

# 青森県原子力センター所報

第11号

平成28年度

Bulletin  
of  
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.11 (2016)

## 青森県原子力センター

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



## 目 次

### 研究報告

- 1 . 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 . . . . . 3  
- 走行測定による空間放射線測定結果の報告 -  
鈴木将文 佐々木 守 大久保英樹 木村秀樹  
玉熊義久 小川裕貴 阿部真之
- 2 . 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 . . . . . 19  
- 環境試料測定結果の報告 -  
木村芳伸 五十嵐飛鳥 工藤達晃 工藤 翔  
赤石 新 松山 大 木村秀樹 鈴木将文

### 技術報告

- 1 . 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 . . . . . 39  
- 平成 27 年度調査結果 -  
神 俊雄 赤石 新 松山 大  
鈴木彩加 幸 進 佐々木耕一

学会発表等要旨 . . . . . 55

### 平成 28 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 . . . . . 61
- 2 . 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 . . . . . 69  
(平成 28 年度実施内容)
- 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 . . . . . 71

## 原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

研究報告 調査研究事業で得られた成果や学会等で発表したものに加筆したもの、  
分析測定技術やモニタリング結果を検討し取りまとめたもの

技術報告 日常業務で得られた技術資料をまとめたもの

学会発表等要旨 学術誌等への掲載論文や学会発表の要旨

調査研究事業報告 当該年度調査研究事業の実施結果をとりまとめたもの

## 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、大間町に電源開発(株)の大間原子力発電所及び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の立地が進められており、現在、国において新規規制基準に係る適合性審査が進めら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6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進行形で取り組みを進めています。今年度より、緊急時における防護措置実施の判断のため、UPZ 圏内空間放射線量率を連続測定することを目的として簡易型電子線量計の整備を開始しており、来年度までに40地点に設置することとしています。

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、職員の資質向上の成果であると考えております。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。

所報第11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、引き続きご支援いただきますようよろしくお願い申し上げます。

平成29年3月

青森県原子力センター

所 長 安 田 浩



# 研 究 報 告





## 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 - 走行測定による空間放射線測定結果の報告 -

鈴木将文 佐々木 守 大久保英樹\*<sup>1</sup> 木村秀樹\*<sup>2</sup>  
玉熊義久 小川裕貴 阿部真之

青森県全域における空間放射線の水準を把握しておくことは、環境放射線モニタリング結果を解釈する上での参考となるほか、原子力災害発生時に環境へ放出された放射性物質による影響評価に資することとなる。このため、サーベイカーによる青森県全域の空間放射線量率の測定を行った。

測定値を国家標準のトレーサビリティのとれたサーベイメータによる 1 m 高さの測定値に換算することとし、得られた換算式についてサーベイメータによる詳細調査を行ったところ、傾きは主に遮へいの影響、切片は検出器の違いによるものと考えられた。

測定結果をサーベイメータ測定値に換算した結果は 22.0 ~ 111.3 nGy/h であり、幾何平均値は 38.2 nGy/h であった。また、地域別の幾何平均値では、最も高い地域は西地域の 47.2 nGy/h、最も低い地域は下北地域の 33.2 nGy/h であった。これらの測定値の違いは、地質による影響が考えられ、測定値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、測定値の低い地域は第四紀火山の周辺地域であった。

県内全域の平均値から年間の実効線量を算出すると約 0.20 mSv/y と見積もられた。

### 1. はじめに

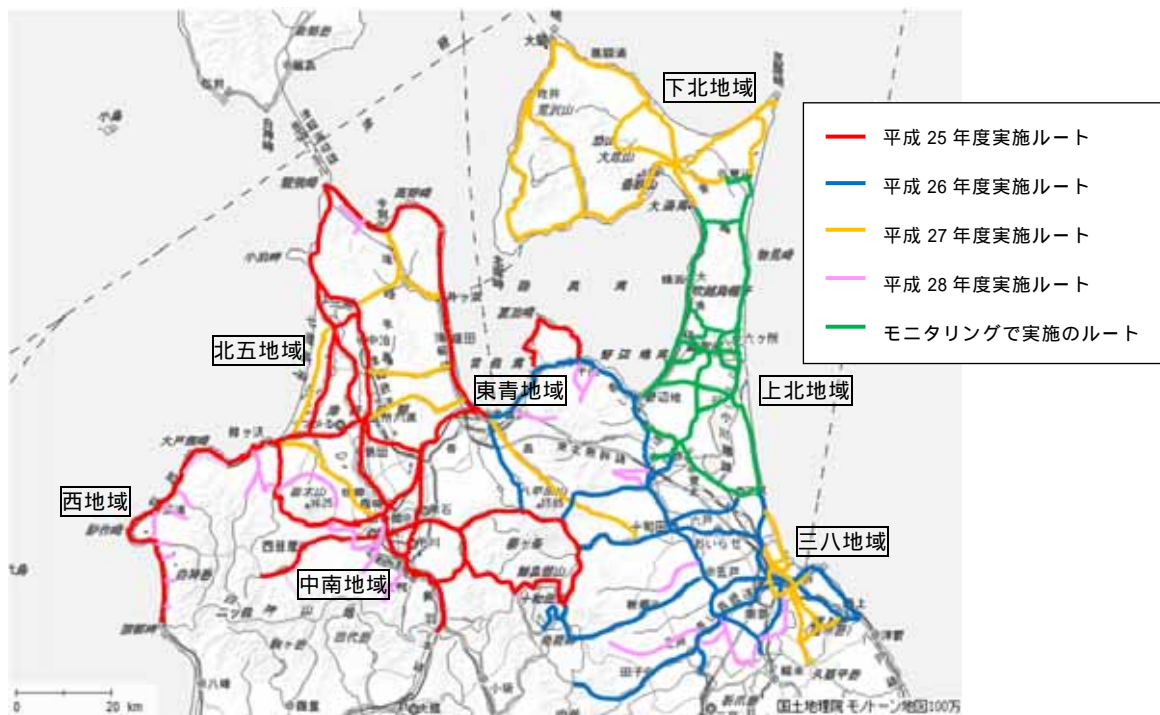
青森県では、原子力施設周辺の住民等の健康と安全を守るため、原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリングとして、空間放射線量率や環境試料中放射能濃度の調査を行っている。

これら原子力施設周辺地域の調査結果に加え、モニタリング対象地域外の環境放射線に係るデータを蓄積し、本県における環境放射線の水準を把握することは、モニタリング結果を解釈する上での参考となるほか、原子力災害発生時に環境へ放出された放射性物質による影響評価に資することができる。

このため、平成 25 年度から 4 か年にわたり、モニタリング対象地域を含む青森県全域において空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定し、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握してきた。本報では、サーベイカーの走行測定による空間放射線量率測定結果について、4 か年の調査結果を取りまとめたので報告する。また、これらの測定結果から年間の実効線量も算出したので併せて報告する。

\*1 現青森県三八地域県民局地域連携部八戸環境管理事務所

\*2 現青森県危機管理局原子力安全対策課



国土地理院の電子地形図 (タイル) にルート図を掲載。

図 1 青森県全域における走行測定ルート

## 2. 調査方法

### 2.1 走行測定ルートの選定

走行測定ルートは原則として各市町村の役場付近を通る主要道路 (国道又は主要地方道) を選定し、以下の点に留意した。

- ・高規格幹線道路、地域高規格道路を除外。
- ・バイパスがある場合は旧道を選定。
- ・未舗装道路は測定しない (特に山地)。

青森県全域における走行測定ルートを図 1 に示す。なお、同図には、地域別の測定結果を後述する際の位置関係も表している。

### 2.2 測定方法

#### (1) サーベイカー測定値から NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ測定値への換算

サーベイカーの測定値は車体による遮へいの影響があることから、汎用品である NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ (以下「サーベイメータ」という。) を用いて、サーベイカーと同じ場所で定点測定を実施し、得られた相関式からサーベイカーによる走行測定の結果をサーベイメータの測定値に換算すれば広く利用しやすくなる。

このため、付近に建物等のない平地で空間放射線量率の高い階上周辺地域と低い地点である六ヶ所村内の計 18 地点で定点測定を行った。併せて、地形の影響のある切り通しで 4 地点測定を行った。サーベイメータの測定方法は、検出器 (日立アロカメディカル(株)製 TCS-171B) を地上 1 m に横向きに設置し、時定数 (30 秒) の 5 倍の 150 秒後から 30 秒毎に 5 回読み取り、その平均値 (空気吸収線量率) を求めた。その後、同一の場所でサーベ

イカーによる測定を、サーベイメータの測定時間と合わせて 2 分半行った。なお、サーベイメータは 2 年 1 回校正を行っており、国家標準の照射線量（率）とのトレーサビリティがとれたものを使用している。

サーベイカー及びサーベイメータを平地で測定した結果を図 2 に示す。両者には正の相関が認められ、サーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあった。併せて、地形の影響のある切り通しにおいては上記相関に比べてサーベイカーの測定値の方が高い方に外れている。これは、サーベイカーの測定が、下面からの放射線を遮へいしており、相対的に側面からの影響を受けやすいことによるものと考えられる。

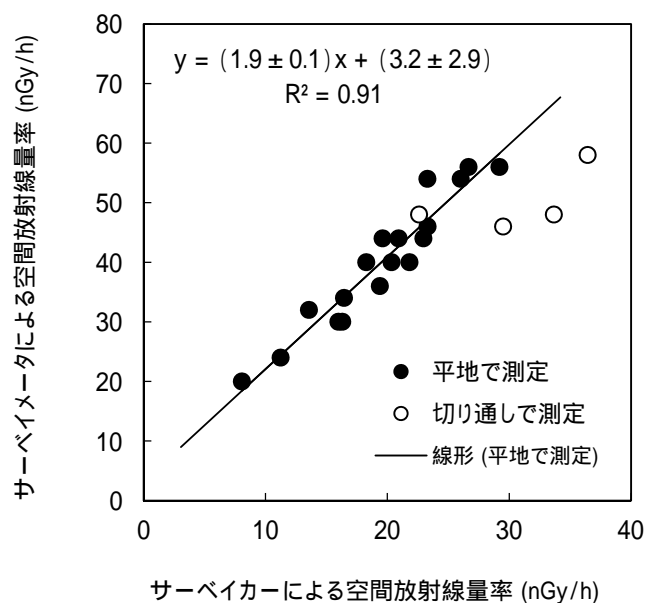


図 2 サーベイカーとサーベイメータによる定点測定比較結果

(2) サーベイカー測定値から NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ測定値への換算に関する詳細調査

サーベイカー測定値からサーベイメータ測定値への換算式を検討するため、両者の測定の違いを要因別に、①検出器の違い、②サーベイメータの温度特性、③車体による遮へい、④検出器の向き、⑤検出器の高さが考えられることから、それぞれの違いについて調査した。測定場所は、空間放射線量率が比較的高く、周囲に建物等のない場所（階上岳登山口駐車場の約 30 m×約 30 m）で行った。測定方法は、サーベイカーは 30 秒値を 30 回測定し（測定時間 15 分）、サーベイメータは測定開始 150 秒後から 90 秒毎にレートメータで 1 nGy/h の桁まで 10 回読み取った（時定数 30 秒、測定時間 15 分）。

検出器の違いに関する調査

サーベイカーとサーベイメータでは、どちらも NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用しているが、検出器自身の違いによる測定値の差を把握するため、サーベイカーの定点測定後、サーベイカー屋根上の検出器を取り外し、サーベイメータを検出器と同じ位置で同じ縦向きに固定して測定を行った。その結果、サーベイカーの測定値が 23.7±0.99 nGy/h、サ

サーベイメータの測定値が  $32 \pm 2.5$  nGy/h であり、その差は  $7.8 \pm 2.7$  nGy/h であった。

検出器の違いには、宇宙線の寄与および自己照射の違いが考えられる。宇宙線の寄与は、サーベイカーの検出器が 3 MeV 以上をカットしているため約  $2$  nGy/h<sup>1)</sup> となり、サーベイメータが 3 MeV 以上を 3 MeV としてエネルギー補償しているため約  $5$  nGy/h<sup>2)</sup> となることから、サーベイメータの方が約  $3$  nGy/h 高くなる。自己照射は、サーベイカーの検出器がメーカーによると約  $1.7 \sim 2$  nGy/h であり、サーベイメータが約  $1$  nGy/h<sup>2)</sup> とることから、サーベイカーの方が約  $0.7 \sim 1$  nGy/h 高くなる。これらを統合すると、文献値等から考えられる検出器の違いは、サーベイメータの方が約  $2 \sim 2.3$  nGy/h 高く、検出器の違いによって得られた値  $7.8 \pm 2.7$  nGy/h より小さな値となったが、定点測定結果で得られた回帰式の y 切片の値  $3.2 \pm 2.9$  nGy/h とは同程度であった。

#### サーベイメータの温度特性に関する調査

サーベイメータには温度特性がある事例<sup>3)</sup>があることから、①の条件から、サーベイカーの窓を開放して約 1 時間放置し、サーベイメータを外気温と同じ  $2.7$  °C とした上で、調査を行った。車内温度  $25$  °C でのサーベイメータの測定値は  $32 \pm 2.5$  nGy/h、外気温と同じ  $2.7$  °C での測定値は  $32 \pm 1.4$  nGy/h であった。両者の比は  $1.00 \pm 0.09$  となり、温度の影響は見られなかった。

#### 車体による遮へいに関する調査

②の条件から、サーベイカーを移動させ、サーベイカーの検出器と同じ場所、同じ縦向き、同じ高さ  $1.95$  m にサーベイメータを固定して測定を行った。測定値は  $48 \pm 2.9$  nGy/h であり、①におけるサーベイメータの測定値  $32 \pm 1.4$  nGy/h に対する比は  $1.51 \pm 0.11$  であった。

#### サーベイメータの検出器の向きに関する調査

サーベイカーとサーベイメータの検出器の向きが異なるため、③の条件から、サーベイメータの検出器の向きを横向きに変えて測定を行った。測定値は  $51 \pm 2.8$  nGy/h であり、縦向きの際の測定値  $48 \pm 2.9$  nGy/h に対する比は  $1.06 \pm 0.09$  であった。円筒形 NaI(Tl) 検出器の場合、軸方向を  $0^\circ$  とすると  $0^\circ$  から  $120^\circ$  程度までは軸方向よりも感度がよく<sup>1)</sup>、今回の結果も、この効果により横向きの方が若干高くなっているものと考えられる。

#### サーベイメータの検出器の高さに関する調査

サーベイメータとサーベイカーの検出器の高さが異なるため、④の条件から、サーベイメータを横向きのまま  $1$  m 高さにして測定を行った。測定値は  $51 \pm 2.5$  nGy/h であり、④におけるサーベイメータの測定値  $51 \pm 2.8$  nGy/h に対する比は  $1.01 \pm 0.07$  であった。

#### 要因分析

サーベイカーとサーベイメータの詳細調査結果を用いて、サーベイカーからサーベイメータへの換算式を次のとおり検討した。

サーベイカーの測定値を説明変数  $x$ 、サーベイメータの測定値を目的変数  $y$  とし、検出器による違いは固有のものであるため定数とし、検出器の温度特性、車体による遮へい、検出器の向き、検出器の高さの比を説明変数の乗数とすると、換算式は以下のとおりとなる。

$$\begin{aligned}
\text{サーベイメータ測定値 } y &= (\text{温度特性の影響}) \times (\text{遮へいの影響}) \times (\text{向きの影響}) \\
&\quad \times (\text{高さの影響}) \times \text{サーベイカー測定値 } x \\
&\quad + (\text{検出器の違い}) \\
&= (1.00 \pm 0.09) \times (1.51 \pm 0.11) \times (1.06 \pm 0.09) \\
&\quad \times (1.01 \pm 0.07) x + (7.8 \pm 2.7) \\
&= (1.6 \pm 0.3) x + (7.8 \pm 2.7)
\end{aligned}$$

得られた換算式は、誤差を考慮すると図2の定点測定結果で得られた回帰式  $y = (1.9 \pm 0.1)x + (3.2 \pm 2.9)$  と矛盾はなかった。

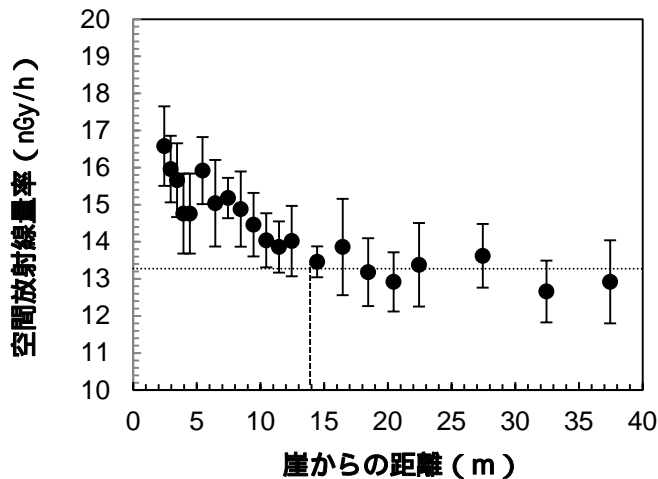
また、換算式の傾きが1より大きくなった最大の要因は、車体による遮へいの影響であり、他の要因であるサーベイメータの温度特性、向き、高さの影響については、誤差等が比較的大きく明確には確認できなかった。

### (3) 地形の影響調査

サーベイカーの測定結果は、大地からの影響のほか、山地や海岸に見られる崖や建物による影響も考えられることから、崖（幅 35 m×高さ 14 m、斜度 45°）から検出器までの距離と空間放射線量率の変化を調査した。車体を最も崖に近づけても、崖に斜度があること及び車両の側面から検出器までの距離があるため、2.5 m 程度離れることとなる。図3の調査結果は、それぞれの位置で5回測定（30秒値）し、その平均値を示すとともに、エラーバーで標準偏差を示している。また、調査の前にサーベイメータ検出器を崖表面及び地表面に接して測定したところ、それぞれ 32 nGy/h 及び 28~31 nGy/h であり、崖表面の空間放射線量率は地表面とほぼ同程度であった。また、崖の反対側は平地になっており地形の影響はない。

このような崖に最も近づけたところ測定値は最大値 16.6 nGy/h となり、崖から距離を大きくしていくと空間放射線量率は徐々に低下し、14 m 以遠ではバックグラウンドレベルとなった。最大値と 14 m 以遠の平均値 13.3 nGy/h との比をとると 1.25 倍であった。

このことから、崖による地形の影響や建物の影響は、崖から数 m 程度であれば測定値の 25%程度となることが十分に考えられる。実際、道路の路肩や検出器から車両側面までの距離があるため 3~4 m は離れるが、その程度の距離となる箇所は走行測定で多く見られた。すなわち、サーベイカーによる走行測定の結果には、その程度の誤差、すなわち地形や建物の影響が含まれていると考えられる。



(b) 崖の状況

(a) 崖からの距離と空間放射線量率の推移

- ・測定値は5回の平均値
- ・エラーバーは標準偏差

- ・幅 35 m×高さ 14 m、斜度 45°
- ・崖の反対側は平地
- ・崖と地面の表面線量率は同程度

図3 地形の影響調査結果

#### (4) サーベイカーによる県内全域走行測定

車両の屋根に設置されているエネルギー補償型 2”φ×2”NaI(Tl)シンチレーション検出器 (G(E)関数荷重演算方式、3MeV 以上カット、測定高さ 1.95 m、低線量率計) を用いてスケーラ方式により、空間放射線量率 (10 秒値、空気吸収線量率) を測定している。また、検出器は車内通風式であるため、車内の温度を一定 (25℃) に保つとともに、測定中の気温の変化に対しゲインを微調整する温度補償も測定装置で行われている。得られた測定結果は、概ね 500 m ごとに平均し、区間平均値を算出した。走行速度は、測定値の統計的な変動を抑えるため 60 km/h 以下とし、片側 2 車線以上の道路の場合は、周辺の地面からの放射線をできる限り測定できるように左端の車線を走行した。測定は、降雨雪のない日を選んで実施した。

サーベイカーによる県内全域走行測定結果は、以後、国家標準とのトレーサビリティのとれた地上 1 m 高さのサーベイメータ測定値に換算した値とする。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 サーベイカーによる県内全域走行測定

##### (1) 県内全域

サーベイカーによる青森県全域の走行測定結果の度数分布（幅 2 nGy/h）を図 4 に示す。測定結果は 22.0～111.3 nGy/h であり、算術平均値は 38.9 nGy/h、最頻値は 37 nGy/h であった。最頻値よりも高い方に裾野が大きく広がる傾向が見られた。なお、トンネルにおける測定結果は、側面及び上部からの放射線による地形の影響により測定値が高くなり、その地域の代表性としては適切ではないことから削除した。

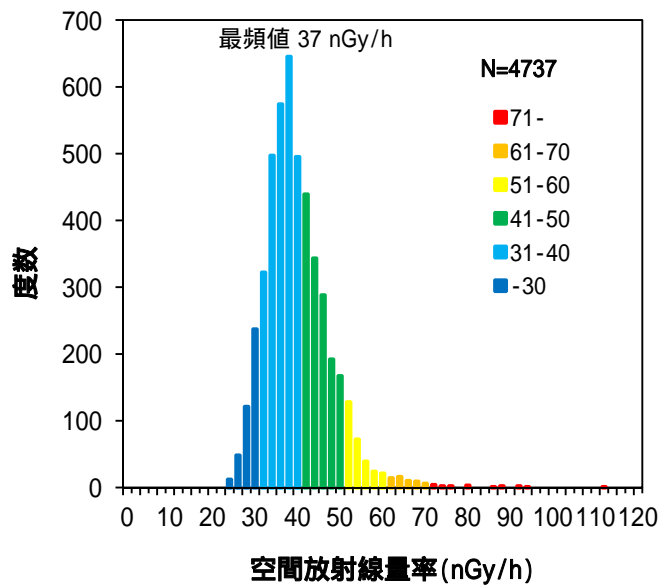


図 4 サーベイカーによる走行測定結果の度数分布（県内全域）

図 4 の度数分布の分布形を調べるため、走行測定結果を横軸対数目盛の正規確率プロットで表したものを図 5 に示す。その結果、測定値は、25 nGy/h と 50 nGy/h を境界とする 3 つの成分の対数正規分布が合成されたものと考えることが可能である。

