

# 青森県原子力センター報

第9号

平成26年度

Bulletin  
Of  
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.9 (2014)

青森県原子力センター

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



## は じ め に

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

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

平成23年3月の東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故以降、環境放射線モニタリングの見直しが進められてきましたが、未だ課題が残されています。原子力施設から放出された放射性物質・放射線をいち早く検知し、その挙動や周辺住民等への影響を速やかに把握することが求められており、それに対応するためには、測定・解析技術の開発やモニタリング体制の整備が必要です。そして何より、モニタリングに従事する人たちの技術的能力の充実・強化が不可欠であると思います。

当センターで進めている調査研究事業は、モニタリング結果の評価に資するものであるとともに、職員の技術的能力の充実・強化につながるものと考えており、継続して実施しています。今年度も、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、所報として発刊することといたしました。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。

この所報第9号のとりまとめに当たっては、青森県原子力センター環境放射線調査研究検討会の委員をはじめ多くの専門家の方々からご意見・ご指導をいただきました。紙面をお借りして深く感謝申し上げます。今後とも、職員一人一人が研鑽を積みながら一丸となって業務を進めて参る所存でございますので、引き続きご支援いただきますようよろしくお願い申し上げます。

平成27年3月

青森県原子力センター

所 長 木 村 秀 樹



## 目 次

### I 技術報告

1. 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査・・・・・・・・・・ 3  
－中間報告（東青地域及び三八地域）－  
松山 大 工藤 翔 赤石 新 五十嵐 健 鈴木将文 小川裕貴  
大久保英樹 木村秀樹
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・・・ 19  
－平成 25 年度調査結果－  
神 俊雄 坂 恭平 五十嵐 健 幸 進 岡 光昭 岡村泰治

### II 学会発表等要旨・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 35

### III 平成 26 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・・・・・・・・・・ 47
  2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査・・・・・・・・・・ 55
  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・・・・・・・・・・ 57
  4. 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査・・・・・・・・・・ 63
- 青森県原子力センター所報（第 8 号）の訂正について・・・・・・・・・・ 67

## 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 技術報告                    日常業務で得られた技術資料をまとめたもの
- II 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
- III 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 技 術 報 告





## 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査 — 中間報告（東青地域及び三八地域） —

松山 大 工藤 翔 赤石 新 五十嵐 健  
鈴木将文 小川裕貴 大久保英樹 木村秀樹

### 1. はじめに

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

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

本県では、平成25年度から3か年にわたり、モニタリング対象地域を含む青森県全域において空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定し、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握することとした。本報は、中間報告として平成26年度に東青地域及び三八地域において実施した調査の結果をとりまとめたものである。

### 2. 調査方法

#### 2.1 調査地点及びルートを選定

平成26年度は表1のとおり東青地域及び三八地域の12市町村を対象として、各市町村からそれぞれ1地点を選定して定点測定を行うとともに、主要道路における走行サーベイを行った。なお、本調査は降雨及び積雪がない状況で行った。

##### (1) 定点測定地点

NaI(Tl)シンチレーションサーベイメータによる空間放射線量率の測定、可搬型ゲルマニウム半導体検出器によるin-situ測定及び土壌中放射性物質濃度の測定地点(定点測定地点)については、原則として各市町村の人口密集地から選定し、以下の点に留意した。測定地点の位置は図1のとおりである。

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

表 1 調査地域及び対象市町村

地域区分	対 象 市 町 村
東青地域	青森市、平内町、蓬田村、外ヶ浜町、今別町
三八地域	八戸市、階上町、田子町、三戸町、五戸町、南部町、新郷村

※走行サーベイについては、調査を効率的に実施するため、東青地域と三八地域に挟まれた上北地域の一部も実施した。

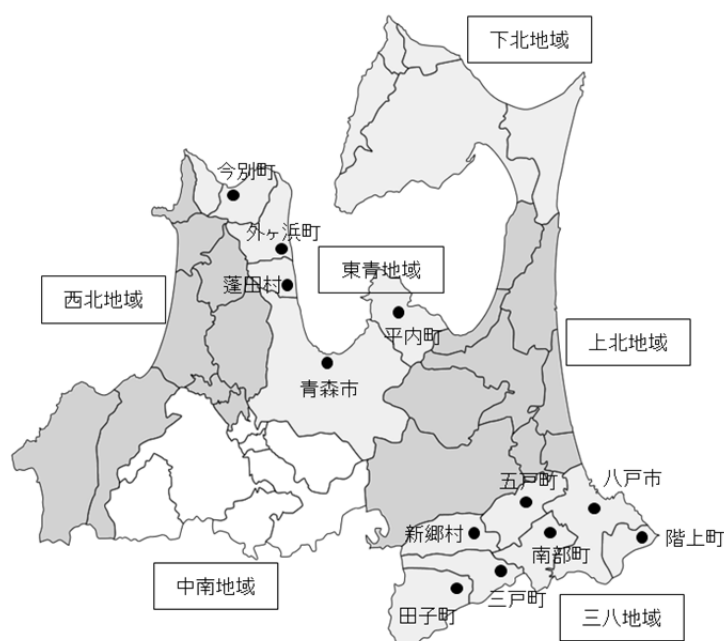


図 1 定点測定地点

## (2) 走行サーベイルート

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

- ・ 国道を中心に選定。なお、バイパスがある場合は旧道を選定。
- ・ 高規格幹線道路、地域高規格道路を除外。
- ・ 原子力施設周辺の環境放射線モニタリングで実施している走行サーベイルートを除外。

青森県全域における走行サーベイルートの概要を図 2 に示す。このうち、平成 26 年度の走行サーベイルートは青線のルートのとおりである。

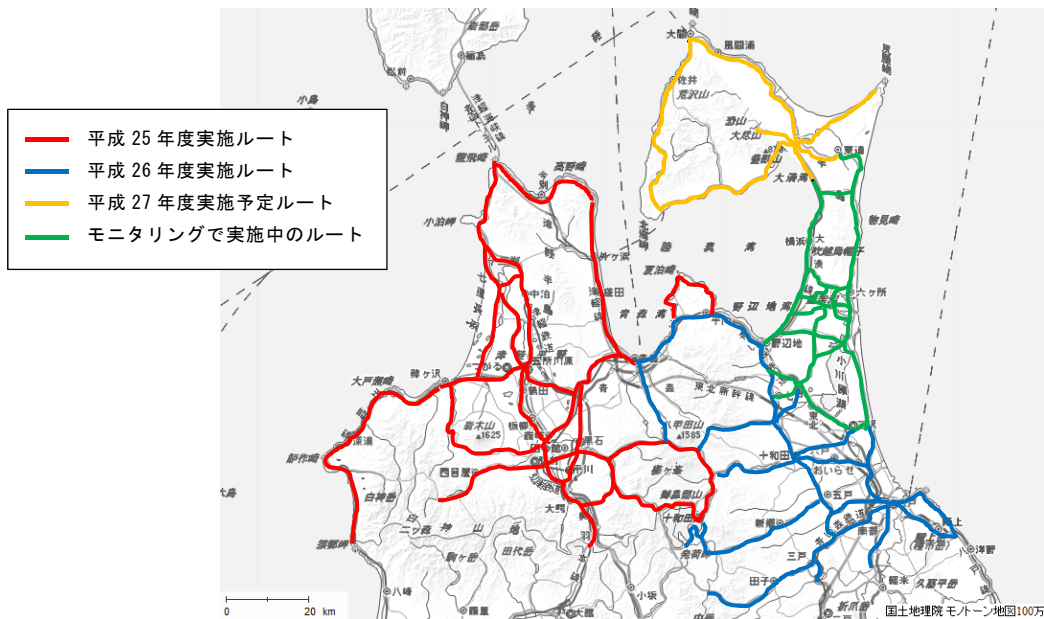


図 2 青森県全域における走行サーベイルート

## 2.2 調査内容

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

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

### (2) 可搬型ゲルマニウム半導体検出器による in-situ 測定

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

- ・周囲の地形は無限に開かれた平らな地形（無限平面）であること。
- ・天然放射性核種は土壌中で均一分布、人工放射性核種は鉛直方向に指数関数分布であること。今回は土壌中鉛直分布を表すパラメータ  $\beta$  について、過去の大気圏内核実験に起因する Cs-137 を考慮し、「発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について」原子力安全委員会（平成 13 年）に示されている浸透係数  $\alpha = 0.33 \text{ cm}^{-1}$  と土壌密度  $\rho = 1.6 \text{ g/cm}^3$  を用いて  $4.85 \text{ g/cm}^2$  ( $\beta = \rho / \alpha$ ) とした。

### (3) 土壌中放射性物質濃度の測定

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

## ア 土壌中濃度

ステンレス製土壌採取器（10 cm φ × 5 cm）により、1 地点あたり 5 ポイント採取し、混合した。採取した土壌は 105°C で乾燥後に Ge 半導体検出器（キャンベラジャパン(株)製 GC4020 及び SEIKO EG&G(株)製 GMX25）により γ 線放出核種測定（測定時間 80,000 秒）を行うとともに、放射化学分析（Sr-90、Pu）を実施した。試料採取は(1)と同地点で実施した。

## イ 深度分布

スクレーパープレート（(株)塚原製作所製 150×300 mm）を用い、地表から土壌を層別（0-0.5、0.5-1.0、1.0-1.5、1.5-2.0、2.0-3.0、3.0-4.0、4.0-5.0、5.0-7.0、7.0-10.0 cm）に採取した。採取した土壌は 105°C で乾燥後に Ge 半導体検出器（キャンベラジャパン(株)製 GC4020 及び SEIKO EG&G(株)製 GMX25）により γ 線放出核種測定（測定時間 80,000 秒）を行った。試料採取は東青地域からは青森市を、三八地域からは八戸市を選定し、それぞれ(1)と同地点で実施した。

## (4) サーベイカーによる走行サーベイ

主要道路周辺における空間放射線量率の水準を把握するため、サーベイカーによる走行サーベイを行った。速度は 60 km/h 以下で、片道 2 車線以上の道路の場合は、周辺の地面からの放射線をできる限り測定できるように左端の車線を走行した。測定は、車両の屋根に設置されているエネルギー補償型 2" φ × 2" NaI(Tl) シンチレーション検出器（G(E) 関数荷重演算方式、3MeV 以上カット、測定高さ 1.95 m、低線量率計）を用いて、スケーラ方式により測定した空間放射線量率（10 秒値）を概ね 500 m ごとに平均し、500 m 区間平均値を算出した。

## 3. 結果と考察

### (1) サーベイメータによる空間放射線量率の測定

サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果を表 2 に示す。測定値は 26～50 nGy/h であった。地域別に見ると、東青地域の平均が 36 nGy/h、三八地域の平均が 33 nGy/h であった。なお、今回使用したサーベイメータの測定下限値は 10 nGy/h であったが、測定値は 5 回測定の平均であるため、1 nGy/h まで表示している。また、5 回測定の変動係数は 8% 程度であった。

表 2 サーベイメータによる空間放射線量率の測定結果

地域	市町村	測定地点	測定年月日	空間放射線量率(nGy/h)
東青	青森市	大野小学校	H26.10.30	28
	平内町	小湊川ひだまり公園	H26.10.9	34
	蓬田村	蓬田小学校	H26.10.9	36
	外ヶ浜町	外ヶ浜町中央公民館	H26.10.20	30
	今別町	今別小学校	H26.10.20	50
平均±標準偏差				36±7.7
三八	八戸市	番屋平公園	H26.10.24	44
	階上町	階上町役場	H26.10.24	30
	田子町	中央コミュニティー広場	H26.10.23	26
	三戸町	関根ふれあい公園	H26.10.23	40
	五戸町	五戸町図書館	H26.10.28	28
	南部町	ふれあい公園	H26.10.23	30
	新郷村	金ヶ沢農村公園	H26.10.28	30
	平均±標準偏差			

## (2) 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定

可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果を表 3 に示す。

天然放射性核種について、空間放射線量率に対する各系列の寄与率は全地点の平均でウラン系列が 24%、トリウム系列が 35%、K-40 が 39%であった。地域別に見ると、東青地域ではウラン系列が 19~26% (平均 23%)、トリウム系列が 29~48% (平均 37%)、K-40 が 31~46% (平均 39%)、三八地域ではウラン系列が 17~39% (平均 24%)、トリウム系列が 25~40% (平均 33%)、K-40 が 35~44% (平均 39%) であり、地点間ではばらつきがあるものの地域による違いは見られなかった。

人工放射性核種について、Cs-134 は階上町で検出され、測定値は 430 Bq/m<sup>2</sup>であったが、その他 11 地点では検出限界以下 (< 120~180 Bq/m<sup>2</sup>) であった。Cs-137 は 12 地点中 11 地点で検出され、測定値は 110~1300 Bq/m<sup>2</sup>であったが、青森市では検出限界以下 (< 130 Bq/m<sup>2</sup>) であった。

可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率とサーベイメータによる空間放射線量率を比較したところ、図 3 に示すとおり正の相関が認められた。可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率に比してサーベイメータによる空間放射線量率の方が高い傾向にあるが、これはサーベイメータによる測定値には宇宙線の寄与及び自己照射の影響があるためと考えられる。長岡ら<sup>2)</sup>によると、それぞれの寄与は 5 nGy/h 及び 1 nGy/h 程度であり、今回の測定結果から見積もられる値はそれよりやや大きくなっていた。

表 3 可搬型 Ge 半導体検出器による in-situ 測定結果

地域	市町村	測定 年月日	天候	空間放射線量率への寄与(%)			空間放射 線量率 (nGy/h)	<sup>134</sup> Cs (Bq/m <sup>2</sup> )	<sup>137</sup> Cs (Bq/m <sup>2</sup> )
				U 系列	Th 系列	<sup>40</sup> K			
東青	青森市	H26.10.30	晴	25	29	46	15	ND(130)	ND(130)
	平内町	H26.10.9	晴	23	43	32	19	ND(140)	350
	蓬田村	H26.10.9	晴・曇	22	34	43	20	ND(150)	150
	外ヶ浜町	H26.10.20	曇	26	31	42	20	ND(150)	170
	今別町	H26.10.20	曇	19	48	31	35	ND(180)	300
平均±標準偏差				23±2.7	37±7.5	39±6.1	22±7.1		
三八	八戸市	H26.10.24	晴	18	40	42	37	ND(170)	200
	階上町	H26.10.24	晴	20	30	38	20	430	1300
	田子町	H26.10.23	晴	26	31	39	14	ND(130)	400
	三戸町	H26.10.23	晴	17	39	44	25	ND(160)	240
	五戸町	H26.10.28	晴・曇	27	33	38	15	ND(120)	110
	南部町	H26.10.23	晴	22	37	41	20	ND(140)	130
	新郷村	H26.10.28	曇	39	25	35	12	ND(120)	120
平均±標準偏差				24±7.0	33±4.9	39±2.7	20±7.9		

・ ND : 検出限界以下。( ) 内は検出限界値。

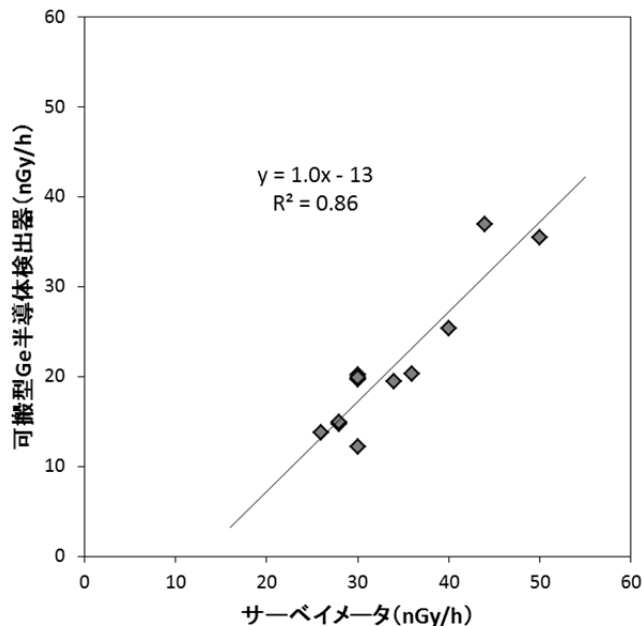


図 3 サurveyメータと可搬型 Ge 半導体検出器による空間放射線量率の関係

### (3) 土壌中放射性物質濃度の測定

#### ア 土壌中濃度

Ge 半導体検出器による土壌試料中人工放射性核種の測定結果を表 4 に示す。Cs-134 は蓬田村、外ヶ浜町、階上町及び田子町の 4 地点で検出され、測定値は 0.86~6.6 Bq/kg 乾で

表 4 土壌中の人工放射性核種測定結果

地域	市町村	採取年月日	<sup>134</sup> Cs		<sup>137</sup> Cs	
			濃度(Bq/kg 乾)	沈着量(Bq/m <sup>2</sup> )	濃度(Bq/kg 乾)	沈着量(Bq/m <sup>2</sup> )
東青	青森市	H26.10.30	ND(0.62)	ND(24)	1.7	64
	平内町	H26.10.9	ND(1.0)	ND(27)	7.2	190
	蓬田村	H26.10.9	0.86	35	3.0	120
	外ヶ浜町	H26.10.20	0.88	32	4.7	170
	今別町	H26.10.20	ND(0.93)	ND(36)	5.6	220
三八	八戸市	H26.10.24	ND(0.67)	ND(46)	1.4	94
	階上町	H26.10.24	6.6	270	20	790
	田子町	H26.10.23	1.0	40	7.6	300
	三戸町	H26.10.23	ND(1.1)	ND(40)	4.9	170
	五戸町	H26.10.28	ND(1.0)	ND(42)	1.7	70
	南部町	H26.10.23	ND(0.94)	ND(41)	1.9	82
	新郷村	H26.10.28	ND(1.0)	ND(36)	2.3	79

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

あった。その他 8 地点では検出限界以下 (< 0.62~1.1 Bq/kg 乾) であった。また、Cs-137 は全 12 地点で検出され、測定値は 1.4~20 Bq/kg 乾であった。蓬田村、外ヶ浜町、階上町及び田子町の 4 地点については、Cs-134 が検出されていることから、東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故の影響が認められる。これらの地点における事故起因の Cs-137 を Cs-134 の測定値から推定すると、それぞれ 2.6、2.7、20、3.2 Bq/kg 乾となり、Cs-137 測定値の 42~100% であった。

## イ 深度分布

地表から層別に採取した土壌について、Ge 半導体検出器による人工放射性核種の測定結果 (Cs-134 及び Cs-137 測定結果) を表 5 に、Cs-137 の深度分布の状況を図 4 に示す。青森市において Cs-134 は全層で不検出であり、Cs-137 は全層から検出された。一方、八戸市において Cs-134 が検出されたのは表層 1.0 cm までであり、それより下層では検出されなかった。Cs-137 は 0~1.5 cm 及び 3.0~10.0 cm の各層において検出され、1.5~3.0 cm の各層では不検出であった。

