

福島第一原子力発電所 多核種除去設備等処理水の海洋放出に向けた 海域モニタリングにおける魚のトリチウム分析値の検証について

< 参 考 資 料 >
2022年12月1日
東京電力ホールディングス株式会社
福島第一廃炉推進カンパニー

- 当社は、多核種除去設備等処理水（以下、ALPS処理水）の処分に関する政府方針を踏まえ、ALPS処理水の海洋放出に伴う風評影響を最大限抑制するため、当社が行っている海域モニタリングを拡充・強化することなど、当社の対応について2021年4月16日に公表しました。
- ALPS処理水放出の実施主体として処理水の拡散の状況を海洋拡散シミュレーションにより評価し、現状よりもトリチウム濃度が高くなると評価された発電所近傍を中心に福島県沖までの海域について、拡散状況を確認するためトリチウム測定を強化する海域モニタリングを検討し、2021年8月25日に公表しました。
- 当社は、強化された政府の総合モニタリング計画を踏まえ、2021年8月25日の検討結果（測定点・測定対象・測定頻度を増加）に検出下限値を設定した海域モニタリング計画を策定し、トリチウムを中心とした拡散状況や海洋生物の状況を継続して確認するため、本年4月から運用を開始しています。

<2022年5月26日までにお知らせ済み>

経緯

- 魚に含まれるトリチウムについては、政府の総合モニタリング計画を踏まえ、従来の毎月1地点から11地点に増加し、増加した10地点分について、当社および当社委託先の株式会社化研（以下、化研）が、公定法（文部科学省 放射能測定法シリーズ）をベースに、本年5月以降、分析に着手しました。（従来の1地点は一般財団法人九州環境管理協会（以下、九環協）が分析を継続）
- 当社および化研においては、魚に含まれるトリチウム分析は初めての機会であることから、九環協の分析結果と比較し、当社と化研の分析結果の妥当性を確認していたところ、当社分析の組織自由水型トリチウム（以下、FWT）、また、当社および化研分析の有機結合型トリチウム（以下、OBT）において、周辺海水のトリチウム濃度より高い濃度で検出されていることを8月に確認しました。なお、九環協の分析結果は、従来と同程度の分析値（OBTは検出下限値未満）でした。
- このため、3者とは別の専門家に協力いただき、当社、化研および九環協の分析結果が異なる傾向となった原因について、調査(3者の分析方法の相違点等)をこれまで行ってきました。

調査結果

- 九環協と化研の分析方法について直接現地で確認し、当社も含めた3者の分析方法を比較のうえ、分析値に影響する要因を抽出し、加えて3者とは別の専門家の意見を伺いながら検証を行いました。その結果、以下を確認しました。
 - 不純物の除去方法の相違
 - 不純物（有機物）の除去方法を比較した結果、当社と化研に比べて、九環協は、除去操作の時間が長く、試薬の添加量が多いことを確認しました。トリチウムの分析では、不純物の除去が不十分な場合、正しく測定できません。
 - 発光液の添加後の静置時間の相違（化学反応の影響）
 - 発光液（液体シンチレータ）を添加した後の試料の静置時間について比較した結果、当社は、他の分析機関と比べて、静置時間が短いことを確認しました。トリチウムの分析では、不純物の除去等を行った後、発光液を添加し、化学反応が収束するまでの静置時間が不十分な場合、正しく測定できません。
- これを踏まえ、当社と化研で、九環協の方法と同様の不純物除去を行い、トリチウムの測定・比較を改めて行いました。
 - 化研：九環協と同様に不純物が除去でき、OBTは検出下限値未満
 - 当社：不純物を十分に除去できず、OBTを実際の値より過大に評価
- 化研は、九環協の分析方法が科学的根拠に照らして合理的であることを確認のうえ、その分析方法をベースとした新たな分析手順書を整備し、10月24日から分析を再開し、OBTが検出下限値未満であることを確認しています。九環協の分析値、および化研の分析方法変更後の分析値において、OBTが検出下限値未満になったことを踏まえると、実際のOBTは検出下限値未満であり、一方、当社の分析方法では現時点において、OBTが実際の値より過大に測定されているものと判断しました。

今後の対応

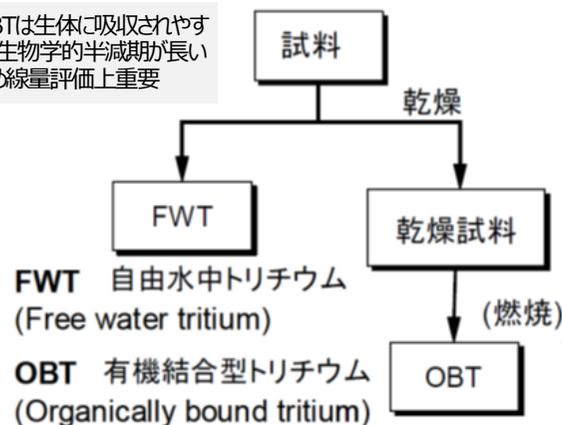
- 化研では、魚のトリチウム分析を引き続き実施していただきます。
- 今回の魚のトリチウム分析では、非常に微少な量のトリチウムを測定するため、他試料からの汚染混入には十分注意していますが、当社は管理対象区域内で分析を行っていることから、不純物の除去方法の精査を続けるとともに、トリチウムが環境中から混入している可能性がないかも含め、引き続き、調査を継続してまいります。

