

3. 分析法及び妥当性の確認

3.1 全ベータ放射能測定

(1) 分析法

全ベータ放射能の測定は、文部科学省放射能測定法シリーズ 1「全ベータ放射能測定法」(昭和 51 年改訂) に準じて行った。

前処理、放射能測定及び放射能濃度算出の概要は、次のとおりである。

1) 前処理

採取量が 50 (降水量 1mm に相当する) ~100mL の場合は全量、100mL を超えた場合は 100mL を分取し、硝酸数滴、ヨウ素担体溶液 (I^- :1mg/mL) 1mL 及び 0.5M 硝酸銀溶液 1 mL を加えた。試料溶液を 2~3mL まで加熱濃縮した後、測定用試料皿に移し入れ、赤外線ランプで蒸発乾固して放射能測定試料とした。

2) 放射能測定

測定試料は、低バックグラウンドベータ線測定装置で、採取後約 6 時間を経過してから 3,600 秒間測定した。

なお、降雨が 1mm 以上を「降雨あり」降雨が 1mm 未満及びなかった場合を「降雨なし」とし、測定結果が前月の「降雨あり」の測定結果の平均値の 3 倍を超えた試料については、ゲルマニウム半導体検出器による核種分析を行ったが、人工放射性核種は検出されなかった。

(2) 妥当性確認

測定は、バックグラウンド試料 (前)、測定試料、バックグラウンド試料 (後)、チェック用線源の順に行い、バックグラウンド計数率及び計数効率の変動の有無を確認した。

3.2 ガンマ線放出核種の測定

(1) 分析法

文部科学省放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」(昭和 58 年)に準じて行った。試料の採取・前処理方法は次のとおりである。

1) 大気浮遊じん

ローボリューム・エアサンプラーにダストモニターのろ紙(HE-40T)及び活性炭ろ紙(CP-20)を装着して1ヶ月間連続吸引し、大気浮遊じんをろ紙上に捕集した。これらをプラスチック製測定容器に入れ、測定試料とした。

2) 降下物

大型水盤(直径 80cm の円形、受水面積 5,000cm²)を用い、1ヶ月間の降下物を採取し、ストロンチウム担体を添加した後、蒸発濃縮した。これらをプラスチック製測定容器に入れ測定試料とした。

3) 測定方法

文部科学省放射能測定法シリーズ 7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(平成 4 年改訂)に準じて、ガンマ線スペクトロメトリーを行い、核種ごとに放射能濃度を算出した。なお、測定時間は 70,000 秒間以上とし、核データは原則として Atomic Data and Nuclear Data Tables (1983 年)に従った。

(2) 妥当性の確認

本調査を遂行するにあたり、測定の質の保証を担保するため、ゲルマニウム半導体検出器の安定性を以下の方法により確認した。

1) 効率のチェック

月 1 回の頻度で標準線源を測定し、ゲルマニウム半導体検出器のピーク効率に変化の無いことを確認した。

ピーク効率は、1 年を通してその変動係数が基準(5%)以内であった(表 3-2-1 参照)。

2) バックグラウンドの測定

週 1 回の頻度で試料の無い状態で測定を行い、ゲルマニウム半導体検出器に汚染の無いことを確認した。また、⁴⁰K の測定結果等から機器が正常に稼働していることについても併せて確認した。

表 3-2-1 ゲルマニウム半導体検出器のピーク効率の変動（月 1 回の測定）

検出器番号	期間	変動係数（％）		
		^{152}Eu (121.8keV)	^{137}Cs (661.6keV)	^{152}Eu (1408keV)
51	H26.2 ~ H27.1	0.43	0.34	0.75
52	H26.2 ~ H27.1	0.28	0.37	0.99
53	H26.2 ~ H27.1	0.18	0.30	0.82
56	H26.2 ~ H27.1	0.52	0.21	1.1
57	H26.2 ~ H27.1	0.31	0.36	0.57
58	H26.2 ~ H27.1	0.30	0.26	0.87

3.3 トリチウム分析

(1) 分析法

トリチウムの分析は、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 年改訂)に準じて行った。

前処理及び放射能測定の概要は、次のとおりである。

1) 前処理

① 月間降水中のトリチウム分析

採取した試料を分取し、過マンガン酸カリウム及び過酸化ナトリウムを添加して蒸留を行った。留出液を分取し、過酸化ナトリウムを加えた後、電解セルに入れ電解した。電解終了後、再び蒸留を行った。留出液と乳化シンチレータ (Ultima Gold LLT、パーキンエルマー社製) を 100mL のテフロンバイアルに入れ、十分に振り混ぜ均質にし、測定試料とした。

② 生物試料中のトリチウム分析

採取した試料を凍結乾燥し、有機結合型トリチウムを含む乾物と組織自由水とに分けた。

②-1 非交換型の有機結合型トリチウム

乾物を粉碎後よく混合し、無トリチウム水を加え、凍結乾燥を行った。この操作を繰り返し、交換型の有機結合型トリチウムを取り除いた。得られた試料から燃焼法により燃焼生成水を回収し、過マンガン酸カリウムを加え、還流にて湿式分解の後、過酸化ナトリウムを加えて蒸留を行った。留出液と乳化シンチレータを混合し、これ以降は月間降水試料と同様とした。

②-2 組織自由水

試料に過マンガン酸カリウムを加え、還流を行った。これ以降は非交換型の有機結合型トリチウムと同様とした。

2) 放射能測定

測定試料を低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ (LSC) で、原則として 500 分間 (50 分×10 回) 測定した。

測定結果よりバックグラウンド値を差し引き、正味計数率を求めた。外部標準チャンネル比法より求めた測定効率と測定供試量よりトリチウム放射能濃度を算出した。分析結果は試料採取日に減衰補正した。

(2) 妥当性確認

測定は、効率チェック用線源、バックグラウンド試料 1、測定試料、バックグラウンド試料 2 の順に行い、計数効率及びバックグラウンド計数率の変動の有無を確認した。

3.4 ストロンチウム 90 分析

(1) 分析法

1) 放射化学分析

^{90}Sr の放射化学分析並びに安定カルシウム及び安定ストロンチウムの定量は、文部科学省放射能測定法シリーズ 2「放射性ストロンチウム分析法」（平成 15 年改訂）に準じて行った。

前処理、分離及び測定方法の概要は、次のとおりである。

① 前処理方法

・ 大気浮遊じん

ダストモニター用ろ紙（HE-40T 等）に捕集して送付された試料は 500℃で灰化を行った。これにストロンチウム担体と塩酸を加えて加熱浸出した。不溶解物をろ別・洗浄した後、ろ液及び洗液を合わせて分析試料溶液とした。

・ 降下物及び陸水（源水、蛇口水、淡水）

蒸発乾固して送付された試料に硝酸と塩酸を加えて加熱し有機物を分解した。さらに硝酸を加えて有機物を十分に分解後、蒸発乾固した。これに塩酸を加えて加熱浸出した。不溶解物をろ別・洗浄した後、ろ液及び洗液を合わせて分析試料溶液とした。なお、鹿児島県より送付された降下物試料は、火山灰の影響により蒸発乾固して送付された試料の重量が多量であるため、全量を 500℃に加熱して有機物を分解した。これに塩酸を加えて加熱浸出した後、不溶解物をろ別・洗浄し、ろ液及び洗液を合わせて分析試料溶液とした。

・ 土壌

送付された乾燥細土をそのまま分析試料とした。なお、送付試料の重量を測定し、吸湿率を求めた。これらの試料の一定量を分取後、500℃に加熱して有機物を分解した。これにストロンチウム担体と塩酸を加えて加熱浸出した後、不溶解物をろ別・洗浄し、ろ液及び洗液を合わせて分析試料溶液とした。

・ 海底土

送付された試料をそのまま分析試料とした。なお、送付試料の重量を測定し、吸湿率を求めた。大阪府より送付された試料は、ろ過し、105℃で乾燥後、粉碎して 2 mm のふるいに通し、分析試料とした。これらの試料の一定量を分取後、500℃ に加熱して有機物を分解した。これにストロンチウム担体と塩酸を加えて加熱浸出した後、不溶解物をろ別・洗浄し、ろ液及び洗液を合わせて分析試料溶液とした。

・ 精米、野菜類、茶、牛乳、粉乳、淡水産生物（魚類）及び海産生物（魚類、貝類、藻類）

精米は送付された生試料を、粉乳は購入した試料を 450℃で灰化した。そ

の他の試料は、各都道府県の環境センター等で灰試料とした後、送付された。灰試料の一定量を分取後、ストロンチウム担体と硝酸及び塩酸を加えて加熱し、残存する有機物を分解した。さらに硝酸を加えて有機物を十分に分解後、蒸発乾固した。これに塩酸を加えて加熱浸出した。不溶解物をろ別・洗浄した後、ろ液及び洗液を合わせて分析試料溶液とした。

・海水

送付された試料の一定量を分取し、ろ過後、イオン交換法でストロンチウムを予備濃縮し、溶出液を分析試料溶液とした。水酸化ナトリウムを加え塩基性とした。次いで炭酸ナトリウムを加えて加熱し、炭酸塩としてストロンチウムを沈殿させた。デカンテーションにより沈殿と上澄み液とを分離し、沈殿を塩酸で溶解しイオン交換法によりストロンチウムを分離精製して硝酸ストロンチウム溶液とした。以下、②に準じて行った。

② ^{90}Sr の分離方法

①で得られた分析試料溶液に水酸化ナトリウムを加え塩基性とした。次いで炭酸ナトリウムを加えて加熱し、炭酸塩としてストロンチウムを沈殿させた。デカンテーション及び遠心分離により沈殿と上澄み液とを分離し、沈殿を ^{90}Sr 分析に、上澄み液は廃棄した。沈殿に塩酸を加えて溶解し、次にシュウ酸塩としてストロンチウムを沈殿させた。シュウ酸塩沈殿を 600°C に加熱後、塩酸で溶解しイオン交換法によりストロンチウムを分離精製して硝酸ストロンチウム溶液とした。溶液に塩化鉄(Ⅲ)溶液とアンモニア水を加えて、 ^{90}Y 及びラジウムの子孫核種を鉄とともに水酸化物として沈殿させ、ろ別した。ろ液から一定量を分取し、イットリウムを内標準とした ICP 発光分光分析法によりストロンチウムを定量し化学回収率を求めた。先のろ液を濃縮後、一定量の塩化鉄(Ⅲ)を加え、2週間以上放置した。この溶液にアンモニア水を加え、生成した ^{90}Y を鉄とともに水酸化物沈殿として共沈させ、分離型ろ過器を用いてろ別・洗浄した後、沈殿を乾燥して放射能測定試料とした。

③ 安定カルシウム及び安定ストロンチウムの定量方法

降下物試料は、蒸発乾固して送付された試料の重量が 10g を超えるものについては、分析試料溶液の一部を分取し、安定ストロンチウム測定溶液とした。

土壌、海底土試料は、送付された試料の一定量を分取し、 500°C で有機物を加熱分解後、塩酸を加えて加熱浸出した。不溶解物をろ別・洗浄した後、ろ液及び洗液を合わせて安定ストロンチウム測定溶液とした。

灰試料(精米及び牛乳を除く)は一定量を分取し、硝酸を加えて加熱分

解後、塩酸を加えて加熱浸出した。不溶解物をろ別・洗浄した後、ろ液及び洗液を合わせて安定カルシウム及び安定ストロンチウム測定溶液とした。精米及び牛乳の灰試料は一定量を分取し、硝酸を加えて加熱分解後、塩酸を加えて加熱浸出した。不溶解物をろ別・洗浄した後、ろ液及び洗液を合わせて安定カルシウム測定溶液とした。

陸水及び海水試料は、放射能分析試料とは別に送付された試料溶液（酸無添加）をろ過し、安定ストロンチウム測定溶液とした。

安定カルシウム及び安定ストロンチウムは測定溶液の一部を分取し、イットリウムを内標準とした ICP 発光分光分析法により定量した。

④ 放射能の測定及び計算方法

低バックグラウンドベータ線測定装置により放射能測定を行った。⁹⁰Sr 測定試料は原則として 60 分間測定した。測定試料の正味計数率を求め、計数効率、化学回収率等の補正及び分析供試量から試料中の ⁹⁰Sr の放射能濃度を算出した。

⑤ 分析目標レベル

各種試料の分析目標レベルは、次のとおりである。

試料	大気 浮遊じん	降下物	陸水	土 壤 海底土	海水	精米
単位	mBq/m ³	MBq/km ²	mBq/L	Bq/kg 乾土	mBq/L	Bq/kg 生
⁹⁰ Sr	0.004	0.07	0.4	0.4	2	0.04

試料	野菜類	茶		牛乳	粉乳	水産 生物
単位	Bq/kg 生	Bq/kg 製茶	Bq/kg 生	Bq/L	Bq/kg 粉乳	Bq/kg 生
⁹⁰ Sr	0.04	0.2	0.04	0.04	0.04	0.04

2) 妥当性確認

分析の工程管理のため、土壌・灰試料は種類別の所内標準試料及びブランク試料を、また、その他の試料についてはブランク試料を同時に分析し妥当性の確認を行った。灰試料に対応する所内標準試料については今年度、新たに所内標準試料を調製し、平成 26 年 10 月より妥当性確認に用いた。結果を図 3-4-1～図 3-4-4 に示す。所内標準試料について、⁹⁰Sr の結果は基準の範囲内であつ

た。また、ブランク試料の⁹⁰Srは有意な検出はなかった。

したがって、分析には福島第一原子力発電所事故の影響はなかったと考えられる。

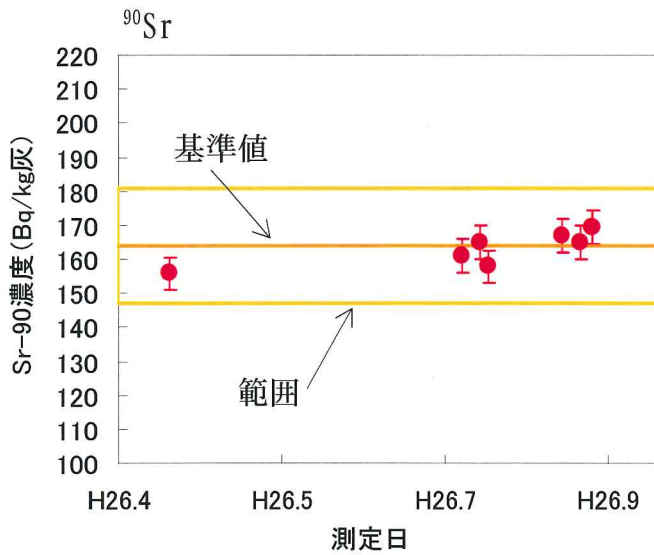


図 3-4-1 所内灰標準試料の分析結果
(H26. 4~9 月分析分)

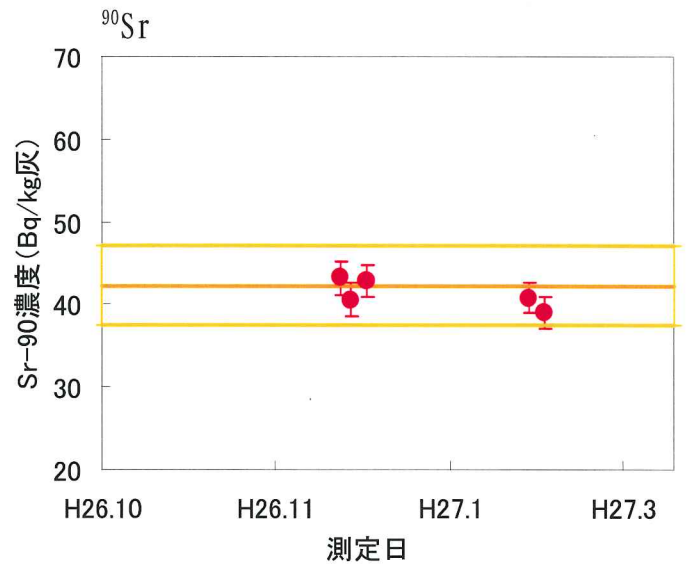


図 3-4-2 所内灰標準試料の分析結果
(H26. 10~H27. 3 月分析分)

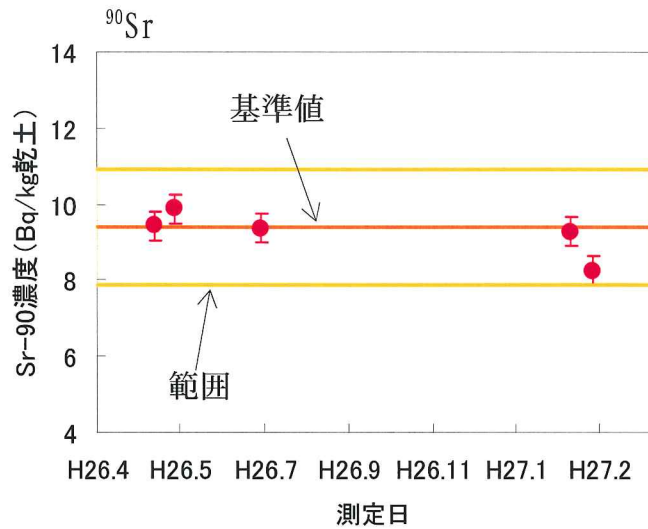


図 3-4-3 所内土壌標準試料の分析結果

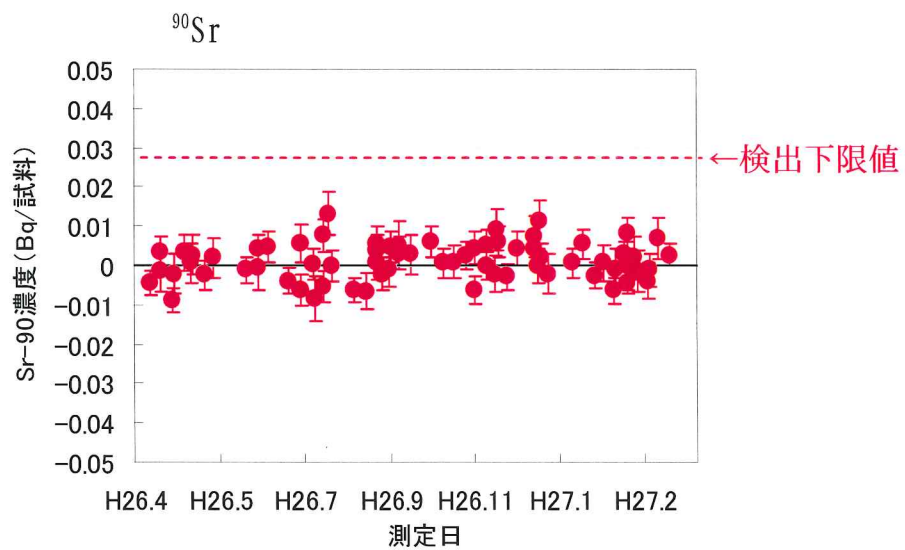


図 3-4-4 ブランク試料の分析結果

3.5 プルトニウム分析

(1) 分析法

分析対象核種は ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ とし、文部科学省放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」（平成 2 年改訂）に準じて分析した。操作の概要は以下のとおりである。

