

宮城県環境放射線監視センター一年報

第 1 卷

平成 27 年

ANNUAL REPORT
OF
ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY
RESEARCH INSTITUTE OF MIYAGI

VOL.1 (2015)

宮城県環境放射線監視センター

はじめに

当センターは、従来「宮城県原子力センター」として、牡鹿郡女川町内において、東北電力(株)女川原子力発電所周辺の環境放射能モニタリング等の業務を行っておりました。しかし、平成23年3月に発生した東日本大震災の大津波により被災し、施設や設備機器が使用できなくなったことから、仮設庁舎を経て、仙台市宮城野区幸町に新築、移転し、平成27年度から名称を「宮城県環境放射線監視センター」と変え、新たにスタートいたしました。

震災に伴い発生した東京電力福島第一原発事故では、隣接する本県においても放射性物質が降下し、沈着した放射性物質により空間放射線量が上昇しましたが、そのような状況から県では環境放射線の測定・監視体制を強化し、女川原子力発電所周辺だけでなく県内全域の環境放射線の監視を行っています。

震災から6年を経過した現在、一部を除けば概ね空間放射線量や環境試料中の放射性物質濃度は事故前のレベルに近づきつつあります。

また、女川原子力発電所は震災後、運転停止の状態が続いておりましたが、2号機については平成25年12月に新規規制基準適合性審査申請が行われ、現在、国において再稼働へ向けた審査が進められている状況です。

そのような中で、放射線監視体制をより充実し、正確で精度の高い測定データを提供することは、地域住民の健康と安全を守るとともに生活環境の保全を図る上で重要であることは言うまでもありません。

そのためにも、原子力発電所周辺地域の環境放射能等の解析研究及び測定方法に係る調査研究を行い、業務の充実を図っていく所存でございます。

このたび、平成27年度に環境放射線監視センターとして新たな体制の下で行われた業務の成果を取りまとめ、「宮城県環境放射線監視センター年報第1巻」として発刊しましたので、広く県民及び関係者の方々に御高覧をいただき、参考にしていただければ幸いです。

平成29年3月

宮城県環境放射線監視センター
所長 大倉 靖

目 次

はじめに

第1巻(2015)

I 宮城県環境放射線監視センター概要	1
II 論文	
1 宮城県における福島第一原子力発電所事故による放射能及び放射線影響 石川陽一、高群富貴、木村昭裕、佐藤健一、榎野光永	7
III 技術報告	
1 NaI(Tl)検出器による空間γ線スペクトルの解析による福島第一原発事故後の核種寄与別線量率 石川陽一、新井康史、畠山紀子	19
2 2015年12月4日に発生した空間放射線量率の変動について 木村昭裕、石幡茜、石川陽一、佐藤健一、榎野光永	27
3 空間ガンマ線線量率の調査レベルの設定について 石幡茜、木村昭裕、佐藤健一、榎野光永	34
4 宮城県内土壌中の福島第一原発事故由来 ¹³⁷ Cs濃度の深度分布 石川陽一、新井康史、畠山紀子	39
5 ストロンチウム90 (Sr-90) 分析におけるいくつかの改善提言 伊藤節男	46
IV 学会発表等の要旨	
1 学会発表	52
V 資料	
資料1 宮城県における環境放射能核種分析結果	53
(1) Ge半導体検出器による分析結果	56
(2) ⁹⁰ Sr(Sr-90)分析結果	68
(3) ³ H(H-3)分析結果	68
(4) 原子力規制庁委託調査結果	69
資料2 環境試料の放射化学分析結果	74
資料3 ゲルマニウム半導体検出器ダストヨウ素モニタの設置について	79

C o n t e n t s

Preface

I	Outline of Environmental Radioactivity Research Institute of Miyagi	1
II	Paper	
1	Radiological Impact in Miyagi Prefecture following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant	7
	<i>Yoichi Ishikawa, Tomitaka Takamura, Akihiro Kimura, Kenichi Sato, Mitsunaga Kayano</i>	
III	Technical Papers	
1	Natural Radionuclide- or Radiocesium-derived γ-ray Air-dose Rate Contributions distinguished by the NaI(Tl)-spectrum Analysis after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident	19
	<i>Yoichi Ishikawa, Yasufumi Arai, Noriko Hatakeyama</i>	
2	Abnormally High Gamma-Ray Dose Rate observed on Dec. 4, 2015	27
	<i>Akihiro Kimura, Akane Ishihata, Yoichi Ishikawa, Kenichi Sato, Mitsunaga Kayano</i>	
3	Investigation Level Setting of Environmental Gamma-Ray Dose Rate	34
	<i>Akane Ishihata, Akihiro Kimura, Kenichi Sato, Mitsunaga Kayano</i>	
4	Depth Profile of ^{137}Cs in Soil of Miyagi Prefecture after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident	39
	<i>Yoichi Ishikawa, Yasufumi Arai, Noriko Hatakeyama</i>	
5	Some Technical Suggestions on Improving Sr-90 Analysis	46
	<i>Setsuo Ito</i>	
III	Abstracts	
1	Conferences	52
IV	Data	
1	Results of Radionuclide Analysis of Environmental Samples	53
	(1) Results of Gamma-ray Spectrometry with Ge-detectors.	56
	(2) Results of ^{90}Sr Analysis	68
	(3) Results of ^3H Analysis	68
	(4) Fallout Survey Data in Miyagi Prefecture	69
2	Results of Radiochemical Analysis of Environmental Samples	74
3	Replacement of a Dust- and Iodine-Monitor equipped with a Ge-detector	79

I 宮城県環境放射線監視センター概要

1 所在地

宮城県仙台市宮城野区幸町4-7-1-2

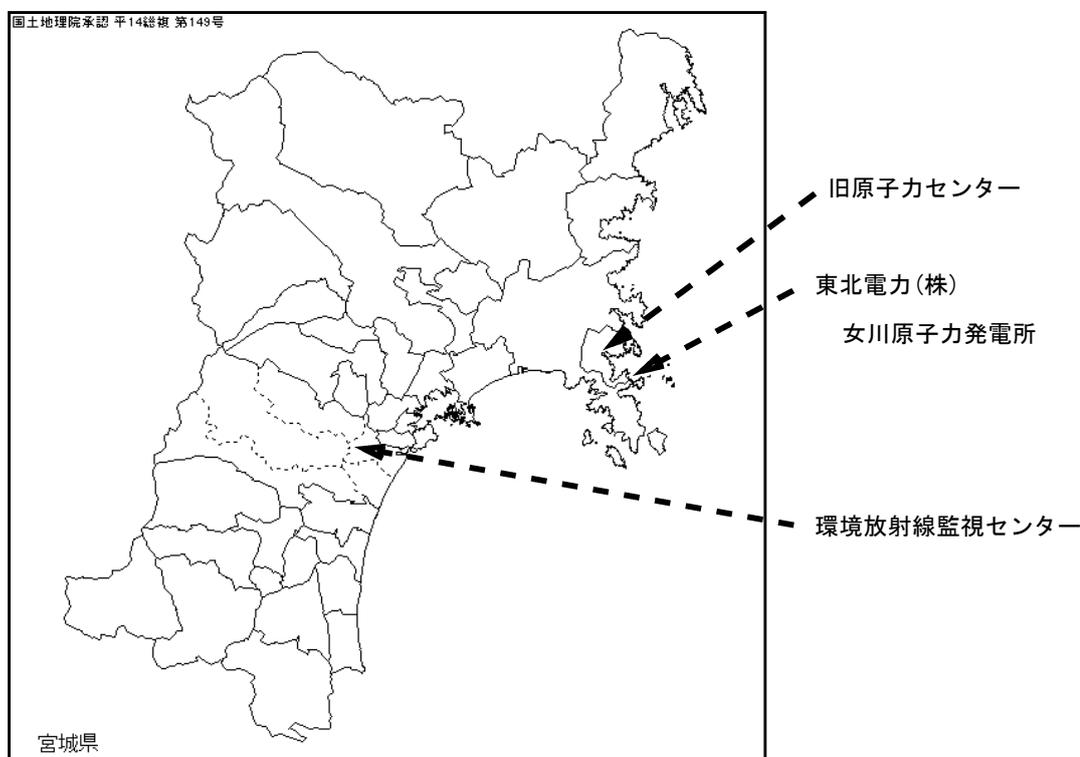


図-1 位置図

2 組織及び名簿（平成27年4月1日現在）

職名（担当）		氏 名	配属年月日
所 長		榎 野 光 永	H 26. 4. 1
次長（総括担当兼班長）		佐 藤 健 一	H 25. 4. 1
次長（庶務担当）		八木田 達也	H 27. 4. 1
監視測定班	主査	工 藤 孝 夫	H 26. 4. 1
	主査	鈴 木 稔	H 27. 4. 1
	上席主任研究員	伊 藤 節 男	H 26. 4. 1
	研究員	木 村 昭 裕	H 25. 4. 1
	技術主査	石 川 陽 一	H 24. 4. 1
	技 師	畠 山 紀 子	H 26. 4. 1
	技 師	木 村 幸 由	H 25. 4. 1
	技 師	高 群 富 貴	H 27. 4. 1

平成27年 4月 1日転入 次長（庶務担当） 八木田 達也
 " 転入 主査 鈴 木 稔

平成27年 4月 1日採用 技師
 平成27年 6月 2日兼務 技師

高 群 富 貴
 石 幡 茜

3 決 算 (平成27年度歳入歳出決算書)

(1) 歳 入 単位：円 (平成28年5月31日現在)

科 目	決 算 額	摘 要
10 財産収入	22,500	
01 財産運用収入	22,500	
01 財産運用収入	22,500	電柱敷地等
合 計	22,500	

(2) 歳 出 単位：円 (平成28年5月31日現在)

科 目	決 算 額	摘 要
(通常予算)		
02 総務費	127,965,148	
01 総務管理費	10,068	
01 一般管理費	320	旅費
02 人事管理費	9,748	〃
10 生活環境費	127,955,080	
01 生活環境総務費	94,832	旅費
07 環境放射能監視測定費	127,860,248	環境放射能監視測定事業
05 労働費	52	
03 雇用対策費	52	
02 緊急雇用創出事業臨時特例基金事業費	52	緊急雇用創出事業
合 計	127,965,200	

3 主要設備・機器（重要物品）

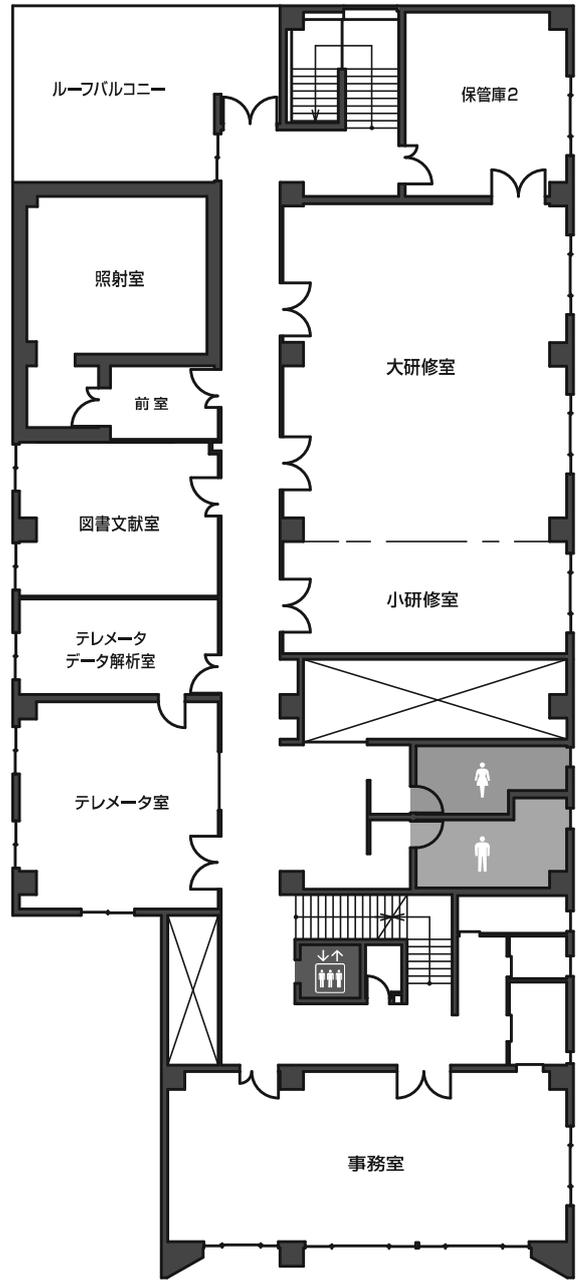
2016年(平成28年)3月31日現在

区分	名称	メーカー・型式等	数量	取得年度	備考	
監視・測定用	1	ダスト・ヨウ素モニタ	日立アロメテック(株)・DMS-R41-21087	1台	H12	予備機
	2	電離箱式放射線監視装置	日立アロメテック(株)・RIC-388 他	3台	H12	女川局, 小屋取局, 寄磯局
	3	標準線量計	ポニー工業(株)・AE-1326 他	1台	H17	
	4	ダスト・ヨウ素サンプラー	応用光研工業(株)・S-2766	1台	H18	女川局
	5	蛍光ガラス線量計	AGCテクノグラス(株)・FGD-252	1台	H19	
	6	環境放射線測定装置(線量率測定演算部)	日立アロメテック(株)・ACE-451	3台	H11	女川局, 小屋取局, 寄磯局
	7	気象測器(風向風速発信器 他)	小笠原計器(株)・WS-BN6 他	1式	H25	女川局
	8	高純度ゲルマニウム半導体検出器	ORTEC(セイコー・インスツルメンツ(株)・GMX25P4-70-RB-B 他	1台	H23	電気冷却式, サンプルチェンジャー付き
	9	γ線標準照射装置	ポニー工業(株)・PSR-102 MS型	1台	H22	
	10	可搬型モニタリングポスト	応用光研工業(株)・HND-304A 他	6台	H23	尾浦局, 渡波局, 塚浜局, 大原局, 鮎川局, 予備
	11	可搬型モニタリングポストデータ処理装置	応用光研工業(株)・FC-S21W 他	1式	H23	
	12	ポータブルゲルマニウムγ線核種分析装置	セイコー・インスツルメンツ(株)・Trans-SPEC-DX-100T 他	1台	H23	
	13	固定型モニタリングポスト	日立アロメテック(株)・MAR-22 他	7台	H24	環境放射線監視センター, 大河原合同庁舎, 大崎合同庁舎, 栗原合同庁舎, 登米合同庁舎, 石巻合同庁舎, 気仙沼保健福祉事務所(放射能水準調査用)

区分	名称	メーカー・型式等	数量	取得年度	備考	
監視・測定用	14	高純度ゲルマニウム半導体検出器	セイコー・イメージアクトジー(株)・GEM25型 他	1台	H24	放射能水準調査用
	15	広域モニタリングステーション	富士電機(株)・アルミサンドイッチパネル 他	10式	H24	石巻稲井局, 雄勝局, 河南局, 河北局, 北上局, 鳴瀬局, 南郷局, 涌谷局, 津山局, 志津川局
	16	電離箱検出器	富士電機(株)・NCE207K	10式	H24	
	17	自動液体濃縮装置	(株)星理科学器械・マントルヒーター 他	1式	H24	
	18	検体採取車	トヨタハイエース, 2690cc	1台	H23	
	19	移動観測車	スバルフォレスター, 1990cc	1台	H23	NaI検出器(スペクトル解析可)搭載
	20	MS点検車	ホンダフリードスパイク, 1490cc	1台	H26	
	21	ゲルマニウム半導体検出器ダストヨウ素モニタ	日立アカメテック(株)・DSM-R41-22843	1台	H26	寄磯局
				1台	H27	小屋取局
	22	低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター	日立アカメテック(株)・LSC-LB 7	1台	H26	
	23	低バックグラウンドベータ線自動測定装置	日立アカメテック(株)・LBC-4202B	1台	H26	
	24	ハンドフットクロズモニタ	日立アカメテック(株)・MBR-201H	1台	H26	
	25	ICP発光分光分析装置	サーモフィッシャーサイエンティフィック(株)・iCAP7000シリーズ	1台	H26	
	26	マイクロ波試料前処理装置	マイルストーンセネラル(株)・ETHOS UP	1台	H26	
27	消臭・脱煙装置付き電気炉	(株)東京技術研究所・TFF 80-C	2台	H26		
28	消臭・脱煙装置	(株)東京技術研究所・VM-B	3台	H26		
29	Ge半導体検出器用予備電気冷却装置	セイコー・イメージアクトジー(株)・CFG-X-COOL-III-115	1台	H26		
広報	1	可搬型モニタリングポスト	応用光研工業(株)・HND-304A 他	2台	H23	丸森局, 白石局,
	2	可搬型モニタリングポスト	応用光研工業(株)・HND-304A 他	1台	H23	山元局
その他	1	原子力防災用車両	トヨタアルファードハイブリッド	1台	H24	



1F



2F

図-2 環境放射線監視センター配置図

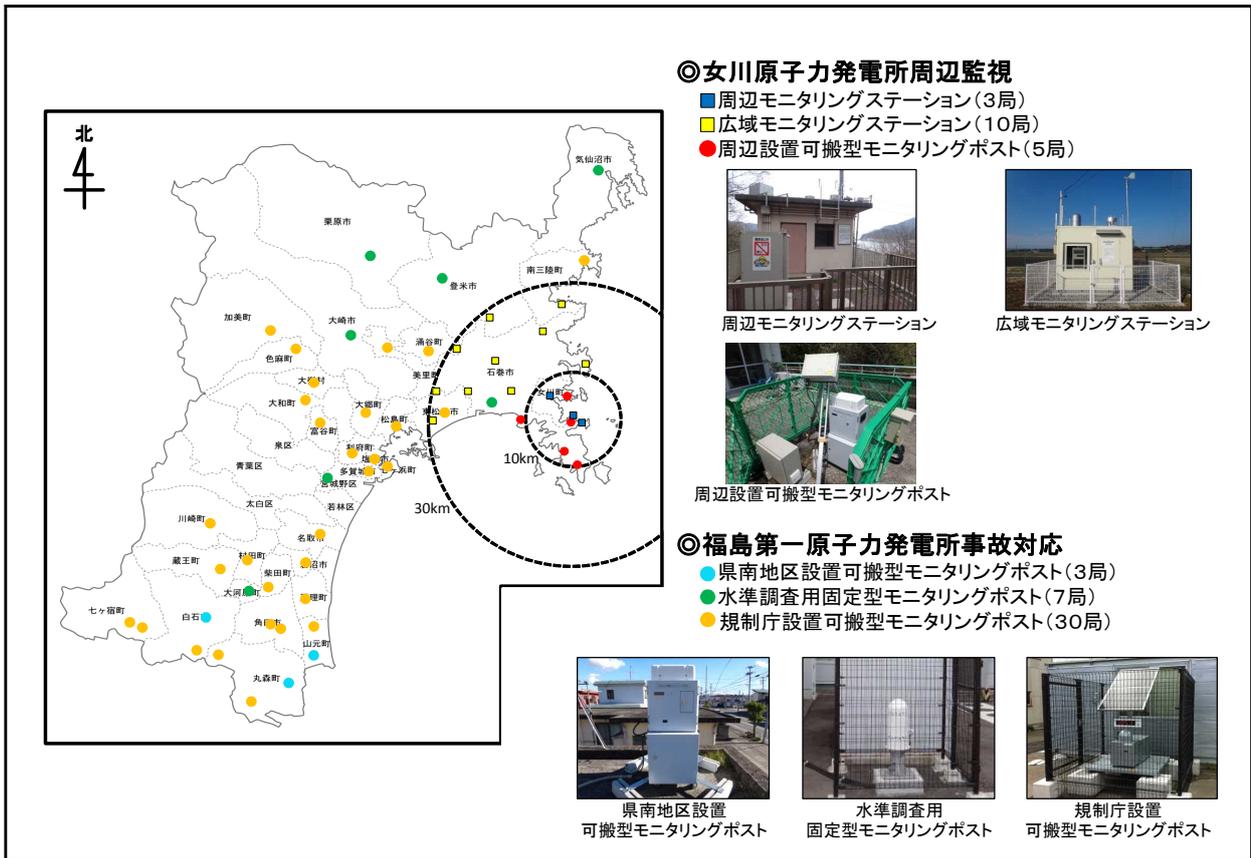


図-3 放射線測定装置配置図

II 論 文

宮城県における福島第一原子力発電所事故による 放射能及び放射線影響

石川陽一、高群富貴、木村昭裕、佐藤健一¹、榎野光永²

2011年3月に起きた福島第一原子力発電所事故により、宮城県はこれまでにないほどの放射能汚染を受けた。関係機関の協力も得ながら行なった空間放射線量及び放射能の測定結果を整理し、同事故影響を評価した。県南部の日単位の空間線量率は最大で約 $1.6\mu\text{Sv/h}$ であったが、その後次第に減少した。事故時を含む2011年1-3月から2012年1-3月の1年3ヶ月間の積算線量実測値は、最大の地点で約 1.1mSv であった。2011年3月1日から8月8日の期間に仙台市内で採取した降下物には $13,000\text{Bq/m}^2$ の同事故由来の ^{137}Cs が検出された。指標試料である松葉やヨモギ葉中の ^{137}Cs の濃度は、事故直後には事故前の数十倍から数桁以上に上昇した。海藻のアラメと海水中 ^{137}Cs 濃度は、事故前には約20年程度の環境半減期でゆっくり減少していたが、事故後に上昇したその濃度は約1年弱の環境半減期で速やかに減少した。

1 はじめに

宮城県は福島県の北側に隣接しており、2011年の東京電力福島第一原子力発電所(FDNPP)事故によって環境の放射能及び放射線はかなりの影響を受けた。宮城県は東日本大震災に伴う大津波によって甚大な被害を受け、東北電力女川原子力発電所周辺モニタリングのために有していた放射能・放射線測定器のほとんどを失ったが¹⁾、関係機関の協力も得ながら同事故直後から様々な分野にわたるモニタリング等を行ってきた²⁾。同事故関連のデータについてはこれまでにホームページ³⁾や報道機関などを通じて公表してきたものの、解析までは行われていなかった。隣接の福島県における同事故によって、宮城県は過去の国外の核実験やチェルノブイリ事故をはるかに上回る環境影響を受けたことから、これまでのデータを解析し、今後役に立てるためにまとめておくこととした。

本報告では、同事故の前後の宮城県内の空間ガンマ線線量率、積算線量及び環境試料中の放射能濃度を比較し、空間線量と環境放射能に与える同事故の影響を評価した。

2 方法

データとしては、福島第一事故関連の調査結果³⁾のほか、女川原子力発電所周辺モニタリング結果⁴⁾も活用した。Fig.1に線量測定及び環境試料の採取場所の配置を示す。1-27の数字は線量測定地点を表し、それぞれ1-6はモニタリングカーまたはサーベイメータによる移動測定場所、7-9は固定式モニタリングポスト、10-16はNaI(Tl)スペクトロメーターによる測定、17-23は女川原子力発電所周辺の固定式モニタリングステーション、24-27は津波によって使用不能となったモニタリングステーションを示す。またa-jのアルファベットは環境試料の採取地点を表す(試料の種類については結果の項を参照)。環境試料の放射能測定は主にGe半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリーによって行なった。

線量の評価において、固定地点であって同事故前の自然核種起因のバックグラウンド(BG)値が既知のTLDによる積算線量の場合は、全線量から事故前の1年間(2009年4月-2010年3月)の平均値を差し引くことによって事故影響の程度を評価した。BG値が未知の地点については、スペクトル解析が行えない場合はBG値を一律に $0.04\mu\text{Sv/h}$ と見なして全線量率から差し引き⁵⁾、またNaI(Tl)検出器のスペクトル解析が可能な場合は湊⁶⁾による49行×49列のレスポンスマトリクスを用いて、自然核種と放射性セシウム起因分を弁別評価した。

