

平成26年度
原子力施設等防災対策等委託費
(環境放射能水準調査(放射能分析))
事業報告書

平成27年3月

公益財団法人 日本分析センター

本報告書は、原子力規制委員会 原子力規制庁の平成26年度原子力施設等防災対策等委託費事業における委託業務として、公益財団法人日本分析センターが実施した平成26年度「環境放射能水準調査（放射能分析）」の成果を取りまとめたものである。

目 次

| | |
|-----------------------------------|-----|
| 1. 調査概要 ----- | 1 |
| 2. 調査結果 ----- | 3 |
| 2.1 全ベータ放射能測定 ----- | 3 |
| 2.2 ガンマ線放出核種の測定 ----- | 5 |
| 2.3 トリチウム分析 ----- | 12 |
| 2.4 ストロンチウム 90 分析 ----- | 14 |
| 2.5 プルトニウム分析 ----- | 22 |
| 2.6 ヨウ素 129 分析 ----- | 27 |
| 2.7 炭素 14 分析 ----- | 54 |
| 2.8 大気中の放射性希ガス濃度測定 ----- | 55 |
| 2.9 福島県下における環境放射能調査 ----- | 66 |
| 2.9.1 環境試料の調査 ----- | 66 |
| 2.9.2 空間線量の調査 ----- | 68 |
| 3. 分析法及び妥当性の確認 ----- | 119 |
| 3.1 全ベータ放射能測定 ----- | 119 |
| 3.2 ガンマ線放出核種の測定 ----- | 120 |
| 3.3 トリチウム分析 ----- | 122 |
| 3.4 ストロンチウム 90 分析 ----- | 123 |
| 3.5 プルトニウム分析 ----- | 128 |
| 3.6 ヨウ素 129 分析 ----- | 129 |
| 3.7 炭素 14 分析 ----- | 132 |
| 3.8 大気中の放射性希ガス濃度測定 ----- | 135 |
| 3.9 福島県下における環境放射能調査 ----- | 151 |
| 3.9.1 環境試料の調査 ----- | 151 |
| 3.9.2 空間線量の調査 ----- | 152 |
| 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 ----- | 164 |

| | |
|-------------------------|-----|
| 5. 環境放射能水準調査検討委員会 ----- | 173 |
| 5.1 委員会構成 ----- | 173 |
| 5.2 委員会開催日と議題 ----- | 173 |
| 5.3 メール会合開催日と議題 ----- | 176 |
| 関連文献調査結果 ----- | 179 |

1. 調査概要

本調査は、47 都道府県及び公益財団法人日本分析センター（以下、「分析センター」という。）が採取した環境試料について放射能分析を行い、全国の環境放射能水準を把握することにより、放射線監視等交付金事業による放射線監視結果との比較検討に資することを目的として実施した。

実施した調査の内容を以下に示す。

① 全ベータ放射能測定

分析センターにおいて、毎日、一定の時刻に 24 時間中の降水を採取し、全ベータ放射能を測定した。また、降水がない場合も、採取器に付着した大気浮遊じんを集め、全ベータ放射能を測定した。

② ガンマ線放出核種の測定

分析センターにおいて、毎月、大気浮遊じん及び降下物を採取し、ゲルマニウム半導体検出器によりガンマ線放出核種を測定した。

③ トリチウム分析

分析センターにおいて、毎月、月間降水を採取し、電解濃縮法によりトリチウムを分析した。また、精米、野菜及び海藻について、組織自由水トリチウムと非交換型の有機結合型トリチウムを分析した。

④ ストロンチウム 90 分析

47 都道府県及び分析センターが採取・購入し、灰化、濃縮等の処理がされた試料について、放射化学分析により ^{90}Sr を分離精製し、低バックグラウンドベータ線測定装置により測定した。

⑤ プルトニウム分析

47 都道府県が平成 25 年度に採取した土壤について、アルファ線スペクトロメトリーによりプルトニウムを分析した。なお、プルトニウム放射能濃度が高い試料は同位体別に放射能濃度を求めた。さらに、 ^{241}Am 、 ^{242}Cm についての放射能濃度も求めた。

⑥ ヨウ素 129 分析

北海道、秋田県及び千葉県で採取した土壤、牛乳、海藻、野菜について、加速器質量分析法 (AMS) により ^{129}I の放射能濃度を測定した。また、東京電力福島第一原子力発電所事故による影響を調べるため、事故前後に採取した土壤について ^{129}I を分析した。

⑦ 炭素 14 分析

北海道、秋田県及び千葉県で採取した大気中二酸化炭素、精米及び野菜について、加速器質量分析法（AMS）により炭素の同位体比（ $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ）を測定した。

⑧ 大気中の放射性希ガス濃度測定

札幌市、秋田市及び千葉市で捕集した大気について、ガスクロマトグラフにより ^{85}Kr を分離し、ベータ線測定装置により測定した。なお、千葉市で捕集した大気は、 ^{133}Xe も測定した。

⑨ 福島県下における環境放射能調査

福島県内で採取された日常食について、ゲルマニウム半導体検出器によりガンマ線放出核種を測定した。

また、東京電力福島第一原子力発電所周辺地域 80 地点において、可搬型モニタリングポストを運用し、健全性を確認した。また、福島県内 3 地点において、可搬型モニタリングポストの低線量率比較法によるクロスチェックを行った。

一部の分析結果について、平成 23 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故の影響が認められた。

なお、分析結果の妥当性については、放射能濃度既知試料やブランク試料との並行分析・測定、放射線測定器の日常点検（計数効率の確認、バックグラウンド値の確認）により確認した。

また、本調査の精度管理の強化の観点から、 ^{90}Sr 分析の工程管理用標準試料の作製や IAEA や近隣諸国の放射能分析研究機関とのクロスチェックを行った。

本調査の内容及び検討にあたっては、学識経験者等からなる委員会を 2 回開催し、総合的な評価・検討を行った。

得られた調査結果については、迅速な報告を目的に、メール会合を 3 回開催して評価を行い、原子力規制庁に速報した。

2. 調査結果

2.1 全ベータ放射能測定

(1) 概要

試料の採取は、分析センター内の建屋屋上(地上3.5m)に設置した降水採取装置(直径252mm)を用い、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。降水がない場合も、採取器に付着した大気浮遊じんを採取した。採水時刻は9時(定時降水)とした。

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。

測定試料の調製、放射能測定及び放射能濃度算出は、次のとおりである。

採取量が100mL以下の場合は全量、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1mL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、赤外線ランプ下で蒸発乾固して測定試料とした。採取後約6時間を経過してから低バックグラウンドベータ線測定装置で、測定試料を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」とした。

(2) 結果と考察

平成26年3月から平成27年2月までの定時降水の全ベータ放射能測定結果を図2-1-1に示す。また、この調査期間の平均値、最小値及び最大値及び平成22年度から平成25年度までの結果と併せて表2-1-1に示す。

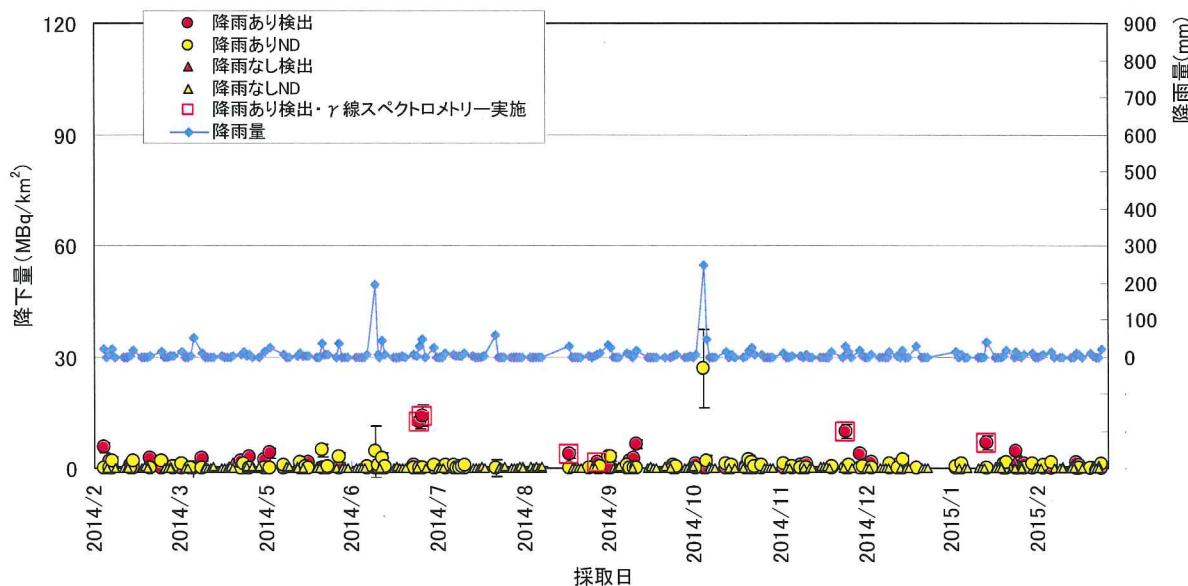


表 2-1-1 定時降水の全ベータ放射能調査結果

| 年度 | 採取期間 | 試料数 降雨あり | 検出数 降雨あり | 放射能濃度(Bq/L) | 降下量 (MBq/km ²) 降雨あり |
|------|-----------|-------------|-------------|-------------|---------------------------------------|
| 26年度 | 26.3～27.2 | 92 | 35 | ND～1.1 | ND～14 |
| 25年度 | 25.3～26.2 | 79 | 45 | ND～1.6 | ND～90 |
| 24年度 | 24.3～25.2 | 87 | 44 | ND～2.1 | ND～21 |
| 23年度 | 23.3～24.2 | 79 | 73 | ND～5400 | ND～47000 |
| 22年度 | 22.3～23.2 | 88 | 42 | ND～1.5 | ND～40 |

平成 26 年度における定時降水の全ベータ放射能調査結果は、放射能濃度が ND～1.1Bq/L、降下量が ND～14MBq/km²であり、東京電力福島第一原子力発電所事故前の平成 22 年度の調査結果の範囲内であった。

この試料を含め、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。

また、平成 26 年度の「降雨なし」の試料は、ND～1.8MBq/km²であった。

全ベータ放射能検出率（誤差の 3 倍以上を検出した日数を全試料数（日数）で除したもの）については、東京電力福島第一原子力発電所事故後の平成 23 年度に 81%まで上昇したが、平成 26 年度は事故前の平成 22 年度と同程度の 22%となつた。

2.2 ガンマ線放出核種の測定

(1) 概要

分析センター内において採取した大気浮遊じん及び降下物について、ガンマ線スペクトロメトリーを行った。

試料の採取については、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。

概略は以下の通りである。

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用のろ紙 (HE-40T) 及び活性炭ろ紙 (CP-20) を装着して 1 ヶ月で約 3,000m³ の大気を連続吸引し、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。

試料の測定については、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) 結果と考察

大気浮遊じん中の ⁷Be、¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の分析結果（平均値、最小値及び最大値）を平成 21 年度から平成 25 年度までの結果と併せて表 2-2-1 に示す。

降下物中の ⁷Be、¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の分析結果（平均値、最小値及び最大値）を平成 21 年度から平成 25 年度までの結果と併せて表 2-2-2 に示す。

表 2-2-1 過去の調査結果との比較（大気浮遊じん）

単位： mBq/m^3

| 核種 | 平均値、最小値、最大値 | 平成 21～平成 25 年度 | 平成 26 年度分析分 |
|-------------------|-------------|------------------|--------------------|
| ^{7}Be | 平均値 | 3.5 | 3.3 |
| | 最小値～最大値 | 1.1～7.7 | 1.7～5.3 |
| ^{134}Cs | 平均値 | 6.1 | 0.0079 |
| | 最小値～最大値 | ND (-0.0067)～360 | ND (-0.0057)～0.019 |
| ^{137}Cs | 平均値 | 5.9 | 0.019 |
| | 最小値～最大値 | ND (-0.0089)～340 | ND (0.0085)～0.040 |

表 2-2-2 過去の調査結果との比較（降下物）

単位： MBq/km^2

| 核種 | 平均値、最小値、最大値 | 平成 21～平成 25 年度 | 平成 26 年度分析分 |
|-------------------|-------------|-------------------|-------------|
| ^{7}Be | 平均値 | 110 | 110 |
| | 最小値～最大値 | 14～310 | 48～270 |
| ^{134}Cs | 平均値 | 250 | 1.2 |
| | 最小値～最大値 | ND (-0.046)～12000 | 0.54～2.5 |
| ^{137}Cs | 平均値 | 250 | 3.2 |
| | 最小値～最大値 | ND (-0.020)～11000 | 1.6～6.1 |

平成 26 年度における大気浮遊じん中の ^{7}Be 濃度は $1.7\sim5.3\text{mBq}/\text{m}^3$ 、 ^{134}Cs 濃度は ND (-0.0057)～0.019 mBq/m^3 、 ^{137}Cs 濃度は ND (0.0085)～0.040 mBq/m^3 であった。 ^{7}Be 濃度については、平成 21 年度から平成 25 年度までの調査結果と差は見られず、夏季に低くなる傾向が見受けられた。 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs については、平成 21 年度から平成 23 年 2 月までに検出されたことはなく、東京電力福島第一原子力発電所の事故に起因するものと考えられるが、年々減少傾向を示している。特に、大気浮遊じん中の ^{134}Cs については、通常の測定方法では検出されない濃度レベルまで減少している。

平成 26 年度における降下物中の ^{7}Be 降下量は $48\sim270\text{MBq}/\text{km}^2$ 、 ^{134}Cs 降下量は $0.54\sim2.5\text{MBq}/\text{km}^2$ 、 ^{137}Cs 降下量は $1.6\sim6.1\text{MBq}/\text{km}^2$ であった。 ^{7}Be 降下量については、平成 21 年度から平成 25 年度までの調査結果と差は見られなかった。 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs については、平成 21 年度から平成 23 年 2 月までに検出されたことはなく、福島第一原子力発電所の事故に起因するものと考えられたが、年々減少傾向を示している。

平成 21 年度から平成 26 年度までの大気浮遊じん中の ^{7}Be 、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 濃度比較図を図 2-2-1、図 2-2-2 及び図 2-2-3 に、降下物中の ^{7}Be 、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 降下量比較図を図 2-2-4、図 2-2-5 及び図 2-2-6 に示す。なお、降下物中の ^{7}Be 降下量については、蒸発濃縮後の残さ量を併せて示した。

平成 26 年度の降下物中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 降下量は年々減少傾向を示している中、平成 26 年 8 月の降下物中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 降下量が、他の月と比較して高く異なる傾向を示していた。そこで、 ^{137}Cs 降下量と ^{40}K 降下量、及び ^{137}Cs 降下量と残さ量を比較した図を図 2-2-7 及び図 2-2-8 に示す。図より、平成 26 年 8 月の降下物中の ^{137}Cs 降下量は ^{40}K 降下量より残さ量と相関していると考えられ、相関から最も外れる平成 26 年 2 月のデータ

夕を含めないと、決定係数 (R^2) は 0.296 から 0.806 とより良い相関を示す結果となる。このことから、残さ量の増加に伴い、降下物中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 降下量が増加したと考えられた。



図2-2-1 大気浮遊じん中の ${}^7\text{Be}$ 濃度



図2-2-2 大気浮遊じん中の ${}^{134}\text{Cs}$ 濃度

注) ${}^{134}\text{Cs}$ 濃度の結果は不検出のものを含むが、値がマイナスのものは表記していない



図2-2-3 大気浮遊じん中の ^{137}Cs 濃度

注) ^{137}Cs 濃度の結果は不検出のものを含むが、値がマイナスのものは表記していない

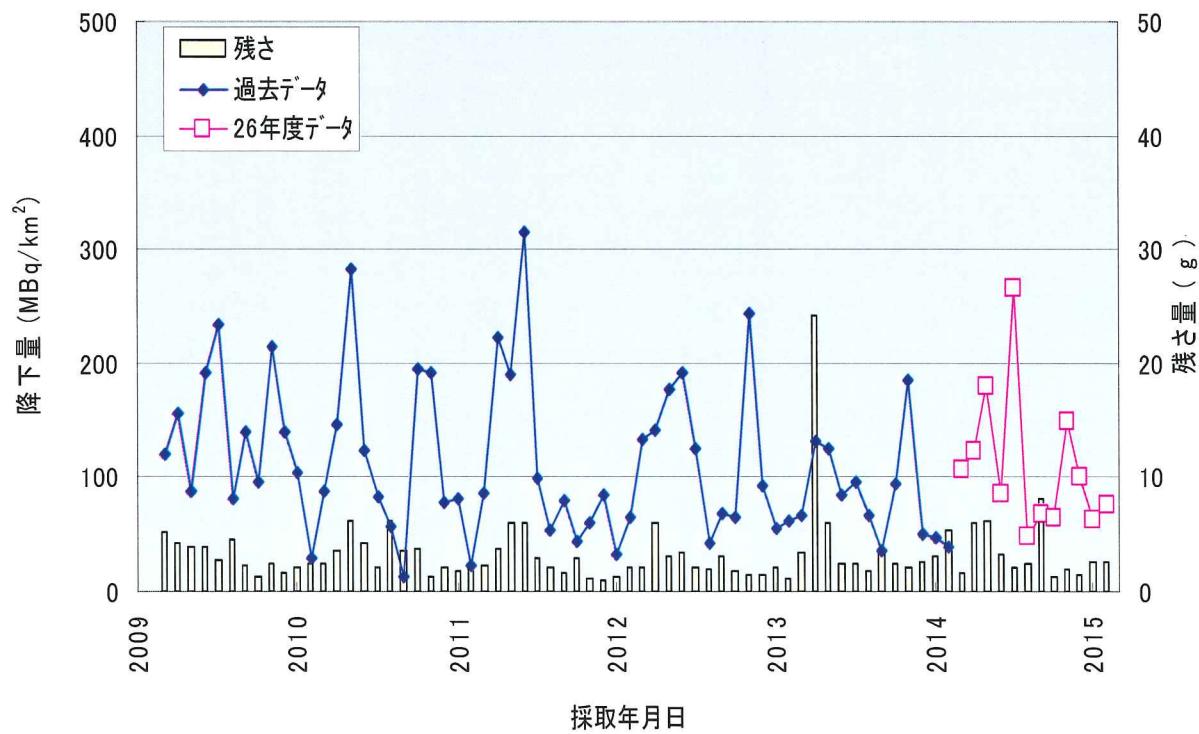


図2-2-4 降下物中の ^7Be 降下量

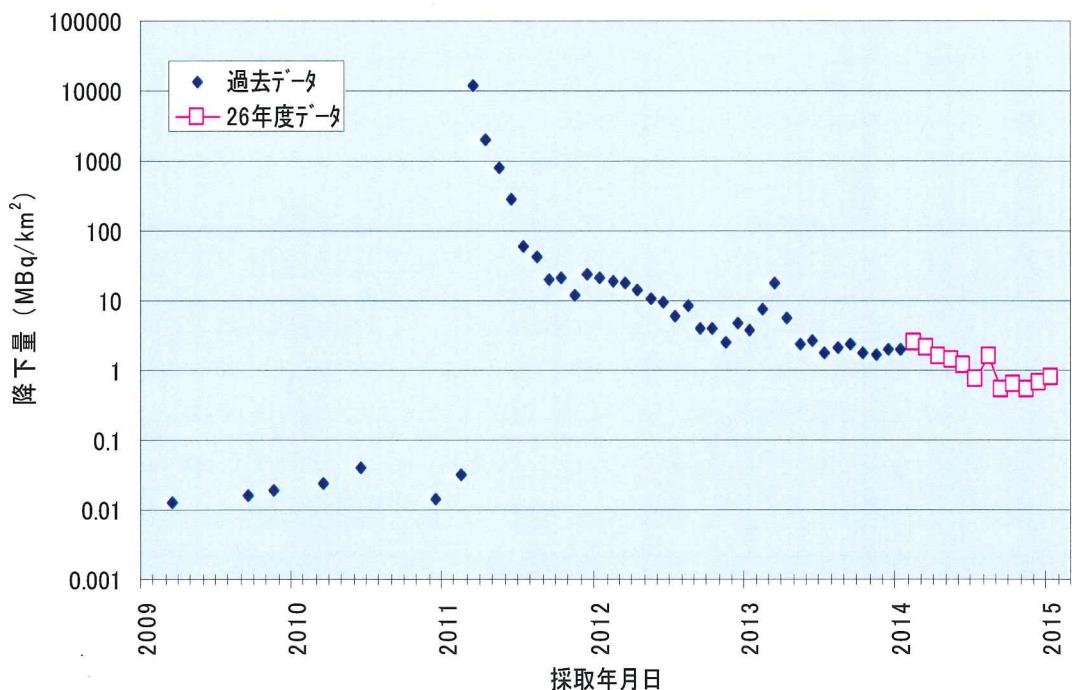


図2-2-5 降下物中の¹³⁴Cs降下量

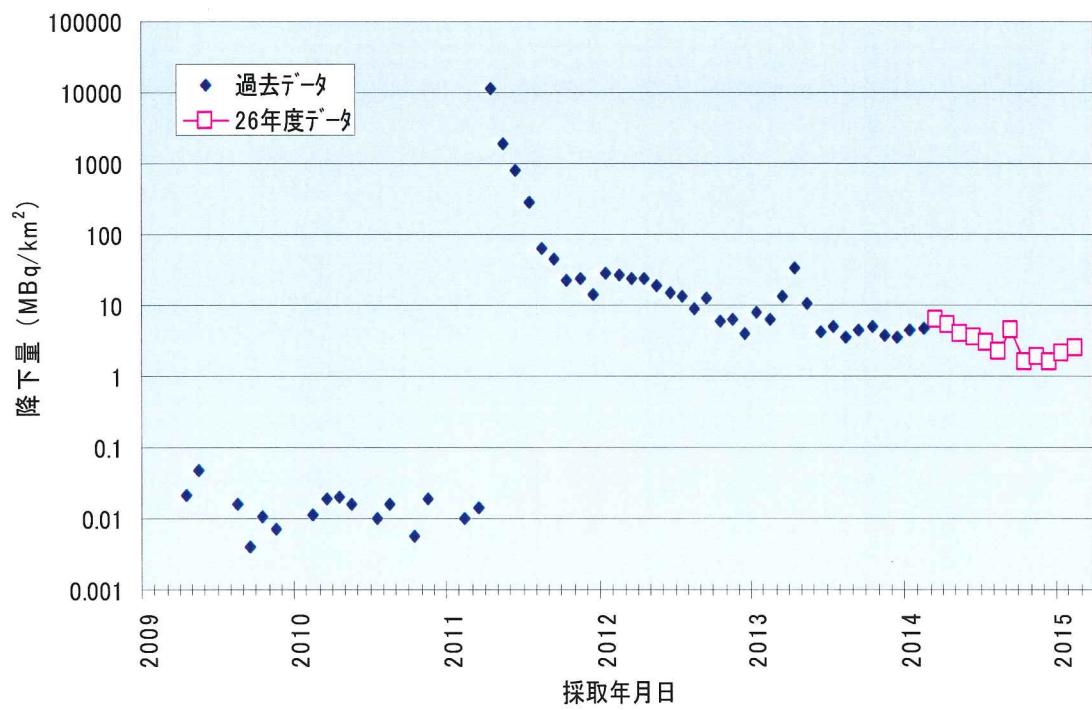


図2-2-6 降下物中の¹³⁷Cs降下量

注) ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs 降下量の結果は不検出のものを含むが、値がマイナスのものは表記していない

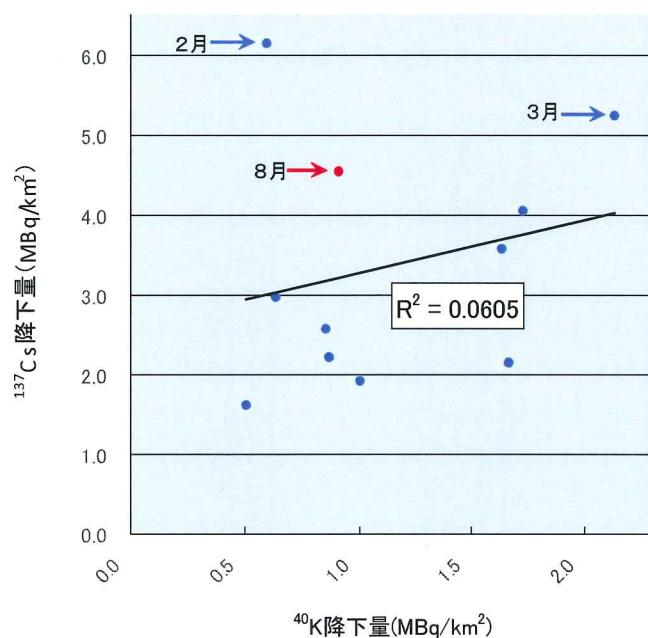


図2-2-7 降下物中の¹³⁷Cs降下量と⁴⁰K降下量の相関図

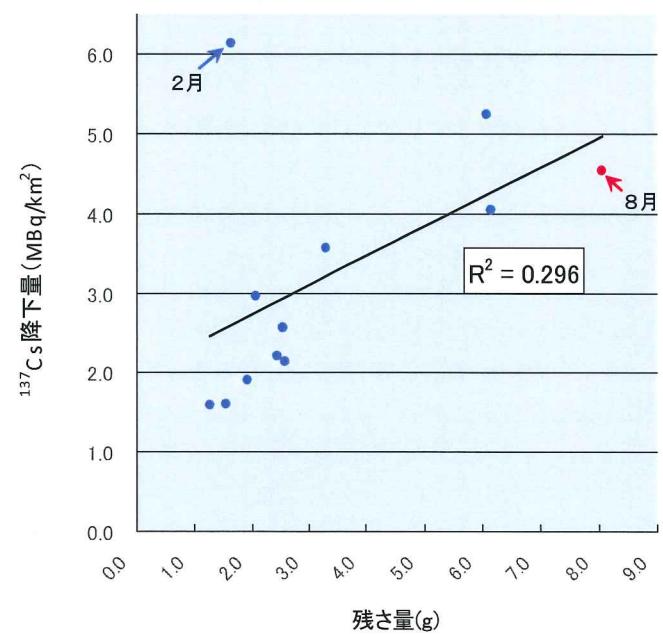


図2-2-8 降下物中の¹³⁷Cs降下量と残さ量の相関図

2.3 トリチウム分析

・月間降水中のトリチウム分析

(1) 概要

分析センター内の建屋屋上（地上 3.5m）に設置した降水採取装置（直径 200mm）を用い、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 1 ヶ月毎に降水を採取した。

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）の電解濃縮法に準じて行った。採取した試料から約 600mL 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後、留出液 500mL を約 55mL になるまで電解した。電解終了後、再び蒸留を行い、留出液 50mL と乳化シンチレータ（Ultima Gold LLT、パーキンエルマー社製）50mL を十分に振り混ぜ均質にし、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（LSC）によりトリチウム濃度を定量した。

(2) 結果と考察

平成 26 年 2 月から平成 27 年 1 月に分析センター本部（千葉市）で採取された月間降水のトリチウム濃度は、0.12～0.53Bq/L（平均値 0.32Bq/L）であった。また、降下量（単位面積あたりのトリチウム量）は、16～170Bq/m²（平均値 39Bq/m²）であり、平成 23 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故の影響によるものと考えられる 23 年 3 月分の試料を除き、トリチウム濃度は平成 19 年度からの調査結果と同程度であった。なお、6 月の降下量は 170Bq/m²であり、平成 19 年度からの調査結果の最大値であった。この時に採取した降水の量は 10.25L と比較的多かった。

