cm、深さ 25 cm の採土器を用いて、1 地点につき 5 点採取）を行った。

3. 平成 19 年度の調査内容と今後の予定

3.1 採取土壌の前処理

採取した土壌は、実験室において表層～5 cm、5～10 cm 及び 10～25 cm の 3 層に切り分け、同一の地点・深度のものを混合し、105℃で 24 時間以上乾燥した。

乾燥後、2 mm メッシュのふるいを用いて乾燥細土とした。

3.2 測定

乾燥細土を U-8 容器に適量分取し、Ge 半導体検出器により測定を行った。

- (1) 装置 SEIKO EG&G ORTEC 製 GMX-25、GMX-40
- (2) 測定時間 80,000 秒

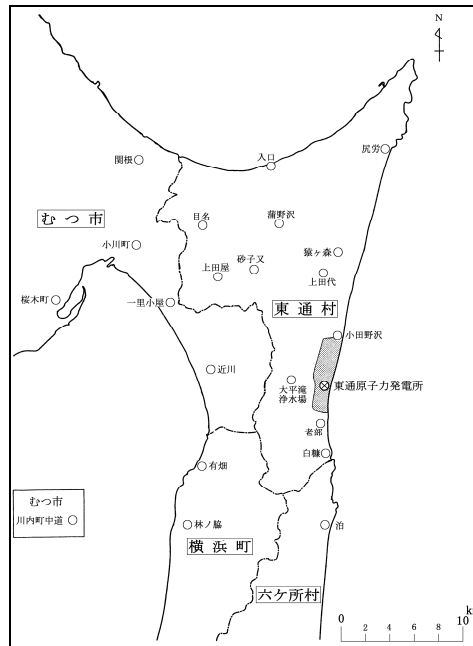


図 1 調査地点図

(3) 測定核種 γ 線放出核種

天然放射性核種 [Th 系列 (Th-232, Ac-228)、U 系列 (Pb-214, Bi-214)、K-40]
人工放射性核種 [Cs-137 他]

3.3 調査結果

採取した土壌の深度別 γ 線放出核種分析結果を表 1 及び図 2 に示す。

天然放射性核種については、どの地点についても採取深度によらず同程度の濃度であり、猿ヶ森、入口、むつ市川内町及び白糠の 4 地点は、U 系列、Th 系列、K-40 濃度ともに高めの傾向がみられた。

人工放射性核種については Cs-137 のみ検出された。上田代及び上田屋の 2 地点については、各深度において Cs-137 濃度が検出されなかった。

3.4 今後の予定

本調査結果をとりまとめる過程において、HASL 方式による解析結果に疑義が生じたため、算出過程等について確認したところ、解析ソフトの不具合である可能性が高いことが判明した。現在、ソフト開発元に対応を協議しているところであり、正常に解析できることを確認した上で、平成 20 年度に調査結果をとりまとめる予定としている。

文 献

- 1) H. L. Beck, J. DeCampo and C. Gogolak: "In Situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-ray Spectrometry" (1972).
- 2) 財団法人分析センター編:「環境放射能分析研修 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定法解説」, (財)日本分析センター(2006).

表1 土壤中深度別γ線放出核種分析結果

(単位: Bq/kg 乾)