1 現在、宮城県気仙沼保健福祉事務所

2 現在、東北緑化環境保全株式会社

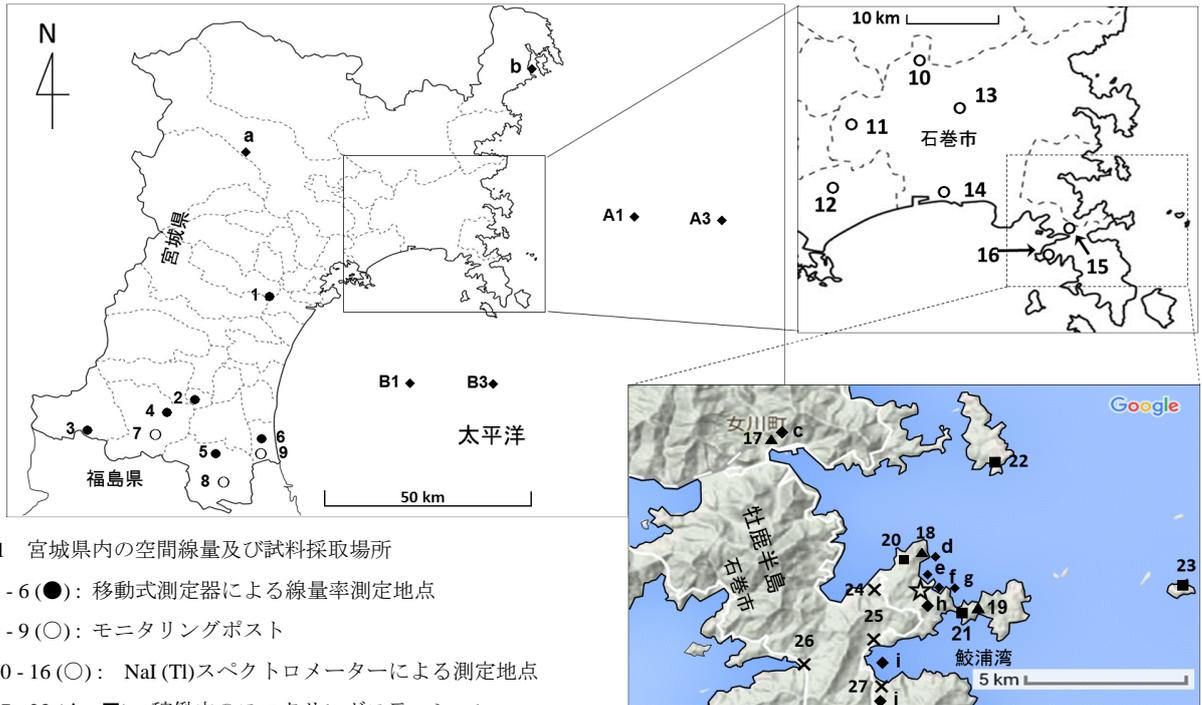


図1 宮城県内の空間線量及び試料採取場所

- 1-6 (●): 移動式測定器による線量率測定地点
- 7-9 (○): モニタリングポスト
- 10-16 (○): NaI (Tl)スペクトロメーターによる測定地点
- 17-23 (▲, ■): 稼働中のモニタリングステーション
- 三角: 宮城県、 四角: 東北電力(株)
- 24-27 (×): 3.11 東日本大震災に伴う大津波により滅失した宮城県のモニタリングステーション
- a-j (◆): 放射能測定用環境試料の採取場所
- A1, A3, B1, B3 (◆): 国 (文部科学省、原子力規制委員会) による海底土の採取場所



☆ 東北電力女川原子力発電所

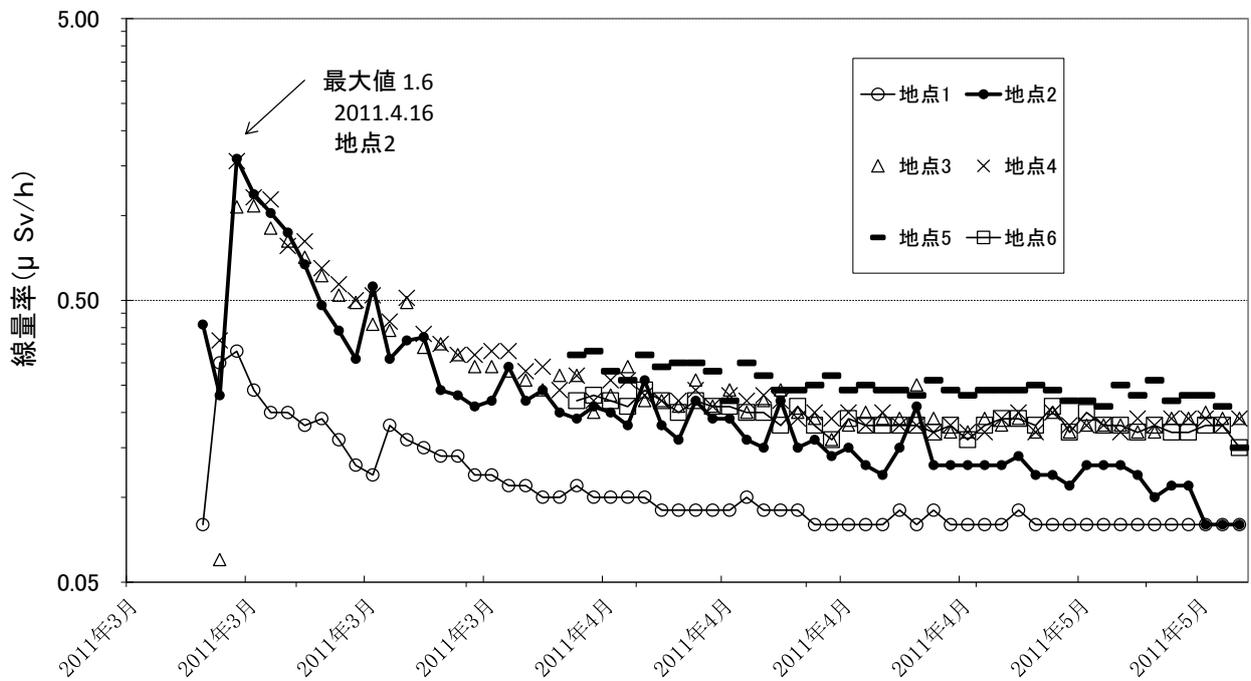


図2 福島第一事故後の仙台市 (地点1) 及び宮城県南地域の幾つかの地点 (地点2-6) における日単位線量率比較

3 結果及び考察

3.1 空間ガンマ線線量

Fig. 2 は、福島第一事故直後の 2011 年 3 月 14 日から仙台市及び宮城県南において移動式測定器（モニタリングカーまたはサーベイメータ）で行なった空間線量率の測定結果³⁾のうち、主な地点の初期の 2 ヶ月間の値の変動を示す。最大値は 3 月 16 日に県南の site 2 で観測され、1.6 $\mu\text{Sv/h}$ であった。3 月 15 日に福島第一事故起因の放射性プルームが宮城県に達し、かつ降水があったために放射性物質が地表に沈着し、線量率が上昇したものである⁷⁾。ただし、より県南の site 3 と 5 においては、測定開始されたのは 4 月 5 日からのため初期の観測値は得られていない。

Fig. 3 は、Fig. 2 の地点のほか site 20-23 の牡鹿半島周辺において、2011 年 1 月以降翌年 3 月までの期間、3 ヶ月毎の積算線量を比較したものである（自然ガンマ線 BG 値差し引き済み）。これらの期間の合計は site 5 において最大値を示し、約 1.1 mSv であった（ただし、事故があった最初の 3 ヶ月間のデータは抜けている）。

Fig. 4 は、NaI (Tl) 検出器によるスペクトルを解析して得た、site 1（仙台）、site 7-9 の県南及び site 10-15 の石巻周辺における地上 1 m 高さ（site 15 のみ地上 2 m の車上）における空間線量率と、その自然起因及び福島第一事故由来 $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 起因の分離評価結果を示す（ただし、Gy 単位）。なお、同事故前の表層（0-5 cm）土壌中の核実験起因 ^{137}Cs 濃度は約数十 Bq/kg（乾燥土）程度以下であり、空間線量に占める ^{137}Cs 寄与は自然起因分に比べて無視できる程度に小さい。図に示すように、2015 年 8 月時点においても、県南の site 8 では放射性セシウム寄与がかなり多かった。Site 15 のデータは、事故の約 1 年余後の 2012 年 6 月 4 日に、モニタリングカーによって牡鹿半島（石巻市）の斜面付近の道路脇で測った値であるが、セシウム寄与が多く、139 Gy/h の線量率のうち 97 Gy/h が放射性セシウム起因であった。この理由は、福島第一原発 1 号機の水素爆発に伴うプルームがこの地域に達し、汚染を受けたためと考えられる⁷⁾。

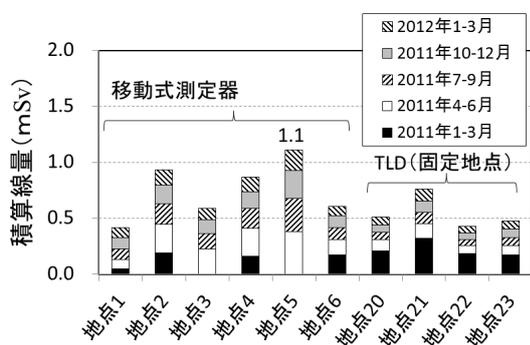


図 3 福島第一事故後の宮城県の代表的地点における自然放射線バックグラウンド値差し引き後の積算線量

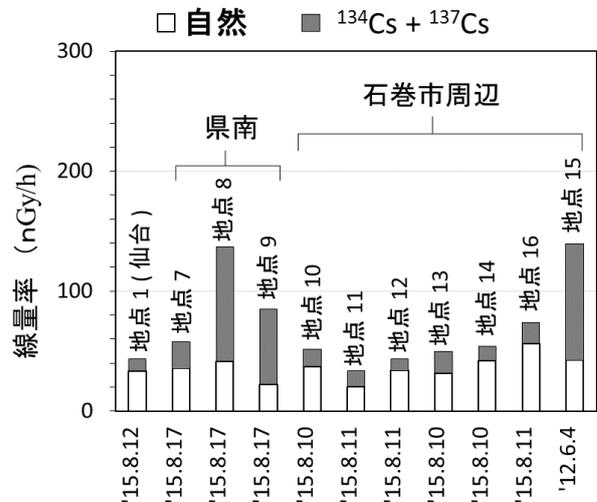


図 4 福島第一事故後の宮城県内の主な地点における自然及び放射性セシウム寄与線量率

測定地上高：

地点 15；2 m（車両屋根上）

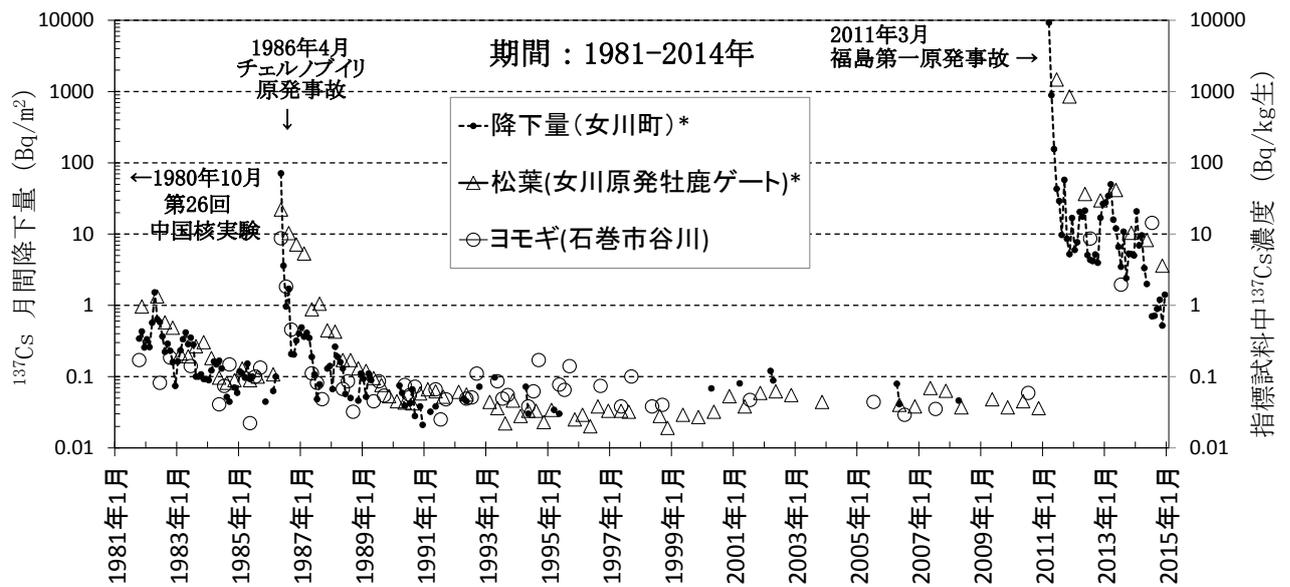
他地点；1 m

3.2 環境放射能

a) 陸域

仙台市における福島第一事故起因の ^{137}Cs 降下量は、2011 年 3 月 1 日～8 月 8 日の期間で積算値約 13,000 Bq/m² であった⁸⁾。東日本大震災による施設被災のために Sr-90 降下量は実測されていないものの、同時期の近隣県の ^{137}Cs 及び ^{90}Sr 量⁹⁾ から推定して、恐らく数 Bq/m² 程度であると考えられた。Fig. 5 は、1981 年～2014 年までの約 30 数年の ^{137}Cs 月間降下量（約 0.03-0.04 Bq/m² の検出下限値以上の値）と指標植

図 6



* 2011年3-12月の降下量、松及びアラメについては東北電力による測定値。

図5 ^{137}Cs の月間降下量と指標生物（葉）中 ^{137}Cs 濃度の推移

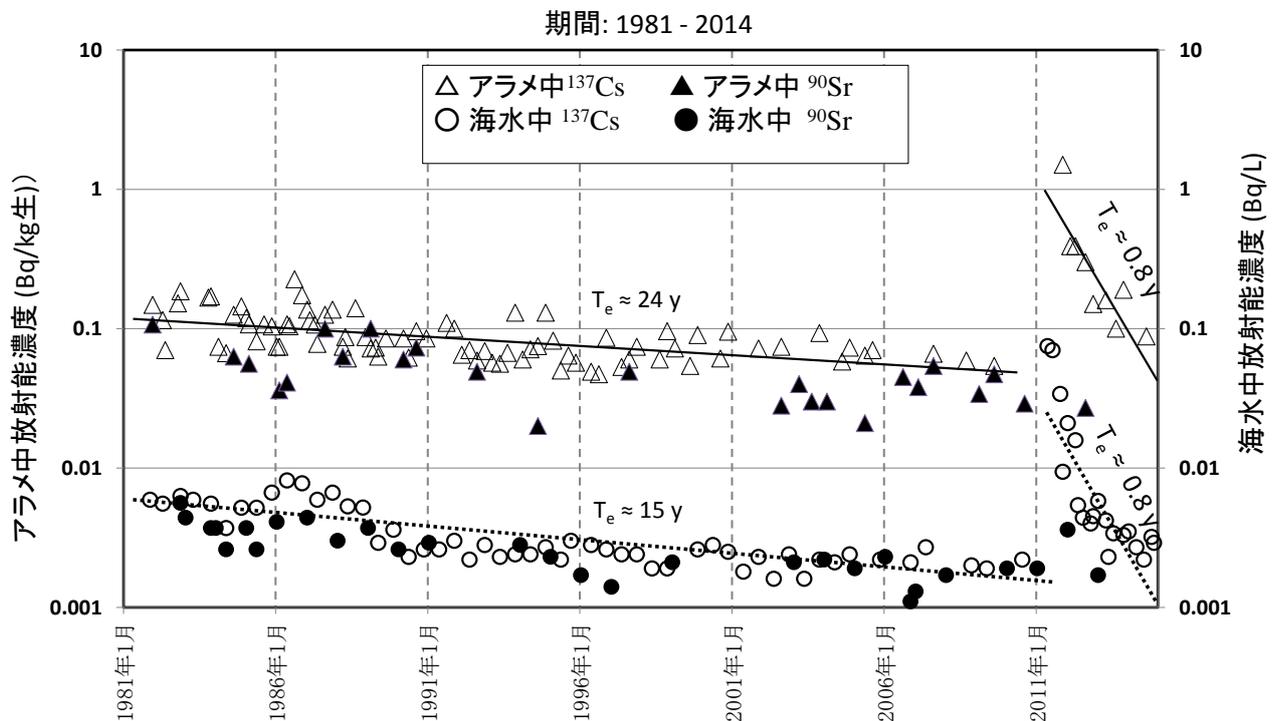


図6 福島第一事故前後の宮城県（地点g）における海水とアラメ中の ^{137}Cs 及び ^{90}Sr の放射能濃度の比較。直線と点線はそれぞれアラメと海水中の ^{137}Cs に対する指数関数フィッティングを表す。 T_e は環境半減期を表す。

物である松葉及びヨモギ葉の¹³⁷Cs濃度の経時変動を示す。降下量の2011年分及び全期間の松葉のデータは東北電力による測定値である⁴⁾。図に示すように、同事故後の松葉とヨモギ中のCs-137濃度は顕著に上昇したが、その後数年の間に著しく減少した。¹³⁷Cs降下量の値が同事故後すぐに減少しないのは周辺からの再浮遊寄与のためと考えられる¹⁰⁾。

宮城県では1981年から継続して県北西部(site a)と牡鹿半島(site 27付近)で土壌の表層試料(深度0-5 cm)を採取し、放射能を測定している。前者の地点における福島第一事故前5年間の平均の¹³⁷Cs濃度は約4 Bq/kg(乾燥重量当り)であったのに対し、事故後の2011年11月には2桁程度高くなり、約500 Bq/kg(乾燥重量当り)となった。Site aの土壌採取場所周辺において指標植物のヨモギ(葉)も継続的に採取しているが、福島第一事故前5年間の¹³⁷Cs濃度は0.1 Bq/kg(生重量当り)以下であったのに対し、事故後の2011年11月には約38 Bq/kg(生重量当り)に上昇した。牡鹿半島においても同様の傾向であった。

b) 沿岸海域

Fig. 6は、1981年から2014年までの海水及び指標試料の海藻(褐藻類のアラメ)中の¹³⁷Cs濃度の経時変動を示す。いずれの試料においても、¹³⁷Cs濃度は、福島第一事故後には事故前に比べて数十倍上昇し、その後は比較的速やかに減少した。およその傾向として、福島第一事故前の過去の核実験等起因(一部チェルノブイリ原発事故寄与も含む)の¹³⁷Csは、これらの試料においては約20年程度(海藻24年、海水15年)の環境半減期で減衰していた。一方、福島第一事故後の濃度はかなり速く約1年程度(各々約0.8年)の環境半減期で減少する傾向が見られた。また、同図にデータは示していないものの、県北東部の地点(site b)及び牡鹿半島付近の地点(site e, f, i)において、海底土の¹³⁷Cs濃度も1981年から継続的に測定している。事故後には事故前に比べて値が約2桁程度上昇し、海水や海藻と同様に、約1年程度の環境半減期で減少した。海藻や海底土中の¹³⁷Csは海水からの取り込みや吸着によって濃縮されることが考えられる^{11, 12)}。福島第一事故後のこれらの試料中の濃度が比較的速く減少した理由は、同事故起因の¹³⁷Csは以前の核実験起因の¹³⁷Csとは異なり、地球規模で見れば環境への放出量及び汚染域が限定的であり、比較的速やかに周囲に拡がり、周辺の低濃度海水と混合したためと考えられる^{13, 14)}。事故前の宮城県海域について、及川ら¹⁴⁾は海水や魚類等の¹³⁷Cs濃度のみかけの半減期は物理学的半減期の30年より短いと述べており、著者らの観測結果とも整合している。アラメはセシウム以外にプルトニウムなども濃縮する傾向があり¹⁵⁾、環境汚染の指標試料として有効であると考えられるが、海藻における海水からの取りこみメカニズムについてはまだ明確でないこと¹¹⁾、また、事故後の筆者ら¹⁶⁾の研究においてはアラメの個体内で¹³⁷Cs濃度に分布差が見られたことなど、今後の研究の進展が待たれる。

4. まとめ

福島県の北隣に位置する宮城県は、2011年の福島第一原子力発電所(FDNPP)事故由来の放射性プルームによって汚染を受けた。事故前後のガンマ線線量率、積算線量及び環境試料の放射能濃度を調べ、比較することによって事故影響を評価した。線量率または積算線量について、事故前のバックグラウンド(BG)値が既知の場合は差し引きによって、またBG値が未知の場合は49行×49列のレスポンスマトリクスを用いたスペクトル解析で自然分と放射性セシウム寄与分を分離し、事故影響を評価した。仙台市における2011年3-8月の約5ヶ月間の積算¹³⁷Cs降下量は、約13,000 Bq/m²であった。環境汚染の指標となる松葉、ヨモギ葉及び海藻(アラメ)において、事故直後は事故前に比べて数十倍から数桁程度濃度が増加した。海水とアラメ中の¹³⁷Cs濃度の環境半減期は、事故前と後とでそれぞれ約20年及び約1年程度であった。

謝辞

本研究に関し、東日本大震災及び福島第一事故直後からの、県南を主とした放射線モニタリングに協力していただいた東北電力株式会社の当時のご担当者の方々に厚く感謝致します。放射線地学研究所の湊進博士には新しいレスポンスマトリクス解析ソフトウェアを提供していただき、かつ貴重なご助言をいただきました。ここに厚く感謝致します。

参考文献

- 1) 宮城県原子力センター年報, 第 28 巻 (2010), 1-4, 2012 年.
- 2) 安藤孝志, 石川陽一, 宮城県原子力センター年報, 第 29 巻 (2011), 3-24, 2013 年.
- 3) 宮城県ホームページ, 放射能情報サイトみやぎ.
<http://www.r-info-miyagi.jp/r-info/>
- 4) 宮城県, 女川原子力発電所周辺環境放射能調査結果, 1981 年度分- 2014 年度分.
- 5) 環境省, 平成 23 年 10 月 10 日 災害廃棄物安全評価検討会・環境回復検討会資料, 追加被曝線量年間 1 ミリシーベルトの考え方, 2011 年.
- 6) 湊 進, 環境 γ 線解析用 49×49 応答行列の紹介 (2015), 放地研ホームページ
<http://www1.s3.starcat.ne.jp/reslnote/>
- 7) 鶴田治雄, 中島映至, 地球化学, 46, 99-111, 2012.
- 8) 宮城県原子力センター年報, 第 29 巻 (2011), 52-58, 2013 年.
- 9) 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, 定時降下物のモニタリング.
<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/195/list-1.html>
- 10) 永岡美佳, 藤田博喜, 中野政尚, 渡辺 均, 住谷秀一, Jpn. J. Health Phys., 48, 104-113, 2013.
- 11) H. Kawai, A. Kitamura, M. Mimura, T. Mimura, T. Tahara, D. Aida, K. Sato, H. Sasaki,
J. Plant Res. , 127, 23-42, 2014.
- 12) 神田穰太, エネルギー・資源, 35, 105-109, 2014.
- 13) 中野政尚, 日本原子力学会誌, 53(8), 559-563, 2011.
- 14) 及川 真司, 渡部 輝久, 高田 兵衛, 鈴木 千吉, 中原 元和, 御園生 淳, 分析化学, 62, 455-474,
2013.
- 15) 原子力環境整備センター, 環境パラメータシリーズ 6, 海洋生物への放射性物質の移行, pp.15, 1996.
- 16) 阿部郁子, 新井康史, 石川陽一, 安藤孝志, 藤原秀一, 宮城県原子力センター年報, 第 30 巻 (2012),
42-45, 2014 年.