1. 経緯

- 本年3月24日公表のALPS処理水処分に係わる海域モニタリング計画ではモニタリング地点と対象の追加により、魚に含まれるトリチウムの分析を、従来の月1地点から従来の地点を含めた計11地点に増加しました。（従前の1地点は九環協が分析を継続）
- モニタリング計画では、各実施機関の結果を比較検討することにより妥当性を確認することにしており、当社および当社委託先の株式会社化研（以下、化研）では、初めて魚のトリチウムを分析することから、公定法（放射能測定法シリーズ）をベースに分析し、分析結果を十分に実績のある九環協の結果との比較を行いました。
- 本年5月から11地点の魚の分析に着手した結果、当社分析のFWT※下図、また、当社および化研分析のOBT※下図において、周辺海水のトリチウム濃度より高い濃度で検出されていることを確認しました。当社と化研の分析結果は、従来と同程度の分析値であった九環協の分析結果と異なる傾向になりました。
- このため、九環協と当社および化研の当該分析結果を確認した8月以降、当社と化研の分析作業を一旦中断し、3者とは別の専門家に協力いただき、分析方法の相違点をはじめとする原因調査を行いました。

有機物中のトリチウムの測定

OBTは生体に吸収されやすく、生物学的半減期が長い
ため線量評価上重要



前処理機器

- 魚のトリチウム測定は、FWTと、OBTの2種類を測ります。
- FWTは、魚の体内の水分のトリチウム濃度であり、魚の水分を蒸発させて回収し、測定します。
- OBTは、魚の組織（筋肉等のタンパク質）に含まれる水素原子の一部として含まれるトリチウムであり、組織を燃焼して発生した水を回収し、測定します。燃焼の際に測定に影響をおよぼす不純物が試料へ移行するおそれがあるので回収水の不純物の除去が必要です。
- 魚のトリチウム測定は、対応できる分析機関が限られており難易度が高いです。

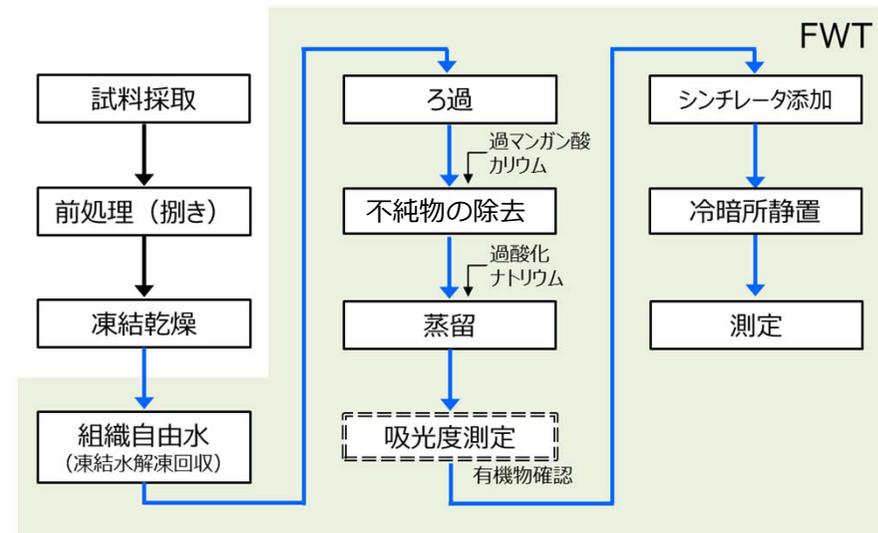
※ トリチウム水タスクフォース報告書（平成28年6月 トリチウム水タスクフォース）参考資料3 トリチウム(^3H)の環境動態（(公財)環境科学技術研究所 柿内秀樹）より引用

