

青森県原子力センター所報

第17号

令和4年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.17 (2022)

青森県原子力センター

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

は　じ　め　に

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

主な業務は環境放射線等の監視に関すること、立地した原子力施設の安全性に関することとなっており、このうち環境放射線等の監視については、測定する項目や地点、調査する環境試料の種類等を原子力施設毎に定めたモニタリング計画を作成し、この計画に基づき、空間放射線の測定・監視、環境試料の分析・測定を行っています。

当センター所報は、これら日常のモニタリングで得られた知見や関連して実施している調査研究の成果をとりまとめたものです。とりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員の方々から貴重なご意見・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。

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

令和5年3月

青森県原子力センター

所 長 神 正 志

目 次

I 研究報告

1. トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いた環境試料中のヨウ素-129 分析の検討 3
葛西邦生 檜山宝孝 安積 潔

II 技術報告

1. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査
ー令和 3 年度調査結果ー 19
檜山宝孝 工藤 翔 大下内 伸 幸 進 沼山 聡 佐々木耕一
2. CsI(Tl)シンチレーション検出器を用いた空間線量率計と既設機器との測定結果の
比較検討 39
澤田 亮 阿部真之 神 俊雄

III 令和 4 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 51
澤田 譲
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査
(令和 4 年度調査及び令和 5 年度以降の調査内容) 61
檜山宝孝 工藤 翔 大下内 伸 幸 進 沼山 聡 佐々木耕一
3. トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いた環境試料中のヨウ素-129 分析の検討 63
葛西邦生 檜山宝孝 安積 潔

原稿の分類について

本所報の原稿は、以下のとおり分類している。

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

I 研 究 報 告

トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いた 環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

葛西邦生 檜山宝孝 安積 潔*

これまでに検討してきた水酸化テトラメチルアンモニウムによるアルカリ抽出と固相抽出ディスクによる分離精製を組み合わせた手法^{1,2)}において、アルカリ抽出後にペルオキシ二硫酸カリウムにより有機態ヨウ素を分解する工程を追加することで、試料中ヨウ素回収率が80~90%程度に向上することが分かった。また、同分析法をモニタリング対象試料に適用し、トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いて測定したところ、検出限界値は $2.6 \times 10^{-3} \sim 4.5 \times 10^{-3}$ Bq/kg 生程度となった。この値は、六ヶ所再処理施設稼働時の葉菜中 I-129 濃度の評価値 3.6×10^{-2} Bq/kg 生³⁾を下回る水準であり、本分析法は同施設の施設影響の有無を確認できる可能性が示唆された。

1. はじめに

本県は、「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基本計画」に基づき、環境試料（表土）中 I-129 の分析測定を放射能測定法シリーズ「ヨウ素-129 分析法」⁴⁾（以下「ヨウ素-129 分析法」という。）の放射化学分析法（ β 線測定）により実施している。他方、放射能測定法シリーズ「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」⁵⁾（以下「迅速分析法」という。）では、前処理工程にアルカリ抽出及び固相抽出法を、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。

ヨウ素-129 分析法は、供試量を増加することにより検出限界値を低減できるが、高温状態で酸素ガスを用いるため、分析に当たっては安全面に十分に配慮する必要がある。また、加速器質量分析（AMS）法は、I-129/I-127 原子数比で 10^{-14} までの I-129 を検出できるが、装置が大規模であり一般には普及しておらず、外部の装置を利用する必要があることから利用時間等の制約を受ける。迅速分析法に記載された分析目標レベル（検出限界値）は、ヨウ素-129 分析法に劣るものの、供試量を増加し、さらに同重体等によるスペクトル干渉を低減する機構を備えた ICP 質量分析装置を用いることにより、検出限界値を低減させることが可能であり⁶⁾、かつ検出限界値では AMS 法に及ばないが、AMS 法のように利用時間等の制約を受けることもなく即応性の点で有利である。

このことから、本県では、平成 22 年度から ICP 質量分析装置を用いた環境試料（土、葉菜、海藻）中のヨウ素-129 分析法について検討を行い、平成 25 年度からは、葉菜を対象として検討を行ってきた。

迅速分析法では、試料表面に付着したヨウ素を抽出する炭酸ナトリウムを用いた簡便な方法を用いているが、本調査では、試料表面に付着したヨウ素に加え試料内部のヨウ素を抽出することを目的として、乾燥・粉碎した試料を高濃度のアルカリ（25%水酸化テトラメチルアンモニウム（以下「TMAH」という。））溶液により分解・抽出し、抽出液を固相抽出ディスクに通すことによりヨウ素を分離する方法（以下「TMAH アルカリ抽出-分離精製法」という。）を用いることとした⁷⁾。

*：現青森県危機管理局原子力安全対策課

上記分析法については、アルカリ抽出工程では95～100%程度と高い割合で試料中ヨウ素を抽出できるものの、分離精製工程ではヨウ素の回収率が60～80%程度と低いこと、ヨウ素の化学形により回収率が異なる可能性があることなどがこれまでに明らかとなっている^り。

また、Dangら⁸⁾により、湖沼水中I-129の分析において有機態ヨウ素を無機態ヨウ素に分解するためにはペルオキシ二硫酸カリウム(K₂S₂O₈)による酸化が有効であることが報告されている。さらに、Yangら⁹⁾は、土壌中I-129の分析において、ペルオキシ二硫酸カリウムにより有機態ヨウ素を無機態ヨウ素に分解した後に溶媒抽出法により分離精製を行っている。これらのことから、TMAHアルカリ抽出-分離精製法のヨウ素のアルカリ抽出後に、ペルオキシ二硫酸カリウムにより有機態ヨウ素を分解する工程を追加することで、試料中ヨウ素回収率の向上について検討した。

また、測定には近年市販が開始され、従来の装置と比較してI-129の検出感度が大幅に向上しているトリプル四重極型ICP質量分析装置を用いた。

本報では、令和元年度から令和4年度にかけて得られた検討結果について報告する。

2. 調査方法

2.1 対象試料

標準物質として、NISTより頒布されているSRM 1573a Tomato Leaves（以下「Tomato Leaves」という。）、SRM 1547 Peach Leaves（以下「Peach Leaves」という。）及びSRM 1515 Apple Leaves（以下「Apple Leaves」という。）を用いた。標準試料の認証値及び参考値（抜粋）を表1に示す。なお、試料分取に当たっては、デシケータ内で5日間以上乾燥後に秤量した。

環境試料として、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試料として採取したキャベツ及びハクサイを用い、真空凍結乾燥後に粉碎し試料とした。各試料の採取日、乾燥重量%及び1g乾あたりの生重量を表2に示す。

表1 標準試料の認証値及び参考値（抜粋）

試料	濃度 (mg/kg 乾)					
	ヨウ素	カドミウム	モリブデン	ナトリウム	カリウム	カルシウム
Tomato Leaves	0.85 ^{※1}	1.517 ± 0.027 ^{※2}	0.46 ^{※1}	136.1 ± 3.7 ^{※2}	26,760 ± 480 ^{※2}	50,450 ± 550 ^{※2}
Peach Leaves	0.3 ^{※1}	0.0261 ± 0.0022 ^{※2}	0.0603 ± 0.0068 ^{※2}	23.8 ± 1.6 ^{※2}	24,330 ± 380 ^{※2}	15,590 ± 160 ^{※2}
Apple Leaves	0.3 ^{※1}	0.0132 ± 0.0015 ^{※2}	0.095 ± 0.011 ^{※2}	24.4 ± 2.1 ^{※2}	16,080 ± 210 ^{※2}	15,250 ± 100 ^{※2}

※1 NISTが示している参考値

※2 認証値 ± 不確かさ

表 2 環境試料の採取日、乾燥重量%、1 g 乾あたりの生重量

試料	採取日	乾燥重量%	1 g 乾あたりの生重量 相当量 (g 生)
キャベツ	2021/10/18	5.53	18.0
ハクサイ	2021/9/8	3.24	30.8

2.2 試薬・器具等

使用した試薬・器具等を表 3 に示す。

表 3 使用した試薬・器具等

名称	規格等	製造元
I-129 標準溶液	40.5 ± 1.1 Bq/g (基準日 2019.3.1)	Eckert&Ziegler
水酸化テトラメチルアンモニウム	TAMAPURE-AA	多摩化学工業 (株)
硝酸	TAMAPURE-AA	多摩化学工業 (株)
ペルオキシ二硫酸カリウム	窒素・りん測定用	富士フイルム和光純薬 (株)
ロジウム標準液	ICP 分析用	富士フイルム和光純薬 (株)
純水	Milli-Q Advantage により製造	メルク (株)
固相抽出用ディスク	Anion-SR	3M bioanalytical
ガラス繊維ろ紙	GA-100	アドバンテック東洋 (株)
メンブレンフィルター	PTFE、孔径 0.1 μm	アドバンテック東洋 (株)
遠心分離機	H-40α	(株) コクサン

2.3 測定機器等

ICP 質量分析はアジレント・テクノロジー (株) 製 Agilent8900 (以下、「Agilent8900」という。) を用いた。測定条件は表 4 のとおりである。

本装置で I-129 を測定する場合、キャリアガスに含まれる Xe-129 による m/z129 に対するスペクトル干渉を低減するため、リアクションセルに酸素を導入する。この他に m/z129 に対するスペクトル干渉の原因となる可能性のある元素として、I-127 ($^{127}\text{I}^+\text{H}_2^+$)、Mo-97 ($^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^+$)、Cd-113 ($^{113}\text{Cd}^{16}\text{O}^+$)、In-113 ($^{113}\text{In}^{16}\text{O}^+$) が挙げられるが、表 4 の I-129 測定条件においては、モリブデン及びカドミウムによる m/z129 に対する干渉の大きさは、1 g/mL あたり I-129 濃度換算でそれぞれ 7.9×10^{-8} g/mL (=0.52 Bq/mL) 及び 2.1×10^{-8} g/mL (=0.14 Bq/mL) であり、本検討において調製した測定用試料における濃度範囲 (Mo-97 ($6.0 \times 10^{-10} \sim 4.6 \times 10^{-9}$ g/mL)、Cd-113 ($1.3 \times 10^{-10} \sim 1.5 \times 10^{-8}$ g/mL)) の範囲では干渉を考慮する必要はない。なお、I-127 及びインジウムについては、それぞれ $0 \sim 4 \times 10^{-4}$ g/mL 及び $0 \sim 1 \times 10^{-4}$ g/mL の範囲では m/z129 に対する干渉は検出されない。

表4 I-127 及び I-129 の測定条件

項 目	設 定 値	
	m/z 127	m/z 129
RF 出力	1550 W	同左
プラズマガス流量	15 L/min	同左
ネブライザーガス流量	1.08 L/min	同左
補助ガス流量	0.9 L/min	同左
コリジョンリアクションセルガス流量	なし	O ₂ :1.05 mL/min
スプレーチャンバー温度	2°C	同左
サンプリング位置	8 mm	同左
軸方向加速	0 V	同左
スキャンタイプ	シングル四重極	MS/MS
積分時間	1 秒	10 秒
繰返し回数	10 回	同左

2.4 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の分析法

2.4.1 葉菜中ヨウ素の分析方法

図1に本報告で検討した TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の分析法のフローを示すとともに、分析操作を(1)~(4)に示す。

平成30年度までに検討してきた TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の分析法は、分離精製工程における葉菜由来のヨウ素の回収率が60~80%程度と低いこと、また、ヨウ素の化学形により回収率が異なると考えられること等が明らかとなっている²⁾。本報告では、ヨウ素をアルカリ抽出した後に、ペルオキシ二硫酸カリウム (K₂S₂O₈) を添加し有機態ヨウ素を分解する工程を追加することにより、回収率の向上を図った。

(1) アルカリ抽出

PFA 容器に対象試料約1g 乾を秤取し、ヨウ素担体及び12.5%TMAH 10 mL を加え攪拌、80°C 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した。その後、再度攪拌し、容器壁面に付着した試料を落とし、さらに80°Cで3時間加熱した。

放冷後、純水により内容物を遠沈管に洗い移し、遠心分離機により3500~4800 rpm で2~4時間遠心分離した。その後、上澄み液をメンブレンフィルターにより吸引ろ過した。

(2) ペルオキシ二硫酸カリウムによる有機態ヨウ素の分解及び残存するペルオキシ二硫酸カリウムの失活

有機態ヨウ素を無機態ヨウ素に分解するため、アルカリ抽出液にペルオキシ二硫酸カリウムを添加し、加熱した。TMAH アルカリ抽出-分離精製法においては固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離精製において、固相抽出ディスクに吸着させるために亜硫酸ナトリウムにより溶液中のヨウ素をI⁻に還元するが、その際にペルオキシ二硫酸カリウムが溶液中に残存すると還元を阻害するため、残存するペルオキシ二硫酸カリウムを水との反応により失活させた。その後、ガラス繊維ろ紙及びメンブレンフィルターを用いて吸引ろ過した。詳細な分析条件の検討については、2.4.2に記載する。

なお、ペルオキシ二硫酸カリウムは低温では比較的安定であるが、溶液中では40°C以上で分解してラジカルを生成し、有機物と反応・分解することが知られている。

(3) 固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離精製

溶液中のヨウ素をI⁻に還元するため、アルカリ抽出液に還元剤として10% (wt/vol) 亜硫酸

ナトリウムを加えた。固相抽出ディスクをアセトンにより洗浄し、メタノール 15 mL、純水 15 mL、4% (wt/vol) 水酸化ナトリウム 15 mL の順に通液し、さらに純水 15 mL を 3 回繰返し通液することでコンディショニングを行った。その後、この固相抽出ディスクに試料溶液を通液しヨウ素を吸着させ、1M 硝酸溶液でヨウ素を溶離し、これを溶離液とした。

(4) 測定用試料の調製

溶離液に 25%TMAH を 7 mL 加えアルカリ性とした後、純水で 100 mL に定容、必要に応じて希釈し、測定溶液とした。

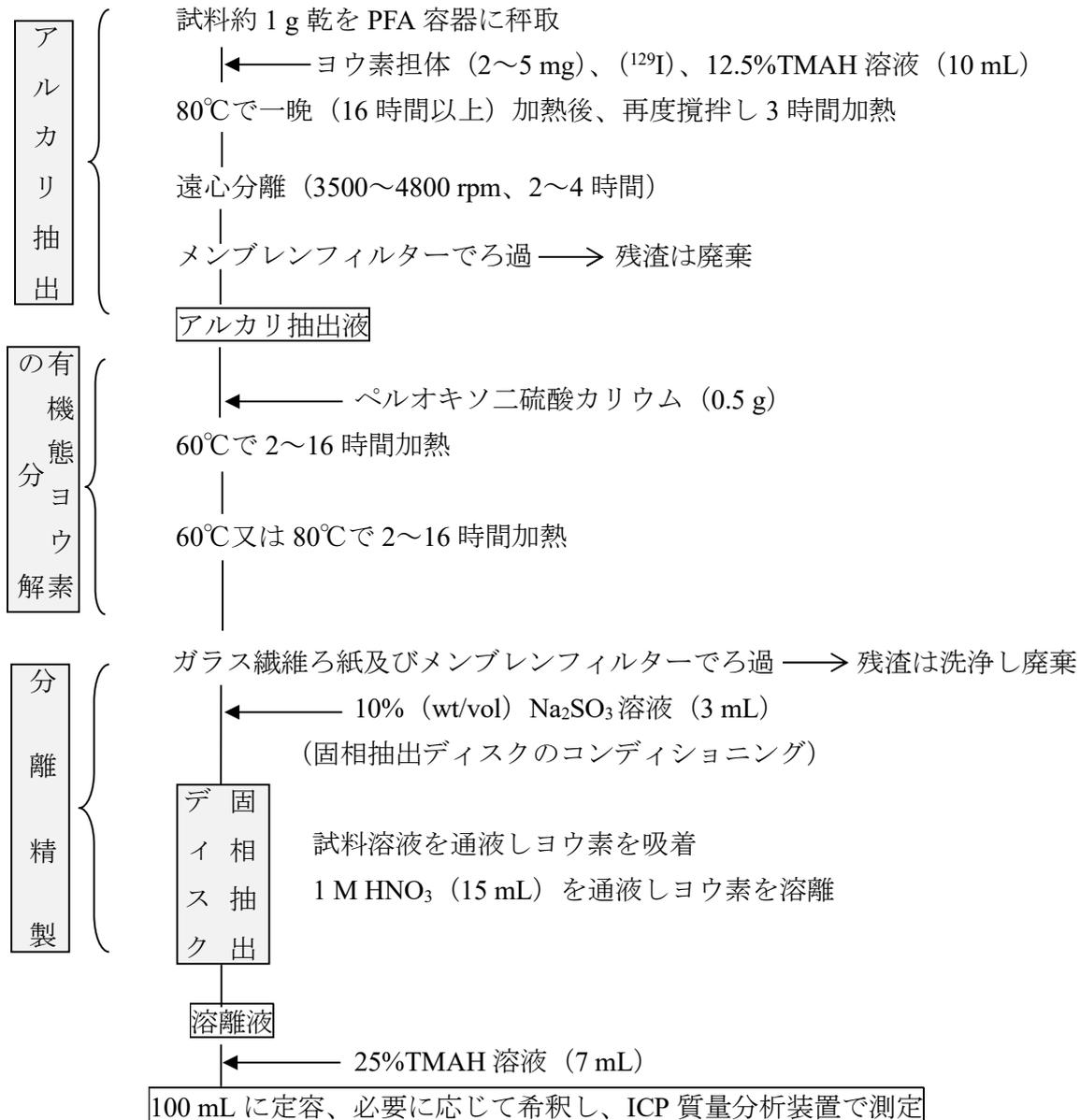


図 1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法のフロー図

2.4.2 残存するペルオキシ二硫酸カリウムを失活させる分析条件の検討

有機態ヨウ素の分解により消費されるペルオキシ二硫酸カリウムの量は、葉菜の種類や供試量により異なると考えられる。このため、葉菜の種類や供試量が異なる場合においても安定して高い回収率を得るためには、十分なペルオキシ二硫酸カリウムを添加し、有機態ヨウ素を分解した

上で残存するペルオキシ二硫酸カリウムを失活させる必要があると考えられる。

ペルオキシ二硫酸カリウムは、水溶液中では 60℃以上で水と反応して失活することが知られていることから¹⁰⁾、溶液中に残存する過剰なペルオキシ二硫酸カリウムの分解を促進させるための加熱温度及び時間について検討することとした。

1.0×10⁻⁸ g/mL のヨウ素標準溶液（1%TMAH 溶液）にペルオキシ二硫酸カリウムを 0.5 g 添加し、60℃又は 80℃で 2～16 時間加熱した後、2.4.1(3)により分離精製を行い、固相抽出ディスクに捕集後、溶離された I-127 の量を測定した。

2.4.3 有機態ヨウ素を酸化・分解するための加熱条件の検討

葉菜中ヨウ素の分離精製工程における回収率を向上させるためには、葉菜中ヨウ素をアルカリ抽出した後、①ペルオキシ二硫酸カリウムを添加し適切な温度・時間で加熱することにより有機態ヨウ素を無機態ヨウ素に分解し、②さらに加熱することにより、残存するペルオキシ二硫酸カリウムを水との反応により失活させればよいと考えられる。