Radiological Impact in Miyagi Prefecture following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

Yoichi Ishikawa, Tomitaka Takamura, Ken-ichi Sato, Mitsunaga Kayano
Miyagi Prefecture Environmental Radiation Monitoring Center

Miyagi Prefecture, located to the north of Fukushima Prefecture, has been contaminated with radioactive materials transported by the plumes from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, occurred on March, 2011. In the present study, gamma-ray air dose rates, cumulative air doses and radioactivity concentrations in environmental samples were compared before and after the accident, and then the extent of impact of the accident was evaluated. Radiocesium contribution to the air dose rate or cumulative air dose was evaluated by subtracting the natural background (BG) from each observation when feasible, or by analyzing the spectrum of a NaI(Tl) scintillator, using a response matrix of 49×49 developed by Minato. Cumulative ^{137}Cs fallout deposition during about five months from March 1 to August 8, 2011, observed in Sendai City was about $13,000 \text{ Bq/m}^2$, which is thought to be almost entirely due to the FDNPP accident. In pine tree needles, wormwoods and seaweeds collected as bio-indicators of radioactive pollution of the environment, the ^{137}Cs concentrations after the accident were elevated markedly, by about several ten to several orders of magnitude, compared to those before the accident. The ^{137}Cs concentrations of brown algae (*Eisenia bicyclis*) and seawater after the accident decreased rapidly with ecological half-life of about 1 year or less, whereas the concentrations before the accident decreased slowly with half-life of about 20 years.

III 技術報告

NaI (Tl) 検出器による空間 γ 線スペクトルの解析による

福島第一原発事故後の核種寄与別線量率

石川陽一、新井康史¹、畠山紀子

NaI (Tl) 検出器で測定した宮城県内各地の空間 γ 線スペクトルをレスポンスマトリクス法で処理することにより、自然核種寄与と福島第一原子力発電所事故由来放射性セシウム ($^{134}, ^{137}\text{Cs}$) 寄与とに分離評価した。両者を合わせた全線量率を一般的な線量率測定法である G(E) 関数法による値と比較したところ、ほぼ一致した。県内の場所や時期によっては、自然核種寄与と同程度またはそれ以上の放射性セシウム寄与が認められた。

I はじめに

宮城県は 2011 年 3 月の東京電力福島第一原発事故起因の放射性物質によって県全域が汚染を受け、放射性セシウム ($^{134}, ^{137}\text{Cs}$) による放射能・放射線影響は現在でも各所で認められている¹⁾。事故直前から宮城県によって県南を含めた空間線量率のモニタリングが行われ、また、事故後には国と市町村等による広域の各種モニタリングが行われてきた²⁾。国連科学委員会 (UNSCEAR) による評価も行われ、事故後 1 年間の宮城県の成人に対する実効線量は県中央部や県北で <0.5 mSv、県南部では $0.5 - 1.5$ mSv であった³⁾。概略的な評価としてはこのような結果であるが、より正確には、自然放射性核種分布や事故起因放射性セシウム分布の地域差を考慮した解析が望ましい。吉田ら⁴⁾は宮城県南部における NaI (Tl) 検出器の γ 線スペクトル解析により、自然起因と事故起因の線量率の弁別評価を行なったが、それ以外には同様な手法による同事故起因放射性セシウム寄与線量率評価に関する報告はみられない。

そこで、本報告においては、湊⁵⁾によって開発された高分解能のスペクトル解析法によって、また、過去の事故前 BG 値が既知の場合には差し引き法によって、県内各地の多数の地点における空間 γ 線線量率に占める放射性セシウム寄与の弁別評価を行なった。

II 方法

1 NaI (Tl) 検出器による γ 線スペクトルの測定と解析

県内の各所においてモニタリングカー (Mカー) 付属の円筒形 3" \times 3" NaI (Tl) 検出器を車上 (地上約 2 m) または地上 1 m に設置して 10 分間測定を行い、スペクトルを収集した。一方、2012 年度から県内の主な 7 地点において国が設置した円筒形 2" \times 2" NaI (Tl) 検出器による地上 1 m における線量率モニタリングも行われており、その値は国のホームページで公開されている⁶⁾。この際にスペクトルも測定されていることから、これらの一部について解析を行った。

スペクトルデータは、湊がセシウム寄与評価用に開発した 49 \times 49 行列のレスポンスマトリクス (RM) を用いるソフトウェア (SUCSF)⁵⁾ で解析して自然核種と放射性セシウム起因分を弁別評価した。ただし、このような手法 (以下、"RM法" と称する) で得られた線量率を従来法 (G(E) 関数法) と比較する際には注意すべき点がある。著者らの場合も含め、環境放射線モニタリングにおいては、円筒形検出器の軸方向から ^{137}Cs や ^{226}Ra 等の標準線源によって線量率校正される

1 現在、宮城県原子力安全対策課

のが一般的である⁷⁾。しかしながら、湊によれば^{8,9)}、低エネルギー散乱線成分が多くかつ主に水平に近い方向から均等入射する環境γ線の場合、そのような校正方法に比べると1.34倍程度低めの値を示す。そこで、本稿においては、整合性をとるためスペクトル解析によって得た線量率に1.34を乗じ、一般的な方法によるものに近い値に補正した。

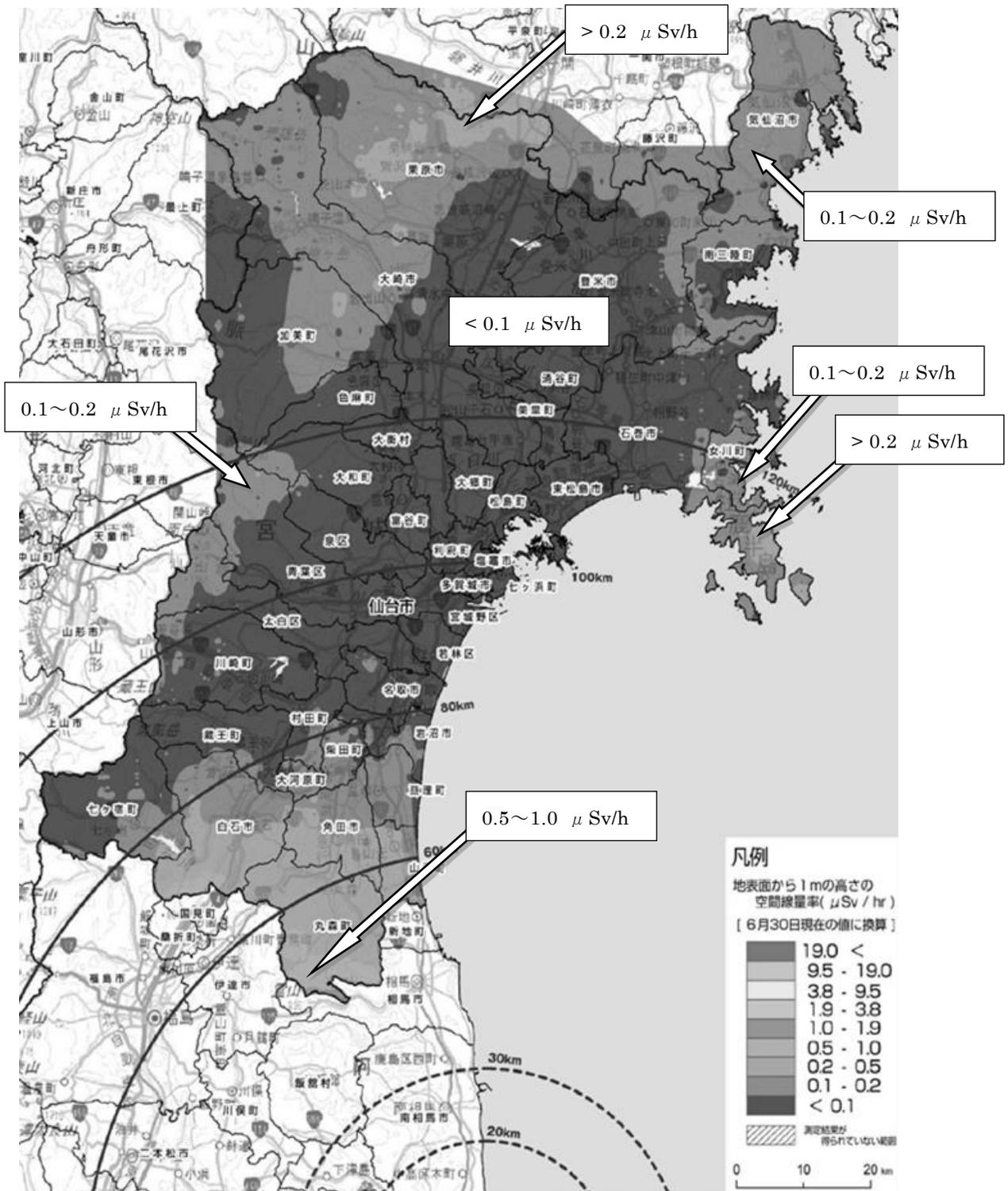


図1 2011年航空機サーベイによるガンマ線線量率分布の測定結果
 (文部科学省及び宮城県による)

* 元画像に文字・矢印を追記

2 測定地点と測定状況

図1は2011年6月30日時点における宮城県内の航空機サーベイ結果である¹⁰⁾。図からわかるように、福島県に近い宮城県南部でもっとも線量率が高く、そのほか、県北部から東部にかけても比較的高い。東部の牡鹿半島部で高めなのは福島第一原発事故の際に1号機由来のプルームの影響を受けたためと考えられている¹¹⁾。

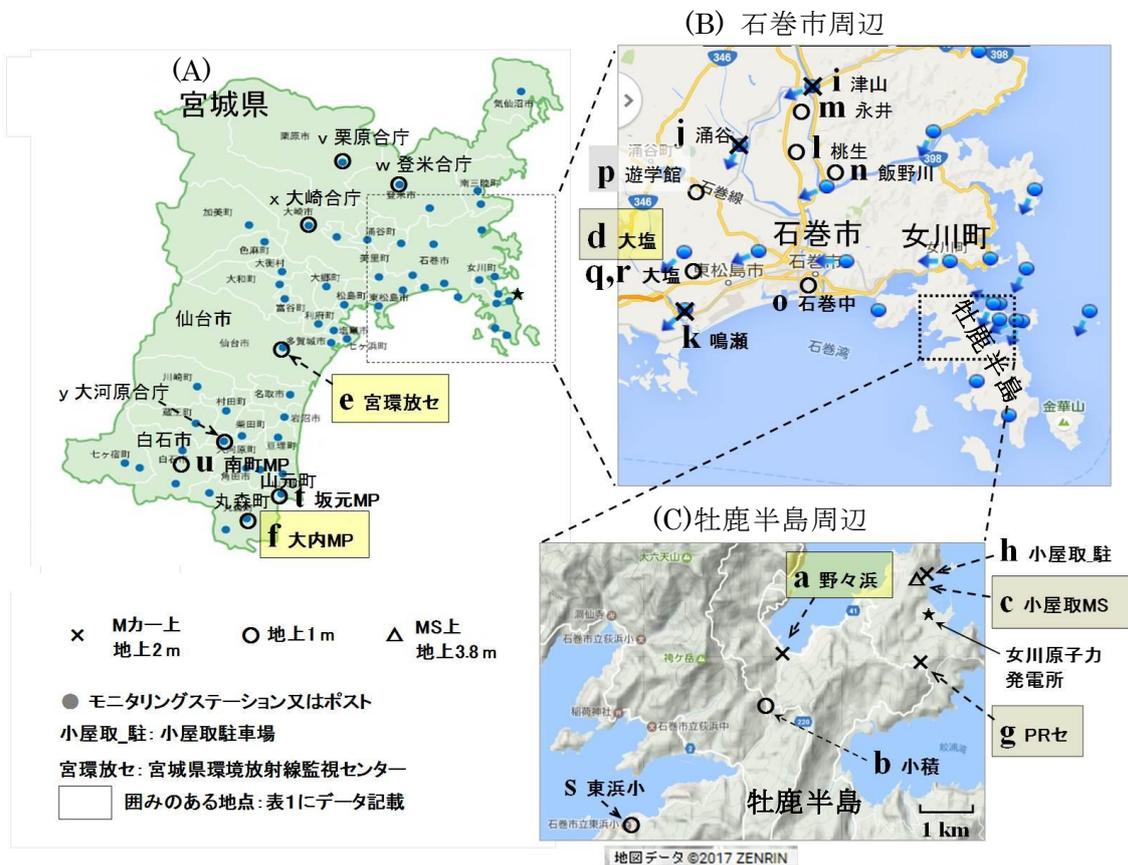


図2 NaI スペクトル及び線量率測定地点



図3 モニタリングカーによる測定風景

(A) 検出器を車上設置の例 (地点 b) 地上約 2 m

(B) 検出器を地上設置の例 (地点 n) 地上 1 m



図4 モニタリングポストによる測定風景
 宮城県大崎合同庁舎（地点 x）
 NaI(Tl)検出器地上高：1 m
 周囲は芝生植生

図2は測定地点を表す。×印はMカーの検出器を車上（地上2 m）に、また○印はMカーの検出器を地上1 mに設置した場所を示す。ただし、v、w、x、yの○印は県の合同庁舎の2”×2” NaI(Tl)検出器の設置場所を示す（ほかに気仙沼市にもあるが本稿ではデータを示していない）。また、Mカーの検出器をモニタリングステーション（MS）のうちの小屋取局（c地点）の屋上に設置して測定を行ったが、その地点を△印で示す。

図3(A)は地点b（図2（C））のMカーによる車上における測定状況の写真であるが、比較的急な斜面の下に位置している。また、図3(B)は地点n（図2（B））の地上1 mにおける測定状況の写真であるが、周辺は平坦な地形となっている。図4は地点x（図2（A））の大崎合庁における測定状況の写真であるが、周辺は芝生面の平坦な地形となっている。

III 結果及び考察

1 モニタリングカーによる3”×3” NaIスペクトルの解析

図5に地点bにおけるモニタリングカーのNaIスペクトルの例を示す。(A)は2012年6月4日に600秒間測定した0-3 MeVのスペクトル、(B)は2012-2015年の^{134,137}Cs領域のスペクトルの計数の変化を示す。¹³⁴Cs（半減期約2年）のピークが次第に弱くなっていく様子が見られる。

図6から8は図5(A)に示したスペクトルの処理例であり、解析ソフトウェアの出力画面である。図6はエネルギー対チャンネル校正、図7は0-3 MeV領域の入射γ線線束スペクトル、そして図8は^{134,137}Cs領域を含む0-1 MeVの入射γ線線束スペクトルを示す。図中の”一次線線量率”は”直接線線量率”を指す。図7からわかるように、従来の22×22レスポンスマトリクスと大きく異なる点は、スペクトルを22分割から49分割に細分化した点である。これによって、自然γ線線束

分離後、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の主な γ 線ピーク 0.605, 0.662, 0.796 MeV の各々の線束が分離評価可能となっている。更なる詳細については湊による原報告⁵⁾を参照されたい。

図7の線束スペクトルから、全線量率と自然核種による線量率が、また図8の矢印部分枠の面積から ^{134}Cs と ^{137}Cs の各々の直接線線束が求められる。低エネルギー側の線束はこれらの散乱線成分である。これらから放射性セシウム ^{134}Cs と ^{137}Cs の各々の線量率寄与が求められる。福島第一事故由来の $^{134,137}\text{Cs}$ は地表面に平面分布しているとの仮定の元に、これらの放射能比も算出できる。

湊のソフトウェアでは、図6-8に示した図のほか各エネルギー幅毎の線束や線量率等の数値もテーブルとして出力できる。図9はそのテーブルを加工して、0-1 MeV 線束スペクトルの内訳を描いたものである。それぞれ、全線束（太灰線）、 $^{134,137}\text{Cs}$ 線束（黒線）、自然核種線束（破線）を一つの図にまとめて描画してある。

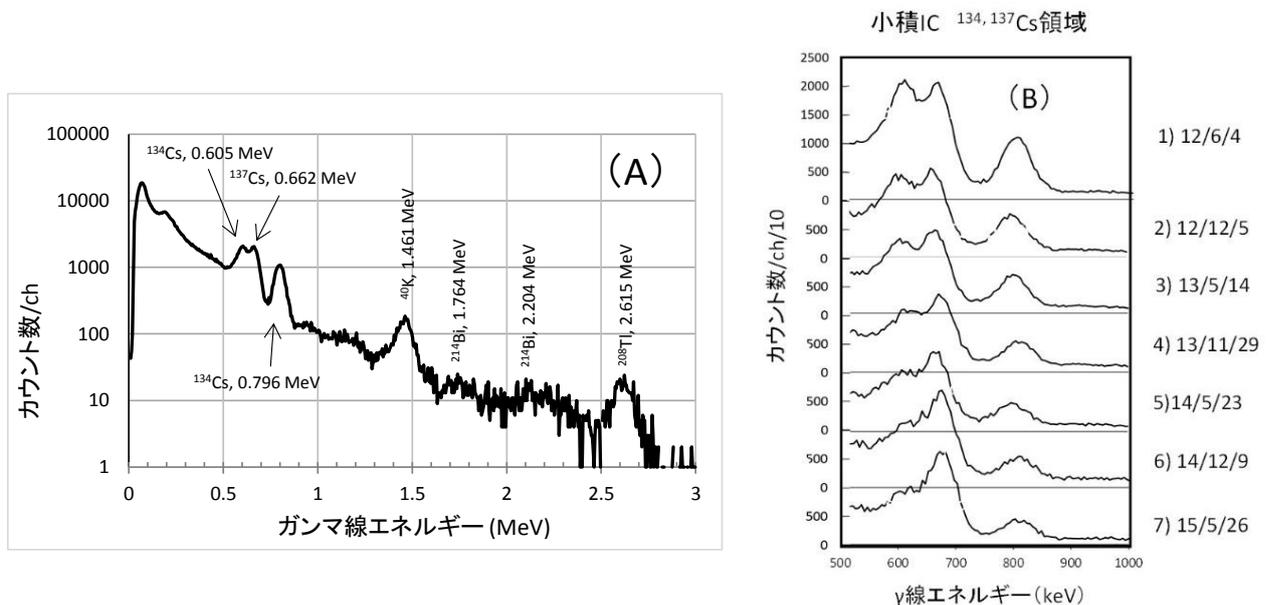


図5 地点b*におけるモニタリングカーのNaIスペクトルの例（晴天時）

(A) 2012/6/4, LT=600 sec, 0 - 3 MeV

(B) 2012 - 2015年の $^{134,137}\text{Cs}$ 領域のスペクトル変化

* b 地点：図2 (C)

