

青森県原子力センター所報

第16号

令和3年度

Bulletin
of
Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

No.16 (2021)

青森県原子力センター

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

は　じ　め　に

青森県原子力センターは、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をはじめ多く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、未だ操業に至ってはおりませんが、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4年3月

青森県原子力センター

所 長　神　正　志

目 次

I 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・・・・・・・・・・ 3
－令和2年度調査結果－
工藤 翔 奈良和久 大下内 伸 幸 進 沼山 聡 佐々木耕一

II 学会発表等要旨

1. DGAレジンをを用いた固相抽出法による農畜産物及び指標植物中の⁹⁰Sr迅速分析法の
検討・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 25
檜山宝孝 蒔苗慧亮 米内山愛望 吹越恵里子 木村芳伸 神 俊雄

III 令和3年度調査研究事業報告

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・・・29
檜山宝孝 安積 潔
2. 環境試料中のトリチウム、炭素-14及びヨウ素-129・131調査・・・・・・・・・・ 39
(令和3年度実施内容)
工藤 翔 奈良和久 大下内 伸 幸 進 沼山 聡 佐々木耕一

I 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2年度調査結果—

工藤 翔 奈良 和久 大下内 伸
幸 進*1 沼山 聡*1 佐々木耕一*1

1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、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。同工場における使用済燃料を用いたアクティブ試験の実施に際し、青森県は、「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、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、日本原燃株式会社と共同で調査研究を実施することとした。

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 について調査を開始し、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を追加した。

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。また、平成27年度からは海藻のTFWT及びOBTを追加して実施している。

本報告は令和2年度の調査結果についてとりまとめたものである。

2. 調査方法

2.1 対象試料及び調査地点

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

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

*1：日本原燃株式会社

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のち、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。

(2)C-14

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

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

また、乾燥試料の燃焼による二酸化炭素量の測定によって、試料中の全炭素量を測定した。これらによって求めた C-14 比放射能と全炭素量から、試料中の C-14 濃度を算出した。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 2 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 [※]		欠測 [※]	欠測 [※]	○	¹³¹ I のみ
ダイコン	出戸		○	○	○	—
バレイショ	尾駁		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類 (ヒラメ等)	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②		○	○	—	—
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村前面海域①	2	○	○	—	○

※ キャベツについては、不作により採取量が少なかったため一部欠測とした。

表2 トリチウム及び炭素-14の測定条件

項目	^3H	^{14}C
測定機器	日立製作所 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 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

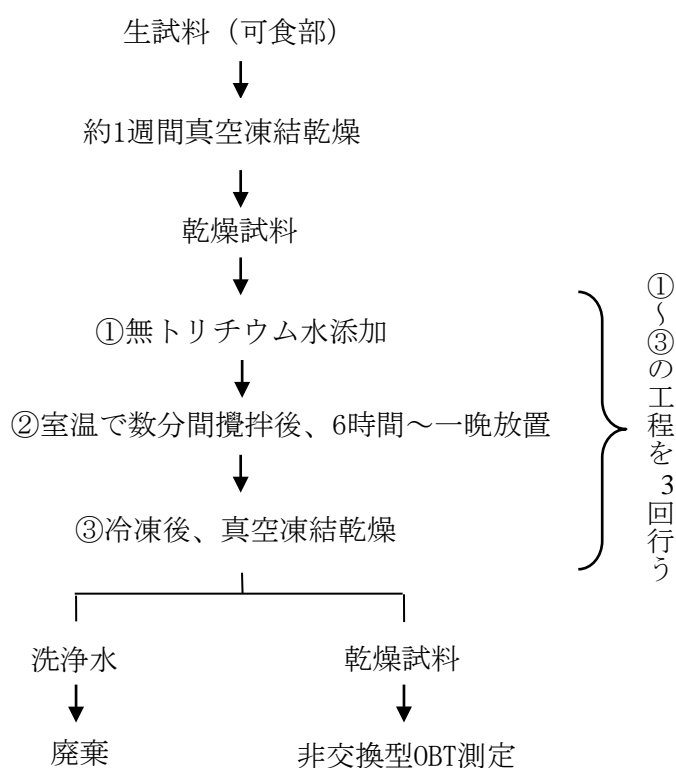


図2 非交換型OBTの分析工程

(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。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構青森研究開発センターが保有する加速器質量分析装置 (AMS) を用いて I-129 と I-127 の原子数比を測定し、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 3 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。

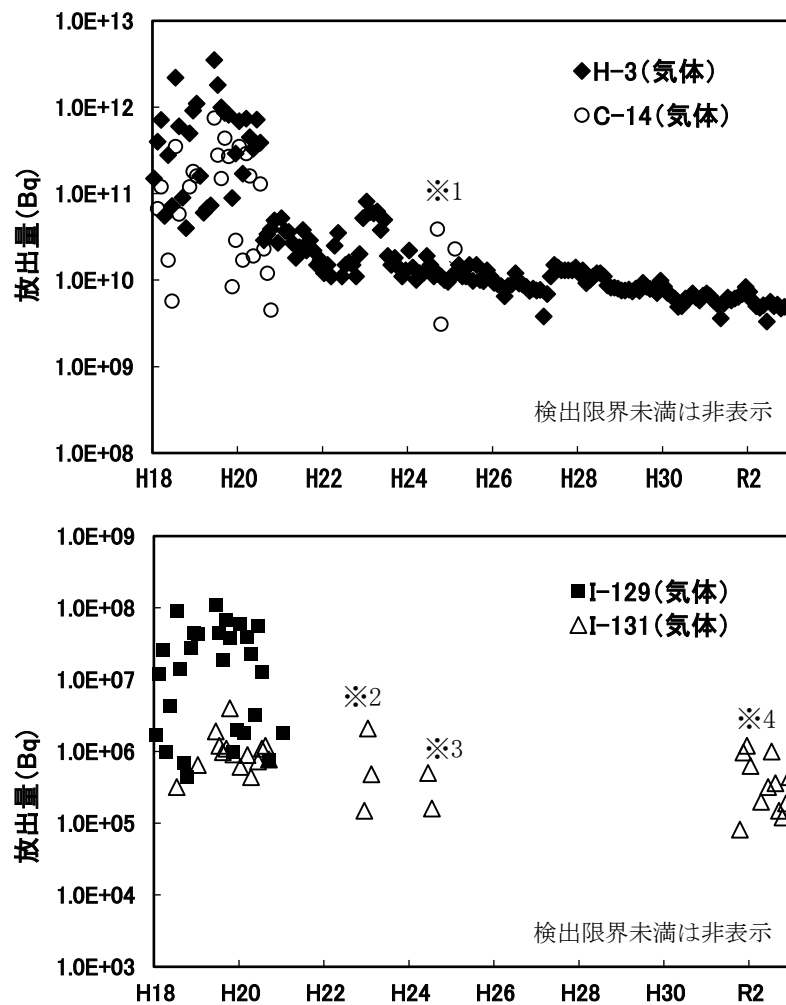


図 3 再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量
(平成 18 年 4 月～令和 3 年 3 月)

- ※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。

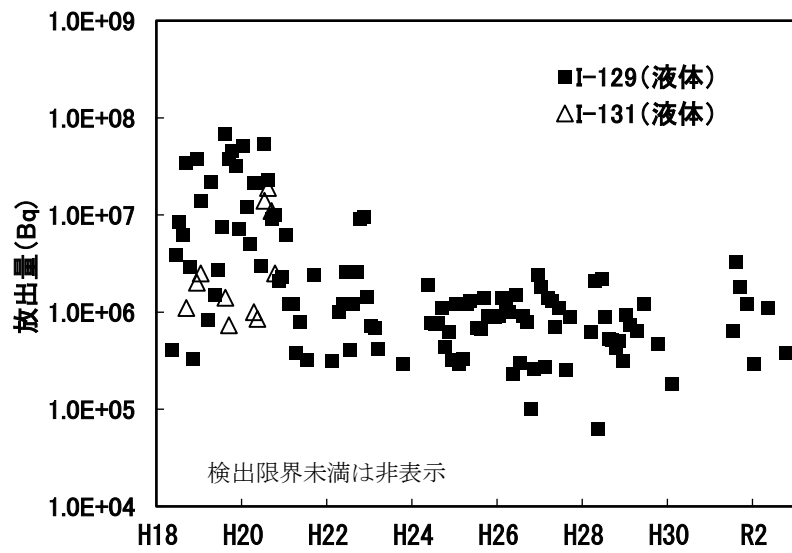
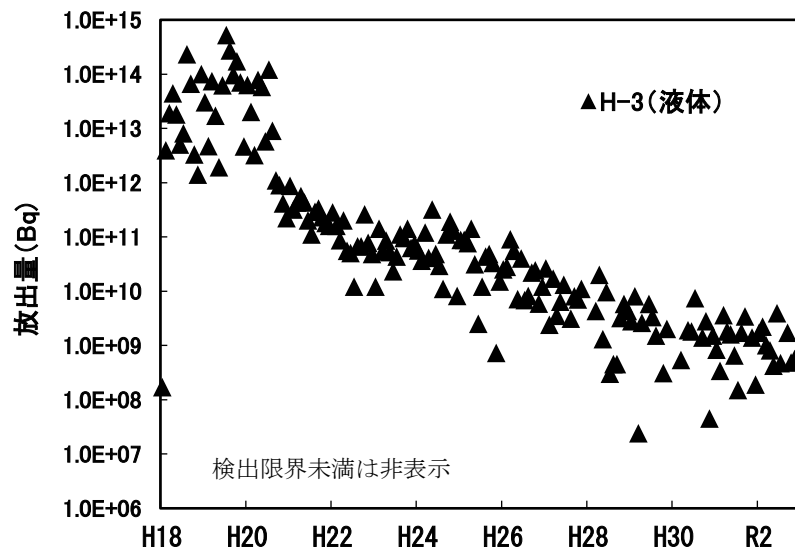