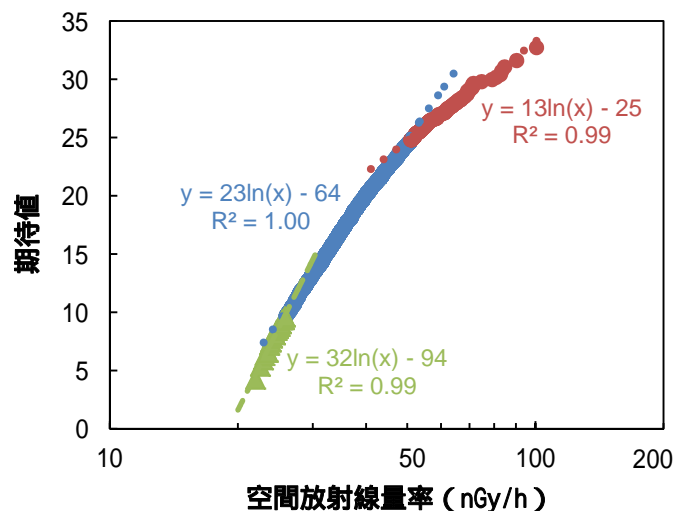


図 5 サーベイカーによる県内全域走行測定結果正規確率プロット（横軸：対数目盛）

## (2) 地域別

表 1 に走行測定結果を県内全域及び地域別に分類したものを示す。分布形が対数分布であることから、幾何平均値、幾何標準偏差を記載する。

また、度数分布を地域別に比較したものが図 5 であり、次のような地域特性が見られた。

- ・西地域は、最頻値が高いだけでなく、それよりも高い測定値も多い。
- ・三八地域は、最頻値が西地域と同程度に高いが、測定値が最頻値付近に集中している。
- ・下北地域は、最頻値が最も低い。
- ・その他の地域は、それぞれ最頻値が県全体の最頻値と同じ値であり、また、最頻値付近に集中している。

地域	全域	西	北五	中南	東青	三八	上北	下北
データ数	4737	374	470	529	707	801	1129	727
最大値	111.3	111.3	53.0	84.7	57.7	79.2	55.3	67.0
最小値	22.0	33.2	27.7	25.1	27.1	27.9	23.5	22.0
中央値	37.8	45.2	37.6	36.6	36.5	45.6	36.5	32.1
最頻値	37	43	37	37	37	45	37	29
幾何平均値	38.2	47.2	37.9	36.5	36.8	45.7	36.2	33.2
幾何標準偏差	1.2	1.2	1.1	1.2	1.1	1.1	1.1	1.2

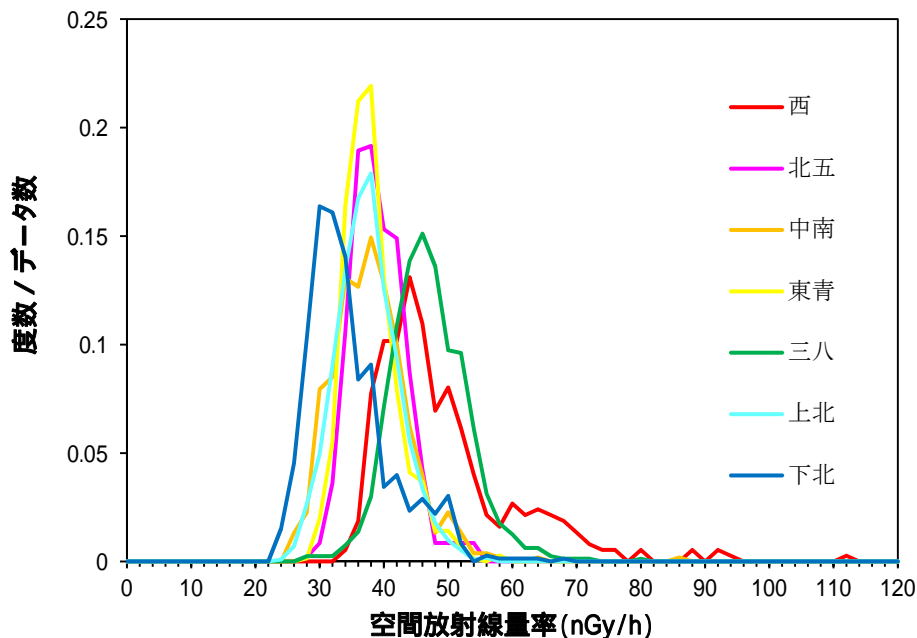
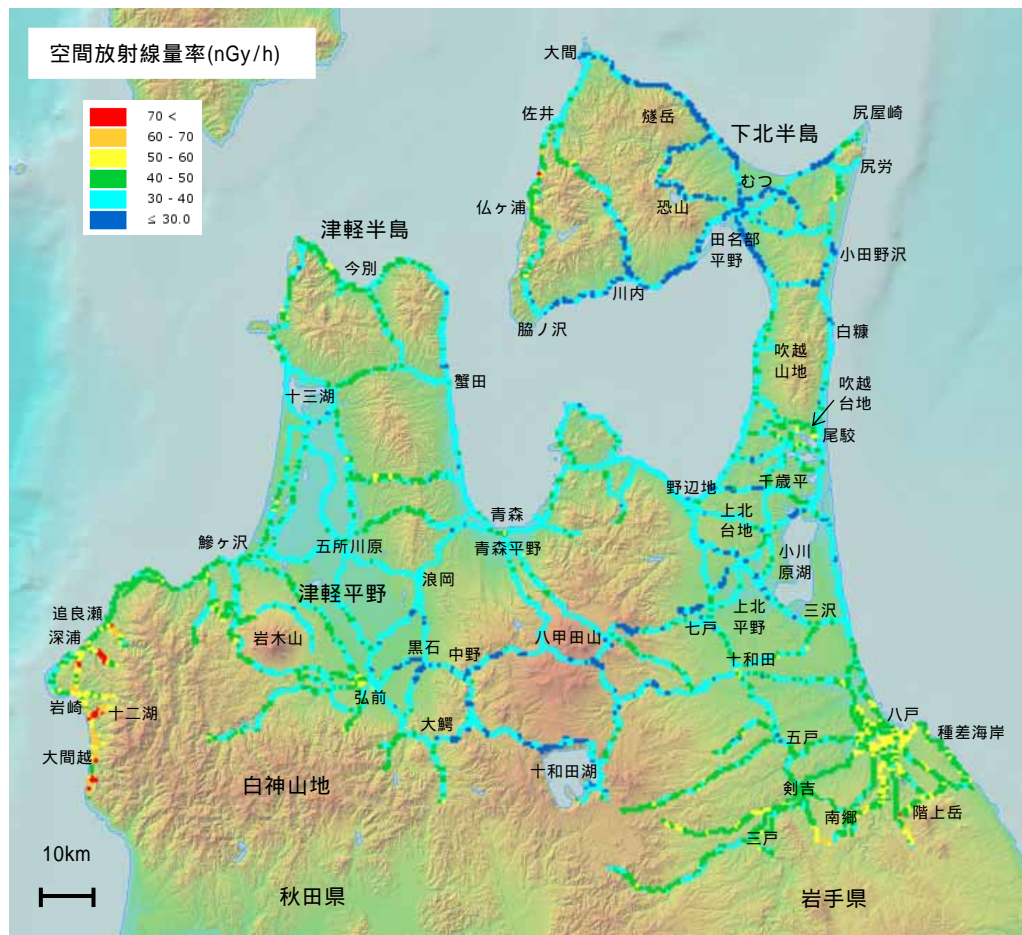


図 5 サーバイカーによる走行測定結果の度数分布 (地域別)





国土地理院の電子地形図（タイル）の色別標高図に走行測定結果を追記して掲載。

図6 サurveyカーによる走行測定結果（県内全域）

### (3) 県内全域の走行測定結果の分布図

図4で得られた走行測定結果を国立研究開発法人日本原子力研究開発機構がホームページ上で公開しているマッピングツール<sup>4)</sup>を用いて国土地理院の地理院地図にある色別標高図に表示したものを図6に示す。地図上の測定結果は500mメッシュで表示しており、メッシュ内の測定値（10秒値）の平均値となっている。分布図から、次のような特徴が見られている。

- ・空間放射線量率の高い地域は、日本海側の追良瀬から秋田県境、八戸及び三戸を中心とした三八地域、津軽半島の山地、白神山地、下北半島の西側の佐井から仏ヶ浦、下北半島の尻屋崎の南側及び原子燃料サイクル施設のある吹越台地であり、火山周辺を除く山地及び台地並びに海岸である。
- ・空間放射線量率の低い地域は、十和田湖、八甲田山、下北半島の恐山及び燧岳やこれらの周辺である黒石付近、田名部平野であり、火山及びその周辺の地域である。

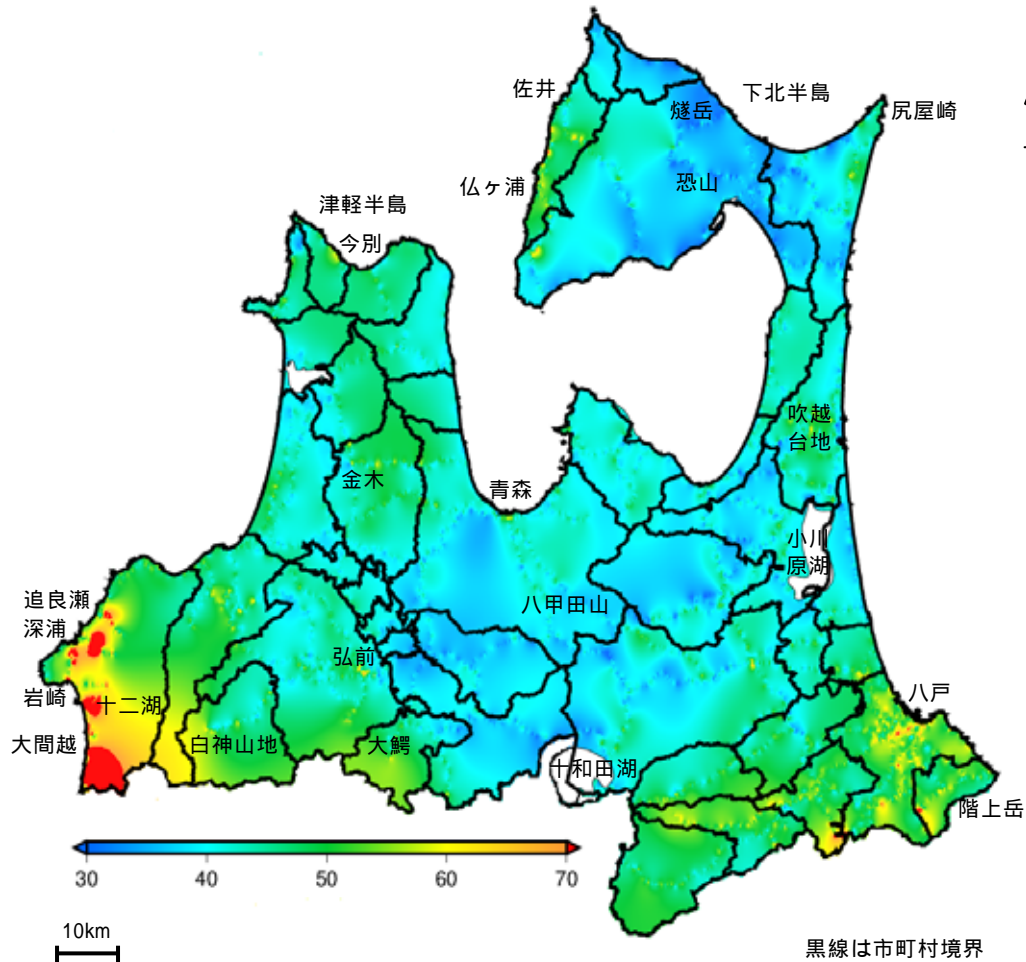


図7 青森県内の空間放射線量率の分布図  
 (サーベイカー走行測定結果を Generic Mapping Tools<sup>5)</sup>を用いてデータ補間)

#### (4) 他機関の空間放射線の分布図との比較

弘前大学では、2013年8月12日から18日にかけて実施した青森県内全域の走行測定結果について、ハワイ大学で開発されたソフトウェア Generic Mapping Tools<sup>5)</sup> (略して GMT) を用いて空気吸収線量率の分布図を作成している<sup>6),7)</sup>。このソフトウェアは、測定されていない地点のデータ補間方法として、曲率最小化アルゴリズムを用いている。このため、GMT は、高い測定値があると周辺の未測定地域の値を高くさせる傾向にある。同様の方法で本測定結果から作成した分布図を図7に示す。弘前大学で作成した分布図と比べると概ね同様の結果が得られたが、弘前大学では、青森県全域の詳細な空間放射線量率を把握するため、山地における未舗装のルートも測定しているが、本調査では舗装された道路のみを測定していることから、一部の地域（白神山地、津軽半島北部及び小川原湖西部等）で分布の状況が異なっている。

(公財) 環境科学技術研究所 (以下、「環境研」という。) は、1992年から1996年にかけて人口分布を考慮した県内109地点でガラス線量計によるガンマ線の分布調査を行っている<sup>8)</sup>。調査結果から作成された空気吸収線量率分布図をみると図7と概ね一致しているが八甲田山、白神山地、津軽半島、下北半島の山間部では調査がほとんど行われていないため、これ

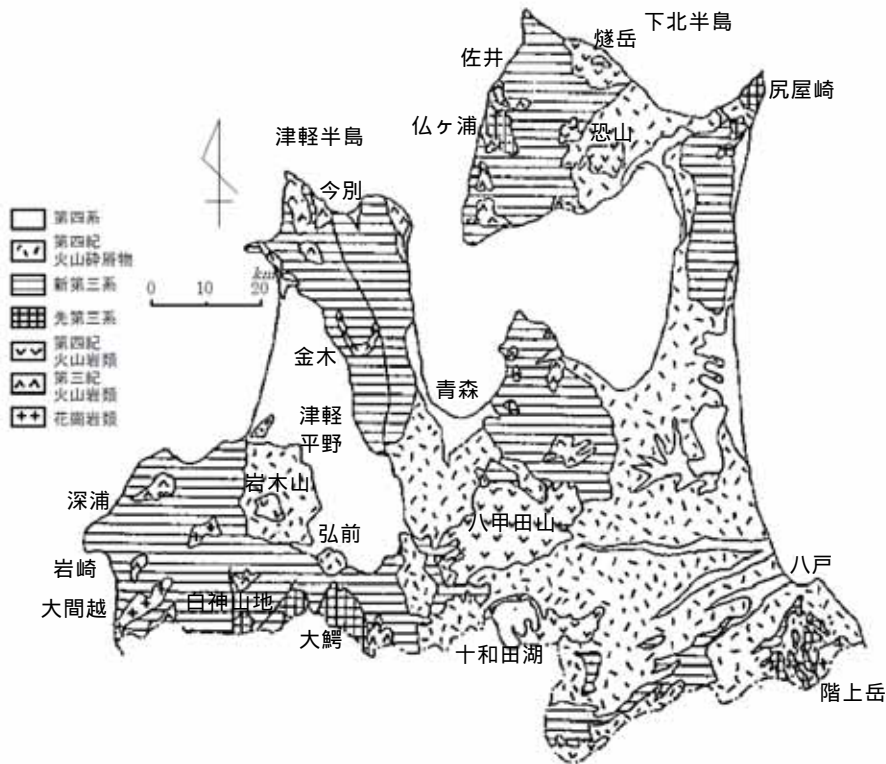


図 8 青森県の地質図<sup>12)</sup>

らの地域の結果は、周辺の測定結果の平均となり、火山及びその周辺の地域での値の低下が見られていない。

また、空気吸収線量率の大きさについては、青森県が 22.0～111.3 nGy/h、平均値 38.9±7.6 nGy/h に対し、弘前大学が 10～51 nGy/h、平均値 22±5 nGy/h、環境研が 20～60 nGy/h、平均値 28.1±5.7 nGy/h になっており、青森県の測定値が他の調査に比べて高い傾向にある。最大値が高いのは、測定ルートの違いにより、最も高かった西地区の山間部のルートを通っていることによるものと考えられる。平均値が高いのは、宇宙線や自己照射線の影響の違いが考えられ、弘前大学では 3 MeV 以上のガンマ線のエネルギーをカットしており、環境研では、鉛 5 cm 厚の遮蔽容器内の線量計の値を差し引いているのに対し、本県の調査では、上述のとおりサーベイメータが 3 MeV 以上の値を 3 MeV としてエネルギー補償しているため、その寄与分は約 5 nGy/h<sup>2)</sup>、自己照射分が約 1 nGy/h<sup>2)</sup>と考えられることから、これらを差し引くと 32.9±7.7 nGy/h となり、誤差を考慮すると他機関と同程度若しくは若干高い値となった。このことから、県の値が高かったのは、宇宙線や自己照射による影響が考えられる。

#### (5) 地質図との比較

空間放射線量率は一般的に表層地質の影響を受けると言われ<sup>9)</sup>、松田や湊は日本の表層地質の基盤となる岩石と空気吸収線量率との関係を調査し、岩石の種類別の空間放射線量率をまとめるとともに<sup>9)</sup>、日本の地表γ線の線量率分布図を作成した<sup>10)</sup>。この結果から、火成岩では、花崗岩などの酸性岩で空間放射線量率が高く、玄武岩などの塩基性岩で空間放射線量率が低くなる傾向が見られた。湊は、この原因として地殻の部分溶融や結晶分化作用を挙げ

ている<sup>11)</sup>。

そこで、図 8 に示す青森県の地質図<sup>12)</sup>と今回得られた図 6 及び図 7 の結果との比較を行った。空間放射線量率の高い地域（追良瀬から秋田県境、大鰐南側、三八地域のうち南側の岩手県境付近、津軽半島山地の北部及び中部、下北半島西側の佐井から仏ヶ浦、尻屋崎南側）と花崗岩類（大間越周辺、階上岳付近、佐井付近）、先第三系堆積岩類（大鰐南側、階上岳北側、佐井から仏ヶ浦付近、尻屋崎周辺）及び第三紀火山岩類（追良瀬付近、金木付近、今別付近）の地域とが比較的良好一致しているのがわかる。先第三系は花崗岩類と岩相的に類似し起源も同じと考えられている<sup>13)</sup>。空間放射線量率の高い第三紀火山岩類は流紋岩<sup>14)</sup>であり、花崗岩と同様の酸性岩<sup>15)</sup>である。

青森県は、第四紀火山の八甲田山、十和田湖、岩木山、恐山、燧岳があり、その周辺は図 8 で示すとおり第四紀火山砕屑物や火山岩類などの火山噴出物で広く覆われている。日本における火山噴出物は一般的に空間放射線量率が低いと言われているが<sup>16)</sup>、今回得られた図 6 や図 7 の分布図では、上記で示したとおり第四紀火山のうち、八甲田山、十和田湖、恐山、燧岳とその周辺で空間放射線量率の低い地域が見られており、火山噴出物の影響と考えられる。

このように空間放射線量率の分布が表層地質と比較的良好一致し、これまでの文献の報告と同様の傾向を示しているのは、図 6 に示すとおり、青森県では平野に比べて山地や台地が多く、山地やその周辺の海岸で崖が多く見られており、露出した岩石やその岩石が風化した土壌の占める割合が高いためと考えられる。

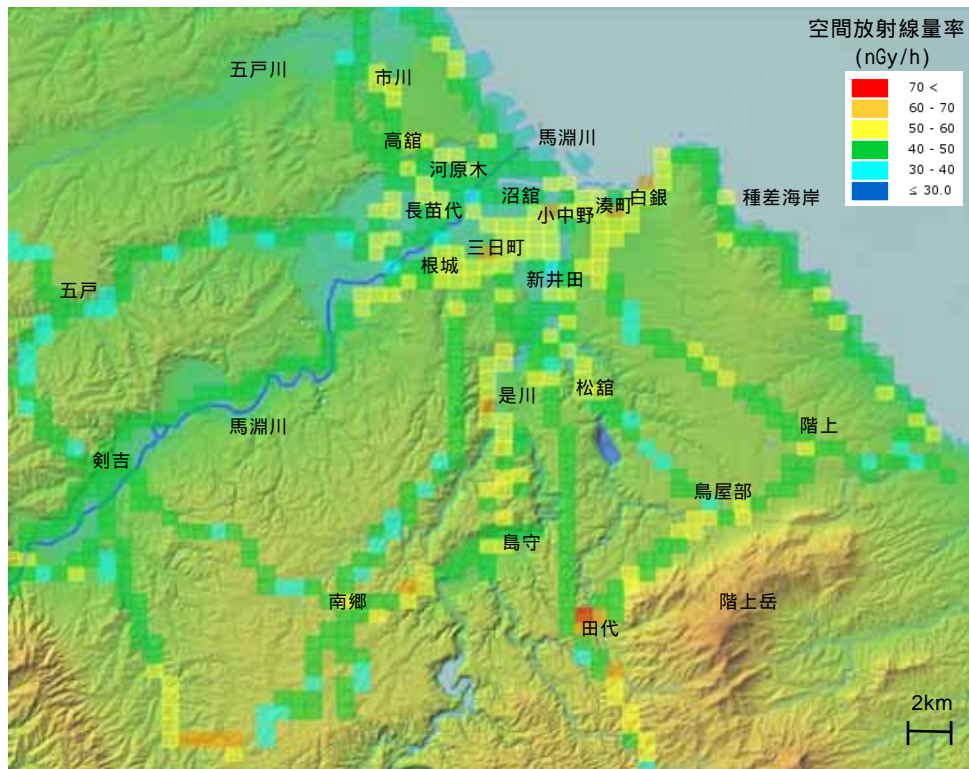
## (6) 八戸地域詳細調査

図 8 から八戸地域は火山噴出物の影響が見られるため、空間放射線量率が低くなるはずであるが空間放射線率の高い結果が得られている。このため、八戸地域の詳細調査を行った。

図 9 に図 6 の走行測定結果（500 m メッシュ）の八戸地域拡大図を示す。八戸地域は馬淵川を挟んで両側が段丘になっており、そのうち南側の段丘は、湊町及び白銀が海岸段丘、三日町及び根城が河岸段丘となっており、それぞれの段丘で空間放射線量率が高くなっている。このことから、段丘を構成している地質の影響が考えられる。

## 3.2 年間実効線量の評価

表 1 で得られたサーベイカー測定値（幾何平均値）から年間実効線量を算出する。サーベイメータの測定値には宇宙線及び自己照射の寄与が含まれているため、それぞれの寄与を取り除く必要がある。上述のとおり宇宙線の寄与は約 5 nGy/h<sup>2)</sup>、自己照射の寄与は約 1 nGy/h<sup>2)</sup>となる。この放射線を 1 年間（24 h×365 d）浴びたとすると、年間の実効線量は、地中一様分布における天然放射性核種に対する成人の空気カーマから実効線量への換算係数 0.7 Sv/Gy<sup>17)</sup>を用いて計算すると表 2 のとおり約 0.17～0.26 mSv/y となる。得られた実効線量は、日本の平均値 0.33 mSv/y<sup>18)</sup>の 51 %～79 %と評価されるが、これらは青森県内が日本の他の地域に比べて火山噴出物等の影響を受けて大地からの放射線量が低くなっているためと考えられる。