月間降水中のトリチウム濃度及び降下量を図 2-3-1 に示す。

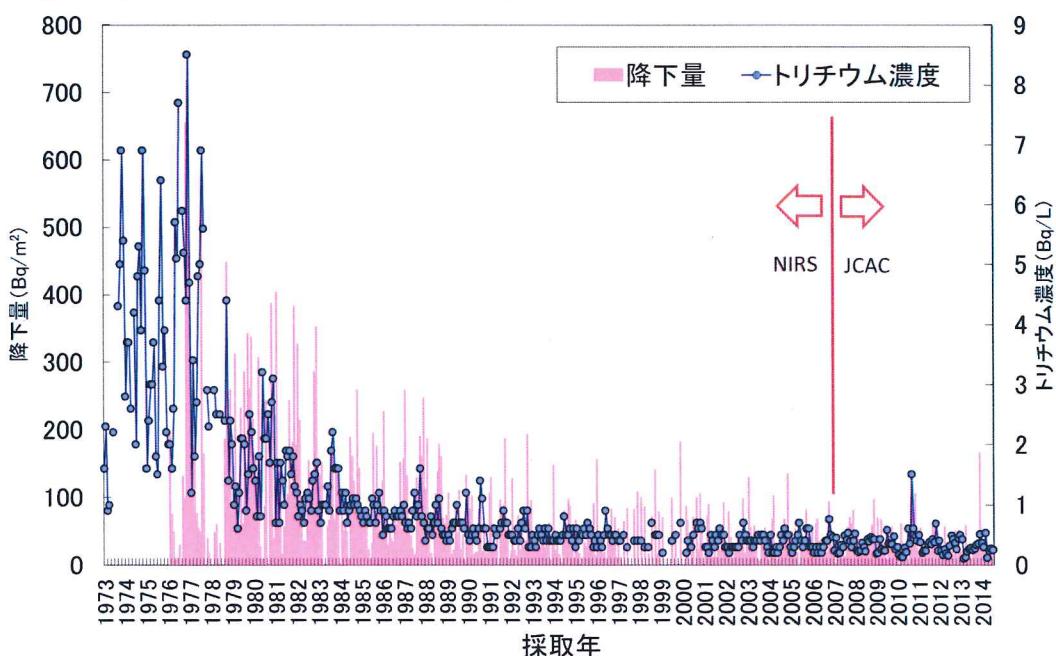


図 2-3-1 月間降水中のトリチウム濃度及び降下量

（2007 年 3 月までのデータは放医研の調査結果をデータベースより引用）

・生物試料中のトリチウム分析

(1) 概要

国内3地域（北海道、東北、関東）において、海藻、野菜及び精米をそれぞれ1試料ずつ採取し、組織自由水及び非交換型の有機結合型トリチウムについて分析を行った。有機結合型トリチウムのうち、非交換型は交換型に比べると体内に摂取されてからの生物学的代謝速度が遅く、線量への寄与が大きいため、線量評価上で重要である。

採取した試料を凍結乾燥し、組織自由水と乾物に分けた。乾物を粉碎後によく混合し、無トリチウム水を加え、凍結乾燥をくり返して交換されやすい交換型トリチウムを除いた。このようにして得られた乾物を燃焼して燃焼生成水を回収し、還流及び蒸留を行った。留出液と乳化シンチレータを混合し、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタによりトリチウム濃度を定量した。組織自由水は還流及び蒸留を行った後、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタにより定量した。

(2) 結果と考察

平成26年度に実施した調査結果を表2-3-1に示す。海藻、野菜及び精米の結果は種類毎に同程度の結果であり、組織自由水に比べると非交換型の有機結合型トリチウムの方がやや低いと思われる結果であった。

表2-3-1 生物試料中のトリチウム調査結果 (単位:Bq/L)

| 試料名 | 採取地点 | 組織自由水 | 非交換型 有機結合型トリチウム | |
|------|------------|-------------|--------------------|--|
| | | | | |
| コンブ | 北海道 余市郡余市町 | < 0.33 | < 0.33 | |
| アカモク | 秋田県 男鹿市 | < 0.33 | < 0.34 | |
| アラメ | 千葉県 夷隅郡御宿町 | < 0.33 | < 0.34 | |
| | 北海道 恵庭市 | < 0.34 | < 0.36 | |
| キャベツ | 秋田県 秋田市 | 0.51 ± 0.11 | 0.37 ± 0.12 | |
| | 千葉県 いすみ市 | 0.34 ± 0.11 | < 0.35 | |
| | 北海道 石狩市 | 0.81 ± 0.11 | < 0.33 | |
| 精米 | 秋田県 秋田市 | 0.81 ± 0.11 | < 0.33 | |
| | 千葉県 千葉市 | 0.64 ± 0.11 | 0.37 ± 0.11 | |

注) 測定値が計数誤差の3倍を超えたもののみ示し、3倍未満のものは検出下限値を示す。

2.4 ストロンチウム 90 分析

(1) 概要

平成 25 年度に 47 都道府県の環境センター等が採取し、所定の前処理を施した後に分析センターが送付を受けた環境試料（大気浮遊じん、降下物、陸水、土壤、海水、海底土及び各種食品試料）及び分析センターが採取した降下物試料並びに分析センターが購入した粉乳試料の ^{90}Sr の分析結果を以下にまとめた。また、平成 26 年度に分析した環境試料（平成 25 年度及び平成 26 年度に採取または受領した試料の一部）の結果は、参考資料に記載した。

1) 分析対象試料

大気浮遊じん、降下物、陸水、土壤、精米、野菜類、茶、牛乳、粉乳、淡水産生物、海水、海底土及び海産生物

2) 分析方法

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）に準じた方法で行った。

(2) 結果と考察

各種試料中の ^{90}Sr 放射能濃度の平均値及び最小、最大値を以下に示す。なお、n は参考データを除いた分析試料数である。

また、試料毎の過去 30 年の経年変化を図 2-4-1 に示す。

1) 大気浮遊じん

47 都道府県で四半期毎に採取した試料

^{90}Sr : 0.00058 (0.00000 ~ 0.015) mBq/m^3 n=188

2) 降 下 物

46 都道府県及び分析センターにおける月間降下物

^{90}Sr : 0.015 (0.000 ~ 0.11) MBq/km^2 n=564

3) 陸 水

47 都道府県で年 1 回採取した上水（源水、蛇口水）及び 10 道府県で採取した淡水
上 水

^{90}Sr : 0.92 (0.000 ~ 2.0) mBq/L n=57

淡 水

^{90}Sr : 1.3 (0.037 ~ 3.6) mBq/L n=10

4) 土 壤

47 都道府県で年 1~2 回採取した試料（深さ 0~5 cm、5~20 cm の 2 種類）

0 ~ 5 cm

^{90}Sr : 49 (1.4 ~ 350) MBq/km^2 n=49
1.6 (0.032 ~ 19) Bq/kg 乾土

5 ~ 20 cm

^{90}Sr : 130 (0.0 ~ 660) MBq/km^2 n=49
1.3 (0.000 ~ 8.2) Bq/kg 乾土

5) 精 米

31 道県で年1回採取した試料

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.0039 & (0.0000 \sim 0.012) \quad \text{Bq/kg 生 n=31} \\ & 0.092 & (0.000 \sim 0.31) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

6) 野 菜 類

40 道府県で年1~2回採取した根菜類及び葉菜類

根菜類（主にダイコン）

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.049 & (0.0000 \sim 0.30) \quad \text{Bq/kg 生 n=41} \\ & 0.25 & (0.000 \sim 1.5) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

葉菜類（主にホウレンソウ）

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.046 & (0.0000 \sim 0.24) \quad \text{Bq/kg 生 n=41} \\ & 0.082 & (0.0000 \sim 0.43) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

7) 茶

10 府県で年1~2回採取した試料

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.25 & (0.036 \sim 0.91) \quad \text{Bq/kg n=19} \\ & 0.10 & (0.026 \sim 0.36) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

8) 牛乳（原乳）

37 都道府県で年1~3回採取した試料

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.011 & (0.0000 \sim 0.024) \quad \text{Bq/L n=39} \\ & 0.011 & (0.0000 \sim 0.033) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

9) 粉 乳

分析センターが2道県で年2回購入した試料

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.081 & (0.0087 \sim 0.27) \quad \text{Bq/kg 粉乳 n=12} \\ & 0.0097 & (0.0025 \sim 0.022) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

10) 淡水産生物

9 道府県で年1回採取した試料（フナ、イワナ、アメリカナマズ、ニジマス、ワカサギ、コイ）

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.087 & (0.0000 \sim 0.34) \quad \text{Bq/kg 生 n=9} \\ & 0.038 & (0.000 \sim 0.069) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

11) 海 水

14 道府県で年1~2回採取した試料

$${}^{90}\text{Sr} : 1.0 \quad (0.59 \sim 2.4) \quad \text{mBq/L} \quad n=15$$

12) 海 底 土

14 道府県で年1~2回採取した試料

$${}^{90}\text{Sr} : 0.052 \quad (0.000 \sim 0.17) \quad \text{Bq/kg 乾土 n=15}$$

13) 海産生物

24 都道県で年1~2回採取した試料（魚類、貝類、藻類）

魚 類

$$\begin{array}{lll} {}^{90}\text{Sr} : & 0.0058 & (0.0000 \sim 0.015) \quad \text{Bq/kg 生 n=22} \\ & 0.011 & (0.0000 \sim 0.047) \quad \text{Bq/gCa} \end{array}$$

貝 類

^{90}Sr : 0.0060 (0.0000 ~ 0.030) Bq/kg 生 n=12
0.016 (0.0000 ~ 0.054) Bq/gCa

藻 類

^{90}Sr : 0.015 (0.0062 ~ 0.025) Bq/kg 生 n=12
0.018 (0.0051 ~ 0.036) Bq/gCa

平成 25 年度に日本各地で採取した環境試料の ^{90}Sr の濃度は、概ね福島第一原子力発電所事故前の調査結果と同程度であったが、平成 25 年 4 月～6 月、7 月～9 月、10 月～12 月、平成 26 年 1 ～3 月に福島県で採取された大気浮遊じん及び平成 25 年 10 月に茨城県で採取された降下物で、福島第一原子力発電所事故の影響により、事故前の過去 10 年の最大値を超える濃度が確認された。

なお、福島県は、平成 25 年度の降下物及び海産生物（魚類）を採取していない。

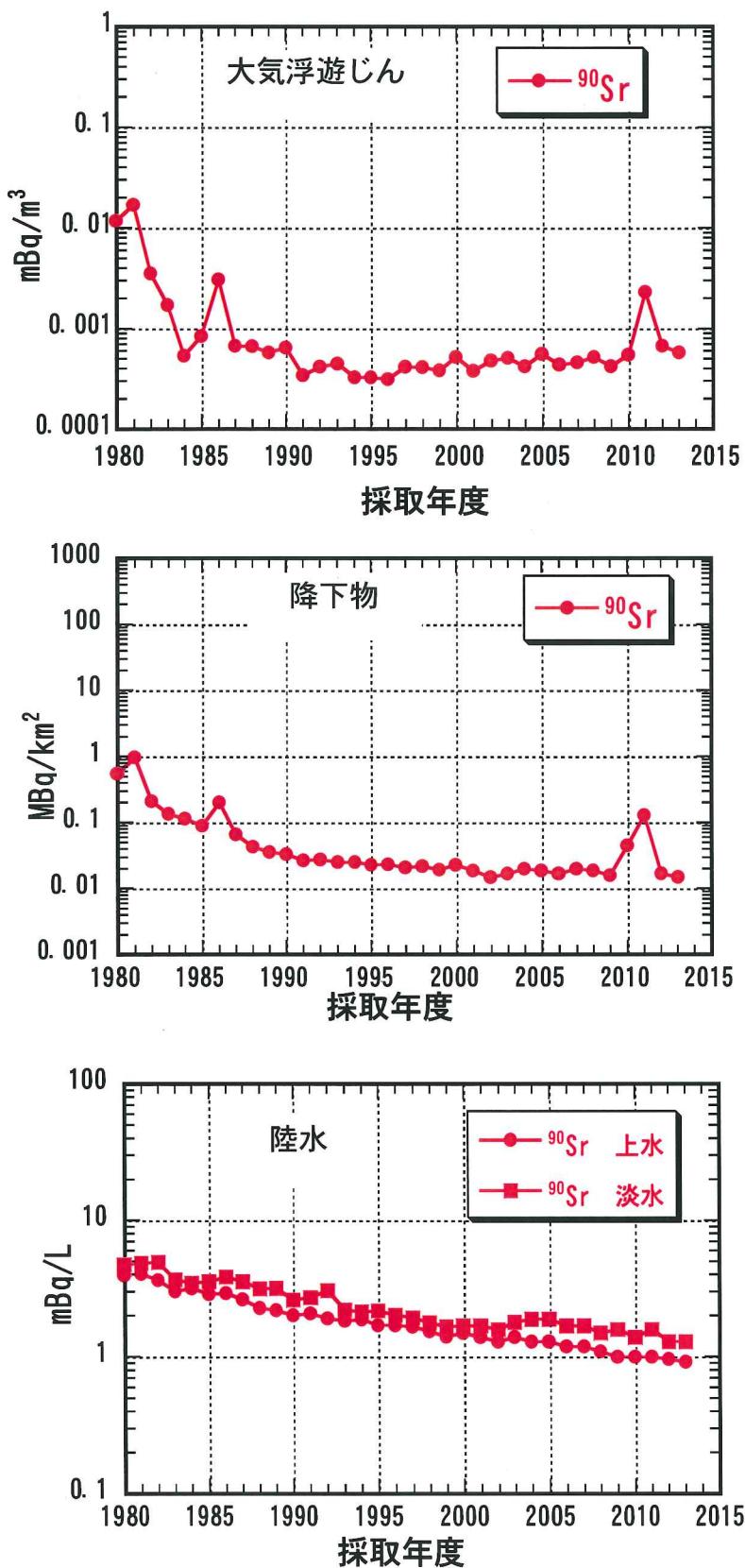


図 2-4-1 各種環境試料の ^{90}Sr 放射能濃度の経年変化

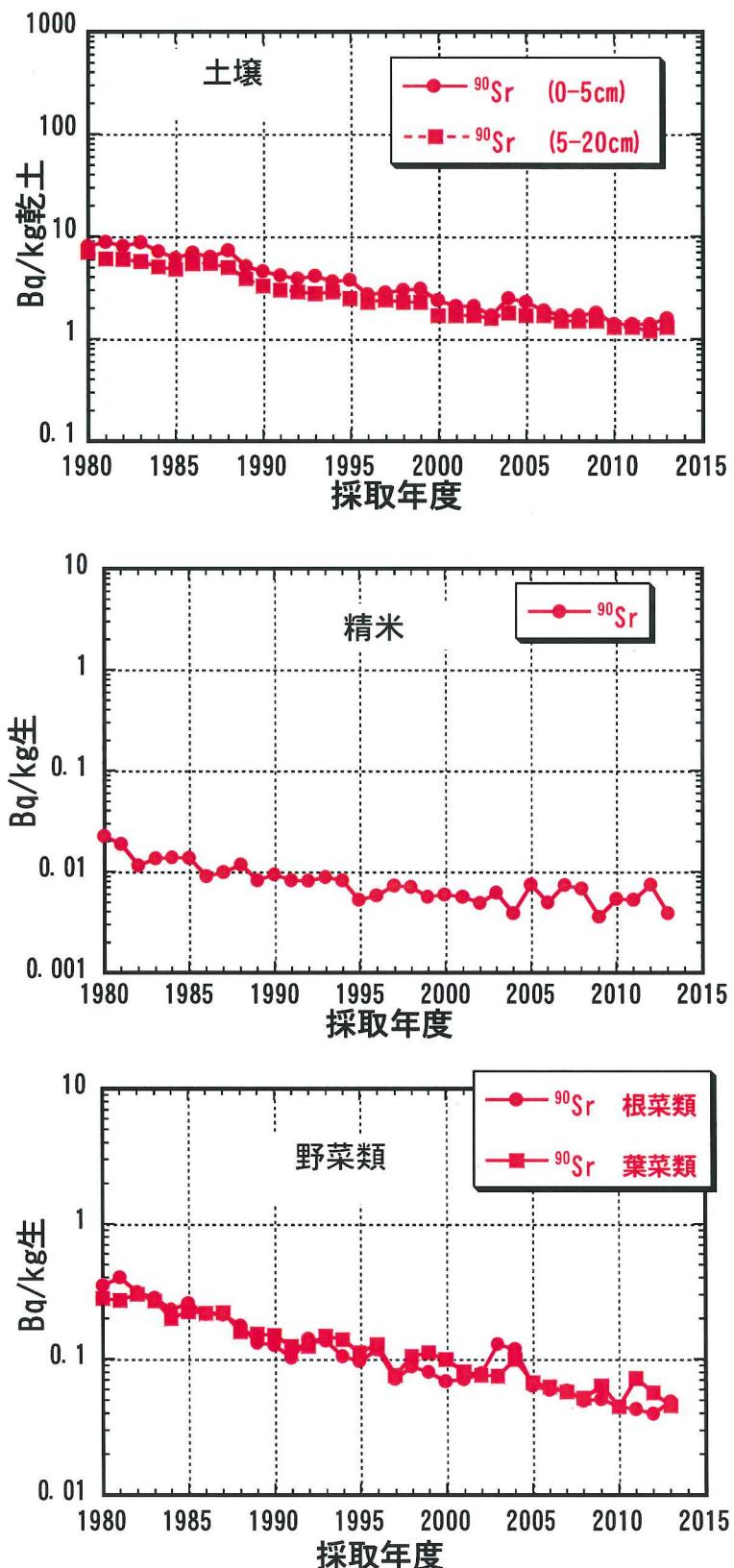


図 2-4-1 各種環境試料の ^{90}Sr 放射能濃度の経年変化（つづき）

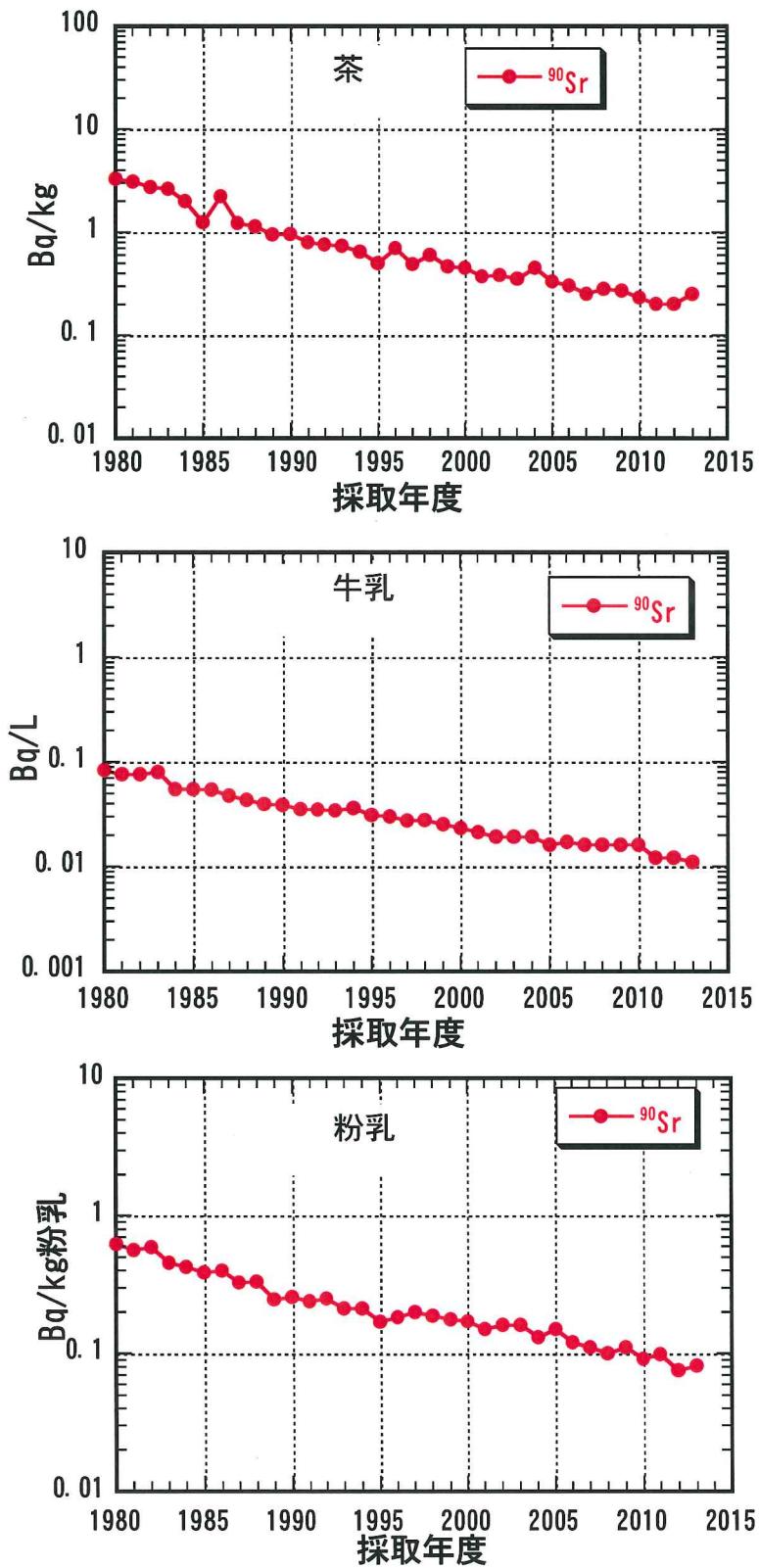


図 2-4-1 各種環境試料の ^{90}Sr 放射能濃度の経年変化（つづき）

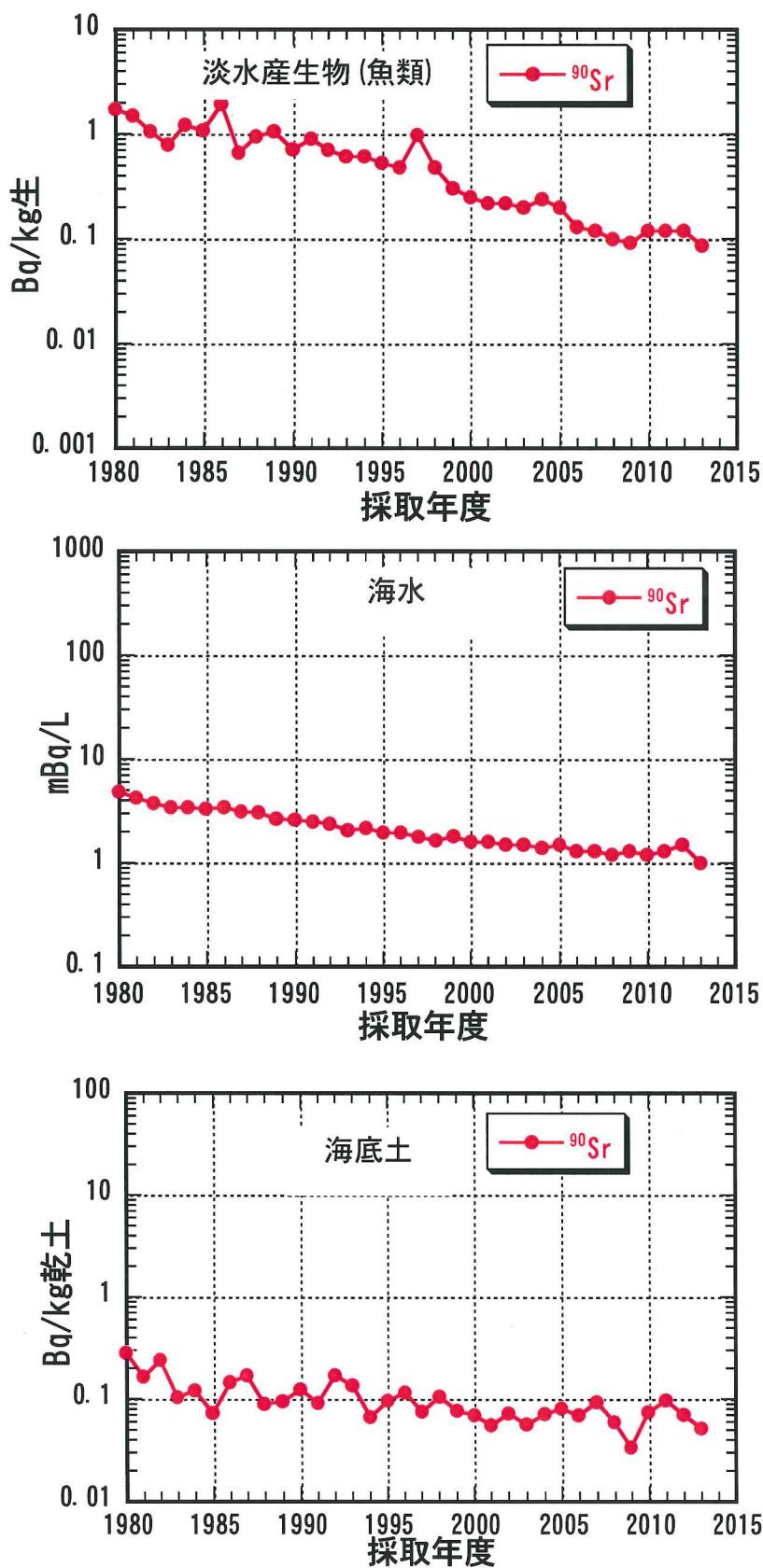


図 2-4-1 各種環境試料の ^{90}Sr 放射能濃度の経年変化 (つづき)