図4 再処理工場からの月ごとの放射性液体廃棄物放出量
(平成18年4月～令和3年3月)

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3及び図5に示す。牛乳についてはTFWTで検出限界以下～0.42 Bq/L、非交換型OBTで検出限界以下～0.53 Bq/L、乳牛の飲料水については検出限界以下～0.34 Bq/Lであり、牛乳及び飲料水ともにこれまでの測定値と同程度であった。

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2年度）

採取地点	採取月	R2年度調査結果			(参考) H22～R1年度 調査結果		
		牛乳（原乳）		飲料水 (Bq/L)	牛乳（原乳）		
		TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)		TFWT (Bq/L)	OBT※2 (Bq/L)	飲料水 (Bq/L)
六原 ※1	4月	0.42±0.11	*	*	*~0.63	*~0.62	*~0.46
	7月	*	*	0.24±0.07			
	10月	*	*	0.24±0.07			
	1月	*	0.44±0.10	0.33±0.07			
横浜町	4月	*	0.40±0.11	*	*~0.51	*~0.65	*~0.48
	7月	*	*	0.34±0.11			
	10月	*	0.33±0.11	*			
	1月	*	*	*			
二又	4月	*	*	0.34±0.11	*~0.58	*~0.48	*~0.29
	7月	*	0.45±0.10	*			
	10月	*	*	*			
	1月	*	0.46±0.10	*			
豊原	4月	0.33±0.11	0.32±0.10	*	*~0.67	*~0.57	*~0.59
	7月	0.39±0.10	0.53±0.10	*			
	10月	0.36±0.10	0.37±0.10	*			
	1月	0.36±0.10	0.45±0.10	0.31±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0.30~0.41 Bq/L、非交換型OBTで0.31~0.40 Bq/L、飲料水で0.22~0.36 Bq/Lであった。

※1 平成25年度から調査開始

※2 平成19～25年度は交換型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。

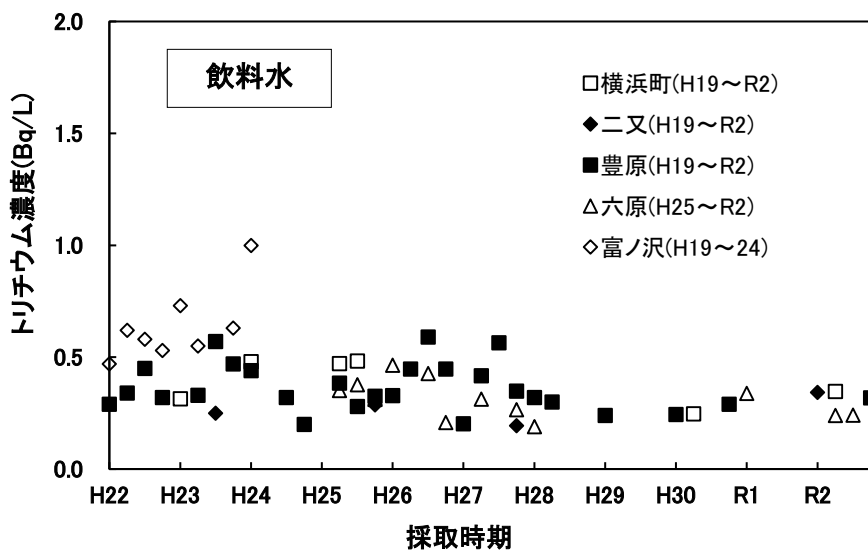
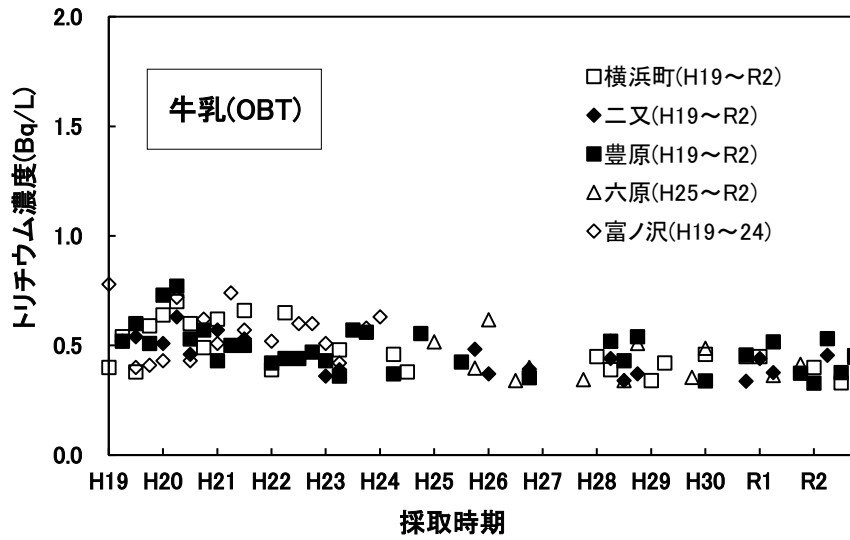
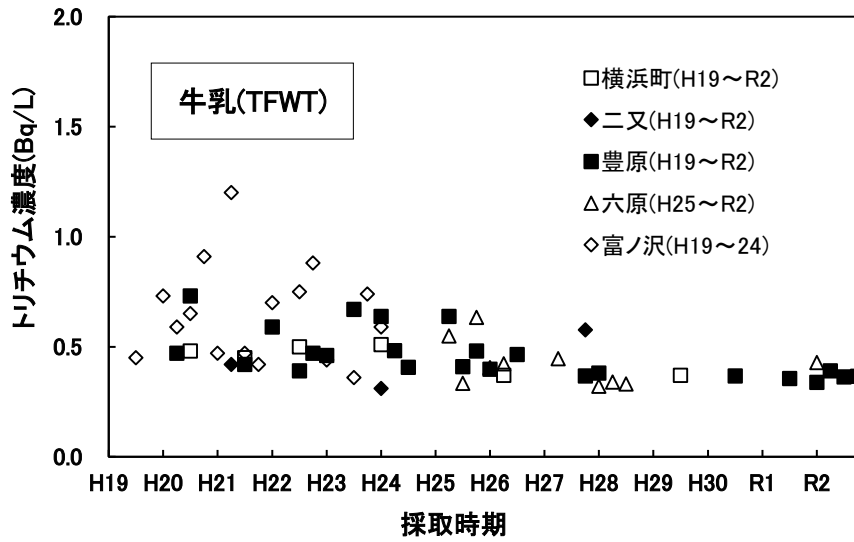


図5 牛乳及び乳牛の飲料水におけるトリチウム濃度の経年変化
 ※検出限界以下は非表示

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～0.44 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 2 年度)

試料名	採取地点	採取月	(参考) H22~R1 年度 調査結果	
			R2 年度調査結果 非交換型 OBT (Bq/L)	OBT ^{※1} (Bq/L)
精米	千樽	10月	0.37±0.11	*~0.45
	野辺地町	9月	*	*~0.47
	室ノ久保 ^{※2}	10月	0.44±0.11	*,0.33
	二又	10月	*	*~0.54
	戸鎖	10月	*	*~0.62
	平沼 ^{※3}	10月	*	*~0.67