2. 魚のトリチウム分析方法

- 魚のトリチウム測定は、FWTと、OBTの2種類を測定します。

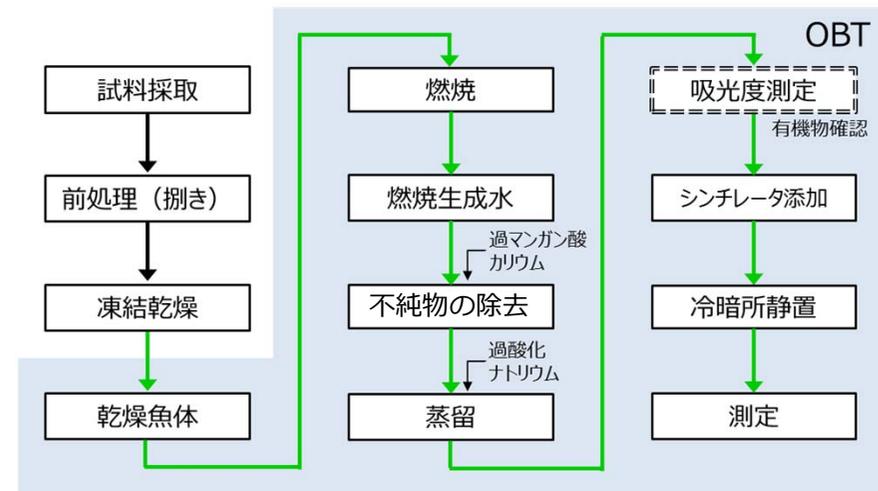
<FWTの分析方法>

- 分析対象とする部位を分け取った後、冷凍庫で凍結し、凍結した試料から真空乾燥を行って水分（組織自由水）を取り出し、分析用試料とします。
- その後、組織自由水（分析用試料）に残留する有機物を酸化剤を加えて分解し、蒸留を行い、液体シンチレーションカウンタで測定を行います。



<OBTの分析方法>

- 真空乾燥後に残った乾燥物を燃焼し、発生した水分（燃焼生成水）を回収して、分析用試料とします。
- その後、燃焼生成水（分析用試料）に残留する有機物を酸化剤を加えて分解（不純物を除去）し、蒸留を行い、液体シンチレーションカウンタで測定を行います。



3. 魚のトリチウム分析に影響する要因

- 魚のトリチウムの分析では、海水のトリチウム分析に比べて分析値に影響する因子が多く含まれています。
- 要因分析に加えて、九環協と化研の分析方法について直接現地で確認し、当社も含めた3者の方法と比較して、要因の絞り込みと調査を3者とは別の専門家の意見を伺いながら行いました。
- その結果、分析値に影響する要因として、「測定装置の影響」「不純物（有機物）の影響」「化学反応の影響」を抽出しました。

① 測定装置の影響について

- 使用している測定装置は各所で性能や設置環境が異なるため、装置の違いが分析結果に影響をおよぼしているおそれがあると考えました。

② 不純物（有機物）の影響について

- 魚に含まれるトリチウムは、海水濃度レベルであり、わずかでも不純物が含まれていると、正しく測定できないところ、前処理工程の違いにより、不純物の除去が十分でないおそれがあると考えました。（前処理操作の工程検討）

