

(千葉大学学位申請論文)

六ヶ所再処理工場に係る  
環境放射線モニタリングに関する研究

2008年1月

木村秀樹

# 六ヶ所再処理工場に係る環境放射線モニタリングに関する研究

## 目 次

第1章 緒言	1
1.1 我が国の原子力政策	1
1.2 青森県における原子力施設	1
1.3 原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング	2
1.3.1 空間放射線量率	11
1.3.2 積算線量	12
1.3.3 大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能	12
1.3.4 大気中気体状 $\beta$ 放射能（クリプトン-85）	14
1.3.5 大気中ヨウ素-131	15
1.3.6 大気中フッ素	15
1.3.7 環境試料中の放射性核種	15
(1) $\gamma$ 線放出核種	16
(2) トリチウム	16
(3) 炭素-14	17
(4) ストロンチウム-90	17
(5) ヨウ素-129	18
(6) プルトニウム同位体	18
1.4 六ヶ所再処理工場の操業による環境影響の評価	19
1.5 本研究の目的	22
参考文献	22
第2章 空間放射線量率連続測定における人工放射性核種の寄与弁別	25
2.1 序論	25
2.2 実験	26
(1) 装置	26
(2) 測定方法	26
2.3 結果と考察	26
(1) SCAを用いた自然放射線寄与の推定	26
(2) 六ヶ所再処理工場アクティブ試験の影響の弁別事例	32
参考文献	36
第3章 蛍光ガラス線量計(RPLD)の温度特性	37
3.1 序論	37
3.2 実験	37
(1) 装置	37
(2) 試験方法	37
a. 照射試験	37
b. 環境における測定	38

3.3 結果と考察	39
(1) 照射試験	39
(2) 環境における測定	47
参考文献	51
第4章 大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の起源の推定	53
4.1 序論	53
4.2 実験	53
(1) 装置	54
(2) 測定方法	54
a. ダストモニタによる全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能	54
b. 大気浮遊じん中 $^{210}\text{Pb}$ 及び $^{210}\text{Po}$	54
c. 流跡線解析	56
4.3 結果と考察	56
(1) 全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能測定値への寄与核種	56
(2) 全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の季節変動	58
(3) 全 $\alpha$ 放射能濃度への森林火災の影響	60
参考文献	67
第5章 環境中トリチウム濃度の変動要因	69
5.1 序論	69
5.2 実験	70
(1) 調査地点	70
a. 大気及び降水中トリチウム	70
b. 湖沼水及び河川水中トリチウム	70
(2) 試料採取方法	73
a. 大気及び降水中トリチウム	73
b. 湖沼水及び河川水中トリチウム	73
(3) 装置	75
(4) 測定方法	75
5.3 結果と考察	75
(1) 大気及び降水中トリチウム	75
(2) 湖沼水及び河川水中トリチウム	82
参考文献	90
第6章 結論	91
謝 辞	95

# 第1章 緒言

## 1.1 我が国の原子力政策

我が国において、原子力発電は、2005年6月末現在53基の商業用原子炉施設が稼働し、発電設備容量の合計が約470万キロワットに達するなど、年間発電電力量が国内総発電電力量の約3分の1を占める基幹電源であり、長期にわたるエネルギーの安定供給と地球温暖化対策に貢献する有力な手段として期待されている。2005年10月に原子力委員会により策定された「原子力政策大綱」<sup>1)</sup>においては、2030年以後も総発電電力量の30～40%程度という現在の水準程度か、それ以上の供給割合を原子力発電が担うことを目指すことが適切とされている。

一方、核燃料サイクルは、二つの活動に大別される。その第1は、天然ウランの確保からウラン濃縮、核燃料の加工など原子炉に装荷する核燃料を供給する活動であり、その第2は使用済燃料再処理、混合酸化物(MOX)燃料の加工、使用済燃料の中間貯蔵、放射性廃棄物の処理・処分等の活動、すなわち使用済燃料から不要物を廃棄物として分離・処分するとともに有用資源を回収し再び燃料として利用する活動である。我が国では、原子力発電の供給安定性の一層の向上を図るため、使用済燃料を再処理し、回収されるプルトニウム、ウラン等を有効利用する核燃料サイクルの確立を国の基本方針としてきている。

## 1.2 青森県における原子力施設

このような国策の下、青森県では、六ヶ所村に、我が国初の核燃料サイクル施設となる日本原燃株式会社のウラン濃縮工場、低レベル放射性廃棄物埋設センター、高レベル放射性廃棄物貯蔵管理センター及び再処理工場が、東通村に、東北電力株式会社の東通原子力発電所が建設されている。また、このほかに大間原子力発電所、使用済燃料中間貯蔵施設、MOX燃料加工施設などの建設が計画されている。

再処理工場は、原子力発電所で使用した核燃料を一定期間冷却し、せん断・溶解した後溶媒抽出によりウラン(U)及びプルトニウム(Pu)を取り出す施設であり、現在大型の商業用施設が稼働しているのは、イギリス及びフランスのみである。我が国では、茨城県東海村において東海再処理工場が1977年から操業を開始しており、これまでに1000トン・ウラン(t・U)超の使用済燃料の再処理を行っている。再処理工場は、その運転形態から、平常運転時における放射性物質の放出量が原子力発電所などに比較して大きく、かつ放出され

る放射性物質として長半減期核種が支配的であるため、環境影響の観点から最も重要な施設と位置づけられる。

六ヶ所再処理工場は、年間 800 t・U の使用済燃料の処理能力を持つ、我が国初の商業用大型再処理施設である。施設の仕様の概要は表 1-1 に示すとおりであり<sup>2)・4)</sup>、六ヶ所再処理工場は東海再処理工場と比較して、使用済燃料の年間処理量が約 4 倍、取り扱う使用済燃料の燃焼度も大きい。このため、主な放射性核種の安全審査における推定年間放出量は、表 1-2 に示すように、六ヶ所再処理工場の方が多くの核種で東海再処理工場を上回っている<sup>3)・4)</sup>。

### 1.3 原子燃料サイクル施設に係る環境放射線モニタリング

青森県は、六ヶ所再処理工場を含む原子燃料サイクル施設周辺地域において、住民等の健康と安全を守るため、1989 年 4 月から環境放射線等に係るモニタリング（以下、「モニタリング」という。）を実施している。原子力安全委員会による「環境放射線モニタリングに関する指針」<sup>5)</sup>では、モニタリングの基本目標は、環境における原子力施設に起因する放射性物質又は放射線による周辺住民等の線量が、年線量限度（1mSv（ミリシーベルト））を十分に下回っていることを確認することであり、具体的に次の 4 項目に要約されている。

- ① 周辺住民等の線量を推定、評価すること
- ② 環境における放射性物質の蓄積状況を把握すること
- ③ 原子力施設からの予期しない放射性物質又は放射線の放出による周辺環境への影響の評価に資すること
- ④ 異常事態発生の通報があった場合に、平常時のモニタリングを強化するとともに、緊急時モニタリングの準備を開始できるように体制を整えること

青森県は、この考え方に則り、1989 年 3 月に「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」を策定した。2006 年度における計画の内容を表 1-3～1-5-2 に、調査地点を図 1-1 及び 1-2 に示す<sup>6)</sup>。モニタリング項目は、空間放射線の測定と環境試料中放射性物質及びフッ素の測定に大別される。

表 1-1 六ヶ所再処理工場と東海再処理工場の仕様の概要

項目		六ヶ所再処理工場	東海再処理工場
使用済燃料	初期濃縮度	最大 5%	最大 4%
	燃焼度 (平均)	45000 MWd(t・U) <sup>-1</sup>	28000 MWd(t・U) <sup>-1</sup>
	燃焼度 (最大)	55000 MWd(t・U) <sup>-1</sup>	35000 MWd(t・U) <sup>-1</sup>
	冷却期間	5 年以上	180 日以上
最大処理量	年間	800 t・U	210 t・U
	1 日	4.8 t・U	0.7 t・U
処理方法		PUREX 法 (Pu and U Recovery by EXtraction)	PUREX 法 (Pu and U Recovery by EXtraction)

表 1-2 主な放射性核種の安全審査における推定年間放出量

[気体廃棄物]

六ヶ所再処理工場		東海再処理工場	
核種	放出量 (Bq/年)	核種	放出量 (Bq/年)
$^3\text{H}$	$1.9 \times 10^{15}$	$^3\text{H}$	$5.6 \times 10^{14}$
$^{14}\text{C}$	$5.2 \times 10^{13}$	$^{14}\text{C}$	$5.1 \times 10^{12}$
$^{85}\text{Kr}$	$3.3 \times 10^{17}$	$^{85}\text{Kr}$	$8.9 \times 10^{16}$
$^{129}\text{I}$	$1.2 \times 10^{10}$	$^{129}\text{I}$	$1.7 \times 10^9$
$^{131}\text{I}$	$1.7 \times 10^{10}$	$^{131}\text{I}$	$1.6 \times 10^{10}$
その他ヨウ素	$1.7 \times 10^{12}$		
その他希ガス	$1.9 \times 10^{14}$	その他 F.P.	$1.3 \times 10^{11}$
その他( $\beta, \gamma$ )	$9.6 \times 10^{10}$		
その他( $\alpha$ )	$3.3 \times 10^8$	Pu ( $\alpha$ )	$8.1 \times 10^8$

[液体廃棄物]

六ヶ所再処理工場		東海再処理工場	
核種	放出量 (Bq/年)	核種	放出量 (Bq/年)
$^3\text{H}$	$1.8 \times 10^{16}$	$^3\text{H}$	$1.9 \times 10^{17}$
$^{129}\text{I}$	$4.3 \times 10^{10}$	$^{129}\text{I}$	$2.7 \times 10^{10}$
$^{131}\text{I}$	$1.7 \times 10^{11}$	$^{131}\text{I}$	$1.2 \times 10^{11}$
その他核種 ( $\alpha$ 線を放出しない核種)	$2.1 \times 10^{11}$	$^{89}\text{Sr}$	$1.6 \times 10^{10}$
		$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	$3.2 \times 10^{10}$
		$^{95}\text{Zr}$	$1.4 \times 10^{10}$
		$^{95}\text{Nb}$	$2.7 \times 10^{10}$
		$^{103}\text{Ru}$	$6.4 \times 10^{10}$
		$^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$	$5.1 \times 10^{11}$
		$^{134}\text{Cs}$	$6.0 \times 10^{10}$
		$^{137}\text{Cs}$	$5.5 \times 10^{10}$
		$^{141}\text{Ce}$	$5.9 \times 10^9$
		$^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$	$1.2 \times 10^{11}$
その他核種 ( $\alpha$ 線を放出する核種)	$3.8 \times 10^9$	Pu ( $\alpha$ )	$2.3 \times 10^9$

表 1-3 空間放射線の測定項目

測定項目		測定頻度	地点数		
			区分	青森県	事業者
空間放射線 量率	モニタリングステーション	連続	施設周辺地域	5	3
			比較対照(青森市)	1	-
	モニタリングポスト	連続	施設周辺地域	6	-
	モニタリングカー	1回/3箇月	施設周辺地域	23	-
比較対照(青森市)			1	-	
RPLDによる積算線量		3箇月 積算	施設周辺地域	23	13
			比較対照(青森市)	1	-

表 1-4 環境試料中の放射性物質及びフッ素連続測定項目

試料の種類		測定頻度	地点							
			青森県				事業者			
			全α・全β放射能	β放射能	ヨウ素・ <sup>131</sup> I	フッ素	全α・全β放射能	β放射能	ヨウ素・ <sup>131</sup> I	フッ素
施設周辺地域	大気浮遊じん	1回 / 週	5	-	-	-	3	-	-	-
	大気 (気体状)	連続	-	5	-	-	-	3	-	-
			-	-	-	1	-	-	-	3
大気	1回 / 週	-	-	5	-	-	-	-	3	-
比較対象市(照)	大気浮遊じん	1回 / 週	1	-	-	-	-	-	-	-
	大気 (気体状)	連続	-	1	-	-	-	-	-	-
			-	-	-	1	-	-	-	-
大気	1回 / 週	-	-	1	-	-	-	-	-	-

表 1-5-1 環境試料中の放射性核種及びフッ素測定項目（青森県）

試料の種類		青 森 県											
		地点数	検 体 数										
			γ線放出核種	トリチウム	炭素 14	ストロンチウム 90	ヨウ素 129	プルトニウム	アメリカシウム 241	キユリウム 244	ウラン	フッ素	
陸上試料	大気浮遊じん	5	20	-	-	20	-	20	-	-	4	-	
	大気(水蒸気状)	2	-	24	-	-	-	-	-	-	-	-	
	大気(粒子状・気体状)	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	4	
	雨水	1	-	12	-	-	-	-	-	-	-	-	
	降下物	1	12	-	-	1	-	1	-	-	1	-	
	河川水	2	2	2	-	-	-	-	-	-	-	2	
	湖沼水	3	8	8	-	4	-	-	-	-	-	6	
	水道水	1	4	4	-	4	-	-	-	-	-	-	
	井戸水	1	4	4	-	4	-	-	-	-	-	-	
	河底土	2	2	-	-	-	-	-	-	-	-	2	
	湖底土	3	3	-	-	3	-	3	3	3	2	2	
	表土	3	3	-	-	3	3	3	3	3	3	-	
	牛乳(原乳)	4	14	-	-	14	-	-	-	-	6	6	
	精米	3	3	-	3	3	-	3	-	-	2	1	
	野菜	ハクサイ	2	2	-	2	2	-	2	-	-	1	-
		キャベツ											
		ダイコン	1	1	-	1	1	-	1	-	-	1	-
		かぼ	1	1	-	1	1	-	1	-	-	-	-
	牧草	2	4	-	-	4	-	4	-	-	4	2	
	淡水産食品	ワカサギ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
シジミ		1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-	
指標生物	松葉	1	2	-	-	-	-	-	-	-	2	-	
海洋試料	海水	3	6	6	-	6	-	6	-	-	-	-	
	海底土	3	3	-	-	3	-	3	3	3	-	-	
	海産食品	ヒラメ	1	1	1	-	1	-	1	-	-	-	-
		ホタテ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
		コンブ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
	指標生物	チガイソ	1	2	-	-	2	-	2	-	-	-	-
		ムラサキイガイ	1	2	-	-	2	-	2	-	-	-	-
比較対照(青森市)	大気浮遊じん	1	4	-	-	4	-	4	-	-	4	-	
	大気(水蒸気状)	1	-	12	-	-	-	-	-	-	-	-	
	大気(粒子状・気体状)	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	4	
	表土	1	1	-	-	1	1	1	1	1	1	-	
	精米	1	-	-	1	-	-	-	-	-	-	-	
	指標生物	1	2	-	-	-	-	-	-	-	2	-	
計		58	110	73	8	87	4	61	10	10	33	29	
425													

表 1-5-2 環境試料中の放射性核種及びフッ素測定項目（事業者）

試料の種類		事業者											
		地点数	検 体 数										
			γ線放出核種	トリチウム	炭素14	ストロンチウム90	ヨウ素129	プルトニウム	アメリカシウム241	キュリウム244	ウラン	フッ素	
陸上試料	大気浮遊じん	3	12	-	-	12	-	12	-	-	12	-	
	大気(水蒸気状)	3	-	36	-	-	-	-	-	-	-	-	
	大気(粒子状・気体状)	2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	8	
	河川水	2	2	2	-	2	-	2	-	-	2	2	
	湖沼水	2	8	8	-	8	-	8	-	-	8	8	
	水道水	4	16	16	-	16	-	16	-	-	-	-	
	井戸水	2	8	8	-	8	-	-	-	-	-	-	
	河底土	2	2	-	-	1	-	2	-	-	2	2	
	湖底土	1	1	-	-	1	-	1	1	1	1	1	
	表土	2	2	-	-	2	2	2	2	2	2	2	
	牛乳(原乳)	4	14	-	-	14	-	-	-	-	6	6	
	精米	3	3	-	3	3	-	3	-	-	2	2	
	野菜	ハクサイ	1	1	-	1	1	-	1	-	-	1	1
		ナガイモ パレ/シヨ	2	2	-	2	2	-	2	-	-	2	2
	牧草	4	8	-	-	8	-	-	-	-	4	4	
	デントコーン	1	1	-	-	1	-	-	-	-	-	-	
	淡水産食品	ワカサギ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	1	1
	海洋試料	海水	3	12	12	-	12	-	12	-	-	-	-
		海底土	1	1	-	-	1	-	1	1	1	-	-
海産食品		ヒラメ	1	1	1	-	1	-	1	-	-	-	-
		イカ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
		アワビ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
		ヒラツメガニ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
		ウニ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-
コンブ	1	1	-	-	1	-	1	-	-	-	-		
計	49	100	83	6	99	2	69	4	4	43	39		
449													

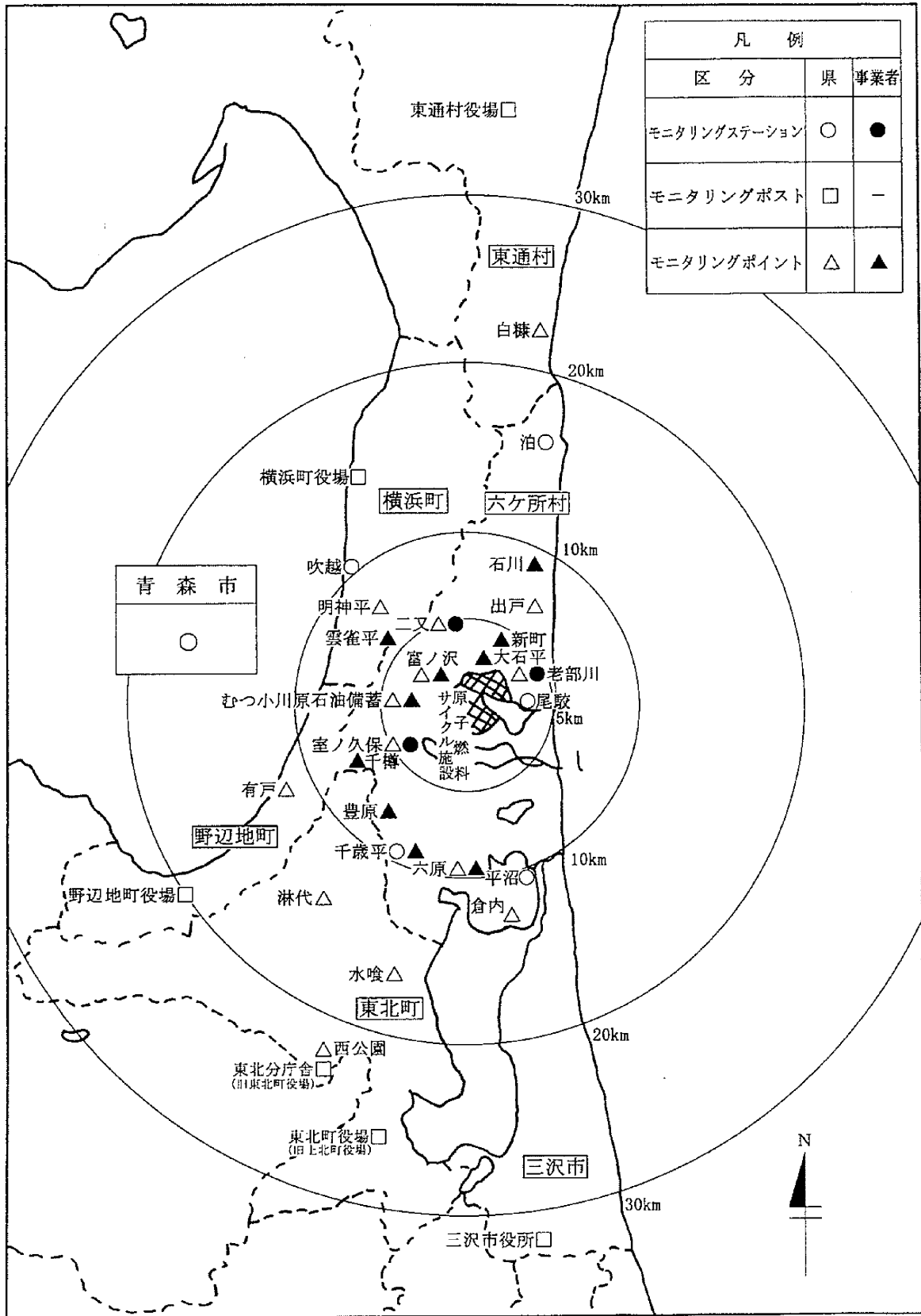


図 1-1 空間放射線測定地点

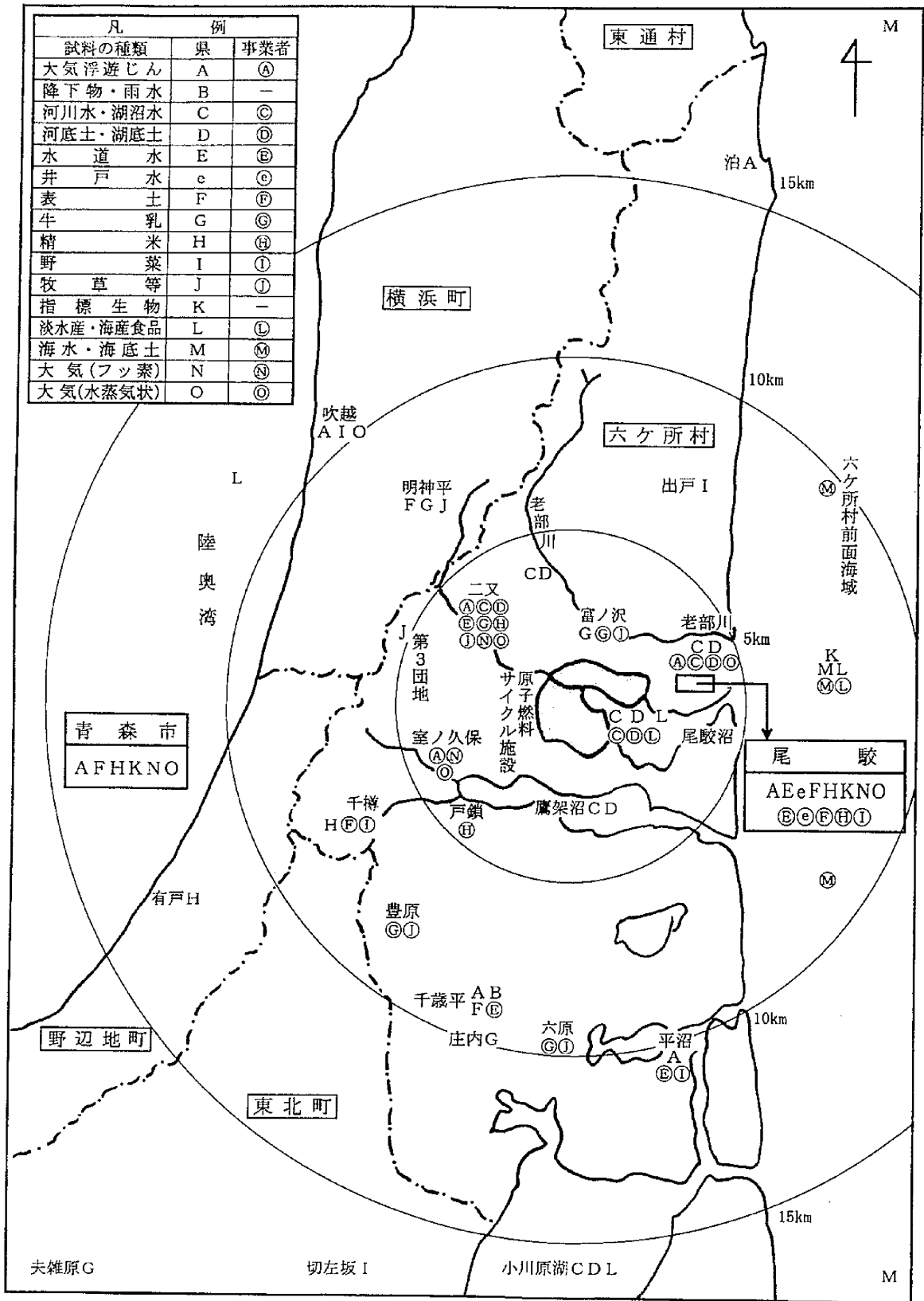


図 1-2 環境試料の採取地点

### 1.3.1 空間放射線量率

空間放射線は、人が外部から受ける放射線で多くの場合  $\gamma$  線であり、測定項目としては、通常 1 時間当たりの線量で表される線量率と 3 箇月間の合計線量で表される積算線量に分けられる。空間放射線量率の測定は、感度が高く、測定した  $\gamma$  線のエネルギー情報が得られる NaI(Tl)シンチレーション検出器と、主として緊急時用として高レンジまでの測定が可能な電離箱検出器を併用して行なっている。測定している物理量は、空気吸収線量率（単位時間当たり空気 1kg に吸収されるエネルギーの量）であり、単位 Gy (グレイ) を用いて、通常は  $\text{nGy h}^{-1}$  で表される<sup>7)</sup>。

空間放射線量率の測定は、6 局のモニタリングステーション及び 6 局のモニタリングポストで実施している。モニタリングステーションでは、空間放射線量率のほか大気や大気浮遊じん中の放射性核種の測定、気象の観測等を行なっており、モニタリングポストでは空間放射線量率の測定のみ行なっている。これらの測定データは、2 分ごとに光通信を利用したテレメータシステムにより青森県原子力センターで収集しており、ほぼリアルタイムで測定地点の放射線レベルを知ることができる。2 分ごとに収集したデータは 10 分間の平均値（10 分値）として、施設からの影響の監視やインターネット等による一般への公開に用いるが、正規のデータはこの 10 分値 6 個を平均して求めた 1 時間値としており、測定結果の報告や解析・評価に用いている。

通常環境において、空間放射線量率に寄与しているのは、大地や建造物からの放射線、宇宙線及び大気中の放射性物質からの放射線である。このうち、大地や建造物からの放射線は、ほとんどが自然放射能である U 系列核種、トリウム(Th)系列核種及びカリウム-40 ( $^{40}\text{K}$ ) が線源となっており、地質の違いなどにより、その場所の放射線レベルは異なる<sup>8)</sup>。宇宙線については、高度による差異や太陽周期による変動等があるが、同一地点における測定ではほぼ一定と考えてよい。さらに、NaI(Tl)シンチレーション検出器による測定では、測定エネルギー範囲を 50keV $\sim$ 3MeV としており、高エネルギー成分をカットしているため、測定値に対する宇宙線の寄与は小さい。大気中の放射性物質は、そのほとんどが大地などから散逸するラドン( $^{222}\text{Rn}$ ,  $t_{1/2}=3.82$  d) 及びトロン( $^{220}\text{Rn}$ ,  $t_{1/2}=55.6$  s) とその壊変生成物である。特に  $^{222}\text{Rn}$  については、比較的半減期が長いことから大気中に広く拡散しており、その壊変生成物が降雨や降雪とともに地上へ落下することにより、空間放射線量率を上昇させる効果はよく知られている<sup>9)</sup>。冬季には積雪により大地からの放射線が遮へいされるため、積雪の量に応じて空間放射線量率が低下する現象がみられている<sup>10)</sup>。

### 1.3.2 積算線量

積算線量の測定は、1989年度から2004年度までは熱ルミネセンス線量計(TLD)により、2005年度以降は蛍光ガラス線量計(RPLD)により実施している。我が国で用いられているTLDの多くはCaSO<sub>4</sub>に微量のTmを添加した結晶をガラス管に封入したもので、放射線に照射されるとそのエネルギーの一部を結晶格子に蓄える性質を持つ。照射された物質を加熱すると、蓄えられたエネルギーの一部が光(熱ルミネセンス)として放出され、その量は照射された放射線量に比例することから、積算型の線量計として放射線防護や環境放射線モニタリングにおいて広く用いられてきた。ただし、TLDには、1回の測定で熱ルミネセンスが消失してしまう欠点や、時間経過に伴い熱ルミネセンス量が低下する現象(フェーディング)があり、特にフェーディングは高温になるとその効果が增大することから、環境における夏季の測定値に負の誤差を与える要因となっている<sup>11)</sup>。

一方RPLDは、放射線を照射された物質が紫外線を当てると発光する現象(ラジオフォトルミネセンス)を利用した線量計で、銀イオンを添加したリン酸塩ガラスがその主要成分となっている<sup>12)</sup>。RPLDには、繰り返し測定が可能である、フェーディングがほとんどみられないなどの長所があり、近年、低線領域における測定精度が向上したことから、環境放射線モニタリングにおける積算線量計として、TLDに取って代わりつつある。ただし、RPLDのラジオフォトルミネセンスは、放射線照射後測定までの時間経過に伴って強度を増し、後に一定となるが、その速度は低温で遅くなるという特性があり、環境放射線モニタリングにおいては、冬季の測定値が低めになる可能性が指摘されている<sup>13)</sup>。

### 1.3.3 大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能

大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の連続測定は、施設から環境への影響を速やかに検知するために重要であり、モニタリングステーションにダストモニタを設置して行なっている。一般の環境における大気浮遊じん中の放射性核種としては、<sup>222</sup>Rn及び<sup>220</sup>Rnの壊変生成物が支配的である。図1-3にこれらの壊変系列を示す。ろ紙に捕集された<sup>222</sup>Rnの壊変生成物は、最初のポロニウム-218(<sup>218</sup>Po)から寿命が長い鉛-210(<sup>210</sup>Pb)まで約37minの半減期で減衰し、<sup>220</sup>Rnの壊変生成物は、安定同位体の鉛-208(<sup>208</sup>Pb)まで約11hの半減期で減衰する。

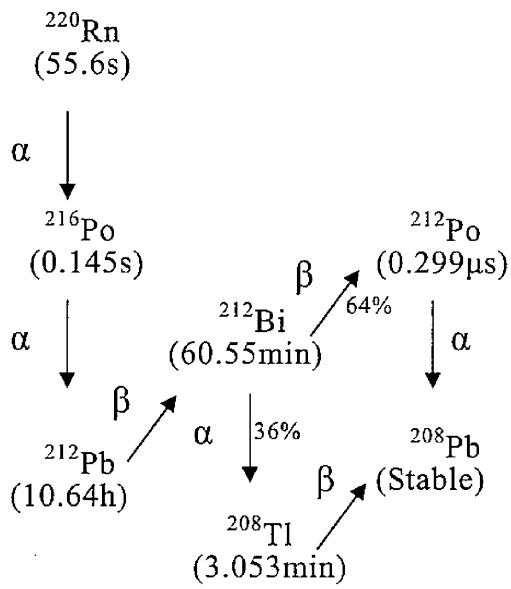
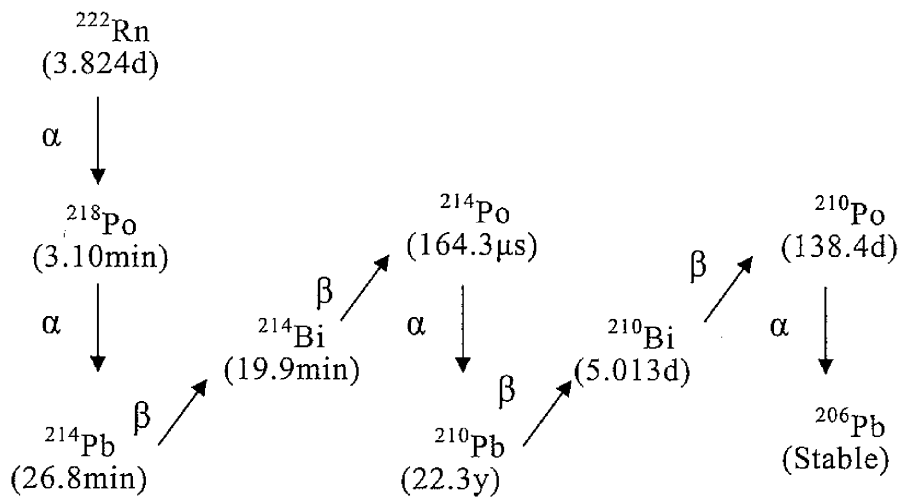