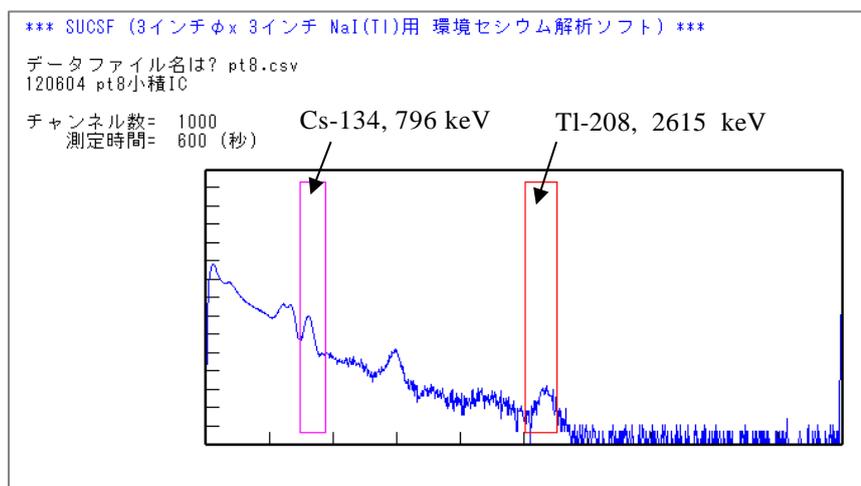


図6 NaIスペクトルの処理例（エネルギー対チャンネル校正）

データ：図5 (A) のスペクトル

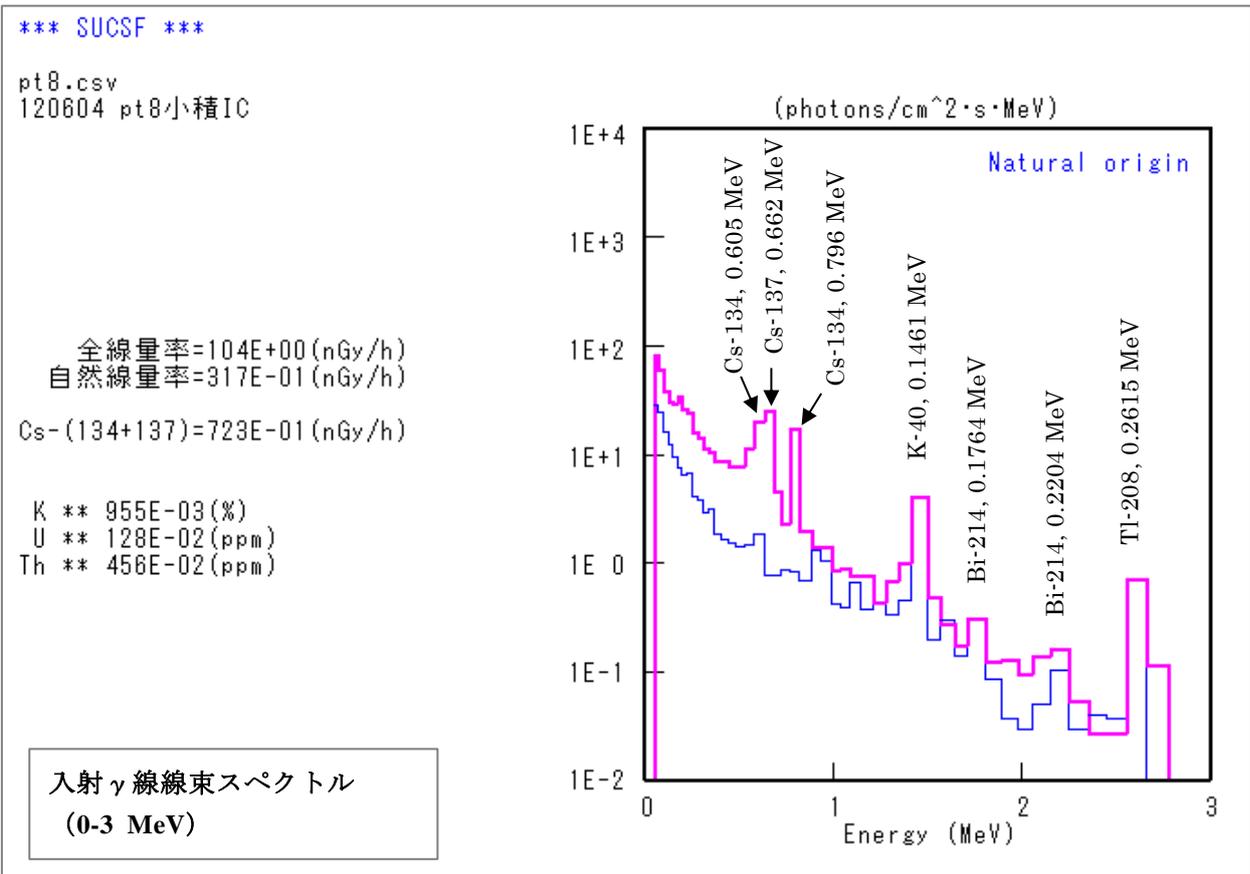


図7 NaIスペクトルの処理例 (0-3 MeV領域 入射γ線線束スペクトル)
データ：図5 (A) のスペクトル

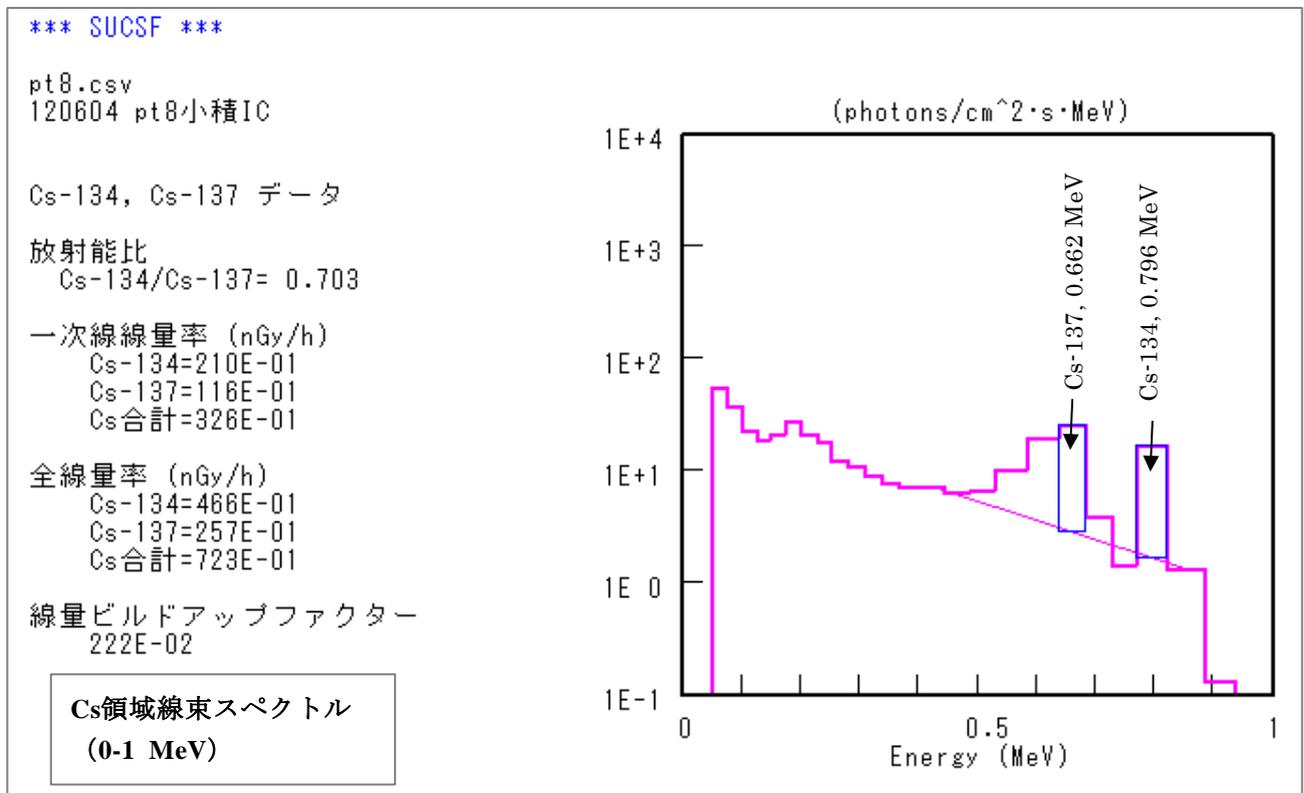


図8 NaIスペクトルの処理例 (^{134,137}Cs領域: 0-1 MeV 入射γ線線束スペクトル)
データ：図5 (A) のスペクトル
矢印枠部分：¹³⁴Csと¹³⁷Csの直接線成分 (湊のソフトウェアによる⁵⁾)

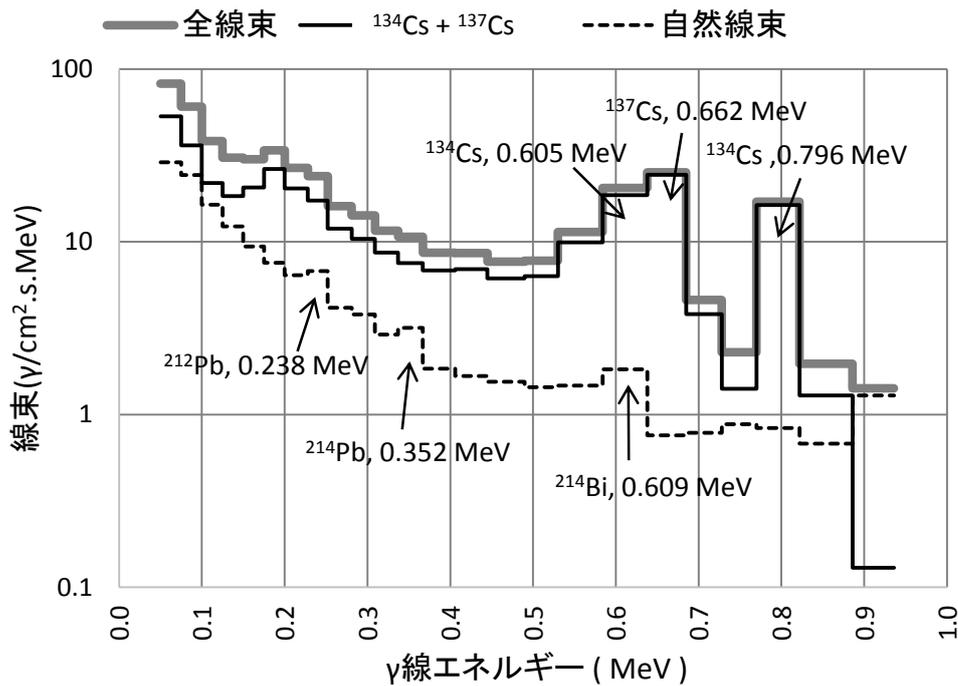


図9 0-1 MeV 線束スペクトルの内訳
 全線束（太灰線）、^{134,137}Cs線束（黒線）、自然核種線束（破線）
 データ：図5（A）のスペクトル

2 宮城県内各地点の自然及び福島第一事故由来^{134,137}Cs線量率の評価

表1は、上述のレスポンスマトリクス（RM）法によって算出した宮城県内の地点におけるγ線線量率を従来法（G(E)関数法）と比較した結果である。後者では事故前の自然核種に基づくバックグラウンド値が既知の場合（固定点であつてかつ晴天時）にのみ、事故後の値から差し引くことによって^{134,137}Cs線量率が算出できる。しかし、RM法では事故後の1個のスペクトルから両方の寄与が求められ、かつ雨天時であってもそれが可能である。

表1 宮城県内の地点における解析法別γ線線量率の比較（nGy/h）

測定地点	測定年月日	RMスペクトル解析法 *1			G(E)関数法		
		全線量率	自然核種 起因線量率	Cs-134+137 寄与線量率	全線量率	福島第一事故前 BG線量率	Cs-134+137 寄与線量率
a（女川町）	'12.6.4	90	46	44	87	48	39
a（女川町）	'14.12.9	66	47	19	68	48	20
b（石巻市）	'12.6.4	139	42	97	133	45	88
b（石巻市）	'14.12.9	88	40	48	93	45	48
c（女川町）	'15.7.28	49	29	20	49	—*2	—
d（東松島市）	'15.8.11	44	36	8	46	—	—
e（仙台市）	'15.8.12	43	33	10	44	—	—
f（丸森町）	'15.8.17	137	41	96	141	—	—

*1 RM: Response Matrix (49×49行列), *2 —: データなし

図10は、表1の上4行分のデータも含め、ほかの宮城県広域におけるRM法による自然起因及び^{134,137}Cs寄与線量率を示す。いずれも晴天時のデータである。これらのうち、地点a、b、g及びhはMカーによる定点であり、2012年6月から2014年12月までの¹³⁴Cs減衰に伴う経時的な線量率減少傾向がみられる。地点bでは^{134,137}Cs寄与が多いが、その理由は、標高が約100mとやや高く(図2(C))、かつ樹木の生えた斜面そばであるため(図3(A))、比較的同事故起因の放射性セシウムの付着・蓄積の影響が強かったものと考えられる。これら以外の地点では自然起因及び^{134,137}Cs起因線量率の両方に地点間差が認められる。

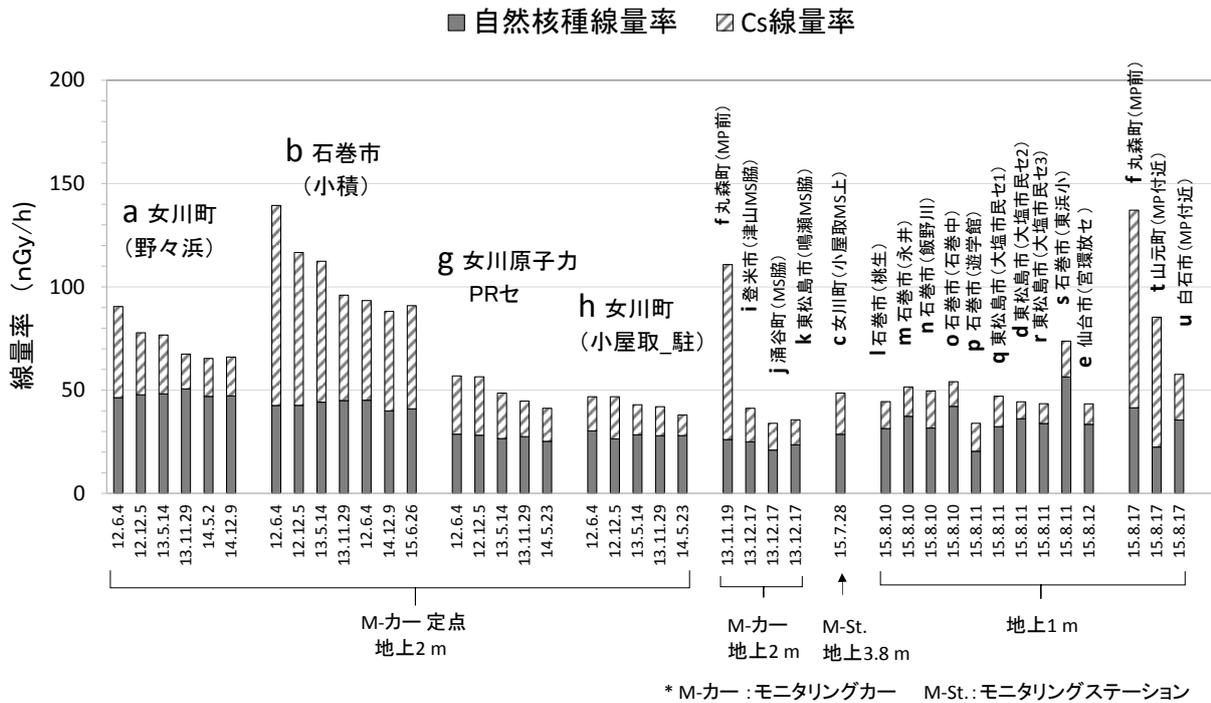


図10 宮城県広域におけるRM法による自然核種及び放射性セシウム起因の線量率

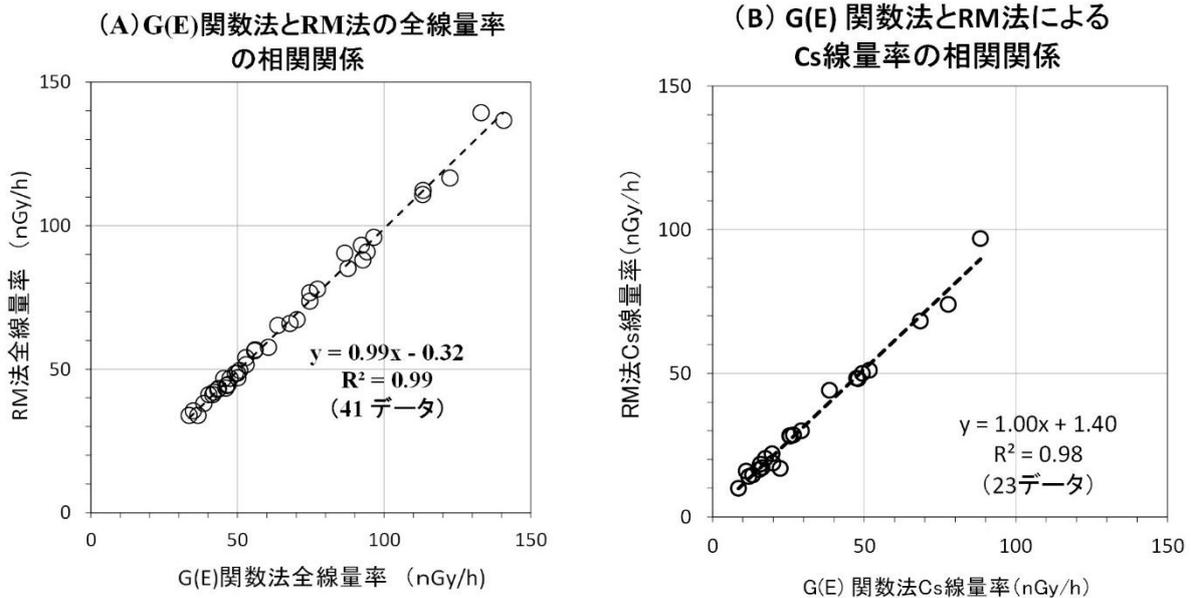


図11 G(E)関数法とRM法による全線量率(A)及び^{134,137}Cs寄与線量率(B)の相関関係

* データ：表1及び図10

ただし、これらは宮城県内の一部の地点におけるデータであり、今後、更に測定地点数を増やしてデータを蓄積することが望まれる。

図 11 は表 1 及び図 10 に示したデータにより、従来法の G(E) 関数法と RM 法による全線量率 (A) 及び ^{134}Cs , ^{137}Cs 寄与線量率 (B) について、相関図を描いたものである。図から、全線量率と ^{134}Cs , ^{137}Cs 寄与線量率の各々について、G(E) 関数法と RM 法間の相関がよいことがわかる。

3 合同庁舎における2”×2” NaIスペクトルの解析例

図 12 は宮城県北部 (地点 x) における 2012 年 4 月から 2016 年 3 月までの 4 年間の線量率の推移を示す。降水に伴う細かい上昇及び冬期積雪による遮蔽効果に起因の低下も認められるが、全体的には約 4 年の間にベースラインが減少しており、これは主に ^{134}Cs の減衰に伴うものである。

図 13 は、宮城県の代表的地点 (地点 v, w, x, y) における 2012 年 4 月初旬と 2015 年 4 月初旬の線量率を比較したものである。同じ時期でも地点間で大きな差があり、また地点によっては 2012 年から 2015 年の間の減少の程度に違いが認められる。

図 14 は、北部の地点 x における 2012 年から 2015 年までの期間のうち、冬期以外の晴天時の代表的時期についてスペクトル解析した結果である。それぞれ、(A) は RM 法による成分別線量率と全線量率並びに G(E) 関数法線量率、(B) は RM 法全線量率の G(E) 関数法に対する比、(C) は ^{134}Cs 対 ^{137}Cs 放射能比、また (D) は ^{134}Cs と ^{137}Cs の線量率ビルドアップファクター (Dose Buildup Factor; DBF) の推移を示す。なお、線量率ビルドアップファクターとは、全線量率 (= 直接線線量率 + 散乱線線量率) を直接線線量率で割った値である。

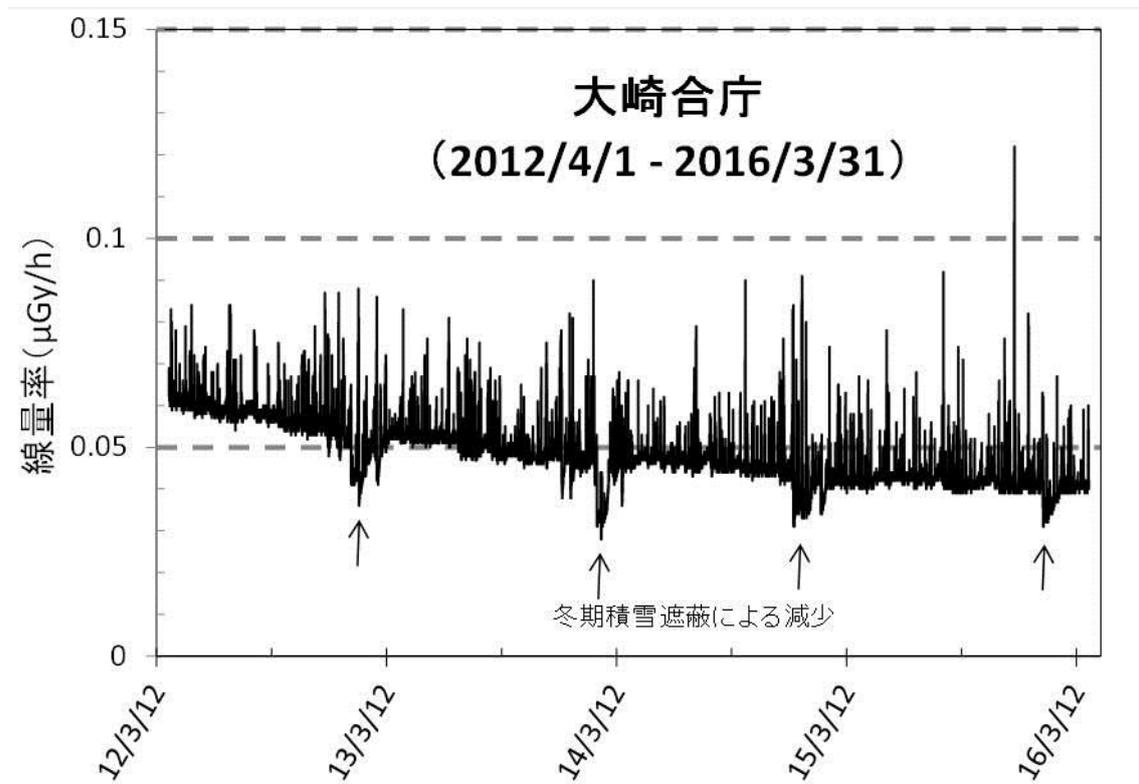


図 12 宮城県北部地域 (地点 x) における 2012 年 4 月から 2016 年 3 月までの線量率の推移
測定条件・測定環境：地上高 1m、芝生植生

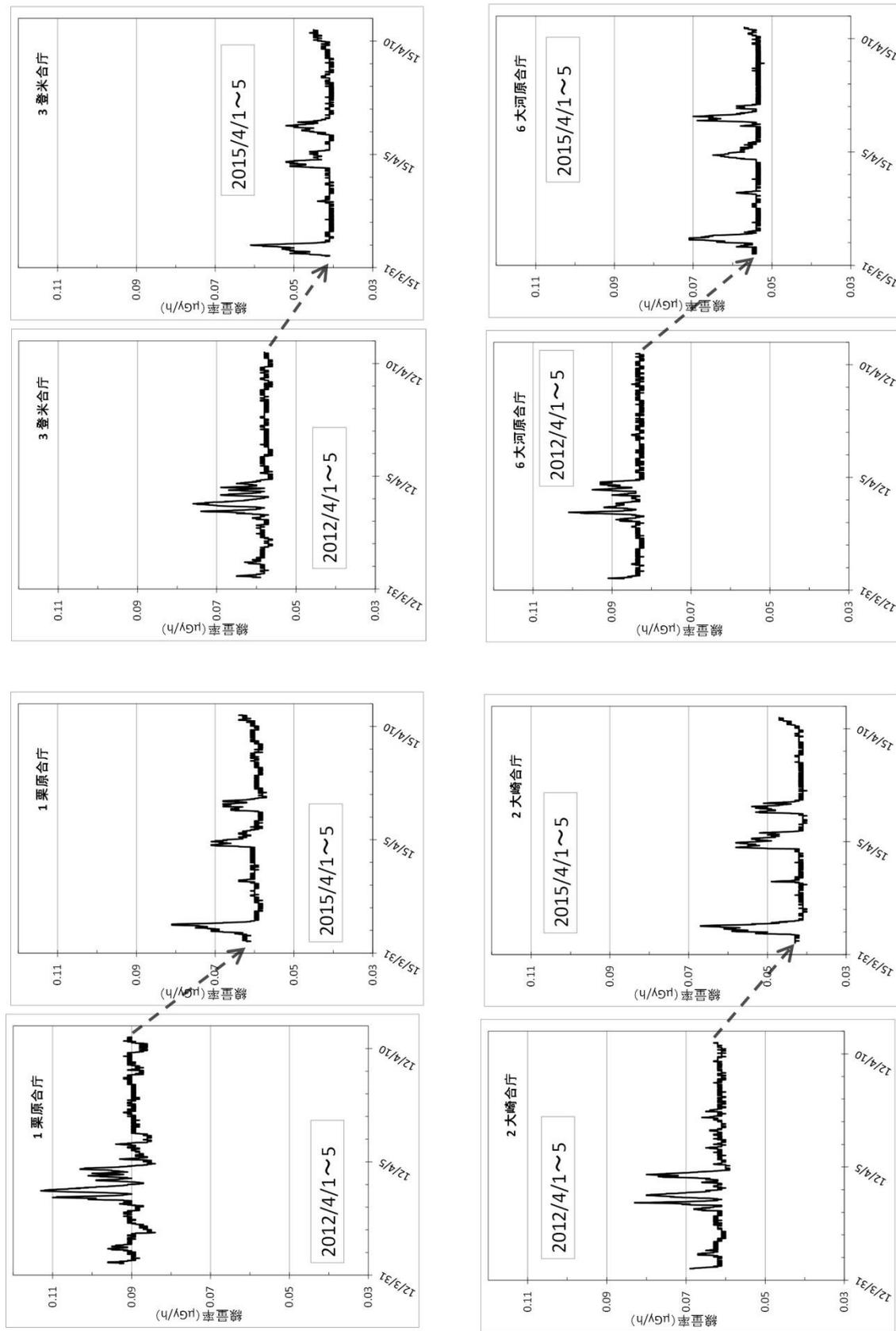


図 13 宮城県の代表的地点（地点 v、w、x、y）における 2012 年 4 月初旬と 2015 年 4 月初旬の線量率の比較
NaI(Tl)検出器高：地上 1m

図 14 の (A) と (B) から、RM 法による全線量率は G(E) 関数法による線量率と大体一致していること、及び ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 寄与線量率は次第に減少していることがわかる。(C) では $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が大体理論的半減期に近い減衰をしていることがわかる。また、(D) では ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 線量率のビルドアップファクターが次第に上昇している傾向がうかがえる。これは恐らく年数経過と共に ^{134}Cs 、 ^{137}Cs が地表面からやや地下方向へ浸透し、散乱線成分が増加しているためと推定される⁹⁾。 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs が地下浸透していることは松田と斉藤によって報告されており¹²⁾、また、著者らの土壤実測データからも確認されている(本年報、技術報告 p. 38-45)。