Cs-137 は青森市、八戸市のいずれも深い層まで検出されていることから、過去の大気圏内核実験に起因する Cs-137 が含まれていると考えられる。八戸市では表層において Cs-134 も検出されていることから、八戸市で測定された Cs-137 については東京電力(株)福島第一原子力発電所の事故に起因するものも含まれていると考えられる。

Cs-137 沈着量について、土壌中濃度測定結果と in-situ 測定結果を比較したのが図 5 である。今回、in-situ 測定結果の計算では、測定された Cs-137 が過去の大気圏内核実験に起因するものと仮定して  $\beta=4.85$  としたが、深度分布調査の結果から実際の  $\beta$  を求めたとこ

ろ、青森市では 4.6 で仮定に近い値であったが、八戸市では 15 で仮定より大きい値であった。このように測定地点によって Cs-137 の鉛直方向の分布が一様ではなく、全地点に対して実際の  $\beta$  を一律に適用できないこと、東青、三八の両地域において福島第一原子力発電所の事故の影響が認められていることから、測定法シリーズに示されている放射性物質沈着後の経過時間 1~5 年の場合の  $\beta = 3.0$  を用いた計算結果についても図 5 にプロットした。 $\beta = 4.85$  の場合よりも土壌中濃度測定結果に近づく結果となったが、土壌の調査が表面~5 cm 深の土壌について行っていることを含め、今後さらに検討が必要である。

表 5 層別採取土壌中の Cs-134 及び Cs-137 測定結果

深度(cm)	青森市		八戸市	
	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>134</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)	<sup>137</sup> Cs 濃度 (Bq/kg 乾)
0-0.5	ND(0.61)	1.8	1.4	4.4
0.5-1.0	ND(0.60)	1.6	1.2	2.7
1.0-1.5	ND(0.54)	2.0	ND(0.68)	1.0
1.5-2.0	ND(0.62)	1.8	ND(0.63)	ND(0.59)
2.0-3.0	ND(0.59)	1.6	ND(0.63)	ND(0.59)
3.0-4.0	ND(0.58)	0.86	ND(0.63)	0.71
4.0-5.0	ND(0.56)	0.63	ND(0.71)	2.0
5.0-7.0	ND(0.55)	0.63	ND(0.71)	1.0
7.0-10.0	ND(0.54)	0.65	ND(0.74)	1.5

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

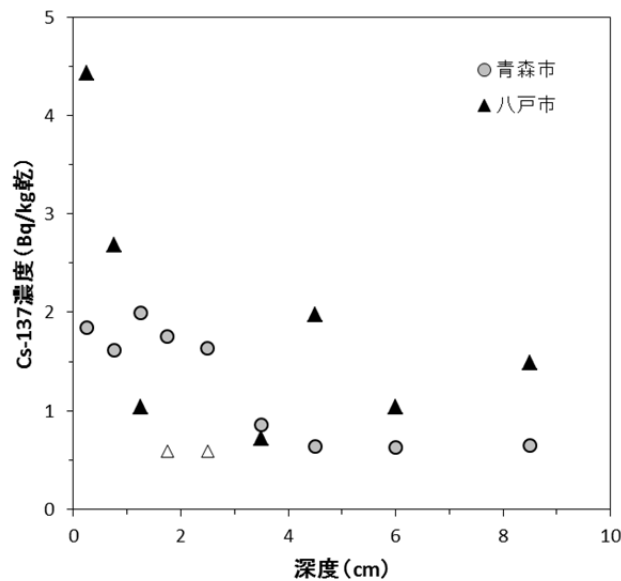


図 4 土壌中 Cs-137 の深度分布状況

△：検出限界以下の測定値は検出限界値としてプロットした。



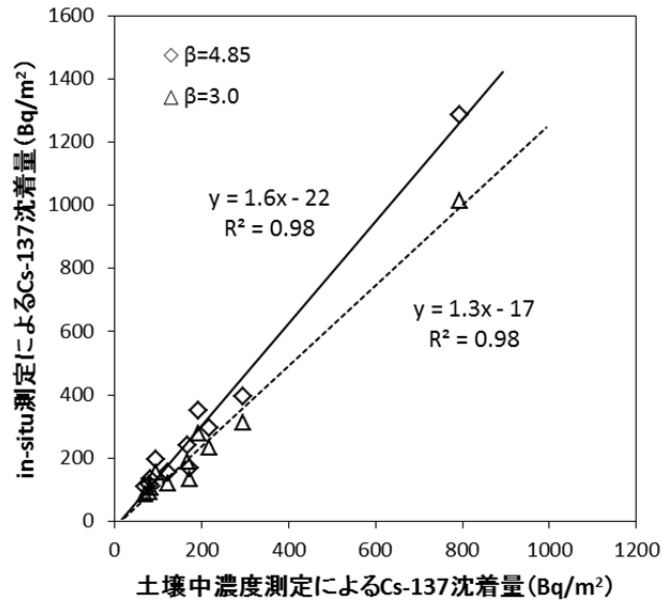


図5 土壤中濃度測定と in-situ 測定による Cs-137 沈着量の関係

#### (4) サーベイカーによる走行サーベイ

サーベイカーによる走行サーベイの結果（500 m 区間平均値）を表 6 に示す。空間放射線量率の測定結果は 12～35 nGy/h の範囲であった。今回の走行サーベイ結果全体を地図上にプロットしたのが図 6 である。この図では、表示密度に合わせて 10 秒値を自動的に平均しているため、プロットした値は 1.3～1.9 km の平均値となっている。以下に測定結果の概況を示す。

- ・八戸地域が比較的高い傾向を示し、中でも八戸市街、湊町付近で高い値を示した（ルート③⑤⑦）。これは、ビル等の建物が多い市街地が一因と考えられるが、そのほか、道路の舗装材、周辺土壌、表層地質等の影響が考えられる。
- ・上北地域に比べて三八地域で比較的高い測定値を示した（ルート④⑥⑨⑫）。周辺土壌等の影響が考えられる。
- ・八甲田火山群、十和田火山（十和田湖）に近づくにつれて測定値が低くなった（ルート①⑥⑨⑫）。八甲田火山群や十和田火山起源の火山噴出物の影響が考えられる。
- ・最も高い測定値を示した場所は、国道 4 号の久栗坂トンネルであった（ルート②）。トンネルでは線源からの入射方向が増えるため空間放射線量率が高くなる傾向にある。久栗坂トンネルは全長が約 600 m と長いため、この影響が顕著に現れたものと考えられる。
- ・最も低い測定値を示した場所は国道 394 号の八甲田火山地域にある七戸町営石倉山放牧場付近であった（ルート⑫）。八甲田火山群起源の火山噴出物による影響が考えられる。
- ・八戸市街のほかにも、青森市街、十和田市街、三沢市街では高い測定値を示した（ルート②⑦⑬）。ビル及び商店等の建物の影響等が考えられる。

表6 サーベイカーによる走行サーベイ結果

ルート番号	道路	区間	測定年月日	天候	空間放射線量率 (nGy/h)
①	国道 103 号	城ヶ倉～青森	H26.10.23	晴	14 ～ 28
②	国道 4 号	青森～十和田～三戸	H26.10.23	晴	13 ～ 35
③	国道 45 号	階上～八戸～百石～十和田	H26.10.24	晴	15 ～ 35
④	国道 104 号	八戸～田子	H26.10.23	晴	16 ～ 28
⑤	国道 340 号	南郷～八戸	H26.10.23	晴	19 ～ 31
⑥	国道 454 号	宇樽部～五戸～八戸	H26.10.23	晴	13 ～ 25
⑦	県道 1 号	八戸～階上	H26.10.24	晴	19 ～ 33
⑧	県道 42 号	剣吉～南郷	H26.10.23	晴	17 ～ 24
⑨	国道 102 号	十和田～焼山	H26.10.24	晴	12 ～ 27
⑩	国道 103 号	休屋～子ノ口	H26.10.23	晴	14 ～ 20
⑪	国道 338 号	四川目～百石	H26.10.24	晴	16 ～ 24
⑫	国道 394 号	乙供～七戸～谷地	H26.10.23	晴	12 ～ 23
⑬	県道 10 号	十和田～四川目	H26.10.24	晴	14 ～ 24



図6 サーベイカーによる走行サーベイ結果  
 ※図中の番号はルート番号、矢印は走行した方向である。

## (5) サーベイカーとサーベイメータによる測定値の比較

本調査で実施しているサーベイカーとサーベイメータの測定値の違いを把握するため、周囲に建物等のない比較的広いアスファルトの敷地（18 m×36 m）で、サーベイカーとサーベイメータを用いて、測定器の違いやサーベイカーの屋根による遮へいの影響等について以下のとおり調査を行った。

### ア サーベイカー検出器位置における測定

サーベイカー屋根上の低線量率計検出器の位置におけるサーベイメータの測定値を推定するため、サーベイメータを検出器の周囲に設置して空間放射線量率を測定した。測定位置を図7に示す。サーベイカーの検出器本体や高線量率計と干渉しないように検出器中心から前後左右に0.12、0.36、0.70 m離れた位置にサーベイメータの検出器を上向きに設置し、30秒間隔で5回測定し平均した。測定結果を図8に示す。検出器近傍の0.12 m、0.36 mの位置では、測定値のばらつきが見られたがほぼ同程度であった。また、0.70 mではサーベイカーによる遮へいの影響が小さく測定値が高くなる傾向を示した。このため、サーベイカー検出器位置でのサーベイメータの推定値は、0.70 mの測定値を除く0.12 m及び0.36 mのすべての測定値の平均値 35 nGy/h とした。このときのサーベイカーの測定値は 21 nGy/h であり、両者の測定器による測定値の差は 14 nGy/h となった。

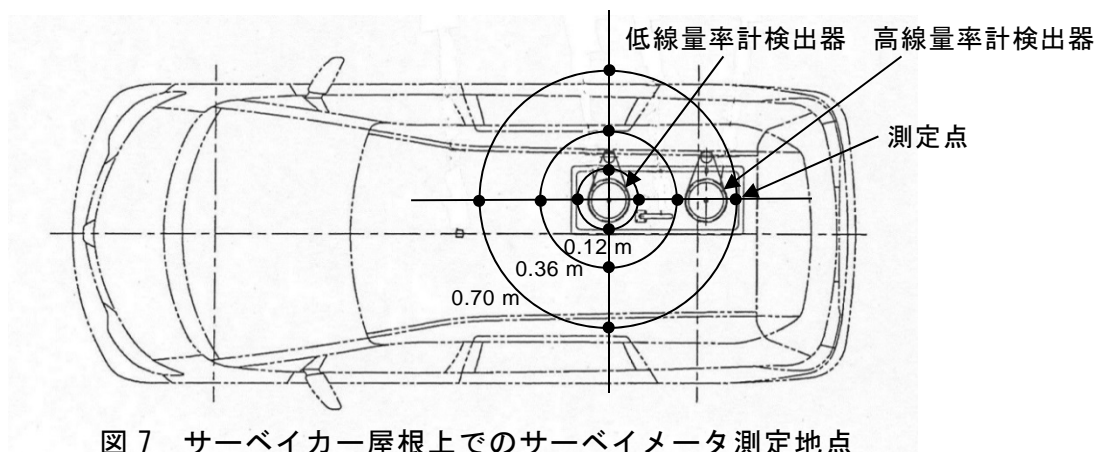


図7 サーベイカー屋根上でのサーベイメータ測定地点

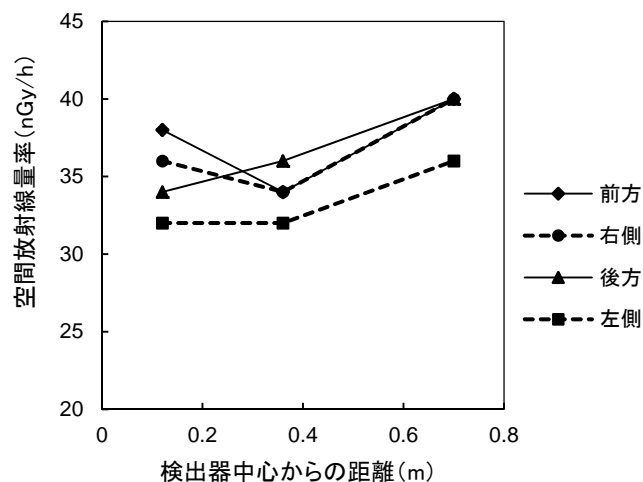


図8 サーベイカー屋根上でのサーベイメータによる空間放射線量率測定結果

## イ サーベイカーの遮へいに関する調査

サーベイカーによる測定の後、サーベイカーを移動させ、サーベイメータの検出器をサーベイカーと同じ位置、同じ高さ（地上高 1.95 m）、同じ向き（上向き）にして、アと同様に空間放射線量率を測定した結果、46 nGy/h であった。サーベイメータによるサーベイカー上での推定値は 35 nGy/h であったため、サーベイカーによる遮へい率は、 $1-35/46 = 0.24$  となった。

## ウ サーベイメータの測定高さに関する調査

定点測定でのサーベイメータの向きと同じ横向きで、サーベイメータの測定高さをサーベイカーと同じ 1.95 m のほか 1 m、0.5 m、0.1 m、0 m の高さにしてアと同様に空間放射線量率を測定した結果を図 9 に示す。0.1 m よりも高い測定高さでは空間放射線量率が若干減少するが標準偏差の範囲内であった。このことから、サーベイメータの測定高さの影響は 1 m と 1.95 m においてはほとんどないと考えられる。

## エ サーベイメータの向きに関する調査

サーベイメータの測定高さ 1.95 m 及び 1 m において、検出器を上向きと横向きとし、アと同様に空間放射線量率を測定した結果を表 7 に示す。横向きは上向きよりも若干高い値となったがその差は標準偏差の範囲内であった。このことから、サーベイメータの向きの影響は 1 m と 1.95 m においてはほとんどないと考えられる。

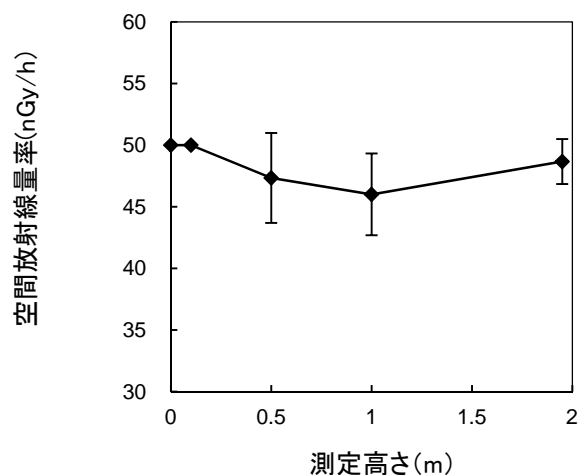


図9 サーベイメータの測定高さによる測定値の比較  
※エラーバーは5回の測定の標準偏差

表 7 サーベイメータ検出器の向きによる測定値の比較

(単位：nGy/h)

高さ (m)	横向き	上向き
1	46±3.3	45±4.8
1.95	49±1.8	46±5.5

#### 4. 平成 25 年度放射化学分析結果

平成 25 年度の土壤中放射性物質濃度の測定のうち、放射化学分析結果を表 8 に示す。Sr-90 濃度は ND~3.1 Bq/kg 乾、Pu-238 濃度はすべて ND、Pu-239+240 濃度は ND~0.16 Bq/kg 乾であった。

Sr-90 濃度及び Pu-239+240 濃度について、各地点における Cs-137 濃度との関係を図 10 及び図 11 に示す。Sr-90 については特に相関は認められなかったが、Pu-239+240 については Cs-137 と正の相関が認められた。また、図 10 及び図 11 に平成元年度~25 年度まで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結果<sup>3)</sup>を併せてプロットしたのが図 12 及び図 13 である。平成 25 年度の調査地点における Sr-90 濃度及び Pu-239+240 濃度はいずれもモニタリング対象地点に比して低いレベルであり、これらの測定結果全体としてみると、いずれの場合も正の相関関係が認められた。

表 8 土壤中放射性物質の放射化学分析結果 [平成 25 年度]

市町村	調査地点	採取年月日	<sup>90</sup> Sr (Bq/kg 乾)	<sup>238</sup> Pu (Bq/kg 乾)	<sup>239+240</sup> Pu (Bq/kg 乾)
弘前市	宮園公園	H25.10.23	ND(0.21)	ND(0.0085)	ND(0.0088)
黒石市	御幸公園	H25.10.23	ND(0.16)	ND(0.0087)	0.036
平川市	大坊小学校	H25.10. 8	0.47	ND(0.0087)	0.057
西目屋村	西目屋小学校	H25.11.22	ND(0.21)	ND(0.0085)	0.080
藤崎町	ときわ西口広場公園	H25.11. 1	ND(0.18)	ND(0.0092)	0.051
大鱈町	大鱈小学校	H25.10. 8	0.23	ND(0.0093)	0.086
田舎館村	田舎館中学校	H25.10.23	0.27	ND(0.0093)	0.028
五所川原市	菊ヶ丘運動公園	H25. 9.26	0.46	ND(0.0085)	0.092
つがる市	つがる市森田公民館	H25.10.24	0.95	ND(0.0090)	0.16
鱒ヶ沢町	旧鱒ヶ沢第一中学校	H25.10.24	ND(0.23)	ND(0.0096)	ND(0.0098)
深浦町	夕陽ヶ丘公園	H25.10.24	0.31	ND(0.0098)	0.054
板柳町	板柳町公民館	H25.11.22	3.1	ND(0.0084)	0.072
鶴田町	鶴田中学校	H25.11.22	0.61	ND(0.010)	ND(0.010)
中泊町	総合文化センター パルナス隣接地	H25. 9.26	0.31	ND(0.010)	0.051

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

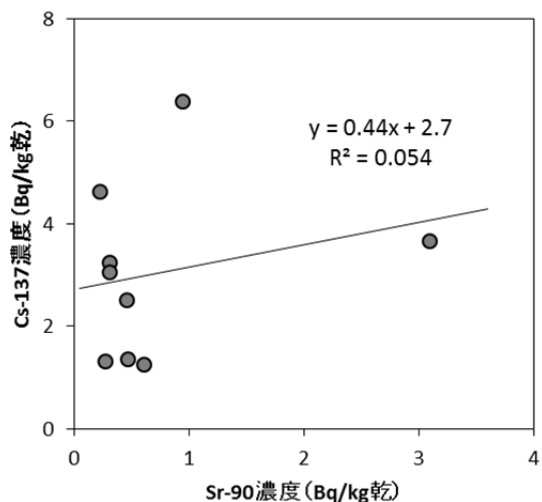


図 10 Sr-90 濃度と Cs-137 濃度の関係  
(平成 25 年度分析結果)

