

青森県原子力センター所報

第12号

平成29年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.12 (2017)

青森県原子力センター

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

は じ め に

青森県では、六ヶ所村に日本原燃(株)の原子燃料サイクル施設、東通村に東北電力(株)の東通原子力発電所 1 号機、むつ市にリサイクル燃料貯蔵(株)のリサイクル燃料備蓄センター、及び大間町に電源開発(株)の大間原子力発電所の立地が進められており、現在、国において新規制基準に係る適合性審査が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 7 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。平成 28 年度から、緊急時における防護措置実施の判断のため、UPZ 圏内の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、今年度で 39 地点に設置を完了しています。

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

所報第 12 号のとりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員をはじめ多くの専門家の方々からご意見・ご指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。今後とも、職員一人一人が研鑽を積みながら一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、ご高覧のうえ、忌憚のないご意見、ご教示を賜りますようお願い申し上げます。

平成 30 年 3 月

青森県原子力センター

所 長 竹 ヶ 原 仁

目 次

I 技術報告

1. 蛍光ガラス線量計の感度低下について・・・・・・・・・・・・・・・・ 3
阿部真之 鈴木将文 佐々木耕一
2. 環境試料中の Cs-137 濃度上昇に係る原因調査事例・・・・・・・・ 9
工藤 翔 工藤達晃 吹越恵里子 木村芳伸
3. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 15
ー平成 28 年度調査結果ー
大山 勝 神 俊雄 木村芳伸
赤石幼菜 沼山 聡 佐々木耕一

II 平成 29 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・・・・・・・・ 37
神 俊雄
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・ 51
(平成 29 年度実施内容)
大山 勝 神 俊雄 木村芳伸
赤石幼菜 沼山 聡 佐々木耕一
3. ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討・・・・・・・・ 53
安積 潔 神 俊雄 木村芳伸 竹ヶ原 仁
4. 表土中ヨウ素-129 分布調査・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 61
武藤逸紀

原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

技 術 報 告

蛍光ガラス線量計の感度低下について

阿部真之 鈴木将文 佐々木耕一*1

1. はじめに

青森県では、原子燃料サイクル施設、東通原子力発電所及びリサイクル燃料備蓄センターの環境放射線モニタリングにおいて、蛍光ガラス線量計（以下、「RPLD」という。）による3ヵ月間の積算線量を県内41地点で測定している。これまで、平成14年度に購入したRPLD（以下、「H14RPLD」という。）を用いて平成15年度から平成23年度まで測定を行った。また、平成24年度からは平成16年度に購入しデシケータ内で保管していたRPLD（以下、「H16RPLD」という。）を用いて平成28年度まで測定を行い、平成29年度からは平成27年度に購入したRPLD（以下、「H27RPLD」という。）を用いて測定を行った。これまでの測定において、平成23年度第1四半期の測定結果で低めの傾向が見られ、感度試験の結果から、感度低下が確認され、さらに環境用RPLDと校正用RPLDの感度に差が見られたことから、本報告ではこれまでの感度試験結果について報告する。また、湿気はRPLDの測定値に影響を及ぼすとされていることから、RPLDの梱包材について検討したので、これらの結果も踏まえた今後の対応についても報告する。

2. 測定方法

2.1 積算線量測定方法

RPLDには、環境に91日間配置する環境用RPLDと、測定値を算出するための校正式を作成するための校正用RPLDがある。環境用RPLDは偶数四半期用と奇数四半期用に分けて運用し、校正用RPLDは測定の際に校正式を作成するために線量照射し、照射値とリーダ読取値から校正式を算出している。また、環境用及び校正用RPLDは使用しない間デシケータ内で保管している。環境用RPLDはアニールして積算値をリセットし、環境に配置する。そして、3ヵ月後に回収し、リーダで積算値を読み取る。それとは別の校正用RPLDにCs-137線源を用いて4点（約20 μ Gy、約40 μ Gy、約90 μ Gy、約170 μ Gy）の線量照射を行い、照射値とリーダ読取値から校正式を作成し、これに環境用RPLDの読取値を当てはめて積算線量の測定値を算出する。

2.2 感度試験

標準線源であるCs-137線源を用いてRPLDに約100 μ Gy線量照射し、リーダ読取値を照射値で除することにより感度を算出する。感度試験は、通常年1回全RPLDに対して実施することとしており、以下にあてはまるRPLDについては棄却している。

1) 同一ロットの全RPLDについて

全RPLDの感度の平均値に対し5%以上のずれが生じたもの

*1：日本原燃株式会社

2) 環境用 RPLD について

校正用 RPLD の感度の平均値に対し 5 %以上のずれが生じたもの

2.3 感度補正係数

感度試験の結果、環境用 RPLD と校正用 RPLD の感度が異なる場合は、各環境用 RPLD について以下の式により感度補正係数を算出し、各環境用 RPLD のリーダ読取値をその RPLD の感度補正係数で除することで感度の違いを補正し、補正後のリーダ読取値を校正式に当てはめて積算線量の測定値を求める。

$$\text{感度補正係数} = \frac{\text{各環境用 RPLD の感度}}{\text{校正用 RPLD の感度の平均値}}$$

3. 調査結果

3.1 感度試験結果

3.1.1 H14RPLD について

図 1 のとおり、環境配置前は、環境用及び校正用 RPLD の感度に大きな差はなく、どちらも 1 付近の値であった。

環境配置後は、環境用 RPLD の感度が校正用 RPLD の感度に比べて低く、特に平成 23 年度からは感度補正係数を算出し、測定値を補正した。

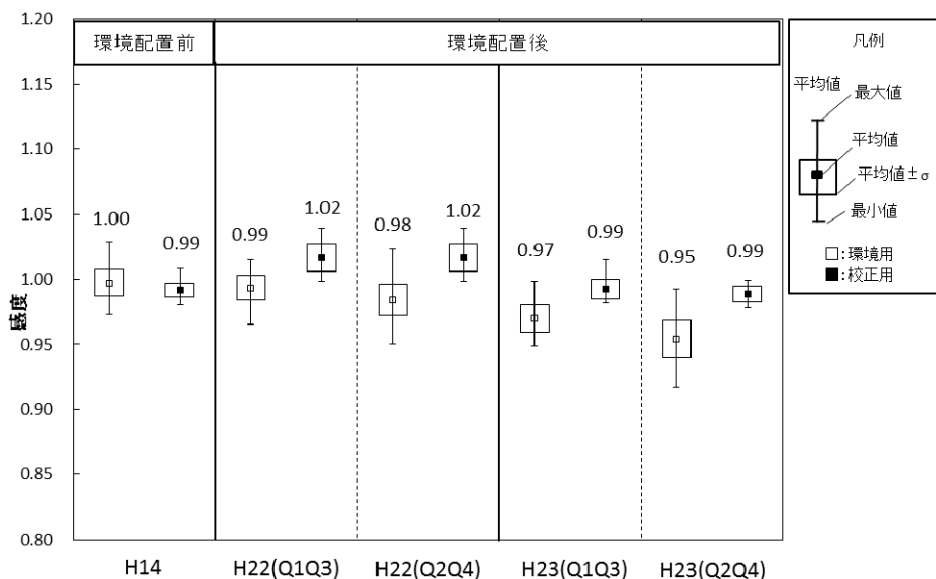


図 1 H14RPLD の感度推移

3.1.2 H16RPLD について

図 2 のとおり、環境配置前は、環境用 RPLD 及び校正用 RPLD の感度に大きな差はなく、どちらも 1 付近の値であった。

環境配置後となる平成 23 年度以降、両方の RPLD の感度は年々低下し、特に平成 25 年度以降は H14RPLD と同様、環境用 RPLD と校正用 RPLD の感度の差も大きくなった。そのため、平成 25 年度から平成 28 年度までは感度補正係数による測定値の補正を実施した。

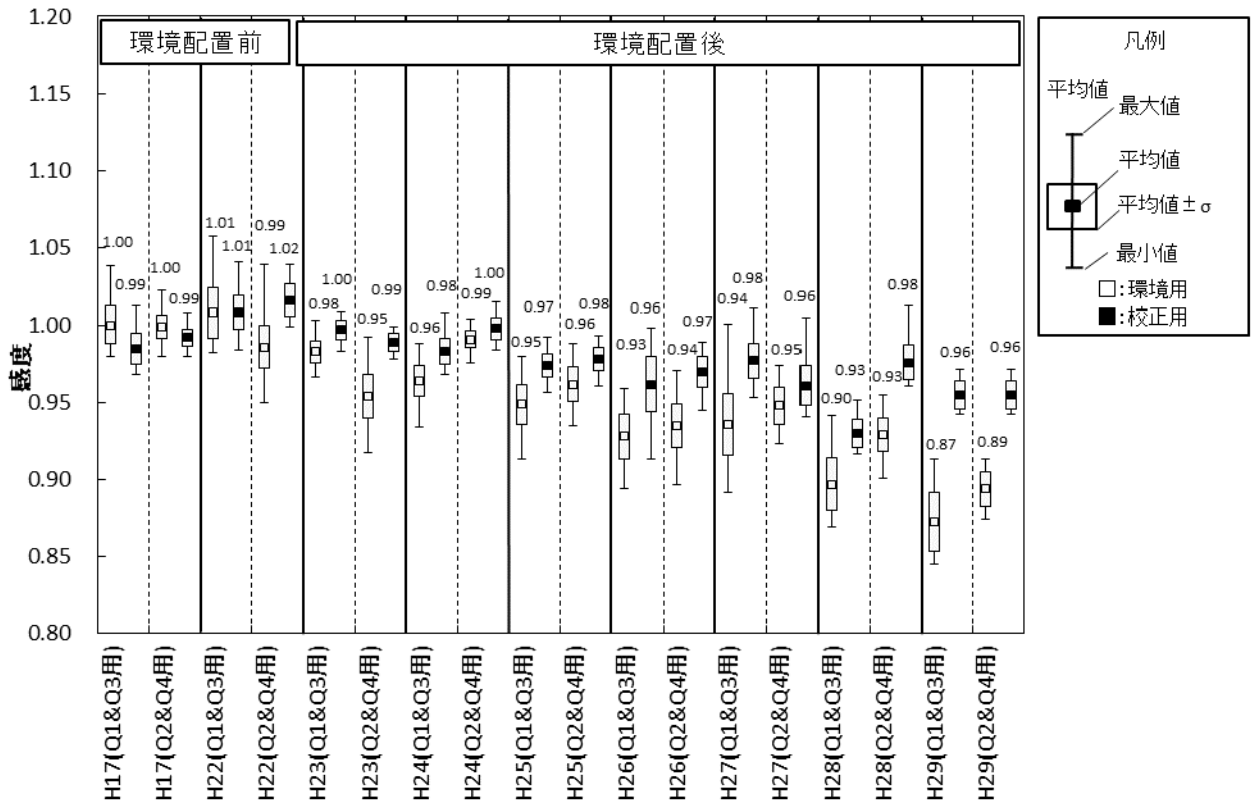


図2 H16RPLDの感度推移

3.1.3 H27RPLDについて

図3のとおり、環境用RPLD及び校正用RPLDの感度に大きな差は見られていない。

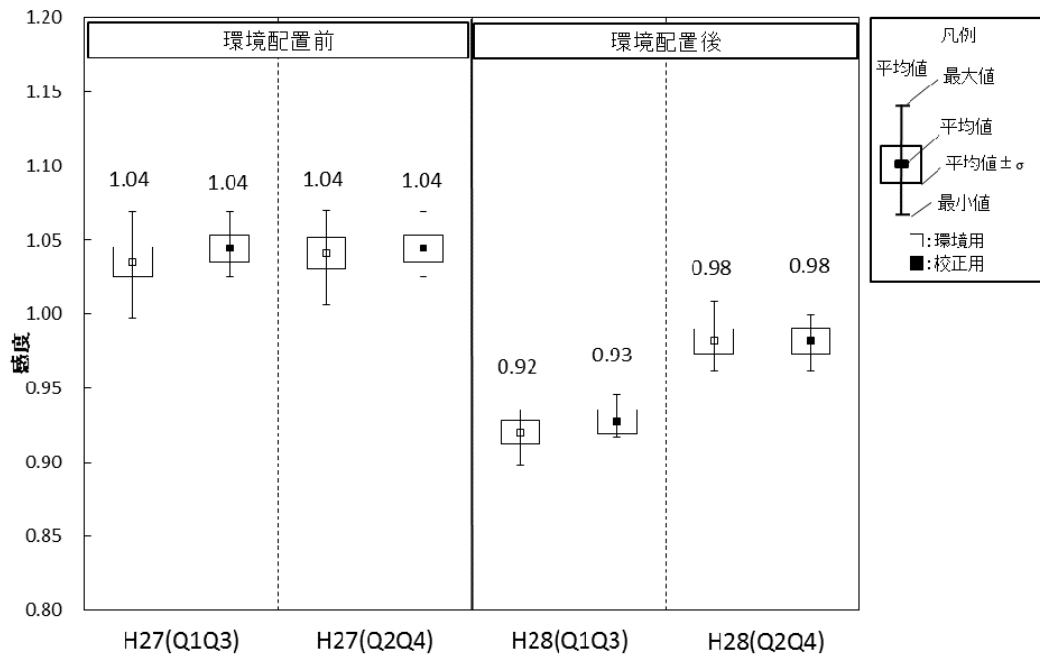


図3 H27RPLDの感度推移

3.1.4 日本原燃(株)のRPLDについて

図4のとおり、日本原燃(株)で使用しているRPLDについても、環境配置後、感度が徐々に低下する傾向が認められた。なお、コントロール用RPLDとは、空調管理された施設内で鉛5cm厚の容器に収納したRPLDのことで、県の校正用RPLDと同等の保管状態と考えられる。

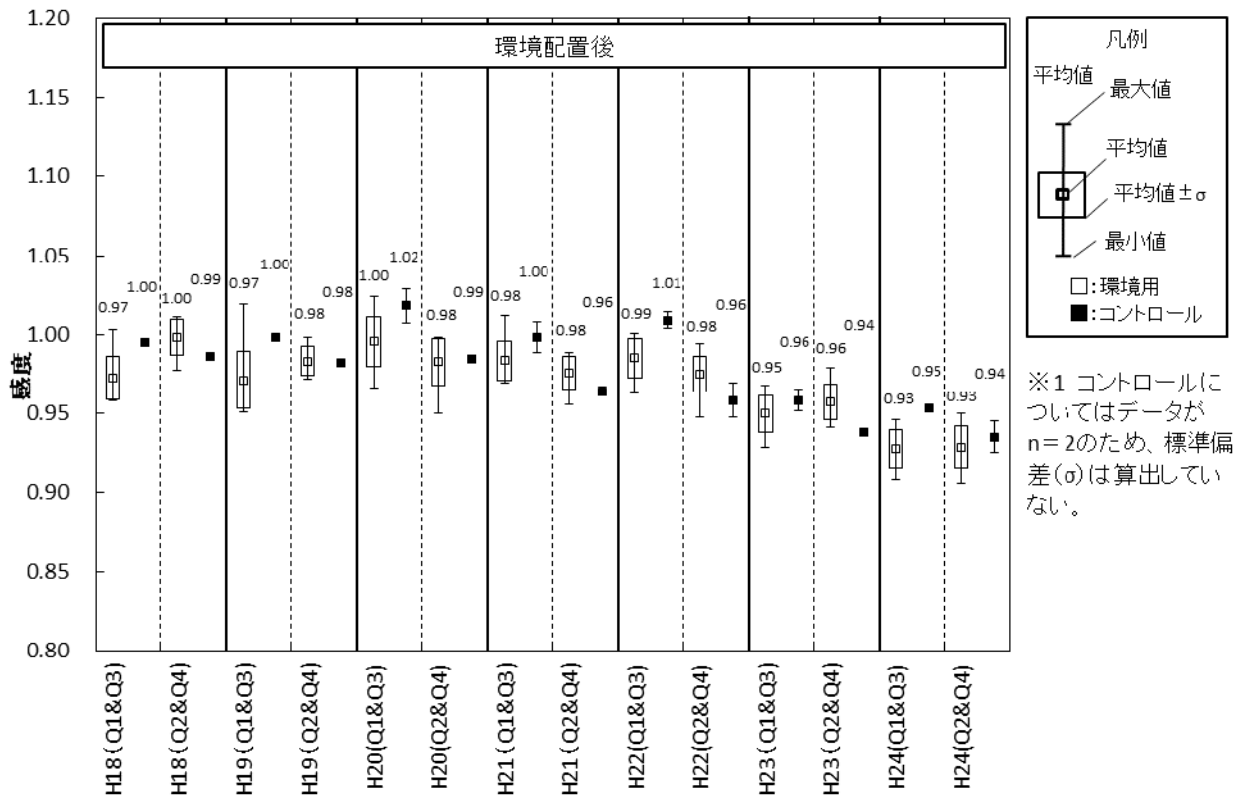


図4 日本原燃(株)RPLDの感度推移

3.2 梱包材の検討

RPLDは湿気の影響により感度に変化し、測定値に影響を及ぼすとされている。他の自治体等ではより防湿性の高いアルミ袋により梱包しているところもあるため、本県でもアルミ袋による梱包を検討し、ポリチューブとの違いについて検討した。

3.2.1 梱包材の違いによる防湿性の検討

ポリチューブとアルミ袋の防湿性の違いを検討するため、それぞれの袋にシリカゲルを封入し、約3ヵ月間同じ収納箱に配置した後、シリカゲルの環境配置前後の重量から吸水量を求め比較した。その結果、表1のとおり、アルミ袋の方がポリチューブに比べ吸水量が低いという結果が得られ、特に湿度の高い夏場においては100倍程度の差が見られた。このことから、アルミ袋の防湿性が高いことが明らかになった。

表1 ポリチューブとアルミ袋の吸水量

設置期間	吸水量 (g)	
	ポリチューブ	アルミ袋
1回目 平成28年4月8日～7月6日	0.3002	0.0028
2回目 平成28年7月8日～10月5日	0.8782	0.0078
3回目 平成28年10月7日～平成29年1月4日	0.1532	0.0040
4回目 平成29年1月6日～4月5日	0.1072	0.0040