1) 前処理及び化学分離方法

送付された乾燥細土を縮分し 105℃で乾燥後、微粉碎した。この試料から 50g を分取し、500℃の電気炉で加熱処理後、 ^{242}Pu 収率補正用トレーサーを一定量添加し、硝酸を加えてプルトニウムを加熱抽出した。残留物をろ別後、ろ液を蒸発濃縮し、硝酸 (3+2) 及び亜硝酸ナトリウム溶液を加えて加熱した。ろ過後、陰イオン交換樹脂カラムに通し、プルトニウムを吸着させた。

硝酸 (3+2)、塩酸 (5+1) で順次洗浄した。ヨウ化アンモニウム－塩酸溶液でプルトニウムを溶離後乾固し、さらに硝酸、過塩素酸を加えて乾固した。硫酸 (1+9) で溶解し、pH を調製後、プルトニウムをステンレス板上に電着し、測定試料とした。

2) 前処理及び化学分離方法

シリコン半導体検出器を用い、測定試料の α 線スペクトル及びバックグラウンドをそれぞれ原則として 80,000 秒間以上測定した。 ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ の正味計数率を求め、収率補正用トレーサーの計数率との比較、分析供試量等からそれぞれの放射能濃度を算出した。

$^{239+240}\text{Pu}$ の分析目標レベルは以下のとおりである。

核種	分析目標レベル (Bq/kg 乾土)
$^{239+240}\text{Pu}$	0.04

(2) 妥当性確認

放射能濃度を算出するための ^{242}Pu 収率補正用トレーサー溶液は、国際的なトレーサビリティがとれた標準溶液を使用した。また、1 週間ごとにバックグラウンドを測定し、検出器に汚染がないことを確認した。

今年度、新たに国際的なトレーサビリティがとれた NIST の SRM4334I Plutonium-242 Radioactivity Standard を入手し、 ^{242}Pu 収率補正用トレーサー溶液を調製した。調製したトレーサー溶液は値付けされた標準試料によって、その妥当性を確認した。

3.6 ヨウ素 129 分析

3.6.1 前処理

前処理方法を以下に示す。

試料	調製方法	処理法	供試量
土壌	湿土を 70℃ 乾燥	燃焼	1g (乾土)
牛乳	凍結乾燥	燃焼	1.5g (乾物)
海藻 (褐藻類)	凍結乾燥	燃焼	0.5g (乾物)
野菜	凍結乾燥	燃焼	2.0g (乾物)

(1) 土壌

バットに広げて 70℃ に調節した乾燥機で乾燥後、2mm のふるいを通し、ふるい下をよく混合して、分析試料とした。

(2) 牛乳

市販乳を冷凍庫で凍結後、真空凍結乾燥機で乾燥し、乾燥した試料を粉碎後よく混合して分析試料とした。

(3) 海産生物 (褐藻類)

冷凍庫で凍結後、真空凍結乾燥機で乾燥し、乾燥した試料を粉碎後よく混合して分析試料とした。

(4) 農作物 (キャベツ)

冷凍庫で凍結後、真空凍結乾燥機で乾燥し、乾燥した試料を粉碎後よく混合して分析試料とした。

3.6.2 分析方法

操作の概要は以下のとおりである。なお、ヨウ素 129 の比放射能を算出するため、安定ヨウ素 (^{127}I) 分析も行った。

(1) ヨウ素 129 の定量 (加速器質量分析法)

土壌・牛乳・農作物・海産生物試料から 0.5~2.0g をはかり取り、燃焼装置を用いて酸素の気流中で燃焼させ、発生したヨウ素を Tetramethylammonium Hydroxide (TMAH)

溶液に捕集した。その TMAH 溶液から一部分取し安定ヨウ素定量用試料とした。分取した残りの溶液にヨウ素担体を添加し、キシレンを用いた溶媒抽出によりヨウ素を精製した。

ヨウ素精製溶液に銀担体を添加し、生成したヨウ化銀沈殿を遠心分離した後に乾燥し、2.5 倍量のニオブ粉末を加えてよく混合した後、プレス成型して、加速器質量分析装置 (AMS) を用いて $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比を測定した。得られた結果から、試料中の ^{129}I の濃度を算出した。

また、ヨウ素 129 の比放射能を算出するため、安定ヨウ素定量用試料を測定に適した濃度に調製し、内標準としてインジウムを加え、硝酸 (1+13) で一定容にした後、ICP-MS で安定ヨウ素 (^{127}I) を定量した。

(2) ヨウ素 127 の定量

1) 測定試料の調製

ヨウ素 129 の比放射能を算出するため、安定ヨウ素定量用試料を測定に適した濃度に調製し、内標準としてインジウムを加え、硝酸 (1+13) で一定容に調製した。

2) 測定

測定試料溶液をプラズマ中に噴霧し、ヨウ素 127 及びインジウム 125 のイオン強度を測定し、それらのイオン強度比を求めた。データの取込み時間 (積算時間=滞在時間×掃引回数) は 9 秒/回とした。

測定回数はそれぞれ 5 回とし、平均値とその標準偏差 (1σ) を分析結果とした。

3) 測定器

アジレント・テクノロジー社製 Agilent 7700x

(3) 妥当性確認

加速器質量分析装置 (AMS) の測定では、キャリア試料を測定して測定状態を確認する必要がある。本調査で使用している (独) 日本原子力研究開発機構青森研究開発センターの AMS では、測定バッチ毎に必ずヨウ素 129 濃度既知のキャリアを測定し、測定結果 (同位体比) の安定性を確認している。

また、分析工程毎にブランク試料も分析して工程管理を行っている。

なお、分析工程の妥当性確認のため、予め標準試料の分析を行った。

結果を以下の表に示す。

平成 24、25 年度に実施した分析結果

試料名	商品 番号	安定ヨウ素 mg/kg乾物	¹²⁹ I mBq/kg 乾物	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	乗数
※1 Peach Leaves	NIST -1547	0.31 ± 0.001	0.21 ± 0.02	(1.03 ± 0.06)	10 ⁻⁷
※2 Soil	IAEA -375	1.45 ± 0.027	1.46 ± 0.02	(1.52 ± 0.04)	10 ⁻⁷

※1：分析数 n=4

※2：分析数 n=3

文献値を以下に示す。

試料名	商品 番号	安定ヨウ素 mg/kg乾物	¹²⁹ I mBq/kg 乾物※5	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比※5	乗数
Peach Leaves	NIST -1547	0.3 ± 0.01 ※3	0.20 ± 0.02	(1.23 ± 0.19)	10 ⁻⁷
Soil	IAEA -375	1.47 ± 0.08 ※4	1.61 ± 0.16	(1.40 ± 0.14)	10 ⁻⁷

※3：NIST-1547 の分析証明書から引用（参考値）

※4：IAEA-375 は J. Radiat. Res., 50, 325-332 (2009)

※5：NIST-1547 は JAEA-Conf 2010-001

平成 26 年度に実施した分析結果

試料名	商品 番号	安定ヨウ素 mg/kg乾物	¹²⁹ I mBq/kg 乾物	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 原子数比	乗数
※6 Peach Leaves	NIST -1547	0.30 ± 0.001	0.21 ± 0.003	(1.07 ± 0.01)	10 ⁻⁷

※6：分析数 n=2

標準試料の分析結果は、文献値と一致した。

以上から、本分析法における妥当性は確認された。

3.7 炭素 14 分析

(1) 分析法

1) 試料の前処理

大気中二酸化炭素はオープン・エア法により捕集した。二酸化炭素の捕集材として用いる 4M の水酸化ナトリウム溶液を小型のバットに入れ、虫よけのネットを被せ床面から約 0.3~1m の高さに設置して約 2 週間放置した。この水酸化ナトリウム溶液に塩化アンモニウムを加え pH を 10.5 に調整した後、塩化カルシウムを加えて炭酸カルシウムの沈殿を生成した。加熱し沈殿を熟成させた後、ろ過して乾燥して分析試料とした。

精米及び野菜試料はミキサー等で均一に混合した後冷凍し、真空凍結乾燥機で水分を除去して分析試料とした。

2) グラファイト化のための前処理

炭素量が約 2~3mg となるように分析試料から一定量を分取し、大気試料は専用の分解セルに、精米及び野菜試料は酸化銅とともに石英管に封入した。大気試料はリン酸を添加して二酸化炭素を発生させた。精米及び野菜試料は電気炉で燃焼して二酸化炭素を発生させた。二酸化炭素は炭素 14 前処理装置に導入して精製をくり返しグラファイト化して、加速器質量分析のための測定試料とした。

3) 加速器質量分析装置を用いた $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 同位体比の測定

測定試料を (独) 日本原子力研究開発機構東濃地科学センターへ送付し、加速器質量分析装置 (ペレトロン年代測定装置) を用いて $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 同位体比を測定し、炭素 14 比放射能を算出した。

なお、バックグラウンド試料及び標準試料として IAEA C1 及び IAEA C6、NIST SRM 4990C を試料と同時に分析・測定した。

4) 炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) の測定

試料をスズカプセルに包み、元素分析計で燃焼・分離して得た二酸化炭素ガスを、オンラインで接続された安定同位体比質量分析計に導入し測定した。得られた結果は日本分析センターで調製した標準試料、(独) 海洋研究開発機構より提供された標準試料、及び国際原子力機関が頒布した標準試料 NBS19 (Limestone CaCO_3) との比較により安定炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) を算出した。

測定条件等は表 3-7-1 のとおりである。

表 3-7-1 炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) の測定条件

装置	サーモフィッシャーサイエンティフィック製 ・元素分析計：Flash2000 Organic Elemental Analyzer ・安定同位体比質量分析計：DELTA V Advantage
酸化炉温度	1050℃
還元炉温度	750℃
カラム温度	40℃
キャリアガス	He (100ml/min)
燃焼ガス	O ₂ (175 ml/min)
標準ガス	CO ₂ (純度 99.999%以上)
測定イオン	44, 45, 46 (m/z)

(2) 妥当性の確認

得られた結果の妥当性を確認するため、過去の結果との比較及び標準試料 (NIST SRM 4990C 及び IAEA C6) を分析し参照値との比較を行い、それぞれ差がないことを確認した。さらに、バックグラウンド試料として IAEA C1 を分析し、コンタミネーション等の無いことも併せて検証した。結果を以下の表に示す。

表 3-7-2 過去の調査結果との比較

	大気	精米	野菜
	炭素 14 比放射能 (Bq/g 炭素)		
本調査	0.224~0.231	0.230~0.235	0.231~0.233
過去の調査* (環境放射能水準調査)	0.221~0.247	0.229~0.260	0.222~0.27

*：過去の調査：2003 年度～2013 年度に実施された環境放射能水準調査及び原子力施設周辺環境放射線モニタリング調査の結果

表 3-7-3 標準試料の結果 (n=3)

試料名	NIST SRM 4990C	IAEA C1	IAEA C6
	pMC (¹⁴ C/ ¹² C)		
1	134.07 ± 0.95	0.13 ± 0.03	151.15 ± 1.18
2	134.07 ± 0.56	0.14 ± 0.01	150.76 ± 0.89
3	134.07 ± 0.60	0.14 ± 0.02	150.55 ± 0.83
平均値	134.07	0.14	150.82
標準偏差	0.0	0.0058	0.30
相対標準偏差 (%)	0.0	4.2	0.20
参照値 (1σ)	134.07 ¹⁾	0.00 ± 0.0002 ²⁾	150.61 ± 0.17 ²⁾

1) Ugo Zoppi, Radiocarbon AMS data analysis: From measured isotopic ratio to ¹⁴C concentrations, Radiocarbon, 52, 165-170 (2010)

2) IAEA reference sheet for quality control materials (2007)

以上の結果から、今回の結果は過去の調査結果と同程度であり、かつ標準試料の結果も参照値とよく一致していることから、本調査の結果の妥当性が確認された。

3.8 大気中の放射性希ガス濃度測定

(1) 分析法

1) 大気試料の捕集

大気試料の捕集は、図 3-8-1 (1) 及び (2) に示す捕集装置を用いて行った。捕集装置は、表 3-8-1 に示した機器からなり、その目的・機能に応じて装置内に配置されている。

大気中の希ガスを、液体窒素温度に冷却した希ガス吸着捕集容器に捕集した。図 3-8-2 に希ガス吸着捕集容器の構造を示す。希ガス吸着捕集容器内の上部は、フィンが 10 数枚取り付けられており、希ガス吸着捕集容器を液体窒素で冷却して大気を通すと、大気中の水分と二酸化炭素はそれぞれ凝固して氷とドライアイスとして除去される。希ガス吸着捕集容器内の下部には、活性炭が約 180g 充填してあり、上部のフィンを通過した大気のうち希ガス等の低融点成分は活性炭に吸着される。大気試料の捕集は負圧下で行われるため、主要大気成分である窒素や酸素は活性炭に吸着されにくくなっている。希ガス吸着捕集容器を通過した大気は、エアープンプから排気される。

大気試料の捕集装置への導入は 1L/分の流速で、約 1 週間連続して行った。約 10m³ の大気から活性炭に吸着した希ガスは、希ガス吸着捕集容器を加熱することにより脱着し、専用のアルミ缶に封入した。

表 3-8-1 捕集装置に使用する各機器

機器名	目的・機能
バッファー1	大気導入の脈動を抑制
フィルター	ほこり、ごみ等の除去
電子除湿器	大気中湿分の予備的な除去
バイパス	流路内差圧の調整
圧力計 1	流路（取入口側）内の圧力（大気圧）表示
希ガス吸着捕集容器	大気中の希ガスを吸着捕集する容器
デュワー瓶	希ガス吸着捕集容器冷却用
圧力計 2	流路（排出口側）内の圧力（負圧）表示
バッファー2	大気導入の脈動を抑制
エアープンプ	大気の導入及び排出

2) 希ガスの封入

捕集の終了後、希ガス吸着捕集容器内に捕集された大気中の水分、二酸化炭素及び活性炭に吸着した窒素や酸素を希ガス吸着捕集容器から排出した。希ガス吸着捕集容器をヒーターで 1 時間加熱（305℃）することに

より、活性炭に吸着した希ガスを脱着し、アルミ缶に封入した（図 3-8-3 参照）。試料ガス中には水分が多少含まれているので、シリカゲルを充填した水分除去筒を希ガス吸着捕集容器とアルミ缶の間に配置し、水分を除去した。

希ガスを確実にアルミ缶に封入するため、超高純度ヘリウムガスを希ガス吸着捕集容器に導入し、+0.4MPa に到達するまで加圧充填した。

アルミ缶内に封入された試料ガスの成分は、二酸化炭素、窒素、酸素、一酸化二窒素及び希ガスであるクリプトンとキセノン、ならびに充填ガスのヘリウムである。二酸化炭素、窒素、酸素は試料ガスの大部分を占めることから、ガスクロマトグラフにより希ガスを分離・精製した。

3) ^{85}Kr 分析

前処理装置（図 3-8-4 参照）及びガスクロマトグラフ 1（図 3-8-5 参照）を用いて、アルミ缶に封入したクリプトンからその他のガス成分を分離した。前処理装置とガスクロマトグラフのガス流路概略図を図 3-8-6 (1) 及び (2) に示す。

前処理装置を用いて、二酸化炭素、水分及び大部分の窒素、酸素を除去した。クリプトンを、約 -85°C のエタノールで冷却した活性炭（60mL）で吸着捕集したのち、 400°C で加熱することにより脱着して、ガスクロマトグラフ 1 に導入した。

ガスクロマトグラフ 1 に導入したクリプトンを、分離用の活性炭カラム（6mmφ、4m）により、その他ガス成分から分離・精製し、ガスフロー式 GM 管を含む閉鎖系のループに導入した。

閉鎖系ループに導入したクリプトンを、ループ内での濃度を均質にするため、ポンプによりかくはんした。濃度の均質達成後に、ガスフロー式 GM 計数管により ^{85}Kr の β 線を測定した。試料の測定は、計数値が 10,000 カウント以上となるように測定した。試料測定前後に閉鎖系ループ内をメタンガスで置換し、バックグラウンド測定を行い、試料のパージを確認した。

^{85}Kr 放射線測定と同時に、閉鎖系ループ内ガスの一定容をガスクロマトグラフ 2（図 3-8-7 参照）に導入し、検量線法により全クリプトン量（mL）を定量した。

放射線測定及び全クリプトン量測定で得られる ^{85}Kr 比放射能（Bq/mL）に、大気中のクリプトン存在比（ $=1.14\text{mL/m}^3$ ）を乗ずることにより、大気中の ^{85}Kr 濃度（Bq/ m^3 ）に換算した。

4) ^{133}Xe 分析

二酸化炭素除去カラム及び分離・精製用ガスクロマトグラフ（図 3-8-8 参照）により、アルミ缶に封入したキセノンからその他のガス成分を分離

した。

キセノンを含む試料ガスは、110℃のモレキュラーシーブ (MS-5A) を充填した二酸化炭素除去カラムに導入され、試料ガスから二酸化炭素を除去した。続いて、試料ガスは活性炭を充填した U 字管に導入され、液体窒素温度で U 字管を冷却することにより、試料ガス中のキセノン捕集した。同時に U 字管内を真空ポンプで排気することにより、大部分の窒素、酸素を除去した。U 字管を 200℃に加熱して活性炭からキセノン脱着して、分離・精製のガスクロマトグラフに導入した。

分離・精製のガスクロマトグラフに導入したキセノン、分離用のモレキュラーシーブカラムにより、その他ガス成分から分離・精製し、ガスフロー式比例計数管 (図 3-8-9 参照) を含む閉鎖系のループに導入した。

ガスフロー式比例計数管により ^{133}Xe の β 線を測定した。大気中の ^{133}Xe バックグラウンド濃度は、 ^{85}Kr 濃度と比較して 1/1000 程度であるので、2 日間の長時間測定を行った。また、試料測定の前後にバックグラウンド測定を行い、試料のパーズを確認した。

^{133}Xe 放射線測定が終了した後に、比例計数管内のガスの一定容を精密分析用ガスクロマトグラフ (図 3-8-8 参照) に導入し、検量線法により全キセノン量 (mL) を定量した。