図 1-3  $^{222}\text{Rn}$  及び  $^{220}\text{Rn}$  の壊変系列

これらの核種の大気中濃度は気象条件等により大きく変動し、施設起因の放射性核種を検知する上で妨害となるため、青森県のモニタリングにおいては、168h (1週間)集じんした試料について 72h 経過後の測定値を用いて濃度を算出している。この条件では、 $^{222}\text{Rn}$  壊変生成物の  $^{210}\text{Pb}$  以降の核種のみが残っており、集じん直後と比較して放射能は 1000 分の 1 程度まで減衰している。 $^{210}\text{Pb}$  から放出される  $\beta$  線のエネルギーが低くダストモニタでは測定されないため、その壊変生成物ビスマス-210 ( $^{214}\text{Bi}$ )が全  $\beta$  放射能に、その次の壊変生成物ポロニウム-210 ( $^{210}\text{Po}$ )が全  $\alpha$  放射能に寄与する核種となる。

#### 1.3.4 大気中気体状 $\beta$ 放射能 (クリプトン-85)

大気中気体状  $\beta$  放射能の測定は、再処理工場から最も多く放出される放射性核種であるクリプトン-85 ( $^{85}\text{Kr}$ )を目的核種とし、モニタリングステーションにおいて連続して行っている。 $^{85}\text{Kr}$  は、核分裂生成物として生成される放射性希ガスの中でも 10.76 y と比較的長い半減期を持っており、現在ではほとんどが再処理工場から放出されている。この核種は反応性が低く、かつ半減期が長いことから、地球上に広く分布しており、放射性壊変による減少速度より人為的な放出速度が大きいいため、大気中に徐々に蓄積されている。主要な放出源である再処理工場が北半球に多いため、南半球より北半球における大気中濃度が高く、1999 年の北半球中緯度地域における  $^{85}\text{Kr}$  濃度は約  $1.3 \text{ Bq m}^{-3}$  であり、 $30 \text{ mBq m}^{-3} \text{ y}^{-1}$  の速度で上昇しているとされている。我が国では、気象研究所がドイツで開発されたガスクロマトグラフィ-GM 計数法(BfS-IAR 法)を用い、つくば市において 1995 年から 2006 年まで継続して大気中濃度の測定を行っており、我が国のバックグラウンドレベルや東海再処理工場からの影響について報告している<sup>14)</sup>。

一方、再処理工場の周辺地域においては、このような微量分析法を用いなくても測定が可能な場合がある。 $^{85}\text{Kr}$  は  $\beta$  線放出核種であり、かつ 0.43% の放出割合で  $\gamma$  線を放出する。測定は通常地上で行うため、ガスが地上まで拡散してきている場合は  $\beta$  線計測による検出感度が高いが、ガスが上空に分布している場合は飛程の長い  $\gamma$  線計測による方が有利である。このため、 $^{85}\text{Kr}$  の分布・挙動を把握するには、 $\beta$  線及び  $\gamma$  線それぞれの測定器を併用するのが効果的である。フランスのラ・アーク再処理工場周辺において、 $\beta$  線を比例計数管、 $\gamma$  線を NaI(Tl)シンチレーション検出器及び電離箱検出器で測定することにより放射性プルームの広がり把握し、ガウス-プルームモデルの検証を行った報告がある<sup>15)</sup>。青森県のモニタリングにおいては、モニタリングステーションに、 $\beta$  線を測定するプラスチック

クシンチレーション検出器を用いたガスモニタを設置しており、前述の空間放射線測定器と併用して  $^{85}\text{Kr}$  の監視を行っている。

### 1.3.5 大気中ヨウ素-131

大気中ガス状のヨウ素-131 ( $^{131}\text{I}$ )については、ダストモニタで集じん後の大気を活性炭カートリッジに通すことにより捕集している。約1週間ごとに活性炭カートリッジを回収し、Ge半導体検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリにより $^{131}\text{I}$ を定量する。 $^{131}\text{I}$ は、代表的な核分裂生成物の1つであり、過去の大気圏内核実験やチェルノブイリ原子力発電所の事故などで我が国にも降下したが、半減期が8.02 dと短いため現在の環境では検出されない。六ヶ所再処理工場では、使用済燃料の冷却期間が5 yであり、原子炉で生成した $^{131}\text{I}$ は減衰しているが、燃焼度が高い燃料を取り扱うため含まれる超ウラン元素の量が比較的多く、その自発核分裂により燃料中で $^{131}\text{I}$ が生成すると評価されている。

### 1.3.6 大気中フッ素

大気中フッ素については、一部のモニタリングステーションに設置したフッ素化合物モニタにより連続して測定している。メンブランフィルタでろ過した大気を吸収液にバブリングし、イオン電極法によりフッ化物イオン濃度を測定する。ウラン濃縮工場に取り扱う六フッ化ウラン( $\text{UF}_6$ )は、大気中の水分と反応し、フッ化水素(HF)とフッ化ウラニル( $\text{UO}_2\text{F}_2$ )を生成するため、毒性の強い非放射性的フッ素についてモニタリングの対象としている。モニタの定量下限値は0.04 ppbと大気汚染防止法におけるフッ化水素等の排出基準に比較して十分低いが、これまでに測定値がこの値以上となった例はない。

### 1.3.7 環境試料中の放射性核種

環境試料中の放射性核種の測定は、施設周辺において採取した環境試料を青森県原子力センターに搬入し実施している。分析測定の前処理として、土試料は、105°Cで乾燥後2 mmのフルイを通し、必要に応じてモーターグラインダーにより微粉碎を行う。生物試料は、食品については可食部（通常、人が食べる部分）を取り出した後、105°Cで乾燥し、450°Cで24 h灰化して0.35 mmのフルイを通す。その後の分析測定は、目的核種ごとに、文部科学省の放射能測定法シリーズに準拠した方法により行う。

## (1) $\gamma$ 線放出核種

$\gamma$ 線を放出する放射性核種の測定は、Ge半導体検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリにより実施している<sup>16)</sup>。放射性核種から放出される $\gamma$ 線は単一のエネルギーを持っており、Ge半導体検出器の分解能が高いため、多核種同時定量が可能である。また、 $\gamma$ 線は透過力が高いため、測定試料による自己吸収等の補正を行うことにより、試料を一定の形状の容器に詰めることで正確な定量を行うことができる。代表的な $\gamma$ 線放出核種は、人工核種としては、半減期 30.04 y で現在の環境においても検出される核分裂生成物セシウム-137 ( $^{137}\text{Cs}$ )、中性子放射化生成物で原子炉の一次冷却水等に多くみられるコバルト-60 ( $^{60}\text{Co}$ )などがあり、天然核種としては、宇宙線と大気の相互作用で生成されるベリリウム-7 ( $^7\text{Be}$ )、太古から地球に存在する  $^{40}\text{K}$  などがある。

## (2) トリチウム

再処理工場からの放出量が多い核種のひとつであるトリチウム( $^3\text{H}$  又は T)は、半減期 12.35 y の水素の放射性同位体であり、最大エネルギーが 18.6 keV と低エネルギー $\beta$ 線のみを放出することから、定量には自己吸収が小さい液体シンチレーション測定法を用いている<sup>17)</sup>。環境中ではほとんどが水の形で存在するため、大気中の水蒸気や水道水、海水等を対象としてモニタリングを行なっている。地球環境に存在する  $^3\text{H}$  は主に、大気高層で窒素又は酸素と宇宙線との次のような核反応により生成する天然起源と、



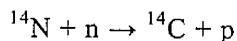
過去の大気圏内核実験（主に水爆実験）によりもたらされた人工起源がある<sup>18)</sup>。

天然起源の  $^3\text{H}$  については、自然界で生成と壊変が平衡状態にあり、その平衡存在量は  $1 \sim 1.3 \times 10^{18}$  Bq と評価されている。一方、核実験による放出量は天然存在量の 200 倍以上と見積られるが、大気圏内核実験が停止されて以来減少してきており、2004 年時点で  $2.4 \times 10^{19}$  Bq、天然存在量の 20 倍程度がほとんど海洋に保持された状態で残っていると推定されている。降水中の  $^3\text{H}$  のレベルは、1963 年の大気圏内核実験停止条約締結後は減少を続けたが、1990 年代にはその傾向が明確でなくなり、最近では核実験以前のレベルに戻ったとされている。これらに対し、原子力施設からの年間放出量は  $2 \times 10^{16}$  Bq と推定され、地球規模でみた場合の環境への寄与は小さいが、施設周辺地域においては、施設からの影響が認められている。

### (3) 炭素-14

炭素-14 ( $^{14}\text{C}$ )は、再処理工場からの気体廃棄物としての放出量が多く、光合成により植物体に取り込まれたものを人が摂取するため、被ばく評価上最も重要な核種のひとつであり、米及び野菜を対象としてモニタリングを実施している。半減期が 5730 y と長く、最大エネルギー 156 keV の  $\beta$  線のみを放出する。 $^{14}\text{C}$  は年代測定の目的で測定される場合が多く、測定法として近年は気体計数法、液体シンチレーション測定法及び加速器質量分析法が用いられるが、環境放射線モニタリングでは、 $^3\text{H}$  と同じ測定器を用いることができる液体シンチレーション測定法が採用されている<sup>19)</sup>。測定試料の調製には二酸化炭素を溶媒に吸収させる方法とベンゼンを合成する方法があるが、測定感度が良く測定試料の安定性も高いベンゼン合成法を用いるのが一般的である。この方法では、環境試料を燃焼させて二酸化炭素を発生させ、金属リチウムと反応させて炭化リチウムとした後、水と反応させて発生したアセチレンをクロム触媒によりベンゼンに合成する。

$^{14}\text{C}$  の主な起源は、 $^3\text{H}$  と同様に大気高層における宇宙線との核反応と大気圏内核実験であり、どちらの場合も主な生成機構は次式による窒素と中性子の反応である。



$^{14}\text{C}$  の自然平衡レベルは  $228 \text{ mBq gC}^{-1}$  であるが、大気圏内核実験により比放射能が増加し、1963 年には  $408 \text{ mBq gC}^{-1}$  と過去最大になった。その後、大気圏内核実験の停止により比放射能は指数関数的に減少し、1963 年から 1976 年の半減時間は 9.0 y、1976 年から 1984 年まではほぼ一定に推移し、1984 年から 2000 年までは半減時間 10.3 y と評価されている。1976 年から 1984 年の間の比放射能に減少がみられなかったのは、中国において大気圏内核実験が行われたためと考えられる。我が国では、1990 年に  $260 \text{ mBq gC}^{-1}$  であった比放射能が、2000 年には  $244 \text{ mBq gC}^{-1}$  となり、核実験前のレベルを約 7% 上回るレベルとなっている<sup>20)</sup>。

### (4) ストロンチウム-90

ストロンチウム-90 ( $^{90}\text{Sr}$ )は、前述の  $^{137}\text{Cs}$  と同様に核分裂生成物として代表的な核種であり、大気圏内核実験により我が国にも相当量が降下した。半減期が 28.74 y と比較的に長いため、現在の環境でも検出されている。降下した  $^{90}\text{Sr}$  は土壌に吸着保持されるが、Sr は Cs と比較して移動しやすい元素であるため、より深い層まで分布が確認されている。また、地下数 m 程度の浅井戸水や植物中の濃度が安定 Sr と同様の変動を示すなどの特徴がみら

れる。

$^{90}\text{Sr}$  は  $\beta$  線のみを放出する核種であり、 $\beta$  線は連続エネルギーとなることからスペクトロメトリによる定量が難しい。このため、 $^{90}\text{Sr}$  の定量は、炭酸塩沈殿、シュウ酸塩沈殿、陽イオン交換などの手法により  $^{90}\text{Sr}$  を放射化学的に単離した後、 $^{90}\text{Sr}$  から生成したイットリウム-90 ( $^{90}\text{Y}$ ) を水酸化鉄共沈分離し、低バックグラウンド GM ガスフローカウンタ等で  $\beta$  線を計数することにより行う<sup>21)</sup>。

#### (5) ヨウ素-129

ヨウ素-129 ( $^{129}\text{I}$ ) は、代表的な核分裂生成物であるヨウ素-131 ( $^{131}\text{I}$ ) とともに、放射線安全上重要な核種と位置づけられている。半減期が  $^{131}\text{I}$  は 8.02 d と短いのに対し、 $^{129}\text{I}$  は  $1.57 \times 10^7$  y と長いため地球環境における長期的な挙動を調査することが課題となっており、環境放射線モニタリングにおいては、環境における蓄積状況を把握するために表土を対象として調査を実施している。分析法としては、特殊な設備を必要としない放射化学分析法を用いている<sup>22)</sup>。しかしながら、 $^{129}\text{I}$  は環境における濃度が低く、放出する放射線エネルギーも低いため、現状のバックグラウンドレベルを把握するためには、中性子放射化分析法又は加速器質量分析法による必要がある。

$^{129}\text{I}$  は、自然界においては U の自発核分裂や大気高層における Xe と宇宙線との核反応により生成され、安定ヨウ素と同様の挙動を示すため、そのレベルは安定ヨウ素  $^{127}\text{I}$  に対する比として表されることが多い。1945 年以前の鉱物中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は  $10^{-12}$  のオーダーであったが、大気圏内核実験により相当量の  $^{129}\text{I}$  が環境中に放出され、アメリカやヨーロッパにおける調査では  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は  $10^{-8} \sim 10^{-6}$  のオーダーまで増加した<sup>23)</sup>。 $^{129}\text{I}$  は再処理工場から放出される核種でもあり、東海再処理工場周辺において採取した松葉、降水、表土及び海藻中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比が  $10^{-8}$  オーダーであったとの報告<sup>24)</sup>や、イギリスのセラフィールド及びフランスのラ・アーク再処理工場から液体廃棄物として放出された  $^{129}\text{I}$  を北大西洋における海洋トレーサーとして用いた例<sup>25)</sup>など多くの研究がある。

#### (6) プルトニウム同位体

超ウラン元素の代表的な核種であるプルトニウム(Pu)同位体は、原子炉において  $^{235}\text{U}$  又は  $^{238}\text{U}$  が中性子を取り込むことにより生成する。軽水炉による使用済燃料中に存在する主な核種は  $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$  及び  $^{241}\text{Pu}$  であり、初めの 3 核種は  $\alpha$  線放出核種、 $^{241}\text{Pu}$  が  $\beta$

線放出核種である。体内に取り込んだ場合の人への影響は $\alpha$ 線放出核種の方が大きいことなどから、青森県では $\alpha$ 線を放出するPu同位体を対象としてモニタリングを行っている。これらの核種から放出される $\alpha$ 線は単一のエネルギーを持つことからスペクトロメトリによる定量が可能であるが、測定に用いるSi半導体検出器の $\alpha$ 線分解能が比較的小さいため、陰イオン交換法などによりPuを放射化学分離した後に $\alpha$ 線スペクトロメトリを行う必要がある<sup>26)</sup>。このような場合でも、 $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ のエネルギーはそれぞれ5.16 MeV及び5.17 MeVと近接しているため、これらの核種の放射能は合算して定量される。

また、 $^{241}\text{Pu}$ は $\beta$ 線放出核種であるが壊変生成物のアメリシウム-241 ( $^{241}\text{Am}$ )は $\alpha$ 線放出核種であるため、モニタリング対象としている。キュリウム-244 ( $^{244}\text{Cm}$ )も $\alpha$ 線放出核種であり、核燃料の燃焼度が高くなると生成量が多くなるため、モニタリング対象としている。 $^{241}\text{Am}$ と $^{244}\text{Cm}$ は放射化学分離の際の挙動が類似しているため同時に分離され、 $\alpha$ 線スペクトロメトリでそれぞれ分別して定量する<sup>27)</sup>。

環境におけるPu同位体の起源は、ほとんどが大気圏内核実験であり、地球環境に広く分布している。また、 $^{238}\text{Pu}$ については、 $^{238}\text{Pu}$ を用いた原子力電池SNAP-9Aを搭載した人工衛星の1つが1964年にインド洋上空で消失し、 $^{238}\text{Pu}$ が大気中に放出されたことも寄与しているとの報告がある<sup>28)</sup>。再処理工場の周辺環境におけるPu同位体については、セラフィールドに近い西カンブリア地方において、潮間帯の砂を対象とした $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の調査結果が報告されており、核種濃度はセラフィールドからの距離とともに減少する傾向がみられている<sup>29)</sup>。

#### 1.4 六ヶ所再処理工場の操業による環境影響の評価

青森県の六ヶ所再処理工場は、現在、2008年2月の操業開始に向けて、アクティブ試験（使用済燃料を用いた総合試験）を実施している。同工場は、国内外の最良の技術を用いて、再処理に伴い発生する廃棄物をできる限り取り除く設計とされているが、その一部は排気又は排水とともに大気、海洋へ放出される。国の安全審査において、操業に伴い放出される放射性物質による施設周辺住民等が受ける線量は年間約0.022mSv（ミリシーベルト）と評価されており、国が定めている年線量限度の1mSvを十分下回るものである。この線量は、自然放射線による世界平均の線量2.4mSv<sup>30)</sup>の約1%程度と小さく、また、日本国内における自然放射線の地域差（県別平均の差）の最大0.4mSvに比較しても十分低いものの、放出される放射性物質は、環境放射線モニタリングにおいて施設寄与分として検出

表 1-6 再処理工場の操業に伴う環境モニタリング結果への影響（主なもの）

試料の種類等	核種	対象	単位	施設寄与分(増分)の予測値 <sup>*1</sup>	これまでの測定値 <sup>*2</sup>
積算線量	—	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	μGy/91日	2	74~125
		線量評価値	mSv/年	0.006	0.146~0.245
大気 (気体状β)	クリプトン-85 換算( <sup>85</sup> Kr)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	kBq/m <sup>3</sup>	ND (<2) <sup>*3</sup>	ND (<2)
		線量評価値	mSv/年	— <sup>*4</sup>	— <sup>*4</sup>
大気 (水蒸気状)	トリチウム ( <sup>3</sup> H)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	mBq/m <sup>3</sup>	1000	ND (<40)
		線量評価値	mSv/年	0.0002	NE (<0.00005) <sup>*5</sup>
精米	炭素-14 ( <sup>14</sup> C)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/kg 生	90	87~110
		線量評価値	mSv/年	0.006	0.0059~0.0068
葉菜	炭素-14 ( <sup>14</sup> C)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/kg 生	5	— <sup>*6</sup>
		線量評価値	mSv/年	0.0004	— <sup>*6</sup>
根菜・いも類	炭素-14 ( <sup>14</sup> C)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/kg 生	20	— <sup>*6</sup>
		線量評価値	mSv/年	0.0009	— <sup>*6</sup>
海水	トリチウム ( <sup>3</sup> H)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/ℓ	300	ND (<2)
		線量評価値	mSv/年	— <sup>*7</sup>	— <sup>*7</sup>
	プルトニウム (Pu)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	mBq/ℓ	0.05	ND (<0.02)
		線量評価値	mSv/年	— <sup>*7</sup>	— <sup>*7</sup>
海藻	プルトニウム (Pu)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/kg 生	0.02	ND(<0.002)~0.007
		線量評価値	mSv/年	0.00007	NE (<0.00005) <sup>*5</sup>
魚類	トリチウム ( <sup>3</sup> H)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/kg 生	300	ND (<2)
		線量評価値	mSv/年	0.0004	NE (<0.00005) <sup>*5</sup>
	プルトニウム (Pu)	モニタリング <sup>※</sup> 測定値	Bq/kg 生	0.005	ND (<0.002)
		線量評価値	mSv/年	0.00009	NE (<0.00005) <sup>*5</sup>

\*1：モニタリング測定値は、安全審査の被ばく経路における放射性物質の移行評価に基づく年間平均値。

線量評価値は、モニタリング測定値をもとに青森県の定めた方法（線量算出要領）により算出。

\*2：これまでの測定値の期間

積算線量：平成11年4月～平成16年3月

環境試料：平成元年4月～平成16年3月（ただし、精米の炭素-14は平成7年4月から、魚類のトリチウムは平成10年4月から開始）。

\*3：年間平均値として有意な増加が認められない場合でも、短期間では測定値に比較的大きな変動が予想されており、個々の測定値に施設寄与がみられる可能性がある。

\*4：クリプトン-85のβ線による線量は、現状、県の線量算出要領の対象外。施設寄与分の予測値（β線による実効線量）を日本原燃（株）の事業指定申請書に記載の方法で算出すると、0.0008 mSv/年となる。

\*5：NDは定量下限値未満を意味し、NEは評価を行うレベル未満であることを意味する。モニタリング測定値がND又は線量評価値が0.00005 mSv/年未満の場合NEと表示している。

\*6：平成17年度から調査を開始（アクティブ試験開始（予定）年度から実施することとしている項目）。

\*7：外部被ばくの対象外であり、内部被ばくにおいても人が直接摂取しないため、線量として算出しない測定項目。

表 1-7 再処理工場の操業に伴うクリプトン-85 による空間放射線量率への影響

測定項目	施設寄与分（増分とその頻度） の予測値 *1			これまでの測定値 *2		
	空間放射線量率 (nGy/h)	尾駁局 *3	10 以下	99.83 %	尾駁局	平均
10～40			0.16 %	最大		96
40 以上			0.01 %	最小		13

\*1：短期間の運転条件及び気象条件を想定した際の、空間放射線量率（ $\gamma$ 線による空気吸収線量率）の大きさ及びその頻度の試算値

\*2：これまでの測定値の期間は平成 13 年 4 月～平成 16 年 3 月

\*3：県及び事業者が設置しているモニタリングステーションのうち、気象条件等から、クリプトン-85 による線量率への寄与が最も大きいと考えられる尾駁局について試算した。

され得るレベルのものである。表 1-6 は、六ヶ所再処理工場がフル操業した場合の放出量から推定したモニタリング結果への影響について、主なものを取りまとめたものである<sup>31)</sup>。また、表 1-7 には、短期間の運転条件及び気象条件を想定した際の、<sup>85</sup>Kr の影響による空間放射線量率の変動について試算した結果を示す。

## 1.5 本研究の目的

このような施設から環境への影響を把握し、住民等の線量を現実的に評価するためには、モニタリング結果における施設寄与分を、環境のバックグラウンド放射線・放射性核種から弁別する必要がある。本研究の目的は、六ヶ所再処理工場操業前の環境放射線モニタリング結果を解析することにより、同工場に起因する放射線・放射性核種を弁別して評価する方法を確立することである。第 2 章では、NaI(Tl)シンチレーション検出器による空間放射線測定結果について、 $\gamma$ 線のエネルギー情報を用いて自然寄与分を差し引くことにより、人工寄与分を推定する方法について考察する。第 3 章では、空間放射線の積算線量の測定に用いられる RPLD の温度特性について、温度を変化させた照射試験及び環境における測定結果により検討する。第 4 章では、大気浮遊じん中全  $\alpha$  及び全  $\beta$  放射能の連続測定結果について、季節変動の要因と特異的な上昇事象について考察する。第 5 章では、環境における <sup>3</sup>H の分布と挙動について、地域特性を中心に考察する。

## 参 考 文 献

- 1) 原子力委員会: 原子力政策大綱, 平成 17 年 10 月 11 日
- 2) 日本原燃株式会社: 再処理事業指定申請書, 平成元年 3 月
- 3) 日本原燃株式会社: 再処理事業変更許可申請書, 平成 19 年 2 月
- 4) K.Shinohara: Studies on Assessment of Radiological Effects on the Regional Environment Due to the Operation of the Tokai Reprocessing Plant, Doctoral Thesis (2004)
- 5) 原子力安全委員会: 環境放射線モニタリングに関する指針, (平成元年 3 月) 平成 13 年 3 月一部改訂
- 6) 青森県: 原子力施設環境放射線調査報告書 (平成 18 年度報)
- 7) 文部科学省: 連続モニタによる環境  $\gamma$  線測定法 (平成 8 年改訂)
- 8) 藤高和信: 大地の放射線の背景, 保健物理, **21**, 295 - 308 (1986)
- 9) 辻本忠: 環境放射線の変動についてパターン集 (その 1・自然的要因), 放射線科学, **37**

(No.3), 81 - 83 (1994)

- 10) 藤元憲三: 大地からの  $\gamma$  線に対する雪の遮蔽効果, 保健物理, **21**, 3 - 8 (1986)
- 11) 文部科学省: 熱ルミネセンス線量計を用いた環境  $\gamma$  線量測定法 (平成 2 年改訂)
- 12) 文部科学省: 蛍光ガラス線量計を用いた環境  $\gamma$  線量測定法 (平成 14 年)
- 13) K. Yamazaki, S. Tonouchi and T. Hashimoto: Cumulative dose measurements using radiophotoluminescence glass dosimeter in cold areas, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **255**, 565 - 569 (2003)
- 14) Y. Igarashi, M. Aoyama, K. Nemoto, K. Hirose, T. Miyao, K. Fushimi, M. Suzuki, S. Yasui, Y. Asai, I. Aoki, K. Fujii, S. Yamamoto, H. Sartorius and W. Weiss:  $^{85}\text{Kr}$  measurement system for continuous monitoring at the Meteorological Research Institute, Japan, *J. Environ. Monit.*, **3**, 688 - 606 (2001)
- 15) R. Gurriaran, D. Maro, P. Bouisset, D. Hebert, G. Leclerc, D. Mekhlouche, M. Rozet and L. Solier: In situ metrology of  $^{85}\text{Kr}$  plumes released by the COGEMA La Hague nuclear reprocessing plant, *J. Environ. Radioactivity*, **72**, 137 - 144 (2004)
- 16) 文部科学省: ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー (平成 4 年改訂)
- 17) 文部科学省: トリチウム分析法 (平成 14 年改訂)
- 18) 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)
- 19) 文部科学省: 放射性炭素分析法 (平成 5 年)
- 20) 府馬正一、井上義和、宮本霧子、武田 洋、岩倉哲男、新井清彦、樫田義彦、一政祐輔: 1990 年代の日本における  $^{14}\text{C}$  の環境バックグラウンドレベル, *RADIOISOTOPES*, **51**, 381 - 391 (2002)
- 21) 文部科学省: 放射性ストロンチウム分析法 (平成 15 年改訂)
- 22) 文部科学省: ヨウ素-129 分析法 (平成 8 年)
- 23) J. Handl, E. Oliver, D. Jakob, K. J. Johanson and P. Schuller: Biospheric  $^{129}\text{I}$  concentrations in the pre-nuclear and nuclear age., *Health Physics*, **65**, 265 - 271 (1993)
- 24) Y. Muramatsu, S. Yoshida, U. Fern, S. Amachi and Y. Ohmomo: Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment, *J. Environ. Radioactivity*, **74**, 221 - 232 (2004)

- 25) G. M. Raisbeck, F. Yiou, Z. Q. Zhou and L. R. Kilius:  $^{129}\text{I}$  from nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer, *J. Marine Systems*, **6**, 561 - 570 (1995)
- 26) 文部科学省: プルトニウム分析法 (平成 2 年改訂)
- 27) 文部科学省: アメリシウム分析法 (平成 2 年)
- 28) 佐伯誠道編: 環境放射能, p101 - 102, ソフトサイエンス社 (1984)
- 29) J. D. Eakins, A. Morgan, G. M. N. Baston, F. W. Pratley, L. P. Strange and P. J. Burton: Measurements of  $\alpha$ -emitting plutonium and americium in the intertidal sands of West Cumbria, UK, *J. Environ. Radioactivity*, **11**, 37 - 54 (1990)
- 30) (独)放射線医学総合研究所監訳: 放射線の線源と影響 (原子放射線の影響に関する国連科学委員会の, 総会に対する 2000 年報告書), 実業公報社 (2002)
- 31) 青森県: 六ヶ所再処理工場の操業と線量評価について, 原子力施設環境放射線調査報告書 (平成 17 年度報), 269 - 277 (2006)

## 第2章 空間放射線量率連続測定における人工放射性核種の寄与弁別

### 2.1 序論

空間放射線量率に寄与する放射線は、通常ほとんどが自然放射線であり、そのレベルは、降雨・降雪、積雪などの気象条件により大きく変動する。このため、空間放射線量率の測定値から、原子力施設の寄与を弁別するためには、自然放射線レベルの変動を推定し、測定値から差し引くことが必要となる。標準的な測定器として広く用いられている NaI(Tl)シンチレーション検出器は、入射した $\gamma$ 線のエネルギー情報が得られるため、この目的のために有用である。

$\gamma$ 線エネルギースペクトルの解析法として、ピーリング・オフ法<sup>1)</sup>、レスポンスマトリックス法<sup>2)</sup>などがあり、U系列、Th系列及び $^{40}\text{K}$ からの $\gamma$ 線による空間放射線量率への寄与割合について求めることができる。宮城県原子力センターでは、空間 $\gamma$ 線スペクトルをレスポンスマトリックス法で処理して得られる線量率から、天然放射性核種起因の推定バックグラウンド線量率を差し引いて「指標線量率」を求めることにより人工放射線寄与を評価する方法を開発し、環境放射線モニタリングに活用している<sup>3)</sup>。しかし、この方法は、計算に時間がかかるとともに、環境における散乱線の影響を補正するために測定地点固有の係数を求める必要があり、積雪により散乱線の状況が変化するような場合は、推定バックグラウンド線量率の誤差が大きくなる。

空間放射線量率は、主に降雨・降雪により大気中に浮遊している $^{222}\text{Rn}$ の壊変生成物が地上へ落下することにより上昇することが知られており、主な寄与核種は、 $^{214}\text{Pb}$ 及び $^{214}\text{Bi}$ である。空間放射線量率と $^{214}\text{Bi}$ から放出される $\gamma$ 線の計数率は晴天時及び降雨時において同様の変動パターンを示し、正の相関関係をもつことが確認されている<sup>4)</sup>。このため、 $^{214}\text{Bi}$ を空間放射線量率上昇の指標とすることができる。また、空間放射線量率は、積雪により大地からの放射線が遮へいされることにより低下するため、降雨・降雪による空間放射線量率への寄与がほとんどなく、土壌に含まれるTh系列の天然放射性核種である $^{208}\text{Tl}$ を空間放射線量率低下の指標とすることが可能である。そこで、シングルチャネルアナライザ(SCA)により測定したこれらの核種の $\gamma$ 線計数率と空間放射線量率の関係を重回帰分析により求め、これを自然放射線による空間放射線量率の推定に用いる方法を開発した<sup>5)</sup>。本章では、この推定方法について考察するとともに、再処理工場からの影響を弁別した例について記述する。