3.2.2 梱包材の違いによる測定値への影響

ポリチューブとアルミ袋による梱包の測定値への影響の違いを検討するため、各梱包材でそれぞれ10個のRPLDを同じ収納箱に四半期毎に89日間収納したときの測定結果を図5に示す。

全期間を通して、ポリチューブとアルミ袋でそれぞれ梱包されたRPLDの測定値は同程度であり、梱包方法の違いによる測定値の違いは見られなかった。

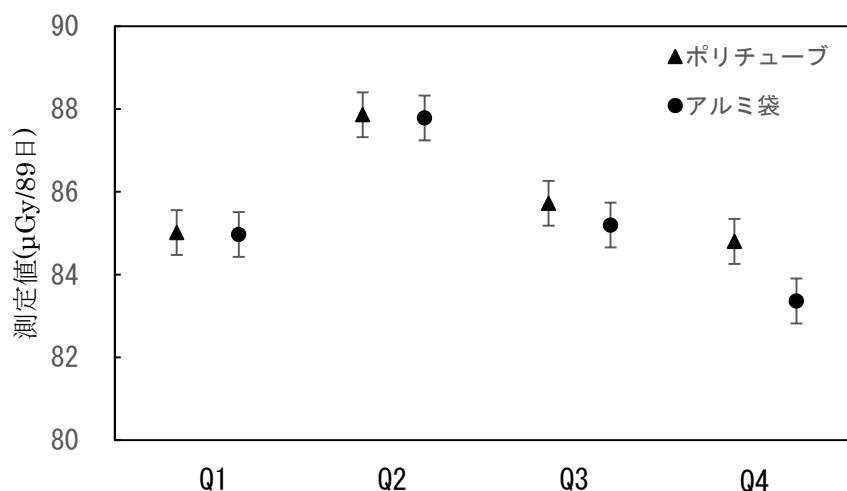


図5 ポリチューブ梱包とアルミ袋梱包の測定値の比較

4. 考察

4.1 感度低下の原因の検討

これまでの感度試験の結果から、長期間の使用により環境用及び校正用RPLDで感度が低下し、青森県ではさらに環境用と校正用の感度低下に差が見られることが確認された。このことについてRPLD製造業者（以下、「メーカー」という。）に問い合わせたところ、メーカーでは感度については出荷前に当時のJISに基づき相対指示誤差が±10%以内であることを確認しているとのことであり、時間経過による感度変化については検討していないとのことであった。

感度低下の原因について、文部科学省が策定する「蛍光ガラス線量計を用いた環境γ線量測定法」¹⁾によると、RPLDは高温多湿にさらされると表面が白曇りを起こしたり、アニールによってガラス表面の付着物が焼き付いたりする場合があります、これらが測定値に影響を及ぼす可能性があるとしてされている。なお、当該事象についてメーカーからはガラス表面の劣化との見解を得ている。

5. 今後の対応

上記の結果を踏まえ、今後は、RPLD 測定の基本的な対応方針を以下のとおりとする。

(1)RPLD の使用期間

H16RPLD における環境配置後の環境用と校正用 RPLD の感度低下から、使用期間については 5 年とし、購入時に感度試験を行い、購入の翌年から並行測定に 1 年、モニタリングに 4 年使用する。

(2)RPLD の梱包材

本県では、これまで RPLD をポリチューブに梱包し環境配置していたが、今後はより防湿性の高いアルミ袋に梱包する。

(3)RPLD 測定

(1)及び(2)を踏まえて、測定についてはリーダ及び RPLD の校正が確実に行われていれば、特別な補正は行わない。

(4)RPLD の感度試験

これまでどおり、感度試験は年 1 回、全 RPLD に対して実施し、感度を把握する。

また、H16RPLD について、今後も環境に配置し感度の推移を追跡していくこととする。

6. まとめ

青森県及び日本原燃(株)の RPLD の感度試験結果から、年数の経過につれて感度が低下し、青森県ではさらに環境用 RPLD と校正用 RPLD の感度に差が出てくることが確認された。このため、これまでは RPLD を 10 年程度で更新していたが、今後は使用期間を 5 年とし、感度が低下する前に更新することとした。また、湿気の影響を低くするため、RPLD の梱包材をポリチューブからアルミ袋に変更した。これらの対応により、今後測定値の補正は行わないこととした。

文 献

- 1) 文部科学省編：「蛍光ガラス線量計を用いた環境γ線量測定法」（平成 14 年）

環境試料中の Cs-137 濃度上昇に係る原因調査事例

工藤 翔 工藤達晃 吹越恵里子 木村芳伸

1. はじめに

青森県では、環境放射線モニタリング計画に基づき、環境試料中の放射能調査を実施している。測定結果は過去の測定値等と比較し妥当性を確認しており、測定値が過去の測定値の範囲を外れた際には、試料採取、前処理、分析・測定の状況について確認するとともに、施設の放出状況等も考慮し施設影響の有無を判断している。

今回、平成29年度第1四半期に採取した松葉2試料においてCs-137濃度の上昇が見られ、うち1試料については過去の測定値を上回ったことから、その原因について調査したので報告する。

2. 事例

2.1 試料

対象の試料は、むつ市川内町（以下、川内町とする）及び東通村小田野沢（以下、小田野沢とする）で、平成29年5月11日に採取した松葉である。採取地点を図1に示す。



図1 川内町及び小田野沢の採取地点

2.2 採取

松葉の2年生葉を採取し、枯れた葉は取り除いた。採取量は川内町4.80 kg、小田野沢6.30 kgであった。

2.3 前処理

試料を105℃で24時間以上乾燥させた後に450℃で24時間灰化し、0.35 mmのふるいを通したものを測定試料とした。

2.4 測定

文部科学省の放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」（平成 4 年改訂）に基づき実施した。

専用の容器（円筒形、高さ 62 mm、底面積 21 cm²、スチロール製）に充填し、ゲルマニウム半導体検出器により γ 線スペクトルを測定した。測定時間は 80,000 秒とした。

2.5 測定結果

測定結果を表 1 に、Cs-137 のトレンドを図 2 に示す。川内町の松葉については、今回採取した試料の Cs-137 濃度が大きく上昇した。小田野沢の松葉については、平成 23 年に発生した東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所事故（以下、1F 事故とする）の影響により、平成 23 年 5 月採取分の試料の Cs-137 濃度が大きく上昇したもののその後減少し、近年は 1F 事故前の過去の測定値の範囲（不検出～0.070 Bq/kg 生）に戻っていたが、今回採取した試料の Cs-137 濃度はわずかに上昇し、1F 事故前の過去の測定値の範囲を上回った。Cs-134 はどちらの試料からも検出されなかった。

表 1 松葉 2 試料における放射性 Cs の測定結果

採取地点	測定値(Bq/kg 生)	
	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
川内町	1.08 ± 0.01	不検出 (-0.000782 ± 0.0057)
小田野沢	0.179 ± 0.006	不検出 (0.000964 ± 0.0044)

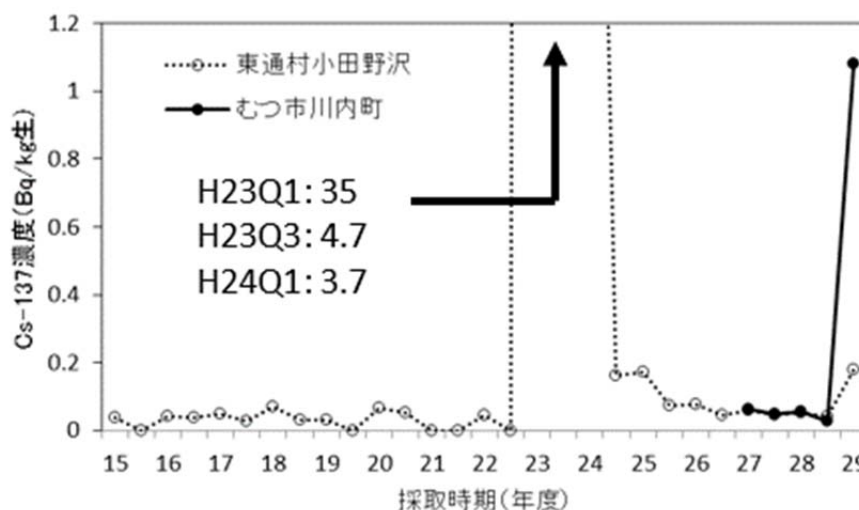


図 2 松葉 2 試料における Cs-137 のトレンド

3. 検討

3.1 1F 事故影響の可能性

1F 事故発生時の Cs-134 と Cs-137 の放出比はほぼ 1:1 とされている¹⁾。放射性 Cs は半減期 (Cs-137 は約 30 年、Cs-134 は約 2 年) に従って減衰するため、1F 事故からの経過年数をもとに減衰補正

することで、1F事故によって放出された放射性Csの現在の濃度比を求めることができる。

表2に、今回採取した試料中のCs-137濃度の上昇が1F事故の影響と仮定した時のCs-134濃度の計算値を示す。平成29年5月11日時点における1F事故由来のCs-134/Cs-137比は0.14である。どちらの地点のCs-134計算値についても、測定に用いたゲルマニウム半導体検出器により検出可能なレベルのCs-134濃度であるが、表1に示したように、実際にはCs-134は検出されなかった。このことから、今回のCs-137測定値の濃度上昇は1F事故の影響によるものではないと考えられた。

表2 Cs-137測定値から計算したCs-134濃度

採取地点	¹³⁴ Cs 計算値 (Bq/kg 生)
川内町	0.156
小田野沢	0.0258

3.2 試料採取の状況（採取場所の違い）

図3に川内町の試料採取地点図を示す。川内町の松は広範囲に分布しているため、今回の採取した場所の中に高濃度のCs-137を含む松が存在していた可能性が考えられる。そこで、図3に示すとおり、採取場所を8区画に分けて再度採取を行い、それぞれについて分析・測定を行った。測定結果を表3に示す。Cs-137は不検出から0.164 Bq/kg生まで分布を示したが、特異的に濃度が高い区画がなかったことから、採取場所の違いが今回のCs-137測定値の濃度上昇を引き起こしたのではないと考えられた。

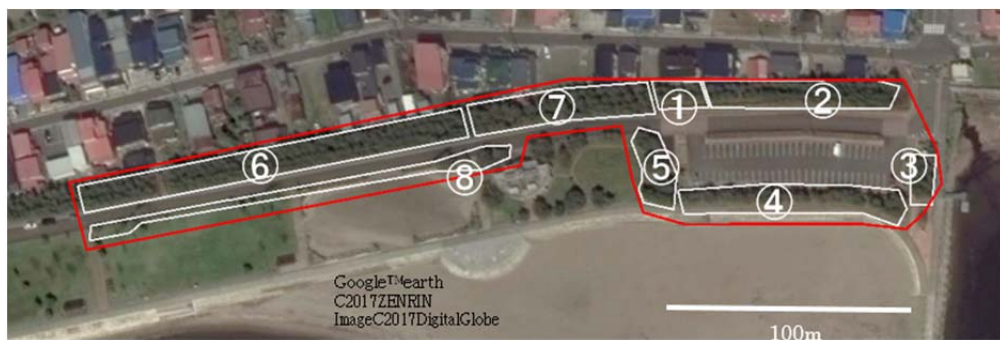


図3 松葉（比較対照（むつ市川内町））の区画別採取場所

表3 区画ごとの松葉の測定結果

核種	区画①	区画②	区画③	区画④	区画⑤	区画⑥	区画⑦	区画⑧	単位
¹³⁴ Cs	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	不検出	Bq/kg 生
¹³⁷ Cs	0.0705 ±0.0098	不検出	0.0409 ±0.0089	0.0695 ±0.010	0.0647 ±0.017	0.164 ±0.009	0.0319 ±0.0078	0.0597 ±0.012	

3.3 試料採取の状況（2年生葉と3年生葉）

松葉は葉齢が進むにつれて付着物が増加し、Cs-137濃度が上昇する可能性がある。本県の試料採取マニュアルにおいては、松葉は2年生葉を採取することとしているが、3年生葉が紛れ込んだことによりCs-137濃度が上昇した可能性が考えられた。そのため、図2に示す8区画の内、区画①+②と区画④において3年生葉のみ採取し、分析した。表4に結果を示す。Cs-137は0.252 Bq/kg生と0.0639 Bq/kg生で検出されたが、表1に示した当初の測定値である1.08 Bq/kg生と比較して濃度は低かったため、採取した葉齢の違いが今回のCs-137測定値の濃度上昇を引き起こしたものではないと考えられた。

表4 3年生葉のみ採取した松葉の測定結果

核種	浜側（区画④）	道路側（区画①+②）	単位
¹³⁴ Cs	不検出	不検出	Bq/kg 生
¹³⁷ Cs	0.252±0.005	0.0639±0.011	

3.4 前処理、分析測定状況

前処理状況について確認したところ、4月の前処理作業において、所内勉強会でのデータ取得を目的としたベルギー産ブルーベリー加工品（ブルーベリー試料）の前処理を行っており、この試料のCs-137濃度が6.17 Bq/g灰と、モニタリング試料（1F事故影響の見られる試料を含む）と比較して高いことを確認した。また、ブルーベリー試料は高濃度試料の分析用に設けた専用室であるセミホット室で前処理作業を行っていたが、乾燥及び灰化に使用した磁製皿5枚をセミホット室から持ち出し、洗浄したのち、4枚を川内町の松葉、1枚を小田野沢の松葉の前処理に使用していたことが判明した。

磁製皿から松葉へのCs-137の混入の可能性が考えられたため、磁製皿1枚あたりのCs-137の松葉試料への混入量が等しいと仮定し、下記の式により、川内町と小田野沢の松葉への混入量とその比を計算した。

$$\text{混入量 (Bq)} = (\text{混入試料のCs-137測定結果 (Bq/kg生)} - \text{松葉由来のCs-137の測定結果}^* (\text{Bq/kg生})) \times \text{松葉前処理量 (kg生)}$$

※松葉由来のCs-137（バックグラウンド値）として、5月11日以降に再度採取した松葉のCs-137の測定値を用いた。表5に、川内町及び小田野沢において再採取した各試料のCs-137濃度を示す。どちらもこれまでの測定値と比較して同程度の値であったため、バックグラウンド値として妥当であると考えられた。

計算の結果、試料への混入量は、川内町は5.03±0.056 Bq、小田野沢は0.97±0.045 Bqとなり、その比は(5.18±0.25) : 1で、それぞれの前処理に使用した磁製皿の枚数比4:1に近い値となった。

なお、ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトルの分析測定操作については、本県で作成しているマニュアルどおりに実施していることを確認した。

表5 再採取した松葉の測定結果

採取地点	採取日	¹³⁷ Cs 測定値 (Bq/kg 生)
川内町	6月14日	0.0306 ± 0.0062
小田野沢	8月7日	0.0195 ± 0.0044

4 まとめ

以上のことから、今回採取した松葉試料中のCs-137 濃度の上昇は試料そのものに由来するものではなく、ブルーベリー試料の前処理後、洗浄しても除去しきれなかったCs-137 が松葉試料の前処理の段階で混入したことによるものと考えられた。

5 測定値の取扱い

Cs-137 の混入が確認された松葉（川内町、小田野沢）については正しい分析測定が行われなかったと考えられることから、表5に示す再採取分の測定値をモニタリング結果として報告することとした。

なお、磁製皿の使用履歴から、ブルーベリー試料の前処理に使用した磁製皿が今回の松葉以外の前処理に使用されていないことを確認している。

6 今後の対策

本事例は、放射能濃度の高い試料の前処理に使用した磁製皿を、モニタリング試料の前処理に共用したのが原因であると考えられる。そのため、濃度の高い試料の前処理に使用した磁製皿などの器具をモニタリング試料の前処理などに用いないこととして、職員に周知し、マニュアルを策定することとした。

文 献

1) Isotope News、2012年5月号、No.697、「原子力事故により放出された放射性セシウムの¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比について」

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年度調査結果—

大山 勝 神 俊雄 木村芳伸
赤石幼菜*¹ 沼山 聡*¹ 佐々木耕一*¹

1. はじめに

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

本報告は平成28年度の調査結果についてとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

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

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

2.2 測定方法

(1) トリチウム

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

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

(2)C-14

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

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

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

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 28 年度）

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

※ 魚類はヒラメ及びカレイ。

TFWT：組織自由水トリチウム

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



図 1 調査地点図

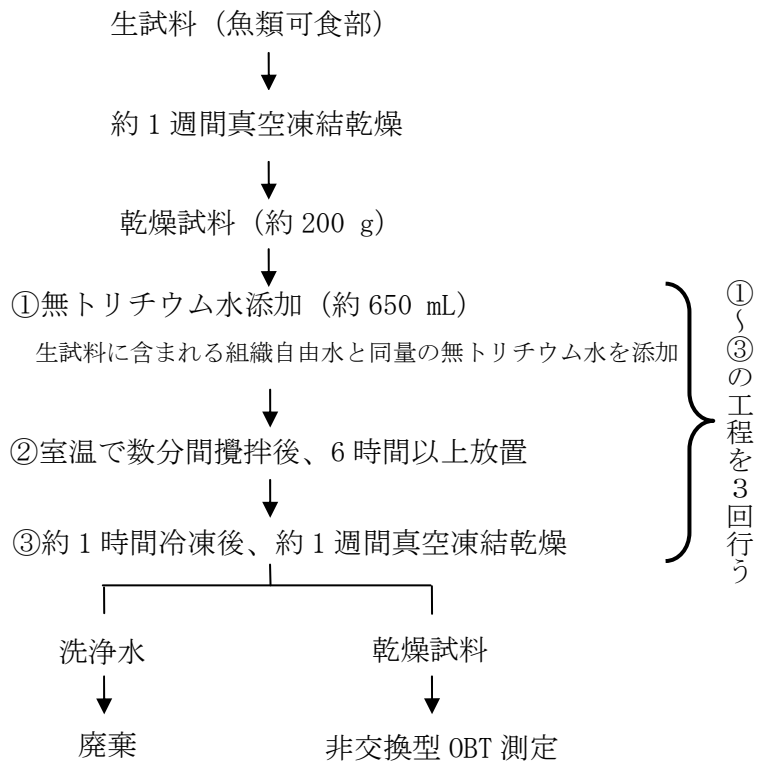


図 2 非交換型 OBT の分析工程

(3) I-129

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

(4) I-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」⁵⁾ に準拠し、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29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。