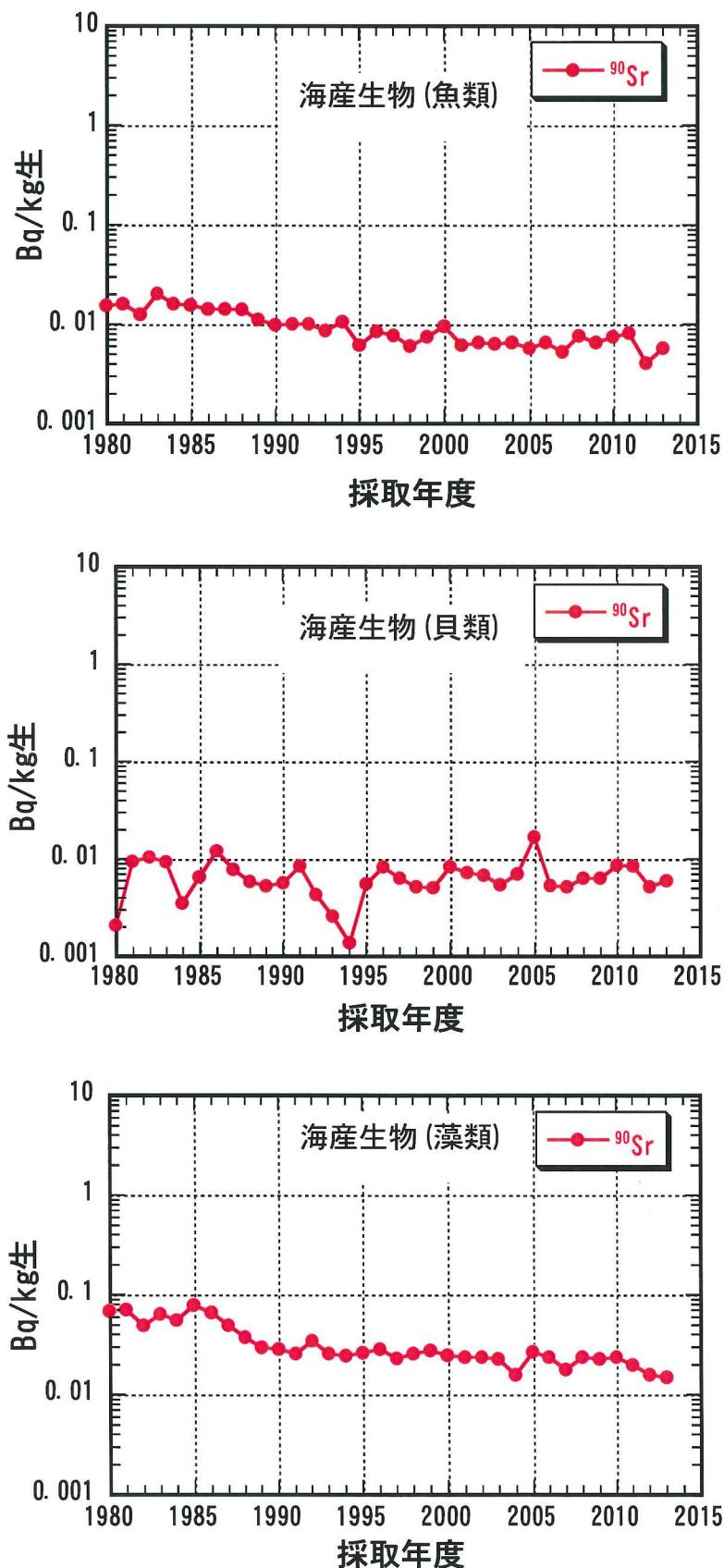


図 2-4-1 各種環境試料の ^{90}Sr 放射能濃度の経年変化 (つづき)

2.5 プルトニウム分析

(1) 概要

環境放射能水準調査において、土壤試料は、47 都道府県の環境センター等が平成 25 年度に採取し、乾燥細土とした後に分析センターが送付を受けた。47 都道府県各 1 地点（青森県:2 地点、沖縄県:2 地点）で採取された表層（0～5cm）及び下層（5～20cm）の土壤、合計 98 試料について分析を行った。分析方法は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。

なお、環境中に存在するプルトニウムは、大気圈内核実験に伴うグローバルフォールアウト起源である ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu であり、 ^{241}Am は ^{241}Pu （半減期約 14 年）から生成する。これらの放射能濃度を把握するため、プルトニウム ($^{239+240}\text{Pu}$) 濃度が高い 15 試料について、ICP 質量分析装置 (ICP-MS) による ^{239}Pu 、 ^{240}Pu の分析、液体シンチレーションカウンタによる ^{241}Pu の分析及び α 線スペクトロメトリーによるアメリシウム、キュリウムの分析を行った。分析方法は、文部科学省放射能測定法シリーズの 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法」（平成 14 年）及び 21「アメリシウム分析法」（平成 2 年）に準じて行った。液体シンチレーションカウンタによる ^{241}Pu 測定については、 β 線の最大エネルギーが ^{241}Pu と近いトリチウムを効率校正に使用した。

(2) 結果と考察

土壤中のプルトニウムの分析結果（平均値、最小値及び最大値）を、平成 15 年度から 24 年度までに採取された土壤の分析結果と合わせて表 2-5-1 に示す。

表 2-5-1 過去の調査結果との比較（放射能濃度） Bq/kg 乾土

| 核種 | 採取深さ cm | 平均、最小、最大値 | 平成 15～24 年度 採取分 (n=479) | 平成 25 年度 採取分 (n=49) |
|-----------------------|---------|-----------|----------------------------|------------------------|
| ^{238}Pu | 0～5 | 平均値 | 0.013 | 0.012 |
| | | 最小値～最大値 | ND ~ 0.13 | ND ~ 0.093 |
| | 5～20 | 平均値 | 0.0059 | 0.0054 |
| | | 最小値～最大値 | ND ~ 0.042 | ND ~ 0.046 |
| $^{239+240}\text{Pu}$ | 0～5 | 平均値 | 0.46 | 0.41 |
| | | 最小値～最大値 | ND ~ 3.8 | ND ~ 3.0 |
| | 5～20 | 平均値 | 0.22 | 0.20 |
| | | 最小値～最大値 | ND ~ 1.3 | ND ~ 1.4 |

平成 25 年度における採取深さ 0～5cm の各地点の ^{238}Pu 濃度は ND（検出されず）～0.093Bq/kg 乾土、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は ND～3.0Bq/kg 乾土であり、採取深さ 5～20cm の ^{238}Pu 濃度は ND（検出されず）～0.046Bq/kg 乾土、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は ND～1.4Bq/kg 乾土の範囲であり、いずれも平成 15 年度から 24 年度の調査結果と差は見られなかった。

採取地点毎の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度を図 2-5-1 に、プルトニウム同位体 (^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$) の放射能比を図 2-5-2 に示す。例年同様、数地点（岩手県、茨城県、栃木県、長野県、熊本県、大分県）の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度がやや高い値を示したが、平成 25 年度に採取された土壤中

のプルトニウム濃度は、平均値及び範囲とともに平成15年度から平成24年度までの結果と同程度の値であった。また、従来から見られていたように、長崎に投下されたプルトニウム型原子爆弾の影響を含むと推定された熊本県の値を除いたプルトニウム同位体の放射能比 ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$) は約0.026であり、UNSCEAR1982報告書による北半球におけるグローバルフォールアウトの値(0.026)と同程度であることを確認した。

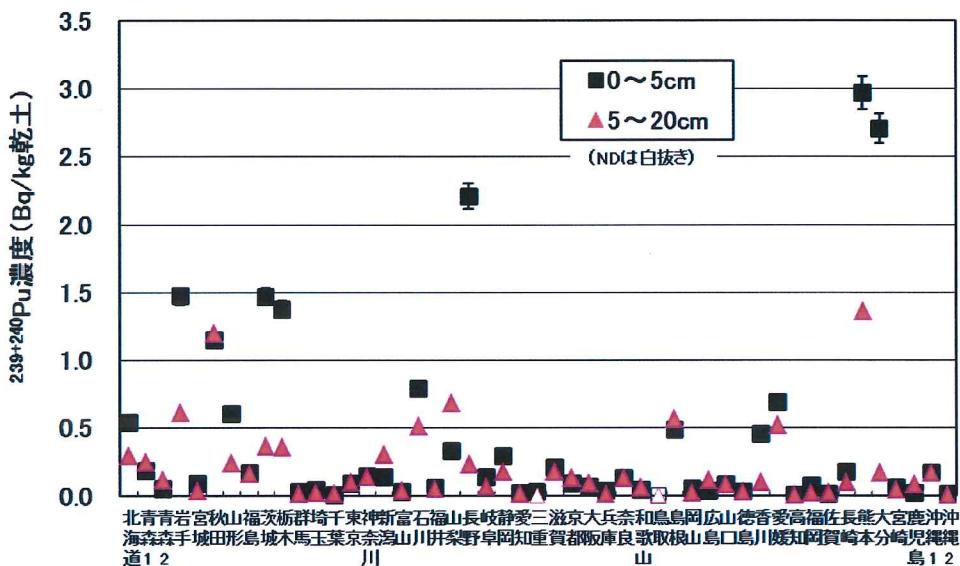


図 2-5-1 土壤中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度（平成 25 年度採取分）

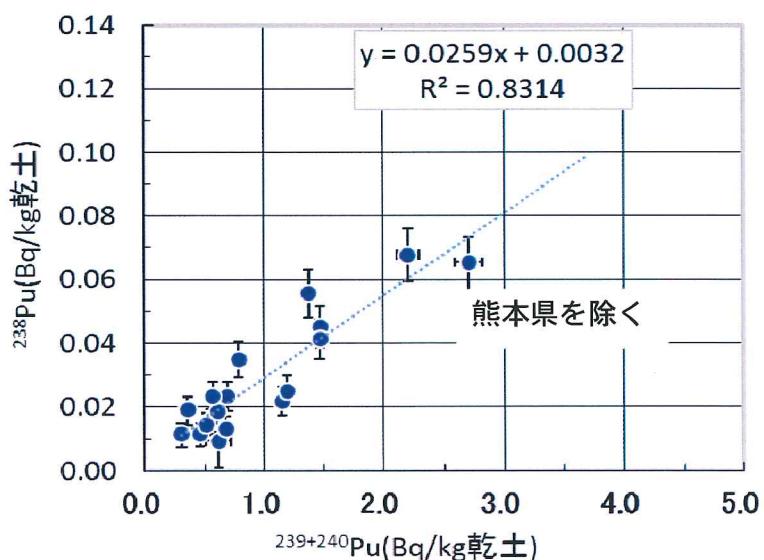


図 2-5-2 土壤中 ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比

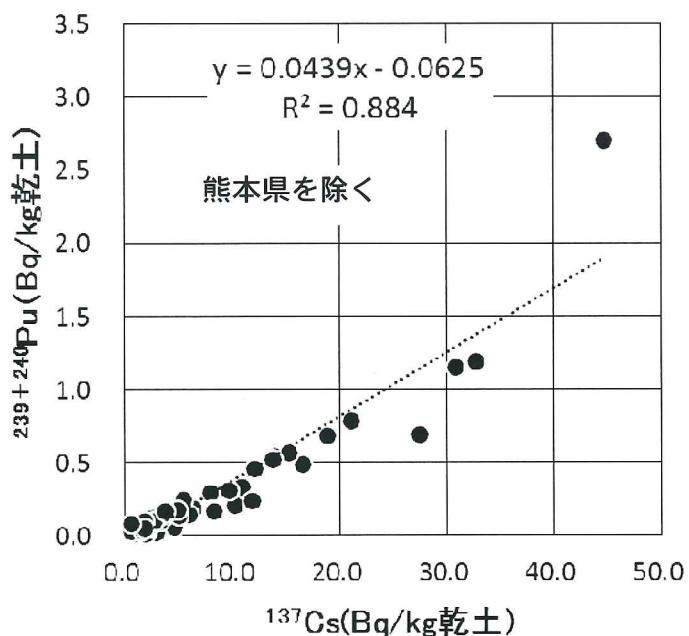
表 2-5-2 に示すとおり、平成 25 年度における $^{239+240}\text{Pu}$ の蓄積量は ND（検出されず）～187MBq/km²（平均値 32MBq/km²）、であり、いずれも平成 15 年度から 24 年度の調査結果と同程度であった。なお、UNSCEAR1982 レポートによれば、北半球の $^{239+240}\text{Pu}$ 旗下量はおよそ 40MBq/km²である。

表 2-5-2 過去 10 年間の蓄積量と比較

MBq/km²

| 核種名 | 深さ (cm) | 項目 | 平成 15 年～24 年度 採取分 (n=479) | 平成 25 年度採取分 (n=49) |
|-----------------------|------------|---------|------------------------------|-----------------------|
| ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu | 0～20 | 平均値 | 32 | 32 |
| | | 最小値～最大値 | ND～270 | ND～187 |

プルトニウム (²³⁹⁺²⁴⁰Pu) とセシウム (¹³⁷Cs) の放射能比を図 2-5-3 に示す。プルトニウム同位体 (²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) の放射能比と同様に熊本県の値を除き、また、福島第一原子力発電所事故の影響と考えられる ¹³⁴Cs が検出された試料についても除いたプルトニウムとセシウム放射能比 (²³⁹⁺²⁴⁰Pu/¹³⁷Cs) は 0.044 であった。

図 2-5-3 土壤中の ²³⁹⁺²⁴⁰Pu と ¹³⁷Cs 放射能比

次に、分析結果のプルトニウム ($^{239+240}\text{Pu}$) 濃度が高い 15 試料について、表 2-5-3 に示す。

表-2-5-3 プルトニウム ($^{239+240}\text{Pu}$) 濃度が高い 15 試料

| No. | 県名 | 深度 (cm) | $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度 (Bq/kg 乾土) | No. | 県名 | 深度 (cm) | $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能濃度 (Bq/kg 乾土) |
|-----|-----|------------|----------------------------------------------|-----|-----|------------|----------------------------------------------|
| 1 | 熊本県 | 0- 5 | 3.0 ± 0.12 | 9 | 秋田県 | 0- 5 | 1.1 ± 0.05 |
| 2 | 大分県 | 0- 5 | 2.7 ± 0.11 | 10 | 石川県 | 0- 5 | 0.79 ± 0.039 |
| 3 | 長野県 | 0- 5 | 2.2 ± 0.09 | 11 | 愛媛県 | 0- 5 | 0.69 ± 0.035 |
| 4 | 岩手県 | 0- 5 | 1.5 ± 0.06 | 12 | 山梨県 | 5-20 | 0.68 ± 0.037 |
| 5 | 茨城県 | 0- 5 | 1.5 ± 0.06 | 13 | 岩手県 | 5-20 | 0.62 ± 0.032 |
| 6 | 栃木県 | 0- 5 | 1.4 ± 0.06 | 14 | 山形県 | 0- 5 | 0.61 ± 0.033 |
| 7 | 熊本県 | 5-20 | 1.4 ± 0.06 | 15 | 島根県 | 5-20 | 0.57 ± 0.030 |
| 8 | 秋田県 | 5-20 | 1.2 ± 0.05 | - | - | - | - |

上記 15 試料の ICP 質量分析装置 (ICP-MS) による ^{239}Pu 、 ^{240}Pu の分析、液体シンチレーションカウンタによる ^{241}Pu の分析及び α 線スペクトロメトリーによるアメリシウム、キュリウムの分析結果は以下のとおり。

1) ICP-MS による ^{239}Pu 、 ^{240}Pu

^{239}Pu : 0.34~2.1Bq/kg 乾土

^{240}Pu : 0.22~1.2Bq/kg 乾土

これらの値は平成 24 年度採取土壤の値と同程度であった。

プルトニウム同位体の原子数比 ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$) を図 2-5-4 に示す。

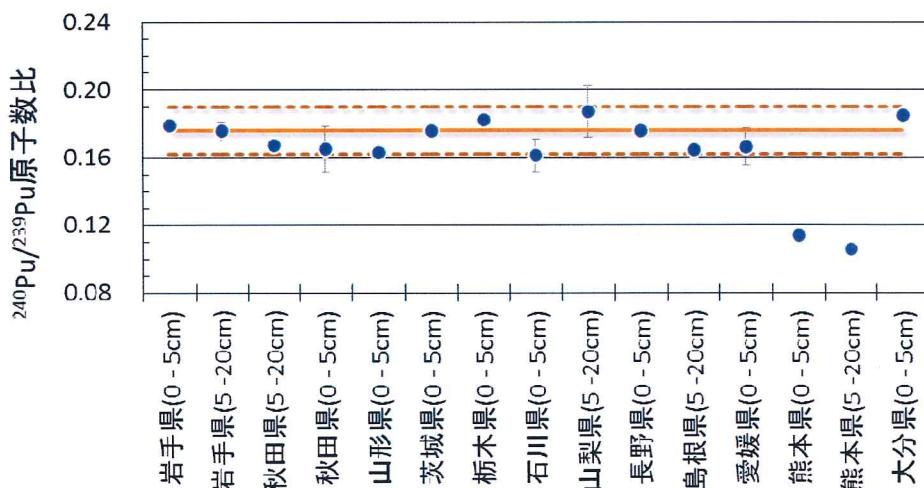


図 2-5-4 プルトニウム同位体の原子数比 ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$)

プルトニウム型原子爆弾の影響を含むと推定される熊本県の値を除く原子数比($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$)は0.17であり、Kreyら(1976)が測定した世界の土壤60試料の平均値(0.176±0.014)と同程度であった。

2) 液体シンチレーションカウンタによる ^{241}Pu

^{241}Pu : ND (検出されず) ~3.2Bq/kg 乾土

これらの値は平成24年度採取土壤の値と同程度であった。

3) α 線スペクトロメトリーによる ^{241}Am と ^{242}Cm 及び $^{243+244}\text{Cm}$

^{241}Am : 0.22~1.2Bq/kg 乾土

^{242}Cm 及び $^{243+244}\text{Cm}$: 全てND (検出されず)

これらの値は平成24年度採取土壤の値と同程度であった。

^{241}Am と $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比を図2-5-5に、 ^{241}Am と ^{241}Pu 放射能比を図2-5-6に示す。

^{241}Am と $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比($^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$)は約0.45、 ^{241}Am と ^{241}Pu 放射能比は($^{241}\text{Am}/^{241}\text{Pu}$)は約0.37であった。

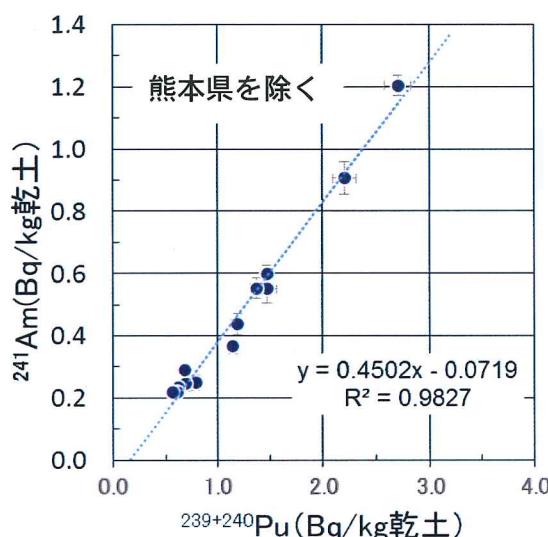


図2-5-5 ^{241}Am と $^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比

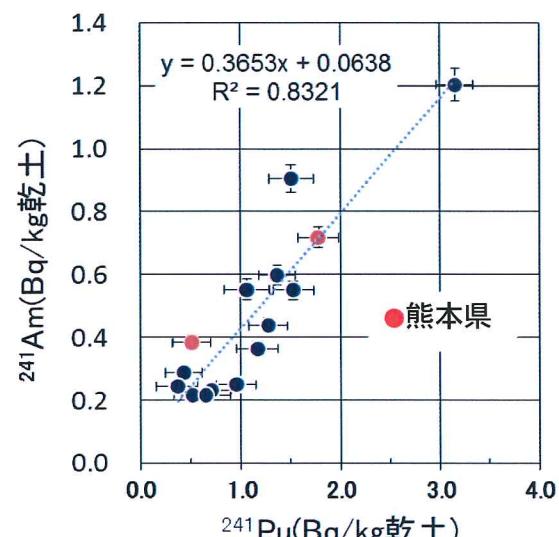


図2-5-6 ^{241}Am と ^{241}Pu 放射能比

2.6 ヨウ素 129 分析

(1) 概要

平成 26 年度に北海道、秋田県及び千葉県において採取した土壌(採取深度 0-5、5-20cm)、牛乳、海藻及び野菜試料を対象としてヨウ素 129 分析を実施した。なお、この調査は平成 23 年度から開始し、平成 25 年度まで同様に実施している。

また、福島第一原子力発電所事故の影響調査として、平成 26 年度は北海道、東北(秋田県、山形県)、北陸(新潟県、石川県)、東海(静岡県)、近畿(京都府、和歌山县)、中国(島根県)、四国(徳島県)、九州(長崎県、熊本県、大分県)の計 16 地点について、事故発生前の平成 22 年度(以下「事故前」という。)、平成 24 年度(以下「事故 1 年後」という。)に採取された土壌試料(採取深度 0-5cm)を対象としてヨウ素 129 分析を実施した。なお、平成 25 年度には関東(全県)、東北(岩手県、宮城县、福島県)の 10 地点の調査を同様に行っている。

(2) 分析方法

分析及び測定方法は以下のとおりである。

試料中のヨウ素を燃焼法により TMAH (Tetramethylammonium Hydroxide) 溶液に捕集し、溶液から一部を分取して安定ヨウ素定量用試料とした。残りの溶液にヨウ素担体を加え、キシレンを用いた溶媒抽出によりヨウ素を分離して精製した。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、乾燥した。沈殿に 2.5 倍量のニオブ粉末を加えてよく混合し、(独)日本原子力研究開発機構の加速器質量分析装置(AMS)でヨウ素の同位体比($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$)を測定した。この同位体比から ^{129}I を定量した。

また、 ^{129}I 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用いて ICP-MS で安定ヨウ素(^{127}I)を定量した。

なお、分析工程の妥当性確認のため、標準試料(NIST-1547)を併せて分析した。

(3) 結果と考察

1) 北海道、秋田県、千葉県の調査

平成 26 年度に採取した試料の ^{129}I 分析結果を表 2-6-1、平成 23 年度から平成 26 年度までの過去の分析結果との比較を図 2-6-1～図 2-6-2、図 2-6-5～図 2-6-10 に示す。

また、 ^{137}Cs の放射能濃度を図 2-6-3、 ^{129}I と ^{137}Cs の放射能比を図 2-6-4 に示す。なお、平成 25、26 年度に ^{129}I を分析した試料について、ガンマ線スペクトロメトリーにより ^{137}Cs を定量し、既に水準調査で報告されている同一試料の ^{137}Cs の報告値[1]と併せ比較した。

表 2-6-1 に平成 26 年度採取試料の ^{129}I 分析結果を示す。北海道、秋田県、千葉県の土壌試料は、採取深度 0-5cm で 0.31～0.64 (mBq/kg 乾土)、採取深度 5-20cm で 0.08～0.39 (mBq/kg 乾土) であった。牛乳(市販乳)は、0.00047～0.0015 (mBq/L)、海藻(コンブ、アカモク、アラメ)は、0.19～0.35 (mBq/kg 生)、野菜(キャベツ)

は、0.000048～0.000072 (mBq/kg 生) であった。

図2-6-1、図2-6-2の過去の分析結果との比較図から、平成26年度の土壤の¹²⁹I濃度を福島第一原子力発電所事故が発生した年(平成23年)以降と比較すると、北海道では同程度で推移し、秋田県では上昇傾向にあり、千葉県では平成24年度に一旦低下したもの、その後0-5cmでは増加傾向が見られ、5-20cmでは減少傾向が見られた。¹²⁹I/¹²⁷I原子数比は北海道、秋田県、千葉県の0-5cmでは同程度で推移し、千葉県の5-20cmにおいてはわずかながら上昇傾向が見られた。

土壤中¹³⁷Cs濃度の経年変化を図2-6-3に示す。北海道、秋田県においては同程度で推移している。千葉県は0-5cmで平成25年度から上昇が見られたが、5-20cmにおいては同程度で推移している。土壤中¹²⁹I/¹³⁷Cs放射能比の経年変化を図2-6-4に示す。¹²⁹I/¹³⁷Cs放射能比は、北海道においては変動しているが、¹²⁹I/¹²⁷I原子数比と同様に推移している。この変動は¹³⁷Cs濃度変化に伴うものと思われる。秋田県においては0-5cmでは上昇傾向が見られ、5-20cmにおいては平成26年度で放射能比が上がっている。千葉県においては0-5cmでは減少傾向にあり、5-20cmは上昇傾向が見られる。

牛乳の分析結果を図2-6-5、図2-6-6に示す。平成23年からの¹²⁹I濃度を比較すると、北海道は平成24年に上昇したが翌年に減少し、秋田県は平成23年に高い値であったが、平成24年から25年にかけて減少した。千葉県は平成23年から25年にかけてわずかに減少傾向があった。平成26年は3県ともに、前年より若干上昇した。¹²⁹I/¹²⁷I原子数比は、北海道、秋田県、千葉県とともに¹²⁹I濃度とほぼ同様に推移している。

海藻の分析結果を図2-6-7、図2-6-8に示す。平成23年からの¹²⁹I濃度を比較すると、北海道(コンブ)は平成23年から平成25年の変動幅を下回る値が得られた。秋田県(アカモク)は、平成23年と同程度であった。千葉県(アラメ)は平成23年から平成25年の変動幅を下回る値が得られた。¹²⁹I/¹²⁷I原子数比は、北海道、秋田県、千葉県とともに¹²⁹I濃度とほぼ同様に推移している。

野菜の分析結果を図2-6-9、図2-6-10に示す。平成23年からの¹²⁹I濃度を比較すると、3道県ともに平成23年の値に対し平成26年度にかけて減少傾向が見られた。キャベツはヨウ素濃度が低いため、¹²⁹I/¹²⁷I原子数比に変動が見られるが、北海道、秋田県、千葉県とともに¹²⁹I濃度とほぼ同様の推移をしている。

2) 福島第一原子力発電所事故の影響調査

事故前及び事故 1 年後に採取した土壌（深度 0-5cm）16 県の採取地点を図 2-6-11 に、平成 26 年度分析結果を表 2-6-2～図 2-6-7 及び図 2-6-12～図 2-6-24 に各々示す。

① 分析結果と考察

土壌中 ^{129}I 濃度を表 2-6-2、図 2-6-12 及び図 2-6-13 に示す。北海道、青森県、秋田県、石川県、京都府を除いた地点で事故前の濃度は 0.048～0.93 (mBq/kg 乾土)、事故一年後の濃度は 0.077～1.0 (mBq/kg 乾土) であった。事故一年後の分析結果は事故前に対して 1.1～3.6 倍であり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は 1.0～6.7 倍であった。また、石川県の ^{129}I 濃度は 1.0 倍、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は 0.95 倍で同程度であり、北海道、青森県、秋田県、京都府の ^{129}I 濃度は 0.47～0.96 倍であり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は 0.61～0.89 倍となった。北海道、青森県、秋田県、石川県、京都府を除いた地点では、東京電力福島第一原子力発電所事故の影響が認められた。

平成 25 年度の分析結果は、岩手県、宮城県、福島県、関東全県（茨城県を除く）の地点で、事故 1 年後は事故前に比べ ^{129}I 濃度で 1.2～3.6 倍であり、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は 1.1～6.7 倍であった。

平成 25、26 年度の分析結果を併せると、北海道、青森県、秋田県、茨城県、石川県、京都府を除いた 19 地点で事故一年後の土壌中 ^{129}I 濃度の上昇が見られ、岩手県、山形県、宮城県、福島県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、新潟県、山梨県、長野県、静岡県（以下、「東日本」と記す。）で 1.1～3.6 倍高く、和歌山県、島根県、徳島県、長崎県、熊本県、大分県（以下、「西日本」と記す。）では 1.1～1.7 倍高くなかった。 ^{129}I 濃度について、西日本に比べ東日本に事故による影響が大きく現われていると考えられる。

北海道、青森県、秋田県、石川県、京都府は、 ^{129}I 濃度と $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比における事故後の顕著な上昇はなく、その影響は確認できなかった。

「大気降下物中 ^{129}I の経年変化（遠山ら）[5]」によると、昭和 38 年から平成 15 年（1963～2003 年）の調査結果から、「秋田における大気降下物中の ^{129}I 量の変動は、東海村の核燃料再処理施設からの放出ではないと考えられる。」と報告されている。青森県六ヶ所村の日本原燃（株）の再処理工場は、平成 18 年 3 月 31 日からアクティブ試験を開始しており、「再処理工場からの月ごとの放射性気体廃棄物放出量[6]」によれば平成 18 年 4 月から平成 21 年 4 月にかけて ^{129}I （気体）が放出されている。また、日本分析センターが平成 17 年から 19 年にかけて、北海道、秋田県、岩手県、兵庫県、大分県を対象に実施した「自然放射性核種及び再処理関連核種放射能調査」においては、北海道の土壌（深度 0-5cm）で 0.33～0.49 (mBq/kg 乾土)、秋田県で 0.49～1.0 (mBq/kg 乾土) である。事故前及び事故 1 年後それぞれの結果は、北海道 0.66、0.45 (mBq/kg 乾土)、秋田県 0.62、0.59 (mBq/kg 乾土) である。北海道、秋田県は、事故前に比べ土壌中 ^{129}I 濃度の増加は見られなかった。