## 2.2 実験

### (1) 装置

空間放射線量率の測定には、アロカ(株)製の空間放射線測定装置(青森県特注品)を用いた。基本的な仕様は、文部科学省の測定マニュアル<sup>6)</sup>に準じた。この装置は検出部と測定部に分かれており、測定部はモニタリングステーションの局舎内に、検出部は屋外に設置した。検出器は3"φ×3" NaI(Tl)シンチレーション式で、検出器実効中心の地面からの高さは1.8 mである。測定しているγ線のエネルギー範囲は50 keV ~ 3 MeVで、G(E)関数を用いたデジタル荷重方式によりエネルギー補償を行い、線量率を算出した。検出器は、特定のエネルギー範囲のγ線を計数するシングルチャンネルアナライザ(SCA)を備えており、<sup>214</sup>Biに対応するSCA(Bi)のエネルギー範囲は1.65 MeV ~ 2.50 MeV、<sup>208</sup>Tlに対応するSCA(Tl)のエネルギー範囲は2.51 ~ 3.00 MeVである。また、検出器からの出力信号をマルチチャンネルアナライザ(MCA)により波高弁別し、γ線スペクトルを測定する機能も備えている。

### (2) 測定方法

空間放射線測定装置は連続して空間放射線の測定を行っており、測定部と接続したテレメータシステムの子局から、空間放射線量率、全エネルギー範囲の計数率、SCA(Bi)計数率、SCA(Tl)計数率等の2分間の平均値(2分値)を2分ごとに送信した。青森県原子力センターに設置したテレメータシステム親局は、これらの2分値を収集・保存し、2分値5個のデータを平均して10分値を、さらに10分値6個を平均して1時間値を求めた。今回の検討は1時間値を用いて行った。

## 2.3 結果と考察

### (1) SCAを用いた自然放射線寄与の推定

図2-1に環境γ線スペクトルとSCA(Bi)及びSCA(Tl)のエネルギー範囲を示す。SCA(Bi)は、<sup>214</sup>Biの1.76 MeVと2.20 MeVの2つの光電ピークを含むエネルギー領域に設定している。SCA(Tl)は、<sup>208</sup>Tlの2.62 MeVの光電ピークを含む領域である。図2-1には、晴天時と降雨時のスペクトルを示したが、降雨時にSCA(Bi)計数率が高くなっているのがわかる。

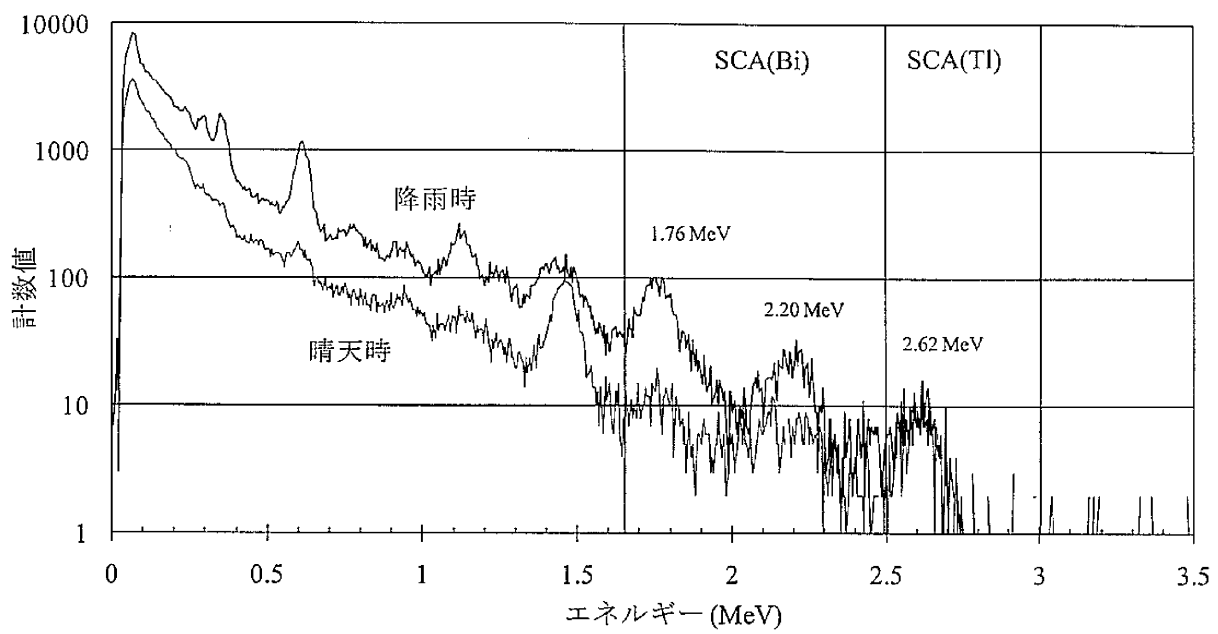


図 2-1 環境  $\gamma$  線スペクトルにおける SCA(Bi)及び SCA(Tl)のエネルギー範囲

SCA(Bi)より低エネルギー側ではスペクトルが全体的に高くなっているが、 $^{214}\text{Bi}$  の 1.76 MeV と 2.20 MeV の  $\gamma$  線のコンプトン散乱によるものである。

モニタリングステーション尾駸局における空間放射線量率、SCA(Bi)計数率、SCA(Tl)計数率及び積雪深について、平成 17 年度 1 年間の推移をプロットしたのが図 2-2 である。空間放射線量率は降雨及び降雪により上昇し、積雪の深さに応じて低下している。SCA(Bi)計数率も同様の推移を示している。一方、SCA(Tl)は、降雨や降雪による変動がほとんどなく、積雪によってのみ低下している。これは、 $^{208}\text{Tl}$  が Th 系列である  $^{220}\text{Rn}$  の壊変生成物であり、土壤中に多く存在するが、 $^{220}\text{Rn}$  の半減期が 55.6 s と短く大気中に広く分布できないためと考えられる。

SCA(Bi)が空間放射線量率と同様の変動パターンを示していることから、まず SCA(Bi)を変数とする回帰分析により単回帰式 (2.1) を求め、この式から算出される値を「単回帰線量率」とした。単回帰線量率が空間放射線量率の自然寄与分を表していれば、測定値からこの単回帰線量率を差し引いた値は 0 に近い値になるはずである。

$$\text{単回帰線量率} = a \times \text{SCA(Bi)} + b \quad \dots \dots (2.1)$$

人工寄与がない平成 17 年度のモニタリングステーション尾駸局における空間放射線量率と SCA(Bi)計数率 (各 8713 個) を用いて式(2.1)を作成し、この式と平成 17 年度の個々の SCA(Bi)計数率から単回帰線量率を求める。この単回帰線量率を実際の空間放射線量率測定値から差し引いた値を 1 年分プロットしたのが図 2-3 である。この差し引き値は、全体的にプラス側にシフトしており、積雪のある冬季には低下がみられる。また、マイナス側に大きく変動する場合が数多くみられるが、これは降雨・降雪により空間放射線量率が上昇したときに対応していた。モニタリングステーション尾駸局における平成 17 年度の空間放射線量率と SCA(Bi)計数率の関係を散布図に示したのが図 2-4 である。両者の間には全体的に正の相関関係がみられるが、積雪のない時期と積雪のある時期で異なる集団を形成しているのがわかる。図 2-4 の矢印で示した付近が降雨・降雪による上昇のないデータであるが、積雪のない時期と積雪のある時期で明確に分かれている。式(2.1)は、図 2-4 において年間のデータに基づく回帰直線を表しており、降雨・降雪がない状況では、積雪がない時期で実際のデータより低めに、積雪がある時期では実際より高めになっている。また、降雨・降雪により空間放射線量率が上昇する場合は、空間放射線量率が高くなるほど実際のデータより高く外れている。このようなことが、空間放射線量率と単回帰線量率の差が大きくなる原因となっていると考える。

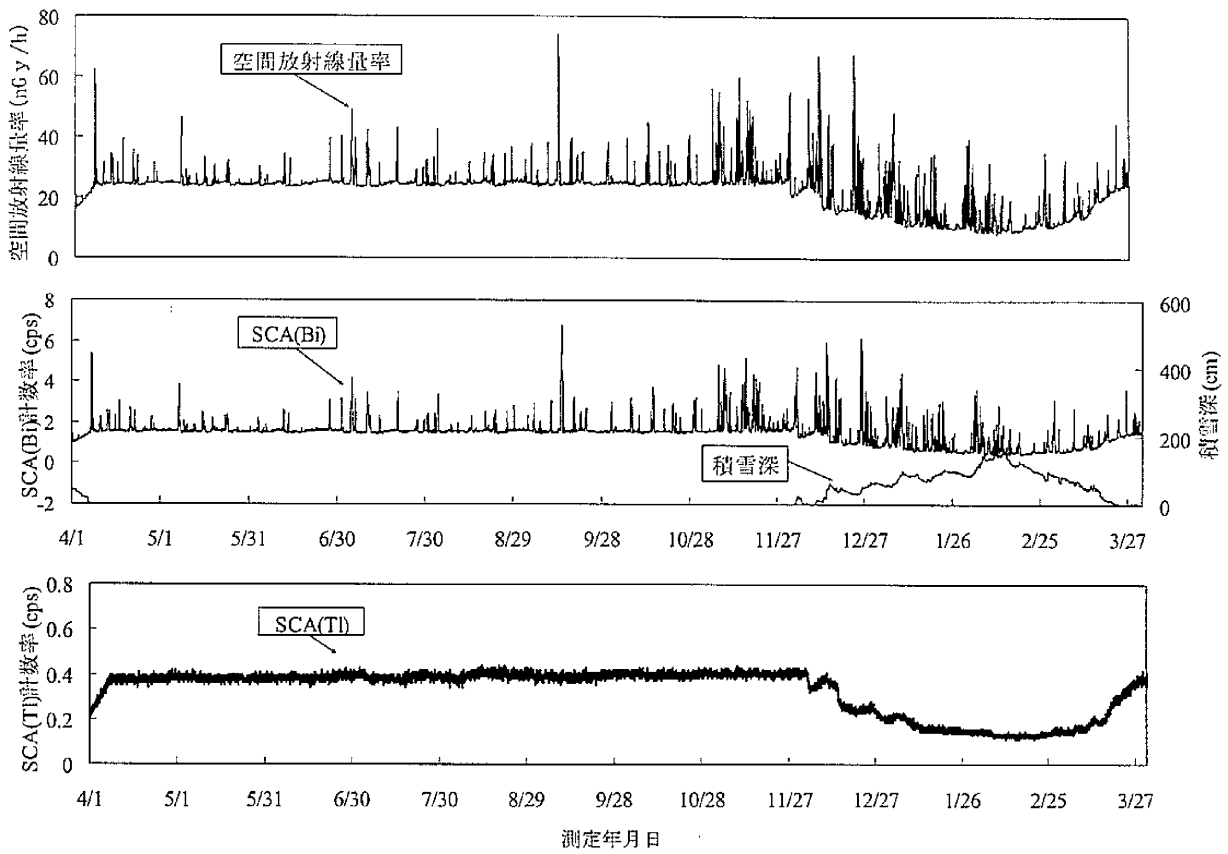


図 2-2 空間放射線量率、SCA(Bi)、SCA(Tl)及び積雪深の変動パターン  
 モニタリングステーション尾駁局：平成 17 年度

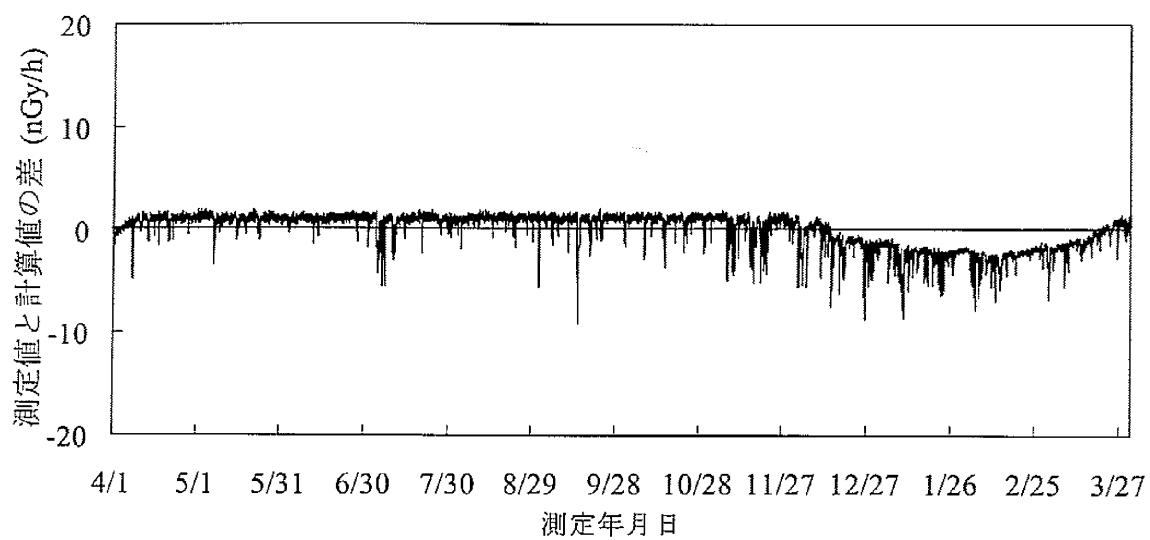


図 2-3 空間放射線量率測定値と SCA(Bi)単回帰線量率計算値の差  
 モニタリングステーション尾駁局：平成 17 年度

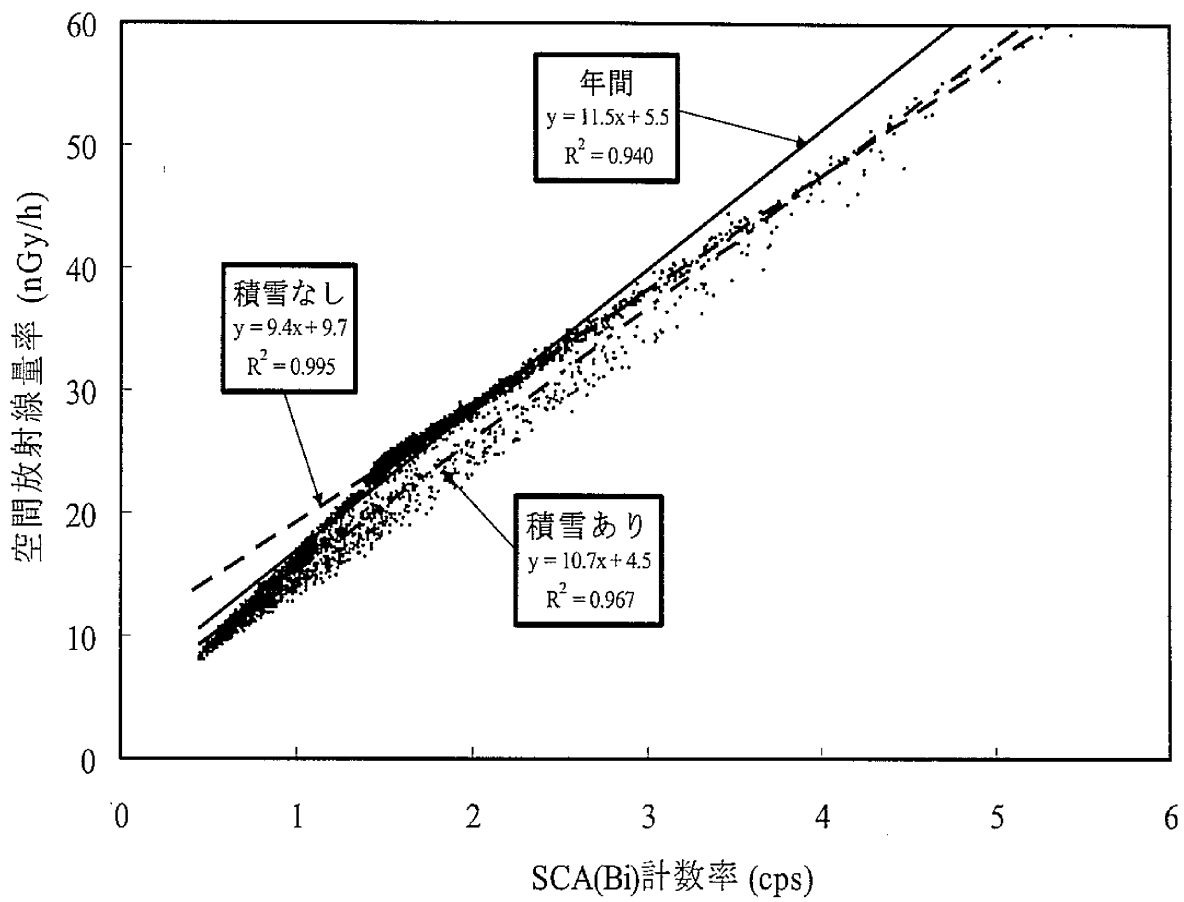


図 2-4 空間放射線量率と SCA(Bi)の関係

モニタリングステーション尾駁局：平成 17 年度

図 2-2 に示すように、SCA(Tl)計数率が積雪による空間放射線量率の低下の指標になると考えられることから、SCA(Bi)計数率及び SCA(Tl)計数率を変数とする重回帰分析により、空間放射線量率の自然寄与分の推定を行った。重回帰式 (2.2) を求め、この式から算出される値を「推定自然線量率」とした。

$$\text{推定自然線量率} = (a \times \text{SCA(Bi)}) + (b \times \text{SCA(Tl)}) + c \quad \dots (2.2)$$

式(2.1)の場合と同様に、平成 17 年度のモニタリングステーション尾駸局における測定値に適用した結果が図 2-5 である。推定自然線量率を空間放射線量率測定値から差し引いた値は、1 年を通じてほぼ 0 であり、降雨・降雪や積雪の影響もみられていない。このデータの変動分布は表 2-1 に示すように、平均が 0.00 nGy/h、標準偏差が 0.36 nGy/h、最小～最大が -1.5 nGy/h ～ 2.7 nGy/h であった。また、差の絶対値が 1 nGy/h 未満となる割合が全体のデータの 99%以上となった。空間放射線量率は積雪のない晴天時で 25 nGy/h 前後、降雨・降雪時には高いときで 100 nGy/h 近くまで上昇し、積雪が多いときは 10 nGy/h 以下になるような変動を示すが、推定自然線量率との差の変動幅は、標準偏差の 3 倍として ±1.1 nGy/h 程度である。このように、SCA(Bi)計数率及び SCA(Tl)計数率から式(2.2)により推定自然線量率を求める方法は、自然現象による空間放射線量率の変動を評価するために有効と考える。

## (2) 六ヶ所再処理工場アクティブ試験の影響の弁別事例

図 2-6 に、再処理工場でアクティブ試験が行われていた平成 18 年 10 月のモニタリングステーション尾駸局における空間放射線量率等の推移を示す。図の 1 番上のトレンドが空間放射線量率、2 番目が SCA(Bi)計数率、3 番目が「線量率測定値－推定自然線量率」、最も下に示したのが大気中気体状 β 放射能測定値である。Case 1 は降雨時に再処理工場からの <sup>85</sup>Kr の影響があったと考えられる場合で、降雨により SCA(Bi)計数率の大きいピークとともに空間放射線量率も上昇しているが、気体状 β 放射能測定値の上昇もみられ、「線量率測定値－推定自然線量率」がわずかに上昇している。Case 2 は降雨がない時期に <sup>85</sup>Kr の影響があったと考えられる場合で、SCA(Bi)計数率に変動がなく、空間放射線量率と「線量率測定値－推定自然線量率」に同程度の上昇がみられる。同時に、気体状 β 放射能測定値も上昇している。Case 3 は降雨がない時期に <sup>85</sup>Kr の影響があったと考えられる場合であるが、気体状 β 放射能測定値に上昇がみられないのが特徴である。気体状 β 放射能測定値は <sup>85</sup>Kr が地上まで移流・拡散しないと上昇しないが、γ 線の飛程は長いため、再処理工場

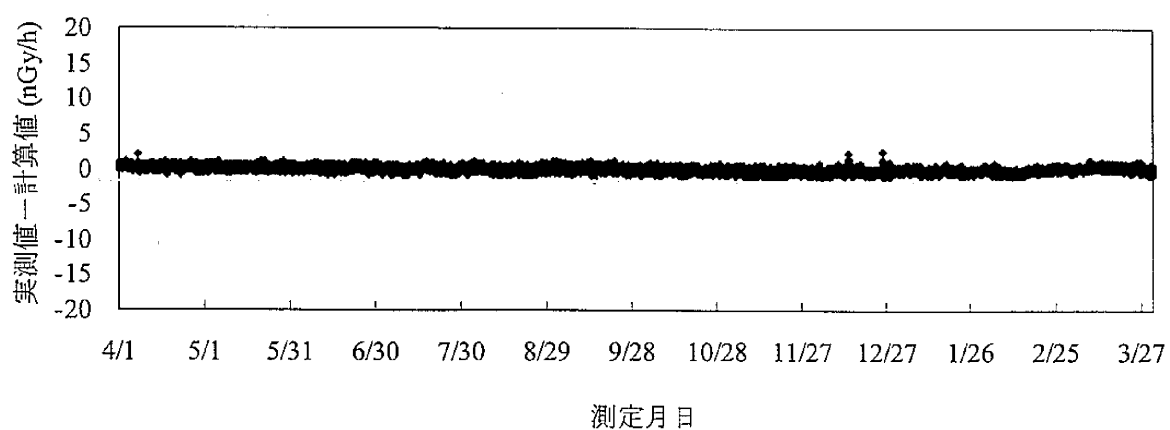


図 2-5 空間放射線量率測定値と重回帰分析による推定自然線量率計算値の差  
 モニタリングステーション尾駁局：平成 17 年度

表 2-1 空間放射線量率測定値と推定自然線量率の差の変動分布

(nGy/h)

平均値	標準偏差	最小値	最大値	差		
				0～1	1～2	2～3
0.00±0.010 (99%信頼区間)	0.36	-1.5	2.7	8636個 (99.1%)	73個 (0.8%)	4個 (0.1%)

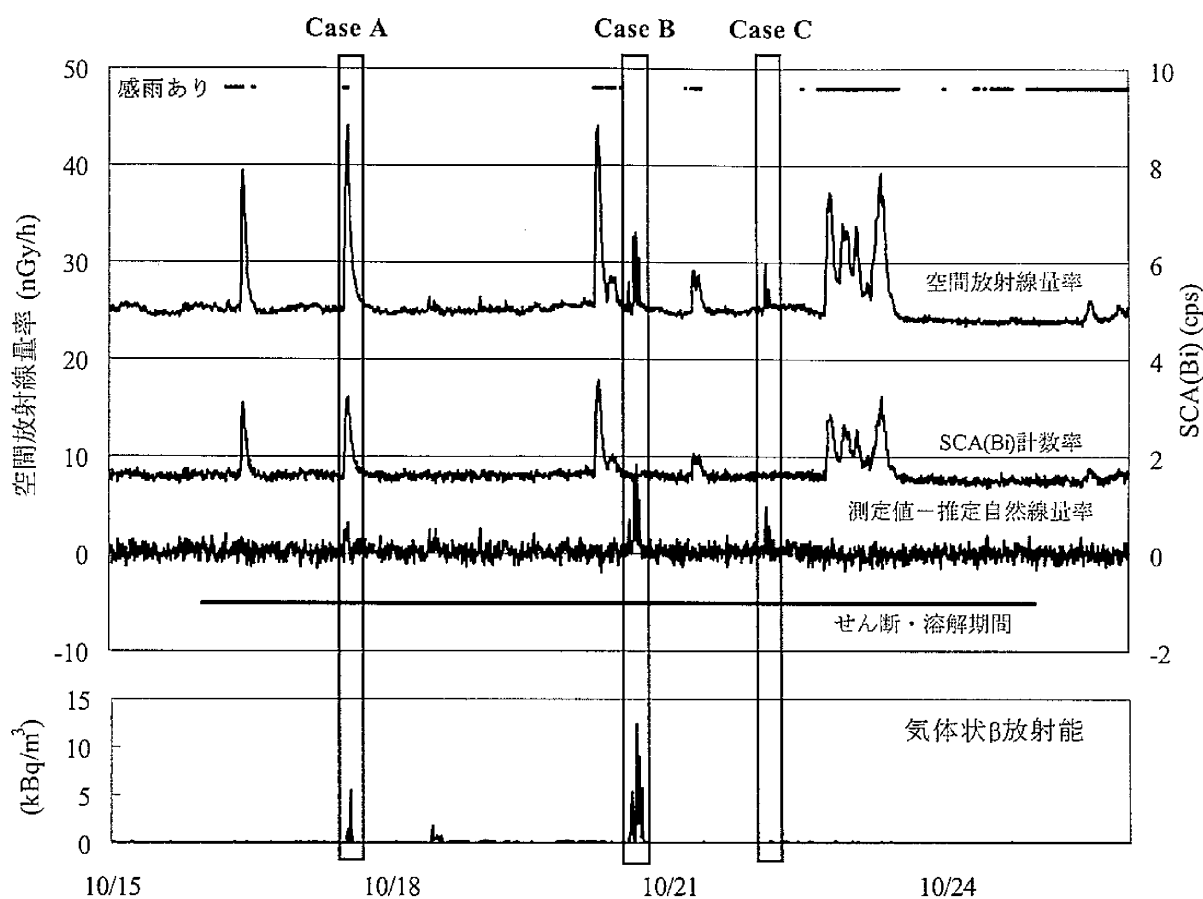


図 2-6 モニタリングステーション尾駁局における再処理工場アクティブ試験の影響  
(平成 18 年 10 月)

からの放射性プルームがモニタリングステーションの上空を通過したような場合に、このような現象が起こるものと推測される。

以上のように、本法は比較的単純な方法であり、テレメータシステムに組み込んで収集したデータを自動計算することが容易である。人工寄与がないデータをもとに式(2.2)を作成し、求めた推定自然線量率と空間放射線量率の差をモニターすることにより、空間放射線量率への人工寄与分を迅速に把握することができ、さらには、施設起因の放射線による住民等の線量の、より現実的な評価が可能になるものと考えられる。

### 参 考 文 献

- 1) M. Okano, K. Izumo, H. Kumagai, T. Katou, M. Nishida, T. Hamada and M. Kodama: Measurement of environmental radiations with a scintillation spectrometer equipped with a spherical NaI(Tl) scintillator., *Natural Radiation Environment* III, 2, 896 - 911 (1980)
- 2) 湊 進: 環境 $\gamma$ 線解析用3"  $\phi$   $\times$  3" NaI(Tl)シンチレータのレスポンス行列, 名古屋工業技術試験所報告, 27, 384 - 397 (1978)
- 3) 今野達矢 他: レスポンスマトリクス法を活用した人工放射線寄与線量率の測定に関する検討, 宮城県原子力センター年報, 19, 46 - 52 (2001)
- 4) H. Kimura, K. Fukuta, N. Satoh, H. Tanabe and O. Yoshikawa: Monitoring of environmental radiation and radionuclides around nuclear fuel cycle facilities from 1989 to 1995., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 226, 211 - 215 (1997)
- 5) 大久保英樹, 庄司博光, 木村秀樹, 齋藤 稔, 工藤英嗣, 永井 進: 空間放射線量率の施設寄与弁別方法の開発, 日本原子力学会 2007 年秋の大会予稿集, F39 (2007)
- 6) 文部科学省: 連続モニタによる環境 $\gamma$ 線測定法 (平成 8 年改訂)

## 第3章 蛍光ガラス線量計(RPLD)の温度特性

### 3.1 序論

空間放射線の積算線量測定において、蛍光ガラス線量計(RPLD)は熱ルミネセンス線量計(TLD)と比較して、①フェーディング効果が小さい、②同一ロットにおける素子間の感度のバラツキが小さい、③広い温度範囲において安定性が高い、という利点がある。このため、RPLDの環境放射線モニタリングへの適用について多くの機関で検討がなされ、その有用性が確認されている<sup>1)~6)</sup>。しかし、この中には、-14.5℃~32℃範囲で放射線源による照射試験を行った結果、6.3℃以下でRPLDの感度が3~4%低下したとの報告もある<sup>5),6)</sup>。青森県六ヶ所村は、1年の約3分の1の期間で月別平均気温が5℃以下になるとともに、積雪が多いときには2m近くまで観測される気象条件である。このような環境下で積算線量の測定にRPLDを用いるためには、RPLDの感度が温度によりどの程度変化するか確認しておく必要がある。

六ヶ所村の(財)環境科学技術研究所は、人工気象施設内に大型恒温室を保有している。この恒温室は、温度を精密に制御することが可能であり、かつ線源照射による散乱線の影響を抑制できる広い空間を有している。このため、この施設を利用し、同研究所(機関A)と青森県原子力センター(機関B)が共同で-10℃から30℃まで温度を変化させたRPLDの照射試験を行い、RPLDの温度特性について詳細に検討した<sup>7)</sup>。

また、モニタリングとして再処理工場の周辺地域で測定している結果のうち、モニタリングステーションにおける測定値を用い、気温と測定値の変化について考察した<sup>8)</sup>。

### 3.2 実験

#### (1) 装置

使用したRPLDは、機関A、機関Bとも東芝硝子(現旭テクノグラス)社製SC-1型で、合わせて5種類のロットを用いた。RPLDの線量を読み取るリーダーは、同社製のFGD-201型を使用した。

#### (2) 試験方法

##### a. 照射試験

照射試験は、幅11m、奥行き12m、高さ13mの大型恒温室の中央部に、木製で円形の

照射台を置いて行なった。照射台の中心に  $^{137}\text{Cs}$  (3.3 MBq)及び  $^{60}\text{Co}$  (1.9 MBq)の点線源を重ねて置き、その周囲に RPLD を並べて照射した。温度条件は $-10^{\circ}\text{C}$ 、 $0^{\circ}\text{C}$ 、 $20^{\circ}\text{C}$ 及び $30^{\circ}\text{C}$ であり、照射中の温度変化は $1.6^{\circ}\text{C}$ 未満に制御した。照射試験は3回にわたって行っており、1回目と2回目は $0^{\circ}\text{C}$ 及び $20^{\circ}\text{C}$ について、3回目は $-10^{\circ}\text{C}$ 、 $0^{\circ}\text{C}$ 、 $20^{\circ}\text{C}$ 及び $30^{\circ}\text{C}$ について試験を行った。照射した線量は、青森県における標準的な3箇月間の積算線量と同程度の約 $130\ \mu\text{Gy/h}$ とした。1回目と2回目の試験では、線源からの距離 $110\ \text{cm}$ で $187\ \text{h}$ 照射し、線量率は約 $0.7\ \mu\text{Gy/h}$ であった。3回目の試験では、線源からの距離を $100\ \text{cm}$ とし、 $162\ \text{h}$ 照射した。また、線量率依存性を確認するため、第1回目の試験時に、上記の照射条件に加え2段階の線量率について照射試験を行った。線源からの距離を $50\ \text{cm}$ 及び $85\ \text{cm}$ 、照射時間を $41\ \text{h}$ 及び $111\ \text{h}$ とし、線量率をそれぞれ $3.3\ \mu\text{Gy/h}$ 及び $1.1\ \mu\text{Gy/h}$ となるようにした。

