

宮城県環境放射線監視センター一年報

第 2 卷

平成 28 年

ANNUAL REPORT

OF

MIYAGI PREFECTURE ENVIRONMENTAL RADIATION

MONITORING CENTER

VOL.2 (2016)

宮城県環境放射線監視センター

はじめに

本県の東北電力㈱女川原子力発電所を対象とした環境放射線・放射能の測定・監視体制は、昭和56年度に女川町内に「宮城県原子力センター」を設置して始められました。

そして、平成23年3月に発生した東日本大震災及び東京電力㈱福島第一原子力発電所事故の影響により新たな測定・監視体制へ移行することになりました。

津波による原子力センターの全壊、福島第一原発事故による本県への影響により、女川原子力発電所周辺地域の測定・監視に加え、県内全域、特に県南地域の環境放射線等の測定・監視が新たに加わりました。

このような状況を受け、平成27年4月に、女川町内から仙台市宮城野区内に場所を移し、「宮城県原子力センター」から「宮城県環境放射線監視センター」へ名称を変更し、新たにスタートを切った当センターも、まもなく丸3年を経過しようとしています。

女川原子力発電所は、全ての号機で、現在、定期点検を継続して実施している状況です。平成25年12月に申請された同2号機の新規制基準適合性審査については、国による審査が継続して実施されている状況です。

また、福島第一原子力発電所事故の影響で上昇した県内の空間放射線量等は、事故後約7年が経過し、一部を除き、概ね同事故前のレベルまで低下してきています。

このような状況の中で、当センターでは、測定機器等の再整備を進め、震災前の測定・監視体制をほぼ取り戻すとともに、平成27、28年度の2か年で、女川原子力発電所から30km圏内に簡易電子線量計を新たに設置するなど、原子力災害時に備えたモニタリング体制をさらに強化しています。

今後、津波で全壊したモニタリングステーション4局を早期に復旧させることが最優先の課題となっています。

このたび、平成28年度に実施した当センターの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2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30年3月

宮城県環境放射線監視センター
所長 安藤孝志

目 次

はじめに

第2巻(2016)

I 宮城県環境放射線監視センター概要	1
II 論文	
1 宮城県沿岸のある種の海生生物中に検出される特異的な放射性核種 (^{110m}Ag , ^{131}I) 濃度の経年変動	7
石川陽一、高群富貴、畠山紀子、新井康史、高橋正人	
III 技術報告	
1 塚浜可搬 MP 局で発生した空間放射線量率の変動について	15
木村昭裕、石幡茜、木村幸由、伊藤節男、石川陽一、高橋正人、大倉靖	
2 NaI(Tl)シンチレーション検出器の鉛遮へい取り外しについて	20
石幡茜、木村昭裕、石川陽一、高橋正人、大倉靖	
3 モニタリングステーション再建予定地における線量率測定結果	27
石幡茜、木村昭裕、石川陽一、高橋正人、大倉靖	
IV 資 料	
資料 1 宮城県における環境放射能核種分析結果	31
(1) Ge半導体検出器による分析結果	34
(2) Sr-90分析結果	46
(3) H-3分析結果	46
(4) 原子力規制庁委託調査結果	47
資料 2 環境試料の放射化学分析結果	51
資料 3 簡易電子線量計の設置と運用について	56
資料 4 移動式高線量測定システムについて	61
資料 5 Sr-90のミルクングの際にFe量が計数値に及ぼす影響について	63
資料 6 海水中のSr-90測定用大型カラムの製作について	64
資料 7 ICP発光分析におけるイオン化干渉抑制剤について	65

C o n t e n t s

Preface

I Outline of Environmental Radioactivity Research Institute of Miyagi	1
--	---

II Paper

1 Temporal variation of specific radionuclide (^{110m}Ag, ¹³¹I) concentrations in certain marine organisms off the coast of Miyagi, Japan	7
<i>Yoichi Ishikawa, Tomitaka Takamura, Noriko Hatakeyama, Yasufumi Arai, Masato Takahashi</i>	

III Technical Papers

1 A phenomenon of abnormal dose rate increases in the Tsukahama radiation monitoring post	15
<i>Akihiro Kimura, Akane Ishihata, Yokiyoshi Kimura, Setsuo Ito, Yoichi Ishikawa, Masato Takahashi, Yasushi Ookura</i>	
2 Investigation of removal effects of concave lead shields for NaI(Tl) detectors	20
<i>Akane Ishihata, Akihiro Kimura, Yoichi Ishikawa, Masato Takahashi, Yasushi Ookura</i>	
3 Dose rate investigations on the ground where construction of new monitoring stations are scheduled	27
<i>Akane Ishihata, Akihiro Kimura, Yoichi Ishikawa, Masato Takahashi, Yasushi Ookura</i>	

IV Data

1 Results of Radionuclide Analysis of Environmental Samples	31
(1) Results of Gamma-ray Spectrometry with Ge-detectors.	34
(2) Results of Sr-90 Analysis	46
(3) Results of H-3 Analysis	46
(4) Fallout Survey Data in Miyagi Prefecture	47
2 Results of Radiochemical Analysis of Environmental Samples	51
3 Setting and use of small-sized electronic dosimeters	56
4 A mobile type high dosimetry system	61
5 Influence of iron amounts to β-counts in Sr-90 milking	63
6 Assembling a large column for Sr-90 analysis of seawater	64
7 Ionization interference suppressants in ICP-OES analysis	65

3 決 算 (平成28年度歳入歳出決算書)

(1) 歳 入 単位：円 (平成29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29年5月31日現在)