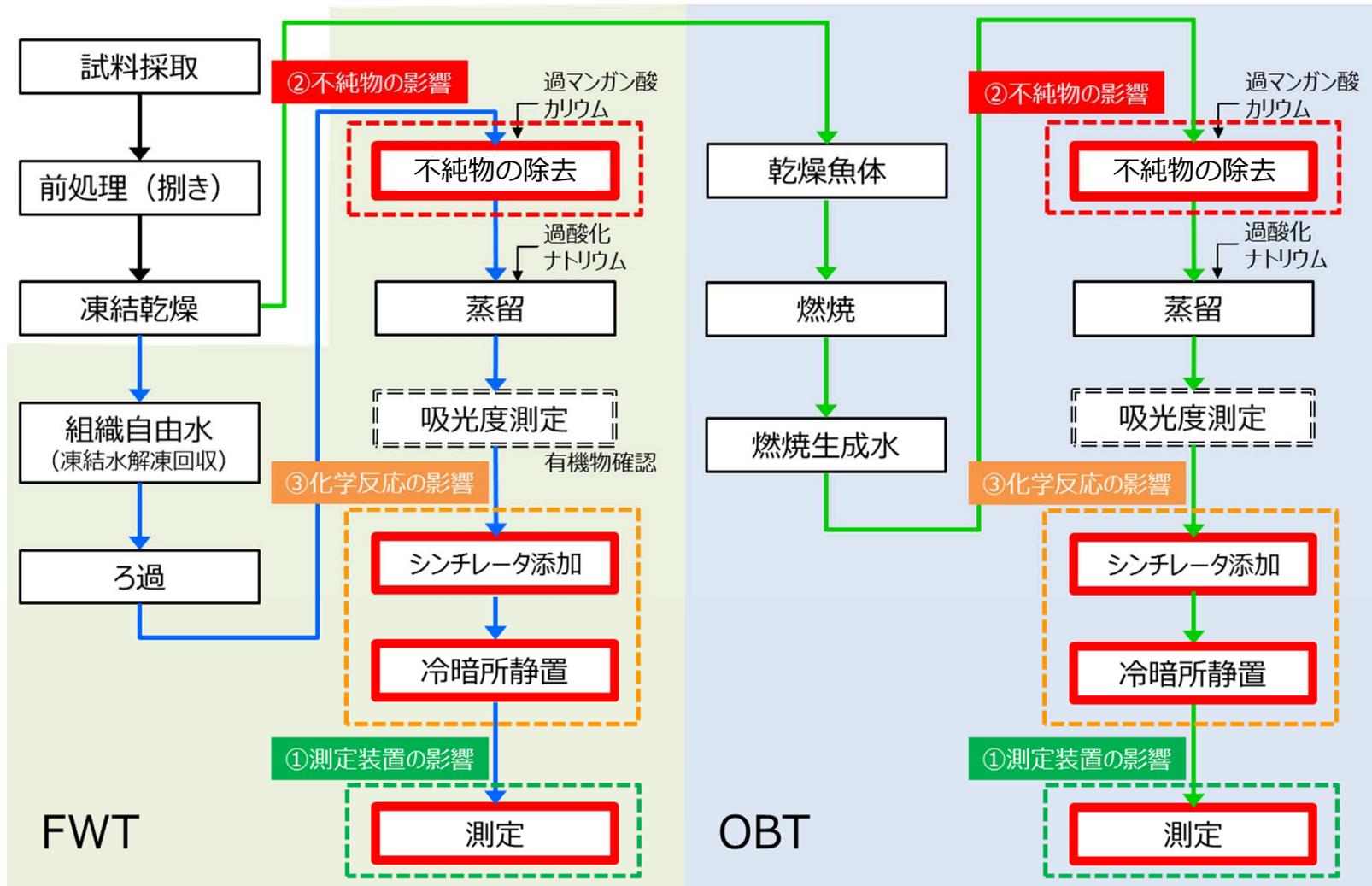
③ 化学反応の影響について

- トリチウムは直接測定することが出来ないため、放射線を光に変換し、光量を測定しているところ、静置方法の違いなどにより、化学反応などによる発光が残留しているおそれがあると考えました。（測定段階の工程検討）

3. 魚のトリチウム分析に影響する要因

■ 今回要因と考えた点

- ① 測定装置の影響
- ② 不純物（有機物）の影響
- ③ 化学反応の影響



4. 検証方法

- 今回要因と考えた「測定装置の影響」「不純物（有機物）の影響」「化学反応の影響」について、3者とは別の専門家の意見を伺いながら以下の検証を行いました。
- 当社とともに化研でも同様の検証を行っています。

①測定装置の影響について

- 当社（1F構内分析施設）、構外施設、化研に設置している同一機種（LSC-LB-8）を用いて、同日・同時刻に同一条件で、試料を入れない空の測定容器のみでの測定を行い、測定装置の違いによる影響の有無を確認しました。