2機関分同時に照射した RPLD はそれぞれが速やかに持ち帰り、文部科学省の測定マニュアル<sup>9)</sup>に準拠して $70^{\circ}\text{C}$ で $1\ \text{h}$ 加熱処理した後、リーダーにより読み取りを行なった。リーダーの校正は、機関 A では3箇月ごとに(財)放射線計測協会にて標準照射した RPLD により実施しており、機関 B では、保有する標準照射装置を用い、約 $20^{\circ}\text{C}$ の温度条件で標準照射した RPLD により、測定をつど行った。

## b. 環境における測定

原子燃料サイクル施設周辺でのモニタリングステーション5地点及び比較対照としてのモニタリングステーション青森局、計6地点において、2001年4月から2005年3月まで測定を実施した。地上 $1.8\ \text{m}$ に設置した木製の収納箱内に3素子の RPLD を地表に対して水平方向に配置し、3箇月ごとに回収した。測定は回収日の翌日に行い、その結果は1時間当たりの空気吸収線量( $\text{nGy/h}$ )として表した。測定期間は第1四半期(4月～6月)、第2四半期(7月～9月)、第3四半期(10月～12月)及び第4四半期(1月～3月)である。

これらの地点には、NaI(Tl)シンチレーション検出器を備えた連続モニタ(以下「NaI」という。)が設置されており、環境 $\gamma$ 線の空気吸収線量率( $\text{nGy/h}$ )を連続して測定している。また、気象要素としては、全地点において積雪深、2地点において気温の連続測定を行っている。

### 3.3 結果と考察

#### (1) 照射試験

第1回目と第2回目の試験結果を表3-1に、第3回目の試験結果を表3-2に示す。測定値は、すべてバックグラウンド放射線の寄与を含んだ値である。表では、同一ロットの10又は20素子の平均と標準偏差をロットごとに示している。網掛けした結果は、同一の素子により異なる温度で試験を行なった結果である。同一素子を用いて異なる温度で試験を行なった場合、20℃の測定値に対する測定値の比を個々の素子ごとに求め、その比の平均と標準偏差を求めた。同一ロットではあるが異なる素子を用いて異なる温度で試験を行なった場合は、それぞれの温度における測定値の平均を用いて測定値の比を求め、測定値の比の標準偏差は誤差の伝播により求めた。第3回目の試験における、20℃に対する測定値の比を表3-3に示す。

20℃の測定値に対する異なる温度の測定値の差についてt検定を行なったところ、同一の素子による試験において29データのうち14データが有意差ありとなり、1例は温度が低いにもかかわらず感度が高い結果となった。20℃から-10℃における感度低下の度合いは、明らかに20℃から0℃における場合より大きかった。また、20℃の測定値に対する0℃の測定値の比は、線量率に依存しないことが表3-1からわかる。

同一の素子について求めた、20℃又は30℃の測定値に対する低温での測定値の比を図3-1に示す。これは、表3-1及び表3-3における網掛けのデータを調査機関ごとに取りまとめたものである。RPLDの感度低下の度合いは、機関Bより機関Aの方が小さかったが、-10℃と20℃の比については、統計的に有意な差はみられなかった。同一素子について、1℃当たりの感度低下率を示したのが表3-4である。RPLDの測定感度の温度依存性については、Peischら<sup>10)</sup>により、0.1% deg<sup>-1</sup>以下と報告されている。機関Aの感度低下率の平均は報告されている上限の値より小さかったが、機関Bの場合は報告された値の範囲を超えていた。

表3-1及び表3-3に示したロットごとの平均感度比を1つのデータとみなし、その平均と標準偏差をすべての素子について取りまとめてプロットしたのが図3-2である。20℃に対する-10℃の感度比は機関Aと機関Bでほぼ同じであったが、20℃に対する0℃の感度比は両機関でやや異なる結果となった。全素子を対象として1℃当たりの感度変化率を求めた結果が表3-5である。20℃に対する0℃の変化率は、機関Aに比較して機関Bの方が大きく、機関Aと機関Bによる-10℃の変化率はその中間の値となった。図3-2における回

表 3-1 温度特性試験結果 (第 1 回目、第 2 回目)

機 関 回	線量率 ( $\mu\text{Gy h}^{-1}$ )	ロット No.	線量測定結果 ( $\mu\text{Gy}$ )		測定値の比 0°C/20°C	
			温 度			
			0°C	20°C		
A	0.7	1	125.4 ± 2.1	126.0 ± 2.2	0.995 ± 0.013	
		2	124.9 ± 1.0	125.1 ± 1.3	0.998 ± 0.011	
		3	127.3 ± 1.5	127.0 ± 1.3	1.002 ± 0.013	
	1.1	1	128.9 ± 1.7	128.5 ± 1.6	1.003 ± 0.011	
		2	128.8 ± 1.9	128.3 ± 2.3	1.004 ± 0.011	
		3	126.8 ± 1.5 *	127.5 ± 1.2	0.995 ± 0.006	
	3.3	1	137.0 ± 2.0	138.3 ± 1.7	0.991 ± 0.019	
		2	134.5 ± 1.4	135.9 ± 1.8	0.990 ± 0.016	
		3	135.9 ± 2.2 *	134.0 ± 1.2	1.014 ± 0.019	
2	0.7	1	120.6 ± 2.4 ** <sup>b</sup>	122.7 ± 2.0 <sup>a</sup>	0.983 ± 0.017	
		2	122.6 ± 2.3	122.8 ± 2.0	0.998 ± 0.015	
		3	120.6 ± 2.4	122.2 ± 1.4	0.987 ± 0.015	
B	1	0.7	4	125.4 ± 2.1 *	127.9 ± 2.4	0.980 ± 0.013
	2	4	121.5 ± 1.7 †	126.4 ± 2.0	0.961 ± 0.013	

平均 ± 標準偏差 (素子数は10又は<sup>a</sup>20)

網掛けの結果は、同一素子による異なる温度での試験結果

20°Cの測定値からの統計的有意差、 \* p<0.05、 \*\* p<0.001、 † p<0.0001

表3-2 温度特性試験結果（第3回目）

機 関	線量率 ( $\mu\text{Gy h}^{-1}$ )	ロット No.	線量測定結果 ( $\mu\text{Gy}$ )			
			温 度			
			-10°C	0°C	20°C	30°C
A	0.7	1	118.1 $\pm$ 1.9 **	118.5 $\pm$ 2.0 *	120.8 $\pm$ 2.1	-
		2	119.5 $\pm$ 1.6	119.1 $\pm$ 1.4 <sup>b</sup>	120.0 $\pm$ 1.6	-
		3	118.6 $\pm$ 2.2	121.9 $\pm$ 1.9 *	119.7 $\pm$ 1.8	-
		4	117.4 $\pm$ 1.6 **	-	119.8 $\pm$ 1.8	-
		5	117.7 $\pm$ 1.3 **	119.2 $\pm$ 2.4	120.3 $\pm$ 1.6	-
B	0.7	2	124.5 $\pm$ 2.2 **	125.7 $\pm$ 1.6 *	127.9 $\pm$ 2.2	131.2 $\pm$ 1.0 *
		4	122.1 $\pm$ 2.2	119.5 $\pm$ 1.7 †	122.7 $\pm$ 0.7	123.7 $\pm$ 2.0 **

平均  $\pm$  標準偏差（素子数は10又は<sup>a</sup>20）

網掛けの結果は、同一素子による異なる温度での試験結果

20°Cの測定値からの統計的有意差、\*  $p < 0.05$ 、\*\*  $p < 0.001$ 、†  $p < 0.0001$

表3-3 20°Cに対する測定値の比（第3回目）

機 関	線量率 ( $\mu\text{Gy h}^{-1}$ )	ロット No.	20°Cに対する測定値の比			
			温 度			
			-10°C	0°C	20°C	30°C
A	0.7	1	0.978 ± 0.016 **	0.981 ± 0.024 *	1.000 ± 0.018	-
		2	0.996 ± 0.015	0.992 ± 0.017 <sup>b</sup>	1.000 ± 0.013	-
		3	0.991 ± 0.010	1.018 ± 0.022 *	1.000 ± 0.015	-
		4	0.980 ± 0.018 **	-	1.000 ± 0.015	-
		5	0.978 ± 0.018 **	0.991 ± 0.024	1.000 ± 0.014	-
B	0.7	2	0.974 ± 0.024 **	0.983 ± 0.021 *	1.000 ± 0.017	1.026 ± 0.019 *
		4	0.995 ± 0.013	0.974 ± 0.015 †	1.000 ± 0.006	1.008 ± 0.017 **

平均 ± 標準偏差（素子数は10又は<sup>a</sup>20）

網掛けの結果は、同一素子による異なる温度での試験結果

20°Cの測定値からの統計的有意差、\* p<0.05、\*\* p<0.001、† p<0.0001

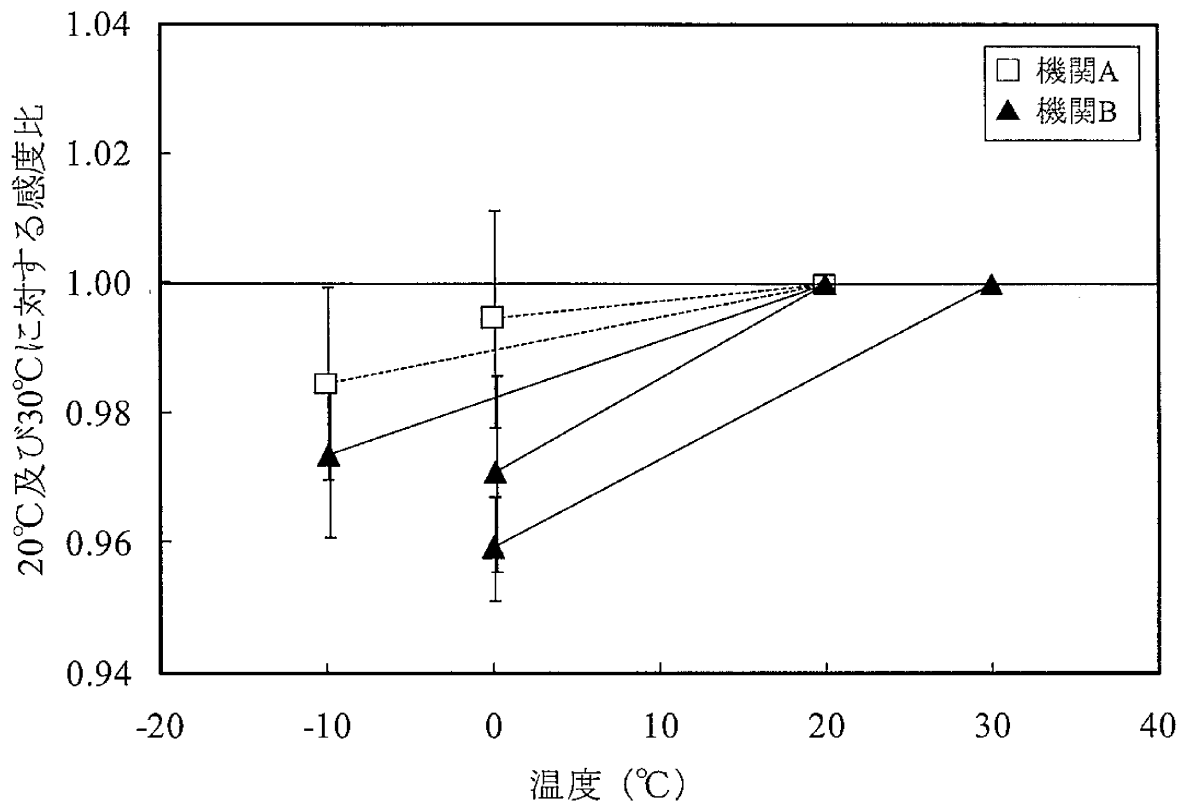


図 3-1 20°C及び30°Cに対する測定感度の低下（同一素子対象）  
誤差棒は標準偏差

表3-4 同一素子を対象とした測定感度低下率

機 関	感度低下率 (% deg <sup>-1</sup> )		
	-10°C/20°C	0°C/20°C	0°C/30°C
A	0.051 ± 0.056	0.027 ± 0.075	-
B	0.088 ± 0.042	0.146 ± 0.075	0.136 ± 0.027

平均 ± 標準偏差

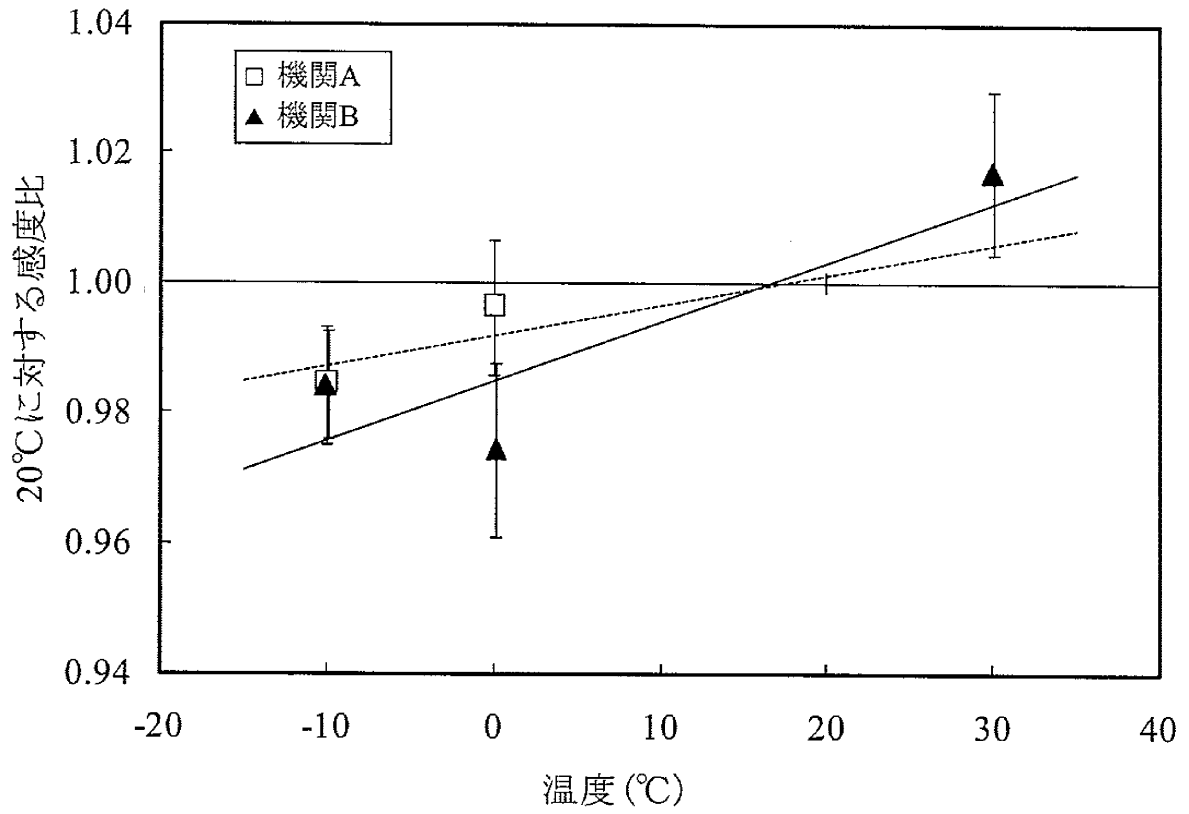


図 3-2 20°Cに対する測定感度の変化 (全素子対象)  
 誤差棒は標準偏差  
 回帰直線は、20°Cのデータを1.0として作成

表3-5 全素子を対象とした測定感度変化率

機 関	20°Cに対する感度変化率 (% deg <sup>-1</sup> )					
	-10°C		0°C		20°C	30°C
A	0.052 ±	0.028	0.018 ±	0.051	1	-
B	0.052 ±	0.051	0.13 ±	0.05	1	0.17 ± 0.13
A+B	0.052 ±	0.031	0.040 ±	0.067	1	0.17 ± 0.13

平均 ± 標準偏差

帰直線は、20℃における値を 1.0 としそれぞれの機関のデータに含めて作成したもので、その傾きは、機関 A で  $0.047 \pm 0.025 \text{ \% deg}^{-1}$ 、機関 B で  $0.091 \pm 0.033 \text{ \% deg}^{-1}$  となった。これらの値は、それぞれの機関における RPLD の感度の平均的な温度依存性を表していると考えられる。

青森県の環境における積算線量測定では第 4 四半期（1 月～3 月）の平均気温が  $-1^{\circ}\text{C}$  から  $1.5^{\circ}\text{C}$  程度になることから、校正用の標準照射時の温度（ $20^{\circ}\text{C}$ ）との差を約  $20^{\circ}\text{C}$  として、機関 B の感度低下率  $0.091 \text{ \% deg}^{-1}$  を用いて試算すると、冬季における感度低下は 2 % 程度であり、実用上許容できる範囲と考えられる。

## (2) 環境における測定

機関 B による、モニタリングステーション 6 地点における 2001 年度第 1 四半期から 2004 年度第 4 四半期までの RPLD 測定結果を図 3-3 に示す。RPLD による測定値は、第 1 四半期から第 3 四半期で、ほぼ  $40 \sim 50 \text{ nGy/h}$  であった。地点により測定値が異なるのは、地質等による自然放射線量の違いに起因する。図 3-3 には積雪深の四半期平均値も併せて示しているが、第 4 四半期は積雪により大地からの放射線が遮へいされるため、RPLD 測定値が他の期間に比べて低くなっている。また、積雪が多いときほど測定値が低くなっているのがわかる。

この地域における気温は、最も高くなる第 2 四半期の平均で約  $20^{\circ}\text{C}$ 、最も低くなる第 4 四半期の平均で約  $0^{\circ}\text{C}$  であり、その差は約  $20^{\circ}\text{C}$  である。室内における温度特性試験結果では、RPLD 測定値に温度による感度変化がみられたことから、環境での測定値に対しても同様に気温の影響があることが考えられる。しかし、図 3-3 に示すように、気温が低くなる第 4 四半期は積雪による空間放射線レベルの低下がみられることから、これらの期間の測定値を単純に比較することにより、気温の影響を把握することはできない。

モニタリングステーションでは NaI による空間放射線量率の連続測定を行なっていることから、両者の測定値を用いて解析することにより、積雪による遮へい効果をキャンセルし、RPLD 測定値に対する気温の影響を把握することを試みた。

第 2 四半期の線量率測定値  $D_2$  を基準とし、以下のように表す。

$$D_{2i} = G_i + C_i + S_i \quad \dots \dots (3.1)$$

ここで、

i: 検出器の種類、N(NaI)、R(RPLD)のいずれかを取る

G: 環境  $\gamma$  線量率測定値（主に大地からの放射線）

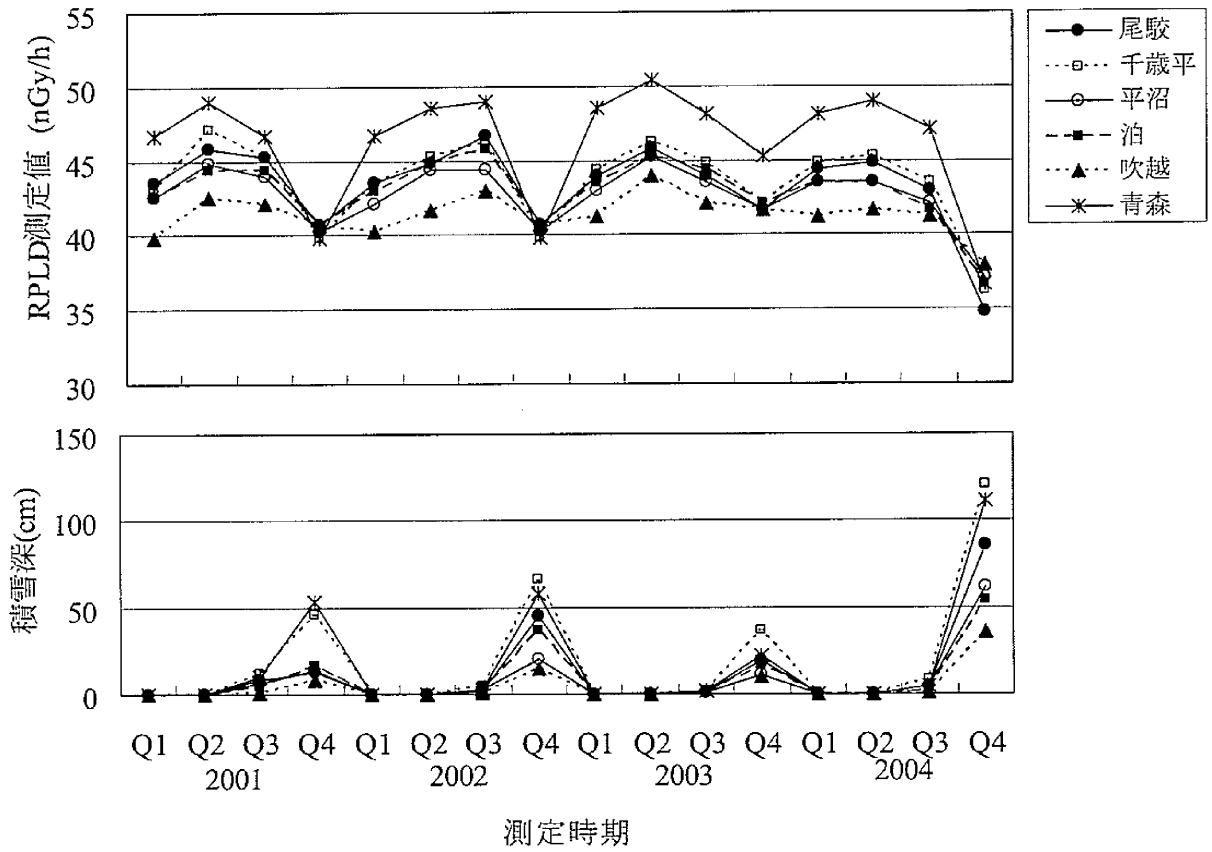


図3-3 RPLD測定値と積雪深の季節変化

C: 宇宙線による線量率測定値

S: 自己照射による線量率測定値

であり、宇宙線（電離成分）及び自己照射による線量率はほぼ一定と考えることができるため、積雪と低温の影響を受ける第4四半期の測定値  $D_4$  は、

$$D_{4i} = \alpha_i(\beta G_i + C_i + S_i) \quad \dots \dots \dots (3.2)$$

となる。ここで、

$\alpha_i$ : 温度係数

$\beta$ : 積雪による遮へい効果

である。無積雪時と積雪時の測定値の差、即ち第2四半期と第4四半期の差は、次の式となる。

$$D_{2i} - D_{4i} = G_i + C_i + S_i - \alpha_i(\beta G_i + C_i + S_i) \quad \dots \dots \dots (3.3)$$

ここで、NaIは温度補償回路を有するため、 $\alpha_N$ は1と考えられるので、

$$D_{2N} - D_{4N} = (1 - \beta)G_N \quad \dots \dots \dots (3.4)$$

となり、これが第2四半期と第4四半期の積雪による場の線量の差となる。

一方、RPLDの温度係数 $\alpha_R$ は、第4四半期において、温度特性が1と仮定したときの測定値により実際の測定値を除すことにより求められるので、

$$\alpha_R = D_{4R} / (\beta G_R + C_R + S_R) \quad \dots \dots \dots (3.5)$$

と表され、これを变形して

$$\begin{aligned} \alpha_R &= D_{4R} / (G_R + C_R + S_R + \beta G_R - G_R) \\ &= D_{4R} / (D_{2R} - (1 - \beta)G_R) \quad \dots \dots \dots (3.6) \end{aligned}$$

となる。

ここで、RPLD及びNaIはどちらもトレーサビリティを有する標準線源により校正しており、測定地点が同じであるため、 $G_R$ と $G_N$ は等しいと考えることができる。したがって、式(3.6)は

$$\begin{aligned} \alpha_R &= D_{4R} / (D_{2R} - (1 - \beta)G_N) \\ &= D_{4R} / (D_{2R} - (D_{2N} - D_{4N})) \quad \dots \dots \dots (3.7) \end{aligned}$$

となる。

式(3.7)に従って $\alpha_R$ を算出した結果を表3-6に示す。ここで、積雪がないときの場の線量はモニタリングポイントにより異なり、同じポイントでも第4四半期における測定値 $D_{4R}$ 及び $D_{4N}$ はその年度の積雪量により変化するため、 $\alpha_R$ はモニタリングポイントごと及び年度ごとに求めた。 $\alpha_R$ は0.93~1.08、平均±標準偏差は $0.97 \pm 0.034$ であった。

この $\alpha_R$ と各モニタリングポイントにおける年度ごとの第2四半期と第4四半期の平均気温の差( $\Delta T$ )を用いて、次の式により、20℃における測定値からの温度による変化率( $V_R$ )

表 3-6 環境における RPLD 及び NaI の測定値から算出した RPLD の温度係数( $\alpha_R$ )、  
20°Cからの変化率( $V_R$ )及び第 2 四半期と第 4 四半期の気温差( $\Delta T$ )

地点	年度	$\alpha_R$	$\Delta T$ (°C)	$V_R$ (% deg <sup>-1</sup> )
MS 尾駸	2001	0.97	17.6	0.16
	2002	1.08	19.4	-0.39
	2003	0.97	16.8	0.21
	2004	1.02	21.3	-0.096
MS 千歳平	2001	0.94	18.2	0.34
	2002	1.01	20.0	-0.025
	2003	0.97	17.2	0.19
	2004	1.00	21.7	-0.013
MS 平沼	2001	0.93	18.2	0.37
	2002	0.96	20.0	0.19
	2003	0.93	17.2	0.40
	2004	0.95	21.7	0.21
MS 泊	2001	0.95	17.5	0.28
	2002	0.98	19.1	0.088
	2003	0.96	16.5	0.22
	2004	0.93	20.6	0.32
MS 吹越	2001	0.96	17.6	0.21
	2002	1.02	19.4	-0.10
	2003	0.95	16.8	0.30
	2004	0.99	21.3	0.049
MS 青森	2001	0.98	19.6	0.088
	2002	0.99	21.1	0.070
	2003	0.94	18.5	0.32
	2004	0.96	22.4	0.20
平均		0.97	19.2	0.15
標準偏差		0.034	1.8	0.18

を求め、併せて表 3-6 に示す。

$$V_R(\% \text{ deg}^{-1})=100(1-\alpha_R)/\Delta T \quad \cdot \cdot \cdot \cdot (3.8)$$

ただし、平沼、泊及び吹越については、この地点で気温の観測を行っていないため、比較的近い地域として、それぞれ千歳平、小田野沢及び尾駈のデータを用いた。

$V_R$  の平均±標準偏差は、 $0.15 \pm 0.18 \% \text{ deg}^{-1}$  であった。室内における温度特性試験において、用いたロットの RPLD の  $V_R$  は、 $-10 \sim 30^\circ\text{C}$  の試験結果では  $0.091 \% \text{ deg}^{-1}$  と評価されており、環境測定により求めた  $V_R$  の方がやや大きい値となったが、 $0^\circ\text{C}$  と  $20^\circ\text{C}$  の試験結果を用いた場合は  $0.13 \% \text{ deg}^{-1}$  であり、環境測定による  $V_R$  とよく一致した。

### 参 考 文 献

- 1) 今村和彦, 猩々伸博, 今村博香, 藤崎 学, 國生 保: 積算線量測定における測定機器の比較調査, 鹿児島県環境センター所報, **12**, 55 - 59 (1996)
- 2) 林 正樹, 長嶋純一, 早川博信: ガラス線量計実用化計画の概要 (II), 福井県原子力環境監視センター所報, **6**, 33 - 37 (1999)
- 3) 宮崎 清, 道広憲秀, 清水光郎, 信森達也: 蛍光ガラス線量計 (RPLD) を用いた環境  $\gamma$  線測定法, 岡山県環境保健センター年報, **29**, 67 - 71 (2005)
- 4) 山崎興樹, 笠原 貢, 殿内重政: 蛍光ガラス線量計を積算線量測定, 新潟県保健環境科学研究所年報, **14**, 88 - 92 (1998)
- 5) 山崎興樹, 江端英和, 大高敏裕, 笠原 貢, 眞保隆博, 藤巻広司, 加藤健二, 殿内重政: 蛍光ガラス線量計を積算線量測定 (2), 新潟県保健環境科学研究所年報, **16**, 90 - 97 (2001)
- 6) K. Yamazaki, S. Tonouchi and T. Hashimoto; Cumulative dose measurements using radiophotoluminescence glass dosimeter in cold areas, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **255**, 565 - 569 (2003)
- 7) T. Iyogi, K. Kudo, H. Takegahara, S. Hisamatsu, H. Kimura, K. Sasaki M. Saito and J. Inaba: Temperature dependency of radiophotoluminescence glass dosimeter sensitivity, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Supplement 4, 470 - 473 (2004)
- 8) H. Kimura, K. Sasaki, K. Kudo, Y. Kaimori, T. Kon, K. Nagaoka and S. Hisamatsu: Dependency of radiophotoluminescence glass dosimeter sensitivity on temperature in outdoor environment and self-irradiation dose rate, *Applied Radiation and Isotopes* に投稿予定

- 9) 文部科学省: 蛍光ガラス線量計を用いた環境 $\gamma$ 線量測定法 (平成 14 年)
- 10) E. Peish and B. Burgkhardt; Photoluminescence dosimetry: the alternative in personal monitoring, *Radioprotection*, **29**, 39 - 67 (1994)

## 第4章 大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の起源の推定

### 4.1 序論

大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の連続測定においては、短寿命核種の影響を低減するため、集じんから一定時間経過した後の計数値を用いて放射能を算出しており、通常測定値に寄与している核種は、天然に存在するラドン( $^{222}\text{Rn}$ ,  $t_{1/2}=3.82$  d)の壊変生成物、なかでも比較的半減期の長い鉛-210( $^{210}\text{Pb}$ ,  $t_{1/2}=22.3$  y,  $\beta$ )、ビスマス-210( $^{210}\text{Bi}$ ,  $t_{1/2}=5.01$  d,  $\beta$ )及びポロニウム-210( $^{210}\text{Po}$ ,  $t_{1/2}=138$  d,  $\alpha$ )と考えられる。