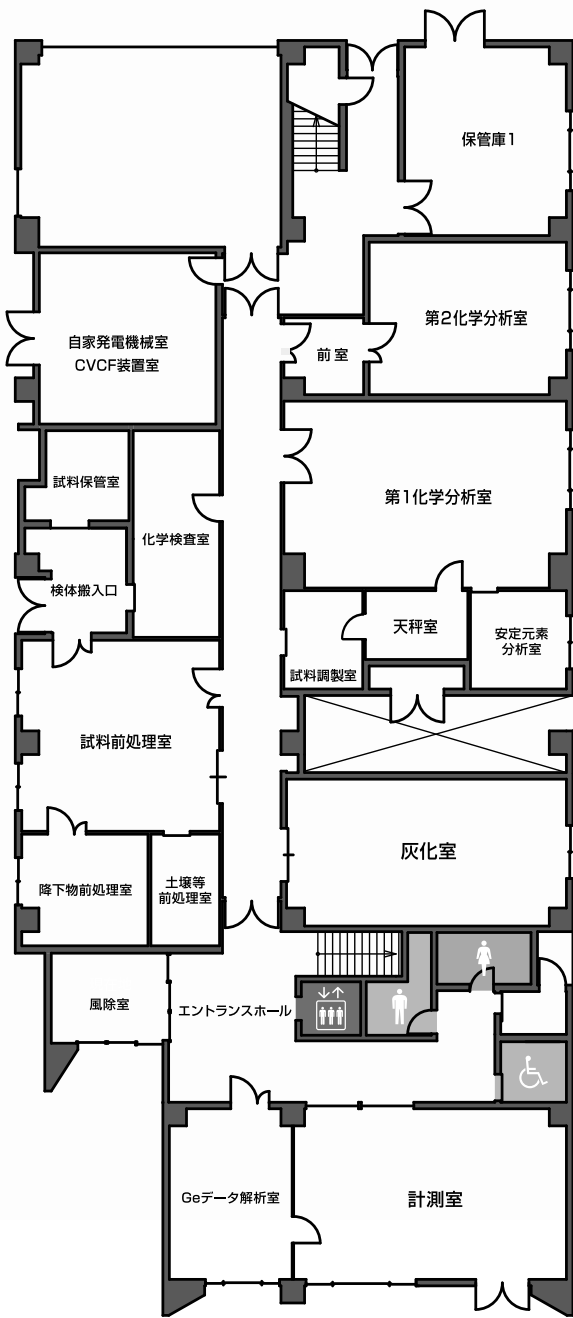
科 目	決 算 額	摘 要
(通常予算)		
02 総務費	176,240,652	
01 総務管理費	2,860	
02 人事管理費	2,860	
10 生活環境費	176,237,792	
01 生活環境総務費	369,630	
07 環境放射能監視測定費	175,868,162	環境放射能監視測定事業
合 計	176,240,652	

4 主要設備・機器（重要物品）

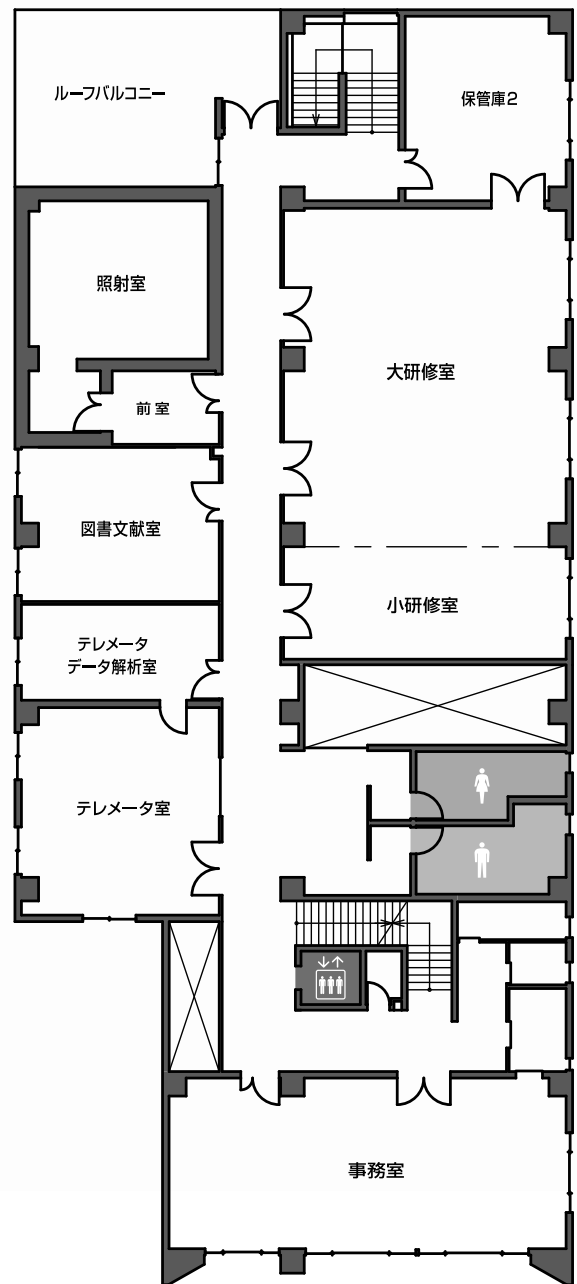
2017年(平成29年)3月31日現在

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	日立アロカメテック(株)・DMS-R41-21087	1台	H12	予備機
	2	電離箱式放射線監視装置	日立アロカメテック(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)	日立アロカメテック(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・イージークラウドシステム(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-102MS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・イージークラウドシステム(株)・Trans-SPEC-DX-100T 他	1台	H23	
	13	固定型モニタリングポスト	日立アロカメテック(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・アクトジブ(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	日立アロカメテック(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	日立アロカメテック(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	日立アロカメテック(株)・LBC-4202B	1台	H26	
	24	ハンドフットクロズモニタ	日立アロカメテック(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・アクトジブ(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	原子力防災用車輛	トヨタアルファードハイブリッド	1台	H24	