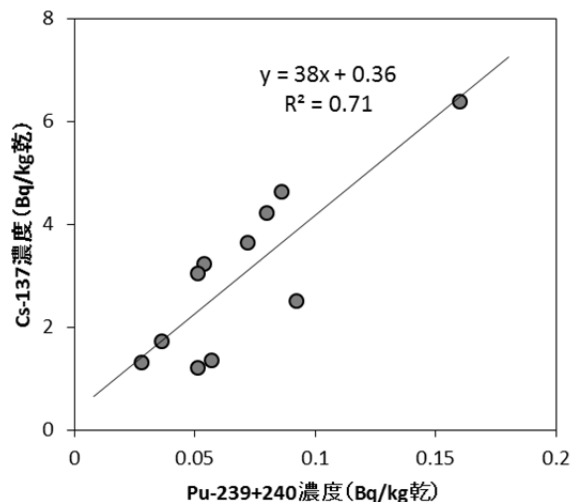


図 11 Pu-239+240 濃度と Cs-137 濃度の関係  
(平成 25 年度分析結果)

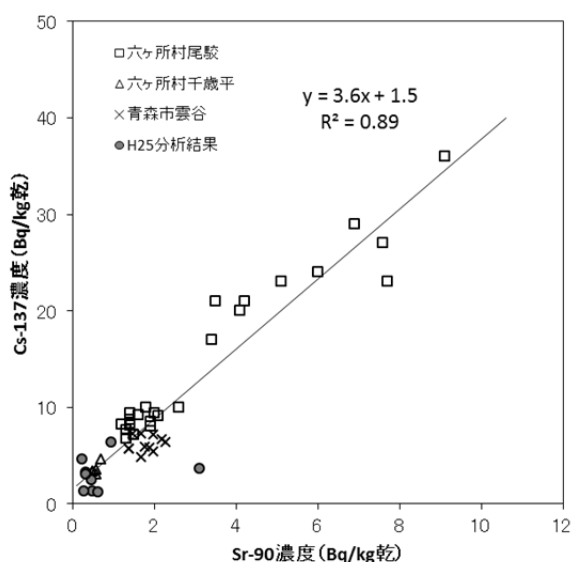


図 12 Sr-90 濃度と Cs-137 濃度の関係  
(平成 25 年度分析結果+モニタリング結果※)

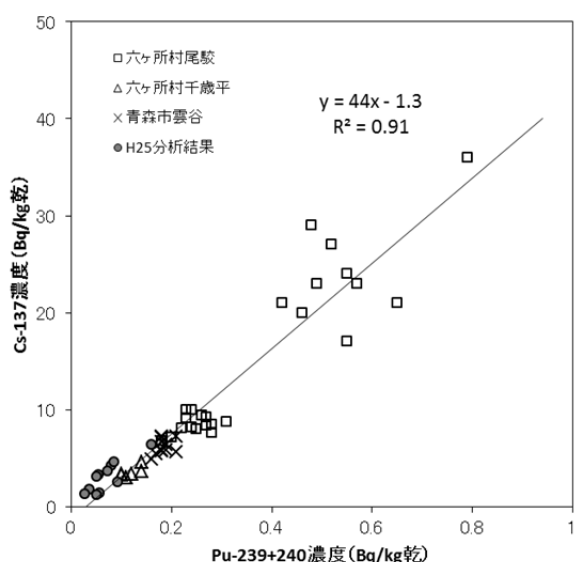


図 13 Pu-239+240 濃度と Cs-137 濃度の関係  
(平成 25 年度分析結果+モニタリング結果※)

※ 原子燃料サイクル施設に係る環境放射線等調査結果 (平成元年度～25 年度)<sup>3)</sup>

## 5. 今後の計画

平成 27 年度以降も年次計画に基づき、計画的に調査を行う。

(年次計画)

平成 24 年度 調査計画作成

平成 25 年度 調査実施 (西北地域、中南地域)

平成 26 年度 調査実施 (東青地域、三八地域)

平成 27 年度 調査実施 (上北地域、下北地域及び再調査地点)

平成 28 年度 結果とりまとめ

## 文 献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法」  
(平成 20 年 3 月)
- 2) 長岡和則、本田幸一郎、宮野敬治：環境  $\gamma$  線線量測定における宇宙線の寄与,  
RADIOISOTOPES, 45, 665-674 (1996)
- 3) 青森県：原子力施設環境放射線調査報告書 (平成元年度報～平成 25 年度報)





## 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 25 年度調査結果—

神 俊雄 坂 恭平 五十嵐 健  
幸 進\*<sup>1</sup> 岡 光昭\*<sup>1</sup> 岡村泰治\*<sup>1</sup>

### 1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成 18 年 3 月 31 日からアクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）が行なわれており、クリプトン-85(<sup>85</sup>Kr)、トリチウム(<sup>3</sup>H)、炭素-14(<sup>14</sup>C)及びヨウ素-129(<sup>129</sup>I)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、炭素-14 及びヨウ素-129 について調査を開始した。平成 20 年度からはヨウ素-131(<sup>131</sup>I)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）を追加して実施している。

本報告は平成 25 年度の調査結果についてとりまとめたものである。

### 2. 調査方法

#### 2.1 対象試料及び調査地点

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

平成 24 年度第 1 四半期で調査を終了した牛乳（富ノ沢）の代替地点として、牛乳（六原）を追加した。平成 24 年度で調査を終了した精米（尾駱）の代替地点として、精米（平沼②）を追加した。その他については、平成 24 年度に引き続き同じ試料について調査を継続して実施した。

#### 2.2 測定方法

##### (1) トリチウム

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

試料を真空凍結乾燥により、組織自由水と乾燥物に分別した。組織自由水については、水分中トリチウム濃度（Bq/L）を測定し、これを組織自由水トリチウム（TFWT）濃度とした。乾燥物については、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、これを有機結合型トリチウム（OBT）濃度とした。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。

なお、OBT は非交換型 OBT と交換型 OBT に分類されるが、これらの OBT は、生物体内での

\*1：日本原燃株式会社

挙動が異なることや、交換型 OBT が分析室内空気中のトリチウムや試料中 TFWT の影響を受ける可能性があることから、近年においては試料を凍結乾燥後に無トリチウム水で洗浄して交換型 OBT を除去し、非交換型 OBT のみ分析することを推奨する研究<sup>3)</sup>もある。本調査においては、平成 21 年度から、魚類について非交換型 OBT の分析を実施し、平成 26 年度からは、OBT はすべて非交換型 OBT として分析することとしている。非交換型 OBT の分析工程を図 2 に示す。

## (2) 炭素-14

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性炭素分析法」<sup>4)</sup>に準拠し、ベンゼン合成-液体シンチレーション計測法を用いた。

試料を真空凍結乾燥後、高圧酸素下で燃焼し、生成した二酸化炭素から触媒によりベンゼンを合成した。これを液体シンチレーション計測法により測定し、炭素-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炭素-14 比放射能と全炭素量から、試料中の炭素-14 濃度を算出した。

表 1 対象試料及び調査地点・核種（平成 25 年度）

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

※1 平成 25 年度から調査開始。

※2 魚類はヒラメ及びカレイ。

TFWT：組織自由水トリチウム OBT：有機結合型トリチウム（交換型 OBT を除去しない OBT）

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

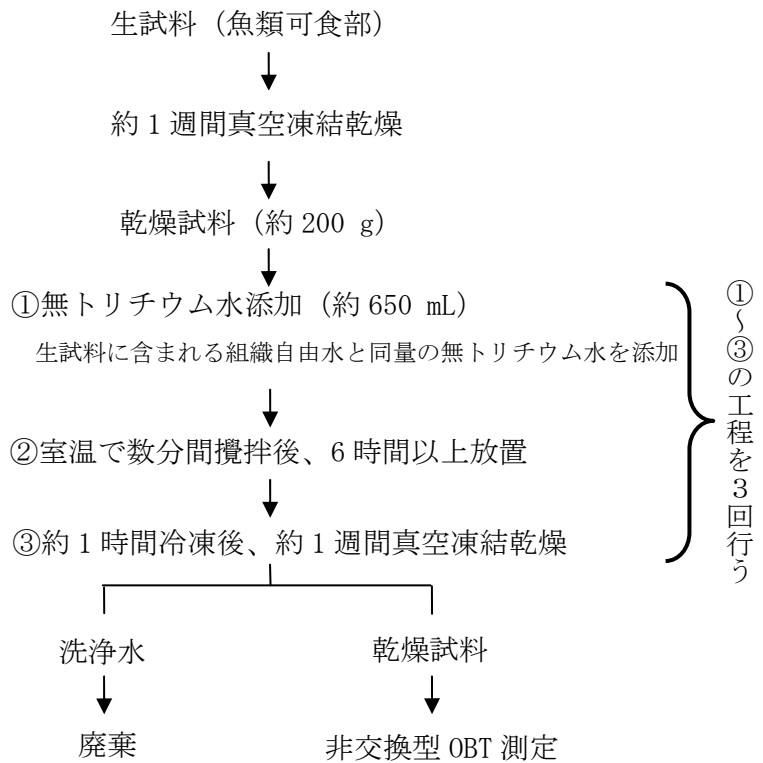


図2 非交換型 OBT の分析工程

### (3) ヨウ素-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)を用いてヨウ素-129( $^{129}\text{I}$ )とヨウ素-127( $^{127}\text{I}$ )の原子数比を測定した。また、乾燥試料を次亜塩素酸ナトリウム溶液で分解し、ICP質量分析法によって安定ヨウ素( $^{127}\text{I}$ )を定量した。これらによって求めた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比と安定ヨウ素濃度から、環境試料中のヨウ素-129濃度を求めた<sup>5)</sup>。

### (4) ヨウ素-131

文部科学省放射能測定法シリーズ「放射性ヨウ素分析法」<sup>6)</sup>に準拠し、生試料又は乾燥試料をGe半導体検出器により測定した。

### 3. 再処理工場からの放射性廃棄物の放出状況

再処理工場において平成18年4月から平成26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、炭素-14及びヨウ素-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。

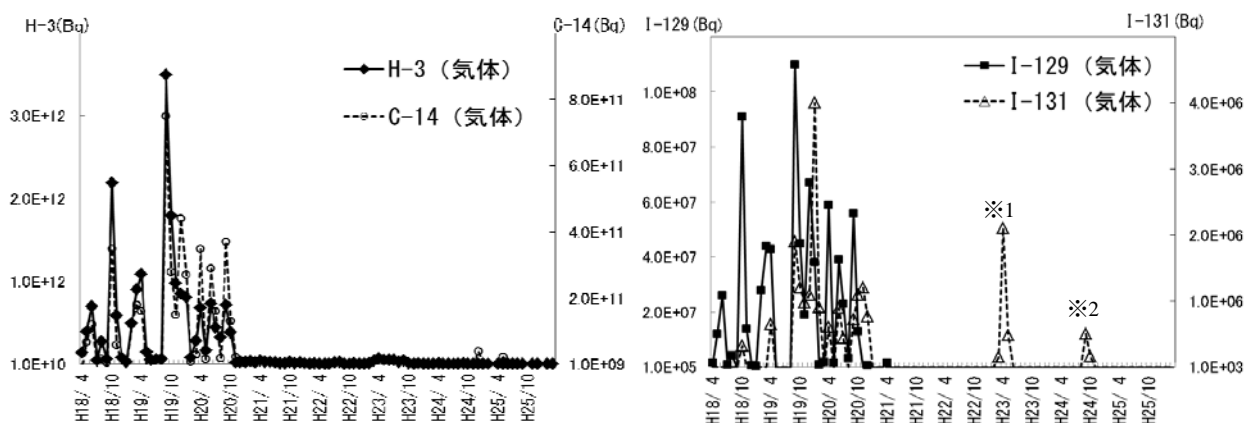


図3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量  
(平成18年4月～平成26年3月)

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

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

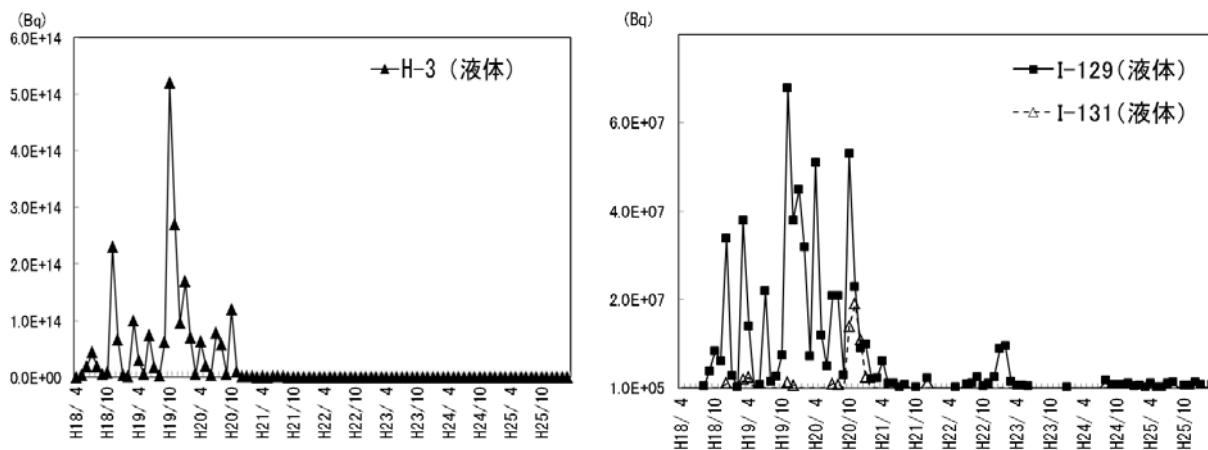


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量  
(平成18年4月～平成26年3月)

## 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～0.64 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.52 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.48 Bq/Lであり、牛乳及び飲料水ともにこれまでの値と同程度であった。地点ごとにみると、TFWT、OBTともに六原及び豊原が他の地点に比べて比較的高めであった。それぞれの地点において乳牛に与えている飲料水中のトリチウム濃度についても、検出される頻度が高いことから、牛乳中トリチウム濃度は、飲料水中のトリチウム濃度を反映しているものと考えられる。

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25年度）

採取地 点	採取 月	平成25年度調査結果			(参考)		
		牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)	平成19～24年度調 査結果		平成22～24 年度 調査結果
		TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	
六原*	4月	*	0.52±0.12	*			
	7月	0.55±0.10	*	0.35±0.07	-	-	-
	10月	0.33±0.10	*	0.38±0.07			
	1月	0.63±0.11	0.40±0.11	0.31±0.07			
横浜町	4月	*	*	*			
	7月	*	*	0.47±0.07	*～0.51	*～0.70	*～0.48
	10月	*	*	0.48±0.07			
	1月	*	*	*			
二又	4月	*	*	*			
	7月	*	*	*	*～0.42	*～0.63	*～0.25
	10月	*	*	*			
	1月	*	0.48±0.11	*			
豊原	4月	*	*	*			
	7月	0.64±0.11	*	0.38±0.07	*～0.73	*～0.77	*～0.57
	10月	0.41±0.10	0.43±0.11	0.28±0.07			
	1月	0.48±0.11	*	0.33±0.07			

・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0.30～0.36 Bq/L、OBTで0.32～0.35 Bq/L、飲料水で0.21～0.22 Bq/Lであった。

※1 平成25年度から調査開始。

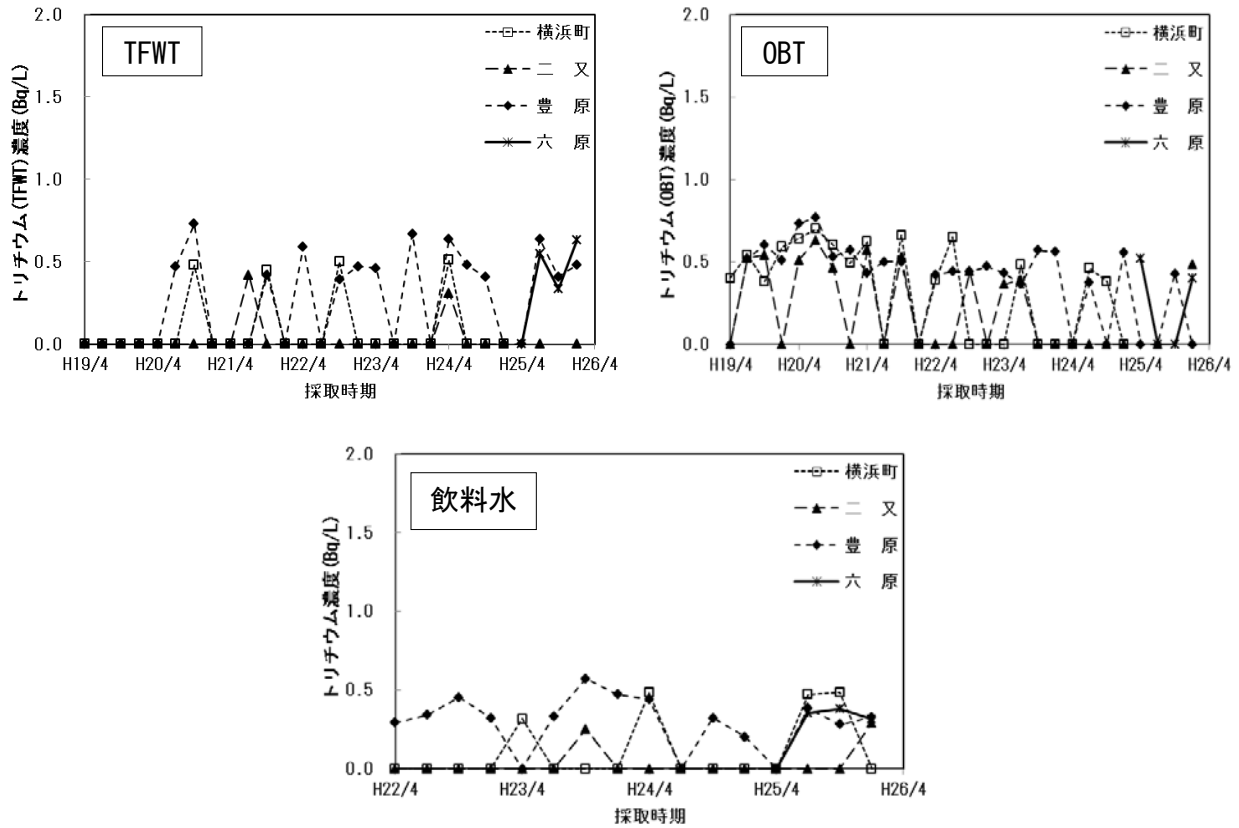


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化

※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。精米についてはOBTで検出限界以下～0.66 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点が多い。

表3 精米のトリチウム (OBT) 濃度 (平成25年度)