$^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Bi}$  及び  $^{210}\text{Po}$  は、大気中のエアロゾルに付着して存在しており、それぞれが平衡に達する前に地表に沈着して大気中から除かれる。このため、地表付近の大気浮遊じんや降水中における  $^{210}\text{Bi} / ^{210}\text{Pb}$  比又は  $^{210}\text{Po} / ^{210}\text{Pb}$  比の平衡からの偏差を調査することにより、エアロゾルの大気中における滞留時間の評価が行われている。滞留時間は、 $^{210}\text{Bi} / ^{210}\text{Pb}$  比を用いた場合より  $^{210}\text{Po} / ^{210}\text{Pb}$  比を用いた場合の方が長く評価されることが知られている<sup>1)~6)</sup>。この原因として、大気中エアロゾルより  $^{210}\text{Po} / ^{210}\text{Pb}$  比の大きい発生源があると考えられており、表土からの微細粒子の舞い上がり<sup>1)~3)</sup>、成層圏から対流圏への古いエアロゾルの流入<sup>4), 5)</sup>、海洋からの有機ポロニウム化合物としての揮発<sup>6), 7)</sup>、海洋における微表層(surface microlayer)に濃縮されたポロニウムの飛散<sup>8)</sup>、火山からの放出<sup>9), 10)</sup>、植物の燃焼<sup>11), 12)</sup>などの報告がある。

これまでのモニタリング結果において、全 $\beta$ 放射能が秋から冬にかけて高くなるのに対し、全 $\alpha$ 放射能は冬に低く、春と秋に比較的高くなる季節変動を示しており、特に2003年5月には全 $\alpha$ 放射能の特異的な上昇が観測された。本研究では、原子燃料サイクル施設周辺の環境放射線モニタリングにおける大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の起源について、それぞれの変動傾向の違いや気象条件等により検討するとともに、2003年5月に観測された全 $\alpha$ 放射能の特異的な上昇事象について、ロシアにおける森林火災との関連性を検討した<sup>13)</sup>。

### 4.2 実験

大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の季節変動の傾向を把握するため、県がモニタリングステーションに設置したダストモニタによる全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の連続測定結果を用いた。また、大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能への寄与核種を確認するため、放射化学分

析により大気浮遊じん中  $^{210}\text{Pb}$  及び  $^{210}\text{Po}$  の定量を行った。ただし、ダストモニタで全  $\alpha$  及び全  $\beta$  放射能を測定した試料は、モニタリングにおいて、 $^{90}\text{Sr}$  や  $^{239+240}\text{Pu}$  の放射化学分析に供するため、 $^{210}\text{Pb}$  及び  $^{210}\text{Po}$  分析用には別に試料を採取する必要がある。そこで、モニタリングステーション 1 地点に可搬型ダストサンプラを設置し、ダストモニタと概ね同じ条件で大気浮遊じんの採取を行った。

## (1) 装置

大気浮遊じん中の全  $\alpha$  及び全  $\beta$  放射能の測定には、アロカ(株)製のダストモニタ（青森県特注品）を用いた。装置の概念図を図 4-1 に示す。検出器は、プラスチックシンチレータ ( $\beta$  線用) の前面に  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  シンチレータのフィルム ( $\alpha$  線用) を貼り付けた構造であり、 $\alpha$  線と  $\beta$  線を分別して計数する。ろ紙は、HE-40T 長尺ろ紙（セルロース+ガラス繊維）を使用した。ダストモニタは、六ヶ所再処理工場周辺の 5 地点及び青森市 1 地点のモニタリングステーションに設置した。

## (2) 測定方法

### a. ダストモニタによる全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能

外気をポンプにより約  $100 \text{ L min}^{-1}$  の流速で吸引し、浮遊じんをろ紙に 168 h（1 週間）捕集した。集じん後いったんポンプを止め、ろ紙の集じん部分を検出部に移動させて、 $\alpha$  線及び  $\beta$  線測定を開始するとともに、新しいろ紙により集じんを再開する。全  $\alpha$  及び全  $\beta$  放射能の測定は、ろ紙移動直後から開始するが、放射能測定値として用いるデータは、ろ紙移動から 72 h 経過後の 1 h の計数値とした。検出器の校正には、 $\text{U}_3\text{O}_8$  標準線源を用いた。

### b. 大気浮遊じん中 $^{210}\text{Pb}$ 及び $^{210}\text{Po}$

モニタリングステーション千歳平局に東京ダイレック(株)製の可搬型ダストサンプラ（PNC-800 型）を設置し、50mm  $\phi$  シリカ繊維ろ紙（ADVANTEC QR-100）を用いて約 100 L/min の流速で約 1 週間集じんした。採取した試料に Pb 担体及び  $^{208}\text{Po}$  トレーサを添加した後、硝酸により加熱抽出を行った。

$^{210}\text{Po}$  の分析については、ポロニウムを硫化物沈殿としてろ別分離後、塩酸に溶解し、金属板上に自発析出させて、シリコン半導体検出器により  $\alpha$  線の計測を行った。この計

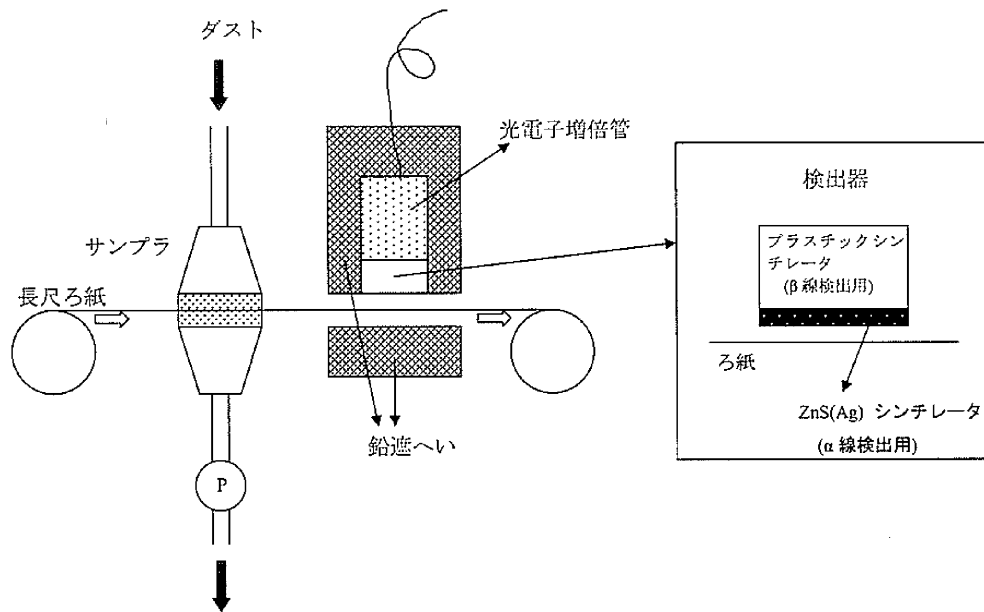


図 4-1 ダストモニタの概念図

測値には、採取後の試料中に存在する  $^{210}\text{Pb}$  から生成した  $^{210}\text{Po}$  も含まれるため、この寄与分を差し引く必要がある。 $^{210}\text{Pb}$  の定量結果と、試料採取後ポロニウムと鉛の分離までの時間から、 $^{210}\text{Po}$  の生成量を算出して  $\alpha$  線の計測値から差し引き、大気浮遊じん中  $^{210}\text{Po}$  の放射能を求めた。

$^{210}\text{Pb}$  の分析には、上記の硫化物沈殿ろ別後の溶液を用いた。Ba 担体を添加した後硫酸を加え、 $\text{PbSO}_4$  及び  $\text{BaSO}_4$  沈殿を生成させてろ別した。 $\text{PbSO}_4$  沈殿をエチレンジアミン四酢酸二ナトリウム溶液により溶解し、電気分解により精製した後再び  $\text{PbSO}_4$  として沈殿させ、2 週間以上放置して生成した  $^{210}\text{Bi}$  の  $\beta$  線を低バックグラウンド  $\beta$  線測定装置により計測した。 $^{210}\text{Bi}$  の放射能と放置時間から計算した  $^{210}\text{Bi}$  の生成率により、 $^{210}\text{Pb}$  の放射能を求めた。

### c. 流跡線解析

流跡線解析は、国立環境研究所の地球環境研究センター (CGER) <sup>14)</sup> が WEB 上で提供している METEX オンラインシステム\*により、米国環境予測センター (NCEP) の気象データを用いて行った。六ヶ所村役場付近、北緯 40 度 58 分 03 秒、東経 141 度 22 分 28 秒 (世界測地系) の高度 110m を始点とし、3 次元法により 240h (10 日間) の後方流跡線を作成した。

\*[http://cgermetex.nies.go.jp/metex/trajectory\\_jp.html](http://cgermetex.nies.go.jp/metex/trajectory_jp.html) (Old Version )

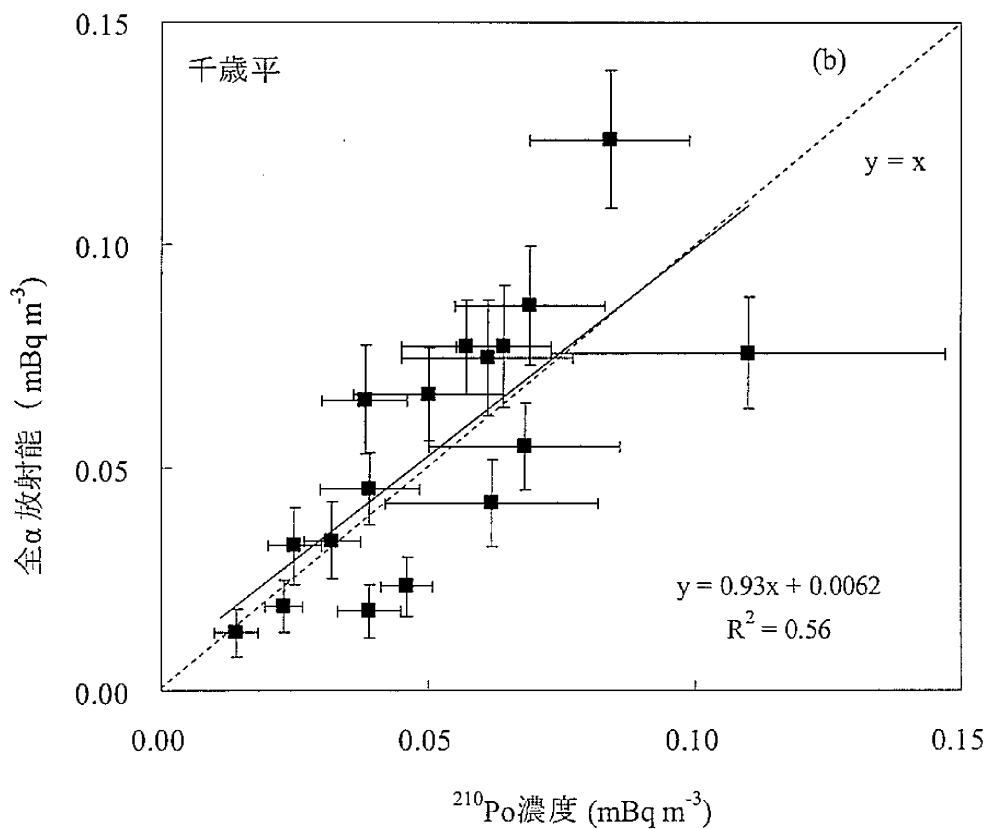
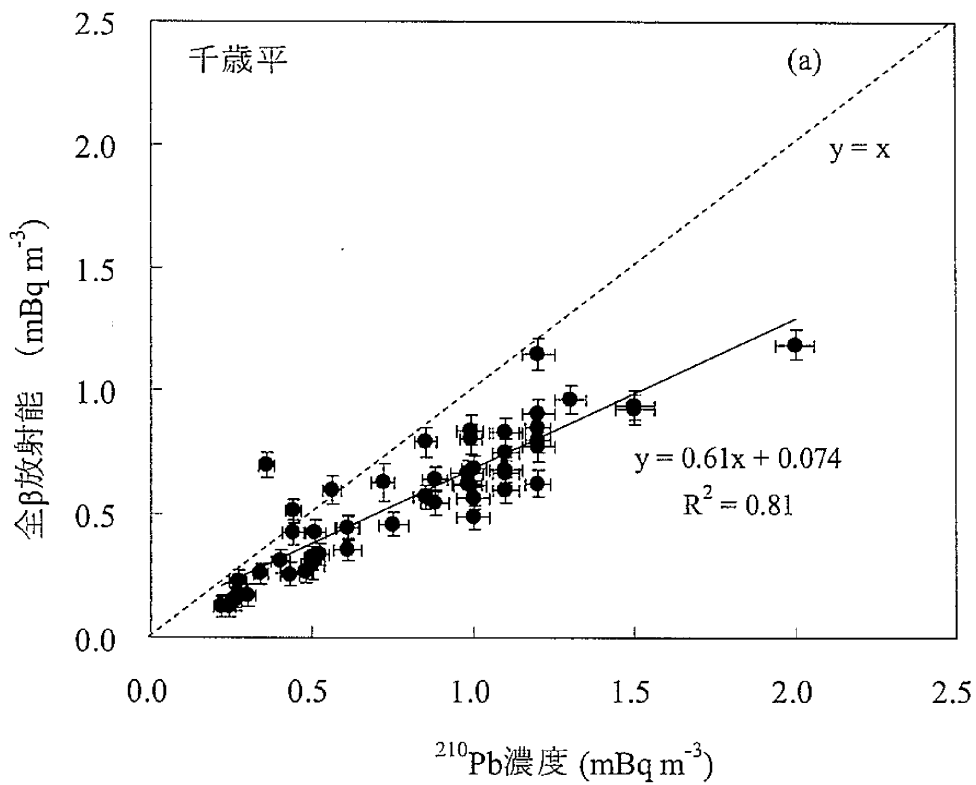
(最終確認 : 2007 年 11 月 29 日)

## 4.3 結果と考察

### (1) 全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能測定値への寄与核種

ダストモニタにおける測定条件から、主に測定されているのは、 $^{222}\text{Rn}$  壊変生成物のうち  $^{210}\text{Pb}$  以降の核種と推測される。 $^{210}\text{Pb}$  は放出する  $\beta$  線の最大エネルギーが 0.017MeV と小さくダストモニタでは測定されないため、全  $\alpha$  線放射能には  $^{210}\text{Po}$ 、全  $\beta$  放射能には  $^{210}\text{Bi}$  が寄与核種と考えられる。

このことを確認するため、モニタリングステーション千歳平局に可搬型ダストサンプラを設置し、ダストモニタと同様の条件により並行して大気浮遊じんを採取して、 $^{210}\text{Pb}$  及び  $^{210}\text{Po}$  の分析を行なった。図 4-2 に示すように、ほぼ同時期に採取した大気浮遊じん試料における  $^{210}\text{Pb}$  と全  $\beta$  放射能及び  $^{210}\text{Po}$  と全  $\alpha$  放射能には、いずれも正の相関関係がみられた。



注) 誤差棒は1標準偏差

図 4-2 大気浮遊じん中 <sup>210</sup>Pb と全β放射能(a)、<sup>210</sup>Po と全α放射能(b)の関係  
(モニタリングステーション千歳平局：2001年6月～2001年12月)

図 4-2 (a)において、全  $\beta$  放射能が  $^{210}\text{Pb}$  より小さい値となったが、ダストモニタ検出部の構造、校正線源と測定試料の  $\beta$  線エネルギーの違い等が原因のひとつと考えられる。ダストモニタの検出部は、 $\beta$  線測定用のプラスチックシンチレータの前面に  $\alpha$  線測定用の  $\text{ZnS(Ag)}$ シンチレータフィルムが貼り付けてあり、これが入射する  $\beta$  線を減衰させるため、プラスチックシンチレータによる計数効率は  $\beta$  線エネルギーとともに低下する。校正線源 ( $\text{U}_3\text{O}_8$ )の  $\beta$  線放出核種は  $^{234}\text{Pa}$  であり、最大エネルギーが  $2.27\text{MeV}$  と大きいのに対し、測定試料中の  $\beta$  線放出核種  $^{210}\text{Bi}$  の最大エネルギーは  $1.16\text{MeV}$  であり、ダストモニタにおける計数効率は、それぞれ  $38.5\%$  及び  $26.1\%$  と評価されている<sup>15)</sup>。このように校正線源と測定試料の  $\beta$  線エネルギーの違いにより、全  $\beta$  放射能測定値は実際の値の  $68\%$  程度になると推定され、図 4-2 (a)から求めた  $^{210}\text{Pb}$  に対する全  $\beta$  放射能の比約  $61\%$  とほぼ一致した。ここで、全  $\beta$  放射能 /  $^{210}\text{Pb}$  比の方がわずかに小さいのは、大気中で  $^{210}\text{Bi}$  が  $^{210}\text{Pb}$  と平衡に達していない場合があるためと考えられる。

## (2) 全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の季節変動

原子燃料サイクル施設周辺地域及び青森市における大気浮遊じん中全  $\alpha$  放射能、全  $\beta$  放射能及び  $\alpha/\beta$  比の推移を図 4-3 に示す。全  $\alpha$  放射能は春と秋に変動が大きく、高い値が出現する頻度が多いのに対し、夏と冬は低い値で安定している。全  $\beta$  放射能は、秋と冬に全体的に高い値となり、夏に低くなる傾向を示した。これらの測定値は、約  $50\text{km}$  離れたモニタリングステーション青森局を含め、全地点で同様の変動パターンを示しており、広域的な変動である。

中国大陸東部地区における大気中  $^{222}\text{Rn}$  濃度の年平均値は一般的に日本列島より高く<sup>16)</sup>、このような大気が北西からの季節風とともに流入することにより、我が国の大気中  $^{222}\text{Rn}$  濃度が影響を受けているとの報告がある<sup>17)</sup>。青森県においては、秋から春先にかけて全  $\beta$  放射能が高くなっているが、この時期北西風が卓越しており、中国大陸からの大気の流入による影響があるものと考えられる。一方、夏は全  $\alpha$  放射能、全  $\beta$  放射能双方とも低い値となっているが、東からの風が優勢であり、 $^{222}\text{Rn}$  の発生がほとんどない海洋を経由して大気が流入するためと考えられる。

$\alpha/\beta$  比については、全  $\alpha$  放射能と類似した変動パターンを示しているが、冬に低くなり変動も小さくなる傾向がより明確である。プロットしたすべてのデータを用いて求めた  $\alpha/\beta$  比の平均値は  $0.09$  であるが、冬は  $0.05$  前後で安定している。

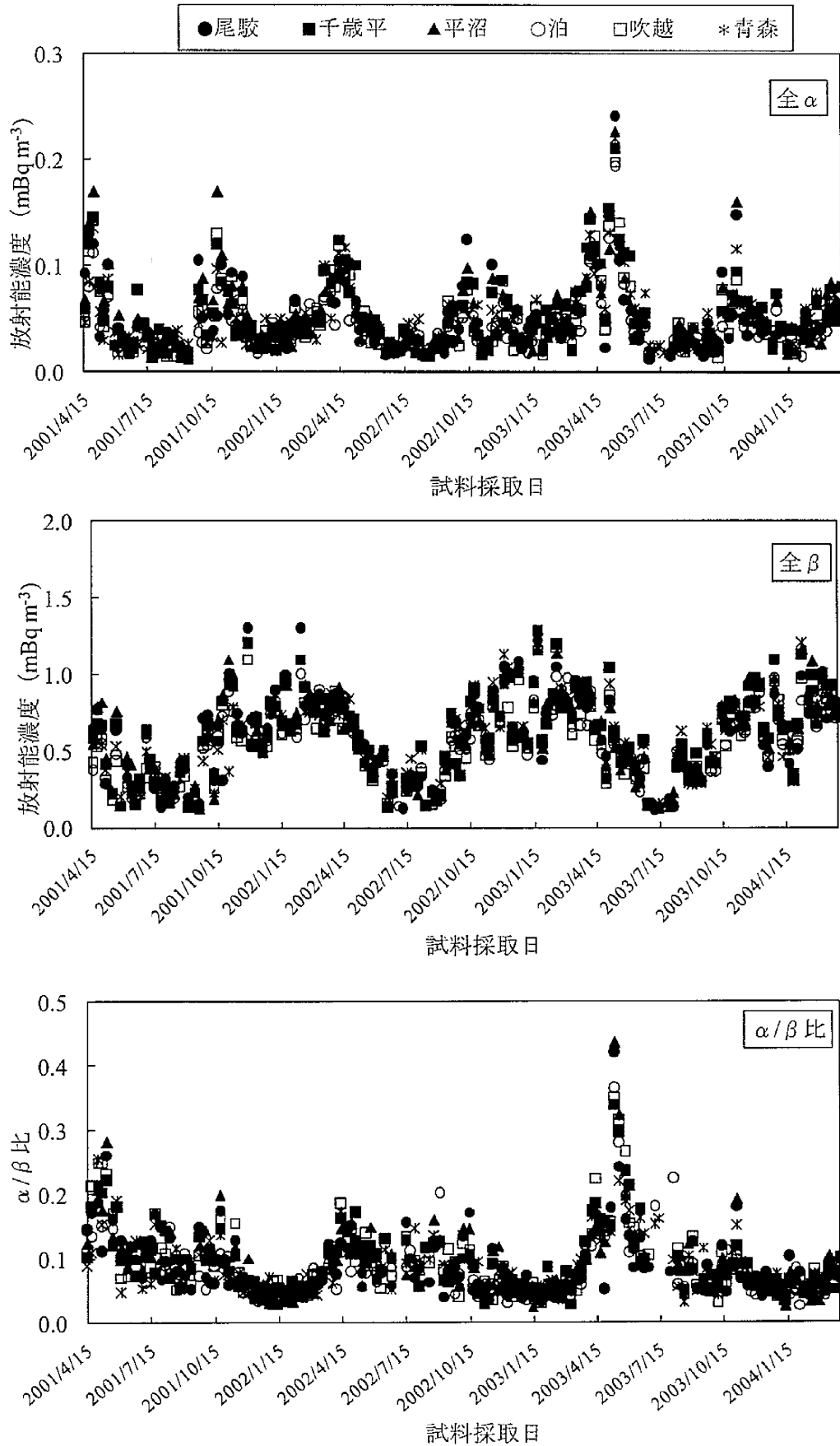


図 4-3 大気浮遊じん中全 $\alpha$ 放射能、全 $\beta$ 放射能及び $\alpha/\beta$ 比の推移 (2001年4月～2004年3月)

$^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$  の壊変において、それぞれの核種は永続平衡となるため、十分な時間が経過すれば放射能はほぼ同じとなるが、 $^{210}\text{Pb}$  から一定時間後に生成する  $^{210}\text{Bi}$  及び  $^{210}\text{Po}$  を  $^{210}\text{Pb}$  に対する放射能比として試算すると、 $^{210}\text{Bi}$  の場合は 3 日後で 0.34 及び 10 日後で 0.75、 $^{210}\text{Po}$  の場合は 3 日後で 0.003 及び 10 日後で 0.02 となる。併せて、大気中におけるエアロゾルの平均滞留時間は 4 日から 1 週間程度と推定されていること<sup>1)</sup>、 $^{222}\text{Rn}$  の最初の壊変生成物  $^{218}\text{Po}$  から  $^{210}\text{Pb}$  までの壊変は数時間でほぼ完結することを考慮すれば、冬に観測された  $\alpha/\beta$  比は、概ね当該地域に流入した  $^{222}\text{Rn}$  を起源とする  $^{210}\text{Bi}$  と  $^{210}\text{Po}$  の放射能比を表しているものと推定される。

一方、表土中において、 $^{210}\text{Po}$  は親核種である  $^{210}\text{Pb}$  とほぼ平衡に達していることから、 $^{210}\text{Pb}$  に対する  $^{210}\text{Po}$  の比は、非平衡状態である大気中に比較して高く、大気中  $^{210}\text{Po}$  の主な起源として、表土からの微細粒子の舞い上がりが指摘されている<sup>1)~3)</sup>。また、2003 年に我が国への黄砂の飛来が少なかった原因は、モンゴル地区における積雪が多かったためとの報告もある<sup>18)</sup>。このようなことから、本県において、全  $\alpha$  放射能と  $\alpha/\beta$  比がどちらも春と秋に高くなっているのは、表土の舞い上がりがその要因のひとつであり、冬に低くなっているのは、東アジア地域の大地が積雪により広く覆われたためと考えられる。

### (3) 全 $\alpha$ 放射能濃度への森林火災の影響

全  $\alpha$  放射能及び  $\alpha/\beta$  比は春に比較的高くなる傾向があるが、2003 年 5 月に特異的な上昇がみられた。2003 年 4 月当初からやや高い値が観測され、5 月 5 日から 11 日に採取した試料が最大値を示した。宇宙航空研究開発機構地球観測利用推進センター(CGER)<sup>19)</sup>から、この時期にロシア東部で森林火災が発生しており、その煙が北日本に流入していることが報告されていることから、この関連について検討した。図 4-4 は、NASA/GSFC の MODIS Rapid Response System<sup>20)</sup>による、2003 年 5 月 8 日時点でのバイカル湖周辺地域の衛星画像である。赤い点は温度の高い地点を示しており、ほとんどの場合火災である。画像では、火元がバイカル湖の東西に長く分布しており、そこから煙が発生しているのがわかる。

この煙が青森県内に流入していたことを確認するため、CGER の METEX オンラインシステムを用いて、流跡線解析を行った。図 4-5 は、2003 年 5 月 8 日 12 時を開始時刻、六ヶ所村役場付近の標高 110m を開始地点として、240h (10 日間)の後方流跡線を示したもの

である。5月8日に六ヶ所地核燃料貯蔵施設に、放射性物質が漏れ出していることがわかる。

東アジア地域から、放射能が飛来していることが確認された。

よう  
方  
求  
た  
計  
①  
②

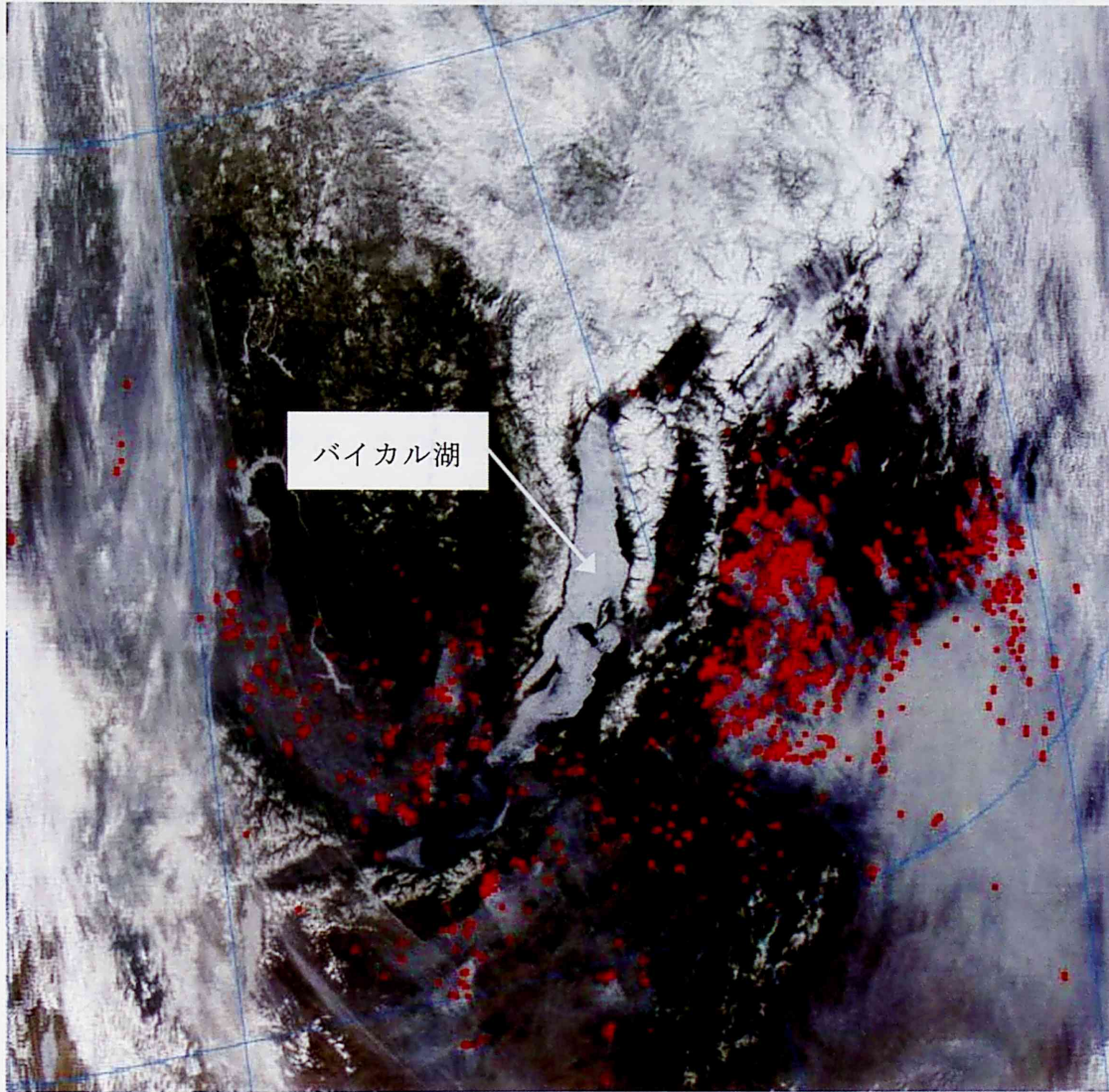


図 4-4 バイカル湖周辺における森林火災の衛星写真（2003 年 5 月 8 日）  
注 1) 赤い点は、温度の高い領域を示し、ほとんどの場合火災である。  
注 2) 画像は、NASA/GSFC の MODIS Rapid Response Project によるものである。

メッシュ  
これを  
メッシュ  
これを

3) P1、P2、P3、P4、P5の順に、それぞれの高層は、観測高度が異なるため、十分な時間経過すれば、それぞれはほぼ同じとなるが、P6から、次第に高層に到達する。P1及びP2をP5と対する対角定比として算出すると、P1の場合には、約34及び10日経過して、P5とほぼ同じとなる。

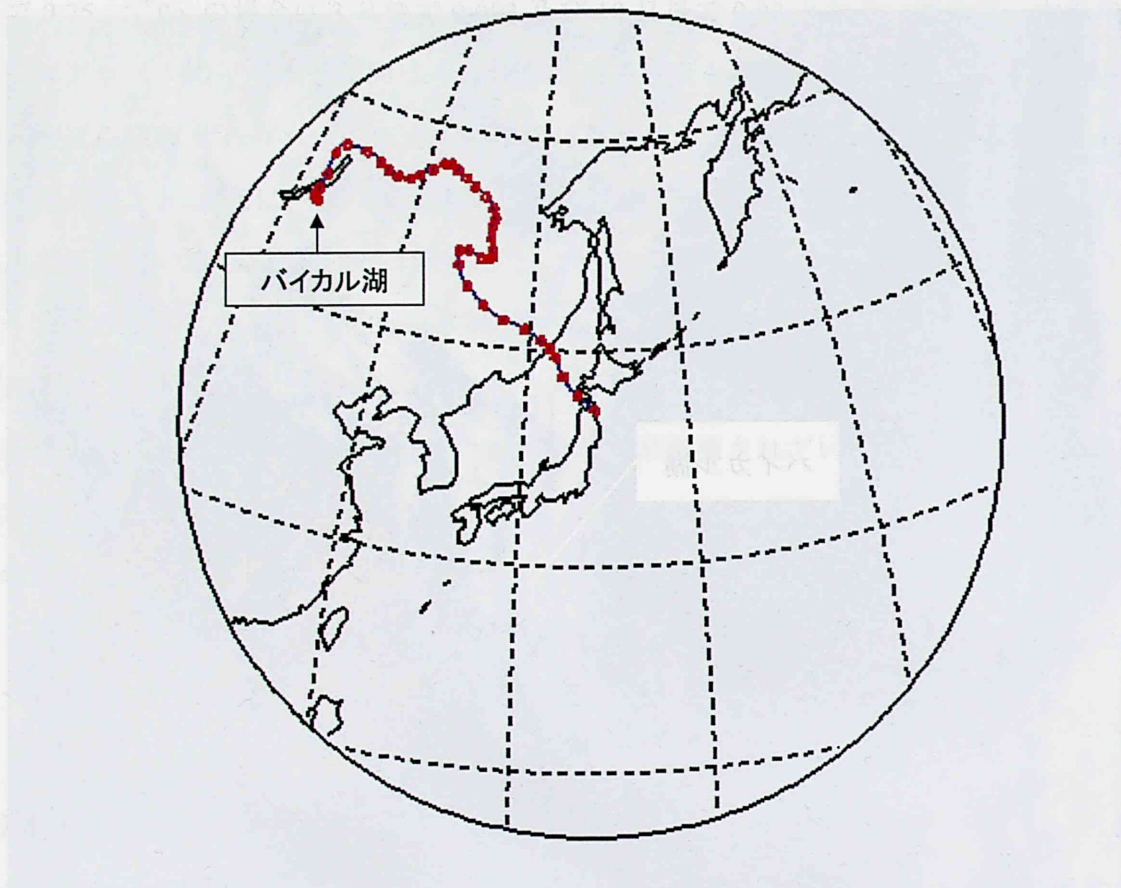


図 4-5 青森県六ヶ所村からの後方流跡線

開始時刻：2003年5月8日12時

開始位置：北緯 40° 58' 03"、東経 141° 22' 28"、海拔高度 110m.