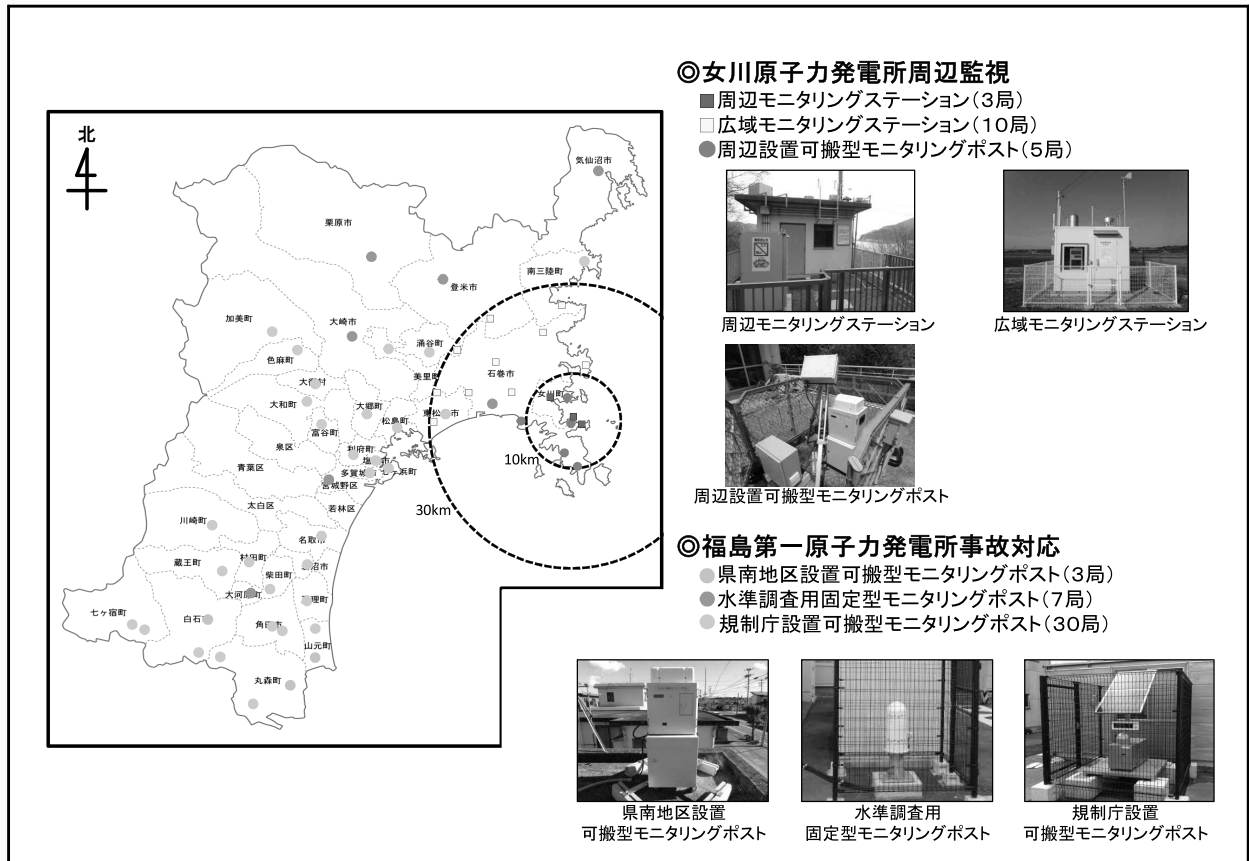


1F



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

宮城県沿岸のある種の海生生物中に検出される特異的な 放射性核種 (^{110m}Ag , ^{131}I) 濃度の経年変動

石川陽一、高群富貴、畠山紀子、新井康史*、高橋正人

宮城県沿岸の海生生物に検出される特異的な人工放射性核種 (^{110m}Ag と ^{131}I) の濃度変動や分布の傾向からそれらの環境動態の検討や起源推定を行った。1980年代以降、マガキ(二枚貝)から ^{137}Cs のほかにしばしば ^{110m}Ag (H. L. = 0.684年) が検出された。 ^{110m}Ag の値は約 0.01–数 Bq/kg (生重量) であった。検出時期と変動傾向から、 ^{110m}Ag の起源は第26回中国核実験、チェルノブイリ事故及び福島第一原発事故と考えられた。また ^{110m}Ag 濃度の減衰傾向から、マガキにおける生態学的半減期は約 0.35–0.56年、海水における移流拡散半減期(物理学的半減期補正後)は 0.7–3.2年と試算された。一方、2006年以降、以前よりも広範囲にアラメ(褐藻)中の ^{131}I (H. L. = 8.0日) のモニタリングを行っているが、最近の2016年においても極低濃度の ^{131}I が継続的に検出されている。傾向としては女川原子力発電所から 10 km 以上離れた比較対照海域で検出頻度が高かった。調査した全海域において、 ^{131}I の値は、福島第一原発事故直後の例外値 1.3 Bq/kg (生重量) を除けば、約 0.07–0.5 Bq/kg (生重量) の範囲にあった。付近の女川原子力発電所には異常がないことと長年変動が少ないという ^{131}I の検出傾向から、その原因としては継続的な放出源が考えられ、国内の ^{131}I の使用目的や使用量、環境における分布や挙動との関連を考察した。なお、上述の生物に検出された ^{110m}Ag や ^{131}I の濃度は天然の ^{40}K 濃度(マガキで約 60–90 Bq/kg 生、アラメで約 200–500 Bq/kg 生)に比べて極めて低く、人体に対する健康影響の心配のないレベルであった。

1 はじめに

宮城県では1981年から東北電力女川原子力発電所(ONPS)周辺で環境放射能モニタリングを行っているが¹⁾、かつて水産物中に検出されたものの当初は起源が特定できずに話題となった核種がある。養殖カキとして生産量の多いマガキ(*Crassostrea gigas*)中の ^{110m}Ag (H. L. = 250日または0.684年)、及び指標海産物としての褐藻のアラメ(*Eisenia bicyclis*)中の ^{131}I (H. L. = 8.0日)である。

^{110m}Ag はまれにホヤやアワビ等からも検出されるが²⁾、継続的には検出されない。比較的継続的に検出されるのはマガキで、著者らは1980年代の ^{110m}Ag の濃度変動傾向と推定検出原因について報告した³⁾。その後約20年余り検出されていなかったが、2011年には明らかに福島第一原子力発電所(FDNPP)事故起因の ^{110m}Ag がマガキに検出されたことから¹⁾、その後の濃度変動傾向に興味を持たれた。

一方、海藻の ^{131}I については、当初、ONPS 平常運転時の放出可能性は極めて低いため測定対象ではなく、 ^{137}Cs 等を対象として灰化試料で放射能測定を行っていたため、しばらくの間 ^{131}I は検出されなかった。しかし、大気中に多量の ^{131}I が放出された1986年のチェルノブイリ事故の直後は、緊急時に準じて生又は乾燥試料を用いた迅速測定法により ^{131}I も測定した結果、最大で約 240 Bq/kg (生重量) の値が検出された¹⁾。その数カ月後以降はまた平常通り灰化試料で測定を行うようになったため、約20年間、海藻に ^{131}I が検出されることはなかった。しかし、2006年に東北電力が平常時モニタリングとは異なる目的でONPS前で採取・測定した乾燥アラメから、偶然、ONPS 起因とは考えにくい微量の ^{131}I が検出された。アラメ以外の海藻からはほとんど検出されなかった⁴⁾。それを契機にモニタリングが強化され、年に4回、発電所から10 km 以上離れた比較対照地点(3カ所)も含めて6カ所でアラメの測定が行われるようになった。その後も同程度の濃度の ^{131}I が最近でも検出されている¹⁾。Moritaら⁵⁾は主に2008年に、全国的規模で褐藻類中の ^{131}I 濃度を調べ、国内の下水汚泥や水道水等の ^{131}I 検出及び医療分野における ^{131}I 使用形態との関連について考察した。しかし、その後、国内ではFDNPP 事故起因以外の国内の海藻中 ^{131}I に関する報告はみられない。