②不純物（有機物）の影響について

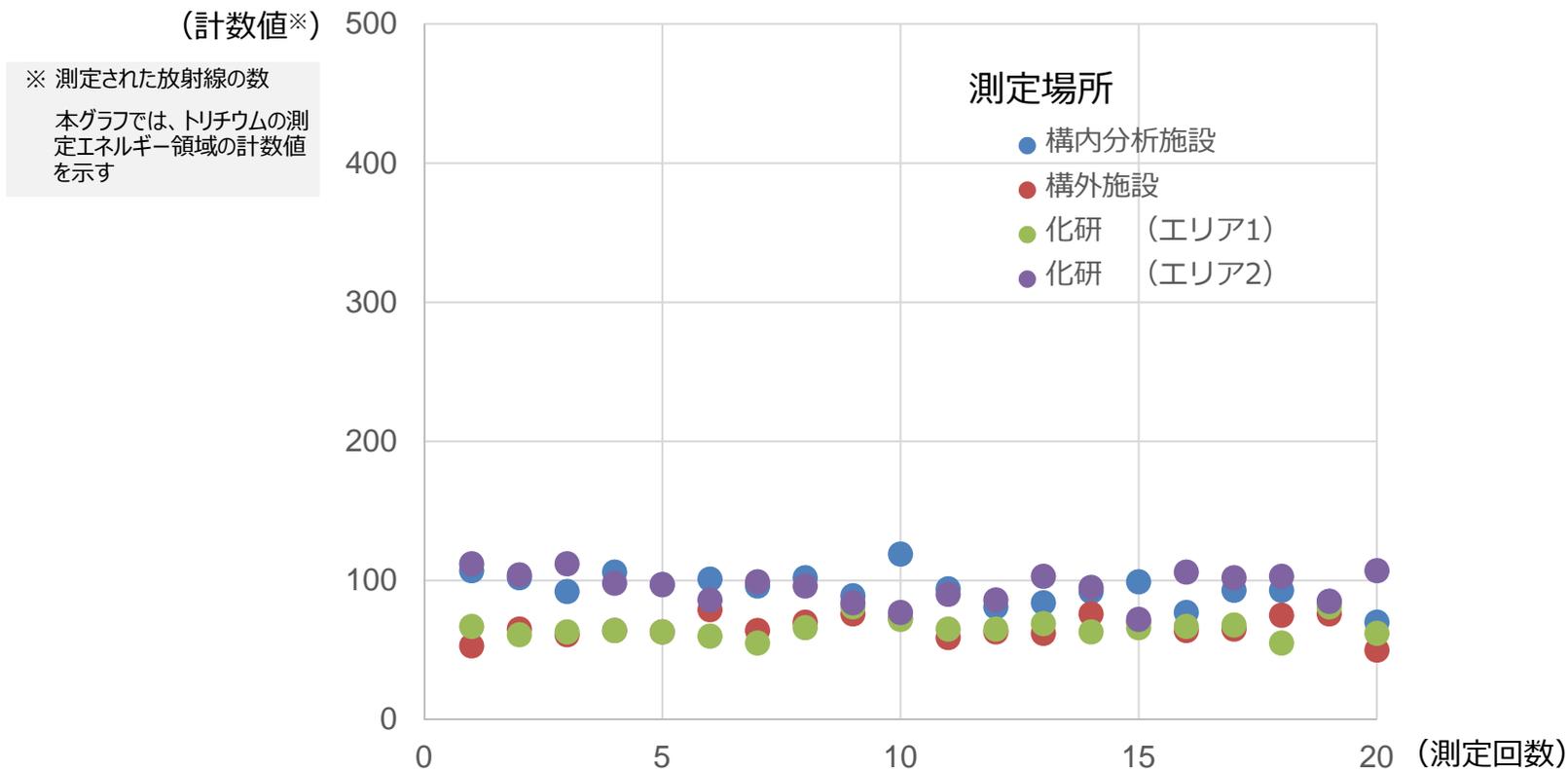
- 当社（1F構内分析施設）と化研において、九環協の前処理操作（不純物の除去）を用いて分析を行いました。各々の分析施設の前処理操作での結果と比較を行い、不純物（有機物）の影響の有無を確認しました。

③化学反応の影響について

- 当社（1F構内分析施設）と化研において、OBTが検出された測定済みの試料に対して、経時変化を確認する目的で時間を追って測定を行い、化学反応の影響の有無を確認しました。

5. 測定装置に関する検証結果

- 当社（1F構内分析施設）、構外施設、化研に設置している同一機種（LSC-LB-8）を用いて、同日・同時刻に同一条件で、試料を入れない空の測定容器のみで測定を行いました。
- その結果、繰り返し測定を行った各所4施設でのデータについて、有意な差が認められませんでした。
- 従って、測定装置の違いによる影響はないと評価しました。



6. 不純物（有機物）に関する調査結果

- 不純物（有機物）の除去は公定法（放射能測定法シリーズ）をベースに行っています。公定法では、除去をするために添加する必要がある試薬の種類と量が記載されていますが、「試料中の有機物含量に応じて添加量を適宜調整する」とことと注意書きされており、測定対象魚種等の特徴にあわせて、測定者が適切な添加量を見極める必要があります。
- 不純物が除去できているかどうか次ページのとおり確認を行ったところ、九環協の手法では当社・化研の手法よりも不純物がより適切に除去できていることがわかりました。手法を比較した結果、当社と化研に比べて、九環協は、除去操作の時間が長いことや試薬の添加量が多いことを確認し、当社・化研の手法では不純物を除去するための化学反応が十分でなかったことがわかりました。