本項では、Tomato Leaves を試料としてヨウ素のアルカリ抽出工程の後にペルオキシ二硫酸カリウムを 0.5 g 添加し、①60℃でそれぞれ 2 時間、4 時間、16 時間加熱後、②2.4.2 で得られた条件で加熱を行い、有機態ヨウ素を酸化・分解するための最適な条件について検討した。

2.5 他植物試料への適用

2.4 では、Tomato Leaves を用いて分析条件の検討を行った。本分析法が他植物試料にも適用可能であることを確認するため、Peach Leaves、Apple Leaves を用いて試料中ヨウ素回収率を確認することとした。

試料内部に取り込まれたヨウ素が抽出できていることを確認するためヨウ素担体を加えず、2.4.1 の分析法により各標準試料を分析した。なお、有機態ヨウ素を酸化・分解するための加熱条件については 2.4.3 の評価結果で決定した分析条件を用いた。

2.6 ヨウ素担体添加量の検討

本分析法では、試料中 I-129 の回収率を算出するため、対象試料に既知量の安定ヨウ素（ヨウ素担体）を添加する。ヨウ素担体の回収率は、本来であれば試料中に含まれる安定ヨウ素を考慮するために(1)式により算出する必要があるが、簡単のために試料中ヨウ素の割合が無視できるほど小さくなるよう多量の担体を添加し、(2)式により算出することとした。

各種野菜のヨウ素濃度は表 5 のとおりである⁹⁾。ヨウ素濃度を表 5 で最も高いホウレンソウの値である 0.1 µg/g 生、水分率を 90%として試料中ヨウ素量を算出すると、今回の検討で用いる供試量約 1 g 乾中のヨウ素量は 1 µg 程度となり、仮にヨウ素担体量を 2 mg とした場合、ヨウ素担体添加量に対する試料中ヨウ素の比率は 0.05%程度となり、十分に小さくなる。目標とする検出レベルや試料の種類によっては、供試量を増加することも考えられることから、ヨウ素担体添加量 2、5 mg の場合の回収率を確認した。

$$\text{ヨウ素担体回収率} = \frac{\text{分離精製後の I-127 回収量(mg)}}{\text{添加した I-127 量(mg) + 試料中の I-127 量(mg)}} \times 100 \quad (1)$$

$$\text{ヨウ素担体回収率} = \frac{\text{分離精製後の I-127 回収量(mg)}}{\text{添加した I-127 量(mg)}} \times 100 \quad (2)$$

表 5 各野菜のヨウ素濃度

野菜	ヨウ素濃度 (μg/g 生)
キャベツ	0.002~0.03
ダイコン	0.005~0.01
タマネギ	0.003~0.04
ニンジン	0.003~0.03
ハクサイ	0.01~0.02
ホウレンソウ	0.01~0.1

※ 迅速分析法⁵⁾の P.19 から引用。

2.7 本分析法における I-129 の定量及び検出限界値の検討

I-129 標準溶液を 1.25%TMAH により 0.0459 Bq/mL に希釈した。この希釈液を Tomato Leaves (8.2×10^{-2} mBq/g 乾) 約 1 g 乾に添加し、試料中の I-129 濃度よりも十分に大きくなるよう、I-129 含有量が約 6 mBq、18 mBq、60 mBq となるよう調製した。これら I-129 添加試料を 2.4.1 の分析法により分析した。なお、有機態ヨウ素を酸化・分解するための加熱条件については、2.4.3 の評価結果で決定した分析条件を用いた。

2.8 モニタリング対象試料への適用

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試料として採取したキャベツ及びハクサイを用いて試料中ヨウ素回収率を確認した。

ヨウ素-129 標準溶液を 1.25%TMAH を用いて 0.0627 Bq/mL に希釈した。この希釈液をキャベツ及びハクサイ約 1 g 乾に添加し、試料中の I-129 濃度よりも十分に大きくなるよう I-129 含有量が約 19 mBq となるよう調製した。その他の手法は、2.7 と同じ条件で分析した。

3. 結果と考察

3.1 TMAH アルカリ抽出-分離精製法による葉菜中ヨウ素の分析法

3.1.1 残存するペルオキシ二硫酸カリウムを失活させる条件の検討

溶液中に残存するペルオキシ二硫酸カリウムの水との反応により失活させるために適した加熱温度及び時間について、2.4.2 により検討した。測定結果を図 2 に示す。ペルオキシ二硫酸カリウム添加後、ペルオキシ二硫酸カリウムの水との反応により失活させるための加熱温度を 60°C とした場合、分離精製工程におけるヨウ素回収率は時間経過とともに徐々に上昇したが、16 時間加熱した場合においても 62%にとどまった。60°C ではペルオキシ二硫酸カリウムが残存し、亜硫酸ナトリウムによるヨウ素の還元が阻害されるためと考えられ、水との反応により完全に失活させるためには十分でなかったものと考えられる。

一方、加熱温度を 80℃とした場合、ヨウ素回収率は 2 時間加熱により 93%、4 時間以上加熱によりほぼ 100%であり、ペルオキシ二硫酸カリウムが水との反応によりほぼ失活されたと考えられる。

以上のことから、溶液中に残存するペルオキシ二硫酸カリウムを完全に失活させるためには、80℃で 4 時間以上加熱し、水と反応させればよいと考えられる。

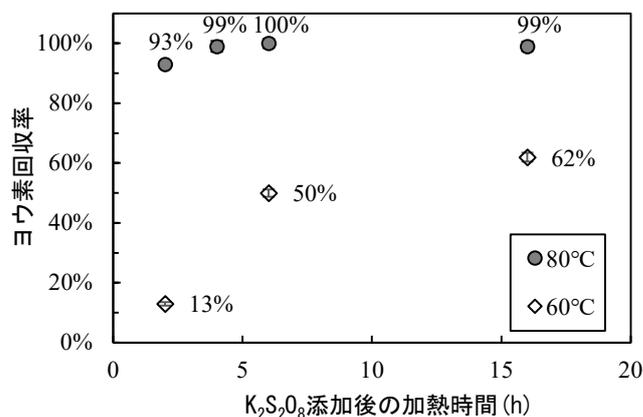


図 2 K₂S₂O₈ 添加後の加熱条件とヨウ素回収率の関係

※ K₂S₂O₈ 添加量 : 0.5 g

3.1.2 有機態ヨウ素を酸化・分解するための加熱条件の検討

3.1.1 の結果から、80℃で 4 時間以上加熱することでペルオキシ二硫酸カリウムを完全に失活させることができることがわかった。本項では、標準試料のアルカリ抽出液にペルオキシ二硫酸カリウムを添加し、①60℃で 2～16 時間加熱し有機態ヨウ素を無機態ヨウ素に分解した後、②80℃で 4 時間以上加熱し残存する過剰のペルオキシ二硫酸カリウムを水との反応により失活させることで、①有機態ヨウ素を酸化・分解するための最適な条件を検討した。

測定結果を表 6 及び図 3 に示す。分離精製工程におけるヨウ素回収率は 87～88%であり、ペルオキシ二硫酸カリウムを添加しない場合よりも回収率が向上した。また、60℃での加熱時間 (2～16 時間) によらず回収率が同程度であったことから、有機態ヨウ素を分解するための 60℃での加熱時間は、2 時間で十分であると考えられる。

表 6 Tomato Leaves アルカリ抽出液の分離精製工程における $K_2S_2O_8$ 添加後の有機態ヨウ素を分解させるための加熱条件とヨウ素回収率の関係

上段： ^{127}I 量、下段：回収率^{※1}

$K_2S_2O_8$ 添加量	$K_2S_2O_8$ 添加後の 加熱条件	【分離精製前】	【分離精製後】	【分離精製後】	未回収 ^{※3} (μg)	
		アルカリ抽出液中 ^{127}I 量(μg)	溶離液中 ^{127}I 量(μg)	通過液中 ^{127}I 量(μg)		
0.5 g	60°C2 h →80°C4 h	0.79 ± 0.009 (100 %)	0.69 ± 0.03 (88 ± 3 %)	0.04 ± 0.003 (5 ± 0.3 %)	0.05 ± 0.03 (6 ± 4 %)	
		0.75 ± 0.02 (100 %)	0.66 ± 0.009 (88 ± 1 %)	0.05 ± 0.003 (7 ± 0.4 %)	0.04 ± 0.02 (5 ± 2 %)	
	60°C4 h →80°C4 h	0.79 ± 0.009 (100 %)	0.68 ± 0.02 (87 ± 2 %)	0.05 ± 0.002 (6 ± 0.3 %)	0.06 ± 0.02 (7 ± 2 %)	
		0.79 ± 0.009 (100 %)	0.69 ± 0.03 (88 ± 4 %)	0.04 ± 0.002 (5 ± 0.3 %)	0.05 ± 0.03 (7 ± 4 %)	
	0 g (比較対照)	—	0.77 ± 0.005 (100 %)	0.57 ± 0.002 (74 ± 0.3 %)	0.16 ± 0.0003 (20 ± 0.04 %)	0.04 ± 0.005 (5 ± 0.7 %)
			0.82 ± 0.003 (100 %)	0.51 ± 0.004 (62 ± 0.5 %)	0.20 ± 0.005 (25 ± 0.6 %)	0.11 ± 0.007 (13 ± 0.9 %)
—		0.78 ± 0.02 (100 %)	0.66 ± 0.01 (85 ± 1 %)	0.10 ± 0.004 (13 ± 0.5 %)	0.01 ± 0.02 (2 ± 3 %)	
		0.75 ± 0.02 (100 %)	0.48 ± 0.02 (64 ± 2 %)	0.16 ± 0.004 (22 ± 0.5 %)	0.10 ± 0.02 (14 ± 3 %)	

※1 回収率：アルカリ抽出液（分離精製前）の ^{127}I 量との比

※2 通過液：固相抽出ディスクに吸着されず通過した溶液

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

※4 誤差は、繰り返し測定により得られた測定値 (n=10) の標準偏差

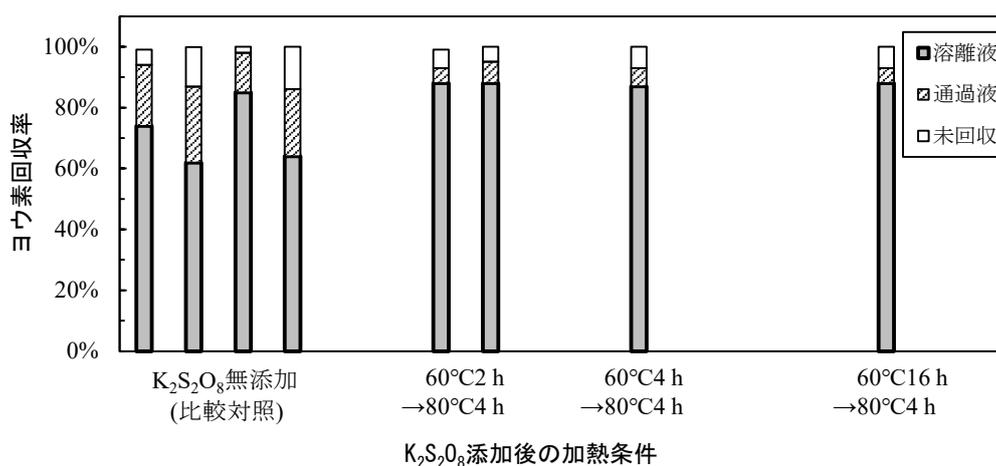


図 3 $K_2S_2O_8$ 添加後の加熱条件と分離精製工程におけるヨウ素回収率の関係

※ $K_2S_2O_8$ 添加量：0.5 g

※ $K_2S_2O_8$ 無添加は n=4、60°C2h→80°C4h は n=2、他は n=1 で実施

3.2 他植物試料への適用

表 7 に試料ごとのヨウ素回収率を示す。Peach Leaves 及び Apple Leaves においても、抽出液中のヨウ素量に対する試料中ヨウ素の回収率は 91%以上と良好であり、有機態ヨウ素は効率よく分解されていると考えられる。ここまでの検討で用いた標準試料は本来対象とする葉菜とは性状が異なるが、性状の異なる複数の試料について回収率が良好であったことから、同じ植物試料である葉菜についても、本分析法が適用できると期待される。

表 7 試料ごとのヨウ素回収率

上段：¹²⁷I 量、下段：試料中ヨウ素の回収率*

試料	【分離精製前】	【分離精製後】
	アルカリ抽出液中 ¹²⁷ I 量(μg)	溶離液中 ¹²⁷ I 量(μg)
Tomato Leaves	0.667 ± 0.016 (100%)	0.632 ± 0.009 (94.8 ± 1.3%)
Peach Leaves	0.278 ± 0.006 (100%)	0.256 ± 0.002 (91.9 ± 0.7%)
Apple Leaves	0.244 ± 0.006 (100%)	0.228 ± 0.003 (93.5 ± 1.4%)

※ アルカリ抽出液（分離精製前）中の¹²⁷I 量との比

3.3 ヨウ素担体添加量の検討

表 8 に各試料におけるヨウ素担体添加量とその回収率を示す。ヨウ素担体添加量 5 mg までのヨウ素担体回収率は試料によらず 80%程度であった。先述の 2.6 のとおり、放射能濃度の検出限界値等によっては、今後供試量を増加することも考えられるが、今回の検討においては供試量 1 g 乾（生重量相当量として 10 g 程度）とした。このため、表 5 で最も試料中ヨウ素濃度が高いホウレンソウの値（0.1 μg/g 生）を用いて見積もった場合でも、ヨウ素担体添加量に対する試料中ヨウ素の比率が 0.05%と十分に小さくなる 2 mg を以降の検討におけるヨウ素担体添加量とした。

表 8 試料ごとのヨウ素担体添加量の回収率

試料	ヨウ素担体回収率 (%)	
	ヨウ素担体添加量	
	2 mg	5 mg
Tomato Leaves	78.9、83.1	76.9、80.7
Peach Leaves	81.4、83.2	77.4
Apple Leaves	86.2、88.6	77.0、86.4

※ ヨウ素担体回収率は(2)式により算出した。

3.4 I-129 添加試料を用いた検討及び検出限界値

表 9 に I-129 添加試料の測定結果を示す。I-129 測定値をヨウ素担体回収率で補正した値の I-129 添加量に対する比は 100 ± 1 ~ 102 ± 2 (%)と、よく一致していた。また、ヨウ素担体回収率は 81%

以上と良好であり、ヨウ素担体を用いた回収率補正が可能であると考えられる。

今回の検討における I-129 濃度の検出限界値は、ICP 質量分析装置の検出限界値 (0.1×10^{-12} g/mL) 及び Tomato Leaves の供試量 1 g 乾 (生重量相当量として 10 g 程度)、ヨウ素担体回収率 (80%) を用いると、(3)式のとおり 8.2×10^{-3} Bq/kg 生程度であった。

$$\begin{aligned} \text{I-129 濃度の検出限界値} &= \frac{0.1 \times 10^{-12} \frac{\text{g}}{\text{mL}} \times \frac{100 \text{ mL}}{0.01 \text{ kg 生}}}{0.80} \\ &= 1.25 \times 10^{-9} \text{ g/kg 生} \\ &= 8.2 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg 生} \quad (3) \end{aligned}$$

表 9 I-129 添加試料の測定結果

試料	¹²⁹ I 添加量	ヨウ素担体回収率※ (%)	¹²⁹ I 測定値 (g/試料)	¹²⁹ I 添加量に対する ¹²⁹ I 測定値をヨウ素担体回収率で補正した値の比 (%)
	5.67 mBq (8.68×10^{-10} g)	83.9	$(7.47 \pm 0.19) \times 10^{-10}$	102 ± 2
Tomato Leaves	16.6 mBq (2.54×10^{-9} g)	81.3	$(2.11 \pm 0.04) \times 10^{-9}$	102 ± 2
	56.2 mBq (8.68×10^{-9} g)	81.3	$(7.04 \pm 0.06) \times 10^{-9}$	100 ± 1

※ ヨウ素担体添加量に対する比

3.5 モニタリング試料への適用

表 10 に各試料における測定結果を示す。ヨウ素担体回収率は 78%以上と良好であった。I-129 測定値をヨウ素担体回収率で補正した値の I-129 添加量に対する比は、 $93 \pm 2 \sim 105 \pm 5(\%)$ と、よく一致しており、本分析法がモニタリング試料 (葉菜) においても適用可能であることが確認された。

今回の検討における I-129 濃度の検出限界値は、ICP 質量分析装置の検出限界値 (0.1×10^{-12} g/mL) 及びキャベツの供試量 1 g 乾 (生重量 18.0 g 相当) 又はハクサイの供試量 1 g 乾 (生重量 30.8 g 相当)、ヨウ素担体回収率 (80%) を用いて(3)式と同様の計算をすると、キャベツにおいては 4.5×10^{-3} Bq/kg 生程度、ハクサイにおいては 2.6×10^{-3} Bq/kg 生程度であった。また、ヨウ素担体及び I-129 を添加した本分析条件におけるこれらの I-129/I-127 は 10^{-6} 程度であった。この値は、日本原燃 (株) の再処理施設の安全審査において評価された再処理施設が最大再処理能力で稼働 (使用済燃料を年間 800tU 処理) した場合における平常時の葉菜中 I-129 濃度 (3.6×10^{-2} Bq/kg 生) 及びこの濃度並びに迅速分析法⁵⁾に記載されている野菜中ヨウ素濃度のうち最もヨウ素濃度が高いホウレンソウの値 ($0.1 \mu\text{g/g 生}$) から算出した I-129/I-127 の値である 10^{-5} 程度を下回っていることから、本分析法は同施設の施設影響の有無を確認できる可能性が示唆された。

表 10 I-129 添加試料の測定結果

試料	^{129}I 添加量	ヨウ素担体 回収率※ (%)	^{129}I 測定値 (g/試料)	^{129}I 添加量に対する ^{129}I 測定 値をヨウ素担体回収率で補正 した値の比 (%)
R3 キャベツ	19.3 mBq (2.96×10^{-9} g)	78.9	$(2.46 \pm 0.11) \times 10^{-9}$	105 ± 5
	19.3 mBq (2.96×10^{-9} g)	83.3	$(2.53 \pm 0.10) \times 10^{-9}$	103 ± 4
	19.3 mBq (2.96×10^{-9} g)	81.6	$(2.26 \pm 0.06) \times 10^{-9}$	93 ± 2
R3 ハクサイ	19.2 mBq (2.94×10^{-9} g)	79.2	$(2.32 \pm 0.14) \times 10^{-9}$	100 ± 6
	18.8 mBq (2.89×10^{-9} g)	81.2	$(2.21 \pm 0.11) \times 10^{-9}$	94 ± 5
	19.0 mBq (2.91×10^{-9} g)	82.2	$(2.26 \pm 0.07) \times 10^{-9}$	95 ± 3