* 現在、宮城県原子力安全対策課

宮城県におけるアラメ中の ^{131}I について、2006 年以來約 10 年間余のデータが蓄積したため、濃度変動傾向等を検討し、整理をする時期に来ているものと考えられる。

以上の背景から、宮城県における長期の海洋環境放射能モニタリング上の課題である海生生物中の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と ^{131}I に着目し、濃度変動や分布の解析によってそれらの環境動態または起源に関する何らかの知見を得ることが本論文の目的である。

2 方法

図 1 にマガキとアラメの採取地点を示す。a-f はアラメの採取地点を示し、それらのうち a-c は女川地域 (d-f 地点) に対する比較対照地点である。a 地点 (追波湾) は北上川、また b 地点 (石巻湾) は鳴瀬川の河口に近い。g-k は女川周辺のマガキの採取地点を示す。マガキは、ほとんどの場合、沿岸海洋にて筏式垂下法で養殖され剥き身にされたものを購入したが、一部の地点 (k 地点) では 2011 年 3 月の東日本大震災による被害のため、数年の間、天然のものを購入した。アラメ試料は沿岸海域 (水深 2 ~ 3m の岩礁) で自生しているものを採取した。震災後数カ月間、被害等のため十分なモニタリングができなかったが、同年 7 月からアラメ中 ^{131}I の測定が一部の地点で再開され、その後全地点で測定が行われるようになった¹⁾。マガキは、約 110°C で乾燥後、約 450°C で灰化して数十 g を秤量して U8 型プラスチック容器に充填した (生換算数百 g から約 1 kg 程度)。アラメは、ほとんどの場合生のままミキサーで粉砕し、生試料約 1.5-2 kg を 2L マリネリピーカーに充填後秤量し、すぐに放射能測定を行った。放射能測定は Ge 半導体検出器 (相対効率約 25-55%) により、測定時間は 1 試料当たり通常 80,000 秒とした。解析ソフトウェアはセイコー EG&G 社等の市販のものを使用し、検出効率は日本アイソトープ協会から購入した標準試料を用いて求めた。2011 年以降のマガキ、及び 2006 年以降のアラメの約半数程度の測定値には東北電力による値も含まれる¹⁾。測定誤差については、後述する図 1 のマガキ中 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と ^{137}Cs 及び 図 2 のアラメ中 ^{131}I の濃度推移グラフにおいて、典型的な測定値とともに計数誤差に由来する標準偏差を示した。

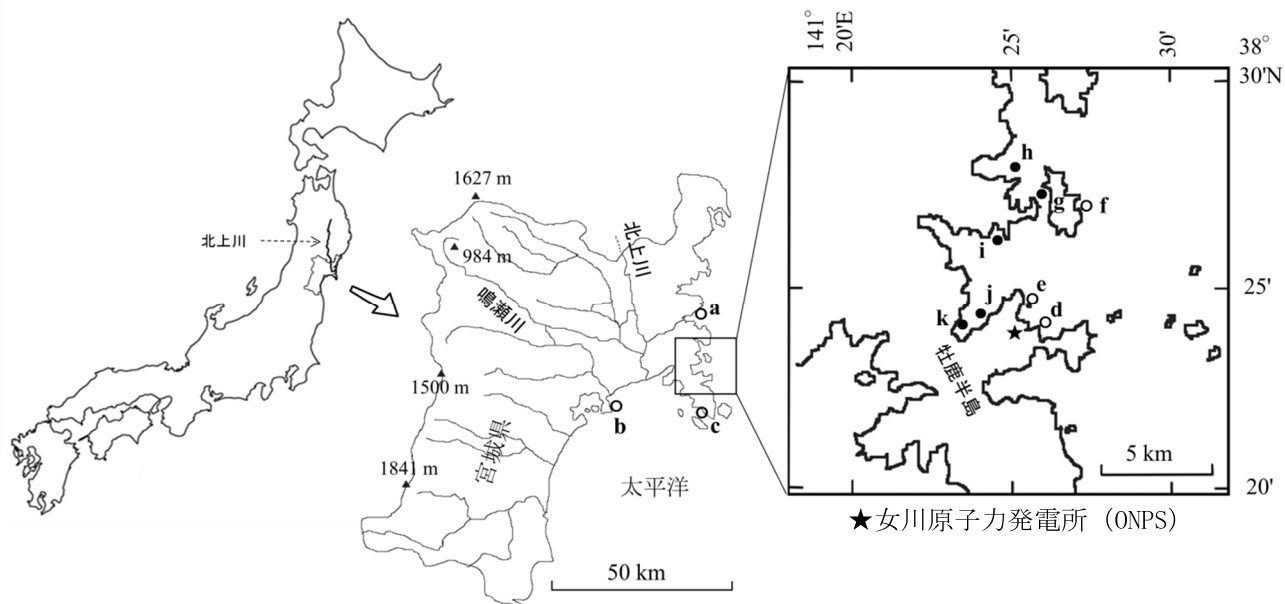


図 1 試料採取地点

○ a-f: アラメ ● g-k: マガキ

3 結果及び考察

3.1 マガキ中の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と ^{137}Cs

図 2 に 1981 年以降のマガキ中の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と ^{137}Cs 濃度の経年変動を示す。 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の値は約 0.01-数 Bq/kg (生