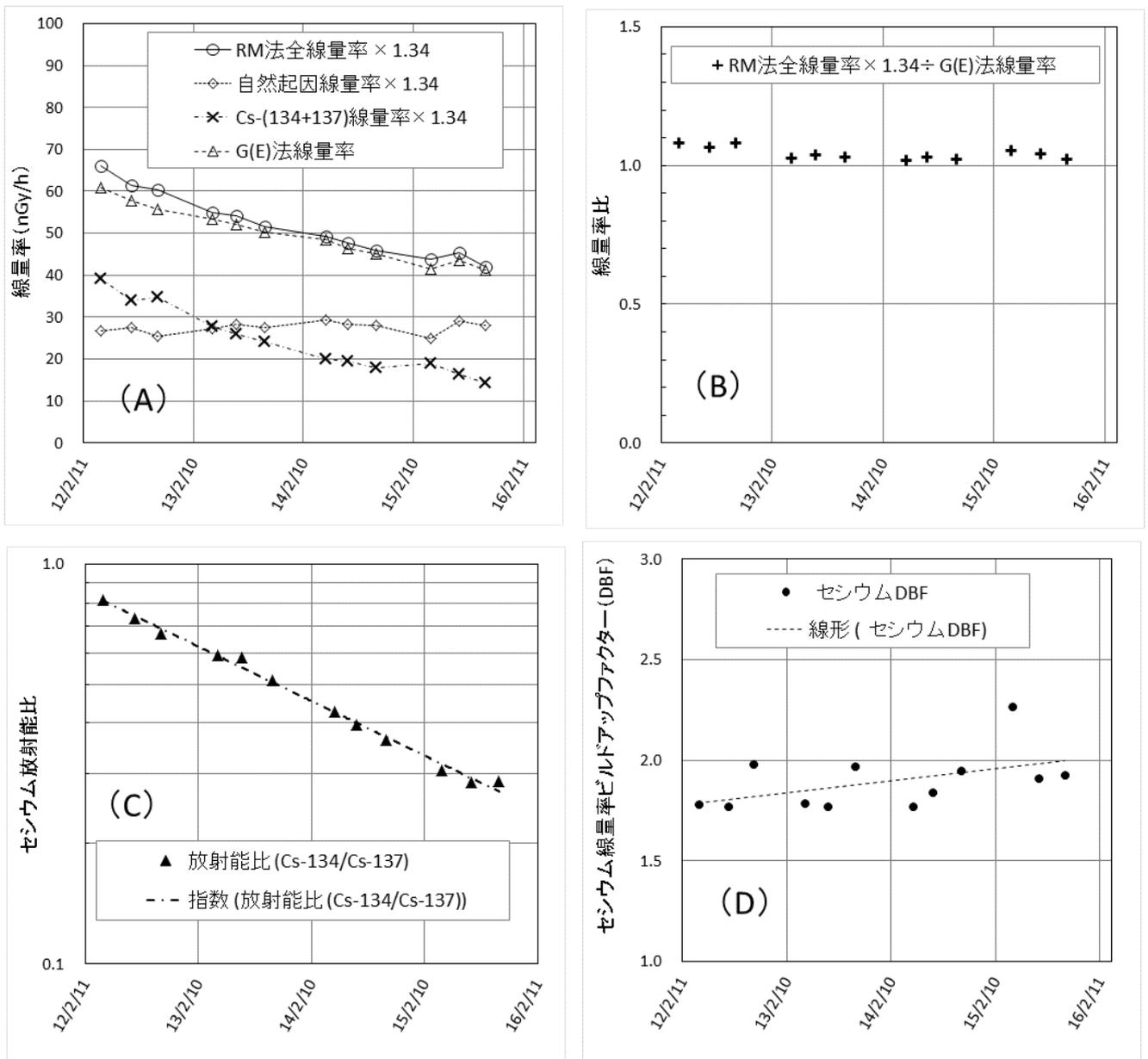


図 14 RM 法による成分別線量率と全線量率並びに G(E) 関数法線量率(A)、RM 法全線量率の G(E) 関数法に対する比(B)、 ^{134}Cs 対 ^{137}Cs 放射能比(C)及び ^{134}Cs と ^{137}Cs の線量率ビルドアップファクター(D)

* 測定・環境条件：地上高 1m、芝生植生

IV まとめ

空間 γ 線スペクトルをレスポンスマトリクス法で処理することにより、自然核種寄与と福島第一原発事故由来放射性セシウム ($^{134},^{137}\text{Cs}$) 寄与とに分離評価した。全線量率をG(E)関数法による値と比較したところ、ほぼ一致した。県内の場所や時期によっては、自然核種寄与と同程度またはそれ以上の放射性セシウム寄与が認められた。宮城県内の同事故影響については、これまでの各機関による様々な調査によってかなりのところまで判明したものの、詳細な放射性セシウムの分布や線量率影響についてはまだ情報に乏しい面も多い。また、数年が経過して土壤中放射性セシウムの深度分布も変化しつつある。そのため、今後、更に本報告で用いた詳細なスペクトル解析手法などを活用し、影響把握を継続する必要がある。

V 謝辞

放射線地学研究所の湊 進博士には新しいレスポンスマトリクス法解析ソフトウェアを提供していただいたほか、一部の線束スペクトルの見やすいグラフを出力していただき、かつ貴重なご助言をいただきました。ここに厚く感謝致します。

VI 参考文献

- 1) 宮城県ホームページ、放射能情報サイトみやぎ
<http://www.r-info-miyagi.jp/r-info/>
- 2) 安藤孝志, 石川陽一, 宮城県原子力センター年報, 第29巻 (2011), 3-24, 2013年.
- 3) 国連科学委員会 (UNSCEAR) 2013年報告書、“2011年東日本大震災後の原子力事故による放射線被ばくのレベルと影響”.
- 4) 吉田浩子ほか、Radioisotopes、62、203-210 (2013).
- 5) 湊 進、環境 γ 線解析用 49×49 応答行列の紹介 (2015)、放地研ホームページ
<http://www1.s3.starcat.ne.jp/reslnote/>
- 6) 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
<http://radioactivity.nsr.go.jp/map/ja/>
- 7) 日本の環境放射能と放射線ホームページ、連続モニタによる環境 γ 線測定法 No. 17, 1996年.
- 8) 放射線地学研究所ホームページ、旧号一覧、正面入射と等方入射 (四方山話 # 291) .
(2017年3月現在では表題のみの記載につき、内容はホームページ管理者へ請求必要.)
- 9) 湊 進, 私信.
- 10) 原子力規制委員会、放射線量等分布マップ拡大サイト
<http://ramap.jmc.or.jp/map/>
- 11) 鶴田治雄, 中島映至, 地球化学, 46, 99-111, 2012.
- 12) 松田規宏, 斉藤公明, “土壤中の放射性セシウムの深度分布調査”, 平成27年度東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約事業成果報告書, Part1. 放射性物質の分布状況の調査, 原子力規制委員会, 放射線モニタリング情報, 2016年3月. <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/564/list-1.html>

2015年12月4日に発生した空間放射線量率の変動について

木村昭裕、石幡茜、石川陽一、佐藤健一¹、榎野光永²

2015年12月4日の降水時に県内のモニタリングステーション（以下「MS」という。）やモニタリングポスト（以下「MP」という。）で空間放射線量率（以下「線量率」という。）が上昇し、多くのMS等で線量率が過去の最大値又は東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故前の最大値を超過した。同時に観測しているガンマ線スペクトルには、天然放射性核種由来の計数のみ増加が確認されたことから、降水に伴い通常より多くの天然放射性核種が降下したため線量率が上昇したと考えられた。

I はじめに

宮城県では、東北電力株式会社（以下「電力」という。）女川原子力発電所（以下「発電所」という。）の周辺環境監視のため、図1に示すようにMS等の観測局を設置し、線量率を連続測定している。これらの観測局は、小屋取局が1982年度から、女川局及び寄磯局が1983年度から、電力設置の塚浜局、寺間局、江島局及び前網局が1984年度から、可搬型MP5局が2012年度から、石巻稲井局他9局のUPZ（緊急時防護措置を準備する区域）圏のMSが2013年度から運用を開始している。

本県では、2011年3月に発生した東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故の際に放出され地表に沈着した放射性セシウムの影響で、現在でも同事故前と比較して線量率がやや高いレベルで推移しているが、2015年12月4日の降水時に各局ともに線量率が大幅に上昇し、多くのMS等で線量率が過去の最大値又は東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故前の最大値を超過した。本報告書では、線量率が上昇した原因等について述べる。

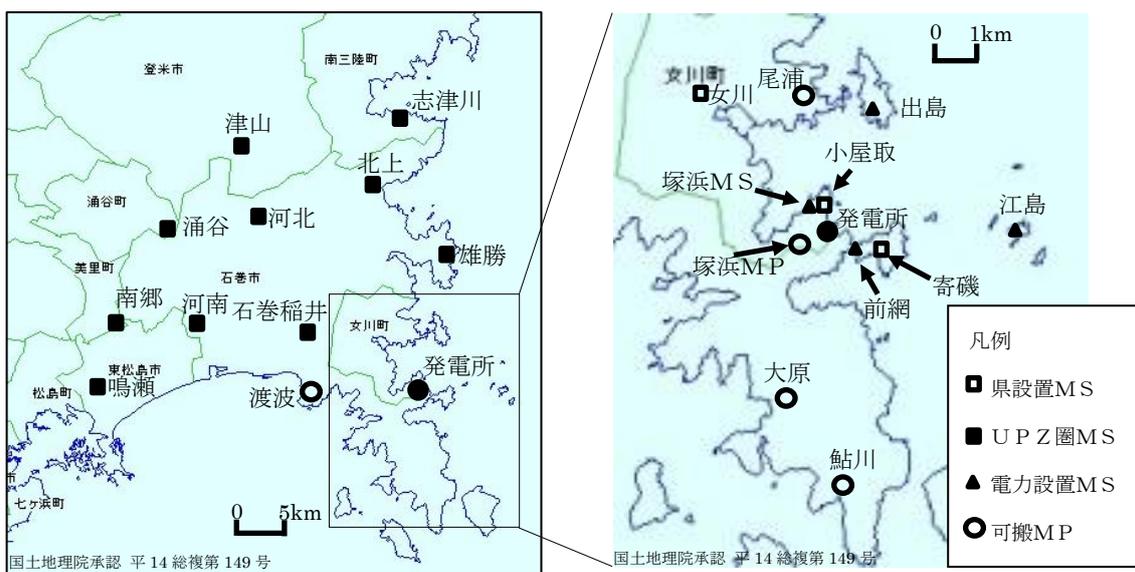


図1 MS等の配置

- 1 現在、宮城県気仙沼保健所
- 2 現在、東北緑化環境保全株式会社

II 線量率の推移とガンマ線スペクトルの確認について

図2に2015年12月4日の女川局、小屋取局、寄磯局及び今回最大の値を観測した南郷局の線量率及び降水量の推移を示す。また、表1には、今回観測された各MS等の線量率の最大値及びその観測時刻を示す。

線量率は、降水とともに上昇し、最大値は女川局で15時に128.0 nGy/hを、小屋取局で15時20分に135.5 nGy/hを、寄磯局で15時20分に129.5 nGy/hを、南郷局で14時50分に153.3 nGy/hを観測している。

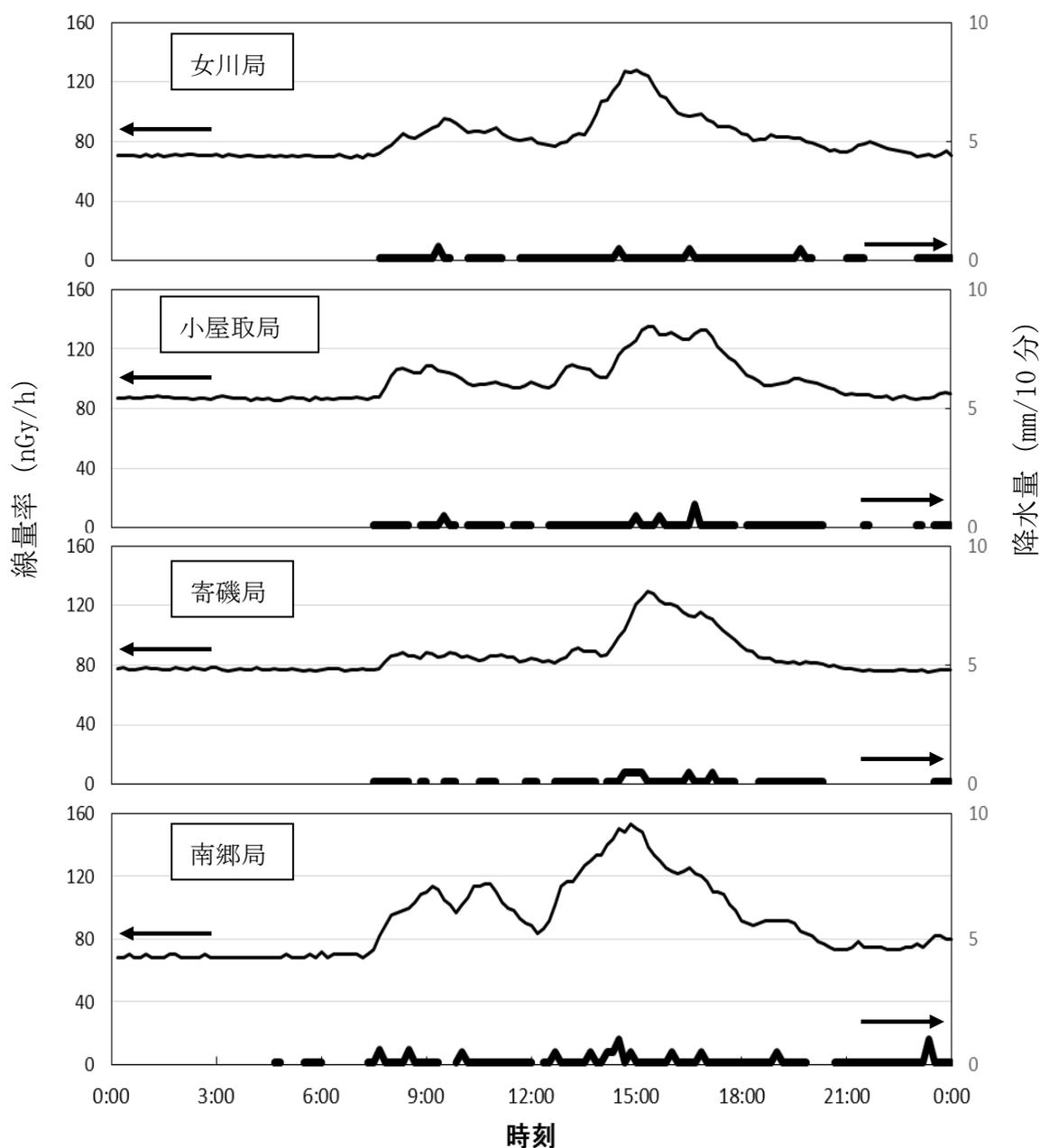


図2 2015年12月4日の女川局、小屋取局、寄磯局、南郷局の線量率と降水量の推移

表1 2015年12月4日の各MS等の線量率^{※1}の最大値とその観測時刻

局名	線量率の 最大値 (nGy/h)	観測時刻	降水の 有無 ^{※2}	(参考) 過去の最大値/平均値	
				福島第一原発 事故前 (nGy/h)	福島第一原発 事故後 (nGy/h)
女川 ^{※3}	128.0	15:00	有	103.3 / 63.7	112.0 / 70.5
小屋取 ^{※4}	135.5	15:20	有	124.3 / 74.6	160.3 / 87.4
寄磯 ^{※3}	129.5	15:20	有	105.0 / 68.1	141.3 / 78.8
塚浜MS ^{※5}	132.1	16:50	-	126.3 / 73.6	158.4 / 87.1
寺間 ^{※5}	119.2	15:00	有	121.0 / 67.3	126.5 / 74.3
江島 ^{※5}	127.5	15:30	有	103.3 / 62.6	111.2 / 66.5
前網 ^{※5}	146.1	15:20	-	126.3 / 778	165.2 / 94.2
石巻稲井 ^{※6}	118.4	14:30, 40	有	-	98.3 / 65.3
雄勝 ^{※6}	106.6	14:50, 15:00	有	-	108.3 / 70.0
河南 ^{※6}	143.4	14:50	有	-	105.0 / 68.9
河北 ^{※6}	128.3	15:00	有	-	108.3 / 68.9
北上 ^{※6}	141.7	14:50	有	-	120.0 / 82.7
鳴瀬 ^{※6}	126.7	15:00, 10	有	-	103.3 / 64.0
南郷 ^{※6}	153.3	14:50	有	-	115.0 / 71.0
涌谷 ^{※6}	146.7	14:40, 50	有	-	103.3 / 64.2
津山 ^{※6}	128.3	14:40, 50	有	-	108.3 / 69.6
志津川 ^{※6}	126.7	13:10	有	-	110.0 / 68.4
尾浦 ^{※7}	90.0	14:40	-	-	79.0 / 42.8
渡波 ^{※7}	64.4	15:10	-	-	72.9 / 48.3
塚浜MP ^{※7}	112.6	15:20	-	-	99.1 / 47.6
大原 ^{※7}	68.9	17:00	-	-	72.4 / 47.2
鮎川 ^{※7}	93.9	17:00	-	-	113.8 / 70.1

※1 尾浦、渡波、塚浜MP、大原及び鮎川の検出器はNaI(Tl)検出器で、その他は、電離箱検出器で測定した結果である。

※2 -は降水観測を実施していないことを示す。

※3 1983年度から測定を開始した。

※4 1982年度から測定を開始した。

※5 1984年度から測定を開始した。

※6 2013年度から測定を開始した。

※7 2012年度から測定を開始した。

図3から図5に、女川局、小屋取局及び寄磯局のそれぞれのガンマ線スペクトルを今回の線量率最大時のものと非降水時（同日午前6時）のものとを比較して示す。

いずれもピークの上昇はウラン系列の天然放射性核種であるビスマス214と鉛214のみ認められ、人工放射性核種のピークの上昇はなかったことから、今回の線量率の上昇は、発電所起因ではないものと考えられた。