放射線測定及び全キセノン量測定で得られる ^{133}Xe 比放射能 (mBq/mL) に、大気中のキセノン存在比 ($=0.087\text{mL/m}^3$) を乗ずることにより、大気中の ^{133}Xe 濃度 (mBq/m³) に換算した。

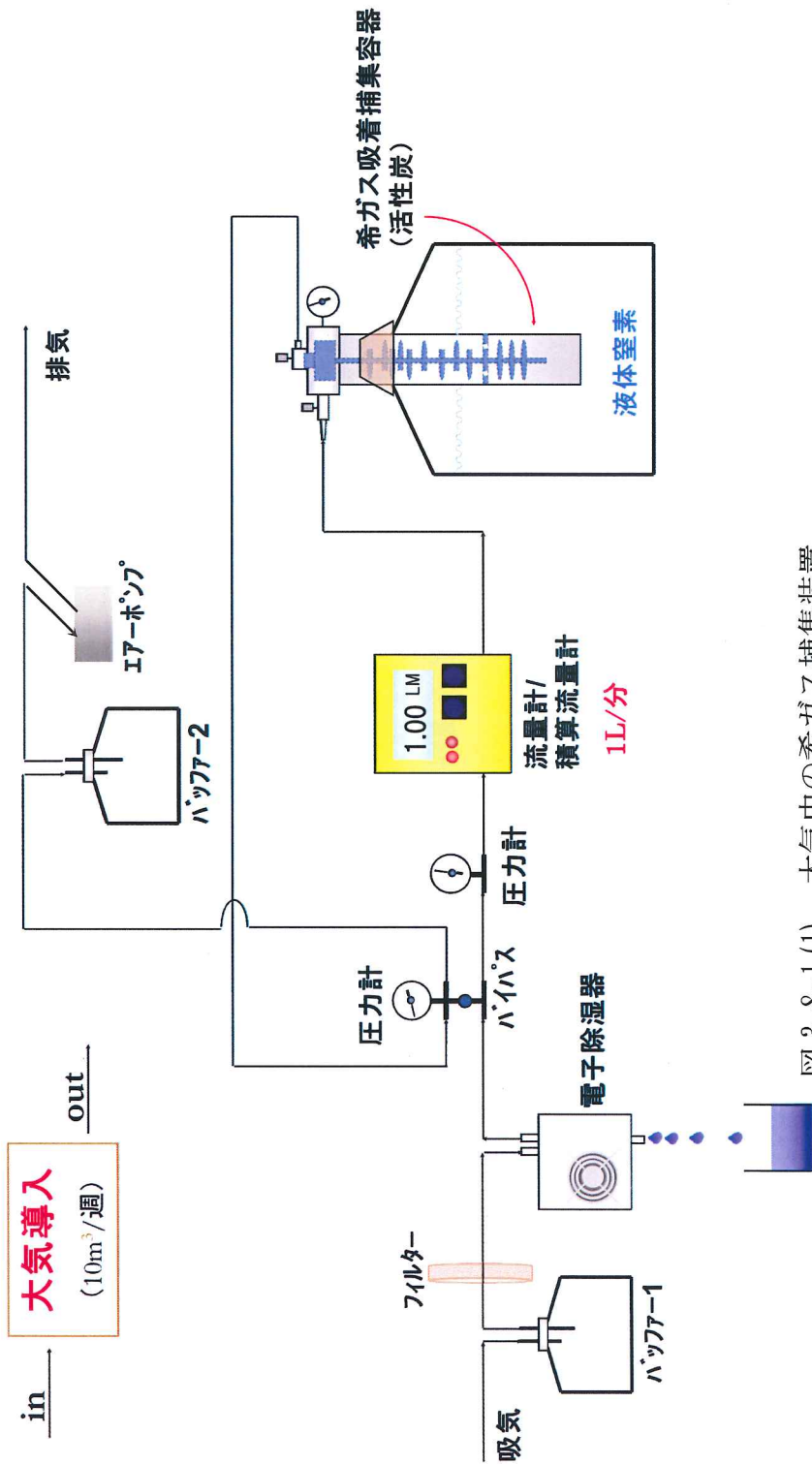


図 3-8-1 (1) 大気中の希ガス捕集装置



図 3-8-1 (2) 大気中の希ガス捕集装置
(写真は北海道立衛生研究所に設置した装置)

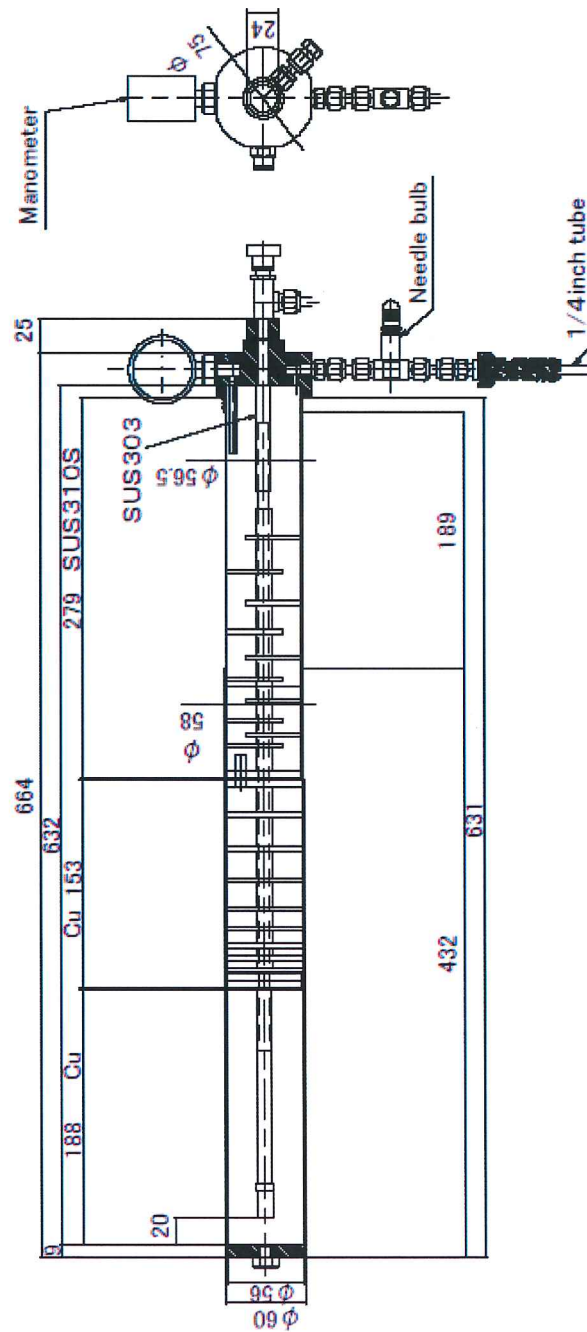


図 3-8-2 希ガス吸着捕集容器の構造

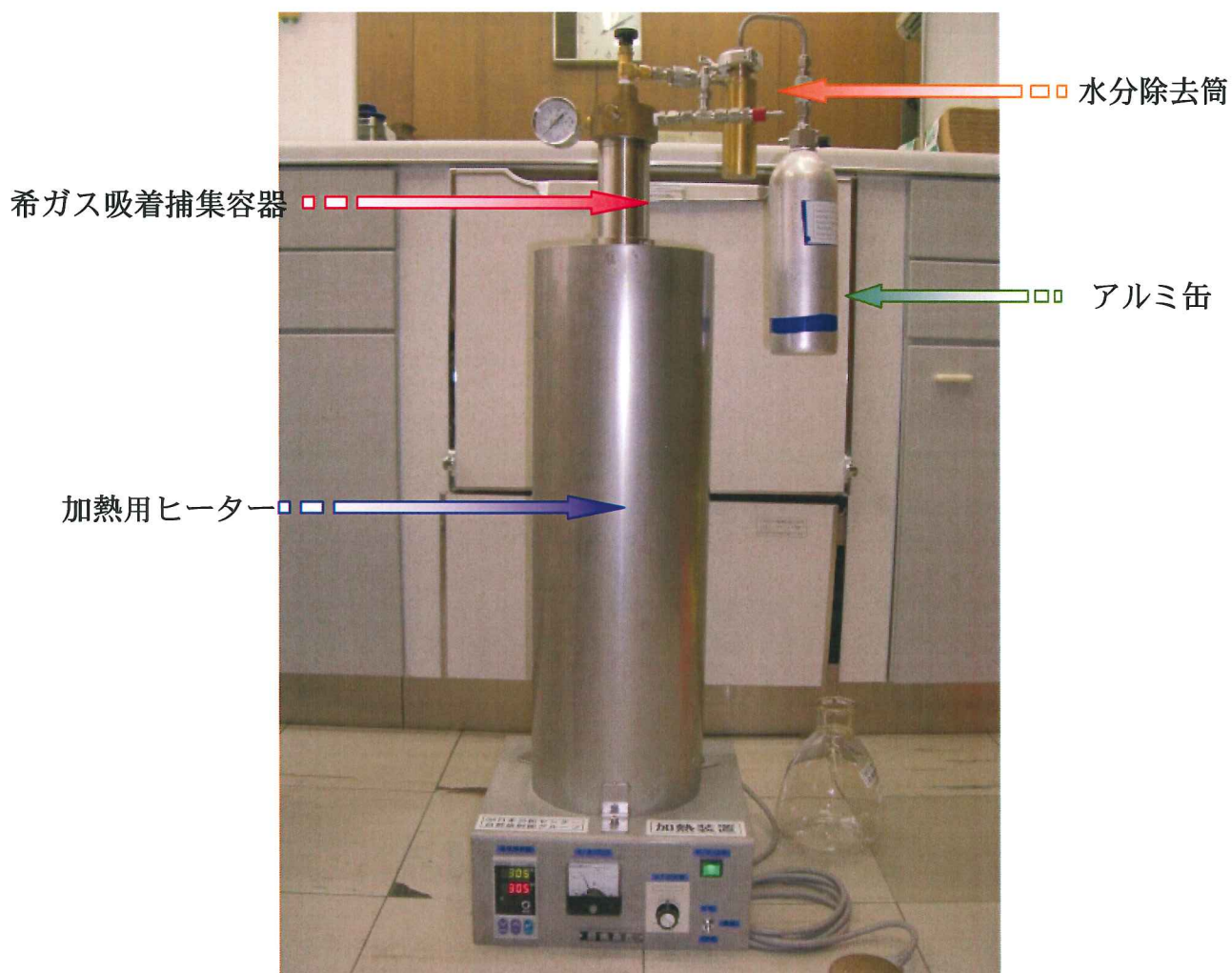


図 3-8-3 希ガスのアルミ缶への封入
(写真は北海道立衛生研究所に設置した装置)



図 3-8-4 前処理装置

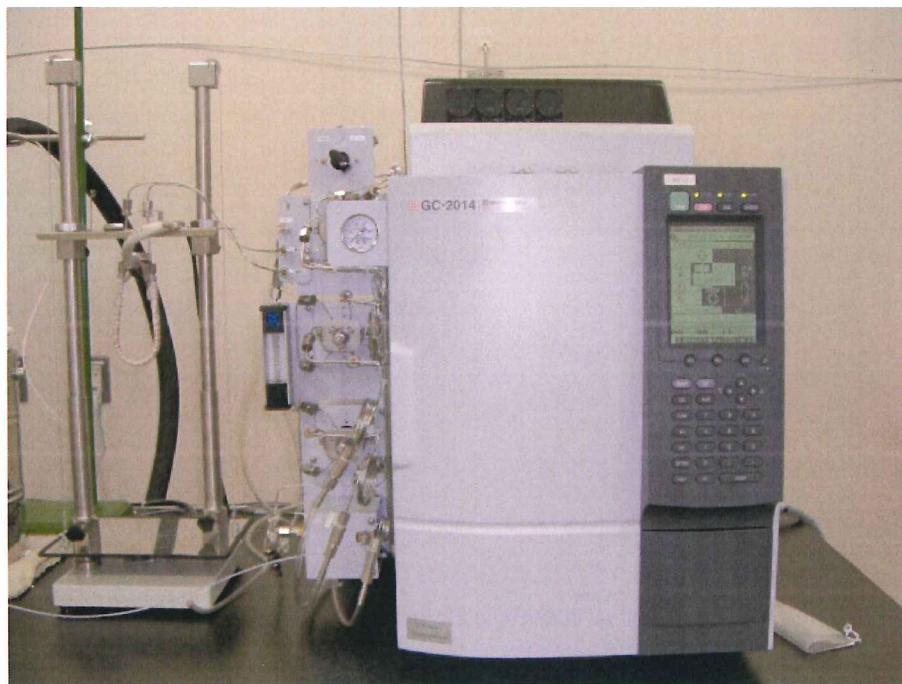
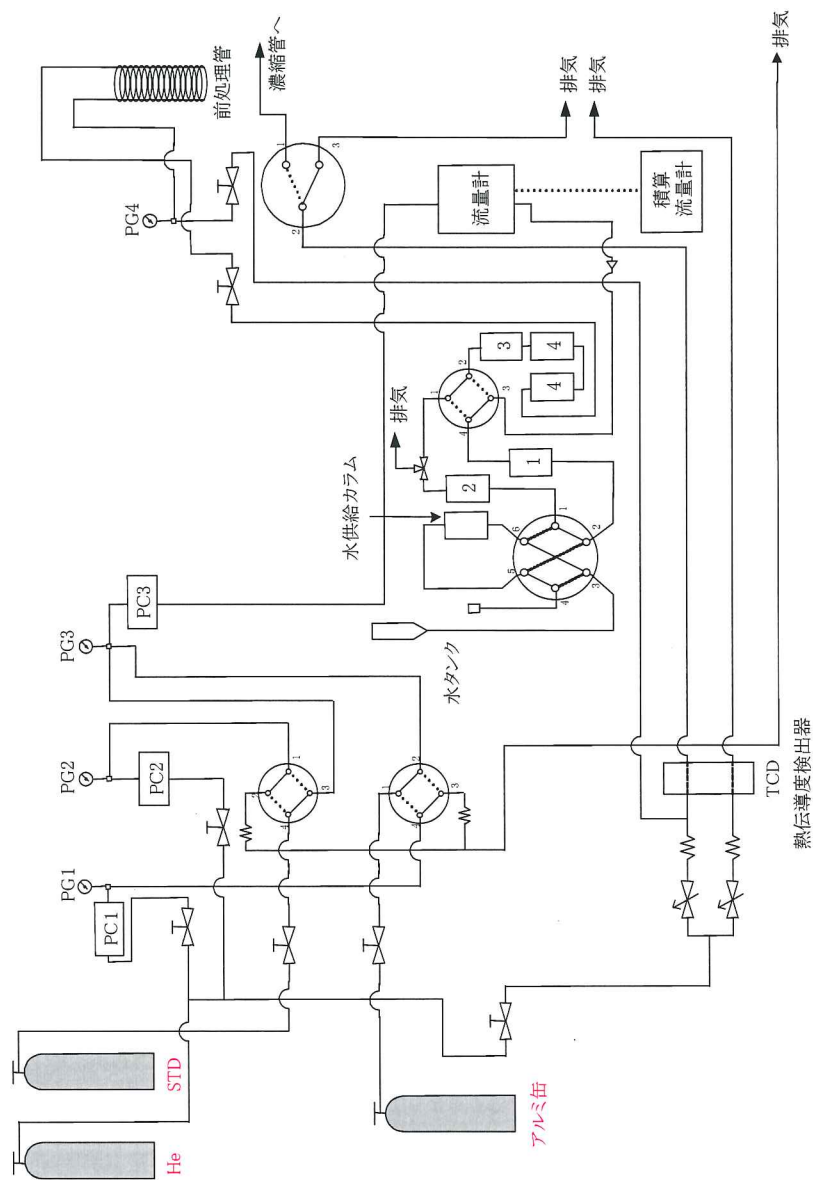


図 3-8-5 ガスクロマトグラフ 1 (クリプトン分離・精製用)



ガストラップ;
 1) 水分除去トラップ
 2) アルカリウエットコラム
 (水酸化カリウム溶液)
 3) アスカルイトII
 4) 過塩素酸マグネシウム
 コラム

PCI 圧力計
 PCI 圧力制御器
 ストップコック
 キャピラリー
 チューブ

図 3-8-6 (1) ガス流路概略図 (前処理装置)

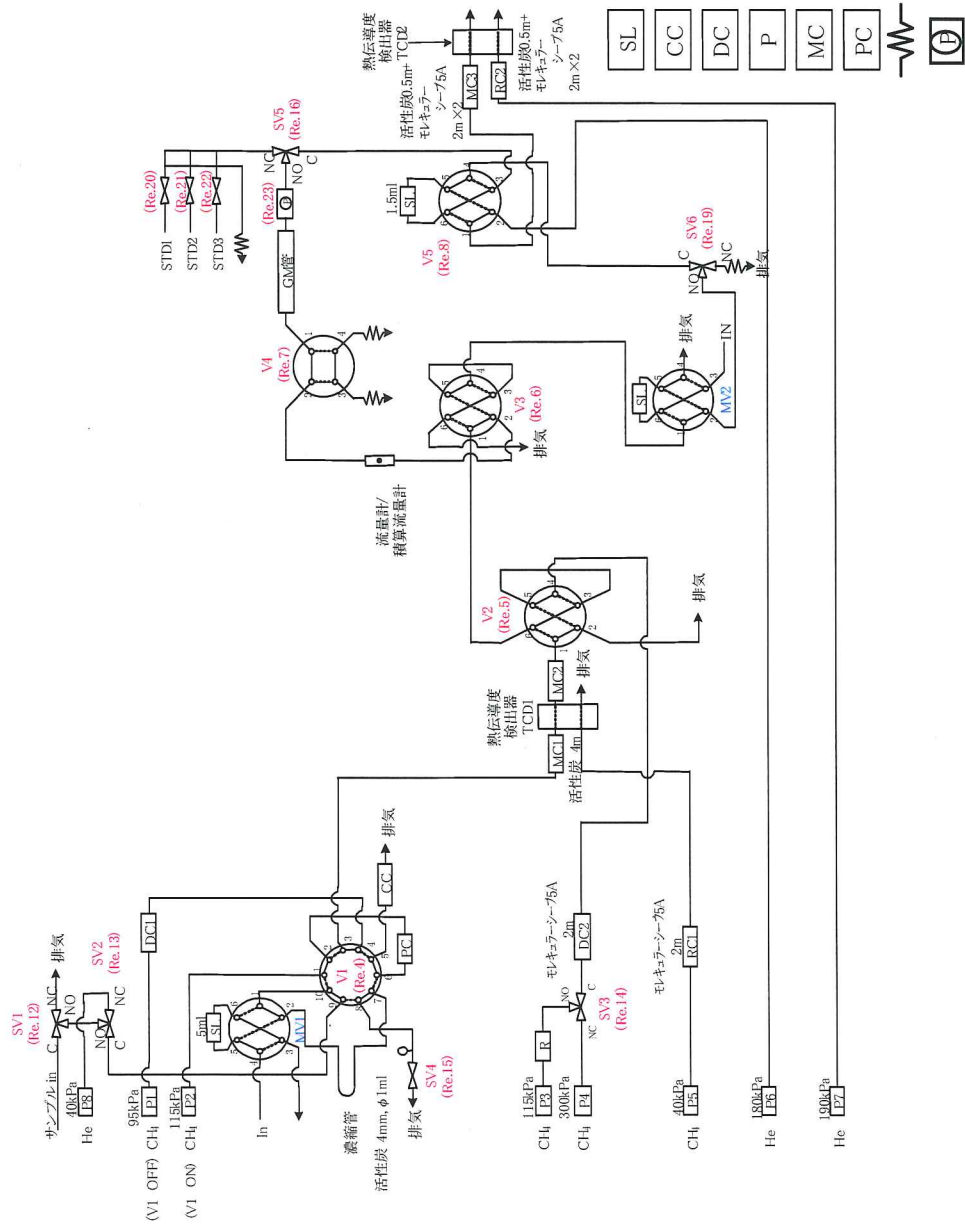


図 4-8-6 (2) ガス流路概略図 (ガスクロマトグラフ)