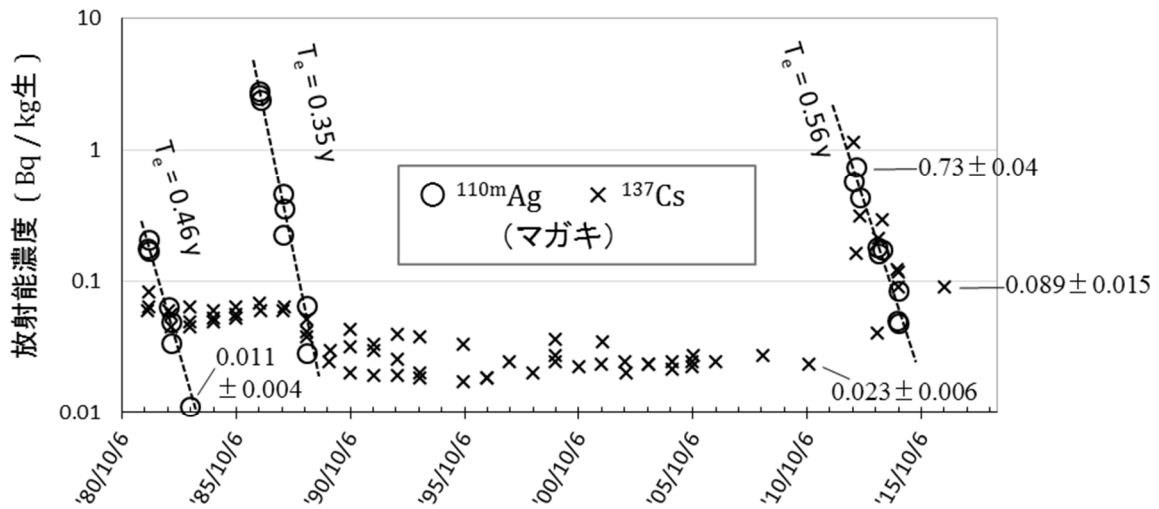


図2 宮城県沿岸における1981-2016年のマガキ中 ^{110m}Ag と ^{137}Cs 濃度の経時変動。
 T_e は生態学的半減期を表す。幾つかの典型的な値を計数の変動に基づく標準偏差とともに示す。

重量)であった。これまで、 ^{110m}Ag は1980年の第26回中国核実験、1986年のチェルノブイリ事故及び2011年のFDNPP事故後の3回の時期に検出され、各々の時期の2-3年間の間にほぼ指数関数的に減衰した。 ^{137}Cs 濃度は、FDNPP事故後に ^{110m}Ag と同様に比較的速やかに減衰したが、中国核実験とチェルノブイリ事故後にはあまり大きく変動しなかった(後述)。図2に示す ^{110m}Ag の個々のデータはそれぞれ採取時期が異なるため、エサのプランクトンを通じて間接的にまたは環境水中の濃度を直接反映しているものと解釈される^{3,6)}。濃度の見かけの半減期(生態学的半減期)は約0.35-0.56年であり、物理学的半減期(0.684年)に比べて比較的早く減衰した。

^{110m}Ag の放出源について考えてみると、中国核実験時には大気や降下物に ^{110m}Ag は直接検出されていないが⁷⁾、半減期が比較的短いことを考えるとほかの原因は考えにくい。マガキに対する海水からの銀の濃縮係数は 10^5 オーダーと見積もられ³⁾、かなり高い。そのため陸上でフォールアウトとして検出されていなくともマガキに濃縮された結果検出されたものと考えられる。一方、チェルノブイリ事故とFDNPP事故時には大気や降下物試料からも検出されたので^{8,9)}、明らかにこれらが放出源であると考えられる。

次いで、上記のデータを用いて、海水中の放射性銀の移流拡散に基づく減衰率を試算する。マガキ中 ^{110m}Ag 濃度の見かけの半減期(生態学的半減期) T_e 、 ^{110m}Ag の物理学的半減期 T_p 、及び海水中 ^{110m}Ag の移流拡散による減衰半減期 T_d の間には、次の関係式が成り立つ(付録I)。

$$T_d = T_p T_e / (T_p - T_e) \quad (1)$$

ここで、各々 $T_d = \ln 2 / \lambda_d$ 、 $T_p = \ln 2 / \lambda_p$ 、及び $T_e = \ln 2 / \lambda_e$ である。 λ_d は移流拡散に基づく減衰率、 λ_p は ^{110m}Ag の壊変定数、及び λ_e は $\lambda_e = \lambda_p + \lambda_d$ で表される見かけの半減期(生態学的半減期)による減衰率を表す。(1)式において、 T_p は既知であるから、図1に示すマガキ中 ^{110m}Ag 濃度の各々の時期ごとに指数関数回帰式によって見かけの半減期 T_e を求めると、(1)式から海水中の放射性銀の移流拡散による半減期が求められる。それらの値は1981-83年では1.4年、1986-88年では0.7年、2012-14年では3.2年であった。

上述の海水中放射性銀の移流拡散による半減期が比較的短い理由は以下のように考えられる。通常、海水中に ^{110m}Ag は存在していないため、各々のイベントによって ^{110m}Ag が大気圏を經由してフォールアウトとして海面に降下後、比較的速やかに海水の鉛直または水平方向に混合され、そのため比較的短い半減期で濃度が減衰したものと考えられる(図2)。ここで、 ^{137}Cs との傾向の違いについて述べる。1980年の中国核実験と1986年のチェルノブイリ事故時の ^{137}Cs 降下量は、例えばつくば市(気象研究所)においては1980年、1981年及び1986年において各々7.4、24.1及び135 Bq/m²であったが¹⁰⁾、1958-1979年の累積降下量