なお、茨城県については事故前より、東海村の核燃料再処理施設の影響により土壌中 ^{129}I 濃度及び $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比が高い傾向があるため、事故に伴う ^{129}I の直接的

な濃度上昇は確認できなかった。平成 25 年度分析結果では、事故前及び事故一年後それぞれの値は 84 及び 37 (mBq/kg 乾土) であり、茨城県（東海村）の過去の値 5 ~300 (mBq/kg) (松崎らによる [2]) の範囲内であった。

② ヨウ素 129 とセシウム 134、137 との比較

東京電力福島第一原子力発電所の事故時には、 ^{129}I (半減期：1,570 万年) と共に ^{134}Cs (半減期：2.065 年)、 ^{137}Cs (半減期：30.04 年) が降下したと考えられ、 ^{129}I と ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を比較した。

土壤中 ^{129}I の平成 25 年度分析結果と今年度の分析結果を併せ、既に水準調査で報告されている同一試料の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の報告値 [1] と平成 26 年度に ^{129}I を分析した試料についてガンマ線スペクトロメトリーにより ^{134}Cs 、 ^{137}Cs を定量した結果を表 2-6-3、表 2-6-4 に、土壤中 ^{129}I と ^{137}Cs の比較図を図 2-6-14、土壤中 ^{129}I と ^{134}Cs の比較図を図 2-6-15、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の比較図を図 2-6-16 に示す。また、原子力規制委員会「ヨウ素 129 の定量を通じたヨウ素 131 の土壤濃度マップの精緻化（村松ら）[3]」によると、「ヨウ素 129 及びセシウム 137 は核実験フォールアウトや再処理施設の稼働により放出され、既に環境中に存在している。そのため、東京電力福島第一原子力発電所から離れた場所で採取した試料を測定する場合は、事故前のヨウ素 129 を差し引く必要がある」と指摘されている。これらのことから、事故後の試料については、事故の影響分に加えて核実験フォールアウトや再処理施設からの放出の影響も含んでいるため、事故の影響のみを抽出して評価するためには、事故前の ^{129}I と ^{137}Cs の値をバックグラウンドとして差し引く必要がある。事故 1 年後の分析結果から事故前の分析結果を差し引き、事故後に環境に放出されて土壤に沈着した ^{129}I と ^{137}Cs を推定した結果を表 2-6-5 に、 ^{129}I と ^{137}Cs の比較図を図 2-6-17~図 2-6-20、 ^{129}I と ^{134}Cs の比較図を図 2-6-21 に各々示す。なお、事故 1 年後の放射能濃度から事故前の放射能濃度をバックグラウンドとして差し引いた結果を以下「放射能濃度の増分」と記す。

事故前と事故 1 年後の土壤中 ^{129}I 及び ^{137}Cs 濃度を表 2-6-3 及び図 2-6-14 に示す。事故 1 年後の ^{129}I 及び ^{137}Cs 濃度の方が事故前に比べ明らかに高く推移していることが分かった。事故前の ^{129}I と ^{137}Cs の相関係数は 0.295、事故 1 年後の相関係数は 0.692 であり、事故後の方が強い相関が得られた。なお、図 2-6-15 より、事故 1 年後の土壤中 ^{129}I 及び ^{134}Cs を比較すると相関係数は 0.808 であり、図 2-6-16 より、 ^{134}Cs と ^{137}Cs (放射能濃度の増分) の相関係数は 0.995 であった。 ^{134}Cs は事故前には土壤中に存在しなかつたため、土壤中に存在する ^{134}Cs は全て事故由来のものと言える。 ^{134}Cs と ^{137}Cs (放射能濃度の増分) に高い相関が得られたことにより、事故により土壤に付加された ^{137}Cs の量を、事故前の土壤中 ^{137}Cs を差し引くことで正しく評価できることを確認できた。以後の ^{129}I との相関の評価においては ^{137}Cs の値を用いることとした。 $(^{134}\text{Cs}$ は半減期が短く、今後不検出となるデータが多くなることが予想されるため。)

表 2-6-5、図 2-6-17~図 2-6-19 より、事故前より事故 1 年後の ^{129}I 、 ^{137}Cs 濃度が

高くなった地点の土壤について ^{129}I と ^{137}Cs を比較した結果、相関係数は0.799であった。また、事故による ^{129}I の影響が大きかったと思われる東日本と影響が比較的小さかった西日本について同様に比較したが、それぞれの相関係数は東日本は0.777、西日本は0.580であった。

先の報告（村松ら[3]）に「 I-131/Cs-137 比は地域によって大きく異なる」という報告がある。このことから、図2-6-11の文部科学省による「日本全国の航空機モニタリング結果[4]」に事故前及び事故1年後に採取した土壤の採取地点を挿入した図より、地表面への ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 沈着量が多い地点 宮城県、福島県、栃木県（以下「東日本①」という。）を確認し、事故後に土壤へ沈着した ^{129}I 濃度が「 10^{-4} のオーダー」の地点の 岩手県、群馬県、埼玉県、東京都、神奈川県、新潟県（以下「東日本②」という。）、事故後に土壤へ沈着した ^{129}I 濃度が「 10^{-5} のオーダー」の地点の 山形県、千葉県、山梨県、長野県、静岡県（以下「東日本③」という。）に試料をグループ分けし、それぞれのグループについて ^{129}I と ^{137}Cs を比較した。

図2-6-20より東日本①を除いた東日本（②+③）の相関係数は0.516であった。表2-6-5より東日本①は $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ は「 10^{-7} のオーダー」となり、土壤に沈着した ^{129}I より ^{137}Cs の方がより多かったと考えられた。東日本②は $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ が「 $10^{-4} \sim 10^{-6}$ のオーダー」であり、その相関係数は0.937であった。また、東日本③は $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ が「 $10^{-6} \sim 10^{-7}$ のオーダー」で相関係数は0.931であり良い相関が見られた。これらのことから、事故により環境へ放出され、土壤へ沈着した ^{137}Cs に対する ^{129}I の割合には地域差があると考えられた。

また、事故により土壤へ沈着した ^{129}I と ^{134}Cs を比較した結果を図2-6-20、図2-6-21に示す。 ^{129}I と ^{134}Cs には、 ^{129}I と ^{137}Cs を比較した結果と同様の相関が認められた。

③ 定時降下物との比較

事故により環境へ放出され、土壤へ沈着した ^{137}Cs に対する ^{129}I の比率には地域差があると考えられることから、事故発生年（平成23年）に調査した降下物について ^{137}Cs と ^{131}I の降下状況とその比率について ^{129}I 分析結果と同様な地域差が見られるか確認を行った。

原子力規制委員会ホームページ 放射線モニタリング情報の「平成23年3月18日～12月27日までの放射能測定調査結果」[1]を基に、 ^{129}I 調査県の定時降下物中の ^{131}I と ^{137}Cs を集計した結果を表2-6-6に、 ^{131}I と ^{137}Cs の比較図を図2-6-22～図2-6-24に示す。

表2-6-6において、土壤中 ^{129}I と ^{137}Cs を比較した場合と同様に、定時降下物試料を採取地点によりグループ分けし、東日本と西日本、更に東日本①、②、③とした。定時降下物中 ^{131}I は、東日本において調査データが得られていない宮城県を除いた13県で検出されており、西日本では和歌山県のみ検出されている。土壤中 ^{129}I 分析結果を併せて考慮すると、西日本より東日本の方が放射性ヨウ素の影響が大きかったことが確認できた。

北海道、青森県、秋田県、石川県の定時降下物中に ^{131}I は検出されており、京都

府は不検出であった。北海道、青森県、秋田県、石川県については、土壤中 ^{129}I 濃度の上昇は確認できなかったが、定時降下物中に ^{131}I が検出されており、放射性ヨウ素の降下はあったと考えられる。

また、図 2-6-22 より定時降下物中の ^{131}I と ^{137}Cs を比較した結果、東日本（宮城县、長野県を除く）の相関係数は 0.885、図 2-6-23 より、東日本①を除いた東日本②、③を合わせた相関係数は 0.831、東日本②、③のそれぞれの相関係数は 0.853、0.990 であった。

図 2-6-15、図 2-6-18、図 2-6-20 及び図 2-6-21 の結果に示すとおり、事故により土壤に沈着した ^{129}I と ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を比較した相関と同様な結果を示した。

事故により環境中へ放出された後、地表面に沈着した ^{137}Cs に対する ^{129}I の比率には地域差が見られたが、定時降下物からも同様の結果が得られた。よって事故により環境へ付加された放射性セシウムに対する放射性ヨウ素の割合には地域差があることが認められた。

図 2-6-24 より、北日本（北海道、青森県、秋田県）の定時降下物中の ^{131}I 、 ^{137}Cs は検出されており、3 地点ではあるが相関係数は 0.9998 であった。

④ ヨウ素 131 沈着量の推定

事故の際には大量の放射性物質が環境に放出されたが、今回調査した試料からは、採取後数年以上経過していることから、短半減期核種の ^{131}I は検出されなかった。

放射性ヨウ素は体内に入ると甲状腺に蓄積されるため、線量が高いと甲状腺がんを発症するリスクがある。原子力規制委員会 ホームページ「チェルノブイリ原発事故に関するレポート [7]」によると、「チェルノブイリ原発事故によるヨウ素 131 の放出量は 180TBq であり、福島第一原子力発電所事故では 16 TBq」とある。チェルノブイリ原発事故と比較すると放出量は少ないが、初期被ばくを評価する上で拡散状況及びその濃度を評価することが求められる。しかし、 ^{131}I は半減期が 8.02 日と短いため、事故時には多くの地点でのデータを得る事が困難であった。

先の報告（村松ら [3]）では「福島第一原子力発電所事故による土壤中のヨウ素 129 とヨウ素 131 濃度の関係には良い相関が見られ、ヨウ素 129 を測定することにより、減衰してしまったヨウ素 131 の濃度を推定できることを確認し、 $I-131/I-129$ 比 9,368 (Bq/Bq) (減衰補正は平成 23 年 6 月 14 日の時点) の相関係数は 0.84」と記されている。

上述の $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比を用い、平成 25 年度及び平成 26 年度に得られた土壤中 ^{129}I (放射能濃度の増分) から ^{131}I 濃度を推定した結果を表 2-6-7 に示す。なお、事故時に ^{129}I と ^{131}I が同時に放出され拡散したと仮定した上で、 ^{131}I の放射能値を各試料の採取地点が放射性プルームの影響を最も強く受けたと考えられる日に減衰補正した。

(放射性プルームの影響を受けた日の推定は、参考資料 [1]、[9]、[10]、[11] の情報を用いて行った。)

なお、これらの値は実測値ではなく推定値であり、分析試料は各都道府県あたり 1 地点で採取された土壤のみであるため、この地域を代表する値ではない。

原子力規制委員会「放射性物質の分布状況調査によるヨウ素の放射能濃度分析」の「ヨウ素 129 の分析を通じた土壤中ヨウ素 131 の放射能濃度分析結果（H23. 6. 14 換算）[8]」平成 23 年から 25 年度調査データから、福島市内の土壤中 ^{129}I は 0.48 ~ 40 (mBq/kg) であり、その値から推定された ^{131}I 平均沈着量は 300 ~ 6300 (Bq/m^2) と報告されている。本調査で得られた事故 1 年後の福島市の土壤中 ^{129}I は 2.0 (mBq/kg) であり、その値に「 $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比 9,368 (Bq/Bq)」を乗じて算出した ^{131}I の推定値は 494 (Bq/m^2) (H23. 6. 14 換算) となり、村松らの報告値の範囲内であった。また、事故由来の ^{129}I (放射能濃度の増分) を算出した結果から求めた ^{131}I は 301 (Bq/m^2) (H23. 6. 14 換算) であった。「再構築で得られたヨウ素 131 沈着量の絶対値としては最大で 35% 程度の誤差を含むと考えられる[3]」とあることから、誤差の範囲内であったと考えられる。

⑤ まとめ

本調査では、47 都道府県のうち 26 都道府県で採取された土壤（採取深度 0~5 cm）について福島第一原子力発電所事故前と事故 1 年後の ^{129}I 濃度を求めた。事故により土壤に沈着した ^{129}I (放射能濃度の増分) は、東日本で 3.8×10^{-5} ~ 1.4×10^{-3} (Bq/kg 乾土)、西日本では 2.4×10^{-5} ~ 6.0×10^{-5} (Bq/kg 乾土) であり、定時降下物中 ^{131}I と ^{137}Cs を集計した結果からも、西日本に比べ東日本の方が事故の影響が顕著に認められた。

事故により環境に付加された ^{129}I と ^{137}Cs の濃度比を求め、事故により土壤へ沈着した ^{129}I 濃度が「 10^{-4} のオーダー」の東日本②、及び「 10^{-5} のオーダー」の東日本③のグループについて ^{129}I と ^{137}Cs の相関係数を求めたところ、0.937 と 0.931 であり良い相関が見られた。一方、西日本の ^{129}I と ^{137}Cs の相関係数は 0.580 であった。 ^{137}Cs に対する ^{129}I の沈着量の比率に差が認められ、地域差があることが判った。

定時降下物中の ^{131}I 、 ^{137}Cs が不検出の地点においても、土壤中 ^{129}I 、 ^{137}Cs が検出されており、 ^{129}I を分析することによりその地点に放射性ヨウ素が降下したかを確認することができる。

また、先の報告（村松ら[3]）を参考として、事故により ^{129}I の影響がみられた東日本の地点を対象に、土壤へ沈着した ^{129}I 濃度から ^{131}I 濃度を推定した。

⑥ 今後の課題

平成 25、26 年度の調査では、47 都道府県のうち 26 都道府県の事故前と事故 1 年後の土壤を対象として実施した。引き続き他の府県について、同様に土壤中 ^{129}I 濃度を求め、全国の ^{129}I の分布、蓄積状況、及び東京電力福島第一原子力発電所事故の影響を把握するため、調査を継続して実施していくことが必要と考える。

また、本調査は深度 0~5 cm の土壤を対象としているが、さらに深度 5~20 cm の土壤中の ^{129}I 濃度を求め、 ^{137}Cs と比較することで下層への移行状況の把握ができる。また、事故 1 年後以降の土壤についても継続して同様に分析することで、全国の事故後の ^{129}I の経年変化を見ることができ、今後これらの調査を実施することが望まし

いと考えられる。

参考文献：

- [1] 原子力規制委員会ホームページ： 放射線モニタリング情報， 日本の環境放射能と放射線， 環境放射能データベース
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp>
- [2] 松崎浩之，「ヨウ素 129 を利用した新しい地球環境科学」
東京大学アイソトープ総合センターホームページ
東京大学アイソトープ総合センターニュース VOL. 39 NO. 4 2009. 3. 25
<http://www.ric.u-tokyo.ac.jp/news/news39-4.pdf>
- [3] 村松康行，松崎浩之，「ヨウ素 129 の定量を通じたヨウ素 131 の土壤濃度マップの精緻化」
原子力規制委員会ホームページ： 放射線モニタリング情報，
「平成 25 年度 東京電力(株)福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の長期的影響把握手法の確立事業成果報告書」
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/10000/9735/35/1-9_I131.pdf
- [4] 原子力規制委員会ホームページ： 放射線モニタリング情報，
航空機モニタリング結果
平成 24 年 7 月までの福島第一原子力発電所から 80km 圏外の航空機モニタリング，
①北海道の航空にモニタリング測定結果、及び②東日本全域の航空にモニタリングの結果の天然核種の影響を詳細に考慮した改訂について，
(参考 2)「文部科学省による日本全国の航空機モニタリングの測定結果について(日本全国の地表面へのセシウム 134、137 の沈着量の合計)」
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5847/24/203_0727.pdf
- [5] 遠山千亜紀, 内田悠香, 村松康行, 五十嵐康人, 青山道夫, 松崎浩之，「大気降下物中¹²⁹I の経年変化」
学習院大学 村松研究室ホームページ
[http://www-cc.gakushuin.ac.jp/~e881147/value_imenu_red_txt/学会要旨_2011/ヨウ素学会\(Toyama\).pdf](http://www-cc.gakushuin.ac.jp/~e881147/value_imenu_red_txt/学会要旨_2011/ヨウ素学会(Toyama).pdf)
- [6] 青森県原子力センター所報 第 8 号 (2013)，
「環境試料中のトリチウム、炭素-14 及びヨウ素-129・131 調査 一平成 24 年度調査結果一」
- [7] 原子力規制委員会ホームページ： 「チェルノブイリ原発事故に関するレポート平成 25 年 9 月」
<http://www.nsr.go.jp/data/000049286.pdf>
- [8] 原子力規制委員会ホームページ： 放射線モニタリング情報，
放射性物質モニタリングの情報公開サイト ((独)日本原子力研究開発機構)
<http://emdb.jaea.go.jp/emdb/portals/b215/>

- [9] 堅田元喜、茅野政道、寺田宏明、小林卓也、太田雅和、永井晴康、梶野瑞王、
「大気・海洋拡散モデルを用いた福島第一原発事故による放射性物質の大気放出量
の推定」
(独) 日本原子力研究開発機構ホームページ， 東京電力福島第一原子力発電所事故
により環境中に放出された放射性物質の拡散シミュレーション動画， 日本原子力
学会 2014 年春の年会発表
[http://nsec.jaea.go.jp/ers/environment/envs/fukushima/2014_AESJ-Meeting\(chino\).pdf](http://nsec.jaea.go.jp/ers/environment/envs/fukushima/2014_AESJ-Meeting(chino).pdf)
- [10] 原子力規制委員会ホームページ： 放射線モニタリング情報， 空間線量率（環境放
射能水準調査）
<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/224/list-1.html>
- [11] 原子力規制委員会ホームページ： 放射線モニタリング情報， 各種シミュレーショ
ン結果， 事故放出放射性物質の広域影響に関する検討結果（平成 23 年 8 月 1 日）
(日本原子力学会)
http://www.aesj.or.jp/information/fnpp201103/chousacom/he/hecom_kouikieikyo20110811.pdf

表 2-6-1 ヨウ素 129 分析結果（平成 26 年度採取）

| 試料名 | 試料採取地 | 種類 深さ | 採取地点 | 採取年月日 | ヨウ素129 | 単位 | 原子数比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) | |
|-----|-------|----------|-----------------|----------------------|------------------------|-------------------------|------------------------------------------|--|
| 土壤 | 北海道 | 0-5cm | 江別市 | H26. 09. 09 | 0. 52 ± 0. 018 | mBq/kg (乾土) | 7. 8E-09 ± 2. 6E-10 | |
| | | 5-20cm | | H26. 09. 09 | 0. 14 ± 0. 006 | | 1. 8E-09 ± 7. 6E-11 | |
| | 秋田県 | 0-5cm | 秋田市 | H26. 09. 24 | 0. 64 ± 0. 021 | | 2. 5E-09 ± 7. 8E-11 | |
| | | 5-20cm | | H26. 09. 24 | 0. 39 ± 0. 016 | | 1. 6E-09 ± 6. 4E-11 | |
| 千葉県 | 0-5cm | 市原市 | H26. 07. 23 | 0. 31 ± 0. 007 | mBq/L | 1. 2E-08 ± 2. 4E-10 | | |
| | | | | 0. 080 ± 0. 0035 | | 3. 1E-09 ± 1. 3E-10 | | |
| | 北海道 | 札幌市 | H26. 07. 15 | 0. 00047 ± 0. 000045 | | 4. 0E-10 ± 3. 9E-11 | | |
| | | 大館市 | | 0. 00064 ± 0. 000042 | | 5. 5E-10 ± 3. 6E-11 | | |
| 牛乳 | 千葉県 | 八千代市 | H26. 07. 29 | 0. 0015 ± 0. 00007 | mBq/kg (生) | 1. 7E-09 ± 7. 2E-11 | | |
| | | | | 0. 35 ± 0. 007 | | 7. 3E-11 ± 1. 5E-12 | | |
| | 北海道 | コンブ | 余市郡余市町 | H26. 07. 15 | 0. 26 ± 0. 008 | | 2. 0E-10 ± 5. 8E-12 | |
| | | アカモク | | | | | 6. 8E-11 ± 2. 9E-12 | |
| 海藻 | 千葉県 | アラメ | 御宿漁協沖 (水深2m) | H26. 06. 29 | 0. 19 ± 0. 008 | mBq/kg (生) | 7. 5E-09 ± 1. 3E-09 | |
| | | アラメ | | | | | 1. 0E-08 ± 2. 3E-09 | |
| | 野菜 | キャベツ | 秋田市河辺三内 | H26. 10. 29 | 0. 0000161 | | 4. 5E-09 ± 8. 8E-10 | |
| | | | | | | | 3. 1E-09 ± 1. 3E-10 | |

注) 「E-07」は「 10^{-7} 」を意味している。

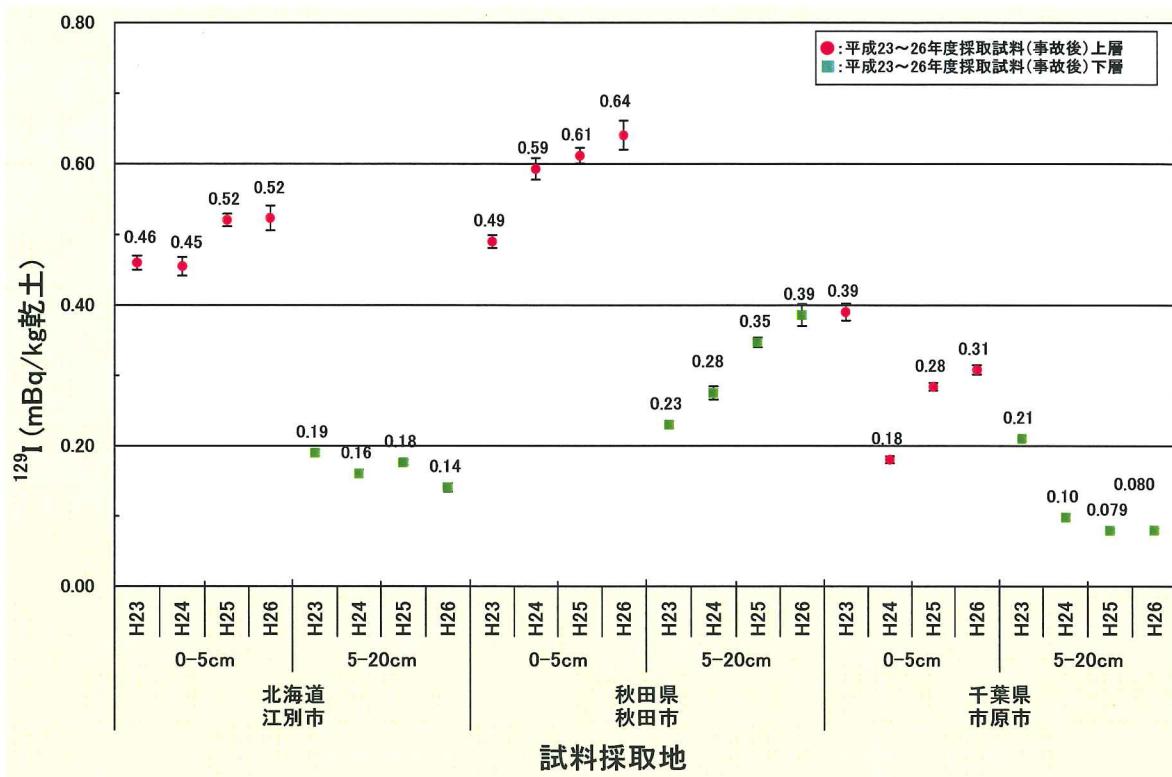


図 2-6-1 土壤中の ^{129}I 濃度 (3 地点)

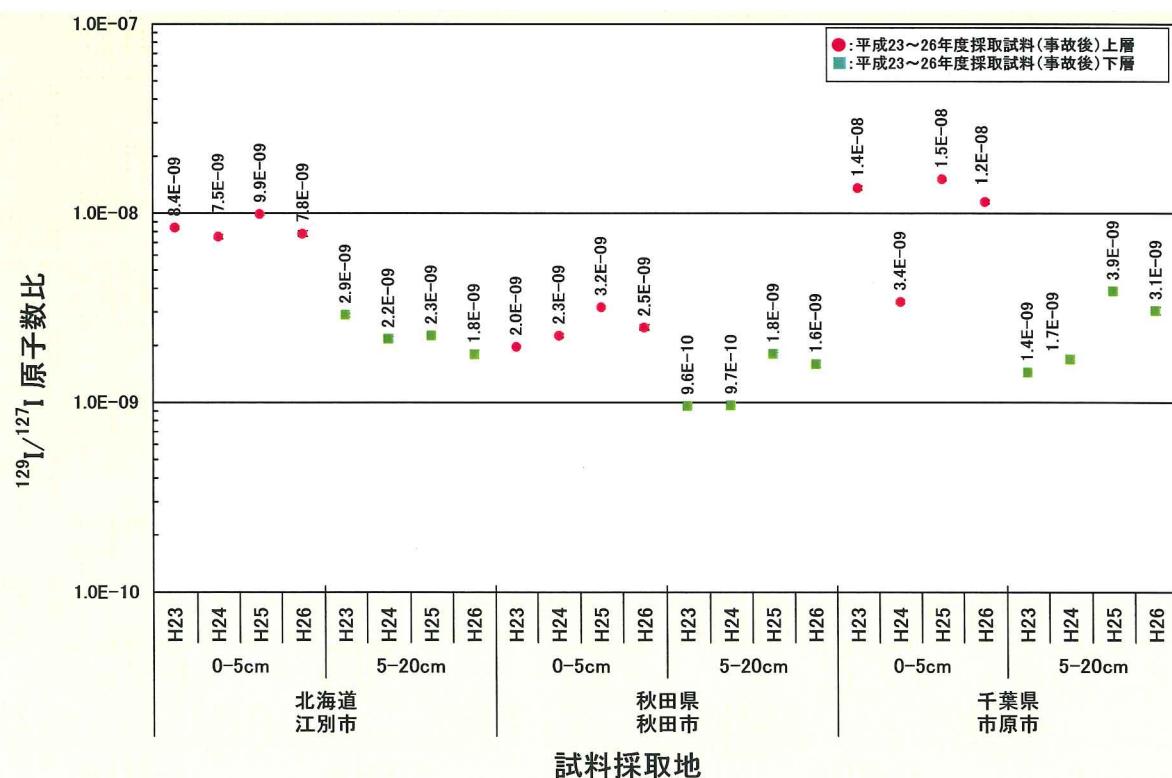


図 2-6-2 土壤中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比 (3 地点)