・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0.31~0.33 Bq/L であった。

※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

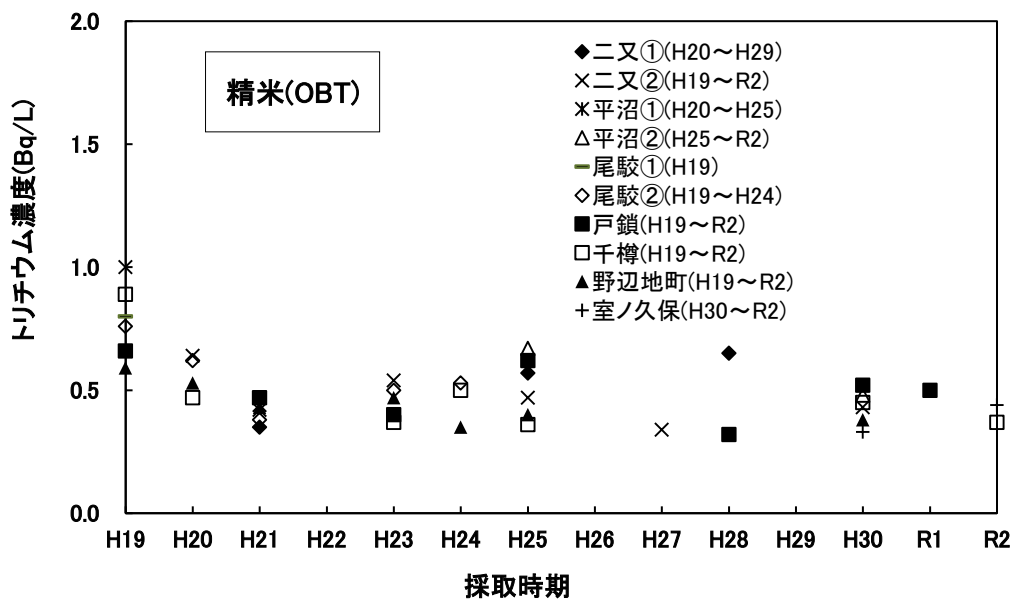


図 6 精米におけるトリチウム濃度 (OBT) の経年変化

※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 0.42~0.76 Bq/L、非交換型 OBT で検出限界以下~0.42 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・千葉に比べ若干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 23~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(0.20~0.54 Bq/L)以下~1.09 Bq/L

雨水：検出限界(0.21~0.39 Bq/L)以下~1.26 Bq/L

表 5 野菜のトリチウム（TFWT、OBT）濃度（令和 2 年度）

試料名	採取地点	採取月	R2 年度調査結果		(参考) H22~R1 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}	7月	0.48±0.11	0.42±0.10	0.59	0.42
	千樽	10月	0.76±0.11	*	*~0.56	*~0.56
キャベツ	横浜町	10月	欠測 ^{※3}	欠測 ^{※3}	*~0.77	*~0.60
ダイコン	出戸	9月	0.43±0.11	*	*~0.61	*~0.50
バレイショ	尾駁	8月	0.69±0.11	*	0.41~0.88	*~0.59
ナガイモ	東北町	11月	0.42±0.11	*	*~0.45	*~0.62
	平沼	11月	0.73±0.11	*	*~0.61	*~0.38

・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 0.31~0.33 Bq/L、OBT で 0.30~0.32 Bq/L であった。

※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。

※3 キャベツについては、不作により採取量が少なかったため欠測とした。

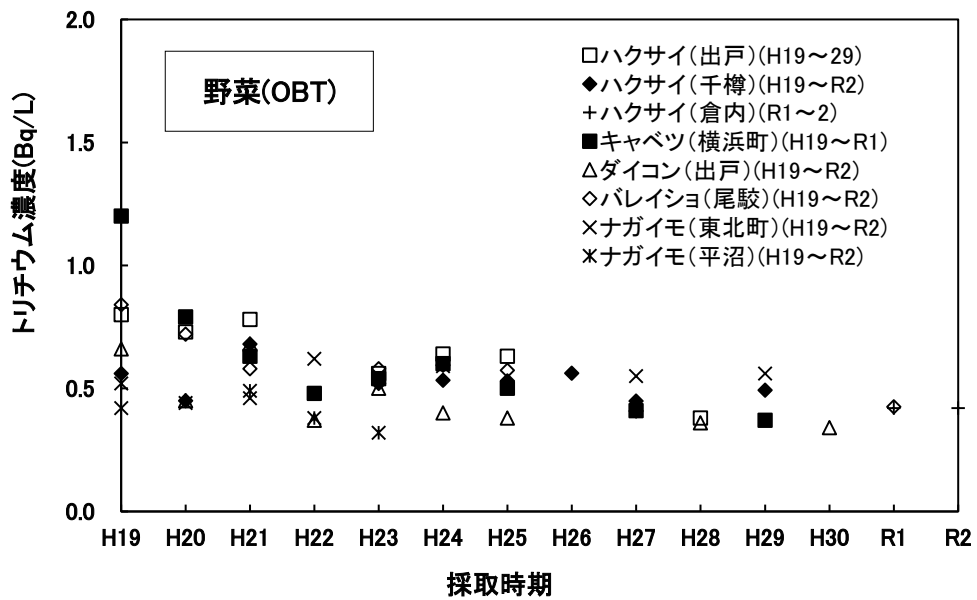
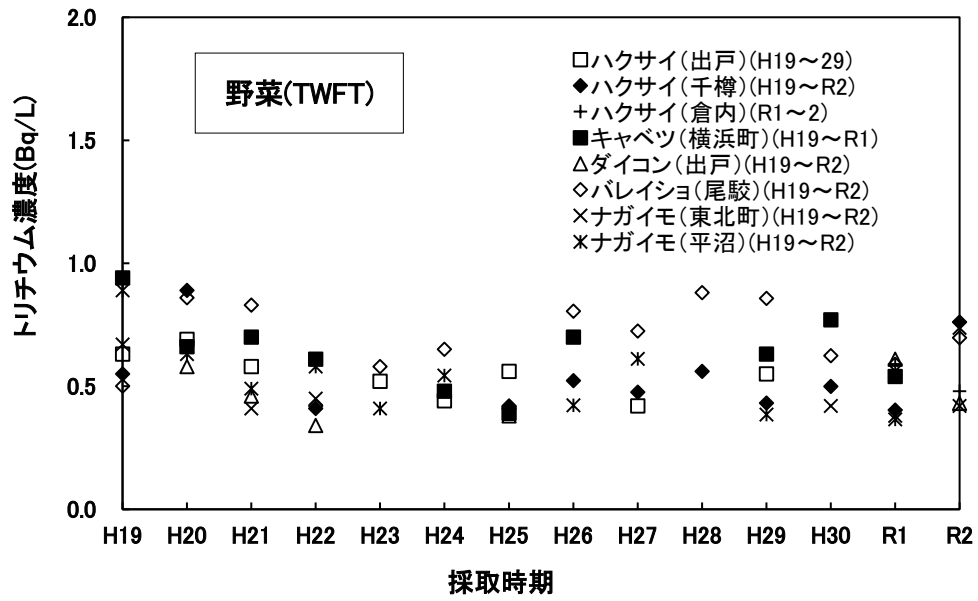
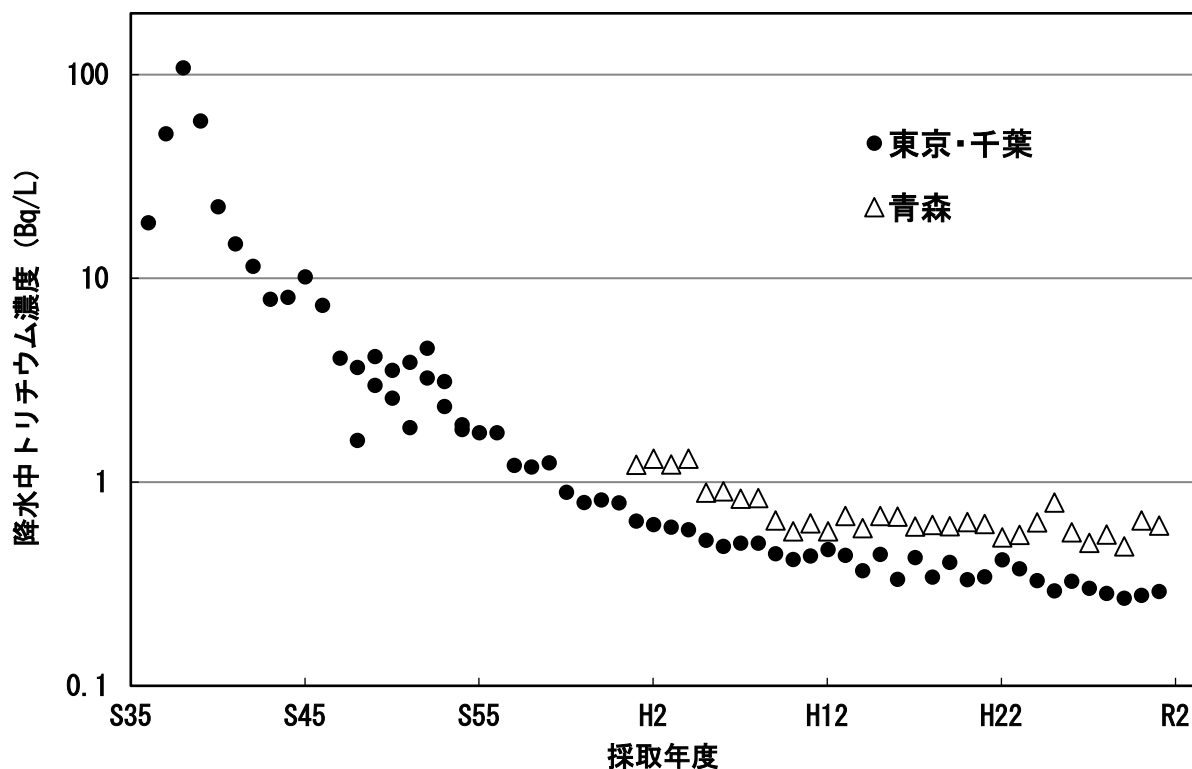