図 3-8-7 ガスクロマトグラフ 2 (全クリプトン定量用)

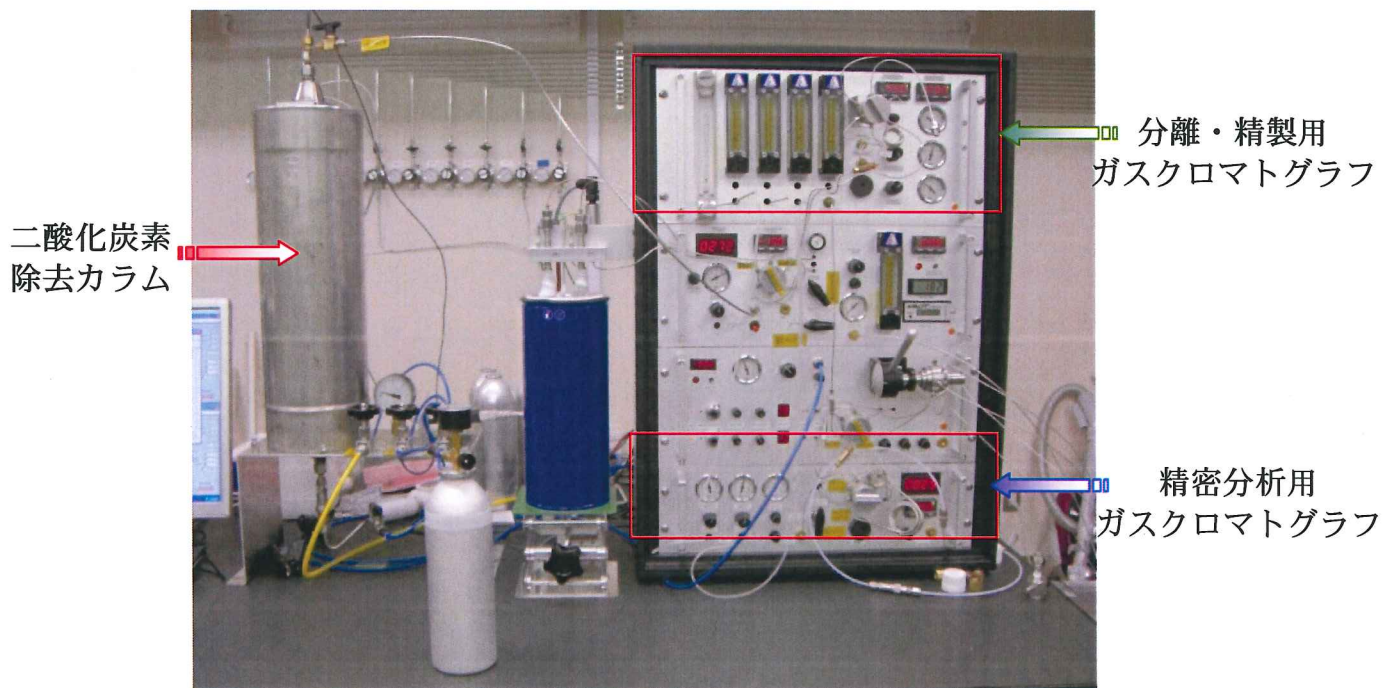


図 3-8-8 ^{133}Xe 分析装置

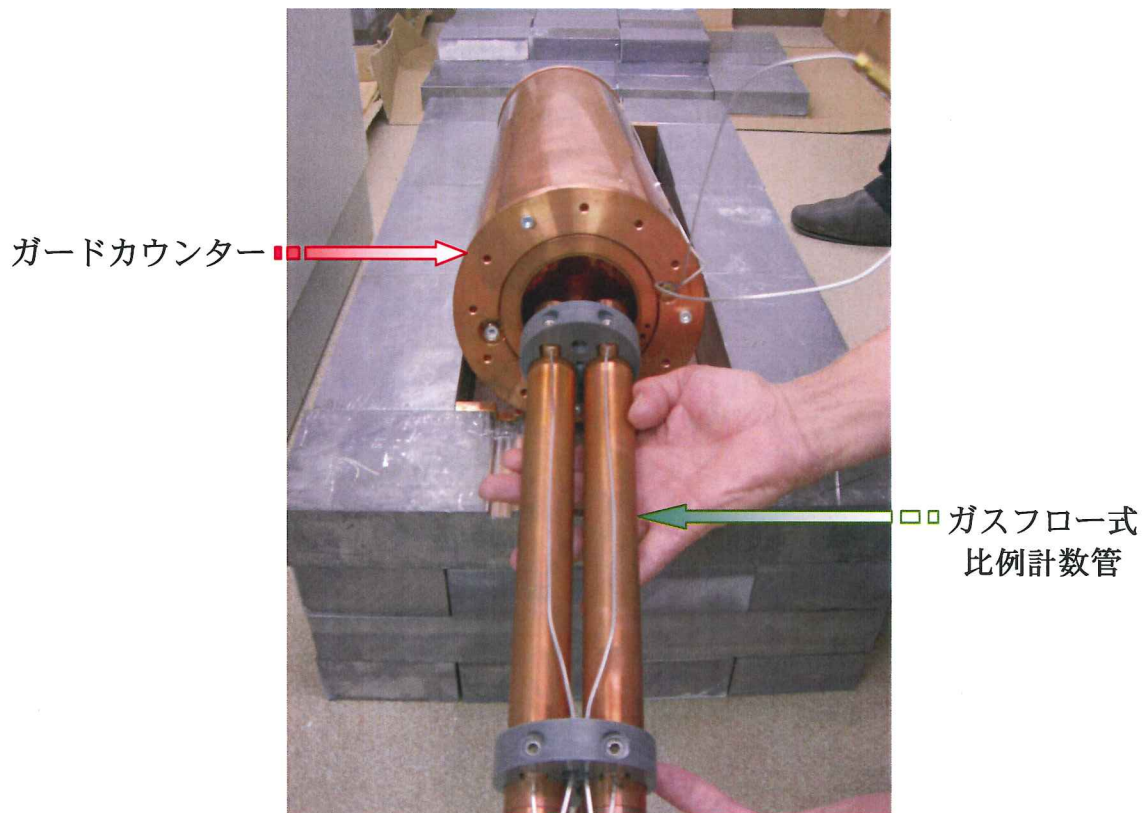


図 3-8-9 ガスフロー式比例計数管とガードカウンター

(2) 妥当性確認

1) ^{85}Kr 分析

^{85}Kr 分析結果の妥当性を確認するために、 ^{85}Kr 濃度既知の標準ガスを用いて、 ^{85}Kr 分析装置の健全性を毎週確認した。また、千葉市において、同一期間大気捕集を行った試料を 2 試料用意し、一方を分析センターが分析し、他方をドイツ大気放射能研究所 (BfS: Bundesamt für Strahlenschutz) が分析することにより、相互比較分析を毎週実施した。

① ^{85}Kr 分析装置の健全性確認

クリプトンを含む 8 種類のガスを混合した標準ガスを用いて、前処理装置 (図 3-8-4 参照) で大部分の空気成分を粗分離した後、ガスクロマトグラフを用いてクリプトンピークの存在を目視により確認した。図 3-8-10 に空気成分の粗分離後のガスクロマトグラムを示す。

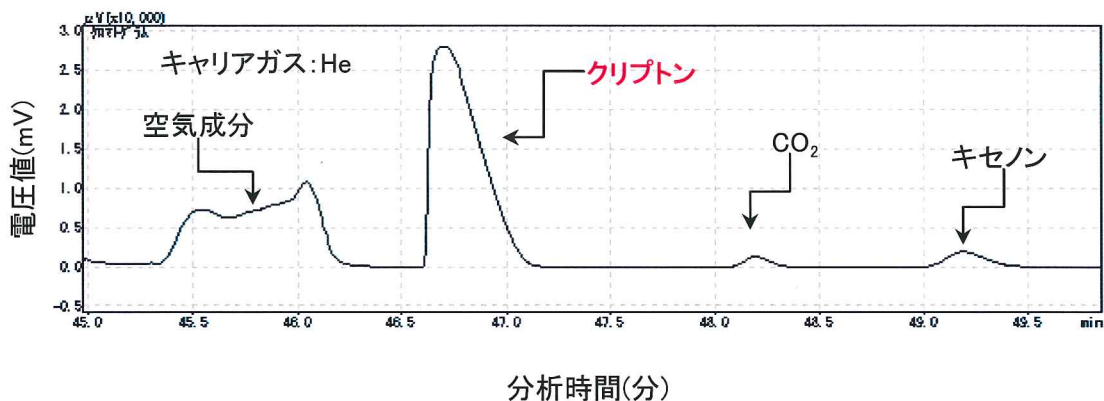


図 3-8-10 空気成分の粗分離後のガスクロマトグラム

続いて、クリプトン分離・精製用ガスクロマトグラフ (図 3-8-5 参照) により、クリプトンを分離・精製し、クリプトンピークがその他のガスピークと十分に分離されていることを目視により確認し、クリプトンの分離時間 (リテンションタイム) 並びに GM 管を含む閉鎖系ループの開閉時間内 (分離開始 7.0 分から 10.0 分までの間) に大部分のクリプトンピークが存在していることを確認した。図 3-8-11 にクリプトン分離・精製時のガスクロマトグラムを示す。

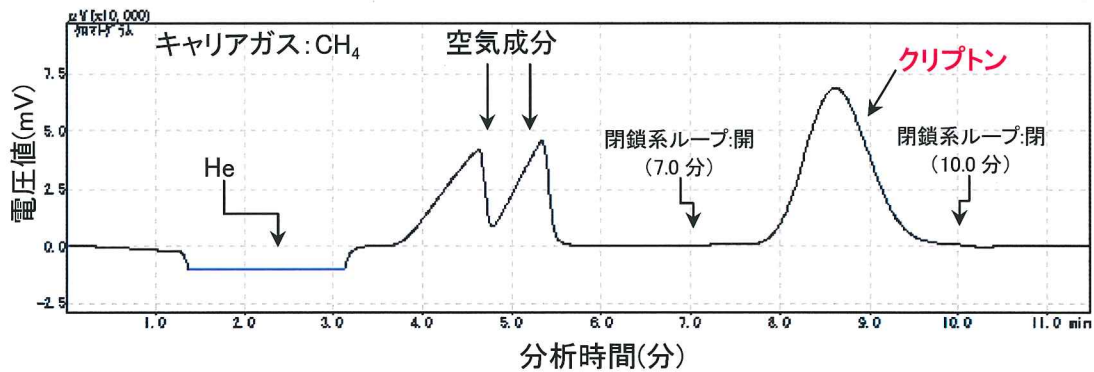


図 3-8-11 クリプトン分離・精製時のガスクロマトグラム

GM 管を含む閉鎖系ループ内に導入されたクリプトンに含まれる ⁸⁵Kr のβ線を測定し、測定結果より得られる GM 計数効率が基準範囲（過去の変動を考慮）内であることを確認し、分析装置の健全性を確認した。図 3-8-12 に GM 計数効率の経時変化を示す。

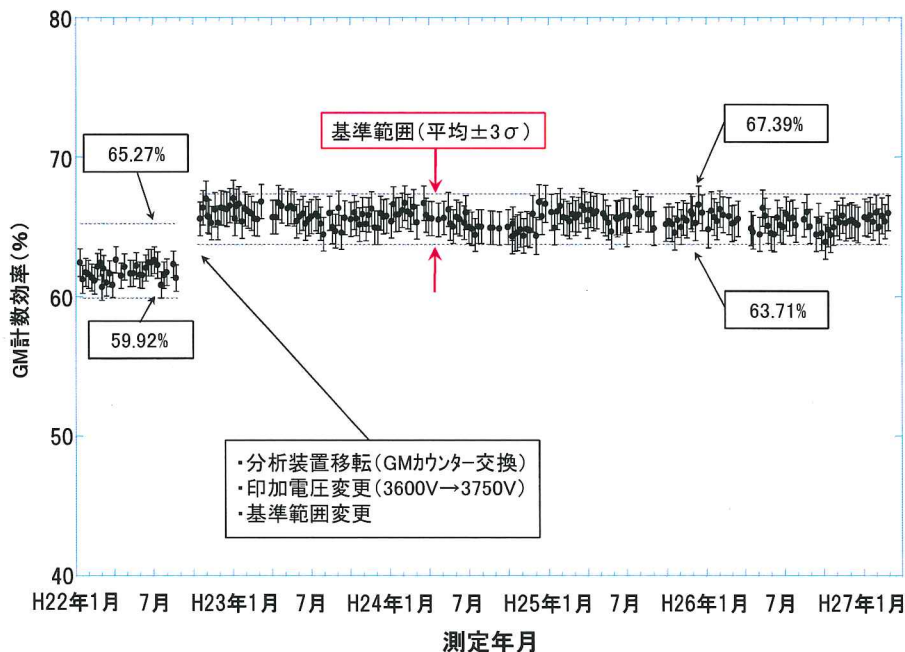


図 3-8-12 GM 計数効率の経時変化

② ドイツ大気放射能研究所 (BfS) との相互比較分析

千葉市において同一期間大気捕集を行った試料を用いて、ドイツ大気放射能研究所 (BfS) と相互比較分析を実施し、分析結果の妥当性を確認した。図 3-8-13 にドイツ大気放射能研究所 (BfS) との相互比較分析

結果を示す。

両機関の⁸⁵Kr分析結果は、分析結果比（JCAC / BfS）の平均、標準偏差及び変動係数が、それぞれ1.00、0.03及び2.5%であり、よく一致した結果が得られた。

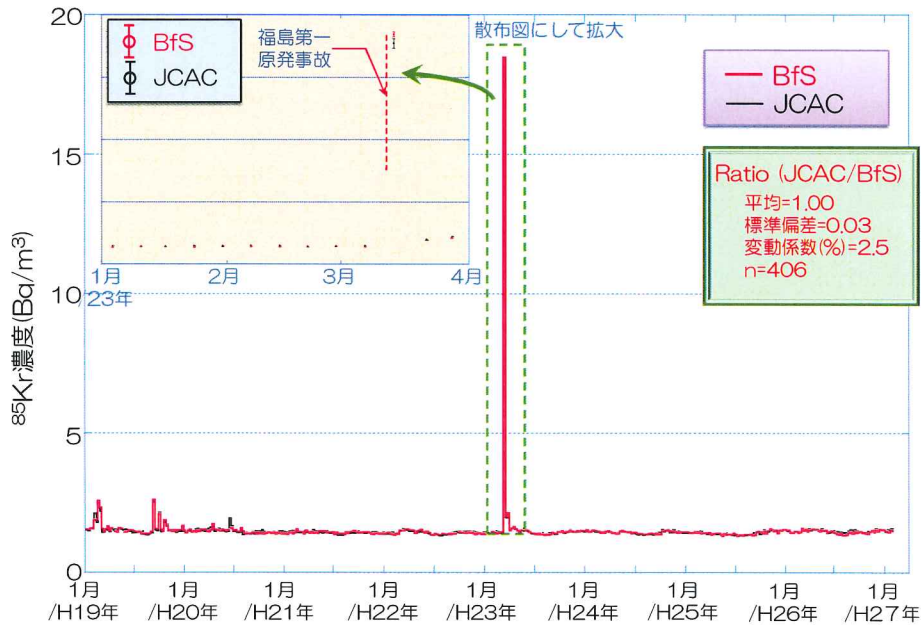


図 3-8-13 ドイツ大気放射能研究所（BfS）との相互比較分析結果

2) ¹³³Xe 分析

¹³³Xe 分析結果の妥当性を確認するために、ガスクロマトグラフによりキセノンを分離する際に、ガスクロマトグラムを確認して、分析装置の健全性を確認した。また、¹³³Xe 分析と系統分析が可能である⁸⁵Krについて、同一時期に採取した試料（千葉市）を、⁸⁵Kr 分析装置により分析して得られた結果と比較することにより、比例計数管の計数効率の妥当性を確認した。

① ¹³³Xe 分析装置の健全性確認

大部分の空気成分を粗分離した試料を、分離・精製用ガスクロマトグラフ（図 3-8-8 参照）により、キセノンを分離・精製し、キセノンピークがその他のガスピークと十分に分離されていることを目視により確認し、比例計数管を含む閉鎖系ループの開閉時間内（分離開始後約 11.5 分から約 13.5 分までの間）に大部分のキセノンピークが存在していることを確認した。図 3-8-14 にキセノン分離・精製時のガスクロマトグラムを示す。