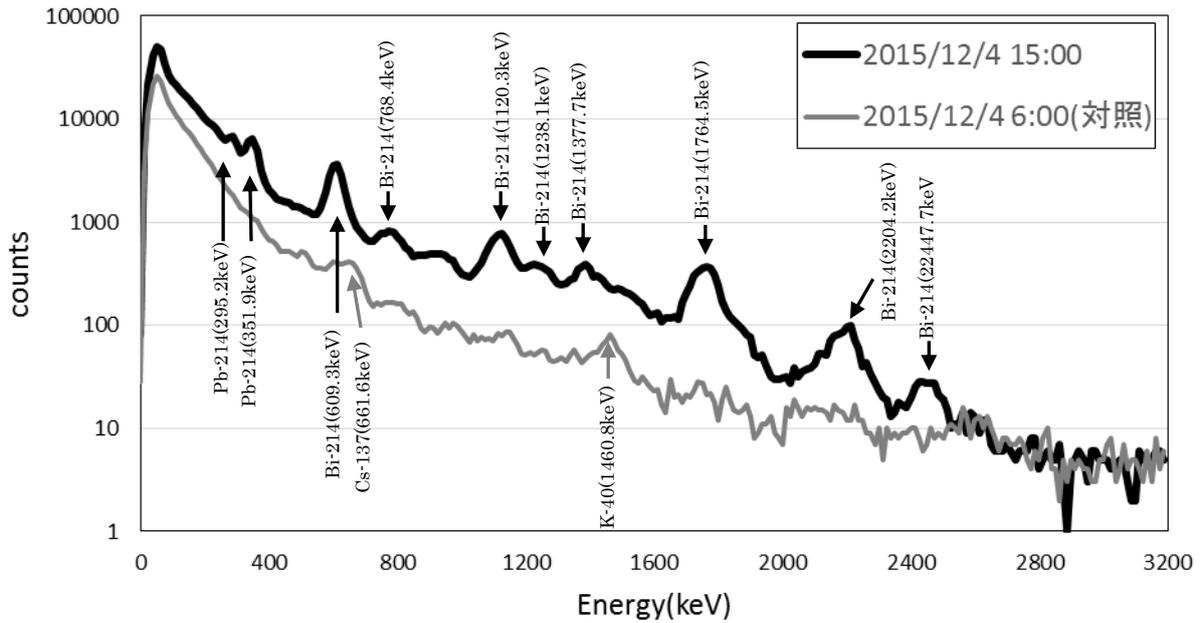


図3 線量率最大時のガンマ線スペクトル（女川局）

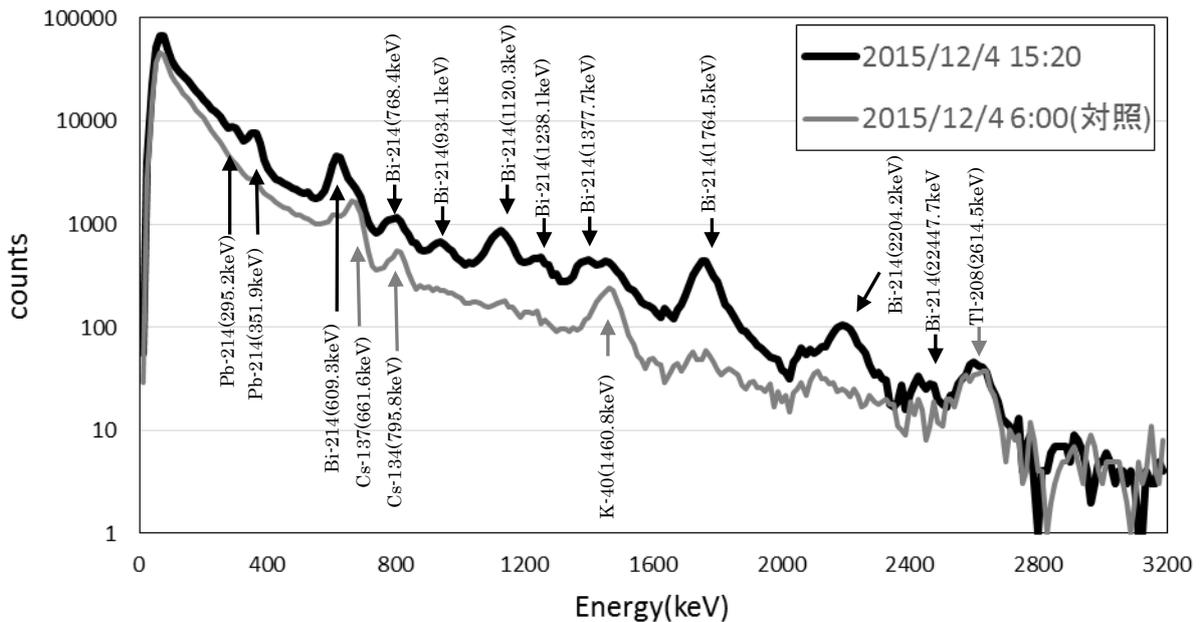


図4 線量率最大時のガンマ線スペクトル（小屋取局）

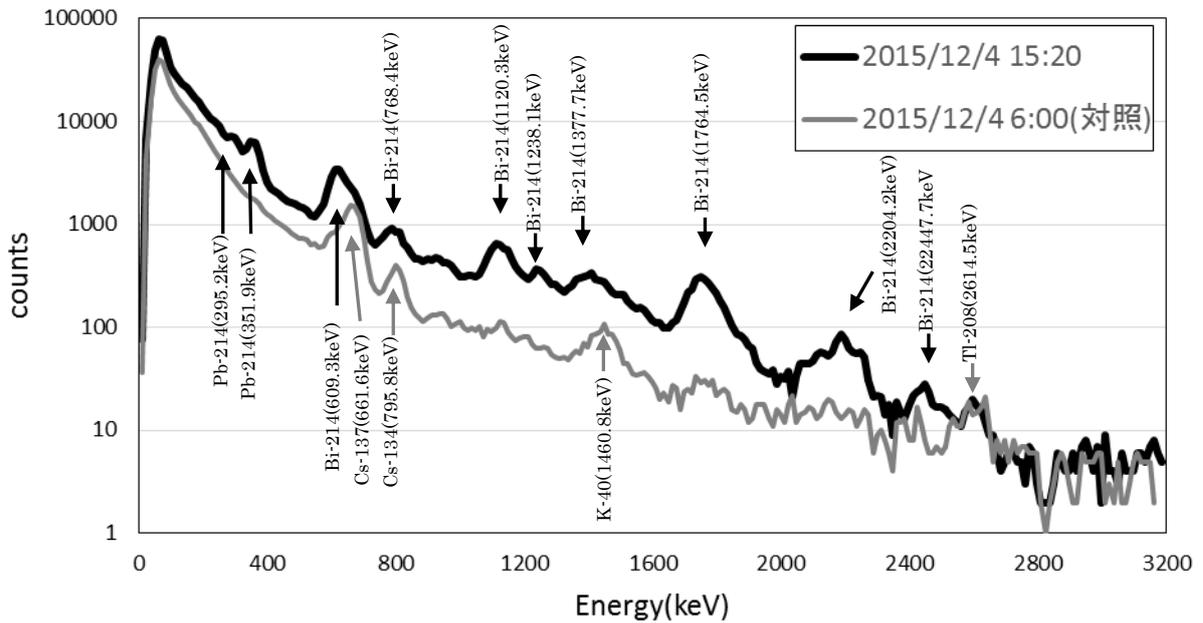


図5 線量率最大時のガンマ線スペクトル（寄磯局）

III 線量率上昇の原因の検討

図6に当日15時の気圧配置図を、図7に同時刻の風向風速図を示す。日本列島を含む広い地域で西からの風が吹いている。

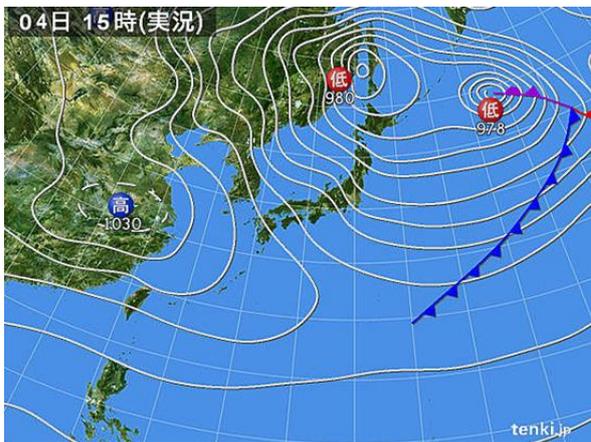


図6 2015年12月4日15時の気圧配置図

引用元：気象協会ホームページ

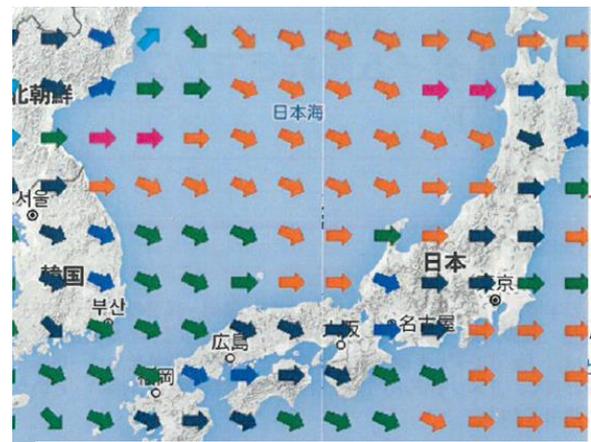


図7 2015年12月4日15時の風向風速図

引用元：国立情報研究所ホームページ

表2には、当日降水があった富山市、新潟市及び山形県村山市の線量率の最大値とその観測時刻を示す。西の地域から順に線量率の最大値が観測される傾向があることが分かる。

表2 2015年12月4日の近県等におけるNaI (T1) 検出器による線量率の変動状況

引用元：原子力規制委員会ホームページ

観測地点	最大値 (nGy/h)	観測時刻	直近1ヶ月の 平均値
富山市	138	6:30	約 75nGy/h
新潟市	129	7:20	約 50nGy/h
山形県村山市	132	14:20	約 50nGy/h



図8は、宮城県仙台市付近の大气について72時間前までの後方流跡線解析結果を示したものである。この図から、12月4日午後3時ごろの仙台市付近の大气は大陸性気団の影響下にあったものと考えられた。

大陸性気団は、ラドンの含有量が高いことから、降水時にその子孫核種であるビスマス214と鉛214が多く降下することが知られている^{1) 2) 3)}。今回も同様のメカニズムで本県の広範囲で線量率の上昇が観測されたものと考えられた。

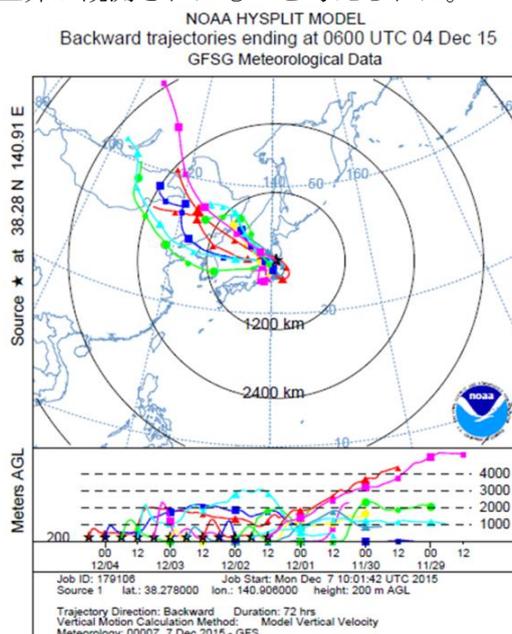


図8 後方流跡線解析結果

引用元：NOAAホームページ

IVまとめ

2015年12月4日の降水時に県内のMS等で線量率が上昇し、過去の最大値を超過した観測局もあった。ガンマ線スペクトルからは、天然放射性核種由来のみの計数の増加が確認され、人工放射性核種由来の計数の増加は観測されなかった。他県のMP等の線量率の上昇の傾向や後方流跡線解析から、大陸由来の大気が上空を通過する際に降水を伴ったため、多くの天然放射性核種が降下し線量率が上昇したものと考えられた。

V参考文献

- 1) 木立博, 石川陽一, 佐々木俊行, 宮城県原子力センター年報, 第20巻, p.10-17(2002).
- 2) 橋崎光太郎, 関根彰吾, 高野尚人, 丸田文之, 新潟県放射線監視センター年報, 第12巻, p.41-44(2014).
- 3) 小川登, 片岡敏夫, 道広憲秀, 岡山県環境保健センター年報, 29, p1-8(2005).

空間ガンマ線線量率の調査レベルの設定について

石幡茜, 木村昭裕, 佐藤健一, 榎野光永

当センターでは、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故（以下「福島第一原発事故」という。）の影響により空間ガンマ線線量率のバックグラウンドレベルが上昇したことを受け、調査レベルの設定方法を暫定的に変更し、女川原子力発電所からの予期せぬ放射能の放出の有無を監視してきたところである。空間ガンマ線線量率の減衰が緩やかになってきている事象が認められたことから、調査レベル設定方法の見直しを行った。

I 経緯

平常時モニタリングにおいて、平常の変動幅と測定値を比較することは、多数の測定データをふるい分け、原子力施設由来の予期せぬ放射能（線）を検出するために有効であり、有意な測定値が得られた場合の平常の変動幅は、「過去の測定値の平均値±(3×標準偏差)」とされている¹⁾。本県では福島第一原発事故前まで、この概念を基に「過去2年度平均値+過去2年度標準偏差の3倍」を調査レベルと設定することにより、女川原子力発電所からの予期せぬ放射能の放出の監視ができると考えてきた。

しかし、福島第一原発事故で放出された放射性セシウムが影響して空間ガンマ線線量率のバックグラウンド値が上昇し、その後物理的半減期やウェザリングによって減衰しているため、従来の調査レベル設定方法では、適切な監視ができない状況となった。そのため、表1のように調査レベルの設定方法を適宜見直してきた²⁾。

図1～7で示すように線量率の減衰の程度がさらに緩やかになってきたため、平成27年度の調査レベルは図8及び表2のとおり線量率の減衰傾向が反映されず、季節的な変動の影響が顕著となり、値が上下した。そこで、再び調査レベル設定方法の見直しを行った。

表1 調査レベルの設定方法の推移

	設定頻度	設定方法
～平成22年度	年度毎	過去2年度平均値+過去2年度標準偏差の3倍
平成23, 24年度	月毎	前月平均値+平成20・21年度標準偏差の2倍
平成25, 26年度	四半期毎	前四半期平均値+前四半期標準偏差の2倍
平成27年度	四半期毎	前2四半期平均値+前2四半期標準偏差の3倍

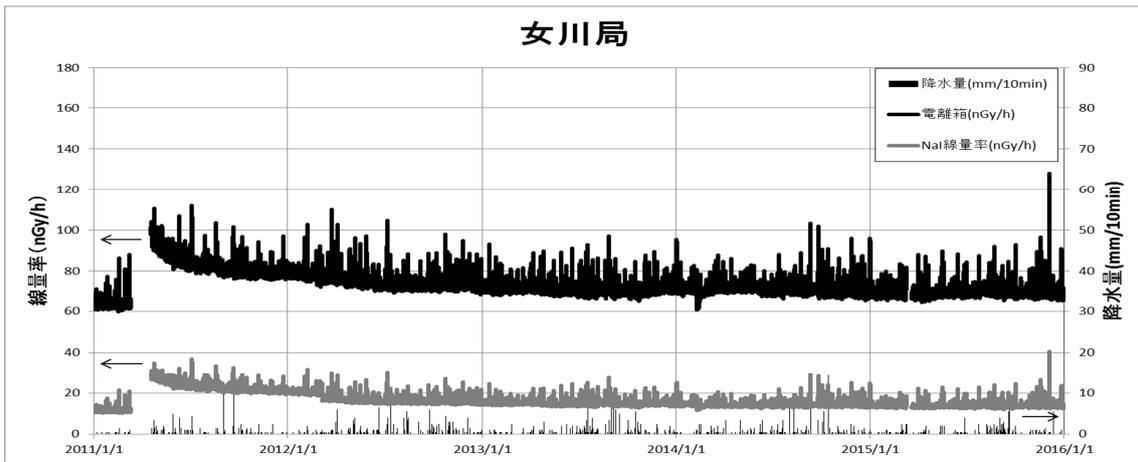


図1 女川局における空間ガンマ線線量率と降水量

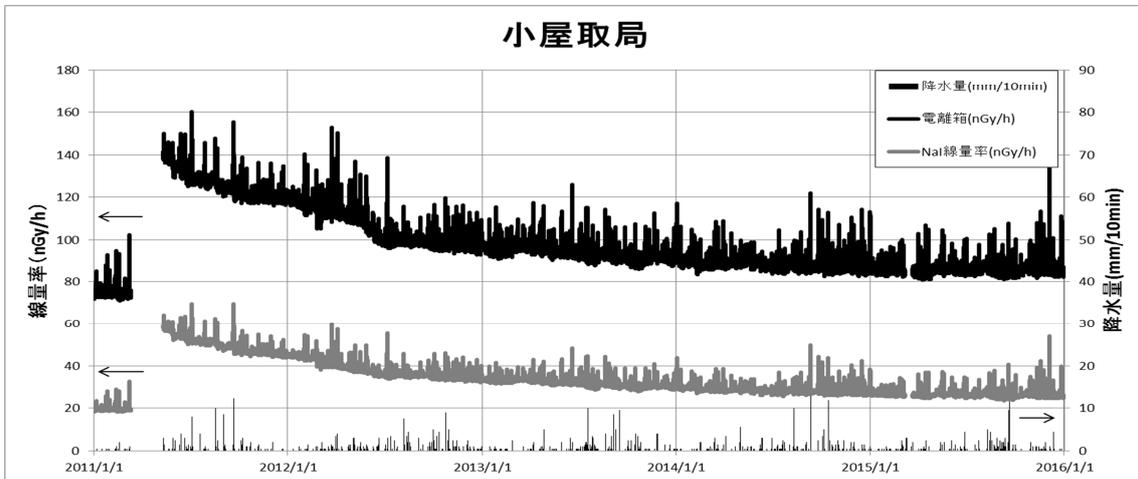


図2 小屋取局における空間ガンマ線線量率と降水量

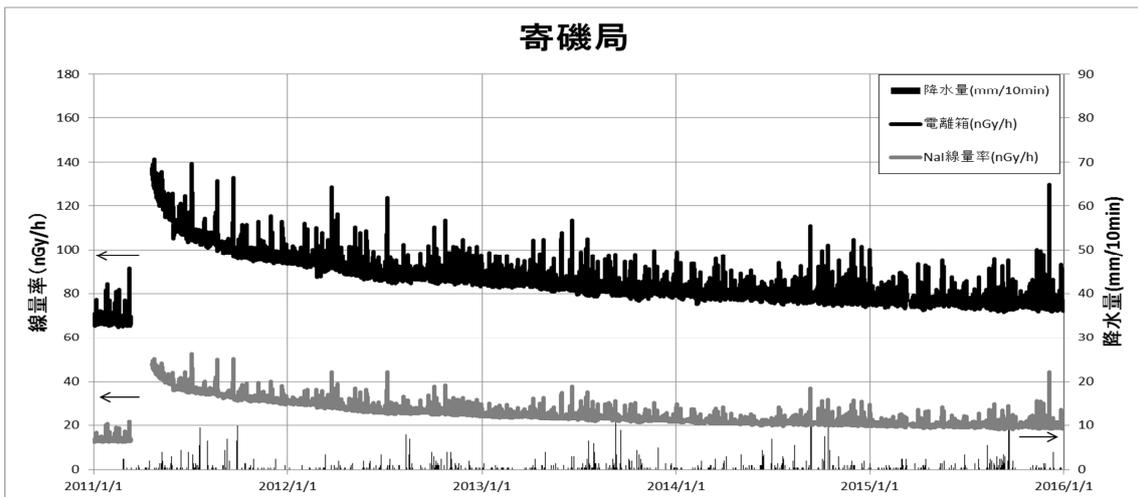


図3 寄磯局における空間ガンマ線線量率と降水量



図4 塚浜局における空間ガンマ線線量率

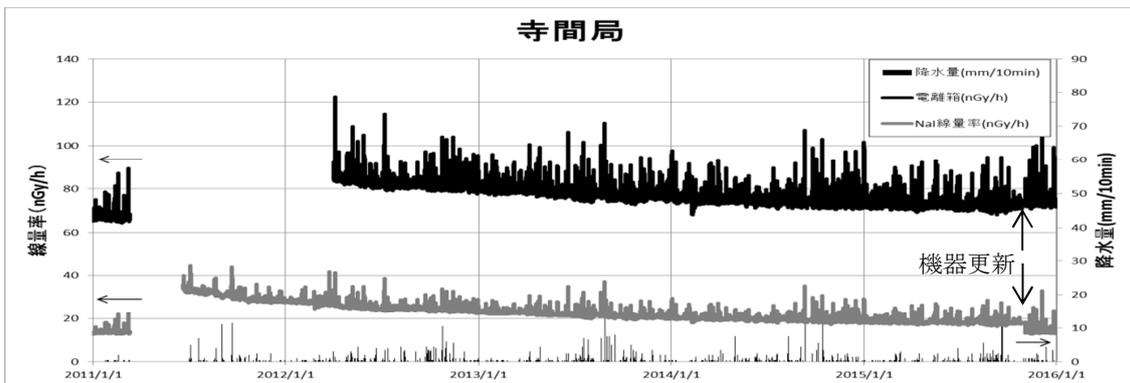


図5 寺間局における空間ガンマ線線量率と降水量

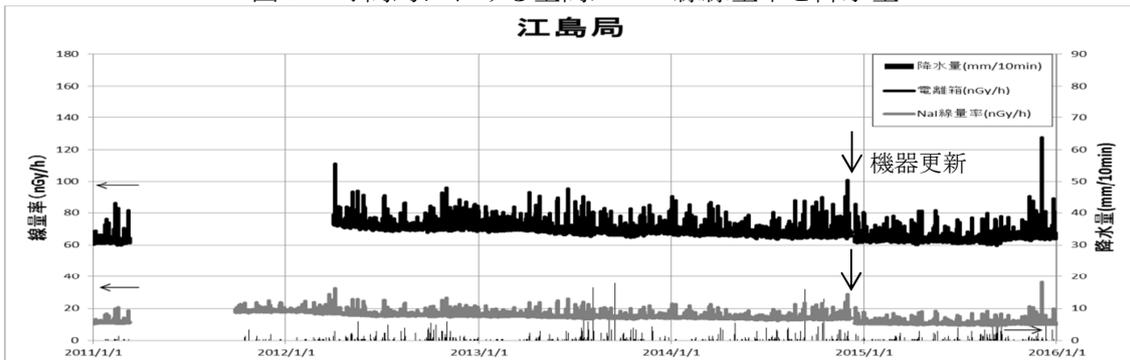


図6 江島局における空間ガンマ線線量率と降水量



図7 前網局における空間ガンマ線線量率と降水量

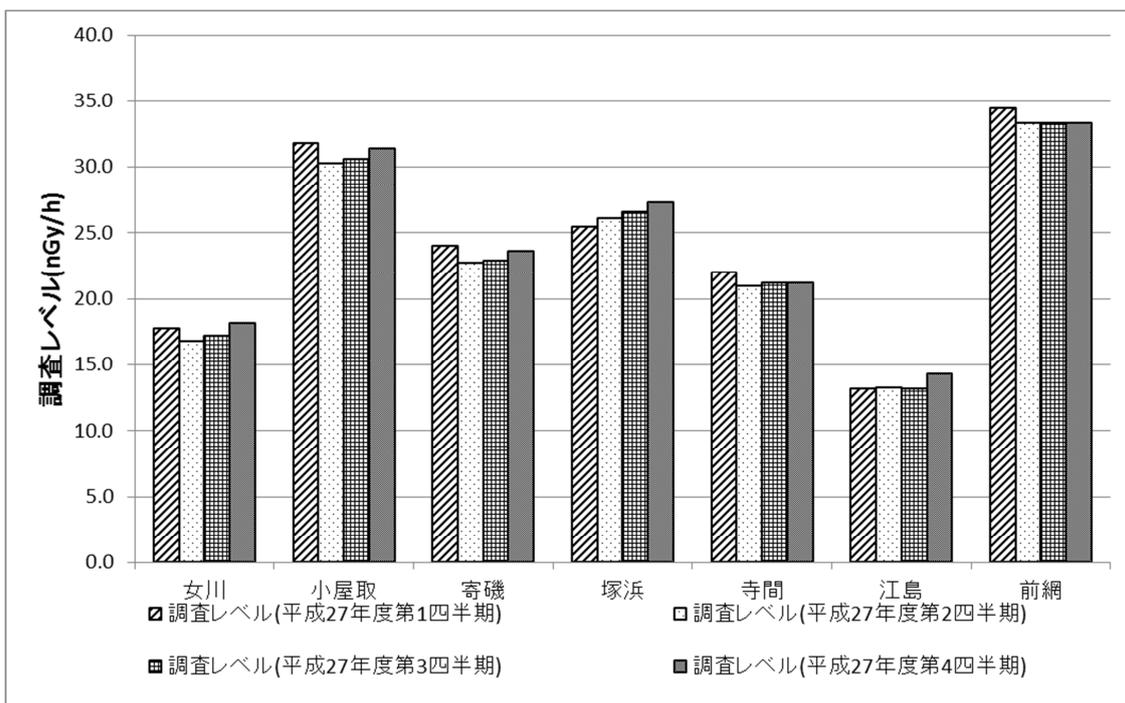


図8 現在の設定方法（前2四半期平均値+前2四半期標準偏差の3倍）による調査レベルの推移と調査レベルの試算結果

表2 現在の設定方法（前2四半期平均値+前2四半期標準偏差の3倍）による調査レベルの推移

【推移】前2四半期平均値+3σ	計算に使用したデータの測定期間	女川	小屋取	寄磯	塚浜	寺間	江島	前網
調査レベル(平成27年度第1四半期)	平成26年10月～平成27年3月	17.8	31.8	24.0	25.5	22.0	13.2	34.5
調査レベル(平成27年度第2四半期)	平成27年1月～6月	16.8	30.3	22.7	26.1	21.0	13.3	33.3
調査レベル(平成27年度第3四半期)	平成27年4月～9月	17.2	30.6	22.9	26.6	21.2	13.2	33.3
調査レベル(平成27年度第4四半期)	平成27年7月～12月	18.2	31.4	23.6	27.3	21.2	14.3	33.3

単位:nGy/h

II 調査レベルの設定方法の検討について

モニタリングステーション計7局（宮城県3局，東北電力(株)4局）について，調査レベルの設定方法を検討した。

母集団を増やすことで季節変動を抑えることができるため，母集団を前年度期間とした場合の調査レベルを試算し，その結果を表3に示す。機器更新前後の値が試算の対象となる塚浜局及び江島局を除く5局について比較すると，女川及び寄磯では実績の範囲内，小屋取，寺間及び前網では0.3～0.9nGy/h高い程度と，実績とほとんど変わらない試算結果が得られた。また，機器更新のない宮城県3局についてその推移を試算したところ，図9のとおり，平成28年度調査レベルは27年度より若干低くなっており，線量率の減衰傾向を調査レベルに反映できると考えられた。

表3 調査レベルの試算結果（前年度平均値＋前年度標準偏差の3倍）

	【試算】 前年度平均値＋3σ	【平成27年度実績】 前2四半期平均値＋3σ
女川	17.6	16.8～18.2
小屋取	32.1	30.3～31.8
寄磯	24.0	22.7～24.0
塚浜	(28.6)	25.5～27.3
寺間	22.3	21.0～22.0
江島	(18.2)	13.2～14.3
前網	35.4	33.3～34.5
計算に使用したデータの測定期間	平成26年4月～平成27年3月	

単位:nGy/h

* 塚浜局と江島局の試算結果には、測定器更新前のデータが含まれるため、参考値とし、カッコ書きとした。

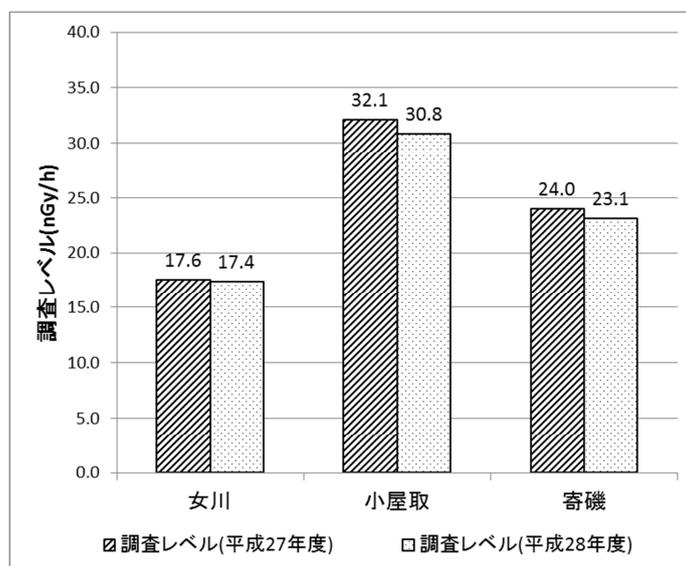


図9 調査レベルの試算結果（前年度平均値＋前年度標準偏差の3倍）

III まとめ

今回の検討により、平成28年度からは前年度平均値＋前年度標準偏差の3倍を調査レベルとすることが適当であることが分かった。また、調査レベルの設定頻度は年度毎とする。

今後も線量率の減衰の程度を注視し、適切な調査レベル設定を行う必要があると考えている。

IV 参考文献

- 1) 原子力安全委員会，環境放射線モニタリング指針(2010年4月一部改訂)
- 2) 宮城県原子力センター年報，第32巻，p.7-12(2014)