図7 野菜におけるトリチウム濃度(TFWT、OBT)の経年変化

※検出限界以下は非表示。



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 は検出限界以下～0.35Bq/L 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、すべて検出限界以下であった。なお、平成 23 年度から令和 2 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～0.18 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 2 年度）

試料名	採取地点	採取月	魚種	R2 年度調査結果		（参考）H22~R1 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①	6月	ヒラメ	*	*	*~0.34	*~0.48	*~0.38
		8月		*	*			
		10月		*	*			
		12月		*	*			
	六ヶ所村 前面海域②	5月	ヒラメ	*	*	*~0.46	*~0.39	*~0.49
		7月		*	*			
		11月		0.35±0.10	*			
		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、非交換型 OBT 共に 0.31~0.33 Bq/L であった。

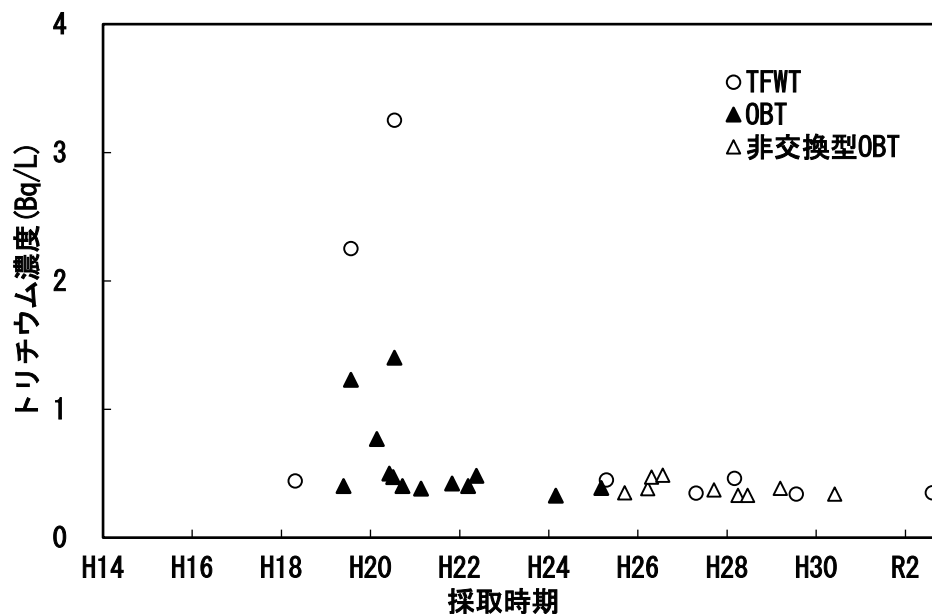


図 9 魚類（ヒラメ等）におけるトリチウム濃度（TFWT、OBT、非交換型 OBT）の経年変化

※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2年度）

試料名	採取地点	採取月	R2年度調査結果		H27~R1年度調査結果	
			TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)	TFWT (Bq/L)	非交換型 OBT (Bq/L)
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域①	9月	*	*	*	*~0.42
		11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0.31~0.33 Bq/L、非交換型OBTで0.32 Bq/Lであった。

4.2 C-14

環境放射線モニタリングで測定している農産物の C-14 比放射能の測定結果は表 8 に示すとおり、精米が 0.229～0.234 Bq/g 炭素、葉菜が 0.225～0.233 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 2 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 7.95 年（標準誤差 0.34 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 年と近い値となった。

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 2 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 2 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 $\pm 3\sigma$ の範囲内にあった。

$$\begin{aligned} \text{比放射能推定値} &= F_c + 0.228 \text{ (自然平衡レベル) (Bq/g炭素)} && \dots \text{式1} \\ F_c &= A \times \exp(-\lambda t) && \dots \text{式2} \\ \lambda &= \ln 2 / T && \dots \text{式3} \end{aligned}$$

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) $\lambda = \ln 2 / T$
T: フォールアウト起源のC-14の環境における半減期計算値(年)
t: 平成7年度からの経過年数(年)

$$\begin{aligned} \text{変動幅 (} 3\sigma \text{)} &= 3 \times \text{比放射能推定値} \times \text{平均変動係数} && \dots \text{式4} \\ \text{平均変動係数} &: \text{アクティブ試験の影響が認められなかった平成7年度から平成18年度及} \\ &\quad \text{び平成22年度から令和2年度の測定値から年度ごとに求めた変動係数の} \\ &\quad \text{平均値} \end{aligned}$$

表 8 農産物の C-14 比放射能 (令和 2 年度)

食品の種類	試料名	採取地点	採取月	R2 年度調査結果	(参考) H22~R1 年度
				(Bq/g 炭素)	調査結果
				(Bq/g 炭素)	(Bq/g 炭素)
米	精米	千 樽	10 月	0.229 ± 0.002	0.229 ~ 0.238
		野辺地町	9 月	0.234 ± 0.002	0.227 ~ 0.240
		室ノ久保 ^{※1}	10 月	0.229 ± 0.002	0.226 , 0.233
		二 又	10 月	0.234 ± 0.002	0.223 ~ 0.242
		戸 鎖	9 月	0.234 ± 0.002	0.225 ~ 0.244
		平 沼 ^{※2}	10 月	0.233 ± 0.002	0.224 ~ 0.234
葉菜	ハクサイ	倉 内 ^{※3}	7 月	0.225 ± 0.002	0.225
		千 樽	10 月	0.233 ± 0.002	0.221 ~ 0.238
	キャベツ	横浜町	10 月	0.230 ± 0.002	0.226 ~ 0.237
根菜・ いも類	ダイコン	出 戸	9 月	0.230 ± 0.002	0.228 ~ 0.239
	バレイショ	尾 駁	8 月	0.223 ± 0.002	0.223 ~ 0.240
	ナガイモ	東北町	11 月	0.232 ± 0.002	0.225 ~ 0.238
		平 沼	11 月	0.226 ± 0.002	0.226 ~ 0.242