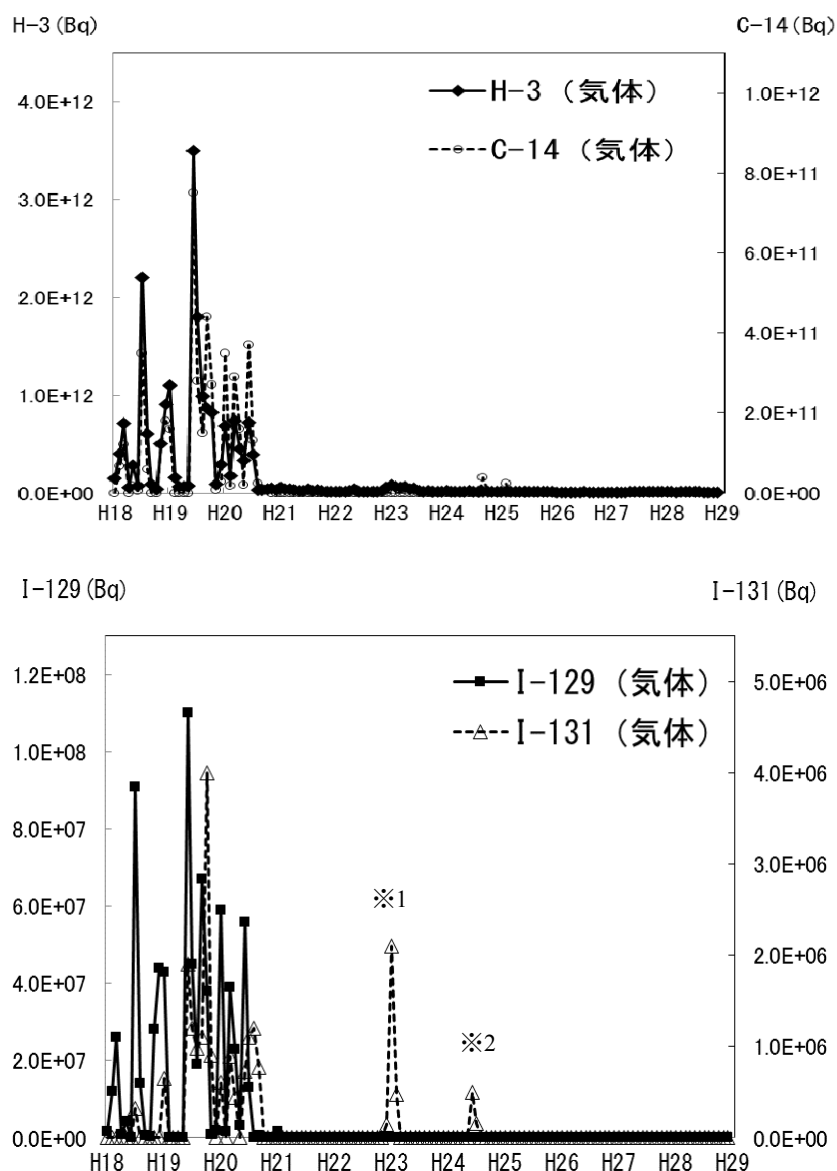


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成29年3月)

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

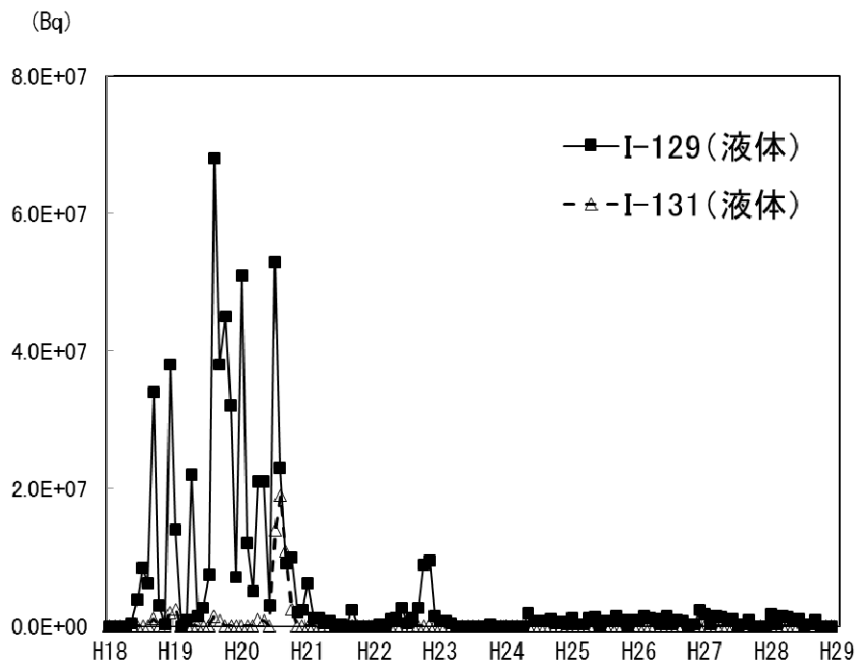
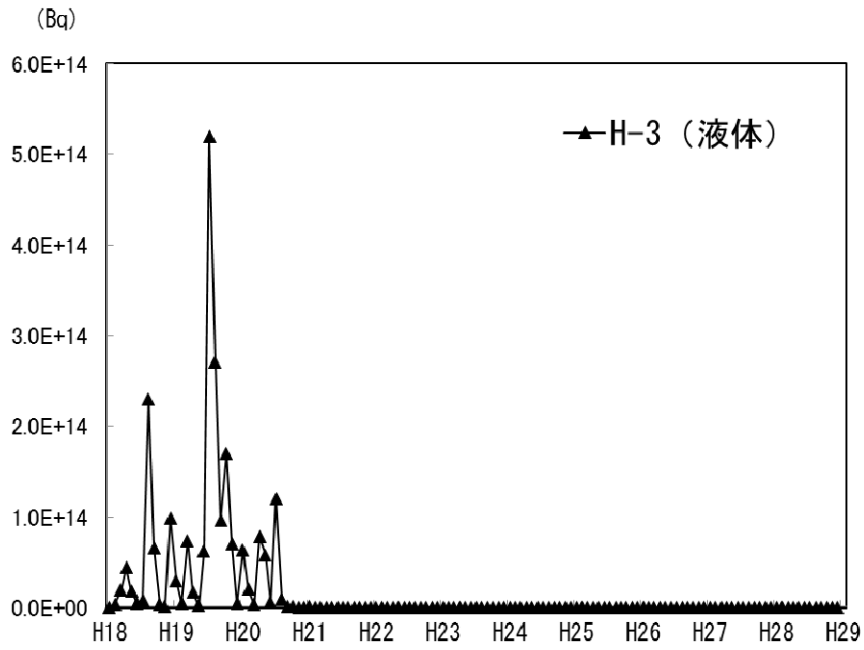


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～平成29年3月)

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～0.34 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.54 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.32 Bq/Lであった。牛乳及び飲料水ともにこれまでの測定値の範囲内であった。豊原の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28年度）

採取地点	採取月	平成28年度調査結果			(参考)		
					平成19～27年度 調査結果	平成22～ 27年度 調査結果	
		牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)	牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)
	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT ^{※2} (Bq/L)		
六原 ^{※1}	4月	0.32±0.10	*	0.19±0.06			
	7月	0.34±0.10	0.52±0.11	*	*～0.63	*～0.62	*～0.46
	10月	0.33±0.10	0.34±0.11	*			
	1月	*	0.51±0.11	*			
横浜町	4月	*	0.45±0.11	*			
	7月	*	0.39±0.11	*	*～0.51	*～0.70	*～0.48
	10月	*	*	*			
	1月	*	*	*			
二又	4月	*	*	*			
	7月	*	0.44±0.11	*	*～0.42	*～0.63	*～0.25
	10月	*	0.34±0.11	*			
	1月	*	0.37±0.11	*			
豊原	4月	0.38±0.10	*	0.32±0.06			
	7月	*	0.52±0.11	0.30±0.06	*～0.73	*～0.77	*～0.59
	10月	*	0.43±0.10	*			
	1月	*	0.54±0.11	*			

・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0.32～0.33 Bq/L、飲料水で0.18～0.25 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。

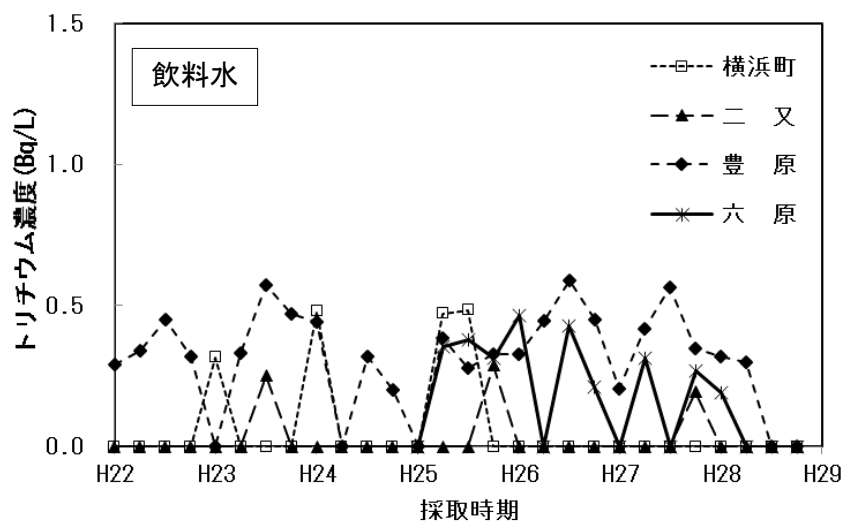
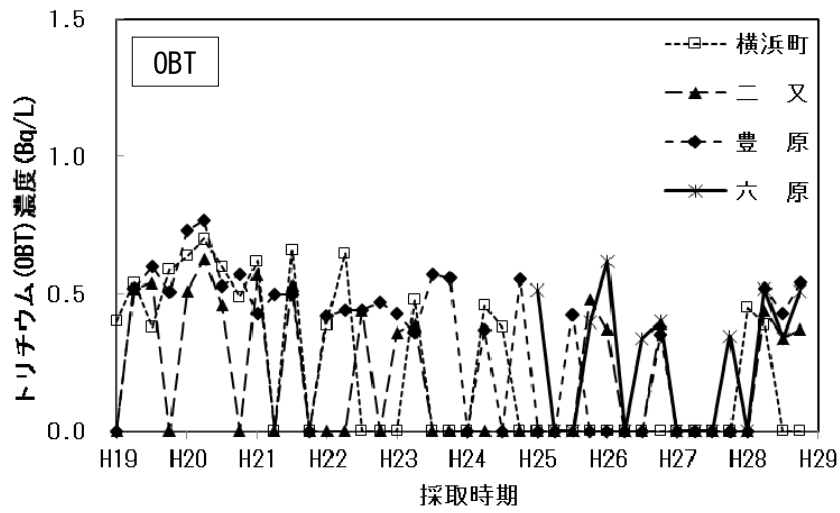
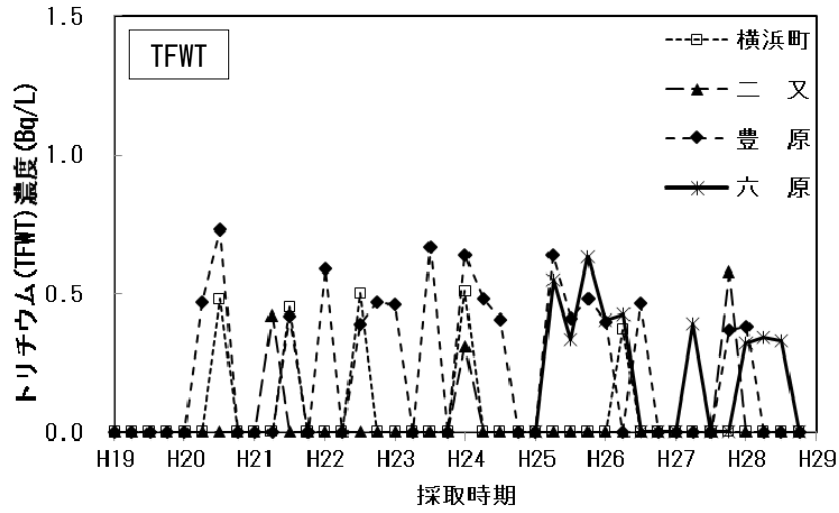


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

※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①において 0.65 Bq/L、戸鎖において 0.32 Bq/L 検出された以外は、すべて検出限界以下であった。また二又①については平成 19～27 年度の測定値を上回った。

表 3 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (平成 28 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 28 年度調査結果		(参考) 平成 19～27 年度
			非交換型 OBT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)	調査結果
精米	千 樽	10 月	*		*~0.89
	野辺地町	9 月	*		*~0.59
	二 又① ^{※2}	10 月	0.65±0.11		*~0.57
	二 又②	10 月	*		*~1.0
	戸 鎖	10 月	0.32±0.10		*~0.66
	平 沼 ^{※3}	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、0.32～0.33 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

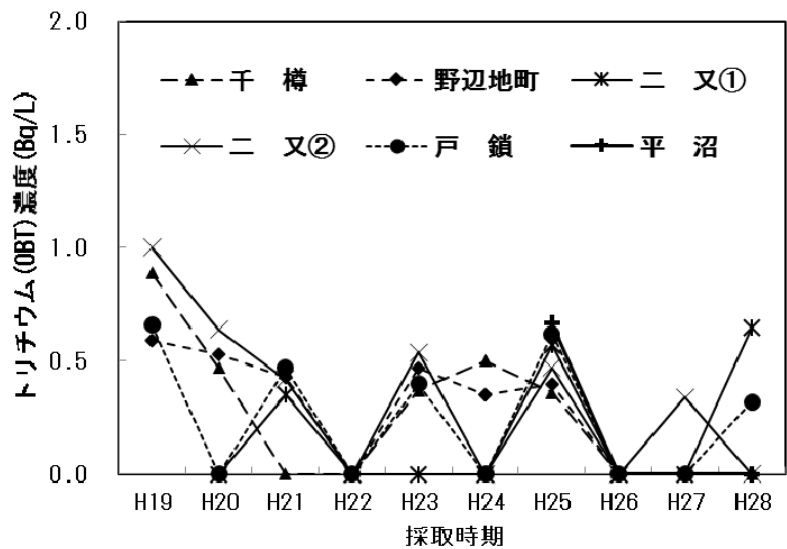


図 6 精米におけるトリチウム濃度 (OBT) の経年変化

※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～0.88 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.38 Bq/Lであった。またバレイシヨのTFWTについては平成19～27年度の測定値を上回ったが、これまでの測定値と同程度であった。

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

- ※ 青森県実施の環境放射線モニタリング(平成20～28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(0.15～0.35 Bq/L)以下～1.0 Bq/L
 雨水：検出限界(0.06～0.33 Bq/L)以下～1.2 Bq/L

表4 野菜のトリチウム(TFWT、OBT)濃度(平成28年度)

試料名	採取地点	採取月	平成28年度調査結果		(参考)平成19～27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	*	0.38±0.10	*～0.69	*～0.80
	千樽	10月	0.56±0.10	*	*～0.89	*～0.68
キャベツ	横浜町	10月	*	*	*～0.94	*～1.2
ダイコン	出戸	10月	*	0.36±0.11	*～0.58	*～0.68
バレイシヨ	尾駸	8月	0.88±0.11	*	0.41～0.86	*～0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	*	*～0.67	*～0.62
	平沼	11月	*	*	*～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0.30～0.35 Bq/L、OBTで0.31～0.32 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。

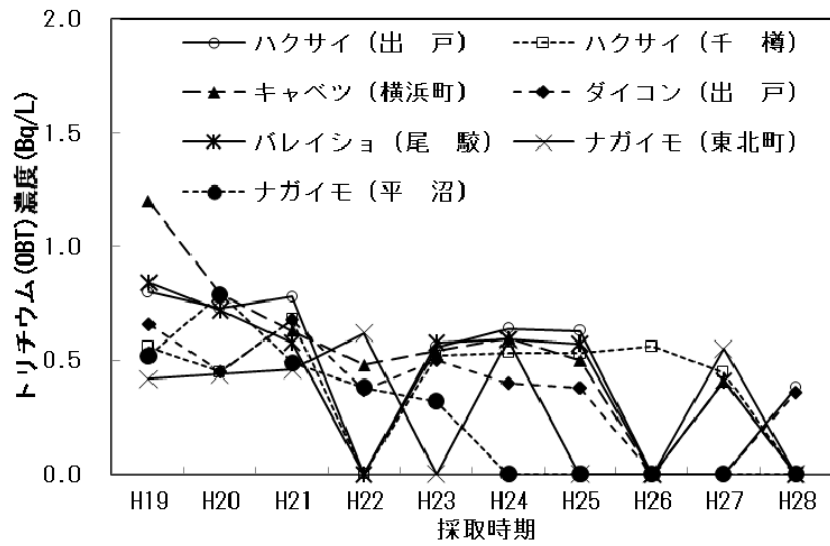
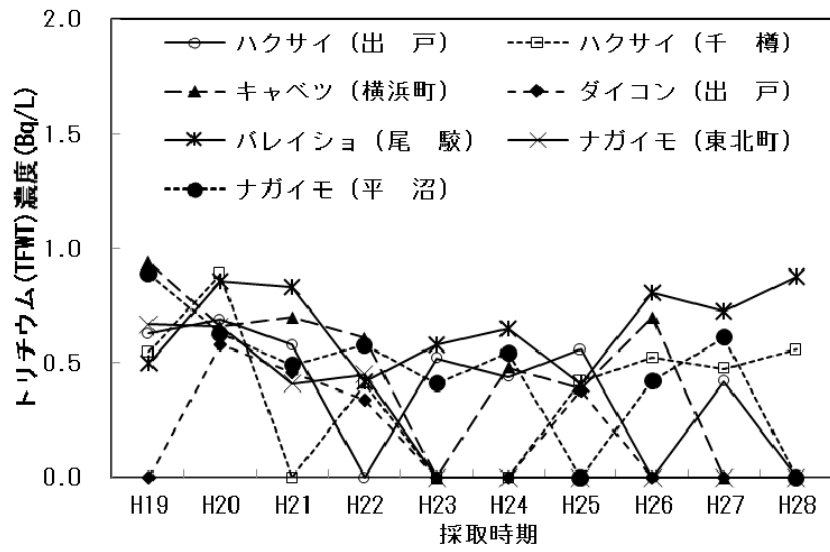