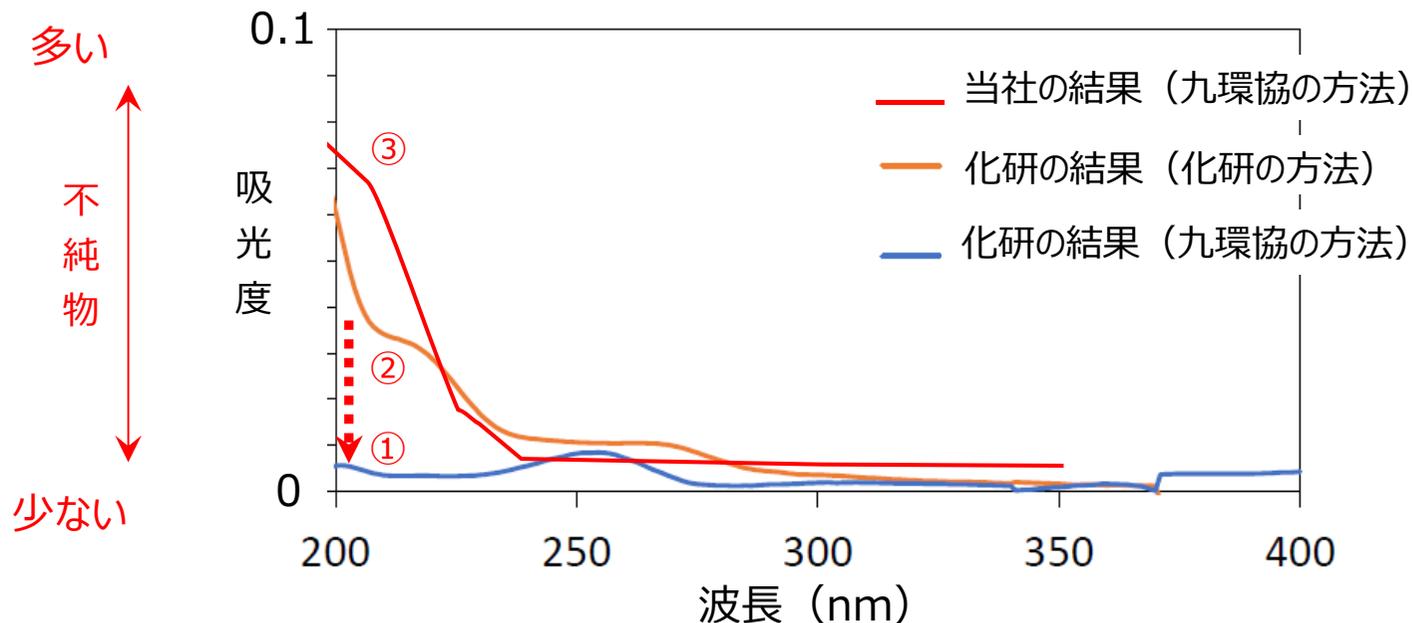
九環協・化研・当社（1F構内分析施設）・公定法における分析方法の比較

分析機関	九環協	化研	当社 (1F構内分析施設)	公定法※
不純物の除去方法				
試薬	過マンガン酸カリウム (約1g添加)	過マンガン酸カリウム (約1g添加)	過マンガン酸カリウム (約0.3g添加)	過マンガン酸カリウム (分析試料約70mlに対して 約0.5g添加)
温度	100℃	100℃	60℃	100℃
時間	7時間/日を4日繰り返す	8時間	6時間以上	4時間以上

※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）文部科学省

6. 不純物（有機物）に関する調査結果

- 不純物除去方法の違いによる影響を確認するため、当社と化研で、九環協の方法による不純物除去を行い、不純物の残留の目安となる吸光度（数値が低いほど不純物が少ない）を測定・比較しました。
- 化研では、九環協の方法で行った結果、従来の方法と比べて200nm付近の吸光度が大幅に低下しており、不純物の除去（残留物の減少）が促進されていることを確認しました。（下図②→①）
- この方法で試験的に魚試料を分析した結果、化研では不純物による化学発光影響の排除ができ、OBTは検出下限値未満となり、九環協の不純物分解の方法は、残留不純物の化学発光を抑えるために有効な方法であることが確認できました。
- 一方、当社では、九州環境管理協会の方法で行った場合も吸光度を十分に低減することができず、期待していた改善効果を得ることができませんでした。（下図③）



7. 化学反応に関する調査結果

- 不純物の分解と蒸留を行った後、発光液（液体シンチレータ）を添加し測定を行います。
- 公定法（放射能測定法シリーズ）では、液体シンチレータ添加後、一昼夜から1週間程度放置してから測定を行うことが推奨されています。
- 添加後の試料の静置時間について比較した結果、九環協と化研では1週間、当社では海水等の分析経験を踏まえ3日以上と設定していました。
- 当社は、他の分析機関と比べて、静置時間が短いことから、化学反応を排除するための静置時間が十分ではないおそれがあることを確認しました。

