

ISSN 0912-3490
CODEN : MGSNE3

宮城県原子力センター年報

第 5 卷

昭和 61 年

ANNUAL REPORT

OF

ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY
RESEARCH INSTITUTE OF MIYAGI

VOL. 5 (1986)

宮城県原子力センター

目 次

はじめに

I 宮城県原子力センター概要	1	
II 事業概要	3	
III 研究論文		
1 一般論文		
環境ガンマ線の季節変動と周期解析	菊地秀夫、藤原秀一	7
宮城県における環境ガンマ線線量率 —移動観測車による県内 走行サーベイ中間報告(県北東部編)—	佐藤健一、菊地秀夫、佐藤信俊、末永紳一、阿部武雄、 湯田和郎、中村栄一、高橋宣明、滝島哲夫	13
熱蛍光線量計(TLD)相対感度の長期変動(2)	末永紳一	22
宮城県における ⁷ Be、 ⁴⁰ K、および ¹³⁷ Cs降下量の季節的変動と地点間の比較	石川陽一、佐藤健一、菊地秀夫、 末永紳一、佐藤信俊、湯田和郎	28
県内海底土中の放射能調査 —強熱減量による ¹³⁷ Cs濃度の評価—	佐藤信俊、末永紳一、佐藤健一、石川陽一、 菊地秀夫、阿部武雄、湯田和郎	33
アラメ中の ¹³⁷ Csと ⁴⁰ K濃度の季節的変動	石川陽一、佐藤健一、菊地秀夫、 末永紳一、佐藤信俊、湯田和郎	36

2 チェルノブイル事故関係論文

チェルノブイル原子力発電所事故の環境ガンマ線ダイナミックスペクトル におよぼす影響	佐藤健一、菊地秀夫、中村栄一	39
環境試料の測定結果にみられた同位体 ^① 対比	菊地秀夫、石川陽一、末永紳一、 佐藤健一、佐藤信俊、湯田和郎	46
チェルノブイル事故後の降下物中の核種の形態と経月変動	石川陽一、佐藤健一、菊地秀夫、 末永紳一、佐藤信俊、湯田和郎	48
環境試料中 ^{110m}Ag と ^{134}Cs のサム効果	石川陽一、佐藤健一、菊地秀夫、 末永紳一、佐藤信俊、湯田和郎	52
浮遊じん中の放射性ヨウ素捕集上の問題点	菊地秀夫、石川陽一、佐藤健一、 末永紳一、佐藤信俊、湯田和郎	58
ハウレン草に吸収された放射性核種の分布	佐藤信俊、石川陽一、菊地秀夫、佐藤健一、 遠藤篤子、末永紳一、湯田和郎	61
ハウレン草の前処理法と核種の存在率	佐藤信俊、石川陽一、 菊地秀夫、佐藤健一、末永紳一、湯田和郎	65

IV チェルノブイル事故の感想

ソ連原発事故に思う	湯田和郎	68
チェルノブイル事故顛末記	佐藤信俊	69
チェルノブイル原子力発電所事故の放射能調査でよかったこと	末永紳一	72
1986年5月のある1日	石川陽一	74
ソ連原子力発電所事故調査にまつわるいまわしい思い出	菊地秀夫	76

V 学 会 発 表 等	78
-------------	----

VI 資 料

1 宮城県における環境放射能核種分析結果

(1) Ge 半導体検出器による分析結果	81
(2) ^{90}Sr 分析結果	199
(3) ^3H 分析結果	200

2 チェルノブイル事故関係グラフ

(1) 各種試料のガンマ線スペクトル	201
(2) 核種濃度の推移	213

3 宮城県における放射能測定調査結果（科学技術庁委託）

219

C o n t e n t s

Preface

- I The Guide to Environmental Radioactivity Research Institute of Miyagi..... 1
II The Outline of Routine Works in 1986 3

III Papers

I General Papers

- Studies of Seasonal Variation on Environmental Gamma Radiation.
..... Hideo Kikuchi and Shuich Fujiwara 7

- Second Report on The Environmental Exposure Rate by car-borne Survey
in North East of Miyagi Prefecture.
..... Kenichi Sato, Hideo Kikuchi, Nobutoshi Sato, Shinichi Suenaga,
Takeo Abe, Kazuro Yuda, Eiichi Nakamura, Nobuaki Takahashi,
and Tetsuo Takishima.....13

- Long Term Variation of The Sensitivity of TLD (2).
..... Shinichi Suenaga22

- Seasonal Variation and Locational Comparison of The Deposition of
 ^7Be , ^{40}K , and ^{137}Cs in Miyagi.
..... Yoichi Ishikawa, Kenichi Sato, Hideo Kikuchi,
Shinichi Suenaga, Nobutoshi Sato, and Kazuro Yuda28

- Investigation of Radioactivity in Coastal Sediment in Miyagi
— Relation of Ignition Loss and ^{137}Cs Concentration —
..... Nobutoshi Sato, Shinichi Suenaga, Kenichi Sato,
Yoichi Ishikawa, Hideo Kikuchi, Takeo Abe, and Kazuro Yuda33

- Seasonal Variation of The Concentration of ^{137}Cs and ^{40}K
in *Eisenia bicyclis*.
..... Yoichi Ishikawa, Kenichi Sato, Hideo Kikuchi,
Shinichi Suenaga, Nobutoshi Sato, and Kazuro Yuda36

2 Papers on The Chernobyl Accident

- Effect of The Chernobyl Accident to Environmental Dynamic γ -ray Spectrum.
..... Kenichi Sato, Hideo Kikuchi, and Eiichi Nakamura39

- Isotopic Ratios of Radionuclides Released from The Chernobyl Accident.
..... Hideo Kikuchi, Yoichi Ishikawa, Shinichi Suenaga,
Kenichi Sato, Nobutoshi Sato, and Kazuro Yuda46

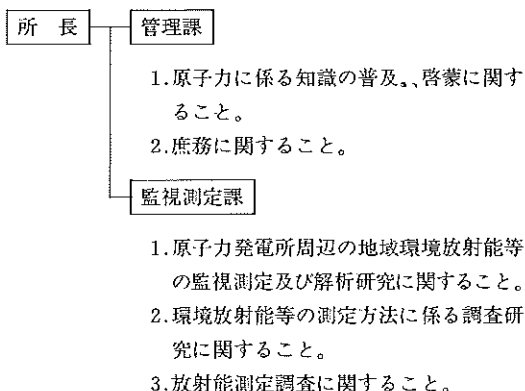
Dissolving State and Monthly Variation of Radionuclides in Rain and Dry Fallout after The Chernobyl Accident.	
..... Yoichi Ishikawa, Kenichi Sato, Hideo Kikuchi, Shinichi Suenaga, Nobutoshi Sato, and Kazuro Yuda48
Sum-coincidence Effects of ^{110m}Ag and ^{134}Cs in Environmental Samples.	
..... Yoichi Ishikawa, Kenichi Sato, Hideo Kikuchi, Shinichi Suenaga, Nobutoshi Sato, and Kazuro Yuda52
Some Aspects of Sampling and Measurement of Aerosol Radioiodine.	
..... Hideo Kikuchi, Yoichi Ishikawa, Kenichi Sato, Shinichi Suenaga, Nobutoshi Sato, and Kazuro Yuda58
Distribution of Radionuclides in Spinach Collected after The Chernobyl Accident.	
..... Nobutoshi Sato, Yoichi Ishikawa, Hideo Kikuchi, Kenichi Sato, Atsuko Endo, Shinichi Suenaga, and Kazuro Yuda61
Residual Rate of Radionuclides in Spinach after Pre-treatment or Chemical Treatment.	
..... Nobutoshi Sato, Yoichi Ishikawa, Hideo Kikuchi, Kenichi Sato, Shinichi Suenaga, and Kazuro Yuda65
IV Impressions of The Chernobyl Accident68
V Conference and Meeting78
VI Data	
1 Nuclide Analysis Data of Environmental Samples in Miyagi.	
(1) Results with Ge-detector81
(2) ^{90}Sr 199
(3) ^3H 200
2 Graphic Data Concerned with The Chernobyl Accident.	
(1) γ -ray spectra with Ge-detector 201
(2) Time Variation of Nuclide Concentration in Environmental Samples 213
3 Fallout Survey Data in Miyagi 219

I 宮城県原子力センター概要

1. 沿革

- 昭和56年4月 原子力センター開所
(女川町女川浜に新築)
- # 56年10月 女川原子力発電所操業前調査開始
- # 58年9月 第1回原子力防災訓練実施
(主に通信連絡訓練)
- # 58年10月 女川原子力発電所試運転開始
- # 58年10月 本格調査開始
- # 59年6月 女川原子力発電所営業運転開始
- # 59年10月 第2回原子力防災訓練実施(緊急時モニタリング訓練を加えた総合訓練)
- # 61年5月 同年4月26日に発生したチェルノブイ
~6月 ル原子力発電所事故に伴う臨時緊急調
査
- # 61年11月 女川原子力発電所2号機増設に係る第
1次ヒアリングの開催

2. 組織及び業務分担



3. 職員

課名	職名	氏名	分担業務	備考
	所長	湯田和郎	職員の指揮監督	61.4.1~
管理課	課長	生出孝	課業務の総括	61.4.1~9.30 61.10.1~
	技師	阿部武雄	公用車の運転に関すること	
	囑託員	大山武男	広報業務	
	"	佐藤嘉男	"	
	"	高橋益雄	"	
監視測定課	課長	佐藤信俊	課業務の総括	61.4.1~
	研究員	末永紳一	TLD測定、放射化学分析に関すること	
	技師	石川陽一	Ge半導体検出器による放射能測定	
	技師	菊地秀夫	同上	
	技師	佐藤健一	テレメータに関すること。 テレメータに関すること。	

4. 主要機械器具

名 称	メーカー、型式等	数量	取得年度	備 考
環境放射線テレメータシステム	富士通、アロカ 小笠原計器	1式	55~57	放射線・気象測定器及び データ表示盤も含む
研究開発用電子計算機	富士通4940L型	1式	57	
ゲルマニウム半導体スペクトロメータ	関商事、ノーザン、 DEC他	1式	55, 57	磁気ディスク、デー タメモリも含む
アルファ線スペクトロメータ	オーテック576, 476-4	1式	55	
ベータ線スペクトロメータ	富士電機 ビコベータFO	1式	57	
低バックグラウンド 2π ガスフローカウンター	アロカI.B.C- 452U	1式	50	
液体シンチレーションカウンター	アロカL.S.C- L.B.1	1台	56	
T L D 標準照射装置	千代田保安特注	1式	55, 57	コリメータも含む
T L D リーダー	松下電器UD502 A, 502B	2台	50, 57	
標準線量率計	ビクトリオン社 ラドコン500	1台	57	
加圧型電離箱式線量測定装置	アロカMAR- R41	1式	56	
移動観測車	アロカ特注	1台	56	
可搬型ゲルマニウムスペクトロメータ	オーテック	1式	56	
車載用無線機	三菱電機	1式	57	
サンプリングカー	日産ホームー	1台	57	
可搬型モニタリングポスト	アロカMAR- 552B	3台	57	
原子吸光光度計	島津AA-640 -13	1台	55	
分光光度計	日立200-20	1台	57	
プレス機	勝井薬品器械店 特	1台	57	
電気マッフル炉	矢沢科学MKS -430-6L	1台	55	
電気マッフル炉	林電工(株)特注	1台	59	
ハンドフットクロズモニター	富士電機NMH -11001	1台	55	
R I 貯蔵庫	東京シャヘイ D-S	1台	55	
G M 計数装置	アロカSC-702 T.D.C-501	1式	50	科学技術庁委託調査用
NaI(Tl)ガンマ線スペクトロメータ	NAIGエシ リーズ	1式	54	同上
原子力センター広報研修施設展示品	博報堂	1式	55	
原子力、火力、水力各発電の模型	博報堂	1式	55	
環境放射線測定地点ジオラマ	博報堂	1式	55	
環境放射線副監視局データ表示盤	富士通	3台	57	
原子力Q & A パソコンゲーム	NEC PC-9801AX	1式	60	
核燃料サイクル	東北計器	1式	61	

II 事業概要

1. 原子力発電所周辺地域環境放射能等の監視測定

地域住民の健康と生活環境の保全を図るため、昭和53年度に県、女川町、牡鹿町と東北電力との間に締結された「女川原子力発電所周辺の安全確保に関する協定書」に基づいた測定基本計画により、原子力発電所周辺の空間線量及び農水産物、飲料水、土壌、海底土などの環境試料中の放射能の分析測定を実施している。

イ、環境ガンマ線の監視測定

昨年度に引き続き、モニタリングステーション6ヶ所で、テレメータによる環境ガンマ線の連続監視測定及び、モニタリングポイント18ヶ所で、TLDによる3ヶ月間の積算線量の測定を行なった。またステーションを補完するために移動観測車で四半期ごとに発電所周辺地域の空間線量率の測定も行なった。

本年度4月に発生したチェルノブイル原子力発電所事故によるDBM線量率への影響は、自然放射能の変動の中にかくれ、殆んど認められなかったが、本県独自のテレメータシステムによるダイナミックスペクトル解析の結果、浮遊じんと共に降下した¹³¹Iによると考えられる線量率（剰余線量率）のわずかな増加を確認できた。

以上のことは、当テレメータシステムの有用性を実証したものである。尚、詳細については、本誌39ページに掲載した。

ロ、環境試料中の放射能測定

本年度は、4月に発生したチェルノブイル事故のため5～6月にかけ臨時に数多くの環境試料中の放射能測定を余儀なくされた。そのため、協定書に基づく基本計画の一部で採取期間や測定項目の変更があったが、年間の総件数では、計画通り実施した。

2. 科学技術庁委託調査

本調査は、昭和33年以来「放射能測定調査」として、科学技術庁委託により継続して実施しているものである。

調査項目は、食品、土壌、降水等の全β放射能、γ線スペクトロメトリによる牛乳中の核種分析、モニタリングポスト（仙台）による環境ガンマ線の24時間連続測定などである。

3. チェルノブイル原子力発電所事故に係る環境放射能緊急調査

61年4月26日に発生したソ連チェルノブイル原子力発電所事故に伴い実施した臨時の測定件数は、終息宣言された6月6日までに、計204件である。いずれもGe半導体検出器による測定である。

結果の詳細は、「チェルノブイル原子力発電所事故に係る環境放射能緊急調査報告」及び本誌にまとめたが、 ^{131}I をはじめ、原子力発電所事故による ^{134}Cs 、 ^{136}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Ru など多種の人工放射性核種が検出された。

しかし、いずれも5月6～7日のピーク後急激に減衰し、現在では、降下物や、海産物での生物濃縮による影響が見られる程度となっている。

4. 調査研究

イ. 県内空間ガンマ線線量率調査

昨年度は、県南部を調査したが、本年度は、県北部を中心に、移動観測車による県内主要路線上での環境ガンマ線線量率を調査した。詳細は、13ページに掲載した。

ロ. 県内沿岸海底土中の放射能調査

本年度は、女川湾では、7月及び10月、気仙沼海域では、10月、その他12月～3月にかけて計57件の海底土を採取し、チェルノブイル前後の変化について調査した。

その一部は、本誌33ページに報告する。

ハ. チェルノブイル原子力発電所事故の影響調査

原子力発電所周辺地域の監視測定は ^{134}Cs 等の通常では検出されない核種を着目核種とし異常を確認している。しかし、本年度発生したチェルノブイル事故によって多量の人工放射性核種が本県にも降下したため、今後の監視においては、単にこれらの核種の検出確認のみならず、核種間の存在比からチェルノブイル事故によるものか、それ以外のものかを判断する必要が生じた。

本研究は、チェルノブイル事故時に採取した試料の再測定、再解析によって核種間の存在比を求め、今後の監視業務の資とするもので、詳細は、本誌に掲載した。

5. 原子力防災訓練

本年度は、昨年度と同様に、緊急時通信連絡訓練及び緊急時環境モニタリング訓練を10月17日に実施した。さらに、初めての試みとして、防護対策に係る防護対策区域内の乳幼児、妊婦等の人数及びコンクリート屋内避難所の把握や、住民の避難誘導における関係機関の初動体制確認のための図上訓練を実施した。

尚、緊急時環境モニタリング訓練への参加人員は、13班編成39名であった。

6. 講師派遣等

緊急時環境モニタリング訓練等の研修会では、放射線の測定技術や、測定器機の取扱い法等の講師として、職員を派遣を行っている。

本年度に実施した研修会は5回であり、概略は、下記の通りである。

講師派遣研修会

研修会名	主催者	期 間 (開催地)	受講者数	派遣職員名	研 修 概 要
新班員講習	石 巻 警 察 署	61. 4. 18 (女 川 町)	6 名 (女川警ら班員)	佐藤(信)、石川	環境モニタリング一 般
理 科 部 夏 季 講 習	原子力 センター	61. 7. 28 (原子力センター)	25 名 (女子高校生)	佐藤(信)、石川 佐藤(健)	放射能一般 ダスト中 RI 測定実 習
61年度原子力 防災研修会	原 子 力 安 全 対 策 室	61. 9. 18 ~19 (原子力センター)	40 名 (モニタリング要員)	監 視 測 定 課 職員全員(5名)	環境モニタリング一 般 測定器取扱実習 モニタリング演習
61年度原子力 防災訓練	保 健 環 境 部	61. 10. 16 (原子力センター)	50 名 (モニタリング要員 他)	同 上	同 上
61年度緊急時 医療活動 研 修 会	医 務 課	62. 1. 22 ~23 (蚕糸会館)	50 名 (緊急時医療担当者)	末永、菊地	放射線測定機器の取扱

7. 原子力に関する広報事業

当センターの展示館入館者数は、昭和61年1月から12月まで7,815人で、開館以来の総数は57,792人となった。

入館者数の最高は8月に、最低は1月にみられ、6月から11月までの6ヶ月間に74%の入館者があった。このような傾向は、ここ数年来みられたもので、学校の夏休みと秋の行楽シーズンに集中したものと思われる。

表 昭和61年月別入館状況

年 月	入館者数	年 月	入館者数
61. 1	106	61. 7	1,027
2	282	8	1,389
3	249	9	837
4	423	10	1,131
5	502	11	742
6	620	12	507
		計	7,815

61. 1. 6

昭和56年4月開館以来、この日で入館者数が5万人を超えた。

61. 4. 29～6. 6

4月26日ソ連原子力発電所事故発生につき、放射線・放射能の監視を強化し、本県への影響の実態把握につとめた。その結果は、新聞、テレビ等で県民に公表された。

61. 5. 1

パソコンゲーム公開。

61. 8. 18・8. 28・9. 7

原子力発電関係施設見学会実施。北上、河南、石巻の各市町から約300名が来所した。

61. 10. 26

原子力の日。昭和39年に設けられて以来、23回目となった。施設見学および講演が行われた。

III 研 究 論 文

一般論文

環境ガンマ線の季節変動と周期解析

菊地秀夫・藤原秀一*

I はじめに

宮城県原子力センターでは、東北電力女川原子力発電所の運転に伴ない発電所周辺の環境ガンマ線の連続モニタリングを実施している。センターでは環境ガンマ線の連続測定に線量率だけでなくスペクトル測定も実施している。

環境における線量率値に季節変動のあることはよく知られており、その原因については種々の説明がなされているが不明なところもある。これまでの測定結果についてこの周期性を検討して若干の知見を得たので報告する。

II 測定方法および解析方法

環境ガンマ線の測定方法等はすでに報告¹⁾しているののでここでは概略を述べる。検出器は下方 2π を鉛で遮蔽し恒温制御された $3^{\circ}\phi\times 3^{\circ}$ のNaI(Tl)で、従来のDBM方式による線量率のほかにスペクトルも10分を1回の測定間隔とした連続測定を実施している。今回報告するデータは全て1ヶ月間の平均値である。なお、本報告で使用した測定値は、発電所周辺6ヶ所に設置したモニタリングステーションのなかの鮫ノ浦局の値である。この局は小さな入江から約100mほどの田畑に囲まれた山間に位置している。

時系列データの周期解析には、周期とその周期成分の強さの関係を統計処理して(パワー)スペクトルであらわすBlackman-Tukey法を採用した。処理の概要は以下のとおりである。

- (1) 時系列データを読み込む。
- (2) 時系列データにフィルタ操作を施し白色化する。
- (3) 自己相関関数を計算する。
- (4) 観測しようとする周波数よりはるかに長い周期成分を除去する。
- (5) スペクトル計算のためにフーリエ変換する。

- (6) スペクトルを平滑化する。
 - (7) (2)で施した白色化に対し復色する。
 - (8) パワースペクトルを計算する。
- 詳細は文献²⁾を参照されたい。

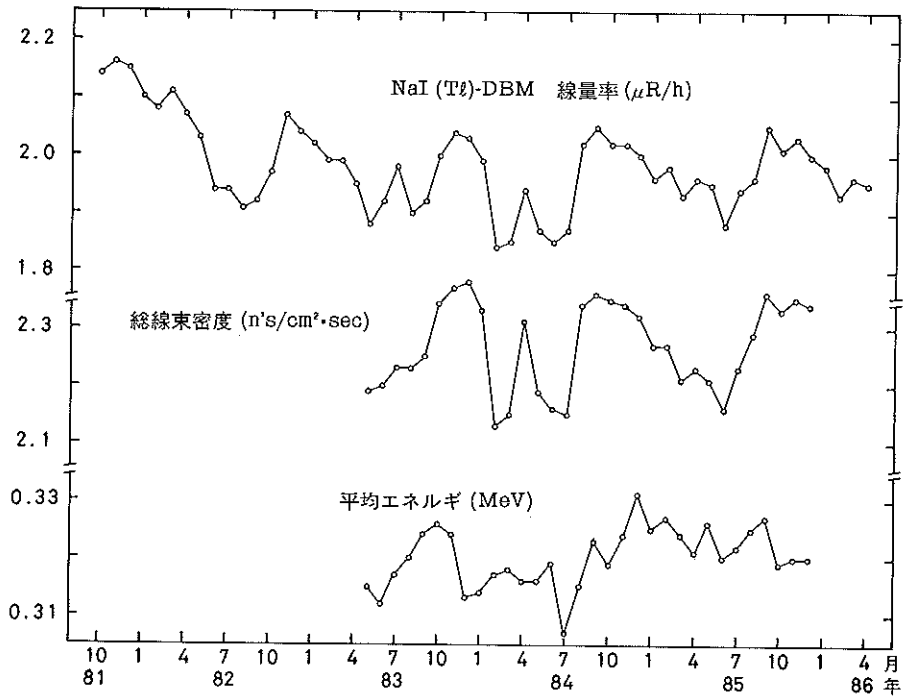
III 結果

月間の環境ガンマ線の測定結果を図-1と図-2に示す。線量率は10月から12月に高く5月から7月頃に低くなるというパターンをくり返している。線量率と直接関係する総線束密度と平均エネルギーの変化は、それぞれ $2.1\sim 2.4\text{ n's/cm}^2\cdot\text{sec}$ 、 $0.31\sim 0.33\text{ MeV}$ の範囲で変化しているが、いずれも線量率とほぼ同様の変化となっている。また、環境ガンマ線を構成しているウラン系列、トリウム系列及びカリウム-40天然成分のなかではウラン系列成分の変化が一番大きかった。線量ビルドアップファクタは、線量率が高いときに低く、線量率が低いときには高くなる結果が得られた。

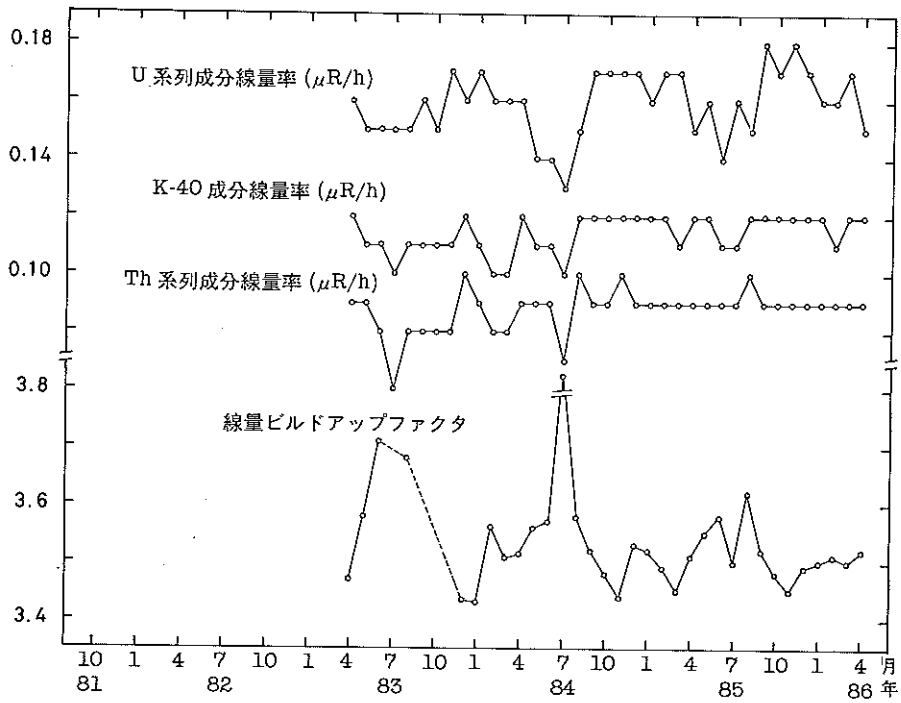
月間の気象観測結果を図-3に示す。地中の水分割合と、気温と表層の海水温度との差は、夏に高く冬に低くなる結果が得られた。降水量は、変動が大きい夏に多く冬に少ないという傾向があった。

線量率のパワースペクトル解析結果を図-4に示す。図からは1年周期のほかに4~6ヶ月の付近にも小さな周期がみられた。この周期は電離箱による線量率の測定結果にも同様にみられた。図は省略したが他のガンマ線データでの結果は以下のとおりであった。各成分の解析ではウラン系列成分に上記の線量率と同様の周期性がみられたが、ほかの成分にはみられなかった。総線束密度、線量ビルドアップファクタおよび平均エネルギーとも1年周期のほかに数ヶ月の周期がみられたが、総線束密度のパワースペクトルが線量率のそれに一番近い分布を示した。

* 宮城県保健環境センター



図一 環境ガンマ線測定結果の月変化(1)



図二 環境ガンマ線測定結果の月変化(2)

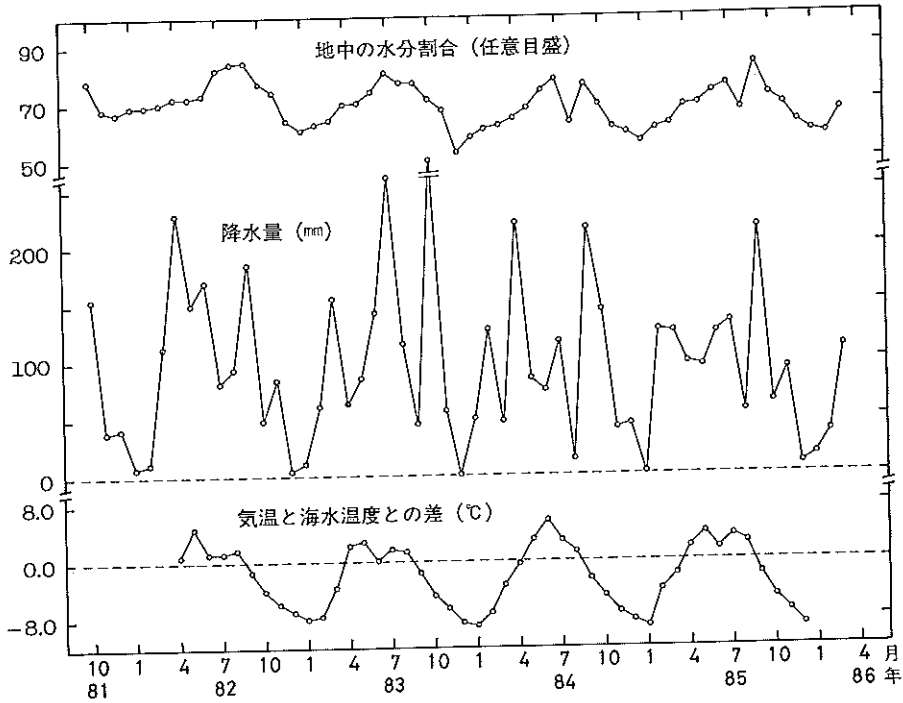


図-3 気象観測結果の月変化

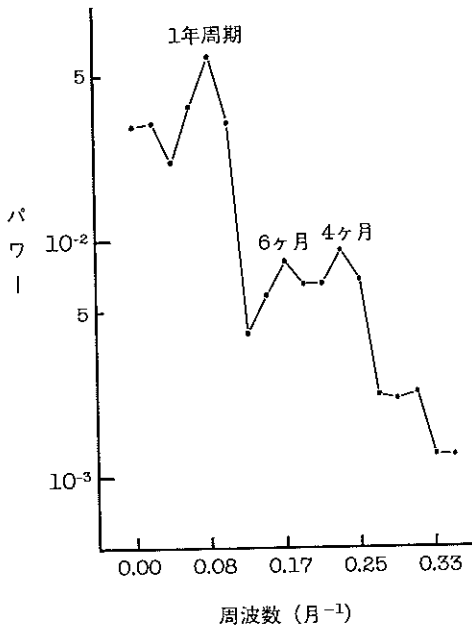


図-4 線量率のパワースペクトル

月間の気象観測結果のパワースペクトル解析結果を図-5に示す。地中水分、降水量および気温と海水温度との差のいずれにも1年周期に大きなパワーのある結果が得られた。降水量にはこの周期のほかに6ヶ月と2~3ヶ月にも周期がみられた。