流跡線の長さ：240h

である。5月8日に六ヶ所村へ流入した気塊は、10日程度前にはバイカル湖付近を通過していることがわかる。

東アジア地域から六ヶ所村へ流入した気塊が通過した経路を数値化するため、図4-6のように大陸の東部地域を緯度方向に $5^\circ$ ごと、経度方向に $10^\circ$ ごとのメッシュに分割し、後方流跡線が通過した数をヒット数としてメッシュごとに集計した。すなわち、流跡線から求めた気塊の1時間ごとの位置を示す緯度経度から気塊が通過したメッシュ No.がわかるため、240時間にわたって通過した回数をメッシュごとに合計した。

計算の手順は以下のとおりである。

①流跡線は、大気浮遊じん採取期間の7日間について、毎日12時から後方へ240時間分、計7本作成する。

②1本の流跡線のデータは、次のとおり。

基準年月日時、北緯 $x_0$ 度、東経 $y_0$ 度（六ヶ所村役場）

基準年月日時-1時間、北緯 $x_1$ 度、東経 $y_1$ 度

・  
・  
・

基準年月日時-240時間、北緯 $x_{240}$ 度、東経 $y_{240}$ 度

③まず、基準年月日時の緯度経度がどのメッシュにヒットしているか、次の計算により求める。

メッシュ No.A1 :  $If 60 < x_0 \leq 65 \text{ and } 70 \leq y_0 < 80 \Rightarrow "1", \text{ else } \Rightarrow "0"$

メッシュ No.A2 :  $If 55 < x_0 \leq 60 \text{ and } 70 \leq y_0 < 80 \Rightarrow "1", \text{ else } \Rightarrow "0"$

・  
・  
・

メッシュ No.H9 :  $If 20 < x_0 \leq 25 \text{ and } 140 \leq y_0 < 150 \Rightarrow "1", \text{ else } \Rightarrow "0"$

これを基準年月日時-240時間まで繰り返す。

④メッシュ No.ごとにヒット数を合計する。

⑤これを大気浮遊じん採取期間の7日間について合計し、メッシュ No.ごとのヒット総数とする。

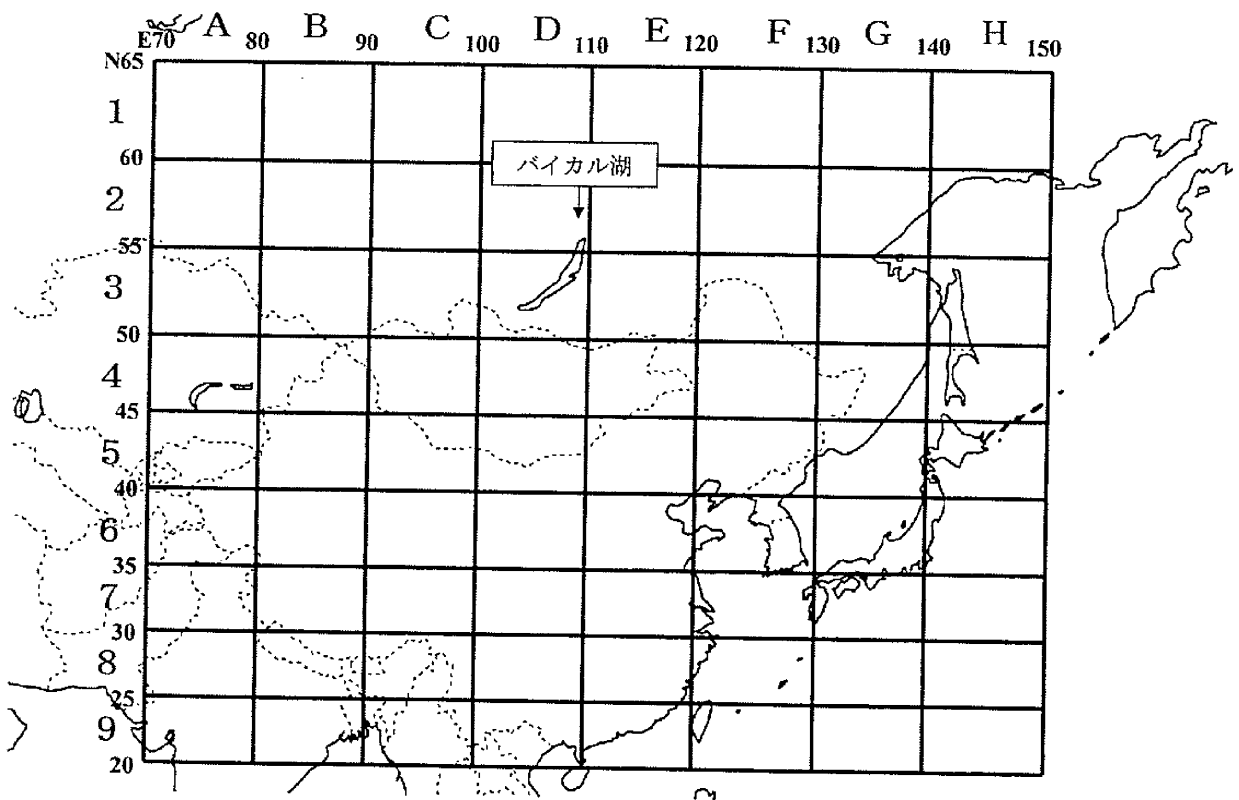


図 4-6 東アジアのメッシュ図

MODIS Rapid Response System の画像を確認したところ、森林火災は少なくとも 2003 年 4 月から 6 月までは継続していたことから、4 月 7 日から 6 月 15 日に採取した各地点 10 個の試料について、火災が発生していたとみられるメッシュ No.D3、E3 及び F3 のヒット総数と全  $\alpha$  放射能濃度の関係を検討した。図 4-7(a)に示すように、ヒット総数と全  $\alpha$  放射能濃度には正の相関関係がみられ、地点ごとにヒット総数と全  $\alpha$  放射能濃度の回帰分析を行った結果、決定係数( $R^2$ )は 0.391~0.616 であった。

また、比較対照として、2002 年 4 月 8 日から 5 月 12 日までに採取した各地点 5 個の試料について、同様の解析を行った。この期間は、2003 年の検討の時期と同じ季節であり、全  $\alpha$  放射能濃度の 2002 年の最大値が観測された期間を含んでいる。MODIS Rapid Response System の画像により確認したところ、この時期バイカル湖周辺地域において、大規模な森林火災はみられなかった。結果は図 4-7(b)に示すように、ヒット総数と全  $\alpha$  放射能濃度の間に相関は認められず、両者の関係に森林火災が寄与していることが確認された。

Po は熱により揮発する性質を持つため、サバンナにおける植物の燃焼により大気中の  $^{210}\text{Po}$  濃度に上昇がみられたとの報告<sup>11)</sup>や北太平洋において採取されたエアロゾルにシベリアの森林火災が起源と考えられる  $^{210}\text{Po}$  が測定されたとの報告がある<sup>12)</sup>。本調査において、 $^{210}\text{Po}$  は全  $\alpha$  放射能の主要な寄与核種と考えられており、2003 年 5 月における大気中全  $\alpha$  放射能濃度の特異的な上昇は、ロシア・バイカル湖付近の森林火災に起因する可能性が大きいものと考えられる。

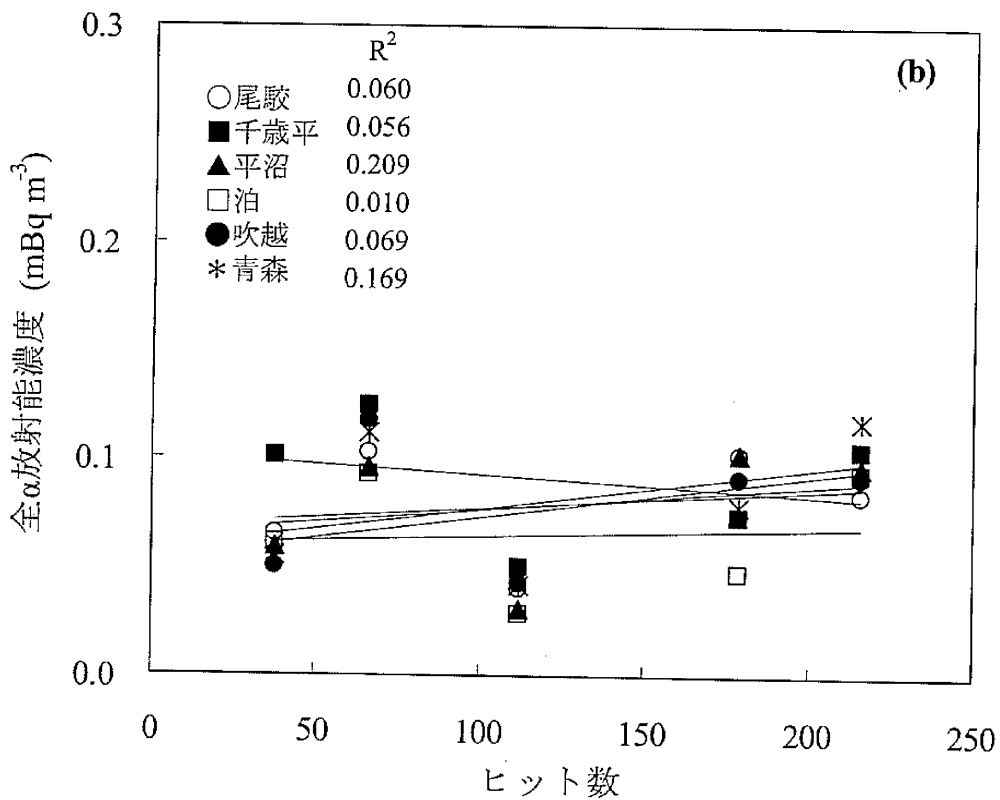
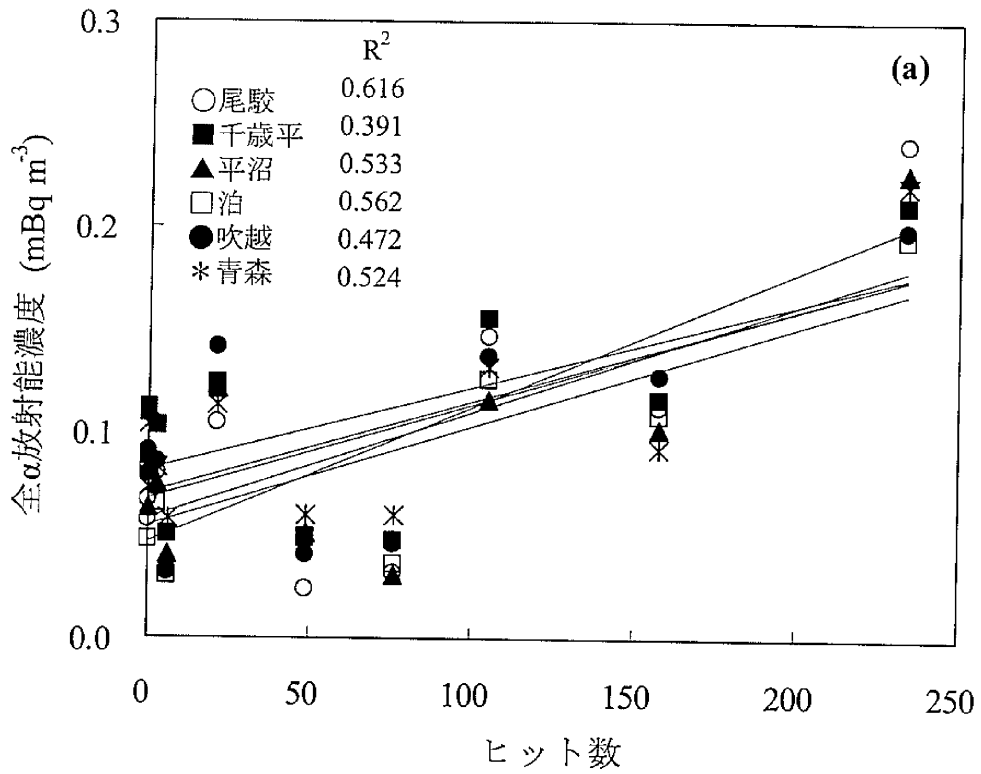


図 4-7 全 $\alpha$ 放射能濃度とメッシュ D3、E3 及び F3 における流跡線のヒット総数の関係  
 (a) 2003 年 4 月 7 日～2003 年 6 月 15 日：森林火災が確認されている期間  
 (b) 2002 年 4 月 8 日～2002 年 5 月 12 日：比較対照期間

## 参 考 文 献

- 1) S. E. Poet, H. E. Moore and E. A. Martell: Lead 210, bismuth 210, and polonium 210 in the atmosphere: Accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination, *J. Geophys. Res.*, **77**, 6515 - 6527 (1972)
- 2) V. D. Vilenskiy: The influence of natural radioactive atmospheric dust in determining the mean stay time of Lead-210 in the troposphere, *Atmos. Oceanic Phys.*, **6**, 307 - 310 (1970)
- 3) H. E. Moore, S. E. Poet and E. A. Martell:  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ , and  $^{210}\text{Po}$  profiles and aerosol residence times versus altitude, *J. Geophys. Res.*, **78**, 7065 - 7075 (1973)
- 4) S. Tsunogai and K. Fukuda: Pb-210, Bi-210 and Po-210 in meteoric precipitation and the residence time of tropospheric aerosol, *Geochem. J.*, **8**, 141 - 152 (1974)
- 5) T. Tokieda, K. Yamanaka, K. Harada and S. Tsunogai: Seasonal variations of residence time and upper atmospheric contribution of aerosols studied with Pb-210, Bi-210, Po-210 and Be-7, *Tellus*, **48B**, 690 - 702 (1996)
- 6) N. Hussain, T. M. Church and A. J. Veron: Radon daughter disequilibria and lead systematics in the western North Atlantic, *J. Geophys. Res.*, **103** (D13), 16059 - 16071 (1998)
- 7) G. Kim, N. Hussain and T. M. Church: Excess  $^{210}\text{Po}$  in the coastal atmosphere, *Tellus*, **52B**, 74 - 80 (2000)
- 8) M. P. Bacon and A. W. Elzerman: Enrichment of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  in the sea-surface microlayer, *Nature*, **284**, 332 - 334 (1980)
- 9) G. Lambert, B. Ardouin and G. Polian: Volcanic output of long-lived radon daughters, *J. Geophys. Res.*, **87** (C13), 11103 - 11108 (1982)
- 10) N. Ashikawa, N. Syojo, H. Imamura, M. Fujisaki, N. Matsuoka and Y. Takashima: The size distribution of  $^{210}\text{Po}$  in the atmosphere around Mt. Sakurajima in Kagoshima prefecture, Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **230**, 97 - 104 (1998)
- 11) M. F. Le Cloarec, B. Ardouin, H. Cachier, C. Lioussé, S. Neveu and E. -Y. Nho:  $^{210}\text{Po}$  in savanna burning plumes, *J. Atmos. Chem.*, **22**, 111 - 122 (1995)
- 12) M. Uematsu, H. Hattori and M. Minakawa: Atmospheric transport of natural and anthropogenic substances from East Asia over the NW Pacific, *Geochimica et Cosmochimica Acta Supplement*, **67**, 500 (2003)

- 13) 木村秀樹, 高橋秀昭, 齋藤 稔: 大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の起源の推定, 保健物理, **43**, No.1 (2008)に掲載予定
- 14) Y. Fujinuma: Data analysis and graphic display system for atmospheric research using PC, CGER-M014-2003 (2003)
- 15) H. Kimura, M. Noda, Y. Kimura, H. Takegahara, H. Takahashi, Y. Watanabe, M. Saito and S. Matsubara: Variation of gross  $\beta$  radioactivity and  $^{210}\text{Pb}$  concentration in air dust, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*, p.427, Rokkasho, Aomori, Japan, October 22-24 (2003)
- 16) 金 益和, 池辺幸正, 飯田孝夫, 下 道國, 山西弘城, 郭 秋菊, 阿部史朗, 王 作元, 任 天山, 田 徳源, 何 志堅, 范 鑫, 謝 宏如, 楊 孝桐, 李 鎖照, 陸少詳, 張 浩然, 杜 開如: 中国における Passive 法による屋内・外ラドン濃度調査, 保健物理, **26**, 341 - 349 (1991)
- 17) T. Sakashita, M. Doi, Y. Nakamura and T. Iida: A case study of radon-222 transport from continental North-East Asia to the Japanese islands in winter by numerical analysis, *J. Environ. Radioactivity*, **72**, 245 - 257 (2004)
- 18) 菅田誠治: 黄砂の多寡をもたらすもの, 国立環境研究所ニュース, **22** (No.5), 8-9 (2003)
- 19) 宇宙航空研究開発機構地球観測研究センター: 気候変動の解明に向けて - Global Imager がとらえた地球, p54-55 (2006)
- 20) <http://rapidfire.sci.gsfc.nasa.gov/realtime/2003128/> (最終確認 2007 年 11 月 29 日)

## 第5章 環境中トリチウム濃度の変動要因

### 5.1 序論

降水中の<sup>3</sup>H濃度は、水爆実験開始前の1951年から1953年では0.14～7.9 Bq L<sup>-1</sup>の範囲であったが、1960年代初めに集中して行われた大気圏内核実験により著しく増加し、オタワでは1963年に700 Bq L<sup>-1</sup>、我が国でも東京、川崎、高知などで12～180 Bq L<sup>-1</sup>が観測された<sup>1)</sup>。その後、大気圏内核実験の停止により、降水中の<sup>3</sup>H濃度は減少し、1990年代に日本各地で測定された値からは、核実験以前の自然レベルに戻りつつあると推定されている。成層圏における<sup>3</sup>Hの平均滞留時間が1～2 yと見積もられていることから、核実験で成層圏に注入された<sup>3</sup>Hのほとんどが対流圏に降下したためと考えられる。

<sup>3</sup>Hは、成層圏において大気と宇宙線との相互作用で生成される核種でもあり、その多くは降水により地上にもたらされる。札幌から徳之島にわたる全国の降水中<sup>3</sup>H調査では、<sup>3</sup>H濃度には緯度依存性がみられ、高緯度ほど濃度が高くなっている。これは、成層圏から対流圏への大気移行が活発な北極からの<sup>3</sup>Hの影響が大きいということと、気象の影響によるものが日本海側に高濃度<sup>3</sup>Hをもたらすという二つの条件の複合効果によるものと推定されている<sup>2)</sup>。

また、中国大陸における<sup>3</sup>H濃度は、我が国より高い。これは、大陸に降下した核実験由来の<sup>3</sup>Hが大陸内で蒸発と降雨を繰り返すことで希釈を受けにくいためと説明されている。海洋は、核実験によりもたらされた<sup>3</sup>Hの大部分を保持しているとされているが、もともとの水の量が膨大なため、海水中<sup>3</sup>H濃度は、陸水に比べて低い。海洋に周囲を囲まれた我が国では、海洋から蒸発した水による希釈効果のため、陸域での<sup>3</sup>Hレベルが中国に比較して低くなっている。ただし、地下水には、過去の核実験の影響を受けた<sup>3</sup>H濃度の高い水が残っている場合があり、河川水は地下水を主な源とするため、<sup>3</sup>H濃度が降水より高い傾向がある<sup>3)</sup>。

<sup>3</sup>Hは、再処理工場からの放出量が多い核種であることから、青森県においては、1989年から六ヶ所再処理工場周辺地域において、大気、降水、飲料水、河川水、湖沼水、海水等を対象として<sup>3</sup>Hの調査を行っている。大気中の<sup>3</sup>H (T)の化学形は、水蒸気(HTO)、水素(HT)及びメタン(CH<sub>3</sub>T)に大別される。現在の環境大気中濃度は、HT>HTO>CH<sub>3</sub>Tの順であるとされているが<sup>4)</sup>、吸入摂取した場合の線量係数はHTOが最も大きいことから<sup>5)</sup>、モニタリングではHTOを対象としている。大気中HTO濃度(mBq m<sup>-3</sup>)は、大気中

の水分中濃度( $\text{Bq L}^{-1}$ )と大気中水分量( $\text{mL m}^{-3}$ )の積で表されるため、大気中水分量すなわち絶対湿度が高くなる夏に高く、冬に低くなる季節変動を示す。しかし、水分中濃度は大気に付与された  $^3\text{H}$  の影響を反映しやすいため、再処理工場からの寄与を把握するために有用である。大気水分中の  $^3\text{H}$  濃度に影響を与える自然環境における因子として、成層圏からの流入、中国大陸からの移流、HT の土壌細菌による酸化<sup>6)</sup>等が挙げられる。本研究では、成層圏からの流入による影響を把握するため、八甲田山頂における大気及び降水中  $^3\text{H}$  濃度の調査結果について考察した<sup>7)</sup>。

また、青森県六ヶ所村には、いくつかの湖沼が点在している。このうち、尾駁沼（おぶちぬま）は六ヶ所再処理工場に近接している汽水湖であり、再処理工場から海洋に放出された液体廃棄物が海水とともに流入する可能性がある。本研究では、尾駁沼における湖沼水中  $^3\text{H}$  の自然変動の状況について、流入河川や前面海域等を含めて調査した結果を考察した<sup>8)</sup>。

## 5.2 実験

### (1) 調査地点

#### a. 大気及び降水中トリチウム

八甲田山は青森県の中央部に位置する連峰であり、その一つである標高 1326 m の田茂菴岳（たもやちだけ）は、ロープウェイにより頂上まで登ることができる。この山頂に建設されている無線中継局舎に、1993年8月3日から1995年8月7日までの2年間、大気中トリチウムサンプラと降水採取器を設置し、大気中水分と降水の採取を行った。調査地点は、北緯 40 度 40 分 34 秒、東経 140 度 51 分 35 秒（世界測地系）に位置している。大気中水分については、モニタリングステーション(MS)尾駁局及び青森局においても採取しており、図 5-1 に示すように、八甲田山からの距離は、MS 尾駁局まで約 50 km、MS 青森局まで約 20 km であり、標高は、それぞれ 10 m 及び 3 m であった。

#### b. 湖沼水及び河川水中トリチウム

六ヶ所再処理工場の周辺には、図 5-2 に示すように尾駁沼と鷹架沼がある。尾駁沼は、面積  $3.7 \text{ km}^2$ 、容積  $7 \times 10^6 \text{ m}^3$  で、平均水深 2.1 m と比較的浅く、湖底の形状も単純である。流入河川は二又川のみである<sup>9)</sup>。鷹架沼は、六ヶ所再処理工場の南約 1.5 km に位置し、面積  $5.8 \text{ km}^2$ 、平均水深 2.7 m の東西に長い形状である。流入河川は、室ノ久保川、後川

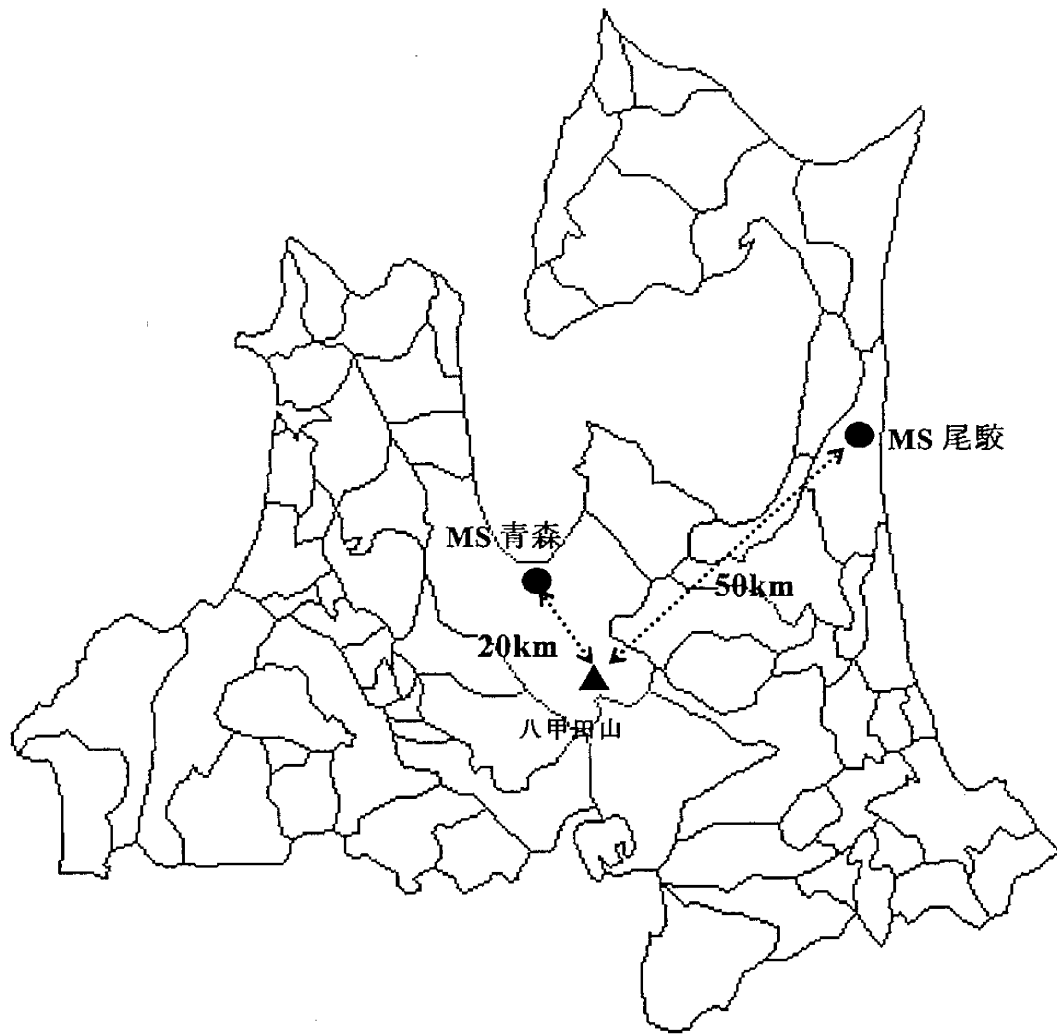


図 5-1 大気及び降水中トリチウム採取地点図

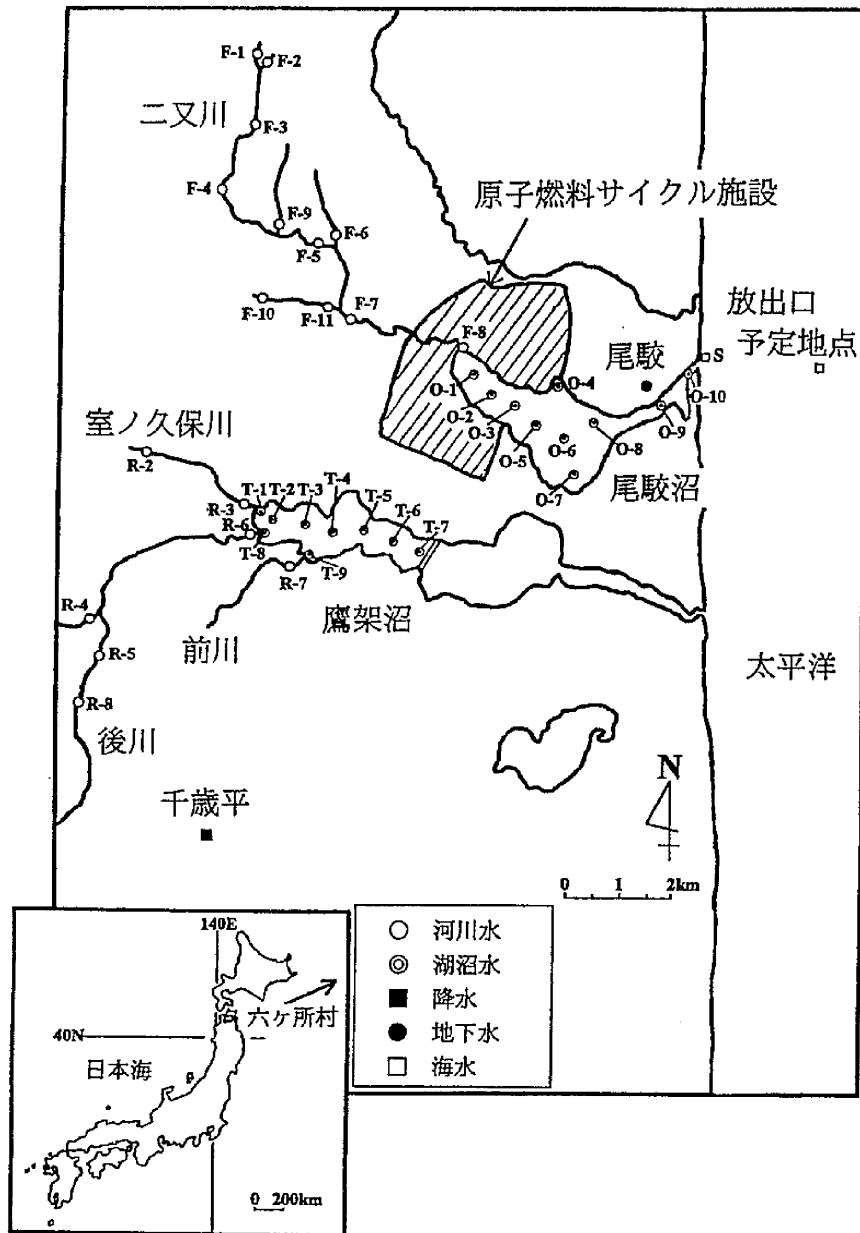


図 5-2 湖沼水、河川水等の採取地点図

及び前川である。この湖沼には、1963年に東側の狭部に、1992年には中央部に防潮堤が建設され、淡水化された。調査は、西半分の淡水部分において行った。調査地点数は、尾駁沼10地点、鷹架沼9地点及び流入河川18地点であった。