地点名	採取深度 (cm)	天然放射性核種				^{40}K	^{137}Cs
		Th 系列		U 系列			
		^{208}Tl	^{228}Ac	^{214}Bi	^{214}Pb		
猿ヶ森	0~5	12±0.5	35±1.9	18±1.1	20±1.3	370±10	3.7±0.58
	5~10	12±0.5	35±1.7	19±1.0	21±1.0	330±10	3.5±0.55
	10~20 [※]	13±0.5	33±1.7	17±1.0	18±1.1	330±9	3.9±0.52
目名	0~5	5.0±0.4	13±1.5	12±0.9	13±0.9	190±9	8.3±0.57
	5~10	5.5±0.4	15±1.4	12±0.8	14±0.8	200±9	11±0.56
	10~25	6.2±0.4	16±1.3	12±0.8	14±0.8	190±8	7.8±0.49
入口	0~5	10±0.4	26±1.4	15±0.8	18±0.8	220±9	4.1±0.49
	5~10	12±0.4	28±1.5	18±0.8	20±0.8	250±9	7.7±0.51
	10~25	9.0±0.4	24±1.4	15±0.8	17±0.8	230±8	3.7±0.49
尻労	0~5	6.8±0.5	19±1.5	13±0.9	12±1.0	260±8	(1.0±0.47)
	5~10	5.8±0.4	17±1.2	8.5±0.8	10±0.9	230±7	1.7±0.53
	10~20 [※]	7.6±0.4	23±1.4	11±0.9	14±1.0	280±12	(1.1±0.45)
関根	0~5	3.1±0.3	7.4±1.0	5.2±0.6	7.0±0.6	160±7	1.6±0.37
	5~10	2.3±0.3	6.5±1.0	7.0±0.6	5.8±0.6	170±7	2.1±0.35
	10~25	2.6±0.3	7.2±1.0	5.4±0.6	5.7±0.6	170±7	2.2±0.33
有畑	0~5	8.4±0.4	21±1.3	13±0.8	15±0.8	260±9	3.4±0.44
	5~10	7.6±0.3	20±1.3	13±0.7	14±0.7	220±8	3.0±0.42
	10~25	6.8±0.4	20±1.3	12±0.7	13±0.7	230±8	2.7±0.40
むつ市川内町	0~5	8.5±0.5	26±1.8	15±1.0	17±1.0	280±11	10±0.65
	5~10	9.8±0.5	29±1.6	16±0.9	18±0.9	280±10	5.8±0.58
	10~25	7.1±0.4	22±1.5	15±0.9	18±0.9	320±10	3.8±0.50
白糠	0~5	9.8±0.5	31±1.8	17±1.0	21±1.0	310±11	9.4±0.63
	5~10	9.2±0.5	23±1.7	16±1.0	18±0.9	280±10	7.4±0.59
	10~25	8.3±0.4	23±1.4	14±0.8	17±0.8	260±9	7.9±0.54
上田代	0~5	7.6±0.5	20±1.6	12±0.9	15±0.9	280±10	(0.22±0.34)
	5~10	7.0±0.4	24±1.5	13±0.9	15±0.8	300±10	(0.45±0.48)
	10~25	7.8±0.4	23±1.5	14±0.9	16±0.8	310±10	(0±0.46)
上田屋	0~5	3.7±0.4	10±1.3	6.7±0.8	8.4±1.0	170±7	(0.04±0.44)
	5~10	3.9±0.4	12±1.2	5.8±0.7	7.6±0.9	190±6	(0±0.38)
	10~25	4.7±0.4	15±1.2	11±0.7	11±0.8	180±7	(0±0.35)
蒲野沢	0~5	3.1±0.4	11±1.4	9.1±0.8	8.3±0.8	140±9	(0.83±0.46)
	5~10	3.4±0.4	8.8±1.4	7.1±0.8	7.2±0.8	150±9	(1.3±0.45)
	10~25	5.0±0.4	13±1.3	11±0.8	14±0.8	200±8	3.8±0.45
最大		13	35	19	21	370	11
最小		2.3	6.5	5.2	5.7	140	不検出