国土地理院の電子地形図（タイル）の色別標高図に走行測定結果を追記して掲載。

図9 サーベイカーによる走行測定結果（八戸地域）

表2 地域別等の年間の実効線量

項目	全域	西	北五	中南	東青	三八	上北	下北
①サーベイカー測定値[nGy/h]	38.2	47.2	37.9	36.5	36.8	45.7	36.2	33.2
②宇宙線寄与分 <sup>2)</sup> [nGy/h]	5	5	5	5	5	5	5	5
③自己照射寄与分 <sup>2)</sup> [nGy/h]	1	1	1	1	1	1	1	1
④大地からの放射線の推定値 (=①-②-③) [nGy/h]	32	41	32	31	31	40	30	27
⑤年間の実効線量 [mSv/y] (=④×0.7×24×365/10 <sup>6</sup> )	0.20	0.25	0.20	0.19	0.19	0.25	0.18	0.17

## 5.まとめ

平成 25 年度から平成 28 年度にかけて実施したサーベイカーの測定値を、国家標準とトレーサビリティの取れた 1 m 高さのサーベイメータの測定値に換算した県内全域の空間放射線量率の測定結果は以下のとおりであった。

- 1) サーベイカーとサーベイメータによる定点測定と比較を行った結果、正の相関が認められ、得られた相関式は  $y = (1.9 \pm 0.1) x + (3.2 \pm 2.9)$  であった。サーベイメータによる詳細調査の結果、傾きは主に車体による遮への影響、切片は検出器の違いによるものと考えられ、サーベイメータの温度特性、向き、高さの影響は明確には確認できなかった。
- 2) 地形の影響調査を行い、崖から数 m 程度あれば測定値への影響は最大でも 25%程度であった。このため、走行測定により得られた空間放射線量率の分布図には、この程度の誤差、すなわち地形の影響が含まれていると考えられる。
- 3) 測定値の範囲が 22.0 ~ 111.3 nGy/h、最頻値が 37 nGy/h、幾何平均値が 38.2 nGy/h であった。また、地域別の幾何平均値は、最も高い地域が西地域の 47.2 nGy/h であり、最も低い地域が下北地域の 33.2 nGy/h であった。
- 4) サーベイカーによる県内全域の空間放射線量率の分布図を作成した。分布図から空間放射線量率の高い地域は、第四紀火山周辺を除く山地及び台地並びに海岸であり、これらの地域は、地質図から花崗岩類、先第三系堆積岩類及び第三紀火山岩類と比較的よく一致した。また、空間放射線量率の低い地域は、第四紀火山及びその周辺であり、その原因は火山噴出物によると考えられる。
- 5) 火山噴出物の影響を受ける八戸地域で空間放射線量率が高くなっているが、馬淵川を挟んだ南側の海岸段丘及び河岸段丘で特に高くなっていることから、段丘の表層地質の影響を受けていると考えられる。
- 6) 県内全域及び地域別の幾何平均値から算出した年間の実効線量は、県内全域では約 0.20 mSv/y、地域別では 0.17~0.25 mSv/y と見積もられ、全国の平均値 0.33 mSv/y に比べて低い値であった。

## 文 献

- 1) 長岡 鋭, 森内 茂 : 環境  $\gamma$  線線量率の高精度測定のためのデータ処理手順, 保健物理, **29**, 315-320 (1994)
- 2) 長岡和則, 本田幸一郎, 宮野敬治 : 環境  $\gamma$  線線量測定における宇宙線の寄与, *RADIOISOTOPES*, **45**, 665-674 (1996)
- 3) Jun Saegusa, Kayo Yanagisawa, Atsushi Hasumi, Takenori Shimizu, Yoshiaki Uchita; Temperature performance of portable radiation survey instruments used for environmental monitoring and clean-up activities in Fukushima, *Radiation Physics and Chemistry* (2016)
- 4) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 : 「放射性物質モニタリングデータの情報公開サイト」のマッピングツール, <http://emdb.jaea.go.jp/emdb/mappingtool.html>
- 5) P.Wessel and W.H.F. Smith : Free software helps map and display data, *Eos.Trans.AGU*, **72**(41), 441-446(1991)
- 6) 細田正洋, 井上一雅, 岡光昭, 大森康孝, 岩岡和輝, 床次眞司 : 走行サーベイによる環境放射線レベルの評価 -青森県全域における調査概要-, *Jpn. J. Health Phys.*, **51**(1), 27~40(2016)
- 7) M.Hosoda, K.Inoue, M.Oka, Y.Omori, K.Iwaoka and S.Tokonami : Environmental Radiation Monitoring and External Dose Estimation in Aomori Prefecture after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident”, *Jpn.J.Health Phys.*, **51**(1), 41~50(2016)
- 8) T.Iyogi, S.Ueda, S.Hisamatsu, K.Kondo, H.Haruta, H.Katagiri, M.Kurabayashi, Y.Nakamura, N.Tsuji : Environmental gamma-ray dose rate in Aomori Prefecture, *Jpn. J. Health Phys.*, **82**, 521-526(2002)
- 9) 松田秀晴, 湊 進 : 日本における主な岩石中の放射能, *RADIOISOTOPES*, **48**, 760-769 (1999)
- 10) 湊 進 : 日本における地表  $\gamma$  線の線量率分布, 地学雑誌, **115**, 87-95 (2006)
- 11) 湊 進 : 日本列島における地表  $\gamma$  線量率分布の地学的背景, *RADIOISOTOPES*, **64**, 535-548 (2015)
- 12) 青森県地学教育研究会編 : 日本の地学 2 (築地書館) (1975)
- 13) 青森県 : 青森県の地質 p.14 (平成 10 年 3 月)
- 14) 村山 磐 : 地殻の科学 (大明堂発行) p.54
- 15) 青森県 : 青森県の自然 p.7
- 16) 藤高和信 : 大地の放射線の背景, 保健物理, **21**, 295~308(1986)
- 17) 斎藤公明, 遠藤 章 : III 環境  $\gamma$  線の特徴と被ばく線量との関係, *RADIOISOTOPES*, **63**, 585-602(2014)
- 18) 公益財団法人原子力安全研究協会 : 新版生活環境放射線 (国民線量の算定) p.155 (2011 年 12 月)





## 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 — 環境試料測定結果の報告 —

木村芳伸 五十嵐飛鳥 工藤達晃 工藤 翔  
赤石 新<sup>\*1</sup> 松山 大<sup>\*2</sup> 木村秀樹<sup>\*3</sup>

県内全域から選定した 40 地点において、NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定及び可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定を行うとともに、同地点から採取した土壌(深度 0~5 cm)について、ゲルマニウム半導体検出器による  $\gamma$  線放出核種の測定を行った。また、40 地点からさらに選定した 6 地点については、スクレーパープレートを用い地表から土壌を層別に採取し、ゲルマニウム半導体検出器により  $\gamma$  線放出核種の深度分布を調査した。40 地点から採取した土壌については、放射化学分析による Sr-90、Pu-238 及び Pu-239+240 の測定も行った。その結果、サーベイメータによる空間放射線量率と in-situ 測定による空間線量率には正の相関が認められた。土壌中の放射性物質濃度のうち Cs-137 は全 40 地点中 38 地点で検出され、測定値は 1.2~20 Bq/kg 乾であり、平成 25 年度から平成 27 年度までの期間における環境放射線モニタリング結果(3~26 Bq/kg 乾)と同程度であった。深度分布について、6 地点中 2 地点については、in-situ 測定で仮定した緩衝深度  $\beta$  (4.85 g/cm<sup>2</sup>) に比較的近い値となったが、他の 4 地点については仮定と大きく異なる値となった。放射化学分析の結果、Sr-90 濃度は ND~3.1 Bq/kg 乾、Pu-238 濃度はすべて ND、Pu-239+240 濃度は ND~0.22 Bq/kg 乾であり、同調査期間における環境放射線モニタリング結果と同程度であった。

### 1. はじめに

本県では原子力施設周辺の住民等の健康と安全を守るため、原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリングとして、空間放射線量率や環境試料中放射能濃度の調査を行っている。これら原子力施設周辺地域の調査結果に加え、モニタリング対象地域外の環境放射線に係るデータを蓄積し、本県における環境放射線の水準を把握することは、モニタリング結果を解釈する上での参考となるほか、原子力災害発生時に環境へ放出された放射性物質による影響評価に資することができる。

そこで、モニタリング対象地域を含む青森県全域において、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握するため、平成 25 年度から 3 か年にわたり空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定した。本報ではこの 3 か年の調査のうち、主に環境試料測定結果について報告する。

\*1：現青森県警察本部

\*2：現青森県環境生活部環境保全課

\*3：現青森県危機管理局原子力安全対策課

## 2. 調査方法

### 2.1 調査地点の選定

NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定、可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定（以下、「in-situ 測定」）及び土壌中放射性物質濃度の測定地点（定点測定地点）については、以下の点に留意しつつ原則として各市町村の人口密集地から選定した。

- ・表面流出などによる侵食及び崩壊がないこと。
- ・土地の改変など人為的攪乱がないこと。
- ・草地や裸地等で概ね 100 m<sup>2</sup>以上の広さがあること。
- ・民有地でないこと。
- ・当分の間、土地利用の変更等が予定されていないこと。

調査地域の区分を表 1 に、調査地点の位置を図 1 に示す。

表 1 地域区分と調査対象市町村

地域区分	対 象 市 町 村
東青地域	青森市、平内町、蓬田村、外ヶ浜町、今別町
中南地域	弘前市、黒石市、平川市、西目屋村、藤崎町、大鰐町、田舎館村
三八地域	八戸市、階上町、田子町、三戸町、五戸町、南部町、新郷村
西北地域	五所川原市、つがる市、鯉ヶ沢町、深浦町、板柳町、鶴田町、中泊町
上北地域	十和田市、三沢市、野辺地町、七戸町、六戸町、横浜町、東北町、 六ヶ所村、おいらせ町
下北地域	むつ市、大間町、東通村、風間浦村、佐井村

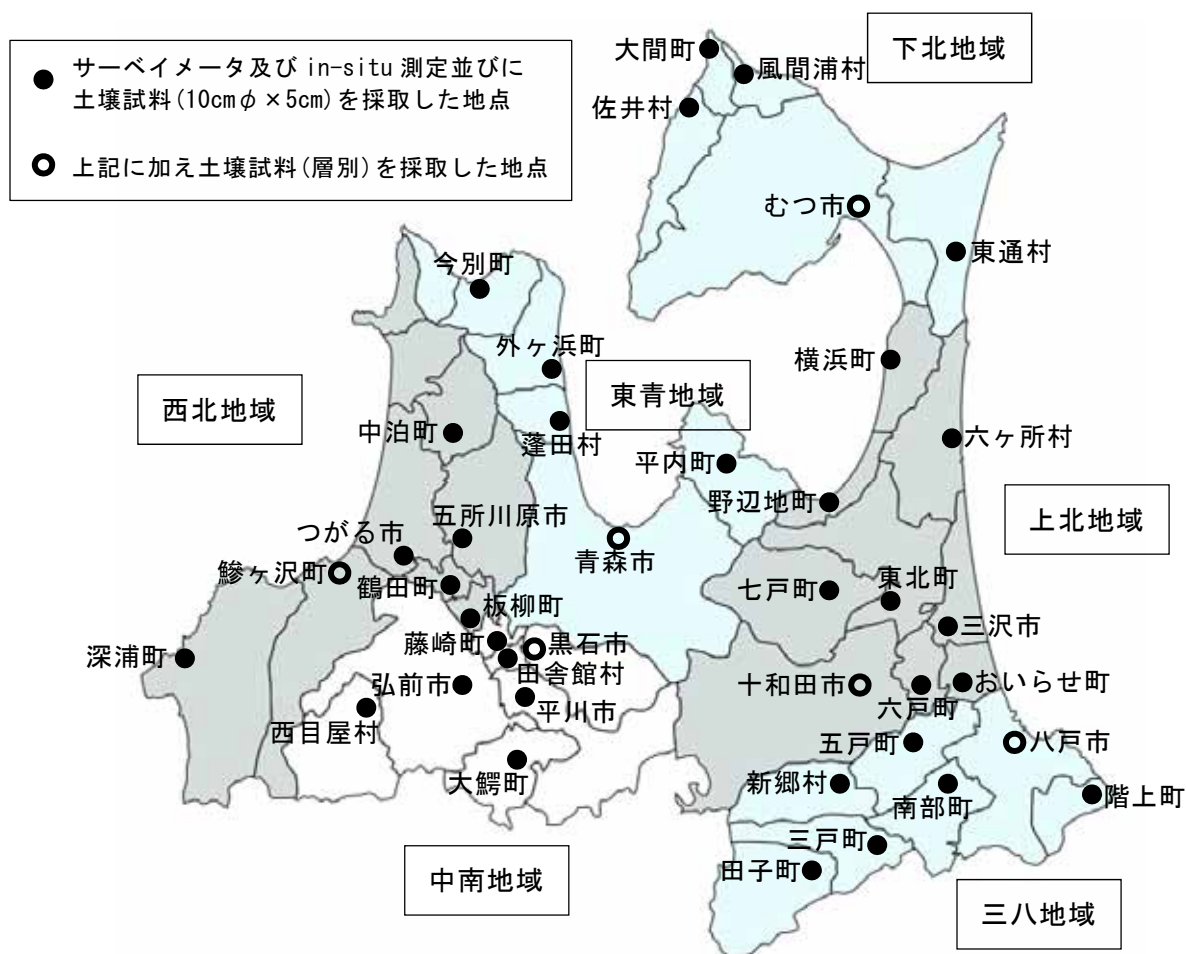


図 1 調査地点

## 2.2 調査内容

### (1) NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定

空間放射線量率の水準を把握するため、エネルギー補償型 NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータ（日立アロカメディカル(株)製 TCS-171B）（以下、「サーベイメータ」）により、地上高 1 m における空間放射線量率（空気吸収線量率（nGy/h）、以下同じ。）を 30 秒間隔で 5 回測定し平均した。

### (2) 可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定

人工放射性核種の地表への沈着量と空間  $\gamma$  線の構成成分を把握するため(1)と同地点で、可搬型ゲルマニウム（Ge）半導体検出器（ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ(株)製 Falcon5000）により、空間  $\gamma$  線スペクトルを地上高 1 m で 60 分測定した。測定結果は、文部科学省の放射能測定法シリーズ<sup>1)</sup>に則り、Beck が開発した HASL の解析法により以下に示す仮定の下で解析した。

- ・周囲の地形は無限に開かれた平らな地形（無限平面）であること。
- ・天然放射性核種は土壤中で均一分布、人工放射性核種は鉛直方向に指数関数分布であること。今回は土壤中鉛直分布を表すパラメータである緩衝深度  $\beta$  について、過去の大気

圏内核実験に起因する Cs-137 を考慮し、「発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について」原子力安全委員会（平成 13 年）に示されている浸透係数  $\alpha=0.33 \text{ cm}^{-1}$  と土壌密度  $\rho=1.6 \text{ g/cm}^3$  を用いて  $4.85 \text{ g/cm}^2$  ( $\beta=\rho/\alpha$ ) とした。

### (3) 土壌中放射性物質濃度の測定

人工放射性核種の土壌中濃度及び深度分布を把握するため土壌を採取し、放射能濃度の測定を実施した。

#### ア 土壌中濃度

(1)と同地点で、ステンレス製土壌採取器（10 cm  $\phi$   $\times$  5 cm）により 1 地点あたり 5 ポイント土壌を採取し、混合した。採取した土壌は 105°C で乾燥後に Ge 半導体検出器（ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ<sup>株</sup>製 GC4020 及び SEIKO EG&G<sup>株</sup>製 GMX25）により  $\gamma$  線放出核種測定（測定時間 80,000 秒）を行うとともに、放射化学分析（Sr-90、Pu-238、Pu-239+240）を実施した。

#### イ 深度分布

県内 6 地域からそれぞれ 1 市町を選定し、(1)と同地点で、スクレーパープレート（<sup>株</sup>塚原製作所製 150 $\times$ 300 mm）を用い、地表から土壌を層別（0-0.5、0.5-1.0、1.0-1.5、1.5-2.0、2.0-3.0、3.0-4.0、4.0-5.0、5.0-7.0、7.0-10.0 cm）に採取した。採取した土壌は 105°C で乾燥後に Ge 半導体検出器（ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ<sup>株</sup>製 GC4020 及び SEIKO EG&G<sup>株</sup>製 GMX25）により  $\gamma$  線放出核種測定（測定時間 80,000 秒）を行った。

## 3. 結果と考察

### (1) サーベイメータによる空間放射線量率の測定

サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果を表 2 及び図 2 に示す。測定値は 20～50 nGy/h であった。次に、地域別に算出した平均値を表 3 に示す。西北地域の平均値が 41nGy/h と最も高く、次いで東青及び中南地域の平均値が高かったのに対し、上北地域の平均値が 25 nGy/h と最も低く、次いで三八及び下北地域の平均値が低かった。このような傾向は、別途調査したサーベイカーによる県内全域走行測定結果と概ね一致する。なお、使用したサーベイメータのデジタル表示の測定下限値は 10 nGy/h であったが、測定値は 5 回測定のため、表には 1 nGy/h まで記載している。

表2 サーバイメータによる空間放射線量率の測定結果

地域	市町村	測定地点	測定年月日	空間放射線量率 (nGy/h)
東青	青森市	大野小学校	H26.10.30	28
	平内町	小湊川ひだまり公園	H26.10.9	34
	蓬田村	蓬田小学校	H26.10.9	36
	外ヶ浜町	外ヶ浜町中央公民館	H26.10.20	30
	今別町	今別小学校	H26.10.20	50
中南	弘前市	宮園公園	H25.10.23	50
	黒石市	御幸公園	H25.10.23	28
	平川市	大坊小学校	H25.10.8	38
	西目屋村	西目屋小学校	H27.10.21	42
	藤崎町	ときわ西口広場公園	H25.11.1	36
	大鰐町	大鰐小学校	H25.11.1	30
	田舎館村	田舎館中学校	H25.10.23	26
三八	八戸市	番屋平公園	H26.10.24	44
	階上町	階上町役場	H26.10.24	30
	田子町	中央コミュニティ広場	H26.10.23	26
	三戸町	関根ふれあい公園	H26.10.23	40
	五戸町	五戸町図書館	H26.10.28	28
	南部町	ふれあい公園	H26.10.23	30
	新郷村	金ヶ沢農村公園	H26.10.28	30
西北	五所川原市	菊ヶ丘運動公園	H25.9.26	34
	つがる市	つがる市森田公民館	H25.10.24	42
	鱒ヶ沢町	旧鱒ヶ沢第一中学校	H25.10.24	48
	深浦町	夕陽ヶ丘公園	H25.10.24	48
	板柳町	板柳町公民館	H27.10.21	34
	鶴田町	鶴田中学校	H27.10.21	42
	中泊町	総合文化センターパルナス隣接地	H25.9.26	42
上北	十和田市	西金崎公園	H27.10.19	26
	三沢市	三沢市中央公園	H27.11.12	24
	野辺地町	中道ふれあい公園	H27.11.5	22
	七戸町	七戸中学校体育館うら空地	H27.10.19	26
	六戸町	旧柳町小学校	H27.11.4	28
	横浜町	三保野公園	H27.11.5	28
	東北町	東北町南総合運動公園	H27.10.19	20
	六ヶ所村	村立第一中学校	H27.11.5	24
	おいらせ町	いちょう公園	H27.11.4	30
下北	むつ市	旭町児童公園	H27.11.2	30
	大間町	大間小学校	H27.10.28	28
	東通村	旧小田野沢小学校	H27.11.12	28
	風間浦村	蛇浦小学校	H27.10.29	46
	佐井村	ぼぼらす(児童交流センター)	H27.10.28	34

表3 地域ごとの平均値

地域	東青	中南	三八	西北	上北	下北
空間放射線量率(nGy/h)	36 ± 7.7	36 ± 7.9	33 ± 6.2	41 ± 5.3	25 ± 3.0	33 ± 6.8

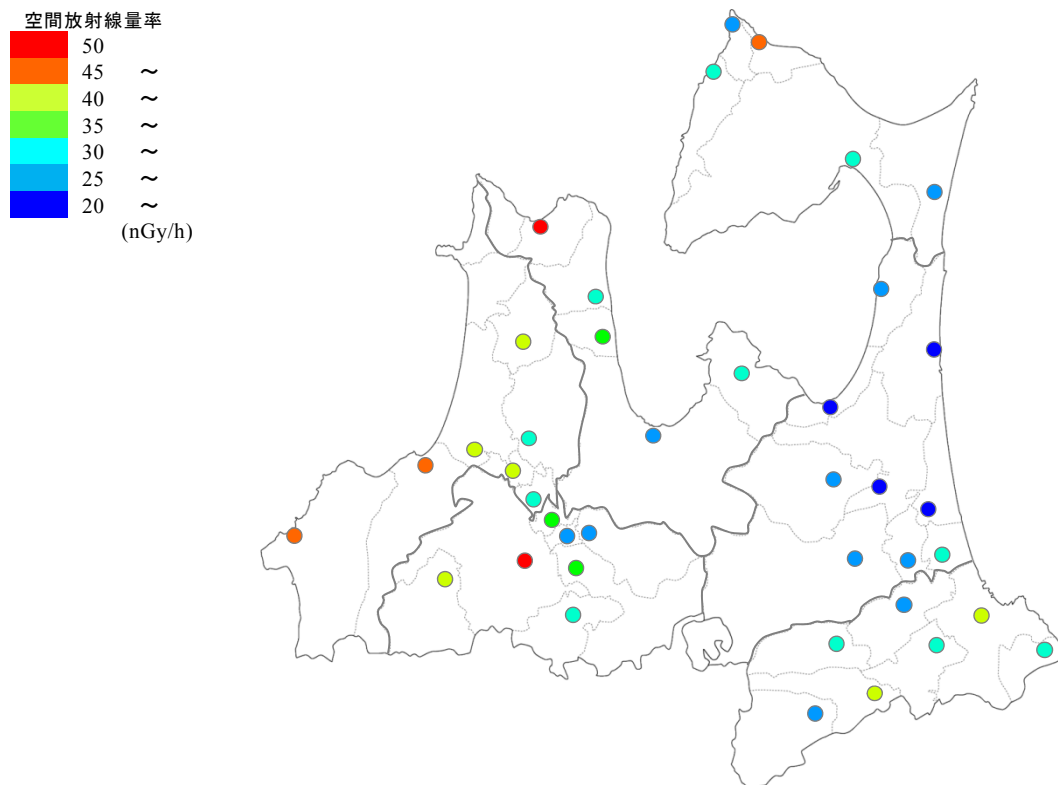


図2 サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果

## (2) 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定

in-situ 測定の結果を表 3 に示す。天然放射性核種について、空間放射線量率に対する各系列の寄与率は、ウラン系列が 17～39 %、トリウム系列が 25～49 %、K-40 が 28～48 % であった。また、地域別に算出した平均値を表 4 に示す。地点間ではばらつきがあるものの、地域による違いは見られなかった。