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化
 ※検出限界以下は0としてプロットした。

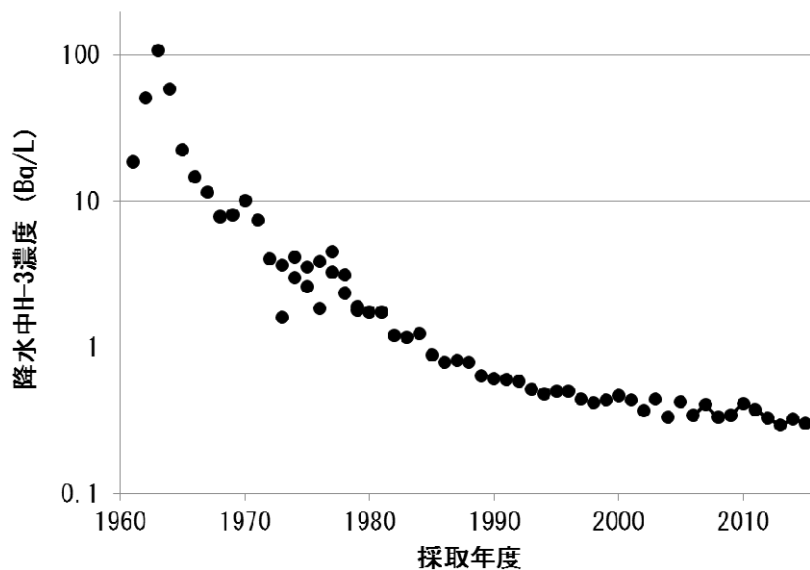


図8 東京・千葉における降水中トリチウム濃度の経年変化

- ・引用元、測定年度及び測定地点は以下のとおり。
- (国研)量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所
環境中のトリチウム測定調査データベース
「環境中トリチウム-降水測定データ」
- 1961～1979年度 東京・気象庁
- 1973～1979年度 千葉市稲毛区穴川
- 1979～2007年度 千葉市稲毛区山王町
- (公財)日本分析センター
環境放射線データベース
「身のまわりなどの一般環境」
- 1.調査対象：大気
- 2.調査年度：2007年度～
- 3.調査地域：千葉
- 4.調査カテゴリー：降下物
- 5.調査試料：月間降下物
- 6.調査核種：H-3
- 2007～2015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6月採取分において0.46 Bq/Lであり、平成19～27年度の測定値を上回ったが、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～0.33 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25～28年度と続けて、検出限界を超える試料が出ている。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1～0.2 Bq/L程度と報告されている⁸⁾。

平成27年度から調査を開始した海藻類（コンブ）の測定結果を表6に示す。TFWTは検出限界以下、非交換型OBTは検出限界以下～0.39 Bq/Lであった。

表5 魚類（ヒラメ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成28年度）

試料名	採取地点	採取月	平成28年度調査結果		(参考) 平成19～27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	*	0.33±0.11	*～3.3	*～1.4	*～0.38
		9月	*	*			
		10月	*	*			
		12月	*	*			
	六ヶ所村 前面海域②	6月	0.46±0.10	*	*～0.45	*～0.77	*
		7月	*	0.33±0.11			
		10月	*	*			
		1月	*	*			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.29～0.43 Bq/L、非交換型OBTで0.31～0.33 Bq/Lであった。

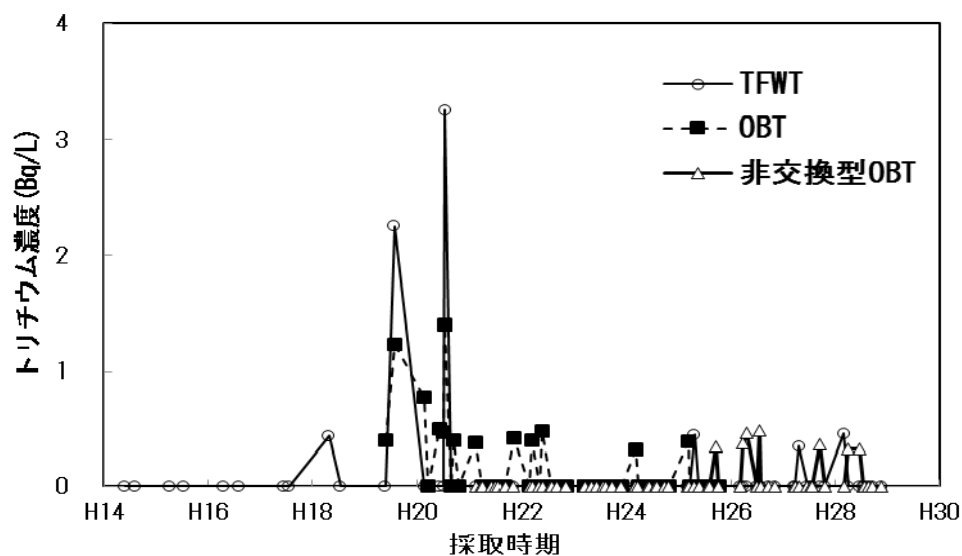


図9 魚類（ヒラメ）におけるトリチウム濃度（TFWT、OBT、非交換型OBT）の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

※平成18年度以前は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

表 6 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（平成 28 年度）

試料名	採取地点	採取月	平成 28 年度調査結果		平成 27 年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域 ①	9 月	*	0.39±0.10	*	*
		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 0.30～0.33 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0.231～0.238 Bq/g 炭素、葉菜が0.233～0.236 Bq/g 炭素、根菜・いも類が0.228～0.233 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⁹⁾を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源のC-14の半減時間を求めると9.5年となり、これは府馬ら¹⁰⁾による核実験起源のC-14の1963年から1976年までの半減時間9.0年、1984年から2000年までの半減時間10.3年とほぼ一致した。

また、平成7年度から平成18年度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28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28年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	H28年度調査結果	(参考) H19～27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	0.237 ± 0.002	0.231 ~ 0.248
		野辺地町	9月	0.231 ± 0.002	0.229 ~ 0.249
		二又① ^{*1}	10月	0.234 ± 0.002	0.231 ~ 0.241
		二又②	10月	0.236 ± 0.003	0.235 ~ 0.251
		戸鎖	10月	0.238 ± 0.003	0.237 ~ 0.255
		平沼 ^{*2}	9月	0.234 ± 0.003	0.233 ~ 0.234
葉菜	ハクサイ	出戸	10月	0.233 ± 0.002	0.227 ~ 0.245
		千樽	10月	0.233 ± 0.003	0.230 ~ 0.260
	キャベツ	横浜町	10月	0.236 ± 0.002	0.227 ~ 0.267
根菜・ いも類	ダイコン	出戸	10月	0.229 ± 0.002	0.228 ~ 0.239
	パレイショ	尾駸	8月	0.228 ± 0.003	0.225 ~ 0.244
	ナガイモ	東北町	11月	0.232 ± 0.002	0.225 ~ 0.243
		平沼	11月	0.233 ± 0.003	0.230 ~ 0.258

※1 平成20年度から調査開始

※2 平成25年度から調査開始

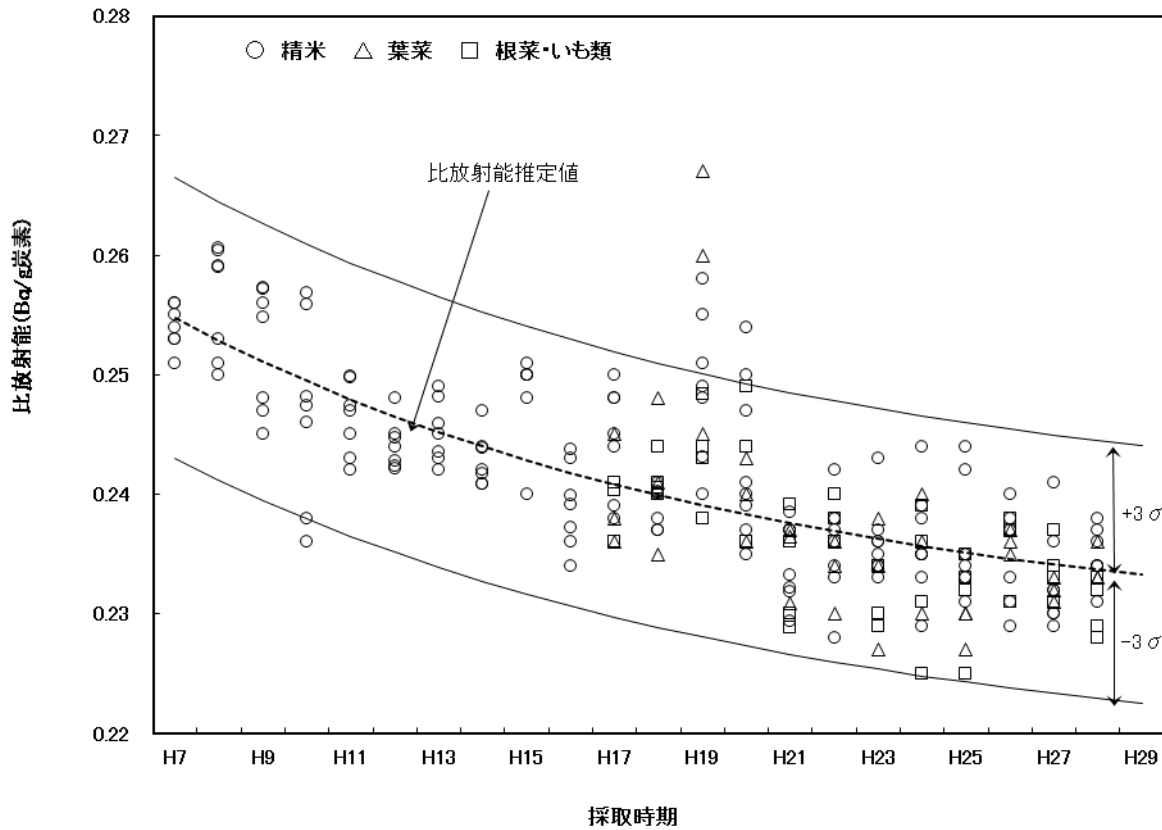


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

炭素-14 比放射能推定値及び変動幅の算出方法

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

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

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

A : 平成 7 年度におけるフォールアウト寄与分の比放射能計算値 (Bq/g 炭素) 0.0267

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

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

t : 平成 7 年度からの経過年数 (年)

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

変動係数: 平成 7~18 年度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、0.234～0.241 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後の測定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 28 年度の測定値は平成 27 年度の測定値と同程度であり、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 28 年度）

試料名	採取地点	採取月	H28 年度調査結果	(参考) H19～27 年度
			(Bq/g 炭素)	調査結果 (Bq/g 炭素)
牛 乳 (原乳)	六原※	4 月	0.234 ± 0.003	0.230 ~ 0.241
		7 月	0.234 ± 0.003	
		10 月	0.235 ± 0.003	
		1 月	0.235 ± 0.003	
	横浜町	4 月	0.237 ± 0.003	0.232 ~ 0.248
		7 月	0.236 ± 0.003	
		10 月	0.241 ± 0.003	
		1 月	0.238 ± 0.003	
	二 又	4 月	0.238 ± 0.003	0.230 ~ 0.262
		7 月	0.236 ± 0.003	
		10 月	0.241 ± 0.003	
		1 月	0.234 ± 0.003	
	豊 原	4 月	0.239 ± 0.003	0.231 ~ 0.266
		7 月	0.234 ± 0.003	
		10 月	0.234 ± 0.003	
		1 月	0.236 ± 0.003	

※ 平成 25 年度から調査開始

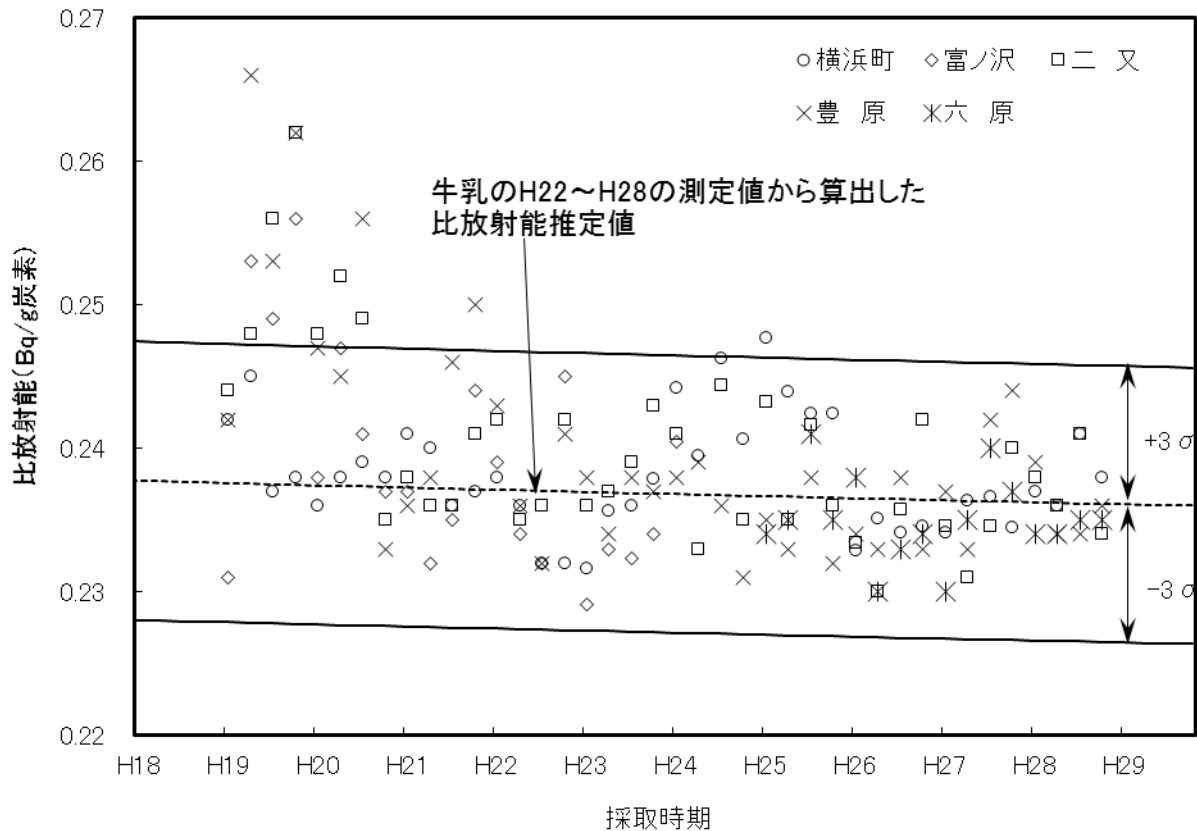


図 11 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

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 22 年度からの経過年数 t との関係を表す式として、平成 22～28 年度の測定値から自然平衡レベルを差し引いた値を用いて回帰分析を行い、定数 A 及び λ を求めた。

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

A : 平成 22 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) 0.00918

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

T : フォールアウト起源の C-14 の環境における半減期計算値 (年) 41.6

t : 平成 22 年度からの経過年数 (年)

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

変動係数 : 平成 22～28 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均

4.3 I-129 及び I-131

環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比を表 9 に、その経年変化を図 12 に示す。葉菜類については、I-129 濃度は $4.0 \times 10^{-8} \sim 6.6 \times 10^{-8}$ Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は $8.6 \times 10^{-10} \sim 3.2 \times 10^{-9}$ 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 3.0×10^{-4} 及び 1.5×10^{-4} Bq/kg 生、I-129/I-127 原子数比は 1.1×10^{-10} 及び 7.5×10^{-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¹¹⁾。I-129/I-127 原子数比については、大気圏内核実験後の環境において、陸上試料で $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$ 程度と報告されている¹²⁾。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の I-129/I-127 原子数比は、これらと同程度であった。

I-131 は、すべての試料において検出限界以下であった。

表 9 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比 (平成 28 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 28 年度調査結果		(参考) 平成 19~27 年度調査結果	
			¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	¹²⁹ I 濃度 (Bq/kg 生)	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比
ハクサイ	出戸	10 月	4.8×10^{-8} $\pm 1.6 \times 10^{-8}$	8.6×10^{-10}	3.8×10^{-8} $\sim 1.7 \times 10^{-5}$	1.4×10^{-9} $\sim 4.9 \times 10^{-7}$
	千樽	10 月	6.6×10^{-8} $\pm 1.3 \times 10^{-8}$	3.2×10^{-9}	7.0×10^{-8} $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	2.8×10^{-9} $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10 月	4.0×10^{-8} $\pm 2.3 \times 10^{-8}$	1.5×10^{-9}	4.5×10^{-8} $\sim 1.2 \times 10^{-5}$	4.2×10^{-9} $\sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	8 月	3.0×10^{-4} $\pm 7.0 \times 10^{-6}$	1.1×10^{-10}	8.5×10^{-5}	4.6×10^{-11}
		10 月	1.5×10^{-4} $\pm 0.05 \times 10^{-4}$	7.5×10^{-11}	$\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$\sim 9.1 \times 10^{-10}$