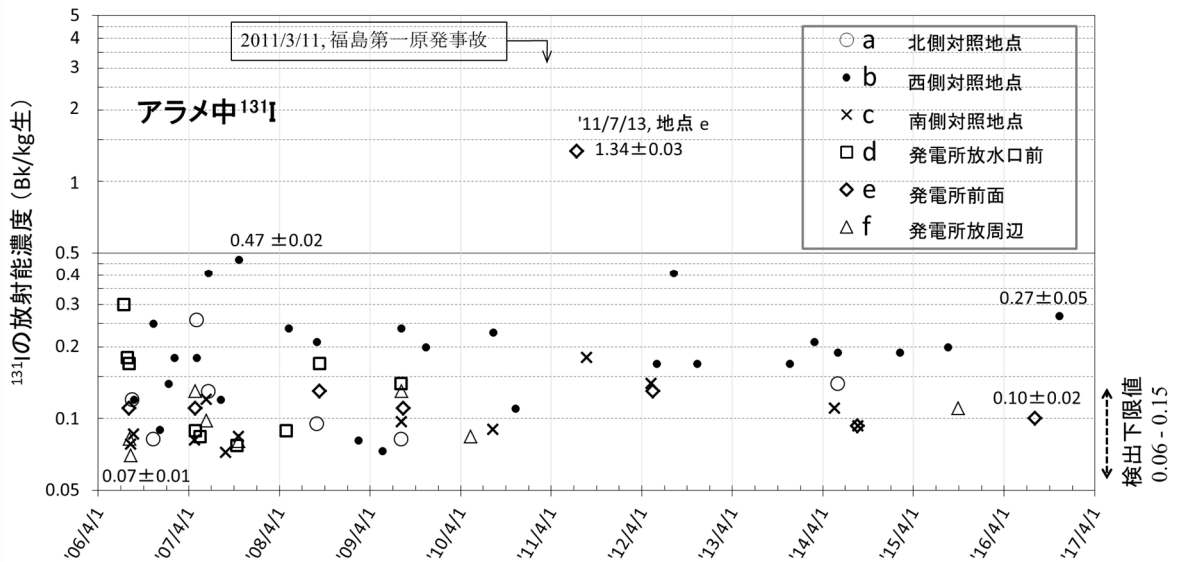


図3 宮城県沿岸における2006–2016年のアラメ中¹³¹I濃度の経時変動。
幾つかの典型的な値を計数の変動に基づく標準偏差とともに示す。

約5642 Bq/m² (文献10)から積算)に比べれば少なかった。そのため、Inomataら¹¹⁾によれば、西部北太平洋における表層(0–10 m)海水中の¹³⁷Cs濃度は大きく変化しなかった。一方、FDNPP事故によって宮城県付近にも多量の¹³⁷Csがもたらされ、女川町において2011年3月に約1万 Bq/m²の降下量が観測された¹⁾。このことによって表層海水中の濃度が一時的に高くなったものの¹²⁾、遠方や深層海水との濃度差が大きかったため比較的速やかに混合されて減り¹³⁾、そのためマガキ中の¹³⁷Cs濃度も比較的短い半減期で減衰したものと考えられる。

3.2 アラメ中の¹³¹I

図3に、2006年以降のアラメ中¹³¹I濃度の変動を示す。図中に検出下限値の変動幅(約0.06–0.15 Bq/kg)を示した。検出された最小値は2006年の地点fにおける約0.07 Bq/kg(生重量)、またFDNPP事故前の最大値は2007年の地点bにおける約0.47 Bq/kg(生重量)で、その後約10年間、濃度は1回の例外を除けばそれ以下であり、大きく変動しなかった。¹³¹Iの検出頻度が高ったのはこのb地点で、ほかの地点では検出頻度が低かった。震災前はONPS付近でも時々検出されたが、これらが当の発電所起因でないことは様々な角度から検討済みである⁴⁾。なお、例外的な高めの値として、同上事故後、ONPS前面のe地点で2011年7月13日に約1.3 Bq/kg(生重量)の値が観測された(図3)。この時期は震災のために測定体制が整っておらず、同じ時期にアラメが採取されたのはこの地点のみである。当の発電所は同年3月11日の東日本大震災時に自動停止後安定しており、海洋に対する¹³¹Iの放出はなかった^{1,14)}。一方で、この付近はFDNPP1号機の水素爆発時の放射性プルームの影響を強く受け¹⁵⁾、ガンマ線線量率が著しく上昇したことから¹⁶⁾、相当な量の¹³¹Iが付近に到達したと考えられる。したがって、7月13日にアラメに検出された¹³¹Iはその影響が残っていたためと推定される。

環境に影響を与える¹³¹Iの放出源について考えてみる。国内の原子力発電所の平常操業時に継続的に¹³¹Iが環境に放出されることはない^{17,18)}。一方、国内で医療用¹³¹Iの需要は多い。日本アイソトープ協会の資料¹⁹⁾によると、医薬品としての年間のin vivo供給量は2006–2011年に約11–14 TBq、2012–2016年は約15 TBq前後と、大きな増減はなかった。核医学治療施設数は宮城県も含めて全国に多数ある²⁰⁾。¹³¹I使用については退出基準が設けられており²¹⁾、日本核医学会のガイドライン²²⁾によれば、1回当たりの投与量は甲状腺癌で3.7–7.4 GBq、甲状腺機能亢進症では500 MBq以下程度(患者により異なる)とされているが、体内残留放射能が500 MBq以下で退出・帰宅が可能とされている。¹³¹Iは代謝によっても数日程度の半減期

で排泄される（条件にもよる）。 ^{131}I は法令等にしがたって扱われるが、市街地の排水はふつう下水処理場で処理される。後述のように、実際に下水処理場の汚泥等に ^{131}I が検出されており、かつ水道水にもわずかに検出される場合があることから、一部は環境に流出するものと推定される。チェルノブイリ事故直後と FDNPP 事故後以外の期間の国内（宮城県を除く）で、以前から都市環境の下水処理施設における ^{131}I を含む医療由来放射性核種の検出報告がある。例えば千坂ら²³⁾と鈴木ら²⁴⁾は、それぞれ 1975-76 年及び 1983-94 年の東京都内の活性汚泥中に約 200-330 Bq/kg（乾燥）及び 2-730 Bq/kg（乾燥）の ^{131}I を検出している。国の環境放射能水準調査においても、2006 年以降に大阪府等の幾つかの地域で水道水、下水汚泥等及びワカメからの検出報告がある²⁵⁾。

女川湾（d、e、f 地点）のアラメにまれに ^{131}I が検出される原因は以下のように推定される（FDNPP 事故直後の高めの値を除く）。 ^{131}I が検出された時期に付近の原子力発電所（ONPS）に異常はなかったため、ほかに理由があると考えられる。女川湾に大きな流入河川はないが約 10km 以上北方の追波湾（石巻市）に北上川が流入している（図 1 地点 a 近傍）。この河口付近の沿岸には南下流が観測される場合があり²⁶⁾、北上川増水時にはときに女川湾で塩分濃度が低めになる現象が観測される²⁷⁾。北上川流域内には複数の核医学治療施設があるため²⁰⁾、それらあるいは患者由来の排水が下水処理場を経由する等の後、多量の河川水と海水で希釈されながらも女川湾に一部達する可能性が考えられる。褐藻類のなかでもアラメはヨウ素の濃縮係数が約 1 万倍と高く^{4,28)}、そのためアラメ中の ^{131}I 濃度が検出可能レベルに達するものと推定される。一方、アラメ中に頻繁に ^{131}I が検出される b 地点については鳴瀬川の河口から数 km 以内と近いと、こうした影響を受けやすいものと考えられる。