人工放射性核種について、Cs-134 は全 40 地点中 1 地点でのみ検出され、測定値は 430Bq/m<sup>2</sup> であり、その他の地点では検出限界以下であった。Cs-137 は全 40 地点中 31 地点で検出され、測定値は 79～1300 Bq/m<sup>2</sup> であった。

in-situ 測定による空間放射線量率とサーベイメータによる空間放射線量率を比較したところ、図 3 に示すとおり正の相関が認められた。in-situ 測定による空間放射線量率に比較してサーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあった。これはサーベイメータによる測定値には宇宙線の寄与及び自己照射の影響があるためと考えられる。長岡ら<sup>2)</sup>によると、それぞれの寄与は 5 nGy/h 及び 1 nGy/h 程度であるが、測定結果から見積もられた値は約 11 nGy/h と高めであった。

なお、西目屋村、板柳町及び鶴田町については、平成 25 年度の測定結果に降雨の影響があると考えられたため、平成 27 年度に再度 in-situ 測定を行った結果を記載している。

表3 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果

地域	市町村	測定 年月日	天候	空間放射線量率への寄与(%)			空間放射 線量率 (nGy/h)	<sup>134</sup> Cs (Bq/m <sup>2</sup> )	<sup>137</sup> Cs (Bq/m <sup>2</sup> )
				U系列	Th系列	<sup>40</sup> K			
東青	青森市	H26.10.30	晴	25	29	46	15	ND(130)	ND(130)
	平内市	H26.10.9	晴	23	43	32	19	ND(140)	350(92)
	蓬田村	H26.10.9	晴・曇	22	34	43	20	ND(150)	150(120)
	外ヶ浜町	H26.10.20	曇	26	31	42	20	ND(150)	170(100)
	今別町	H26.10.20	曇	19	48	31	35	ND(180)	300(160)
中南	弘前市	H25.10.23	曇	26	43	28	44	ND(190)	ND(180)
	黒石市	H25.10.23	晴	21	31	44	16	ND(120)	160(97)
	平川市	H25.10.8	曇	18	39	41	29	ND(160)	140(130)
	西目屋村*	H27.10.21	晴	24	30	45	27	ND(170)	270(120)
	藤崎町	H25.11.1	晴	24	34	39	22	ND(140)	ND(150)
	大鱒町	H25.11.1	曇	24	34	39	19	ND(130)	440(95)
	田舎館村	H25.10.23	曇	20	33	44	17	ND(120)	120(99)
三八	八戸市	H26.10.24	晴	18	40	42	37	ND(170)	200(120)
	階上町	H26.10.24	晴	20	30	38	20	430(83)	1300(110)
	田子町	H26.10.23	晴	25	31	39	14	ND(130)	400(100)
	三戸町	H26.10.23	晴	17	39	44	25	ND(160)	240(110)
	五戸町	H26.10.28	晴・曇	27	33	38	15	ND(120)	110(100)
	南部町	H26.10.23	晴	22	37	41	20	ND(140)	130(110)
	新郷村	H26.10.28	曇	39	25	35	12	ND(120)	120(86)
西北	五所川原市	H25.9.26	晴・曇	22	31	46	22	ND(150)	150(130)
	つがる市	H25.10.24	曇	22	41	35	25	ND(150)	370(130)
	鱒ヶ沢町	H25.10.24	曇	20	47	32	41	ND(180)	ND(190)
	深浦町	H25.10.24	曇	18	30	48	30	ND(170)	200(130)
	板柳町*	H27.10.21	晴	20	33	45	20	ND(140)	200(110)
	鶴田町*	H27.10.21	晴	18	47	35	33	ND(160)	ND(120)
	中泊町	H25.9.26	曇	21	39	38	24	ND(160)	140(110)
上北	十和田市	H27.10.19	晴	22	34	42	16	ND(120)	250(96)
	三沢市	H27.11.12	晴	23	38	36	12	ND(120)	250(94)
	野辺地町	H27.11.5	晴	27	34	38	14	ND(120)	ND(120)
	七戸町	H27.10.19	晴	21	36	41	12	ND(110)	210(94)
	六戸町	H27.11.4	晴	22	34	41	14	ND(120)	270(88)
	横浜町	H27.11.5	晴	19	45	34	13	ND(120)	140(94)
	東北町	H27.10.19	晴	20	35	43	9	ND(100)	98(85)
	六ヶ所村	H27.11.5	晴	24	43	31	14	ND(120)	200(93)
おいらせ町	H27.11.4	晴	22	49	29	18	ND(140)	79(77)	
下北	むつ市	H27.11.2	曇	24	39	36	16	ND(130)	150(99)
	大間町	H27.10.28	晴	25	42	32	18	ND(130)	ND(93)
	東通村	H27.11.12	曇	21	42	36	22	ND(150)	290(110)
	風間浦村	H27.10.29	曇	24	48	28	39	ND(190)	ND(96)
	佐井村	H27.10.28	晴	26	29	46	22	ND(140)	ND(150)

・NDは検出限界以下、( )内は検出限界値を示す。

・西目屋村、板柳町及び鶴田町は、平成25年度の測定結果に降雨の影響があると考えられたため、平成27年度に再測定を行った結果を記載している。

表 4 地域ごとの平均値

地域	空間放射線量率への寄与(%)			空間放射線量率 (nGy/h)
	U 系列	Th 系列	K-40	
東青	23 ± 2.7	37 ± 7.5	39 ± 6.1	22 ± 7.1
中南	22 ± 2.7	35 ± 4.3	40 ± 5.4	25 ± 9.1
三八	24 ± 7.0	33 ± 4.9	39 ± 2.7	20 ± 7.9
西北	20 ± 1.6	38 ± 6.5	40 ± 5.9	28 ± 6.7
上北	22 ± 2.3	39 ± 5.1	37 ± 4.6	14 ± 2.4
下北	24 ± 1.7	40 ± 6.4	35 ± 5.8	23 ± 8.3

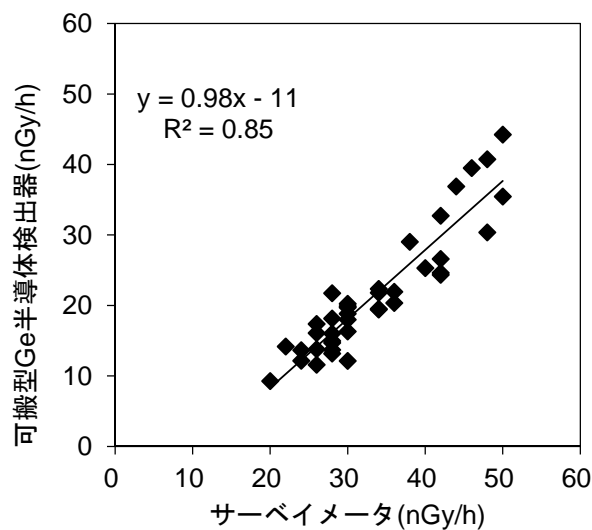


図 3 サーベイメータと可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率の関係

そこで、本調査で用いたサーベイメータ TCS-171B のバックグラウンドを把握するため、検出部を 5 cm 厚の鉛遮蔽体内に置き (図 4)、30 秒間隔で 10 回、アナログメータで 1 nGy/h の桁まで測定値を読み取りこれを平均した。その結果は  $7.6 \pm 1.2$  nGy/h であり、in-situ 測定値との差 11 nGy/h と比較し低めであったものの、有意な差は認められなかった。

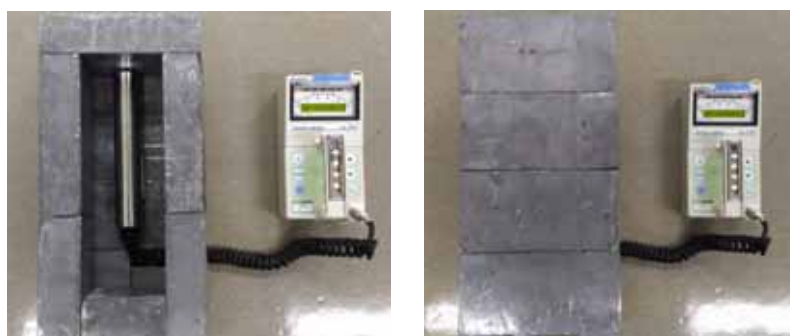


図 4 サーベイメータのバックグラウンド測定状況



### (3) 土壌中放射性物質濃度の測定

#### ア 土壌中濃度

Ge 半導体検出器による人工放射性核種の測定結果を表 5 に示す。Cs-134 は全 40 地点中 7 地点で検出され、測定値は 0.51～6.6 Bq/kg 乾であった。その他の地点では検出限界以下であった。Cs-137 は全 40 地点中 38 地点で検出され、測定値は 1.2～20 Bq/kg 乾であり、平成 25 年度から平成 27 年度までの期間における環境放射線モニタリング結果（3～26 Bq/kg 乾）と同程度の値であった。

Cs-134 が検出された 7 地点については、東京電力 HD(株)福島第一原子力発電所事故（以下、「福島原発事故」）の影響があったものと考えられる。これら 7 地点について、平成 23 年 6 月 14 日から採取日までの Cs-134 及び Cs-137 の減衰率を算出し、減衰率の比に文部科学省の調査結果<sup>3)</sup>による平成 23 年 6 月 14 日時点における Cs-137 に対する Cs-134 の比とされる 0.92 を掛けることによって、福島原発事故起因の Cs-137 を算出した結果を表 6 に示す。これらの地点で測定された Cs-137 のうち、約 40%以上は事故由来のものと考えられた。

表5 土壌中（深度0～5cm）のCs-134及びCs-137測定結果

地域	市町村	採取年月日	<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs		<sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs 放射能比
			濃度 (Bq/kg 乾)	沈着量 (Bq/m <sup>2</sup> )	濃度 (Bq/kg 乾)	沈着量 (Bq/m <sup>2</sup> )	
東青	青森市	H26.10.30	ND(0.62)	ND(16)	1.7 ± 0.20	43 ± 5.1	—
	平内町	H26.10.9	ND(1.0)	ND(17)	7.2 ± 0.39	120 ± 6.5	—
	蓬田村	H26.10.9	0.86 ± 0.23	32 ± 8.5	3.0 ± 0.26	110 ± 9.5	0.29
	外ヶ浜町	H26.10.20	0.88 ± 0.29	23 ± 7.7	4.7 ± 0.31	130 ± 8.3	0.19
	今別町	H26.10.20	ND(0.93)	ND(20)	5.6 ± 0.34	120 ± 7.3	—
中南	弘前市	H25.10.23	ND(2.3)	ND(130)	ND(1.2)	ND(71)	—
	黒石市	H25.10.23	ND(0.67)	ND(40)	1.7 ± 0.30	100 ± 18	—
	平川市	H25.10.8	ND(0.82)	ND(46)	1.4 ± .041	76 ± 23	—
	西目屋村	H25.11.22	1.1 ± 0.29	47 ± 12	4.2 ± 0.42	180 ± 18	0.27
	藤崎町	H25.11.1	ND(0.84)	ND(30)	1.2 ± 0.43	45 ± 16	—
	大鱒町	H25.10.8	ND(0.71)	ND(35)	4.6 ± 0.35	230 ± 17	—
	田舎館村	H25.10.23	ND(0.76)	ND(42)	1.3 ± 0.34	74 ± 19	—
三八	八戸市	H26.10.24	ND(0.67)	ND(24)	1.4 ± 0.21	49 ± 7.5	—
	階上町	H26.10.24	6.6 ± 0.42	220 ± 14	20 ± 0.59	650 ± 20	0.34
	田子町	H26.10.23	1.0 ± 0.25	30 ± 7.3	7.6 ± 0.33	220 ± 9.5	0.14
	三戸町	H26.10.23	ND(1.1)	ND(31)	4.9 ± 0.47	130 ± 13	—
	五戸町	H26.10.28	ND(1.0)	ND(27)	1.7 ± 0.36	45 ± 9.5	—
	南部町	H26.10.23	ND(0.94)	ND(18)	1.9 ± 0.27	37 ± 5.2	—
	新郷村	H26.10.28	ND(1.0)	ND(26)	2.3 ± 0.33	57 ± 8.5	—
西北	五所川原市	H25.9.26	ND(2.2)	ND(100)	2.5 ± 0.45	120 ± 21	—
	つがる市	H25.10.24	ND(1.2)	ND(31)	6.4 ± 0.30	160 ± 7.4	—
	鱒ヶ沢町	H25.10.24	ND(0.81)	ND(45)	1.8 ± 0.39	100 ± 21	—
	深浦町	H25.10.24	ND(1.9)	ND(91)	3.2 ± 0.38	160 ± 18	—
	板柳町	H25.11.22	ND(0.91)	ND(39)	3.7 ± 0.17	160 ± 7.3	—
	鶴田町	H25.11.22	ND(0.86)	ND(42)	1.3 ± 0.33	61 ± 16	—
	中泊町	H25.9.26	ND(0.91)	ND(31)	3.1 ± 0.42	100 ± 14	—
上北	十和田市	H27.10.19	ND(0.46)	ND(21)	4.7 ± 0.20	210 ± 9.1	—
	三沢市	H27.11.12	ND(0.49)	ND(24)	1.5 ± 0.16	73 ± 8.3	—
	野辺地町	H27.11.5	ND(0.47)	ND(30)	ND(0.40)	ND(26)	—
	七戸町	H27.10.19	0.78 ± 0.17	24 ± 5.1	3.1 ± 0.20	97 ± 6.0	0.25
	六戸町	H27.11.4	ND(0.54)	ND(20)	3.9 ± 0.22	140 ± 8.2	—
	横浜町	H27.11.5	ND(0.54)	ND(18)	4.1 ± 0.25	140 ± 8.3	—
	東北町	H27.10.19	0.51 ± 0.16	20 ± 6.2	1.4 ± 0.15	58 ± 6.1	0.35
	六ヶ所村	H27.11.5	ND(0.46)	ND(26)	1.8 ± 0.17	99 ± 9.3	—
	おいらせ町	H27.11.4	ND(0.63)	ND(21)	2.6 ± 0.22	86 ± 7.4	—
下北	むつ市	H27.11.2	ND(0.46)	ND(25)	2.5 ± 0.18	140 ± 9.6	—
	大間町	H27.10.28	ND(0.48)	ND(27)	1.2 ± 0.15	70 ± 8.6	—
	東通村	H27.11.12	ND(0.71)	ND(40)	1.6 ± 0.27	90 ± 15	—
	風間浦村	H27.10.29	ND(0.68)	ND(30)	1.9 ± 0.22	83 ± 9.9	—
	佐井村	H27.10.28	ND(0.50)	ND(28)	1.5 ± 0.19	87 ± 11	—

- ・測定値は試料採取日に補正した値。
- ・沈着量は土壌採取面積を用いて単位面積当たりに換算した値。
- ・NDは検出限界以下、( )内は検出限界値を示す。

表 6 事故起因の Cs-137 濃度及び測定値に占める割合

市町村	事故起因の $^{137}\text{Cs}$ 濃度 (Bq/kg 乾)	測定値に占める割合 (%)
蓬田村	$2.6 \pm 0.71$	$89 \pm 25$
外ヶ浜町	$2.7 \pm 0.90$	$58 \pm 19$
西目屋村	$2.6 \pm 0.67$	$62 \pm 17$
階上町	$20 \pm 1.3$	$100 \pm 7.4$
田子町	$3.2 \pm 0.78$	$42 \pm 10$
七戸町	$3.3 \pm 0.71$	$110 \pm 23$
東北町	$2.2 \pm 0.66$	$150 \pm 48$

## イ 深度分布

地表から層別に採取した土壌について、Ge 半導体検出器による Cs-134 及び Cs-137 測定結果を表 7 に、Cs-137 の深度分布を図 5 に示す。Cs-134 は青森市及び黒石市を除く 4 地点で検出され、十和田市及びむつ市は表層 0.5 cm のみ、八戸市及び鱒ヶ沢町については表層 1.0 cm までにおいて検出された。Cs-137 は全地点において検出され、浅い場所では表層 1.0 cm まで、深い場所では表層 10.0 cm までにおいて検出された。

今回、in-situ 測定結果の計算では、測定された Cs-137 が過去の大気圏内核実験に起因するものと仮定して緩衝深度  $\beta$  を  $4.85 \text{ g/cm}^2$  とした。一方、深度分布調査の結果から求めた実際の  $\beta$  は表 8 に示すとおり、青森市及び黒石市については、仮定した 4.85 に比較的近い値となったが、その他については仮定から大きく異なる値となった。図 5 を見ると八戸市、鱒ヶ沢町、十和田市及びむつ市については、浅い層で Cs-137 とともに Cs-134 が検出されており、福島原発事故による Cs-137 の寄与により見かけ上、浅い層の濃度が高く深い層の濃度が低い結果が得られたと考えられる。福島原発事故による寄与分を差し引けば、鱒ヶ沢町はほぼ不検出のレベルであり、また、八戸市、十和田市及びむつ市については、濃度分布は浅い層から深い層までほぼ一様であり、これらの地点における土壌が、大気圏内核実験に起因するフールアウトが吸着したのちに客土または攪乱されたものである可能性が示唆された。

以上から、実際の  $\beta$  は地点によって異なり、一律に適用することは難しいと考えられた。

表 7 層別採取土壌中の Cs-134 及び Cs-137 測定結果

深度(cm)	青森市		黒石市	
	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)
0-0.5	ND(0.61)	1.8 ± 0.18	ND(0.56)	2.0 ± 0.27
0.5-1.0	ND(0.60)	1.6 ± 0.19	ND(0.55)	1.5 ± 0.25
1.0-1.5	ND(0.54)	2.0 ± 0.20	ND(0.59)	ND(0.83)
1.5-2.0	ND(0.62)	1.8 ± 0.20	ND(0.71)	ND(1.1)
2.0-3.0	ND(0.59)	1.6 ± 0.18	ND(0.74)	ND(0.95)
3.0-4.0	ND(0.58)	0.86 ± 0.18	ND(0.76)	ND(0.74)
4.0-5.0	ND(0.56)	0.63 ± 0.16	ND(0.74)	ND(0.93)
5.0-7.0	ND(0.55)	0.63 ± 0.16	ND(0.80)	ND(1.1)
7.0-10.0	ND(0.54)	0.65 ± 0.16	ND(0.73)	ND(0.95)

深度(cm)	八戸市		鱈ヶ沢町	
	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)
0-0.5	1.4 ± 0.21	4.4 ± 0.24	2.0 ± 0.29	5.2 ± 0.44
0.5-1.0	1.2 ± 0.22	2.7 ± 0.22	0.91 ± 0.28	2.0 ± 0.40
1.0-1.5	ND(0.68)	1.0 ± 0.21	ND(0.90)	ND(1.2)
1.5-2.0	ND(0.63)	ND(0.59)	ND(1.1)	ND(1.6)
2.0-3.0	ND(0.63)	ND(0.59)	ND(1.0)	ND(2.0)
3.0-4.0	ND(0.63)	0.71 ± 0.19	ND(1.3)	ND(1.4)
4.0-5.0	ND(0.71)	2.0 ± 0.24	ND(1.4)	ND(1.4)
5.0-7.0	ND(0.71)	1.0 ± 0.21	ND(1.0)	ND(1.4)
7.0-10.0	ND(0.74)	1.5 ± 0.23	ND(1.0)	ND(1.4)

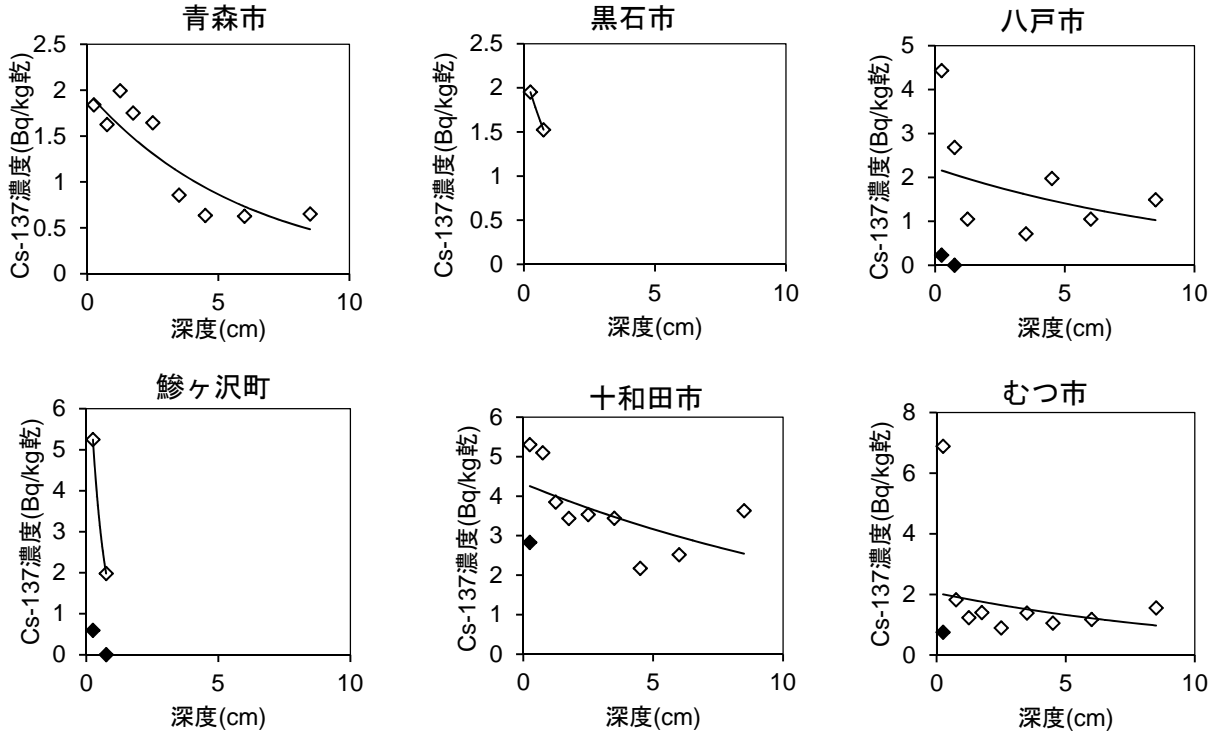
深度(cm)	十和田市		むつ市	
	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)
0-0.5	0.59 ± 0.16	5.3 ± 0.21	1.4 ± 0.18	6.9 ± 0.24
0.5-1.0	ND(0.53)	5.1 ± 0.22	ND(0.52)	1.8 ± 0.19
1.0-1.5	ND(0.48)	3.9 ± 0.20	ND(0.54)	1.2 ± 0.18
1.5-2.0	ND(0.50)	3.4 ± 0.22	ND(0.54)	1.4 ± 0.18
2.0-3.0	ND(0.52)	3.5 ± 0.20	ND(0.58)	0.89 ± 0.17
3.0-4.0	ND(0.53)	3.4 ± 0.20	ND(0.71)	1.4 ± 0.25
4.0-5.0	ND(0.59)	2.2 ± 0.22	ND(0.52)	1.0 ± 0.17
5.0-7.0	ND(0.46)	2.5 ± 0.18	ND(0.57)	1.2 ± 0.20
7.0-10.0	ND(0.54)	3.6 ± 0.22	ND(0.63)	1.6 ± 0.20