※ ヨウ素担体添加量に対する比

4. まとめ

- 1) 本分析法について、ヨウ素のアルカリ抽出後にペルオキシ二硫酸カリウムを添加し、60°Cで2時間加熱及び80°Cで4時間加熱する工程を追加することにより、ヨウ素の回収率を90%程度まで向上させることができた。ペルオキシ二硫酸カリウムにより有機態ヨウ素が無機態ヨウ素に分解され、かつ、過剰なペルオキシ二硫酸カリウムが完全に失活されたことから、分離精製工程において固相抽出ディスクに捕集できるようになったものと考えられた。
- 2) I-129 を添加した試料を用いた I-129 測定については、I-129 測定値をヨウ素担体回収率で補正した値が I-129 添加量によく一致しており、ヨウ素担体回収率も良好であることから、ヨウ素担体を用いた回収率補正が可能であると考えられた。
- 3) 原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画に基づき採取したキャベツ及びハクサイの I-129 測定における検出限界値は $2.6 \times 10^{-3} \sim 4.5 \times 10^{-3}$ Bq/kg 生程度、また、ヨウ素担体及び I-129 を添加した分析条件における I-129/I-127 は 10^{-6} 程度であった。これは再処理施設が最大再処理能力で稼働した場合における平常時の葉菜中 I-129 濃度 (3.6×10^2 Bq/kg 生) 及びこの濃度並びに迅速分析法⁵⁾に記載されている野菜中ヨウ素濃度のうち最もヨウ素濃度が高いホウレンソウの値 ($0.1 \mu\text{g/g}$ 生) から算出した I-129/I-127 の値である 10^{-5} 程度を下回っていることから、本分析法は同施設の施設影響の有無を確認できる可能性が示唆された。

文 献

- 1) 安積潔、神俊雄、五十嵐飛鳥、木村芳伸：青森県原子力センター所報,第 14 号,3-17(2019)
- 2) 木村芳伸、木村秀樹：青森県原子力センター所報,第 8 号,3-10(2013)
- 3) 再処理事業所再処理事業変更許可申請書（日本原燃株式会社、2020 年 7 月 29 日変更許可）
- 4) 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）
- 5) 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）

- 6) 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)
- 7) K.Tagami, S.Uchida, I.Hirai, H.Tsukada, H.Takeda : Determination of chlorine,bromine and iodine in plant samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry after leaching with tetramethyl ammonium hydroxide under a mild temperature condition, *Analytica Chimica Acta*, **570**, 88-92(2006)
- 8) Haijun Dang, Xiaolin Hou, Per Roos, Sven P.Nielsen : Release of iodine from organic matter in natural water by $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$ oxidation for ^{129}I determination, *Anal. Methods*, **5**, 449-456(2013)
- 9) Gousheng Yang, Hirofumi Tazoe, Masatoshi Yamada : Improved approach for routine monitoring of ^{129}I activity and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ atom ratio in environmental samples using TMAH extraction and ICP-MS/MS, *Anal. Chimica. Acta.*, **1008**, 66-73(2018)
- 10) 中村栄子、並木博 : 水中の全リン定量のためのペルオキシ二硫酸カリウムによる試料の分解における加熱効果, *分析化学*, **35**(12), T124(1986)

II 技 術 報 告

環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 —令和3年度調査結果—

檜山宝孝 工藤 翔 大下内 伸
幸 進* 沼山 聡* 佐々木耕一*

1. はじめに

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

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

本報告は令和 3 年度の調査結果について、とりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

対象試料及び調査地点等については、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。また、これらの調査地点については、図 1 に示す。

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 TFWT 濃度とした。乾燥物については、無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去後、燃焼して得られた燃焼生成水中のトリチウム濃度 (Bq/L) を測定し、これを非交換型 OBT 濃度とした。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。精米については、含まれる水分量が少ないため、OBT のみ測定した。

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

* : 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 比放射能を算出した。また、乾燥試料の燃焼による二酸化炭素量の測定によって、試料中の全炭素量を算出した。これらによって求めた C-14 比放射能と全炭素量から、試料中の C-14 濃度を算出した。測定条件は表 2 のとおりである。

表 1 対象試料及び調査地点・核種（令和 3 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		○	○	○	—
	二又		○	○	○	—
	豊原		○	○	○	—
精米	千樽	1	—	○	○	—
	野辺地町		—	○	○	—
	室ノ久保		—	○	○	—
	二又		—	○	○	—
	戸鎖		—	○	○	—
	平沼		—	○	○	—
ハクサイ	倉内	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 (ヒラメ等)	六ヶ所村前面海域	4	○	○	—	—
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村前面海域	2	○	○	—	○

表 2 トリチウム及び炭素-14 の測定条件

項目	³ H	¹⁴ C
測定機器	日立製作所（現:日本レイテック） LSC-LB7 又は LSC-LB5	Perkin Elmer 1220 QUANTULUS
試料容器	外側ポリエチレン、内側テフロン 145mL 又はテフロン 100mL	テフロン 3mL
シンチレータ	Ultima Gold LLT 又は Ultima Gold uLLT 50 mL	5w/v%ブチル PBD—トルエン溶液 0.5 mL
測定供試量	50 mL	2 mL
測定時間	500 分	500 分



図1 調査地点図

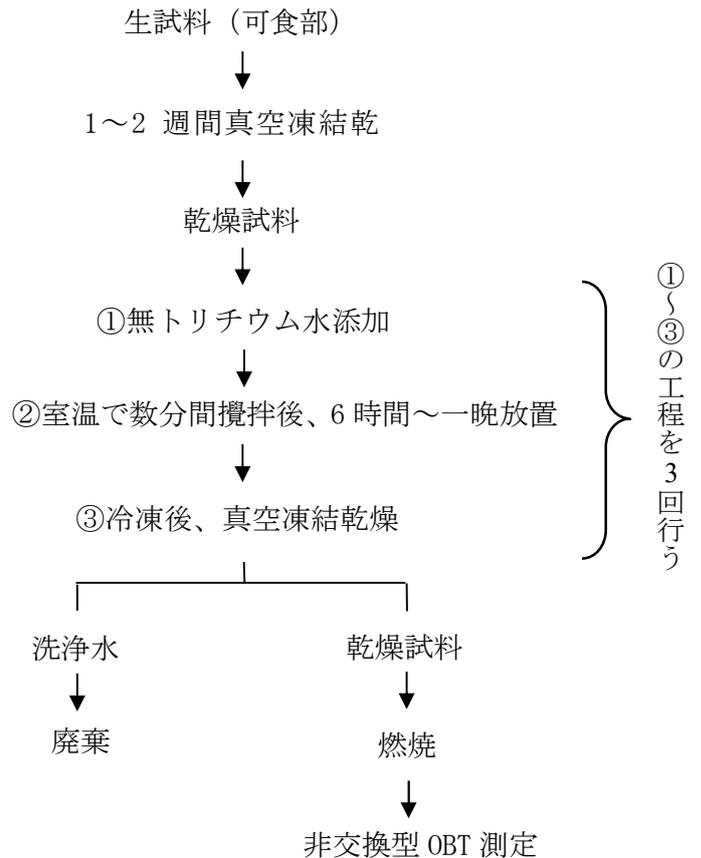


図2 非交換型 OBT の分析工程

(3) I-129

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

3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において、平成 18 年 4 月から令和 4 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。

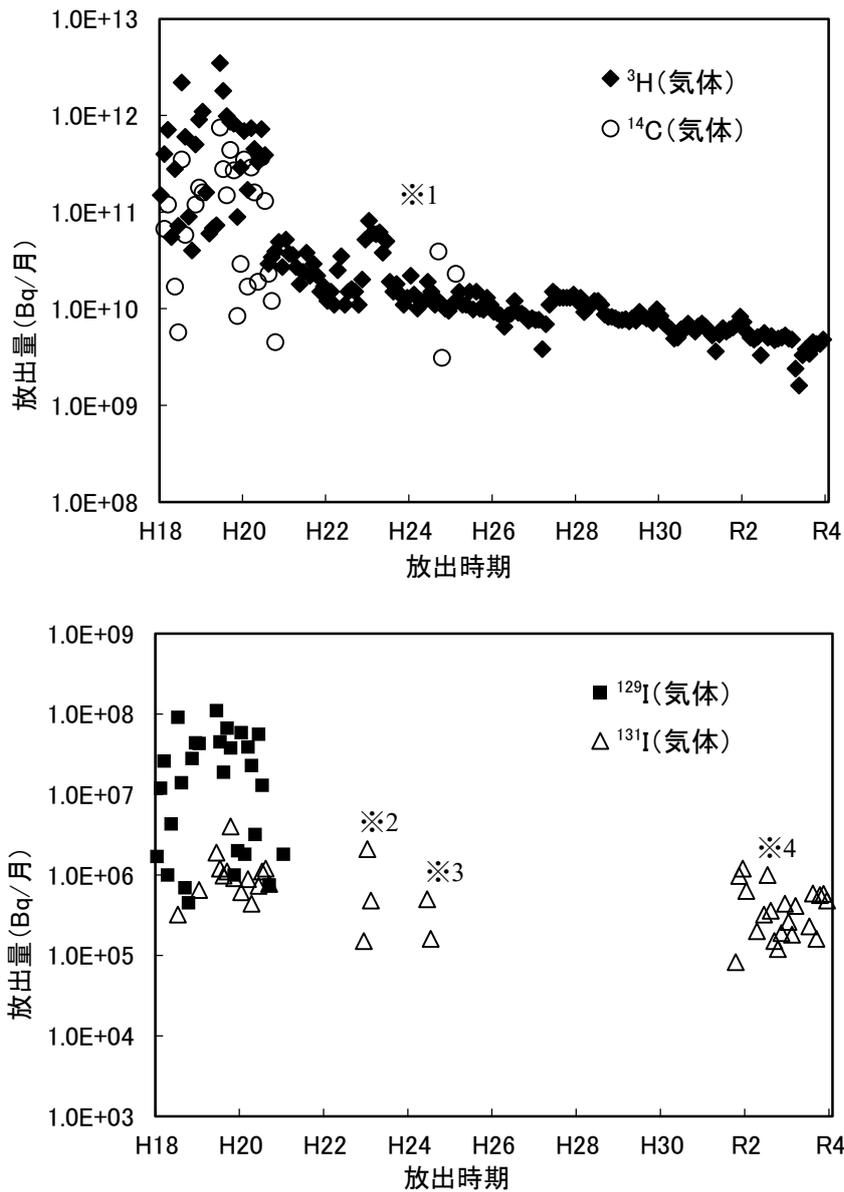


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成18年4月～令和4年3月)

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

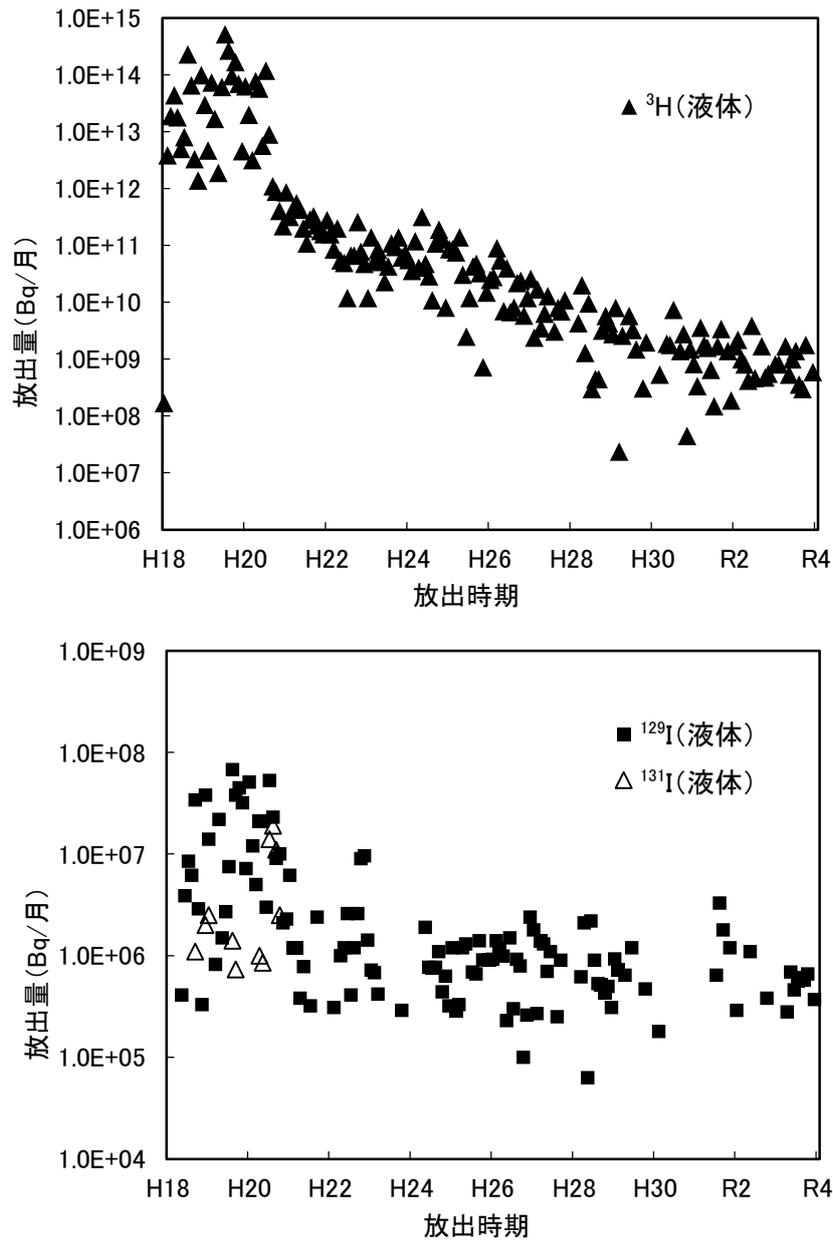


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～令和4年3月)

※検出限界以下は非表示。なお、検出限界は概算で、 ^3H (液体): $\sim 10^7$ (Bq/月)程度、 ^{129}I (液体): $\sim 10^5$ (Bq/月)程度、 ^{131}I (液体): $\sim 10^5$ (Bq/月)程度。

4. 調査結果

4.1 トリチウム

牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表 3 及び図 5 に示す。牛乳については、TFWT で検出限界以下～0.66 Bq/L、非交換型 OBT で検出限界以下～0.51 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.72 Bq/L であり、牛乳及び飲料水ともこれまでの測定値と同程度であった。なお、横浜町については令和 3 年度から採取地点を変更している。

表 3 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度（令和 3 年度）

採取地点	採取月	R3 年度調査結果			(参考) H19~R2 年度 調査結果		
		牛乳（原乳）		飲料水 ^{※1} (Bq/L)	牛乳（原乳）		飲料水 ^{※1} (Bq/L)
		TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT ^{※2} (Bq/L)	
六原 ^{※3}	4 月	*	0.34±0.10	*			
	7 月	*	*	*			
	10 月	*	0.45±0.10	*	*~0.63	*~0.61	*~0.46
	1 月	*	*	*			
横浜町 ^{※4}	4 月	0.58±0.13	*	0.64±0.10			
	7 月	0.54±0.13	*	0.66±0.12			
	10 月	0.66±0.13	*	0.55±0.11	*~0.51	*~0.70	*~0.48
	1 月	0.63±0.14	*	0.72±0.12			
二 又	4 月	*	*	*			
	7 月	*	0.35±0.10	*			
	10 月	*	*	*	*~0.57	*~0.63	*~0.34
	1 月	*	*	*			
豊 原	4 月	*	*	0.24±0.07			
	7 月	*	*	*			
	10 月	0.37±0.10	0.51±0.10	*	*~0.73	*~0.77	*~0.59
	1 月	*	*	*			

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界（令和 3 年度の検出限界は、TFWT が 0.31~0.38 Bq/L、非交換型 OBT が 0.33~0.42 Bq/L、飲料水が 0.23~0.33 Bq/L）以下とし、「*」と表示した。

※1 平成 22 年度から調査開始。

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

※3 平成 25 年度から調査開始。

※4 令和 3 年度から採取地点変更。

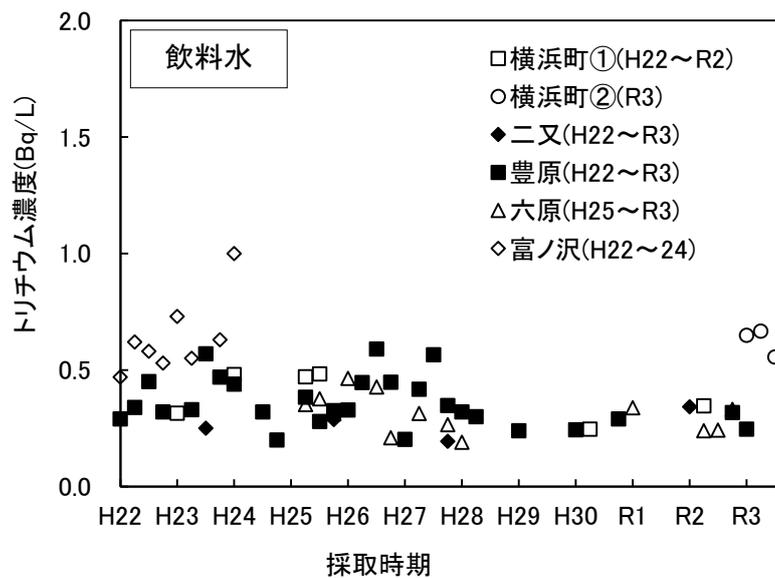
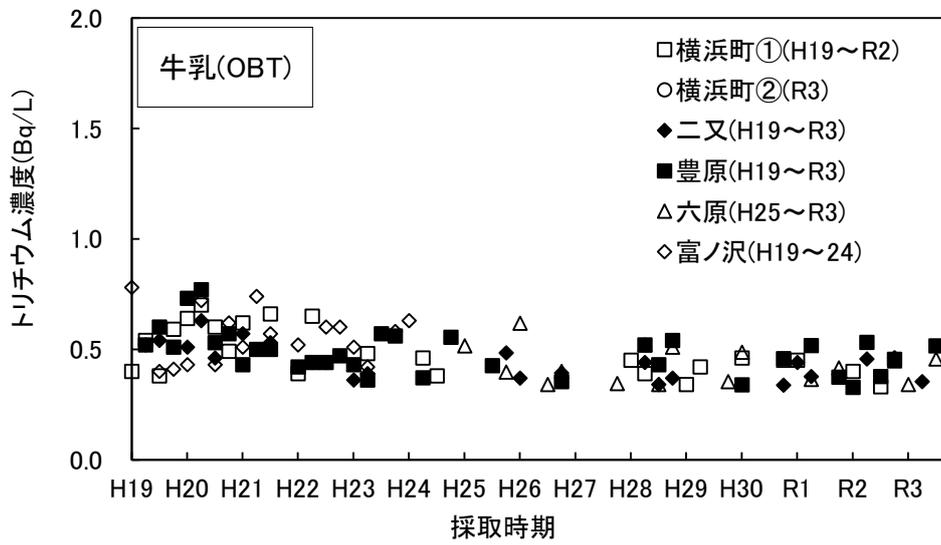
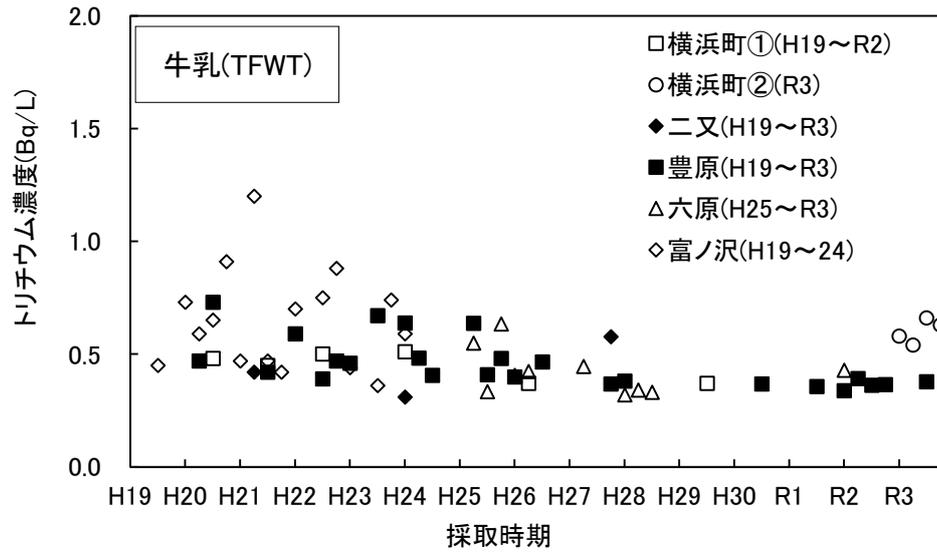