4 まとめ

1981 年以降の女川原子力発電所（ONPS）周辺のモニタリングにおいて、宮城県沿岸海域のマガキから ^{137}Cs のほかに約 0.01-数 Bq/kg（生重量）の ^{110m}Ag が検出された。検出時期と変動傾向から、その起源は第 26 回中国核実験、チェルノブイリ事故及び福島第一原子力発電所（FDNPP）事故と考えられた。マガキ中 ^{110m}Ag 濃度の生態学的半減期は約 0.35-0.56 年の範囲にあり、これらから試算した海水中の ^{110m}Ag の移流拡散に基づく半減期は約 0.7-3.2 年の範囲にあった。

褐藻のアラメの ^{131}I モニタリングを強化した 2006 年以降最近まで、約 0.07-0.5 Bq/kg（生重量）の範囲の ^{131}I が継続的に検出された（FDNPP 事故直後の例外を除く）。ONPS 付近でも時々検出されたが、当発電所に異常はなかったためそれが原因とは考えられなかった。そこで、近年国内での使用量が多い核医学分野における ^{131}I の可能性を検討した。 ^{131}I は 2006-2016 年に年間約 11-15 TBq の範囲で使われており、法令等にしがたって適正に扱われている。しかし全量が患者体内で減衰するわけではなく一部が代謝によって排泄される。そのため、その後排水系統、下水処理施設、河川等を通じて沿岸海水表層へと希釈されながら拡がり、ヨウ素の濃縮係数が高いアラメに濃縮されてわずかに検出されたのではないかと推定される。ただし、ヨウ素の環境挙動やアラメに対する濃縮メカニズムについては今後更に検討が必要である。 ^{131}I が下水処理施設まで達していることは他の研究者の報告のほか、別のデータからも支持される。FDNPP 事故以前は、まれに研究目的で行われる以外に、継続的に下水処理施設における放射能測定が行われることはなかったが、建設資材等への汚泥の再利用のため、事故後は宮城県も含めた広域で放射能測定が行われるようになった²⁹⁾。その結果、下水汚泥中に、最近でも頻繁に ^{131}I が検出されている。付図 1 と付図 2（付録 II）は、それぞれ国土交通省の公開データ²⁹⁾を用いて宮城県と全国における下水汚泥中の ^{131}I と ^{137}Cs 濃度をプロットしたものである。宮城県の ^{131}I 濃度は数 Bq/kg から数十 Bq/kg（湿重量）、また全国の濃度は約 1 Bq/kg から数千 Bq/kg（湿重量）程度であった。 ^{131}I は半減期が約 8 日と短いと、それによる外部被ばく等、放射線安全上の問題はない。

なお、マガキとアラメに検出された ^{110m}Ag や ^{131}I の濃度についても、これらに含まれる天然の ^{40}K の濃度（湿重量当たりそれぞれ約 60-90 Bq/kg と約 300-500 Bq/kg）よりも非常に低く、人体影響等の心配のないレベルである。

謝 辞

著者らと同様に女川原子力発電所周辺において環境放射能モニタリングを行い、「女川原子力発電所環境放射能調査結果」の報告書に記載する放射能データを提供していただいた東北電力株式会社の関係者に厚く感謝致します。水研機構中央水産研究所の森田貴己博士には英文要旨の校閲をしていただいたほか、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, 女川原子力発電所環境放射能調査結果, 1981-2016 年度分.
- 2) 宮城県原子力センター年報, 5, 193-195, 1986.
- 3) Y. Ishikawa et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 158, 31-40, 1992.
- 4) 木村ほか, 宮城県原子力センター年報, 24, 14-25, 2006.
- 5) T. Morita et al., Sci. Total Environ., 408, 3443-3447, 2010.
- 6) J. G. Sanders et al., Sci. Total Environ., 97-98, 761-769, 1990.
- 7) 笠井篤ほか, 科学技術庁, 第 24 回環境放射能調査研究成果論文抄録集 (昭和 56 年度), 71-74, 1980.
- 8) 石川陽一ほか, 宮城県原子力センター年報, 5, 48-51, 1986.
- 9) 宮城県原子力センター年報, 29, 52, 2011.
- 10) 気象研究所技術報告, 第 36 号, 15-16, 1996.
- 11) Y. Inomata et al., J. Environ., Monit., 11, 116-125, 2009.
- 12) 磯野良介ほか, 海生研研報, 第 20 号, 57-65, 2015.
- 13) 石川陽一ほか, KEK Proceedings, 2016-8, 263-268, 2016.
- 14) 宮城県, 平成 23 年度(第 2 四半期) 女川原子力発電所環境放射能及び温排水調査結果, p. 73, 2012.
- 15) 鶴田治雄, 中島映至, 地球化学, 46, 99-111, 2012.
- 16) 宮城県, 平成 22 年度(第 4 四半期) 女川原子力発電所環境放射能及び温排水調査結果, p. 78-79, 2012.
- 17) (旧)原子力安全基盤機構, 原子力施設運転管理年報, 平成 19 年(2007)-平成 25 年(2013)版.
- 18) ニューシア、原子力施設情報公開ライブラリー <http://www.nucia.jp/index.html> (2017. 8. 1 確認)
- 19) 日本アイソトープ協会, アイソトープの利用や流通の統計を知る, <http://www.jrias.or.jp/report/cat/index.html> (2017. 8. 1 確認)
- 20) 日本アイソトープ協会, 核医学検査や放射線治療を知る, <http://www.jrias.or.jp/pet/index.html> (2017. 8. 1 確認)
- 21) 厚生労働省地域医療計画長, 2016(H28)年 5 月 11 日, 放射性医薬品を投与された患者の退出について
- 22) 日本核医学会 腫瘍・免疫核医学研究会, 甲状腺癌の放射性ヨード内用療法に関するガイドライン <http://oncology.jsnm.org/iodine> (2017. 8. 1 確認)
- 23) 千坂治雄ほか, Radioisotopes, 26, 252-254, 1977.
- 24) 鈴木隆司ほか, 保健物理, 33, 163-170, 1998.
- 25) 文部科学省, 環境放射能調査研究成果論文抄録集, 平成 18(2006)年度, 平成 21(2009)年度.
- 26) 第二管区海上保安本部広報資料, 2007 年 11 月 1 日, 暖水塊 7 年振りに三陸沿岸に接岸, 沖合への強い流れに注意!, <http://www1.kaiho.mlit.go.jp/KAN2/topics/> (2017 年 8 月 1 日確認)
- 27) 宮城県原子力安全対策課ホームページ, 協議会・技術会・監視検討会, 第 126 回測定技術会, 会議資料・議事録, <http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/> (2017 年 8 月 1 日確認)
- 28) 石川陽一, 東北大学博士論文, 天然及び人工放射性核種の分布と動態に関する環境放射化学的研究, 1992 年.
- 29) 国土交通省ホームページ, 下水汚泥等の放射能濃度測定結果, http://www.mlit.go.jp/mizukokudo/sewerage/crd_sewerage_tk_000168.html (2017 年 8 月 1 日確認)