試料名	採取地点	採取月	平成25年度調査結果		(参考) 平成19～24年度
			調査結果		調査結果
			OBT (Bq/L)		OBT (Bq/L)
精米	千樽	10月	0.36±0.15		*～0.89
	野辺地町	10月	0.40±0.11		*～0.59
	二又①※1	9月	0.57±0.11		*～0.35
	二又②	9月	0.47±0.11		*～1.0
	戸鎖	9月	0.62±0.11		*～0.66
	平沼①※1	10月	0.66±0.11		*～0.44
	平沼②※2	10月	*		-

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお検出限界は、0.33～0.34 Bq/Lであった。

※1 平成20年度から調査開始

※2 平成25年度から調査開始

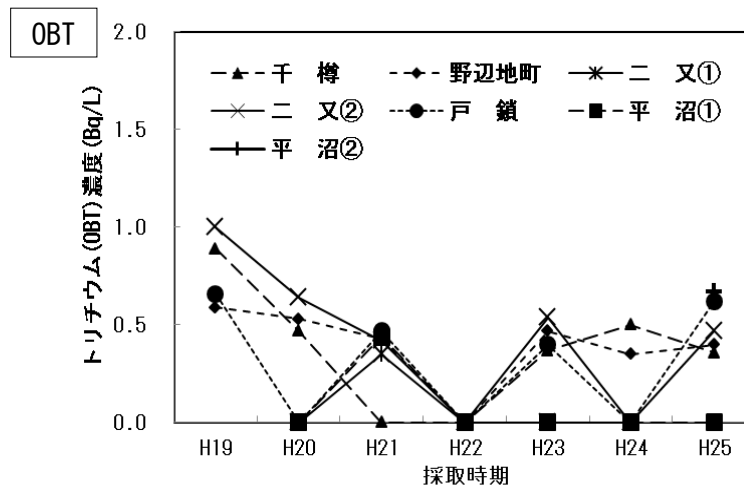


図6 精米におけるトリチウム濃度(OBT)の経年変化

※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～0.56 Bq/L、OBTで検出限界以下～0.63 Bq/Lであり、平成19及び20年度と比較して低くなっている地点もあるが、全体的な傾向としては明確でない。

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、近年の大气及び雨水中トリチウム濃度<sup>※1</sup>と同程度であった。

※1 青森県実施の環境放射線モニタリング(平成20～25年度)における大气及び雨水のトリチウム濃度は以下のとおり。

大气：検出限界(0.21～0.36 Bq/L)以下～1.0 Bq/L

雨水：検出限界(0.23～0.36 Bq/L)以下～1.2 Bq/L

表4 野菜のトリチウム(TFWT、OBT)濃度(平成25年度)

試料名	採取地点	採取月	平成25年度調査結果		(参考)平成19～24年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)
ハクサイ	出戸	10月	0.56±0.11	0.63±0.11	*～0.69	*～0.80
	千樽	10月	0.42±0.10	0.53±0.11	*～0.89	*～0.68
キャベツ	横浜町	10月	0.39±0.11	0.50±0.11	*～0.94	0.48～1.2
ダイコン	出戸	10月	0.38±0.11	0.38±0.11	*～0.58	0.37～0.68
バレイショ	尾駸	8月	0.41±0.11	0.57±0.11	0.42～0.86	*～0.84
ナガイモ	東北町	11月	*	*	*～0.67	*～0.62
	平沼	11月	*	*	0.41～0.89	*～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0.31～0.35 Bq/Lであった。

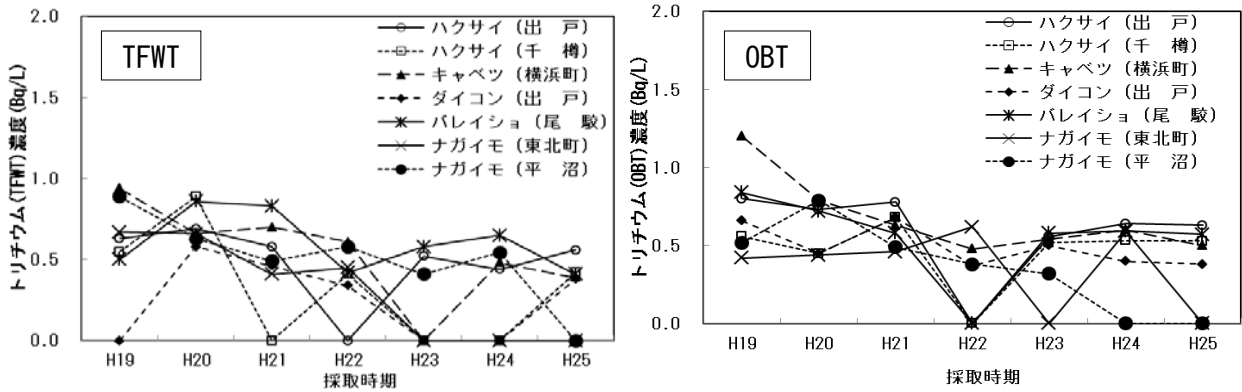


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

※検出限界以下は0としてプロットした。

海洋試料である魚類の測定結果を表5及び図8に示す。TFWTは7月採取分で0.45 Bq/Lとなった他は検出限界以下、OBTは6月採取分で0.39 Bq/Lとなった他は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、12月採取分で0.35 Bq/Lとなった他は検出限界以下であった。なお、海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は0.1~0.2 Bq/L程度と報告されている<sup>7)</sup>。

表5 魚類のトリチウム (TFWT、OBT) 濃度 (平成25年度)

試料名	採取地点	採取月	平成25年度調査結果			(参考)平成19~24年度調査結果		
			TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	OBT (Bq/L)	非交換型OBT (Bq/L)
魚類 <sup>※1</sup>	六ヶ所村 前面海域 ①	6月	*	*	*	*~3.3	*~1.4	*
		8月	*	*	*			
		11月	*	*	*			
		12月	*	*	0.35±0.11			
	六ヶ所村 前面海域 ②	6月	*	0.39±0.11	*	*	*~0.77	*
		7月	0.45±0.10	*	*			
		10月	*	*	*			
		1月	*	*	*			

・測定値がその計数誤差の3倍以下の場合検出限界以下とし、「\*」と表示した。なお検出限界は、TFWTで0.30~0.34 Bq/L、OBTで0.31~0.34 Bq/L、非交換型OBTで0.32~0.35 Bq/Lであった。

※1 魚類はヒラメ及びカレイ



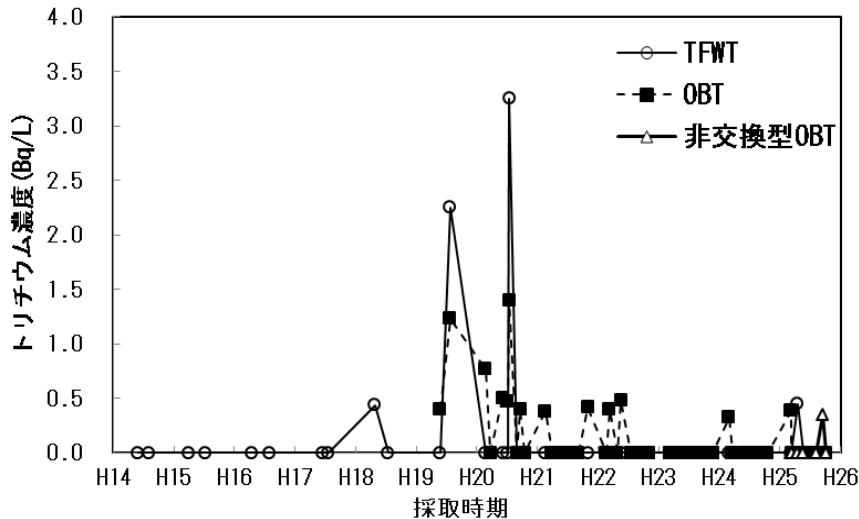


図8 魚類におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT、非交換型 OBT)の経年変化

※1 検出限界以下は0としてプロットした。

※2 平成18年度以前は、環境放射線モニタリングにおける測定値。

#### 4.2 炭素-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物の炭素-14 比放射能の測定結果は表6に示すとおり、精米が0.231~0.244 Bq/g 炭素、葉菜が0.227~0.230 Bq/g 炭素、根菜・いも類が0.225~0.235 Bq/g 炭素であった。

図9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炭素-14 比放射能の推移を示す。炭素-14 のモニタリングを開始した平成7年度から平成18年度まで炭素-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炭素-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炭素-14 比放射能の測定値から核実験以前の自然平衡値0.228 Bq/g 炭素<sup>8)</sup>を差し引き、時間による減衰式を求めた。核実験起源の炭素-14 の半減時間を求めると9.5年となり、これは府馬ら<sup>9)</sup>による核実験起源の炭素-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25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6 農産物の炭素-14 比放射能（平成25年度）

試料名	採取地点	採取月	H25年度調査結果	(参考) H19~24年度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
精米	千樽	10月	0.231±0.003	0.233~0.248
	野辺地町	10月	0.233±0.003	0.229~0.249
	二又① <sup>※1</sup>	9月	0.233±0.003	0.231~0.241
	二又②	9月	0.242±0.003	0.235~0.251
	戸鎖	9月	0.244±0.003	0.237~0.255
	平沼① <sup>※1</sup>	10月	0.235±0.003	0.228~0.244
	平沼② <sup>※2</sup>	10月	0.234±0.003	-
ハクサイ	出戸	10月	0.227±0.003	0.230~0.245
	千樽	10月	0.230±0.003	0.230~0.260
キャベツ	横浜町	10月	0.230±0.003	0.227~0.267
ダイコン	出戸	10月	0.232±0.003	0.228~0.239
パレイショ	尾駸	8月	0.235±0.003	0.225~0.244
ナガイモ	東北町	11月	0.225±0.002	0.229~0.243
	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

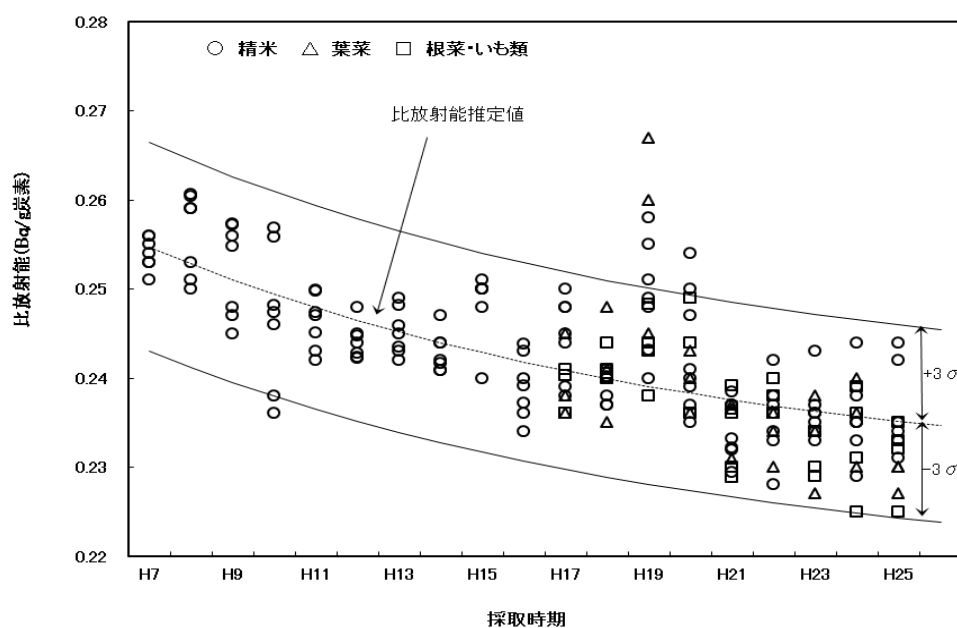


図9 農産物における炭素-14 比放射能の経年変化

炭素-14 比放射能推定値及び変動幅の算出方法

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

$F_c$  : フォールアウト寄与分の比放射能計算値 (Bq/g 炭素)。平成6年度からの経過年数  $t$  との関係を次式のとおりとし、平成7~18年度の測定値から自然平衡レベルを差し引いた値を用いて回帰分析を行い、定数  $A$  及び  $\lambda$  を求めた。

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

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

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

$t$  : 平成6年度からの経過年数 (年)

・変動幅 ( $3\sigma$ ) = 比放射能推定値・変動係数・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

牛乳の炭素-14 比放射能の測定結果は表 7 に示すとおり、0.232～0.248 Bq/g 炭素であった。図 10 には牛乳の炭素-14 比放射能の推移を示す。牛乳はアクティブ試験前の測定結果がないため、参考として農産物の値から求めた比放射能の推定値と変動幅も併せて記載した。牛乳においても、図 9 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 25 年度の測定値は、平成 24 年度と比較してやや低めであり、すべて推定値±3σ の範囲内であった。

表 7 牛乳の炭素-14 比放射能（平成 25 年度）

試料名	採取地点	採取月	H25 年度調査結果	(参考) H19～24 年度調査結果
			(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原*	4月	0.234±0.003	-
		7月	0.235±0.003	
		10月	0.241±0.003	
		1月	0.235±0.003	
	横浜町	4月	0.248±0.003	0.232～0.246
		7月	0.244±0.003	
		10月	0.242±0.003	
		1月	0.242±0.003	
	二又	4月	0.243±0.003	0.233～0.262
		7月	0.235±0.003	
		10月	0.242±0.003	
		1月	0.236±0.003	
豊原	4月	0.235±0.003	0.231～0.266	
	7月	0.233±0.003		
	10月	0.238±0.003		
	1月	0.232±0.003		

※ 平成 25 年度から調査開始

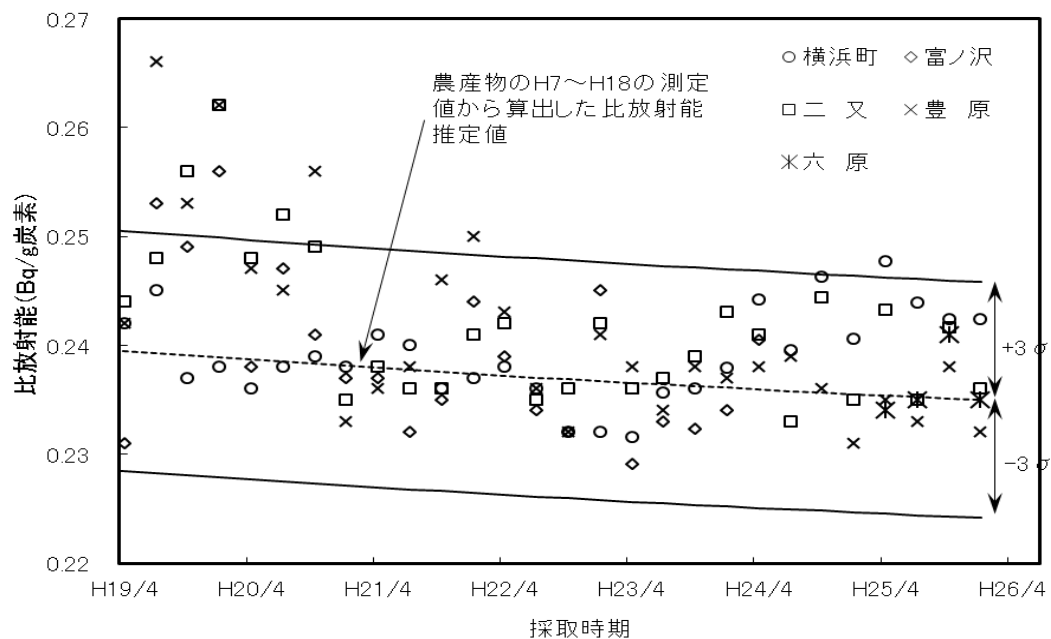


図 10 牛乳における炭素-14 比放射能の経年変化

### 4.3 ヨウ素-129 及びヨウ素-131

環境試料中のヨウ素-129 濃度及び  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比を表 8 に、その経年変化を図 11 に示す。ヨウ素-129 濃度については、葉菜類で  $7.0 \times 10^{-8} \sim 1.1 \times 10^{-7}$  Bq/kg 生、海藻類で  $1.8 \times 10^{-4}$  及び  $3.1 \times 10^{-4}$  Bq/kg 生であった。海藻類は葉菜類に比べて安定ヨウ素濃度が高く、このためヨウ素-129 濃度についても海藻類の方が高くなっているものと考えられる。一方、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は葉菜類で  $2.8 \times 10^{-9} \sim 4.2 \times 10^{-9}$ 、海藻類で  $7.0 \times 10^{-11}$  及び  $7.4 \times 10^{-11}$  であった。大気圏内核実験後の環境中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、陸上試料で  $10^{-9} \sim 10^{-7}$ 、海洋試料で  $10^{-11} \sim 2 \times 10^{-10}$  程度と報告されている<sup>10)</sup>。本調査における葉菜類及び六ヶ所村前面海域の海藻類の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、これらと同程度であり、また、平成 19 及び 20 年度と比較すると、葉菜類、海藻類ともに低めであった。

ヨウ素-131 は、すべての試料において検出限界以下であった。

表 8 環境試料中のヨウ素-129 濃度及び  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比 (平成 25 年度)

試料名	採取地点	採取月	平成 25 年度調査結果		(参考) 平成 19~24 年度調査結果	
			ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比	ヨウ素-129 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比
ハクサイ	出戸	10月	$7.5 \times 10^{-8}$	$3.3 \times 10^{-9}$	$1.9 \times 10^{-7}$	$4.9 \times 10^{-9}$
			$\pm 1.8 \times 10^{-8}$		$\sim 1.7 \times 10^{-5}$	$\sim 4.9 \times 10^{-7}$
ハクサイ	千樽	10月	$7.0 \times 10^{-8}$	$2.8 \times 10^{-9}$	$8.3 \times 10^{-7}$	$2.4 \times 10^{-8}$
			$\pm 2.1 \times 10^{-8}$		$\sim 1.6 \times 10^{-5}$	$\sim 2.3 \times 10^{-7}$
キャベツ	横浜町	10月	$1.1 \times 10^{-7}$	$4.2 \times 10^{-9}$	$1.8 \times 10^{-7}$	$4.2 \times 10^{-9}$
			$\pm 0.3 \times 10^{-7}$		$\sim 1.2 \times 10^{-5}$	$\sim 6.0 \times 10^{-7}$
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	8月	$1.8 \times 10^{-4}$	$7.0 \times 10^{-11}$		
			$\pm 0.3 \times 10^{-5}$		$8.5 \times 10^{-5}$	$4.6 \times 10^{-11}$
		11月	$3.1 \times 10^{-4}$	$7.4 \times 10^{-11}$	$\sim 2.8 \times 10^{-3}$	$\sim 9.1 \times 10^{-10}$
			$\pm 0.4 \times 10^{-5}$			