宮城県内土壌中の福島第一原発事故由来 ^{137}Cs 濃度の深度分布石川陽一、新井康史¹、畠山紀子

宮城県内の2地点において、2013年と2015年に福島第一原子力発電所事故由来の ^{137}Cs の土壌中深度分布を測定した。場所によって最表層の0-1 cmの濃度は約100-2000 Bq/kg (湿重量) の範囲にあった。それぞれの地点において、2013年と2015年の測定で必ずしも同じ場所で繰り返し測定したわけではなかったものの、 ^{137}Cs の深度分布は、2013年にはほぼ表層から深さ方向に指数関数的であったが、2015年の測定では少し深い方向に浸透している傾向が認められた。

I はじめに

宮城県は2011年3月の福島第一原子力発電所事故(以下、「福島第一事故」)起因の放射性セシウム(^{134}Cs と ^{137}Cs)によって広域汚染を受けた。土壌中の放射性セシウムの濃度を把握することは、農産物の汚染や空間線量への影響の観点から非常に重要で、これまで、宮城県内では耕作地や未耕作地等において数多く行われてきた^{1),2)}。一方、効率的な土壌の除染や空間ガンマ線スペクトル解析による放射性セシウム寄与線量率評価の観点からは深度分布の把握も重要である³⁾。本稿では、主に後者の目的に役立つため、予備的に幾つかの地点において深度分布を調べたので報告する。

II 方法

1 試料の採取と処理

土壌試料は、図1に示す仙台市内(A、Bの2カ所)と大崎市岩出山(C地点)において、内寸5cmφの柱状の土壌採取器を用いて地表から5-10cm程度の深さまで採取した。採取の際、表面の草は除去した。深さ別の濃度測定のため、採取した試料は1cm厚毎に押し出して裁断した。次いで、測定試料内の不均一防止のため、それぞれをよく混合してから各々1個のU8型容器に湿ったまま充填した。表1から表3に、測定結果と合わせて試料情報を記載してある。1本のコアを深さ別に測定、または3本のコアの同じ深さの層を混合して一つの試料として測定した場合もある。層別の測定終了後、濃度の低い自然核種測定のため、表1に示すように、表層から最下層まで混合して測定した。

図2と図3に、それぞれ仙台市と大崎市における採取地点の写真、採取状況または採取場所の



図1 宮城県内の土壌採取地点

1 現在、宮城県原子力安全対策課

イラストを示す。図2の仙台市内の採取地点では、AとBの2カ所で採取した（図2 a））。いずれも芝生または丈の低い雑草が生えた平坦な旧消防学校の敷地内である（図2 b）及びc）。Bでは数m範囲内で4点採取した。d)とe)には採取器具とコア打ち抜き状況を示す。図3の大崎市岩出山城山公園の採取地点CではC1-C3の3カ所で採取した（各々、C1で3点、C2で5点及びC3で1点）。この場所は周囲に桜が植えられているが、中央部は平坦な草地となっている。図4はその採取状況を示す写真である。

2 放射能測定

容器に充填した試料を相対効率が約25%のGe半導体検出器によって3,000-80,000秒測定して放



図2 仙台市内の土壌採取地点と採取器具及び処理方法

- a) 全景
- b) 地点 A
- c) 地点 B
- d) 採取器具一式
- e) コア打ち抜き状況

* e)では、円盤付き押し出し棒により筒の中の土壌を1cmずつ採取している。



- : C1 '13/3/15
(3点各層混合)
- ×: C2 '13/6/11
(5点)
- △: C3 '15/10/13

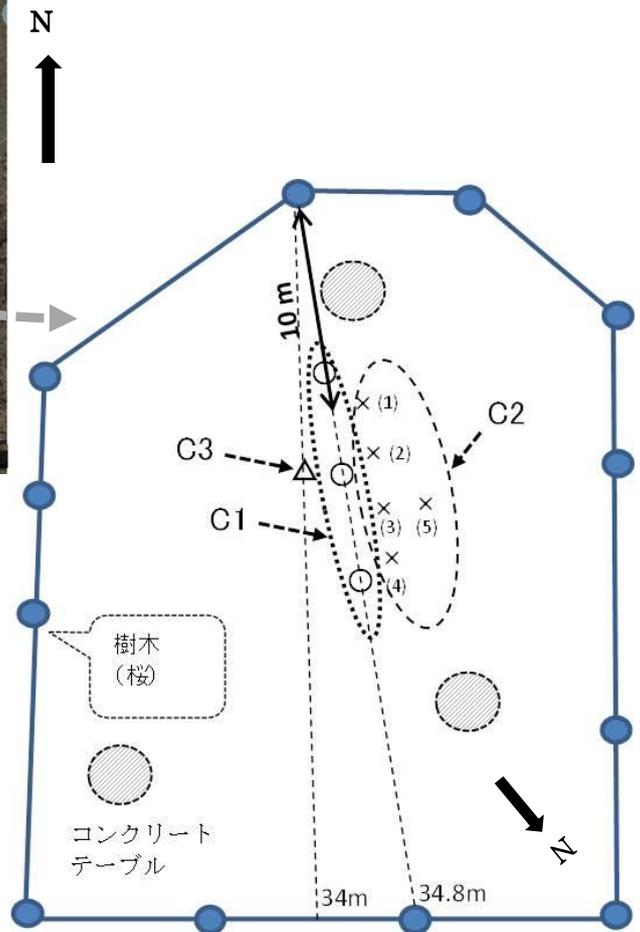


図3 大崎市内の採取地点



図4 大崎市内の陸土採取風景 (C2 地点)

射能濃度を求めた。¹³⁷Csや⁶⁰Co等の既知量のアイソトープが添加された標準試料によって検出効率を求め、セイコーEG&G社製の解析プログラムによってスペクトル解析を行った。

図5は、地表面からある層の中心までの土壌の深度³⁾を表すモデルを示している。右側の図においては単位面積を考え、表面からi番目の層の中心までの長さ単位の深度を d_i (cm)、重量単位の深度を ζ_i (g/cm²) で表している。 d_i は通常の意味での長さ単位の深さであり、着目しているi番目の層では中間の1/2深さとするので、図のように表面から(i-1)番目の層までの深さの合計プラスi層の深さの1/2である。重量深度は長さの代わりに重量で表すため、表面から(i-1)番目までの層の密度×深さの合計プラスi層の重量の1/2である。各層の深さが単位長さ(1 cm)であれば、重量深度は各層の密度の和で表される。表2と3には実際の試料の重量深度の値も記載した。

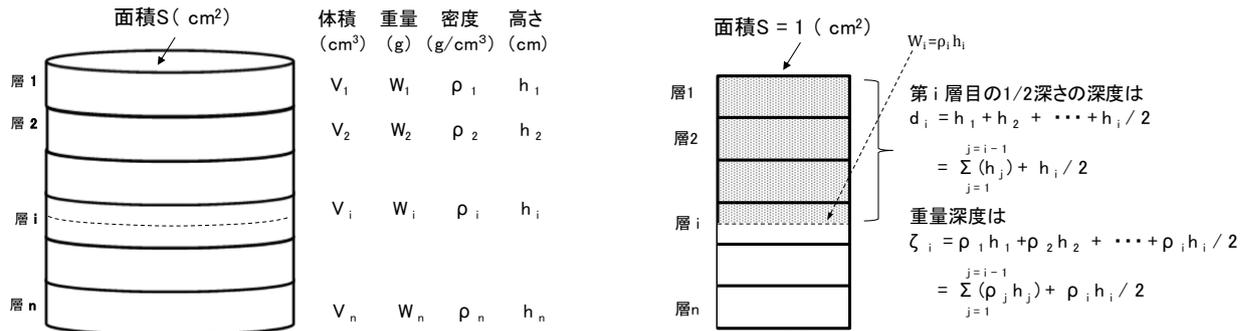


図5 陸土の深度を表すモデル

III 結果及び考察

表1は仙台市と大崎市の土壌中の自然放射性核種 (²¹⁴Pb、²¹²Pb及び⁴⁰K) の濃度の例を示す。それぞれ、²¹⁴Pbと²¹²Pbはウラン系列とトリウム系列の代表として選択したものである。各層の試料量が少なかったため、また自然放射性核種濃度は深さによってあまり値が違わないと考えられたため、表層から最下層までを合わせて測定した。これらの値は今後、空間線量率解析に役立てる予定である。

表2と表3は、それぞれ仙台市と大崎市における試料情報と¹³⁷Cs濃度及び重量緩衝深度³⁾ β_r を示す。重量緩衝深度とは、土壌中放射性核種濃度が表面から下層に向かって指数関数的に減少すると考えた場合の平均的な深さの指標で、最表層の濃度から1/e (約1/2.7) に減るまでの重量深度

表1 仙台市及び大崎市内の陸土中自然放射性核種濃度の例

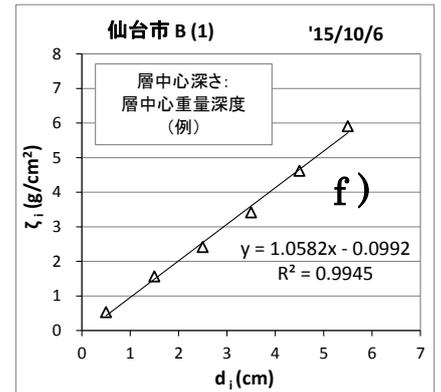
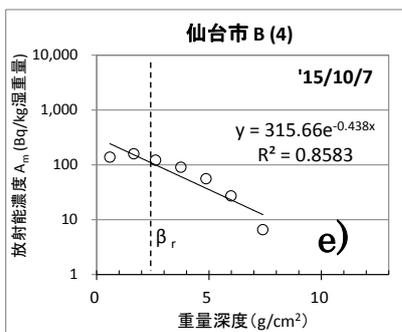
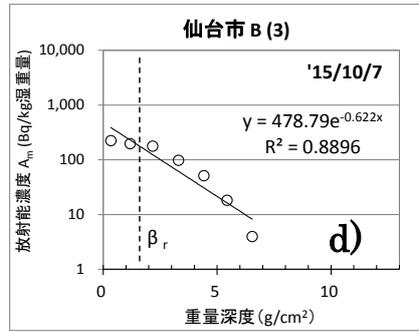
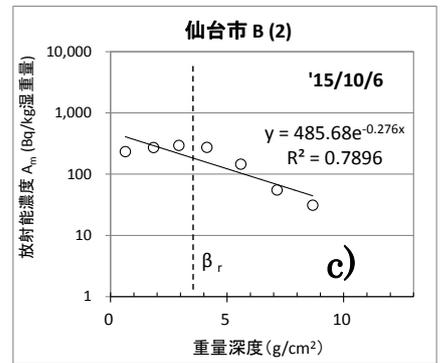
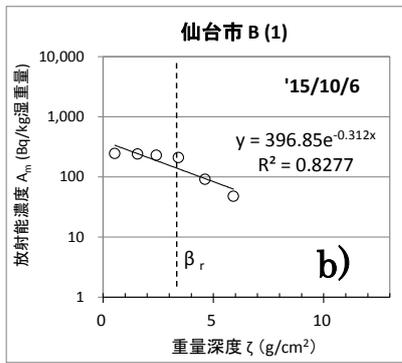
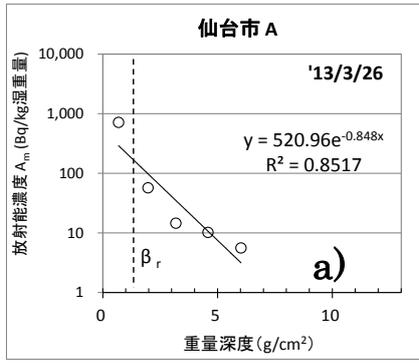
採取年月日	採取場所	採取場所 記号	番号	部位 (cm)	湿土正味重量 (g)	密度 (g/cm ³)	²¹⁴ Pb	²¹² Pb	⁴⁰ K
2015/10/6	仙台市	B	(1)	0-6	124.8	1.41	8.5 ± 0.8	10.0 ± 0.7	287 ± 7
2015/10/6	仙台市	B	(2)	0-7	138.8	1.57	8.6 ± 0.8	11.0 ± 0.7	281 ± 7
2015/10/7	仙台市	B	(3)	0-7	132.8	1.50	8.6 ± 0.9	11.8 ± 0.7	299 ± 8
2015/10/7	仙台市	B	(4)	0-7	146.3	1.65	8.6 ± 0.8	11.9 ± 0.6	286 ± 7
平均							8.57 ± 0.04	11.2 ± 0.9	288 ± 8
2015/10/13	大崎市	C	C3	0-7	138.1	1.56	9.3 ± 0.8	18.5 ± 0.7	192 ± 6

表 2 仙台市の陸上の試料情報、¹³⁷Cs 濃度及び重量緩衝深度

採取年月日	採取場所	場所記号	採取番号	層番号	深さ範囲 (cm)	層中心深さ d_i (cm)	層別重量 w_i (g)	採取面積 S (cm ²)	密度 ρ_i (g/cm ³)	層中心重量深度 ζ_i (g/cm ²)	¹³⁷ Cs濃度 A_m (Bq/kg)	指数 $1/\beta$ (cm ² /g)	重量緩衝深度 β_r (g/cm ²)	緩衝深度 d_r (cm)
2015/10/6	仙台市宮城野区 (旧消防学校)	B	(1)	1	0-1	0.5	20.93	19.635	1.066	0.533	246.00	0.312	3.2	3.1
				2	1-2	1.5	19.65	19.635	1.001	1.566	240.00			
				3	2-3	2.5	13.53	19.635	0.689	2.411	229.00			
				4	3-4	3.5	25.89	19.635	1.319	3.415	210.00			
				5	4-5	4.5	21.38	19.635	1.089	4.619	91.20			
				6	5-6	5.5	29.26	19.635	1.490	5.908	47.70			
2015/10/6	仙台市宮城野区 (旧消防学校)	B	(2)	1	0-1	0.5	25.02	19.635	1.274	0.637	232.00	0.276	3.6	2.9
				2	1-2	1.5	22.47	19.635	1.144	1.846	271.00			
				3	2-3	2.5	20.34	19.635	1.036	2.937	294.00			
				4	3-4	3.5	26.76	19.635	1.363	4.136	272.00			
				5	4-5	4.5	30.39	19.635	1.548	5.591	145.00			
				6	5-6	5.5	30.57	19.635	1.557	7.144	54.80			
				7	6-7	6.5	29.51	19.635	1.503	7.399	31.00			
2015/10/7	仙台市宮城野区 (旧消防学校)	B	(3)	1	0-1	0.5	13.39	19.635	0.682	0.341	223.00	0.622	1.6	1.8
				2	1-2	1.5	19.85	19.635	1.011	1.187	196.00			
				3	2-3	2.5	18.82	19.635	0.958	2.172	177.00			
				4	3-4	3.5	25.74	19.635	1.311	3.307	97.40			
				5	4-5	4.5	18.09	19.635	0.921	4.423	51.20			
				6	5-6	5.5	21.92	19.635	1.116	5.442	18.10			
				7	6-7	6.5	21.34	19.635	1.087	6.543	3.95			
2015/10/7	仙台市宮城野区 (旧消防学校)	B	(4)	1	0-1	0.5	23.21	19.635	1.182	0.591	138.00	0.438	2.3	2.1
				2	1-2	1.5	18.63	19.635	0.949	1.656	159.00			
				3	2-3	2.5	19.52	19.635	0.994	2.628	122.00			
				4	3-4	3.5	24.80	19.635	1.263	3.757	90.60			
				5	4-5	4.5	18.91	19.635	0.963	4.870	55.90			
				6	5-6	5.5	24.81	19.635	1.264	5.983	27.20			
				7	6-7	6.5	30.91	19.635	1.574	7.402	6.56			
2013/3/26	仙台市宮城野区 (旧消防学校)	A		1	0-1	0.5	81.36	58.905	1.381	0.691	710.93	0.848	1.2	0.93
				2	1-2	1.5	69.42	58.905	1.179	1.970	56.77			
				3	2-3	2.5	73.48	58.905	1.247	3.183	14.48			
				4	3-4	3.5	92.10	58.905	1.564	4.589	10.20			
				5	4-5	4.5	77.05	58.905	1.308	6.025	5.59			

表 3 大崎市の陸土の試料情報、¹³⁷Cs 濃度及び重量緩衝深度

採取年月日	採取場所	場所 記号	採取 番号	層 番号	深さ範囲 (cm)	層中心深さ d_i (cm)	層別重量 w_i (g)	採取面積 S (cm ²)	密度 ρ_i (g/cm ³)	層中心 重量深度 ζ_i (g/cm ²)	¹³⁷ Cs濃度 A_m (Bq/kg)	指数層 $1/\beta$ (cm ² /g)	重量 緩衝深度 β_r (g/cm ²)	緩衝深度 d_r (cm)
2015/10/13	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C3	1	0-1	0.5	11.37	19.635	0.579	0.290	808.00			
				2	1-2	1.5	22.31	19.635	1.136	1.147	743.00			
				3	2-3	2.5	16.24	19.635	0.827	2.129	377.00			
				4	3-4	3.5	20.15	19.635	1.026	3.056	219.00			
				5	4-5	4.5	16.24	19.635	0.827	3.982	100.00			
				6	5-6	5.5	38.16	19.635	1.943	5.367	37.00			
				7	6-7	6.5	45.84	19.635	2.335	7.506	7.23			
2013/3/15	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C1	1	0-1	0.5	50.67	58.905	0.860	0.430	656.38			
				2	1-2	1.5	79.09	58.905	1.343	1.532	302.65			
				3	2-3	2.5	64.94	58.905	1.102	2.754	124.91			
				4	3-4	3.5	69.70	58.905	1.183	3.897	81.61			
				5	4-5	4.5	79.72	58.905	1.353	5.165	50.61			
				6	5-6	5.5	70.41	58.905	1.195	6.440	34.40			
				7	6-7	6.5	85.54	58.905	1.452	7.763	10.58			
				8	7-8	7.5	95.39	58.905	1.619	9.299	14.48			
				9	8-9	8.5	109.44	58.905	1.858	11.038	2.83			
				10	9-10	9.5	75.93	58.905	1.289	12.611	2.17			
2013/6/11	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C2 (1)	1	0-1	0.5	18.17	19.635	0.925	0.463	454.73			
				2	1-2	1.5	22.50	19.635	1.146	1.498	311.48			
				3	2-3	2.5	27.53	19.635	1.402	2.772	196.69			
				4	3-4	3.5	30.46	19.635	1.551	4.249	78.49			
				5	4-5	4.5	26.25	19.635	1.337	5.693	53.70			
2013/6/11	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C2 (2)	1	0-1	0.5	10.43	19.635	0.531	0.266	932.53			
				2	1-2	1.5	20.92	19.635	1.065	1.064	721.52			
				3	2-3	2.5	22.79	19.635	1.161	2.177	938.26			
				4	3-4	3.5	27.81	19.635	1.416	3.465	554.61			
				5	4-5	4.5	22.68	19.635	1.155	4.751	229.67			
2013/6/11	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C2 (3)	1	0-1	0.5	25.47	19.635	1.297	0.649	1672.85			
				2	1-2	1.5	19.76	19.635	1.006	1.800	856.77			
				3	2-3	2.5	19.93	19.635	1.015	2.811	361.64			
				4	3-4	3.5	29.29	19.635	1.492	4.064	76.14			
				5	4-5	4.5	29.39	19.635	1.497	5.559	11.83			
2013/6/11	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C2 (4)	1	0-1	0.5	14.14	19.635	0.720	0.360	1557.33			
				2	1-2	1.5	12.58	19.635	0.641	1.040	846.18			
				3	2-3	2.5	18.24	19.635	0.929	1.825	781.55			
				4	3-4	3.5	33.15	19.635	1.688	3.134	465.64			
				5	4-5	4.5	10.46	19.635	0.533	4.244	255.08			
2013/6/11	大崎市岩出山 (城山公園)	C	C2 (5)	1	0-1	0.5	17.61	19.635	0.897	0.448	1566.60			
				2	1-2	1.5	17.49	19.635	0.891	1.342	425.02			
				3	2-3	2.5	25.05	19.635	1.276	2.426	83.28			
				4	3-4	3.5	32.66	19.635	1.663	3.895	16.30			
				5	4-5	4.5	29.11	19.635	1.483	5.468	16.02			



$$\zeta = 1.0582 d - 0.0992$$

$$d = (\zeta + 0.0992) / 1.0582$$

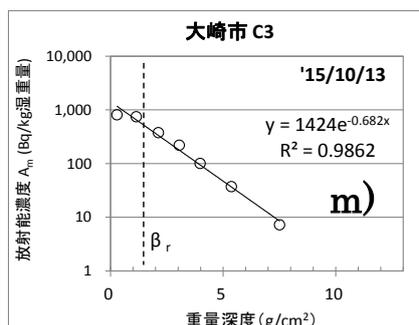
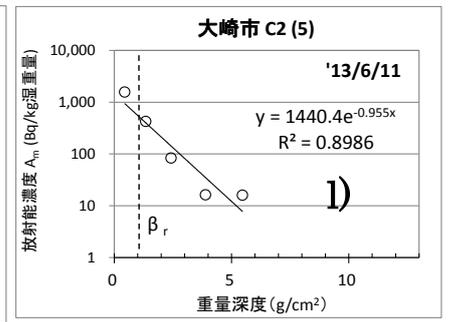
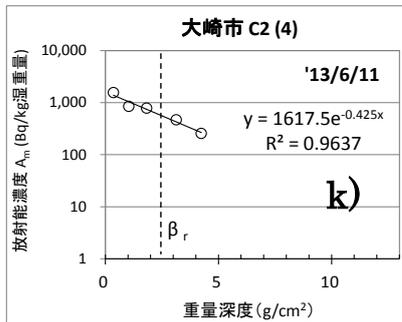
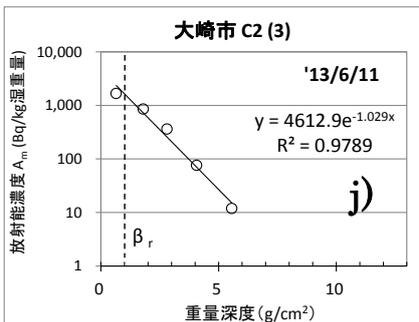
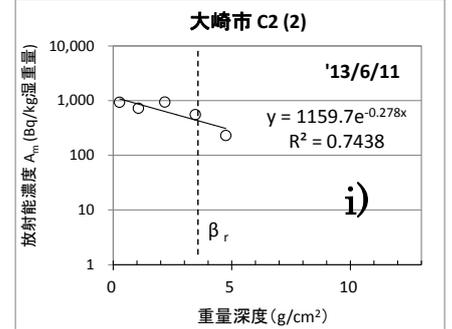
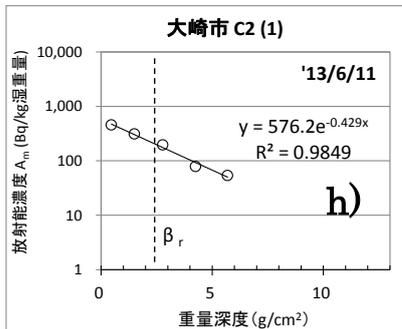
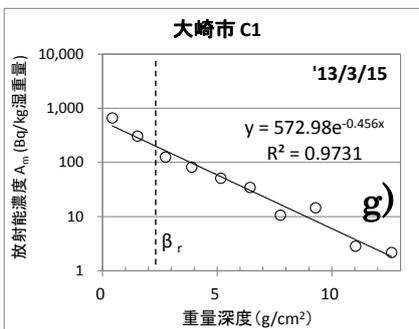


図6 陸土中 ^{137}Cs 濃度の深度分布
 a)-e) : 仙台市における深度分布
 f) : b)における長さ単位の深度 d_i と重量深度 ζ_i の関係の例
 g)-m) : 大崎市における深度分布
 β_r : 重量緩衝深度

である。これを長さ単位でも表すことができ、記号 d_r として示した（算出方法については図6のf)参照）。f)を除いて、図6のa)からm)は、これらのデータを使って横軸に重量深度、縦軸に ^{137}Cs 濃度をとった深度分布図を示す。図にみられるように、2013年の試料では比較的指数関数的なプロファイルを示したが、2015年の試料では表層からやや下層の2-5 cmの付近まで移行しつつある傾向が認められる。場所や土質等にもよるが、福島県内等の測定では、事故後年数が経つにつれて放射性セシウムが次第に下層に移行しているという報告があり³⁾、本県の測定においてもその傾向が認められた。年数が経過して深度分布が単純な指数関数で表されない場合、正確には松田ら³⁾⁻⁴⁾のように双曲線正割関数で表すのが適切であろうと思われるが、一般的でないため、本稿では近似として指数関数でフィッティングした。したがって、表2と表3に記載した重量緩衝深度の値も近似的な値である。図6の点線は各々の深度分布における重量緩衝深度 β_r を示す。

一方、表2と表3及び図6から、約10 m以内のほぼ同じ場所からほぼ同じ日に採取した土壌であっても表層の ^{137}Cs 濃度に数倍程度の違いが見られ、また深度分布にも違いが認められる。例えば図6 h)-1)のデータは、図3の地図のC2の(1)から(5)の約10 m程度の範囲内で採取した試料であるが、 ^{137}Cs 濃度の分布にはかなりの違いがある。土壌の採取に当たっては最近スクレーパープレート³⁾が用いられる場合も多いが、一度に比較的多量の試料が得られて便利である反面、平均的なデータが得られにくい恐れがある。場所にもよるが、試料採取に当たってはできるだけ数カ所から採取して混合するなど、偏りのない方法が望ましい。

V まとめ

空間ガンマ線スペクトル解析による放射性セシウム寄与線量率評価に役立てるため、宮城県内の幾つかの地点で土壌中 ^{137}Cs 濃度の深度分布を測定した。福島第一原子力発電所事故後数年の間に ^{137}Cs はやや下層に浸透した傾向が認められた。また、10 m程度の狭い範囲内でも数倍程度の平面的分布差も認められた。本報告に示した地点ではGe半導体検出器やNaI(Tl)検出器によるin-situ測定も行っており、今回得られた土壌試料採取法による放射能測定結果と比較する予定である。また、自然核種も含め、土壌中の放射性核種濃度の分布は空間線量率解析において非常に重要であるため、今後もこのようなデータを積み重ね、基礎資料としたい。

VI 参考文献

- 1) 宮城県ホームページ，農用地土壌の放射性物質調査結果について，<https://www.pref.miyagi.jp/soshiki/noenkan/radio-soil.html>
- 2) T. Watanabe et al., *Geochemical Journal*, 46, 279-285 (2012).
- 3) 松田規宏，齊藤公明，“土壌中の放射性セシウムの深度分布調査”，平成27年度東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約事業成果報告書，Part1. 放射性物質の分布状況の調査，原子力規制委員会，放射線モニタリング情報，2016年3月。 <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/564/list-1.html>
- 4) N. Matsuda et al., *J. Environ. Radioact.*, 139, 427-434 (2015).