・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。

表 8 層別採取土壌から求めた Cs-137 の緩衝深度

地点	青森市	黒石市	八戸市	鱒ヶ沢町	十和田市	むつ市
$\beta(\text{g}/\text{cm}^3)$	4.6	2.4	15	0.56	18	15



◆は、福島原発事故寄与分の Cs-137 濃度を差し引いたもの

図 5 Cs-137 の深度分布状況

次に、Cs-137 沈着量について、全 40 地点で実施した土壌中濃度測定結果と in-situ 測定による計算結果を比較したところ、図 6(a)に示すとおり正の相関が認められたが、土壌中濃度測定結果に対し in-situ 測定による計算結果が 2 倍近い値を示した。

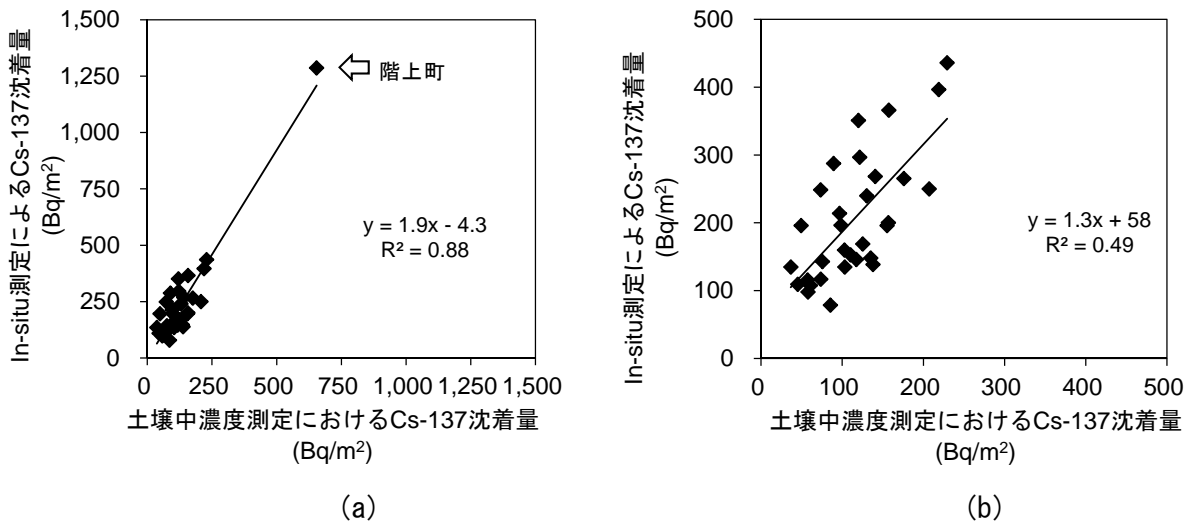


図 6 土壌中濃度測定と in-situ 測定による Cs-137 沈着量の関係

そこで、福島原発事故の影響により高い測定値が得られた階上町を除いたところ、図 6(b) に示すとおりその比は約 1.3 倍となった。なお、この比が 1.0 となる緩衝深度  $\beta$  を逆算すると、およそ  $3.0 \text{ g/cm}^2$  となる。

鱒ヶ沢町の深度分布から求められた緩衝深度  $\beta = 0.56 \text{ g/cm}^2$  は、ほぼ福島原発事故に起因する Cs-137 の分布を表していると考えられた。そこでこの  $\beta$  値を用い、表 6 に示した Cs-134 が検出されている 7 地点について、in-situ 測定結果から Cs-137 沈着量を再計算した結果を表 9 及び図 7 に示す。土壌中濃度測定結果と in-situ 測定による計算結果は、 $-18\% \sim +34\%$  の範囲で一致した。

表 9 土壌中濃度測定と in-situ 測定による Cs-137 沈着量の関係  
(緩衝深度  $\beta = 0.56 \text{ g/cm}^2$  で再計算した結果)

市町村	土壌中(深度 0~5cm)の $^{137}\text{Cs}$ 濃度測定結果から求めた沈着量(Bq/m <sup>2</sup> ) (A)	in-situ 測定結果から求めた $^{137}\text{Cs}$ 沈着量 (Bq/m <sup>2</sup> ) (B)	比率(B/A)* (%)	(参考) 事故起因の $^{137}\text{Cs}$ が測定値に占める割合 (%)
蓬田村	110 ± 9.5	93	85	89 ± 25
外ヶ浜町	130 ± 8.3	100	82	58 ± 19
西目屋村	180 ± 18	160	91	62 ± 17
階上町	650 ± 20	780	120	100 ± 7.4
田子町	220 ± 9.5	240	110	42 ± 10
七戸町	97 ± 6.0	130	134	110 ± 23
東北町	58 ± 6.1	60	103	150 ± 48

・比率(B/A)は生データから求めた値のため、四捨五入した表の数値から求めた値とは一致しないことがある。

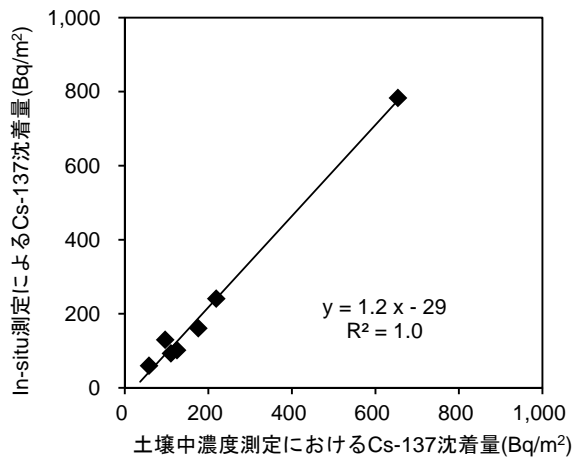


図 7 土壌中濃度測定と in-situ 測定による Cs-137 沈着量の関係  
(緩衝深度  $\beta = 0.56 \text{ g/cm}^2$  で再計算した結果)

以上のことから、in-situ 測定は地表の Cs-137 沈着量を把握する上で有効な手段であり、原子力施設の事故に起因する Cs-137 が、フォールアウトによる影響よりも大きい場合には、適切な緩衝深度  $\beta$  を用いることで精度良く Cs-137 の沈着量を推定できるものと考えられた。

#### 4. 放射化学分析結果

土壤中放射性物質濃度の測定のうち、Sr-90、Pu-238 及び Pu-239+240 の分析結果を表 10 に示す。Sr-90 濃度は ND～3.1Bq/kg 乾、Pu-238 濃度はすべて ND、Pu-239+240 濃度は ND～0.22 Bq/kg 乾であり、平成 25 年度から平成 27 年度までの期間における環境放射線モニタリング結果（Sr-90 : < 0.4～2.0 Bq/kg 乾、Pu-239+240 : < 0.04～0.54 Bq/kg 乾）と同程度であった。

各地点における Sr-90 濃度、Pu-239+240 濃度及び Cs-137 濃度の関係を図 8(a)～(c)に示す。これらの濃度には一定の相関が認められた。なお、階上町の Cs-137 濃度及び板柳町の Sr-90 濃度は、相関図から大きく外れたデータとなったため除外してある。板柳町の Sr-90 濃度については原因不明であるが、階上町については、同時に検出された Cs-134 濃度から推測してその大部分が福島原発事故の影響を受けたものであると考えられる。同地点については Pu-239+240 も検出されていることから、図 8(a)に階上町のデータを含めた Cs-137 濃度と Pu-239+240 濃度との関係を図 9 に示す。明らかに他の地点とは傾向が異なっており、Cs-137 が原子力施設の事故等で沈着した場合には、Pu-239+240 との関係を調べることで明確に識別できると考えられた。

表 10 放射化学分析結果

地域	市町村	採取年月日	<sup>90</sup> Sr	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu
			(Bq/kg 乾)	(Bq/kg 乾)	(Bq/kg 乾)
東青	青森市	H26.10.30	ND(0.17)	ND(0.0084)	0.019 ± 0.0040
	平内町	H26.10.9	0.86 ± 0.11	ND(0.0099)	0.22 ± 0.016
	蓬田村	H26.10.9	0.53 ± 0.093	ND(0.0084)	0.073 ± 0.0083
	外ヶ浜町	H26.10.20	0.52 ± 0.090	ND(0.0088)	0.063 ± 0.0077
	今別町	H26.10.20	0.84 ± 0.11	ND(0.0093)	0.077 ± 0.0089
中南	弘前市	H25.10.23	ND(0.21)	ND(0.0085)	ND(0.0088)
	黒石市	H25.10.23	ND(0.16)	ND(0.0087)	0.036 ± 0.0058
	平川市	H25.10.8	0.47 ± 0.096	ND(0.0087)	0.057 ± 0.0074
	西目屋村	H25.11.22	ND(0.21)	ND(0.0085)	0.080 ± 0.0089
	藤崎町	H25.11.1	ND(0.18)	ND(0.0092)	0.051 ± 0.0072
	大鰐町	H25.10.8	0.23 ± 0.065	ND(0.0093)	0.086 ± 0.0092
	田舎館村	H25.10.23	0.27 ± 0.071	ND(0.0093)	0.028 ± 0.0051
三八	八戸市	H26.10.24	ND(0.19)	ND(0.0090)	0.027 ± 0.0050
	階上町	H26.10.24	ND(0.19)	ND(0.0091)	0.017 ± 0.0039
	田子町	H26.10.23	1.0 ± 0.12	ND(0.0078)	0.17 ± 0.013
	三戸町	H26.10.23	0.56 ± 0.10	ND(0.0085)	0.18 ± 0.014
	五戸町	H26.10.28	ND(0.22)	ND(0.0093)	0.047 ± 0.0066
	南部町	H26.10.23	0.36 ± 0.080	ND(0.0087)	0.041 ± 0.0063
	新郷村	H26.10.28	ND(0.17)	ND(0.0089)	0.023 ± 0.0046
	西北	五所川原市	H25.9.26	0.46 ± 0.092	ND(0.0085)
つがる市		H25.10.24	0.95 ± 0.13	ND(0.0090)	0.16 ± 0.013
鱒ヶ沢町		H25.10.24	ND(0.23)	ND(0.0096)	ND(0.0098)
深浦町		H25.10.24	0.31 ± 0.086	ND(0.0098)	0.054 ± 0.0074
板柳町		H25.11.22	3.1 ± 0.20*	ND(0.0084)	0.072 ± 0.0080
鶴田町		H25.11.22	0.61 ± 0.11	ND(0.010)	ND(0.010)
中泊町		H25.9.26	0.31 ± 0.084	ND(0.010)	0.051 ± 0.0075
上北		十和田市	H27.10.19	0.80 ± 0.12	ND(0.0095)
	三沢市	H27.11.12	ND(0.21)	ND(0.0088)	0.012 ± 0.0032
	野辺地町	H27.11.5	ND(0.21)	ND(0.0089)	ND(0.0089)
	七戸町	H27.10.19	0.69 ± 0.11	ND(0.0084)	0.041 ± 0.0061
	六戸町	H27.11.4	0.64 ± 0.11	ND(0.0090)	0.061 ± 0.0075
	横浜町	H27.11.5	0.38 ± 0.085	ND(0.0094)	0.090 ± 0.0096
	東北町	H27.10.19	ND(0.19)	ND(0.0090)	ND(0.0086)
	六ヶ所村	H27.11.5	0.97 ± 0.12	ND(0.0091)	0.067 ± 0.0078
	おいらせ町	H27.11.4	ND(0.15)	ND(0.0091)	0.016 ± 0.0038
下北	むつ市	H27.11.2	ND(0.15)	ND(0.010)	0.050 ± 0.0071
	大間町	H27.10.28	ND(0.15)	ND(0.0084)	0.026 ± 0.0047
	東通村	H27.11.12	0.22 ± 0.070	ND(0.0084)	0.046 ± 0.0064
	風間浦村	H27.10.29	0.42 ± 0.087	ND(0.0091)	0.031 ± 0.0053
	佐井村	H27.10.28	ND(0.21)	ND(0.0096)	0.096 ± 0.010

・測定値は試料採取日に補正した値。

・沈着量は土壌採取面積を用いて単位面積当たりに換算した値。

・NDは検出限界以下、( )内は検出限界値を示す。

※板柳町の Sr-90 の再分析結果は  $4.0 \pm 0.27$ Bq/kg 乾、再々分析結果は  $3.5 \pm 0.28$ Bq/kg 乾であった。



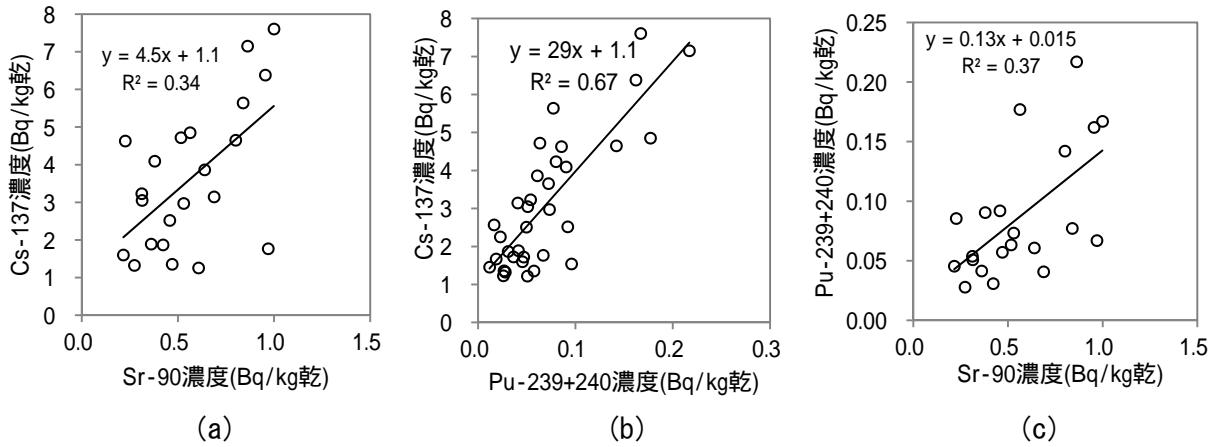


図8 Sr-90濃度、Pu-239+240濃度及びCs-137濃度の関係

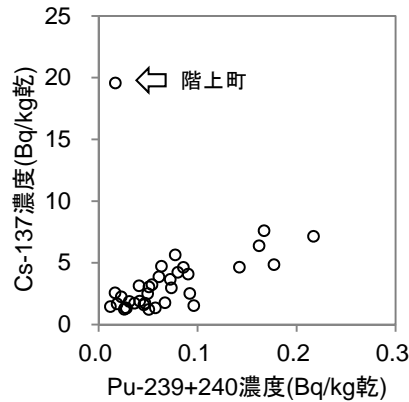


図9 Pu-239+240濃度とCs-137濃度の関係（階上町含む）

## 5. まとめ

平成25年度から3か年にわたり実施した調査の結果は、以下のとおりである。

- ・サーベイメータによる空間放射線量率は20～50 nGy/hであり、地域別の平均では西北地域が最も高く、上北地域が最も低かった。このような西高東低の傾向は、別途調査したサーベイメータによる県内全域走行測定結果と概ね一致した。
- ・可搬型Ge半導体検出器によるin-situ測定の結果は、Cs-134は全40地点中1地点でのみ検出され、測定値は430 Bq/m<sup>2</sup>であり、その他の地点では検出限界以下であった。Cs-137は全40地点中33地点で検出され、測定値は79～1300 Bq/m<sup>2</sup>であった。
- ・サーベイメータによる空間放射線量率とin-situ測定による空間線量率には正の相関が認められた。
- ・Ge半導体検出器による土壌中の人工放射性核種測定結果は、Cs-134は全40地点中7地点で検出され、測定値は0.51～6.6 Bq/kg乾であった。その他の地点では検出限界以下であった。Cs-137は全40地点中38地点で検出され、測定値は1.2～20 Bq/kg乾であり、平成25年度から平成27年度までの期間における環境放射線モニタリング結果(3～26 Bq/kg乾)と同程度の値であった。Cs-134が検出された7地点については、東京電力HD(株)福島第一原子力発電所の事故の影響があり、これらの地点で測定されたCs-137のうち約40%

以上は事故由来のものと考えられた。

- ・深度分布の調査結果では、青森市及び黒石市については、仮定した $\beta=4.85$ に比較的近い値となったが、その他については仮定から大きく異なる値となった。福島原発事故によるCs-137 寄与分を差し引けば、鱒ヶ沢町はほぼ不検出のレベルであり、その他の八戸市、十和田市及びむつ市については、濃度分布は浅い層から深い層までほぼ一様であり、これらの地点における土壌が、大気圏内核実験に起因するフォールアウトが吸着したのちに客土または攪乱されたものである可能性が示唆された。
- ・in-situ 測定は地表の Cs-137 沈着量を把握する上で有効な手段であり、原子力施設の事故に起因する Cs-137 が、フォールアウトによる影響よりも大きい場合には、適切な緩衝深度 $\beta$ を用いることで精度良く Cs-137 の沈着量を推定できるものと考えられた。
- ・放射化学分析の結果、Sr-90 濃度は ND $\sim$ 3.1Bq/kg 乾、Pu-238 濃度はすべて ND、Pu-239+240 濃度は ND $\sim$ 0.22 Bq/kg 乾であり、平成 25 年度から平成 27 年度までの期間における環境放射線モニタリング結果と同程度の値であった。
- ・階上町における調査結果から、Cs-137 が原子力施設の事故等で地表に沈着した場合には、Pu-239+240 との関係性を調べることで明確に識別できると考えられた。

## 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を用いた in-situ 測定法」(平成 20 年 3 月)
- 2) 長岡和則、本田幸一郎、宮野敬治：環境 $\gamma$ 線線量測定における宇宙線の寄与、*RADIOISOTOPES*, **45**, 665-674 (1996)
- 3) 文部科学省 農林水産省：東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に伴い放出された放射性物質の分布状況等に関する調査研究結果， p1-54 (平成 24 年 3 月)

# 技 術 報 告



## 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 - 平成 27 年度調査結果 -

神 俊雄 赤石 新<sup>\*1</sup> 松山 大<sup>\*2</sup>  
鈴木彩加<sup>\*3</sup> 幸 進<sup>\*3</sup> 佐々木耕一<sup>\*3</sup>

### 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(<sup>3</sup>H)、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 27 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<sup>1)</sup>における農畜産物及び海産生物の中から選定し、表 1 のとおりとした。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」<sup>2)</sup>に準拠し、液体シンチレーション計測法を用いた。

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを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、減圧蒸留法により精製したのち、トリチウム濃度 (Bq/L) を測定した。

\*1：現青森県警察本部

\*2：現青森県環境生活部環境保全課

\*3：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」<sup>3)</sup>に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

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

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27年度)

試料	採取地点	頻度 (回/年)	対象核種			
			<sup>3</sup> H		<sup>14</sup> C	<sup>129</sup> I・ <sup>131</sup> I
			TFWT	非交換型 OBT		
牛乳 (原乳)	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 <sup>※1</sup>	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	○	○	—	○

※1 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

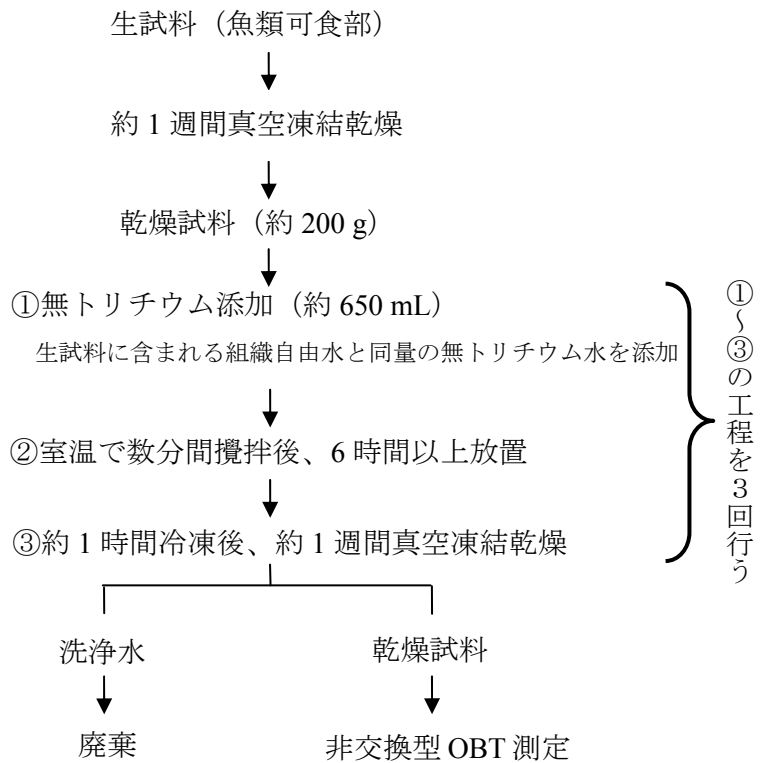


図 2 非交換型 OBT の分析工程

### (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<sup>4)</sup>。

### (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」<sup>5)</sup> に準拠し、生試料又は乾燥試料を Ge 半導体検出器により測定した。

### 3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成18年4月から平成28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。

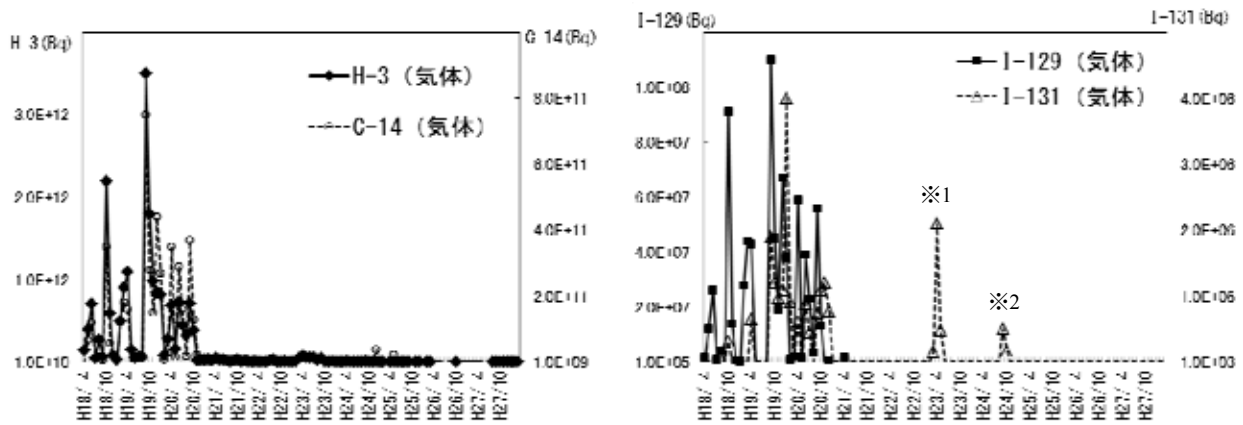


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量  
(平成18年4月～平成28年3月)