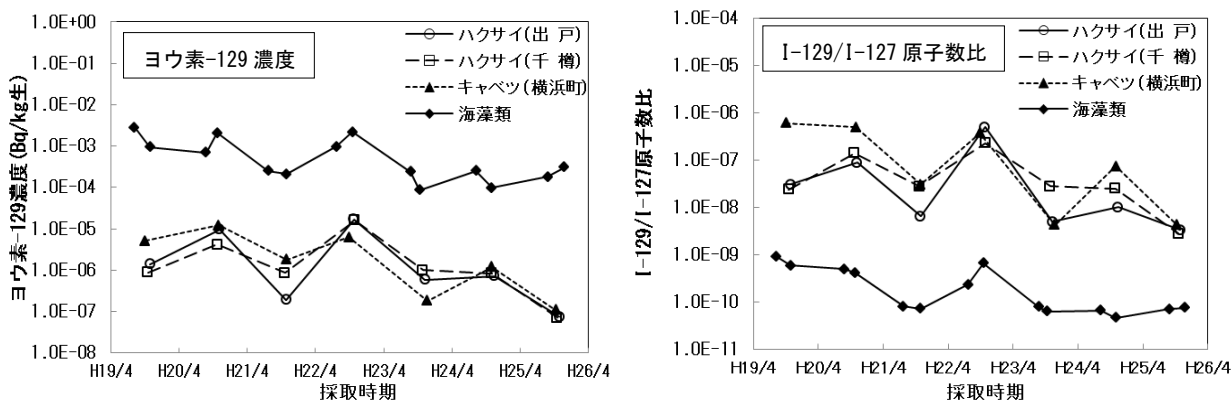


図 11 ヨウ素-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

## 5. まとめ

平成 25 年度の調査において、トリチウムは、陸上試料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、平成 19 及び 20 年度より低めであるが、明確ではない地点もあった。また、海洋試料である魚類については、平成 19 及び 20 年度と比べ明らかに低くなっており、ほとんどが検出限界以下であった。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、1 試料を除き、すべて検出限界以下であった。炭素-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。ヨウ素-129 は、葉菜類、海藻類ともに  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  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 年度と比較して低い値であった。ヨウ素-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) F. Pointurier, N. Baglan, G. Alanic and R. Chiappini : Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France, *Journal of Environmental Radioactivity*, **68**, 171-189(2003)
- 4) 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）
- 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) 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）
- 7) 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)
- 8) 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)
- 9) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田洋、岩倉哲男、新井清彦、檉田義彦、一政祐輔：1990 年代の日本における  $^{14}\text{C}$  の環境バックグラウンドレベル, *RADIOSOTOPES*, **51**, 381-391(2002)
- 10) Xiaolin. Hou : Application of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **262**, 67-75 (2004)



## Ⅱ 学 会 发 表 等 要 旨





## 空間放射線量率測定結果における人工放射線の寄与の弁別方法

熊谷邦彦 大久保英樹 木村秀樹

### 第9回自然放射線国際シンポジウム、青森県弘前市、2013.2.26-2.28

空間放射線量率は降雨雪や積雪など自然現象により変動することが知られている。我々は、空間放射線量率測定における自然放射線の変動を推定することにより、人工放射線による寄与を弁別する方法を開発した。

ウラン系列の壊変生成物である Bi-214 から放出される  $\gamma$  線 (1.76MeV 等) の計数率は、降雨雪により上昇し、空間放射線量率と良い相関を示すことから、空間放射線量率の降雨雪による上昇分を推定する指標として有効である。また、トリウム系列の壊変生成物である Tl-208 から放出される  $\gamma$  線 (2.62MeV 等) の計数率は、降雨雪による変動が少ないことから、積雪の遮へいによる大地からの放射線の低下を把握するための指標として有効である。このことを利用し、Bi-214 の計数率及び Tl-208 の計数率を変数とした重回帰式により自然放射線に基づく線量率を推定し、空間放射線量率測定値から差し引くことにより人工放射線による寄与を弁別する。

本法を青森県が実施している環境放射線モニタリングに適用した結果、次のような空間放射線量率の上昇事象を把握できた。

- ・六ヶ所再処理工場のアクティブ試験における使用済燃料のせん断・溶解に伴って放出された Kr-85 による寄与
- ・東京電力(株)福島第一原子力発電所事故に起因すると考えられる放射性セシウムが付着した車両などからの寄与 等

本県では、空間放射線量率が積雪により 10nGy/h 以下になることがある一方で、降雨雪により 100nGy/h 以上になることもある。このような状況下で本法は 1nGy/h 程度の人工放射線による寄与の弁別が可能である。

※本発表内容の詳細については、平成 27 年刊行予定の Radiation Protection Dosimetry の自然放射線国際シンポジウム特集号に掲載される予定。

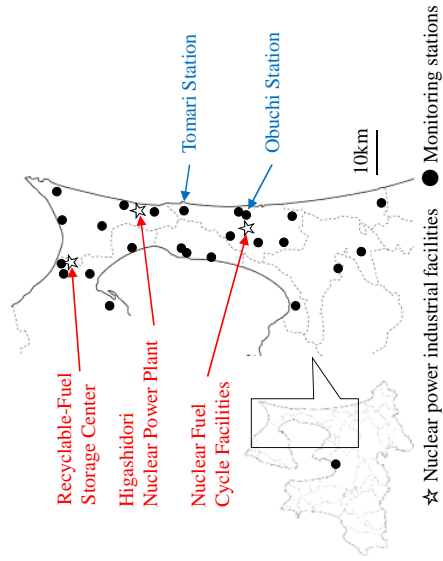
# DISCRIMINATION METHOD OF THE EFFECTS FROM ARTIFICIAL RADIATION IN ENVIRONMENTAL DOSE RATE MEASUREMENT

K. KUMAGAI, H. OKUBO, H. KIMURA  
AOMORI PREFECTURAL NUCLEAR POWER SAFETY CENTER

## Introduction

- Monitoring environmental  $\gamma$ -ray dose rates around nuclear facilities are important for assessing radiation safety of people.
- To measure the  $\gamma$ -ray dose rate originating from artificial radionuclides requires precise evaluation of the background environmental  $\gamma$ -ray dose rate from natural radionuclides.
- The background dose rate varies because of  $^{222}\text{Rn}$  progeny deposited by precipitation and the shielding effect of snow cover.
- In snowy area like Aomori prefecture, these two factors are the most common causes of variation.
- In this presentation, we present a method for correcting for both of these factors simultaneously.

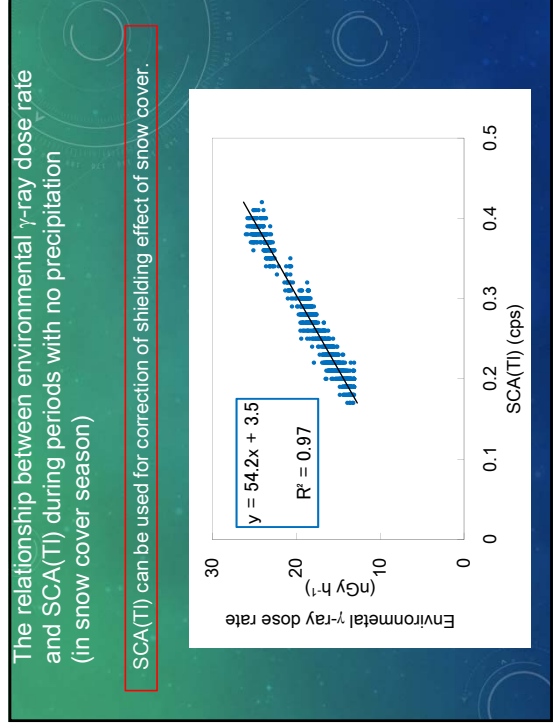
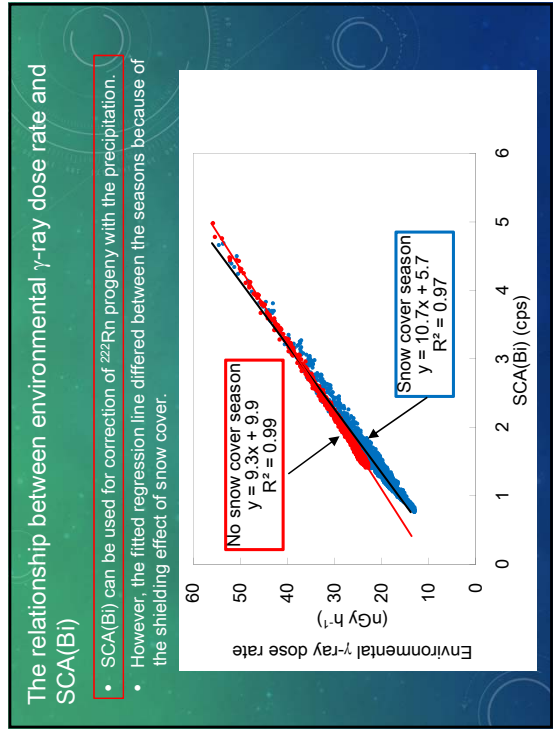
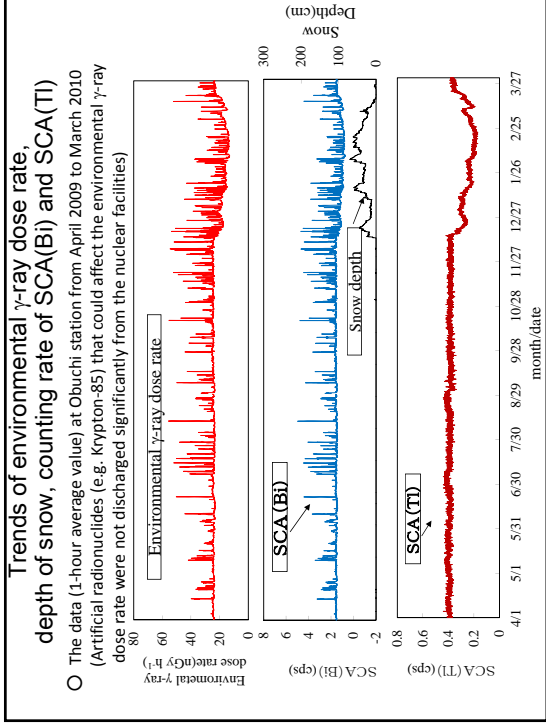
## Monitoring locations



## Devices

	Device
Environmental $\gamma$ -ray dose rate	$3'' \phi \times 3'' \text{ NaI(Tl) scintillation detector}$ Measuring energy range: 50keV~3MeV
Kr-85 concentration in the air	$\beta$ -radioactive gas monitor ( Plastic scintillation detector)
Snow depth	ultrasonic wave-type snow depth meter
precipitation	rainfall and snowfall sensing devise

- These data are transferred to our center via a telemetering system.
- The NaI(Tl) scintillation monitoring system has two single channel analyzers (SCA).
- SCA count  $\gamma$ -rays in specific predetermined energy ranges.



Estimation of fluctuation in environmental  $\gamma$ -ray dose rate of natural radiation with the use of SCA

- Multiple linear regression analysis using SCA(Bi) and SCA(Tl) as variables

“Estimated natural dose rate”

$$= A * SCA(Bi) + B * SCA(Tl) + C$$

Index for correction of  $^{222}Rn$  progenies effect with the precipitation

Index for correction of shielding effect of snow cover

A, B, C : Coefficient

SCA(Bi) : Counting rate of  $\gamma$ -rays in the energy range of  $^{214}Bi$

SCA(Tl) : Counting rate of  $\gamma$ -rays in the energy range of  $^{208}Tl$

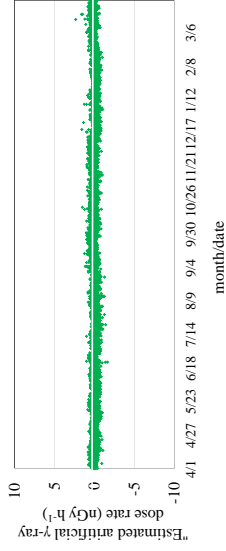
- Data used by multiple linear regression

→ Measured data(1-hour value) throughout the year except the effect of artificial radiation.

“Estimated artificial dose rate”

“Estimated artificial dose rate” = “Measured value” — “Estimated natural dose rate”

- The data (1-hour value) at Obuchi monitoring station from April 2009 to March 2010



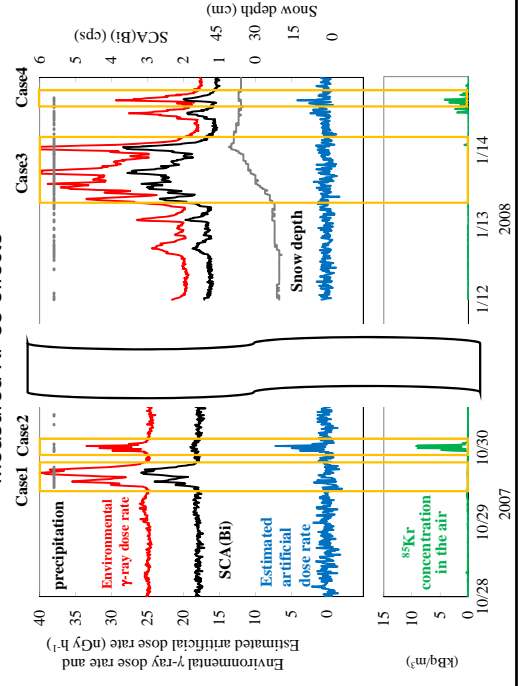
Distribution of the “estimated artificial dose rate”(nGy/h)

Average	minimu fit	maximu fit	frequency distribution (absolute value)
0.00±0.33	-1.6	2.4	0-1 (99.66%)
			1-2 (0.33%)
			2-3 (0.01%)

Krypton-85 from the spent fuel reprocessing plant

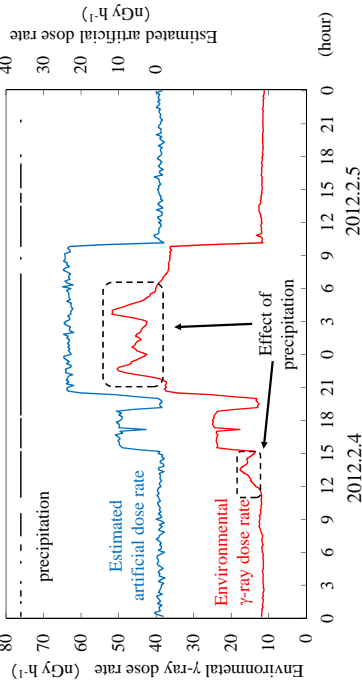
- The spent nuclear fuel reprocessing plant in Nuclear Fuel Cycle Facilities has been conducting the final test using actual spent fuel since March 2006.
- Krypton-85 ( $^{85}Kr$ ) is most released during shearing and dissolving process of spent fuels.
- $^{85}Kr$  emits  $\beta$ -ray and 514 keV  $\gamma$ -ray with a small emission ratio (0.0043).

Measured Kr-85 effects



### Radiocesium, possibly from parked vehicles (1)

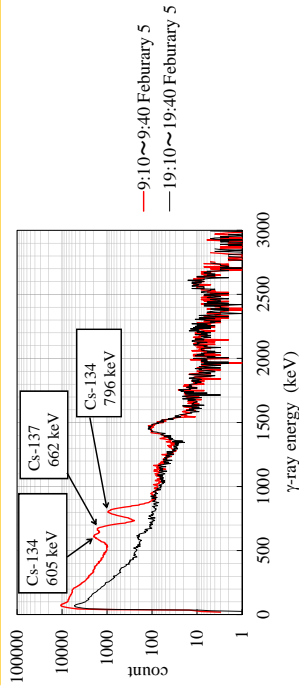
It is plausible that one or more vehicles adhered with radiocesium dust temporarily parked near the station.



### Radiocesium, possibly from parked vehicles (2)

reasons

- 1) The detection of Cs-134 and Cs-137 in  $\gamma$ -ray spectrum.
- 2) The rectangular variation of "estimated artificial dose rate"
- 3) The location of monitoring station next to parking areas.



By Cs-134 detection, we think the radiocesium derives from the accident of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

### Conclusions

- In our monitoring area in Aomori prefecture, the environmental  $\gamma$ -ray dose rate varied from  $<1.0 \text{ nGy h}^{-1}$  during the snow cover season to  $>100 \text{ nGy h}^{-1}$  as a result of  $^{222}\text{Rn}$  progeny deposited by precipitation.
- Under the conditions, we developed a method for correcting for background dose rate. We use two SCA count rates, opened in the energy range of  $\gamma$ -rays from  $^{214}\text{Bi}$  and  $^{208}\text{Tl}$ .
- The effects of  $^{85}\text{Kr}$  released from the reprocessing plant and radiocesium probably adhered to one or more vehicles were estimated by the method.
- Besides, the method is relatively simple and easy to apply to real-time monitoring data obtained via a telemetering system.



## 青森県の環境放射能調査における福島第一原子力発電所事故の影響について

工藤 翔 五十嵐 健 木村秀樹

### 第9回自然放射線国際シンポジウム、青森県弘前市、2013. 2. 26-2. 28

青森県は、県内における環境放射能調査として、原子力施設周辺地域における環境放射線モニタリング及び県全域における環境放射能水準調査を実施している。これらの調査において、2011年3月に発生した東京電力（株）福島第一原子力発電所事故に伴い、一部の環境試料から I-131、Cs-134 などの半減期の短い放射性核種が検出されるとともに、Cs-137 及び Sr-90 の濃度上昇が観測されたが、法令に定める周辺監視区域外における空気中及び水中の濃度限度、食品衛生法に定める基準値及び牧草の暫定許容値を超えたものは無かった。六ヶ所周辺地域及び青森市における大気浮遊じん中の全β放射能濃度及び大気中の I-131 濃度については、事故から半月以上経過した4月上旬及び4月下旬に上昇が見られた。後方流跡線解析により検討したところ、本調査地域に流入した大気は、この時期東京電力（株）福島第一原子力発電所付近を経由しており、事故発生からこの時期まではほとんど経由していないことが推定された。青森市において毎日採取している降下物中の I-131 濃度は4月下旬に最大値が観測された。（独）日本原子力開発機構の WSPEEDI による I-131 の降下量推定結果では、この時期に青森市付近において I-131 の降下が認められている。農産生物・指標生物・海産食品中の Cs-134 濃度及び Cs-137 濃度については、事故発生日に減衰補正した時の濃度比がほぼ1となり、国が福島第一原子力発電所周辺で行った放射性物質の分布状況に関する調査研究結果と一致した。

※本発表内容の詳細については、平成27年刊行予定の Radiation Protection Dosimetry の自然放射線国際シンポジウム特集号に掲載される予定。



# INFLUENCE OF FUKUSHIMA DAI-ICHI NUCLEAR POWER PLANT ACCIDENT ON ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY RESEARCH IN AOMORI PREFECTURE

S. Kudo\*, K. Igarashi and H. Kimura

Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center, 400-1 Kurauchi Sasazaki, Rokkasho-mura, Aomori, Japan

## Introduction

In Aomori prefecture, we are carrying out the monitoring of environmental radioactivity around nuclear facilities and the radioactivity survey throughout the entire prefecture. After Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, radioactive nuclides with short half-life such as  $^{131}\text{I}$  and  $^{134}\text{Cs}$  were detected in air, fallout and part of plant matters like pine needle and pasture grass.

Concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  were observed to increase from background level.

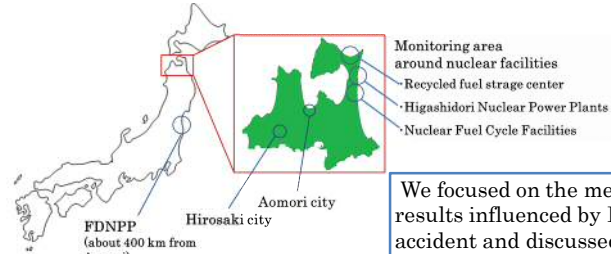


Fig.1 Location maps of the monitoring area

We focused on the measuring results influenced by FDNPP accident and discussed in this report.

## Methods

- Air (gaseous  $^{131}\text{I}$ )
  - Charcoal that absorbed  $^{131}\text{I}$  from air after removal of dust for a week
- Daily fallout ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ )
  - Wet and dry deposition collected by a sampler with a funnel (357 mm  $\phi$  SIBATA W-402)
- Pine needle and pasture grass ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ )
  - Dried (105°C, 24 h) and incinerated (450°C, 24 h) ash



Fig.2 Sampling equipment

Sample was filling into plastic(U8) vessel

Detector ••• germanium semiconductor detector (SEIKO EG&G GMX40, GMX25)

Measuring time ••• 80000 s

Measured value was corrected to sampling date.

## Results and Discussion

### Gaseous $^{131}\text{I}$ in air (March ~ June 2011)

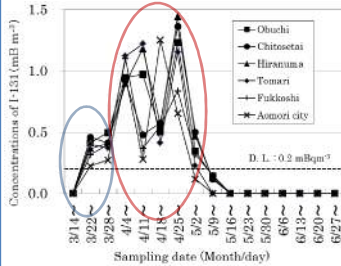


Fig.3 Concentrations of gaseous  $^{131}\text{I}$  in air at 5 stations around Nuclear Fuel Cycle Facilities and 1 station at Aomori city

Concentrations of gaseous  $^{131}\text{I}$  in air collected in April were higher than that in March. (Maximum value : the periods of 4 ~ 18 April, 25 April ~ 2 May)

The estimation of inflow aspects of the air mass into Aomori prefecture is needed.

### $^{131}\text{I}$ and radioactive Cs in fallout (March ~ May 2011)

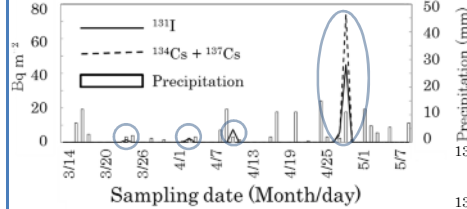


Fig.7 Amounts of  $^{131}\text{I}$  and  $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$  in daily fallout in Aomori city

$^{131}\text{I}$  was detected on 24 March, 3, 10, 28 April  
 $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$  was detected on 28 April

Results of  $^{131}\text{I}$  and radioactive Cs in daily fallout in Aomori city was corresponded with results of  $^{131}\text{I}$  in air.

### Backward trajectory analysis using CGER-METEX<sup>(1)</sup>

#### Analyzing methods

We made trajectory (the dataset of the position, latitude and longitude, of the air mass every hour.) using following information:

- Starting time: 0:00, 6:00, 12:00 and 18:00 (UTC+9) per day
- Starting point: 200 m above the Obuchi MS (40.97° N, 141.37° E)
- Trajectory length: 120 hours

We called the number of hours that the air-mass position was within grid cells B6 and C6 of the 1° latitude by 1° longitude grid superimposed on eastern Japan the "hit number".

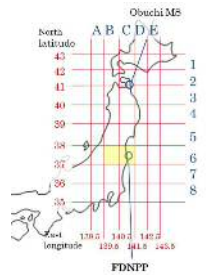


Fig.4 Partitioned map by latitude/longitude in East Japan

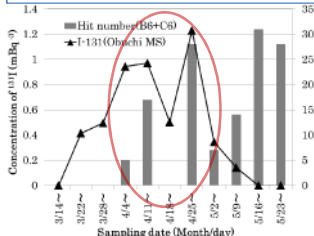


Fig.5 Concentration of  $^{131}\text{I}$  in air at Obuchi MS and hit number around FDNPP (B6+C6) for trajectory

#### In April

Inflow of air mass from southern areas to Aomori prefecture were increased.

Increasing of the concentration of gaseous  $^{131}\text{I}$  in air and the hit number in the mesh B6 and C6 was confirmed from 4 to 11 April, from 11 to 18 April and from 25 April to 2 May.

#### In May

Release of  $^{131}\text{I}$  from FDNPP could become lower about one order of magnitude.

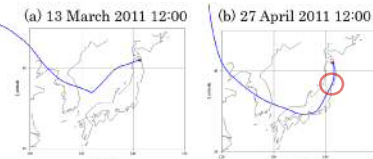


Fig.6 Illustration of trajectory

Air masses flowed in Aomori prefecture via the vicinity of the FDNPP when gaseous  $^{131}\text{I}$  concentration in air was increasing.

### $^{137}\text{Cs}$ and $^{134}\text{Cs}$ in pine needle and pasture grass (2011~2013)

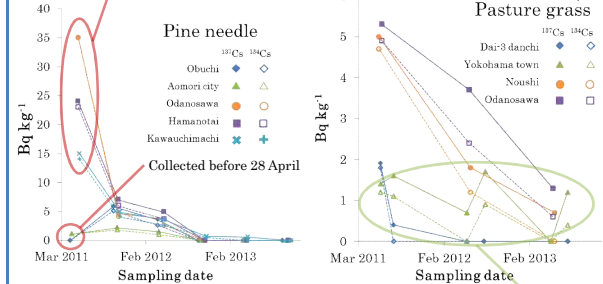


Fig.8 Trend of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in pine needle, pasture grass and flatfish

High concentrations were measured because of large fallout in 28 April  
 Other radioactive nuclides were detected ( $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{110m}\text{Ag}$ ,  $^{136}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{La}$ ,  $^{125}\text{Sb}$  and  $^{129m}\text{Te}$ )

Concentrations of Cs were decreased continuously except for pasture grass in Yokohama town. It seems that accumulating more measuring data is required.

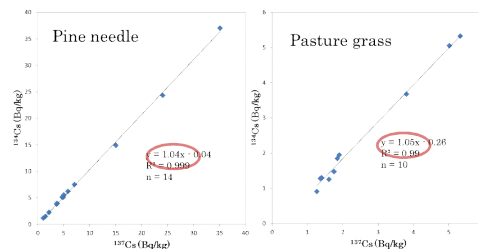


Fig.9 Relationships of concentrations between  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{134}\text{Cs}$  corrected to the value at March 2011

Radioactive Cs detected in pine needles and pasture grasses in Aomori prefecture originated from FDNPP accident.

$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  ratio was nearly 1. These results corresponded to the results in Fukushima obtained by MEXT and MAFF in Japan<sup>(2)</sup>.

## Conclusion

Using backward trajectory, we found that air masses flowed in Aomori prefecture via the vicinity of the FDNPP when gaseous  $^{131}\text{I}$  concentration in air was increasing. Increased amounts of  $^{131}\text{I}$  and radioactive Cs were measured in daily fallout collected at Aomori city at almost the same time that  $^{131}\text{I}$  was detected in air.

$^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  concentration ratios in pine needles and pasture grass were nearly equal to 1, which indicates that the source of these radionuclides was the nuclear power plant accident.

(1). Centre for Global Environmental Research National Institute for Environmental Studies: CGER-METEX <http://db.cger.nies.go.jp/metex/index.html>  
 (2). Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology and Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries in Japan, Results of the Research on Distribution of Radioactive Substances Discharged by the Accident at TEPCO's Fukushima Dai-ichi NPP, No. 1, 53-54(2012) (in Japanese)



## TMAH 抽出—固相抽出分離を用いた DRC-ICP-MS による

### 葉菜及び海藻試料中ヨウ素 129 の分析

木村芳伸 神 俊雄 木村秀樹

第9回自然放射線国際シンポジウム、青森県弘前市、2013. 2. 26-2. 28

ICP-MS を用いたヨウ素 129 の測定において、キャリアガスのアルゴンに不純物として含まれるキセノン 129 や試料に含まれるヨウ素 127 の水素化物の妨害が問題となる。これらの妨害を低減することができる dynamic reaction cell (DRC)の技術を用いた DRC-ICP-MS は、ヨウ素 129 の測定を大幅に改善した。そこで、この DRC-ICP-MS を用いて、葉菜及び海藻試料中のヨウ素 129 の分析について検討した。試料からのヨウ素の抽出には、従来の燃焼法に比べ簡便で安定的にヨウ素を抽出できる、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH)による抽出法を用いた。さらに葉菜試料については、分析供試量を増やしつつ測定溶液量を低減するため、固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離・濃縮工程を追加した。この方法により、NIST1547 peach leaves 及び NIST1573a tomato leaves を分析したところ、参考値と 95%信頼区間で一致した。また、マコンブ及びキャベツについて、供試量をそれぞれ乾燥物で 3g (新鮮重約 20g)及び 10g (新鮮重約 170g)とし、キャベツには固相抽出法も併用して分析した。ヨウ素 129 の検出限界値はそれぞれ新鮮重当たり 0.24Bq/kg 及び 0.018Bq/kg と評価され、従来の ICP-MS による分析法の分析目標値と比較して海藻でおよそ 16 分の 1、葉菜でおよそ 100 分の 1 まで低減することができた。

# Analysis of iodine-129 in leaf vegetable and seaweed samples by DRC-ICP-MS after leaching with tetramethyl ammonium hydroxide and separation with solid phase extraction

Y.Kimura<sup>\*1</sup> T.Jin<sup>\*2</sup> H.Kimura<sup>\*2</sup>

<sup>1</sup> San-Pachi District Administration Bureau Hachinohe Environmental Management Office  
<sup>2</sup> Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

## I. Introduction

I-129 is one of the representative nuclides released by atomic energy facilities, and it is important to monitor influence on environment from facilities in the long term because of its long half-life ( $1.57 \times 10^7$  year). Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) has been ready for practical use to measure various ultra-trace-level elements. However, interference from Xe-129 contained as an impurity in argon carrier gas and hydrides of I-127 contained in samples are problem in I-129 measurement with ICP-MS. DRC-ICP-MS, which employs a dynamic reaction cell (DRC) technology that can reduce this interference, has dramatically improved I-129 measurement.

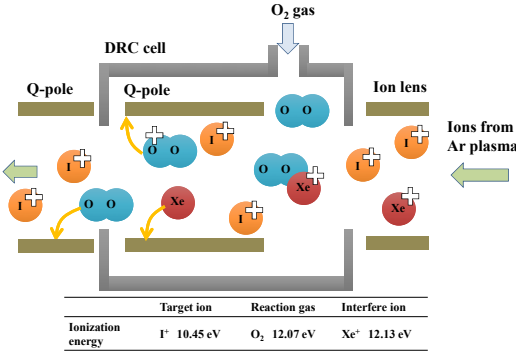


Fig.1 Schematic diagram of DRC cell

## II. Materials and Methods

### II-1. TMAH extraction method

NIST standard and kelp samples were analyzed by this method.

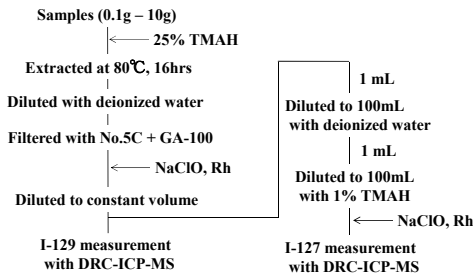


Fig.1 Scheme of TMAH extraction method

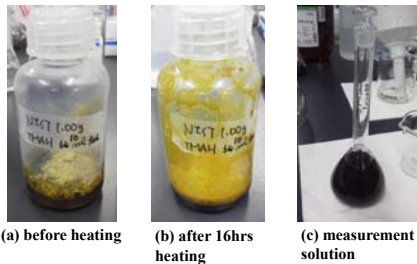


Fig.2 NIST standard sample extracted with TMAH

### II-2. TMAH extraction-separation method

Cabbage samples were analyzed by this method.

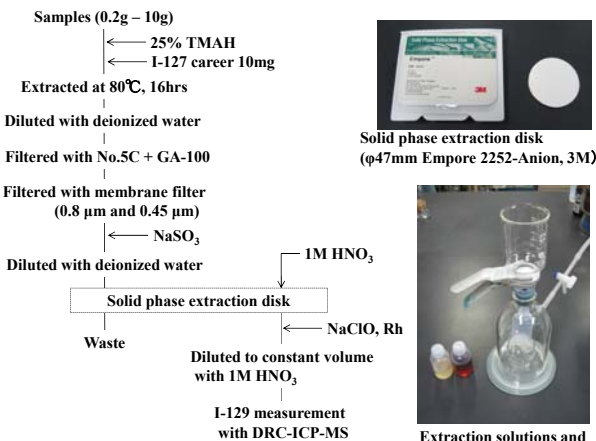


Fig.3 Scheme of TMAH extraction-separation method (See Fig.1 about I-127 measurement)

Extraction solutions and disk equipped to holder

## II-3. Measurement

Table1 Operating parameters for DRC-ICP-MS

	Parameters	
	I-127	I-129
Nebulizer gas flow rate	1.04 L min <sup>-1</sup>	1.05 L min <sup>-1</sup>
Auxiliary gas flow rate	1.4 L min <sup>-1</sup>	0.6 L min <sup>-1</sup>
Plasma gas flow rate	17 L min <sup>-1</sup>	17 L min <sup>-1</sup>
RF Power	1500 W	1500 W
DRC gas flow rate	—	O <sub>2</sub> : 0.6 m L min <sup>-1</sup>
Integration time	1s	2s
Number of cycles	1	10
Measurement times	5	5

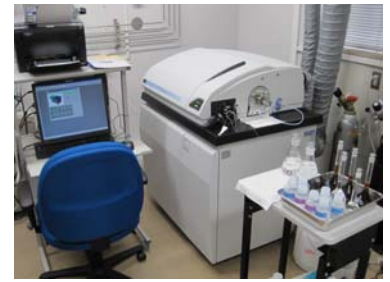


Fig.4 ELAN DRcC (PerkinElmer Sciex, Canada)

## III. Results and Discussions

### III-1. Study of extraction condition on TMAH extraction method

Table2 I-127 concentration in NIST standard extracted with TMAH

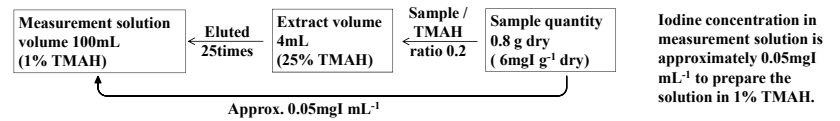
Sample	sample quantity (g)	concentration(μg g <sup>-1</sup> )*			Reference level (μg g <sup>-1</sup> )
		1st	2nd	3rd	
NIST1547 peach leaves	1.0	0.31±0.003	0.33±0.004	0.32±0.001	0.3
NIST1573a tomato leaves	1.0	0.87±0.0094	0.86±0.0059	0.86±0.0038	0.85

\* Error is standard deviation of five measurement with ICP-MS.

Table 3 I-127 concentration in kelp samples extracted by TMAH

Sample quantity (g dry)	TMAH volume (mL)	Sample / TMAH Ratio	Concentration (mg g <sup>-1</sup> dry)			
			1st	2nd	3rd	Average
0.1	4	0.025	5.5	5.4	5.2	5.3±0.18
0.4		0.1	5.3	5.1	5.3	5.2±0.11
0.8		0.2	5.5	5.5	5.2	5.4±0.17
1.6		0.4	4.3	4.3	4.1	4.3±0.13

Within ratio 0.025-0.2, it is possible to apply TMAH extraction method for kelp samples.



### III-2. Study of extraction condition on TMAH extraction-separation method

Table 4 Relation of sample quantity and recovery

Sample quantity (g dry)	Dilution volume (mL)	Recovery	Sample quantity × recovery / dilution volume (g mL <sup>-1</sup> )
0.2	50	0.90	0.0036
1		0.87	0.017
3		0.86	0.052
7		0.54	0.076

Sample quantity per dilution volume corrected by recovery ratio increases as much as sample quantity, but the recovery was significantly lowered at 7g of sample quantity, so it is not effective to increase sample quantity more than 7g.

In addition, upper limit of sample quantity was 7g because the solid phase extraction disk caused clogging.

Cabbage sample (10g) solution

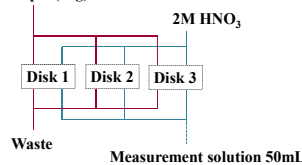


Fig.5 Scheme of TMAH extraction-separation method with 3 disks (Excerpt)

To decrease load amount per 1 disk, the TMAH extraction solution of 10g cabbage sample was divided into three portions. Each portion was passed through other solid phase extraction disk, and iodine was eluted by 2M HNO<sub>3</sub>. The measurement sample solution was prepared in 50mL total dilution volume.

Nitrate and I-127 concentration in this solution were approximately 1M and 0.2mg mL<sup>-1</sup>, respectively.

### III-3. Detection limit of I-129 with DRC-ICP-MS measurement

Table 5 Detection limits and isotope ratios

Analysis method	Sample	Sample quantity (g dry)	I-127 carrier (mg)	Detection limit		I-129/I-127 ratio (in sample)
				(Bq mL <sup>-1</sup> )	(Bq kg <sup>-1</sup> fresh)	
TMAH extraction method	Seaweed (a kelp)	0.8	0	1.1 × 10 <sup>-5</sup>	0.21 <sup>1)</sup>	3.3 × 10 <sup>-8</sup>
TMAH extraction-separation method	Leaf vegetable (a cabbage)	10	10	3.8 × 10 <sup>-5</sup>	0.013 <sup>2)</sup>	2.8 × 10 <sup>-4</sup> <sup>3)</sup>

1) Recovery 100%, moisture content 85% 2) Recovery 100%, moisture content 93%  
 3) Assuming that iodine content in sample is 0.007mgI kg<sup>-1</sup> on a fresh mass basis

These detection limits are equivalent to approximately a one-19th for leaf vegetables and one-150th for seaweeds in comparison with analysis target levels of official analytical method (2 Bq kg<sup>-1</sup> for leaf vegetable, 4 Bq kg<sup>-1</sup> for seaweed on a fresh mass basis).