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化
 ※検出限界以下は非表示。

精米におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表4及び図6に示す。精米の非交換型OBTは検出限界以下～0.59 Bq/Lであり、これまでの測定値と同程度であった。

表4 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (令和3年度)

試料名	採取地点	採取月	R3年度調査結果		(参考) H19~R2年度
			調査結果		調査結果
			非交換型 OBT (Bq/L)		OBT ^{※1} (Bq/L)
精米	千樽	10月	*		*~0.89
	野辺地町	9月	0.51±0.13		*~0.59
	室ノ久保 ^{※2}	10月	*		*~0.44
	二又	10月	0.59±0.11		*~1.0
	戸鎖	9月	0.41±0.10		*~0.66
	平沼 ^{※3}	9月	0.36±0.10		*~0.67

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界（令和3年度の検出限界は0.38～0.41 Bq/L）以下とし、「*」と表示した。

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

※2 平成30年度から調査開始。

※3 平成25年度から調査開始。

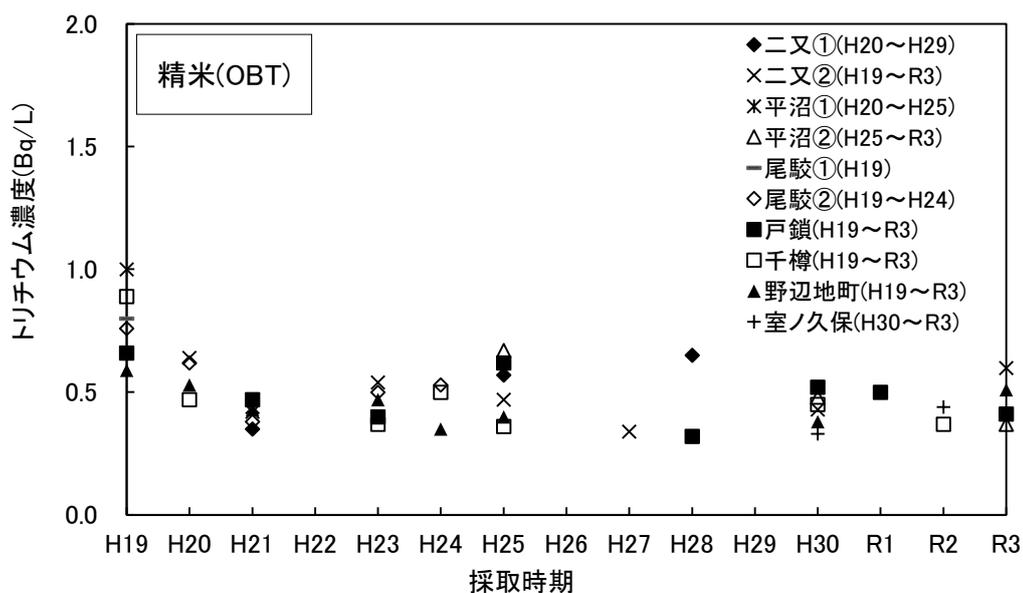


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化

※検出限界以下は非表示。

※凡例において、青森県と日本原燃株式会社の調査地点が同じものについては、

①が青森県、②が日本原燃株式会社調査分。

野菜におけるトリチウムの測定結果及びその経年変化を表5及び図7に示す。野菜についてはTFWTで検出限界以下～0.64 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.33 Bq/Lであり、これまでの測定値と同程度であった。

なお、陸上試料である牛乳（原乳）、精米及び野菜のトリチウム濃度は、近年の大気及び雨水中トリチウム濃度*と同程度であった。

参考として、東京・千葉及び青森における降水中トリチウム濃度の経年変化を図8に示す。大気圏内核実験の影響により、降水中のトリチウム濃度は昭和30年台には100 Bq/Lを超えていたが、その後はゆるやかに減少し、現在は1 Bq/Lを下回る水準である⁶⁻⁷⁾。また、降水中のトリチウム濃度は、青森が東京・千葉に比べやや高めの傾向が見られる。

* 青森県実施の環境放射線モニタリング（平成19～令和2年度）における大気及び雨水のトリチウム濃度は以下のとおり。

大気：検出限界（0.21～0.36 Bq/L）以下～1.09 Bq/L

雨水：検出限界（0.23～0.36 Bq/L）以下～1.26 Bq/L

表5 野菜のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和3年度）

試料名	採取地点	採取月	R3年度調査結果		(参考) H19～R2年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)
ハクサイ	倉内 ^{※2}	9月	*	*	0.48, 0.59	0.42
	千樽	10月	0.47±0.10	*	*~0.89	*~0.68
キャベツ	横浜町	10月	0.64±0.13	*	*~0.94	*~1.2
ダイコン	出戸	9月	*	*	*~0.61	*~0.68
バレイショ	尾駸	8月	0.62±0.10	0.33±0.10	0.41~0.88	*~0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	*	*~0.67	*~0.62
	平沼	11月	0.46±0.10	0.33±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（令和3年度の検出限界は、TFWTが0.39~0.40 Bq/L、非交換型OBTが0.32~0.39 Bq/L）以下とし、「*」と表示した。

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

※2 令和元年度から調査開始。

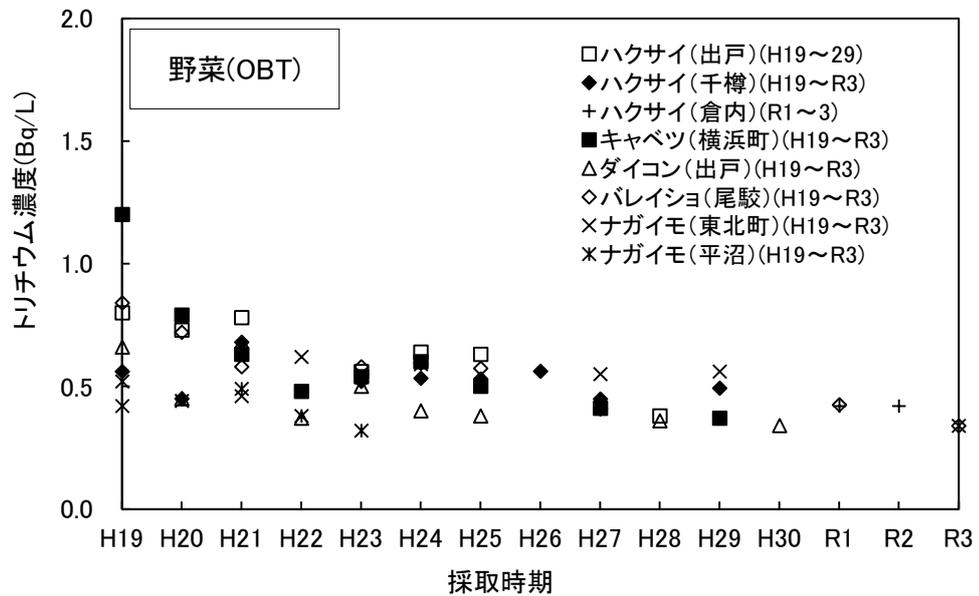
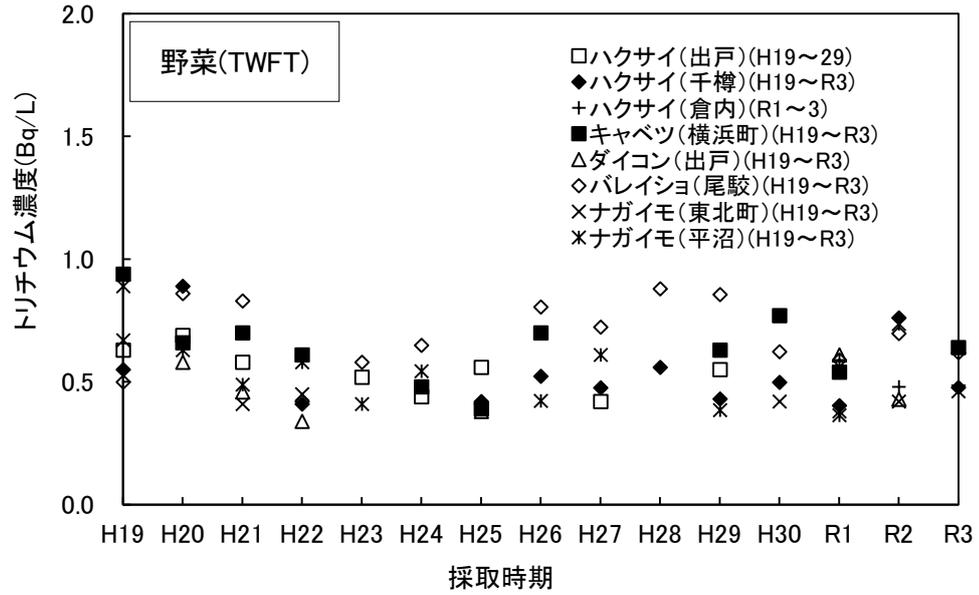


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

※検出限界以下は非表示。

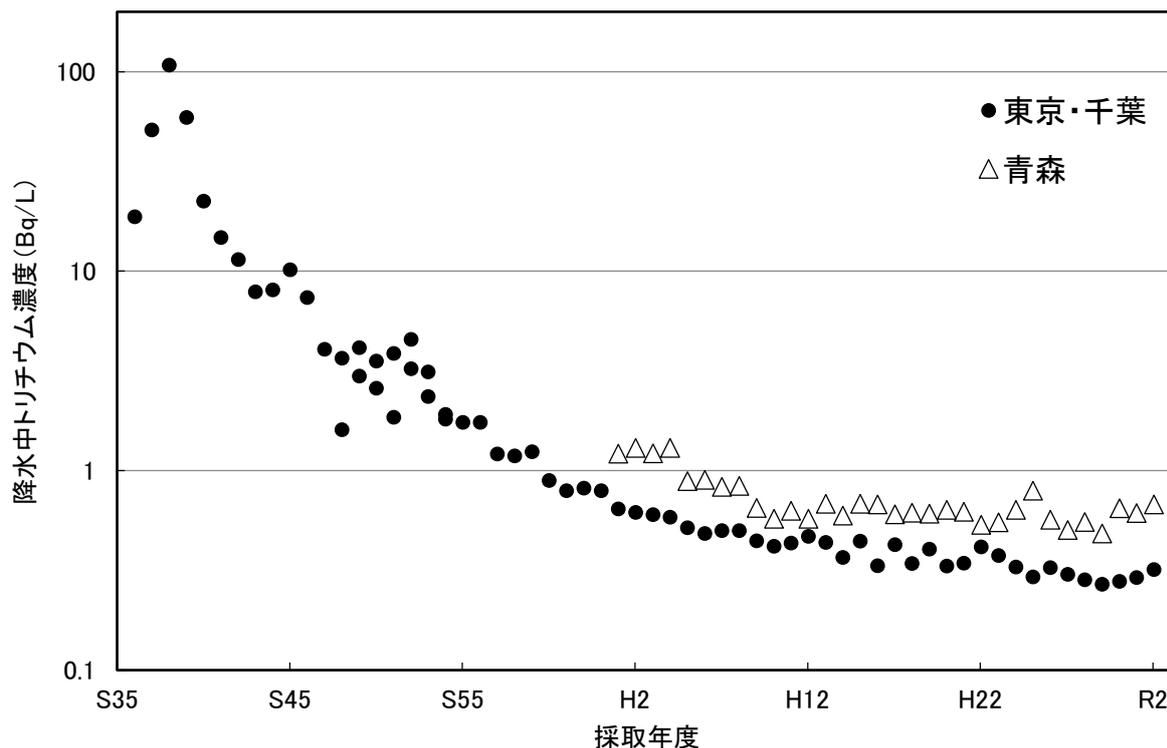


図8 東京・千葉及び青森における降水中トリチウム濃度の経年変化

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

海洋試料である魚類（ヒラメ等）の測定結果を表 6 及び図 9 に示す。TFWT は全て検出限界以下であり、アクティブ試験の影響が認められた平成 19 及び 20 年度と比べ低い値であった。また、平成 21 年度から調査を開始した非交換型 OBT については、すべて検出限界以下であった。なお、平成 24 年度から令和 3 年度までの核燃料サイクル施設沖合海域における海水中トリチウム濃度は検出下限値以下～0.21 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 7 に示す。TFWT 及び非交換型 OBT はすべて検出限界以下であった。

表 6 魚類（ヒラメ等）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 3 年度）

試料名	採取地点	採取月	魚種	R3 年度調査結果		(参考) H19~R2 年度調査結果		
				TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
魚類 (ヒラメ等)	六ヶ所村 前面海域	5 月	ヒラメ	*	*	*~3.2	*~1.4	*~0.48
		6 月		*	*			
		7 月		*	*			
		9 月		*	*			
		10 月		*	*			
		11 月		*	*			
		12 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（令和 3 年度の検出限界は、TFWT が 0.32~0.40 Bq/L、非交換型 OBT が 0.32~0.39 Bq/L）以下とし、「*」と表示した。

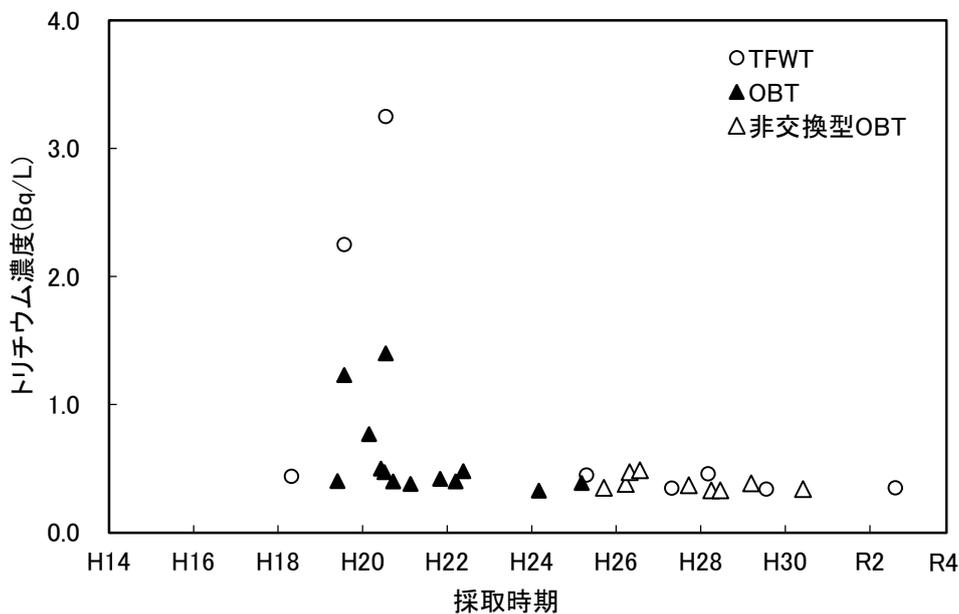


図 9 魚類（ヒラメ等）におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT、非交換型 OBT)の経年変化

※検出限界以下は非表示。

※平成 14~18 年度は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

表7 海藻類（コンブ）のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和3年度）

試料名	採取地点	採取月	R3 年度調査結果		H27~R2 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	9月	*	*	*	*~0.42
		10月	*	*	*	

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界（令和3年度の検出限界は、TFWT が $0.32\sim 0.37$ Bq/L、非交換型 OBT が $0.32\sim 0.39$ Bq/L）以下とし、「*」と表示した。

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 8 に示すとおり、精米が 0.224~0.231 Bq/g 炭素、葉菜が 0.228~0.231 Bq/g 炭素、根菜・いも類が 0.223~0.232Bq/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。大気圏内核実験によって増加した C-14 は、主に大気圏から海洋や生物圏に移行することにより指数関数的に減少していることが知られている。アクティブ試験の影響が認められなかった平成 7 年度から平成 18 年度及び平成 22 年度から令和 3 年度までの期間に得られた C-14 比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値 0.228 Bq/g 炭素⁹⁾を差し引き、時間による減衰式を求めた(式 1~3)。核実験起源の C-14 の半減時間を求めると 7.7 年(標準誤差 0.3 年)となり、これは府馬ら¹⁰⁾による核実験起源の C-14 の昭和 38 年から昭和 51 年までの半減時間 9.0 年、昭和 59 年から平成 12 年までの半減時間 10.3 年と比較しやや低い値となった。

また、平成 7 年度から平成 18 年度及び平成 22 年度から令和 3 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数と、その平均値を算出した。先に得られた減衰式と平均変動係数から当該期間の各年度における比放射能の推定値と変動幅(3σ)を求め(式 4)、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。令和 3 年度の測定値は、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。なお、令和元年度の六ヶ所村内における農産物の C-14 比放射能は、精米が 0.226 Bq/g 炭素、キャベツが 0.226~0.227 Bq/g 炭素、ダイコンが 0.226~0.227 Bq/g 炭素であったと報告されている¹¹⁾。

$$\text{比放射能推定値} = F_c + 0.228 \text{ (自然平衡レベル) (Bq/g 炭素)} \dots \text{式 1}$$

$$F_c = A \times \exp(-\lambda t) \dots \text{式 2}$$

$$\lambda = \ln 2 / T \dots \text{式 3}$$

F_c: フォールアウト寄与分の比放射能計算値(Bq/g 炭素)

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) 0.0278

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) λ = ln2/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)

t : 平成 7 年度からの経過年数 (年)

$$\text{変動幅 (3}\sigma\text{)} = 3 \times \text{比放射能推定値} \times \text{平均変動係数} \dots \text{式 4}$$

平均変動係数: アクティブ試験の影響が認められなかった平成 7 年度から平成 18 年度及び平成 22 年度から令和 3 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均値

表 8 農産物の C-14 比放射能 (令和 3 年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	R3 年度調査結果	(参考) H19~R2 年度調査結果
				(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
米	精米	千 樽	10 月	0.231 ± 0.002	0.229 ~ 0.248
		野辺地町	9 月	0.226 ± 0.002	0.227 ~ 0.249
		室ノ久保 ^{※1}	10 月	0.226 ± 0.002	0.226 ~ 0.233
		二 又	10 月	0.224 ± 0.002	0.223 ~ 0.251
		戸 鎖	9 月	0.225 ± 0.002	0.225 ~ 0.255
		平 沼 ^{※2}	9 月	0.225 ± 0.002	0.224 ~ 0.234
葉菜	ハクサイ	倉 内 ^{※3}	9 月	0.228 ± 0.002	0.225
		千 樽	10 月	0.231 ± 0.002	0.221 ~ 0.260
	キャベツ	横浜町	10 月	0.228 ± 0.002	0.226 ~ 0.267
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	9 月	0.223 ± 0.002	0.228 ~ 0.239
	バレイショ	尾 駁	8 月	0.223 ± 0.002	0.223 ~ 0.244
	ナガイモ	東北町	11 月	0.232 ± 0.002	0.225 ~ 0.243
		平 沼	11 月	0.229 ± 0.002	0.226 ~ 0.249