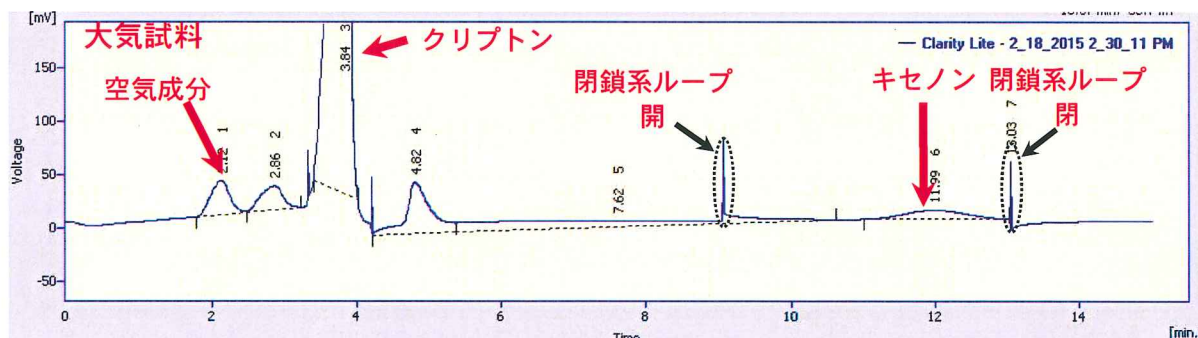


図 3-8-14 キセノン分離・精製時のガスクロマトグラム

② ^{85}Kr 分析装置との相互比較分析

千葉県において同一期間大気捕集を行った試料を用いて、 ^{133}Xe 分析装置及び ^{85}Kr 分析装置で得られた ^{85}Kr 濃度を比較することにより、 ^{133}Xe 分析装置の比例計数管の計数効率の妥当性を確認した。図 3-8-15 に ^{85}Kr 分析装置との相互比較分析結果を示す。

両装置の ^{85}Kr 分析結果は、分析結果比 (^{133}Xe 分析装置 / ^{85}Kr 分析装置) の平均、標準偏差及び変動係数が、それぞれ 1.00、0.03 及び 2.7% であり、よく一致した結果が得られた。

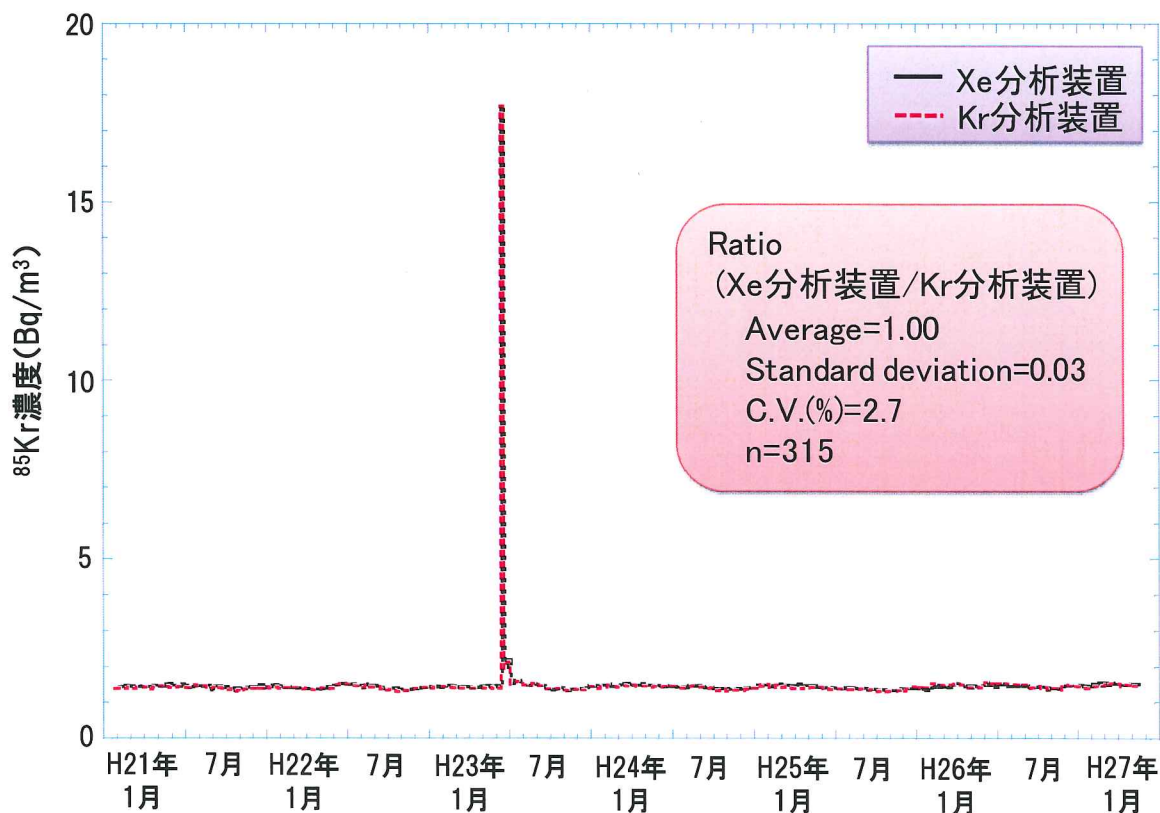


図 3-8-15 ^{85}Kr 分析装置との相互比較分析結果

3.9 福島県下における環境放射能調査

3.9.1 環境試料の調査

(1) 分析法

1) 調製方法

送付試料（日常食）を解凍した後、マリネリ容器に詰めて測定試料とした。なお、調製時は、試料間の相互汚染が起きないように、調製の都度、手袋等を取り替えてマリネリ容器に詰めた。

2) 測定方法

文部科学省放射能測定法シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」（平成4年改訂）に準じた。操作の概略は以下のとおりである。

ゲルマニウム半導体検出器を用いて、マリネリ容器に詰めた測定試料を70,000秒間以上測定し、放射能濃度を算出した。なお、核データは原則としてAtomic Data and Nuclear Data Tables（1983年）に従った。

(2) 妥当性の確認

本調査を遂行するにあたり、測定の質の保証を担保するため、ゲルマニウム半導体検出器の安定性を以下の方法により確認した。

1) 効率のチェック

月1回の頻度で標準線源を測定し、ゲルマニウム半導体検出器のピーク効率に変化の無いことを確認した。

ピーク効率は、1年を通してその変動係数が基準（5%）以内であった（表3-9-1-1）。

2) バックグラウンドの測定

週1回の頻度で試料の無い状態で測定を行い、ゲルマニウム半導体検出器に汚染の無いことを確認した。また、 ^{40}K の測定結果等から機器が正常に稼動していることについても併せて確認した。

表 3-9-1-1 ゲルマニウム半導体検出器のピーク効率の変動（月 1 回の測定）

検出器番号	期間	変動係数（％）		
		¹⁵² Eu (121.8keV)	¹³⁷ Cs (661.6keV)	¹⁵² Eu (1408keV)
14	H26.2 ~ H27.1	0.57	0.65	0.86
15	H26.2 ~ H27.1	0.41	0.32	1.1
27	H26.2 ~ H27.1	0.36	0.33	0.62
28	H26.2 ~ H27.1	0.35	0.41	0.74
31	H26.2 ~ H27.1	0.37	0.32	0.72
40	H26.2 ~ H27.1	0.38	0.29	0.86
43	H26.2 ~ H27.1	0.23	0.25	0.80
44	H26.2 ~ H27.1	0.16	0.20	0.45
46	H26.2 ~ H27.1	0.24	0.29	0.69
51	H26.2 ~ H27.1	0.43	0.34	0.75
52	H26.2 ~ H27.1	0.28	0.37	0.99
54	H26.2 ~ H27.1	0.30	0.43	0.69
55	H26.2 ~ H27.1	0.46	0.51	1.0
56	H26.2 ~ H27.1	0.52	0.21	1.1
57	H26.2 ~ H27.1	0.31	0.36	0.57
58	H26.2 ~ H27.1	0.30	0.26	0.87

3.9.2 空間線量の調査

(1) 妥当性の確認

1) 点検・校正作業

国家標準線源とトレーサビリティの得られている基準線源（Cs-137）を専用の線源照射治具を用いて対象測定器に照射し、その指示値が校正試験の判定基準の範囲内となるよう調整、確認した。

その結果を表 3-9-2-1 に示す。

点検・校正の結果、測定器が正常に稼働していることを確認した。

2) 並行測定による指示値の確認

可搬型モニタリングポストの検出器位置において、サーベイメータで並行測定を行い、可搬型モニタリングポスト指示値とサーベイメータ指示値を比較した。

その結果を表 3-9-2-2 および図 3-9-2-1 に示す。並行測定の結果、概ね可搬型モニタリングポスト指示値とサーベイメータ指示値は±20%以内で一致していた。なお、±20%以上の差が確認された一部地点については、モニタリングポスト周辺の四方において同一の測定を実施した結果、測定値間に差が確認された。このことから周辺汚染分布の偏在により、並行測定を実施する地点・向きによりサーベイメータ指示値とモニタリングポスト指示値の間に差が見られたと考えられた。

3) 低線量率比較法

現地において可搬型モニタリングポスト指示値がその周囲の空間放射線量率を反映していることを確認するため、当該測定器の周辺を分析センターの NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータを用いて測定した。その結果から可搬型モニタリングポストが設置されている地点の空間放射線量率を内挿することにより算出し、同時時間帯に測定した可搬型モニタリングポスト指示値と比較した。

平成 26 年度は、対象地点を 3 地点／80 地点とし、空間放射線量率や測定条件の異なる広野町役場、女平地区集会所（楢葉町）および村営バス停留所（貝ノ坂地区）（川内村）を選定し実施した。

その結果を表 3-9-2-3、図 3-9-2-2 (1)～(3) に示す。比較した結果、広野町役場を除き±15%以内で一致していた。

広野町役場は測定器にシリコン半導体を使用しており、且つ周辺の空間放射線量率が約 0.1 μ Sv/h と比較的 low 線量率地域である。これらのことから、NaI (TI) シンチレーションスペクトロメータよりも宇宙線電離成分に対して感度を有するシリコン半導体検出器の場合、宇宙線寄与線量率が 0.03 μ Sv/h 程度含まれるため、この寄与分により約 30%の差が認められたと考えられた。

4) 温度依存性の確認

可搬型モニタリングポスト指示値の日変動幅の大きい地点で 10%程度の地点が認められている。この要因を確認するために、該当する可搬型モニタリングポストのうち 2 地点について温度計を検出器に設置し、時系列の温度データを収集することにより、温度依存性の有無を確認した。

その結果を図 3-9-2-3 (1) ～ (2) に示す。確認した結果、NaI 検出器を用いて測定を実施している可搬型モニタリングポスト（飯樋小学校）では、温度の上昇と比例して空間放射線量率が上昇していることが確認された。これは温度変化により NaI 結晶の発光効率とフルエンス率の比が変化してしまうことにより起きる現象である。

一方、シリコン半導体検出器を用いて測定を実施している可搬型モニタリングポスト（飯館村役場）では、温度の上昇と反比例して空間放射線量率が下降していることが確認された。これはシリコン半導体検出器の特性であると考えられた。

通常、これらの現象を抑制するために温度補償回路および温度制御装置が搭載されているが、当該測定器には温度補償回路のみが搭載されている。しかし、その温度補償の効果は十分に発揮されていないと考えられた。これにより、ソーラーパネルにより発電した電力を用いて稼働している測定器（飯樋小学校）では、直射日光が当たりやすい設置環境になっているため、温度変化の影響を受けやすい条件であると考えられた。

確認の結果、可搬型モニタリングポスト 80 台の測定値は、周辺線量率の偏在、宇宙線に対する NaI 検出器とシリコン半導体検出器の感度の違い及び温度特性の影響を考慮すると概ね妥当であると考えられた。

表 3-9-2-2 可搬型モニタリングポスト指示値と
サーベイメータ指示値の比の比較

(測定期間：平成 26 年 6 月 4 日～平成 27 年 2 月 26 日)

平均	0.99
n	416
最大	1.46
最小	0.66
標準偏差	0.097
変動係数	9.7%

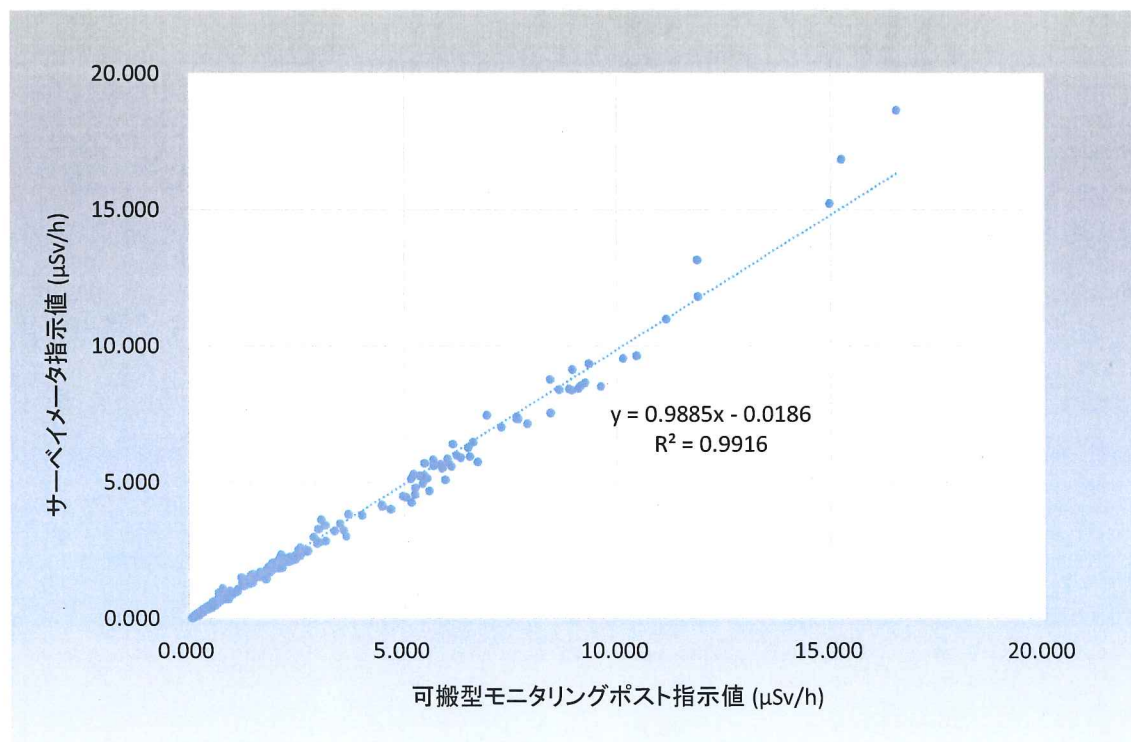
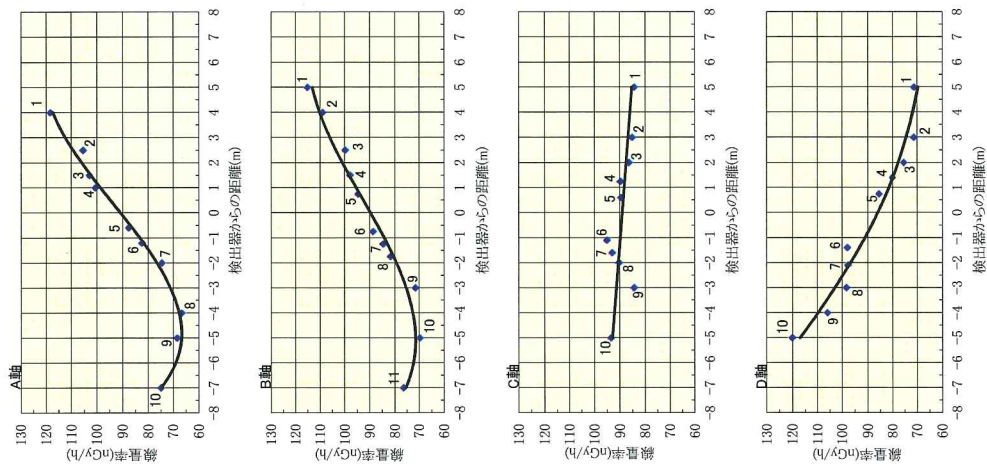


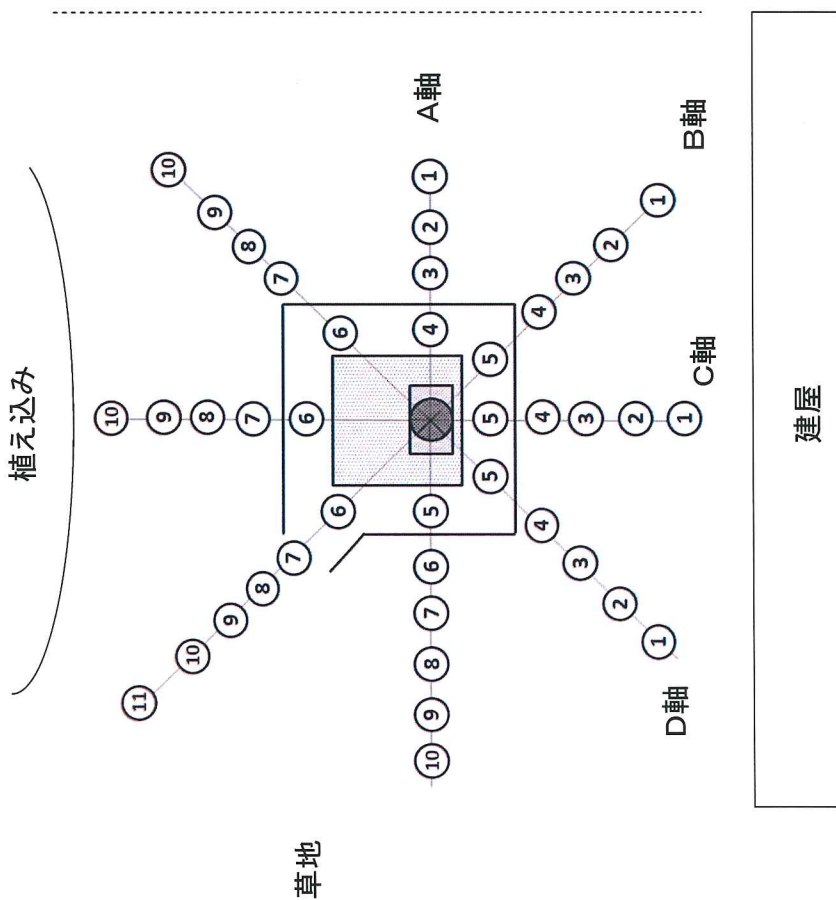
図 3-9-2-1 可搬型モニタリングポストの指示値と
サーベイメータ指示値の比の比較