### Ⅲ 平成 26 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

武藤 逸紀

### 1. はじめに

トリチウム (T) は、成層圏において空気と宇宙線の相互作用で生成する自然放射性核種であり、大気中では水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) 及び有機トリチウム状 ( $\text{CH}_3\text{T}$  等) の3種の化学形で存在することが知られている。また、トリチウムは、過去の大気圏内核実験により天然存在量の200倍以上が環境中に放出されており、原子力施設についても、特に再処理施設からの主要な放出核種となっている<sup>1)</sup>。

青森県では、平成17年12月に東通原子力発電所が営業運転を開始し、平成18年3月には六ヶ所再処理工場がアクティブ試験を開始しており、県は、トリチウムの放出量が比較的多いとされている六ヶ所再処理工場周辺地域のモニタリングステーション (以下、MS) において、大気中水蒸気状トリチウム (HTO) のモニタリングを継続して行っている。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、東海再処理施設では全トリチウムのうち約26%がHT ( $\text{CH}_3\text{T}$  等を含む。) の化学形であったとの報告<sup>2)</sup>があるが、六ヶ所再処理工場については明確になっていない。このため、六ヶ所再処理工場の周辺環境における大気中トリチウムの化学形別濃度を調査し、本格操業前後の変化を把握することは、今後、同工場から放出されるトリチウムによる住民等の線量をより現実的に評価するための重要な情報となる。

大気中トリチウムの化学形別採取方法としては、従来可燃性ガスをキャリアーとして使用する方法<sup>3)</sup>が用いられている (以下「ガス添加法」という)。しかし、例えばMS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ーとして無トリチウム水を添加する加湿カラムを用いる方法 (以下「加湿カラム法」という) が提案されている<sup>4,5)</sup>。

本調査では、平成16年度から加湿カラム法によるMSでの採取条件を検討した。その結果をもとに、MS尾駮局及びMS吹越局において調査を行い、化学形別トリチウムのバックグラウンドレベルを把握した。これらは、平成24年度に青森県原子力センター所報第7号の研究報告として取りまとめた。

平成25年度は、5月及び9月にMS尾駮局及びMS吹越局において調査を行い、化学形別トリチウムのバックグラウンドレベルを把握した。この際県の測定結果の妥当性を検討するため、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平成19年度～25年度の測定結果<sup>7)～13)</sup>と、試料採取場所が近いMS尾駮局における県の測定結果を比較したところ、県の測定結果は、HTOについては同程度であったが、HTについては2～3割程度低く、 $\text{CH}_3\text{T}$  については2～3倍程度高くなった。県の採取条件ではHT酸化が不十分であり、下流の $\text{CH}_3\text{T}$  試料に混入している可能性があるため、HT酸化に用いるPt触媒を新たに購入し、青森県原子力センター青森市駐在 (以下「青森市駐在」という) において、従来まで使用していた触媒と並行試験を行ったが、HT及び $\text{CH}_3\text{T}$  の測定結果に差は見られなかった。

平成26年度はPt触媒の個数による差を検討するため、従来までと同様Pt触媒を3個用いた採取装置と、新たにPt触媒を4個用いた採取装置を追加し、並行試験を行った。また、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、環境研と並行して試料を採取し、分析した。

## 2. 調査方法

### 2.1 採取装置

加湿カラム法による採取装置を図 1 に示す。大気は、採取装置の最後に設置した真空ポンプ (DA-30D、ULVAC) で吸引し採取装置に導入する。入口側には、焼結金属製フィルターを設置し、大気の採取速度と総量はデジタル流量計で測定する。化学形別トリチウムは、モレキュラーシーブ 3A を充填した HTO カラム、HT カラム及び CH<sub>3</sub>T カラムに捕集する。

HTO については、電子除湿器 (出口露点 1~3°C) により一部を捕集した後、残りを HTO カラムに捕集する。

HT については、100°C に加熱した Pt 触媒 (Pt を担持させたメタルハニカム触媒、Pt 担持量 6.0g/L、25mm φ × 40mm) で酸化し、水として HT カラムに捕集する。この際、大気中の H<sub>2</sub> 濃度が低いため、キャリアーとして無トリチウム水蒸気を添加する。

CH<sub>3</sub>T については、300°C に加熱した Pd 触媒 (DASH-220D、2-4mm φ、NECHEMCAT) で酸化し、水として CH<sub>3</sub>T 用カラムに捕集する。この際、大気中の CH<sub>4</sub> 濃度が低いため、キャリアーとして無トリチウム水蒸気を添加する。

加湿カラム法における無トリチウム水蒸気の供給は、図 2 に示す加湿バイアルを設置したカラムを用いた。プラスチックバイアルに無トリチウム水を入れておき、超高分子量ポリエチレン多孔質フィルムを通して、徐々に蒸発させる仕組みになっている。

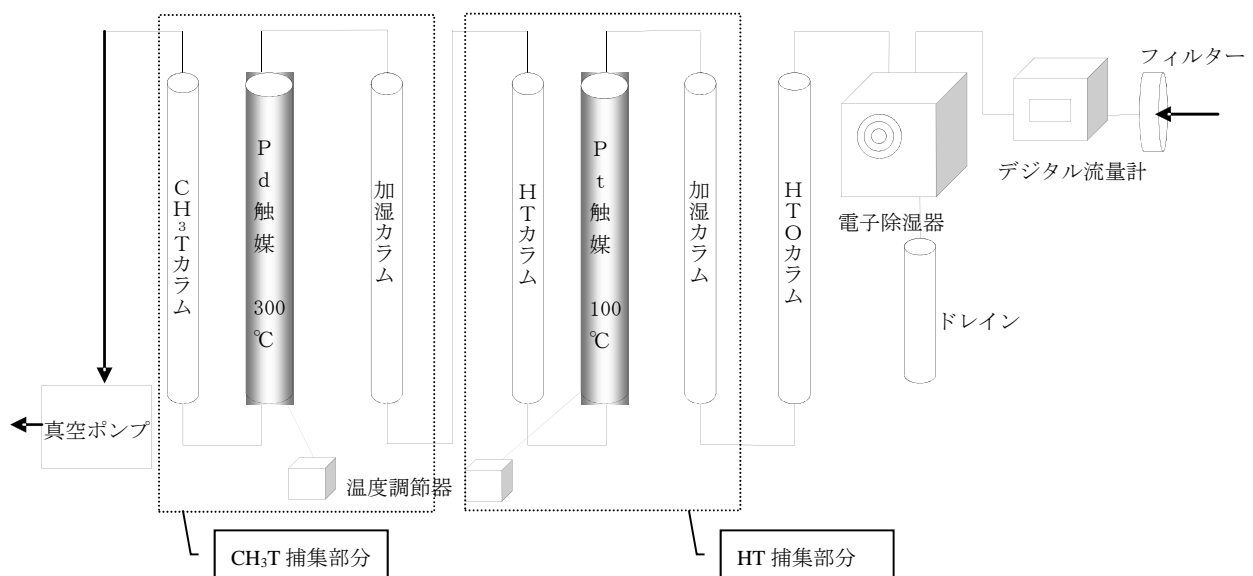
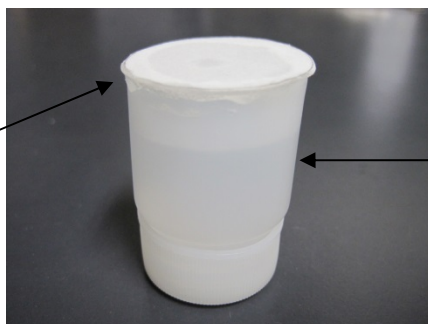


図 1 加湿カラム法による採取装置

超高分子量ポリエチレン多孔質フィルム（サンマップ LC 0.5mm 厚：日東電工（株））を底面を切り取った 20ml バイアルに接着。これをアクリル管に設置したものを「加湿カラム」とした。



20 ml バイアルに無トリチウム水を約 15ml 添加。

図2 加湿バイアルの構造

## 2.2 試料採取

### (1) Pt 触媒の個数の検討

#### ア採取条件

採取条件は以下のとおり。本年度は Pt 触媒を 3 個用いた採取装置と 4 個用いた採取装置により並行して採取した。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：約 7 日間（約 10000min）
- ・大気採取流量：0.6L/min（6 月～7 月）
- ・HTO カラム本数：2 本
- ・HT 用加湿カラムのバイアル数：2 個
- ・CH<sub>3</sub>T 用加湿カラムのバイアル数：1 個
- ・Pt 触媒個数：3 個又は 4 個

#### イ採取地点

青森市駐在分析室 A（室内の空気を採取）

#### ウ採取時期

平成 26 年 6 月 27 日～7 月 4 日、平成 26 年 7 月 23 日～7 月 30 日

### (2) 並行採取によるガス添加法との比較

#### ア採取条件

環境研がガス添加法により、HTO、HT、CH<sub>3</sub>T の分別捕集に用いている採取システム<sup>13)</sup>と並行採取を行った。

- ・採取方法：加湿カラム法
- ・採取期間：約 1 ヶ月間（約 43000min）
- ・大気採取流量：1.5L/min（11 月～12 月）
- ・HTO カラム本数：2 本
- ・HT 用加湿カラムのバイアル数：1 個



図3 ビニールテープによる目張り (3/4)

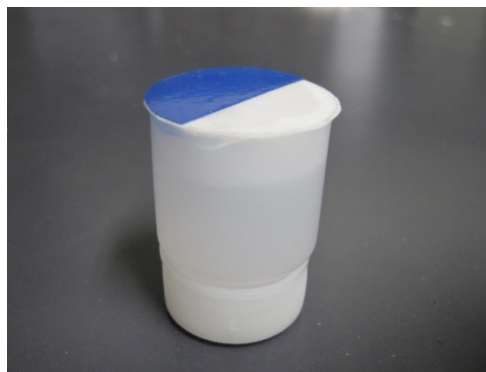


図4 ビニールテープによる目張り (1/2)

HT 試料水中のトリチウム濃度を高め、検出限界を下げるため、12月の採取においては、図3に示すとおり超高分子量ポリエチレン多孔質フィルムの3/4をビニールテープで目張りし、無トリチウム水の供給量を1/4程度に減少させた。

- ・CH<sub>3</sub>T用加湿カラムのバイアル数：1個

CH<sub>3</sub>T 試料水中のトリチウム濃度を高め、検出限界を下げるため、11月の採取においては、図4に示すとおり超高分子量ポリエチレン多孔質フィルムの1/2をビニールテープで目張りし、無トリチウム水の供給量を1/2程度に減少させた。12月においては図3に示すとおり3/4をビニールテープで目張りし、無トリチウム水の供給量を1/4程度に減少させた。

- ・Pt触媒個数：4個

#### イ採取地点

環境研構内

#### ウ採取時期

平成26年10月31日～11月28日、11月28日～12月26日

### 2.3 分析方法

試料採取後のカラムを管状炉で400℃に加熱して試料水を回収した。回収した試料水の量に応じて容量20 mL又は100 mLの低拡散ポリエチレンバイアルを用い、それぞれ試料水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。測定は液体シンチレーション計数装置 (LSC-LB5、日立アロカメディカル) により行い、測定時間は原則1000分 (50分×20回)、測定試料中のトリチウム濃度が低いものについては1500分 (50分×30回) とした。

試料水中のトリチウム測定結果及び大気採取量をもとにHTO、HT及びCH<sub>3</sub>Tの大気中濃度を算出した。



### 3. 調査結果

#### 3.1 Pt 触媒の個数の検討

平成 26 年 6 月 27 日～7 月 4 日、平成 26 年 7 月 23 日～7 月 30 日の期間、採取した試料について、それぞれの化学形のトリチウムを測定した結果を表 1 及び図 5 に示す。HT 及び CH<sub>3</sub>T の測定結果に Pt 触媒の数による明確な差は見られなかった。

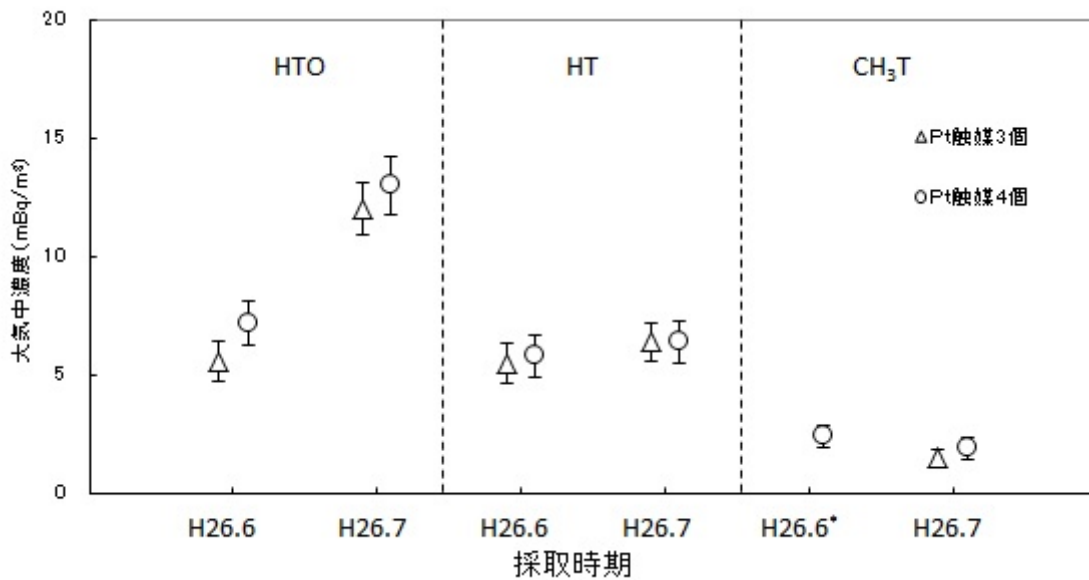
#### 3.2 並行採取によるガス添加法との比較

平成 26 年 10 月 31 日～11 月 28 日、平成 26 年 11 月 28 日～12 月 26 日の期間、環境研構内において並行採取した試料の測定結果を図 6 に示す。同時期に採取した環境研の測定値に対する県の測定値の比（県/環境研）としてプロットした。県の測定値は、約 4 週間採取した 1 つの試料の測定値であり、環境研の測定値は、約 2 週間ごとに採取した 2 つの試料の測定値を、各試料の大气採取量を考慮して加重平均したものをを用いた。図の誤差棒は、合成した計数誤差である。

表 1 Pt 触媒の個数を変更した場合の測定結果の比較

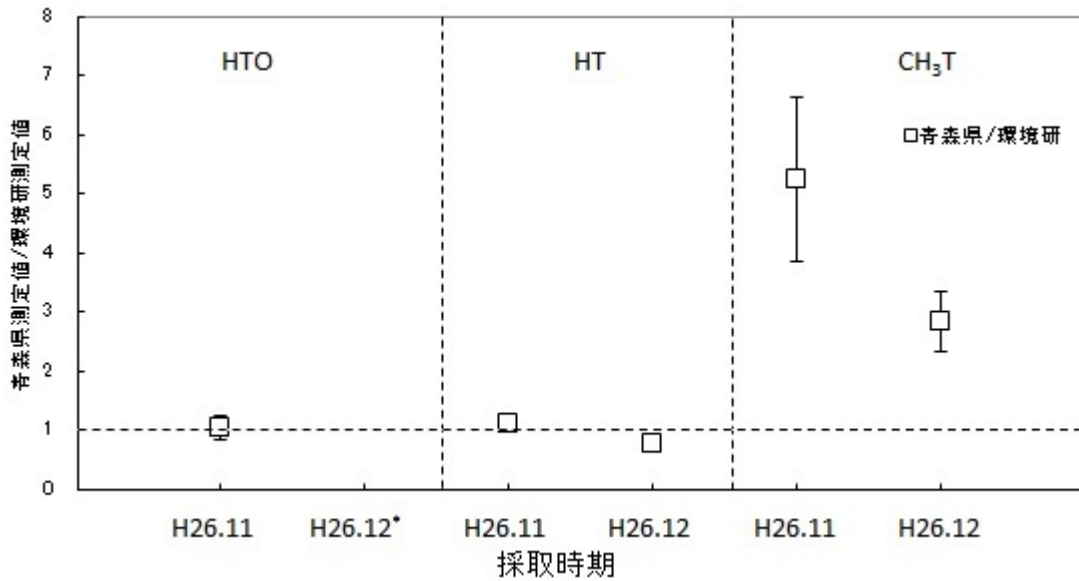
採取期間	Pt 触媒 3 個			Pt 触媒 4 個		
	HTO 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HT 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	CH <sub>3</sub> T 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HTO 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	HT 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	CH <sub>3</sub> T 濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )
H26.6.27~7.4*	5.6±0.84	5.5±0.83	ND(0.90±0.46)	7.2±0.92	5.8±0.88	2.4±0.46
H26.7.23~7.30	12±1.1	6.4±0.80	1.5±0.38	13±1.2	6.4±0.91	1.9±0.49

\*測定時間：1500 分（50 分 ×30 回）



\*Pt3 個の測定値は検出限界以下だったため、非表示

図 5 Pt 触媒の個数を変更した場合の測定結果の比較



\*環境研測定値が検出限界以下だったため、非表示

図6 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

両機関の測定結果について、HTO及びHTは概ね一致したが、CH<sub>3</sub>Tはこれまで同様、県の測定結果が環境研の測定結果と比較して高くなった。

加湿カラム法で用いる無トリチウム水によりHT酸化用Pt触媒の活性が低下し、HTがCH<sub>3</sub>T試料に混入している可能性があるため、今後は無トリチウム水の添加量をさらに抑え並行採取を継続する。

## 文 献

- 1) 百島則幸: 環境トリチウムの現状と未来と環境挙動モデル, Isotope News, 7月号, 2-6 (2004)
- 2) J.Koarashi, S.Mikami, K.Akiyama, T.Asano : Determination of chemical forms of  $^3\text{H}$  released to the atmosphere from the Tokai Reprocessing Plant, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 262, 569-572 (2004)
- 3) Noriyuki Momoshima, Masahide Takamura, Yusaku Nagano, Takahiro Toyoshima, Tomio Okai, Tatsuhiko Uda : Development of sampling apparatus for atmospheric tritium, Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry, 416-420 (2003)
- 4) 柿内秀樹、五代儀貴、久松俊一、一戸孝暁: 核燃料再処理施設稼働前の六ヶ所村における大気中  $^3\text{H}$  濃度、日本原子力学会 2006 秋の大会予稿集, 299 (2006)
- 5) 柿内秀樹、赤田尚史、久松俊一、一戸孝暁、菅野邦昭、佐々木利拓: 安全性の高い大気中トリチウム化学形態別採取システムの開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, 323 (2007)
- 6) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 18 年度放出放射能環境分布調査報告書, 164 (平成 19 年)
- 7) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 19 年度放出放射能環境分布調査報告書, 105 (平成 20 年)
- 8) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 20 年度放出放射能環境分布調査報告書, 309 (平成 21 年)
- 9) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 21 年度放出放射能環境分布調査報告書, 345 (平成 22 年)
- 10) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 22 年度排出放射能環境分布調査報告書, 218 (平成 23 年)
- 11) 財団法人環境科学技術研究所: 平成 23 年度排出放射能環境移行調査報告書, 193 (平成 24 年)
- 12) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 24 年度排出放射能環境移行調査報告書, 275 (平成 25 年)
- 13) 公益財団法人環境科学技術研究所: 平成 25 年度排出放射能環境移行調査報告書, 249 (平成 26 年)