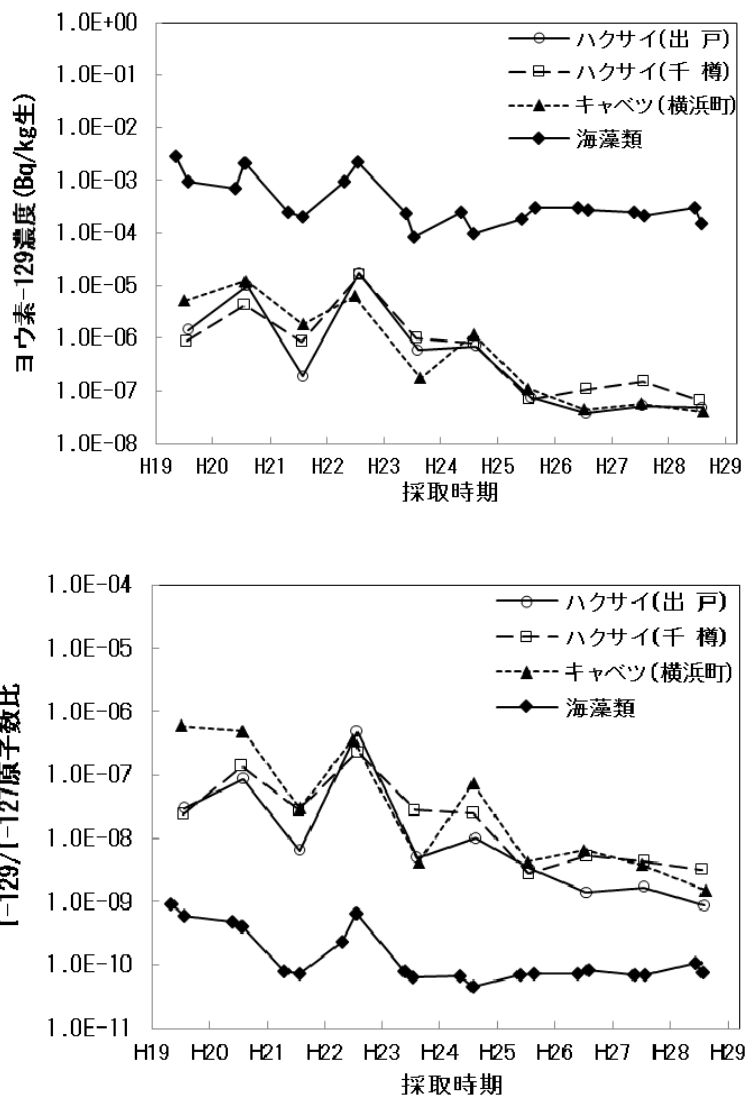


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

平成 28 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 では検出限界を超える試料が 1 試料あったが、他はすべて検出限界以下であった。一方、平成 21 年度から調査を開始した魚類の非交換型 OBT については、平成 24 年度まで検出限界以下であったが、平成 25～28 年度と続けて、検出限界を超える試料があった。C-14 比放射能は、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、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。

文 献

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

平成 29 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

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(CH₃T等)の3種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の200倍以上が環境中に放出され、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている¹⁾。

再処理施設から大気中へ放出されるトリチウムの化学形は、東海再処理施設主排気筒においては全トリチウムのうち約26%がHT(CH₃T等を含む。)の化学形であったとの報告²⁾があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスをキャリヤとして使用する方法³⁾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ヤ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^{4),5)}。

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^{6)~16)}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CH₃T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28年6月にかけて複数回、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、CH₃T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。

HT捕集部を2段直列に連結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。

平成29年度は、採取装置のPt触媒カラム使用量を2倍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したほか、Pt触媒の前または後でHT捕集部の無トリチウム水加湿を行う2種類の装置による比較検討を行った。また、Pt触媒カラム、モレキュラーシーブカラムへのトリチウム残留について検討を行った。

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(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

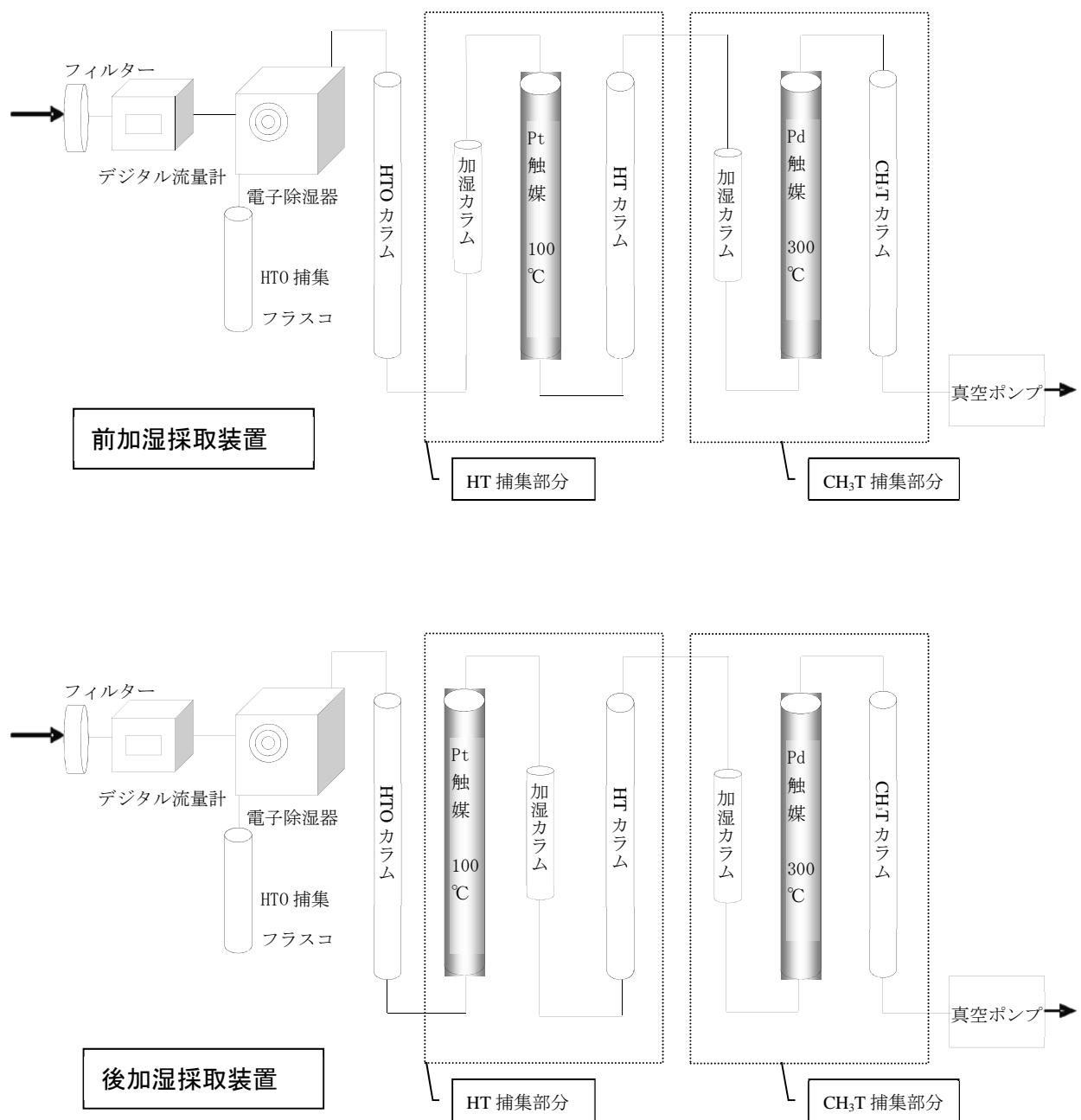


図1 加湿カラム法による採取装置の概要

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、田中貴金属工業株式会社、Pt 担持量 6.0 g/L、25 mm φ × 50 mm)を 8 個使用して酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した HT カラムに水として捕集する。大気中の H₂ 濃度が低いため、キャリアとして無トリチウム水蒸気を添加する。添加位置を Pt 触媒の上流側とした装置を「前加湿」、下流側とした装置を「後加湿」とする。

CH₃T 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、

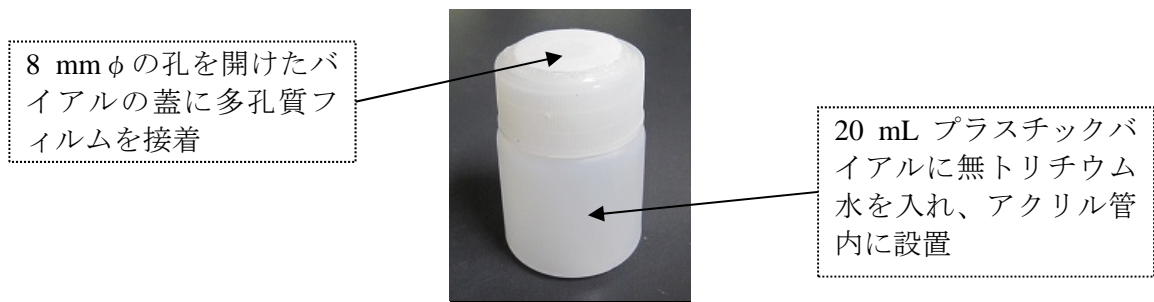


図2 加湿バイアル外観

2-4 mm φ)100 g により酸化し、モレキュラーシーブ 3A を充填した CH₃T カラムに水として捕集する。大気中の CH₄ 濃度が低いため、キャリアとして無トリチウム水蒸気を添加する。

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

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¹⁶⁾と並行採取を行った。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・無トリチウム水加湿位置：後加湿
- ・採取期間：約1ヵ月間
- ・大気採取流量：1.2 L/min（4月）、1.5 L/min（5月、6月）^{*1}
- ・大気採取量：約49 m³（4月）、約65 m³（5月、6月）

イ 採取地点

環境研構内

ウ 採取時期

平成29年4月（4/3～5/1）^{*2}、5月（5/1～6/1）、6月（6/1～7/3）

^{*1} 環境研の採取流量は2.0 L/min

^{*2} 環境研の採取期間は4/4～5/1

(2) Pt 触媒に対する加湿位置の違いが測定値に与える影響の検討

ア 採取条件

Pt 触媒の前で無トリチウム水を加湿する装置（前加湿）と、後で加湿する装置（後加湿）の2台の採取装置による並行採取を行った。

その他の採取条件は以下のとおり。

- ・採取期間：約1ヵ月間
- ・無トリチウム水加湿位置：前加湿または後加湿
- ・大気採取流量：1.5 L/min

- ・ 大気採取量：約 65 m³
- ・ 使用した Pt 触媒
前加湿：2.2(1)で使用した触媒
後加湿：未使用の触媒

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 29 年 10 月（10/13～11/13）、11 月（11/13～12/13）、12 月（12/13～1/11）

2.3 分析方法

(1) 並行採取によるガス添加法との比較

(2) Pt 触媒に対する加湿位置の違いが測定値に与える影響の検討

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℃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 CH₃T の大気中濃度を算出した。

(3) Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の確認

2.2(2)の前加湿・後加湿比較において HT 酸化に用いた Pt 触媒カラム 2 本について、上流側に無トリチウム水 25 mL 程度を入れたバブラーを設置した。さらに、下流側に無トリチウム水 15 mL 程度を入れたバブラー（トラップ）を 2 段設置し、窒素ガスを流しながら 100℃に加熱して 1 時間程度無トリチウム水蒸気を供給後、バブラーを取り外し、さらに 1 時間程度加熱した。

1 段目、2 段目のトラップ水 10 mL に液体シンチレータを同量混合し、測定試料とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアルを用いた。測定は液体シンチレーション計数装置により行い、測定時間は、2000 分（50 分×20 回×2 サイクル）とした。

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

(4) 高濃度試料捕集後のモレキュラーシーブカラムへのトリチウム残留の確認

2.2(1)の並行採取において HT 捕集に用いたカラム 2 本（H29.5 月分及び 6 月分）について、窒素ガスを流しながら 400℃に加熱して捕集水分を回収した後、それぞれ無トリチウム水 15 mL を添加した。モレキュラーシーブ表面の湿りがなくなり、無トリチウム水がすべてモレキュラーシ

ープ内に捕集されたことを確認した後、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して捕集された水分を回収した。さらに無トリチウム水 15 mL を添加し、同様の操作を行った。

添加回収した試料水に過酸化ナトリウム及び過マンガン酸カリウムを添加し蒸留した後、試料水 10 mL に液体シンチレータを同量混合し、測定試料とした。試料水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアルを用いた。測定は液体シンチレーション計数装置により行い、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試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。

(5) モレキュラーシーブカラムに残留したトリチウムの簡便な除去方法の検討

2.2(2)において HT 捕集に用いたカラム 2 本を窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して捕集水分を回収した後、前加湿カラムのみ、上流側に無トリチウム水 25 mL 程度を入れたバブラーを設置し、1 時間程度無トリチウム水蒸気を供給後、バブラーを取り外し、さらに 1 時間程度加熱した。

放冷後、2 本のカラムそれぞれに無トリチウム水 15 mL を添加し、モレキュラーシーブ表面の湿りがなくなり、無トリチウム水がすべてモレキュラーシーブ内に捕集されたことを確認した後、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して捕集された水分を回収した。

添加回収した試料水に過酸化ナトリウム及び過マンガン酸カリウムを添加し蒸留した後、試料水 10 mL に液体シンチレータを同量混合し、測定試料とした。試料水が 10 mL に満たない場合は、無トリチウム水を加えて 10 mL とした。測定容器は、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアルを用いた。測定は液体シンチレーション計数装置により行い、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試料量をもとに、回収したトリチウム量を算出した。

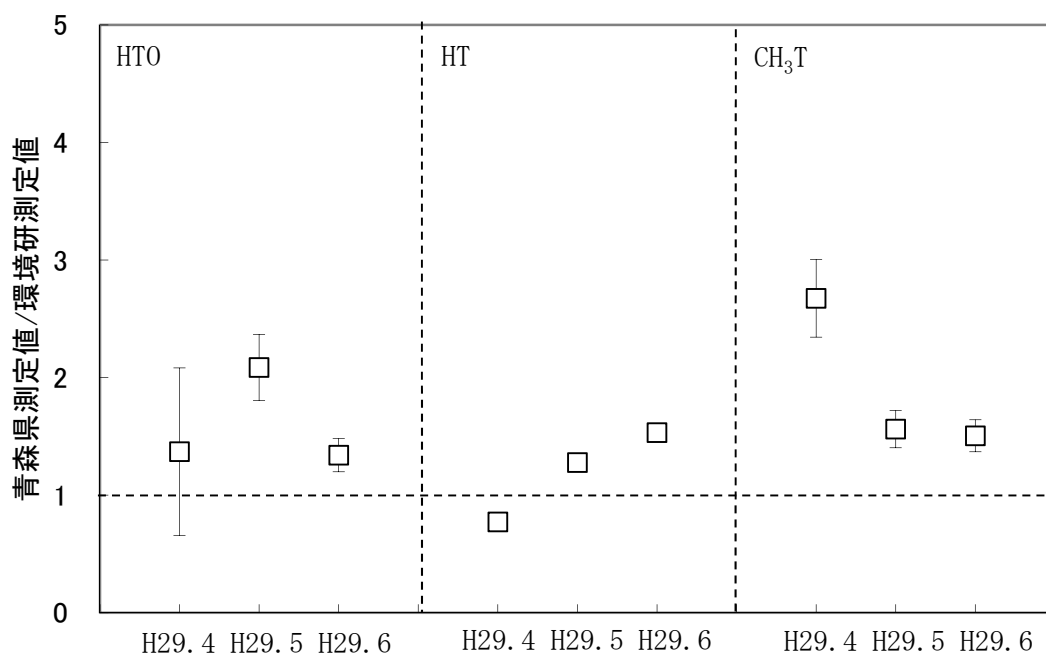


図3 並行採取による測定結果（県/環境研 県：加湿カラム法 環境研：ガス添加法）

3. 調査結果

3.1 並行採取によるガス添加法との比較

1ヶ月分を1試料として測定した結果を図3に示す。CH₃Tについては、これまでと同様、県の測定値が環境研より高めであるが、過去の並行採取で得られた県のCH₃T測定値の範囲(0.75~2.1 mBq/m³)より低い0.63~0.66 mBq/m³程度であり、HT捕集漏れによるCH₃Tの測定値上昇はかなり改善されている。HTについては概ね同程度であるが、県の測定値が徐々に上昇する傾向が見られている。過去の検討におけるHT測定値を確認したところ、図4のとおり、平成27年度以降、一連の採取における最後の試料の測定値が高めとなっている傾向が確認された。

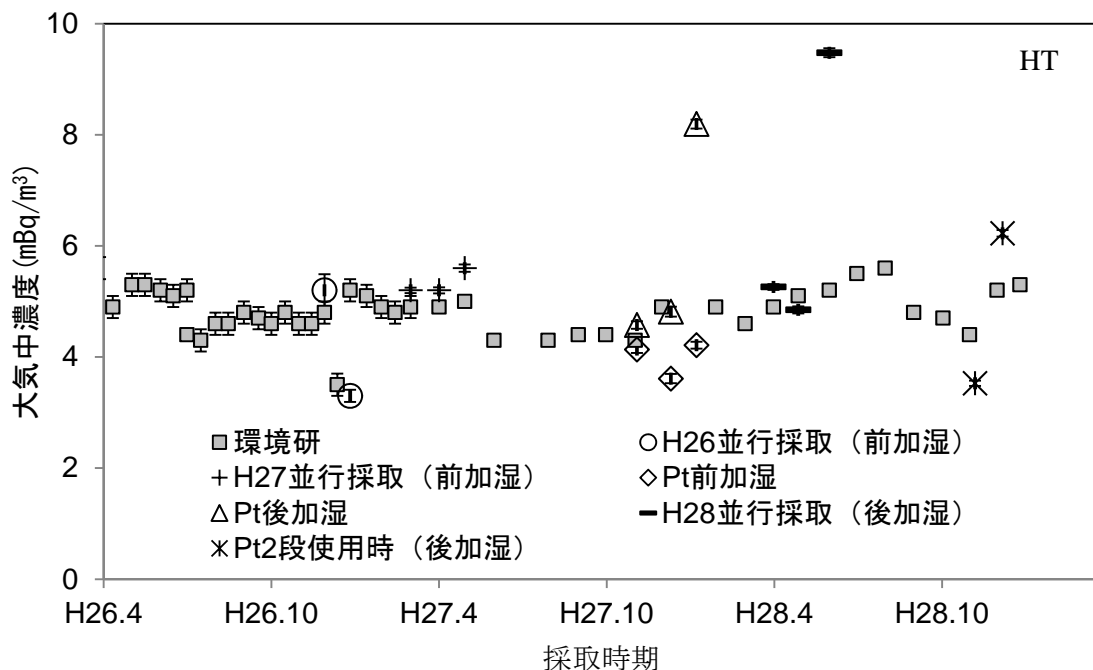


図4 これまでの検討におけるHT濃度のトレンド

表1 HT、CH₃T試料への室内空気混入量の推定結果

試料	加湿バイ	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)	C=B-A	(g/m ³)*1	量(m ³)*2	F	G=E/F	
	A	B		D	E=C/D			
4月	HT	9.27	10.59	1.32	5.78	0.228	48.921 ^{*3}	0.0047
	CH ₃ T	8.85	10.27	1.42	5.78	0.246	48.921 ^{*3}	0.0050
5月	HT	11.88	12.58	0.70	8.05	0.087	66.994	0.0013
	CH ₃ T	10.60	11.47	0.87	8.05	0.108	66.994	0.0016
6月	HT	13.28	14.04	0.76	11.35	0.067	69.427	0.0010
	CH ₃ T	11.65	12.56	0.91	11.35	0.080	69.427	0.0012