※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

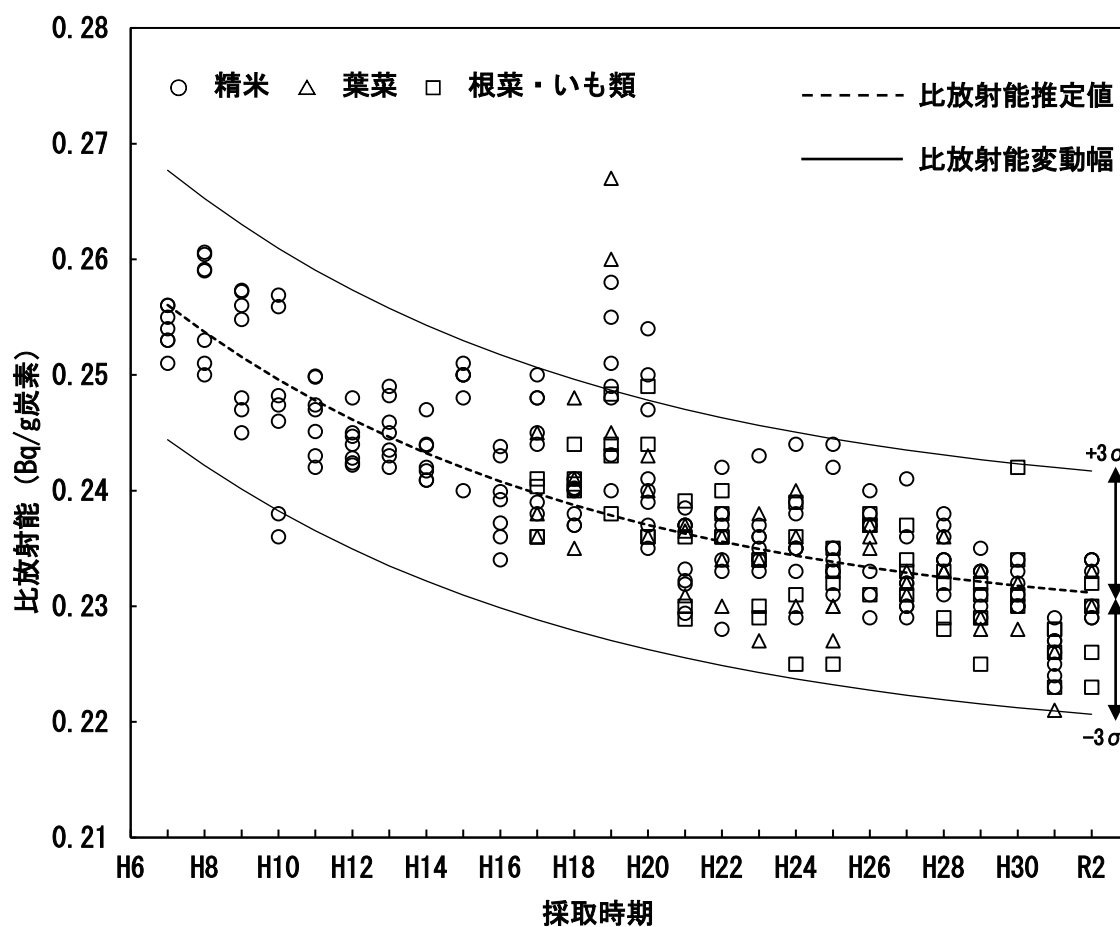


図 10 農産物における C-14 比放射能の経年変化

牛乳の C-14 比放射能の測定結果は表 9 に示すとおり、0.223~0.235 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 2 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 2 年度の測定値は、横浜町の 10 月採取分及び二又の 7 月採取分において平成 22~令和元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。牛乳の平成 22 年度から令和 2 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 7.76 年（標準誤差 1.32 年）であり、農産物の半減期 7.95 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) 0.0106
- 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2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 2 年度)

試料名	採取地点	採取月	R2 年度調査結果	(参考) H22~R1 年度
			(Bq/g 炭素)	調査結果 (Bq/g 炭素)
牛乳 (原乳)	六原*	4月	0.224 ± 0.002	0.222 ~ 0.241
		7月	0.225 ± 0.002	
		10月	0.229 ± 0.002	
		1月	0.223 ± 0.002	
	横浜町	4月	0.230 ± 0.002	0.228 ~ 0.248
		7月	0.230 ± 0.002	
		10月	0.227 ± 0.002	
		1月	0.232 ± 0.002	
	二又	4月	0.231 ± 0.002	0.224 ~ 0.244
		7月	0.223 ± 0.002	
		10月	0.235 ± 0.002	
		1月	0.227 ± 0.002	
豊原	4月	0.234 ± 0.002	0.225 ~ 0.244	
	7月	0.225 ± 0.002		
	10月	0.230 ± 0.002		
	1月	0.233 ± 0.002		

※ 平成 25 年度から調査開始

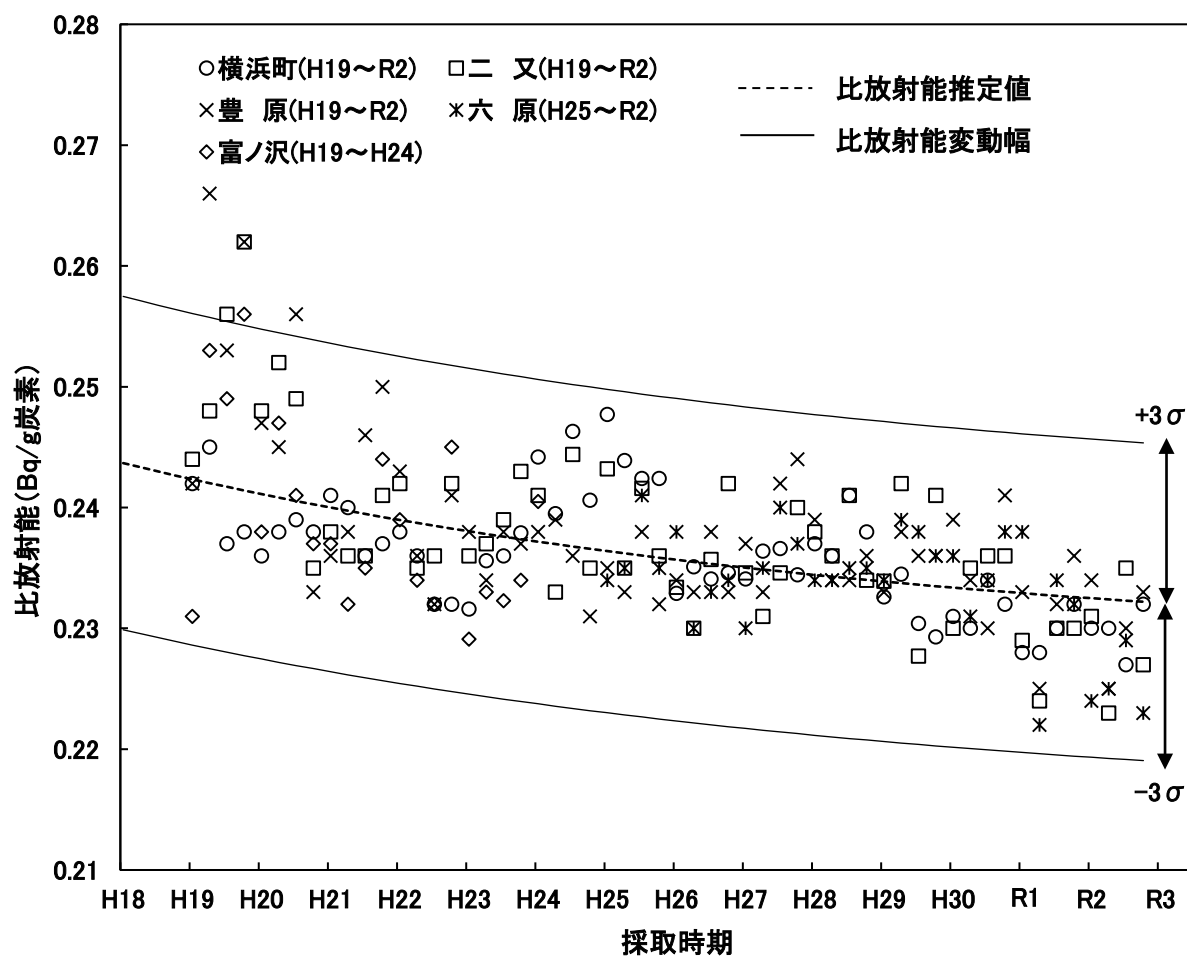


図 11 牛乳における C-14 比放射能の経年変化

4.3 I-129 及び I-131

環境試料中の I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比を表 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 2 年度）

試料名	採取地点	採取月	R2 年度調査結果		(参考) H22~R1 年度調査結果	
			^{129}I 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比	^{129}I 濃度 (Bq/kg 生)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比
ハクサイ	倉内 ^{※1}	7月	$(1.0\pm 0.13)\times 10^{-7}$	$(1.4\pm 0.18)\times 10^{-9}$	4.4×10^{-8}	2.2×10^{-10}
	千樽	10月	$(2.5\pm 0.44)\times 10^{-7}$	$(4.6\pm 0.81)\times 10^{-9}$	6.6×10^{-8} ~ 1.6×10^{-5}	2.6×10^{-9} ~ 2.3×10^{-7}
キャベツ	横浜町	10月	欠測 ^{※2}	欠測 ^{※2}	2.6×10^{-8} ~ 6.2×10^{-6}	1.5×10^{-9} ~ 3.7×10^{-7}
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村 前面海域 ①	9月	$(1.5\pm 0.06)\times 10^{-4}$	$(9.9\pm 0.44)\times 10^{-11}$	8.5×10^{-5} ~ 2.2×10^{-3}	4.6×10^{-11} ~ 6.5×10^{-10}
		11月	$(1.8\pm 0.07)\times 10^{-4}$	$(8.9\pm 0.32)\times 10^{-11}$		

※1 令和元年度から調査開始

※2 キャベツについては、不作により採取量が少なかったため欠測とした。

表 11 環境試料中の I-131 濃度（令和 2 年度）

試料名	採取地点	採取月	R2 年度調査結果	(参考) H22~R1 年度調査結果
			(Bq/kg 生)	(Bq/kg 生)
ハクサイ	倉内 [※]	7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①	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以下とし、「*」と表示した。なお、検出限界は 0.067 ~ 0.18 Bq/kg 生であった。