河川水に密接に関係する試料として、モニタリングで採取している降水及び地下水についても調査を行った。降水は再処理工場から約9 km南西の千歳平地区において、地下水は再処理工場の東約4 kmの深井戸（取水深度約97 m）から採取した。また、湖沼への海水の流入による影響を評価するため、沿岸海水及び沖合海水についても調査した。沿岸海水は尾駁沼への海水の出入口に当たる尾駁漁港付近において、沖合海水は尾駁沼の沖合2.5 km地点及びその南北20 km地点の計3地点で採取した。

## (2) 試料採取方法

### a. 大気及び降水中トリチウム

大気中トリチウムサンプラの概念図を図5-3に示す。このサンプラは、日本原子力研究開発機構<sup>10)</sup>の採取方法に準じて作製した。環境大気をフィルターでろ過後、まず冷却器に導入し凝縮水をフラスコに収集した。その後、大気をモレキュラーシーブ(3A)カラムに通し、残留した水分を捕集した。凝縮水とカラムは約1週間ごとに回収した。カラムに捕集した水分は、カラムを電気炉で加熱しながら窒素ガスで追い出し、冷却して回収した。このようにして得たカラムの捕集水と凝縮水を合わせて試料とした。モニタリングでは、同様の方法で大気中水分の採取を行っているが、凝縮水とカラムの回収を2週間ごとに行い、回収した水を1箇月分まとめて試料とした。

八甲田山における降水試料の採取は、口径20 cmφのロートを用いた降水採取器により約1週間ごとに行った。ロートに受けた降水は、下部に取り付けたメンブランフィルターでろ過し、ポリエチレン瓶に集めた。冬季は、口径25 cmφの塩化ビニール管にポリエチレン袋を取り付け、降雪を直接採取した。

### b. 湖沼水及び河川水中トリチウム

湖沼水については、表面水は調査船上からポリエチレン瓶に直接採取し、底層水はバンドン採水器を用いて湖底から約50 cm上層の水を採取した。河川水は、流心からポリエチレン瓶に直接採取した。モニタリング試料における降水は、口径20 cmのヒーター付き降水採取器により、年間を通じて1箇月ごとに採取した。地下水は、採水深度が約

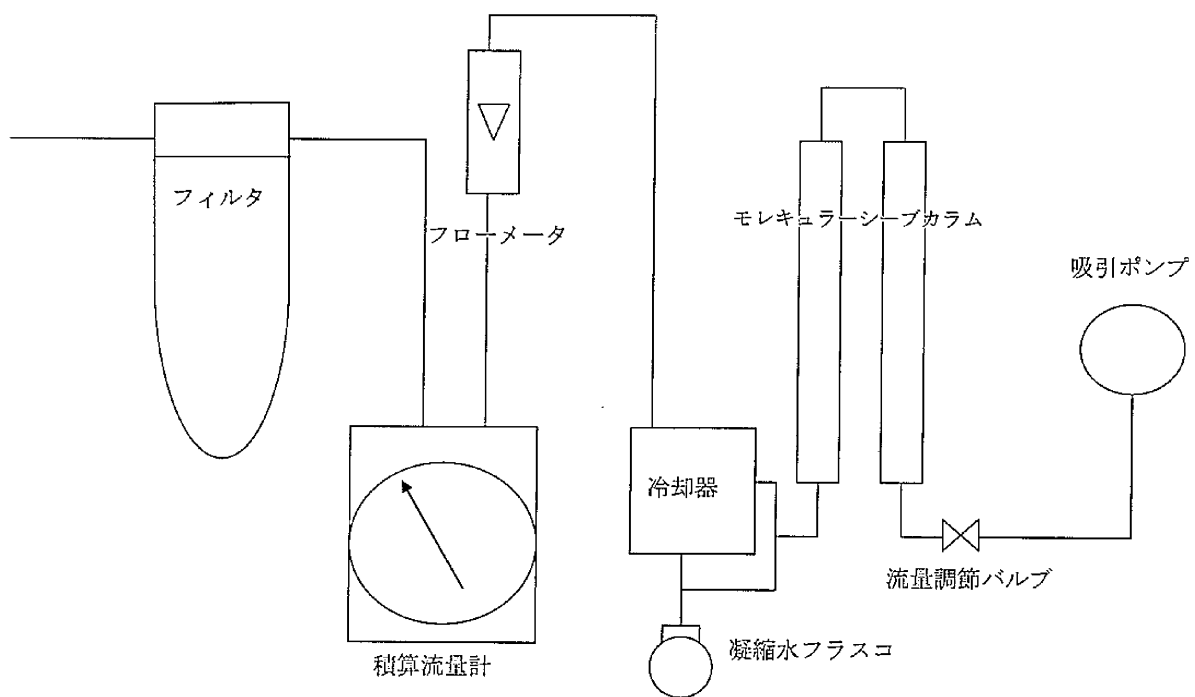


図 5-3 大気中トリチウムサンプラ概念図

97 m の深井戸からポンプで汲み上げて採取した。沿岸海水は、岸壁からロープを取り付けたバケツにより表面水を採取した。沖合海水は、調査船の底部から海水をポンプで汲み上げて採取した。

### (3) 装置

測定装置として、アロカ(株)製の低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置 LSC-LB I、LSC-LB II 及び LSC-LB III を用いた。液体シンチレータは、New England Nuclear 社の AQUASOL-2、測定バイアルは、100 mL のテフロンバイアルを用いた。また、湖沼水及び海水の塩分測定には、鶴見精機(株)製のサリノメータを用いた。

### (4) 測定方法

$^3\text{H}$  の測定は、文部科学省の測定法シリーズに準拠して行った<sup>11)</sup>。八甲田山で採取した大気中水分、尾駸沼で採取した湖沼水、沿岸海水及び沖合海水については、電解濃縮法により  $^3\text{H}$  濃度を高めた後、蒸留により精製し、液体シンチレータと混合して測定試料とした。その他の試料は、蒸留により精製した後、液体シンチレータと混合して測定試料とした。液体シンチレーション計測は、1 試料当たり 500 ~ 1000 min 行った。

湖沼水及び海水の塩分測定は、サリノメータを用い、海洋観測指針に従って実施した。塩分は標準海水の電気伝導度との比で定義されており、測定値は無次元である。

## 5.3 結果と考察

### (1) 大気及び降水中トリチウム

八甲田山頂で採取した大気水分中  $^3\text{H}$  濃度及び降水中  $^3\text{H}$  濃度の推移を図 5-4 に示す。どちらの試料についても、 $^3\text{H}$  濃度は春から夏にかけて明確な上昇傾向を示している。高島<sup>2)</sup>は福岡市における降水中及び大気水分中  $^3\text{H}$  の濃度変化について、石田ら<sup>10)</sup>は茨城県東海村における大気水分中  $^3\text{H}$  の濃度変化について報告しているが、いずれの場合も明確な季節変化はみられていない。八甲田山は、福岡市や東海村より高緯度に位置し、標高も高いため、成層圏から対流圏への  $^3\text{H}$  の流入による影響がみられているものと推定される。

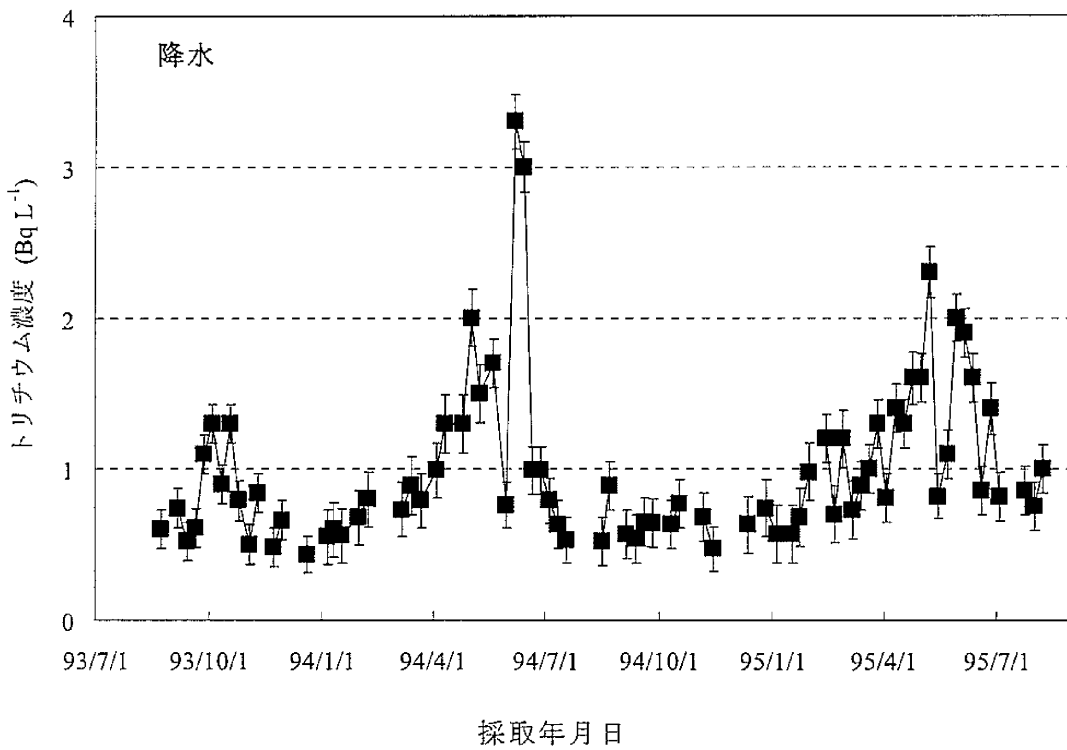
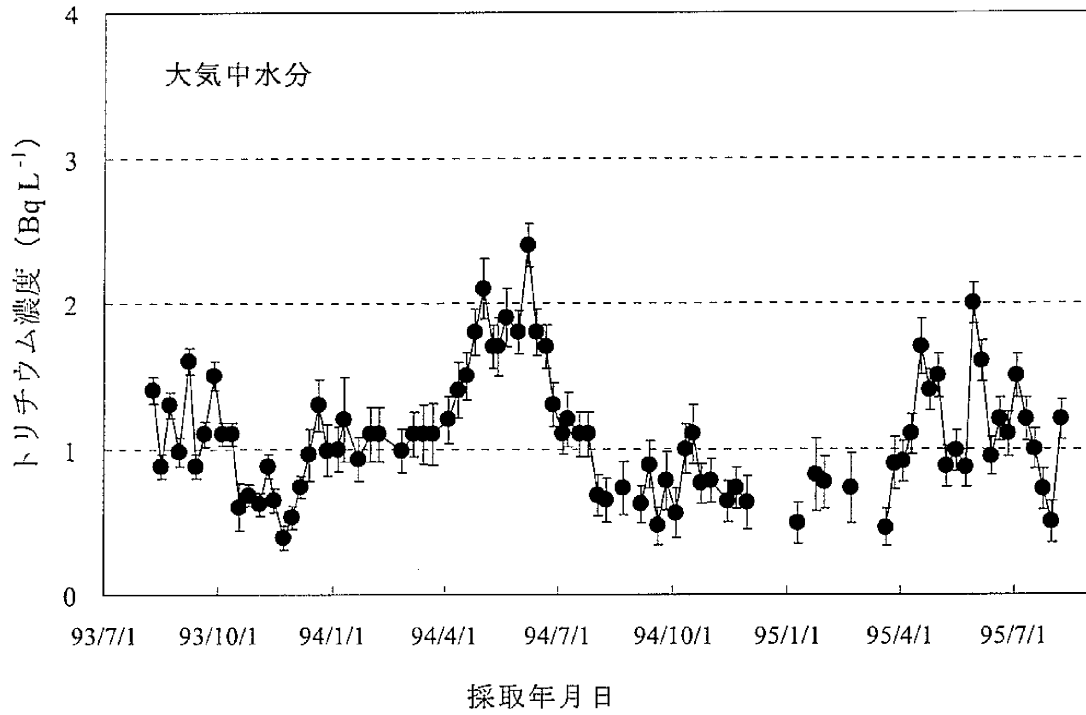


図 5-4 八甲田山における大気水分及び降水中トリチウム濃度の推移

これらの試料について、水としての特性を比較するため、質量分析法による重水素の測定を行った。同位体比の千分率偏差  $\delta D$  の平均値は、表 5-1 に示すとおり大気中水分の値が降水より 68 %低くなった。物質 A と物質 B に対する  $\delta D$  と同位体分別係数  $\alpha_{A-B}$  の関係は近似的に次のように表すことができる。

$$1000 \ln \alpha_{A-B} = \delta D_B - \delta D_A \quad \dots \dots (5.1)$$

ここで、 $\alpha_{A-B} = R_A/R_B$ ,

$$\delta D_A = [(R_A/R_S)-1] \times 1000 (\text{‰})$$

$R_A$  : 物質 A における同位体比 D/H

$R_S$  : 標準試料 S における同位体比 D/H

酒井ら<sup>12)</sup>は、25°Cにおける水蒸気と水の  $1000 \ln \alpha_{A-B}$  を-76 %としており、八甲田山で採取した大気中水分と降水における  $\delta D$  の差 ( $\delta D_{\text{vapor}} - \delta D_{\text{rain}}$ ) は、この値に近い値となった。このことは、大気中水分の多くが降水の蒸発により形成されていることを示唆している。しかし、表 5-1 に示すように、このような効果は<sup>3</sup>Hについてはみられなかった。降水中<sup>3</sup>H濃度に対する大気水分中<sup>3</sup>H濃度の比が1以上になったデータは、本研究で得られたデータの65%を占めており、大気水分中濃度の方が高くなる傾向を示している。このため、<sup>3</sup>Hについては、外部からこの地域への流入による寄与が大きいものと考えられる。

モニタリングで実施している大気水分中<sup>3</sup>H調査の結果を図 5-5 に示す。この図では、1993年9月から1995年8月までのMS尾駁局及びMS青森局の結果とともに、八甲田山における調査結果の1箇月平均値を併せてプロットした。いずれも同様の変動パターンを示しているが、MS尾駁局及びMS青森局と比較して八甲田山の方が高めの値となった。

早狩ら<sup>13)</sup>は、八甲田山頂においてオゾン濃度の連続測定を実施し、春から夏にかけて高くなる傾向を示すことを報告している。オゾン濃度が高くなるときには、上空の乾燥空気の沈降が認められ、成層圏オゾンの寄与が推定されるとしている。成層圏は、<sup>3</sup>Hの供給源でもあるため、大気水分中<sup>3</sup>H濃度とオゾン濃度の関係について考察した。大気中オゾン濃度は1時間ごとに得られるため1週間の平均値とし、大気水分中<sup>3</sup>H濃度とともに1年間の推移を表したのが図 5-6 である。両者とも春から夏にかけて高くなる季節変動を示しており、濃度が高くなる時期の変動パターンもよく似ている。大気中オゾン濃度と大気水分中<sup>3</sup>H及び降水中<sup>3</sup>Hの関係を示したのが図 5-7 である。高濃度領域で

表 5-1 八甲田山における大気水分及び降水中の  $\delta D$  及びトリチウム濃度

試 料	$\delta D$ (‰)		トリチウム濃度 (Bq L <sup>-1</sup> )	
	平 均	最小～最大	平 均	最小～最大
大気水分	-133	-194 ~ -77	1.1	ND ~ 2.4
降 水	-65	-132 ~ -16	1.0	ND ~ 3.3

ND : 検出限界以下

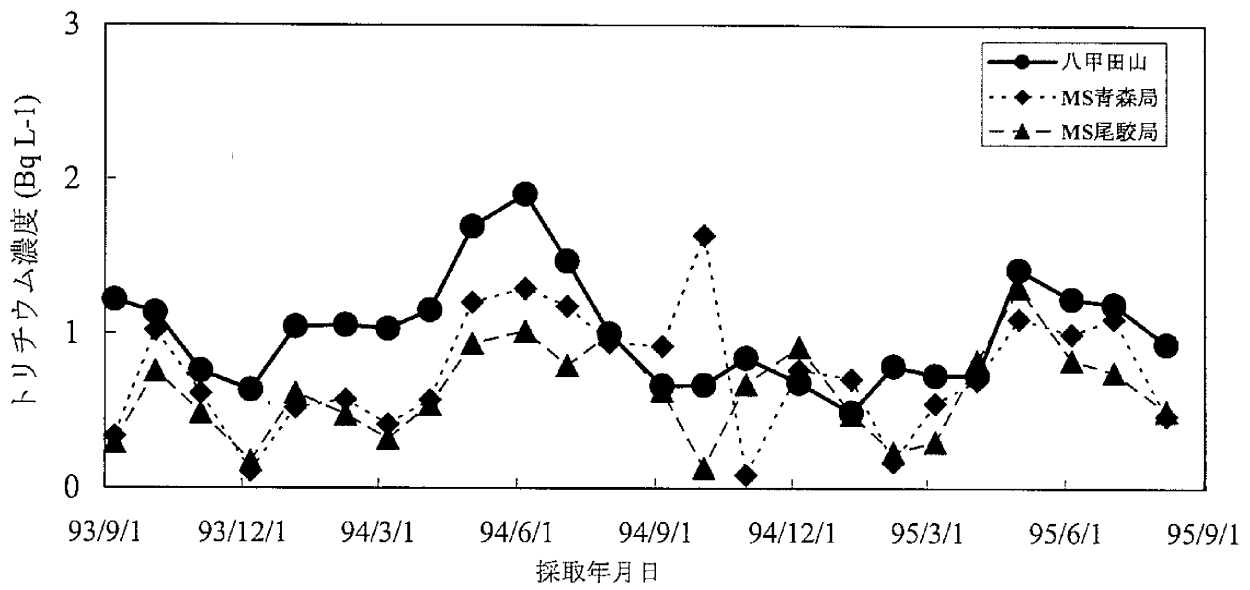


図 5-5 八甲田山、MS 青森局及び MS 尾駁局における大気水分中トリチウム濃度の推移

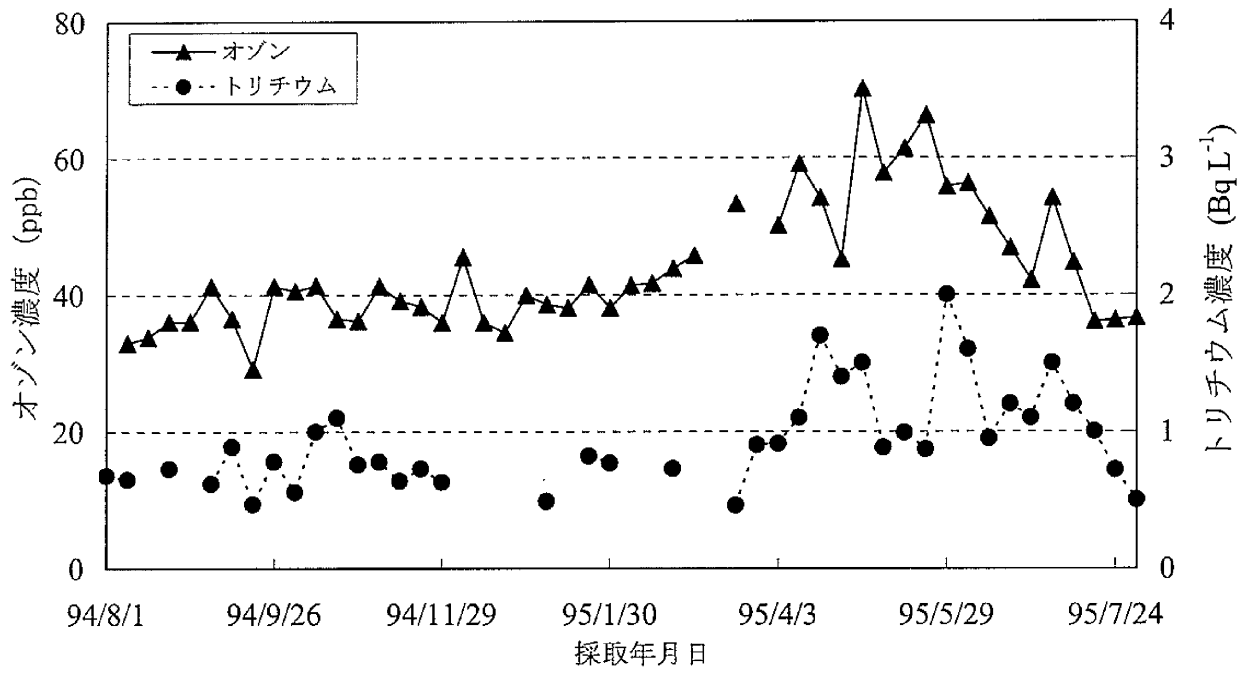


図 5-6 八甲田山における大気中オゾン濃度と大気水分中トリチウム濃度の推移

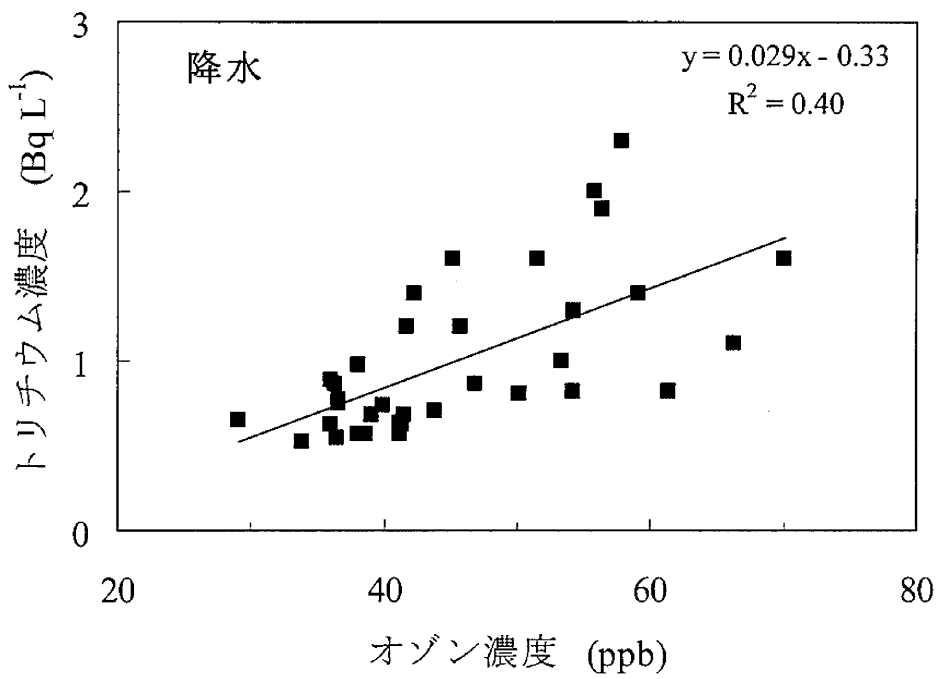
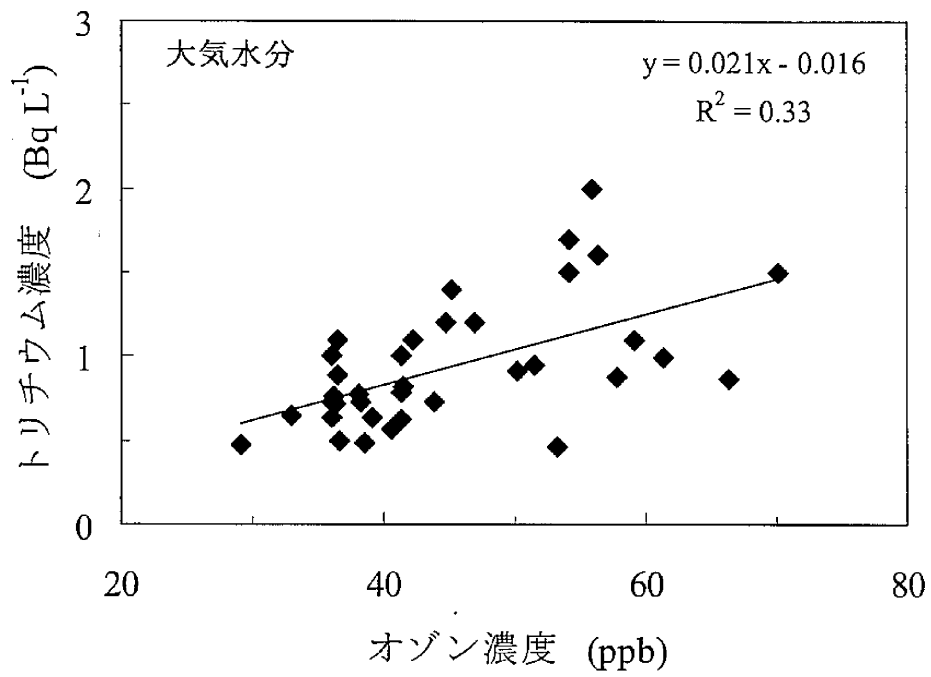


図 5-7 八甲田山における大気中オゾン濃度と大気水分及び降水中トリチウム濃度の関係

分散が大きくなっているが、いずれの場合も正の相関関係が認められた。

大気及び降水中  $^3\text{H}$  濃度に影響を与える因子としては、比較的  $^3\text{H}$  濃度の高い中国大陸からの大気の流入や土壌細菌による HT の HTO への酸化も考えられるため、今後これらの影響についても検討する必要があるが、成層圏からの流入の影響評価のために、大気中オゾン濃度を活用できるものとする。

## (2) 湖沼水及び河川水中トリチウム

尾駁における地下水中  $^3\text{H}$  濃度を表 5-2 に示す。地下水中  $^3\text{H}$  は採取時期による変動が小さく、1993 年 4 月から 1994 年 3 月における降水中平均  $^3\text{H}$  濃度約  $0.6 \text{ Bq L}^{-1}$  より高い。宮本ら<sup>14)</sup>は、この地域にフォールアウトレベルが高かった時期の降水を多く含む帯水層があることを報告しており、尾駁における地下水にもその寄与があるものと考えられる。

尾駁沼及び鷹架沼に流入する河川水中  $^3\text{H}$  濃度を表 5-3 に示す。二又川は 1993 年 8 月及び 1994 年 4 月に、その他の河川は 1993 年 9 月及び 1994 年 4 月に試料採取を行った。 $^3\text{H}$  濃度に河川による違いはあまりみられなかったが、1993 年に採取した試料より 1994 年に採取した試料の  $^3\text{H}$  濃度が低くなった。1994 年は春に試料採取を行っており、地下水より濃度レベルが低い雪解け水の寄与が大きかったためと考えられる。

鷹架沼における湖沼水中  $^3\text{H}$  濃度を表 5-4 に示す。 $^3\text{H}$  濃度に採取地点及び採取時期による違いはみられなかった。表面水中  $^3\text{H}$  濃度は、降水より高く、流入量が多い後川と同程度であった。また、底層水の  $^3\text{H}$  濃度は、表面水よりやや低めであるが、大きな違いはみられなかった。

尾駁沼における湖沼水中  $^3\text{H}$  及び塩分を表 5-5 に示す。1993 年 8 月における調査では、塩分は河川の流入部で低くなっているが、それ以外の地点ではほぼ同じレベルであった。底層水については、表面水より高くなる傾向を示し、最深部（深度 4.7 m）の地点 O-6 において顕著であった。また、 $^3\text{H}$  濃度は、底層水でやや低くなる傾向を示した。これらのことから、夏季に弱い塩分躍層の形成が示唆される。一方、1994 年 4 月の調査では、塩分及び  $^3\text{H}$  濃度に表面水と底層水の違いはみられず、淡水と海水の混合が十分行われていると考えられる。尾駁沼が面する海域における海水中  $^3\text{H}$  濃度は  $0.25 \sim 0.33 \text{ Bq L}^{-1}$  であり、河川水に比べて低い。海水の塩分は 34 であり、尾駁沼では、塩分が高く  $^3\text{H}$  濃度が低い海水と塩分が低く  $^3\text{H}$  濃度が高い河川水が入り交じっており、その混合状態は季節により変化していることが考えられる。

表 5-2 六ヶ所村尾駁における地下水中トリチウム濃度

単位：Bq L<sup>-1</sup>

採取年月	1993 年	1994 年	1995 年
1 月	—	2.6 ± 0.18	2.0 ± 0.21
4 月	2.1 ± 0.28 <sup>*1</sup>	2.3 ± 0.19	2.0 ± 0.21
7 月	2.3 ± 0.25	2.1 ± 0.26	2.1 ± 0.20
10 月	1.9 ± 0.25	2.5 ± 0.23	2.0 ± 0.20
平 均		2.2 ± 0.22 <sup>*2</sup>	

\*1 放射線計測における計数誤差（他の測定値も同じ）

\*2 放射能濃度測定データの標準偏差（n=11）

表 5-3 河川水中トリチウム濃度

単位 : Bq L<sup>-1</sup>

採取地点		1993 年	1994 年
室ノ久保川	R-2	1.2 ± 0.13 <sup>*1</sup>	0.98 ± 0.21
	R-3	0.91 ± 0.14	0.81 ± 0.21
後川	R-4	1.5 ± 0.14	1.1 ± 0.22
	R-5	1.0 ± 0.13	1.1 ± 0.22
	R-6	1.3 ± 0.14	1.1 ± 0.22
	R-8	—	1.3 ± 0.22
前川	R-7	2.0 ± 0.14	1.2 ± 0.22
二又川	F-1	0.85 ± 0.13	ND <sup>*2</sup>
	F-2	1.0 ± 0.13	ND
	F-3	1.0 ± 0.13	ND
	F-4	1.0 ± 0.13	ND
	F-5	0.95 ± 0.13	ND
	F-6	1.2 ± 0.14	0.71 ± 0.18
	F-7	1.5 ± 0.14	0.68 ± 0.18
	F-8	1.3 ± 0.14	0.90 ± 0.19
	F-9	—	0.98 ± 0.19
	F-10	—	0.94 ± 0.19
	F-11	—	1.1 ± 0.19