線量率データに1年のほかに数ヶ月の周期がみられたことからこれらの周期性を調べた。線量率の移動平均値³⁾を図-6に示す。1年周期は12ヶ月間の、4~6ヶ月の周期は計算上5ヶ月間の月間値を平均してその期間の中央の月の値とした。5ヶ月の移動平均処理後はきれいな1年周期が残った。12ヶ月の処理後は1年を超えるような長期間の傾向のようなものが残った。また、月間値と移動平均値との差を図-7に示した。この差のパワースペクトル解析結果を図-8に示す。5ヶ月の移動平均値との差には4~6ヶ月の大きな周期性が得られ、12ヶ月の移動平均値との差には1年の大きな周期性が得られた。

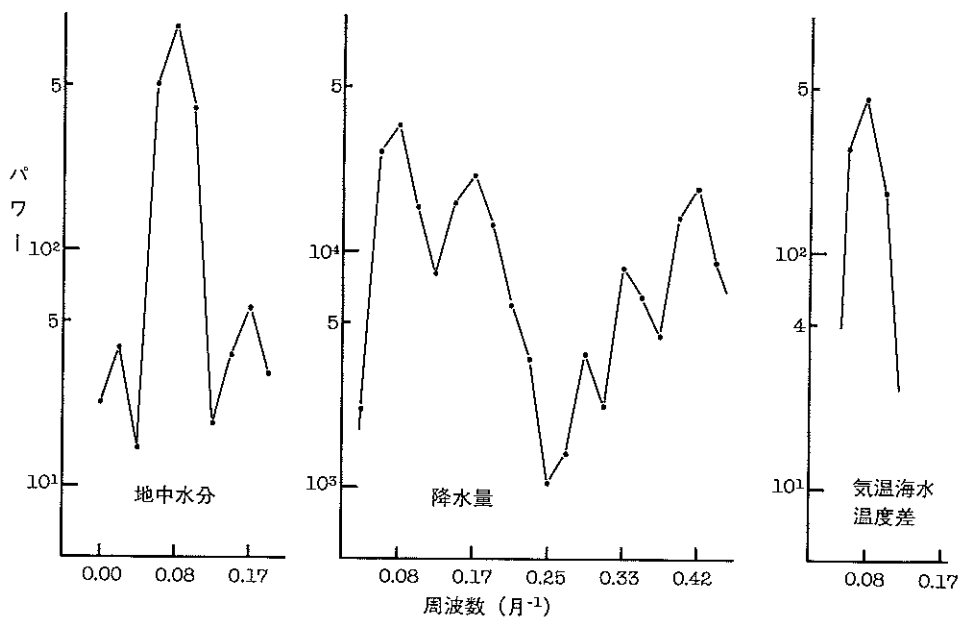


図-5 気象データのパワースペクトル

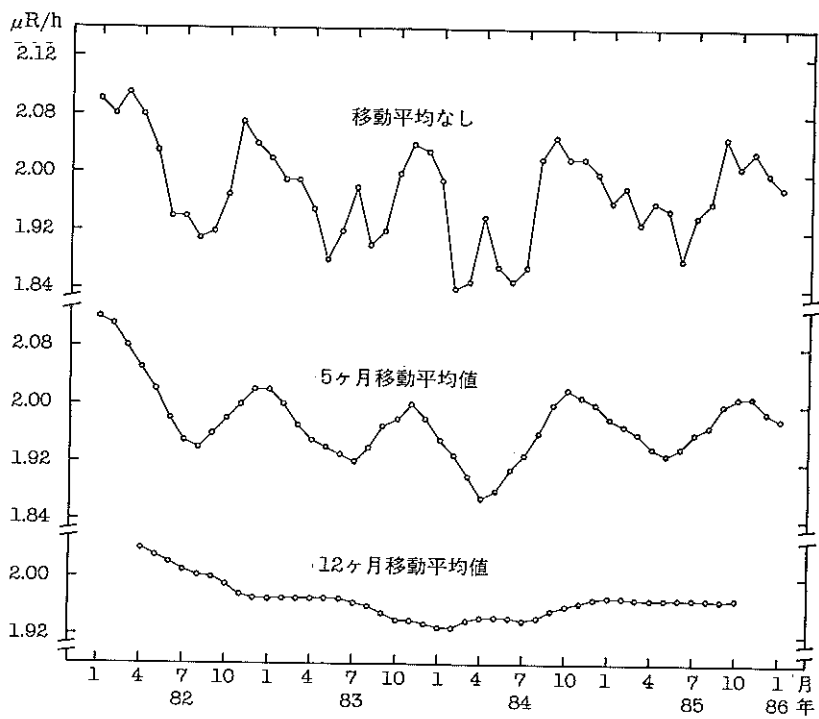
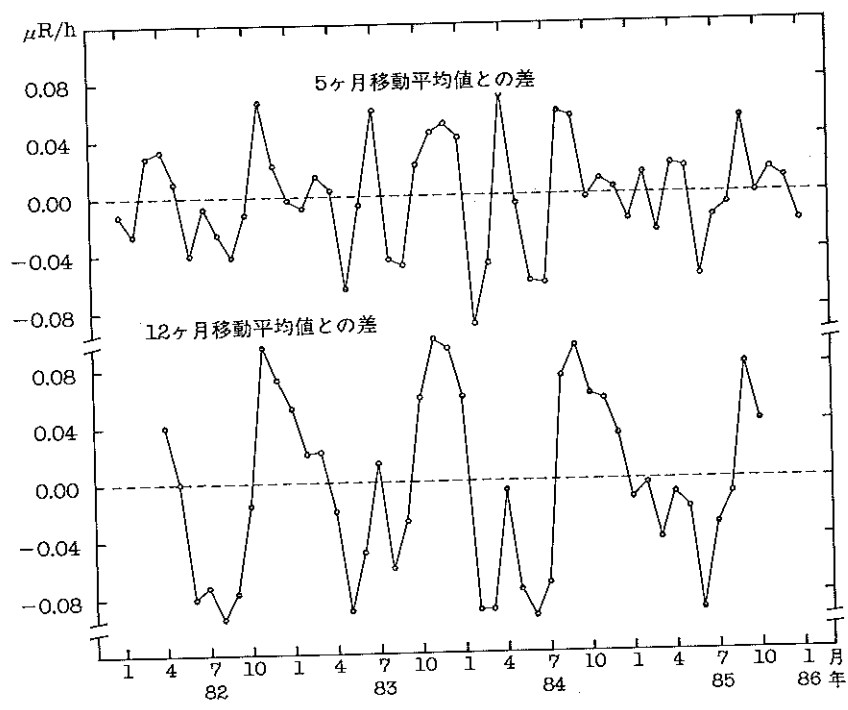
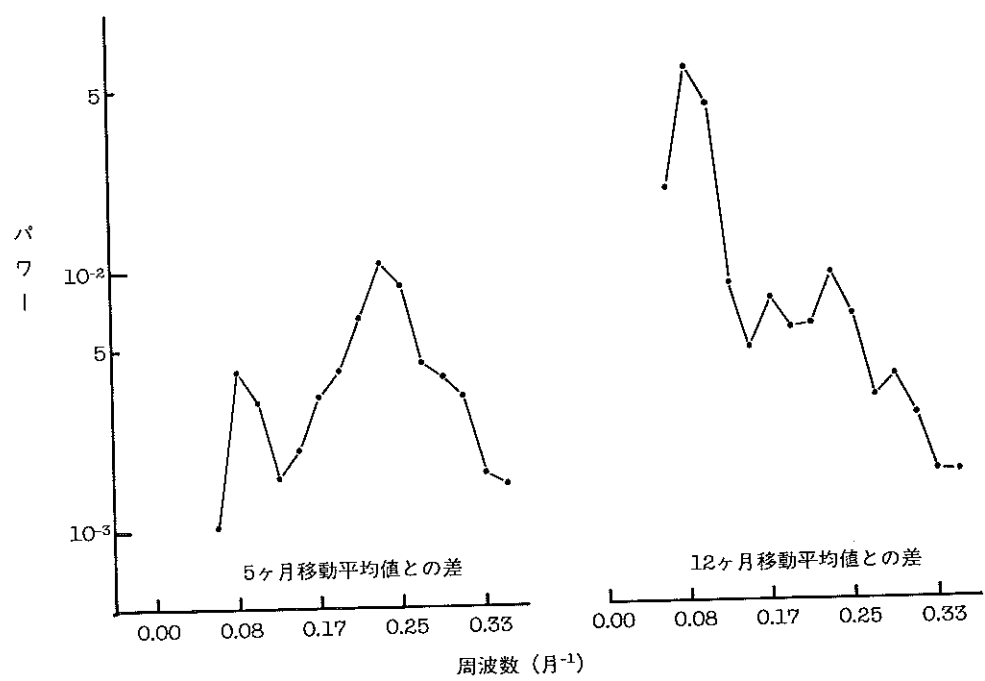


図-6 線量率データの移動平均処理結果



図一7 月平均値と移動平均値との差の変化



図一8 月平均値と移動平均値との差のパワースペクトル

IV 考 察

環境ガンマ線の線量率には、冬に高く夏に低くなるという周期性があるといわれている。本県の結果でも、検出器の下方を鉛で遮蔽しているためその変化は小さいが同様の結果が得られた。線量率を決定する因子であるガンマ線の総線束密度と平均エネルギーの変化をみると、観測された平均エネルギーの変動範囲では空気中のエネルギー吸収係数の値は大きくは変わらないため線量率への寄与は小さい。総線束密度の変化が線量率の変化に大きく効いていることがわかった。また、環境ガンマ線を天然成分に分離して各成分と線量率との関係を見ると、トリウム系列およびカリウム-40はさほど変わらず、ウラン系列成分の変化に伴っていることがわかる。また、直接線成分であるウラン系列が冬に上昇することにより線量ビルドアップファクタは減少している。このような変化は、降雨雪時や日変動と同じ現象であることがわかった。

地中の水分は、ラドン、トロン、の地中から気中への移行を押える重要な因子と考えられ、乾燥状態の冬に線量率が高く、湿った状態の夏に低いものと考えられる。一方、降水に伴ない線量率は上昇するが、月間の降水量と線量率との間にはあまり相関はみられない。これは降水をもたらす気団の経歴などにも関係するためと考えられ、月単位のスケールからみると、降水は地中の水分割合を決める作用として働くことがわかる。気温と海水温度との差は地表面の大気の拡散を支配する因子と考えられ、差が一番大きい冬には地表面の大気の拡散が活発な状態になっていると推測される。拡散が活発なときは気中のラドン、トロン濃度は低くなると考えられるが、線量率は高くなっており、その理由は不明である。気中のラド

ン、トロン濃度だけでなくその高度分布と地中からのラドン、トロンのエマネーション速度も含めて考慮していく必要があるものと考ええる。

月間の線量率の値のパワースペクトル解析結果からは、大きな1年周期のほかにも数ヶ月の周期があることが示唆された。気象観測結果のパワースペクトル解析結果には、1年周期しかあらわれず、降水量に6ヶ月の周期がわずかにみられる程度であった。数ヶ月の周期をもたらす原因は今回調べた気象等の結果からは不明であり、今後の検討課題である。この数ヶ月の周期の存在は、線量率に5ヶ月の移動平均処理を施すことによりきれいな1年周期になることやそれらの差のパワースペクトルにその周期性があらわれることにより確かなものと考えられる。

V ま と め

これまでの環境ガンマ線の測定結果の季節変動を調べた結果、以下のことがわかった。

1. 環境ガンマ線の線量率にあらわれる1年周期は、降雨雪時や日変動にあらわれる現象と同じで総線束密度の変化が大きく効いている。
2. 原因は不明であるが、環境ガンマ線の線量率には1年周期のほかにも数ヶ月の周期が存在している。

文 献

- 1) 中村栄一：原子力学会誌，25 (3)，179 (1983)
- 2) 日野幹雄著：“スペクトル解析”，P. 228 (1977)，朝倉書店
- 4) 森田優三著：“新統計概論”，P. 90 (1974)，日本評論社

一般論文

宮城県における環境ガンマ線線量率

—移動観測車による県内走行サーベイ中間報告(県北東部編)—

佐藤健一・菊地秀夫・佐藤信俊
末永紳一・阿部武雄・湯田和郎
中村栄一*・高橋宣明*・滝島哲夫*

I はじめに

移動観測車は、NaI(Tl) 検出器を装備し、走行しながら環境ガンマ線線量率を測定することができる。宮城県原子力センターでは、昨年度から県内走行サーベイを始め、県南地域の調査は終了した。今年度は、県北東地域の主要道路沿いに走行サーベイを行ったので、その結果について報告するが、まだ県西部地域が未調査なので、今回はあくまでも中間報告という形にとどめておく。

1. 走行経路並びに路線名

今年度における調査走行経路を図-1に、その路線名を表-1に示す。図-1の数字は路線No.に対応し、走行順路を示している。各データの値は一分間の走行経路に沿って平均された値であるから、各地における環境ガンマ線線量率の分布をきめ細かく知るためには、一分間の走行区間を短くするほうがよいデータが得られる。しかし、道路事情等もあり、最大53km/hで、普通は27~42km/hであった。

今年度における県内走行サーベイの全走行距離は804kmであった。前年度とあわせると、1217kmとなる。

II 調査方法

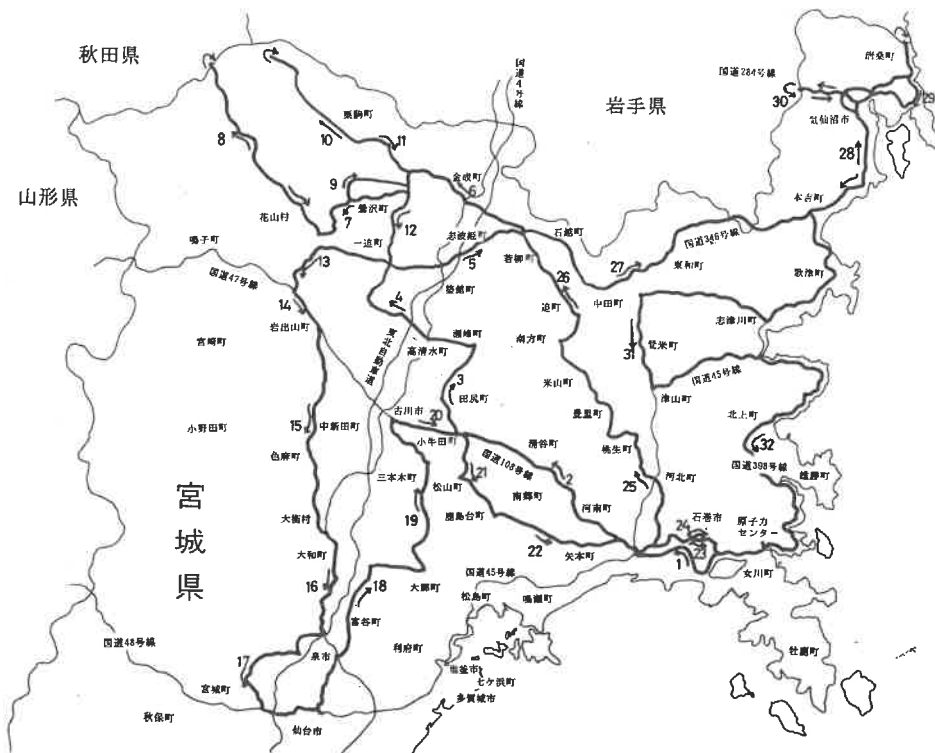


図-1 走行路線図

* 宮城県庁原子力安全対策室

表一 走行路線名および経路

年月日	路線 No	路線名	走行経路	年月日	路線 No	路線名	走行経路	
86.10.06	1	国道398号線 県道石巻停車場線	原子力センター→牧山有料道路 牧山有料道路→石巻合同庁舎 →石巻市蛇田	86.10.08	19	県道利府松山線 県道古川松山線 県道古川佐沼線	中村→松山町下伊場野 下伊場野→古川市 古川市	
	2	国道45号線 国道108号線	蛇田 蛇田→小牛田町牛飼		20	国道108号線	古川市→小牛田町	
	3	県道鹿島台高清水線 県道田尻瀬峰線	牛飼→田尻町 田尻町→瀬峰病院		21	県道鹿島台高清水線	小牛田町→松山町→鹿島台町	
	4	県道古川佐沼線 県道真山高清水線 県道栗駒岩出山線	瀬峰病院→高清水 高清水→岩出山町堂の沢 堂の沢→迫町真坂		22	県道石巻 鹿島台大橋線	鹿島台町→矢本町島の巣→ 石巻市蛇田	
	5	国道398号線	真坂→築館町→若柳町		23	国道108号線 石巻市 市道 県道石巻河北線 県道稲井沢田線 国道398号線	蛇田 石巻市水押 水押→棚橋 棚橋→沢田 沢田→原子力センター	
	6	県道若柳岩ヶ崎線	若柳町→栗駒町岩ヶ崎			24	国道398号線 県道稲井沢田線 石巻市 市道	原子力センター→石巻市沢田 沢田→稲井 石巻市大瓜
	7	県道鳴子岩ヶ崎線 県道花山一迫線	岩ヶ崎→鶯沢町四ツ岩 四ツ岩→花山町		86.11.18	25	県道石巻河北線 県道河北核生線 県道河南米山線	石巻市南境→河北町小船越 小船越→桃生町新田 新田→豊里町→米山町西野
	8	国道398号線	花山町→温湯温泉→宮城山形 県境→温湯温泉			26	国道346号線 県道新田米山線 県道米山迫線 国道398号線	西野 西野→南方町 南方町→迫町佐沼 佐沼→若柳町南大通
86.10.07	9	国道398号線	温湯温泉→花山町	27		県道米谷若柳線 国道346号線	南大通→石越町→中田町新田 新田→東和町→若手県森沢町 →本吉町津谷	
		県道花山一迫線	花山町→鶯沢町四ツ岩					
		県道鳴子岩ヶ崎線	四ツ岩→鶯沢町細倉					
	10	県道菜館栗駒公園線 町道馬場駒の湯線 県道菜館栗駒公園線	岩ヶ崎→栗駒町宮の下 宮の下→駒の湯入口 駒の湯入口→イワカガミ平	28		国道45号線	津谷→気仙沼バイパス→石割 峠→唐桑町→宮城岩手県境	
		県道文字下細倉線 県道文字上尾松線 県道鳴子岩ヶ崎線	イワカガミ平→駒の湯入口 駒の湯入口→宮の下 宮の下→岩ヶ崎 岩ヶ崎					
	11	県道菜館栗駒公園線 町道馬場駒の湯線 県道菜館栗駒公園線 県道鳴子岩ヶ崎線	岩ヶ崎→迫町真坂	29		国道45号線 県道馬場只越線 県道気仙沼唐桑線 国道45号線	宮城岩手県境→唐桑町只越 只越→唐桑町宿 宿→気仙沼市鹿折 鹿折→気仙沼漁港事務所	
	12	県道栗駒岩出山線	真坂→迫町大栗					
	13	国道398号線 県道鳴子岩ヶ崎線 県道長崎池月線	大栗→迫町長崎 長崎→岩出山町池月					
14	国道47号線	岩出山町池月→岩出山大橋						
15	県道岩出山吉岡線	岩出山大橋→中新田町→色麻 町→大衡村野畑	86.11.19	30	国道45号線 旧国道45号線 国道45号線	気仙沼漁港事務所→気仙沼市 八日町 八日町→岩手県根村 新月駅(Uターン)→気仙 沼市古町 古町→本吉町→歌津町 歌津町伊里前 伊里前→志津川町南町		
16	国道4号線	野畑→泉市泉ヶ丘						
17	県道泉塩釜線 県道大和宮城線 国道48号線	泉ヶ丘→泉市小角 泉市小角→宮城町下愛子 下愛子→宮城県庁						
	18	県道仙台泉線 国道4号線 県道西成田泉線 県道宮床鳥谷線 県道塩釜吉岡線 県道大和松島線					宮城県庁→泉市七北田 七北田 七北田→富谷町白鳥 富谷町白鳥→大和町鳥谷 鳥谷→大和町鶴巣 鶴巣→大綱町中村	
86.10.08	18	県道仙台泉線 国道4号線 県道西成田泉線 県道宮床鳥谷線 県道塩釜吉岡線 県道大和松島線	86.10.08	31	国道398号線 国道342号線 国道45号線	南町→東和町米谷 米谷→登米町→津山町柳津 柳津→志津川町折立		
				32	国道398号線	折立→北上町→雄勝町→原子 力センター		

2. 測定方法

図-2に移動観測車に搭載している環境ガンマ線測定装置のブロックダイアグラムを示す。詳細はすでに報告している¹¹⁾ので省略する。概略は、NaI(Tl)検出器で得られた信号をDBM、全計数(0.05~3.0MeV)、SCA(1.65~3.0MeV)の三系統にわけ、スケーラに送る。1分ごとにこれら4種類のデータ及び時刻を紙テープに打ち出す。紙テープへのデータ打ち出し時に、地図に通過地点を書き込み、位置の確認を行った。今回はビデオカメラを車内に持ち込み、道路が変更されたりしてわからなくなった地点や、Uターンにより地図上で重なるため記録しなかった地点の確認を後日おこなえるようにした。

III 測定結果

走行距離を横軸にして、測定結果を測定日ごとにコンピュータで描かせたのが図-3~7である。このときの天候は、いずれも晴れであった。

今回の測定により得られた線量率の範囲は、1.39~6.71 μ R/hであった。原子力センターを中心とした、志津川町から石巻市にいたる国道398号線及び、気仙沼市と唐桑町を結ぶ国道45号線並びに県道などでは若干線量率が高くなる傾向がみられた。どちらもありアス式海岸に沿っている道路で、道の両側に切り立ったがけがある。今回の測定では国道398号線の宮城秋田県境や栗駒山イワカガミ平など山の奥まで行って見たが、尾根道のせいかなり大きな線量率の変化はみられなかった。とくに線量率の低い地域というのもみあたらなかったが、岩出山町から仙台市へ南下する路線No15~17で若干低めなのが目立った。一般には、両側が開けた田畑の中の道路で線量率は低い。東和町から本吉町に抜ける国道346号線

では、岩手県内を通過したときだけ若干線量率が上昇した。また、農業地帯より住宅地のほうが線量率がわずかながら高いという現象もみられた。これは、建造物による影響と推測される。

局所的な変化としては、前回の調査と同様に、トンネルや両側をがけにおおわれた地域で線量率が上昇し、橋の上で下がるという現象がみられた。

次に、線量率の変化を、全計数率とSCA計数率との関係から調べてみた。表-2に、路線別に分類した線量率と、全計数率とSCA計数率との相関係数 r 、及び r と自由度より算出した t 値を示した。線量率と全計数率との関係は、路線14を除き、他はすべて0.1%の有意な結果を示した。これに対して、SCA計数率との関係は、路線により相関係数が大きく変化しているが、一般的に全計数率との関係に比べ相関性は低い傾向がみられた。

t 分布検定による有意水準1%以上の路線は、平野と山地にかかるものが多い。しかし、路線No31は峠越えがあったり、川沿いに走ったりしたにも関わらず、高い相関関係がみられ、地形による関係はあまりないのかもしれない。

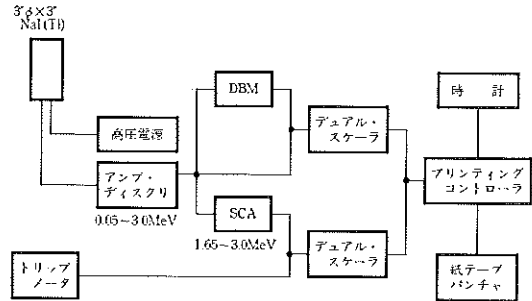


図-2 車載フィールドモニタブロックダイアグラム

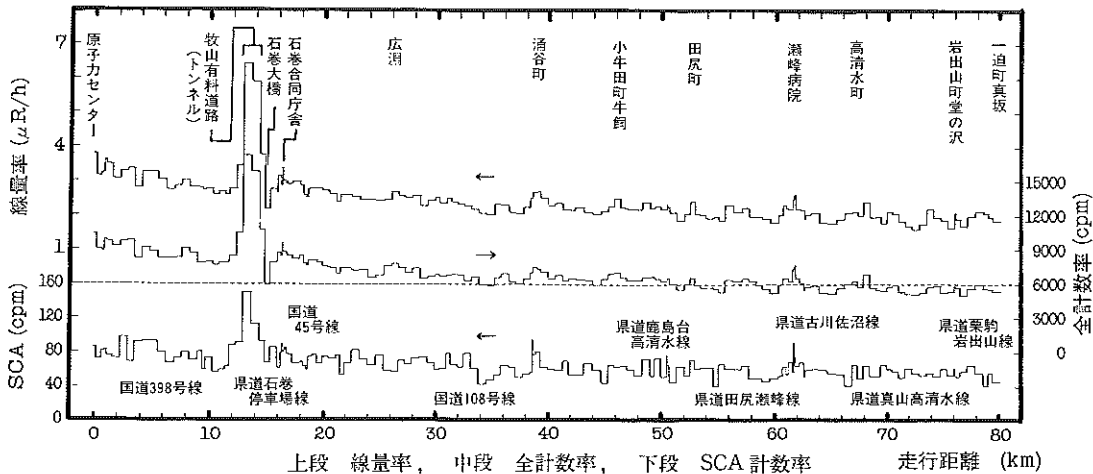


図-3-1 走行サーベイ測定結果(路線No.1~4)

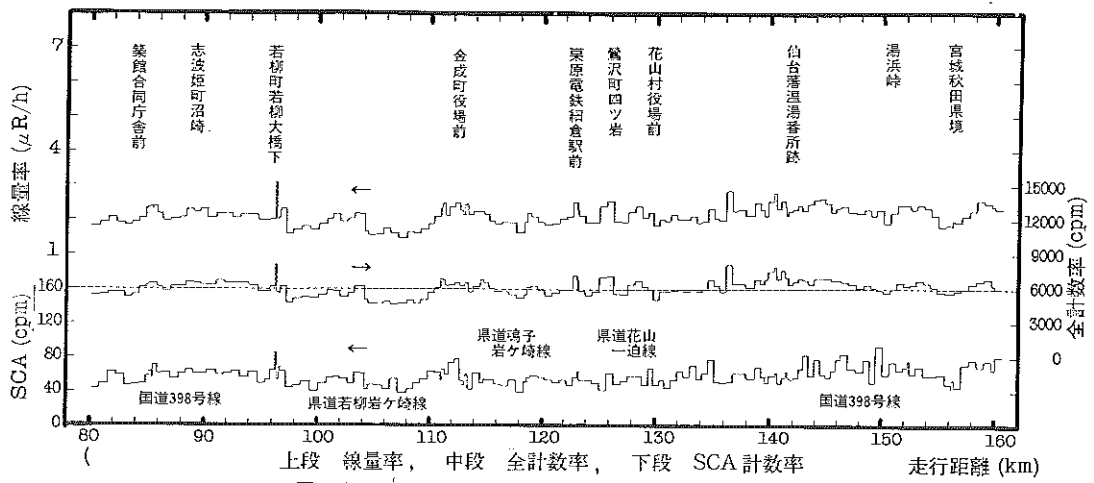


図-3-2 走行サーベイ 測定結果 (路線No.5~8)

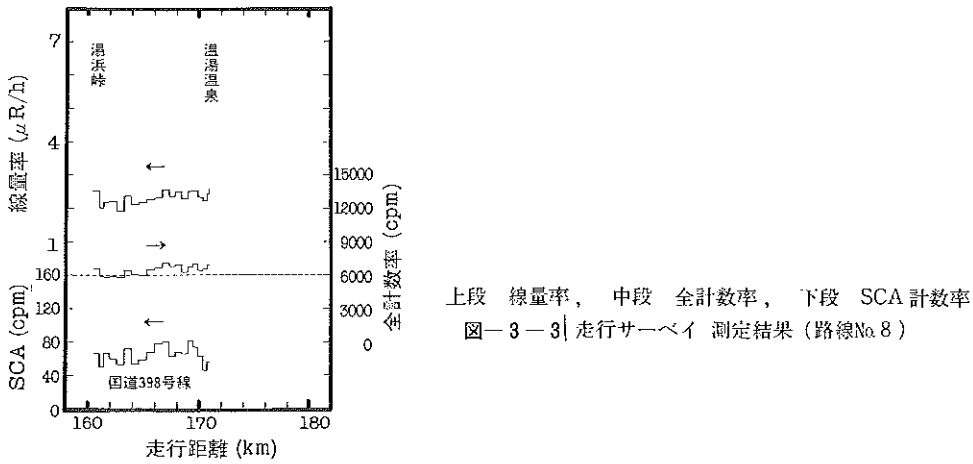


図-3-3 走行サーベイ 測定結果 (路線No.8)