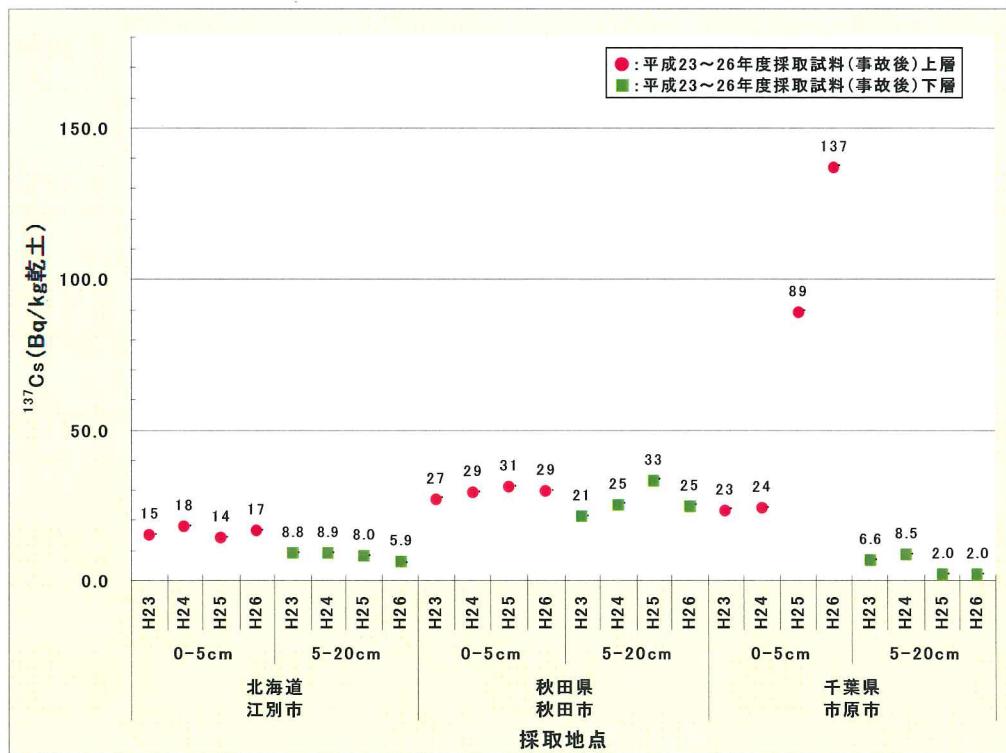


図 2-6-3 土壤中の ^{137}Cs 濃度 (3 地点)

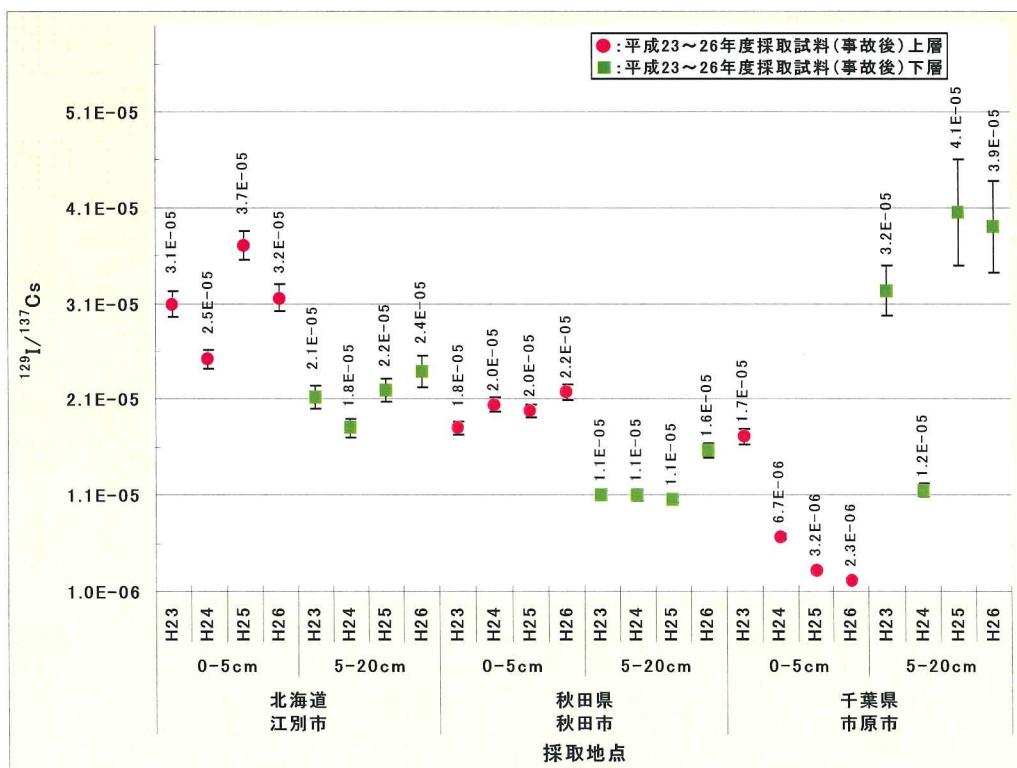


図 2-6-4 土壤中の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 (3 地点)

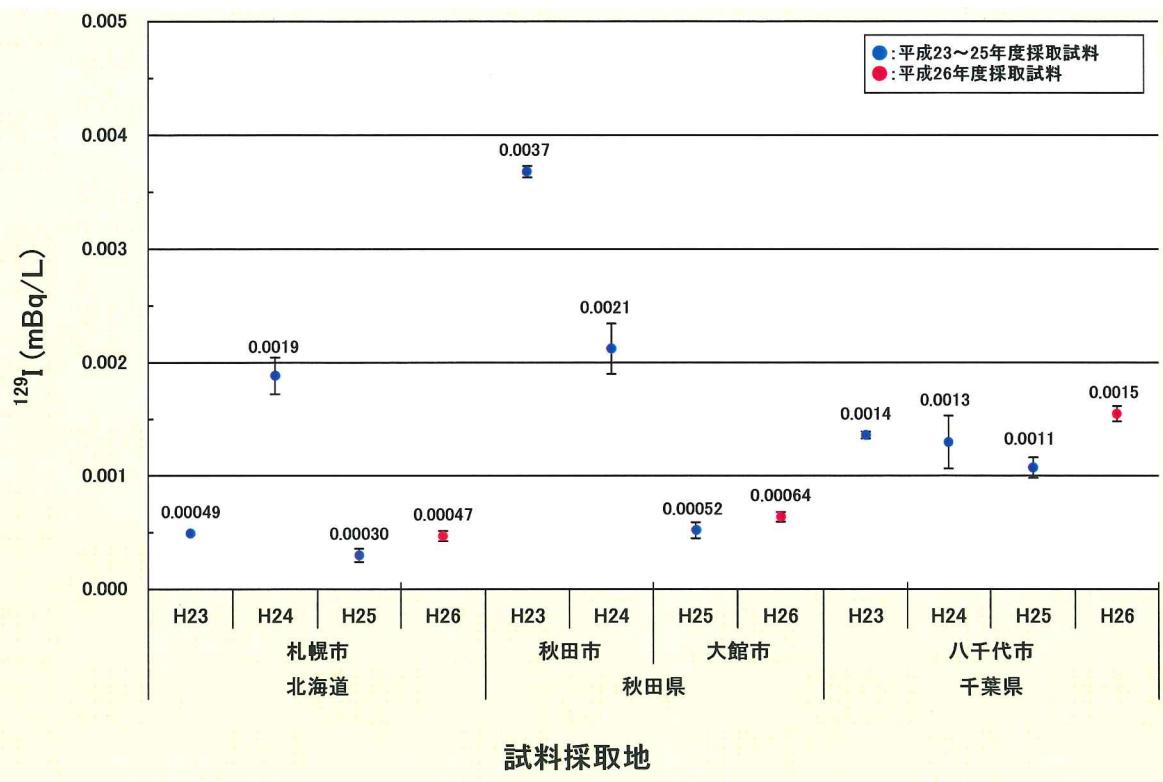


図 2-6-5 牛乳の ^{129}I 濃度

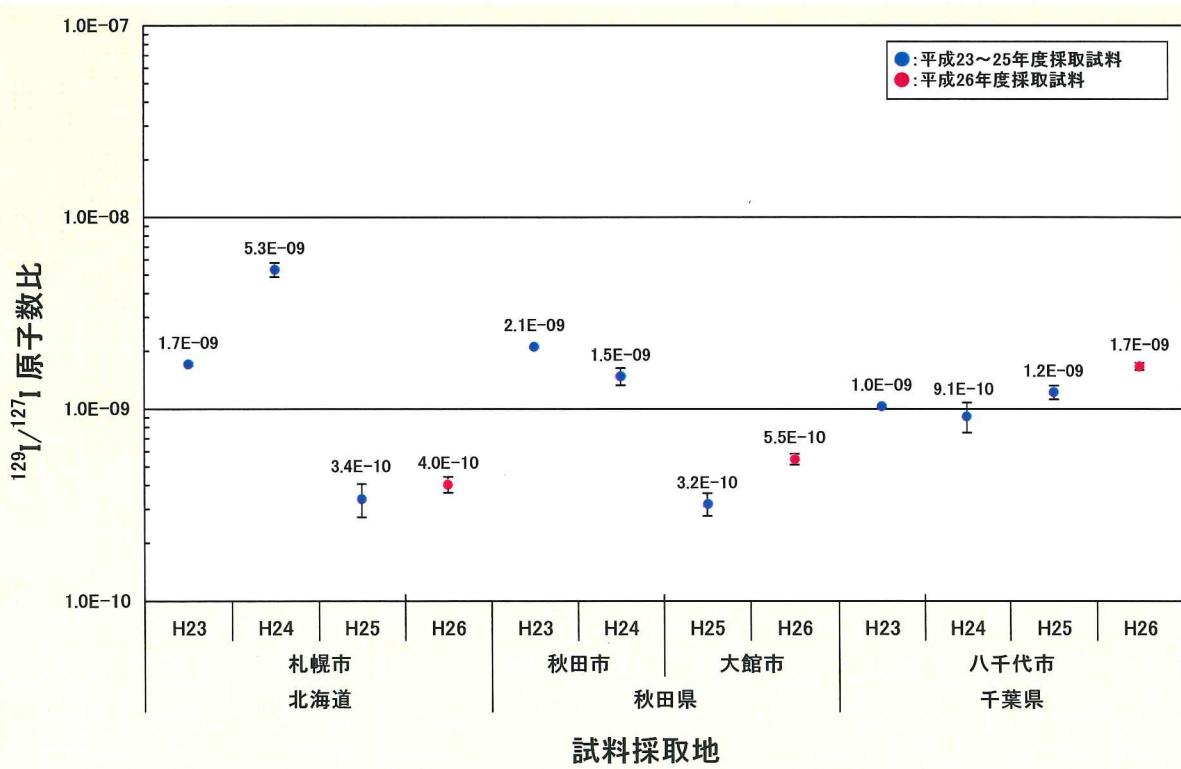


図 2-6-6 牛乳の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比

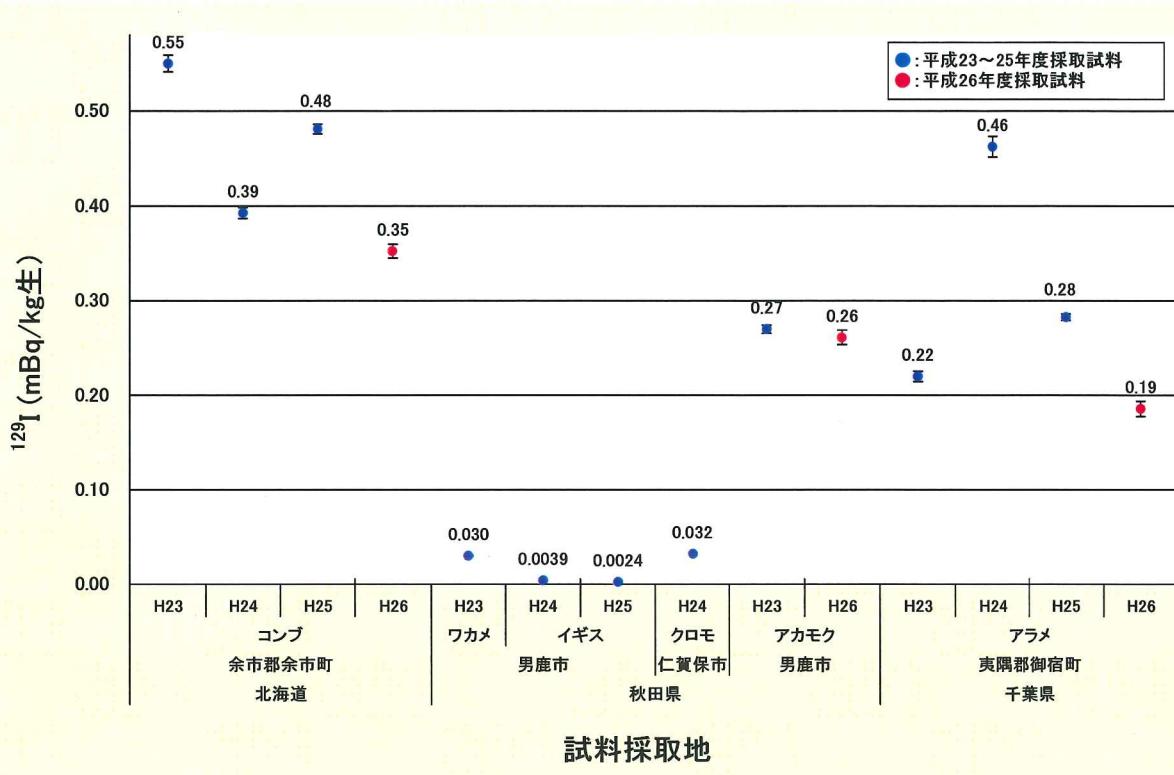


図 2-6-7 海藻の ^{129}I 濃度

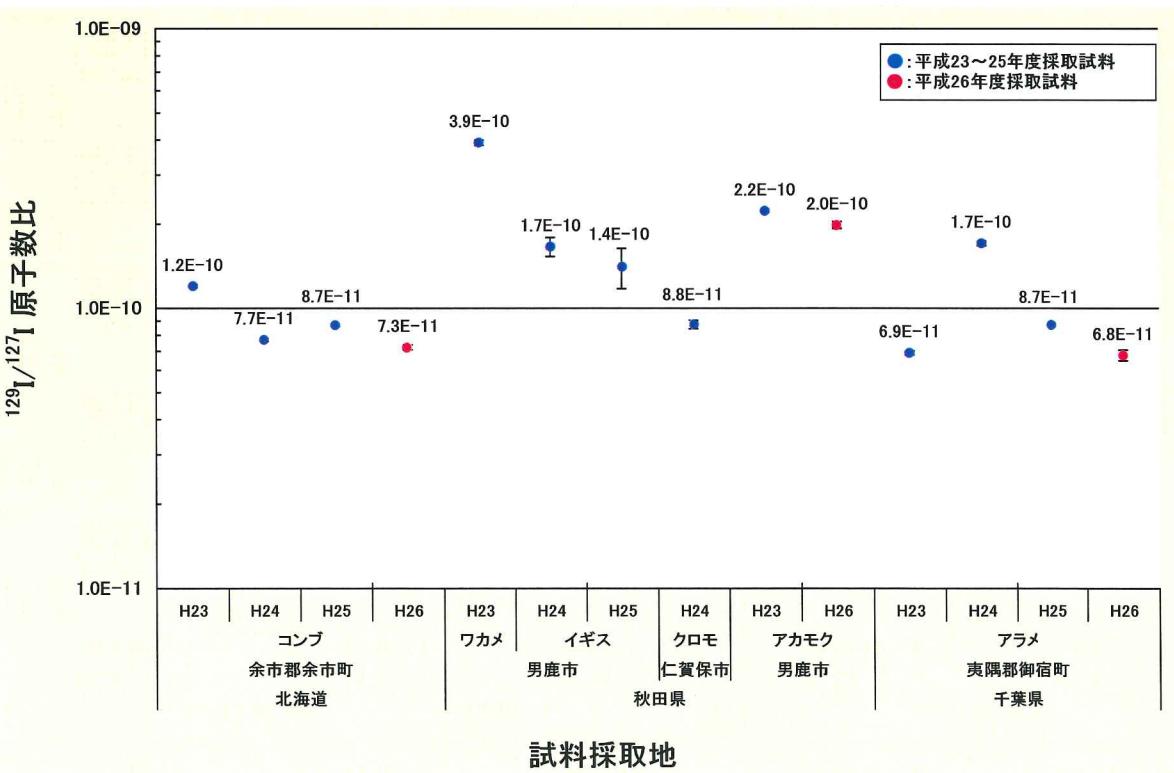


図 2-6-8 海藻の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比

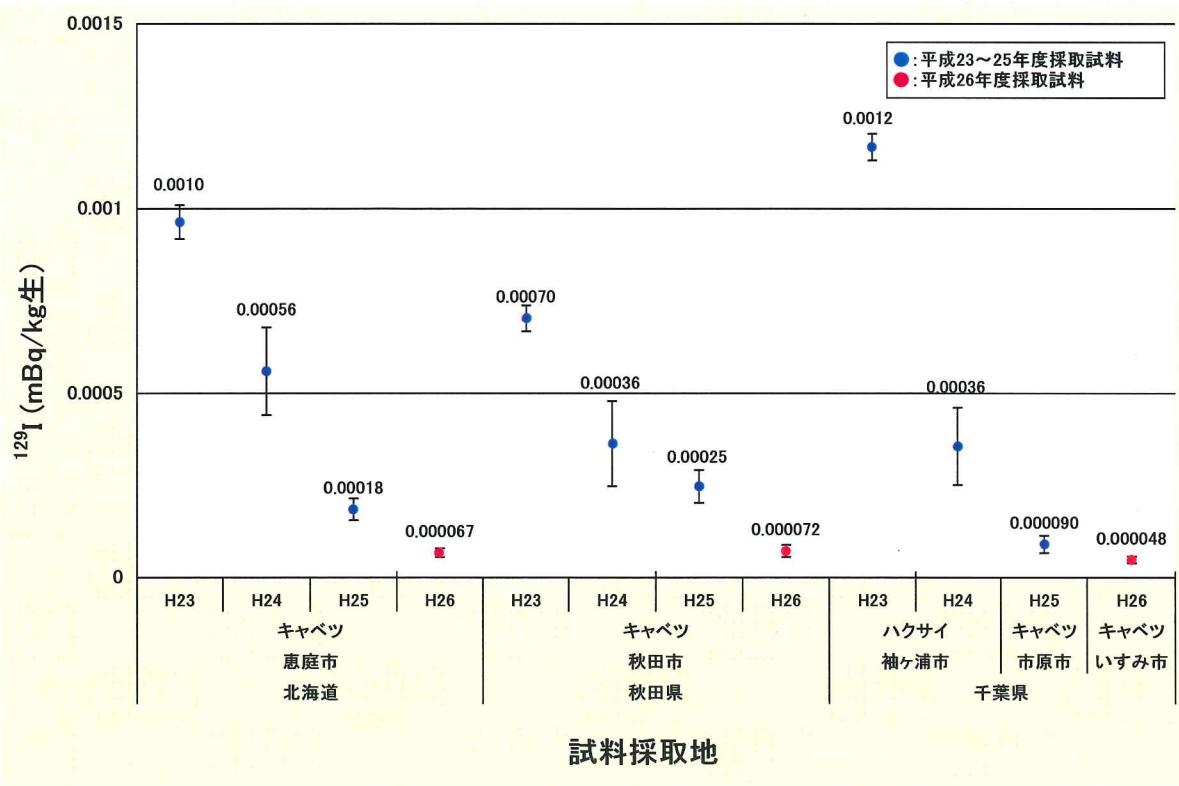


図 2-6-9 野菜の ^{129}I 濃度

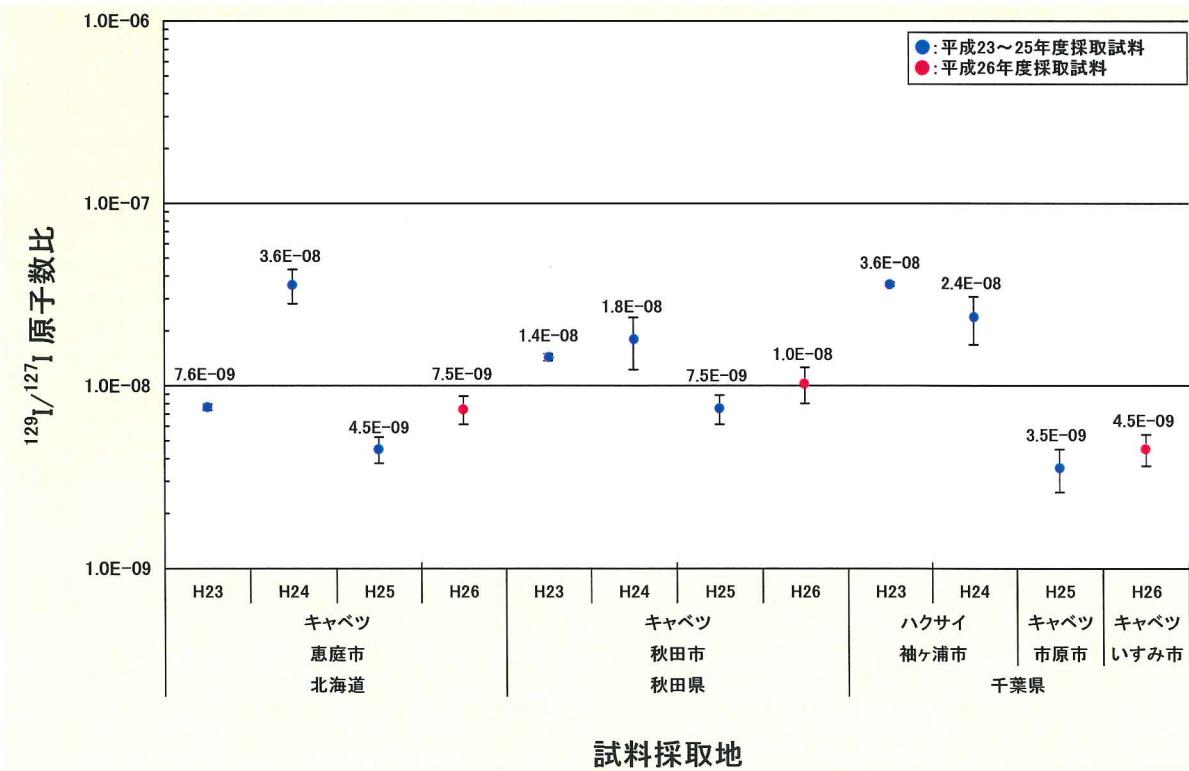


図 2-6-10 野菜の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比

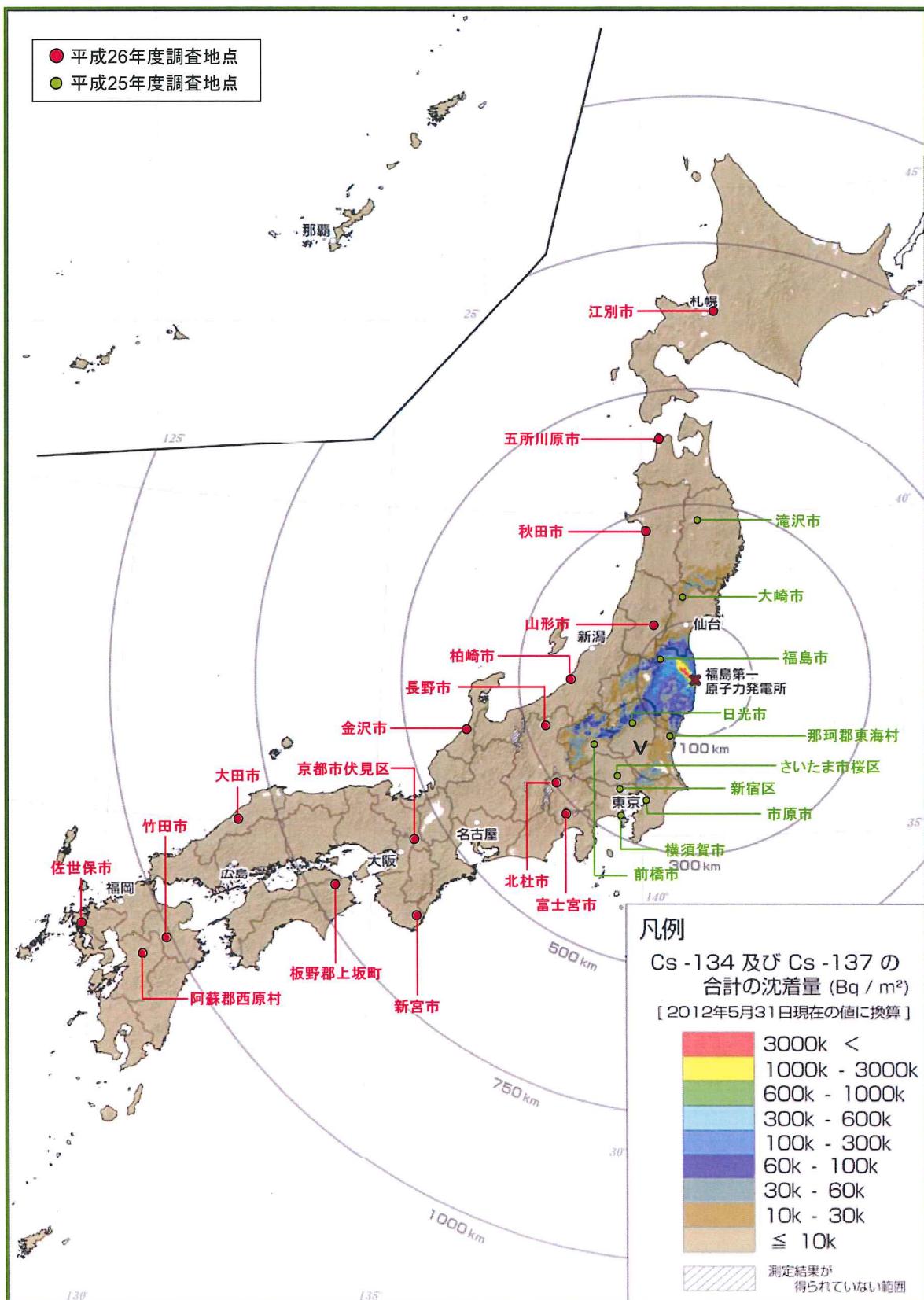


図 2-6-11 事故前及び事故 1 年後に採取した土壌の採取地点
(原子力規制委員会ホームページ [4] より引用し、採取地点を追加した)