## 環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査

神 俊雄 工藤 翔 坂 恭平 五十嵐 健  
幸 進\*<sup>1</sup> 岡 光昭\*<sup>1</sup> 岡村泰治\*<sup>1</sup>

### 1. はじめに

日本原燃株式会社の再処理工場では、平成18年3月31日からアクティブ試験が行なわれており、クリプトン-85(<sup>85</sup>Kr)、トリチウム(<sup>3</sup>H)、炭素-14(<sup>14</sup>C)及びヨウ素-129(<sup>129</sup>I)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、炭素-14及びヨウ素-129について調査を開始した。平成20年度からはヨウ素-131(<sup>131</sup>I)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）を追加し実施している。平成25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26年度の調査計画と今後の進め方

平成26年度の調査計画を表1に示した。これまで海藻類を除くすべての試料について、交換型OBTと非交換型OBTを合わせたOBTを、また、魚類については非交換型OBTも調査してきたが、これらのOBTは生物体内での挙動が異なることや、交換型OBTは分析室内空気中のトリチウムや試料中TFWTの影響を受ける可能性があるため、平成26年度からは、海藻類を除くすべての試料について非交換型OBTを調査する。これらの調査結果については平成27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 26 年度）

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

## ICP 質量分析法による環境試料中のヨウ素-129 分析の検討

神 俊雄 木村芳伸\*1 木村秀樹

### 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基本計画」に基づき、環境試料（表土）中ヨウ素-129 の分析測定を、文部科学省放射能測定法シリーズ「ヨウ素 129 分析法」<sup>1)</sup>（以下、「ヨウ素 129 分析法」）の放射化学分析法（ $\beta$ 線測定）により実施している。

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

迅速分析法の分析条件における検出限界値（分析目標レベル）はヨウ素 129 分析法に劣るが、供試量を増加させ、さらに、キャリアガスからの妨害が少ない特定の ICP 質量分析装置を用いることで、検出限界値を大幅に向上させることが可能であることから<sup>3)</sup>、最適な化学分離等の条件、装置による測定条件を確認し、環境放射線モニタリングにおける種々の環境試料への適用可能性を検討する。

平成 22 年度の 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、平成 23 年度から平成 24 年度にかけては表土中ヨウ素-129 の分析方法を検討し、供試量の増加と分析工程の見直しにより、表土中ヨウ素-129 の検出限界値を 20mBq/kg 乾まで向上できることを確認した。

平成 25 年度は葉菜・海藻試料中ヨウ素-129 分析方法の検討を行った。海藻試料については、水酸化テトラメチルアンモニウム溶液（以下、「TMAH」）を用いた抽出法により、検出限界値を 0.21Bq/kg 生まで低減することができた。さらに葉菜試料については分析供試量を増やしつつ、測定溶液量低減のため固相抽出ディスクを用いたヨウ素の分離・濃縮工程を追加し、検出限界値を 0.013Bq kg/生まで低減可能であることを確認した。

平成 26 年度は、平成 25 年度の成果を踏まえ、葉菜試料におけるヨウ素-129 検出限界のさらなる向上を目的とし、分析時に添加するヨウ素担体量低減の検討を行うこととした。

### 2. 調査方法

平成 25 年度に行った検討では、葉菜試料の分析時、迅速分析法に準じて安定ヨウ素担体 10mg を添加していた。一方、葉菜試料中に含まれるヨウ素量は  $10 \mu\text{g/kg}$  生程度、乾燥重量としても  $100 \mu\text{g/kg}$  乾のオーダーであり、添加する担体量と比較して非常に少量である。ICP 質量分析におけるヨウ素-129 の検出限界値は、安定ヨウ素濃度の上昇に伴い上昇することから、ヨウ素担体添加量を減少させることにより、ヨウ素-129 の検出限界を向上させることができると考えられる。

そこで、ヨウ素含有量既知の標準試料について、ヨウ素担体を添加せずに分析を行い、ヨウ素-127 の回収率を評価する。

\*1：現三八地域県民局地域連携部八戸環境管理事務所

## 2.1 試料

ヨウ素含有量が値付けされた標準試料として、NIST SRM1547 peach leaves（以下、「Peach leaves」）及びSRM1573a tomato leaves（以下、「Tomato leaves」）を用いた。

## 2.2 分析方法

分析から測定までのフローを図1に示す。試料1gを100mL PFA瓶に秤取し、25%TMAH溶液5mLを加え密栓し、80°Cに設定した恒温槽内で16時間以上加熱した。放冷後、水を加えて40~80mL程度<sup>\*1</sup>に希釈し、No.5Cろ紙にガラスフィルターGA100（ともにφ47mm）を重ねて溶液を吸引ろ過した。さらに固相抽出ディスクの目詰まりを抑えるため、溶液を孔径1.0μmのPTFE製メンブランフィルター（φ47mm、ADVANTEC）<sup>\*2</sup>を用いて吸引ろ過した。ろ液に水を加え200mL程度としたのち、還元剤として10%亜硫酸ナトリウム溶液（特級、Wako）3mLを加え、固相抽出ディスク（φ47mm Empore 2252-Anion、3M）に通液しヨウ素をディスクに保持させ、1M硝酸溶液15mL（特級、Wako）でヨウ素を溶出させた。溶出液に次亜塩素酸ナトリウム溶液0.5mL及び内標準元素としてロジウム0.5~1μgを加え1M硝酸溶液で50mL~100mLに定容し、ヨウ素-127測定用試料溶液を調製した。

なお、分析に当たっては同一の試料を3個作成し、ブランク試料と合わせて計4試料について並行して分析を進めた。

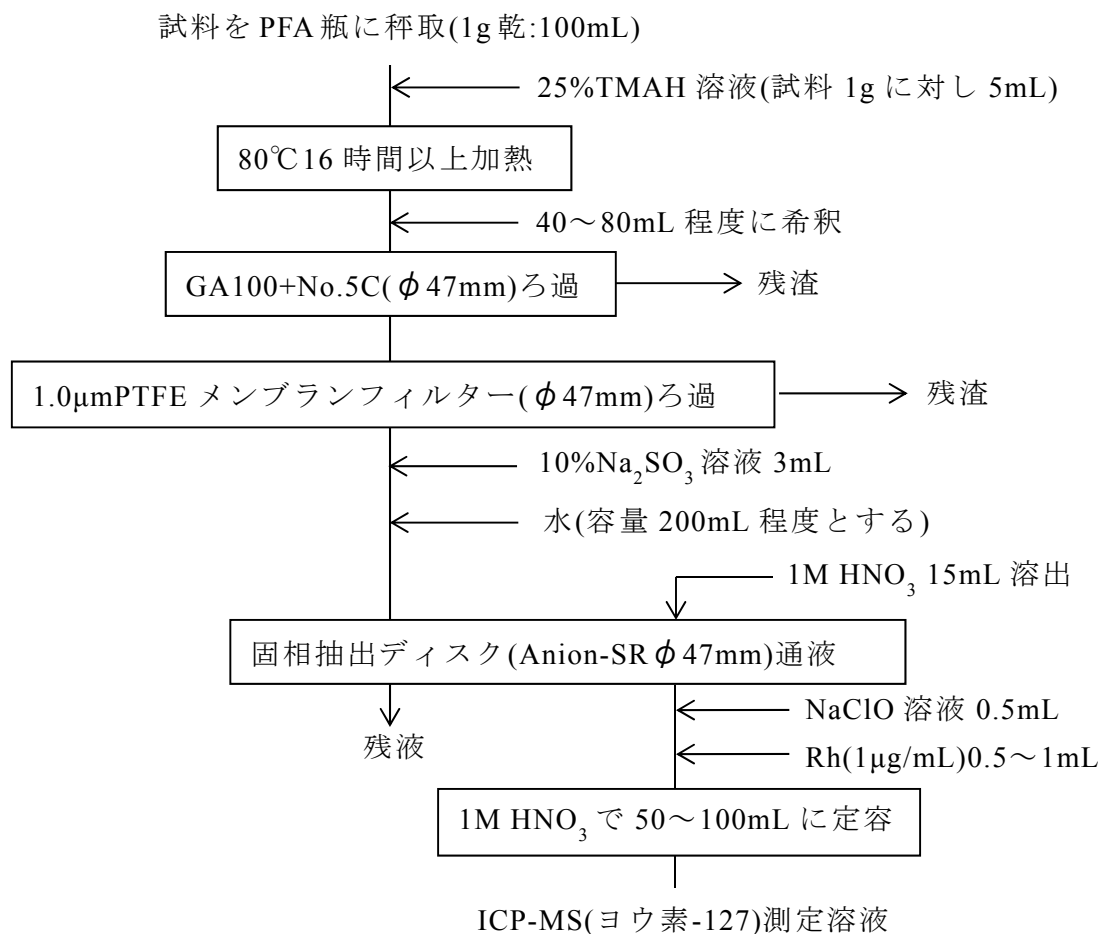


図1 分析フロー



※1: 試料抽出液は粘性が高く吸引ろ過の際に発泡するため、減圧を調整する必要があり、ろ過速度の律速要因となっていたが、抽出終了後、ろ過時の希釈容量を従来の 20mL 程度から 40~80mL 程度に増加させたところ抽出液の粘性が改善され、発泡はろ過に問題のない水準となった。

※2: これまでろ過にニトロセルロースメンブランフィルターを用いていたが、試料抽出液は比較的高濃度のアルカリであり、フィルターの加水分解が危惧されるため、PTFE メンブランフィルターを採用した。

### 2.3 測定方法

作製した溶液について、ICP 質量分析装置によりヨウ素-127 の定量を行った。ICP 質量分析装置の測定条件を表 1 に示す。

### 3. 調査結果及び考察

測定結果を表 2、3 に示す。

Peach leaves の測定結果は、標準試料の参考値とよく一致しており、ヨウ素担体を添加しない条件でも、固相抽出ディスクを用いて葉菜中のヨウ素を効率よく捕集し、回収できると期待される。

表 1 ヨウ素-127 測定条件

項 目	設 定 値
ネブライザーガス流量	1.05 L/min
補助ガス流量	0.6 L/min
プラズマガス流量	17 L/min
ICP RF 出力	1500 W
DRC ガス流量	—
積分時間	1 秒
繰返し回数	1 回
測定回数	3 回

表 2 Peach leaves 中ヨウ素-127 測定結果

試料	測定試料 中濃度 (ppb)	測定試 料量 (mL)	供試量 (g)	測定試料中 ヨウ素-127 量 ( $\mu\text{g}$ )	参考値 との比	参考値 ( $\mu\text{g/g}$ )
	$5.7 \pm 0.13$			$0.28 \pm 0.0064$	0.98	
Peach leaves	$5.3 \pm 0.13$	50	1.0	$0.26 \pm 0.0065$	0.91	0.3
	$6.1 \pm 0.13$			$0.31 \pm 0.0063$	1.05	
ブランク	$0.071 \pm 0.13$	-	-	-	-	-

※誤差は、ICP 質量分析装置による 3 回の測定値より求めた標準偏差

表3 Tomato leaves 中ヨウ素-127 測定結果

試料	測定試料 中濃度 (ppb)	測定試 料量 (mL)	供試量 (g)	測定試料中 ヨウ素-127 量 ( $\mu\text{g}$ )	参考値 との比	参考値 ( $\mu\text{g/g}$ )
Tomato leaves	$1.9 \pm 0.24$			$0.19 \pm 0.024$	0.23	
	$1.9 \pm 0.22$	100	1.0	$0.19 \pm 0.022$	0.22	0.85
	$1.6 \pm 0.23$			$0.16 \pm 0.023$	0.19	
ブランク	$0.044 \pm 0.24$	-	-	-	-	-

※誤差は、ICP 質量分析装置による 3 回の測定値より求めた標準偏差

一方、Tomato leaves の測定結果は参考値と比較して 0.19~0.23 と低く、2 種の標準試料の回収率に大きな違いが見られた。

平成 25 年度の検討<sup>4)</sup>において、両試料の抽出液をそのまま ICP-MS 測定したところ、いずれも参考値とほぼ一致する結果が得られており、抽出条件に問題はないと考えられる。したがって Tomato leaves における低い回収率の原因は、固相抽出ディスクによるヨウ素の捕集工程にある可能性が高い。

固相抽出ディスクでヨウ素を捕集する際には、溶液中のヨウ素の化学形を I とすることが必要であり、このため、ディスク通液前に亜硫酸ナトリウム溶液を加えヨウ素を還元している。Tomato leaves 抽出液に添加した亜硫酸ナトリウムが分解し不活性化しており、ヨウ素が十分にディスクに捕集されなかった可能性を考慮し、再捕集を試みた。抽出液を固相抽出ディスクに通液した後の残液 3 試料に、新たに調製した 10% 亜硫酸ナトリウム溶液 3mL を加え、別の固相抽出ディスクに通液、1M 硝酸で溶離した際の測定結果を表 4 に示す。

再捕集により得られたヨウ素量は参考値と比較して 0.043~0.068 と低く、何らかの要因により、試料中のヨウ素がディスクに捕集されにくい状態であると推測される。

迅速分析法では、ヨウ素以外のハロゲン元素が数百倍共存していても、固相抽出ディスクによるヨウ素の捕集には影響を与えないとしている<sup>2)</sup>が、ヨウ素に対する他のハロゲン元素の比が  $10^3$  を超える場合については検討結果がない。標準試料中のハロゲン濃度を表 5 に示す。Tomato leaves では Peach leaves と比較して塩素、臭素とも濃度が高く、とりわけ臭素濃度の差は顕著であり、これらの共存ハロゲンが固相抽出ディスクによるヨウ素の捕集効率に影響を与えている可能性がある。

表4 Tomato leaves 再捕集ヨウ素-127 測定結果

試料	測定試料 中濃度 (ppb)	測定試 料量 (mL)	供試量 (g)	測定試料中 I-127 量 ( $\mu\text{g}$ )	参考値 との比	参考値 ( $\mu\text{g/g}$ )
Tomato leaves	$0.36 \pm 0.047$			$0.036 \pm 0.0047$	0.043	
	$0.58 \pm 0.039$	100	1.0	$0.058 \pm 0.0039$	0.068	0.85
	$0.56 \pm 0.043$			$0.056 \pm 0.0043$	0.066	

※誤差は、ICP 質量分析装置による 3 回の測定値より求めた標準偏差

表 5 各標準試料中のハロゲン濃度 ( $\mu\text{g/g}$ )

試料	ヨウ素	塩素	臭素
Peach leaves	0.3	360 ( $4.3 \times 10^3$ )	11 ( $5.8 \times 10^1$ )
Tomato leaves	0.85	6600 ( $2.8 \times 10^4$ )	1300 ( $2.4 \times 10^3$ )

※下段括弧内はヨウ素との mol 比

#### 4. まとめ

植物組織を TMAH 抽出した後、固相抽出ディスクを用いてヨウ素を分離・濃縮する手法について、複数の標準試料を用い、安定ヨウ素担体を添加しない場合の回収率を評価した。対象とする試料により回収率は異なるが、条件によっては、 $\mu\text{g}$  オーダーのヨウ素を効率よく回収することができることを明らかにした。

平成 27 年度は、前処理方法の最適化及び、共存ハロゲンがヨウ素回収率に及ぼす影響に係る検討を進めるほか、内標準元素の比較、ヨウ素-129 の検出下限に与える安定ヨウ素濃度の影響、海藻について固相抽出ディスクによる分離・濃縮を適用するための条件等の検討を進め、迅速分析法に記載の検出限界値をさらに向上させるとともに、県の環境放射線モニタリングにおけるヨウ素-129 分析手法としての確立を目指す。

#### 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シリーズ 32「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」(平成 16 年)
- 3)藤原英司、木方展治： $^{129}\text{I}$  モニタリングのための分析法の確立,第 51 回環境放射能調査研究成果論文抄録集,平成 20 年度
- 4)木村芳伸、木村秀樹：TMAH アルカリ抽出法を用いた DRC-ICP-MS による葉菜及び海藻試料中のヨウ素-129 分析の検討, 青森県原子力センター所報 第 8 号 (2013)



## 青森県全域における空間放射線及び環境試料中の放射能調査

松山 大 工藤 翔 五十嵐 健  
鈴木将文 小川裕貴 大久保英樹

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

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

本県では、平成25年度から3か年にわたり、モニタリング地域を含む青森県全域において空間放射線及び土壌中放射能濃度を測定し、その水準や地域及び土地利用状況による違いを把握することとした。

平成26年度は東青地域及び三八地域において調査を実施しており、調査結果は中間報告として本所報の技術報告としてとりまとめた。



青森県原子力センター所報（第8号）の訂正について





青森県原子力センター所報（第8号）の訂正について

平成25年度の青森県原子力センター所報第8号に誤記が確認されたため、以下のとおり訂正します。なお、この訂正により、ヨウ素-129抽出率の検討結果に変更はありません。

p.6

【誤】

表2 TMAHアルカリ抽出法による試料中I-127濃度測定結果

試料	供試量 (g)	測定結果( $\mu$ g/g) <sup>※</sup>			参考値 ( $\mu$ g/g)
		1回目	2回目	3回目	
NIST1547 peach leaves	1.0	0.31±0.003	0.33±0.004	0.32±0.001	0.3
NIST1573a tomato leaves	1.0	<u>8.7±0.094</u>	<u>8.6±0.059</u>	<u>8.6±0.038</u>	<u>8.5</u>

※誤差は、ICP質量分析装置による5回の測定値より求めた標準偏差である。

【正】

表2 TMAHアルカリ抽出法による試料中I-127濃度測定結果

試料	供試量 (g)	測定結果( $\mu$ g/g) <sup>※</sup>			参考値 ( $\mu$ g/g)
		1回目	2回目	3回目	
NIST1547 peach leaves	1.0	0.31±0.003	0.33±0.004	0.32±0.001	0.3
NIST1573a tomato leaves	1.0	<u>0.87±</u> <u>0.0094</u>	<u>0.86±</u> <u>0.0059</u>	<u>0.86±</u> <u>0.0038</u>	<u>0.85</u>

※誤差は、ICP質量分析装置による5回の測定値より求めた標準偏差である。



編 集 委 員

木村秀樹（委員長） 福原雅彦（副委員長） 大久保英樹 五十嵐 健  
神 俊雄 武藤逸紀 神 正志

青 森 県 原 子 力 セ ン タ ー 所 報 第 9 号 (2014)

平成 27 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