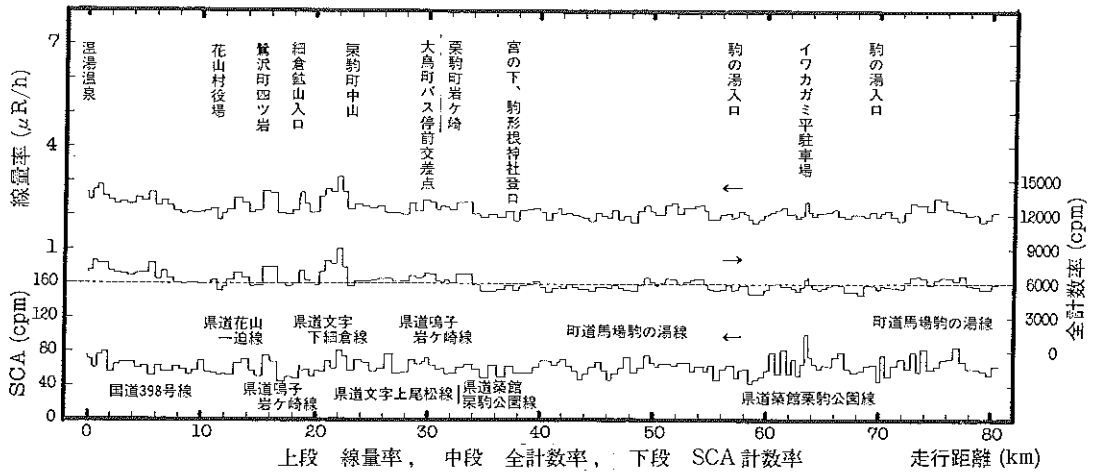
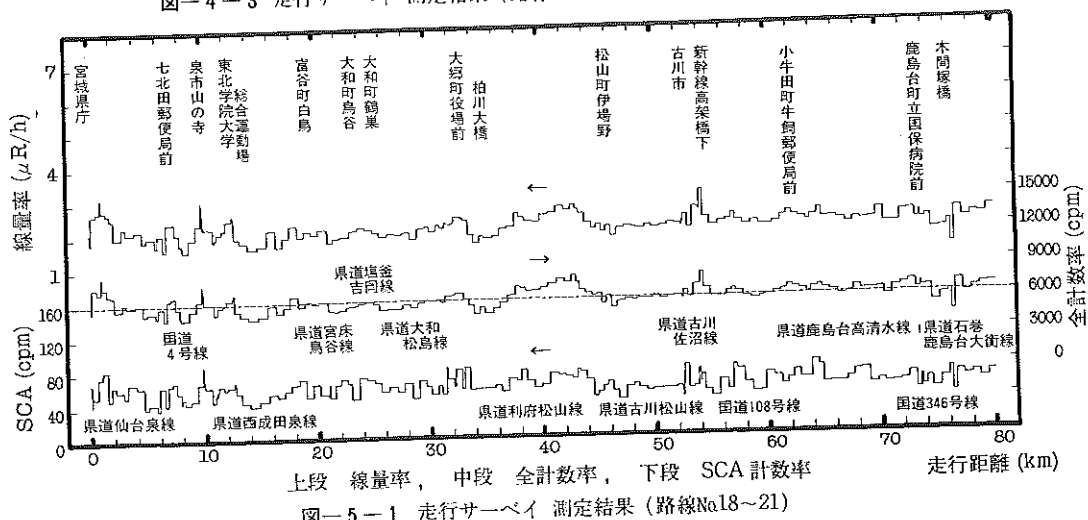
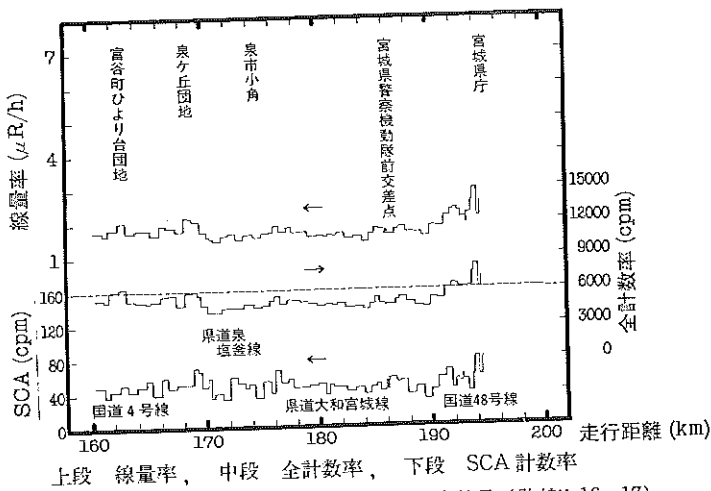
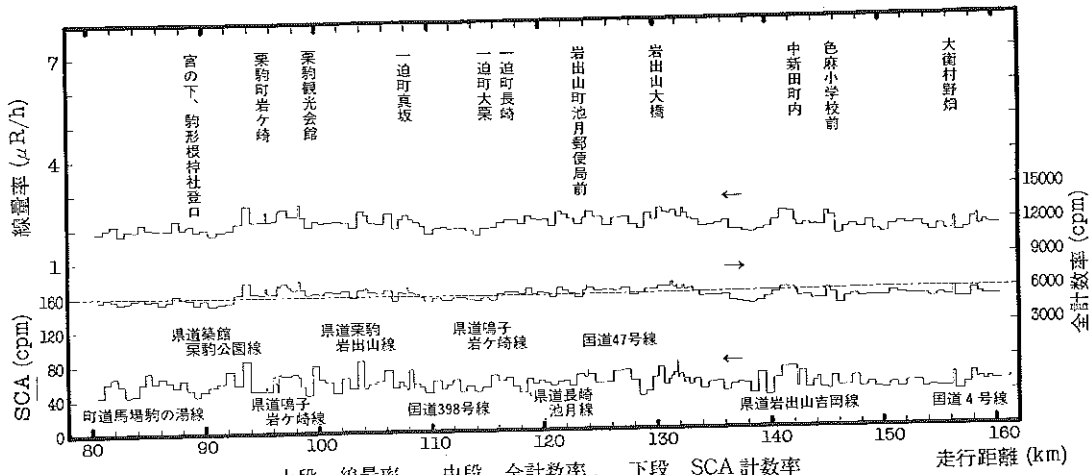
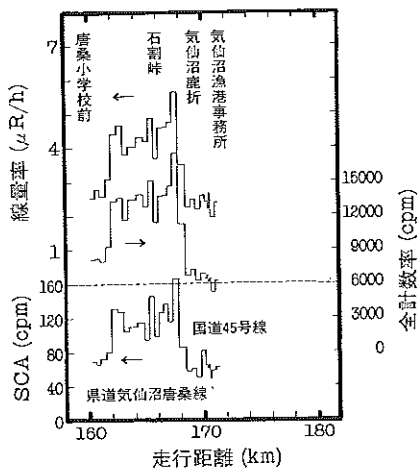
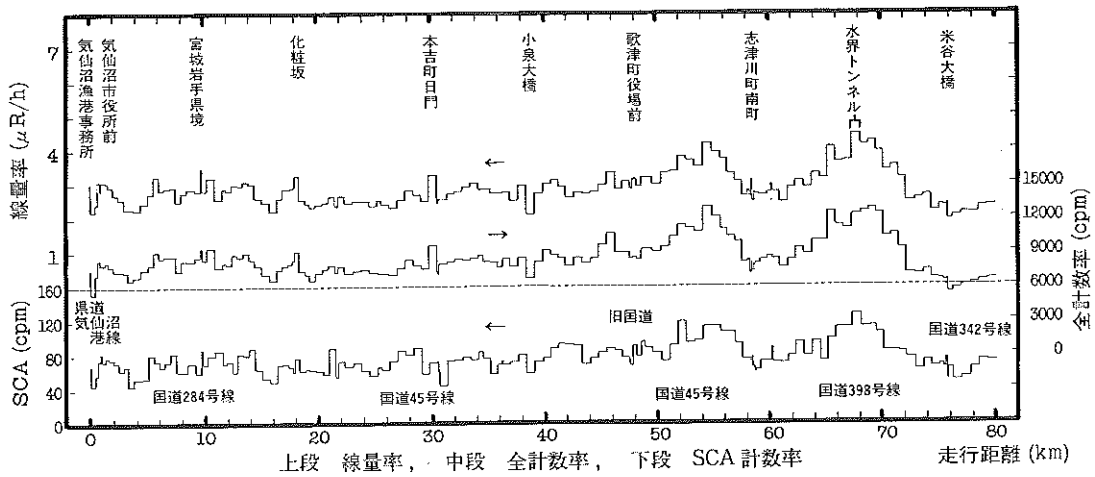


図-4-1 走行サーベイ 測定結果 (路線No.9~11)

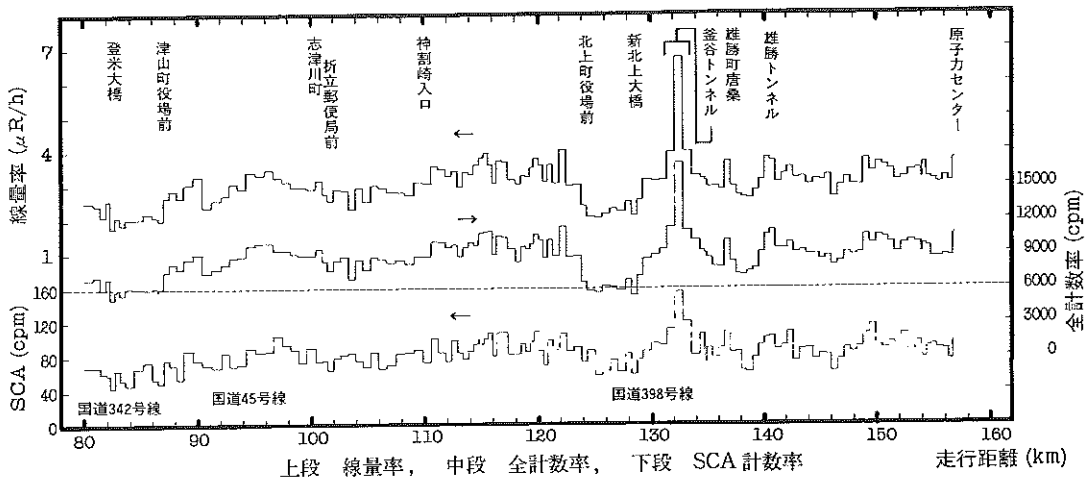




上段 線量率，中段 全計数率，下段 SCA 計数率
 図-6-3 走行サーベイ 測定結果 (路線No.29)



上段 線量率，中段 全計数率，下段 SCA 計数率
 図-7-1 走行サーベイ 測定結果 (路線No.30~31)



上段 線量率，中段 全計数率，下段 SCA 計数率
 図-7-2 走行サーベイ 測定結果 (路線No.31~32)

表-2 路線別各計数率と線量率との相関

路線 No.	データ 数	線量率 ($\mu R/h$)	方法A $X(\mu R/h) = a \times \text{Total}(cpm) + b$					有意 水準	方法B $X(\mu R/h) = a \times SCA(cpm) + b$				
			a	b	r(相関)	t分布	a		b	r(相関)	t分布	有意 水準	
1	40	3.170	0.000392	-0.386	0.988	39.432		0.0388	0.064	0.825	8.999		
2	50	2.421	0.000357	-0.048	0.924	16.741		0.0115	1.664	0.566	4.757		
3	29	2.142	0.000380	-0.199	0.915	11.784		0.0102	1.534	0.537	3.308	1%	
4	32	1.965	0.000406	-0.339	0.901	11.376		0.0058	1.633	0.200	1.118	×	
5	31	2.143	0.000387	-0.244	0.901	11.184		0.0219	0.843	0.778	6.669		
6	32	1.986	0.000432	-0.452	0.860	18.779		0.0264	0.542	0.793	7.129		
7	31	2.102	0.000353	-0.046	0.908	11.671		0.0153	1.283	0.461	2.798	1%	
8	81	2.273	0.000352	0.010	0.856	14.717		0.0918	1.693	0.429	4.221		
9	61	2.321	0.000337	0.103	0.943	21.765		0.0184	1.182	0.602	5.791		
10	62	2.075	0.000342	0.088	0.901	16.088		0.0079	1.590	0.495	4.413		
11	58	2.088	0.000351	0.019	0.856	12.391		0.0067	1.668	0.392	3.189	1%	
12	24	2.307	0.000402	-0.310	0.895	9.411		0.0072	1.859	0.395	2.017	×	
13	29	2.114	0.000469	-0.712	0.948	15.477		0.0184	1.432	0.488	2.905	1%	
14	9	2.160	0.000578	-1.449	0.753	3.028	×	0.0075	1.725	0.453	1.344	×	
15	49	1.983	0.000424	-0.425	0.937	18.389		0.0173	1.061	0.656	5.956		
16	23	1.864	0.000310	0.170	0.799	6.089		0.0128	1.209	0.641	3.827		
17	52	1.817	0.000365	-0.076	0.980	34.823		0.0213	0.764	0.662	6.246		
18	68	2.102	0.000421	-0.359	0.971	32.995		0.0214	0.858	0.693	7.809		
19	46	2.183	0.000322	0.190	0.955	21.357		0.0147	1.300	0.629	5.367		
20	17	2.310	0.000467	-0.497	0.962	13.645		0.0090	1.782	0.346	1.428	×	
21	19	2.232	0.000295	0.354	0.707	4.122		0.0057	1.882	0.378	1.683	×	
22	34	2.525	0.000378	-0.159	0.958	18.898		0.0258	0.731	0.774	6.915		
23	40	3.334	0.000335	0.176	0.958	20.593		0.0246	1.226	0.798	8.163		
24	36	3.072	0.000369	-0.122	0.941	16.214		0.0179	1.551	0.661	5.136		
25	59	2.634	0.000328	0.201	0.952	23.481		0.0177	1.381	0.744	8.407		
26	43	2.183	0.000416	-0.311	0.949	19.274		0.0105	1.551	0.479	3.494	1%	
27	84	2.447	0.000265	0.540	0.965	33.321		0.0240	0.905	0.839	13.963		
28	52	2.760	0.000343	-0.949	0.965	26.019		0.0312	0.509	0.963	25.267		
29	46	3.004	0.000301	0.318	0.988	42.431		0.0320	0.434	0.960	22.743		
30	110	2.822	0.000296	0.377	0.934	27.168		0.0207	1.291	0.778	12.869		
31	69	2.773	0.000309	0.262	0.985	46.725		0.0304	0.495	0.878	15.014		
32	103	3.177	0.000357	-0.048	0.969	39.417		0.0306	0.497	0.811	13.931		

注1) 有意水準欄の無印は、確率0.1%で有意であることを示す。

注2) 有意水準欄のパーセンテージは、その確率で有意であることを示す。

注3) 有意水準欄の×印は、確率5%で有意でないことを示す。

IV ま と め

昨年度から環境放射能の県内走行サーベイを行っているが、今回は県北東地域について調査を実施した。

その結果、線量率は、 $1.39\sim 6.71\mu\text{R}/\text{h}$ の範囲にあり、局所的な高低はあるものの、地域的な大きな変化はみられなかった。

線量率と全計数率との相関は高いが、SCA計数率との相関は比較的高くない。SCA領域のエネルギー範囲設定については、検討する必要がある。

県内全域をサーベイした後で、DBM線量率と、全計数率またはSCA計数率との相関性、及び地域との関係を検討したい。そして、特に相関性の良くない地域を抽出して環境ガンマ線スペクトルの測定を行う、というような調査も今後のテーマとしたい。

文 献

- 1) 中村栄一：宮城県原子力センター年報 Vol.2, 3
16 (1984)

一般論文

熱蛍光線量計(TLD)相対感度の長期変動(2)

末 永 紳 一

I はじめに

前報¹⁾に続いて、モニタリング用 TLD と校正用 TLD の製造ロット (lot) の違いにともなう感度を補正するため、両者の感度比を相対感度として定め、四半期毎の積算線量の測定に際して、継続して実施してきたので、その変動状況を報告する。

また、使用した TLD リーダーのフォトマル印加電圧と CAL 値及び TLD の読取値との関係を検討したのであわせて報告する。

II 測定方法および機器

測定方法および機器は、前報¹⁾にも示してあるが、その概要は次のとおりである。

1. TLD リーダーの安定性

リーダーで TLD を読み取る場合、読み取り前、読み取り途中、読み取り終了後の各段階において、リーダーの内部光源による CAL 値を各々 10 回計測する。

さらに、そこで計測された全 CAL 値の平均値と、各段階での 10 回の CAL 値の平均値とを比較し、TLD 読み取り時のリーダーの安定性を検討する。

2. 相対感度の変動

モニタリング用 TLD (lot-12) と、校正用 TLD (lot-37) を、アニール (約 400°C、3 分間) 後、標準照射装置で一定量の照射線量を与え鉛ブロック内に 2 日間保管する。その後、リーダーで両者の TLD を読み取り、各々平均値を求める。これから、校正用 TLD (lot-37) の読み取り平均値に対するモニタリング用 TLD (lot-12) の比を求め、相対感度とする。この相対感度を四半期毎に求め、その変動をみる。

3. TLD リーダーのフォトマル印加電圧と CAL 値との関係

- (1) フォトマル印加電圧を段階的に変えて、その段階毎に内部光源による CAL 値を計測する。
- (2) リーダー内部の加熱機構部に付いている内部光源の前面ガラスを人為的に汚した場合と、そのガラス面を清掃した場合について各々 CAL 値を 10 回計測する。

4. TLD リーダーのフォトマル印加電圧と TLD 読み取り値との関係

- (1) モニタリング用 TLD (lot-12) と、校正用 TLD (lot-37) を、アニール (約 400°C、3 分間) 後、標準照射装置で一定量の照射線量を与え鉛ブロック内に 2 日間保管する。これを各々 3 の (1) と同様に、フォトマル印加電圧を段階的に変えて、TLD を 4~5 本ずつ読み取る。
- (2) リーダーの取手部にあるガラス面の汚れが、読み取り値に与える影響を定性的にみるため、ネスト側のガラス面 (TLD 素子を置く側) を汚した (黒のマジックを塗る) 場合と、ネストと反対側のガラス面 (フォトマル側でネストの開口部分から見通せる部分) を汚した場合について、各々 TLD を 4~5 本読み取る。

5. 使用機器

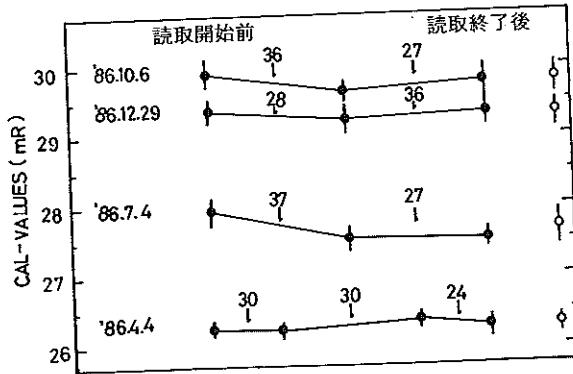
TLD 素子 (UD-200S)、TLD リーダー (UD-502A)
アニール炉 (UD-602)、標準照射装置 (特注)

III 結 果

1. TLD リーダーの安定性

(1) 1986年4月以降の四半期毎の計測について、CAL 値の変動からリーダーの安定性を検討した。図-1のと

おり4月、10月、12月に実施した計測での各段階における10回の CAL 値の平均値の変動は²⁾、各計測毎の全 CAL 値の平均値の±0.5%以内にあり、リーダーは安定であった。しかし、7月に実施した計測の読み取り前の CAL 値は、+1%程度の変動を示した。



【凡 例】

- (1) 下向きの矢印「レ」は、その位置で読み取った TLD の本数を示す。
- (2) 黒丸「●」は、CAL 値の平均値。
- (3) 白丸「○」は、CAL 値の全平均値。
- (4) 誤差棒「|」は標準偏差(σ)を示す。

図-1 CAL 値の変動状況

(2) 1983年8月から1986年12月までの四半期毎の計測で得られた全 CAL 値の平均値の推移を、表-1と図-2からみると、1983年8月から1986年4月まで CAL 値(平均値)は徐々に減少しており、その後、フォトマル印加電圧を上げたので CAL 値も増加している。

と図-2に示した。

グループAとグループBは、lot-12の素子を2グループに分けたもので、Aは第1、3四半期、Bは第2、4四半期に使用したものである。

この図から、グループAおよびグループBとも、1986年1月まで一様に低下傾向を示し、その後は、上昇傾向を示している。ここまで相対感度の推移を、便宜上AとBにグループ分けしてきたが、目的はロット

2. 相対感度の変動

(1) 1983年8月から1986年12月までの相対感度を表-1

表-1 校正用 TLD とモニタリング用 TLD の標準照射結果

照射日	'83.8.28	'85.5.7	'85.7.14	'85.10.2	'86.1.6	'86.4.2	'86.7.2	'86.10.3	'86.12.27
照射線量 [mR]	34.26	29.10	29.02	28.87	28.70	28.54	28.34	28.18	28.03
計測日	'83.8.30	'85.5.9	'85.7.16	'85.10.5	'86.1.8	'86.4.4	'86.7.4	'86.10.6	'86.12.29
フォトマル印加電圧 (表示値) [V]	504 ~503	505 ~504	505 ~504	504 ~502	505 ~504	505 ~503	508 ~505	515 ~512	518 ~516
CAL 値 [Mean±σ ₁]	31.90±0.13	29.60±0.12	28.59±0.07	27.66±0.09	27.05±0.02	26.28±0.13	27.66±0.26	29.79±0.24	29.30±0.18
校正用 TLD の読取值 [Mean±σ ₁]	34.21±1.85	31.96±1.90	31.36±2.30	31.63±2.09	31.20±2.08	30.10±1.72	30.79±1.73	33.18±2.13	32.96±2.16
モニタリング用 TLD の読取值 [Mean±σ ₁]	33.39±1.96	28.87±1.64	28.47±1.55	27.94±1.77	27.81±1.53	27.07±1.65	27.99±1.49	30.13±1.78	30.62±1.79
相対感度 [group A or B]	0.976±0.078 [A]	0.903±0.074 [B]	0.908±0.083 [A]	0.883±0.082 [B]	0.891±0.078 [A]	0.899±0.075 [B]	0.909±0.070 [A]	0.908±0.073 [B]	0.929±0.082 [A]

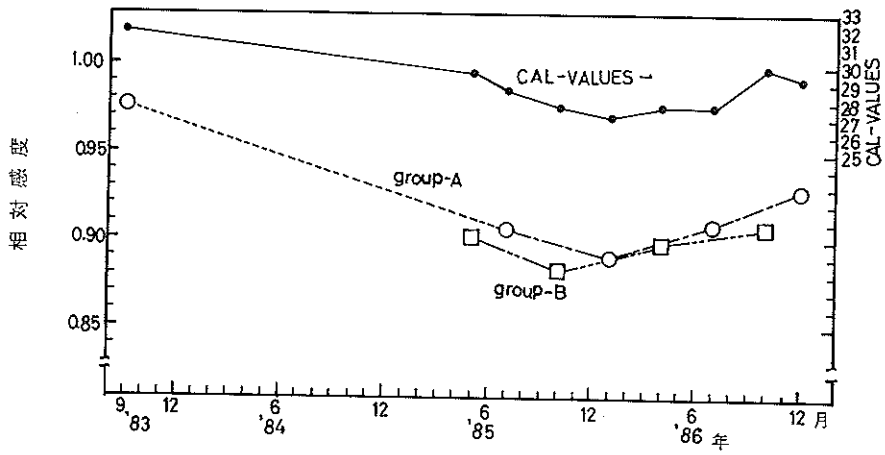


図-2 TLDの相対感度の変動状況

の違いによる感度差の変化、即ち lot-37 と lot-12 の感度差の変化を求めているものであるから、ここからのデータの取り扱いは同じとして相対感度の推移をみると、イ相対感度の変動傾向は、必ずしも同じでないこと。ロその変動の大きさは、 $\pm 2.2\%/6$ か月程度と試算されることが分かった。

(1) 図-3 に示すように、印加電圧と CAL 値は、直線関係にあることが分かる。

1次相関式 $y = 0.535x - 238$ ($\gamma = 0.9980$) — ①

(2) リーダーの内部光源の前面ガラスの汚れが CAL 値に与える影響を定性的にみた結果を、図-3 に示した。これらのことから印加電圧が同じであれば、内部光源の前面ガラスの汚れが CAL 値を低下させることが分かる。

3. TLDリーダーのフォトマル印加電圧と CAL 値との関係

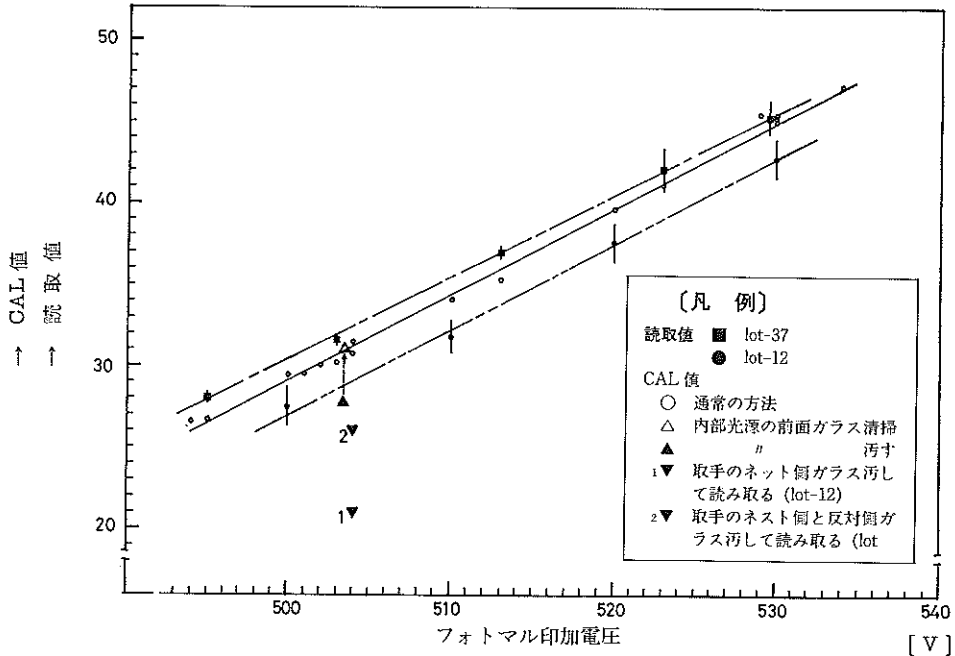


図-3 フォトマル印加電圧と CAL 値または、読取値との関係

4. TLDリーダーのフォトマル印加電圧とTLD読み取り値との関係

(1) 図-3に示すように、印加電圧と読み取り値とは、3の(1)のCAL値の場合と同じく、直線関係にあることが分かる。しかし、lot-37とlot-12の直線は、若干傾きが違っている。また、lot-37の直線は、lot-12の直線より読み取り値の大きい、上方に位置している。これは、lot-37の感度がlot-12の感度より高いことを表わしている。

$$\text{1次相関式 (lot-37) } y = 0.492x - 215 \quad (\gamma = 0.9991) \quad \text{--- ②}$$

$$\text{(lot-12) } y = 0.535x - 241 \quad (\gamma = 0.9995) \quad \text{--- ③}$$

(2) リーダー取手部のガラス面の汚れが、読み取り値に与える影響を、lot-12のTLDを使って定性的にみた結果を、図-3に示した。当然のことながら、リーダー取手部のガラス面に汚れがあると、TLD素子から発した蛍光がその汚れに遮えざられるため、読み取り値が小さくなっていることが分かる。

また、同程度の汚れならば、ネスト側のガラスの汚れ（但し、ネストの開口部の真下の場合）の方が、読み取り値に与える影響が大きいことが分かる。

(3) フォトマル印加電圧と読み取り値（感度）との関係を示した。

図-3から、フォトマル印加電圧と単位照射量あたりの読み取り値（感度）との関係を示したので図-4である。図-3と同様に、印加電圧と単位照射量あたりの読み取り値とは、直線関係（以下「感度直線」と呼ぶ）にある。lot-37とlot-12の直線の傾きは若干違い、lot-37の直線がlot-12の直線より上方に位置している。

$$\text{1次相関式 (lot-37) } y = 0.0151x - 6.607 \quad (\gamma = 0.9990) \quad \text{--- ④}$$

$$\text{(lot-12) } y = 0.0167x - 7.534 \quad (\gamma = 0.9996) \quad \text{--- ⑤}$$

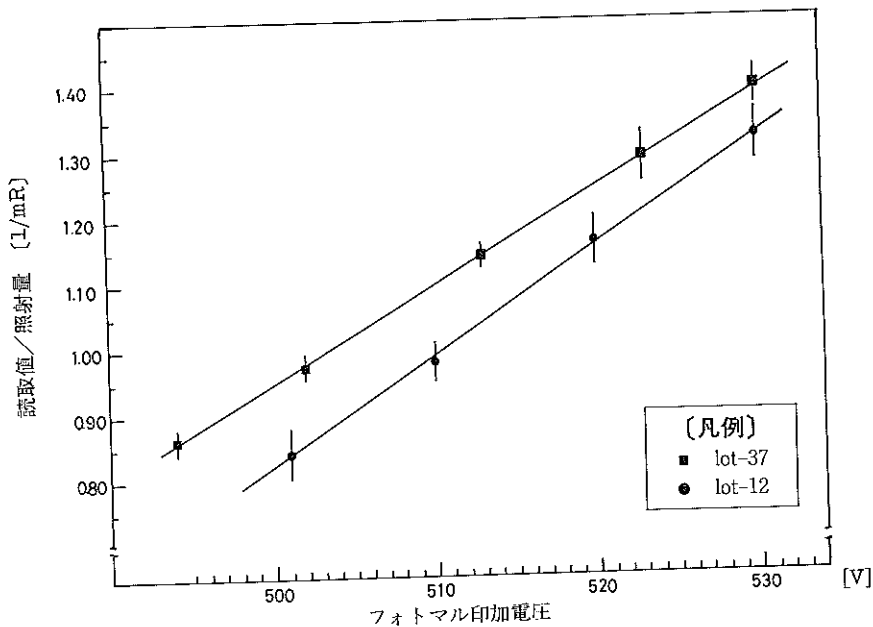


図-4 フォトマル印加電圧と単位照射量あたりの読取値との関係

IV 考 察

1. 全 CAL 値の平均値の推移

表-1 に示した四半期の計測毎の CAL 値 (平均値) を、図-3 のフォトマル印加電圧と CAL 値との直線と対応させてみると、1983年8月の CAL 値は、同直線と一致するが、それ以外の CAL 値はいずれも同直線から下方にずれており、その程度は、時間の経過とともに大きくなっている。例えば、1986年12月の CAL 値は、印加電圧を517V とすると、図-3 の関係から約38と求まるが、計測結果は29.30であり、約23%小さい値になっていることが分かる。表-1 に示した CAL 値が徐々に減少した原因は、内部光源の前面ガラスが、時間経過とともに徐々に汚れていったためと考えられる。このことは、図-3 のリーダー内部光源の前面ガラスの汚れの影響調査結果からも明らかである。

2. 計測中の CAL 値の変動

1986年7月の計測で、TLD読み取り前の CAL 値 (27.94) が、全 CAL 値の平均値 (27.66) に比べ+1%程度高い値を示した。また、計測中の CAL 値の変動を表-2 に示したが、読み取り開始前と読み取り終了後の CAL 値の変化率は、-1.6%程度であった。