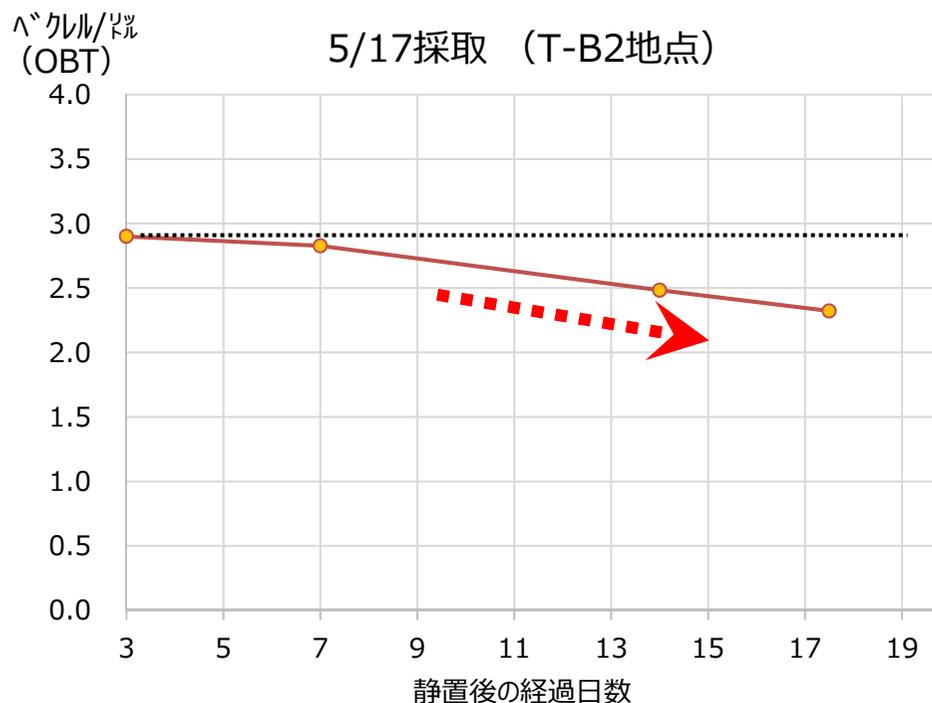
九環協・化研・当社（1F構内分析施設）・公定法における分析方法の比較

分析機関	九環協	化研	当社 (1F構内分析施設)	公定法※
測定装置	LSC-LB-5, LB-7 (日本レイテック製)	LSC-LB-7, LB-8 (日本レイテック製)	LSC-LB-7, LB-8 (日本レイテック製)	液体シンチレーションカウンタ
液体シンチレータ	ウルチマゴールドuLLT	ウルチマゴールドLLT	ウルチマゴールドLLT	乳化シンチレータ (シンチゾールEX-H, ウルチマゴールドLLT 等の市販品)
液体シンチレータ添加後の 試料の静置時間	1週間	1週間	3日以上	試料調整後 一昼夜から1週間程度
静置環境	20℃ (空調温度) 冷暗所	15℃ 測定装置内 (冷暗所)	15℃ 測定装置内 (冷暗所)	測定器内または16℃程度 に設定したインキュベータ (恒温器) 内に放置

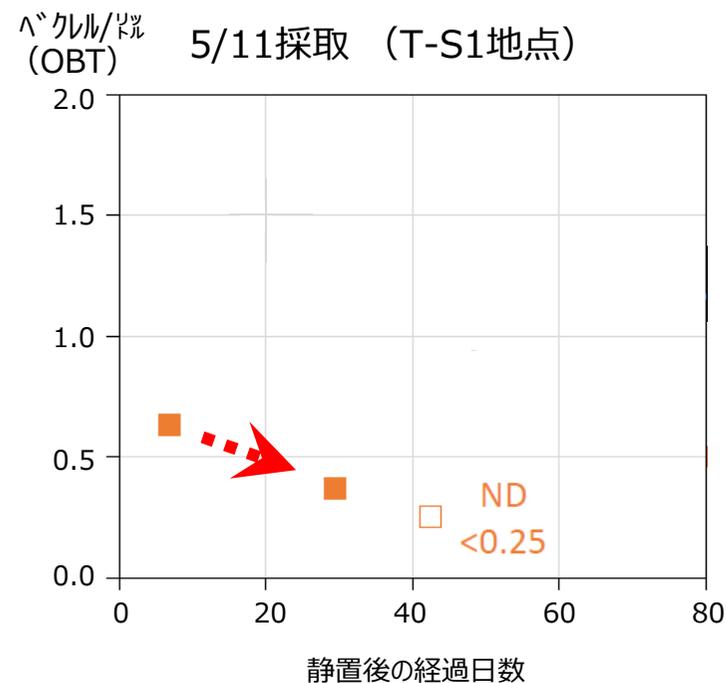
※放射能測定法シリーズ9 トリチウム分析法（平成14年改訂）文部科学省

7. 化学反応に関する調査結果

- 化研と当社でOBTが検出された測定済みの試料を用いて、経時的に測定を実施したところ、化学反応の収束による分析値の低下が確認されました。
- このことから、液体シンチレータ添加に伴う化学反応が十分に収まっておらず、静置時間が不十分な状態で測定を行っていたと評価しました。
- なお、今回の調査に用いた試料における確認では、残留不純物による化学発光の影響が大きいですが、化学反応による化学発光の影響も加わっていました。



当社の調査結果



化研の調査結果

8. 化研の取り組み

- 化研では、調査結果を踏まえて、科学的根拠に照らして合理的であることを確認のうえ、OBTの分析方法（前処理）について、不純物の除去を九環協の方法に見直しました。この方法で、試験的に魚試料を分析し検証した結果、不純物による影響を排除することができ、OBTは検出下限値未満となりました。
- 化研では、九環協の方法をベースとしたあらたな分析手順書に改定し、10月24日から魚のトリチウムの分析を再開したところ、OBTの結果は検出下限値未満でした。