*1 大気採取量(m³) / [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/m³) 屋内外の大気中水分量が等しいと仮定

*3 4/28~5/1の期間の採取量は計算により求めたもの

表 1 に採取時の空気混入量推定結果を示す。いずれの試料とも、流路途中からの空気混入量は、大気採取量に対して体積比 0.1~0.5%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。

なお、4 月分の試料については、4/28~5/1 の期間、採取装置の積算流量計が故障し、大気採取量が不明であることから、4/3~4/21 の採取量から算出した流速と、4/28~5/1 の採取時間から採取量を求めている。なお、県・環境研、両機関の採取装置による捕集水分量・大気採取量から算出した絶対湿度がほぼ一致することを確認している。

3.2 Pt 触媒に対する加湿位置の違いが測定値に与える影響の検討

平成 27 年度以降、一連の採取における最後の試料の HT 測定値が高めとなる事象が発生していることから、再度前加湿方式と後加湿方式の採取装置により並行採取を実施し、測定値の比較を行った。測定結果を表 2 及び図 5 に示す。CH₃T の測定値は、環境研の平成 25~27 年の測定結果 (0.30~0.86 mBq/m³) と同程度であり、顕著な HT の捕集漏れは見られなかった。

HT については、後加湿の 10 月分を除き、環境研の平成 25~27 年の HT 測定結果 (3.5~6.4 mBq/m³) と比較して全般的に高めであった。特に 10 月分では、前加湿の測定値が非常に高く、一方、後加湿の測定値は他と比較して大幅に低かった。

今年度の検討から Pt 触媒の使用数を 4 個から 8 個に倍増させており、前加湿の採取装置では、これまで化学形別トリチウムの採取に使用してきた Pt 触媒を使用している。一方、後加湿の装置では、平成 20 年度に調達後、デシケーター内に保管されていた未使用の Pt 触媒を使用している。前加湿装置における高い HT の測定値は、Pt 触媒カラムに残留していたトリチウムの混入に起因するものであると疑われる。

表 3 に採取時の空気混入量推定結果を示す。いずれの試料とも、流路途中からの空気混入量は、大気採取量に対して体積比 0.1~0.3%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 Pt 触媒に対する加湿位置の違いによる測定値の比較

試料	大気中濃度(mBq/m ³)						
	前加湿			後加湿			
10 月	HTO	0.871	±	0.590	1.01	±	0.571
	HT	8.55	±	0.06	3.41	±	0.05
	CH ₃ T	0.564	±	0.034	0.747	±	0.039
11 月	HTO	1.46	±	0.62	0.507	±	0.620
	HT	7.20	±	0.065	6.43	±	0.062
	CH ₃ T	0.637	±	0.035	0.612	±	0.040
12 月	HTO	0.008	±	0.596	1.92	±	0.60
	HT	7.07	±	0.066	6.05	±	0.065
	CH ₃ T	0.620	±	0.038	0.553	±	0.040

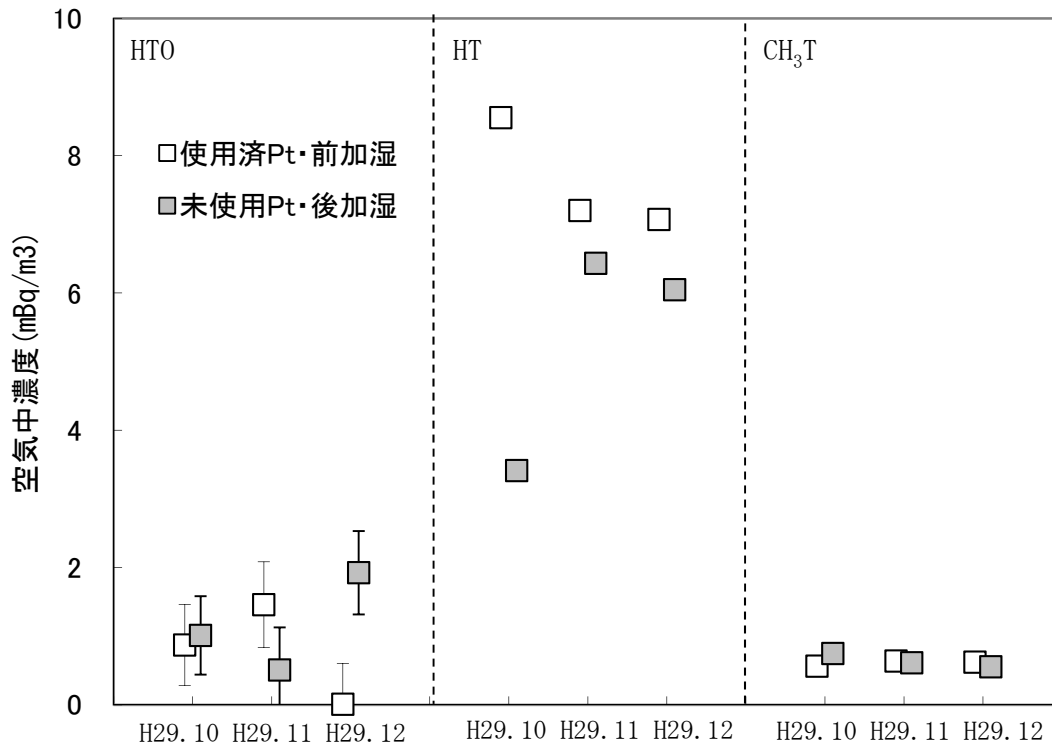


図5 Pt触媒に対する加湿位置の違いによる測定値の比較

表3 HT、CH₃T 試料への室内空気混入量の推定結果

試料	加湿バイアル重量減少分(g)	捕集カラム重量増分(g)	推定混入水分量(g)	大気中水分量(g/m ³)* ¹	推定室内空気混入量(m ³)* ²	大気採取量(m ³)	混入量/採取量
10月 前加湿 HT	9.02	10.59	1.57	10.56	0.149	67.339	0.0022
10月 前加湿 CH ₃ T	10.22	11.21	0.99	10.56	0.094	67.339	0.0014
10月 後加湿 HT	9.21	10.52	1.31	10.59	0.124	64.979	0.0019
10月 後加湿 CH ₃ T	10.45	12.73	2.28	10.59	0.215	64.979	0.0033
11月 前加湿 HT	8.78	9.52	0.74	10.88	0.068	64.983	0.0010
11月 前加湿 CH ₃ T	9.30	10.17	0.87	10.88	0.080	64.983	0.0012
11月 後加湿 HT	8.72	9.35	0.63	10.86	0.058	62.361	0.0009
11月 後加湿 CH ₃ T	10.03	10.66	0.63	10.86	0.058	62.361	0.0009
12月 前加湿 HT	8.16	8.75	0.59	10.86	0.054	62.990	0.0009
12月 前加湿 CH ₃ T	9.02	9.81	0.79	10.86	0.073	62.990	0.0012
12月 後加湿 HT	8.26	8.78	0.52	10.96	0.047	59.414	0.0008
12月 後加湿 CH ₃ T	9.40	9.94	0.54	10.96	0.049	59.414	0.0008

*1 大気採取量(m³) / [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/m³) 屋内外の大気中水分量が等しいと仮定

3.3 Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の確認

3.2において、Pt 触媒カラムへのトリチウムの残留が疑われたことから、使用した Pt 触媒カラムに無トリチウム水蒸気を供給、トラップし、残留の有無を確認した。表 4 及び図 6 に測定結果を示す。後加湿 Pt 触媒の 1 段目のトラップにのみ、0.2 Bq 程度のトリチウムが検出された。このことから、後加湿の採取装置では、Pt 触媒カラムに相当量のトリチウムが残留すること、前加湿では残留が見られないことが明らかとなった。

後加湿の Pt 触媒カラムに残留しているトリチウムの量は、モレキュラーシーブカラムに捕集される HT の量の 1/3～同程度にも相当し、何らかの要因で触媒カラム内の残留トリチウムが HTO の形で脱離すると、HT の測定値に大きな影響を及ぼす。平成 27 年度以降の後加湿方式の採取装置で見られた高い HT の原因は、Pt 触媒へのトリチウム残留が原因であると考えられる。

表 4 Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の確認結果

前加湿	トラップ 1	トラップ 2
試料水量 (mL)	14.75	14.53
試料水中濃度 (Bq/L)	-0.51 ± 0.36	-0.30 ± 0.35
トリチウム量 (Bq)	-0.008 ± 0.005	-0.004 ± 0.005
後加湿	トラップ 1	トラップ 2
試料水量 (mL)	14.59	15.16
試料水中濃度 (Bq/L)	14.99 ± 0.52	-0.18 ± 0.36
トリチウム量 (Bq)	0.219 ± 0.008	-0.003 ± 0.006

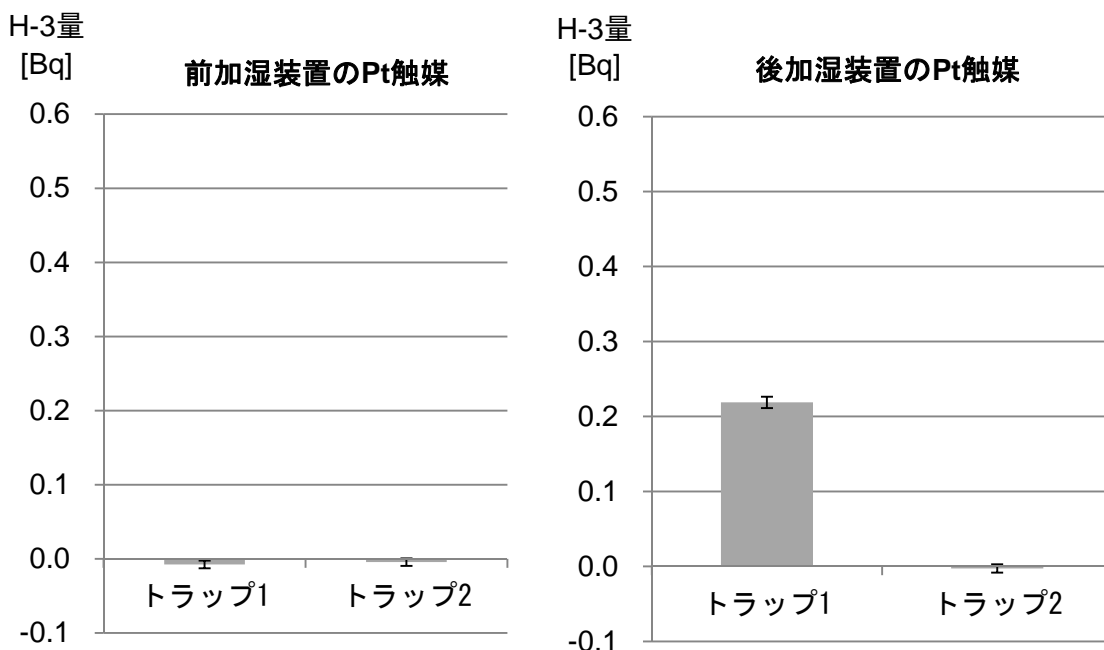


図 6 Pt 触媒カラムへのトリチウム残留の確認結果

3.4 高濃度試料捕集後のモレキュラーシーブカラムへのトリチウム残留の確認

現行の採取条件では、HT 捕集水、CH₃T 捕集水、大気中水分それぞれの水分中トリチウム濃度は 10¹ Bq/mL、10⁰ Bq/mL、10⁻¹ Bq/mL 程度であり、それぞれ 1 桁程度の差があるため、捕集カラムにトリチウムの一部が残留する場合、異なる試料間での捕集カラムの流用により測定値に影響が出る恐れがある。このため、比較的高濃度の試料を捕集した HT 捕集用モレキュラーシーブカラムへのトリチウム残留の有無を確認した。

環境研との並行採取において HT 捕集に用いたカラム 2 本 (H29.5 月分及び 6 月分) について、HT 捕集水として回収された水分と、無トリチウム水添加 1 回目、2 回目それぞれの回収された水分中のトリチウム量を表 5、図 7 に示す。2 本のカラムいずれも、1 回目の無トリチウム水を添加回収した試料にトリチウムが検出され、その量は HT 捕集水として回収したトリチウムの 9% 前後であった。また、2 回目の無トリチウム水添加ではトリチウムは検出されなかった。

このことから、HT 捕集カラムには 1 割弱のトリチウムが残留しうること、また、残留があったとしても 15 mL 程度の無トリチウム水の添加回収により、除去されることが明らかとなった。

モレキュラーシーブカラムについては、捕集に用いる前の重量と捕集水回収後の重量の差が ± 0.1 g 程度と、ほぼ一致することを確認していることから、10 mL 程度としている HT・CH₃T 捕集水の残留は、仮にあっても 1% 未満である。捕集水の残留がほぼ無いにもかかわらず、無トリチウム水を添加回収した試料に 10% 程度のトリチウムが検出されることから、残留しているトリチウムは、モレキュラーシーブに通常捕集される水とは異なり、加熱しても脱離しない状態にあると考えられる。

表 5 HT 捕集カラムにおけるトリチウム残留量の確認結果

H29.5 月 HT	捕集水	無トリチウム水	無トリチウム水
		洗浄 1 回目	洗浄 2 回目
試料水量 (mL)	12.58	15.23	15.46
試料水中濃度 (Bq/L)	35.5 ± 0.32	2.50 ± 0.20	-0.03 ± 0.18
トリチウム量 (Bq)	0.446 ± 0.004	0.038 ± 0.003	-0.000 ± 0.0028
残留率		0.085 ± 0.007	-0.001 ± -0.006
H29.6 月 HT	捕集水	無トリチウム水	無トリチウム水
		洗浄 1 回目	洗浄 2 回目
試料水量 (mL)	14.04	15.03	15.43
試料水中濃度 (Bq/L)	38.3 ± 0.35	3.25 ± 0.20	-0.39 ± 0.18
トリチウム量 (Bq)	0.538 ± 0.005	0.049 ± 0.003	-0.006 ± 0.003
残留率		0.091 ± 0.006	-0.011 ± -0.005

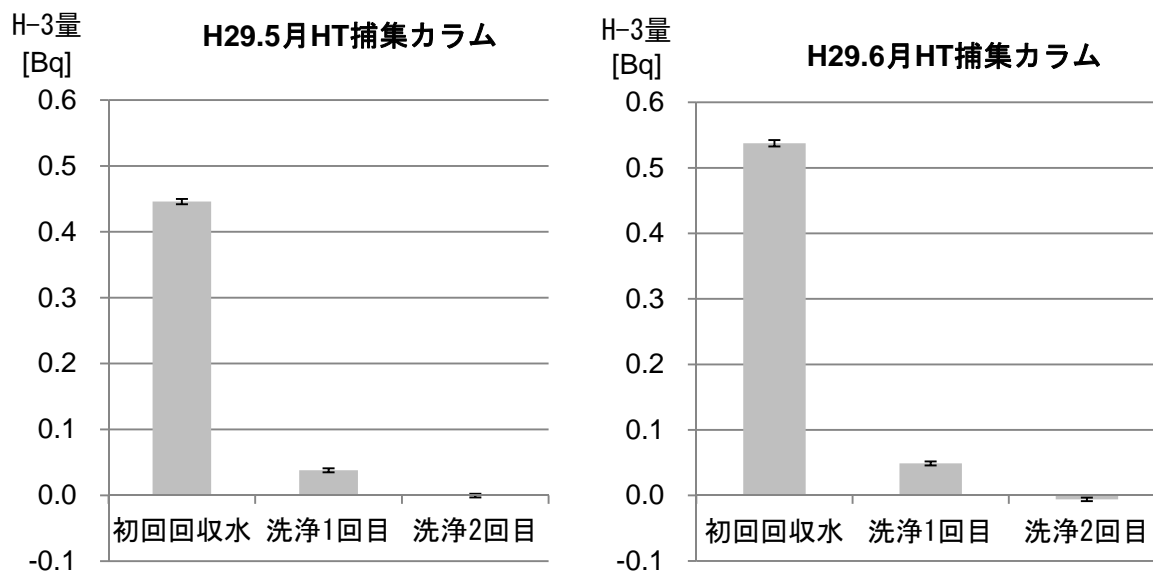


図7 HT 捕集カラムにおけるトリチウム残留量の確認結果

3.5 無トリチウム水蒸気供給による残留トリチウムの簡便な除去方法の検討

環境研ではガス添加法により化学形別トリチウムを連続採取しており、モレキュラーシーブカラムから捕集水分を焼出した後、捕集カラムの上流側に無トリチウム水を入れたバブラーを挟み、BG水蒸気を供給することで、残留トリチウム対策としている。焼出し後に無トリチウム水を添加して加熱回収する3.4の手法では、残留トリチウムの除去に1~2日を要することから、より簡便な環境研で実施されている手法を試行し、効果を確認した。

表6及び図8に測定結果を示す。バブリングしていないカラムでは、3.3で得られた結果と同様に10%程度のトリチウム残留が確認されている。一方、バブリングにより無トリチウム水蒸気を供給したカラムでは、その後無トリチウム水を添加回収した試料中にトリチウムが検出されなかった。このことから、バブリングによる無トリチウム水供給が、モレキュラーシーブカラムの残留トリチウム除去に有効であることが確認された。