表中の()は、測定値がその計数誤差の3倍以下であることを示している。

※ 礫が多く、20 cm より下層が採取できなかった。

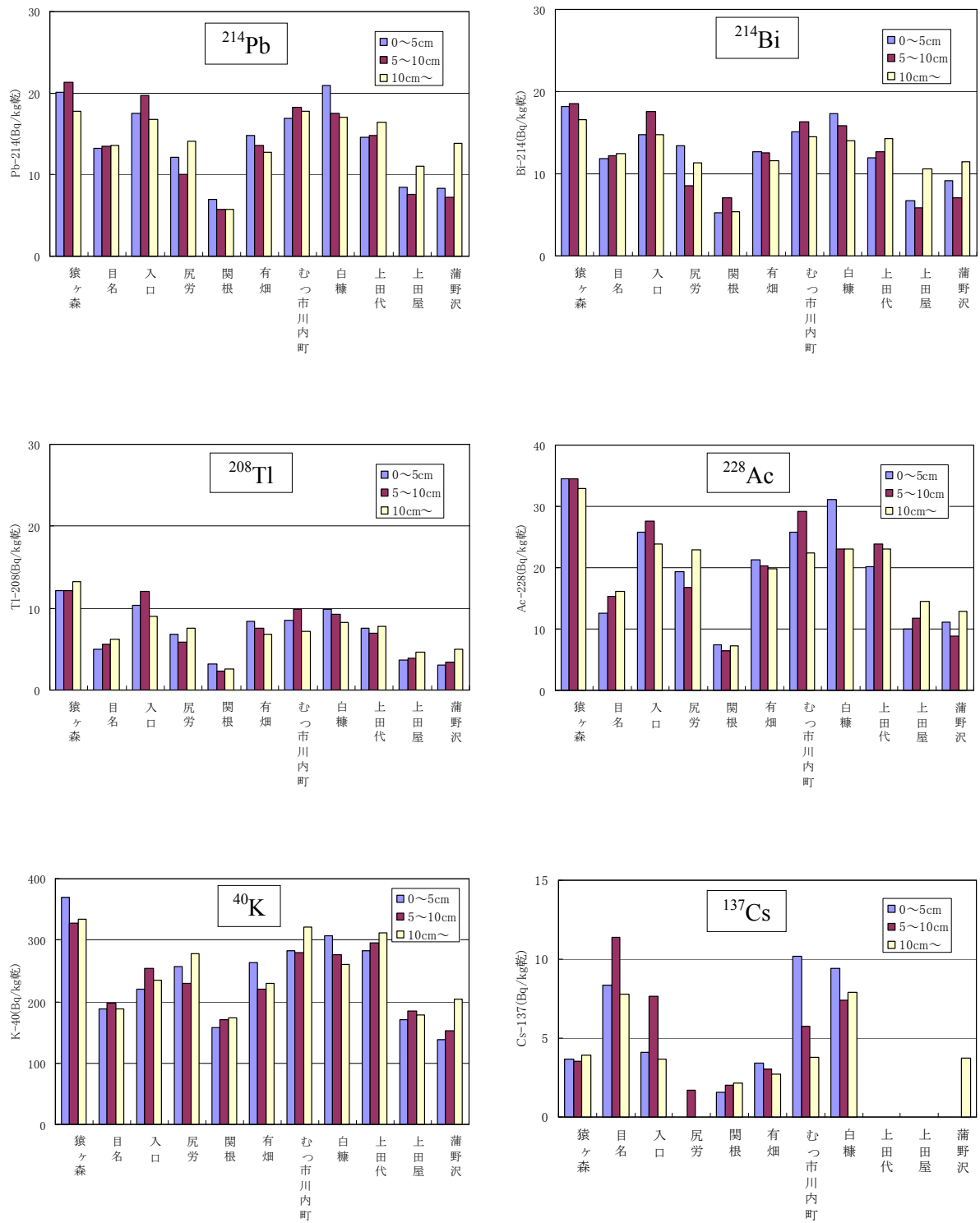


図2 土壤中深度別γ線放出核種分析結果

編集委員

齋藤 稔（委員長） 立田祥治（副委員長） 庄司博光
大久保英樹 木村秀樹 奥野直子 佐々木久美子（事務局）
工藤俊明 高橋秀昭 工藤真哉

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 2 号 (2007)

平成 20 年 3 月 発行

編集・発行 青森県原子力センター

〒039-3215 青森県上北郡六ヶ所村大字倉内字笹崎 400 番 1 号

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

この印刷物は 210 部作成し、印刷経費は 1 部当たり 円です。