表 2-6-2 土壤中の¹²⁹I 分析結果（事故前及び事故 1 年後の採取土壤）

| 試料名 | 試料採取地 | 種類、深さ | 採取地点 | 採取年月日 | ヨウ素129 | 単位 | 原子数比 (¹²⁹ I/ ¹²⁷ I) |
|-----|-------|-------|--------|-----------|----------------|----------------|--------------------------------------------|
| 土壤 | 北海道 | 0-5cm | 江別市 | H22.09.14 | 0.66 ± 0.011 | mBq/kg (乾土) | 1.0E-08 ± 1.67E-10 |
| | 青森県 | | 五所川原市 | H22.07.07 | 0.26 ± 0.007 | | 3.8E-09 ± 1.0E-10 |
| | 秋田県 | | 秋田市 | H22.09.06 | 0.62 ± 0.011 | | 2.6E-09 ± 4.4E-11 |
| | 山形県 | | 山形市 | H22.07.26 | 0.29 ± 0.007 | | 1.3E-08 ± 3.0E-10 |
| | 新潟県 | | 柏崎市 | H22.07.22 | 0.26 ± 0.006 | | 1.8E-08 ± 3.9E-10 |
| | 石川県 | | 金沢市 | H22.08.11 | 0.54 ± 0.010 | | 1.9E-08 ± 3.3E-10 |
| | 山梨県 | | 北杜市 | H22.08.17 | 0.27 ± 0.006 | | 2.1E-09 ± 4.7E-11 |
| | 長野県 | | 長野市 | H22.08.10 | 0.69 ± 0.012 | | 5.7E-09 ± 9.4E-11 |
| | 静岡県 | | 富士宮市 | H22.07.26 | 0.38 ± 0.009 | | 2.5E-09 ± 5.9E-11 |
| | 京都府 | | 京都市伏見区 | H22.07.20 | 0.15 ± 0.005 | | 1.1E-08 ± 3.3E-10 |
| | 和歌山県 | | 新宮市 | H23.02.03 | 0.048 ± 0.0028 | | 3.3E-09 ± 1.9E-10 |
| | 島根県 | | 大田市 | H22.07.01 | 0.93 ± 0.014 | | 5.8E-09 ± 8.5E-11 |
| | 徳島県 | | 板野郡上坂町 | H22.07.21 | 0.053 ± 0.0030 | | 4.1E-09 ± 2.3E-10 |
| | 長崎県 | | 佐世保市 | H22.07.20 | 0.11 ± 0.004 | | 5.6E-09 ± 1.9E-10 |
| | 熊本県 | | 阿蘇郡西原村 | H22.08.16 | 0.55 ± 0.010 | | 3.3E-09 ± 5.8E-11 |
| | 大分県 | | 竹田市 | H22.10.21 | 0.84 ± 0.017 | | 5.0E-09 ± 9.0E-11 |
| | 北海道 | 0-5cm | 江別市 | H24.09.21 | 0.45 ± 0.013 | mBq/kg (乾土) | 7.5E-09 ± 1.9E-10 |
| | 青森県 | | 五所川原市 | H24.07.11 | 0.25 ± 0.013 | | 3.4E-09 ± 1.8E-10 |
| | 秋田県 | | 秋田市 | H24.09.19 | 0.59 ± 0.015 | | 2.3E-09 ± 4.9E-11 |
| | 山形県 | | 山形市 | H24.08.01 | 0.35 ± 0.016 | | 1.7E-08 ± 7.5E-10 |
| | 新潟県 | | 柏崎市 | H24.07.09 | 0.37 ± 0.016 | | 1.7E-08 ± 7.6E-10 |
| | 石川県 | | 金沢市 | H24.08.16 | 0.55 ± 0.020 | | 1.8E-08 ± 6.5E-10 |
| | 山梨県 | | 北杜市 | H24.08.08 | 0.31 ± 0.017 | | 2.6E-09 ± 1.4E-10 |
| | 長野県 | | 長野市 | H24.07.23 | 0.76 ± 0.023 | | 6.9E-09 ± 2.0E-10 |
| | 静岡県 | | 富士宮市 | H24.07.27 | 0.43 ± 0.018 | | 3.4E-09 ± 1.5E-10 |
| | 京都府 | | 京都市伏見区 | H24.07.23 | 0.067 ± 0.0094 | | 6.7E-09 ± 9.3E-10 |
| | 和歌山県 | | 新宮市 | H24.10.25 | 0.082 ± 0.0090 | | 4.8E-09 ± 5.3E-10 |
| | 島根県 | | 大田市 | H24.07.20 | 1.0 ± 0.03 | | 6.4E-09 ± 1.7E-10 |
| | 徳島県 | | 板野郡上坂町 | H24.08.08 | 0.077 ± 0.0093 | | 6.0E-09 ± 7.3E-10 |
| | 長崎県 | | 佐世保市 | H24.07.23 | 0.14 ± 0.011 | | 6.4E-09 ± 5.0E-10 |
| | 熊本県 | | 阿蘇郡西原村 | H24.07.18 | 0.61 ± 0.021 | | 3.8E-09 ± 1.2E-10 |
| | 大分県 | | 竹田市 | H24.07.20 | 0.89 ± 0.026 | | 5.5E-09 ± 1.5E-10 |

* 試料の分析は全て平成 26 年度に実施した。

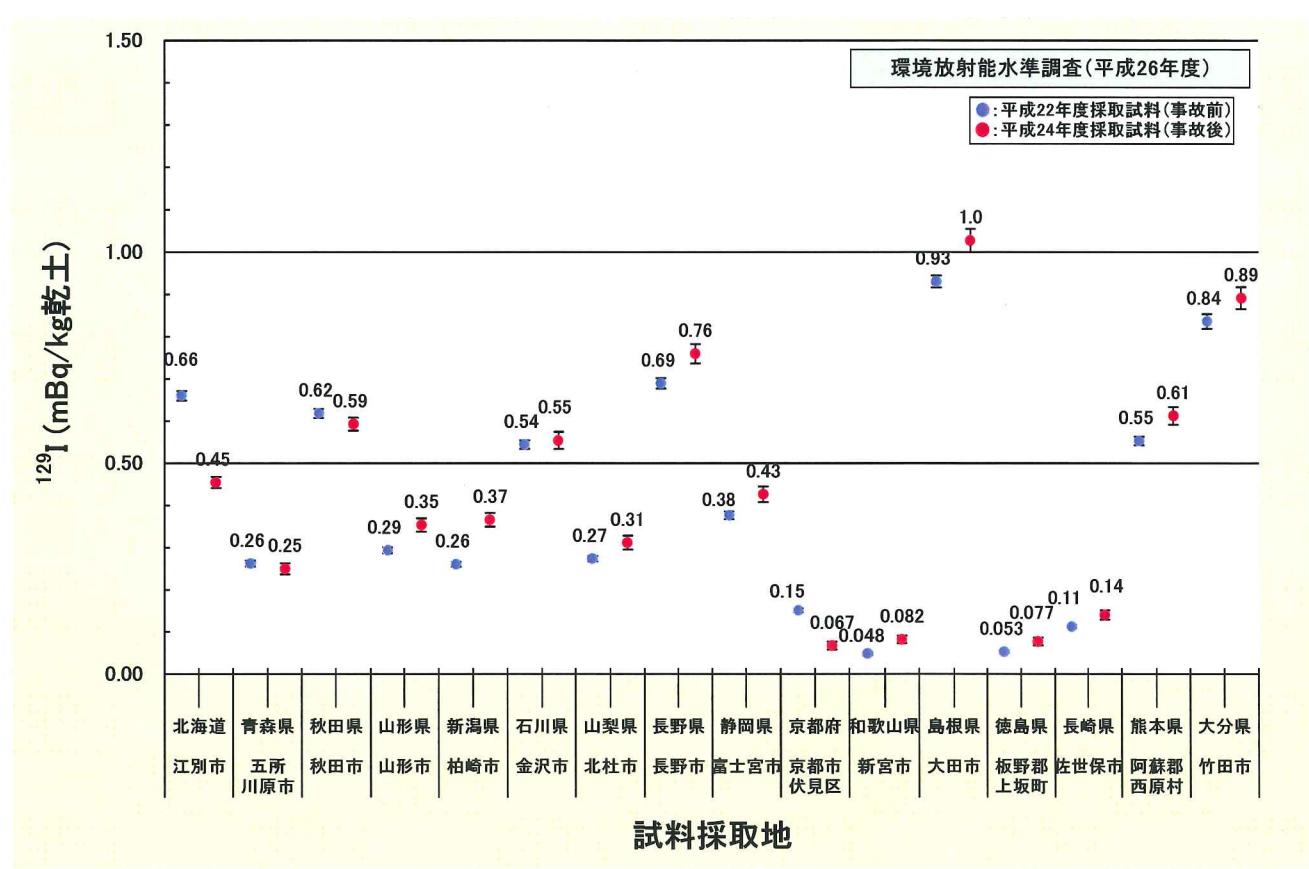


図 2-6-12 土壤（深度 0-5 cm）中の¹²⁹I 濃度（16 地点）

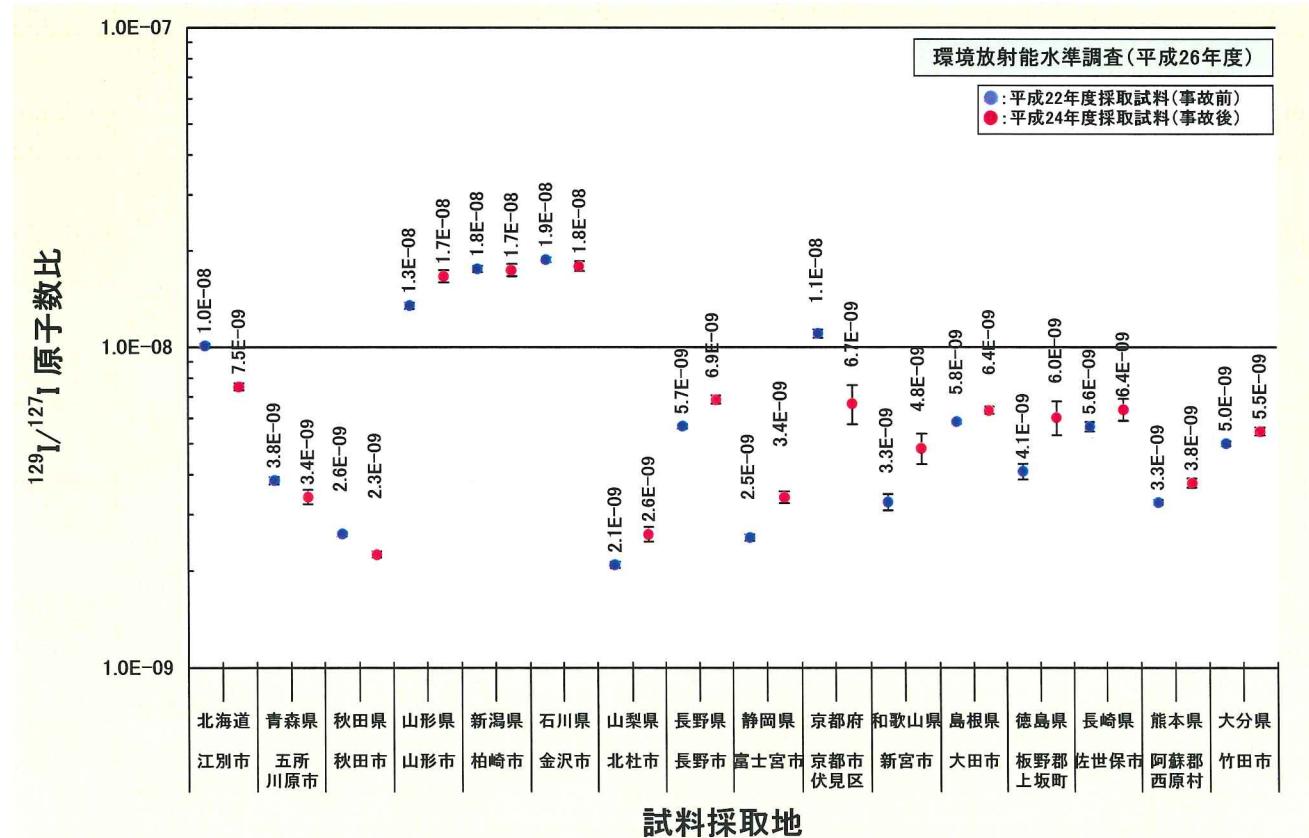


図 2-6-13 土壤（深度 0-5 cm）中の¹²⁹I/¹²⁷I 原子数比（16 地点）

表 2-6-3 土壤 (0-5cm) 中の ^{129}I と ^{137}Cs (事故前と事故 1 年後の比較)

| 試料採取地点 | ^{129}I (Bq/kg 乾土) | | ^{137}Cs (Bq/kg 乾土) | | 平成22年度 (事故前) | 平成24年度 (事故一年後) |
|--------------|-----------------------------|-------------------|------------------------------|-------------------|-----------------|-------------------|
| | 平成22年度 (事故前) | 平成24年度 (事故一年後) | 平成22年度 (事故前) | 平成24年度 (事故一年後) | | |
| 北海道(江別市) | 6.6E-04 ± 1.1E-05 | 4.5E-04 ± 1.3E-05 | 18 ± 0.6 | 18 ± 0.5 | 3.8E-05 | 2.5E-05 |
| 青森県(五所川原市) | 2.6E-04 ± 7.2E-06 | 2.5E-04 ± 1.3E-05 | 0.88 ± 0.31 | 1.9 ± 0.35 | 3.0E-04 | 1.3E-04 |
| 岩手県(滝沢市) | 6.5E-04 ± 9.1E-06 | 9.8E-04 ± 1.4E-05 | 39 ± 0.6 | 270 ± 2 | 1.7E-05 | 3.6E-06 |
| 秋田県(秋田市) | 6.2E-04 ± 1.1E-05 | 5.9E-04 ± 1.5E-05 | 27 ± 0.7 | 29 ± 0.8 | 2.3E-05 | 2.0E-05 |
| 山形県(山形市) | 2.9E-04 ± 7.0E-06 | 3.5E-04 ± 1.6E-05 | 18 ± 0.5 | 220 ± 1.7 | 1.6E-05 | 1.6E-06 |
| 宮城県(大崎市) | 2.8E-04 ± 5.3E-06 | 5.6E-04 ± 8.3E-06 | 3.3 ± 0.17 | 370 ± 2 | 8.6E-05 | 1.5E-06 |
| 福島県(福島市) | 5.9E-04 ± 9.4E-06 | 2.0E-03 ± 2.8E-05 | 22 ± 0.4 | 1800 ± 5 | 2.7E-05 | 1.1E-06 |
| 茨城県(那珂郡東海村) | 8.4E-02 ± 8.2E-04 | 3.7E-02 ± 7.8E-04 | 53 ± 0.7 | 970 ± 4 | 1.6E-03 | 3.8E-05 |
| 栃木県(日光市) | 1.6E-03 ± 2.2E-05 | 1.9E-03 ± 3.0E-05 | 24 ± 0.4 | 520 ± 3 | 6.6E-05 | 3.6E-06 |
| 群馬県(前橋市) | 6.7E-05 ± 2.8E-06 | 2.4E-04 ± 6.3E-06 | 1.6 ± 0.12 | 83 ± 1.2 | 4.2E-05 | 2.9E-06 |
| 埼玉県(さいたま市桜区) | 6.5E-04 ± 9.4E-06 | 8.6E-04 ± 1.4E-05 | 5.0 ± 0.21 | 110 ± 1 | 1.3E-04 | 7.8E-06 |
| 千葉県(市原市) | 1.4E-04 ± 3.4E-06 | 1.8E-04 ± 4.9E-06 | 0.95 ± 0.10 | 89 ± 1.0 | 1.5E-04 | 2.0E-06 |
| 東京都(新宿区) | 4.0E-04 ± 6.9E-06 | 9.0E-04 ± 1.3E-05 | 2.5 ± 0.15 | 430 ± 3 | 1.6E-04 | 2.1E-06 |
| 神奈川県(横須賀市) | 2.5E-04 ± 4.5E-06 | 4.0E-04 ± 8.3E-06 | 3.4 ± 0.17 | 140 ± 1 | 7.5E-05 | 2.8E-06 |
| 新潟県(柏崎市) | 2.6E-04 ± 5.8E-06 | 3.7E-04 ± 1.6E-05 | 5.9 ± 0.31 | 6.8 ± 0.32 | 4.4E-05 | 5.4E-05 |
| 石川県(金沢市) | 5.4E-04 ± 1.0E-05 | 5.5E-04 ± 2.0E-05 | 24 ± 0.7 | 27 ± 0.7 | 2.3E-05 | 2.1E-05 |
| 山梨県(北杜市) | 2.7E-04 ± 6.4E-06 | 3.1E-04 ± 1.7E-05 | 11 ± 0.5 | 22 ± 0.7 | 2.5E-05 | 1.4E-05 |
| 長野県(長野市) | 6.9E-04 ± 1.2E-05 | 7.6E-04 ± 2.3E-05 | 75 ± 1.1 | 390 ± 3 | 9.2E-06 | 1.9E-06 |
| 静岡県(富士宮市) | 3.8E-04 ± 9.3E-06 | 4.3E-04 ± 1.8E-05 | 15 ± 0.7 | 52 ± 1.1 | 2.4E-05 | 8.2E-06 |
| 京都府(京都府伏見区) | 1.5E-04 ± 4.6E-06 | 6.7E-05 ± 9.4E-06 | 2.2 ± 0.32 | 3.4 ± 0.33 | 6.8E-05 | 2.0E-05 |
| 和歌山県(新宮市) | 4.8E-05 ± 2.8E-06 | 8.2E-05 ± 9.0E-06 | 0.85 ± 0.30 | 2.8 ± 0.29 | 5.6E-05 | 3.0E-05 |
| 島根県(大田市) | 9.3E-04 ± 1.4E-05 | 1.0E-03 ± 2.7E-05 | 17 ± 0.7 | 17 ± 0.6 | 5.4E-05 | 6.2E-05 |
| 徳島県(板野郡上坂町) | 5.3E-05 ± 3.0E-06 | 7.7E-05 ± 9.3E-06 | 1.7 ± 0.28 | 3.1 ± 0.32 | 3.1E-05 | 2.5E-05 |
| 長崎県(佐世保市) | 1.1E-04 ± 3.9E-06 | 1.4E-04 ± 1.1E-05 | 15 ± 0.4 | 16 ± 0.4 | 7.4E-06 | 8.5E-06 |
| 熊本県(阿蘇郡西原村) | 5.5E-04 ± 1.0E-05 | 6.1E-04 ± 2.1E-05 | 40 ± 0.8 | 44 ± 1.0 | 1.4E-05 | 1.4E-05 |
| 大分県(竹田市) | 8.4E-04 ± 1.7E-05 | 8.9E-04 ± 2.6E-05 | 55 ± 1.2 | 57 ± 1.1 | 1.5E-05 | 1.6E-05 |

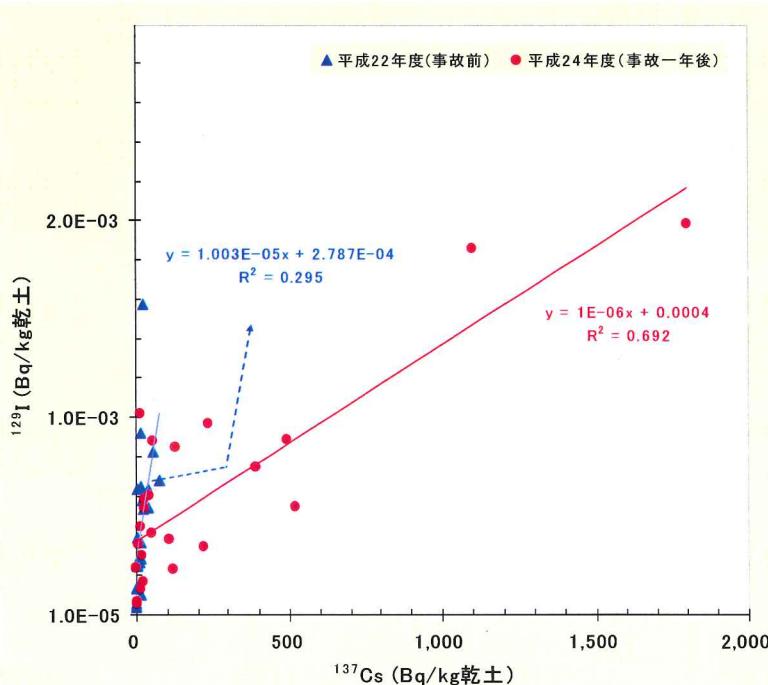


図 2-6-14 事故前および事故 1 年後の土壤 (深度 0-5cm) に沈着した ^{129}I と ^{137}Cs の相関
(茨城県を除く (核燃料再処理施設の影響があるため))

表 2-6-4 事故により土壤（深度 0-5 cm）に沈着した
 ^{129}I （放射能濃度の増分）及び ^{134}Cs

| 試料採取地点 | ^{129}I (Bq/kg 乾土) | ^{134}Cs (Bq/kg 乾土) | 平成24年度 (事故一年後) $^{129}\text{I}/^{134}\text{Cs}$ |
|--------------|-----------------------------|------------------------------|-------------------------------------------------------|
| | 平成24年度 (事故一年後) | 平成24年度 (事故一年後) | |
| 北海道(江別市) | 4.5E-04 ± 1.3E-05 | 不検出 | — |
| 青森県(五所川原市) | 2.5E-04 ± 1.3E-05 | 不検出 | — |
| 岩手県(滝沢市) | 9.8E-04 ± 1.4E-05 | 130 ± 2 | 7.5E-06 |
| 秋田県(秋田市) | 5.9E-04 ± 1.5E-05 | 不検出 | — |
| 山形県(山形市) | 3.5E-04 ± 1.6E-05 | 140 ± 2 | 2.5E-06 |
| 宮城県(大崎市) | 5.6E-04 ± 8.3E-06 | 270 ± 2 | 2.1E-06 |
| 福島県(福島市) | 2.0E-03 ± 2.8E-05 | 1100 ± 7 | 1.8E-06 |
| 茨城県(那珂郡東海村) | 3.7E-02 ± 7.8E-04 | 310 ± 1 | 1.2E-04 |
| 栃木県(日光市) | 1.9E-03 ± 3.0E-05 | 620 ± 4 | 3.0E-06 |
| 群馬県(前橋市) | 2.4E-04 ± 6.3E-06 | 73 ± 1.3 | 3.3E-06 |
| 埼玉県(さいたま市桜区) | 8.6E-04 ± 1.4E-05 | 81 ± 1.3 | 1.1E-05 |
| 千葉県(市原市) | 1.8E-04 ± 4.9E-06 | 15 ± 0.5 | 1.2E-05 |
| 東京都(新宿区) | 9.0E-04 ± 1.3E-05 | 300 ± 2 | 3.0E-06 |
| 神奈川県(横須賀市) | 4.0E-04 ± 8.3E-06 | 73 ± 0.8 | 5.4E-06 |
| 新潟県(柏崎市) | 3.7E-04 ± 1.6E-05 | 不検出 | — |
| 石川県(金沢市) | 5.5E-04 ± 2.0E-05 | 不検出 | — |
| 山梨県(北杜市) | 3.1E-04 ± 1.7E-05 | 7.9 ± 0.98 | 3.9E-05 |
| 長野県(長野市) | 7.6E-04 ± 2.3E-05 | 220 ± 3 | 3.5E-06 |
| 静岡県(富士宮市) | 4.3E-04 ± 1.8E-05 | 29 ± 1.5 | 1.5E-05 |
| 京都府(京都府伏見区) | 6.7E-05 ± 9.4E-06 | 不検出 | — |
| 和歌山県(新宮市) | 8.2E-05 ± 9.0E-06 | 不検出 | — |
| 島根県(大田市) | 1.0E-03 ± 2.7E-05 | 不検出 | — |
| 徳島県(板野郡上坂町) | 7.7E-05 ± 9.3E-06 | 不検出 | — |
| 長崎県(佐世保市) | 1.4E-04 ± 1.1E-05 | 不検出 | — |
| 熊本県(阿蘇郡西原村) | 6.1E-04 ± 2.1E-05 | 不検出 | — |
| 大分県(竹田市) | 8.9E-04 ± 2.6E-05 | 不検出 | — |

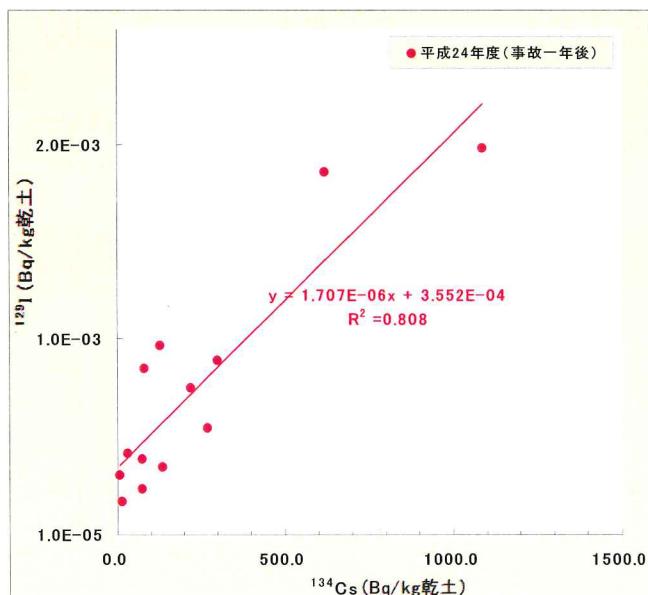


図 2-6-15
事故 1 年後の土壤（深度 0-5cm）に沈着した ^{129}I と ^{134}Cs の相関
(茨城県を除く (核燃料再処理施設の影響があるため))

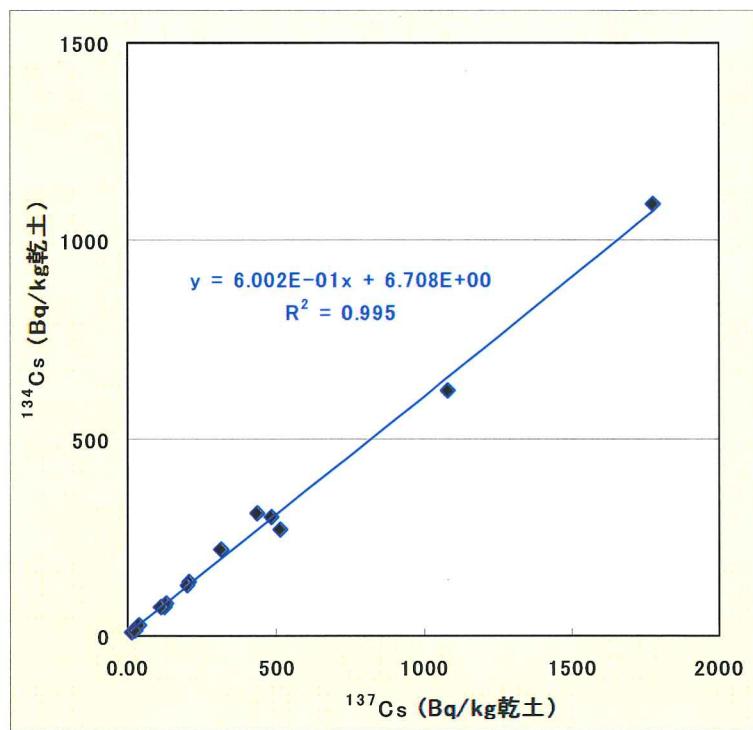


図 2-6-16
土壤中の ^{134}Cs と ^{137}Cs の相関
(事故後に ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の濃度上昇が見られた地点)