一方、計測中に TLDリーダーのフォトマル印加電圧の表示値が、508V から506~505V になっており、この電圧変化にともなう CAL 値の変化を図-3 から求め、表-3 に示した。CAL 値の変化率は-4.8%程度になる。

両者の CAL 値の変化率が違う原因は、フォトマル印加電圧表示値の変化ほど、実際の印加電圧は変化していないため、CAL 値の変化も小さかったと考えられる。実際の印加電圧の変化は、①式から印加電圧変化1Vあたり CAL 値が1.6%変化すると試算され、上述の計測中の変化率-1.6%と一致することから、1V程度であると推定される。

表-2 計測中の CAL 値の変動

計 測 段 階	CAL 値 (10回)
読み取り開始前	27.94±0.16
読み取り途中	27.53±0.19
読み取り終了後	27.50±0.14
全 C A L 値 (平均値)	27.66±0.26

表-3 フォトマル印加電圧の変化と CAL 値

フォトマル印加電圧	CAL 値
508 V	33.4
505 V	31.8
変 化 率	-4.8 %

注 内部光源の前面ガラスの汚れのため、CAL 値が小さくなっている。

表一 4 標準照射法による相対感度と推定相対感度との比較

	'83. 8. 28	'85. 5. 7	'85. 7. 14	'85. 10. 2	'86. 1. 6	'86. 4. 2	'86. 7. 2	'86. 10. 3	'86. 12. 27
標準照射法の相対感度	0.976 ±0.078	0.903 ±0.074	0.908 ±0.083	0.883 ±0.083	0.891 ±0.078	0.899 ±0.075	0.909 ±0.070	0.908 ±0.079	0.929 ±0.082
推定相対感度	0.878	0.882	0.882	0.876	0.882	0.880	0.888	0.908	0.917

3. 相対感度の推定と変動

これまで、相対感度は標準照射法により実測して求めてきたが、各 lot の感度は印加電圧と直線関係にあり、校正用 TLD (lot-37) とモニタリング用 TLD (lot-12) を読み取る際のリーダーフォトマル印加電圧が分かれば次式から、相対感度を推定できるのではないかと考えられる。

$$\frac{y_{12}}{y_{37}} = \frac{0.0167x - 7.534}{0.0151x - 6.607} \quad \text{--- ⑥}$$

$\frac{y_{12}}{y_{37}}$: 推定相対感度

y_{12} : lot-12 の感度

y_{37} : lot-37 の感度

x : リーダーフォトマル印加電圧

そこで、⑥式から求めた推定相対感度（フォトマル印加電圧は、表示値の平均値とした）と、標準照射法で求めた相対感度とを比較すると、表一 4 のとおり、いずれも推定値の方が小さい結果となるが、標準照射法で求めた相対感度の 1 標準偏差（ 1σ ）をとると、1983 年 8 月の推定相対感度以外は、すべて範囲内にあった。

この推定相対感度が低い傾向にあること、特に、1983 年 8 月のそれは、その差がさらに大きいことの原因は今回の結果からは分からなかった。

また、標準照射法で求めた相対感度（図一 2 参照）の変動原因は、(1) TLD 素子の感度バラツキがあること³⁾たとえば、石川²⁾は、全素子の読取値の平均値を 1 として比較すると、大部分は ±10% の範囲にあるが、中には 20% 以上もはずれるものがあると報告している。
(2) TLD 素子はくり返し使用による被ばく歴増加やアニール積算時間の増加ともなって、感度が変化すること⁴⁾
(3) TLD リーダーの安定性の問題等が考えられる。これらの点については今後とも検討を行いたい。

V ま と め

- 1) 標準照射法によって求めた異なる lot 間の相対感度の変動の大きさは、±2.2%/6 か月程度であり、定期的な相対感度のチェックが必要であること。
- 2) TLD 素子の単位照射量あたりの読取値は、リーダーフォトマル印加電圧に依存するので、印加電圧の安定を図ること。
- 3) TLD リーダーの各部分の清掃は、計測前に実施すること。

文 献

- 1) 末永紳一：宮城県原子力センター年報，4，40-42 (1985)
- 2) 石川陽一：宮城県原子力センター年報，2，3，2-5 (1984)
- 3) 宮野敬治、高田文男、樋口英雄、浜田達二：第 25 回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (昭和 57 年度)
- 4) ナショナル TLD 技術資料 P. 33

一般論文

宮城県における⁷Be、⁴⁰K、および¹³⁷Cs 降下量の季節的変動と地点間の比較

石川陽一・佐藤健一・菊地秀夫
末永紳一・佐藤信俊・湯田和郎

I はじめに

宮城県では1981年10月から、東北電力女川原子力発電所(以後「女川原発」と略す)周辺の環境放射能モニタリングを行なっている。女川原発は1984年6月から営業運転を開始したが、これまでのところ、当原発に起因すると考えられる放射能が環境から検出されたことはない。各種の環境試料のうち降下物(雨水・ちり)は、大気中に放出された放射性核種を直接的かつ定量的に測ることができるので非常に重要である。このため宮城県ではモニタリング対象地域の女川町のほかに、対照として仙台市においても降下物を採取し、測定している。その結果、1981年10月から1986年3月までの間に、主に第26回中国核実験に起因するとみられる多数の人工放射性核種が検出された。¹⁾ 半減期がおよそ1年未満の短半減期核種は1983~1984年頃までに検出されなくなったが、その後も長半減期の¹³⁷Csのみは継続的に検出されている。しかし、これまでの結果をみると、女川よりも仙台の方が¹³⁷Csの値は全般的に高い傾向が認められた。また、その値は季節的な周期性をもって変動し、特に冬から春季にかけてその値が高くなる現象がみられた。降下物中の放射性核種の変動傾向や地域差について知っておくことは、今後のモニタリングを行なう上で非常に重要である。本報告では、人工核種のうちの¹³⁷Csに注目し、⁷Beと⁴⁰Kの値などとも比較しながらこれらの問題について若干考察した。

II 方法

1. 試料採取地点

試料採取地点は Fig.1 に示すように、女川町(宮城県原子力センター構内)と仙台市(宮城県保健環境センター屋上)の2ヶ所である。

2. 試料採取方法

試料の採取方法は、面積0.5m²の円形大型水盤に常に水をためておいて、雨水と空気中のちりを同時に捕集す

るものである。通常1ヶ月分ずつ採取した。

3. 試料の処理方法

採取した試料は大型の磁製蒸発皿を用いて電熱器で蒸発濃縮し、最終的に60mmφ×12mmhのディスク状容器に封入した。

4. 放射能測定

放射能測定にはGe半導体検出器を用いた。

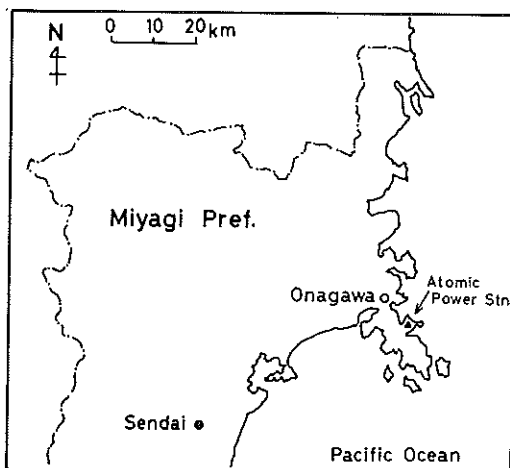


Fig.1 Sampling Location of Rain and Dry Fallout (○, ●)

III 結果

1. ⁷Be、⁴⁰K、および¹³⁷Csの季節的変動

Fig.2は女川と仙台における降下物中の⁷Be濃度の季節的変動を示す。図において白丸は女川、黒丸は仙台における値である。いずれの場合も毎年12~1月と7~8月頃に落ち込みがあり、両者の変動パターンはよく似ていることがわかる。また数値的にも両者は全般的に同程度である。

Fig.3は⁴⁰Kについての同様なグラフである。両地点

とも似た傾向を示し、毎年1～4月頃に高い値となっている。1984年以降は仙台よりも女川の方が幾分高いようである。また、季節的変動の傾向は ^7Be よりも、むしろ次に述べる ^{137}Cs の方に近い。

Fig.4のうち下側の部分は ^{137}Cs についての同様なグラフを示し、上側は参考のために氏家ら⁷⁾による降下ばいじん量を示したものである。まず ^{137}Cs についてみると、女川の場合は、1982年4月に最も高い約40pCi/m³という

値を示した後は急速に減少した。その翌年の1～7月には再び高くなったが、そのピークにおいても約10pCi/m³にとどまった。以後も同様なパターンを繰り返したが、数値的には次第に減少していく傾向がみられた。一方の仙台においては、測定を開始したのは1982年4月からであるが、季節的な変動パターンは女川の場合と大体似ている。しかし、冬季に高くなり始める時期が少し早い(11～12月頃)点、および数値的にほとんど常に高い点

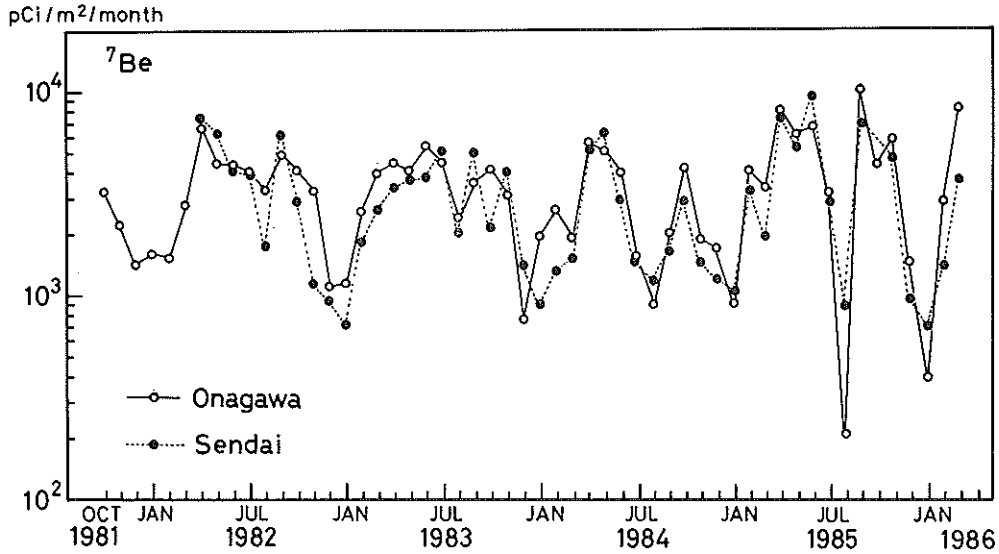


Fig.2 Beryllium-7 in Rain and Dry Fallout in Onagawa and Sendai.

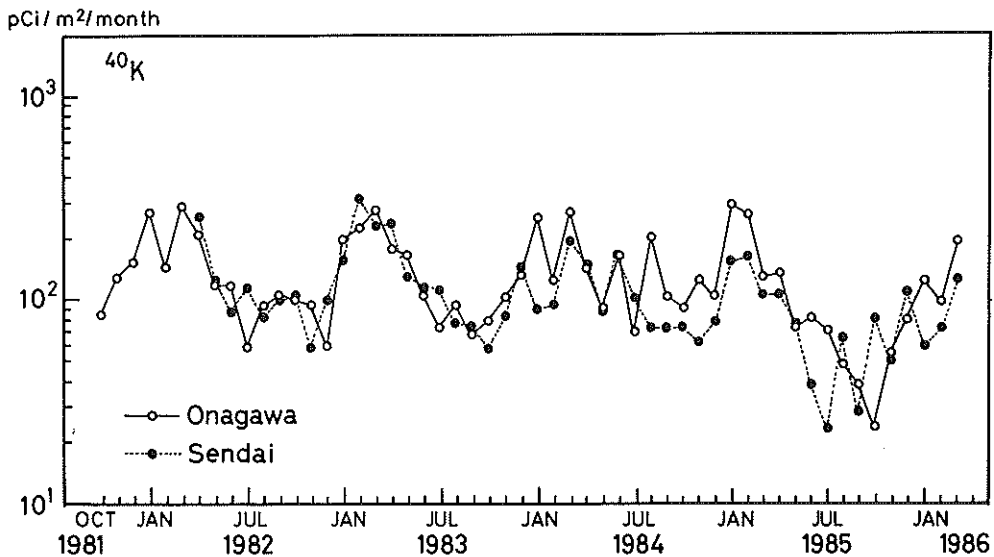


Fig.3 Potassium-40 in Rain and Dry Fallout in Onagawa and Sendai.

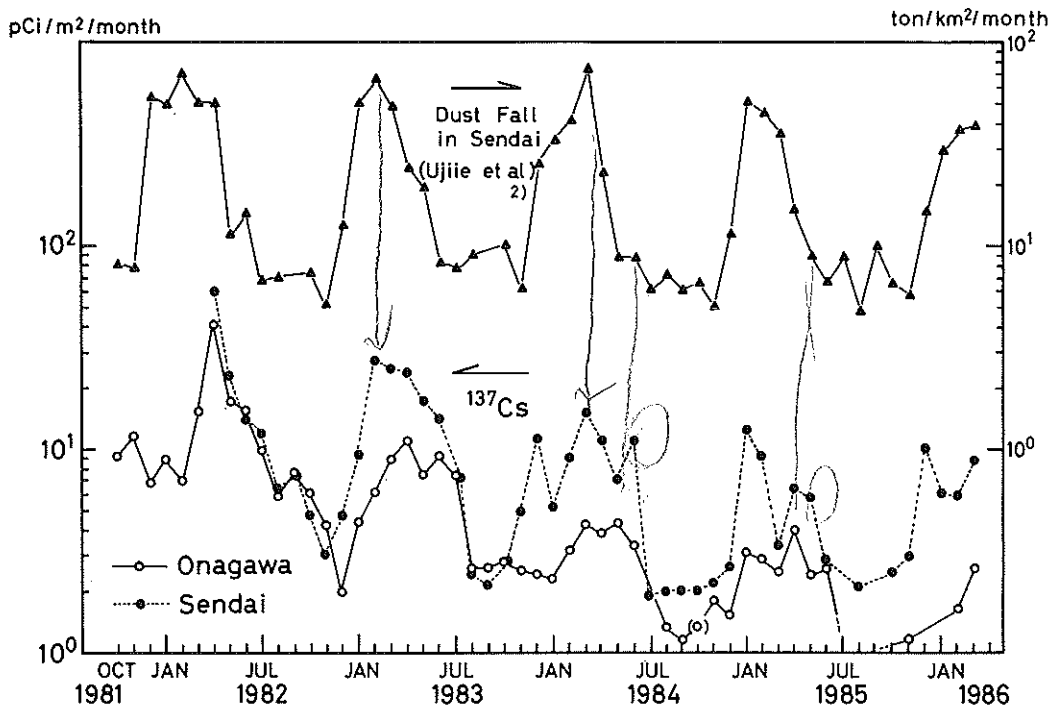


Fig.4 Cesium-137 in Rain and Dry Fallout in Onagawa and Sendai, and Dust Fall in Sendai (Tsurugaya).

で女川の場合と異なる。また、この図の上側のグラフは同じ仙台市内の数km離れた地点で測った降下ばいじん量のグラフであるが、冬季のピークの立ち上がりの時期が降下物の¹³⁷Csとほぼ同じであることがわかる。しかし、ピークの終わりの時期は3~4月頃であり、¹³⁷Csよりも少し早い。

2. ⁷Be、⁴⁰K、および¹³⁷Csの地点間の相関

Fig.5は女川と仙台における降下物中⁷Beの相関図である。相関係数は0.84と、両者の間には比較的よい相関があることがわかる。

Fig.6は⁴⁰Kについての同様な相関図である。⁷Beに比べるとバラツキは大きいだが、相関係数は0.69であり、比較的相関があることがわかる。

Fig.7は¹³⁷Csの相関図である。この図で、Aのグラフ(▲印)は、¹³⁷Csの値が高い値を示した1982年4月~12月にかけての場合、B(○印)のグラフはそれ以降の期間についてのものである。この図より、両地点間には比較的よい相関があるが、女川に比べると仙台の方が明らかに高いことがわかる。このことは¹³⁷Cs濃度が低くなった1983年以降特に顕著である。

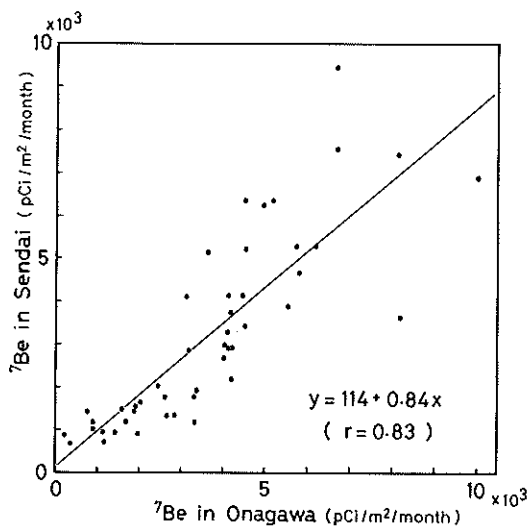


Fig.5 Correlation of ⁷Be in Rain and Dry Fallout between Onagawa and Sendai. (from April 1982 to March 1986).

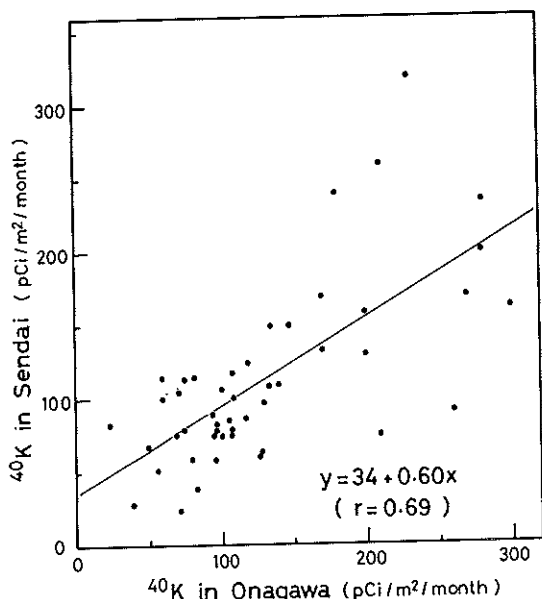


Fig. 6 Correlation of ^{40}K in Rain and Dry Fallout between Onagawa and Sendai. (from April 1982 to March 1986).

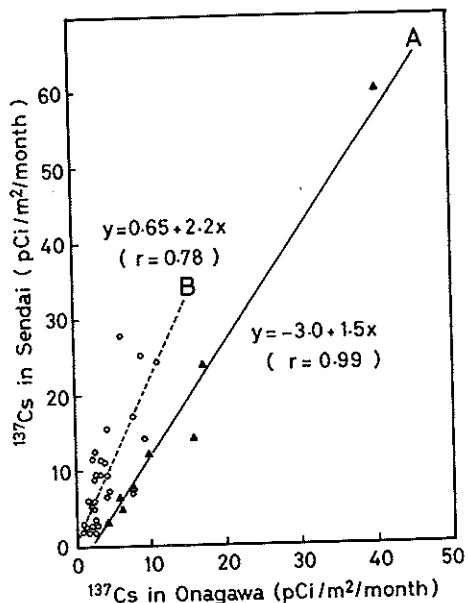


Fig. 7 Correlation of ^{137}Cs in Rain and Dry Fallout between Onagawa and Sendai.
 A : Apr. 1982 ~ Dec. 1982
 B : Jan. 1983 ~ Mar. 1986

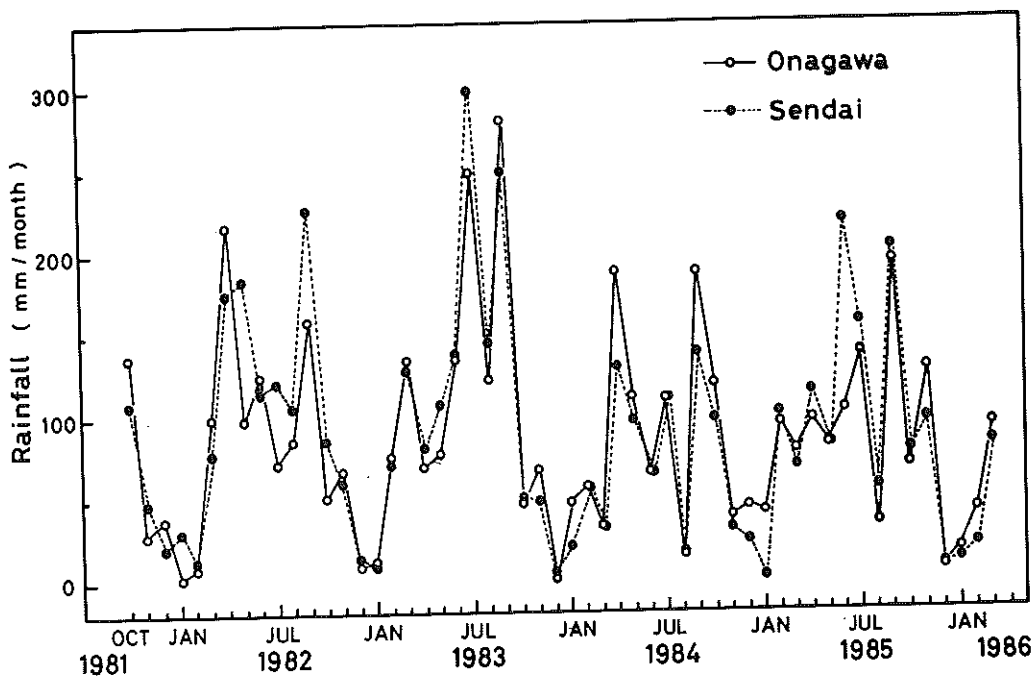


Fig. 8 Rainfall in Onagawa and Sendai.

IV 考 察

^7Be は大気中で空気分子と宇宙線との核反応によって生成する³⁾。著者らが得た結果では、その降下物中の濃度の季節的变化は女川と仙台とで大体同じ傾向を示した。これは、 ^7Be の生成は広く地球規模で起こるものであるから、互いに数10kmしか離れていない女川と仙台では、その落下量に大きな差異が生じないためと考えられる。

降下物試料に含まれる ^{40}K の起源は、元は土壌あるいは海塩粒子に含まれるカリウムであると考えられる。降下物に含まれるカリウムはそれらがエアロゾル化したものと考えられる。よって、地理的な条件などによってかなり左右されやすいと考えられるが、Fig. 6の結果からは意外と地点間の差は大きくないように思われる。

本報告にみられた ^{137}Cs の起源は1980年までに行なわれた大気圏内核実験によるものがほとんど考えられる。天然起源の ^7Be と ^{40}K については女川と仙台とであまり大差なかったが、 ^{137}Cs については女川よりも仙台の方が明らかに高い傾向がみられた(ピーク時において2~3倍)。また冬~春にかけてのピークの時期的なずれも認められた。これらの原因については、大きく分ければ、一つは交通量の違いなど人為的な原因、もう一つは地理的または気象学的な自然の原因によることが考えられる。前者は、仙台の ^{137}Cs の冬から春にかけてのピーク時期においては関係するかもしれない。すなわち、この時期は自動車のスパイクタイヤ等によると思われる空気中の粉じん量が増加する時期にあり²⁾、いったん地表に落下した ^{137}Cs が再び空中に舞い上がって降下物試料中に混入する可能性が考えられる。このことは、そのピークの立ち上がり時期が氏家らによる降下ばいじん量のそれとほぼ同時期であることから示唆される。しかし、 ^{137}Cs が減少する時期は降下ばいじんよりも少し遅い5~6月頃であり、この点では女川と同様である。よって、冬から春にかけてのピークのはじめの頃は交通量の違いなどの影響を受けている可能性が考えられるが、それ以外の時期には何らかの自然条件の違いが現われているものと推定される。

この点についてはチェルノブイル事故以後の降下物においても同様な現象がみられたことから裏づけられる。この場合は ^{137}Cs ではなく、 ^{103}Ru 、 ^{106}Ru について女川と仙台とで違いがみられたが、やはり仙台の方が高い値を示した⁴⁾。

一方降水量との関連であるが、Fig. 8に女川と仙台における月間降水量の推移を示す。これによると、降下物中の ^{137}Cs 量が多い冬から春にかけて、特に仙台が女川

より降雨量が多いといった傾向はみられない。

以上のことより、仙台と女川では地理的または気象的条件などのために ^{137}Cs 降下量に差があるものと考えられる。このような可能性は例えば東京と大阪の ^{90}Sr 降下量の違いの原因として猿橋ら⁵⁾によって報告されている。しかし、同じ県内の数10kmしか離れていない女川と仙台の間でこのような違いが起こるのは興味深い。モニタリング地点と対照地点の間のこのような地域的特性の違いを把握しておくことは、今後モニタリングを行なう上で意義が深いものと考えられる。

V ま と め

- 1) モニタリング対象地域である宮城県内の女川町と、対照の仙台市における放射性核種 ^7Be 、 ^{40}K 、 ^{137}Cs の降下量を比較した。
- 2) 女川と仙台の両地点ともこれらの核種の月間の降下量は、冬から春にかけて高く、それ以外の時期には低い、という季節的変動を示した。
- 3) 冬から春にかけてのピーク時期は、女川よりも仙台の方が始まるの時期が少し早いことが認められた。
- 4) ^{137}Cs の値は女川よりも仙台の方が常に高い傾向がみられ、この主な原因は地理的または気象学的などの自然の原因によるものと推定された。

文 献

- 1) 宮城県原子力センター年報、第1巻~第4巻
- 2) 氏家愛子、松浦勉、加藤謙一、北村洋子ほか：宮城県保健環境センター年報、No. 3、P. 130 (1985)
- 3) 日本化学会：環境汚染物質シリーズ、“放射性物質” P. 6 (1976)、丸善
- 4) 本年報：P. 48
- 5) 猿橋勝子、金沢照子：第15回放射能調査研究成果発表会論文抄録集、P. 48 (1973)、科学技術庁

一般論文

県内海底土中の放射能調査 — 強熱減量による ^{137}Cs 濃度の評価 —

佐藤信俊 ・ 末永紳一 ・ 佐藤健一
石川陽一 ・ 菊地秀夫 ・ 阿部武雄
湯田和郎

I はじめに

女川原子力発電所周辺地域の環境放射能監視の一環として、我々は昭和56年以来周辺海域の海底土中の放射能検査を実施してきた。

しかし、海底土中の放射能濃度は試料の性状によって大きな違いが見られ、発電所等からの異常な汚染であるかどうかを判断するためには、海底土中の放射能濃度を支配すると考えられている底質の物理化学的な性状や、採取地点の自然環境等も加えて評価する必要がある。

これらの試みとしては、海底土の粒度分布や表面積など物理的性質からの評価^{1)~4)}、海底土中に含まれる放射性核種間の比による評価^{1), 5), 6)}、海底土のイオン交換性等からのアプローチがなされている^{5), 7)}。

しかし、これらの方法は測定操作が煩雑であったり、海域による違いを評価しきれない等の問題があり、原子力発電所の監視業務に適用するには十分とは言えない。

そこで我々は、海底土から得られる幾つかの物理化学的な特性と放射能濃度との関係について検討した。また特に測定が簡便で有機物量の指標となる強熱減量 (IL) との関係について検討し、これが海域や海底土の性状を越えて ^{137}Cs 濃度と良い相関があることが分かったので報告する。

II 実験方法

1. 試料

試料に用いた海底土は、県内沿岸9海域39地点からチェルノブイル事故前の1985年と、事故後の1986-7年に採取されたものである。

採泥器は、スミス・マッキンタイヤー式、カンナ式の両方を用い海底表層土約1~5kgを採取した。

2. 放射能の測定

試料を乾燥後、貝殻などを除いた後、木箱や乳鉢等により砕いて2mmフルイで粒度を揃えた。再度乾燥した後

の試料をマリネリピーカーまたは60mmφシリンダ容器に一定容量まで満し、秤量した後Ge半導体検出器により核種分析した⁸⁾。

3. 強熱減量 (IL) の測定

乾燥した試料約10gを磁舟に精秤し、600±25℃で30分加熱する。放冷後秤量し減量 (%) を求めた。

4. 放射能濃度との相関計算に用いた海底土の各物理化学的測定データ

海底土中の放射能濃度と酸化還元電位やCOD、粒度分布等の各種物理化学的データとの相関関係を計算するため、1982年に女川湾海底土について測定した菊池ら⁸⁾の放射能濃度結果と宮城県水産試験場のデータ⁹⁾を用いた。

III 結 果

1. 女川湾における海底土中放射能濃度と各種物理化学的データとの相関

女川湾内の海底土中の放射能濃度及び各種物理化学的測定データ間の単相関係数表をTable Iに示した。

^{137}Cs については ^{144}Ce との関係を除いて、何れも極めて良い相関が見られた。特に強熱減量 (IL) % に対しては、有意水準0.001で有意であった。ILは ^{137}Cs の他にもCODやF-C (粒径0.075mm以下の海底土の割合%; シルトと呼ばれている。)とも良好な正の相関が見られた。一方、酸化還元電位 (Eh) mV に対しては、各項目とも負の相関が見られた。また、 ^{144}Ce については、 ^{137}Cs と異なり各項目間の相関性は比較的低い傾向にあった。

Table 1 Correlation Coefficient Matrix between Several Parameters of Coastal Sediment.