- 1 東京電力(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。
- 2 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。

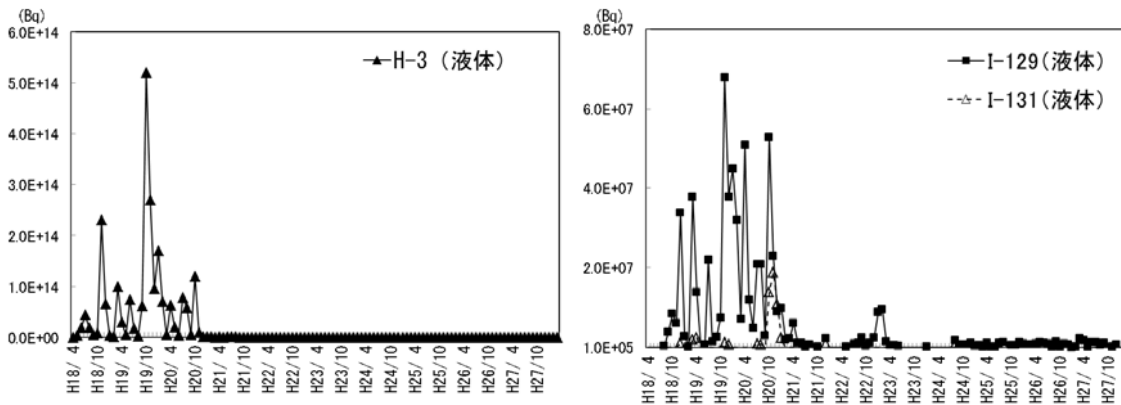


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量  
(平成18年4月～平成28年3月)



## 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～0.58 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.35 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.57 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り、昨年度と比較して全体的に低めであった。豊原の乳牛飲料水中のトリチウム濃度が他と比較して高めであったが、牛乳中トリチウム濃度との明確な相関は認められない。

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27年度）

採取地点	採取月	平成27年度調査結果			(参考)		
					平成19～26年度 調査結果	平成22～ 26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 <sup>*2</sup> (Bq/L)		
六原 <sup>*1</sup>	4月	*	*	*	*～0.63	*～0.62	*～0.46
	7月	0.45 ± 0.10	*	0.31 ± 0.06			
	10月	*	*	*			
	1月	*	0.35 ± 0.10	0.27 ± 0.06			
横浜町	4月	*	*	*	*～0.51	*～0.70	*～0.48
	7月	*	*	*			
	10月	*	*	*			
	1月	*	*	*			
二又	4月	*	*	*	*～0.42	*～0.63	*～0.25
	7月	*	*	*			
	10月	*	*	*			
	1月	0.58 ± 0.11	*	0.19 ± 0.06			
豊原	4月	*	*	0.20 ± 0.06	*～0.73	*～0.77	*～0.59
	7月	*	*	0.42 ± 0.06			
	10月	*	*	0.57 ± 0.06			
	1月	0.37 ± 0.10	*	0.35 ± 0.06			

・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0.29～0.33 Bq/L、非交換型OBTで0.31～0.39 Bq/L、飲料水で0.18～0.19 Bq/Lであった。

1 平成25年度から調査開始

2 平成19～25年度までの調査結果は交換型OBTを含む。

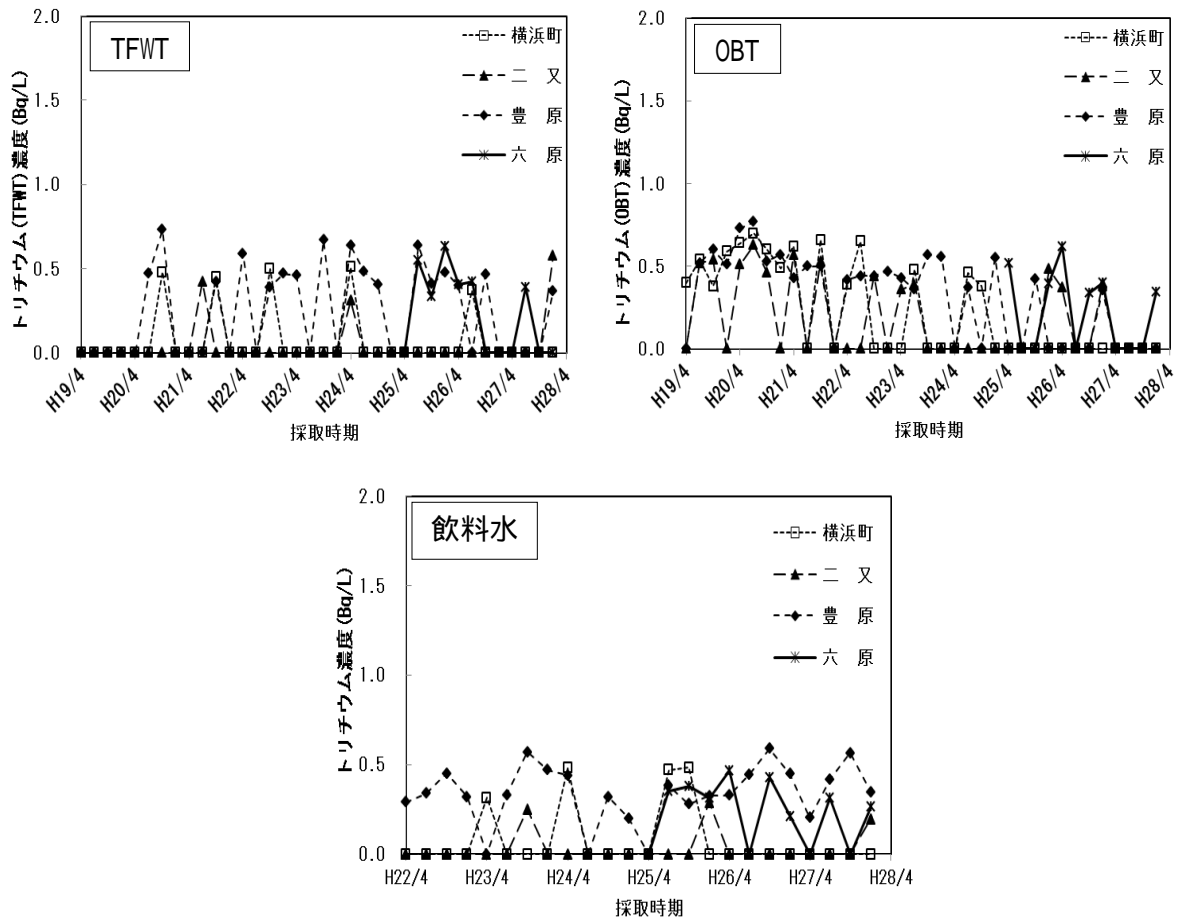


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化  
 検出限界以下は0としてプロットした。

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、二又②において0.34 Bq/L 検出された以外は、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27年度)

試料名	採取地点	採取月	平成27年度調査結果	
			非交換型OBT (Bq/L)	OBT <sup>※1</sup> (Bq/L)
精米	千樽	10月	*	*~0.89
	野辺地町	9月	*	*~0.59
	二又① <sup>※2</sup>	10月	*	*~0.57
	二又②	10月	0.34 ± 0.11	*~1.0
	戸鎖	10月	*	*~0.66
	平沼 <sup>※3</sup>	9月	*	*

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお検出限界は、0.32~0.45 Bq/Lであった。

1 平成19~25年度までの調査結果は交換型OBTを含む。

2 平成20年度から調査開始

3 平成25年度から調査開始

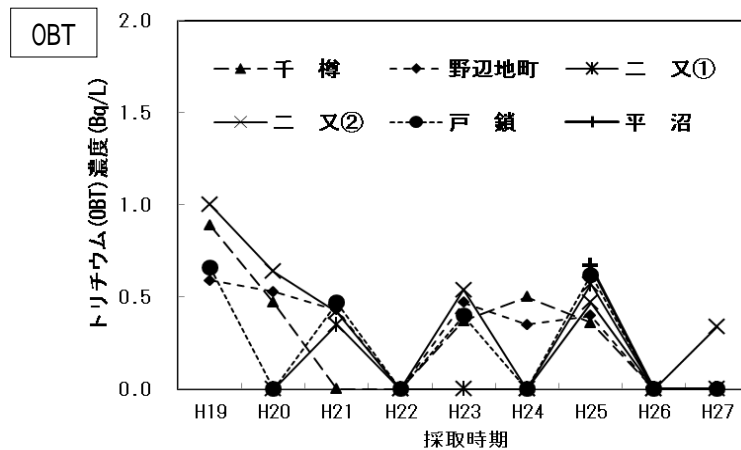


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化  
検出限界以下は0としてプロットした。

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～0.72 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.55 Bq/Lであった。TFWTについては、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。OBTについては、交換型OBTを含む平成26年度までの値と比較して低めとなっている。

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年代には100 Bq/Lを超えていたが、その後はゆるやかに減少し、現在は1 Bq/Lを下回る水準である<sup>6)7)</sup>。

青森県実施の環境放射線モニタリング(平成20～27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(0.21～0.36 Bq/L)以下～1.2 Bq/L

表4 野菜のトリチウム(TFWT、OBT)濃度(平成27年度)

試料名	採取地点	採取月	平成27年度調査結果		(参考)平成19～26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	0.42 ± 0.13	*	*～0.69	*～0.80
	千樽	10月	0.48 ± 0.11	0.45 ± 0.14	*～0.89	*～0.68
キャベツ	横浜町	10月	*	0.41 ± 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	0.72 ± 0.10	0.41 ± 0.11	0.41～0.86	*～0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	0.55 ± 0.11	*～0.67	*～0.62
	平沼	11月	0.61 ± 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0.30～0.40 Bq/L、OBTで0.32～0.40 Bq/Lであった。  
平成19～25年度までの調査結果は交換型OBTを含む。

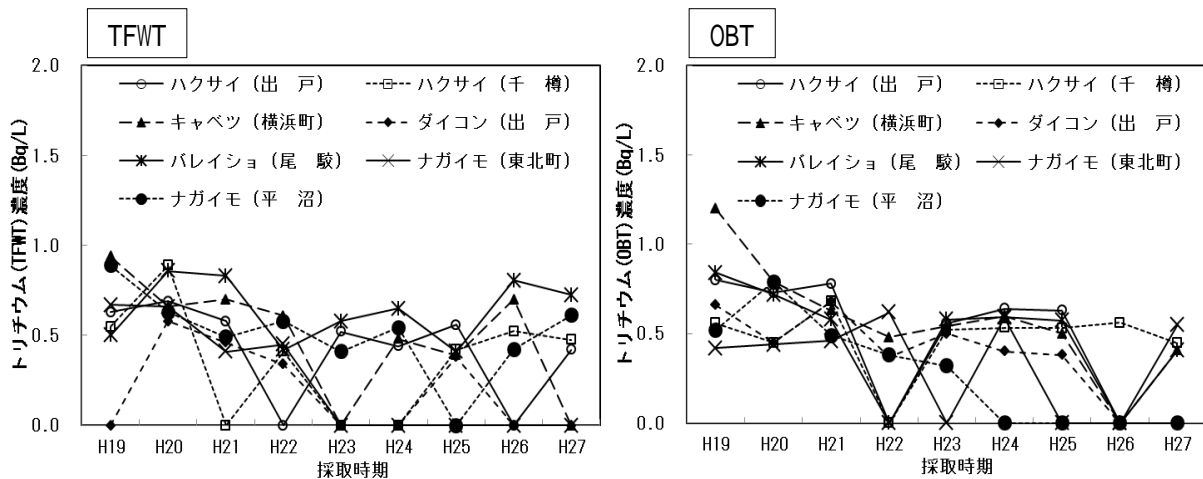


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化  
検出限界以下は0としてプロットした。

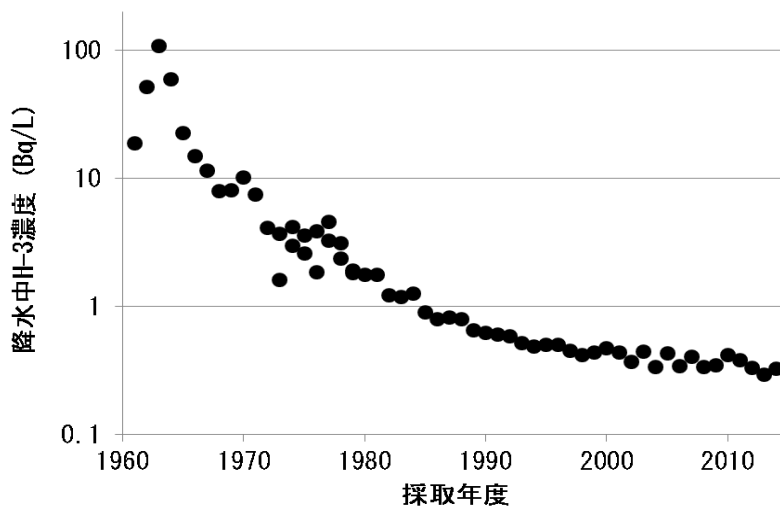


図8 東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・引用元、測定年度及び測定地点は以下のとおり。
- (国研)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：降下物
- 5.調査試料：月間降下物
- 6.調査核種：H-3
- 2007～2015年度 千葉市稲毛区山王町

海洋試料である魚類（ヒラメ）の測定結果を表5及び図9に示す。TFWTは7月採取分において0.35 Bq/Lであったほかは、すべて検出限界以下であり、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～0.37 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25～27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<sup>8)</sup>。

平成27年度から調査を開始した海藻類（コンブ）の測定結果を表6に示す。TFWT、非交換型OBTとも、すべて検出限界以下であった。

表5 魚類（ヒラメ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成27年度）

試料名	採取地点	採取月	平成27年度調査結果		(参考)平成19～26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)	六ヶ所村 前面海域①	6月	*	*	*～3.3	*～1.4	*～0.38
		9月	*	*			
		10月	*	*			
		12月	*	0.37 ± 0.11			
	六ヶ所村 前面海域②	6月	*	*	*～0.45	*～0.77	*
		7月	0.35 ± 0.10	*			
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0.30～0.33 Bq/L、非交換型OBTで0.30～0.34 Bq/Lであった。

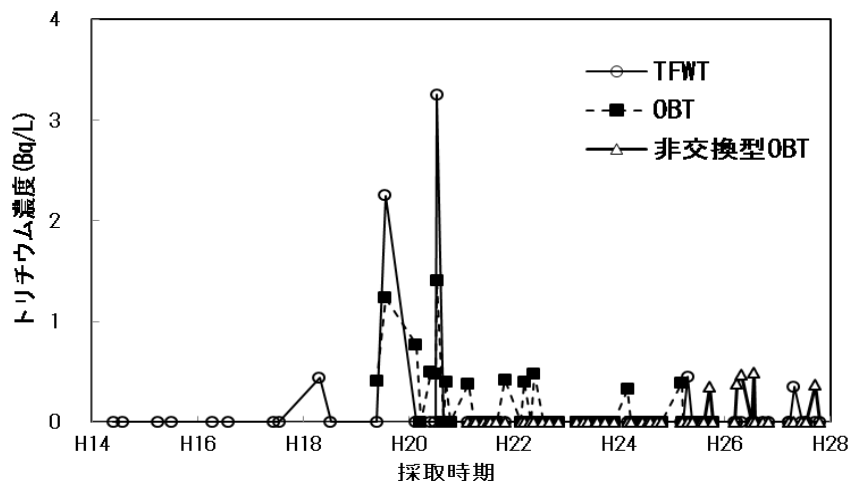


図9 魚類（ヒラメ）におけるトリチウム濃度（TFWT、OBT、非交換型OBT）の経年変化

- 1 検出限界以下は0としてプロットした。
- 2 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27年度）

試料名	採取地点	採取月	平成27年度調査結果	
			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	8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、TFWTで0.30～0.32 Bq/L、非交換型OBTで0.32 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0.229～0.241 Bq/g 炭素、葉菜が0.231～0.233 Bq/g 炭素、根菜・いも類が0.231～0.237 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年度までに県のモニタリングで得られた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<sup>9)</sup>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9.5年となり、これは府馬ら<sup>10)</sup>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平成7年度から平成18年度までの各年度における比放射能の推定値と変動幅(3σ)を求め、これらを用い施設寄与がないと仮定した時の比放射能の推移を推定し、図に示した。平成27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の範囲内であった。

表7 農産物のC-14比放射能(平成27年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	H27年度調査結果	(参考) H19～26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	0.229 ± 0.003	0.231 ~ 0.248
		野辺地町	9月	0.230 ± 0.003	0.229 ~ 0.249
		二又① <sup>*1</sup>	10月	0.230 ± 0.003	0.231 ~ 0.241
		二又②	10月	0.236 ± 0.003	0.235 ~ 0.251
		戸 鎖	10月	0.241 ± 0.003	0.237 ~ 0.255
		平 沼 <sup>*2</sup>	9月	0.232 ± 0.003	0.233 ~ 0.234
葉菜	ハクサイ	出 戸	10月	0.232 ± 0.003	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	0.231 ± 0.003	0.227 ~ 0.267
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	10月	0.233 ± 0.003	0.228 ~ 0.239
	パレイショ	尾 駁	8月	0.231 ± 0.003	0.225 ~ 0.244
	ナガイモ	東北町	11月	0.234 ± 0.003	0.225 ~ 0.243
		平 沼	11月	0.237 ± 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

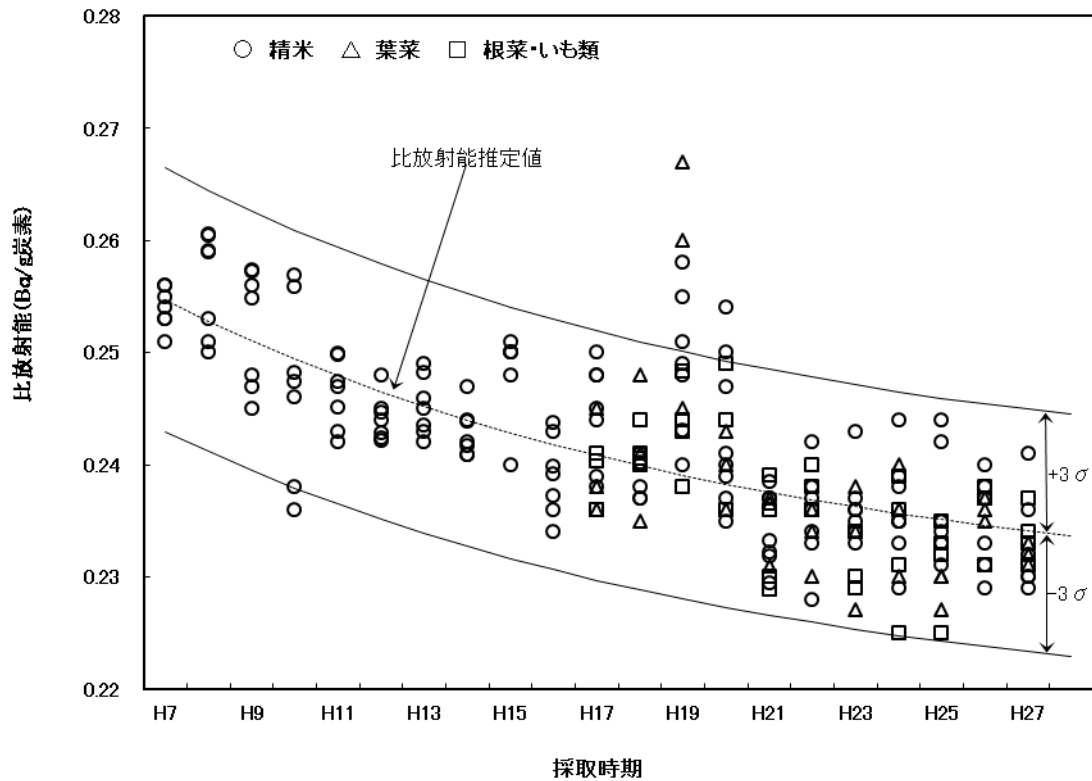


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

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 6 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  $\lambda$  を求めた。

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

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

$\lambda$ : 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) 9.45

$t$ : 平成 6 年度からの経過年数 (年)

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

変動係数: 平成 7~18 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

牛乳の C-14 比放射能の測定結果は表 8 に示すとおり、0.230~0.244 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。牛乳についてはアクティブ試験前の測定結果がないため、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も併せて記載した。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 27 年度の測定値は、平成 26 年度よりやや高めであるが、すべて推定値  $\pm 3\sigma$  の範囲内であった。

表8 牛乳のC-14 比放射能（平成27年度）

試料名	採取地点	採取月	H27年度調査結果	(参考) H19~26年度
			(Bq/g 炭素)	調査結果 (Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原*	4月	0.230 ± 0.003	0.230 ~ 0.241
		7月	0.235 ± 0.003	
		10月	0.240 ± 0.003	
		1月	0.237 ± 0.003	
	横浜町	4月	0.234 ± 0.003	0.232 ~ 0.248
		7月	0.236 ± 0.003	
		10月	0.237 ± 0.003	
		1月	0.235 ± 0.003	
	二又	4月	0.235 ± 0.003	0.230 ~ 0.262
		7月	0.231 ± 0.003	
		10月	0.235 ± 0.003	
		1月	0.240 ± 0.003	
	豊原	4月	0.237 ± 0.003	0.231 ~ 0.266
		7月	0.233 ± 0.003	
		10月	0.242 ± 0.003	
		1月	0.244 ± 0.003	