表 3-9-2-3 低線量率比較法 測定結果比較一覧

モニタリングポスト地点名	[A] モニタリングポスト 指示値 (nGy/h)	[B] NaI (TI) スペクトロメータ 測定結果からの推定値 (nGy/h)	[A] / [B]
広野町役場 (広野町)	113.9 ± 5.0	86.7	1.31
女平地区集会所 (榎葉町)	142.3 ± 1.4	136.2	1.04
村営バス停留所 (貝ノ坂地区) (川内村)	642.0 ± 4.1	729.8	0.88

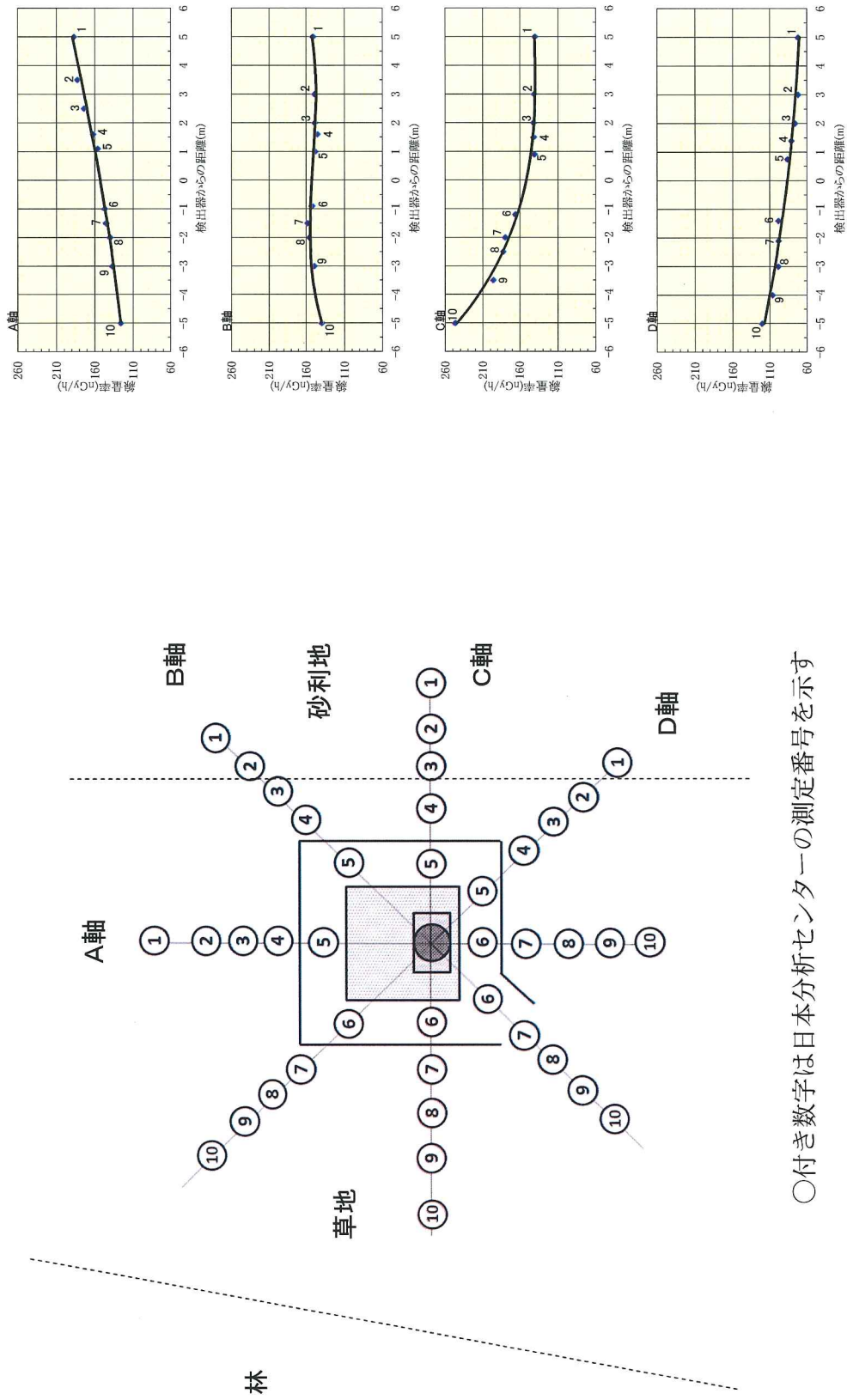


崖(草地)



○付き数字は日本分析センターの測定番号を示す

図 3-9-2-2 (1) 低線量率比較法 測定地点と空間放射線量率分布図
(広野町役場)



○付き数字は日本分析センターの測定番号を示す

図 3-9-2-2 (2) 低線量率比較法 測定地点と空間放射線量率分布図
(女平地区集会所 (檜葉町))

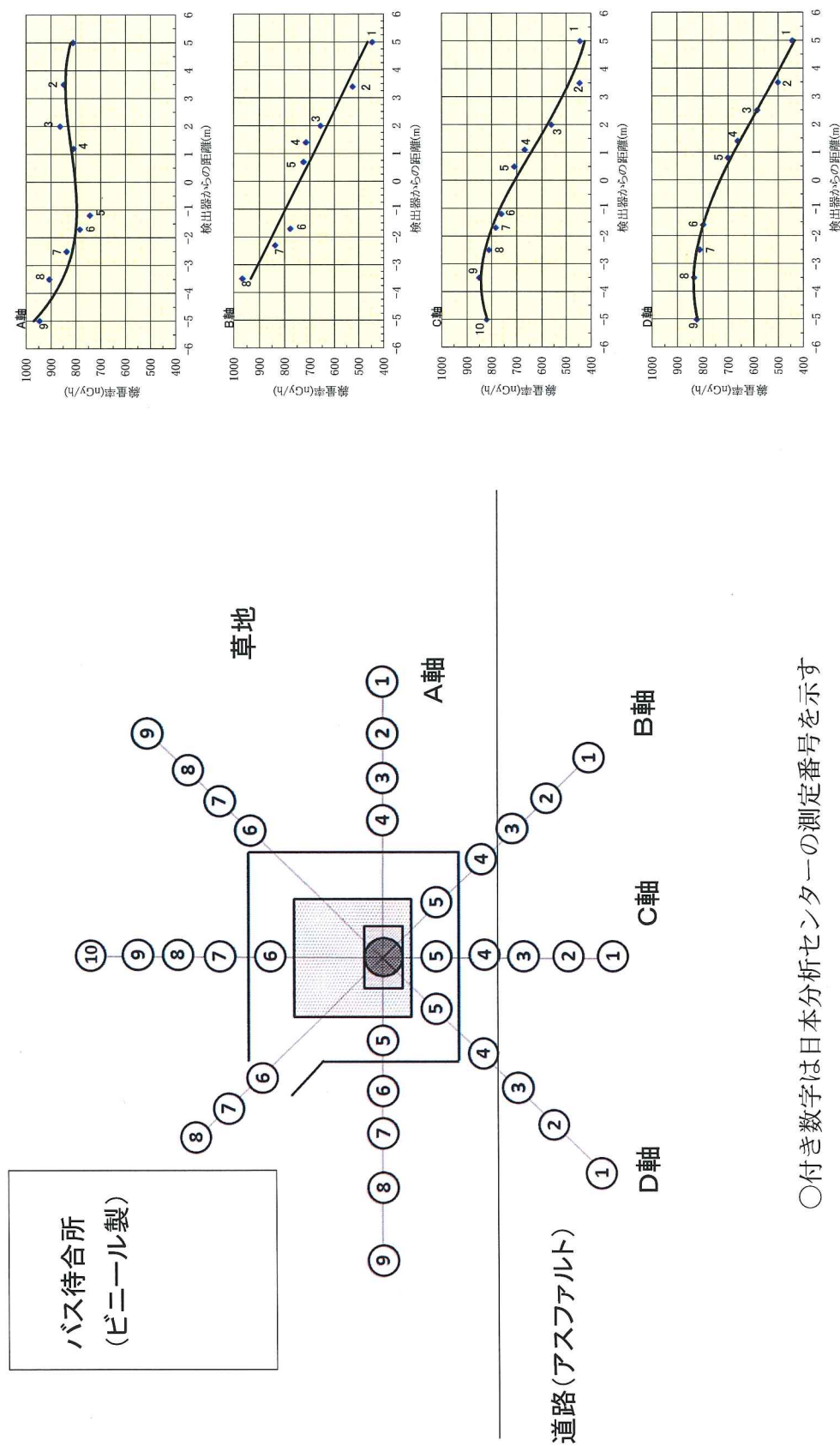
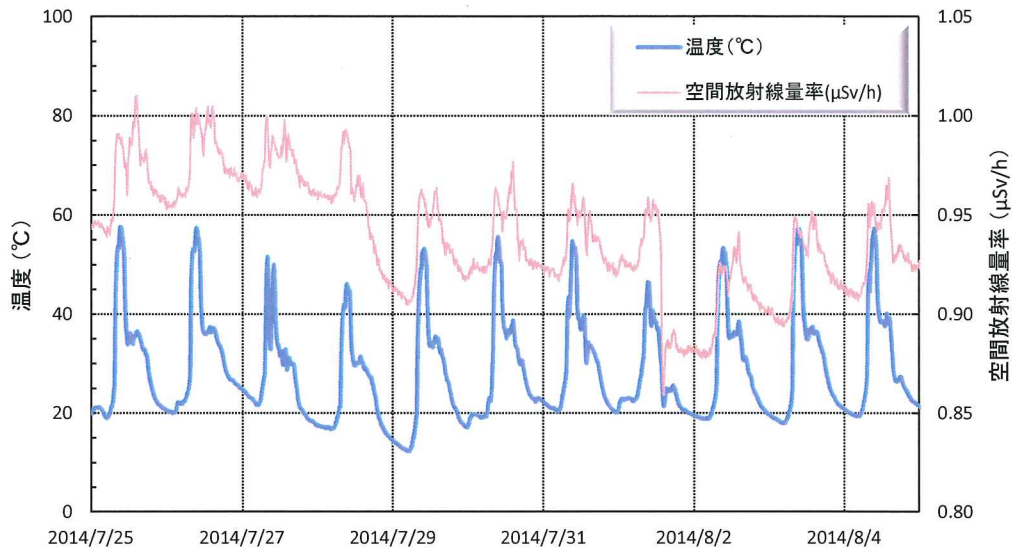
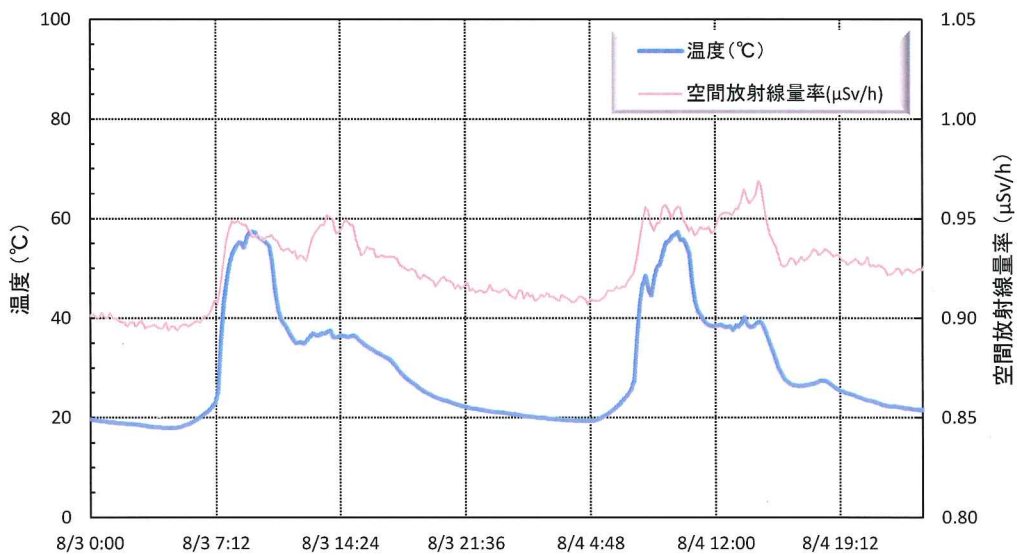


図 3-9-2-2 (3) 低線量率比較法 測定地点と空間放射線量率分布図
(村営バス停留所 (貝ノ坂地区) (川内村))



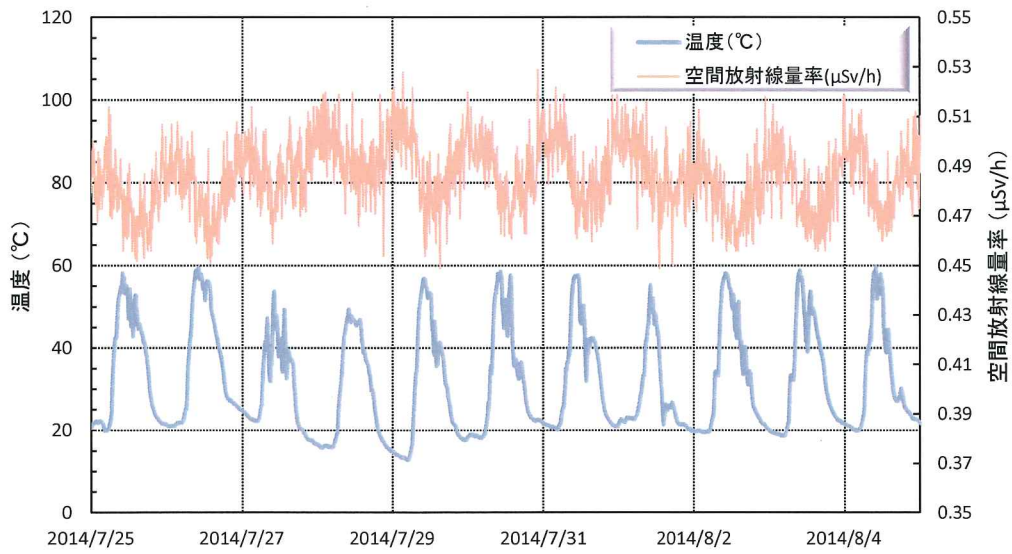
飯樋小学校 (NaI + シリコン検出器)

図 3-9-2-3 (1) -1 空間放射線量率と温度変化の相関
(NaI+シリコン検出器)



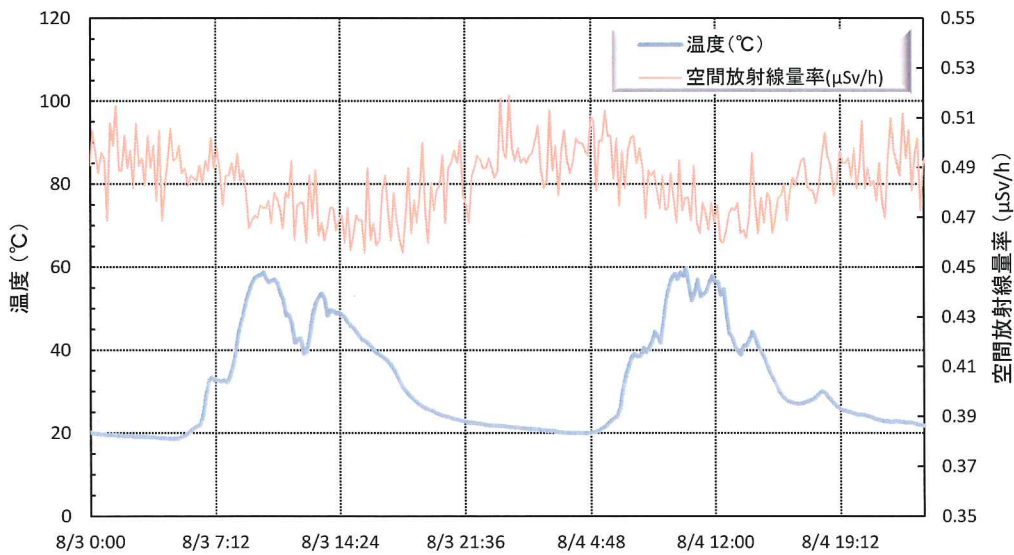
飯樋小学校 (NaI + シリコン検出器)

図 3-9-2-3 (1) -2 空間放射線量率と温度変化の相関
(NaI+シリコン検出器)



飯舘村役場(シリコン検出器)

図 3-9-2-3 (2) -1 空間放射線量率と温度変化の相関 (シリコン検出器)



飯舘村役場(シリコン検出器)

図 3-9-2-3 (2) -2 空間放射線量率と温度変化の相関 (シリコン検出器)

4. 環境放射能水準調査における精度管理の取組について

4.1 実施内容

環境放射能水準調査の分析において、技術水準を確保するために精度管理の強化に取組んだ。実施内容を以下に示す。

① 低線量率比較法の実施

モニタリングポストの動作確認として、バックグラウンドレベルでのクロスチェック(低線量率比較法)を実施した。実施場所は福島県内の3地域から各1地点を選定した。

② ストロンチウム 90 分析用標準試料の作製

生物試料の⁹⁰Sr分析の工程管理に使用する標準試料(灰試料)を作製した。

③ 相互比較分析の実施

IAEA や近隣諸国の放射能分析機関との相互比較分析を実施した。

4.2 実施結果

4.2.1 低線量率比較法

実施結果の詳細について3.9.23)に示す。低線量率比較法を実施した結果、シリコン半導体検出器を使用している可搬型モニタリングポストを除き、分析センターのNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いた測定結果と±15%以内で一致した。なお、シリコン半導体検出器はNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータよりも宇宙線電離成分に対して感度を有し、宇宙線寄与線量率として0.03 μ Sv/h程度がモニタリングポスト指示値に含まれていることを考慮すると、3地点全てについて±15%以内で一致したと判断できる。

4.2.2 ストロンチウム 90 分析用標準試料の作製

(1) 標準試料の作製方法

台湾から乾燥茶葉(100kg)を購入し、「標準物質生産者の能力に関する一般要求事項 ISO Guide34:2009 (JIS Q 0034:2012)」を参考に標準試料を作製した。

乾燥茶葉を450℃で24時間灰化し、ふるい(0.355mm ϕ)に通した後にVブレンダーで3時間混合した。試料を小分けし(17g入り \times 400試料)、標準試料とした。

(2) 均質性試験

作製した標準試料からランダムに選択した10試料について、均質性試験を行った。均質性試験結果を表4-2-1から表4-2-3に示す。

表4-2-1 放射化学分析結果

対象項目	平均値 (Bq/g 灰)	標準偏差 (Bq/g 灰)	変動係数 (%)	判定基準	判定
⁹⁰ Sr	0.0423	0.0016	3.8	4%以下	合格

表 4-2-2 ICP 発光分光分析結果

対象項目	平均値 (mg/g 灰)	標準偏差 (mg/g 灰)	変動係数 (%)	判定基準	判定
Sr	0.48	0.005	1.1	2%以下	合格
Ca	93.5	1.2	1.3	2%以下	合格