※ 令和元年度から調査開始

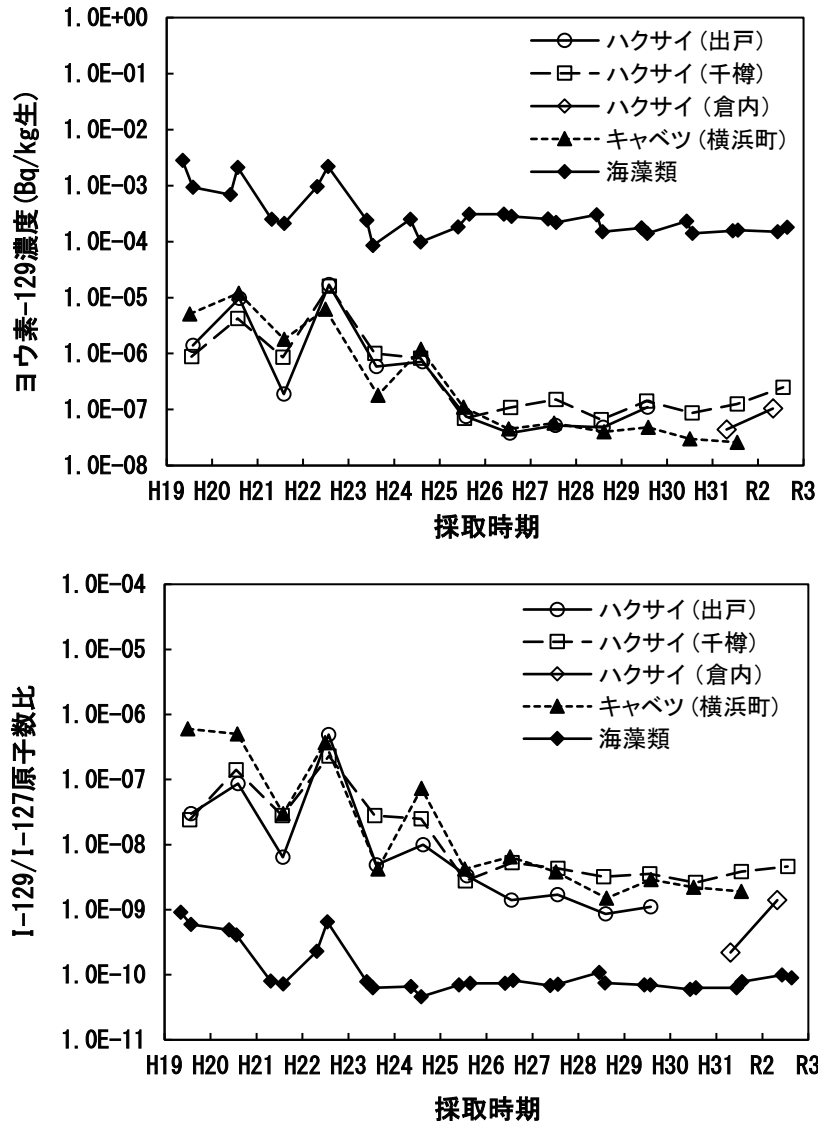


図 12 I-129 濃度及び I-129/I-127 原子数比の経年変化

5. まとめ

令和 2 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では、TFWT については検出限界を超える試料があったが、OBT についてはすべての試料につい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3年12月7日）
- 8) (公財)海洋生物環境研究所：令和2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3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、樫田義彦、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,*RADIOSOTOPES*,**51**,381-391(2002)
- 11) 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)
- 12) (公財)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（平成31年3月）

II 学会発表等要旨

DGAレジンをを用いた固相抽出法による農畜産物及び 指標植物中の⁹⁰Sr迅速分析法の検討

檜山宝孝 蒔苗慧亮 米内山愛望*¹ 吹越恵里子*² 木村芳伸*¹ 神 俊雄
保健物理第56巻4号 (2021)

ストロンチウム-90 (⁹⁰Sr) は、原子力関連施設からの周辺環境への影響を把握するのに重要な放射性核種である。しかしながら、放射能測定法シリーズ2「放射性ストロンチウム分析法」による分析法（以下「従来法」という。）は、煩雑な分析操作や長い分析期間を要する。そこで、DGAレジンをを用いた固相抽出法により、農畜産物及び指標植物からイットリウムを分離精製する迅速分析法の検討を行った。この分析法は、⁹⁰Srと放射平衡にある⁹⁰Yを直接抽出することによって、⁹⁰Srを決定する方法である。

⁹⁰Sr添加試料（牛乳）及び認証標準試料（IAEA-330）を用いた分析の真度は、牛乳においては108%と107%、IAEA-330においては111%であった。加えて、Y担体回収率は0.81以上であった。

今回検討した分析法と従来法による測定結果の比は0.75 - 1.15であり、⁹⁰Srの放射能濃度の検出限界は0.02 - 0.05 Bq/kg生であった。また、今回検討した法は従来法と比べて、分析期間が3週間程度迅速であった。

*1：現青森県危機管理局原子力安全対策課

*2：現青森県健康福祉部十和田食肉衛生検査所

Ⅲ 令和 3 年度調査研究事業報告

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

檜山宝孝 安積 潔^{*1}

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の分析を、放射能測定法シリーズ26「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（燃焼-活性炭吸着法、β線測定）により実施している。一方で、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」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、測定にICP質量分析法を用いた分析法が採用されている。

迅速分析法に記載された検出限界値（分析目標レベル）はヨウ素-129分析法に劣るものの、供試量を増加させ、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³⁾、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してきた。このうち、平成25年度からは、葉菜中ヨウ素-129を水酸化テトラメチルアンモニウム（以下「TMAH」という。）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（以下「TMAHアルカリ抽出-分離精製法」という。）について検討してきた。

本分析法については、アルカリ抽出工程では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^{4,5)}。また、Dangら⁶⁾により、水中I-129の分析においてイオン交換カラムでは有機態ヨウ素を十分に分離できないこと、また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（ $K_2S_2O_8$ ）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⁷⁾は、土壌中ヨウ素-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、昨年度、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。

今年度は、この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した分析法により、種類の異なる試料を用いて試料中ヨウ素回収率を確認するとともに、回収率補正を行うためのヨウ素担体添加量等の検討、ヨウ素-129の添加試験を行った。

^{*1}: 青森県原子力安全対策課

2. 調査方法

2.1 対象試料

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。)、SRM 1515 Apple Leaves (以下「Apple Leaves」という。) を用いた。各試料のヨウ素濃度及びカドミウム濃度、モリブデン濃度、ナトリウム濃度、カリウム濃度、カルシウム濃度の NIST が公表している情報及び認証値を表 1 に示す。なお、試料分取に当たっては、デシケーター内で 5 日間以上乾燥後に秤量した。

表 1 対象試料の情報及び認証値

試料	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	1.517 ± 0.027*	0.46	136.1 ± 3.7*	26,760 ± 480*	50,450 ± 550*
Peach Leaves	0.3	0.0261 ± 0.0022*	0.0603 ± 0.0068*	23.8 ± 1.6*	24,330 ± 380*	15,590 ± 160*
Apple Leaves	0.3	0.0132 ± 0.0015*	0.095 ± 0.011*	24.4 ± 2.1*	16,080 ± 210*	15,250 ± 100*

※ 認証値 ± 不確かさ

2.2 試薬・器具等

ヨウ素-129 標準溶液は、Eckert&Ziegler 製 (40.5 ± 1.1 Bq/g、基準日 2019.3.1) を用いた。分析で用いた試薬は、TMAH 及び硝酸が多摩化学工業 (株) 製 TAMAPURE-AA、ペルオキシ二硫酸カリウムが富士フイルム和光純薬 (株) 製窒素・りん測定用、ICP 質量分析に用いた標準溶液が同社製 ICP 分析用、その他の試薬が同社製特級を用いた。また、純水はメルク (株) 製超純水製造装置 Milli-Q Advantage で製造したものを用いた。

固相抽出用ディスクは 3M bioanalytical 製 Anion-SR を用いた。ろ過用のガラス繊維ろ紙 (GA-100) 及びメンブレンフィルター (PTFE、孔径 0.1 μm) はアドバンテック東洋 (株) 製を用いた。また、遠心分離機は (株) コクサン製 H-40α を用いた。

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 を用いた。測定条件は表 2 のとおりである。

表 2 ヨウ素-127 及びヨウ素-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

図 1 に昨年度まで検討してきた 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のフローを示すとともに、分析操作を以下(1)~(4)に示す。なお、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については 2.5、ヨウ素担体量の検討については 2.6 でそれぞれ検討した。

(1) アルカリ抽出

PFA 容器に対象試料約 1 g 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一晚 (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すとともに、さらに 80°C で 3 時間加熱した。

放冷後、純水により遠沈管に洗い移し、遠心分離機により 4800 rpm で 2~3 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。残渣は純水で数回洗浄し、併せたものをアルカリ抽出液とした。

(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

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 0.5 g 添加し、60°C で 2 時間加熱した。その後、溶液中に残存するペルオキシ二硫酸カリウムを失活させ、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。