	^{14}Ce	Eh ^{a)}	IL ^{b)}	COD ^{c)}	F-C ^{d)}
^{137}Cs (pCi/kg-dry)	0.562	-0.816**	0.950**	0.943**	0.785**
^{144}Ce (")		-0.415	0.573	0.426	0.636*
Eh (mV)			-0.839**	-0.780**	-0.829**
IL (%)				0.961**	0.943**
COD (mg/g)					0.874**

a : oxidation-reduction potential (mV)

b : ignition loss (%)

c : chemical oxygen demand (mg/g)

d : percentage of fraction-C (diameter < 0.074mm) (%)

** : P < 0.001

* : P < 0.01

Samples : n= 18, collected in 1982

2. 県内全海域における海底土中 ^{137}Cs 濃度と IL との相関

Fig. 1, 2 には、女川湾を始め県内 9 海域 39 地点から採取した海底土中の ^{137}Cs 濃度と IL との関係を示した。

Fig. 1 はチェルノブイル事故前 (1985)、Fig. 2 は事故後 (1986—1987) の結果である。相関係数は 0.932 及び 0.954 と非常に良い相関関係 ($P < 0.01$) がみられ、それぞれ海域を越えて同一直線上に分布した。回帰直線は下式の通りで、事故後に定数項が約 20 pCi/kg 増加しているが、一次係数の差はみられなかった。一方事故後の海水中 ^{137}Cs 濃度は、平均 0.19 pCi/kg で事故前の平均 0.15 pCi/kg より僅かに高い傾向がみられている。

また何れも原点を通らず IL 値が約 1 ~ 2 % の所で IL 軸と交差した。これは、今回ゲルマニウム半導体検出器での測定で試料の密度補正を行っていないことも一因と考えられる。

回帰式

$$[^{137}\text{Cs}] = -55.0 + 29.7 \cdot [\text{IL}] \quad (1985\text{年})$$

$$[^{137}\text{Cs}] = -33.5 + 29.6 \cdot [\text{IL}] \quad (1986-7\text{年})$$

単位: ^{137}Cs ; pCi/kg 乾土、[IL]; %

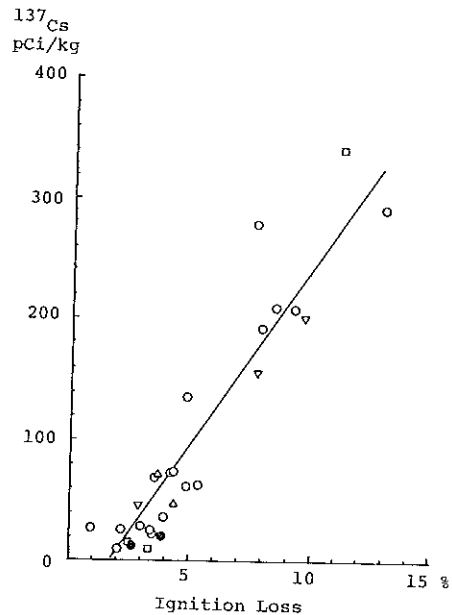


Fig. 1 Relationship between Concentration of ^{137}Cs and Ignition Loss in Coastal Sediments (1985).

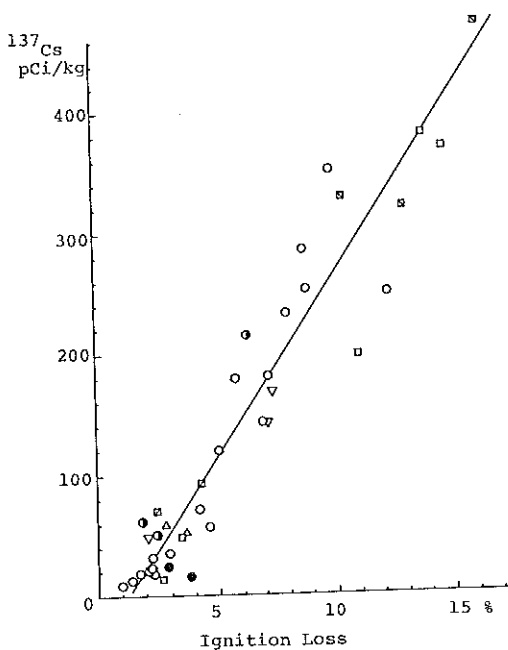


Fig.2 Relationship between Concentration of ^{137}Cs and Ignition Loss in Coastal Sediments (1986-7).

IV 考 察

海底土に吸着される放射性核種濃度が海水中濃度に依存する事、また今回調査した海域は何れも地域的な特別な汚染がない場所であったことを考慮すると、海底土中の ^{137}Cs 濃度が強熱減量(IL)%と極めて良い相関関係にあると言うことは、IL値が海底土の吸着能力を支配する有力な因子と考えられる。

^{137}Cs と強い相関性を示した項目は、ILの他には化学的酸素要求量(COD)、および酸化還元電位(Eh)で何れも海底土に含まれる有機物の量に直接関係する項目である。勿論、ILも同様に加熱処理によって減少する有機物量を測定するものである。

海底土中の有機物の多くは生物の死骸等によるフミン質と考えるが、これらが分解されて生じるカルボキシル基等は、 ^{137}Cs を吸着しうる陽イオン交換性を有していると考えられる。即ち、有機物が多ければそれだけイオン交換能力が高くなり ^{137}Cs 濃度も高くなると考えられ、結果と一致する。

さらに、ILと ^{137}Cs 濃度との関係は海域を越えて見られる事から、対照海域で得た回帰式との比較によって、

目的海域における海底土の測定結果について、その性状を考慮した評価ができるものと思われる。

すなわち、発電所放水口での結果(図中●印)は回帰直線の右下に分布しており、対照地点よりも汚染度が少ない傾向にあると言える。

またILの測定は、「方法」に示したように簡便でかつ迅速に出来ることから、日常の測定業務としても十分利用できるものと思われる。

V ま と め

1. 海底土中の ^{137}Cs 濃度は、その有機物含量に関連する底質調査項目と良い相関がみられ、中でも強熱減量が最も良い相関関係にあった。
2. 測定方が簡便な強熱減量によって、海底土の性状を考慮した ^{137}Cs 濃度の評価が可能であることが分かった。

文 献

- 1) 佐伯誠道編；「環境放射能」, p.247 (1984) ソフトサイエンス社
- 2) 山本政義他；福井衛研報告, 12, 22 (1977)
- 3) 山本政義他；福井衛研報告, 14, 30 (1978)
- 4) K. Terada et al.; Bull. Chem. Soc. Jpn., 33, 1 (1977)
- 6) 五十嵐修一他；福井衛研報告, 21, 50 (1983)
- 7) W. A. McKay et al.; J. Environ. Radioactivity, 2, 93 (1985)
- 8) 菊地 格；宮城原七年報, 1, 34 (1982)
- 9) 「女川原子力発電所温排水調査結果」, 昭和57年度 (1984) 宮城県

一般論文

アラメ中の¹³⁷Csと⁴⁰K濃度の季節的変動

石川陽一・佐藤健一・菊地秀夫
末永紳一・佐藤信俊・湯田和郎

I はじめに

海洋における放射能の汚染あるいは蓄積の指標としては、ホンダワラがよく用いられる。ホンダワラは、例えばストロンチウムに関しては褐藻類の中では濃縮係数が高く、有用である。しかし、宮城県の女川湾のような外洋に面した海域では、波によって流されやすいなどのため継続的に採取できない。このため当センターではアラメ (*Eisenia bicyclis*) を用いている。ホンダワラは一年生であるのに対してアラメは多年生(4年くらい)であるので¹⁾、年間を通じていつでも採取可能である。1981年以降のアラメの¹³⁷Csと⁴⁰Kの値を整理したところ、これらの核種の濃度は季節的に変動する傾向が認められた。このような事実をあらかじめ知っておけば、環境放射能のモニタリングに役立つものと考えられたので報告する。

II 方法

試料のアラメは、普通は小型船を使って自生場所に行き直接採取した。Fig. Iに採取場所の大まかな範囲を示したが、この海域は東北電力女川原子力発電所(女川原発)の放水口の近辺となっている。海水の採取場所も示しておいた。

アラメの試料は根以外の部分を用い、乾燥・灰化処理(約450°C)をした。灰試料は通常45gを60mmφ×12mmhのディスク状にプレス成形し、Ge検出器で測定した。

参考として示した海水のデータはAMP-MnO₂法²⁾による結果である。

III 結 果

Fig. 2は1981年からのアラメ中の¹³⁷Csと⁴⁰K濃度の季節的変動を示す。白丸印は1個の試料の、また黒丸印は2個以上の試料の平均の¹³⁷Csの値を示す。同様に白三角印は1個の、黒三角印は2個以上の平均の⁴⁰Kの値を示す。参考として海水中の¹³⁷Csのグラフも示した(黒四角印。各点2個~数個の試料の平均)。この図より、ア

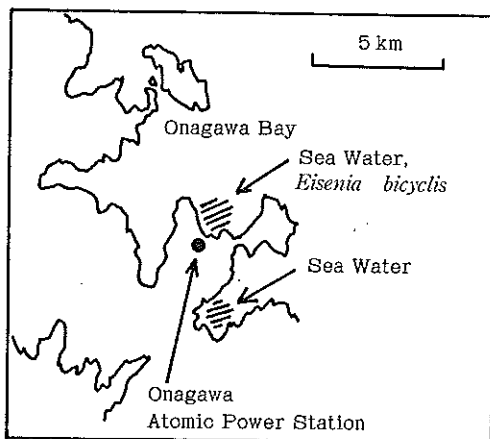


Fig. I Sampling Location of *Eisenia bicyclis* (Arame) and Sea Water.

ラメの¹³⁷Csと⁴⁰Kの値は季節的に変動していることがわかる。すなわち、冬期間に高く、春から秋には低くなっており、周期的に変動している。しかし、チェルノブイル事故後の5月~9月頃には、それまでと異なって高めの値となっている。海水の¹³⁷Csは大体0.15~0.16pCi/l程度であるが、やはり事故後には少し高い傾向がみられる。

Fig. 3はアラメの¹³⁷Csと⁴⁰Kの値の相関図である。白丸印は事故以前の1981年11月~1986年2月までの値、黒四角印は事故後の1986年5月以降の値である。記号のそばの数字は採取月を示す。この図によると、事故以前ではFig. 2の結果を反影して、10月~1月には¹³⁷Csも⁴⁰Kも高く、2月~8月にかけては低くなっている。これらの、事故以前のデータのみによる一次回帰式も図中に示した。相関係数は0.42で、あまり良くないが正の相関がある。一方、事故後においては全てこの一次式の上方にあり、⁴⁰Kに比べて¹³⁷Csの値が高い傾向が認められる。

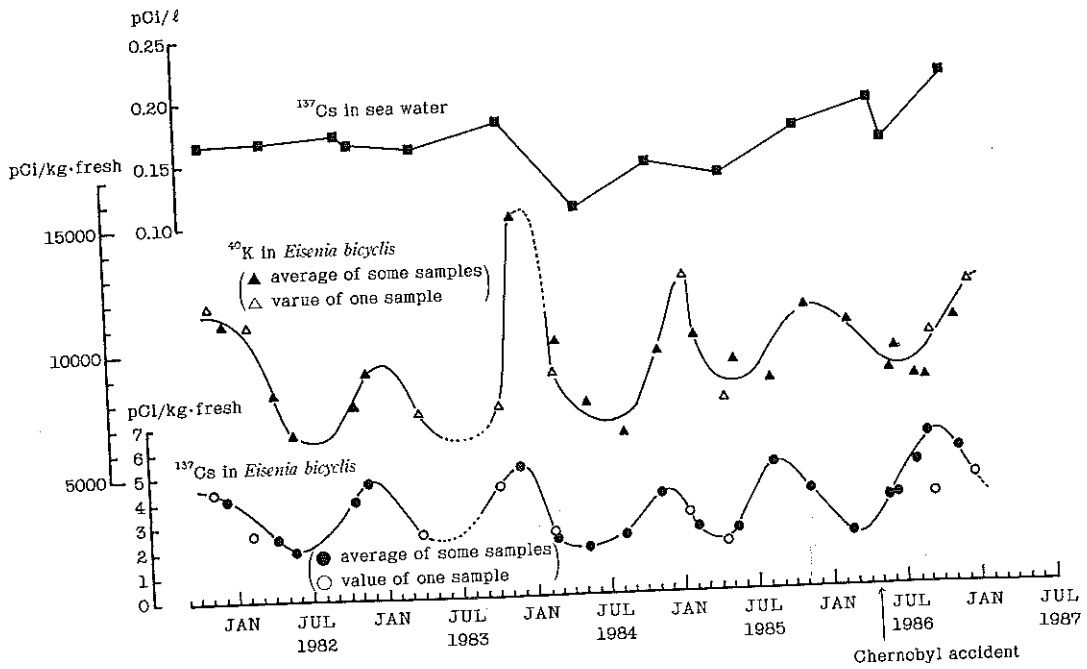


Fig. 2 Seasonal Variations of ^{137}Cs and ^{40}K in *Eisenia bicyclis* (Arame), and ^{137}Cs in Sea Water, in Onagawa Bay.

IV 考 察

鈴木³⁾はホンダワラ属のウミトラノオ (*Sargassum thunbergii*) 中の幾つかの元素のうち、カリウム量はあまり季節変動はしないと述べている。この点では本報告で著者らがアラメについて得た結果と異なっているが、種類や生育年数の違いかもしれない。

著者らが用いているアラメについては、採取した時の生育年数は特に調べていないので不明であるが、事故以前の ^{137}Cs や ^{40}K のデータの規則性からすると、あまり関係ないのかもしれない。アラメ中の放射性核種濃度の規

則的な変動は、海水中の濃度がほぼ一定の場合、成長時期の冬期に取り込み量が多くなるためと考えられる。

しかし、Fig. 2 あるいは Fig. 3 において、チェルノブイル事故以後の1986年5月～9月には、アラメの非成長期であるにもかかわらず ^{40}K に比べて ^{137}Cs 量が多くなっている。これは事故によって増加した海水中の ^{137}Cs 量を反影しているものと考えられ、アラメの指標海産物としての有用性を示している。事実、この時期においては同事故で放出された他の核種 ^{131}I 、 ^{103}Ru 、 ^{110m}Ag なども検出されている⁴⁾。

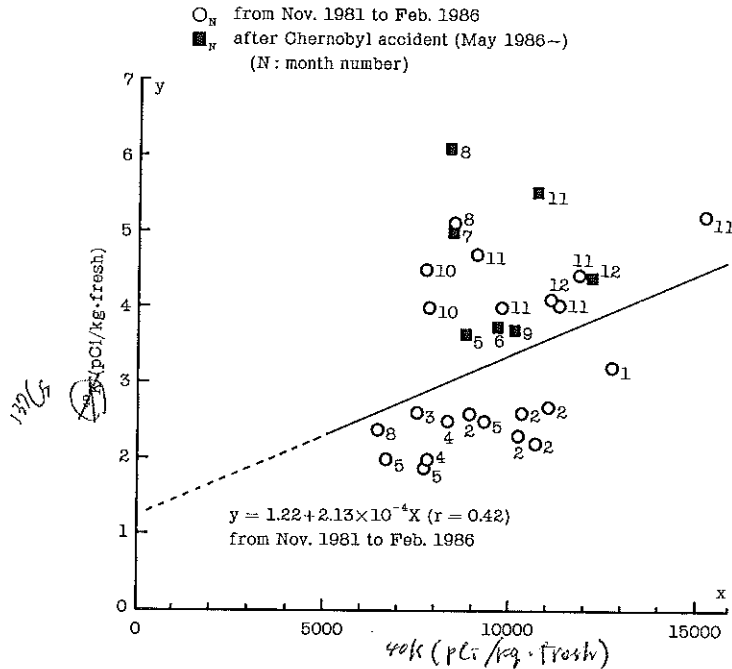


Fig. 3 Correlation of ^{40}K and ^{137}Cs in *Eisenia bicyclis* (Arame).

V ま と め

- 1) アラメ中の ^{137}Cs と ^{40}K 濃度には季節的に変動する傾向が認められた。アラメの成長時期である冬期に高く、それ以外の季節では低い結果が得られた。
- 2) アラメの ^{137}Cs と ^{40}K 濃度にはある程度正の相関関係が認められた。
- 3) チェルノブイル事故後には、非成長期でもアラメの ^{137}Cs 濃度は高い傾向がみられた。

文 献

- 1) 殖田三郎、岩本康三、三浦昭雄：水産学全集10, 水産植物学, P. 408, 恒星社厚生閣
- 2) 科学技術庁：放射能測定法シリーズ13, ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法, P. 7 (1982)
- 3) 鈴木讓：第8回放医研環境セミナー, 海洋における生物濃縮とそれに影響をおよぼす因子—報文集一, P. 289 (1980)
- 4) 宮城県：女川原子力発電所 環境放射能及び温排水調査結果, 第6巻1号および2号

チェルノブイル事故関係論文

チェルノブイル原子力発電所事故の環境ガンマ線 ダイナミックスペクトルにおよぼす影響

佐藤健一・菊地秀夫・中村栄一

I はじめに

本県における環境ガンマ線テレメータシステムは、東北電力女川原子力発電所周辺における環境ガンマ線の監視を目的として、1981年に導入された。その最大の特徴として、環境ガンマ線スペクトルのオンライン処理をあげることができる。

1986年4月26日、ソ連チェルノブイル原子力発電所で事故が発生し、大量の放射性物質が放出されたが、8000 km離れた日本においては、有意な線量率の上昇があったという報告はなかった。

しかし、当センターの環境ガンマ線テレメータシステムにより得られた環境ガンマ線スペクトルの中に、ヨウ素-131によると思われるピークが検出された。また、コンピュータ処理により、時間軸に沿ってスペクトルをずらして作図したダイナミックスペクトル及び、天然成分

を除いた剰余線量率から、ヨウ素-131の影響を認めることができた。それらの概要を紹介する。

II 測定方法及びダイナミックスペクトルの作図

本県における環境ガンマ線テレメータシステム(図-1)については、すでに報告してあるので¹⁾詳細の説明は略すが、測定した環境ガンマ線スペクトルを、1チャンネルあたり12.5keV、256チャンネルに分割し、エネルギー対チャンネルキャリブレーションにより規格化している(図-2、3)。10分値データを6個積算して時間値データとし、時間値データを順番に時間軸に沿ってずらして、3次元的に並べたのがダイナミックスペクトルである(図-4)。剰余線量率の算出方法については、すでに菊地ら²⁾が報告しているので詳細については省略する。

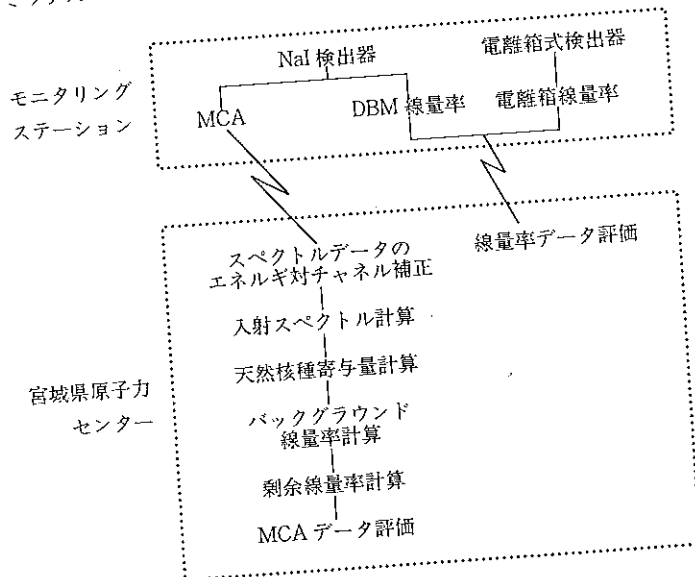


図-1 テレメータシステムオンライン処理

いっしょく

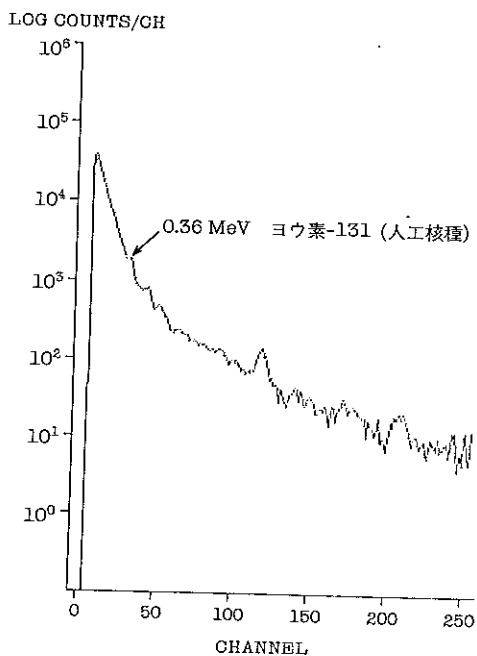


図-2 環境ガンマ線スペクトル (晴天時)

86.05.17 12:00 測定開始

LIVE TIME 3547 秒

測定場所 女川局

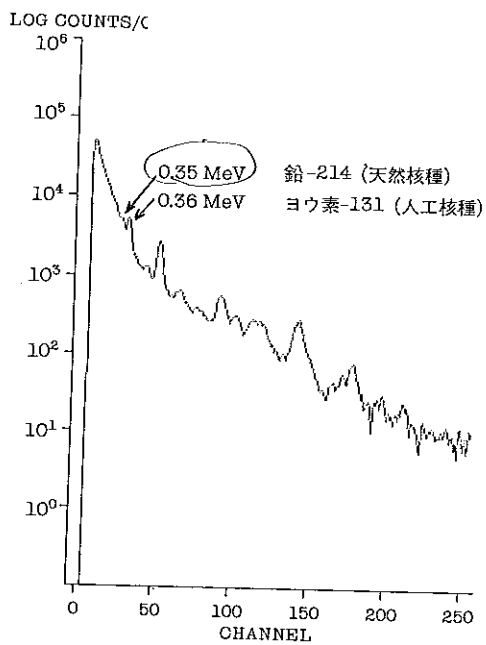


図-3 環境ガンマ線スペクトル (降雨時)

86.05.16 18:00 測定開始

LIVE TIME 3546 秒

測定場所 女川局

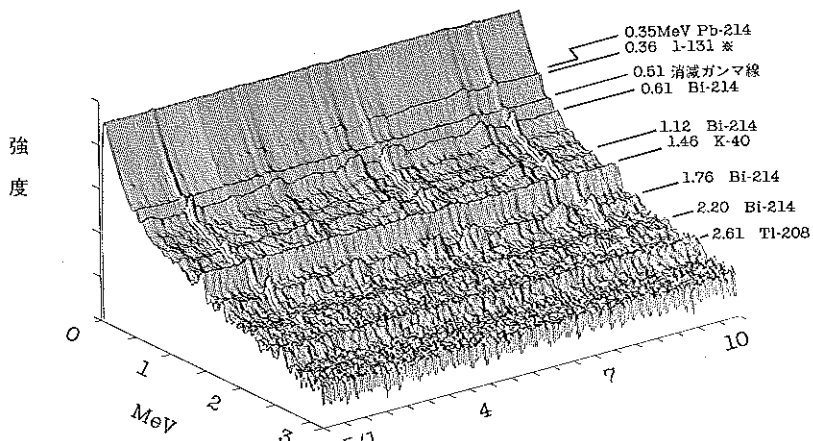


図-4(1) 女川局における環境ガンマ線のダイナミックスペクトル

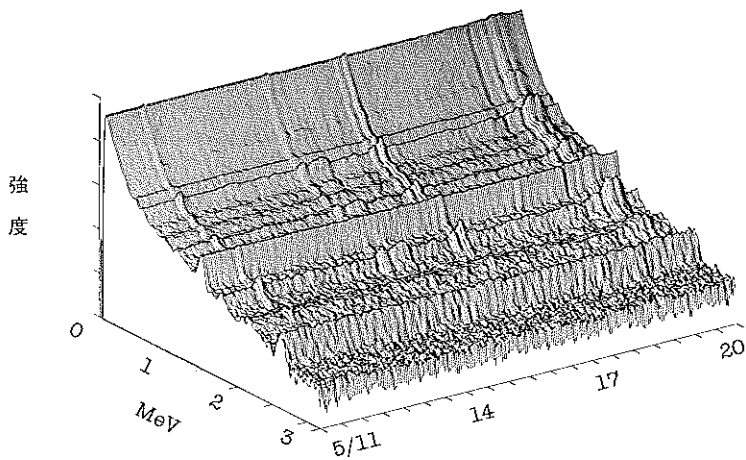


図-4(2) 女川局における環境ガンマ線のダイナミックスペクトル

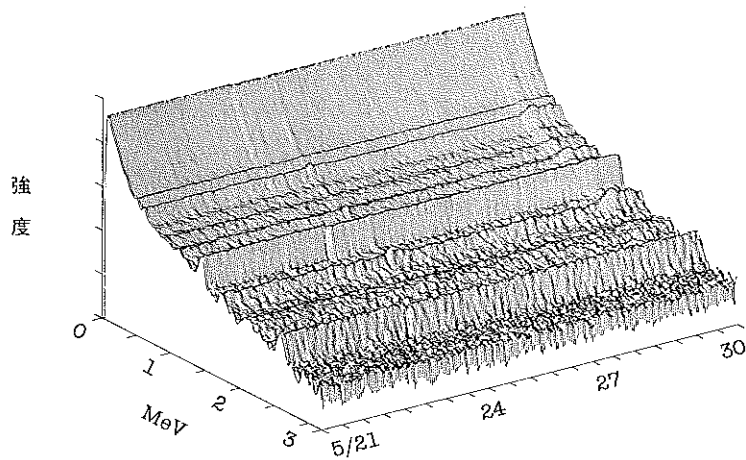


図-4(3) 女川局における環境ガンマ線のダイナミックスペクトル

III 結果及び考察

チェルノブイル原子力発電所事故後、本県でも環境放射能の監視業務の強化を行なった。このうち、5月2日から3日にかけて採取した浮遊じんから、通常は検出されないヨウ素-131を検出した。また、そのころより伝えられ始めたソ連及びヨーロッパ諸国における測定データから、放出された放射性核種にはヨウ素-131が多いことが判明した。ヨウ素-131は、物理的半減期は8.04日で、比較的低いエネルギー(0.36MeV)のガンマ線放出核種で

ある。尚、浮遊じんなどのデータは、別項を参照されたい。

また、図-5は、4~6月における女川モニタリングステーションでの環境ガンマ線線量率の変化と降雨量を示したものである。5月いっぱい観測されたわずかな上昇は、前年度の最頻値より0.1 μ R/hほどの上昇でしかなく、気象による変動のなかに埋もれてしまう程度のものであった。原子力発電所事故という情報がなければ、自然変動としてとらえたであろう。表-1に、5月中の女川モニタリングステーションにおける環境ガンマ線線量

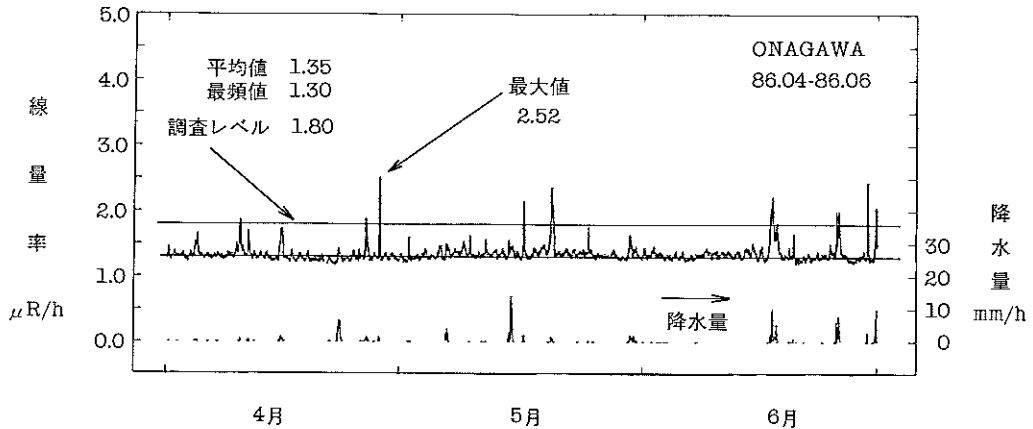


図-5 女川局における環境ガンマ線線量率監視結果

率の測定値を示す。

図-2は晴天時、図-3は降雨時における事故の影響のみられる環境ガンマ線スペクトルである。降雨時には環境ガンマ線線量率が上昇するが、その原因となる放射性核種は、ウラン系列のラドン娘核種であることはよく知られている。図-3が図-2にくらべてピーク数が多いのは、このラドン娘核種によるものである。図-2でも図-3でも、ヨウ素-131のピークである0.36MeV付近にピークがみられる。しかし、図-3においては、ラドン娘核種である鉛-214の0.35MeVのピークが重なっているため、単一のスペクトルからヨウ素-131の存在を確認することはできない。

図-4(1)~(3)に、環境ガンマ線スペクトルを時間軸に沿って並べたダイナミックスペクトルを示す。5月中の降雨については、表-1を参照されたい。鉛-214は、半減期が26.8分と短いため、そのピークは降雨とともに現れ消えていく。しかしながら、0.36MeV付近のピークははっきりと認められた。その後しばらくピークが認めら

れたが、日がたつにつれ強度は落ちていった。0.36MeV付近のピークと剰余線量率の動きは一致していて、剰余線量率の増加分はヨウ素-131によるものと推測できた。

図-6は、本県独自の環境ガンマ線スペクトルのオンライン処理により算出した剰余線量率の変化を、DBM線量率及び降水量とともに作図したものである。この方法により、明らかに、わずかながら人工放射性核種による影響を認めた。