ストロンチウム90 (Sr-90)分析におけるいくつかの改善提言

伊藤節男

I はじめに

当センターでは、国や公益財団法人日本分析センターのご支援を賜り、平成27年度に放射化学分析設備が復旧し、Sr-90の分析を再開した。

そこで、今回、従来からの分析手法について改善事例と新たに導入したICP発光分析装置の使用に関しての事例を報告する。

II 概要

1 Sr-90のミルキング操作について

当センターでは、Sr-90を文部科学省マニュアル¹⁾に記載されたイオン交換法に準拠し、分析を行っているが、概略としては、次のとおりである。

- | | |
|-----------|------------------------------|
| 1 前処理 | 乾式灰化 |
| 2 Sr精製方法 | イオン交換法 |
| 3 ミルキング方法 | 水酸化鉄共沈で娘核種のY(イットリウム)-90を共沈捕集 |
| 4 測定装置 | ガスフローカウンター(日立アロカ製LBC4202) |

このSr-90分析に関して、これまで実用上の技術提言を行ってきたところである。^{2),3)}

今回、それらを踏襲した上で、①ミルキングでの水酸化鉄共沈捕集の手法について、②ミルキングでのキレート樹脂等の活用について、③測定の際のラドン・トロン子孫各種の影響と思われる影響について、の3点について以下に報告する。

また、併せて新規にICP発光分析装置を導入したので、使用事例も報告する。

III 調査結果

1 水酸化鉄共沈捕集の手法について

当センターでは、前処理で精製したSr-90の娘核種のY-90を含むSr溶液(塩酸酸性)に安定Y及び塩化鉄(III)溶液を加え加熱沸騰し、アンモニア水を加え生ずる水酸化鉄沈殿にY-90を共沈捕集することで測定試料としている。(フローチャート抜粋を参照)

具体的には、足長ロート+濾紙5Aで分別沈殿を繰り返し、最終的にφ24mmの濾紙5Cで吸引濾過を行い測定試料としている。

今回、アドバンテック東洋製のポリサルホンホルダー(以下ホルダーと言う。)とガラス繊維濾紙(同社製GS-25, φ47mm)及びメンブレンフィルター(同社製Y020A047A, 孔径2μm, φ47mm, 以下2μmフィルターと言う。)を組み合わせ測定試料を調製する方法を検討した。

表1 従来法と改訂法の比較

作業	従来法	改訂法	利点
Y-90の分別沈殿による精製	足長ロート+濾紙5A(自然濾過)	ホルダー+GS-25 φ47mm, 孔径1μm(自然濾過)	・濾過が早い
測定試料調製	φ24mm, 濾紙5Cで吸引濾過し, ステンレス皿に固定	・2μmフィルターで自然濾過し, 粘着テープと市販のラップで固定	・濾過が早い ・沈殿の厚さが4分の1になる

この理由としては、濾過面積が広いことで、濾過が早くなること及び測定の際の水酸化鉄の厚さが4分の1になり、水酸化鉄による遮蔽が減少することが期待できるためである。

試行実験を繰り返した結果、操作性の改善が見られたので、その結果を以下にまとめた。

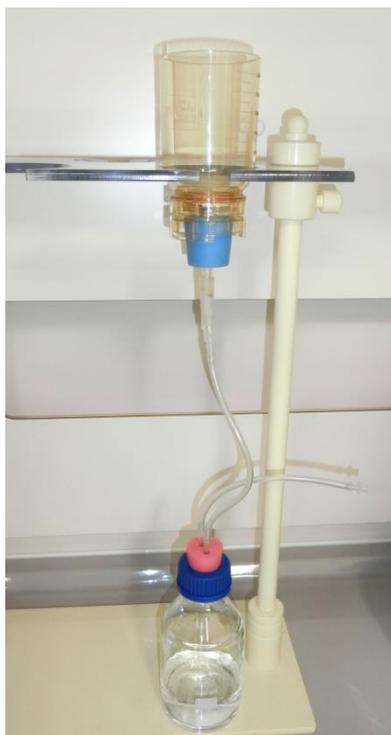
表2 濾紙・フィルターの選定と利点・問題点

使用器具等	利点	問題点
濾紙(5C) (従来法)	・安価	・濾過が遅い ・吸引濾過時にしばしば水酸化鉄沈殿が少量通過する
ガラス繊維濾紙 GS-25	・濾過が早い ・温塩酸に耐える	・有機バインダーが溶けホルダーに一部が固着し取り外し時に破損する ・カリウムを含むので濾紙自身のベータ線計数値が高い
2 μ フィルター	・濾過が早い ・濾過時に水酸化鉄沈殿の通過が見受けられない	・酸に弱いので最終の試料調製にのみ使用
ホルダー	・沈殿の固着が少ない ・沸騰水や温塩酸でも使用可 ・軽くて破損しにくい ・比較的安価	・ガラスに比較し傷がつきやすい

フローチャート及び写真

<p>フローチャート(抜粋) (前段省略)</p> <p>スカベンジ後 14 日程度経過した試料</p> <p>←イットリウム担体, 塩化第 2 鉄溶液</p> <div style="border: 1px solid black; border-radius: 15px; padding: 10px; margin: 10px 0;"> <p>加熱・沸騰 《数回繰り返し》</p> <p>←アンモニア水</p> <p>沈殿生成,</p> <p>従来法: 足長ロートで濾過(濾紙 5A)</p> <p>改訂法: ホルダー+GS25 で濾過</p> </div> <p>沈殿を温塩酸で溶解</p> <p>加熱・沸騰</p> <p>← アンモニア水</p> <p>沈殿生成, 吸引濾過, ベータ線測定</p> <p>従来法: ϕ 24mm 濾紙 5C で濾過</p> <p>改良法: ϕ 47mm, 2μ フィルターで濾過</p>	<p>ϕ 24mmの濾紙5Cで吸引濾過</p>  <p>(柴田科学のカタログより)</p>
--	---

ポリサルホンホルダーの使用例



今回検討したフィルター各種



2 キレート樹脂等の活用の検討

当センターでは従来からSr-90分析に際してキレート樹脂の活用を検討してきた。今回、Sr-90のミルクキングでのY-90捕集に水酸化鉄共沈に代えキレート樹脂が活用できないか、検討したので概要を報告する。

使用方法としては、いずれもSr溶液に希硝酸、希アンモニア水を加えておおむね中和し、酢酸-酢酸アンモニウム緩衝液を加えpH4.8程度に調節した上で、キレート樹脂に通し、酢酸-酢酸アンモニウム緩衝液(pH4.8)で洗浄した後、測定できる形に整えβ線を測定した。

表3 検討したキレート樹脂と結果

キレート樹脂の製品名	結果と考察
ムロマチテクノス ムロキレートB-1	<ul style="list-style-type: none"> ・有望だが工夫が必要 ・ホルダーとフィルターの間に樹脂が多く付着するため、フィルターに樹脂を固定し測定する場合にはロスが発生する。
スリーエム キレートディスク φ47mm	<ul style="list-style-type: none"> ・捕集性能はかなり良好 ・ひっぱりや加熱で容易に変形し、ベータ線測定時に効率が変動する可能性が大きい。 ・比較的高価
GLサイエンス InertSep ME-2 30mg	<ul style="list-style-type: none"> ・捕集量が少ない。 ・酸で溶離した上で再度捕集作業が必要 ・比較的高価
ニチビ キレート濾紙φ47mm	<ul style="list-style-type: none"> ・大変有望、捕集したフィルターを直接ベータ線測定が可能 ・比較的高価

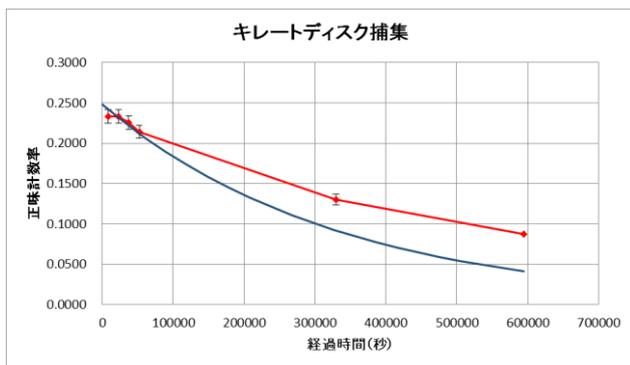


図1 β線計数値(Sr-90溶液 0.48Bqを捕集)

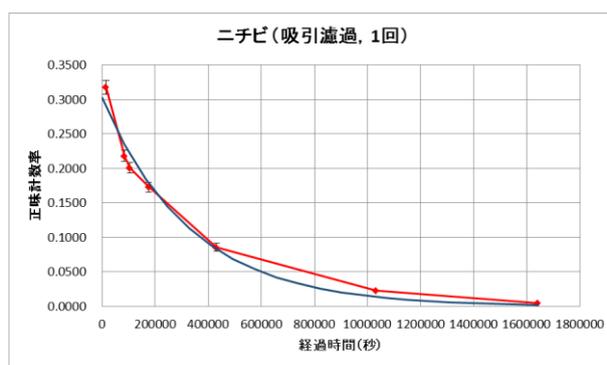


図2 β線計数値(Sr-90溶液 1.0Bqを捕集)

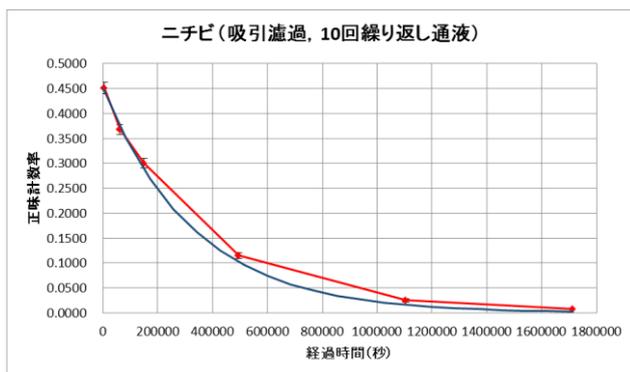


図3 β線計数値(Sr-90溶液 1.0Bqを捕集)

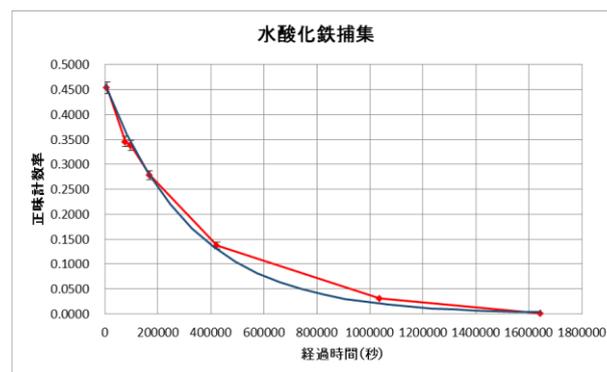


図4 β線計数値(Sr-90溶液 1.0Bqを捕集)

図1のスリーエム製キレートディスクの結果から、吸引濾過1回(繰り返し通液なし)でYを定量的に捕集していて、経時変化から同時にSr-90も若干捕集しているのが分かる。しかし、変形しやすくSr-90測定には不向きと判断した。

図2及び図3のニチビキレート濾紙の結果から、同じ溶液を、吸引濾過の場合10回繰り返すことで定量的にYを捕集できることが分かった。これは、接触時間の問題と考え、ICP発光分析装置を用いて、吸引濾過と自然濾過とを比較したところ、自然濾過の場合は3回繰り返し通液で定量的に捕集が可能であることが分かった。(図5)

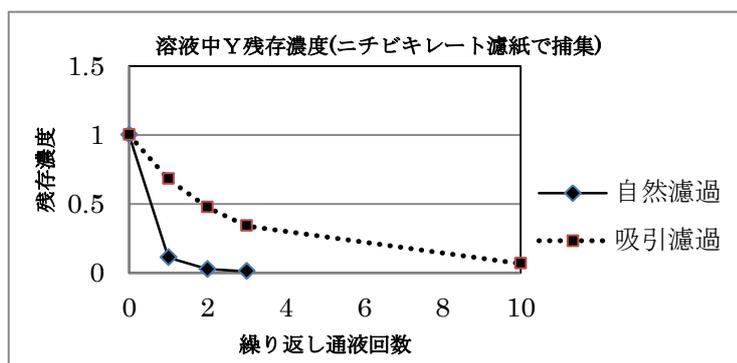


図5 ニチビキレート濾紙でYの繰り返し捕集結果(ICPで測定)

残存濃度は、捕集前の溶液の強度を1とした比率で示している。

条件 自然濾過：Y 3.3mg/L, 液量 100ml, 吸引濾過：Y 2.5mg/L, 液量 200ml

3 測定の際のラドン・トロン子孫各種の影響と思われる変動について

今回、施設の再建に伴い測定を再開するにあたり、効率の決定、バックグラウンド(BG)の把握等を実施したが、その際、複数の試料の測定で通常BG値よりも高い値を観測し、なおかつ、繰り返し測定でもラドン子孫核種と考えられない長時間の影響があった。

原因については、試料調製の際の吸引濾過で測定試料に空気中の浮遊塵が混入している可能性が疑われたので、ハイボリュームエアサンプラーで実験室内の空気を捕集しゲルマニウム半導体検出器で測定したところ、トロン子孫核種が検出された。

そこで、その対策としてドラフト内に空気清浄機(市販品)を設置・稼働させた上でミルキング作業を行うこととしたところ、改善が見られた。改めて実験室内の実験台の上とドラフト内で同じ作業を行いベータ線の計数値を比較したところ、実験室内の実験台での作業での計数値が高く、建材や塗料からラドン・トロン子孫核種が発生し浮遊塵に付着しているものと推定している。

ただし、その後1年程度経過した時点ではドラフト外の通常の実験台での作業でもあまり影響が見られなくなっている。

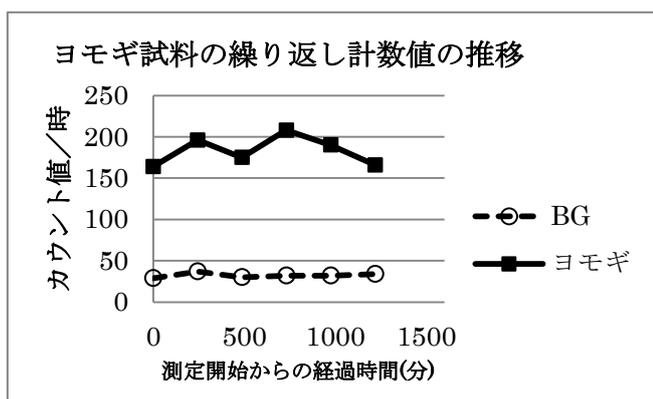


図6 ヨモギの測定の際のベータ線計数値の変化

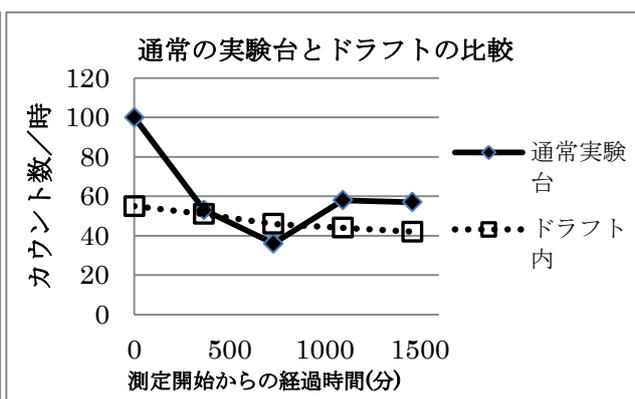


図7 施設再建約1年経過後のβ線計数値比較

4 ICPの使用事例

安定元素の分析にICP発光分析装置(サーモフィッシャーICP-OES 7400)を使用している。

複数の元素を同時に測定できる装置ではあるが、使用開始していくつかの事象が現れた。その事例とこれまで当センターで取った対応策を下記にまとめた。

表4 ICP発光分析装置の事象と対策

事象	原因	講じた対策
・繰り返し測定時の1回目の発光強度の不安定	・オートサンプラーから装置への試料液の送液に時間を要する	・ポンプの稼働時間を長くした。 ・繰り返し測定回数を変更し(3回→5回), 2~5回目の測定値を採用
・冬期に測定値が不安定になる	・ローラーポンプに使用しているチューブが室温低下に伴い柔軟性が低減する	・シリコンチューブに変更し, さらに室温の管理を実施した。
・同一元素の異なる波長での強度比が測定ごとに異なる	不明	・メーカーに相談したが, 未解決
・同一元素の異なる波長で検量線を作成し濃度を算定しても無視できない差異が認められる	・何らかの干渉の影響と考えられる	・下記の干渉対策を検討中
・ICP発光装置で報告されている各種の干渉(イオン化干渉, 物理干渉等)	・共存元素の影響等 ・試料液の粘性	・イオン化干渉の対策としては, 抑制剤として報告されているCs等の効果を検討中 ・物理干渉の対策としては, 内標準元素の最適な選択を検討中

内標準の最適組み合わせについて、例えばIn303. 936nmとLaの各波長での強度比を図8に示す。軸方向測光で測定しているが、測定試料によっては強度比が変化する場合があるのが分かる。なお、種々の条件で測定をしているが中性原子線とイオン線の違いは見受けられない。

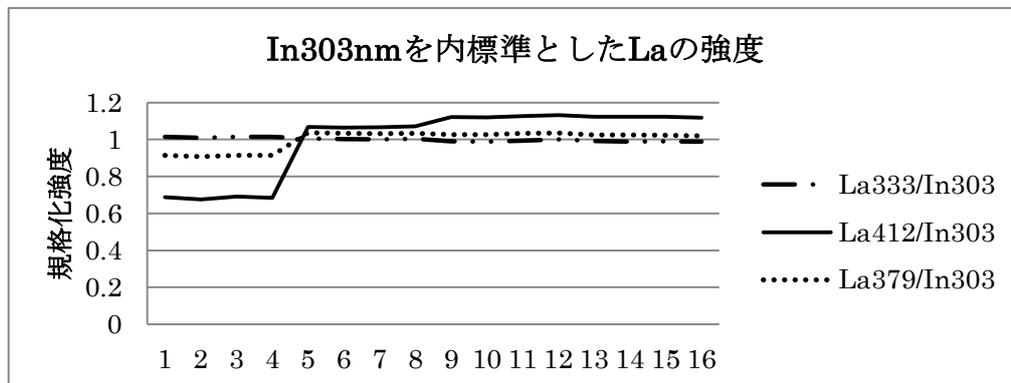


図8 内標準元素同士の強度比(縦軸：各元素・波長の1～16の平均に対する比で示す)
 1～4：ヨモギ分解液(1g→100ml) 10倍希釈
 5～8：同 100倍希釈， 9～12：同 1000倍希釈， 13～16：純水
 各試料に Cs 0.05mol/L， La 1mg/L， In 5mg/Lとなるように添加し，
 Ca, Srは各試料にそれぞれ濃度が +2mg/L増加するよう添加

IV まとめ

- 1 Sr-90のミルクング操作に用いる器具について
 当センターで使用しているガスフローカウンターは2インチの検出器を備えている。今回提案の改訂法での効率 0.452 cps/Bq (水酸化鉄捕集)である。
 もし、各分析機関で使用しているガスフローカウンターが2インチの検出器であれば、今回の提言を参考にさせていただければ幸いである。
- 2 ミルクング操作へのキレート樹脂の応用について
 今回の検討で、ミルクングの操作時間を短縮できる見込みなので、今後も検討を進める予定である。可能なら目視でYの捕集を確認できる方法も検討したい。
- 3 ICP発光分析装置について
 いくつかの現時点での問題点についてまとめたが、参考にさせていただければ幸いである。
 各元素の発光の波長について、中性原子線やイオン線との分類や第1イオン化ポテンシャルの観点からの評価が報告されているが⁴⁾、遷移前後の電子の状態で議論すべきと考えている。
 また、精度の良い測定のためには物理干渉とイオン化干渉を個別に補正する方法を検討すべきと考えており、今後も検討を継続していく。具体的には内標準元素の種類や波長の選択、イオン化干渉抑制剤の組み合わせを工夫する予定である。

V 参考文献

- 1) 文部科学省：放射能測定法シリーズ「放射性ストロンチウム分析法(平成15年改訂)」(2003)。
- 2) 伊藤節男，イオン交換法を用いた放射性ストロンチウム分析法に関する検討，宮城県原子力センター年報，第19巻，pp63-67(2001)
- 3) 伊藤節男ほか，アラメ中の⁹⁰Sr分析における共存成分による妨害の検討，宮城県原子力センター年報，第26巻，pp17-20(2008)
- 4) 森重陽介，木村淳，ICP発光分光分析におけるイオン化干渉，SEIテクニカルレビュー，第172号(2008)；