平成25年度から調査開始

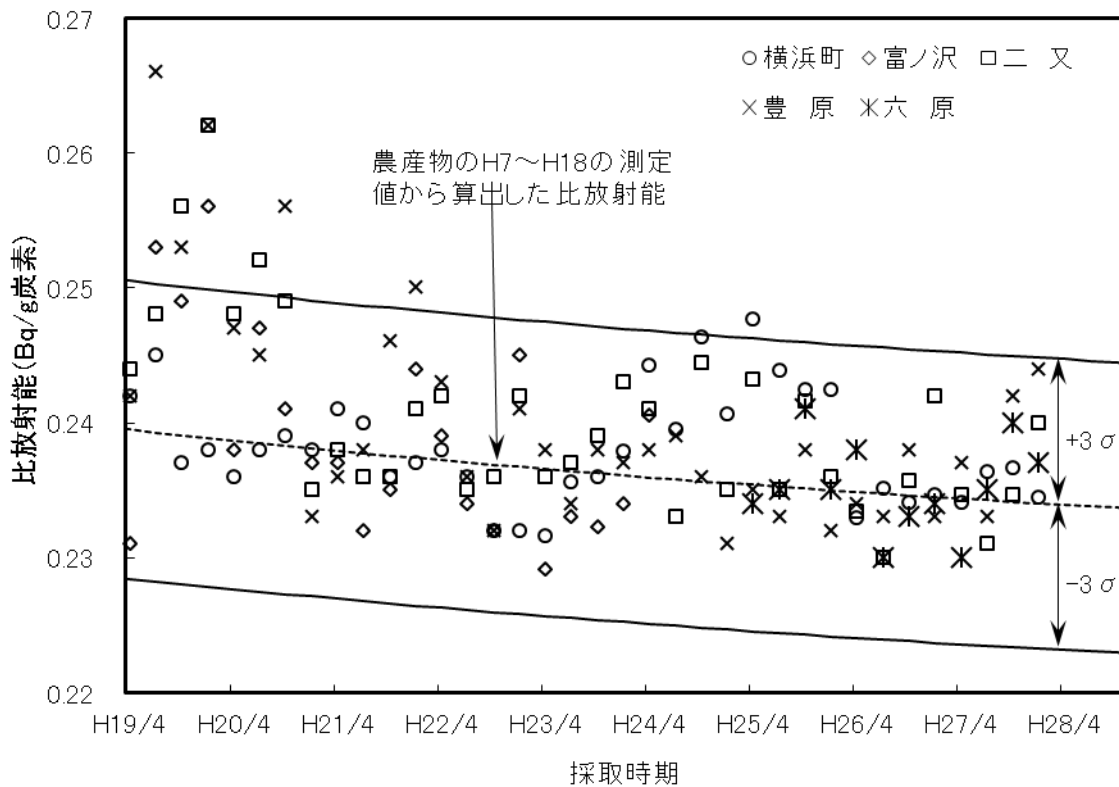


図11 牛乳におけるC-14 比放射能の経年変化



### 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  $5.2 \times 10^{-8} \sim 1.5 \times 10^{-7}$  Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は  $1.7 \times 10^{-9} \sim 4.3 \times 10^{-9}$  であり、平成 19 年度以降、全体として低下傾向にあると見られる。海藻類については、I-129 濃度は  $2.2 \times 10^{-4}$  及び  $2.5 \times 10^{-4}$  Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は  $6.8 \times 10^{-11}$  及び  $7.1 \times 10^{-11}$  であり、平成 20 年度以降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<sup>11)</sup>。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<sup>12)</sup>。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の I-129/I-127 原子数比は、これらと同程度であった。

I-131 は、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 27 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 27 年度調査結果		(参考) 平成 19~26 年度調査結果	
			<sup>129</sup> I 濃度 (Bq/kg 生)	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I 原子数比	<sup>129</sup> I 濃度 (Bq/kg 生)	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I 原子数比
ハクサイ	出戸	10 月	$5.2 \times 10^{-8}$ $\pm 9.8 \times 10^{-9}$	$1.7 \times 10^{-9}$	$3.8 \times 10^{-8}$ $\sim 1.7 \times 10^{-5}$	$1.4 \times 10^{-9}$ $\sim 4.9 \times 10^{-7}$
	千樽	10 月	$1.5 \times 10^{-7}$ $\pm 1.4 \times 10^{-8}$	$4.3 \times 10^{-9}$	$7.0 \times 10^{-8}$ $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	$2.8 \times 10^{-9}$ $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10 月	$5.7 \times 10^{-8}$ $\pm 1.2 \times 10^{-8}$	$3.8 \times 10^{-9}$	$4.5 \times 10^{-8}$ $\sim 1.2 \times 10^{-5}$	$4.2 \times 10^{-9}$ $\sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	8 月	$2.5 \times 10^{-4}$ $\pm 5.7 \times 10^{-6}$	$6.8 \times 10^{-11}$	$8.5 \times 10^{-5}$ $\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$4.6 \times 10^{-11}$ $\sim 9.1 \times 10^{-10}$
		10 月	$2.2 \times 10^{-4}$ $\pm 5.0 \times 10^{-6}$	$7.1 \times 10^{-11}$		

## 5. まとめ

平成 27 年度の調査において、陸上試料中トリチウムについては、近年の大気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 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 25~27 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、分析中の 1 試料を除き、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、平成 18 年度までの経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。I-129 は、葉菜類、海藻類ともに I-129/I-127

原子数比が大気圏内核実験後のバックグラウンドレベルと同程度であり、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。

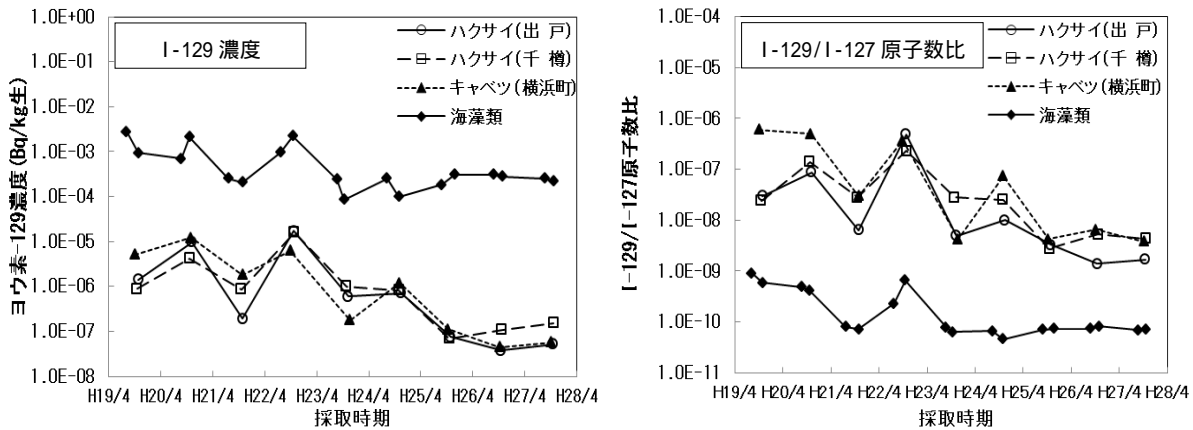


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

## 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)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/anzen/db/NetsDB.html>（最終アクセス：平成 28 年 2 月 9 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 28 年 2 月 9 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  $^{14}\text{C}$  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  $^{129}\text{I}$  analysis in air, *Journal of Environmental Radioactivity*, **126**, 45-54 (2013)
- 12) Xiaolin Hou : Application of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)

# 学 会 发 表 等 要 旨



## 青森県の原子力安全対策行政

青森県危機管理局原子力安全対策課、青森県原子力センター、日本原燃株式会社、東北電力株式会社東通原子力発電所、リサイクル燃料貯蔵株式会社

保健物理学会第 49 回研究発表会、青森県弘前市、2016.6.30-7.1

### 1. はじめに

本県においては、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所、大間原子力発電所、使用済燃料中間貯蔵施設といった原子力関連プロジェクトが進められており、県では、これら原子力施設について、種々の事務を行っている。

本セッションでは、これら県の事務のうち、原子力防災対策、原子力施設周辺の環境放射線モニタリングの概要及び、その対象である原子力施設の現在の状況について各機関から紹介する。

### 2. 防災対策の概要

青森県では、東京電力福島第一原子力発電所事故を契機に国で原子力防災対策に関する抜本的な見直しを行った防災基本計画や原子力災害対策指針を踏まえ、青森県地域防災計画(原子力編)に、原子力災害対策重点区域の拡大や緊急時モニタリングの実施体制等を反映した修正を平成 26 年 2 月までに行っている。

本セッションでは、青森県の地域防災計画等、防災対策の概要を紹介する。

### 3. 環境放射線モニタリングの概要

県は、原子力施設周辺における住民の安全確保及び環境の保全を図るため、平成元年 4 月から原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等の調査を、平成 15 年 4 月から東通原子力発電所に係る環境放射線の調査を、リサイクル燃料備蓄センターについては、平成 20 年 4 月からリサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線の事前調査を、それぞれ事業者とともに実施している。

本セッションでは、これらモニタリングの概要を紹介する。

### 4. 県内原子力施設の状況

#### 原子燃料サイクル施設

六ヶ所村においては、日本原燃(株)によりウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センターの操業が行われており、再処理工場については、使用済燃料受入れ貯蔵施設が操業しているが、本体施設については建設が進められている。また、MOX 燃料工場についても建設が進められている。

#### 東通原子力発電所

東通村においては、東北電力(株)により東通原子力発電所 1 号機の操業が行われているが、現在、定期検査を実施中である。

#### 使用済燃料中間貯蔵施設

むつ市においては、リサイクル燃料貯蔵(株)により使用済燃料中間貯蔵施設(リサイクル燃料備蓄センター)の建設が進められている。

これらの施設については、現在、国による新規制基準に係る適合性審査が進められている(低レベル放射性廃棄物埋設センターを除く)ところであり、本セッションにおいては、各原子力事業者から、新規制基準への対応を含め、施設の状況を紹介します。

## 青森県におけるトリチウムの環境モニタリングと調査研究

神 俊雄

「生物・環境影響の観点からみた核融合システムのトリチウム安全性」研究会、

岐阜県土岐市、2016.8.9-8.10

青森県が原子力事業者と共同で実施している環境放射線モニタリングにおいて、六ヶ所再処理工場における使用済燃料を用いたアクティブ試験の影響として、大気（水蒸気）、海水、魚類中のトリチウム濃度に有意な変動が認められた。測定結果に基づき経口摂取による預託実効線量を試算した結果は、極めて低い値であった。

青森県及び日本原燃株式会社は、原子燃料サイクル施設に係る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 年度から環境試料中のトリチウム等の調査研究を実施している。本調査研究においては、魚類中の TFWT 濃度を除き、再処理工場からの明確な影響は認められていない。

## 青森県の環境放射線モニタリングについて

### - 福島第一原子力発電所事故由来の放射性物質の影響が見られた事例 -

柴田悠司、佐々木 守

第 3 回福島大学環境放射能研究所成果報告会、福島県福島市、2017.3.14

青森県では、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所及びリサイクル燃料備蓄センターに係る環境放射線モニタリングにおいて、19 地点で空間放射線量率（NaI）の連続測定を実施し、41 地点で蛍光ガラス線量計（RPLD）による 3 ヶ月毎の積算線量測定を実施している。積算線量測定において、例年と比べ約  $6 \mu\text{Gy}/91$  日高い結果が得られた地点があった。そこで、NaI サーベイメータ及び可搬型モニタリングポストを用いて周辺の放射線量率を調査したところ、測定地点付近に駐車していた車両から高い放射線量率が検出されたことから、車両付近において可搬型モニタリングポストによる  $\gamma$  線スペクトル解析及び可搬型 Ge 半導体検出器による In-Situ 測定を実施したところ、いずれも Cs-134 及び Cs-137 が確認された。また、車両に付着している試料を採取し Ge 半導体検出器を用いた放射性核種分析を行ったところ、Cs-134 及び Cs-137 が検出され、Cs-134/Cs-137 放射濃度比から福島第一原子力発電所事故由来の放射性物質であると推定された。なお、同様の事象は過去 5 回、空間放射線量率の連続測定で確認されており、 $\gamma$  線スペクトル解析からいずれも福島第一原子力発電所事故由来と思われる放射性物質が付着した車両の影響と推定された。

# 青森県全域における空間放射線調査

鈴木将文、佐々木守、木村秀樹

第 18 回「環境放射能」研究会、茨城県つくば市、2017. 3. 14-3. 16

## 1 はじめに

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を踏まえ、青森県における空間放射線の水準を把握しておくことは、原子力施設周辺のモニタリング結果を解釈する上での参考となるほか、原子力災害発生時に環境へ放出された放射性物質による影響評価に資することとなる。このため、サーベイカーによる走行測定を行い、青森県全域の空間放射線量率の測定を行った。

## 2 調査方法

測定ルートは原則として各市町村の役場付近を通る主要道路(国道又は主要地方道)を選定し、高規格幹線道路、地域高規格道路を除外した。また、山地では、舗装されている道路もしくは舗装されているところまでを測定した。

測定方法は、車両の屋根に設置されているエネルギー補償型 2" × 2" NaI(Tl)シンチレーション検出器(G(E)関数荷重演算方式、3MeV以上カット、測定高さ 1.95 m)を用いてスケーラ方式により、空間放射線量率(10秒値、空気吸収線量率)を算出した。測定は、平成 25~28年度の10~12月の降雨のない日を選んで実施し、速度は 60 km/h 以下で、片側 2車線以上の道路の場合は、周辺の地面からの放射線をできる限り測定できるよう左端の車線を走行した。

## 3 結果と考察

走行測定結果(500m区間平均値)の頻度分布を図 1 に、分布図(1 km メッシュ)を図 2 に示す。県内の空間放射線量率の範囲は 9.9~56.9 nGy/h であり、平均値は 18.8 nGy/h、最頻値は 17.8 nGy/h であった。また、測定値の高い地域は山地または台地に見られ地質の影響を受けていると考えられる。低い地域は第四紀火山にあたる八甲田山、十和田湖、下北半島の恐山、燧岳とその周辺であり火山噴出物の影響を受けていると考えられる。これらの測定結果の平均値及び最頻値から年間の実効線量を算出すると約 0.20 mSv/y 及び約 0.19 mSv/y であった。





# 平成 28 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

神 俊雄 武藤逸紀

### 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<sub>3</sub>T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<sup>1)</sup>。

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<sub>3</sub>T等を含む。)の化学形であったとの報告<sup>2)</sup>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<sup>3)</sup>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<sup>4),5)</sup>。

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が、県の測定結果と公益財団法人環境科学技術研究所(以下「環境研」という)がガス添加法を用いて採取した試料の測定結果<sup>6)~15)</sup>を比較したところ、県の測定結果は環境研のものと比較して、HTが低めであり、かつCH<sub>3</sub>Tが高い傾向が見られた。

採取地点・採取期間の違いによる影響を除外して県と環境研の調査結果を比較するため、平成26年11月から平成27年4月にかけて、環境研と並行して試料を採取し、分析したところ、HTO及びHTは概ね一致したが、CH<sub>3</sub>Tは県の測定結果が環境研の測定結果と比較して高かった。

キャリアとして添加している無トリチウム水によりHT酸化用のPt触媒の活性が低下している可能性が考えられたため、加湿カラムをPt触媒の上流側に設置した場合と、Pt触媒の下流側に設置した場合(Pt後加湿)で、HT及びCH<sub>3</sub>Tの測定値に違いがあるか検討したところ、Pt後加湿の採取装置におけるCH<sub>3</sub>Tの測定結果が過去の環境研の測定結果と近くなり、Pt触媒の活性の低下を防ぐことができた可能性があると考えられた。

平成28年度は、Pt後加湿の採取装置を用いて環境研と再度並行採取を行い、試料採取方法の妥当性を確認するほか、Pt触媒の酸化効率の確認試験を行った。

### 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

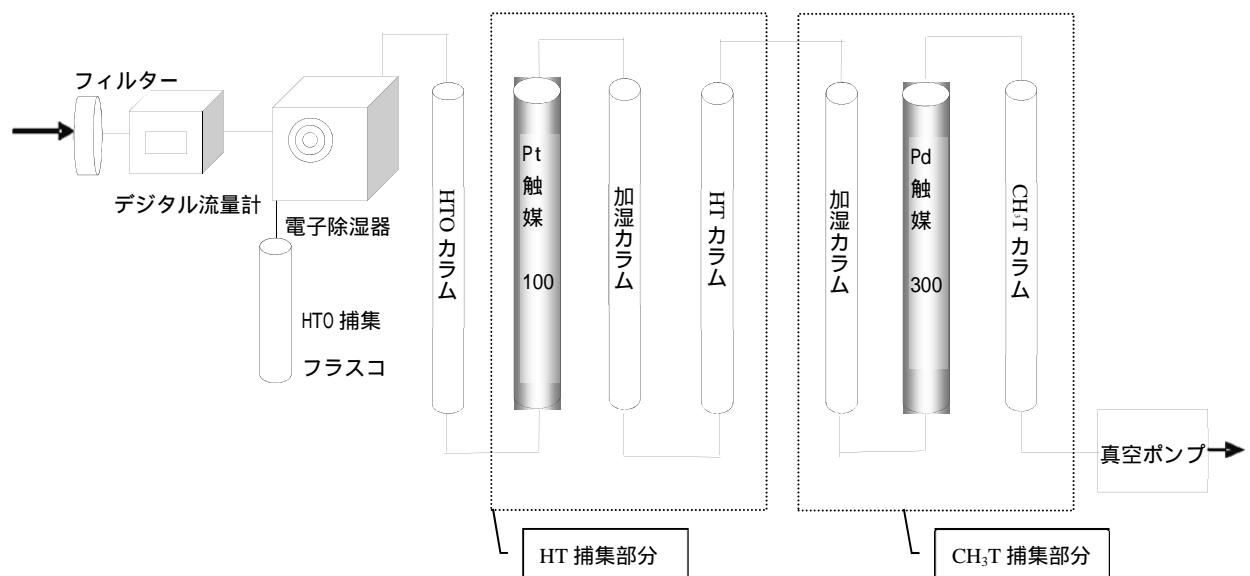


図1 加湿カラム法による採取装置の概要

(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 )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 カラムに捕集する。

HTについては、100 に加熱した Pt 触媒(D2SPT6S40C、田中金属工業株式会社、Pt 担持量 6.0 g/L、25 mm × 40 mm)を 4 個使用して酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した HT カラムに水として捕集する。大気中の H<sub>2</sub> 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。

CH<sub>3</sub>Tについては、300 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 )100 g により酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した CH<sub>3</sub>T カラムに水として捕集する。大気中の CH<sub>4</sub> 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。

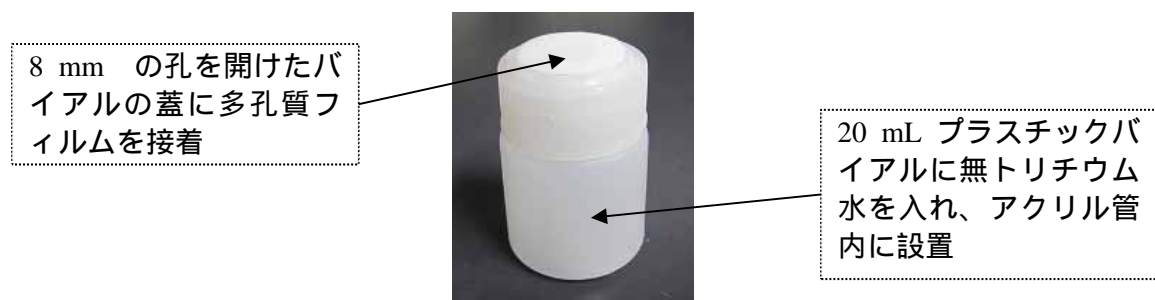


図2 加湿バイアル外観

## 2.2 試料採取

### (1) 並行採取によるガス添加法との比較

#### 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<sup>13)</sup>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 ヶ月間
- ・大気採取流量：1.5 L/min
- ・大気採取量：約 65 m<sup>3</sup>

#### イ 採取地点

環境研構内

#### ウ 採取時期

平成 28 年 3 月 (3/1 ~ 4/1)、4 月 (4/1 ~ 5/2)、5 月 (5/2 ~ 6/1)

### (2) Pt 触媒の酸化効率の確認

#### ア 採取条件

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 CH<sub>3</sub>T の採取を行った。

その他の採取条件は以下のとおり。

- ・採取期間：約 1 ヶ月間
- ・大気採取流量：1.5 L/min
- ・大気採取量：約 65 m<sup>3</sup>

#### イ 採取地点

青森市駐在テレメータ室 (室内の空気を採取)

#### ウ 採取時期

平成 28 年 10 月 (10/7 ~ 11/7)、11 月 (11/7 ~ 12/7)

## 2.3 分析方法

試料採取後のモレキュラーシーブカラムを窒素ガスを流しながら 400 °C に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却管により冷却し、試料水として回収した。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-LB7、日立製作所) により行い、測定時間は、4000 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 CH<sub>3</sub>T の大気中濃度を算出した。

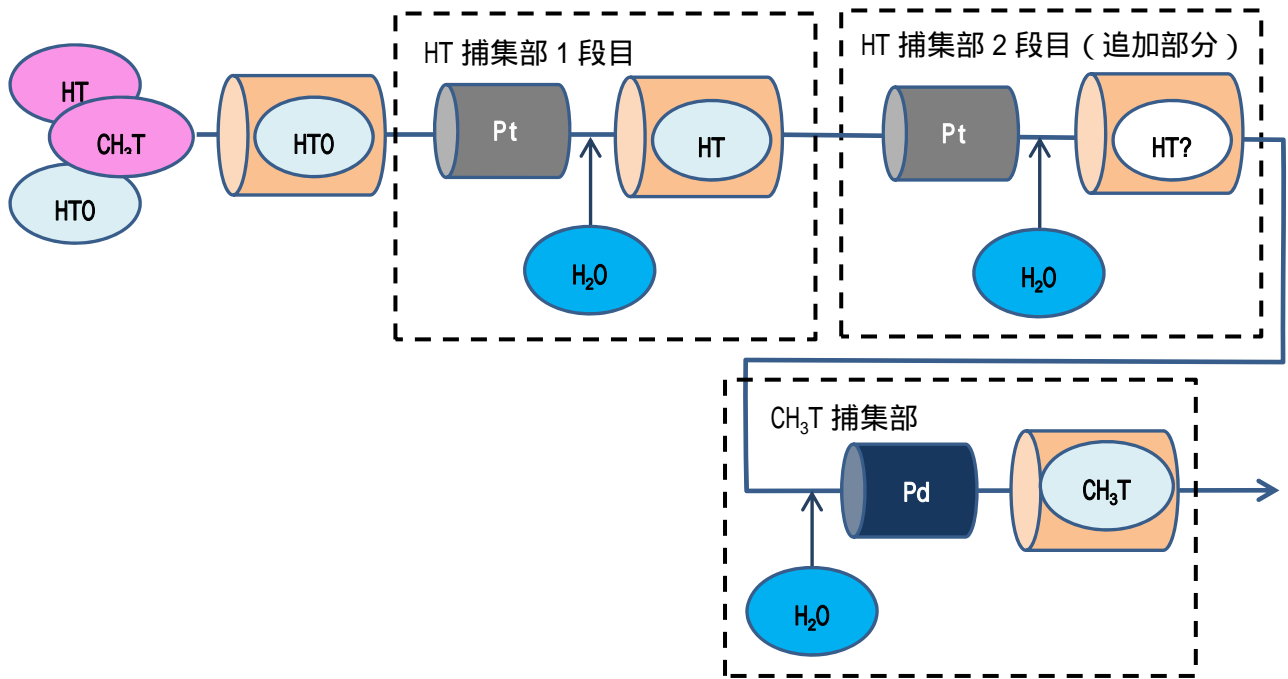


図3 HT 捕集部を2重化した採取装置略図

### 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28年3月(3/1~4/1)、4月(4/1~5/2)、5月(5/2~6/1)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に示す。県のCH<sub>3</sub>T測定値は環境研と比較して3倍前後高めであった。