さらに、Ge半導体検出器を地面に向け地上1mの位置で環境ガンマ線スペクトルの測定を行なったところ、364keVにヨウ素-131によるピークを認めた(図-7)。

表-1 5月における環境ガンマ線線量率測定結果
 単位: $\mu\text{R}/\text{h}$

日	局 項目	女			電 離 箱			雨 量 mm
		NaI(Tl)-DBM			最 大	平 均	最 小	
		最 大	平 均	最 小				
1		1.37	1.26	1.20	6.97	6.74	6.48	—
2		1.62	1.30	1.24	7.60	6.87	6.63	0.0
3		1.40	1.31	1.23	7.05	6.81	6.62	—
4		1.46	1.33	1.25	7.15	6.85	6.60	—
5		1.46	1.31	1.25	7.05	6.83	6.67	—
6		1.54	1.36	1.24	7.45	6.95	6.65	6.5
7		1.55	1.38	1.28	7.37	7.02	6.77	8.5
8		1.50	1.37	1.27	7.18	6.96	6.72	—
9		1.71	1.41	1.28	7.67	7.05	6.77	0.0
10		1.39	1.32	1.26	7.15	6.90	6.73	—
11		1.57	1.35	1.28	7.35	6.94	6.75	0.0
12		1.43	1.34	1.27	7.13	6.92	6.73	—
13		1.44	1.35	1.27	7.17	6.89	6.65	—
14		1.56	1.36	1.26	7.30	6.93	6.65	6.5
15		1.50	1.37	1.27	7.33	7.05	6.77	55.5
16		2.29	1.42	1.25	8.88	7.15	6.75	4.0
17		1.43	1.32	1.25	7.12	6.88	6.72	—
18		1.49	1.38	1.30	7.22	6.92	6.72	—
19		1.57	1.43	1.34	7.32	6.98	6.78	0.0
20		2.39	1.69	1.30	8.73	7.50	6.75	6.0
21		1.43	1.35	1.30	7.10	6.93	6.75	—
22		1.46	1.35	1.26	7.18	6.91	6.73	—
23		1.47	1.37	1.30	7.13	6.92	6.72	—
24		1.77	1.38	1.31	7.70	6.96	6.77	0.5
25		1.70	1.36	1.27	7.58	6.97	6.70	0.0
26		1.39	1.32	1.27	7.03	6.88	6.70	—
27		1.38	1.32	1.28	7.10	6.85	6.68	—
28		1.42	1.33	1.24	7.08	6.85	6.70	—
29		1.33	1.28	1.23	7.05	6.80	6.60	—
30		1.70	1.44	1.26	7.58	7.10	6.78	21.5
31		1.50	1.33	1.25	7.20	6.93	6.73	1.5
月 間		2.39	1.36	1.20	8.88	6.94	6.48	110.5
標準偏差		0.12			0.22			
欠測率(%)		0.1			0.1			

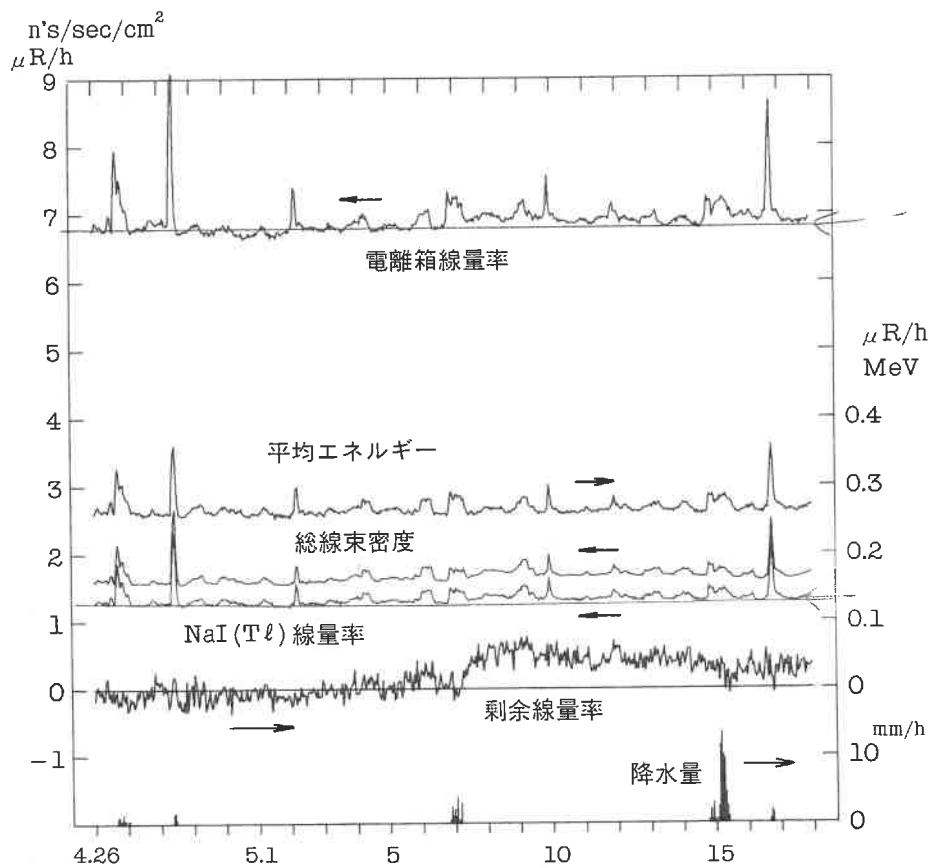


図-6 女川局における環境ガンマ線線量率等の推移

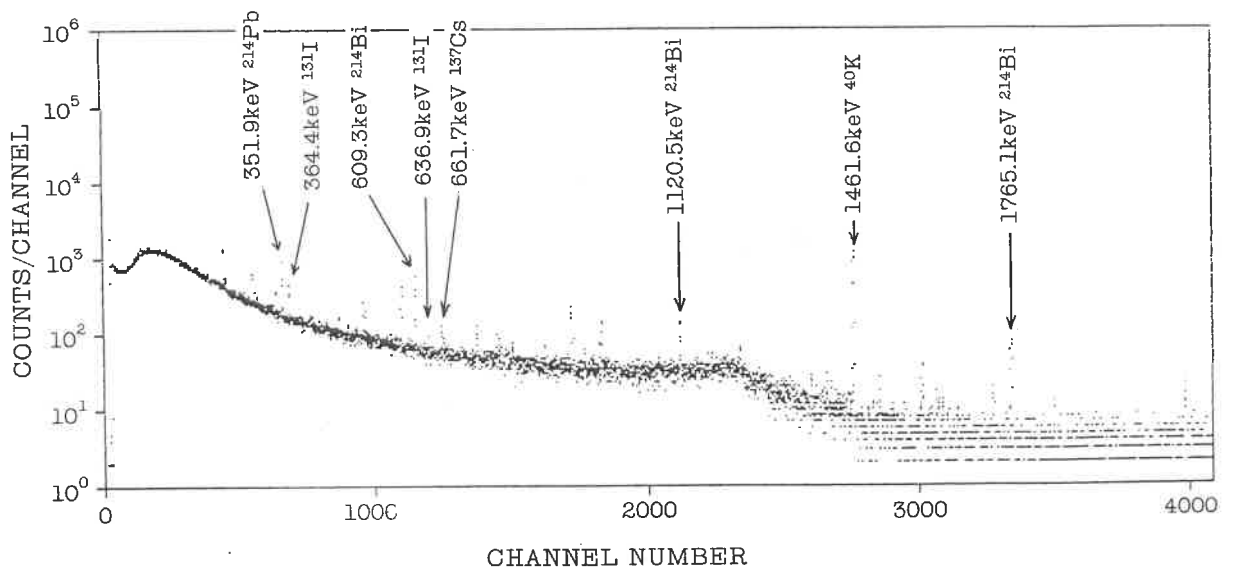


図-7 Ge半導体検出器の in-situ 測定により得られた環境ガンマ線スペクトル

86.05.09 13:48 測定開始

LIVE TIME 7200 秒

測定場所 原子力センター構内

IV ま と め

本県の環境ガンマ線テレメータシステムによって観測されたソ連チェルノブイル原子力発電所事故の影響について報告した。

本県の環境ガンマ線テレメータシステムにおいて、ダイナミックスペクトル及び剰余線量率処理により、実際の事故に基づく微小な影響を評価することができ、その有用性についても確認することができた。

文 献

- 1) 中村栄一：日本原子力学会誌 Vol. 25.
No. 3, 23 (1983年)
- 2) 菊地秀夫：宮城県原子力センター年報
Vol. 1, 1, (1982年)

チェルノブイル事故関係論文

環境試料の測定結果にみられた同位体比

菊地秀夫・石川陽一・末永紳一
佐藤健一・佐藤信俊・湯田和郎

I はじめに

1986年4月下旬にソ連キエフ地方で発生した原子力発電所事故で環境に放出された人工放射性核種は5月に入ってから宮城県女川地域でも検出されはじめた。この量は人体に影響を及ぼすレベルではなかったとはいえ、低下してきていた原子力発電所周辺のバックグラウンドレベルを大きく変えた。検出された核種のなかには半減期の長いものも含まれており、事故の影響はしばらく続く。原子力発電所周辺の環境放射能モニタリングにたずさわるものにとって、環境試料中の人工放射性核種の測定結果を評価するさいに、それがモニタリング対象施設から放出されたものかどうかを判断しなければならない。その意味で人工放射性核種からみた事故の影響を整理して、今後のモニタリング業務にフィードバックする必要がある。今回の環境試料の測定結果で同位体比に事故の特徴がみられたのでその結果について報告する。

II 試料採取および放射性核種の定量

試料は宮城県女川町とその近郊で採取した。浮遊じんについては吸引時間によりハイボリュームエアサンプラおよびロウボリュームエアサンプラを使用し、ホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙、セルロース・ガラス繊維ろ紙、活性炭ろ紙および活性炭カートリッジを種々に組合わせて捕集ろ紙を測定した。なお浮遊じんについての測定法は別に報告¹⁾しているので参照されたい。雨水と牛乳(原乳)は直接マリネリピーカーに入れ、または蒸発濃縮してアクリル製容器に封入して測定した。その他の試料についてはミキサーで試料を粉砕し直接マリネリピーカーに入れて測定した。放射性核種の定量にはゲルマニウム半導体検出器を用い「ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法」(昭和54年改訂科学技術庁)に準じたガンマ線スペクトロメトリ²⁾をおこなった。スペクトロメトリにあたりガンマ線のサム効果の補正はおこなっていない。

III 測定結果

今回の事故の影響を受け環境試料中に検出された人工放射性核種のうち、主なものをその成因とともにTable. Iに示した。ヨウ素、テルル、セシウム、ルテニウムなどの揮発性の核種が多く、核実験ではみられない¹³⁴Csや¹³⁶Csが検出されたのが今回の特徴だった。今回の測定で比較的によく検出された核種のなかで事故時に半減期補正するとどの試料をとっていても同位体比にはほぼ一定の値が得られた。その結果をTable. 2に示す。¹³⁴Cs/¹³⁷Csは約0.5、¹³⁶Cs/¹³⁷Csは約0.2、^{129m}Te/¹³²Teは約0.08および¹⁰³Ru/¹⁰⁶Ru約5であった。同位体比に比較して核種間の比には一定の値は得られなかった。

Table. I Typical Radionuclides Identified in Environmental Samples.

nuclide	half-life	Production
¹⁰⁵ Ru	39.4 d	daughter ¹⁰⁵ Tc, ¹⁰² Ru(n, γ)
¹⁰⁶ Ru	367 d	fission
^{110m} Ag	252 d	¹⁰⁹ Ag (n, γ)
¹²⁵ Sb	2.71 y	¹²⁴ Sb (n, γ), daughter ^{125(m)} Sn
¹²⁹ Te	69.5 m	daughter ^{129m} Te
^{129m} Te	33.5 d	¹²⁸ Te (n, γ), daughter ¹²⁹ Sb
¹³¹ I	8.04 d	fission, ¹³⁰ I (n, γ), daughter ^{131(m)} Te
¹³² Te	78.3 h	fission, daughter ^{132(m)} Sb
¹³² I	2.28 h	daughter ¹³² Te, ¹³¹ I (n, γ)
¹³⁴ Cs	2.06 y	¹³³ Cs (n, γ)
¹³⁶ Cs	13.0 d	¹³⁵ Cs (n, γ)
¹³⁷ Cs	30.2 y	fission, daughter ¹³⁷ Xe
¹⁴⁰ Ba	12.8 d	fission, daughter ¹⁴⁰ Cs
¹⁴⁰ La	40.3 h	daughter ¹⁴⁰ Ba
¹⁴¹ Ce	32.6 d	¹⁴⁰ Ce (n, γ), daughter ¹⁴¹ La

Table.2 Isotopic Ratios of Radionuclides Released from The Reactor Accident at Chernobyl.

Sample	Sample form	$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Ratio	$^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Ratio	$^{129\text{m}}\text{Te}/^{132}\text{Te}$ Ratio	$^{103}\text{Ru}/^{106}\text{Ru}$ Ratio
Air Dust	filter, cartridge	0.472 ± 0.015 (22)	0.199 ± 0.032 (8)	0.0820 ± 0.0041 (5)	5.35 ± 0.11 (10)
Rain Water	dryup or direct	0.470 ± 0.041 (3)	— (0)	— (0)	— (0)
Spinach	direct	0.548 ± 0.040 (14)	— (0)	— (0)	— (0)
Milk	direct	0.506 ± 0.070 (5)	— (0)	— (0)	— (0)
Gulfweed	direct	0.461 ± 0.144 (1)	— (0)	— (0)	— (0)
Mussel	direct	0.517 ± 0.124 (1)	— (0)	— (0)	6.29 ± 1.22 (1)
Wormwood	direct	0.514 ± 0.010 (3)	0.171 ± 0.049 (2)	— (0)	4.31 ± 0.28 (3)
	ash	0.444 ± 0.003 (2)	— (0)	— (0)	5.39 ± 0.12 (3)

• Ratios were calculated in time when Chernobyl accident was occurred.

• (); Number of samples.

IV 考 察

今回の緊急モニタリング結果で、原子炉の運転に伴ない核分裂後の中性子捕獲で生成される ^{134}Cs および ^{136}Cs ³⁾が検出されたことは特筆すべき結果だった。これらの核種は、これまでの当センターの環境放射能モニタリング結果⁴⁾には一度も検出されたことのないものである。またI、Ru、Csなどの揮発性の核種が数多く検出されており、爆発と火災を伴った今回の事故の特徴を示していた。

一定の同位体比が得られた核種は、原子炉から環境に放出されてからは自己の半減期で減衰するものばかりであった。それに対し、核種間の比率は小島らの報告⁵⁾にもみられるように一定の値は得られず、環境に放出されたあとは元素ごとにその挙動が異なることがわかる。なお $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ はDevellらの報告⁶⁾と同じ値が得られており、我々の測定法が正当なものであることもわかった。

事故で環境に放出された人工放射性核種は大部分が短半減期核種であった。しかし、 ^{137}Cs のように長い半減期をもつ核種も含まれており、今後の原子力発電所周辺の環境放射能モニタリングのデータ評価に事故の影響がお

よぶと考えられる。一方、原子炉内の同位体比は、燃料組成、中性子束密度、燃焼時間などのパラメータで決まる。いわば同位体比は原子力発電所に固有なものである。事故の影響を同位体比で押えておけば、今後のモニタリング結果の同位体比をみることにより、モニタリング対象施設からの寄与の有無を判断できるものと考えられる。可能であれば対象施設の同位対比を押えておくことも必要であろう。

文 献

- 1) 菊地秀夫他：宮原七年报，5，(1987)
- 2) 中村栄一：ibid.，1，24 (1982)
- 3) 三倉通孝他：第30回放射化学討論会講演予稿集，330 (1986)
- 4) 宮原七年报，1~4巻，巻末資料編
- 5) 小島貞男他：第30回放射化学討論会講演予稿集，324 (1986)
- 6) L. Devell et al. : Nature, 321, 195 (1986)

et al.

チェルノブイル事故関係論文

チェルノブイル事故後の降下物中の核種の形態と経月変動

石川陽一・佐藤健一・菊地秀夫
末永紳一・佐藤信俊・湯田和郎

I はじめに

チェルノブイル事故によって放出された人工核種は、1986年5月以降の降下物試料中に多数検出された。通常は毎月の試料を蒸発濃縮してGe検出器で核種分析を行っているが、今回は一部の試料についてろ過を行ない、残渣とろ液に分けて測定して核種の溶存の有無等を調べた。また、毎月のデータを核種別および地点別に比較してみたところ、核種組成が地点によりまた月により変化することが見出された。これらの事について報告する。

II 方法

1. 試料の採取

降下物試料は面積0.5m² (直径80cmφ) の水盤を用い、女川町(原子力センター構内)と仙台市(宮城県保健環境センター屋上)の2地点で採取した。採取期間はふつう月の初めから月末までである。

2 試料の処理と測定

Fig.1(A)~(C)に試料の処理方法を示す。ほとんどの試料については磁製蒸発皿で蒸発濃縮し、60mmφ×12mmh(容積34cm³)のディスク状アクリル容器に入れて測定した(Fig.1(A))。

1986年5月分の女川の試料(5月1日~6月3日まで採取、試料Bとする)については、採取後ただちに全量(80.8ℓ)のうち1.6ℓを分取し、ガラスせんいろ紙(東洋GA-200)でろ過して残渣とろ液に分けてGe検出器で測定した。それぞれを試料aとbとする(Fig.1(B)参照)。

また1986年5月分の仙台の試料(5月1日~6月3日まで採取、試料Cとする)については、全量をNo.2定性ろ紙(東洋)でろ過し、残渣は灰化、ろ液は蒸発濃縮して別々に測定した(Fig.1(C))。それぞれを試料cとdとする。

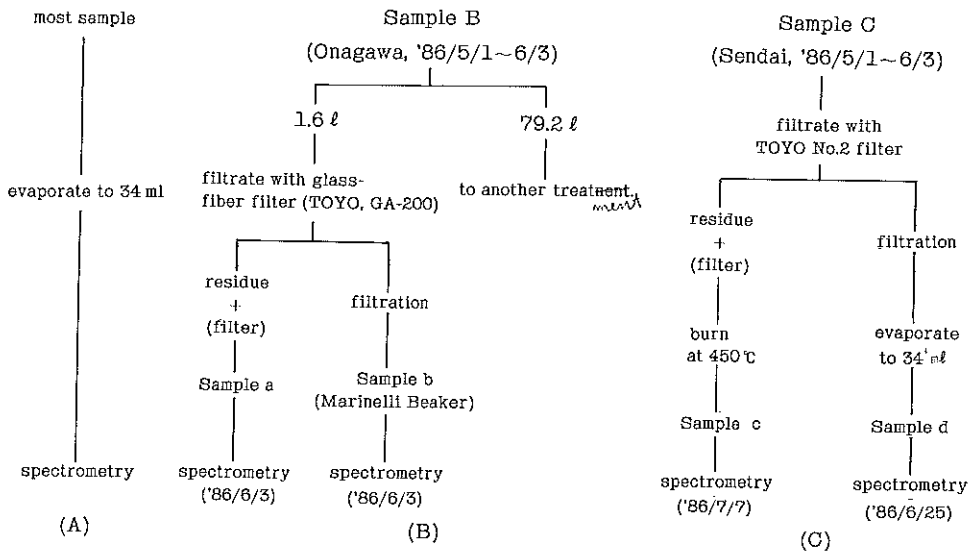


Fig.1 Preparation of Fallout Sample.

Table 1 Comparison of Nuclide Composition between Filtration and Residue of Fallout Sample B. (Onagawa, '86/5/1~6/3)

nuclide	a	b*	a	b
	(residue)	(filtration)	a+b	a+b
⁷ Be	24±2	(<25)	—	—
⁴⁰ K	11 ±2	(<18)	残査	不検
⁹⁵ Nb	0.27±0.07	(<2.1)	0.45	0.55
¹⁰³ Ru	6.7±0.3	8.2±1.1	0.06	0.94
¹³¹ I	1.4±0.2	24±2	—	—
¹³⁴ Cs	3.8±0.3	(<2.5)	—	—
¹³⁷ Cs	9.9±0.3	(<2.5)	—	—
unit	pCi/ℓ (at 3 June 1986)		—	—

* values in parenthesis are detection limit.

III 結 果

1. 降下物試料の残査とろ液中の核種の割合

Table 1 は試料 B (女川の1986年5月分) をろ過した場合の残査とろ液中の核種の割合を示す。放射能の値は試料を採取した1986年6月3日に半減期補正をしてある。ろ液は蒸発濃縮せずにマリネリピーカーで直接測ったものなので、検出限界濃度が高く、¹⁰³Ru と ¹³¹I 以外については割合ははっきりわからない。¹⁰³Ru はおよそ半量ずつが残査側とろ液側にあることがわかる。¹³¹I は大部分がろ液側にあるが、一部は残査側にもある。

Table 2 は試料 C (仙台の1986年5月分) の同様な結果である。この場合は採取した試料全量を使用しているため、Table 1 とは異なって多数の核種が検出されている。人工核種のほかに参考のため ⁷Be と ⁴⁰K の値も示してある。この表によると、ほとんど100%近く残査側にある核種は ⁹⁵Zr、⁹⁵Nb、^{110m}Ag、¹⁴¹Ce、¹⁴⁴Ce、多くの部分が残査側にあるものは ¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs となっている。後者については20~30%がろ液側にも存在している。逆に ⁷Be と ¹³¹I は大部分がろ液側に存在している。ただし ¹³¹I については残査は450℃で灰化後の値なので揮散によってロスしている可能性が考えられる。また ¹⁰³Ru は Table 1 の場合に比べて残査側の量が多い結果となっている。

Table 2 Comparison of Nuclide Composition between Filtration and Residue of Fallout Sample C. (Sendai, '86/5/1~6/3)

nuclide	c	d	c	d
	(residue)	(filtration)	c+d	c+d
⁷ Be	1170±30	3730±40	0.24	0.76
⁴⁰ K	160±10	49±8	0.77	0.23
⁹⁵ Zr	40±3	(<6)	1.0	(0)
⁹⁵ Nb	89 ±3	3.0±0.6	0.97	0.03
¹⁰³ Ru	1660±10	557±6	0.75	0.25
¹⁰⁶ Ru	520±20	150±10	0.78	0.22
^{110m} Ag	15±2	(<4)	1.0	(0)
¹²⁵ Sb	(<19)	19±4	(0)	(1.0)
^{129m} Te	690±70	720±60	0.49	0.51
¹³¹ I	(<60)	3230±30	(0)	1.0
¹³⁴ Cs	708±6	301±4	0.70	0.30
¹³⁷ Cs	1720±10	728±6	0.70	0.30
¹⁴⁰ Ba	(<130)	290±20	(0)	(1.0)
¹⁴¹ Ce	86±3	6.7±2.1	0.93	0.07
¹⁴⁴ Ce	113±7	(<20)	1.0	(0)
unit	pCi/m ² (at 3 June 1986)		—	—

2. 降下物中核種組成の経月変動

Table 2 に示したように事故直後の降下物中には多数の人工核種が検出されたが、その後は次第に核種数は減少してきた。これらの中で数ヶ月以上連続的に検出されたのは ¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs の4核種である。

Fig 2 に女川における1986年5月から12月までのこれら4核種の経月変動の様子を示した。放射能の値は事故の起きた4月26日現在に半減期補正をしてある。図では折れ線グラフで各月の値を示したが、各点はそれぞれ1ヶ月間の降下量を示す。この図によると、これらの核種の放射能は6月以降急速に減少し、¹⁰⁶Ru は8月、¹⁰³Ru は10月を最後に検出されなくなった。¹³⁴Cs、¹³⁷Cs は11月、12月には少し増加している。

Fig. 3 は仙台における同様なグラフである。この場合に特徴的なのは、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs に比べて ¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru の値が次第に相対的に高くなってきている点である。

Fig. 4 はこの様子をよくみるために、各々の核種の値と ¹³⁷Cs との比を示したものである。(a)が女川、(b)が仙台の場合である。まず(a)については、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs の値はほ

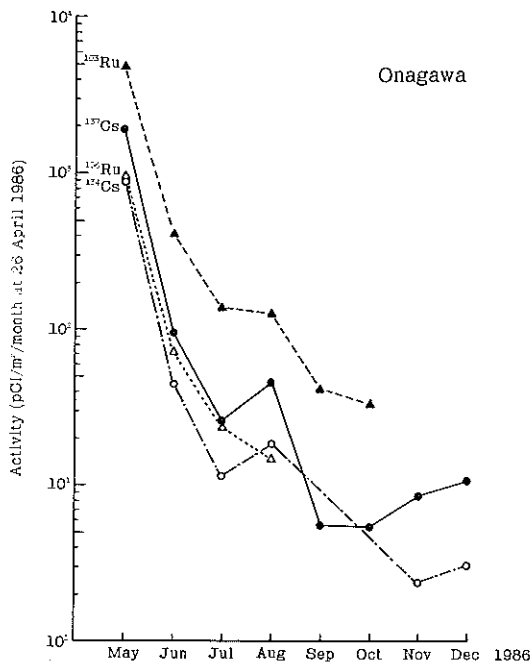


Fig. 2 Monthly Variation of Radioruthenium and Radiocesium in Rain and Dry Fallout in Onagawa.

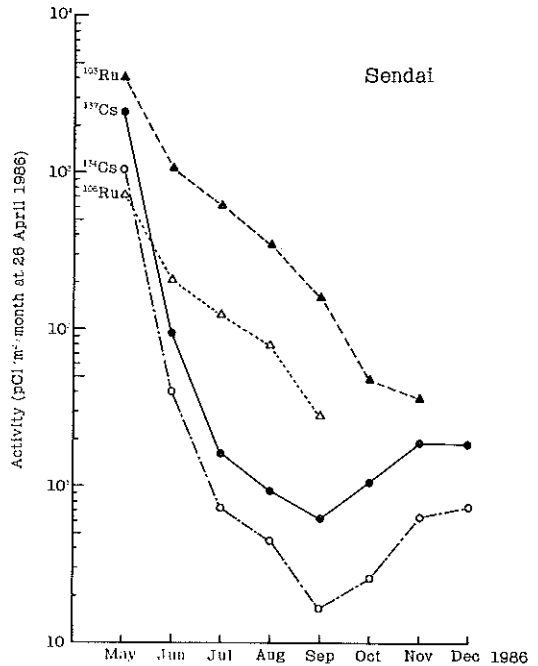


Fig. 3 Monthly Variation of Radioruthenium and Radiocesium in Rain and Dry Fallout in Sendai.

ほ一定の0.4前後であるが、 $^{103}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ の値は5月の2.5から9月の最高7.5まで増加傾向を示している。 $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ も7月までは同様に増加しているが8月には逆に減少している。8月については ^{106}Ru の値が低く、測定誤差が大きいと考えられる。(b)の仙台の場合はルテニウムの増加傾向は一層顕著で、 $^{103}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ は5月に1.7であったのが7月には約40まで急激に増加している。その後は大体一定となっている。 ^{106}Ru も ^{103}Ru と同様に変動している。セシウム、ルテニウムとも、同位体間では変動傾向の違いはあまりない結果となっている。

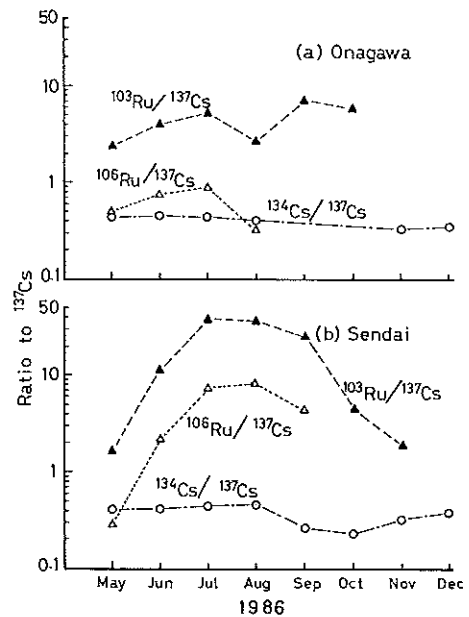


Fig. 4 Monthly Variation of ^{103}Ru , ^{106}Ru , and ^{134}Cs to ^{137}Cs Ratio in Rain and Dry Fallout in Onagawa (a) and Sendai (b).