表 2-6-5 事故により土壤に付加されたと考えられる ^{129}I と ^{137}Cs の推定値
(放射能濃度の増分)

| 試料採取地点 | | ^{129}I (Bq/kg 乾土) | ^{137}Cs (Bq/kg 乾土) | $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ |
|--------|--------------|--------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|
| 東日本① | 福島県（福島市） | 1.4E-03 ± 3.0E-05 | 1.8E+03 ± 5.0E+00 | 7.9E-07 |
| | 栃木県（日光市） | 2.8E-04 ± 3.7E-05 | 1.1E+03 ± 6.0E+00 | 2.6E-07 |
| | 宮城県（大崎市） | 2.7E-04 ± 9.8E-06 | 5.2E+02 ± 3.0E+00 | 5.3E-07 |
| 東日本② | 東京都（新宿区） | 5.0E-04 ± 1.5E-05 | 4.9E+02 ± 2.6E+00 | 1.0E-06 |
| | 岩手県（滝沢市） | 3.3E-04 ± 1.6E-05 | 2.0E+02 ± 2.4E+00 | 1.7E-06 |
| | 埼玉県（さいたま市桜区） | 2.1E-04 ± 1.7E-05 | 1.3E+02 ± 1.4E+00 | 1.7E-06 |
| | 群馬県（前橋市） | 1.8E-04 ± 6.9E-06 | 1.2E+02 ± 1.5E+00 | 1.5E-06 |
| | 神奈川県（横須賀市） | 1.4E-04 ± 9.5E-06 | 1.1E+02 ± 8.9E-01 | 1.3E-06 |
| 東日本③ | 新潟県（柏崎市） | 1.1E-04 ± 1.7E-05 | 8.8E-01 ± 4.5E-01 | 1.2E-04 |
| | 長野県（長野市） | 7.0E-05 ± 2.6E-05 | 3.2E+02 ± 2.9E+00 | 2.2E-07 |
| | 山形県（山形市） | 6.0E-05 ± 1.7E-05 | 2.0E+02 ± 1.8E+00 | 2.9E-07 |
| | 静岡県（富士宮市） | 5.0E-05 ± 2.1E-05 | 3.6E+01 ± 1.3E+00 | 1.4E-06 |
| | 千葉県（市原市） | 4.0E-05 ± 6.0E-06 | 2.3E+01 ± 5.8E-01 | 1.7E-06 |
| 西日本 | 山梨県（北杜市） | 3.8E-05 ± 1.8E-05 | 1.1E+01 ± 8.5E-01 | 3.6E-06 |
| | 熊本県（阿蘇郡西原村） | 6.0E-05 ± 2.3E-05 | 3.8E+00 ± 1.3E+00 | 1.6E-05 |
| | 大分県（竹田市） | 5.5E-05 ± 3.1E-05 | 1.7E+00 ± 1.6E+00 | 3.1E-05 |
| | 和歌山県（新宮市） | 3.4E-05 ± 9.4E-06 | 1.9E+00 ± 4.2E-01 | 1.8E-05 |
| | 長崎県（佐世保市） | 2.8E-05 ± 1.2E-05 | 1.3E+00 ± 6.1E-01 | 2.2E-05 |
| | 徳島県（板野郡上坂町） | 2.4E-05 ± 9.8E-06 | 1.4E+00 ± 4.3E-01 | 1.7E-05 |

※ 事故 1 年後の土壤中 ^{129}I , ^{137}Cs の値から、事故前の値をそれぞれバックグラウンドとして差し引いて求めた。(事故後に ^{129}I 及び ^{137}Cs の濃度上昇が観測された試料のみ評価)

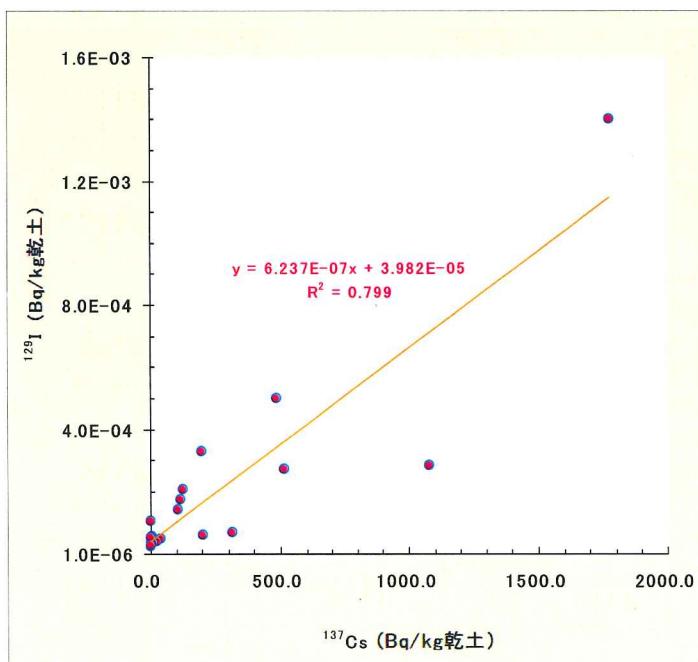


図 2-6-17
事故により土壤に付加されたと考えられる ^{129}I と ^{137}Cs の相関
(表 2-6-5 に示した $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比)

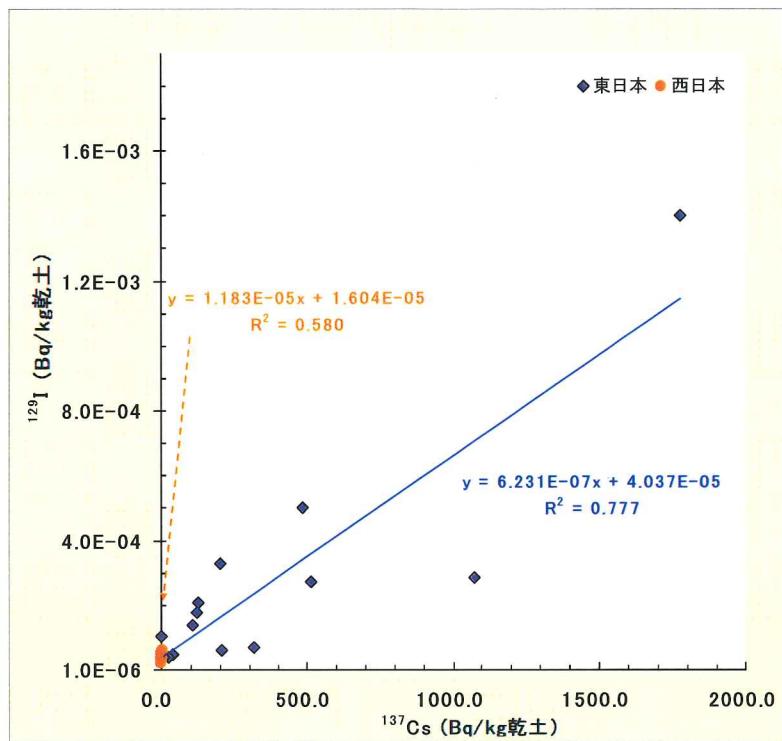


図 2-6-18 事故により土壤に付加されたと考えられる ^{129}I と ^{137}Cs の相関
(東日本と西日本)

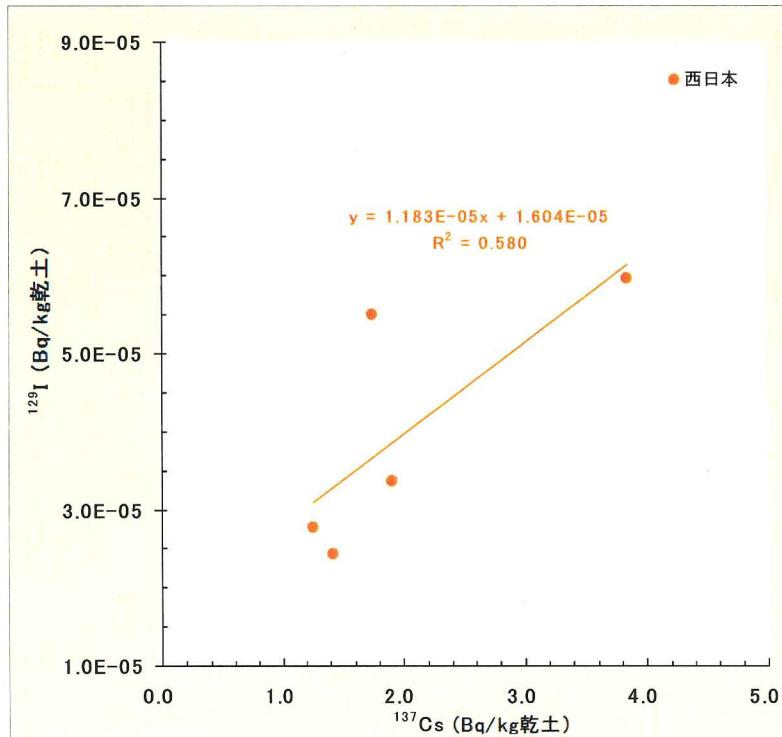


図 2-6-19 事故により土壤に付加されたと考えられる ^{129}I と ^{137}Cs の相関 (西日本)

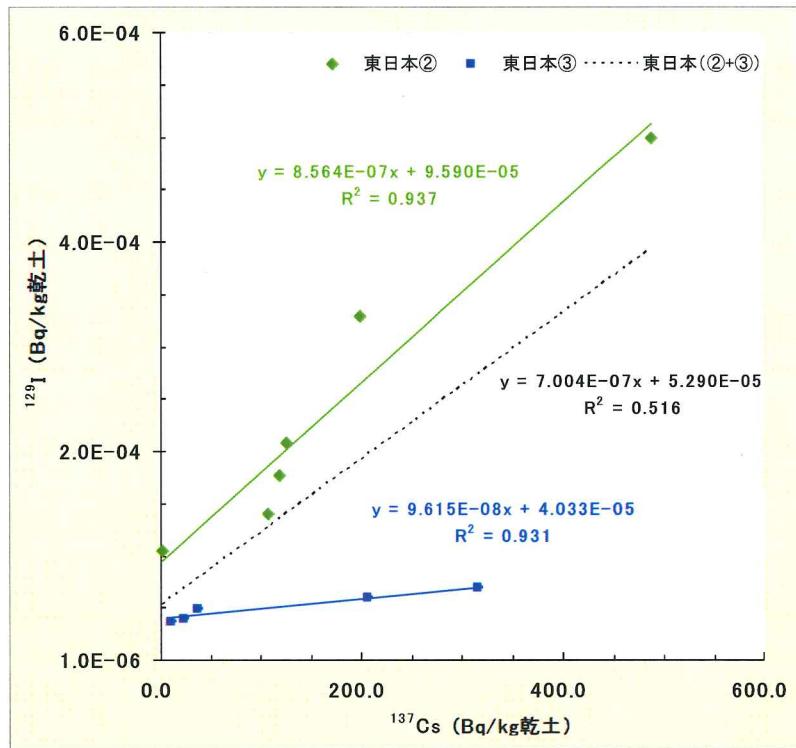


図 2-6-20 事故により土壤に付加されたと考えられる ^{129}I と ^{137}Cs の相関
(東日本②、東日本③及び東日本 (②+③))

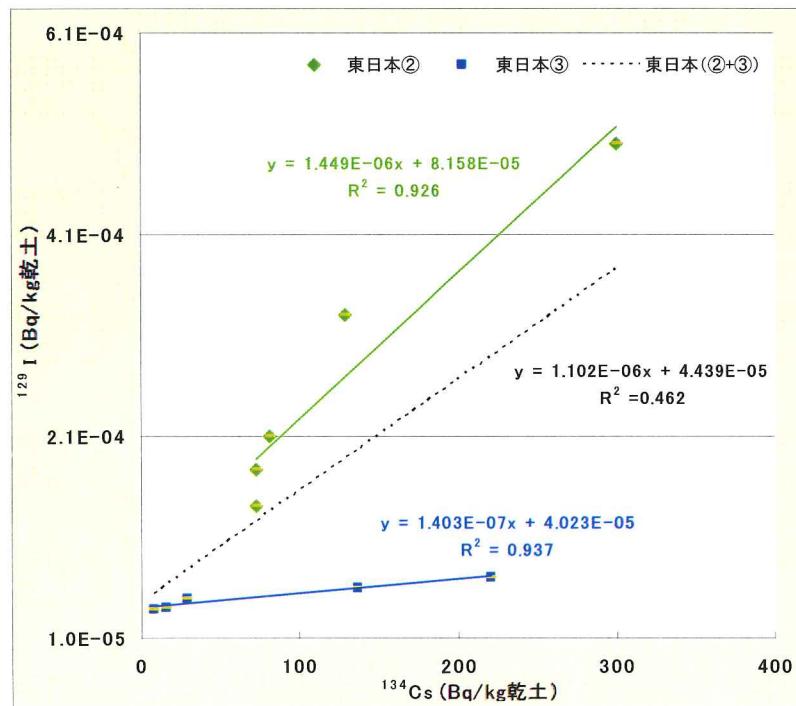


図 2-6-21 事故により土壤に付加されたと考えられる ^{129}I と ^{134}Cs の相関
(東日本②、東日本③及び東日本 (②+③))

東日本①：宮城県、福島県、栃木県

東日本②：岩手県、群馬県、埼玉県、東京都、神奈川県、新潟県

東日本③：山形県、千葉県、山梨県、長野県、静岡県

表 2-6-6 定時降下物中の ^{131}I と ^{137}Cs の集計値

| 試料採取地点 | | ^{131}I (MBq/km ²) | ^{137}Cs (MBq/km ²) | $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ |
|--------|-------------|--------------------------------------------|---------------------------------------------|----------------------------------|
| 東日本① | 福島県（福島市） | 24249.5 | 8466.6 | 2.9E+00 |
| | 栃木県（宇都宮市） | 61348.9 | 3225.5 | 1.9E+01 |
| | 宮城県 | — | — | — |
| 東日本② | 東京都（新宿区） | 84940.8 | 7014.3 | 1.2E+01 |
| | 岩手県（盛岡市） | 8216.3 | 852.1 | 9.6E+00 |
| | 埼玉県（さいたま市） | 68593.0 | 4228.0 | 1.6E+01 |
| | 群馬県（前橋市） | 21346.1 | 1493.8 | 1.4E+01 |
| | 神奈川県（茅ヶ崎市） | 20782.8 | 3672.0 | 5.7E+00 |
| | 新潟県（新潟市） | 197.2 | 16.3 | 1.2E+01 |
| 東日本③ | 長野県（長野市） | 190.0 | 不検出 | — |
| | 山形県（山形市） | 68692.0 | 8881.3 | 7.7E+00 |
| | 静岡県（御前崎市） | 360.4 | 127.5 | 2.8E+00 |
| | 千葉県（市原市） | 45786.8 | 5032.0 | 9.1E+00 |
| | 山梨県（甲府市） | 1132.8 | 114.8 | 9.9E+00 |
| 西日本 | 熊本県（宇土市） | 不検出 | 不検出 | — |
| | 大分県（大分市） | 不検出 | 不検出 | — |
| | 和歌山県（和歌山市） | 24.8 | 不検出 | — |
| | 長崎県（大村市） | 不検出 | 不検出 | — |
| | 徳島県（徳島市） | 不検出 | 不検出 | — |
| 北日本 | 北海道（札幌市） | 2.6 | 2.3 | 1.1E+00 |
| | 青森県（青森市） | 62.1 | 36.0 | 1.7E+00 |
| | 秋田県（秋田市） | 217.4 | 118.1 | 1.8E+00 |
| ※ 1 | 茨城県（ひたちなか市） | 210733.7 | 29030.6 | 7.3E+00 |
| | 石川県（金沢市） | 8.0 | 不検出 | — |
| | 京都府（京都市） | 不検出 | 不検出 | — |
| ※ 2 | 島根県（松江市） | 17.7 | 不検出 | — |

※ 1 事故後の土壤中ヨウ素 129 沈着量の上昇が観測されなかった地点

※ 2 事故後の土壤中セシウム 137 沈着量の上昇が観測されなかった地点

なお、表 2-6-6 の結果は、平成 23 年 3 月 18 日～12 月 27 日の放射能測定調査結果、原子力規制委員会ホームページ、環境放射線データベースより引用した [1]。

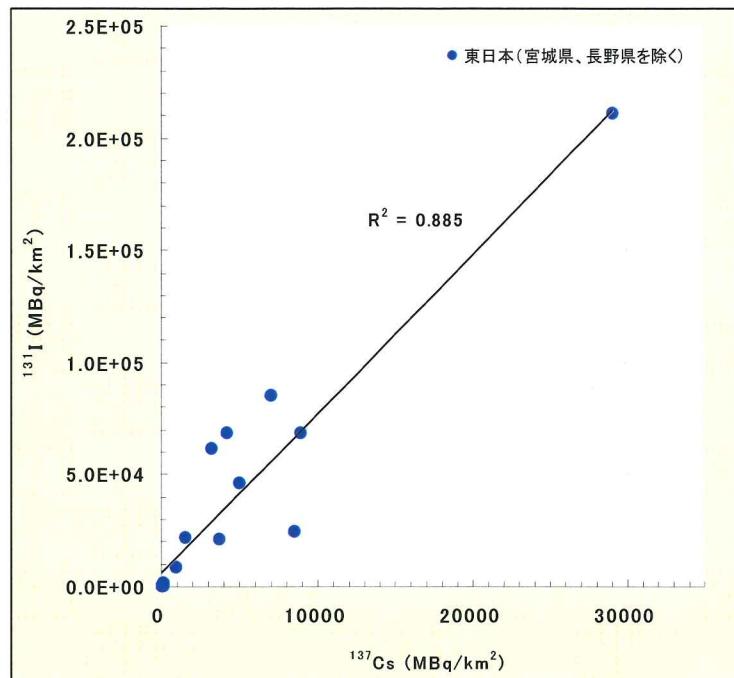


図 2-6-22 定時降下物中の ^{131}I と ^{137}Cs
(東日本 (宮城県、長野県を除く))

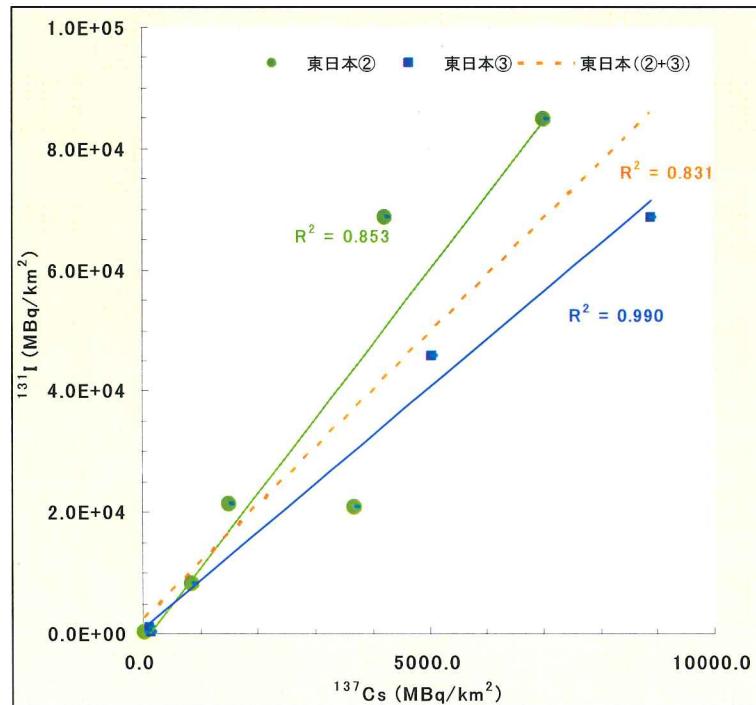


図 2-6-23 定時降下物中の ^{131}I と ^{137}Cs
(東日本②、東日本③、及び東日本 (②+③))

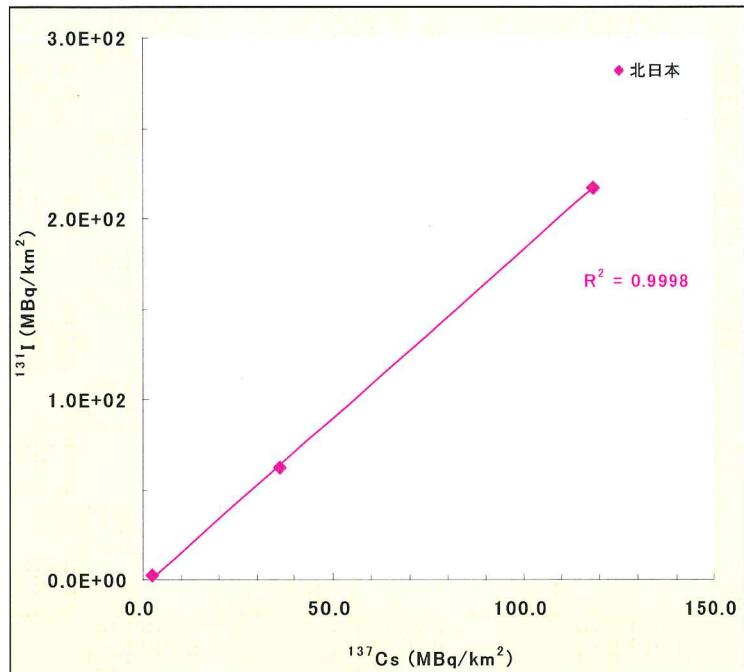


図 2-6-24 定時降下物中の ^{131}I と ^{137}Cs （北日本）

表 2-6-7 土壤（深度 0-5cm）中の ^{129}I 沈着量（放射能濃度の増分）
から推定した ^{131}I 沈着量

| 試料採取地点 | | ^{129}I (Bq/kg 乾土) | ^{131}I (Bq/kg 乾土) ^{*1} | ^{131}I (Bq/kg 乾土) ^{*2} | 補正日 |
|--------|--------------|-----------------------------|-------------------------------------------|-------------------------------------------|----------|
| 東日本 | 岩手県(滝沢市) | 3.3E-04 ± 1.6E-05 | 3.1E+00 ± 1.5E-01 | 5.7E+03 ± 2.8E+02 | H23.3.20 |
| | 山形県(山形市) | 6.0E-05 ± 1.7E-05 | 5.7E-01 ± 1.6E-01 | 1.0E+03 ± 3.0E+02 | |
| | 宮城県(大崎市) | 2.7E-04 ± 9.8E-06 | 2.6E+00 ± 9.2E-02 | 4.7E+03 ± 1.7E+02 | |
| | 福島県(福島市) | 1.4E-03 ± 3.0E-05 | 1.3E+01 ± 2.8E-01 | 3.7E+04 ± 7.9E+02 | |
| | 栃木県(日光市) | 2.8E-04 ± 3.7E-05 | 2.7E+00 ± 3.5E-01 | 7.6E+03 ± 9.9E+02 | |
| | 群馬県(前橋市) | 1.8E-04 ± 6.9E-06 | 1.7E+00 ± 6.5E-02 | 4.7E+03 ± 1.8E+02 | |
| | 埼玉県(さいたま市桜区) | 2.1E-04 ± 1.7E-05 | 2.0E+00 ± 1.6E-01 | 3.9E+03 ± 3.2E+02 | |
| | 千葉県(市原市) | 4.0E-05 ± 6.0E-06 | 3.7E-01 ± 5.6E-02 | 7.5E+02 ± 1.1E+02 | H23.3.21 |
| | 東京都(新宿区) | 5.0E-04 ± 1.5E-05 | 4.7E+00 ± 1.4E-01 | 9.4E+03 ± 2.8E+02 | |
| | 神奈川県(横須賀市) | 1.4E-04 ± 9.5E-06 | 1.3E+00 ± 8.9E-02 | 2.7E+03 ± 1.8E+02 | |
| | 新潟県(柏崎市) | 1.1E-04 ± 1.7E-05 | 9.9E-01 ± 1.6E-01 | 2.8E+03 ± 4.5E+02 | |
| | 山梨県(北杜市) | 3.8E-05 ± 1.8E-05 | 3.6E-01 ± 1.7E-01 | 1.0E+03 ± 4.7E+02 | H23.3.15 |
| | 長野県(長野市) | 7.0E-05 ± 2.6E-05 | 6.6E-01 ± 2.5E-01 | 1.9E+03 ± 7.0E+02 | H23.3.21 |
| | 静岡県(富士宮市) | 5.0E-05 ± 2.1E-05 | 4.7E-01 ± 1.9E-01 | 9.3E+02 ± 3.9E+02 | |

※1 表2-6-7の ^{131}I 推定値を求めるための $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比は、原子力規制委員会ホームページ[3]から引用した。

^{131}I 推定値は平成23年6月14日に補正した値である。

※2 ※1から求めた ^{131}I から[9], [10], [11]を参考に放射性プルームの影響があったと思われる日に補正した値である。

注) ※1, ※2 は実測値でなく推定値であり、分析試料は各都道府県の1地点のみであるため、この地域を代表する値ではない。

2.7 炭素 14 分析

(1) 概要

国内 3 地域（北海道、秋田県、千葉県）において、大気中二酸化炭素、精米、及び野菜をそれぞれ 1 試料採取した。 ^{14}C 前処理装置を用いて試料に含まれる炭素を二酸化炭素ガスとして抽出しグラファイト化して測定試料とした。加速器質量分析装置を用いて炭素原子数比を測定し、 ^{14}C 比放射能を算出した。また、炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$) を元素分析/同位体比質量分析計を用いて測定した。

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した。

(2) 結果と考察

平成 26 年度に実施した調査結果を表 2-7-1 に示す。いずれの結果も過去の調査結果と同程度であった。

表 2-7-1 炭素 14 調査結果

| 試料名 | 採取法 または品種等 | 採取場所 | 炭素 14 比放射能 (Bq/g 炭素) | $\delta^{13}\text{C}$ (‰) |
|------------------|---------------|------------------------|-------------------------|------------------------------|
| 大気中 二酸化 炭素 | オープン エア法 | 北海道立衛生研究所 (札幌市北区) | 0.231 ± 0.002 | -22.97 |
| | | 秋田県健康環境センター (秋田市) | 0.230 ± 0.002 | -19.65 |
| | | 日本分析センター本部 (千葉市稻毛区) | 0.224 ± 0.002 | -18.37 |
| | | 北海道石狩市 | 0.235 ± 0.001 | -27.95 |
| 精米 | | 秋田県秋田市 | 0.234 ± 0.001 | -28.04 |
| | | 千葉県千葉市 | 0.230 ± 0.001 | -27.70 |
| | キャベツ | 北海道恵庭市 | 0.231 ± 0.001 | -27.93 |
| 野菜 | キャベツ | 秋田県秋田市 | 0.233 ± 0.001 | -26.56 |
| | キャベツ | 千葉県いすみ市 | 0.233 ± 0.002 | -26.62 |

注) 1. 炭素 14 比放射能は、 $\delta^{13}\text{C}$ による補正をしていない値である。また、同一バッチで調製した IAEA C1 試料をバックグラウンドとして差し引いた。

2. 炭素 14 比放射能の誤差は、加速器質量分析装置を用いて測定した際の標準偏差 (1σ) である。

2.8 大気中の放射性希ガス濃度測定

(1) 調査概要

青森県における大型再処理施設の稼働に伴い大気中に放出されるクリプトン 85 (^{85}Kr : 半減期 10.76 年) 及び原子炉施設から大気中に放出されるキセノン 133 (^{133}Xe : 半減期 5.243 日) の大気中濃度について調査を実施し、これら核種の放射能水準を把握する。

1) 調査対象地区

① クリプトン 85 分析

大気中 ^{85}Kr 濃度の調査対象地区は、北海道地区（札幌市）、東北地区（秋田市）、関東・中部・近畿・中国地区（千葉市）、四国・九州地区（太宰府市）及び沖縄地区（南城市）の 5 地区（図 2-8-1 参照）である。平成 26 年度は、昨年度より調査を継続している 3 地区（札幌市、秋田市及び千葉市）において、大気の連続捕集を 1 週間ごとに 1 年間通して実施して、大気中のクリプトンを採取した。大気中 ^{85}Kr 濃度の調査地点及び希ガス捕集装置を設置した機関を表 2-8-1 に示す。

② キセノン 133 分析

大気中 ^{133}Xe 濃度の調査対象地点は、昨年度より調査を継続している千葉市（図 2-8-1 参照）である。大気の連続捕集を 1 週間ごとに 1 年間通して実施して、大気中のキセノンを採取した。大気中 ^{133}Xe 濃度の調査地点及び希ガス捕集装置を設置した機関を表 2-8-2 に示す。