化研における分析方法（見直し後）

分析機関	化研（見直し後）	九環協
不純物の除去方法		
試薬	過マンガン酸カリウム （約1g添加）	過マンガン酸カリウム （約1g添加）
温度	100℃	100℃
時間	28時間以上	7時間/日を4日繰り返す
不純物の残留状態の確認方法		
吸光度	<0.1(200nm付近)	<0.1(200nm付近)
導電率	<10 μ S/cm	<10 μ S/cm
pH	中性	中性

9. 当社の取り組み

- 当社の分析結果は、九環協・化研とは異なる傾向であり、OBTが実際より大きく測定されていると判断しました。
- 今回の魚のトリチウム分析では、非常に微少な量のトリチウムを測定するため、他試料からの汚染混入には十分注意していますが、当社は管理対象区域内で分析を行っていることから、不純物の除去方法の精査を続けるとともに、トリチウムが環境中から混入していることが原因となっている可能性についても検討に加え、調査を継続します。
 - 構内分析施設のなかでもトリチウムの混入が少ないと考えられる分析エリアにおいて、九環協の不純物の除去方法・静置時間を適用し、試験的に魚試料の分析を行っています。（アクション1）
 - 当該検証が終了次第、分析員の技能の確認も兼ねて、当社と化研で試験的に魚試料の比較測定を行います。（アクション2）
- 調査を完了するまでの間は、当社の分析対象試料5地点は化研で分析を行います。



不純物（有機物）の除去装置を使用している様子

[当社の分析再開に向けたスケジュール]

- ・アクション1：12月目途に実施予定
- ・アクション2：アクション1完了後に準備が整い次第、着手予定

【参考】3者のデータ

- 当初、当社(1F構内分析施設)および化研の分析値が、周辺海水のトリチウム濃度よりも高い濃度で検出されました。(表1 赤字部)
- 九環協の分析結果は、従来と同様にOBTは検出下限値未満です。(表2)
- 九環協と同様の方法を用いたところ、化研においても、OBTは検出下限値未満となりました。(表3)

表1 当社と化研において分析開始後に確認されたデータ

採取地点	採取日	魚種	周辺海水濃度 (Bq/L)	組織自由水型トリチウム (Bq/L)	有機結合型トリチウム (Bq/L)	分析場所
T-B1	5月17日	ヒラメ	ND(0.33)	0.48	1.2	当社
T-B1	6月21日	ヒラメ	ND(0.33)	ND(0.23)	0.40	当社
T-B2	5月17日	ババガレイ	ND(0.32)	0.58	2.9	当社
T-B2	5月24日	ヒラメ	ND(0.34)	0.45	0.74	当社
T-B2	6月21日	マコガレイ	ND(0.33)	ND(0.23)	-※1	当社
T-B3	5月31日	ヒラメ	ND(0.33)	0.45	0.58	当社
T-B4	5月31日	ヒラメ	ND(0.33)	0.42	0.87	当社
T-S1	5月11日	ヒラメ	0.077	0.11	0.63	化研
T-S2	5月11日	ヒラメ	ND(0.065)	ND	0.96	化研
T-S3	5月12日	ヒラメ	0.067	0.11	0.94	化研
T-S4	5月12日	ヒラメ	ND(0.067)	0.053	0.52	化研
T-S7	5月31日	ヒラメ	ND(0.33)	0.36	0.68	当社

※九州環境管理協会の分析結果は、従来とおり周辺海水濃度と同等以下

※1 試料不足のため、測定出来ず。

表2 九州環境管理協会のデータ

採取地点	採取日	魚種	周辺海水濃度 (Bq/L)	組織自由水型トリチウム (Bq/L)	有機結合型トリチウム (Bq/L)	分析場所
T-S8	5月10日	ヒラメ	0.070	0.057	ND(0.27)	九環協
T-S8	6月28日	ヒラメ	0.075	0.075	ND(0.27)	九環協

表3 化研のデータ (分析再開後)

採取地点	採取日	魚種	周辺海水濃度 (Bq/L)	組織自由水型トリチウム (Bq/L)	有機結合型トリチウム (Bq/L)	分析場所
T-S1	6月3日	ヒラメ	ND(0.068)	0.15	分析中	化研
T-S2	6月3日	ヒラメ	ND(0.074)	0.12	ND(0.39)	化研
T-S3	6月23日	ヒラメ	0.14	0.12	分析中	化研
T-S4	6月23日	ヒラメ	0.14	0.13	ND(0.27)	化研
T-S5	6月30日	ヒラメ	0.11	0.15	ND(0.28)	化研



魚介類サンプリング調査位置図