IV 考 察

1. 降下物試料中の核種の形態

笠井ら¹⁾はチェルノブイル事故後の4月30日から5月6日、および5月6日から5月13日の降下物試料をNo.5Aのろ紙でろ過して、残査とろ液のそれぞれの放射能を測っている。彼らによると、4/30-5/6の試料では¹⁰³Ru、¹³¹I、¹³⁴Cs、¹³⁷Csは大部分がろ液側に、また5/6-5/13のものでは¹³¹Iがやはりろ液側に多かったが¹⁰³Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Csは同程度であったとしている。村松ら²⁾は事故後の雨水をグラスフィルターでろ過して測定し、¹³¹Iは溶存状態であったと述べている。

¹³¹Iについては著者らが得た結果も同様で、降下物中では大部分が溶存していたものと考えられる。一方、¹⁰³Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Csについて笠井ら¹⁾の得た結果では、同程度とは言っても残査よりはろ液側に多い結果となっている。これに対し、著者らの得た結果では、Table 1(ろ過材: GA-200)では¹⁰³Ruは同程度、Table 2(ろ過材: No.2ろ紙)では¹⁰³Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Csは逆に残査側に多かった。この理由については地理的な位置、試料採取期間、ろ紙の種類が違っているのではっきりとは言えない。しかし、¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Csについては少なくともある程度は溶存状態か、またはろ紙の目を通り抜けるぐらい微細な粒子であったと言える。¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Csの粒径が小さいという点については、広瀬ら³⁾は5/6-5/10までの浮遊じんの粒径分布の測定の結果、¹⁰³Ru、¹³⁷Csは粒径0.43 μ m以下に全体の放射能の約50%が存在していた、と述べている。

2. 核種組成の経月変動

ルテニウム(¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru)とセシウム(¹³⁴Cs、¹³⁷Cs)の割合の経時的変動については、浮遊じんまたは降下物について幾つか報告されている^{4),5)}。しかし、これらは5月~7月にかけての日単位の短期変動に関するもので、本報告のような月単位の比較的長期的な変動についてはまだ報告がない。

ルテニウムとセシウムの割合の経時的変化の原因についてであるが、粒径の違いによって大気中で分別が起きたためとは考えにくい。というのは、浮遊じんに関する幾つかの報告によると、ルテニウムとセシウムの粒径分布はほぼ同様であったとされているからである^{3),6)}。

よって、ルテニウムとセシウムの割合が、時期によりまた地理的な位置の違いにより異なるのは、これらの核種の大気中における分布の違いと気象条件の違いのためではないかと推定されるが、はっきりしたことはわから

ない。あるいはこれらの核種の大気中での挙動の違いということも考えられる。女川よりも仙台の方が核種の降下量が多いという現象については、チェルノブイル事故以前の¹³⁷Csについてみられており⁷⁾、また事故後の¹³⁴Cs、¹³⁷Csについてもレベルの低くなった11月と12月にみられる(Fig.2およびFig.3参照)。

V ま と め

- 1) チェルノブイル事故後の1986年5月の降下物試料をろ過して残査とろ液のそれぞれを核種分析し、核種の溶存の有無を調べた。その結果¹³¹Iは大部分がろ液側に存在していた。逆に、⁹⁵Zr、⁹⁵Nb、^{110m}Ag、¹⁴¹Ce、¹⁴⁴Ceはほぼ100%、また¹⁰³Ru、¹⁰⁶Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Csはおよそ半量以上が残査に含まれていた。
- 2) 1986年5月~12月の降下物中の核種の組成の経月変動について調べた。その結果、¹⁰³Ruと¹⁰⁶Ruは¹³⁴Csと¹³⁷Csに比べると、相対的にその降下量が多くなる結果を得た。この傾向は女川よりも仙台で著しく、例えば¹⁰³Ru/¹³⁷Csの値は仙台では5月に1.7だったのが7月には約40となった。この現象の原因としては、ルテニウムとセシウムの粒径分布の違いではなく、空間的分布や気象条件、あるいは大気中での挙動の違いなどが考えられるが、現時点でははっきりしたことは不明である。

文 献

- 1) 笠井篤、柳瀬信之、松永武、関根敬一ほか：28回環境放射能調査研究成果論文抄録集、P.324 (1986)
- 2) 村松康行、住谷みさ子、大桃洋一郎：同上、P.280 (1986)
- 3) 広瀬勝己、青山道夫、井上久幸、杉村行勇：同上、P.314 (1986)
- 4) 青山道夫、広瀬勝己、杉村行勇：第30回放射化学討論会講演予稿集、P.316 (1986)
- 5) 小島貞男、神谷晶、古川路明：同上、P.324 (1986)
- 6) 阿部道子、阿部史郎：同上、P.318 (1986)
- 7) 本年報 P.28 参照

チェルノブイル事故関係論文

環境試料中 ^{110m}Ag と ^{134}Cs のサム効果

石川陽一・佐藤健一・菊地秀夫
末永紳一・佐藤信俊・湯田和郎

I はじめに

チェルノブイル原発事故によって環境に放出された多数の放射性核種の中にはカスケード γ 線を放出するものが多数ある。そのうち比較的半減期が長いものに ^{110m}Ag と ^{131}Cs がある。これらカスケード γ 線を放出する核種を Ge 検出器で定量しようとする場合には、本来ならばサム効果(サム・コインシデンス効果)を考慮しなければならない¹⁾。サム効果によって、目的とするエネルギーの γ 線計数率は減少あるいは増加するが、通常では前者の場合が多い。このサム効果による計数率測定の誤差は場合によっては数10%にもなるにもかかわらず、一般にはあまり考慮されていない²⁾。線源(試料)が点線源あるいは面線源であれば、サム効果を比較的簡単な計算で求めることができるが、容積線源の場合には試料による自己吸収の問題など難しい問題があり、容易ではない¹⁾。

環境試料の測定を行なう場合には、一般に検出効率のよい Ge 検出器を用い、試料を灰化するなどして減容化

し、かつできるだけ検出器に近づけて測定するためサム効果が起きやすい。著者らの場合には相対効率25%の Ge 検出器を用い、灰試料はプレス成形して平たくして測定しているために、なおさらこの効果を受けやすいと考えられる。

時間的・労力的な制約のために、新たに標準試料を作製するなどの余裕がなかったので正確にサム効果の補正をすることはできなかったが、カキ(貝)の灰試料の ^{110m}Ag と浮遊じん試料の ^{134}Cs についてその大体の大きさを見積ることができたと思われたのでここに報告する。

なお、チェルノブイル事故によって放出された核種のうちで、ほかにも ^{132}Te — ^{132}I など重要な核種についてサム効果が考えられるが、今回は省いた。

II 方法

Fig.1に、検討に用いたカキ灰試料と浮遊じん試料の仕様を示す。Fig.2に試料と検出器の位置関係を示す。

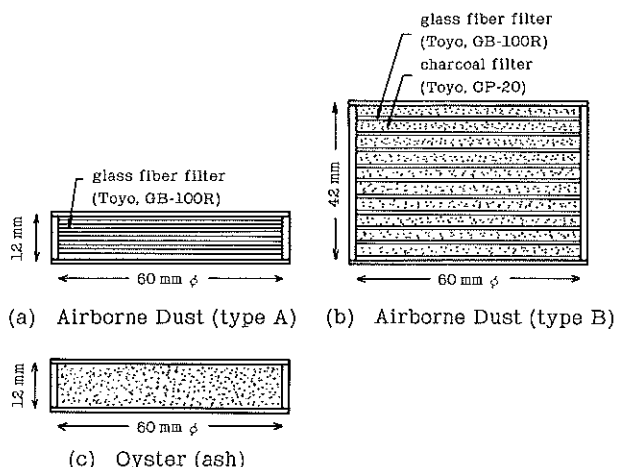


Fig.1 Schematic of Various types of sample for Ge-spectrometry.

vessel: acrylic resin.

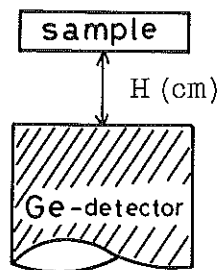


Fig.2 Sample Geometry

III 結 果

1. カキ (灰) 試料における ^{110m}Ag のサム効果
 Fig. 3に ^{110m}Ag の崩壊図を示す³⁾. Fig. 4は試料一検

出器間の距離 $H = 0\text{ cm}$ の場合の γ 線スペクトルである。
 この図において、1364、1451、1542、1595、1822、2042
 keVのピークはサムピークである。これらはそれぞれFig. 3
 の崩壊図の $\gamma_4 + \gamma_7$ 、 $\gamma_7 + \gamma_8$ 、 $\gamma_4 + \gamma_{11}$ 、 $\gamma_4 + \gamma_{12}$ 、 $\gamma_{11} +$

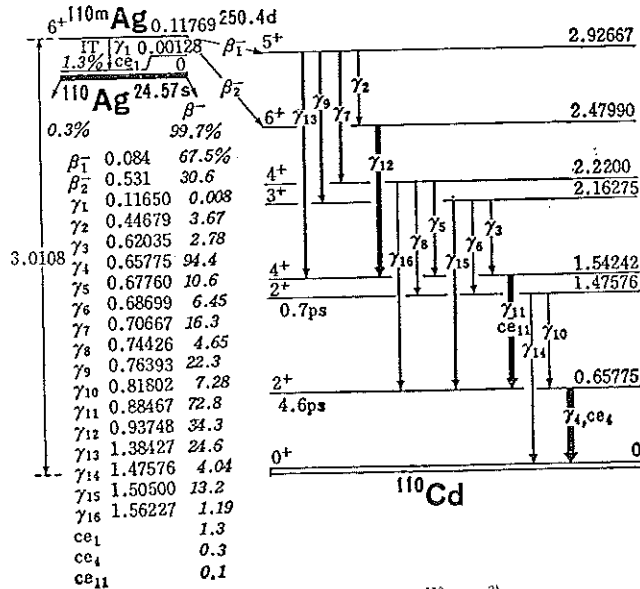


Fig. 3 Decay Scheme of ^{110m}Ag .³⁾

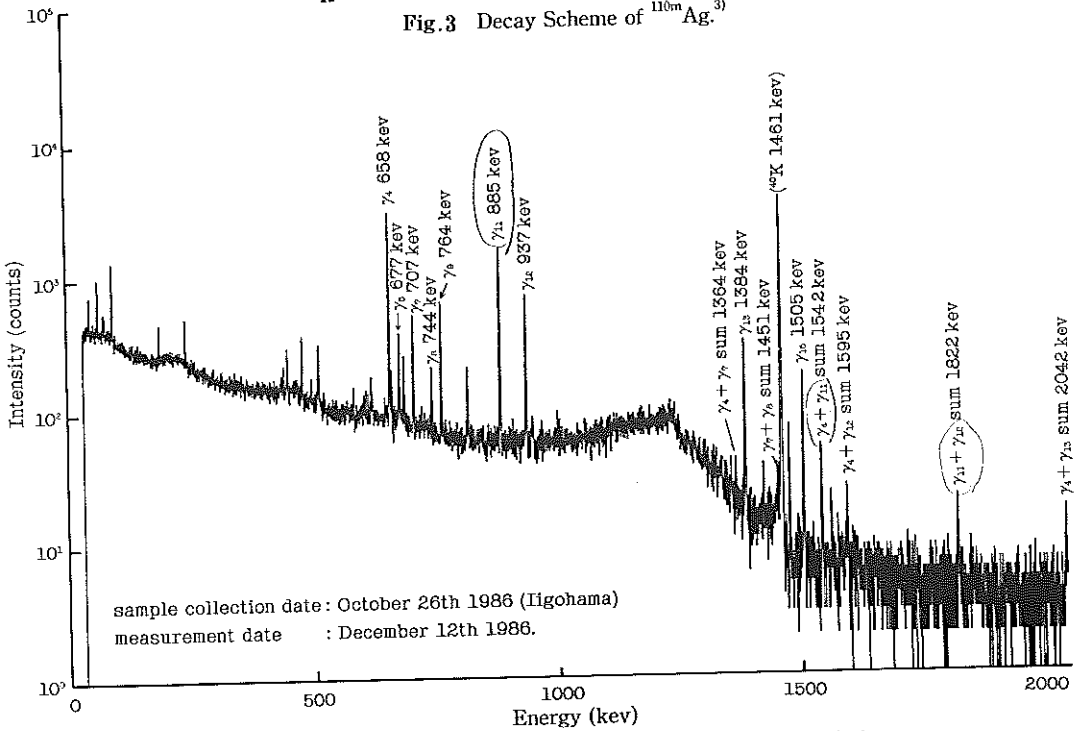


Fig. 4 Gemma Spectrum of Oyster when Sample-detector Distance is 0 cm.

γ_i : γ -ray of ^{110m}Ag

γ_{12} , $\gamma_4 + \gamma_{13}$ に対応する。

Fig.5 は同試料を検出器から離し、 $H = 6.9\text{cm}$ で測定

した場合のスペクトルである。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ のサムピークはほとんど消失していることがわかる。

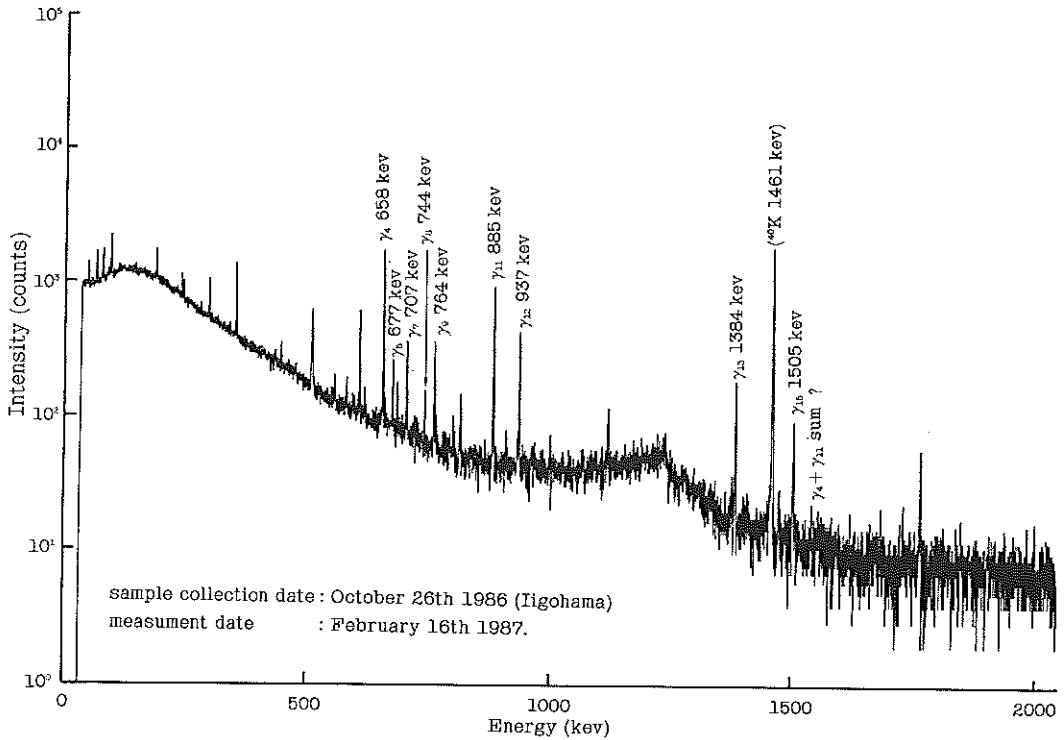


Fig.5 Gamma Spectrum of Oyster when Sample-detector Distance is 6.9 cm.

γ_i : γ -ray of $^{110\text{m}}\text{Ag}$.

Table I は、通常 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の定量に用いている 885keV の γ 線 (γ_{11}) と、 ^{40}K の 1461keV の γ 線の正味計数率 n_{885} , n_{1461} およびその比 r を $H = 0$ と $H = 6.9(\text{cm})$ について示したものである。 ^{40}K の 1461keV の γ 線は単色であり、サム効果は起こさないで、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ に対する基準である¹⁾。

$H = 6.9(\text{cm})$ はサム効果がほとんど無視できる位置を示す。同表の右端の値 $(\Gamma_{H=6.9} - \Gamma_{H=0}) / \Gamma_{H=6.9}$ は、 $H = 0$ の場合の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 885keV γ 線のサム効果の程度を表わす目安と考えられる (^{40}K に対する相対的計数率の減少割合)。

Table I Counting Rate Data of 885keV ($^{110\text{m}}\text{Ag}$) and 1461keV (^{40}K) γ -ray of Oyster Sample.

distance (cm)	$n_{885} \pm \sigma$ (cps)	$n_{1461} \pm \sigma$ (cps)	$r = \frac{n_{885}}{n_{1461}}$	$\frac{\Gamma_{H=6.9} - \Gamma_{H=0}}{\Gamma_{H=6.9}}$
H=0	$7.8 \times 10^{-2} \pm 1.3 \times 10^{-3}$	$2.4 \times 10^{-1} \pm 1.9 \times 10^{-3}$	0.33 ± 0.01	
H=6.9	$1.1 \times 10^{-2} \pm 2.5 \times 10^{-4}$	$3.0 \times 10^{-2} \pm 1.4 \times 10^{-3}$	0.38 ± 0.02	0.13 ± 0.05

2. 浮遊じん試料における ^{134}Cs のサム効果

Fig. 6 に ^{134}Cs の崩壊図を示す。Fig. 7 はタイプ A (60 mm ϕ \times 12mmh) の浮遊じん試料の H = 0 におけるスペクトルを示す。Fig. 8 は同試料の H = 8 (cm) におけるスペクトルである。Fig. 7 において最も顕著なサムピークは 1400

kev の $\gamma_4 + \gamma_5$ のものである。このほかにも数本のサムピークが認められる。試料を検出器から十分離れた Fig. 8 の場合には、どのサムピークもほとんど消失していることがわかる。タイプ B (60mm ϕ \times 42mmh) の浮遊じん試料についてもやはり同様な結果であった。

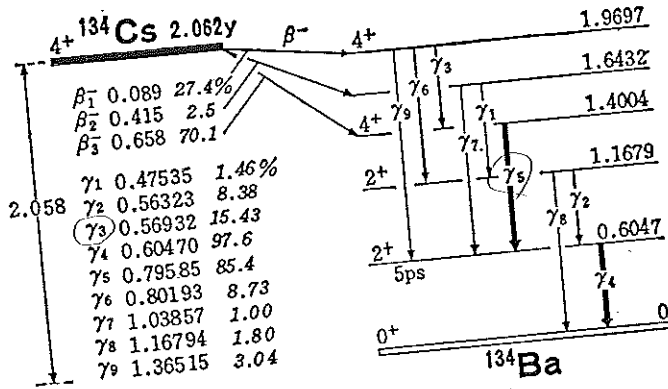


Fig. 6 Decay Scheme of ^{134}Cs .³⁾

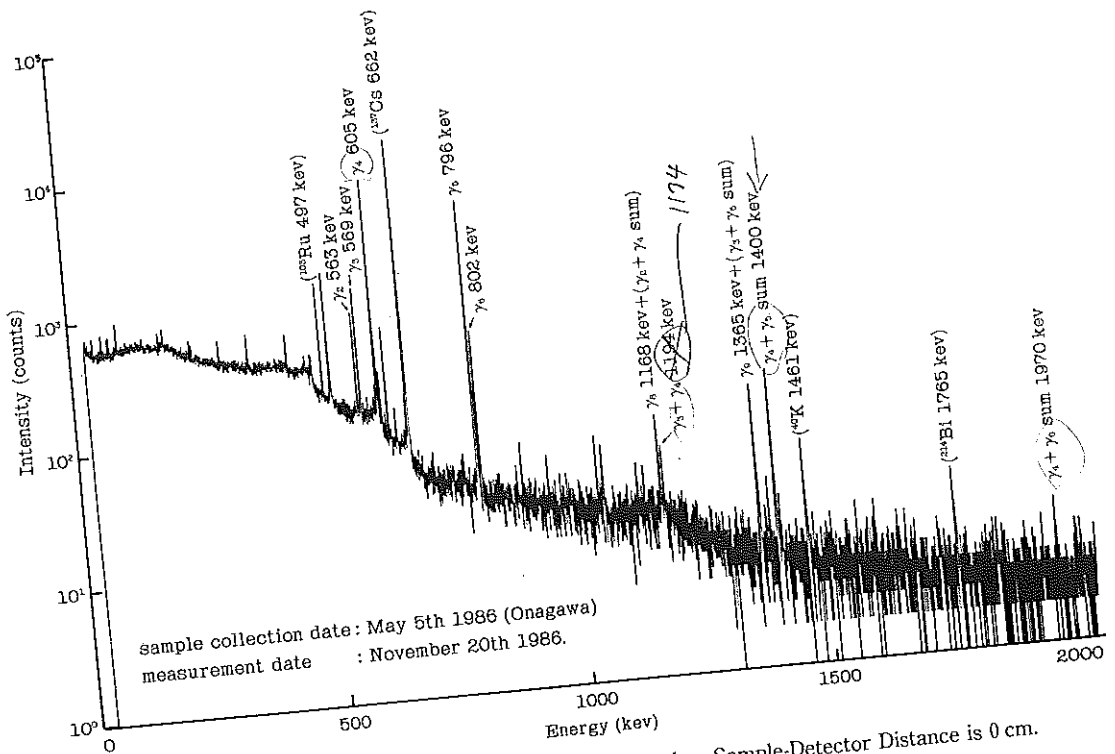


Fig. 7 Gamma Spectrum of Airborne Dust (type A) when Sample-Detector Distance is 0 cm.
 γ_i : γ -ray of ^{134}Cs .

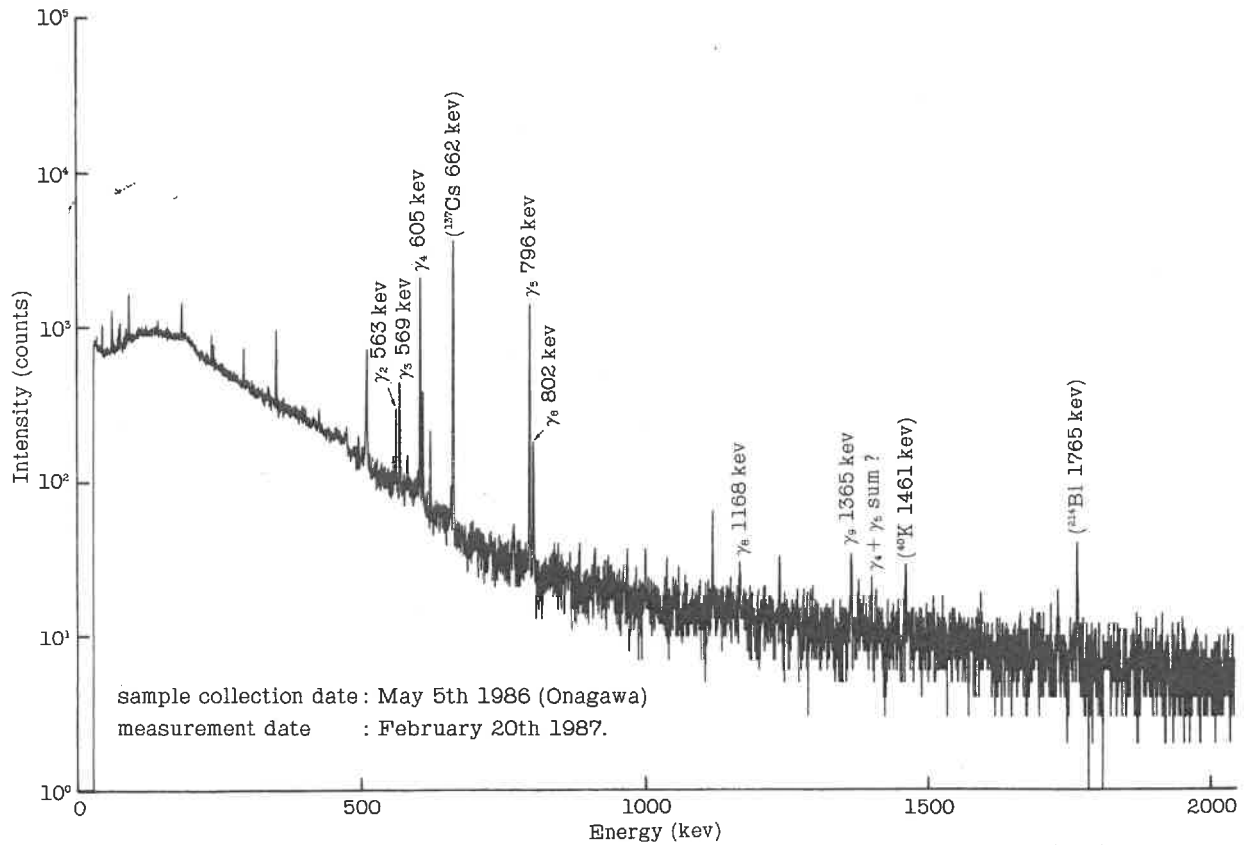


Fig. 8 Gamma Spectrum of Airborne Dust (type A) when Sample-Detector Distance is 8.0 cm.

γ_i : γ -ray of ^{134}Cs .

Fig. 9(a)はタイプAの試料について、 ^{137}Cs 662keV γ 線の正味計数率に対する ^{134}Cs 796keV γ 線の相対的正味計数率をHに対してプロットしたものである。796keVの γ 線は通常 ^{134}Cs の定量に用いているものである。この図によると、相対計数率 $r = n_{796}/n_{662}$ の値はHが大きくなるにつれて増加し、Hが数cm以上ではほぼ一定となる。これは ^{134}Cs の796keV γ 線のサム効果がH大と共に減少し、ある距離以上では無視できるほど小さくなるためと考えられる。実際、サムピークの大きさはHが大となるにつれて次第に小さくなっていることを確認した。Fig. 9(b)はタイプBの試料についての同様なグラフである。

Table 2は、浮遊じん試料についてのTable 1と同様な表である。この場合は基準 γ 線として ^{137}Cs の662keVを用いている。これより、サム効果による相対計数率の減少の割合は、両タイプについて約20%前後であることがわかる。

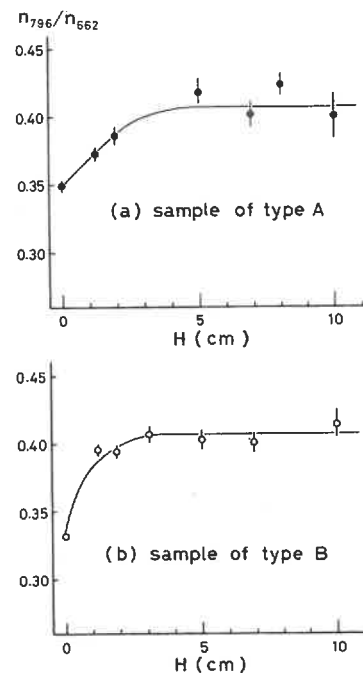


Fig. 9 Relation of Relative Net Counting Rate (n_{796}/n_{662}) to Sample-Detector Distance (H) for Dust Samples.

n_{796} : counting rate of ^{134}Cs 796keV γ -ray.
 n_{662} : counting rate of ^{137}Cs 662keV γ -ray.

Table 2 Counting Rate Data of 796keV (^{134}Cs) and 662keV (^{137}Cs) γ -ray of Airborne Dust Samples.

type of sample	distance (cm)	$n_{796} \pm \sigma$ (cps)	$n_{662} \pm \sigma$ (cps)	$r = \frac{n_{796}}{n_{662}}$	$\frac{\Gamma_{H=8} - \Gamma_{H=0}}{\Gamma_{H=8}}$
A	H=0	$1.8 \times 10^{-1} \pm 1.6 \times 10^{-3}$	$5.3 \times 10^{-1} \pm 2.8 \times 10^{-3}$	0.34 ± 0.003	0.20 ± 0.02
	H=8.0	$2.2 \times 10^{-2} \pm 3.8 \times 10^{-4}$	$5.2 \times 10^{-2} \pm 5.4 \times 10^{-4}$	0.43 ± 0.008	
B	H=0	$2.7 \times 10^{-1} \pm 1.9 \times 10^{-3}$	$8.8 \times 10^{-1} \pm 3.4 \times 10^{-3}$	0.31 ± 0.002	0.17 ± 0.02
	H=8.0	$4.0 \times 10^{-2} \pm 4.7 \times 10^{-4}$	$1.1 \times 10^{-1} \pm 7.6 \times 10^{-4}$	0.37 ± 0.005	

IV 考 察

サム効果を補正する方法は、容積線源の場合は自己吸収の問題などもあり、難しい。浮遊じん試料の場合、試料の密度はタイプAとBでそれぞれ0.22、および0.24g/cm³であり、小さい。このため検出器からの距離の違いによる自己吸収の違いはそれほど問題にはならないと思われ、 ^{134}Cs 796keV γ 線について Table 2 に示したサム効果の大きさ約20%という値は大体近い値になっているのではないかと推定される。

カキ(灰)の ^{110m}Ag 885keV γ 線については Table 1 に示すように、一応サム効果の大きさ約13%という値が得られたが、この場合は試料密度が約1.3g/cm³であった。このため、検出器からの距離によって796keV γ 線と基準の1461keV γ 線の自己吸収の程度が異なる可能性があり、浮遊じんの場合に比べると不確かさが大きいと思われる。

V ま と め

- 1) チェルノブイル原発事故によって放出された核種のうち、 ^{134}Cs と ^{110m}Ag について、それぞれ浮遊じん試料およびカキ(灰)試料におけるサム効果の程度を推定した。
- 2) サム効果の大きさとして、浮遊じん試料中 ^{134}Cs の796keV γ 線の場合約20%、カキ(灰)試料中 ^{110m}Ag の885keV γ 線の場合約13%という値を得たが、特に後者については誤差が大きいと考えられるので、大体の目安程度の値と思われる。

文 献

- 1) 野口正安： γ 線スペクトロメトリー、P. 39、日刊工業新聞社(1980)
- 2) K. Debertin and U. Schötzig：Nucl. Instr. Methods, **158**, 471—477 (1971)
- 3) 村上悠紀雄、團野皓文、小林昌敏編：放射線データブック、地人書館(1982)

チェルノブイル事故関係論文

浮遊じん中の放射性ヨウ素捕集上の問題点

菊地秀夫 ・ 石川陽一 ・ 佐藤健一
末永紳一 ・ 佐藤信俊 ・ 湯田和郎

I はじめに

日本時間1986年4月26日にソ連チェルノブイル原子力発電所で事故が発生し、その時環境に放出された大量の人工放射性核種の影響は本県女川地区でも5月初旬から環境試料の測定結果にあらわれ始めた。今回の事故に伴って実施した緊急時モニタリングのなかに人間の呼吸による体内汚染の評価上重要な浮遊じん試料の放射性核種の測定がある。この試料で一番濃度が高かった¹³¹Iは甲状腺被曝の決定核種で緊急時モニタリングを実施するうえで重要な核種である。この意味で、今回実施した浮遊じん中の放射性ヨウ素の測定で得られた問題点を指摘しておくことは、今後の緊急事態に備える上で特に必要なことと考える。

II 試料採取法

浮遊じん試料は女川町内の宮城県原子力センターと東北電力女川原子力発電所周辺に設置したモニタリングステーションで採取した。吸引時間はダストサンプラの種類により、1時間から1日間の比較的短時間の吸引と2週間から1ヶ月間の長期間の吸引とに分けた。短時間の吸引にはホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙（東洋ろ紙：GB100R、捕集効率：0.36 μ m DOP99.99%）と活性炭ろ紙（東洋ろ紙：CP-20）とを種々に組合わせハイポリウムエアサンプラ（柴田科学：HVC-1000、吸引量：約1 m³/分、吸引口：203×254mm）を、長期間の吸引にはセルローズ・ガラス繊維ろ紙（東洋ろ紙：HE-40T、捕集効率：0.3 μ m DOP99.66%）1枚、活性炭ろ紙（東洋ろ紙：CP-20）1枚および活性炭カートリッジ（東洋ろ紙：CHC-50、寸法：60mm ϕ ×20mmH）2段でロウポリウムエアサンプラ（柴田科学：LT-20、吸引量：約40 l/分、吸引口：60mm ϕ ）を用いた。測定時の試料は、ハイポリウムエアサンプラ用の長方形ろ紙は円形（60mm ϕ ）に約10枚打ち抜き、ロウポリウムエアサンプラ用のろ紙はそのままアクリル製の測定用容器（60mm ϕ ×42または12mmH）に封入し