※1 平成 30 年度から調査開始。
 ※2 平成 25 年度から調査開始。
 ※3 令和元年度から調査開始。

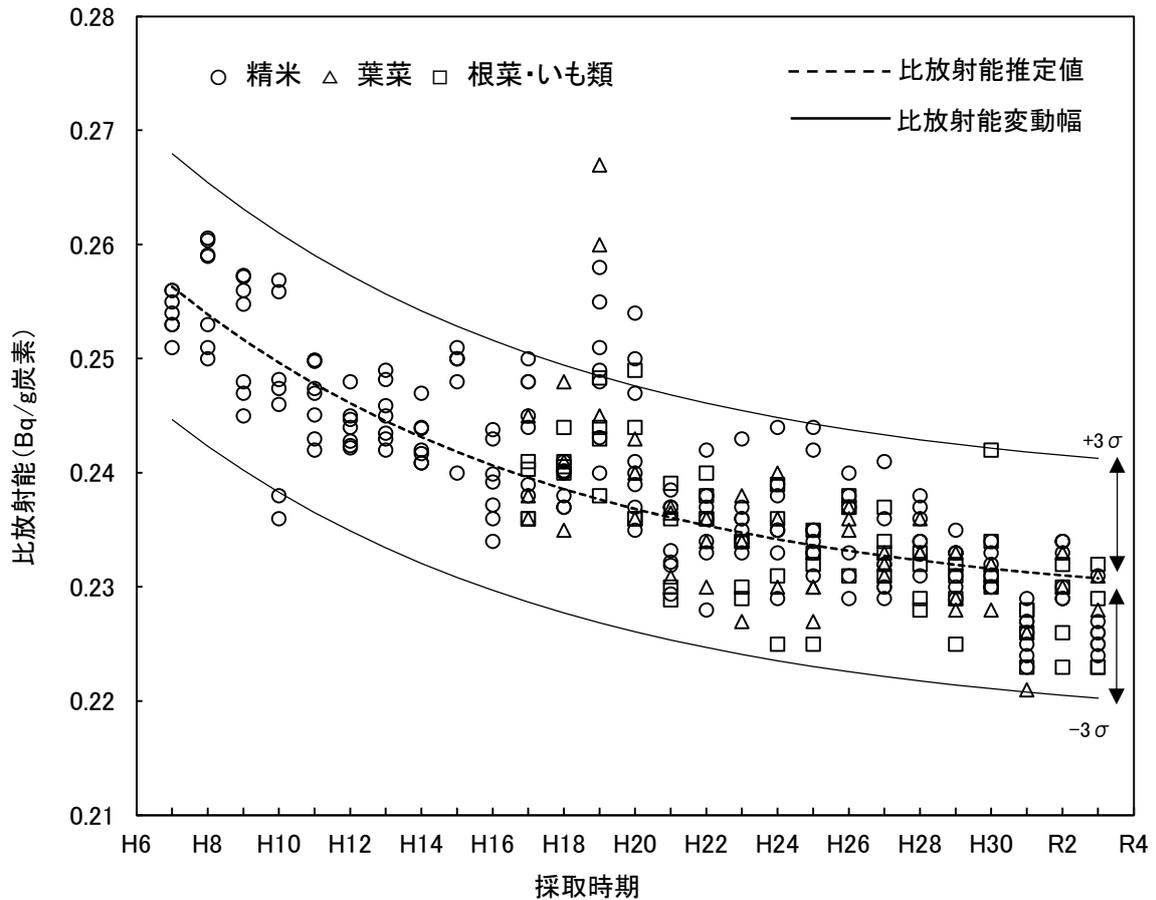


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

牛乳の C-14 比放射能の測定結果は表 9 に示すとおり、0.221～0.235 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。式 1～4 を用いて牛乳についても平成 22 年度から令和 3 年度までの測定値から算出した比放射能の推定値と変動幅を併せて記載した*。令和 3 年度の測定値は、横浜町の 10 月採取分及び豊原の 1 月採取分において平成 23～令和 2 年度の測定値を下回ったが、すべて推定値 $\pm 3\sigma$ の範囲内であった。なお、令和元年度の六ヶ所村内における牛乳の C-14 比放射能は 0.230 Bq/g 炭素であったと報告されている¹⁾。

牛乳の平成 23 年度から令和 3 年度までの期間に得られた C-14 比放射能の測定値から核実験起源の C-14 半減時間を求めると 6.7 年（標準誤差 0.9 年）であり、農産物の半減時間 7.7 年に近い値となった。なお、乳牛に与えられる飼料は周辺地域で生産されたものに限らないため、牛乳と農産物の C-14 比放射能は必ずしも同じ挙動を示すものではないと考えられる。

*牛乳についてのパラメータは以下のとおり。

- Fc : フォールアウト寄与分の比放射能計算値(Bq/g 炭素)
- 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) 0.0107
- 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)
- 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)
- t : 平成 22 年度からの経過年数 (年)

平均変動係数:アクティブ試験の影響が認められなかった平成 22 年度から令和 3 年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の平均値

表 9 牛乳の C-14 比放射能（令和 3 年度）

試料名	採取地点	採取月	R3 年度調査結果	(参考) H19～R2 年度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六 原 ^{※1}	4 月	0.228 ± 0.002	0.222 ~ 0.241
		7 月	0.228 ± 0.002	
		10 月	0.232 ± 0.002	
		1 月	0.222 ± 0.002	
	横浜町 ^{※2}	4 月	0.228 ± 0.002	0.227 ~ 0.247
		7 月	0.231 ± 0.002	
		10 月	0.221 ± 0.002	
		1 月	0.230 ± 0.002	
	二 又	4 月	0.233 ± 0.002	0.223 ~ 0.262
		7 月	0.232 ± 0.002	
		10 月	0.225 ± 0.002	
		1 月	0.229 ± 0.002	
豊 原	4 月	0.235 ± 0.002	0.225 ~ 0.266	
	7 月	0.231 ± 0.002		
	10 月	0.232 ± 0.002		
	1 月	0.225 ± 0.002		

※1 平成 25 年度から調査開始。

※2 令和 3 年度から採取地点変更。

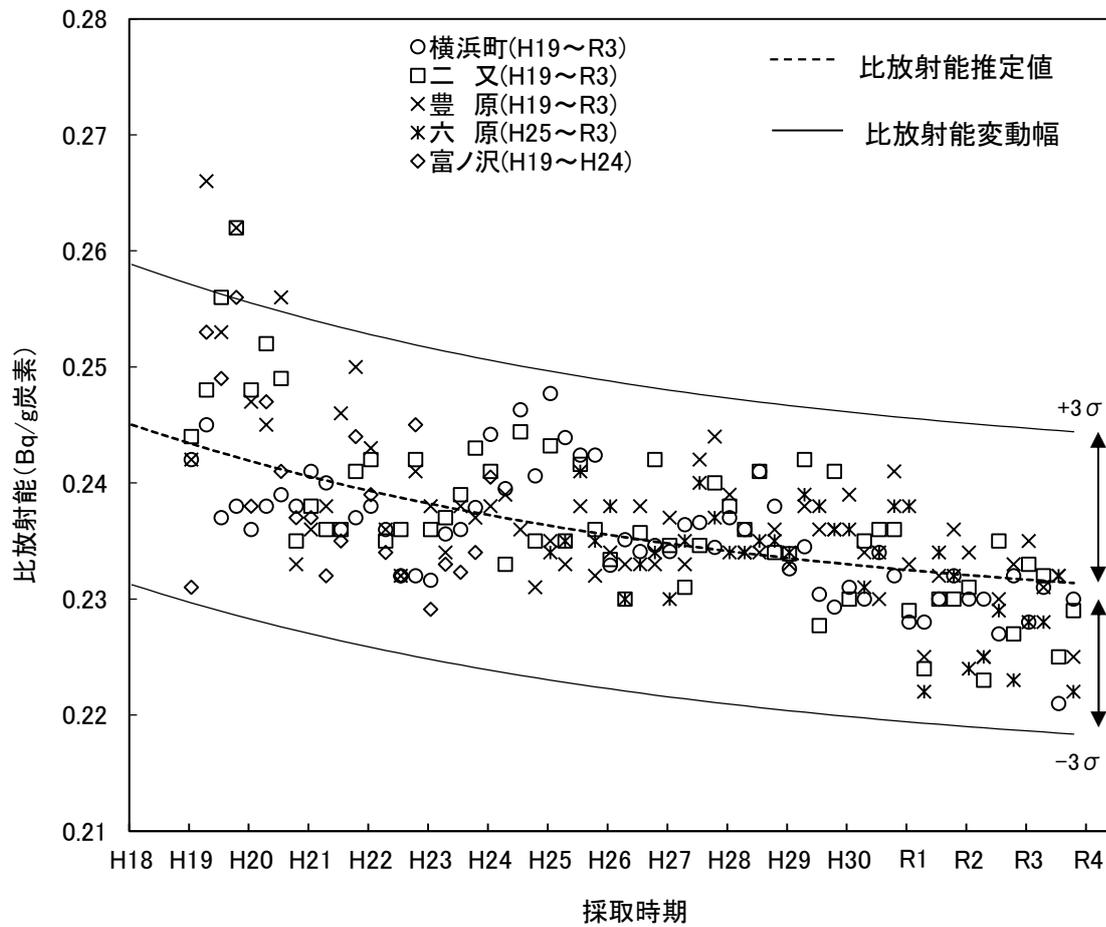


図 11 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

4.3 I-129 及び I-131

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

なお、再処理施設周辺における I-129/I-127 原子数比については、アクティブ試験前の陸圏試料で 10^{-9} ~ 10^{-8} 、水圏試料で 10^{-10} 程度であり、使用済燃料のせん断・溶解処理に伴い上昇したが、近年は試験前のバックグラウンドレベルで推移していると報告があり¹¹⁻¹²⁾、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、これらと同程度またはより低いレベルであった。

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

表 10 環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比（令和 3 年度）

試料名	採取地点	採取月	R3 年度調査結果		(参考) H19~R2 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	倉内*	9月	*	*	4.4×10^{-8} , 1.0×10^{-7}	2.2×10^{-10} , 1.4×10^{-9}
	千樽	10月	$(4.8 \pm 1.0) \times 10^{-8}$	$(2.2 \pm 0.4) \times 10^{-9}$	6.5×10^{-8} $\sim 1.6 \times 10^{-5}$	2.6×10^{-9} $\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10月	*	*	2.6×10^{-8} $\sim 1.2 \times 10^{-5}$	1.5×10^{-9} $\sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	9月	$(1.1 \pm 0.02) \times 10^{-4}$	$(4.8 \pm 0.09) \times 10^{-11}$	8.5×10^{-5}	4.6×10^{-11}
		10月	$(1.6 \pm 0.03) \times 10^{-4}$	$(1.1 \pm 0.02) \times 10^{-10}$	$\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$\sim 9.1 \times 10^{-10}$

・測定値が検出限界（令和 3 年度の検出限界は、¹²⁹I 濃度が $(6.5 \sim 7.9) \times 10^{-8}$ Bq/kg 生、¹²⁹I/¹²⁷I 原子数比が 1×10^{-13} ）以下の場合、「*」と表示した。

※ 令和元年度から調査開始

表 11 環境試料中の I-131 濃度（令和 3 年度）

試料名	採取地点	採取月	R3 年度調査結果	(参考) H20~R2 年度調査結果
			(Bq/kg 生)	(Bq/kg 生)
ハクサイ	倉内*	9月	*	*
	千樽	10月	*	*
キャベツ	横浜町	10月	*	*
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域	9月	*	*
		10月	*	*

・測定値がその計数誤差の 3 倍以下の場合検出限界（令和 3 年度の検出限界は 0.048~0.12 Bq/kg 生）以下とし、「*」と表示した。

※ 令和元年度から調査開始

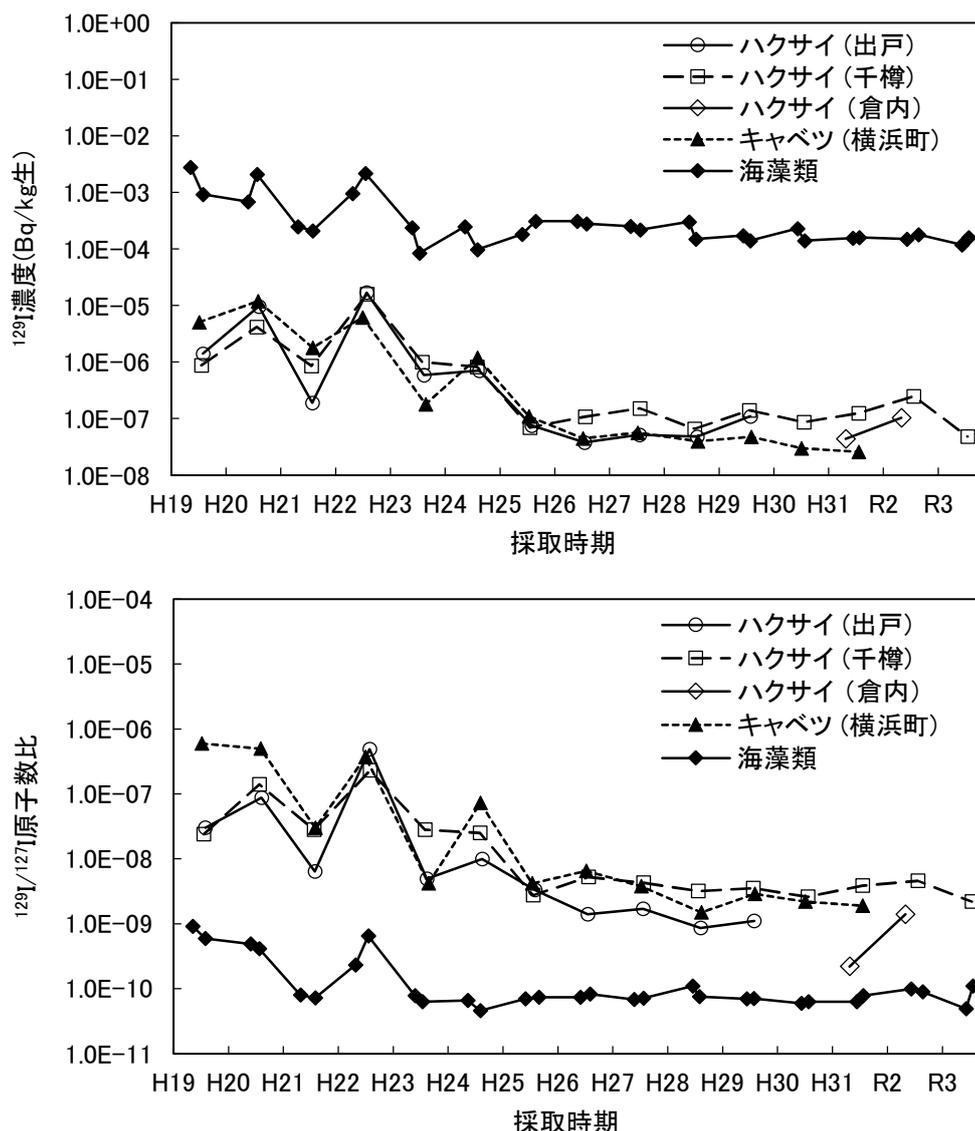


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化
 ※検出限界以下は非表示。

5. まとめ

令和 3 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、再処理施設において行われた使用済燃料のせん断溶解処理の影響が認められた平成 19 及び 20 年度より低めであった。また、海洋試料である魚類及び海藻類については、TFWT 及び非交換型 OBT 共にすべて検出限界以下であった。C-14 比放射能は、すべての試料において平成 19 及び 20 年度のような高い値がみられず、アクティブ試験の影響が認められなかった期間の経年変化から推定されるバックグラウンドレベルと同程度であった。I-129 は、葉菜類、海藻類ともに I-129/I-127 原子数比がアクティブ試験前のバックグラウンドレベルと同程度またはより低いレベルであり、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：原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等モニタリング基本計画（令和2年3月）
- 2) 文部科学省：放射能測定法シリーズ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量子生命・医学部門放射線医学研究所
：環境中のトリチウム測定調査データベース
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html>（最終アクセス：平成29年9月15日）
- 7) (公財)日本分析センター：環境放射線データベース
<http://www.kankyo-hoshano.go.jp/>（最終アクセス：令和4年11月25日）
- 8) (公財)海洋生物環境研究所：令和3年度原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業 調査報告（令和4年3月）
- 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、櫻田義彦、一政祐輔：1990年代の日本における¹⁴Cの環境バックグラウンドレベル,*RADIOISOTOPES*,**51**,381-391(2002)
- 11) (公財)環境科学技術研究所 令和元年度排出放射能環境動態調査報告書（令和2年3月）
- 12) Y. Satoh, H. Kakiuchi, S. Ueda, N. Akata and S. Hisamatsu : Concentrations of iodine-129 in livestock, agricultural, and fishery products around spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, Japan, during and after its test operation, *Environmental Monitoring and Assessment*,**191**:61(2019)

CsI (TI) シンチレーション検出器を用いた空間線量率計と既設機器との測定結果の比較検討

澤田 亮 阿部真之 神 俊雄

1. はじめに

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

一方で、空間放射線量率測定用として、CsI(Tl)シンチレーション検出器（以下「CsI」という。）及びMulti-Pixel Photon Counter（増倍特性を持ったPhoto Diodeの集合体）を組み合わせた測定器（以下「KURAMA」という。）が、小型かつ安価なものとして近年開発されており¹⁾²⁾³⁾、国や自治体等で走行サーベイ用、可搬型モニタリングポスト用及び固定観測局の高線量率用として採用されていることから^{4)~6)}、本県においてもKURAMA（低線量率用及び高線量率用）を固定観測局に仮設してNaI、電離箱及び半導体との並行測定を行い、測定結果を比較検討した。

2. 調査方法

2.1 検出器

今回の検討に使用したKURAMAは、低線量率用の88HA型と高線量率用の06HA型の2つの検出器を有する。使用した検出器の仕様を表1及び2に示す。

表1 検出器仕様（低線量率用）

仕様	CsI 88HA 型	(参考) NaI
メーカー	松浦電弘社	日立アロカメディカル
サイズ・形状	48 mm×48 mm 八角柱	3 インチφ×3 インチ円柱
測定範囲 (μ Gy/h)	0.001~50	BG~10
測定エネルギー範囲 (keV)	50~3000	50~3000
データ伝送間隔	1 分毎	2 分毎
スペクトルデータ取得機能	有り	有り
エネルギー分解能 (¹³⁷ Cs)	8 %	10 %以内
⁴⁰ K によるゲイン設定の自動補正機能	有り	有り
加温装置	無し	有り

表 2 検出器仕様（高線量率用）

仕様	CsI 06HA 型	(参考) 電離箱	(参考) 半導体
メーカー	松浦電弘社	日立アロカメディカル	富士電機
サイズ・形状	6 mm 角立方体	加圧球形電離箱、有効容積約 14 L	板状
測定範囲 (μ Gy/h)	0.2~10,000	BG~100,000	0.2~10,000 (単位は μ Sv/h)
測定エネルギー範囲 (keV)	50~3000	60~ ∞	60~1500
データ伝送間隔	1 分毎	2 分毎	2 分毎
スペクトルデータ取得機能	有り	無し	無し
エネルギー分解能 (^{137}Cs)	8 %	—	—
加温装置	無し	有り	無し