4. まとめ

- 1) 後加湿方式の採取装置を用い、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、県の CH_3T 測定結果は環境研と比較して高めであったが、これまでの検討で得られた測定値より低めであり、HT捕集漏れによる CH_3T の測定値上昇は改善されている。一方、HTについては測定値が徐々に上昇する傾向が見られた。
- 2) 前加湿方式と後加湿方式の採取装置を用いて並行採取を実施し、測定値を比較したところ、HTについて、初回採取時の前加湿の測定値が非常に高く、後加湿の測定値が低い結果であった。
- 3) 使用後のPt触媒に無トリチウム水蒸気を供給し、無トリチウム水によりトラップしたところ、後加湿方式の採取装置では、Pt触媒カラムに相当量のトリチウムが残留していることを確認した。
- 4) 捕集水回収後のHTカラムに無トリチウム水を添加回収したところ、10%弱のトリチウムが検

出された。15 mL 程度の無トリチウム水の添加回収により、残留しているトリチウムが除去されることを確認した。

- 5) 捕集水回収後にバックグラウンド水蒸気を供給することにより、モレキュラーシーブに残留したトリチウムを除去できることを確認した。

表 6 無トリチウム水バブリングによるトリチウム残留除去効果の確認結果

バブリングなし	捕集水	無トリチウム水洗浄
試料水量 (mL)	10.52	14.94
試料水中濃度 (Bq/L)	21.08 ± 0.31	1.56 ± 0.19
トリチウム量 (Bq)	0.222 ± 0.003	0.023 ± 0.003
残留率		0.105 ± 0.013

バブリングあり	捕集水	無トリチウム水洗浄
試料水量 (mL)	10.59	14.70
試料水中濃度 (Bq/L)	54.38 ± 0.41	-0.04 ± 0.17
トリチウム量 (Bq)	0.576 ± 0.0043	-0.001 ± 0.003
残留率		-0.001 ± 0.004

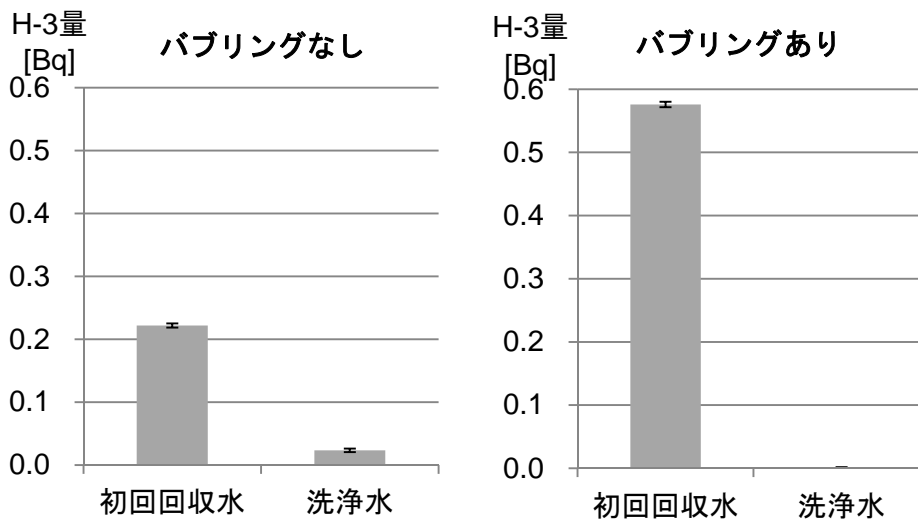


図 8 無トリチウム水バブリングによるトリチウム残留低減効果の確認結果

文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, *Isotope News*, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of ^3H released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**,569-572(2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*, 416-420(2003)
- 4) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁: 核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中 ^3H 濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299(2006)
- 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)
- 16) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 28 年度排出放射能環境移行調査報告書, 109(平成 29 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29年度実施内容)

大山 勝 神 俊雄 木村芳伸
赤石幼菜^{*1} 沼山 聡^{*1} 佐々木耕一^{*1}

1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成18年3月31日からアクティブ試験が行なわれており、Kr-85、トリチウム(H-3)、C-14及びI-129などの放射性気体廃棄物及び放射性液体廃棄物が年間の管理目標値の範囲内で放出されている。このような状況の下、青森県及び日本原燃株式会社は、「六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について(平成18年2月7日 青森県)」に基づき、モニタリングにおける線量評価の妥当性を裏付けるとともに必要に応じて改善に資するため、平成19年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、C-14及びI-129について調査を開始した。平成20年度からはI-131を追加し、平成21年度からは魚類について非交換型の有機結合型トリチウム(非交換型OBT)を追加、平成26年度からはOBTをすべて非交換型OBTとし、平成27年度からは海藻のTFWT・OBTを追加して実施している。平成28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29年度の調査計画と今後の進め方

平成29年度の調査計画は表1に示すとおり、平成28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30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29年度）

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

安積 潔 神 俊雄 木村芳伸 竹ヶ原 仁

1. はじめに

本県では、「原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング実施要領」に基づき、環境試料（表土）中 I-129 の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素-129 分析法」¹⁾（以下、「ヨウ素-129 分析法」）の放射化学分析法（β線測定）により実施している。

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

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

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

平成 29 年度は、測定溶液中の I-127 濃度と I-129 検出限界値の関係について確認したほか、葉菜試料中の I-129 を実際に測定できることを確認するため、既知量の I-129 を添加した葉菜試料を分析し、I-129 の定量を行った。

2. 調査方法

2.1 DRC ガスの最適流量の確認

ICP 質量分析装置は、パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e を用いた。本装置による I-129 測定においては、キャリアガスに含まれる Xe-129 による影響を最小限化するため、ダイナミックリアクションセル（以下「DRC」）に反応ガスとして酸素を導入している。当該ガスについて、I-129 に対する検出感度が最大となる最適流量の検討を行った。

ヨウ化ナトリウム溶液（Wako）を希釈して I-127 濃度が 8.5×10^{-9} g/mL 及び 1.0×10^{-3} g/mL の標準溶液を調製し、ICP 質量分析装置により、酸素流量を変化させながら m/z127 及び m/z129 の計数率を測定した。

ヨウ素の 2 つの同位体（I-127 及び I-129）の感度応答が等しいと仮定し、測定した I-127 の感度応答から I-129 のバックグラウンド相当濃度（以下「I-129BEC」）を(1)式により算出し、最も低い I-129BEC が得られる流量を、最適な酸素流量とした。

$$\text{I-129BEC}[\text{g/mL}] = \text{I-127 濃度}[\text{g/mL}] \times \frac{\text{m/z129 計数率}[\text{cps}]}{\text{m/z127 計数率}[\text{cps}]} \times \frac{129}{127} \dots\dots\dots (1)$$

ICP 質量分析装置の測定条件を表 1 に示す。

表 1 測定条件

項 目	設 定 値
ネブライザーガス流量	0.97、1.08 L/min
補助ガス流量	0.72、0.80 L/min
プラズマガス流量	17 L/min
リアクションガス流量	O ₂ : 0~1.0 mL/min
ICP RF 出力	1500 W
積分時間	2 秒
繰返し回数	10 回
測定回数	5 回

2.2 測定溶液中 I-127 濃度と I-129 検出限界値の関係

I-129 の検出限界値の低減を図るためには、ヨウ素の回収率補正のため添加する I-127 担体の量を低減し、測定溶液中の I-127 濃度を下げることが有効と考えられる。

I-127 濃度と I-129 検出限界値の関係については、平成 23 年度に I-127 濃度が $5.0 \times 10^{-5} \sim 1.0 \times 10^{-3}$ g/mL の範囲で検討しており、I-127 濃度が低くなるほど I-129 検出限界値が下がる傾向を確認している。

さらに I-127 濃度を下げることにより、検出限界値をどの程度まで低減可能であるか検討するため、I-127 濃度が 1.0×10^{-5} g/mL 以下の場合の検出限界値を確認した。

検出限界値確認用測定溶液の濃度を表 2 に示す。I-129 標準溶液 (Eckert&Ziegler Isotope Products 社製) 及びヨウ化ナトリウム溶液 (Wako) に 1 M 硝酸 (精密分析用、Wako) 15 mL、25 %テトラメチルアンモニウムヒドロキシド (精密分析用、Wako、以下「TMAH」) 7 mL、次亜塩素酸ナトリウム (化学用、Wako) 0.5 mL 及び内標準元素として 1 µg/mL ロジウム標準溶液 (原子吸光分析用、Wako を 1 %TMAH で希釈) 1 mL を加えた後、超純水で 100 mL に定容し、検出限界値確認用測定溶液とした。

ICP 質量分析装置の測定条件を表 3 に示す。

表 2 検出限界値確認用測定溶液の濃度

系列	核種	単位	STD1	STD2	STD3	STD4	STD5
A	I-127	g/mL			3.0×10^{-9}		
	I-129	mBq/mL	0	0.332	0.664	1.66	3.32
B	I-127	g/mL			8.5×10^{-9}		
	I-129	mBq/mL	0	0.332	0.664	1.66	3.32
C	I-127	g/mL			1.0×10^{-7}		
	I-129	mBq/mL	0	0.332	0.664	1.66	3.32
D	I-127	g/mL			1.0×10^{-6}		
	I-129	mBq/mL	0	0.332	0.664	1.66	3.32
E	I-127	g/mL			1.0×10^{-5}		
	I-129	mBq/mL	0	0.332	0.664	1.66	3.32

2.3 葉菜試料に添加した I-129 の定量

昨年度まで検討してきた 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（以下、「TMAH アルカリ抽出-分離精製法」）により、葉菜試料中の I-129 を実際に測定できることを確認するため、I-127 濃度が既知の標準物質（NIST SRM1547 Peach leaves（以下、「Peach leaves」）、I-127: 0.29±0.002 µg/g 乾、I-129: 0.00022±0.000005 mBq/g 乾⁴⁾）に一定量の I-129 を添加した試料を分析し、I-129 の定量を行った。

分析から測定までのフローを図 1 に示す。Peach leaves 1.00 g を未使用の 100 mL PFA 瓶に秤取りし、I-129 を定量添加した後、12.5 %TMAH 溶液 10 mL を加え密栓し、よく攪拌してから 80 °C に設定した恒温槽内で 16 時間以上加熱した。その後転倒攪拌し、再度 80 °C で 3 時間以上加熱した。放冷後、超純水を加えて 80 mL 程度に希釈し、No.5C ろ紙にガラスフィルター GA100（ともに ADVANTEC）を重ねて溶液を吸引ろ過した後、さらに孔径 1.0 µm の PTFE 製メンブランフィルター T100A047A（ADVANTEC、親水性をもたせるためエタノールで前処理）を用いて吸引ろ過した。ろ液に還元剤として 10 %亜硫酸ナトリウム溶液（特級、Wako）3 mL を加え、固相抽出ディスク Empore 2252-ANION-SR（3M、メタノール及び水酸化ナトリウムで前処理）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。溶出液に 25 %TMAH 溶液 7 mL を加えアルカリ性とした後、内標準元素としてロジウム 1 µg を加え、超純水で定容し、測定溶液とした。分析は 2 試料について行い、操作ブランク 1 試料とともに並行して分析を実施した。

また、検量線は、表 2 の A 系列の溶液セットを用いて作成した。

ICP 質量分析装置の測定条件を表 3 に示す。

なお、これまで、測定溶液には、迅速分析法に準じて酸化剤として次亜塩素酸ナトリウム 0.5 mL を添加していたが、添加しないこととした。これは、Peach leaves から TMAH アルカリ抽出-分離精製法によりヨウ素の抽出操作を行った測定溶液を測定する際、測定溶液に次亜塩素酸ナトリウムを添加した場合は I-127 及び I-129 の計数値が徐々に上昇する現象が見られたが、Fujiwara 等³⁾ の測定手法を参考として添加しないこととしたところ、安定した計数値が得られたためである。

表 3 測定条件

項 目	設 定 値	
	I-127	I-129
ネブライザーガス流量	0.99～1.08 L/min	0.99～1.08 L/min
補助ガス流量	0.70～0.80 L/min	0.70～0.80 L/min
プラズマガス流量	17 L/min	17 L/min
リアクションガス流量	—	O ₂ : 0.6 mL/min
ICP RF 出力	1500 W	1500 W
積分時間	1 秒	2 秒
繰返し回数	5 回	10 回
測定回数	3 回	9 回

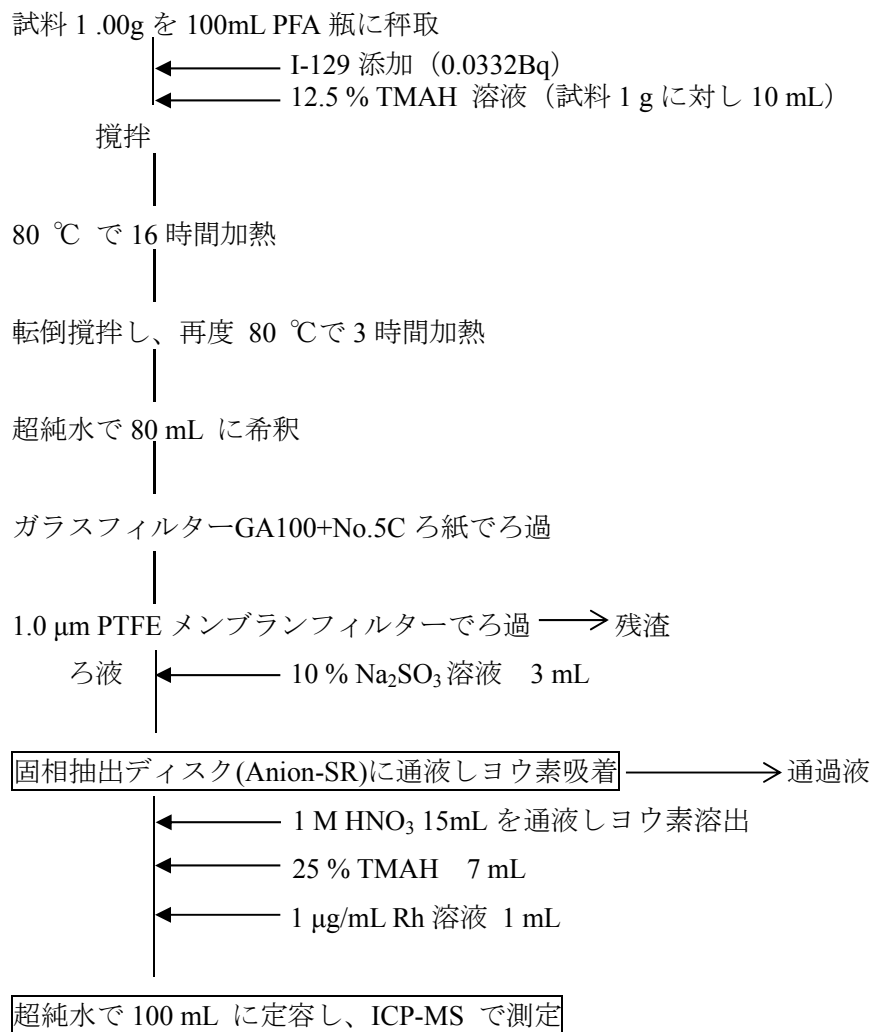


図 1 分析フロー図

3. 調査結果及び考察

3.1 DRC ガスの最適流量の確認

測定結果を図 2 及び図 3 に示す。最も低い I-129 BEC が得られた酸素流量は、いずれの場合も 0.6 mL/min であった。このことから、I-129 測定における酸素の最適流量は 0.6 mL/min 程度であると考えられる。

3.2 測定溶液中 I-127 濃度と I-129 検出限界値の関係

I-129 の検出限界値は、STD1 (I-129 を添加していない溶液) における標準偏差の 3 倍に相当する濃度とした。図 4 に、I-129 の検出限界値を示す (平成 23 年度の測定結果も含む)。

I-127 濃度が 5.0×10^{-5} g/mL 以上の範囲では、I-127 濃度が低くなるほど I-129 検出限界値が低くなる傾向がみられる一方、 5.0×10^{-5} g/mL 以下の範囲では、m/z129 の計数率は 1 cps 程度と十分に低く、検出限界値は 0.03~0.04 mBq/mL 程度でほぼ一定であった。

I-129 の検出下限値を低減するためには、I-127 担体の添加量を調整し、測定溶液中の I-127 濃度を 5.0×10^{-5} g/mL 以下に抑えることが有効であると考えられる。これは、葉菜試料に I-127 担体を 5 mg 添加して抽出操作を行い、測定溶液を 100 mL に定容した場合の濃度にほぼ相当する。

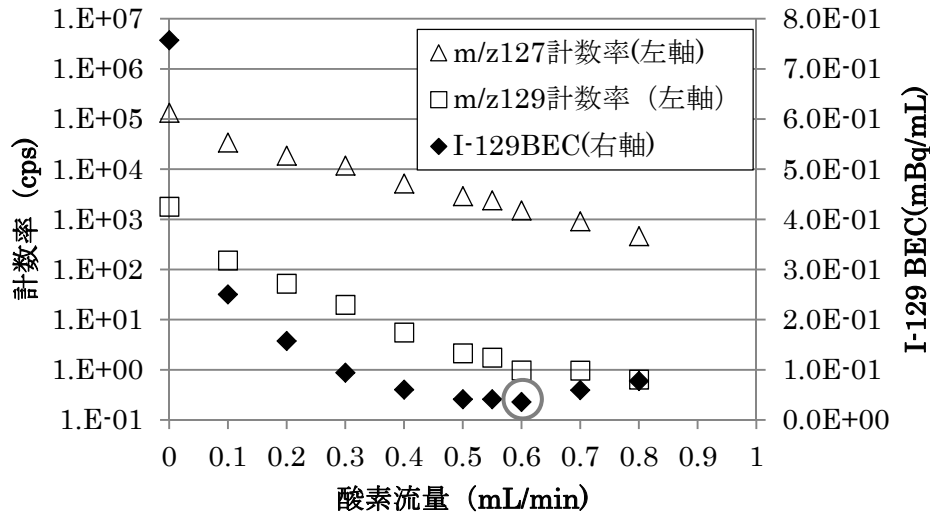


図2 酸素流量に対する m/z 127、129 の計数率及び I-129 BEC の関係
(I-127 : 8.5×10^{-9} g/mL) ※マイクロミストネブライザ使用