図 2-8-1 放射性希ガス濃度の調査対象地区

表 2-8-1 大気中 ^{85}Kr 濃度の調査地点及び希ガス捕集装置設置機関

| 調査対象地区 | 都市 | 調査地点 | 緯度 経度 |
|---------------|------|-------------|---------------------|
| | | 捕集装置設置機関 | |
| 北海道地区 | 札幌市 | 北海道立衛生研究所 | 43.1° N 141.3° E |
| 東北地区 | 秋田市 | 秋田県健康環境センター | 39.7° N 140.1° E |
| 関東・中部・近畿・中国地区 | 千葉市 | 日本分析センター | 35.7° N 140.1° E |
| 四国・九州地区 | 太宰府市 | 福岡県保健環境研究所 | 33.5° N 130.5° E |
| 沖縄地区 | 南城市 | 沖縄県衛生環境研究所 | 26.2° N 127.8° E |

表 2-8-2 大気中 ^{133}Xe 濃度の調査地点及び希ガス捕集装置設置機関

| 調査地点 | 捕集装置設置機関 | 緯度 経度 |
|------|----------|---------------------|
| 千葉市 | 日本分析センター | 35.7° N 140.1° E |

2) 調査期間

① 大気中 ^{85}Kr 濃度の調査

札幌市、秋田市及び千葉市において、平成 26 年 2 月 24 日より平成 27 年 2 月 23 日まで調査を実施した。なお、札幌市及び秋田市については、平成 26 年 12 月 22 日より平成 27 年 1 月 5 日の年末・年始期間は大気試料の捕集操作を実施せず、調査を中断した。

② 大気中 ^{133}Xe 濃度の調査

千葉市において、平成 26 年 2 月 24 日より平成 27 年 2 月 23 日まで調査を実施した。

3) 分析方法

① 大気試料の捕集（詳細については、3.8を参照のこと。）

放射性希ガス濃度調査の調査地点において、流量 1L/分で 1 週間継続して行い、大気約 10m^3 中の希ガスを捕集した。希ガスを液体窒素温度に冷却された希ガス吸着捕集容器内の活性炭に捕集し、ヒーターで加熱することにより脱着した。脱着した希ガスをアルミ缶に封入し、分析試料とした。

② ^{85}Kr 分析

分析試料を、ガスクロマトグラフにより分離・精製し、閉鎖系のループに導入した。ガスフロー式の GM 計数管により放射線測定を行うと同時に、ガスクロマトグラフにより全クリプトンの定量を行った。大気中のクリプトン存在比 ($= 1.14\text{mL/m}^3$) を用いて大気中 ^{85}Kr 放射能濃度 (Bq/m^3) を算出した。

③ ^{133}Xe 分析

分析試料を、ガスクロマトグラフにより分離・精製し、閉鎖系のループに導入した。ガスフロー式の比例計数管により放射線測定を行った後、ガスクロマトグラフにより全キセノンの定量を行った。大気中のキセノン存在比 ($= 0.087\text{mL/m}^3$) を用いて大気中 ^{133}Xe 放射能濃度 (mBq/m^3) を算出した。

(2) 調査結果と考察

① 大気中 ^{85}Kr 濃度の調査結果と考察

平成 18 年 7 月から平成 27 年 2 月までの札幌市、秋田市、千葉市、太宰府市及び南城市の大気中 ^{85}Kr 濃度 (Bq/m^3) を図 2-8-2 に、平成 26 年度の調査地点である札幌市、秋田市及び千葉市の大気中 ^{85}Kr 濃度 (Bq/m^3) を図 2-8-3 に示す。

平成 26 年度の大気中 ^{85}Kr 濃度調査結果(平成 26 年 3 月から平成 27 年 2 月)については、 $1.37\sim 1.60\text{Bq/m}^3$ で、平均値としては 1.49Bq/m^3 であった。これらの結果は、大気中 ^{85}Kr 放射能濃度のバックグラウンドレベル ($1.30\sim 1.60\text{Bq/m}^3$) の範囲内であった。

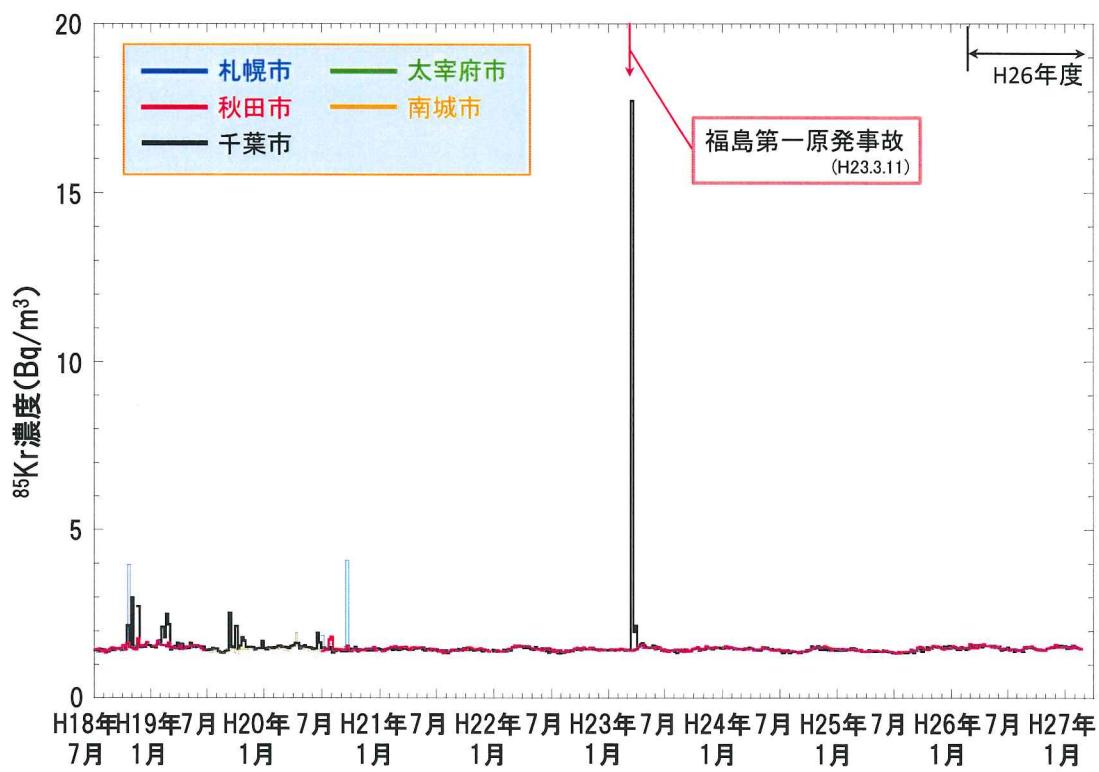


図 2-8-2 大気中 ^{85}Kr 濃度調査結果（平成 18 年度～平成 26 年度）

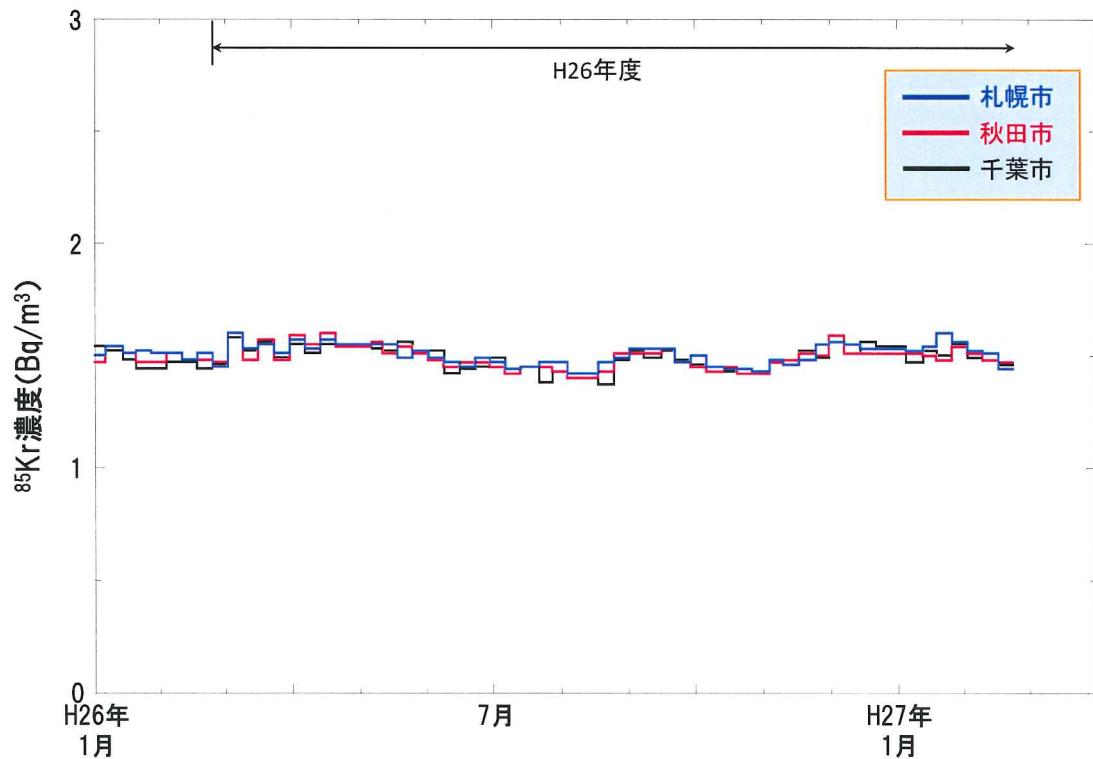


図 2-8-3 大気中 ^{85}Kr 濃度調査結果（平成 26 年度）

② 大気中 ^{133}Xe 濃度の調査結果と考察

平成 20 年 11 月から平成 27 年 2 月までの千葉市における大気中 ^{133}Xe 濃度 (mBq/m³) を図 2-8-4 に示す。

平成 26 年度の大気中 ^{133}Xe 濃度調査結果(平成 26 年 3 月から平成 27 年 2 月)については、不検出から $11\text{mBq}/\text{m}^3$ であった。これらの結果は、 ^{133}Xe 放射能濃度のバックグラウンドレベル ($1 \sim 100 \text{ mBq}/\text{m}^3$) (*1:Auer (2004), *2: Saey (2007)) の範囲内であったと考えられる。

* 1:M. Auer, A. Axelsson, X. Blanchard, T. W. Bowyer, G. Brachet, I. Bulowski, Y. Dubasov, K. Elmgren, J. P. Fontaine, W. Harms, J. C. Hayes, T. R. Heimbigner, J. I. McIntyre, M. E. Panisko, Y. Popov, A. Ringbom, H. Sartorius, S. Schmid, J. Schulze, C. Schlosser, T. Taffary, W. Weiss, B. Wernsperger, 2004; *Intercomparison Experiments of Systems for the Measurement of Xenon Radionuclides in the Atmosphere*; Applied Radiation and Isotopes Volume 60, pp. 863-877

* 2:Paul R. J. Saey, 2007; *Ultra-Low-Level Measurements of Argon, Krypton and Radioxenon for Treaty Verification Purposes*; ESARDA BULLETIN, No. 36, pp. 42–56

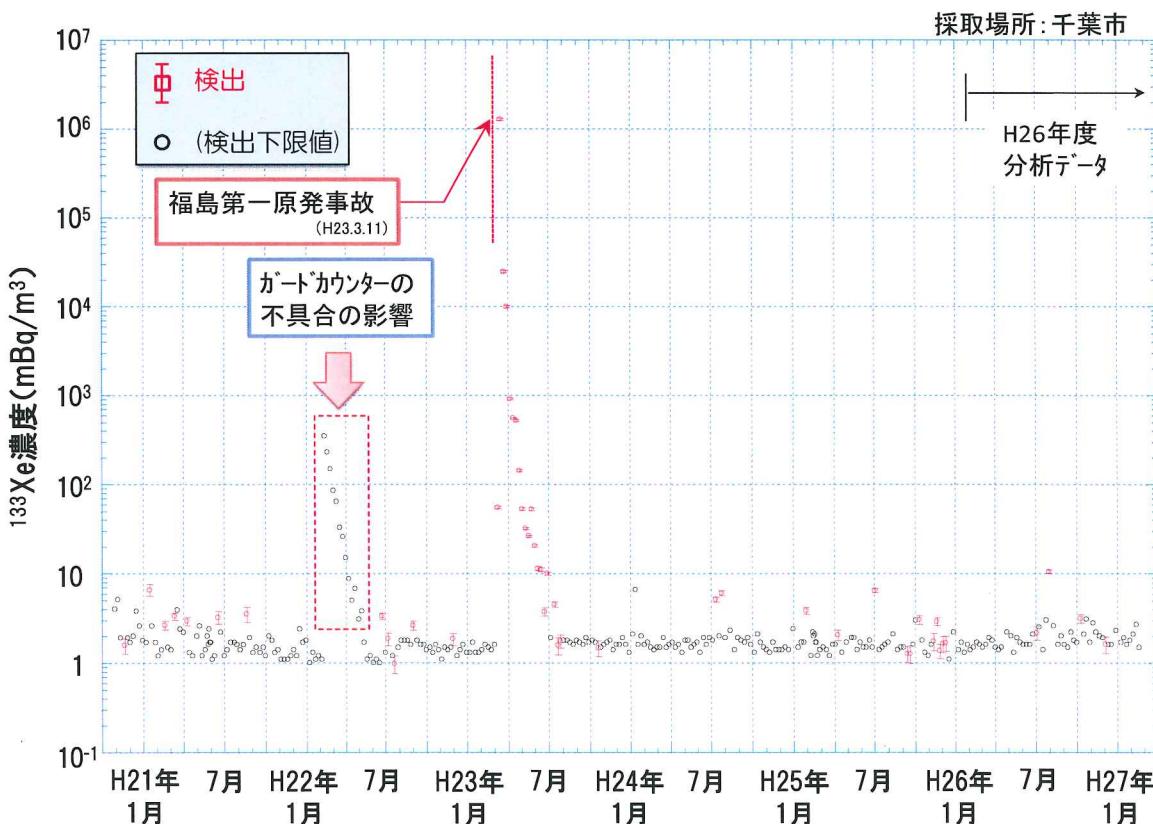


図 2-8-4 大気中 ^{133}Xe 濃度調査結果

(3) 国内調査結果

① 目的

環境放射能水準調査（以下、「水準調査」という。）において実施している大気中の放射性希ガス濃度測定の充実化及び高度化に資することを目的として、国内の CTBT（Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty）観測施設（希ガス観測所）を有する（独）日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 高崎量子応用研究所を訪問した。CTBT 観測施設では、地下核実験の検知を目的とした自動放射性キセノン測定装置が稼働しており、同装置は複数の放射性キセノン同位体を同時、かつ、より低レベル ($1\text{mBq}/\text{m}^3$ 以下) の測定を可能とする性能を有している。

一方、水準調査で実施している放射性キセノンの調査においては、時折、数 mBq/m^3 のキセノン 133 を検出する事例が確認されている。国内の主な放出源としては、原子力施設、放射性医薬品製造・加工施設、病院、原子力艦などが考えられるが、放出源の特定に至っていないのが現状である。原因特定に至らない理由は以下のとおりである。

- ・時間的分解能が悪い（捕集期間内のどの時点で高濃度放射性キセノンを捕集したか不明）
- ・放射性キセノン同位体比が不明（放出源の推定に同位体比が有効）
- ・放出源情報が不明
- ・流跡線解析では不十分（大気拡散シミュレーションによる放出源からの拡散予測が必要）

CTBT 高崎観測所で稼働している自動放射性キセノン測定装置は上記を幾つかクリアできることから、同観測所における放射性キセノン測定に関して調査を行った。

② 調査員

磯貝啓介 (公財) 日本分析センター 放射能分析事業部

新田済 (公財) 日本分析センター 放射能分析事業部 γ 線解析グループ

日比野克則 (公財) 日本分析センター むつ分析科学研究所 大気放射能グループ

③ 調査内容

1) 訪問先：(独) 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 高崎量子応用研究所

2) 訪問期間：平成 26 年 5 月 26 日（月）

3) 対応者：核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 小田技術主席

核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 富田技術副主幹（高崎駐在）

4) 概要

(独) 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 高崎量子応用研究所にある CTBT 高崎観測所 (RN38 : 図2-8-5参照) では、全自動放射性粒子モニタリング装置

CTBT高崎観測所 (RN38 : 図2-8-5参照) では、全自動放射性粒子モニタリング装置 (RASA : Radionuclide Aerosol Sampler/Analyzer : 図2-8-6参照) を用いて大気浮遊じんの γ 線放出核種を、また自動放射性キセノン測定装置 (SAUNA-II : Swedish Automatic Unit for Noble gas Analysis : 図2-8-7参照) を用いて放射性キセノン同位体 (^{131m}Xe (11.84日)、 ^{133m}Xe (2.19日)、 ^{133}Xe (5.243日) 及び ^{135}Xe (9.14時間) ; 括弧内の数値は半減期) を観測しており、観測例としてカナダの医療用RI製造原子炉停止時におけるバックグラウンド濃度の低下 (図2-8-8参照) や北朝鮮地下核実験 (平成25年2月) の2ヶ月後に地下核実験由来の放射性キセノンを観測した例 (^{131m}Xe と ^{133}Xe の放射能比含む : 図2-8-9参照) がある。

水準調査で使用している放射性キセノン測定装置とCTBT観測所で稼働している自動放射性キセノン測定装置 (高崎観測所に設置されているSAUNA-II) について、その分析性能を比較した一覧を表2-8-3に示す。また、参考としてSAUNA-II以外の自動放射性キセノン測定装置として、SPALAX (Système de Prélevement d'Air Automatique en Ligne avec l'Analyse radioXénons atmosphériques) の性能についても併せて示す。

表 2-8-3 分析性能の比較

| | 水準調査 | CTBT | |
|-------------------------------------|-------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| | | SAUNA-II | SPALAX |
| 流速 (m ³ /h) | ~0.12 | 1.3 | ~15 |
| 大気導入量 (m ³) | ~10 | 16 | ~70 |
| Xe 量 (mL) | 0.4 | 1 | ~7.5 |
| 時間的分解能 | 1w | 12h (24h) | 12h or 24h |
| 検出器 | Gas counter/TCD | β - γ coincidence/TCD | HP Ge/TCD |
| 対象核種 (MDC (mBq/m ³)) | Total Xe (1~2) | ^{131m}Xe (~0.15) ^{133}Xe (~0.20) ^{133m}Xe (~0.15) ^{135}Xe (~0.75) | ^{131m}Xe (~0.5) ^{133}Xe (~0.2) ^{133m}Xe (~1.5) ^{135}Xe (~0.7) |
| 採取地点の自由度 | 捕集装置可搬性有り | 据付地点 可搬型システム有り | 据付地点のみ |

表2-8-3より、性能の大きな違いとしては、時間的分解能、最低検出可能放射能濃度 (MDC) 及び対象核種の違いが挙げられる。CTBTの自動放射性キセノン測定装置では、大気を短時間に大量に導入できるので、時間的分解能が短く、かつ、最低

検出可能放射能濃度（MDC）を下げることが可能となる。また、検出器としてNaI検出器とプラスチックシンチレータの組み合わせによる β - γ コインシデンス法（SPALAXではHP Ge）により、放射性キセノン同位体を同時に測定することができる。一方、水準調査の放射性キセノン分析装置では、ガスカウンターにより放射線測定を行うため、放射性キセノン同位体を分離して同時に測定することができない。

④ まとめ

水準調査で使用している放射性キセノン測定装置では、放射性キセノン同位体を同時測定することが難しく、時折、数 mBq/m^3 のキセノン 133 を検出する事例が確認されるが、原因の特定は至っていない状況である。これは、大気捕集を 1 週間連続で行っているが、どの時点で高濃度の放射性キセノンが採取地点を通過したか不明であること、及び放出源を推定するのに有効な放射性キセノン同位体の放射能比を導き出すことができないことが原因である。

また、国内におけるバックグラウンドレベルでの放射性キセノンの挙動が不明なことも挙げられ、これは、主な放出源である原子力施設、放射性医薬品製造・加工施設、病院、原子力艦における放射性キセノンの放出情報が不明であることが大きな要因と考えられる。

以上のことから、水準調査で実施している放射性キセノン調査をより充実化及び高度化するためには、大気捕集の時間的分解能の短縮及び放射性キセノン同位体の放射能比による放出源の推定を行っていくことが必要であると考えられる。



図 2-8-5 CTBT 高崎観測所 (RN38)



図2-8-6 全自動放射性粒子モニタリング装置（RASA）
(左：RASA内部、右：測定済み試料)

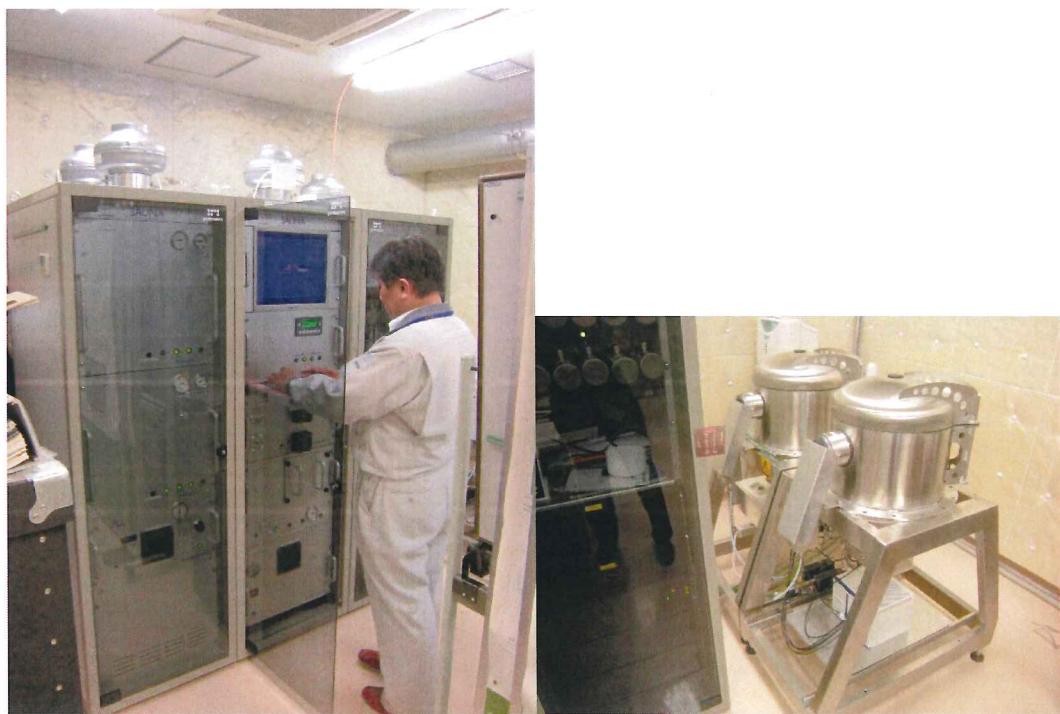


図2-8-7 自動放射性キセノン測定装置（SAUNA-II）
(左：ガス前処理-制御部、右：放射線計測部)

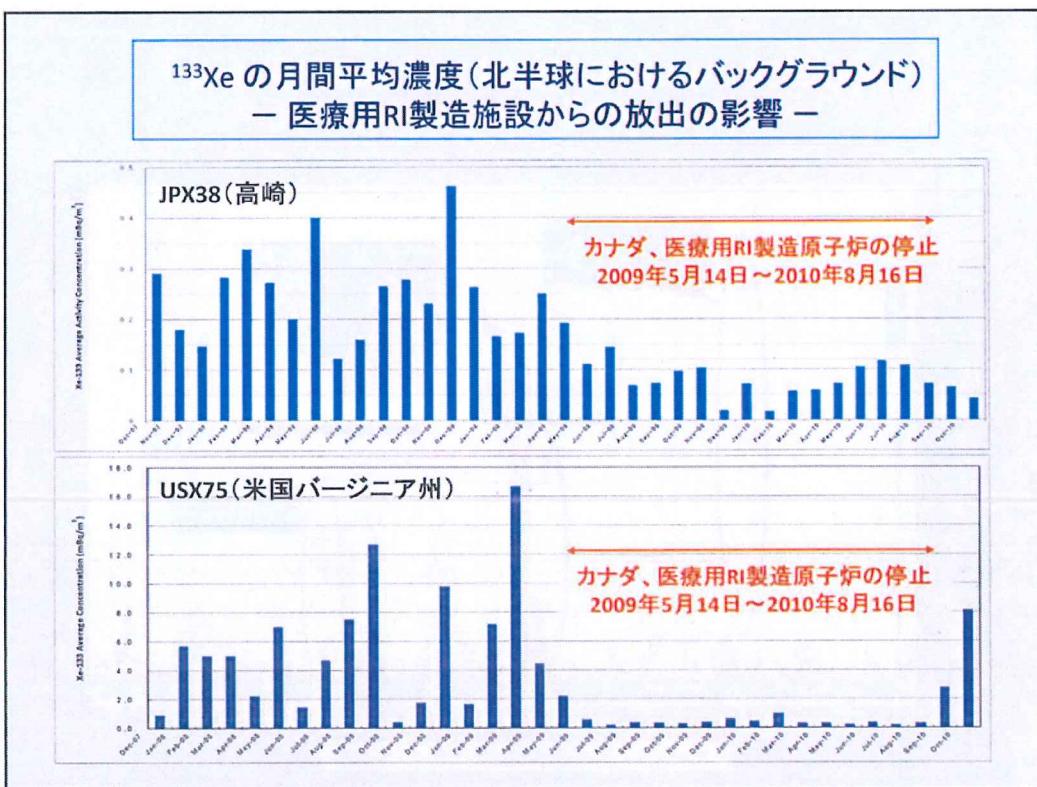


図2-8-8 カナダの医療用RI製造原子炉停止時におけるバックグラウンド濃度低下の観測例[†]

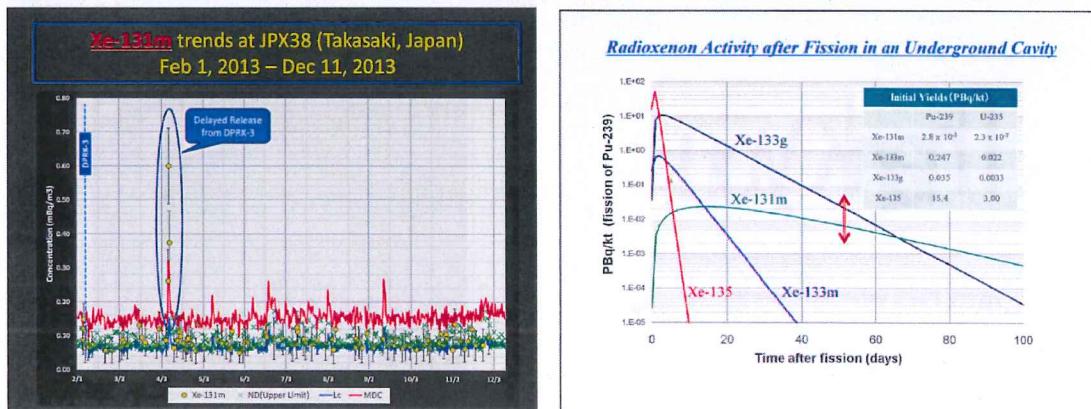


図2-8-9 北朝鮮地下核実験（平成25年2月）の2ヶ月後に放射性キセノンを観測した例[†]

[†] (独)日本原子力研究開発機構核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 小田氏より提供された資料である。