2.2 測定場所

モニタリングポスト砂子又局（東通村大字砂子又字沢内 5-35）の敷地内に KURAMA を設置した。また、半導体との比較については、同局から直線距離で 2 km 離れた位置に設置されている砂子又ふれあいの館地点（東通村大字砂子又字大久保 27-7）の値を用いた。温度依存性の確認には、同局から直線距離で 14 km 離れた位置に設置されている老部局（東通村大字白糠字前田 44-163）に設置されている気象観測装置の値を用いた。また、2 インチ ϕ \times 2 インチ NaI の参考データとして、国が実施する環境放射能水準調査のために同局から直線距離で 29 km 離れた位置に設置されているむつ市川内庁舎局（むつ市川内町川内 477）の値を用いた。各測定器の位置関係を図 1 及び 2 に示す。

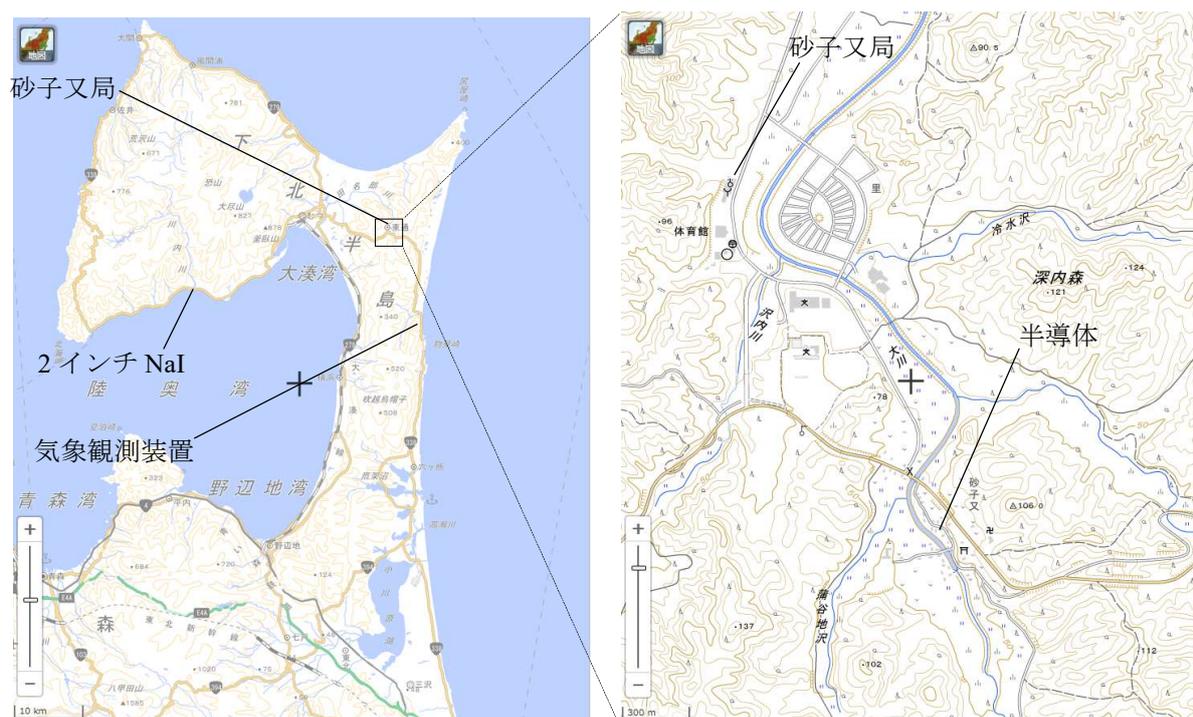


図 1 各測定器の位置図（国土地理院電子地形図）

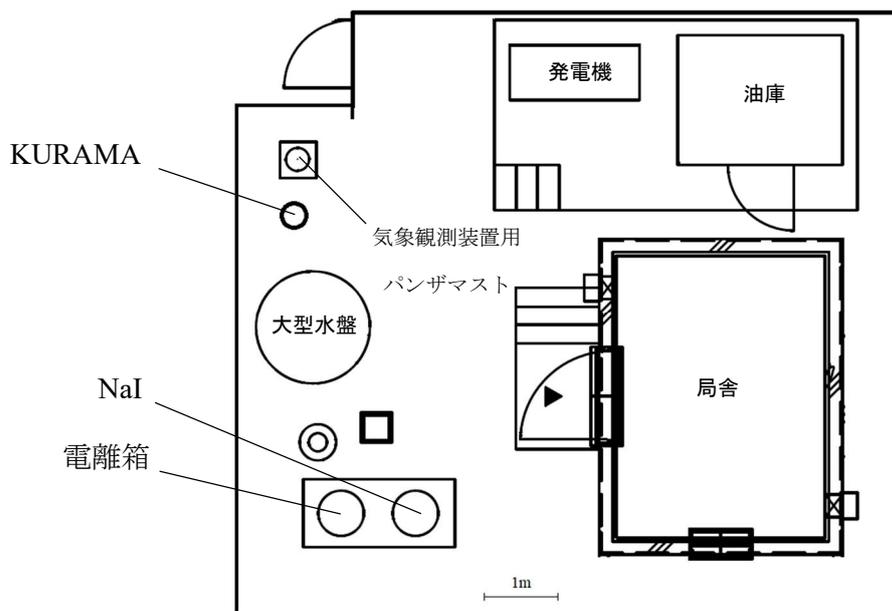


図 2 モニタリングポスト砂子又局に設置した測定器の位置関係

2.3 測定条件

KURAMA の検出器高さは、既設の NaI 及び電離箱と同様の 1.8 m*とした。NaI 及び電離箱は温度変化による影響を軽減するためのヒーター及び冷却用ファンを検出部内部に備えており、検出器が 25℃～35℃程度に維持されるが、KURAMA は温度調整機構を持たない。

測定値の比較には 1 時間値を用いた。KURAMA の 1 時間値は、算術平均により 1 分値（生データ）から 2 分値を、2 分値から 10 分値を、10 分値から 1 時間値を算出した。NaI、電離箱及び半導体の 1 時間値は、算術平均により 2 分値（生データ）から 10 分値を、10 分値から 1 時間値を算出した。

*：積雪の影響を考慮し、地上高を高くしている。

3. 調査結果

3.1 CsI 88HA 型と NaI との比較

(1) 測定値の比較

令和4年7月22日から令和5年2月5日まで期間のCsI 88HA型及びNaIの測定値を図3及び4に示す。上記期間のうち、積雪のない期間の両検出器による測定値の関係を図5に示す。降雪時の線量率上昇は、CsI 88HA型のほうがNaIより高い傾向があったが、NaIとほぼ同様の挙動を示した。

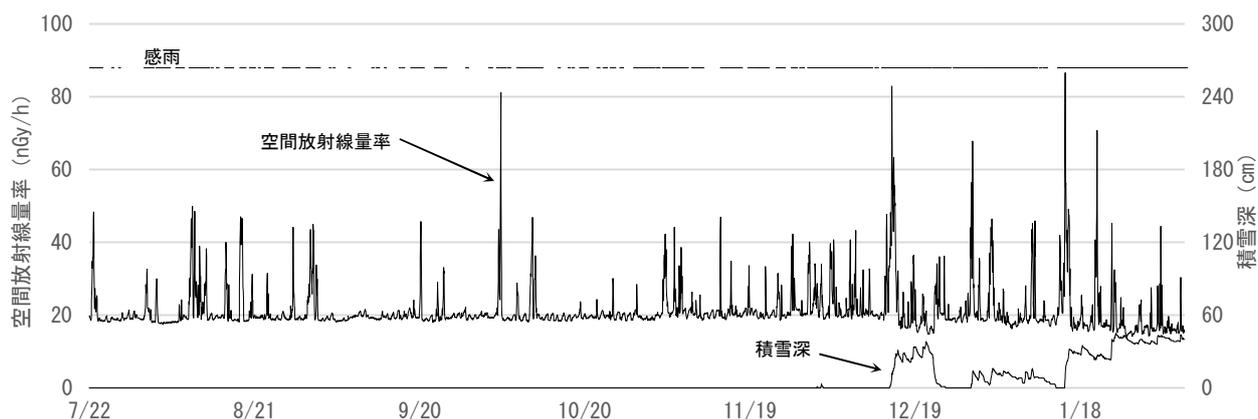


図3 CsI 88HA 型の測定値の推移 (7月22日~2月5日)

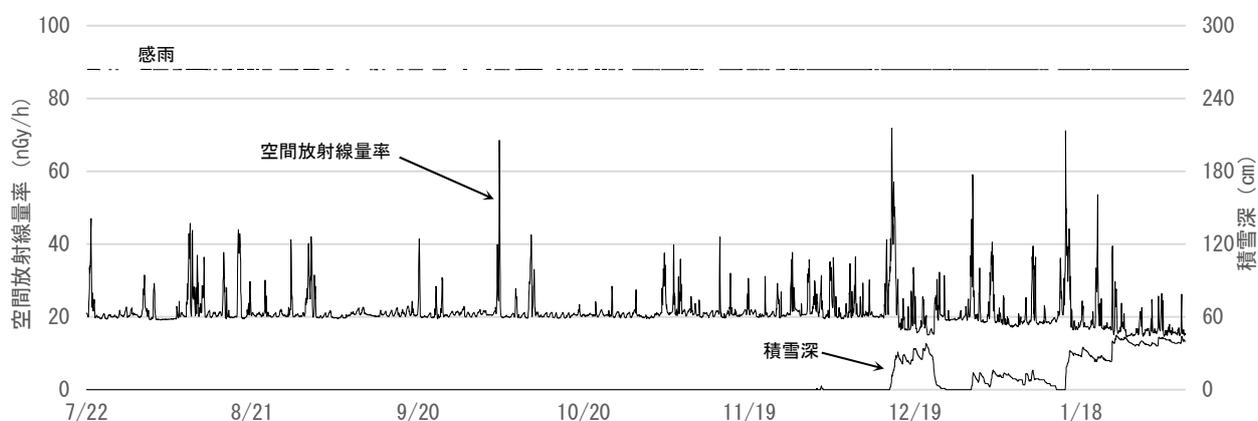


図4 NaI の測定値の推移 (7月22日~2月5日)

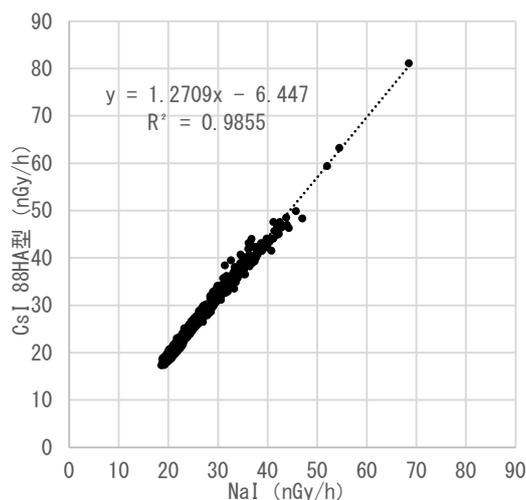


図5 CsI 88HA 型と NaI の測定値の関係 (7月22日～2月5日のうち積雪のない期間)

CsI 88HA 型及び NaI の測定値のうち、降雨雪及び積雪のない期間*の測定結果を表3に示す。降雨雪及び積雪による変動を除外しているため、測定条件が均一になり、ほぼ一定の値を示す。CsI88HA 型は、平均、最大、最小いずれも NaI と同程度であった。標準偏差及び変動係数は CsI88HA 型の方が大きいですが、これは CsI 88HA 型の検出器容積 (92 cm³) が NaI (348 cm³) の 26 % であることに起因するものと考えられる。測定値のばらつきは、検出器のサイズに起因する違いはあったが、バックグラウンドレベルでの測定においては実用上問題ないレベルであった。

表3 CsI 88HA 型及び NaI の測定値の統計
(7月22日～2月5日のうち降雨雪及び積雪のない期間)

統計値	CsI 88HA 型	NaI
データ数	6858	6858
最大 (nGy/h)	22.3	23.0
最小 (nGy/h)	17.3	18.6
平均(X) (nGy/h)	19.4	20.4
標準偏差(σ) (nGy/h)	0.8	0.6
変動係数(σ/X)	4.1 %	2.9 %

(2) スペクトルの比較

降雨のない期間 (11月1日7～8時) 及び降雨のある期間 (11月5日7～8時) の典型的な例として、CsI88HA 型と NaI のスペクトルを図6及び7に示す。高エネルギー側のピーク的位置が両検出器で異なるが、これはエネルギー補正に用いたピークの違い (NaI は K-40 (1461 keV)、今回の調査に使用した CsI 88HA 型は Bi-214 (609 keV)) に起因するものである。

* : 感雨があった時間、感雨があった1時間後、降水量があった時間、降水量があった1時間後、降水量があった2時間後、積雪深があった時間の測定値を除外。

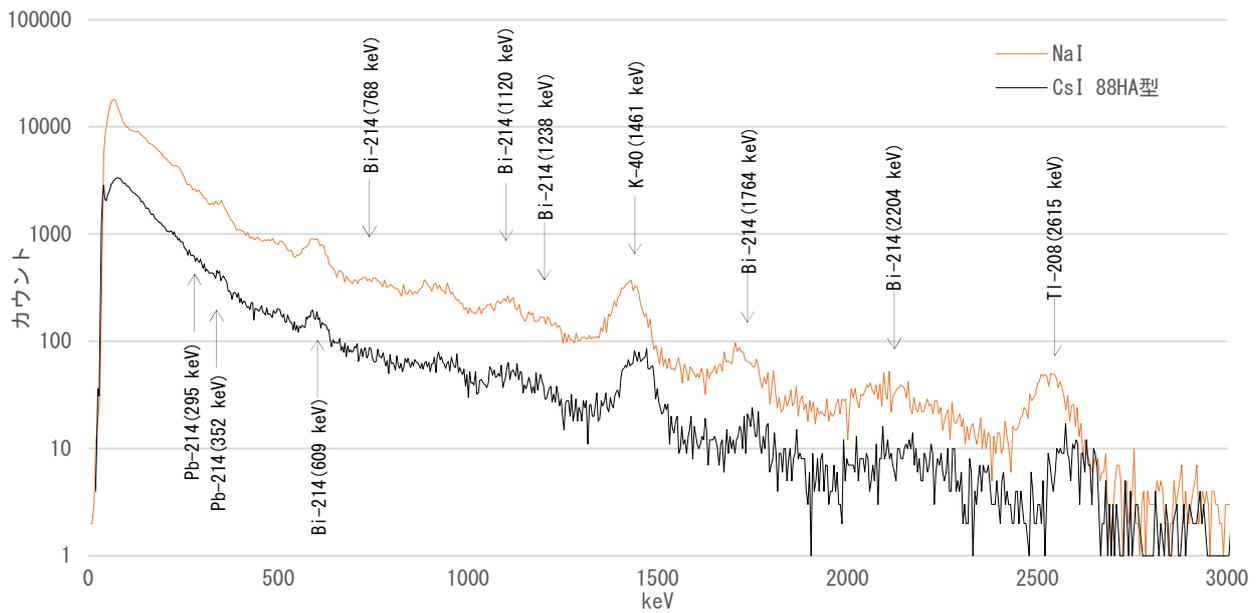


図6 降雨のない期間におけるCsI88HA型及びNaIのスペクトルデータ(11月1日7~8時)

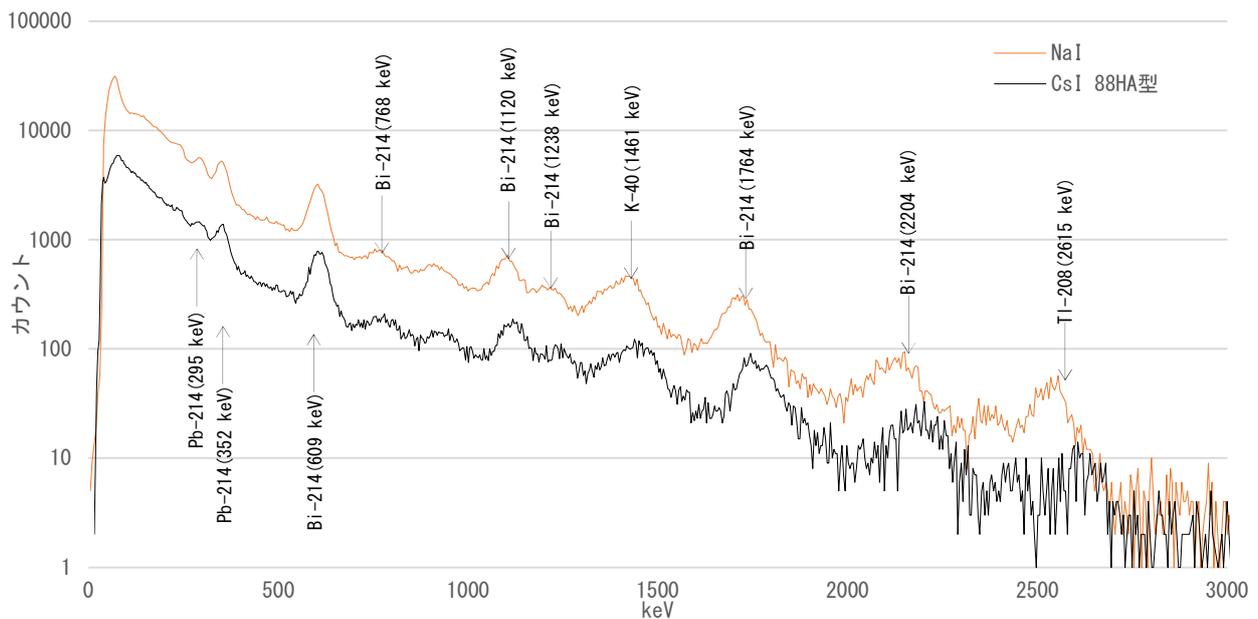


図7 降雨のある期間におけるCsI88HA型及びNaIのスペクトルデータ(11月5日7~8時)

降雨のない期間(11月1日7~8時)におけるK-40のピークについて、両検出器のスペクトルから感度の指標であるピーク面積及びエネルギー分解能⁷⁸⁾を算出した結果を表4に示す。ピーク面積には検出器サイズに起因する感度の差が見られたが、エネルギー分解能はほぼ同程度であり、スペクトルデータから線量率の変動に寄与している核種を推定する用途としては十分な性能であった。なお、参考データではあるが、2インチφ×2インチ円柱形のNaIの同期間のK-40のピークは、面積1433、分解能7%であり、CsI88HA型と同程度の性能であった。

表 4 降雨のない期間の K-40 ピーク面積及び分解能 (11 日 1 日 7~8 時)

項目	CsI 88HA 型	NaI	(参考) 2 インチ NaI
線量率 (nGy/h)	19.4	20.2	22.2
ピーク計数	1126	4081	1433
検出器容積 (cm ³)	92	348	103
半値幅 (keV)	92.6	80.5	95.4
分解能	6.3 %	5.6 %	6.6 %

(3) 温度依存性

KURAMA の仕様上の動作温度範囲は-10~50 °Cであり、温度依存性は±20 %とされている⁵⁾。本県の夏期から冬期における外気温下での測定値の温度依存性を実機で確認するため、降雨雪のない期間の測定値*と気温の関係を図 8 に示す。積雪による遮への影響を受けていない期間の測定値は、気温と相関が無く、夏期から冬期の外気温の温度変化に対して安定した測定ができていた。