表 4-2-3 蛍光 X 線分析結果

対象項目	平均値 (cps)	標準偏差 (cps)	変動係数 (%)	判定基準	判定
S	64,105	243	0.38	3%以下	合格
K	5,273,655	11,679	0.22	3%以下	合格
Ca	1,386,715	6,148	0.44	3%以下	合格
Sr	7,783	50	0.64	3%以下	合格

均質性試験のすべての対象項目について、それぞれの判定基準を満たしたので、今回作製した試料は⁹⁰Sr 分析の分析工程管理のための標準試料として運用することとした。

標準試料の基準値と基準範囲を表 4-2-4 に示す。

表 4-2-4 標準試料の基準値と基準範囲

項目	基準値	基準範囲	単位
⁹⁰ Sr	42.3	37.5~47.1	Bq/kg 灰
Sr	0.48	0.46~0.50	mg/g 灰
Ca	93.5	89.9~97.1	mg/g 灰

注) ⁹⁰Sr 濃度は平成 26 年 4 月 1 日の値を示す

(3) 運用実績

作製した標準試料は、⁹⁰Sr 分析の工程管理に使用した。運用実績結果については、3.4 に示す。

4.2.3 相互比較分析の実施

分析、測定 of 精度管理の一環として、IAEA や近隣諸国の放射能分析機関との相互比較分析を実施し、環境放射能水準調査の精度管理を行った。

(1) IAEA との相互比較分析

IAEA が主催する技能試験に参加し国際的な視点において分析技術を客観的に評価し、分析センターの分析結果の信頼性を確認した。

1) IAEA の技能試験参加実績

IAEA の技能試験参加実績を表 4-2-5 に示す。

表 4-2-5 IAEA の技能試験参加実績

技能試験	対象試料
IAEA-TEL-2014-03-WWPT	水試料、海藻、湖底土
IAEA-TEL-2014-04-ALMERAPT	水試料、海藻、湖底土
IAEA-PT-2014 for Determination of Radionuclides in Seawater	海水

2) IAEA 技能試験実施内容

平成 26 年度に実施した技能試験の実施内容を表 4-2-6 に示す。

表 4-2-6 技能試験の実施内容

IAEA-TEL-2014-03-WWPT		
対象試料	対象核種	分析方法
水試料 1 (Spiked water1)	¹³⁴ Cs	γ線スペクトロメトリー
	¹³⁷ Cs	γ線スペクトロメトリー
	⁹⁰ Sr	放射化学分析
水試料 2 (Spiked water2)	¹⁵² Eu	γ線スペクトロメトリー
	²²⁶ Ra	放射化学分析
	²³⁴ U	放射化学分析
	²³⁵ U	放射化学分析
	²³⁸ U	放射化学分析

IAEA-TEL-2014-03-WWPT		
対象試料	対象核種	分析方法
海藻 (Spiked seaweed)	^{134}Cs	γ 線スペクトロメトリー
	^{137}Cs	γ 線スペクトロメトリー
湖底土 (Sediment)	^{137}Cs	γ 線スペクトロメトリー

IAEA-TEL-2014-04-ALMERA PT		
対象試料	対象核種	分析方法
水試料 1 (Spiked water1)	^{134}Cs	γ 線スペクトロメトリー
	^{137}Cs	γ 線スペクトロメトリー
	^{90}Sr	放射化学分析
水試料 2 (Spiked water2)	^{152}Eu	γ 線スペクトロメトリー
	^{226}Ra	放射化学分析
	^{234}U	放射化学分析
	^{235}U	放射化学分析
	^{238}U	放射化学分析
海藻 (Spiked seaweed)	^{134}Cs	γ 線スペクトロメトリー
	^{137}Cs	γ 線スペクトロメトリー
湖底土 (Sediment)	^{137}Cs	γ 線スペクトロメトリー
水試料 (Water from oil field)	^{226}Ra	放射化学分析

IAEA-PT-2014 for Determination of Radionuclides in Seawater		
試料	対象核種	分析方法
海水 (Spiked Seawater)	^3H	放射化学分析
	^{90}Sr	放射化学分析
	^{134}Cs	γ 線スペクトロメトリー
	^{137}Cs	γ 線スペクトロメトリー

IAEA 技能試験の結果

① IAEA-TEL-2014-03-WWPT

IAEA から分析機関ごとの個別報告書 (Individual Evaluation Report for Laboratory Nr. 175) が送付された。個別報告書については、参考資料 4-1 に示す。この個別レポートでは、分析結果を正確さ (Accuracy)、精密さ (Precision) について評価し、最終的に総合評価 (Final Score) を示している。今回の技能試験では、すべての対象試料、対象核種において、良好な結果 (Accepted) であった。技能試験の結果を表 4-2-7 に示す。

表 4-2-7 技能試験結果 (IAEA-TEL-2014-03-WWPT)

対象試料	対象核種	評価結果
水試料 1 (Spiked water1)	^{134}Cs	良好な結果
	^{137}Cs	良好な結果
	^{90}Sr	良好な結果
水試料 2 (Spiked water2)	^{152}Eu	良好な結果
	^{226}Ra	良好な結果
	^{234}U	良好な結果
	^{235}U	良好な結果
	^{238}U	良好な結果
海藻 (Spiked seaweed)	^{134}Cs	良好な結果
	^{137}Cs	良好な結果
湖底土 (Sediment)	^{137}Cs	良好な結果

② IAEA-TEL-2014-04-ALMERA PT

IAEA から分析機関ごとの個別報告書 (Individual Evaluation Report for Laboratory Nr. 73) が送付された。個別報告書については、参考資料 4-2 に示す。この個別レポートでは、分析結果を正確さ (Accuracy)、精密さ (Precision) について評価し、最終的に総合評価 (Final Score) を示している。今回の技能試験では、水試料 2 のウラン 235 を除いたすべての対象試料、対象核種において良好な結果 (Accepted) であった。水試料 2 については、注意を要する結果 (Warning) であった。個別報告書では Z スコアによる評価も行っており、Z スコアは 1.62 であった。「適合性評価

「技能試験に対する一般要求事項 ISO/IEC17043:2010(JIS Q 17043:2011)」にあるように、技能試験では Z スコアが-2 から 2 の範囲では満足となることから、Z スコアによる評価では問題はない。IAEA より詳細な報告書が送付され次第、この件を検討する予定である。技能試験の結果を表 4-2-8 に示す。

表 4-2-8 技能試験結果 (IAEA-TEL-2014-04-ALMERA PT)

対象試料	対象核種	評価結果
水試料 1 (Spiked water1)	^{134}Cs	良好な結果
	^{137}Cs	良好な結果
	^{90}Sr	良好な結果
水試料 2 (Spiked water2)	^{152}Eu	良好な結果
	^{226}Ra	良好な結果
	^{234}U	良好な結果
	^{235}U	注意を要する
海藻 (Spiked seaweed)	^{134}Cs	良好な結果
	^{137}Cs	良好な結果
湖底土 (Sediment)	^{137}Cs	良好な結果
水試料 (Water from oil field)	^{226}Ra	良好な結果

③ IAEA-PT-2014 for Determination of Radionuclides in Seawater

IAEA から報告書案 (IAEA Proficiency Test 2014 for Determination of Radionuclides in Seawater) が送付された。報告書案については、参考資料 4-3 に示す。この報告書では、分析結果を正確さ (Accuracy)、精密さ (Precision)、真度 (Trueness) について評価し、最終的に総合評価 (Final Score) を示している。今回の技能試験では、すべての対象試料、対象核種において、良好な結果 (Accepted) であった。技能試験の結果を表 4-2-9 に示す。

表 4-2-9 技能試験結果 (IAEA-PT-2014 for Determination of Radionuclides in Seawater)

試料	対象核種	評価結果
海水 (Spiked Seawater)	^3H	良好な結果
	^{90}Sr	良好な結果
	^{134}Cs	良好な結果
	^{137}Cs	良好な結果

(2) 近隣諸国との相互比較分析

1) 相互比較分析実施機関

- ・ 中国 (National Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety,
Chinese Center for Disease Control and Prevention : NIRP)
(State Environmental Protection Administration,
Radiation Monitoring Technical Center : RMTC)
- ・ 韓国 (Korea Institute of Nuclear Safety : KINS)
(National Institute of Environmental Research : NIER)
- ・ 台湾 (Taiwan Radiation Monitoring Center Atomic Energy Council : RMC)

平成 26 年度は新規に韓国 (NIER) と技術交流を開始した。

2) 平成 26 年度の相互比較分析実施内容

平成 26 年度に実施した相互比較分析の実施内容を表 4-2-10 に示す。また、平成 26 年度は韓国 (KINS)、台湾 (RMC) との運営会議を開催し、実施した相互比較分析結果について協議した。韓国 (KINS) との運営会議は、韓国済州島の済州大学において平成 26 年 9 月 22 日～9 月 24 日に開催した。台湾 (RMC) との運営会議は、分析センターにおいて平成 26 年 11 月 26 日～11 月 27 日に開催した。新規に技術交流を開始した韓国 (NIER) とは、平成 26 年 11 月 10 日に運営会議を分析センターで開催し、今後、in-situ 測定、希ガス測定に関する放射能研修を実施することとした。

表 4-2-10 相互比較分析の実施内容

中国 (NIRP、RMTC)		
試料	対象核種	分析方法
土壌 (Soil)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
スキムミルク(灰) (Skim milk-ash)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
茶葉(灰) (Tea-ash)	^{90}Sr	放射化学分析
TLD	積算線量	

韓国 (KINS)		
試料	対象核種	分析方法
土壌 (Soil)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
	^{239}Pu 、 ^{240}Pu	ICP-MS
	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	ICP-MS
	^{237}Np	ICP-MS
リン酸石膏 (Phosphogypsum)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
	^{226}Ra	放射化学分析
	^{239}Pu 、 ^{240}Pu	ICP-MS
	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	ICP-MS
海水 (Seawater)	^{137}Cs	放射化学分析
TLD	積算線量	

注) in-situ 測定 of 相互比較分析も実施した

台湾 (RMC)		
試料	対象核種	分析方法
陸水 (Fresh water)	^3H	放射化学分析
	全 β	放射化学分析
海水 (Sea water)	U	放射化学分析
	全 β	放射化学分析
茶葉 (Tea leaves)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
	^{90}Sr	放射化学分析
	^{137}Cs	放射化学分析
	全 β	放射化学分析
土壌 (Soil)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
	^{90}Sr	放射化学分析
	^{137}Cs	放射化学分析
	U	放射化学分析
	全 β	放射化学分析
河川水 (River water)	γ 核種	γ 線スペクトロメトリー
TLD	積算線量	

相互比較分析結果については、概ね良好であった。台湾 (RMC) との相互比較分析に関わる報告書を参考資料 4-4 に示す。KINS (韓国) との相互比較分析に関わる報告書を参考資料 4-5 に示す。なお、中国 (NIRP、RMT) との相互比較分析は継続的に実施しており、平成 27 年度に運営会議を開催し報告書を取りまとめる予定である。

5. 環境放射能水準調査検討委員会

5.1 委員会構成

本調査の実施計画、調査結果等について、審議・助言を受けるため、学識経験者等から構成される委員会を設置した。平成26年度の環境放射能水準調査検討委員会の構成員を表5-1に示す。

表5-1 環境放射能水準調査検討委員会委員

委員名	所属及び職名
委員長 飯田 孝夫	名古屋大学 大学院工学研究科 名誉教授
青野 辰雄	独立行政法人 放射線医学総合研究所 福島復興支援本部 環境動態・影響プロジェクト サブリーダー
伊東 清実	岡山県環境保健センター 次長
中村 尚司	東北大学 名誉教授 サイクロトロンラジオアイソトープセンター 研究教授
久松 俊一	公益財団法人 環境科学技術研究所 環境動態研究部長
廣瀬 勝己	上智大学 理工学部 物質生命理工学科 客員教授
吉田 勝彦	公益財団法人 海洋生物環境研究所 海生研フェロー

5.2 委員会開催日と議題

平成26年度は2回の委員会を開催した。以下に、審議した主な内容等を示す。

(1) 平成26年度 第1回環境放射能水準調査検討委員会

1. 日時 平成26年6月4日(水) 13時20分～15時35分
2. 場所 航空会館 202会議室
3. 出席者(敬称略)

委員長 飯田孝夫 名古屋大学

委員 青野辰雄 独立行政法人 放射線医学総合研究所

伊東清実 岡山県環境保健センター

中村尚司 東北大学

廣瀬勝己 上智大学

吉田勝彦 公益財団法人 海洋生物環境研究所

事務局 上原、磯貝、太田_裕、岸本、伴場、新田、渡邊、前山、松田

4. 議題

- (1) 平成 26 年度環境放射能水準調査の実施内容について
- (2) 環境放射能水準調査の高度化・充実化に資する提案について
- (3) その他

5. 配布資料

- (1) 資料 水準 1-1 平成 26 年度環境放射能水準調査検討委員会委員名簿
- (2) 資料 水準 1-2 平成 25 年度第 2 回環境放射能水準調査検討委員会議事録
- (3) 資料 水準 1-3 平成 26 年度環境放射能水準調査の実施内容
- (4) 資料 水準 1-4 非交換型 OBT (有機結合型トリチウム) 分析の開始～対象試料の拡大～
- (5) 資料 水準 1-5 福島県内に設置された可搬型モニタリングポスト (80 基) の現状調査
- (6) 資料 水準 1-6 環境放射能水準調査における精度管理の取組みについて
- (7) 資料 水準 1-7 水準調査の高度化・充実化に資する提案
- (8) 資料 参考 1 平成 25 年度からの検討事項の回答
- (9) 資料 参考 2 Pu-241 分析に関する文献等
- (10) 資料 参考 3 水準調査の高度化・充実化に資する提案 (詳細版)

(2) 平成 26 年度 第 2 回環境放射能水準調査検討委員会

1. 日時 平成 27 年 2 月 27 日 (金) 13 時 30 分～16 時 10 分
2. 場所 航空会館 202 会議室
3. 出席者 (敬称略)

委員長 飯田孝夫 名古屋大学

委員 青野辰雄 独立行政法人 放射線医学総合研究所

伊東清実 岡山県環境保健センター

中村尚司 東北大学

廣瀬勝己 上智大学

吉田勝彦 公益財団法人 海洋生物環境研究所

事務局 加藤、上原、森本、太田_裕、岸本、伴場、新田、渡邊、前山、
太田_智、松田

4. 議題

- (1) 平成 26 年度 第 1 回環境放射能水準調査検討委員会議事録について
- (2) 環境試料の放射能調査結果について
 - ① 全ベータ放射能測定
 - ② ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種の測定
 - ③ トリチウム分析
 - ④ ストロンチウム 90 分析
 - ⑤ プルトニウム、アメリシウム分析
 - ⑥ ヨウ素 129 分析
 - ⑦ 炭素 14 分析
- (3) 大気中の放射性希ガス濃度測定結果について
 - ① クリプトン 85 分析
 - ② キセノン 133 分析
- (4) 福島県下における環境放射能調査結果について
 - ① 環境試料の調査
 - ② 空間線量の調査
- (5) 環境放射能水準調査における精度管理の取組について

5. 配布資料

- (1) 資料 水準 2-1 平成 26 年度 第 1 回環境放射能水準調査検討委員会議事録（案）
- (2) 資料 水準 2-2 全ベータ放射能測定結果
- (3) 資料 水準 2-3 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線放出核種の測定結果
- (4) 資料 水準 2-4 トリチウム分析結果
- (5) 資料 水準 2-5 ストロンチウム 90 分析結果
- (6) 資料 水準 2-6 プルトニウム、アメリシウム分析結果
- (7) 資料 水準 2-7 ヨウ素 129 分析結果
- (8) 資料 水準 2-8 炭素 14 分析結果
- (9) 資料 水準 2-9 大気中の放射性希ガス濃度測定結果
- (10) 資料 水準 2-10 福島県下における環境試料の調査結果
- (11) 資料 水準 2-11 空間線量（モニタリングポスト）の調査結果
- (12) 資料 水準 2-12 環境放射能水準調査における精度管理の取組について

5.3 メール会合開催日と議題

ガンマ線放出核種の測定、トリチウム分析、ストロンチウム 90 分析、プルトニウム、アメリカシウム分析及び大気中の放射性希ガス濃度測定については、分析・測定結果の迅速な報告を目的として、四半期毎にメール会合を開催し、委員の確認を得たのち、原子力規制庁に速報した。平成 26 年度は 3 回のメール会合を開催した。

以下に、確認した主な内容等を示す。

(1) 平成 26 年度 第 1 回環境放射能水準調査メール会合

1. 日時 平成 26 年 7 月 30 日 (水) ~8 月 5 日 (火)

2. 出席者(敬称略)

委員長 飯田孝夫 名古屋大学

委員 青野辰雄 独立行政法人 放射線医学総合研究所

伊東清実 岡山県環境保健センター

中村尚司 東北大学

久松俊一 公益財団法人 環境科学技術研究所

廣瀬勝己 上智大学

吉田勝彦 公益財団法人 海洋生物環境研究所

事務局 磯貝、太田_裕、岸本、伴場、新田、北村

3. 議題

(1) 環境試料の平成 26 年度第 1 四半期分の放射能調査結果について

① ガンマ線放出核種の測定

② ストロンチウム 90 分析

(2) 大気中の放射性希ガス濃度の平成 26 年度第 1 四半期分の測定結果について

① クリプトン 85 分析

② キセノン 133 分析

4. 配布資料

(1) 平成 26 年度環境放射能水準調査(放射能分析)委託業務成果報告書(速報)案

(2) 平成 26 年度環境放射能水準調査(放射能分析)結果(速報)概要

(2) 平成 26 年度 第 2 回環境放射能水準調査メール会合

1. 日時 平成 26 年 10 月 22 日 (水) ~10 月 28 日 (火)

2. 出席者(敬称略)

委員長 飯田孝夫 名古屋大学

委員 青野辰雄 独立行政法人 放射線医学総合研究所
伊東清実 岡山県環境保健センター
中村尚司 東北大学
久松俊一 公益財団法人 環境科学技術研究所
廣瀬勝己 上智大学
吉田勝彦 公益財団法人 海洋生物環境研究所
事務局 磯貝、太田_裕、岸本、伴場、新田、渡邊、北村

3. 議題

- (1) 環境試料の平成 26 年度第 2 四半期分析分の放射能調査結果について
 - ① ガンマ線放出核種の測定
 - ② トリチウム分析
 - ③ ストロンチウム 90 分析
 - ④ プルトニウム分析
- (2) 大気中の放射性希ガス濃度の平成 26 年度第 2 四半期分析分の測定結果について
 - ① クリプトン 85 分析
 - ② キセノン 133 分析

4. 配布資料

- (1) 平成 26 年度環境放射能水準調査(放射能分析)委託業務成果報告書(速報)案
- (2) 平成 26 年度環境放射能水準調査(放射能分析)結果(速報)概要

(3) 平成 26 年度 第 3 回環境放射能水準調査メール会合

1. 日時 平成 27 年 1 月 28 日(水)～2 月 3 日(火)
2. 出席者(敬称略)

委員長 飯田孝夫 名古屋大学
委員 青野辰雄 独立行政法人 放射線医学総合研究所
伊東清実 岡山県環境保健センター
中村尚司 東北大学
久松俊一 公益財団法人 環境科学技術研究所
廣瀬勝己 上智大学
吉田勝彦 公益財団法人 海洋生物環境研究所
事務局 磯貝、太田_裕、岸本、伴場、新田、北村

3. 議題

- (1) 環境試料の平成 26 年度第 3 四半期分析分の放射能調査結果について

- ① ガンマ線放出核種の測定
- ② ストロンチウム 90 分析
- (2) 大気中の放射性希ガス濃度の平成 26 年度第 3 四半期分析分の測定結果について
 - ① クリプトン 85 分析
 - ② キセノン 133 分析
- 4. 配布資料
 - (1) 平成 26 年度環境放射能水準調査(放射能分析)委託業務成果報告書(速報)案
 - (2) 平成 26 年度環境放射能水準調査(放射能分析)結果(速報)概要

関連文献調査結果

- ① LANDSTETTER, C., KATZLBERGER, C., RINGER, W., ACHATZ, A., (2010).
Determination of ^{90}Sr in soil, grass and cereals. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 286, 2, 435-439.