(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、残存するペルオキシ二硫酸カリウムを失活させた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、あらかじめアセトンにより洗浄した固相抽出ディスクにメタノール 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 回繰返し通液した。その後、1 M 硝酸溶液でヨウ素を溶出し、これを溶出液とした。

(4) 測定用試料の調製

溶出液に 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。

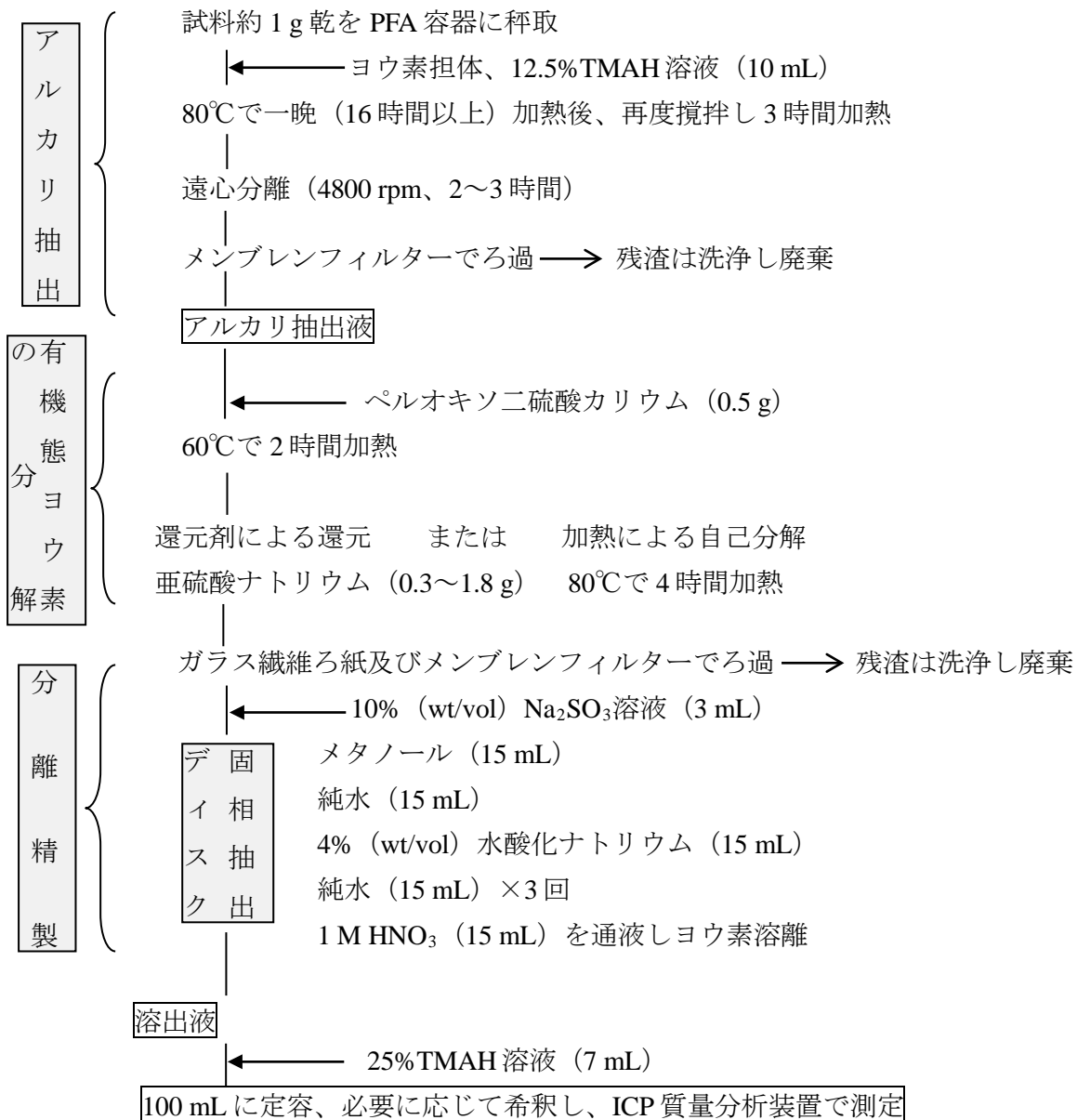


図 1 検討した TMAH アルカリ抽出-分離精製法のフロー図

2.5 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方法

昨年度の検討⁵⁾において、有機態ヨウ素を分解する目的で添加したペルオキシ二硫酸カリウムが、消費されず溶液中に残存した場合、その後の工程におけるヨウ素還元が阻害され、固相抽出ディスクによるヨウ素の回収率が低下することが示唆されていた。有機態ヨウ素により、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、種々の葉菜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ことから、その分析条件について、次の (1) 及び (2) により検討することとした。

(1) 還元剤によるペルオキシ二硫酸カリウムの還元の見込み方法

溶液中に残存するペルオキシ二硫酸カリウムを還元剤と反応させることにより、失活させることができるか検討することとした。

1.0×10^{-8} g/mL のヨウ化ナトリウム溶液 100 mL にペルオキシ二硫酸カリウムを 0.5 g (0.0018 mol) 添加し、60°C で 2 時間加熱した後、還元剤として亜硫酸ナトリウムを 0.3~1.8 g (0.0024~0.014 mol) 添加し、2.4 により分離精製を行い、溶出液のヨウ素-127 を測定した。なお、昨年度の見込みでは、亜硫酸ナトリウム添加後の放置時間は数分程度であったが、今回は添加後の放置時間を数分間、2 時間、4 時間とし、回収率の違いを確認した。

(2) 加熱によるペルオキシ二硫酸カリウムの自己分解の見込み方法

ペルオキシ二硫酸カリウムは、約 60°C 以上で水との反応により自己分解することが知られていることから⁹⁾、溶液中に残存するペルオキシ二硫酸カリウムを分解するため、加熱温度及び時間について検討することとした。

昨年度の見込み結果⁵⁾から、80°C で 4 時間以上加熱することで、残存するペルオキシ二硫酸カリウムを自己分解させることができると考えられたため、当該条件を分析条件とした。

2.6 他植物試料への適用の見込み方法

固相抽出工程の前処理として、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した分析法については、これまで Tomato Leaves を用いて検討してきた。今回、当該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、試料中ヨウ素量のほか、スペクトル干渉の原因となるカドミウムやモリブデン、植物試料の主要元素であるカリウム、ナトリウム、カルシウム等の共存物質量の異なる 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。

分析法については、各試料約 1 g 乾を用いてヨウ素担体を加えず、2.4 の分析法により分析した。なお、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については、2.5 の評価結果で決定した分析条件を用いた。

2.7 ヨウ素担体添加量の見込み方法

本分析法では、試料中ヨウ素-129 の回収率計算のため、対象試料に既知量の安定ヨウ素を添加する必要がある。各種野菜のヨウ素濃度は表 3 のとおりである²⁾。今回の見込みにおいて、供試量は乾燥重量約 1 g であり、これは水分率 90% と仮定すると生重量約 10 g に相当する。表 3 においてヨウ素濃度が最も高いホウレンソウ $0.1 \mu\text{g/g}$ 生を用いて、今回の見込み条件（供試量 1 g 乾、生重量 10 g 相当）における試料中ヨウ素量を見積もった場合、 $1 \mu\text{g}$ となる。このことから、例えばヨウ素担体量を 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% 程度と小さい。放射能濃度の検出限界値や試料の種類によっては、今後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 の場合の回収率を見込みすることとした。なお、ヨウ素担体の回収率については、(1)式により算出した。

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

表3 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²⁾の P19 から引用したもの。

2.8 ヨウ素-129 添加試料を用いた検討方法

ヨウ素-129 標準溶液 (40.5 ± 1.1 Bq/g、基準日 2019.3.1) を 1.25% TMAH を用いて 0.0459 Bq/mL に希釈した。この希釈したヨウ素-129 標準溶液を Tomato Leaves (8.2×10^{-2} mBq/g 乾) 約 1 g 乾に添加し、ヨウ素-129 含有量が約 6 mBq、18 mBq、60 mBq となるよう調製した。これらヨウ素-129 添加試料を 2.4 の分析法により分析した。なお、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については 2.5、ヨウ素担体量については 2.7 の評価結果で決定した条件等を用いた。

3. 調査結果

3.1 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

図 2 に反応時間及び亜硫酸ナトリウム添加量とヨウ素回収率の関係を示す。亜硫酸ナトリウム添加量を増加させても回収率は上昇していない。反応時間を長くすることにより、回収率が若干増加する傾向が見られたものの、ヨウ素回収率は最大 50% 程度であった。