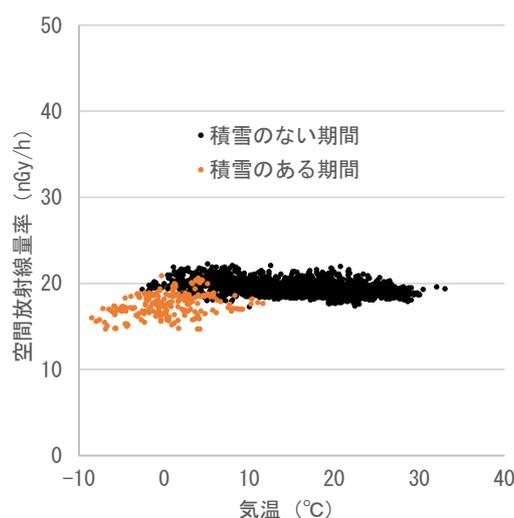


図 8 CsI 88HA 型の測定値と気温の関係 (7 月 22 日~2 月 5 日)

3.2 CsI 06HA 型と電離箱及び半導体との比較

(1) 測定値の比較

令和 4 年 7 月 22 日から令和 5 年 2 月 5 日までの CsI 06HA 型、電離箱及び半導体の測定値を図 9 に、測定値の関係を図 10 及び 11 に示す。CsI 06HA 型の測定値の降雨雪による変動は、電離箱及び半導体と同様の傾向を示した。また、電離箱の測定値は宇宙線の影響を含むため、3 MeV 以上のエネルギーをカットしている NaI より 30 nGy/h 程度高くなるが、CsI 06HA 型も同様に 3 MeV 以上のエネルギーをカットしているため、測定値は電離箱より 30 nGy/h 程度低かった。なお、CsI

*：感雨があった時間、感雨があった 1 時間後、降水量があった時間、降水量があった 1 時間後、降水量があった 2 時間後の測定値を除外。

06HA 型の測定範囲の仕様は 0.2~10000 $\mu\text{Gy/h}$ であり、今回の測定条件は仕様上の測定範囲外である。

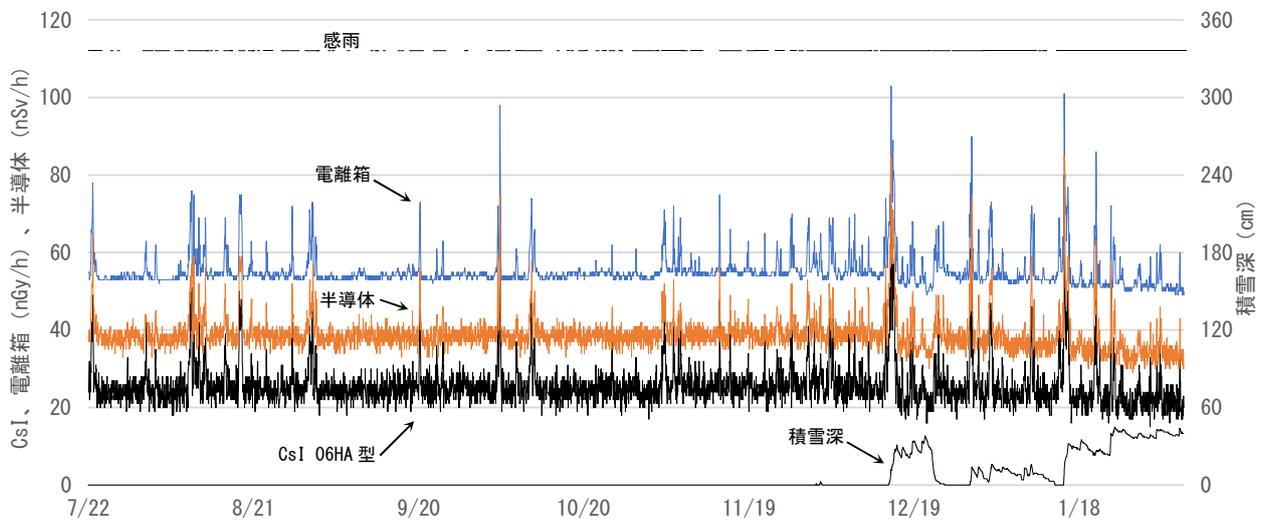


図9 CsI 06HA 型、電離箱及び半導体の測定値 (7月22日~2月5日)

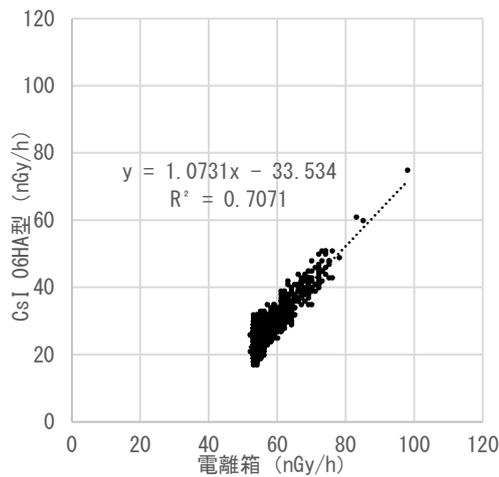


図10 CsI 06HA 型と電離箱の測定値の関係 (7月22日~2月5日のうち積雪のない期間)

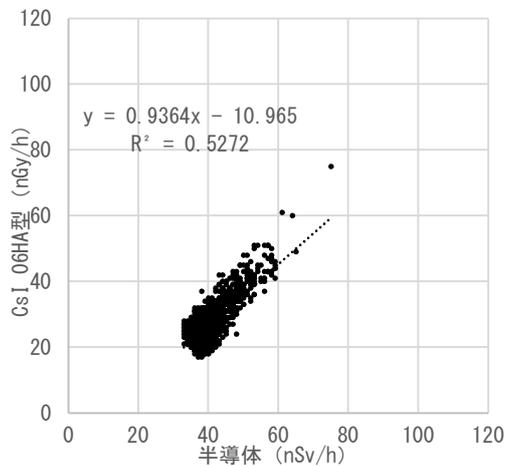


図11 CsI 06HA 型と半導体の測定値の関係 (7月22日~2月5日のうち積雪のない期間)

CsI 06HA 型、電離箱及び半導体の測定値のうち、降雨雪及び積雪のない期間の測定値*を表 5 に示す。CsI 06HA 型の測定値の変動係数は 9.4% であり、仕様の範囲外の条件下ではあるものの、精度の良い測定値が得られた。

表 5 CsI 06HA 型、電離箱及び半導体の測定値の統計（7 月 22 日～2 月 5 日のうち降雨雪及び積雪のない期間）

統計値	CsI 06HA 型	電離箱	半導体
データ数	2283	2283	2289
最大 (nGy/h 又は nSv/h)	33	57	44
最小 (nGy/h 又は nSv/h)	17	52	33
平均(X) (nGy/h 又は nSv/h)	24.4	54.0	38.2
標準偏差(σ) (nGy/h 又は nSv/h)	2.3	0.8	1.7
変動係数(σ/X)	9.4 %	1.5 %	4.5 %

(2) スペクトルの確認

7 月 22 日から 7 月 28 日まで積算した CsI 06HA 型のスペクトルデータを図 12 に示す。電離箱及び半導体はエネルギー情報は得られない。バックグラウンドの条件下においても、7 日間分のスペクトルの積算により、天然核種のピークを判別できる。なお、CsI 06HA 型の測定範囲の仕様は 0.2～10000 μ Gy/h であり、今回の測定条件は仕様の範囲外である。

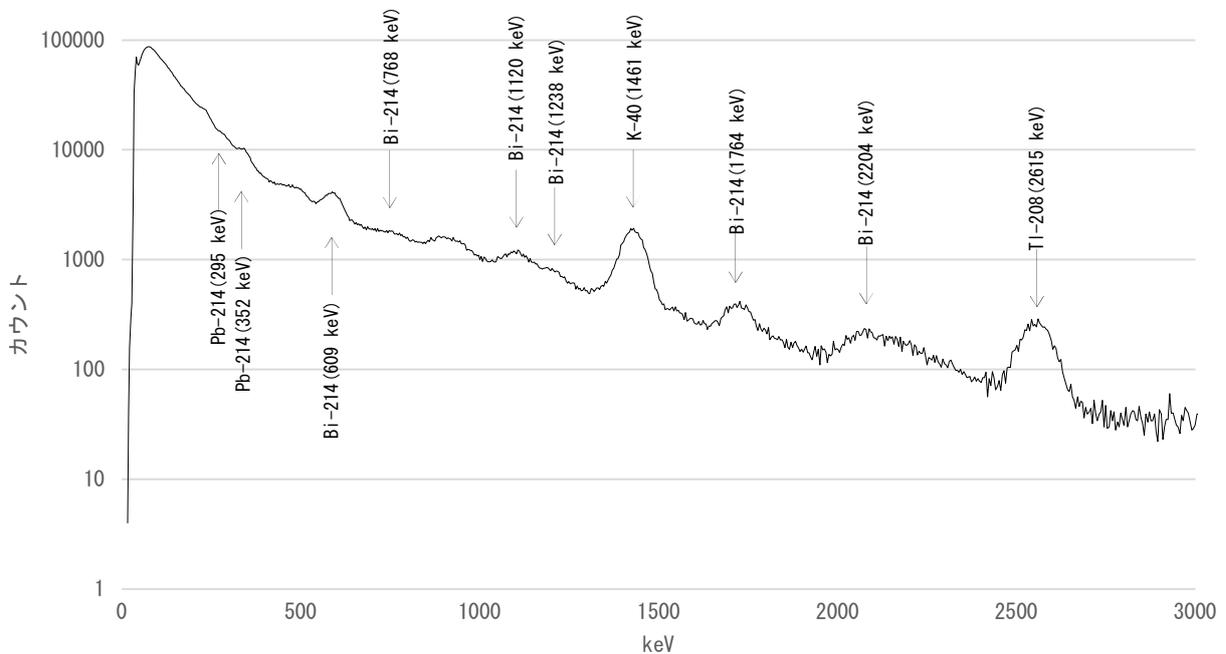


図 12 CsI06HA 型のスペクトルデータ（7 月 22 日から 7 月 28 日までの 7 日間積算）

*：感雨があった時間、感雨があった 1 時間後、降水量があった時間、降水量があった 1 時間後、降水量があった 2 時間後の測定値を除外。

4. まとめ

- ・低線量率用の検出器 CsI 88HA 型の測定値は、NaI と同様の挙動を示し、バックグラウンドレベルでの測定においては実用上問題となるレベルの差は無かった。
- ・測定値の温度依存性はほぼ無く、スペクトルデータのエネルギー分解能は NaI と同程度であった。
- ・高線量率用の検出器 CsI 06HA 型の測定値は、電離箱及び半導体と同様の挙動を示した。
- ・CsI 06HA 型のスペクトルデータを積算することにより、線量率に寄与している核種を確認することができた。

謝 辞

本調査の遂行にあたり、無償で KURAMA テスト機の貸し出し、設置及びデータ提供にご協力を頂いた株式会社松浦電弘社に深謝致します。

文 献

- 1) 京都大学複合原子力科学研究所 谷垣実: 発災直後の面的な放射線モニタリング体制のための技術的研究, 令和元年度原子力規制庁放射線安全規制研究戦略的推進事業成果報告書 (2020)
- 2) 京都大学複合原子力科学研究所 谷垣実: 発災直後の面的な放射線モニタリング体制のための技術的研究, 令和2年度原子力規制庁放射線安全規制研究戦略的推進事業成果報告書 (2021)
- 3) 原子力規制庁監視情報課: 放射能測定法シリーズ 17 連続モニタによる環境 γ 線測定法 (平成29年12月改訂)
- 4) 石川県保健環境センター: KURAMAII の特性調査, 石川県保健環境センター研究報告書, 第58号 (令和2年度), 96~100 (2022)
- 5) 公益財団法人日本分析センター: 種々の走行モニタリングシステムに係る技術的仕様の調査, 令和元年度原子力規制庁放射線安全規制研究戦略的推進事業成果報告書 (2021)
- 6) 株式会社松浦電弘社: 自動放射線量計測システム KURAMA モニタリングポストカタログ (2022)
- 7) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ 6 NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法 (昭和49年)
- 8) 原子力規制庁監視情報課: 放射能測定法シリーズ7 ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー (令和2年9月改訂)

Ⅲ 令和4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

澤田 譲

1. はじめに

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

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

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスをキャリアとして使用する方法³⁾⁴⁾が用いられている(以下「ガス添加法」という)。しかし、例えばモニタリングステーションのように、長期間採取状況を監視できない場所に対応するために可燃性ガスの代わりにキャリアとして無トリチウム水を添加する加湿カラムを用いる方法(以下「加湿カラム法」という)が提案されている^{5)~7)}。

本調査では、平成16年度から加湿カラム法を用いた採取方法の検討を行っている。一方、公益財団法人環境科学技術研究所(以下「環境研」という)では、環境研敷地内において、ガス添加法を用いて大気試料を採取・測定^{8)~23)}しており、平成26年度以降、県の採取装置を環境研敷地内に設置して試料の並行採取を断続的に実施し、結果の比較検討を行っている。

並行採取の開始当初から CH_3T の県の測定値が環境研の測定値に比べて数倍高くなる傾向が見られたことから採取・分析方法の改良を毎年度実施し成果が得られたため、令和2年度は、前年度まで検討した採取・分析方法の妥当性を確認するため環境研との並行採取を実施したが、県のHTの測定値が環境研の測定値に比べて2倍程度高くなる傾向が見られた(表1)。

HTについても県の測定値が高くなることについて、その原因を探るため昨年度から原子力センター青森市駐在(青森県環境保健センター1階)に環境研との並行採取に使用した際と同じ構成の採取装置1組及び構成の一部を変更した採取装置1組を設置して、大気中トリチウムの化学形別採取を行った。

表1 加湿カラム法を用いたトリチウムの化学形別採取方法の検討

H30	<ul style="list-style-type: none"> ・モレキュラーシーブへの H-3 残留についても再確認され、除去方法の検討を継続することとなった。 ・フィールド調査再開に向け、可搬性、操作性を考慮した採取装置の構成を検討した。
R1	<ul style="list-style-type: none"> ・試料水を回収する際、大気を採取した時のモレキュラーシーブカラムの出口側から窒素ガスを流したところ、モレキュラーシーブにほとんど H-3 が残留しないことが判明した。 ・Pt 触媒は、採取開始前に加熱しながら空気を流すことで触媒活性の低下を改善できることが判明した。
R2	<ul style="list-style-type: none"> ・環境研と同一地点（環境研構内）に県採取装置を設置し、両者の測定値を比較した結果、県の HT・CH3T の測定値が環境研と比較して最大 2 倍程度高かった。

2. 調査方法

2.1 採取装置

令和 2 年度に使用した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）で吸引して大気を採取装置に導入する。大気の吸引速度と総量はデジタル流量計で測定する。大気の入口側には焼結金属製フィルターを設置している。

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

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

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

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

今年度はこの装置から CH₃T 捕集部分を取り外したうえで、従来どおり電子除湿器及び HTO 捕集カラム 1 本を装着した採取装置及び電子除湿器を外しその代替として HTO 捕集カラムを 1 本追加した採取装置による並行採取を行った（図 3）。