オーストリア高地の 8 か所において、土壌、牧草、穀物を採取し、 ^{90}Sr を定量した。土壌 8 か所の結果のうち、上位 2 か所については、表層土の濃度も高く、この原因は、土壌に含まれる有機物含量が 8.3%から 13.1%と高いため表層土壌は植物に長期にわたって利用可能な状態が高いためと推察している。土壌と同地域で採取された牧草中の ^{90}Sr 濃度とその土壌中の ^{90}Sr 濃度の関係には相関は見られなかった。ただし、土壌中のカルシウム量、特に、バリウムとの交換可能な量が少ないほど、牧草中の ^{90}Sr が高くなるという相関を見出している。言い換えれば、土壌中のカルシウムが植物に取り込まれるやすい場合には、 ^{90}Sr の取り込みが抑えられると推察している。穀物についての ^{90}Sr 濃度を報告しているが、特に土壌や牧草との関連は論述していない。

オーストリアとチェコとの国境付近に原子力発電所があり、オーストリア国民がこの発電所の影響を心配している。今回の調査は 2005 年に実施されたもので、これら 5 年間は大きな変化はないとみており、5 年後の 2010 年に再度調査するとよいと結論付けている。

- ② AMARAL, E. C. S., CAMPOS, M. J., DO, RIO, M., A., P., FRANKLIN, M., PARETZKE, H., G. (1995) Transfer of ^{137}Cs from Soil to Chicken Meat and Eggs. *J. Environ. Radioact.* 29, 3. 237-255.

ブラジルのゴイアニアで ^{137}Cs を利用した治療装置を誤って線源を開封した事故が発生した。これによって、鶏やヤギ、ヒツジなどの小動物が飼育されている郊外や田舎に、この放射性物質が沈着し、その土壌を摂取した動物から生産され、人が消費する肉、卵、牛乳に汚染が引きこされた。しかし、鶏肉の場合、汚染した餌から肉や卵への移行を評価できるようなデータはほとんどなかった。

そこで、情報が不足する中においても、土壌の摂取による鶏肉や卵への汚染への寄与を評価するために、汚染した居住地の庭を利用し、そこで鶏を飼育し、汚染土壌の摂取によって、放射性セシウムが鶏肉中にどのように分布するか、また、生物学的半減期を研究した。飼育した鶏は 3 種類でまた、飼育した環境も汚染地域の場合と飼育途中で非汚染地域に変更するなど行った。得られた卵

の白身、黄身、殻の放射能を測定し、経日変化を調べた。このような条件下で鶏が土壌を摂取し、その土壌から鶏肉や卵への移行について定量化しようとしたのが、本研究の目的である。

この結果に基づき、種々の鶏の卵や肉への濃度分布を求めた。その結果、卵では 5.5×10^{-3} から $1.06 \times 10^{-2} \text{ kg}_{\text{soil}} \text{ kg}_{\text{egg}}^{-1}$ 、肉で 2.1×10^{-2} から $5.5 \times 10^{-2} \text{ kg}_{\text{soil}} \text{ kg}_{\text{meat}}^{-1}$ 、内臓で 1.1×10^{-2} から $3.1 \times 10^{-2} \text{ kg}_{\text{soil}} \text{ kg}_{\text{meat}}^{-1}$ であった。

また、汚染したところで飼育した場合、その鶏から生まれた卵の白身と黄身については、飼育開始後、それぞれの放射能は直ちに一定となる。卵のうち白身には約 80%の放射能が、黄身には 20%と、そして殻にはほとんど無視できるほどの 3%以下の放射能が取り込まれる傾向がある。Bkack India という種類の鶏の場合、白身の放射能は黄身に比べると、3 から 5 倍高くなるという報告とも一致していると論述している。さらに、Isa Brown という種類では 白身と黄身では放射能比は 2:1 程度になる。Leghorn という種類においてもこれと同等の比率になる。

放射能汚染の沈着による線量評価を行うために、卵中の放射能と土壌中の放射能の比に着目した。また、この値を利用し、移行係数として、 $0.016\text{--}0.031 \text{ d eggs}^{-1}$ を求めたところ、文献値 $0.02\text{--}0.033 \text{ d eggs}^{-1}$ とよく一致したと報告している。

- ③ 井出保行, 梅村恭子, 渋谷岳, 平野清, 進藤和政, 山本嘉人 (2014) 土壌からの放射性セシウム移行係数の草種間差. 日本草地学会誌. 60 別号. 92.

放射性セシウムを蓄積しにくい牧草を見出すために、イネ科のオーチャードグラス、チモシー、トールフェスク、ペレニアルライグラス、マメ科のシロクロバーを栽培し、Cs 移行係数を比較した。その結果、トールフェスクの放射性セシウム濃度が低くなる傾向が認められたことから、低吸収草種として利用できる可能性が示唆された。

- ④ 内田滋夫 (2014) 放射性セシウムの土壌中での挙動と農作物への移行. 環境制御. 35. 2-7

放射性セシウムに関して土壌中での挙動や土壌から農作物への移行についての解説がなされている。その概要は次のとおりである。

福島原発事故由来の放射性核種のうち土壤に沈着するものは、希ガス成分を除くと、その濃度には差があるがほぼ同じ核種が確認されている。放出直後の内部被ばくや外部被ばくが重要視されるが、時間が経過すれば、物理的半減期は短い放射性核種は減衰してなくなってしまう。今後、陸域環境において最も重要と考えられる放射性核種は ^{137}Cs と ^{134}Cs である。両者の化学的な挙動は同じであるが、それぞれの半減期は 30 年と 2.1 年と異なることから、その影響の度合いが異なる。 ^{134}Cs は約 7 年で 10%、10 年で 3% になる。一方、 ^{137}Cs は 10 年経過しても 20% 減少するのみである。

環境中の Cs はそのまま沈着しているのではなく、実際には、雨水などによって、土壤深部へ移行したり、植物によって吸収されたりする。この結果、見かけ上の半減期より早く減少する。これを実効半減期といい、水田では 16 年、畑では 18 年という報告があることが紹介されている。

一般的に、土壤表面に沈着した ^{137}Cs は容易に下層に移動せず、表層土壤に留まっていることが知られている。例えば、表 5cm の土壤に 50 年経過してもその大部分が留まっていることや層別に調べた結果から、15cm までの深さにおいて 0 から 3cm の層に放射性セシウムの全量の 80% 以上が存在するという報告から、福島原発事故で放出された放射性セシウムは今後長期間にわたり、表層近傍の土壤に留まると予想している。

土壤から農作物への移行については、移行係数 (Transfer Factor, TF) とし、土壤中の放射性核種濃度に対する農作物可食部中の放射性核種濃度の比で表されている。セシウムは乾重ベースでその値は 0.1 を下回ることが多いことが知られており、これは、放射性セシウムは根から吸収されにくいことを示している。

安定セシウムと ^{137}Cs の TF を比較したところ、 ^{137}Cs の TF の方が、安定セシウムのそれより数倍高い値を示している。これは ^{137}Cs の方が、根から吸収されやすいことを示している。セシウムは土壤粒子等に吸着する傾向があるが、安定セシウムと同様な挙動を取るまでの平衡にはなっていないと説明している。

- ⑤ 石井伸昌, 田上恵子, 川口勇生, 内田滋夫 (2013) 浄水発生土に含まれる ^{137}Cs のコマツナによる経根吸収. *Radioisotopes*. 62, 7. 447-453

放射性セシウムで汚染された浄水発生土を含む土壤を用いて、コマツナを栽培し、経根吸収について検討した。使用した浄水発生土は 4.2kBq/kg 乾土である。混合した土壤は赤玉土、黒土、腐葉土からなる土壤 (0S 土壤) で、これを 4.5L に対して浄水発生土を 0.5L 混合した土壤 (0.5S 土壤)、0S 土壤 3.5L に浄

水発生土 1.5L 混合した土壌 (1.5S 土壌) の 3 種類を調整し、コマツナを栽培した。生育は順調で、浄水発生土が影響を及ぼすことはなかった。収穫時の生重量は差があり、浄水発生土を混入した土壌で栽培したほうのコマツナが重くなった。収穫したコマツナの放射能濃度は 0S 土壌で栽培したものは 1.89Bq/kg 乾物、0.5S 土壌の場合、153Bq/kg 乾物、1.5S 土壌の場合は 400kBq/kg 乾物であった。これらは食品中の放射性物質の新基準値 100Bq/kg 生を超えることはなかった。浄水発生土が多い土壌で栽培したコマツナの方が高い放射能を示すことから、セシウムが移行したと考えられる。移行係数については乾燥処理したコマツナ及び各栽培土のセシウム濃度から求めたところ、浄水発生土を混入した栽培土からの移行係数は 0.1、そうでない土壌は 0.48 であった。移行係数としては一般的な値の範囲内であるが、この検討で用いた土壌で比較すると浄水発生土を含む土壌の方がセシウムは移行しにくいことが分かった。

- ⑥ 葉茸久尚, 石山央存, 横尾闘太, 大野峻史, 阿部綾, 古俣修, 丸田文之 (2013) 福島第一原子力発電所事故による阿賀野川下流域における放射性セシウム分布状況の調査. *Radioisotopes*. 62, 9. 649-658

福島第一原子力発電所事故により放出された放射性セシウムについて、阿賀野川上流域から下流域への移行状況を把握するために、2011年8月から2012年5月において、同河川と沖合海底土等の放射能濃度を調査した。その結果、河川水7検体からは、放射性セシウムは検出されなかった。川底質からは10検体すべてから放射性セシウムを検出し、 $6.9 \sim 1.2 \times 10^2$ Bq/kg 乾土であった。川底質が泥状となるほど放射性セシウムの濃度が高くなる傾向があった。また、同川沿岸で採取した堆積物からも最大 4.2×10^2 Bq/kg 乾土の放射能を検出した。これは、2011年7月に発生した新潟・福島豪雨の影響で上流より流入したものと推定している。海底土については、水深の浅い所から深い所へ高い放射能濃度の物が移行している傾向が見られた。川底質及び海底土ともに粒度別放射能を調べたところ粒径 $250 \mu\text{m}$ 以下の細かい粒子に放射性セシウムが含まれていることが分かった。これらのことから、放射性セシウムは上流から下流、海底へと粒子の細かいものに含まれて移行していると推定している。川底質及び海底土の溶出試験では、川底質では 1M 塩酸、海底土では 2M 塩酸でセシウムが溶出された。このことから、通常的环境においてはあり得ない高濃度の酸での溶出であるため、環境中のセシウムが容易に溶出されることはなく、食品等へ移行することも少ないと考えられると結論している。

- ⑦ 高橋嘉夫, 坂口綾, 東郷洋子, 田中万也 (2013) 化学種解析に基づく放射性セシウムおよび放射性ヨウ素の移行挙動の理解. 表面科学. 34, 3. 119-124

放射性物質の移行を調査するには、その濃度測定や経時変化を何らかの方法で調べ、考察する場合が多い。本報告は放射性核種を含む元素の移行について、対象とする元素の化学種に着目し、移行挙動を考察している。すなわち、化学種という分子レベルの情報に着目して放射性セシウムや放射性ヨウ素の環境挙動に関する研究を本報告で紹介している。

環境中の元素の化学種を知る方法としては本報告では、X線吸収微細構造(XAFS)法を利用している。これは固体試料をそのまま測定できる手法である。特徴としては①他の元素の共存下でも対象元素の情報が選択的に得られる。②常温常圧で測定できる。③必要な試料が少ない④スペクトル解析により対象元素の化学種の混合比がわかる。⑤非晶質でも検出できる。などである。土壤のような天然試料の場合には①や⑤の特徴は重要である。

福島原発から放出されたセシウムは主にエアロゾル態であり、これをフィルター上に捕集すると、放射性セシウムを高濃度に含む粒子が不均一に分布している。このフィルターを水に浸すと、50~90%の放射性セシウムが水に溶解する。このことから、エアロゾル中の放射性セシウムは水に溶けやすい化学種であると推定される。よって、地面にエアロゾルが沈着した場合に、降雨でセシウムは水に一旦溶けることを示唆される。しかし、放射性セシウムは土壤中ではほとんど動かないことが知られている。これは放射性セシウムが粘土鉱物に強く吸着しているためである。すなわち、粘土鉱物のケイ素とアルミニウムの酸化物の層の間に、セシウムイオンが丁度入り込む状態となっているためであることをXAFS法で確認している。

放射性ヨウ素については、土壤表面に留まることが多い。この原因は土壤中の腐植物質などの天然有機物にヨウ素が取り込まれるためと考えている。土壤中には有機態となったヨウ素が存在しており、土壤への吸着の割合は無機系のヨウ素に比べると約20倍ほど大きい。よって、ヨウ化物イオンは水に溶けやすく土壤の深部へ浸透するが、有機態となるとただちに土壤中に留まり、動きにくくなる。

- ⑧ 高橋友継, 榎本百利子, 遠藤麻衣子, 小野山一郎, 富松理, 池田正則, 李俊佑, 田野井慶太郎, 中西友子, 眞鍋昇 (2012). 福島第一原子力発電所事

故後の茨城県産牧草を給与した牛の乳における放射性核種濃度の経時変化 (第 2 報).

福島第一原子力発電所の 2 か月後の 2011 年 5 月 30 日から茨城県笠間市に位置する東京大学大学院農学生命科学研究科附属牧場で栽培されていた牧草から調製したヘイレージを飼料として同上で飼養中の乳牛に 2 週間給与した後 2 週間福島第一原子力発電所事故に起因する放射性核種を含まない輸入飼料を給与し、牛乳中の放射性セシウムの放射能濃度の推移を調べた。飼料中の放射性核種濃度は ^{134}Cs は 54Bq/kg, ^{137}Cs は 55Bq/kg であった。牛乳中の放射性セシウムの濃度はヘイレージ供給開始後 12 日で平衡状態 (36Bq/kg) に達した。給飼を停止すると 1 週間は 3.61Bq/kg/day, 1 から 2 週間は 0.69Bq/kg/day, 2 週間を平均すると 2.05Bq/kg/day の割合で速やかに減少した。

- ⑨ 高田大輔, 安永円理子, 佐々木治人 田野井慶太郎, 中西友子, 大下誠一 (2012) 放射性降下物に起因した果樹樹体内放射性核種の分布 (第 2 報) - 福島第一原子力発電所事故当年における土壌からの放射性 Cs の移行について - . *Radioisotopes*. 61, 10. 517-521

福島第一原子力発電所事故以来、放射性核種の降下時に土壌表面を被覆していたモモの鉢植え樹体と非被覆の鉢植え樹体を比較することで、土壌由来の放射性セシウム移行を検討した。その結果、土壌の被覆の有無はほとんど関係なく、モモ樹体に付着した放射性セシウムが果実や葉、新梢などから検出された。特に旧枝の樹皮が最も高い濃度となっていた。また、根の放射性セシウム濃度は低いことから、地上部から移行することもないと考えている。これらのことから、根から樹体へ移行した放射性セシウム量は樹皮などに付着し、直接移行したと思われる放射性セシウム量に比べると極端に少ない割合であると考えている。

- ⑩ 百島則幸, 杉原真司, 上田祐介, 山形陽一, 国分秀樹 (2008). ^{210}Pb 堆積年代測定法による英虞湾の堆積環境の解析. *地球化学*. 42, 3. 99-111.

(論文「まとめ」を一部流用)

長年の真珠養殖により環境汚染が進行している三重県英虞湾堆積物について、 ^{210}Pb 堆積年代測定法による堆積環境の解析を行った。対象とした調査地点は、

中程度の汚染海域である湾中央部の「立神」と比較的汚染が少ない湾口部の「タコノボリ」で、両地点において、堆積物のコアを採取した。それぞれのコアを1cm層に切断し、各層の放射能を測定した。その他に空隙率、有機炭素量、窒素量の測定も行った。Excess²¹⁰Pbの分布には放射能がほぼ均一な表層混合層が認められた。湾口部に位置し海水の出入りの影響が大きいと考えるタコノボリ試料は湾中央部の立神試料より大きな表層混合層であったとしている。表層混合層以深は、excess²¹⁰Pb堆積速度の違いから2つの層に分けられ、その境界はタコノボリでは1965年頃、立神では1968年頃と推定している。タコノボリの堆積速度は、1960年代後半移行は増加に転じており、逆に立神は減少に転じていることを示している。この原因の推定として、堆積環境の変化を推定しているが、1960年代後半には、真珠生産量の激減が起こり、これが堆積環境の変化と養殖活動との関連性を示唆している。

リサイクル適性の表示：印刷用の紙にリサイクルできます

この印刷物は、グリーン購入法に基づく基本方針における「印刷」に係る判断の基準にしたがい、印刷用の紙へのリサイクルに適した材料「Aランク」のみを用いて作製しています。