2.5.(2)による昨年度のヨウ素回収率の結果が 99% 程度であったことを踏まえると、残存するペルオキシ二硫酸カリウムを失活させる方法としては、加熱によりペルオキシ二硫酸カリウムを自己分解させる方法がより効果的であると考えられる。このことから、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は、2.5.(2)により行うこととした。

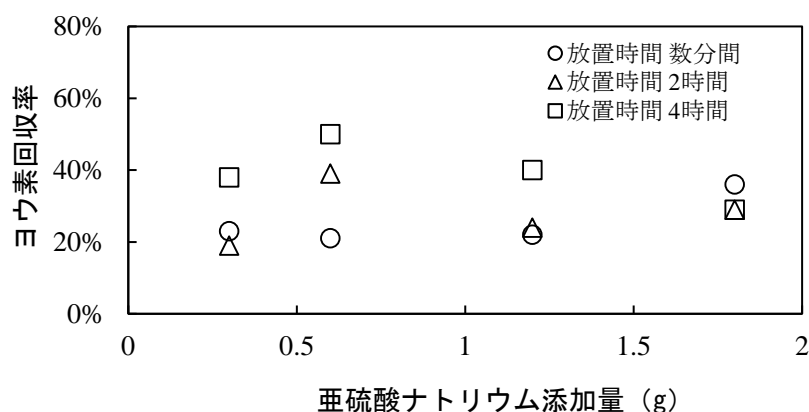


図2 各反応時間における亜硫酸ナトリウム添加量とヨウ素回収率の関係

※ 分離精製に供した溶液：10 ng/mL ヨウ化ナトリウム溶液
 $K_2S_2O_8$ 添加量：0.5 g、 $K_2S_2O_8$ 添加後の加熱条件：60°C 2 h

3.2 他植物試料への適用

表 4 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、試料中ヨウ素の回収率は 91%以上と良好であった。今回の検討対象試料はいずれも植物の葉であるが、試料中ヨウ素量のほか、スペクトル干渉の原因となるカドミウムやモリブデン、植物試料の主要元素であるナトリウム、カリウム、カルシウム等の共存物質の異なる試料である。いずれの試料についても、試料中ヨウ素の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可能性があると考えられる。

表 4 試料ごとのヨウ素回収率

上段：ヨウ素-127 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 ヨウ素-127 量(μ g)	溶出液中 ヨウ素-127 量(μ g)
Tomato Leaves	0.667 \pm 0.016 (100%)	0.632 \pm 0.009 (94.8 \pm 1.3 (%))
Peach Leaves	0.278 \pm 0.006 (100%)	0.256 \pm 0.002 (91.9 \pm 0.7 (%))
Apple Leaves	0.244 \pm 0.006 (100%)	0.228 \pm 0.003 (93.5 \pm 1.4 (%))

※ アルカリ抽出液（分離精製前）のヨウ素-127 量との比

3.3 ヨウ素担体添加量の検討

表 5 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 2.7 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 10 g 相当）とした。このため、表 3 により試料に含まれるヨウ素量を最大で見積もった場合でも、ヨウ素担体添加量に対するその比率が 0.05%と十分に小さい 2 mg をヨウ素担体添加量とした。

表 5 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(1)式により算出した。また、試料に含まれるヨウ素のヨウ素担体添加量に対する比率は、表 3 で最も試料中ヨウ素濃度が高いハウレンソウの値 (0.1 μ g/g 生) を用いて見積もった場合、ヨウ素担体添加量 2 mg で 0.05%、5 mg で 0.02%となる。

3.4 ヨウ素-129 添加試料を用いた検討及び検出限界値

表 6 にヨウ素-129 添加試料の測定結果を示す。ヨウ素担体回収率で補正したヨウ素-129 測定量は、 $100 \pm 1 \sim 102 \pm 2$ (%)と、ヨウ素-129 添加量によく一致していた。また、ヨウ素担体回収率は 81%以上と良好であった。なお、 m/z 129 に対してスペクトル干渉する $^{113}\text{Cd}^{16}\text{O}^+$ 及び $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2^+$ の影響については、昨年度の検討結果⁵⁾ から、Tomato Leaves 約 1 g 乾のカドミウム量及びモリブデン量ではヨウ素-129 に影響するレベルではないことを確認している。

今回の検討におけるヨウ素-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 10 g 相当)、ヨウ素担体回収率 (80%) を用いると、(2)式のとおり 8.2×10^{-3} Bq/kg 生程度であった。

この値は、日本原燃株式会社の再処理施設の安全審査において、事業者が評価している平常時の葉菜中ヨウ素-129 濃度 (3.6×10^{-2} Bq/kg 生) を下回っていることから、本分析法は同施設の稼働後において、平常時モニタリングに適用可能な分析法となる可能性が示唆された。

$$\begin{aligned} \text{ヨウ素-129 濃度の検出限界値} &= \frac{0.1 \times 10^{-12} \frac{\text{g}}{\text{mL}} \times \frac{100 \text{ mL}}{0.01 \text{ kg 生}}}{0.80} \\ &= 1.25 \times 10^{-9} \text{ g/kg 生} \\ &= 8.2 \times 10^{-3} \text{ Bq/kg 生} \quad (2) \end{aligned}$$

表 6 ヨウ素-129 添加試料の測定結果

試料	ヨウ素-129 添加量	ヨウ素担体回収率 (%)	ヨウ素-129 測定値 (g)	ヨウ素-129 添加量に対するヨウ素担体回収率補正後のヨウ素-129 測定量の比 (%)
	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

4. まとめ

- 1) 残存するペルオキシ二硫酸カリウムの酸化力を失わせる分析条件は、還元剤による還元と比べ、加熱によりペルオキシ二硫酸カリウムを自己分解させる方法がより効果的であると考えられた。
- 2) 3 種類の植物葉標準試料を用いて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した分析法により、試料中ヨウ素回収率を確認したところ、試料中ヨウ素の回収率は 91%以上と良好であった。このことから、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可能性があると考えられた。

- 3) ヨウ素-129 添加試料を用いたヨウ素-129 測定については、ヨウ素担体回収率で補正したヨウ素-129 測定量が $100 \pm 1 \sim 102 \pm 2$ (%)と、ヨウ素-129 添加量によく一致していた。さらに、ヨウ素担体回収率は 81%以上と良好であった。
- 4) 今回の検討におけるヨウ素-129 濃度の検出限界値は、 8.2×10^{-3} Bq/kg 生程度であり、日本原燃株式会社の再処理施設の安全審査において、事業者が評価している平常時の葉菜中ヨウ素-129 濃度 (3.6×10^{-2} Bq/kg 生) を下回っていることから、本分析法は同施設の稼働後において、平常時モニタリングに適用可能な分析法となる可能性が示唆された。

文 献

- 1) 文部科学省放射能測定法シリーズ 26 「ヨウ素-129 分析法」(平成 8 年)
- 2) 文部科学省放射能測定法シリーズ 32 「環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法」(平成 16 年)
- 3) Hideshi Fujiwara, Katsu Kawabata, Junji Suzuki, Osamu Shikino : Determination of ^{129}I in soil samples by DRC-ICP-MS, *J. Anal. At. Spectrom.*, 26, 2528-2533(2011)
- 4) 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)
- 5) 安積潔、神俊雄 : 青森県原子力センター所報, 第15号, 79-92(2020)
- 6) 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)
- 7) 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)
- 8) Kun-ChangHuang, Zhiqiang Zhao, George E.Hoag, Amine Dahmani, Philip A.Block : Degradation of volatile organic compounds with thermally activated persulfate oxidation, *Chemosphere*, 61, 551-560(2005)
- 9) 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)

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年度実施内容)

工藤 翔 奈良和久 大下内 伸
幸 進*1 沼山 聡*1 佐々木耕一*1

1. はじめに

日本原燃株式会社の六ヶ所再処理工場からは、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。同工場における使用済燃料を用いたアクティブ試験の実施に際し、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、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、共同で調査研究を実施することとした。この一環として、平成19年度から、調査研究として環境試料中のトリチウム、C-14 及び I-129 について調査を開始している。

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を追加した。

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。また、平成27年度からは海藻のTFWT及びOBTを追加して実施している。

令和2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3年度の調査計画と今後の進め方

令和3年度の調査計画を表1に示した。令和2年度と同じ内容である。これらの調査結果については令和4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（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	尾駁		○	○	○	—
ナガイモ	東北町		○	○	○	—
	平沼		○	○	○	—
魚類 (ヒラメ等)	六ヶ所村前面海域①	4	○	○	—	—
	六ヶ所村前面海域②		○	○	—	—
海藻類 (コンブ)	六ヶ所村前面海域①	2	○	○	—	○

編 集 委 員

神 正志（委員長） 出貝 健（副委員長） 神 俊雄 大下内 伸
工藤 翔 檜山 宝孝 澤田 譲

青森県原子力センター所報 第 16 号 (2021)

令和 4 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