\*1 放射線計測における計数誤差（他の測定値も同じ）

\*2 検出限界以下

表 5-4 鷹架沼における湖沼水中トリチウム濃度

単位 : Bq L<sup>-1</sup>

採取地点	1993年9月		1994年4月	
	表面水	底層水	表面水	底層水
T-1	1.3 ± 0.14 <sup>*1</sup>	—	0.88 ± 0.18	—
T-2	1.2 ± 0.14	—	0.87 ± 0.18	—
T-3	1.2 ± 0.14	0.99 ± 0.13	1.0 ± 0.19	0.66 ± 0.18
T-4	0.87 ± 0.14	0.90 ± 0.13	0.78 ± 0.19	0.65 ± 0.19
T-5	1.0 ± 0.14	0.77 ± 0.14	1.4 ± 0.19	1.2 ± 0.19
T-6	1.2 ± 0.14	0.79 ± 0.13	0.95 ± 0.18	0.65 ± 0.18
T-7	0.80 ± 0.14	0.59 ± 0.13	1.1 ± 0.19	1.2 ± 0.18
T-8	1.3 ± 0.13	—	1.3 ± 0.18	—
T-9	0.89 ± 0.14	—	1.5 ± 0.18	—
平均	1.1 ± 0.20 <sup>*2</sup>	0.81 ± 0.15	1.1 ± 0.25	0.87 ± 0.30

\*1 放射線計測における計数誤差 (他の測定値も同じ)

\*2 放射能濃度測定データの標準偏差 (他の平均値も同じ : n=9 又は n=5)

表 5-5 尾駁沼における湖沼水中トリチウム濃度と塩分

単位 トリチウム：Bq L<sup>-1</sup>  
塩分：無次元

採取地点	1993年8月						1994年4月					
	表面水			底層水			表面水			底層水		
	トリチウム	塩分	トリチウム	トリチウム	塩分	トリチウム	トリチウム	塩分	トリチウム	トリチウム	塩分	
O-1	0.97 ± 0.055 <sup>*1</sup>	5.1	0.98 ± 0.055	0.80 ± 0.032	5.2	0.80 ± 0.032	0.88 ± 0.031	10.2	0.88 ± 0.031	10.3	10.3	
O-2	0.85 ± 0.055	8.1	0.59 ± 0.054	0.85 ± 0.032	20.4	0.85 ± 0.032	0.90 ± 0.033	10.4	0.90 ± 0.033	10.4	10.4	
O-3	0.55 ± 0.051	15.8	0.36 ± 0.050	0.80 ± 0.031	27.6	0.80 ± 0.031	0.82 ± 0.032	10.3	0.82 ± 0.032	10.5	10.5	
O-4	0.59 ± 0.051	16.4	—	0.85 ± 0.032	—	0.85 ± 0.032	—	10.4	—	—	—	
O-5	0.56 ± 0.052	17.0	0.51 ± 0.045	0.90 ± 0.032	26.0	0.90 ± 0.032	0.83 ± 0.052	10.3	0.83 ± 0.052	10.3	10.3	
O-6	0.71 ± 0.048	16.1	0.41 ± 0.045	0.83 ± 0.052	28.7	0.83 ± 0.052	0.86 ± 0.054	10.4	0.86 ± 0.054	10.5	10.5	
O-7	0.44 ± 0.047	23.3	0.44 ± 0.048	0.83 ± 0.052	24.4	0.83 ± 0.052	0.63 ± 0.055	10.5	0.63 ± 0.055	10.5	10.5	
O-8	0.63 ± 0.047	16.9	—	0.86 ± 0.052	—	0.86 ± 0.052	—	10.5	—	—	—	
O-9	0.54 ± 0.046	19.2	—	0.76 ± 0.052	—	0.76 ± 0.052	—	10.9	—	—	—	
O-10	0.63 ± 0.047	19.3	—	0.83 ± 0.052	—	0.83 ± 0.052	—	11.5	—	—	—	
	0.65 ± 0.16 <sup>*2</sup>	15.7 ± 5.1	0.55 ± 0.23	0.83 ± 0.038	22.1 ± 8.7	0.83 ± 0.038	0.82 ± 0.098	10.5 ± 0.4	0.82 ± 0.098	10.4 ± 0.1	10.4 ± 0.1	

\*1 放射線計測における計数誤差 (他の測定値も同じ)

\*2 放射能濃度測定データの標準偏差 (他の平均値も同じ； n=10 又は n=6)

尾駱沼における湖沼水の季節変化を把握するため、1995年5月から12月までに月1回の頻度で調査を行った。調査地点は、二又川河口部(F-8)、尾駱沼西部(O-1)、尾駱沼湖心部(O-6)、尾駱沼開口部(O-10)及び沿岸海域(S)の5地点とした。F-8における河川水中 $^3\text{H}$ 濃度は、 $1.1\sim 1.4\text{ Bq L}^{-1}$ であり、採取時期によらずほぼ一定であった。図5-8にO-6で採取した湖沼水中 $^3\text{H}$ 濃度(a)と塩分(b)の変化を示す。この地点は湖沼の最深部であり、表5-5に示すように、1993年8月の調査で、表面水と底層水の塩分の差が最も大きかった地点である。 $^3\text{H}$ 濃度は、春に高く夏から秋に低くなる季節変化を示し、底層水の方が低い傾向がみられた。塩分については、底層水における測定値が大きく、表面水との差は夏に大きくなっていることがわかる。尾駱沼については、植田ら<sup>15)</sup>により、年間を通じて深さ1~3 mの間に安定した塩分躍層が形成されており、夏季には特に顕著になることが確認されている。

図5-9(a)は、1993年8月と1994年4月に採取した尾駱沼の湖沼水及び二又川河口部(F-8)の河川水中塩分と $^3\text{H}$ 濃度の関係を示したものである。表5-5に示すように、この2つの時期は湖沼の状況が異なっていたが、調査時期によらず、塩分と $^3\text{H}$ 濃度は明確な負の相関を示した。図5-9(b)は、1995年5月から12月に採取した尾駱沼の湖沼水、二又川河口部(F-8)の河川水及び沿岸海水、1994年5月及び10月に採取した沖合海水について、塩分と $^3\text{H}$ 濃度の関係を示したものである。こちらも、高い負の相関関係にあることが確認された。また、(a)と(b)の回帰式がほぼ同じとなった。これらのことから、尾駱沼の湖沼水中 $^3\text{H}$ 濃度は、二又川の河川水と海水の単純な混合により説明が可能であり、塩分が海洋起源の $^3\text{H}$ の有用な指標になると考える。

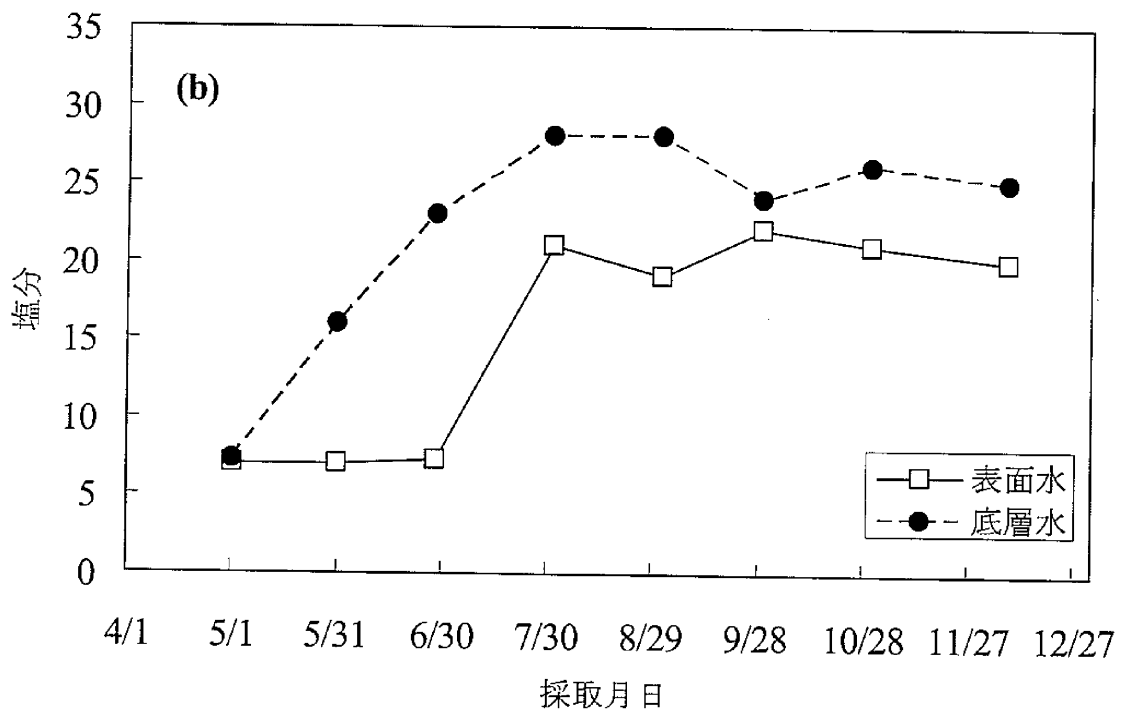
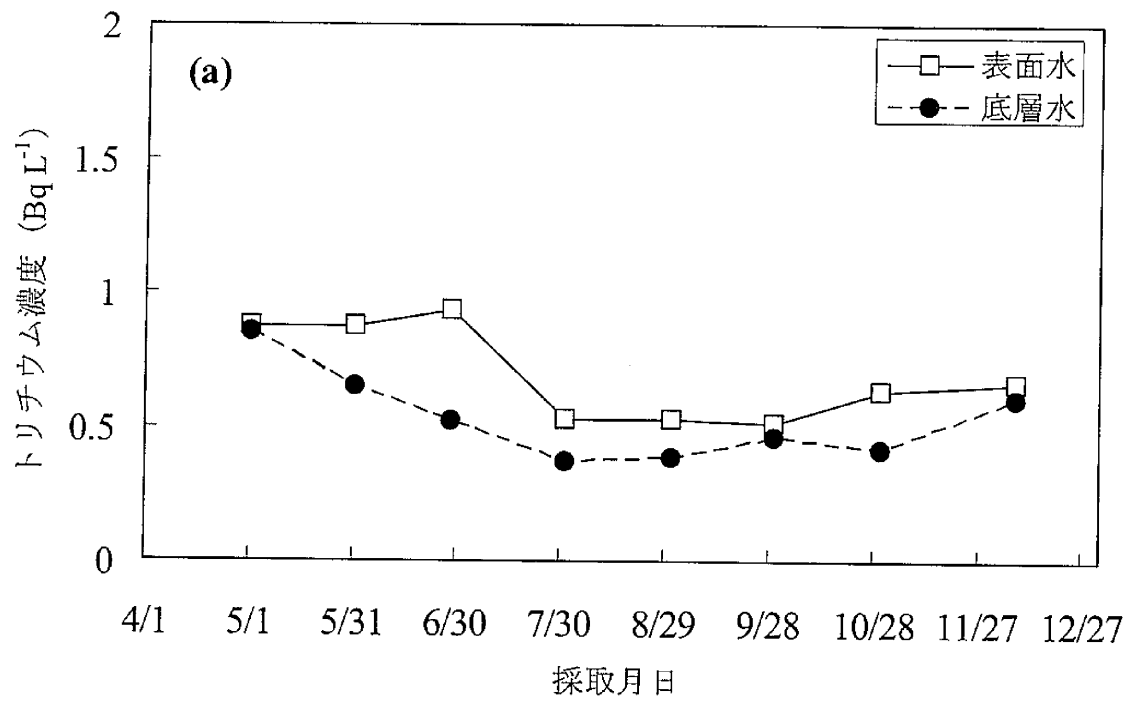


図 5-8 尾駁沼湖心部(O-6)における湖沼水中  
トリチウム濃度(a)と塩分(b)の季節変化

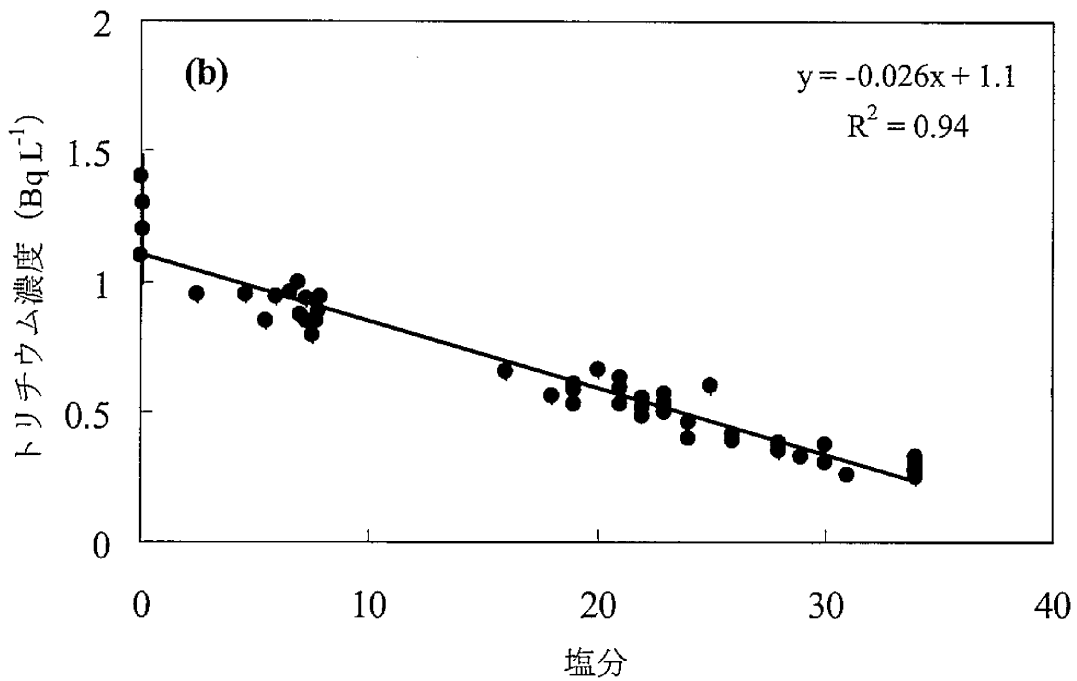
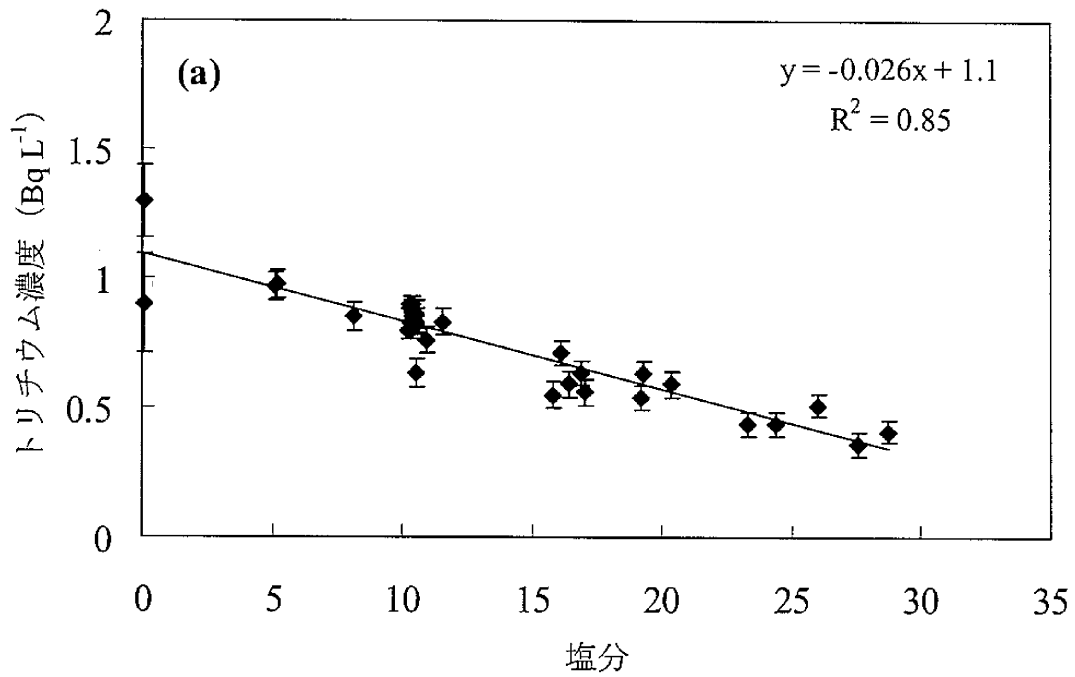


図 5-9 湖沼水、河川水等における塩分とトリチウム濃度の関係  
 (a) 尾駁沼、二又川河口部(F-8)：1993年8月及び1994年4月  
 (b) 尾駁沼、二又川河口部(F-8)、沿岸海域(S)：1995年5月～12月  
 沖合海域：1994年5月及び10月

## 参 考 文 献

- 1) 百島則幸: トリチウムの影響と安全管理, IV環境中トリチウム挙動, IV-1 グローバルおよび我が国における環境中トリチウムの分布と挙動, 日本原子力学会誌, **39** (No.11), 13 - 15 (1997)
- 2) 高島良正: 環境トリチウム—その挙動と利用, *RADIOISOTOPES*, **40**, 520 - 530 (1991)
- 3) 仲川隆夫, 佐藤 修, 橋本哲夫: 新潟県における近年の河川水と降水のトリチウム濃度, *RADIOISOTOPES*, **38**, 434 - 439 (1989)
- 4) N. Momoshima, T. Okai, T. Kaji and Y. Takashima: Distribution and transformation of various chemical forms of tritium in the environment, *Radiochimica. Acta.*, **54**, 129 - 132 (1991)
- 5) International Commission on Radiological Protection: ICRP Publication 72: Age-dependent doses to the members of the public from intake of radionuclides PART 5, Compilation of ingestion and inhalation coefficients (2007)
- 6) 野口 宏, 加藤正平: 環境中におけるトリチウムガスのトリチウム水への転換(文献調査), 保健物理, **20**, 49 - 59 (1985)
- 7) M. Sasaki, H. Kimura, H. Kudou and T. Kudou: Concentrations of tritium in water vapor and precipitation on Mt. Hakkoda, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **243**, 299 -303 (2000)
- 8) K. Tonosaki, H. Kudoh and H. Kimura: Tritium concentrations of natural waters in Rokkasho-mura, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **243**, 579 - 585 (2000)
- 9) 環境庁: 第3回自然環境保全基礎調査 湖沼調査書東北版 (I), 2・52 - 2・66 (1987)
- 10) 石田順一郎、渡辺 均、北原義久: 東海村大気中におけるトリチウムの測定とその挙動, 動燃技報, **62**, 95 - 98 (1987)
- 11) 文部科学省: トリチウム分析法 (平成 14 年改訂)
- 12) 酒井 均, 松久幸敬: 安定同位体地球化学, p84, 東京大学出版会 (1996)
- 13) 早狩 進, 梅原 茂, 吉田 毅, 溝口次夫: 八甲田山におけるバックグラウンドオゾンの挙動, 国立公害研究所研究報告, **123**, 121 - 143 (1989)
- 14) 宮本霧子, 井上義和: 青森県六ヶ所村における陸水圏の水環境, 日本放射線影響学会 第 38 回大会講演要旨集, 321 (1995)
- 15) 植田真司, 川端一史, 久松俊一, 稲葉次郎, 細田昌広, 横山瑞江: 浅い汽水湖尾駁沼における塩分躍層の構造特性に関する研究, 陸水学雑誌, **63**, 125 - 134 (2002)

## 第6章 結 論

六ヶ所再処理工場は、現在、2008年2月の操業開始に向けて、アクティブ試験を実施している。国の安全審査において、操業に伴い放出される放射性物質による施設周辺住民等が受ける線量は年間約0.022 mSvと評価されており、国が定めている年線量限度の1 mSvを十分下回るものであるものの、放出される放射性物質は、環境放射線モニタリングにおいて施設寄与分として検出され得るレベルのものである。

青森県は、六ヶ所再処理工場を含む原子燃料サイクル施設の周辺地域において、住民等の健康と安全を守るため、1989年4月から環境放射線等に係るモニタリングを実施している。モニタリングの基本目標は、環境における原子力施設に起因する放射性物質又は放射線による周辺住民等の線量が、年線量限度を十分に下回っていることを確認することであり、具体的に次の4項目に要約される。

- ①周辺住民等の線量を推定、評価すること
- ②環境における放射性物質の蓄積状況を把握すること
- ③原子力施設からの予期しない放射性物質又は放射線の放出による周辺環境への影響の評価に資すること
- ④異常事態発生の通報があった場合に、平常時のモニタリングを強化するとともに、緊急時モニタリングの準備を開始できるように体制を整えること

青森県は、この考え方に則り、1989年3月に「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」を策定した。モニタリング項目は、空間放射線量率、積算線量、大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能、大気中気体状 $\beta$ 放射能、大気中ヨウ素-131、大気中フッ素、及び環境試料中の放射性核種( $\gamma$ 線放出核種、 $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、Pu同位体、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 及びU)である。

モニタリング結果において、施設から環境への影響を把握し、住民等の線量を現実的に評価するためには、施設寄与分を、環境のバックグラウンド放射線・放射性核種から弁別する必要がある。本研究の目的は、六ヶ所再処理工場操業前のモニタリング結果を解析することにより、同工場に起因する放射線・放射性核種を弁別して評価する方法を確立することである。

空間放射線量率は、主に降雨・降雪により大気中に浮遊している $^{222}\text{Rn}$ の壊変生成物が地上へ落下することにより上昇することが知られており、主な寄与核種は、 $^{214}\text{Pb}$ 及び $^{214}\text{Bi}$

である。また、空間放射線量率は、積雪により大地からの放射線が遮へいされることにより低下する。降水により地上へ落下する  $^{214}\text{Bi}$  を空間放射線量率上昇の指標、土壌に含まれる  $^{208}\text{Tl}$  を空間放射線量率低下の指標とし、SCAにより測定したこれらの核種の  $\gamma$  線計数率と空間放射線量率の関係を重回帰分析により求め、これを自然放射線による空間放射線量率の推定に用いる方法を開発した。SCA(Bi)計数率及びSCA(Tl)計数率を変数とする重回帰式から算出される値を「推定自然線量率」とし、平成17年度のモニタリングステーション尾駁局における測定値に適用した結果、推定自然線量率を空間放射線量率測定値から差し引いた値は、1年を通じてほぼ0であり、降雨・降雪や積雪の影響もみられていなかった。この差は、平均が0.00 nGy/h、標準偏差が0.36 nGy/h、最小～最大が-1.5 nGy/h ~ 2.7 nGy/hであり、差の絶対値が1 nGy/h未満となる割合が全体のデータの99%以上となった。このように、SCA(Bi)計数率及びSCA(Tl)計数率から式(2.2)により推定自然線量率を求める方法は、自然現象による空間放射線量率の変動を評価するために有効と考える。

空間放射線の積算線量測定において、蛍光ガラス線量計(RPLD)は熱ルミネセンス線量計(TLD)と比較して、①フェーディング効果が小さい、②同一ロットにおける素子間の感度のバラツキが小さい、③広い温度範囲において安定性が高い、という利点があるが、低温において感度低下がみられるとの報告もある。青森県六ヶ所村は、1年の約3分の1の期間で月別平均気温が5°C以下になるとともに、積雪が多いときには2 m近くまで観測される気象条件であり、このような環境下で積算線量の測定にRPLDを用いるために、RPLDの感度が温度によりどの程度変化するか検討を行なった。(財)環境科学技術研究所の大型恒温室を利用し、-10°Cから30°Cまで温度を変化させたRPLDの照射試験を行った結果、1°C当たりの感度変化率は、機関Aで $0.047 \pm 0.025 \text{ \% deg}^{-1}$ 、機関Bで $0.091 \pm 0.033 \text{ \% deg}^{-1}$ と評価された。また、モニタリングステーション6地点における、2001年度から2004年度までの第2四半期と第4四半期におけるRPLD測定結果、NaIによる空間放射線量率測定結果及び気温差を用い、20°Cにおける測定値からの温度による変化率( $V_R$ )を求めたところ、 $0.15 \pm 0.18 \text{ \% deg}^{-1}$ となり、室内における温度特性試験結果 $0.091 \sim 0.13 \text{ \% deg}^{-1}$ とよく一致した。

大気浮遊じん中全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能測定結果について、それぞれの変動傾向の違いや気象条件等によりその起源を検討するとともに、2003年5月に観測された全 $\alpha$ 放射能の特異的な上昇事象について、ロシアにおける森林火災との関連性を検討した。全 $\alpha$ 及び全 $\beta$ 放射能の寄与核種である $^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ の壊変において、 $^{210}\text{Pb}$ から一定時間後に生成する $^{210}\text{Bi}$ 及び $^{210}\text{Po}$ を $^{210}\text{Pb}$ に対する放射能比として試算すると、 $^{210}\text{Bi}$ の場合は3日後で0.34

及び 10 日後で 0.75、 $^{210}\text{Po}$  の場合は 3 日後で 0.003 及び 10 日後で 0.02 となる。本研究において冬季に観測された  $\alpha/\beta$  比は約 0.05 であること、大気中におけるエアロゾルの平均滞留時間は 4 日から 1 週間程度と推定されていること、 $^{222}\text{Rn}$  の最初の壊変生成物  $^{218}\text{Po}$  から  $^{210}\text{Pb}$  までの壊変は数時間でほぼ完結することを考慮し、冬に観測された  $\alpha/\beta$  比は、概ね当該地域に流入した  $^{222}\text{Rn}$  を起源とする  $^{210}\text{Bi}$  と  $^{210}\text{Po}$  の放射能比を表しているものと推定した。

一方、大気中  $^{210}\text{Po}$  の主な起源として、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  比が高い表土からの微細粒子の舞い上がりが指摘されていること、2003 年に我が国への黄砂の飛来が少なかった原因は、モンゴル地区における積雪が多かったためとの報告もあることから、本県において、全  $\alpha$  放射能と  $\alpha/\beta$  比がどちらも春と秋に高くなっているのは、表土の舞い上がりがその要因のひとつであり、冬に低くなっているのは、東アジア地域の大地が積雪により広く覆われたためと考えられる。

全  $\alpha$  放射能及び  $\alpha/\beta$  比において、2003 年 5 月に特異的な上昇がみられた。この時期にロシア東部で森林火災が発生しており、その煙が北日本に流入していることが報告されていたことから、4 月 7 日から 6 月 15 日に採取した各地点 10 個の試料について、六ヶ所村を始点とした後方流跡線が、火災が発生していたとみられる地域を通過した頻度（ヒット数）と全  $\alpha$  放射能濃度の関係を検討した結果、これらには正の相関関係がみられ、地点ごとの決定係数は 0.391～0.616 であった。全  $\alpha$  放射能の主要な寄与核種である  $\text{Po}$  は熱により揮発する性質を持ち、大気中全  $\alpha$  放射能濃度の特異的な上昇は、ロシア・バイカル湖付近の森林火災に起因する可能性が高いものと考えられる。

$^3\text{H}$  は、再処理工場から多く放出される核種であるとともに、成層圏において大気と宇宙線との相互作用で生成される核種でもあることから、成層圏から対流圏への流入による影響を把握するため、八甲田山頂における大気及び降水中  $^3\text{H}$  濃度の調査を行った。同様に成層圏に多く存在するオゾンとの関連を調査したところ、これらの測定値は春から夏にかけて高くなる季節変動を示しており、濃度が高くなる時期の変動パターンもよく似ていた。また、大気水分中  $^3\text{H}$  濃度及び降水中  $^3\text{H}$  濃度と大気中オゾン濃度との間に正の相関関係が認められた。大気及び降水中  $^3\text{H}$  濃度に影響を与える因子としては、比較的  $^3\text{H}$  濃度の高い中国大陸からの大気の流入や土壌細菌による HT の HTO への酸化も考えられるため、今後これらの影響についても検討する必要があるが、成層圏からの流入の影響評価のために、大気中オゾン濃度を活用できるものとする。

青森県六ヶ所村には、いくつかの湖沼が点在している。このうち、尾駈沼は、六ヶ所再処理工場に近接している汽水湖であり、再処理工場から海洋に放出された液体廃棄物が海水とともに流入する可能性がある。尾駈沼における湖沼水中  $^3\text{H}$  の自然変動の状況について、湖沼水、河川水及び海水それぞれの  $^3\text{H}$  濃度と塩分の関係を検討した結果、尾駈沼の湖沼水中  $^3\text{H}$  濃度は、二又川の河川水と沿岸海水との混合により説明が可能であり、塩分が海洋起源の  $^3\text{H}$  の有用な指標になると考えられる。

原子力施設に係る環境放射線モニタリングには、施設起因の放射線による周辺住民等の線量をできるだけ現実的に、かつ安全側に推定・評価することが求められる。しかし、そのために必要な、施設からの寄与分を環境のバックグラウンド放射線・放射性核種から弁別することには困難な点も多い。このような状況において、ひとつひとつデータを吟味し、その変動要因の検討を積み重ねていくことは、施設影響の適切な評価につながるものであり、周辺地域における安全を確認することはもとより、住民等の安心感の醸成のために、最も重要な取組みの一つであると考えられる。

## 謝 辞

初めに、学位取得の機会を与えていただき、本論文の作成に終始ご指導ご鞭撻を賜りました千葉大学大学院工学研究科共生応用化学専攻、小熊幸一教授に衷心より感謝申し上げます。

本論文の作成に当たり、多くの有益なご助言をいただきました千葉大学大学院工学研究科共生応用化学専攻、掛川一幸教授、岩館泰彦教授、斎藤恭一教授及び藤浪眞紀准教授に深く感謝申し上げます。

本研究の遂行に当たり、一貫してご指導とご助言をいただいた青森県原子力センター所長齋藤稔氏を始め、先輩、同僚、後輩の方々に厚くお礼申し上げます。なかでも、佐々木久美子氏、佐々木守氏、工藤香織氏、大久保英樹氏、庄司博光氏、竹ヶ原仁氏、工藤英嗣氏、工藤俊明氏、高橋秀昭氏、貝森優希氏、今武純氏、早狩進氏及び工藤精一氏には、多くのご協力や励ましをいただきました。また、貴重なご助言やご協力をいただきました(財)環境科学技術研究所の久松俊一博士及び五代儀貴氏に深く感謝申し上げます。

青森県の環境放射線モニタリング業務において、今日まで筆者を育て、導いていただきました元青森県原子力安全対策課長佐々木敬祐氏及び佐藤忠逸氏に深く感謝申し上げます。また、福多寛二氏、佐藤信博氏にも大変お世話になりました。

環境放射線モニタリング業務の遂行において、多くの貴重なご助言ご指導をいただきました青森県原子力施設環境放射線等監視評価会議に関係する方々に厚くお礼申し上げます。なかでも、佐伯誠道博士、濱田達二博士、沼宮内弼雄博士、大桃洋一郎博士、滝澤行雄博士、篠原邦彦博士、片桐浩氏、石田順一郎氏、片桐裕美氏、飛田和則氏、宮本霧子博士及び皆川昌幸博士には、多大なご指導をいただきました。また、元日本原子力研究開発機構執行役・安全統括部長野村保氏及び元福井県原子力環境監視センター所長吉岡満夫氏には、環境放射線モニタリングについて多くを学びました。ここに記し深く感謝申し上げます。

青森県において環境放射線モニタリングを遂行する上で、六ヶ所村、東通村及びその周辺市町村の方々に数多くのご協力をいただきました。厚くお礼申し上げます。

最後に、多忙な日常の中で本論文を作成することについて、最後まで温かく見守り多くの励ましをくれた家族に対し、心から感謝いたします。