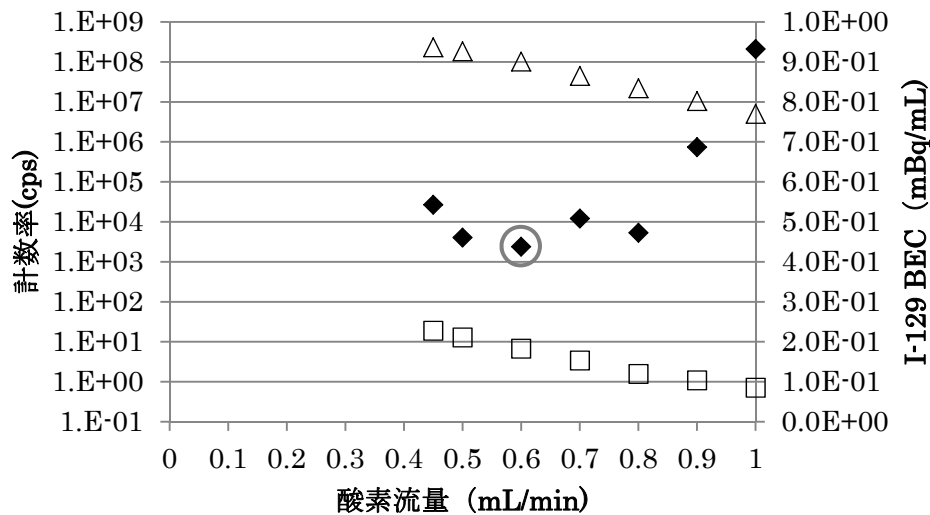


図3 酸素流量に対する m/z 127、129 の計数率及び I-129 BEC の関係
(I-127 : 1.0×10^{-3} g/mL) ※同軸ネブライザ使用

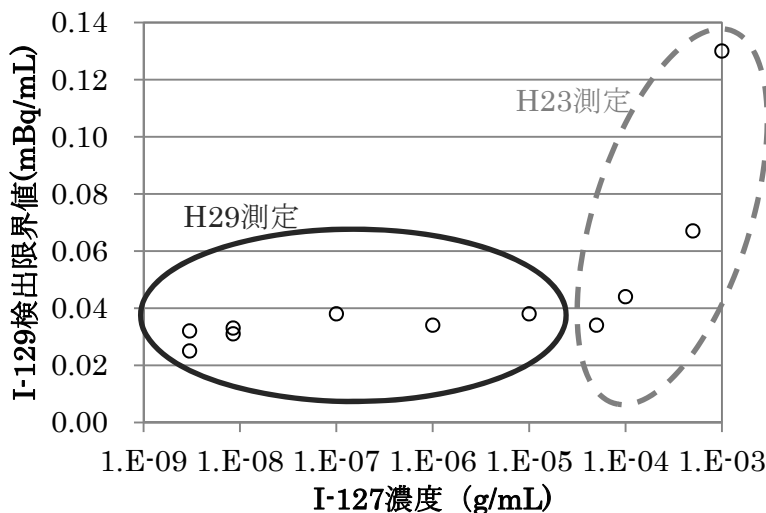


図4 I-127 濃度と I-129 検出限界値の関係

3.3 葉菜試料に添加した I-129 の定量

測定結果を表 4-1 及び表 4-2 に示す。I-129 の回収率は両試料ともほぼ 100 % であり、本分析法により、葉菜から抽出した I-129 を定量的に測定できることが確認できた。

なお、I-127 の回収率は 88 % 及び 83 % であった。

表 4-1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による I-129 濃度測定結果

試料名	測定溶液中濃度 ^{※1} (測定値) (mBq/mL)	回収率 100%と 仮定した場合の 測定溶液中濃度 ^{※2} (mBq/mL)	回収率 ^{※3} (%)
I-129 添加 Peach leaves①	0.359±0.023	0.332	108±7
I-129 添加 Peach leaves②	0.337±0.024	0.332	102±7
操作ブランク	検出限界以下 (0.024±0.016)	—	—

表 4-2 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による I-127 濃度測定結果

試料名	測定溶液中濃度 ^{※1} (測定値) (g/mL)	回収率 100%と 仮定した場合の 測定溶液中濃度 ^{※2} (g/mL)	回収率 ^{※3} (%)
I-129 添加 Peach leaves①	$2.61 \times 10^{-9} \pm 0.026 \times 10^{-9}$	2.96×10^{-9}	88±1
I-129 添加 Peach leaves②	$2.46 \times 10^{-9} \pm 0.053 \times 10^{-9}$	2.96×10^{-9}	83±2
操作ブランク	検出限界以下 ($0.017 \times 10^{-9} \pm 0.008 \times 10^{-9}$)	—	—

※1 誤差は、I-129 については 9 個、I-127 については 5 個の測定値から求めた標準偏差

※2 Peach leaves 及び I-129 標準溶液に含まれる I-127 及び I-129 がすべて測定溶液に移行するとして計算

※3 操作ブランクが検出限界以下であったため、操作ブランク補正は実施していない

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。

- 1) 本研究で使用している ICP 質量分析装置について、I-129 測定における酸素の最適流量を確認した結果、0.6 mL/min 程度であると見込まれた。
- 2) I-129 の検出下限値を低減するためには、I-127 担体の添加量を調整し、測定溶液中の I-127 濃度を 5.0×10^{-5} g/mL 以下に抑えることが有効であると考えられる。
- 3) I-129 を添加した葉菜試料を TMAH アルカリ抽出-分離精製法により分析し、I-129 を測定した結果、ほぼ 100 % の回収率が得られた。本分析法により、葉菜から抽出した I-129 を定量的に測

定できることが確認できた。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26「ヨウ素-129 分析法」(平成 8 年)
- 2) 文部科学省放射能測定法シリーズ 32「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」(平成 16 年)
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 2528-2533(2011)
- 4) 公益財団法人日本分析センター：平成 27 年度環境試料中の放射能調査に係る分析業務－環境試料中のトリチウム及びヨウ素-129 調査に係る分析業務 (平成 28 年)

表土中ヨウ素-129 分布調査

武藤逸紀

1. はじめに

青森県では、再処理工場から放出される核種の一つである I-129 について、環境における分布状況と蓄積状況を把握するため、原子燃料サイクル施設周辺地域の複数の地点において、表土中 I-129 濃度の調査を行っている。

平成11～12年度にかけて、比較対照（青森市）1地点を含む20地点について、中性子放射化分析法を用いてバックグラウンド調査を実施した。

平成18年3月31日から再処理工場においてアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が開始されたことから、上記バックグラウンド調査を実施した地点について、中性子放射化分析法に比べ高感度な加速器質量分析法による表土中の I-129 調査を平成21年度に実施した。

今般、再処理工場しゅん工前の蓄積状況を把握するため、再度調査を実施することとした。平成29年度は事前調査として過去に調査を実施した各地点の状況を確認するとともに、一部の地点については試料採取を実施した。

2. 調査方法

2.1 調査地点

調査地点を表1及び図1に示す。調査地点は平成11～12年度調査及び平成21年度調査と同一地点とした。

2.2 事前調査

調査地点の状況について、平成21年度の調査から変化がないか確認した。

2.3 試料採取

過去の調査と同様に、直径10cm×深さ5cmのステンレス製採土器を用いて、1地点につき9点採取し、これらを混合し1試料とすることとした。また、平成21年度の調査において、再処理工場から放出された気体廃棄物の影響が考えられ¹⁾、かつ平成21年度の調査から土地の改変がなく、継続して採取可能な地点であるはまなす公園、弥栄平、沖付については、I-129が地下深部へ移動している可能性があるため、0～5cm、5～10cm、10～20cmの3試料を採取することとした。

今年度は全20地点のうち10地点について採取を行った。

表1 調査地点一覧

調査地点	過去の調査における採取日	備考
①吹越	H12.8.21、H21.9.9	個人宅
②横浜町※	H11.7.8、H21.7.16	個人所有牧草地
③出戸	H12.8.21、H21.9.8	屯所裏空き地
④はまなす公園	H12.8.21、H21.9.9	公園内
⑤二又	H12.8.21、H21.9.9	旧小学校校庭隅
⑥富ノ沢	H12.8.21、H21.9.8	個人宅
⑦老部川	H12.8.21、H21.9.8	個人宅
⑧弥栄平	H12.8.21、H21.9.8	道路脇草地
⑨尾駁※	H11.7.8、H21.7.16	県一般環境大気測定局裏
⑩沖付	H12.8.21、H21.9.8	松葉採取地点
⑪尾駁沼南畔	H12.8.22、H21.9.8	旧道脇草地
⑫戸鎖	H12.8.22、H21.9.9	小学校校庭隅
⑬最終処分場	H12.8.22、H21.9.9	処分場擁壁外側
⑭市柳沼北畔	H12.8.22、H21.8.27	国道脇草地
⑮豊原	H12.8.22、H21.9.9	集会場
⑯市柳沼東畔	H12.8.22、H21.8.27	国道脇草地
⑰酪農センター	H12.8.22、H21.9.8	敷地内草地
⑱八森	H12.8.22、H21.9.8	集会場
⑲千歳平※	H11.7.8、H21.7.16	児童公園
⑳青森市※	H11.7.21、H21.7.21	小学校跡地 (H11)、青年の家跡地内敷地 (H21)

※：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング対象地点（県実施分）

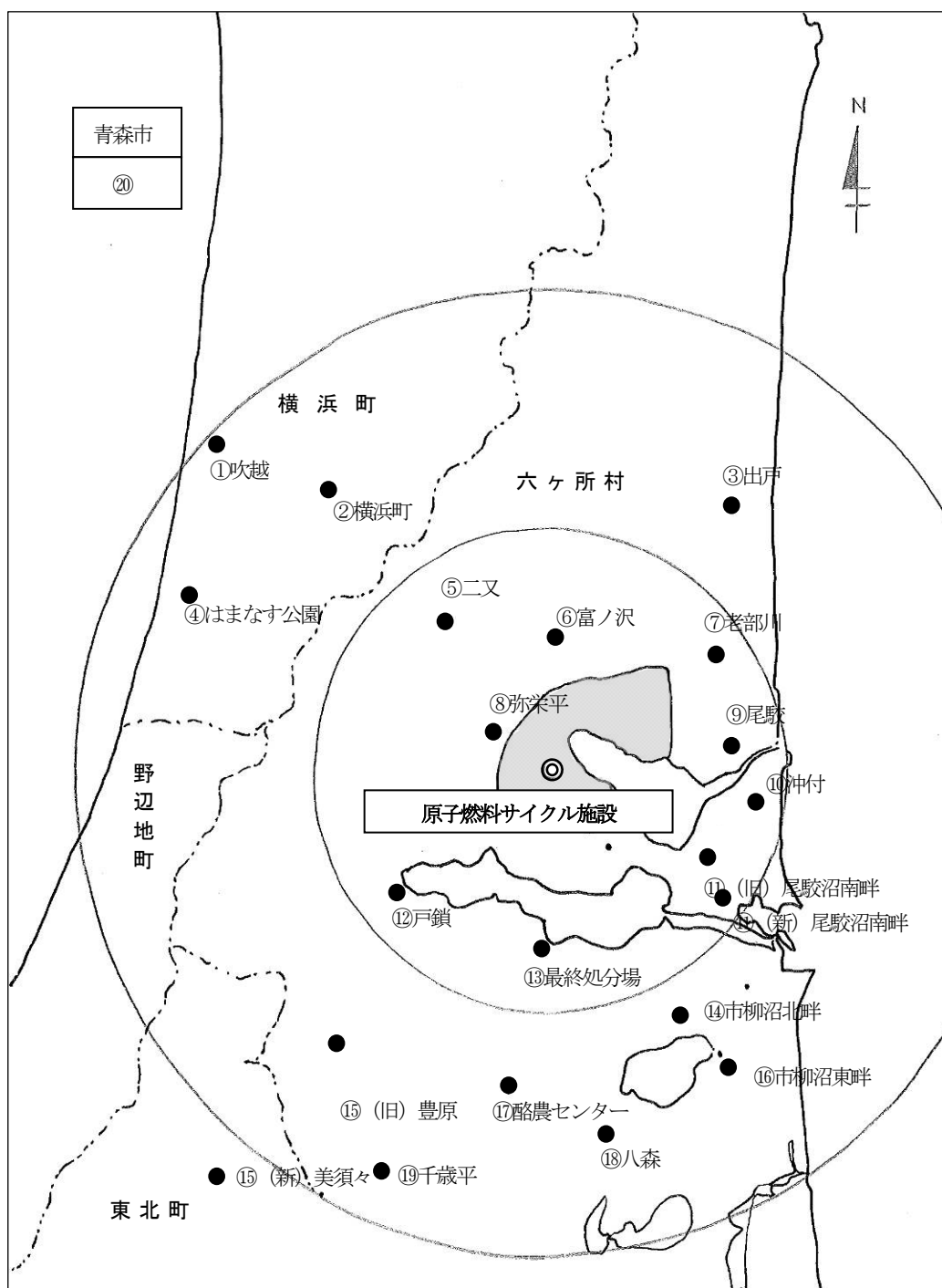


図1 調査地点図

3. 調査結果

3.1 事前調査結果

事前調査の結果を表2に示す。全20地点のうち、出戸、尾駮、尾駮沼南畔、豊原、青森市の5地点について土地の改変が確認された。検討の結果、出戸については同一地点内で採取場所を変更し、尾駮、尾駮沼南畔、豊原、青森市については調査地点を変更することとした。

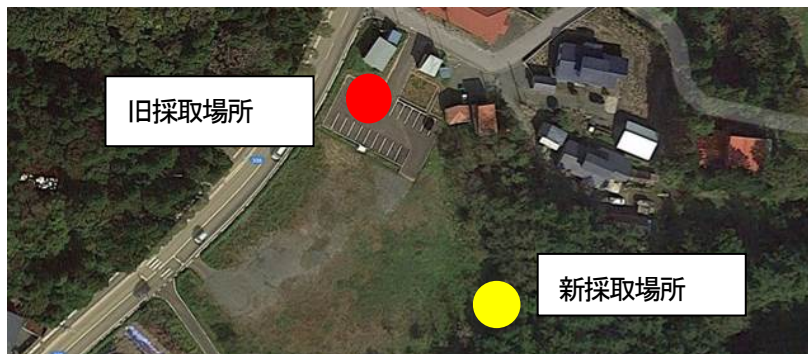
表2 事前調査結果

従来の調査地点	地点状況	継続採取
①吹越	変化なし	○
②横浜町	変化なし	○
③出戸	土地の改変あり	採取場所変更
④はまなす公園	変化なし	○
⑤二又	変化なし	○
⑥富ノ沢	変化なし	○
⑦老部川	変化なし	○
⑧弥栄平	変化なし	○
⑨尾駮	土地の改変あり	採取場所変更
⑩沖付	変化なし	○
⑪尾駮沼南畔	土地の改変あり	採取場所変更
⑫戸鎖	変化なし	○
⑬最終処分場	変化なし	○
⑭市柳沼北畔	変化なし	○
⑮豊原	土地の改変あり	地点変更
⑯市柳沼東畔	変化なし	○
⑰酪農センター	変化なし	○
⑱八森	変化なし	○
⑲千歳平	変化なし	○
⑳青森市	土地の改変あり	採取場所変更

3.2 地点状況

土地が改変された地点について、地点図及び採取場所を図2～12に示す。

出戸については、採取場所に駐車場が設置されており採取は不可能であったため、採取場所を南東側に60m移動することとした。



地図データ: Google、@2017ZENRIN

図2 出戸地点図



図3 出戸 旧採取場所



図4 出戸 新採取場所



地図データ: Google、@2017ZENRIN

図5 尾駈沼南畔地点図

尾駈沼南畔については、採取場所に盛土等の改変がなされており、今後も改変される可能性が高いと考えられたことから、採取場所を北東側に600m移動することとした。



図6 旧採取場所



図7 新採取場所



地図データ: Google、@2017ZENRIN

図8 豊原地点図



図9 旧採取場所



図10 新採取場所

豊原については、採取場所一帯に砂利が敷設されており採取不可能であったことから、採取地点を豊原集会所から、南西側に2 km 移動し美須々生涯学習センターに変更することとした。

尾駁及び青森市については、原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリングと同一の調査地点であるが、平成 26 年度及び平成 28 年度に土地の改変等を受け採取場所を変更していることから、本調査においても同様に変更する。



国土地理院地図 (電子国土Web)

図11 表土 (尾駈) の新旧採取場所



国土地理院地電子地形図 (タイル)

図12 表土 (青森市) の新旧採取場所

4. 試料採取

採取状況を表3に示す。未採取の地点については、平成30年度に採取する。

表3 採取状況

調査地点	採取日	採取試料
①吹越	H29.11.10	0～5 cm の1試料
②横浜町	H29.7.5	0～5 cm の1試料
③出戸	H29.11.16	0～5 cm の1試料
④はまなす公園		0～5 cm、5～10 cm、10～20 cm の3試料
⑤二又	H29.11.16	0～5 cm の1試料
⑥富ノ沢	H29.11.16	0～5 cm の1試料
⑦老部川	H29.11.16	0～5 cm の1試料
⑧弥栄平		0～5 cm、5～10 cm、10～20 cm の3試料
⑨尾駸	H29.7.14	0～5cm の1試料
⑩沖付		0～5 cm、5～10 cm、10～20 cm の3試料
⑪尾駸沼南畔		0～5 cm の1試料
⑫戸鎖		0～5 cm の1試料
⑬最終処分場		0～5 cm の1試料
⑭市柳沼北畔		0～5 cm の1試料
⑮美須々生涯学習センター	H29.11.10	0～5 cm の1試料
⑯市柳沼東畔		0～5 cm の1試料
⑰酪農センター		0～5 cm の1試料
⑱八森		0～5 cm の1試料
⑲千歳平	H29.7.10	0～5 cm の1試料
⑳青森市	H29.7.13	0～5 cm の1試料

文 献

- 1)青森県原子力センター所報（平成22年度）

編 集 委 員

竹ヶ原 仁（委員長） 松尾英輔（副委員長） 澤田 譲 木村芳伸
神 俊雄 安積 潔 工藤俊明

青森県原子力センター所報 第12号 (2017)

平成30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