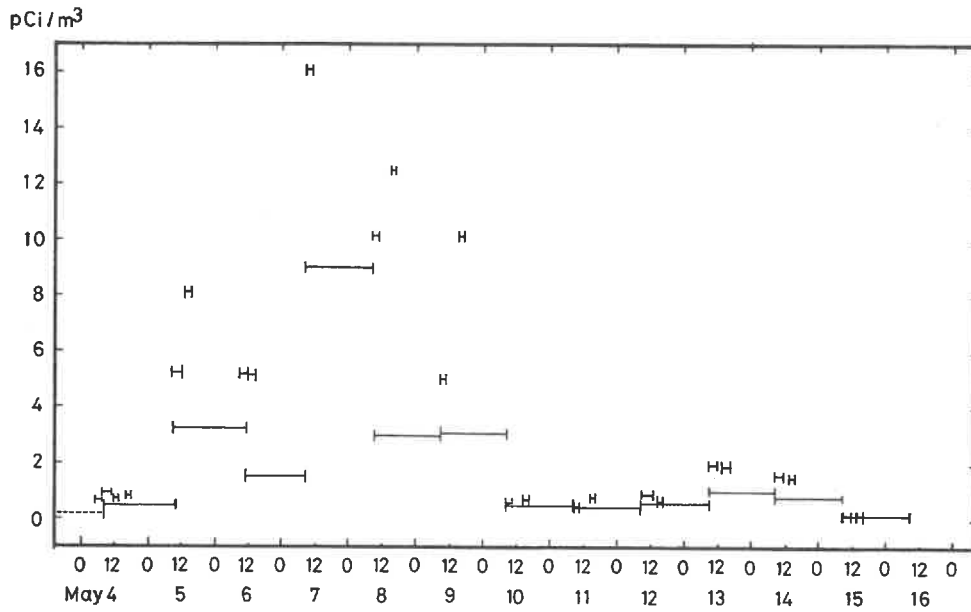
た。放射性ヨウ素の定量にはI-131の364keVのピークについて、ゲルマニウム半導体検出器を用い「ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法」（昭和54年改定科学技術庁）に準じたガンマ線スペクトロメトリをおこなった。

III 測定結果

ホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙1枚、活性炭ろ紙1枚を用いハイポリウムサンプラで数時間から1日間吸引した結果を図-1に示す。5日と7日にピークがあり、7日に最大濃度を示した。また、1日間の吸引の結果は、吸引期間の減衰を考慮に入れても明らかに数時間吸引の結果よりも濃度が低かった。

ハイポリウムサンプラによる結果を表1(i)と(ii)に、ロウポリウムサンプラによる結果を表1(iii)と(v)に示した。

各種フィルタの組合わせによる放射性ヨウ素の捕集割合を表-1に示す。表1(i)によると、活性炭を含まないホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙（GB-100R）にも放射性ヨウ素は捕集されており、ろ紙を個別に測定した結果と合わせて測定した結果とは明らかに合わなかった。表1(ii)によると、ホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙を5枚重ね合わせても2枚め以降にもかなりの量の放射性ヨウ素が捕集されていて、同時間帯のホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙1枚と活性炭ろ紙1枚の組合わせの結果よりも低かった。表1(iii)、(iv)によると、ホウケイ酸塩ガラス繊維ろ紙とほぼ同等の捕集能力を持つセルローズガラス繊維ろ紙1枚、活性炭ろ紙1枚および活性炭カートリッジ2段の組合わせの結果では、活性炭カートリッジにはセルローズガラス繊維ろ紙と活性炭ろ紙に捕集された量とほぼ同量の放射性ヨウ素が捕集されていた。しかも、この活性炭カートリッジは20mmの厚さを持っており検出器に装着する向きにより測定結果は異なった〔表1(v)〕。



図一 吸引時間の違いによる ^{131}I 測定濃度値への影響

- ・ロ紙に GB100R を 1 枚、CP-20 を 1 枚用い、ハイボリュームエアサンプラで数時間から 1 日間吸引した結果である。
- ・横線の範囲は吸引時間をあらわす。

表一 各種フィルタの組合わせによる ^{131}I の捕集割合

(i) ガラス繊維ロ紙 1 枚と活性炭ロ紙 1 枚との組合わせ

ロ紙	吸引前面からの順番	捕集割合
GB-100R	1	1
CP-20	2	0.79
GB-100R+CP-20	1+2	2.2

- ・ハイボリューム・エアサンプラによる結果
- ・吸引期間 86.5.4. 07:37~11:37

(ii) ガラス繊維ロ紙 5 枚の組合わせと (i) の組合わせ

ロ紙	吸引前面からの順番	捕集割合
GB-100R	1	1
GB-100R	2	0.26
GB-100R	3	0.18
GB-100R	4	0.079
GB-100R	5	0.056
GB-100R+CP-20	—	3.2

- ・ハイボリューム・エアサンプラによる結果
- ・吸引期間 86.5.6.11:54~ 5.7.08:40

(iii) セルロース・ガラス繊維ロ紙 1 枚、活性炭ロ紙 1 枚および活性炭カートリッジ 2 段との組合わせ (1)

ロ紙	吸引前面からの順番	捕集割合
HE-40T	1	1
CP-20	2	0.89~1.2
CHC-50	3	1.7~1.9
CHC-50	4	0.26~0.33

- ・ロウボリューム・エアサンプラによる結果
- ・吸引期間 86.5.4. ~ 5.18.

(iv) セルロース・ガラス繊維ロ紙 1 枚、活性炭ロ紙 1 枚および活性炭カートリッジ 2 段との組合わせ (2)

ロ紙	吸引前面からの順番	捕集割合
HE-40T+CP-20	1+2	1
CHC-50	3	0.66
CHC-50	4	0.14~0.17

- ・ロウボリューム・エアサンプラによる結果
- ・吸引期間 86.5.2. ~ 6.5.

(v) 測定するさいに活性炭カートリッジの向きを変化させたときのみかけ上の濃度変化

方 向	割 合
正	1
逆	0.69~0.85

- ・ロウボリュウム・エアサンプラによる結果
- ・吸引期間 86.5.4. ~ 5.18.
- ・空気の流れ込む方向を正とした。

IV 考 察

ホウケイ酸塩ガラス繊維口紙と活性炭口紙を組合わせ、数時間と1日間の吸引を繰り返した結果からは、明らかに長時間の吸引での放射性ヨウ素の捕集効率は低い。放射性ヨウ素はガス状のものと粒子状の形態をとる¹⁾ことが知られており、おそらくガス状のヨウ素が活性炭口紙を通過しているものと考えられる。放射性ヨウ素濃度が高いときほどその傾向が大きくなった原因はわからないが、飛来した放射性ヨウ素の形態が採取時期により異なっていたことが考えられる。また、粒子状の物質を捕集する

ホウケイ酸塩ガラス繊維口紙5枚を重ねて吸引した結果では、2枚目以降にも捕集されており、しかも前段の口紙に対する捕集比は異なっていた。粒子状物質に吸着していたヨウ素が吸引中に遊離していることなどが原因として考えられ、粒子状とはいえ繊維状の口紙のみで完全な捕集は期待できない。ガス状のヨウ素は活性炭カートリッジ2段でも完全に捕集したとは考えられない結果であった。カートリッジ内のヨウ素の分布は不均一であり測定時には均一にする必要のあることがわかった。

今回の測定で検討はできなかったが、放射性ヨウ素の捕集にはガス状、粒子状の形態とは別に、無機形、有機形の形態毎に各種類のフィルタへの捕集特性を考慮に入れる必要がある¹⁾ともいわれている。以上述べたように浮遊じん中の放射性ヨウ素の測定にはサンプリングおよび測定上に数多くの問題点があり、現行のマニュアル²⁾のよりいっそうの整備が必要と考えられる。

文 献

- 1) 成富満夫、福田整司：空気清浄，10(2)，79 (1977)
- 2) 科学技術庁：「放射性ヨウ素分析法」、昭和52年改訂

チェルノブイル事故関係論文

ホウレン草に吸収された放射性核種の分布

佐藤信俊 ・ 石川陽一 ・ 菊地秀夫 ・ 佐藤健一
遠藤篤子 ・ 末永紳一 ・ 湯田和郎

I はじめに

放射性核種の植物体内への取り込み・分布については、数多くの報告がある。しかし、実際の原子力発電所等の事故による自然環境中での挙動については、例が少ないことから、報告も少ない¹⁾。

そこで、本報では今回のチェルノブイル原子力発電所事故に伴い実施した環境調査で、指標野菜として選択したホウレン草を用いて、各部位による濃度の違い、オートラジオグラフィーによる組織内での分布等について検討した。

II 実験方法

1. 試料

試料に用いられたホウレン草は、販売用に露地栽培されたもので、5月19日宮城県石巻市において採取された。

また、ホウレン草中の核種濃度の推移を追跡するため、データの均一性を重視し、継続して同一圃場、同一条件下で生産されたものを採取した。そのため、本実験に用いたホウレン草は、通常は食用には供しない過大に成長したものであった。

2. ホウレン草中の核種分析

試料を軽く水洗した後、各部位ごとに分け、ホモジナイザーによって均一化した。次に試料量によっては、マリネリビーカー (1.7 l)、タッパー (100 ml) 等に一定量を秤量し直接 Ge 半導体検出器によって 1~20 時間程度測定した。

Ge 半導体検出器による測定解析については省略する²⁾。

3. オートラジオグラフィー

水洗されたホウレン草を葉については、約 3 cm × 5 cm の大きさに切り取り、茎については、0.5~1.0 mm の厚さに輪切にし、また、根については、縦方向に 0.5~1.0 mm 厚にスライスした。次に表面に付いた水滴をろ紙で除い

た後、Fig. 1 の様に試料とフィルムを密着させるためと、外部からの放射線による影響を少なくするために、上下から鉛ブロックで挟み込んだ。

尚、葉については、降下物が多く付着していると思われる葉表面をフィルム側にセットした。フィルムは、市販の ASA 400 の白黒フィルム (Kodak® Tri-X pan 400) とし、コピナール (フジフィルム製) によって現像された。

オートラジオグラフィーに関与する核種を推定するため、試料採取日と、約 4 ヶ月後の 2 回、同一試料を用いたオートラジオグラフィーを実施した。それぞれの期間は、Table 1 の通りである。

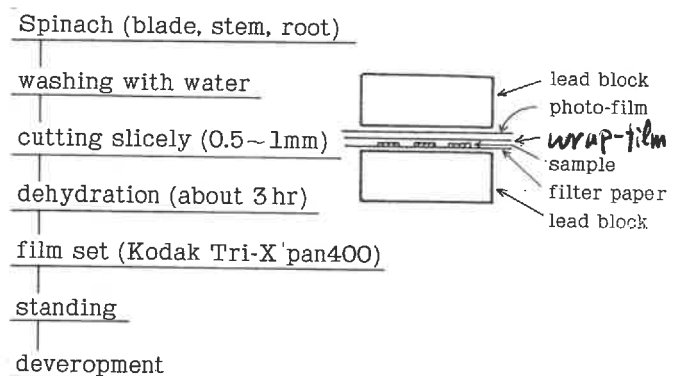


Fig. 1 Method of Autoradiography for Spinach.

Table 1 Exposure Period of Autoradiography.

	date of film set take on/take off	Exposure Period
1 st	19 May '86/8 June '86	20 days
2 nd	13 Sep. '86/8 Oct. '86	25 days

III 結 果

1. 試料に用いたホウレン草中の放射性核種濃度

実験に用いたホウレン草中の放射性核種濃度を、Table 2に示した。降下物中の核種間比とはほぼ同じで³¹、¹³¹Iが最も高く、次いで¹⁰³Ru、¹³⁷Cs、¹³⁴Csの順であった。

また、採取日は5月19日で本県で初めてチェルノブイル原子力発電所事故の影響が見られた5月3日（浮遊じん）から16日後、またホウレン草中の¹³¹I濃度が最大値となった5月11日から8日後であり、その間の各核種間の比は、ほぼ同程度であった³¹。

Table 2 Concentration of Artificial Radionuclides in Spinach Collected on 19 May '86.

Radionuclide	Half Life	Concentration (pCi/kg wet)
¹³¹ I	8.04 day	810±20
¹⁰³ Ru	39.35 day	140±10
¹³⁴ Cs	2.062 year	37±9
¹³⁷ Cs	30.0 year	69±10

without root

2. 部位による¹³¹Iの濃度分布

Table 3にホウレン草の部位ごとの放射性核種濃度を示した。試料の量、測定時間等から茎等で検出限界値が100 pCi/kg wetよりも大きな値となっているものもあり、詳細な比較は出来ないが、¹³¹Iについては、明らかに葉部に高く、茎、根では低い値となっている。

また、他の核種では、茎、根の結果が検出限界値以下となっているが、葉と茎の混合試料と、それぞれの検出限界値とを比較すると、¹³¹Iの場合とは逆に、葉で低い値を示している。

Table 3 Concentration of Artificial Radionuclides in Several Parts of Spinach.

part	Concentration (pCi/kg wet)			
	¹³¹ I	¹⁰³ Ru	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
<i>leaf</i> blade	738±25	93±9	nd (19)	29±7
stem	nd (150)	nd (100)	nd (115)	nd (111)
root	99±22	nd (43)	nd (53)	nd (46)
blade and stem	808±24 810±20	140±10	37±9	69±10

nd; not detected, (); detection Limit (≒ 3σ)

3. ホウレン草のオートラジオグラフィー

Photo. 1, 2は、それぞれホウレン草の茎を輪切にした試料と、根の縦方向にスライスした切片試料の写真である。

今回用いたホウレン草は、露地のものであるが、通常の収穫期を越えて栽培されたもので、茎の径は1.5~2 cm φ、根は0.5~1 cm φで茎の中心部は、空洞化している。

Fig. 2, 3は、第1回（5月19日~6月8日まで露出、Table 1）の茎、根のオートラジオグラフィーであるが、ラジオ実写真は不明瞭であるため、フィルムの感光部にぞって

患案にトレースしたものである。

Fig. 2の破線状に連なる感光部を、Photo. 1と対比して見ると、ほとんどが茎肉部の中心を環状に並ぶ維管束の切口部に一致した。すなわち、ホウレン草の体内に取り込まれた放射性核種が、この維管束を通して植物体内に移動したことが判る。

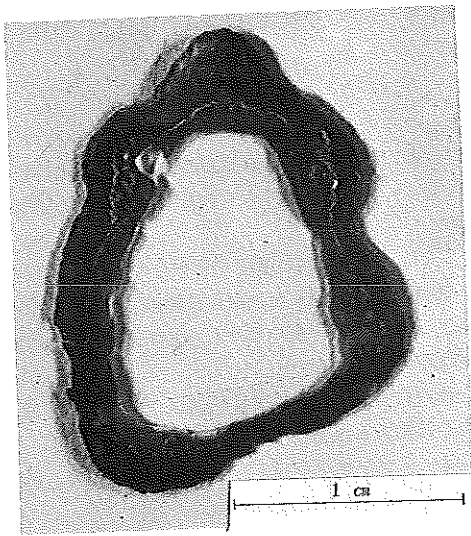


Photo.1 Photograph of Spinach Stem used to Autoradiography.

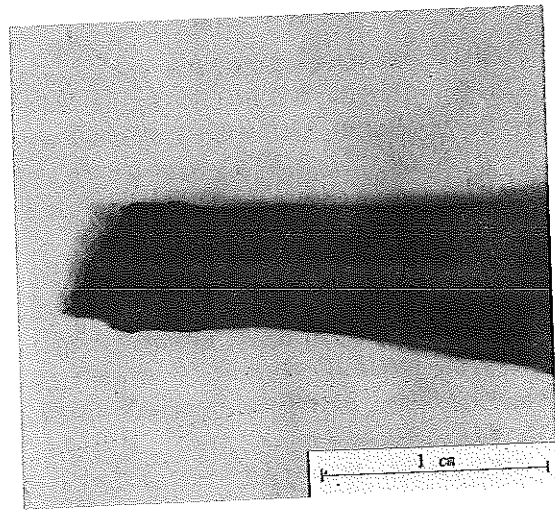


Photo.2 Photograph of Spinach Root used to Autoradiography.



Fig.2 Autoradiography of Spinach stem cut in round slices.



Fig.3 Autoradiography of Spinach root cut lengthway.

その他 Fig.2には、茎表面に一致する感光部も見られ、水洗によっても脱離しなかった核種によるものと考えられる。

また、同時に行った葉表面については、感光部が全くみられなかった。

さらに、同一試料について約4か月後に2回目のオートラジオグラフィーを行ったが、いずれの切片からも放射性核種による感光部は、見られなかった。

IV 考 察

1. ホウレン草体内の分布及び取込経路

^{131}I については葉部に多く分布していることが、明らかになった (Table 3)。これは単位重量当りの表面積が葉で大きいことや、ガス状の ^{131}I を吸収すると考えられる気孔が葉裏面に多く分布していること等によるものと考えられる。

一方、オートラジオグラフィーの結果、葉部表面には、全く感光部が見られなかったが、これは、あらかじめ試料を水洗したためとも考えられるが、別に実施した洗浄による ^{131}I の除去率は、20~30%と少なく⁴⁾、葉表面に付着した放射性核種は、比較的速やかに組織内部に吸収されているものと考えられる。

このことは、莖、根におけるオートラジオグラフィーで、感光部のほとんどが組織内部の維管束の切口部に分布していたことから推察される。

その他の核種、特に ^{137}Cs については、これとは逆に葉部で低い値となっている。これは、洗浄による除去率が、 ^{131}I に比べ ^{137}Cs で高いこと⁴⁾ から、葉表面に付着した ^{137}Cs が組織内部に吸収される前に洗浄によって除去されたものと考えられる。

2. オートラジオグラフィーに関与した核種

2 回目のオートラジオグラフィーでは、いずれの試料からも感光部が見られなかったのは、1 回目と 2 回目の116日間 (4ヶ月) にオートラジオグラフィーに関与したと見られる核種が、すでに物理的半減期によって減衰してしまったためと考えられる。2 回の実験の間 (116日) に、 ^{131}I は完全に減衰し ^{103}Ru は、約1/8に減衰するが、比較的半減期の長い ^{134}Cs 、 ^{137}Cs では、ほとんど減衰しないことから、1 回目のオートラジオグラフィーに関与した核種は、 ^{131}I と ^{103}Ru のいずれか又は両方であったと考えられる。

一方、使用したフィルムは一般用のフィルムであったことから、 γ 線による関与は無視でき、 β 線のみが関与したと考えられる。

また、試料とフィルムの間に塩化ビニリデン製のラップ (密度1.875 g/cm³、厚さ10 μm) を用いていることから、 β 線の飛程を考慮する必要がある。 β 線の放出確率から ^{131}I では0.606MeV (89.4%)、 ^{103}Ru では0.225MeV (87.1%) の最大エネルギーを持つ β 線について考慮すると、平均エネルギーを最大エネルギーの30%としてラップ中の飛程を求めると、 ^{131}I で21 μm とラップを通過するが、 ^{103}Ru では5.3 μm となり通過できない。試料中の濃度をも

考慮すると、ほとんどが ^{131}I によるものと考えられる。

V ま と め

チェルノブイル原子力発電所事故により汚染されたホウレン草について、各部位ごとの濃度分布測定及びそれらのオートラジオグラフィーを実施し、以下の様な結果を得た。

1. ^{131}I は、葉部に高い濃度で分布していた。
2. 葉部表面に付着した放射性核種は、速やかに内部に取り込まれ、葉表面のオートラジオグラフィーでは、感光部が見られない。
3. 体内に吸収された放射性核種は、茎維管束を通り体内を移動すること。
4. オートラジオグラフィーに関与した核種は、ほとんどが ^{131}I であると考えられる。

謝 辞

本研究に際し、ご協力下さいました東北大学非水研の大塚、相沢両氏に感謝致します。

文 献

- 1) 佐伯誠道編：「環境放射能」P. 110 (1984) ソフトサイエンス社
- 2) 中村栄一他：宮城原七年报，1，12 (1982)
石川陽一他：同 上 4，11 (1985)
- 3) 資料集：同 上 5，81 (1986)
- 4) 佐藤信俊他：宮城原七年报，5，65 (1986)

チェルノブイル事故関係論文

ホウレン草の前処理法と核種の存在率

佐藤信俊・石川陽一・菊地秀夫
佐藤健一・末永紳一・湯田和郎

I はじめに

チェルノブイル事故によって多量の放射性核種が大気中に放出され、我が県でも農作物をはじめ多くの環境試料を汚染した。

汚染した野菜に洗浄等の前処理をした場合どの程度の放射性核種が残存するかを知ることは、非常時におけるより適切な調理や、放射能測定時における前処理を行う際、どの様な処理を選択するかを検討する上で重要な課題である。

ここでは、野菜中に多量に検出された¹³¹Iについて、事故後に採取したホウレン草を試料として、幾つかの前処理法についてその残存率等を検討した。

II 実験方法

1. 試料

前処理法及び抽出法の実験に使用したホウレン草は、それぞれ5月6～8日、及び6月3日に採取したものでいずれも、石巻市内で栽培された露地野菜である。

2. 前処理法

同条件下で生育した試料を大量に採取し、土及び根を除いた後、5グループに分割した。分割された試料は、それぞれ次に示す処理 (Fig.1 参照) を行った後ホモジナイザー等で均一化し、Ge 半導体検出器によって核種分析した。

- ①未洗浄のまま。
- ②流水中で洗浄後脱水した。
- ③洗浄液 (家庭用洗剤[®] ママレモン) で洗浄後、さらに流水で洗浄し脱水した。
- ④②と同様に処理後沸とう水でゆで、流水に侵した後手でしぼって水分を除いた。
- ⑤未洗浄のまま約100℃で乾燥した。
- ⑥⑤を粉砕し核種分析した後、赤外線ランプで炭化、マッフル炉 (450℃以下) で灰化した。

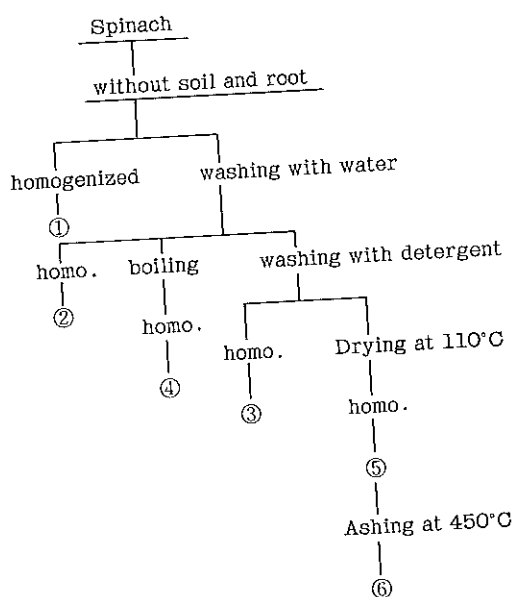


Fig.1 Pretreatment for Spinach.

3. 抽出法

¹³¹Iに汚染されたホウレン草の土及び根を除いた後、ミキサーで均一化し試料とした。

植物体内に取り込まれた¹³¹Iの化学形を知る目的で、Fig.2に示す操作で有機溶媒抽出を行い、それぞれ、Ge半導体検出器によって核種分析を行った。

まず3kgの均一化された試料を遠心分離及び吸引口過によって水溶性画分と、残渣に分離した。水溶性画分を500gずつ酸性、中性、塩基性抽出用試料に分割した。酸性試料は、6N HCl (試薬特級) 19mlでpH=2.0、中性試料はそのままpH=5.2、塩基性試料はNa₂CO₃ (試薬特級) 35gでpH=10.0としてから、酸性、中性試料については酢酸エチルで、塩基性試料はジクロロメタン

を用いて、分液ロートにより振とう抽出した。尚抽出用有機溶媒は、試料量と同量の500mlとした。

抽出液は、ロータリーエバポレータを用いて（アスピレータ減圧下、約30℃）適当量まで濃縮後、60mm φガラス製シャーレに移し溶媒を除いた後、そのまま Ge 半導体検出器によって核種分析を行った。

尚 Ge 半導体検出器による測定法については前報の通りである^{1),2)}。

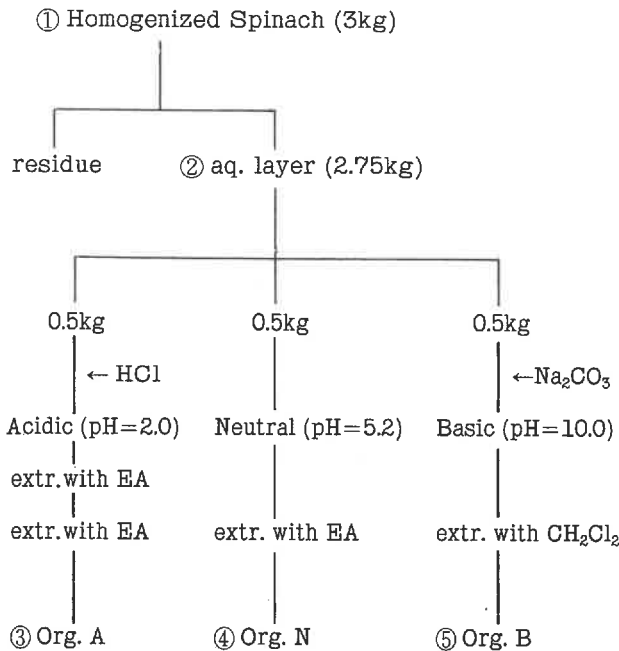


Fig. 2 Extracting Procedure of ¹³¹I from Spinach.

III 結 果

1. 前処理法による ¹³¹I の残存率

未処理のホウレン草中 ¹³¹I 濃度を100% とした種々の前処理後の ¹³¹I 残存率を Table 1 に示した。

②の水洗と、③の洗浄剤を使用した洗浄では ¹³¹I の残存率に差は見られず、65~83%であった。また、④のゆでた場合には、残存率が26%で70%以上がゆで汁へ溶出していることが分る。

一方、⑤の乾燥、⑥の灰化処理では、90%以上の残存率が得られた。

Table 1 Residual Rate of Nuclides in Spinach after several Pretreatments.

Pretreatment	residual rate	
	¹³¹ I	¹³⁷ Cs
① nothing	100%	100%
② washing (water)	65~83%	32%
③ washing (detergent and water)	70~77%	<18%
④ boiling	26%	< 8%
⑤ drying	93%	—
⑥ ashing	98%	77

2. 抽出処理による ¹³¹I の挙動

Fig. 2 の抽出操作に従って得た各画分中の ¹³¹I の割合は、Table 2 の通りである。

測定時間や試料量から十分な検出感度での測定が出来なかったが、ほとんどが (72%) ②の水溶性画分に移行した。

この水溶性画分を酸性、中性、塩基性下で有機溶媒抽出した結果、Table 2 の③~⑤に示す様に、有機溶媒層への移行は、いずれも10%を越えることはなかった。

3. ¹³⁷Cs の残存率

Table 1 から、灰化処理では高い残存率となったが、水洗やゆでによって ¹³⁷Cs の多くは、除去され、水洗での残存率は32%に留っており、¹³¹I と大きな違いが見られた。

Table. 2 Rate of Residual ¹³¹I in several Fraction by Extracting Method.

Fraction	¹³¹ I (pCi/kg-fresh)	Rate of Residual ¹³¹ I
① Whole	320±30	100%
② aq. layer	230±50	72%
③ Org. A	19±5	6%
④ Org. N	<30 *	<9%
⑤ Org. B	<21 *	<6%

* less than detection limit.

IV 考 察

ホウレン草に付着した¹³¹Iは、水洗等の処理では、20~30%しか除去されないが、ゆでによる「お浸し」では、約70%が除去された。この結果は、試料組織をミキサーで破壊した場合に、約70%が水溶性画分に抽出されたことと一致している。

すなわち、ホウレン草に付着した¹³¹Iは、すみやかに、植物体内に吸収され、水洗等で除去される部分が少なくそのほとんどが組織内部に移行していることが分る。

以上のことは、今回の事故時に別に実施したオートラジオグラフィーの結果²⁾とも一致した結論である。

また、住谷ら³⁾は、ヨウ素をI₂及びCH₃Iの化学形で気体として葉から吸収させた場合とI⁻として根から吸収させた場合のホウレン草を用いて、「お浸し」にした場合のヨウ素の除去率について検討しているが、I⁻及びCH₃Iの場合に、60~70%、I₂の場合に30%が除去されたと報告しており、I⁻及びCH₃Iの場合の結果に近い。

今回の事故時の¹³¹Iは、70~80%がガス状のものであったとの報告⁴⁾とを合わせて考慮すると、そのガス状¹³¹Iは、ほとんどがCH₃Iであったものと推定される。

一方、水溶性画分からの有機溶媒抽出では、酸性で6%が有機層に抽出されたが、その他の液性では、検出限界値以下であったため、十分な考察は出来なかった。

また、¹³⁷Csは¹³¹Iと比べ洗浄等による除去率が高いことが判った。これは、Iがその化学的な性質から、上述した様な幾つかの化学形をとるのに対し、Csは常にCs⁺イオンの形で環境中に存在すること、また、植物体内への吸収を考えた時、主に粒子状物質と共に葉表面等へ付着すると考えられることから、比較的容易に除去されるものと考えられる。

文 献

- 1) 中村栄一：宮城原七年報，**I**，12 (1982)
中村栄一：同 上 ，**I**，24 (1982)
- 2) 佐藤信俊他：同 上 ，**5**，61 (1986)
- 3) 佐伯誠道編「環境放射能」P. 283 (1984)
ソフトサイエンス社
住谷みさ子他：第26回日本放射線影響学会予稿集 (1983) 京都。
- 4) 青山道夫他：第30回放射化学討論会予稿集 (1986) 仙台。