HT及びCH<sub>3</sub>T試料について、捕集カラムの重量増加が加湿バイアルの重量減少を大きく超過したものがあり、HTO捕集カラム以降の流路において、室内空気が混入したと推測される。表1に室内空気混入量の推定結果を示す。水分量としては、混入量が多いもので捕集量に対して60%程度に上るが、大気採取量に対する室内空気の混入量の比率としては0.1~1%程度である。混入した空气中水分のトリチウム濃度は、過去のHTOの測定値から1~2Bq/L程度と考えられる。一方、HT・CH<sub>3</sub>Tについては、検出限界を向上させるため、加湿バイアルによる無トリチウム水の加湿量を1ヶ月で10mL程度に抑えており、屋外大気中のHT、CH<sub>3</sub>T濃度と、並行採取時の大気採取量を考慮すると、試料水中濃度はHTで20~40Bq/L程度、CH<sub>3</sub>Tで5~10Bq/L程度と混入水分と比較して高く、混入水分が測定値に与える影響は最大1%強程度と見積もられた。

今回の混入の原因は、採取装置を設置した際のスペースの制約により、接続部の確認をしにくい状態であったことが主な要因であると考えられることから、今後の採取に当たっては、操作性にも留意して採取装置を設置することとする。

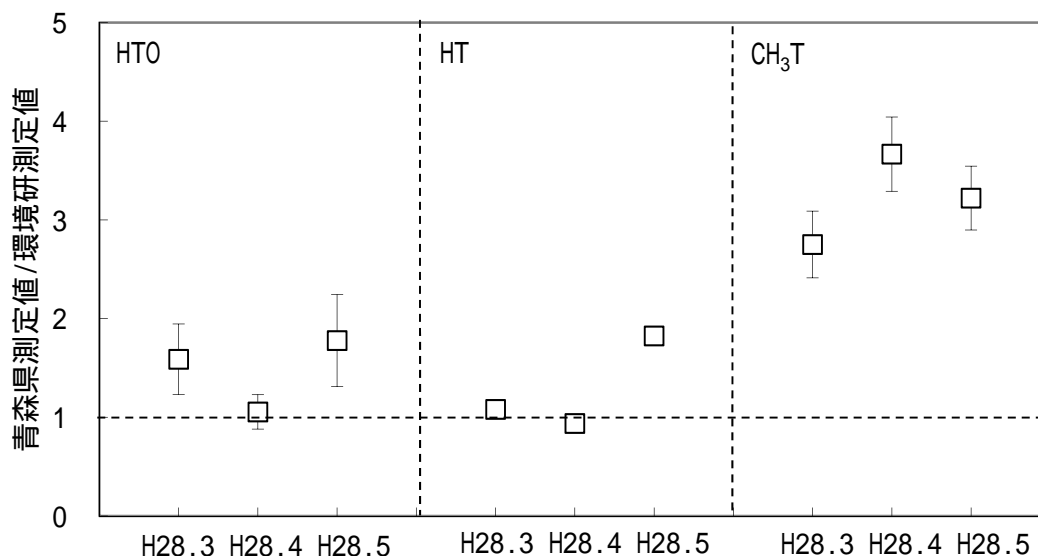


図4 並行採取による測定結果（県/環境研 県：加湿カラム法 環境研：ガス添加法）

表1 HT、CH<sub>3</sub>T 試料への室内空気混入量の推定結果

試料	加湿パイ	捕集カラ	推定混入	大気中	推定室内	大気採取	混入量 /	
	アル重量	ム重量増						水分量(g)
	減少分(g)	分(g)		(g/m <sup>3</sup> )*1	量(m <sup>3</sup> )*2			
	A	B	C=B-A	D	E=C/D	F	G=E/F	
3月	HT	10.12	11.49	1.37	4.61	0.30	65.50	0.0045
	CH <sub>3</sub> T	9.22	10.54	1.32	4.61	0.29	65.50	0.0044
4月	HT	10.43	14.11	3.68	6.16	0.60	62.35	0.0096
	CH <sub>3</sub> T	9.23	10.91	1.68	6.16	0.27	62.35	0.0044
5月	HT	10.45	16.82	6.37	9.21	0.69	65.34	0.0106
	CH <sub>3</sub> T	9.86	10.47	0.61	9.21	0.07	65.34	0.0010

\*1 大気採取量(m<sup>3</sup>) / [除湿器捕集量+ HTO カラム捕集量] (g)

\*2 推定混入水分量(g) / 大気中水分量(g/m<sup>3</sup>) 屋内外の大気中水分量が等しいと仮定

### 3.2 Pt 触媒酸化効率の確認

平成 27 年度の検討結果から、Pt 触媒による酸化処理の後でキャリアである無トリチウム水を添加することにより、HT の酸化効率低下を回避することができたと考えられるが、未だ、環境研の採用するガス法と比較して CH<sub>3</sub>T 濃度が高めの傾向にある。この原因が HT の酸化不足であるのか、あるいは別の要因によるものなのかを確認するため、HT 捕集部を 2 重化した採取装置により採取した HTO、HT (1 段目)、HT (2 段目)、CH<sub>3</sub>T 濃度を測定した。

表 2 に測定結果を示す。2 段目の HT 捕集部に捕集された試料 (HT2) にも計数誤差の 3 倍を超えて H-3 が検出されており、Pt 触媒 1 段では酸化しきれなかった 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 触媒の酸化効率は、10

月分で 96.8%、11 月分で 91.0%と評価され、2 段の HT 捕集部により、ほぼすべての HT が捕集されたと考えられる。

CH<sub>3</sub>T 濃度については、2 回の測定値がそれぞれ 0.874、0.611 mBq/m<sup>3</sup>と、平成 25～27 年度の県の測定結果(0.74～3.3 mBq/m<sup>3</sup>)と比較して低めであり、環境研の平成 25～27 年の測定結果(0.30～0.86 mBq/m<sup>3</sup>)と同程度であった。

表 3 に採取時の空気混入量推定結果を示す。10 月、11 月いずれも、流路途中からの空気混入量は、採取量に対して体積比 0.1～0.4%程度と推定され、測定値に与える影響は無視できる水準であった。

表 2 HT 捕集部 2 重化装置による試料測定結果

	試料	大気中濃度(mBq/m <sup>3</sup> )		
10 月	HTO	2.95	±	0.32
	HT1	3.53	±	0.048
	HT2	0.114	±	0.032
	CH <sub>3</sub> T	0.874	±	0.034
11 月	HTO	2.76	±	0.41
	HT1	6.25	±	0.082
	HT2	0.562	±	0.047
	CH <sub>3</sub> T	0.611	±	0.047

\* 採取期間はそれぞれ以下のとおり。

10 月：H28.10.7～11.7      11 月：H28.11.7～12.7

表 3 HT 捕集部 2 重化装置における HT、CH<sub>3</sub>T 試料への混入空気量の推定結果

試料	加湿バイ	捕集カラ	推定混入	大気中水	推定室内	大気採取	混入量 /	
	アル重量	ム重量増						水分量(g)
	減少分(g)	分(g)		(g/m <sup>3</sup> )*1	量(m <sup>3</sup> )*2	量(m <sup>3</sup> )	G=E/F	
	A	B	C=B-A	D	E=C/D	F		
10 月	HT1	9.62	11.13	1.51	7.29	0.207	66.14	0.0031
	HT2	9.41	11.05	1.64	7.29	0.225	66.14	0.0034
	CH <sub>3</sub> T	8.61	10.68	2.07	7.29	0.284	66.14	0.0043
11 月	HT1	8.34	9.04	0.70	9.25	0.076	64.50	0.0012
	HT2	9.19	9.94	0.75	9.25	0.081	64.50	0.0013
	CH <sub>3</sub> T	8.58	9.44	0.86	9.25	0.093	64.50	0.0014

\*1 大気採取量(m<sup>3</sup>) / [除湿器捕集量+ HTO カラム捕集量] (g)

\*2 推定混入水分量(g) / 大気中水分量(g/m<sup>3</sup>)



#### 4. まとめ

前年度中に改良した採取装置を用い、並行採取により県と環境研の測定結果を比較したところ、依然として県の CH<sub>3</sub>T 測定結果が環境研と比較して高い傾向にあった。HT 捕集部分を 2 重化した装置を用いて採取を行い、Pt 触媒 1 段の HT 酸化効率を評価したところ、2 回の採取によりそれぞれ 96.8%、91.0%と評価された。Pt 触媒を 2 段使用することにより、HT をほぼすべて捕集できるものと推測される。

今後は、採取装置の Pt 触媒カラムを 2 段にした採取装置を用いて環境研との並行採取を実施し、採取方法の妥当性を検証する。

#### 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 <sup>3</sup>H 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) 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 <sup>3</sup>H 濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299(2006)
- 5) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓: 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323(2007)
- 6) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 18 年度放出放射能環境分布調査報告書, 164(平成 19 年)
- 7) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 19 年度放出放射能環境分布調査報告書, 105(平成 20 年)
- 8) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 20 年度放出放射能環境分布調査報告書, 309(平成 21 年)
- 9) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 21 年度放出放射能環境分布調査報告書, 345(平成 22 年)
- 10) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 22 年度排出放射能環境分布調査報告書, 218(平成 23 年)
- 11) 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)
- 12) 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)
- 13) 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)
- 14) 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)
- 15) 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)



## 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 28 年度実施内容)

神 俊雄 工藤達晃 澤田 譲  
鈴木彩加\*<sup>1</sup> 幸 進\*<sup>1</sup> 佐々木耕一\*<sup>1</sup>

### 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 27 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 28 年度の調査計画と今後の進め方

平成 28 年度の調査計画は表 1 に示すとおり、平成 27 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 29 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 28 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 OBT		
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		—	○	○	—
	二又②		—	○	○	—
	戸鎖		—	○	○	—
ハクサイ	出戸	1	○	○	○	○
	千樽		○	○	○	○
キャベツ	横浜町		○	○	○	○
ダイコン	出戸		○	○	○	—
バレイショ	尾駸		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類	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	○	○	—	○

## ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

五十嵐飛鳥 神 俊雄 木村芳伸 安田 浩

### 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」<sup>1)</sup>（以下、「ヨウ素 129 分析法」）の放射化学分析法（ $\beta$ 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」<sup>2)</sup>（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、検出限界値を向上させることが可能であることから<sup>3)</sup>、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。

平成 22 年度の DRC-ICP-MS（パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e）整備以降、表土中 I-129、葉菜・海藻試料中 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 26 年度及び平成 27 年度は、I-127 濃度が既知の標準物質 2 種（NIST SRM1547 peach leaves（以下、「Peach leaves」）及び SRM1573a tomato leaves（以下、「Tomato leaves」））について、水酸化テトラメチルアンモニウム溶液（以下、「TMAH」）抽出と固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離・濃縮を組み合わせた手法により、I-127 担体無添加時のヨウ素回収率を評価した。その結果、Peach leaves については良好な回収率が得られた。なお、Tomato leaves について供試料量を増加させたところ、供試料 1～5 g の範囲では良好な回収率を得られたが、10 g では回収率が低めになった。また、操作ブランクにおいて、既知濃度に対して無視できないレベルの I-127 が検出される傾向が見られた。

平成 28 年度はこれまで確立した条件に従った TMAH 抽出 - 固相抽出ディスクによる分離・濃縮と ICP 質量分析法を用いた場合の操作ブランクの低減化について検討した。

### 2. 調査方法

#### 2.1 試料からのヨウ素抽出操作

100 mL PFA 瓶又は 50 mL PP 遠沈管に、それぞれ濃度 12.5 % の TMAH 溶液を 10 mL 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、試料中ヨウ素を抽出する操作を実施した。

#### 2.2 固相抽出ディスクを用いたヨウ素の捕集・溶離操作

抽出溶液を希釈し遠心分離した後、孔径 1.0  $\mu\text{m}$  の PTFE 製メンブランフィルターを用いて吸引ろ過した。還元剤として 10 % 亜硫酸ナトリウム溶液を加え、固相抽出ディス

ク (47 mmφ Empore 2252-Anion、3M) に通液しヨウ素をディスクに保持させ、1 M 硝酸溶液 15 mL でヨウ素を溶出させた。

### 2.3 測定用試料の調製

固相抽出ディスク溶出液に 25 % TMAH 溶液 6 mL を加えアルカリ性とした後、次亜塩素酸ナトリウム溶液 0.5 mL 及び内標準元素としてロジウム 1 µg を加え、超純水で 100 mL に定容し、I-127 測定用試料溶液とした。

### 2.4 測定

作製した溶液について、DRC-ICP-MS(パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e) により I-127 の定量を行った。ICP 質量分析装置の測定条件を表 1 に示す。

表 1 I-127 測定条件

項 目	設 定 値
ネブライザーガス流量	1.05 ~ 1.06 L/min
補助ガス流量	0.75 L/min
プラズマガス流量	17 L/min
ICP RF 出力	1500 W
DRC ガス流量	-
積分時間	1 秒
繰返し回数	1 回
測定回数	3 回

## 3 . 調査結果及び考察

### 3.1 平成 27 年度報告値における操作ブランク値の影響について

平成 27 年度報の報告値は、操作ブランク値の補正を実施していないものであったことから、抽出・分離濃縮・測定の操作を同時進行で実施したセット(以下、「分析ロット」)ごとの操作ブランク値を用いて測定値の補正を実施した場合の回収率を確認した。

結果は表 2 のとおりであった。

操作ブランク値を差し引くことにより、回収率は平成 27 年度の報告値に対してやや低下したが、供試量 1 g の場合、参考値に対して 90 ~ 106 % であり、操作ブランク値による補正を実施しても、本分析条件によって良好な回収率を得られることを確認した。

表 2 操作ブランク値を補正した場合の回収率の変化

試料名	供試料 (g)	I-127 濃度 (ng/mL)	操作ブランク 溶液の I-127 濃度 (ng/mL)	回収率 (%)	操作ブランク値 で補正した回収 率 (%)	分析ロット
Tomato leaves	1.00	8.69	0.34	102	96	
	1.00	8.23	0.54	97	90	
	1.00	9.26	0.25	109	106	

抽出・分離濃縮・測定の操作を同時進行で実施したセット

### 3.2 抽出用容器の材質による操作ブランク値の確認

平成 26 年度及び平成 27 年度に検討した結果において、操作ブランク値は 0.044 ~ 0.539 ng/mL (測定溶液 100 mL として測定した場合の報告値) の範囲であった。平成 26、27 年度の検討においては、抽出用容器としていずれも 100 mL PFA 瓶を用いている。分析に用いる容器や器具類は 20% NaOH 溶液中で煮沸洗浄した後に超純水で洗浄して使用した。この処理を実施しても操作ブランク値が有意に検出されており、洗浄しきれない汚染等があるのではないかと考えられた。そのため、抽出に用いる 100 mL PFA 瓶は再利用しないことが望ましいと考えられたが、コスト面を考慮すると適当ではない。そのため、安価な PP 製の容器を用いて抽出操作を行い、その操作ブランク値を確認することとした。また、従来の PFA 瓶による操作も並行して実施した。

前年度までに確立した分析から測定までのフローを図 1 に示す。

今年度の検討においては、操作ブランク値の確認及び低減を目的として、図 1 の操作に以下の変更を加えている。

- ・ 抽出容器は 100 mL PFA 瓶又は 50 mL PP 遠沈管を用いた
- ・ 標準試料は用いず、12.5 % TMAH 10 mL のみを加えて抽出操作を実施した
- ・ 抽出操作後の遠心分離操作を省略した
- ・ 試料に接触する素材を減らすため、回転子を用いず、試験管ミキサーを用いて攪拌した

測定結果を表 3 に示す。

いずれの容器においても I-127 が有意に検出された。この分析操作によって標準試料 (Tomato leaves) 1 g を分析した際の測定溶液 100 mL 中の濃度は約 8 ng/mL になるため、今回得られた操作ブランク値は測定値に影響を与えるレベルと考えられる。平成 27 年度の報告における操作ブランク値は表 2 に示したとおり 0.25 ~ 0.54 ng/mL となっており、分析ロットによってやや大きく変動することが確認された。なお、本検討ではろ過・固相ディスク抽出操作の際に、王水で加熱洗浄したガラス製のろ過器具を用いていたが、このろ過器具に起因する汚染の可能性も考えられた。

表 3 操作ブランク試料中 I-127 濃度

抽出容器	I-127 濃度 (ng/mL)	I-127 濃度範囲 (ng/mL)	分析ロット
100 mL PFA 瓶	0.63 ± 0.14 (n=5)	0.40 ~ 0.74	
	1.37 ± 0.26 (n=3)	1.20 ~ 1.68	
50 mL PP 遠沈管	0.66 ± 0.075 (n=4)	0.56 ~ 0.74	
	1.20, 1.16	-	

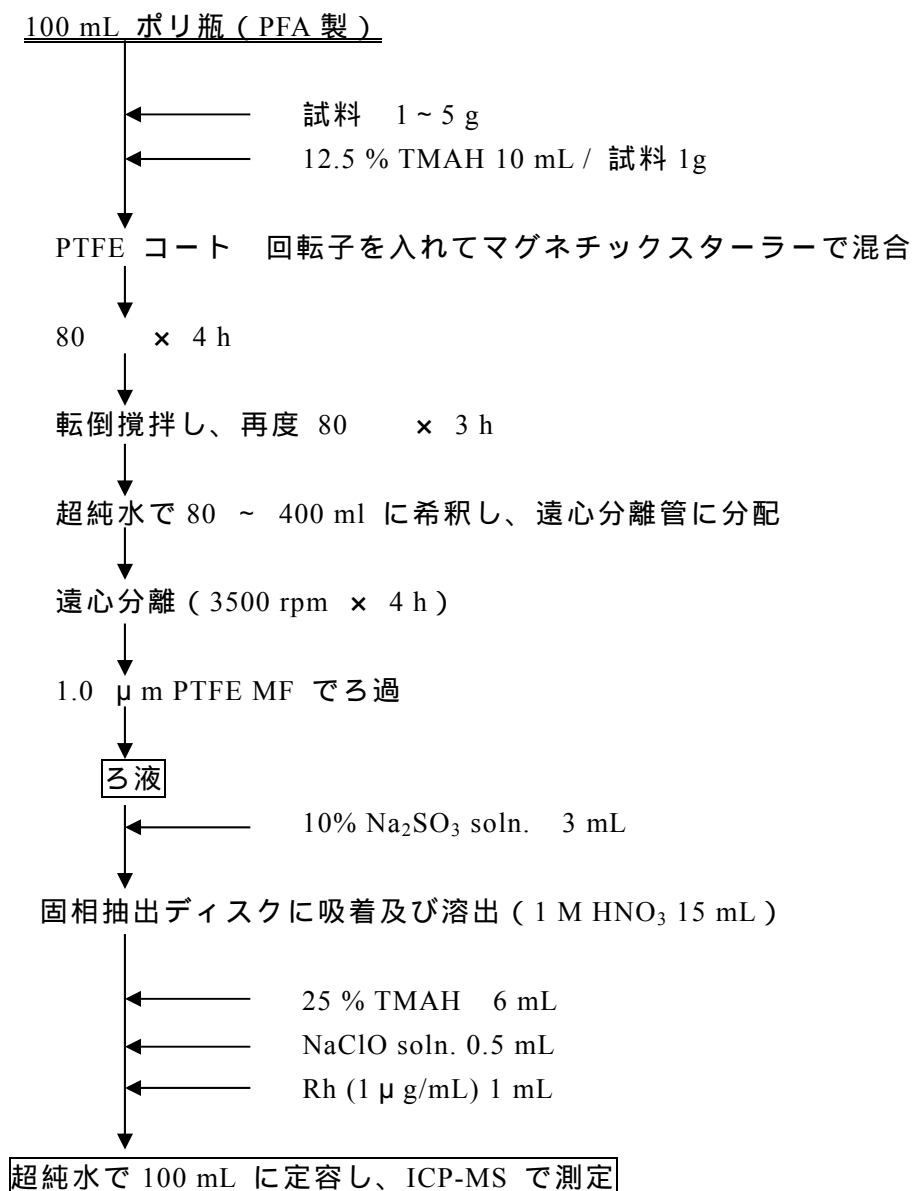


図 1 分析フロー図 (平成 27 年度)

### 3.3 洗浄操作を同時に行った分析ロットごとの操作ブランク値の確認

操作ブランク値が分析ロットごとに変動することが確認されたため、容器の洗浄（王水で加熱洗浄後、TMAH で加熱洗浄し、使用前に純水で洗浄）についても同時進行で実施したセットを用いて、3.2 と同様の操作により、操作ブランク値を確認した。なお、前段の検討において、ガラス製ろ過器具からの汚染の可能性も考えられたため、試料溶液のろ過及び固相ディスクの抽出操作にはポリサルホン製のろ過器具を用いた。PFA 製の容器は未使用及び使用済のものを、PP 製の容器は未使用のものを同様に洗浄して用いた。

測定結果を表 4 に示す。



表 4 操作ブランク試料中 I-127 濃度

抽出容器	I-127 濃度 ( ng/mL )	I-127 濃度範囲 ( ng/mL )	分析ロット
100 mL PFA 瓶	0.82 ± 0.18 (n=3)	0.71 ~ 1.03	
	1.23 ± 0.082 (n=3)	1.14 ~ 1.30	
50 mL PP 遠沈管	0.29 ± 0.041 (n=3)	0.25 ~ 0.32	
	0.49 ± 0.091 (n=3)	0.40 ~ 0.58	
	0.27 , 0.26	-	

同じ PFA 製の容器を用いた場合でも、分析ロットによって操作ブランク値が異なる結果が得られた。また、PFA 製の容器よりも PP 製の容器を用いた場合の方が、操作ブランク値は低めになる傾向が見られた。

#### 4 . まとめ

これまでの検討により、以下のことが明らかとなった。

- ・本分析操作において、抽出容器の素材を変えても操作ブランク値を無視できるレベルまで低減化することは難しく、また分析ロットによって変動することがわかった。
- ・同一分析ロットの操作ブランク値は収束するため、操作ごとに定量値を操作ブランクで補正することで妥当な回収率が得られると考えられる。
- ・抽出容器の素材によって操作ブランク値は異なる傾向を示した。PFA 製の容器を洗浄して用いたもの（未使用・再利用混合）より、PP 製の未使用のものを洗浄して用いたものの方が操作ブランク値は低めになる傾向があった。

#### 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 <sup>129</sup>I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)



編 集 委 員

安田 浩（委員長） 松尾英輔（副委員長） 佐々木 守 澤田 讓  
五十嵐飛鳥 神 俊雄 工藤俊明

青森県原子力センター所報 第 11 号 (2016)

平成 29 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