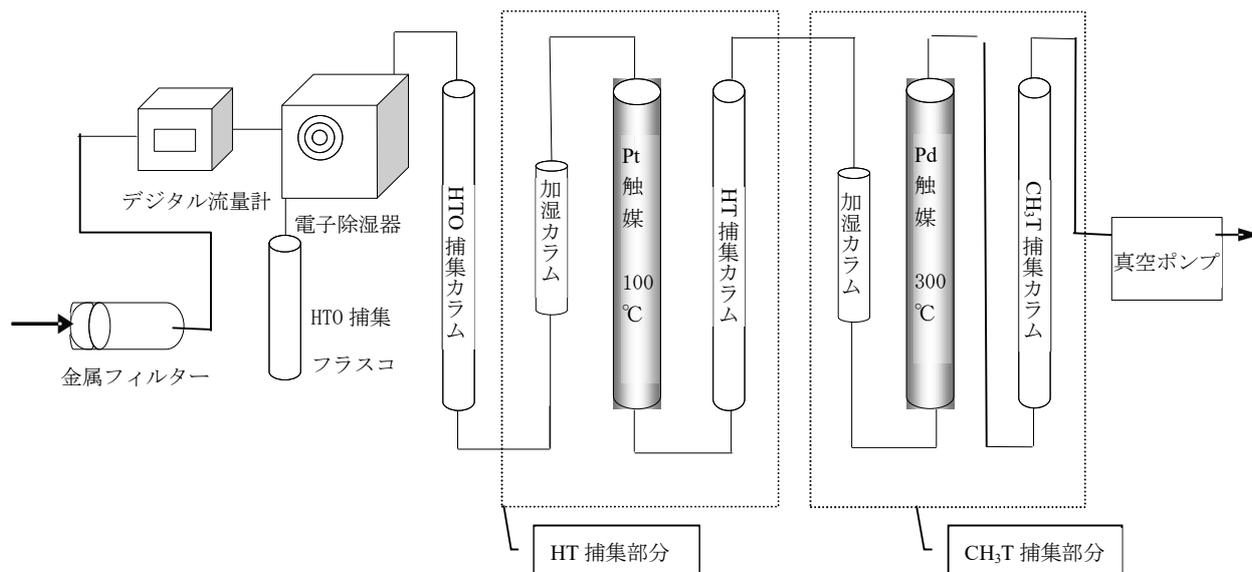


図 1 加湿カラム法による採取装置の概要

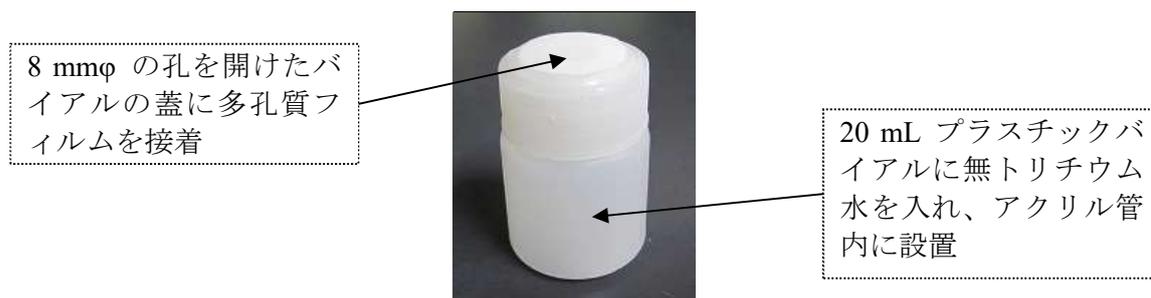


図 2 加湿バイアル外観

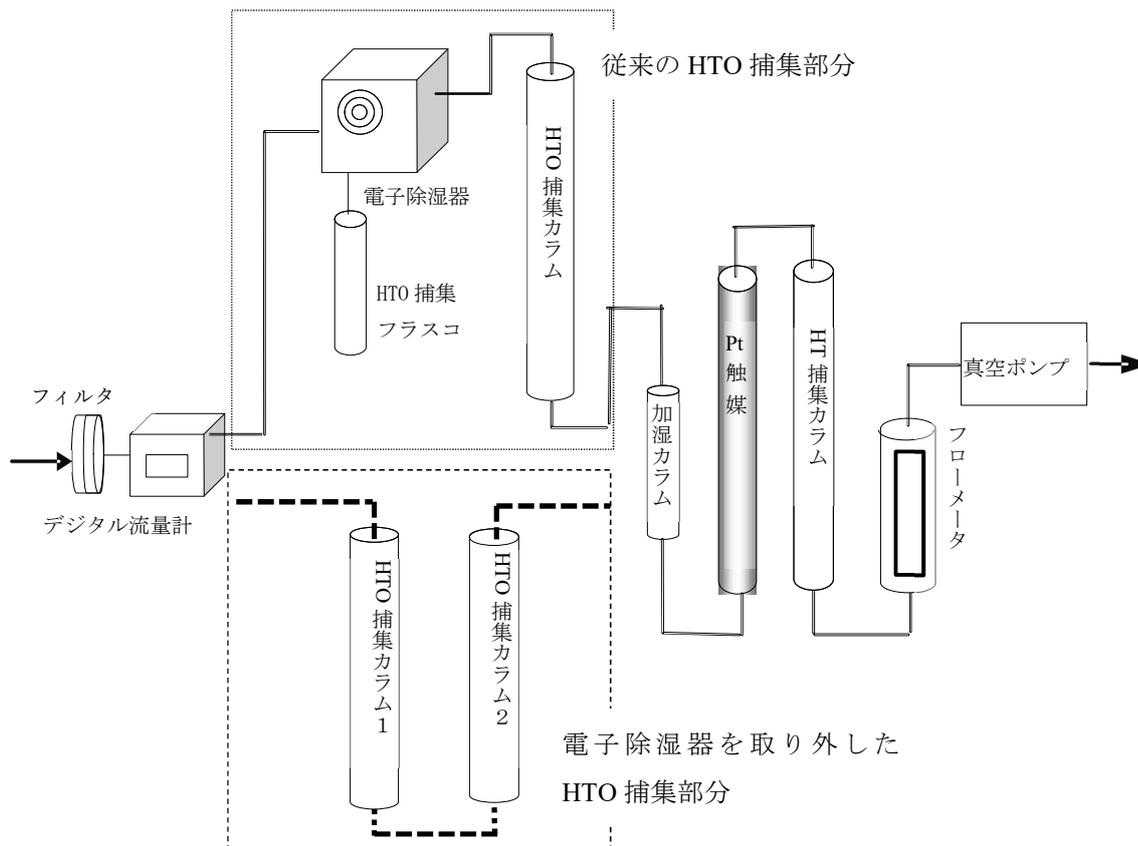


図3 採取装置の概要

2.2 電子除湿器の有無による影響調査

採取装置に吸引された大気からは、先ず電子除湿器によりある程度の HTO が採取され、続いて HTO 捕集カラムで残りの HTO が捕集された後に HT 捕集部分に導入される。電子除湿器は、電動の冷却器で除湿を行う電子機器であり本装置の上流側に取り付けられていることから、この機器が HT の濃度上昇に関係している可能性が考えられる。この装置の有無で HT の測定値に違いが出るのか調査を行った。

(1) 採取条件等

ア 採取条件

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：3～4 日間
- ・採取流量：1.1～2.3 L/min
- ・採取量：8.7～8.9 m³

イ 採取地点

原子力センター青森市駐在テレメータ室内（青森県環境保健センター1階）

ウ 採取時期

- 1回目：令和4年 10月7日～11日
- 2回目：令和4年 10月11日～14日

(2) 分析方法

ア HTO の分析・測定

試料採取後のモレキュラーシーブカラムは窒素ガスを流しながら 400°C に加熱し、モレキュラーシーブから脱離した水蒸気を冷却管により冷却し試料水として回収した。過去の本調査の結果から捕集水は捕集カラムの大気の入口側に多く吸着されていることが分かっているため、この操作に際しては捕集カラムの大気の入口側となっていた口を水蒸気の出口側にした。

電子除湿器を装着している採取装置では、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 HTO の試料水とした。電子除湿器を取り外した採取装置では、2 本のモレキュラーシーブカラムによる捕集水を混合して HTO の試料水とした。

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て蒸留した後、蒸留液 50 mL に液体シンチレータ (Ultima Gold LLT、Perkin Elmer Japan) を同量混合し、測定試料とした。測定容器は、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 (現：日本レイテック)) により行い、測定時間は、1,000 分 (50 分×20 回×1 サイクル) とした。

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 の大気中濃度を算出した。

イ HT の分析・測定

捕集後の HT 捕集カラムについて、窒素ガスを流しながら 400°C に加熱し、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。捕集水は捕集カラムの大気の入口側に多く吸着されているため、この操作に際しては捕集カラムの大気の入口側となっていた口を水蒸気の出口側にした。

また、カラムの放冷後、無トリチウム水約 13 mL を加え、再び窒素ガスを流しながら 400°C に加熱して試料水 (洗浄水) を回収した。

これらの試料を混合し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 (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、容量 20 mL の低拡散ポリエチレンバイアル (6000477、Perkin Elmer Japan) 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 (現：日本レイテック)) により行い、測定時間は、1,000 分 (50 分×20 回×1 サイクル) とした。

2.3 Pt 触媒の新旧による影響調査

(1) 採取条件等

ア 採取条件

2.2 で使用した採取装置のうち、電子除湿器を取外し代わりに HTO カラムを 2 本とした採取装置の Pt 触媒を未使用のものと交換し、電子除湿器による影響調査と同様に並行採取を行った。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：3 日間
- ・採取流量：1.4 L/min
- ・採取量：6.0 m³

イ 採取地点

原子力センター青森市駐在テレメータ室内（青森県環境保健センター1階）

ウ 採取時期

令和4年11月21日～24日

(2) 分析方法

ア HTOの分析・測定値

2.2(2)アと同様の操作を行い HTO の大気中濃度を算出した。

イ HTの分析・測定値

2.2(2)イと同様の操作を行い HT の大気中濃度を算出した。なお、過去の調査でモレキュラーシーブカラムに残留するトリチウムは捕集量の10%前後であり、今回の調査では無視できる量であることから、無トリチウム水を加えて洗浄水を回収する操作は省略した。

3. 調査結果

3.1 電子除湿器の有無による調査結果

並行採取した試料の測定結果を表2及び図4に示す。

HTO 測定結果からは、明らかな電子除湿器の有無の影響はみられなかった。

HT については、2回の採取とも電子除湿器ありの測定値が高くなる傾向がみられたが、その比率は1.1程度であり、県と環境研との比率である約2.0に比べると小さかった。

表2 電子除湿器の有無によるトリチウム濃度の比較

		電子除湿器なし	電子除湿器あり
1回目 令和4年10月 7日～11日 室温 24.2～24.4℃ 湿度 27～32%	HTO 測定値 (mBq/m ³)	3.82±0.76	3.81±0.76
	HT 測定値 (mBq/m ³)	11.8±0.91	12.9±0.82
	採取流量 (L/min)	1.6	1.6
	採取量 (m ³)	9.0	9.0
2回目 令和4年10月 11日～14日 室温 24.5～24.7℃ 湿度 32～39%	HTO 測定値 (mBq/m ³)	3.23±0.67	2.14±0.64
	HT 測定値 (mBq/m ³)	8.37±0.90	9.31±0.87
	採取流量 (L/min)	2.1	2.1
	採取量 (m ³)	8.8	8.8

※室温及び湿度はテレメータ室空調機の制御盤の表示値

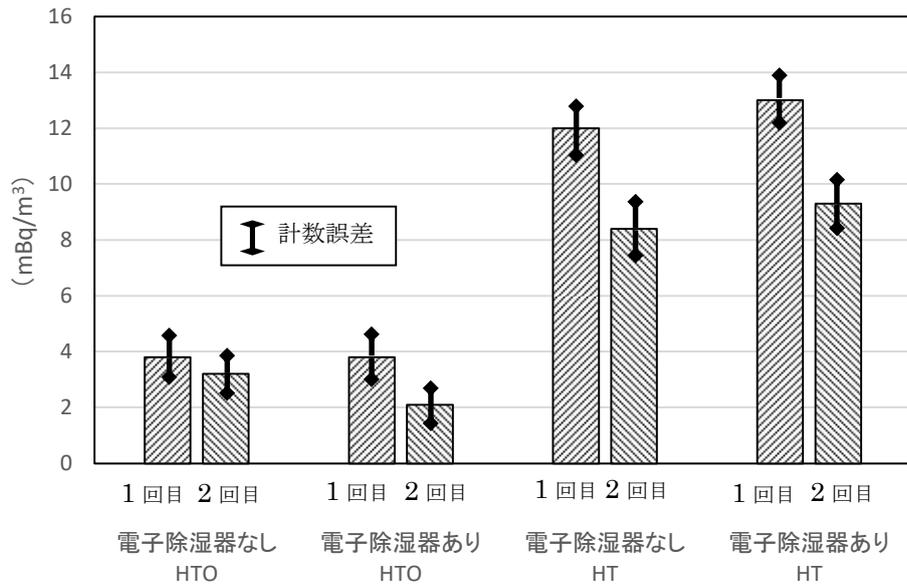


図4 電子除湿器の有無による測定値の比較

3.2 Pt 触媒の新旧による影響調査結果

青森県原子力センター青森市駐在のテレメータ室内において並行採取した試料の測定結果を表3及び図5に示す。

使用中のPt触媒を使用した採取措置のHTの測定値がやや高くなったが、その比率は1.1程度であり、県と環境研との比率である約2.0に比べると小さかった。

表3 Pt触媒新旧によるトリチウム濃度の比較

		新 Pt 触媒	使用中の Pt 触媒
令和4年11月21日 ～24日	HTO 測定値 (mBq/m³)	5.31±0.99	3.82±0.94
	HT 測定値 (mBq/m³)	12.4±1.8	13.5±0.91
室温 24.2～24.8 °C	採取流量 (L/min)	1.4	1.4
湿度 45～50 %	採取量 (m³)	6.0	6.0

※室温及び湿度はテレメータ室空調機の制御盤の表示値

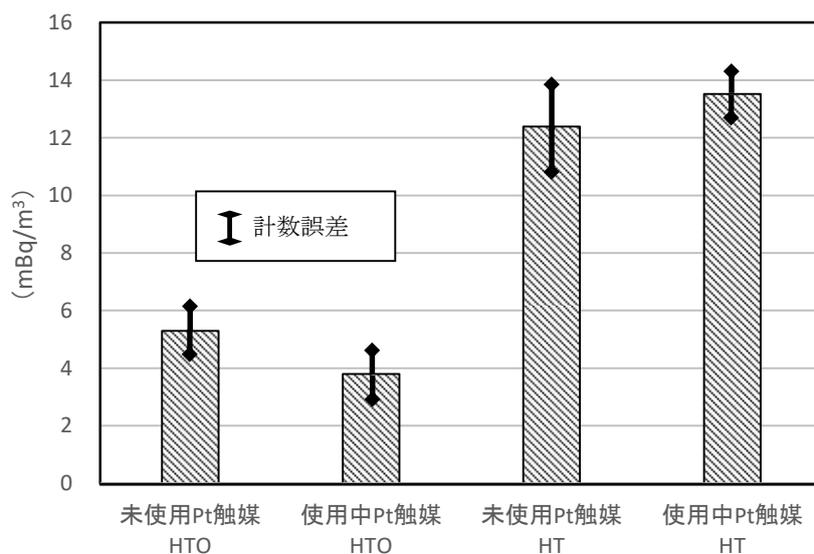


図5 Pt触媒新旧による測定値の比較

4. まとめ

1) 令和2年度の環境研との並行測定で CH_3T のほか HT についても県の測定値が高くなったため、その原因を探るべく電子除湿器を外した採取装置との並行採取を行った。その結果、電子除湿器を装着した採取装置の HT の測定値が約 1.1 の比率で高くなる傾向がみられたが、令和2年度の環境研と県の比率である約 2.0 に比べると小さく、電子除湿器が HT の測定値を高くしている原因とは断定できなかった。

2) さらに、Pt触媒の交換も試みたところ、使用中の Pt触媒を装着した採取装置の HT の測定値が約 1.1 の比率で高くなったが、令和2年度の環境研と県の比率である約 2.0 に比べると小さく、Pt触媒についても HT の測定値を高くしている原因とは断定できなかった。

今後も引き続きトリチウム採取装置を構成する各部品の影響を調査し、HTが高くなる原因を特定し、採取装置の確立を目指したい。

文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, *Isotope News*, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of ^3H released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 569-572 (2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*, 416-420 (2003)
- 4) Naofumi Akata, Hideki Kakiuchi, Nagayoshi Shima, Takashi Iyogi, Noriyuki Momoshima, Shun'ichi Hisamatsu : Tritium concentrations in the atmospheric environment at Rokkasho, Japan before the final testing of the spent nuclear fuel reprocessing plant, *Journal of Environmental Radioactivity*, **102**, 837-842 (2011)

- 5) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁：核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中 ^3H 濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299(2006)
- 6) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓：安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発、日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323(2007)
- 7) Masahiro Tanaka, Hiromi Kato, Yukie Yamamoto, Chie Iwata : Development of an active tritium sampler for discriminating chemical forms without the use of combustion gases in a fusion test facility, *Applied Radiation and Isotopes*,125,53-59(2017)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
- 11) 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)
- 12) 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)
- 13) 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)
- 14) 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)
- 15) 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)
- 16) 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)
- 17) 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)
- 18) 公益財団法人環境科学技術研究所：平成 28 年度排出放射能環境動態調査報告書, 109(平成 29 年)
- 19) 公益財団法人環境科学技術研究所：平成 29 年度排出放射能環境動態調査報告書, 127(平成 30 年)
- 20) 公益財団法人環境科学技術研究所：平成 30 年度排出放射能環境動態調査報告書, 160(平成 31 年)
- 21) 公益財団法人環境科学技術研究所：令和元年度排出放射能環境動態調査報告書, 119(令和 2 年)
- 22) 公益財団法人環境科学技術研究所：令和 2 年度排出放射能環境動態調査報告書, 148(令和 3 年)
- 23) 公益財団法人環境科学技術研究所：令和 3 年度排出放射能環境動態調査報告書, 47(令和 4 年)

環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査 (令和4年度調査及び令和5年度以降の調査内容)

檜山宝孝 工藤 翔 大下内 伸
幸 進* 沼山 聡* 佐々木耕一*

1. はじめに

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

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

令和3年度の調査結果については、本所報の技術報告としてとりまとめた。

2. 令和4年度調査

令和4年度の調査内容等を表1に示す。令和4年度は、県実施分においてこれまで委託により実施してきた核種について、従来の検体数を処理することが困難となったため、委託内容及び調査内容の見直しを行った。委託内容については、既存機器で分析可能な核種を自ら分析することとし、また、調査内容についてはこれまでのデータの蓄積状況を踏まえ、複数回採取していた試料については年1回の採取、同一種類において複数の地点で採取していた試料については施設からの距離がより近い地点を優先し、検体数の削減を行った。これらの調査結果については令和5年度にとりまとめることとしている。

3. 令和5年度以降の調査内容

令和5年度以降の調査内容等を表2に示す。令和5年度は、六ヶ所再処理工場の状況を踏まえ、令和4年度調査のうち委託により実施している県実施分の核種(非交換型OBT及びI-129)について削減する。なお、令和6年度以降については、同工場の操業状況を踏まえ、再度調査内容等を検討する。

*: 日本原燃株式会社

表1 令和4年度の調査内容等（令和3年度との比較）

試料	実施者	調査地点	頻度 (回/年)	対象核種				
				TFWT	³ H 非交換型 OBT	¹⁴ C	¹²⁹ I	¹³¹ I
牛乳 (原乳)	県・事業者	二又	4→1 ^{※1,2}	○	○	○	—	—
	事業者	六原	4→1 ^{※1}	○	○	○	—	—
	事業者	豊原	4→1 ^{※1}	○	○	○	—	—
	県	横浜町 ^{※3}						
精米	県	室ノ久保	1	—	○	○	—	—
	県	千樽	1	—	○	○	—	—
	事業者	二又	1	—	○	○	—	—
	事業者	戸鎖	1	—	○	○	—	—
	県	野辺地 ^{※3}						
	事業者	平沼 ^{※3}						
ハクサイ	事業者	千樽	1	○	○	○	○	○
	県	倉内 ^{※3}						
ダイコン	県	出戸	1	○	○	○	—	—
ナガイモ	事業者	平沼	1	○	○	○	—	—
	県	東北町 ^{※3}						
キャベツ	県	横浜町	1	○	○	○	○	○
バレイショ	事業者	尾駸	1	○	○	○	—	—
魚類 (ヒラメ等)	県	六ヶ所村前面海域	4→1 ^{※1}	○	○	—	—	—
	事業者	六ヶ所村前面海域	4→1 ^{※1}	○	○	—	—	—
海藻類 (コンブ)	県・事業者	六ヶ所村前面海域	2→1 ^{※1,2}	○	○	—	○	○

※1 これまでの採取回数→令和4年度の採取回数。

※2 牛乳（二又）は県が、海藻類（コンブ）は事業者が1回/年とする。

※3 施設からの距離がより近い地点を優先し削減した地点。

表2 令和5年度以降の調査内容等（令和4年度との比較）

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

※ 委託により分析を行っていた核種について削減。

トリプル四重極型 ICP 質量分析装置を用いた 環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

葛西邦生 檜山宝孝 安積 潔*

本県は、「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基本計画」に基づき、環境試料（表土）中 I-129 の分析測定を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」という。）の放射化学分析法（ β 線測定）により実施している。他方、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」という。）では、前処理工程にアルカリ抽出及び固相抽出法を、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。

迅速分析法に記載された分析目標レベル（検出限界値）はヨウ素-129 分析法に劣るものの、供試量を増加し、さらに同重体等によるスペクトル干渉を低減する機構を備えた ICP 質量分析装置を用いることにより、検出限界値を低減させることが可能であることから²⁾、本県では、平成 22 年度から ICP 質量分析装置（パーキンエルマージャパン社製 ELAN DRC-e）を用いた環境試料（土、葉菜、海藻）中のヨウ素-129 分析法について検討してきている。このうち、平成 25 年度以降は、葉菜中ヨウ素-129 を水酸化テトラメチルアンモニウムによりアルカリ抽出した後、固相抽出ディスクを用いて分離精製し、測定する手法「TMAH アルカリ抽出-分離精製法」について検討してきており、平成 30 年度以降は従来の装置と比較してヨウ素-129 の検出感度が大幅に向上したトリプル四重極型 ICP 質量分析装置（アジレント・テクノロジー（株）製 Agilent8900）を用いて検討を行った。令和 4 年度は、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基本計画に基づき採取した葉菜を対象に、本分析法の適用可能性について検討した。

令和元年度から令和 4 年度に得られた葉菜中 I-129 分析に係る検討結果について、本所報の研究報告としてとりまとめた。

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

*：現青森県危機管理局原子力安全対策課

編 集 委 員

神 正志（委員長） 奈良孔隆（副委員長） 神 俊雄 大下内 伸
檜山宝孝 澤田 譲 葛西邦生

青森県原子力センター所報 第17号 (2022)

令和5年3月 発行

編集・発行 青森県原子力センター

〒039-3215 青森県上北郡六ヶ所村大字倉内字笹崎 400 番地 1

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