Abstract

Temporal Variation of Specific Radionuclide (^{110m}Ag , ^{131}I) Concentrations in Certain Marine Organisms off the coast of Miyagi, Japan

Yoichi Ishikawa¹, Tomitaka Takamura¹, Noriko Hatakeyama¹, Yasufumi Arai²
and Masato Takahashi¹

¹Miyagi Prefecture Environmental Radiation Monitoring Center

²Miyagi Prefecture Nuclear Safety Division

^{110m}Ag (H.L. =0.68 year) was detected in *Crassostrea gigas* (Magaki), a kind of bivalve, off the coast of Miyagi, northeast Japan, for three periods since 1980s. Each detection period and temporal variation of concentration suggested that the sources were the 26th Chinese Nuclear Test in 1980, the Chernobyl Nuclear Accident in 1986 and the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) Accident in 2011, respectively. The ecological half-lives of ^{110m}Ag in Magaki were in the range of 0.35-0.56 years, and the mean residence times in seawater due to the physical processes of diffusion and advection were calculated to be the range of 0.7-3.2 years by the physical half-life correction. Meanwhile, low concentrations of ^{131}I (H.L.=8.0 d) have been continuously detected in *Eisenia bicyclis* (Arame), a kind of brown algae, mainly in the site far from the Onagawa Nuclear Power Station (ONPS), after starting enhanced monitoring for ^{131}I in 2006. The concentration ranged from about 0.07 to 0.5 Bq/kg (fresh), except for a relatively high concentration, about 1.3 Bq/kg (fresh), observed a little while after the FDNPP Accident. The ONPS, nearest nuclear power station to the sampling site, has not been in operation and not released ^{131}I since 11 March 2011. Consequently, the outlier would be caused by the FDNPP Accident in consideration of the detected date and concentration. There was not observed the large change in the concentration of ^{131}I almost continuously detected before and after the FDNPP accident. That indicated that the source for ^{131}I was not the ONPS. One of candidate sources would be medical use of ^{131}I , as reported in previous research. The amount used for medical purpose in Japan during 2006-2016 was reported to be about 11-15 TBq annually and the high concentrations of ^{131}I were detected in sewage sludge. Therefore, ^{131}I excreted by treated patients might be transported to the coastal area through the sewage line and river, and finally concentrated in Arame with a high concentration factor for iodine (about 10,000).

<付録 I > 移流拡散による海水中の ^{110m}Ag の減衰半減期 T_d の導出

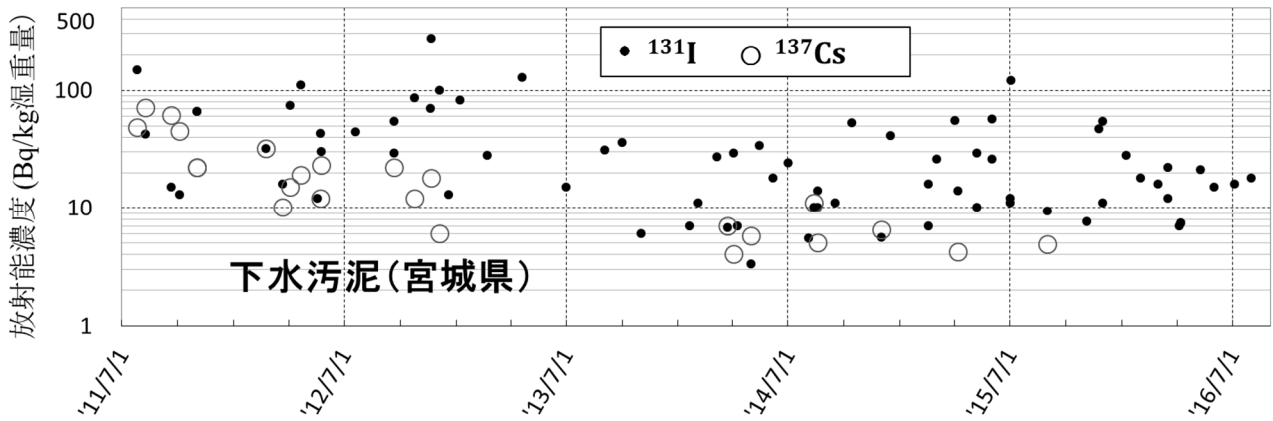
生物中放射性核種濃度の減衰を表す実効半減期と類似の考え方により、マガキ中の ^{110m}Ag 濃度を C とし、物理学的半減期による減衰率（壊変定数） λ_p と海水中の移流拡散による減衰率 λ_d の両者によって減衰すると考えると、これらの関係は次の微分方程式で表される。

$$-\frac{dC}{dt} = (\lambda_p + \lambda_d)C \quad (i)$$

$\lambda_e = \lambda_p + \lambda_d$ と置くと λ_e は見かけの半減期（生態学的半減期）による減衰率を表す。微分方程式を解いてそれぞれの減衰率を半減期で表し変形すると、物理学的半減期 T_p による減衰を考慮した後の海水中の ^{110m}Ag の移流拡散による真の減衰半減期 T_d は次式で表される（本文の(1)式）。

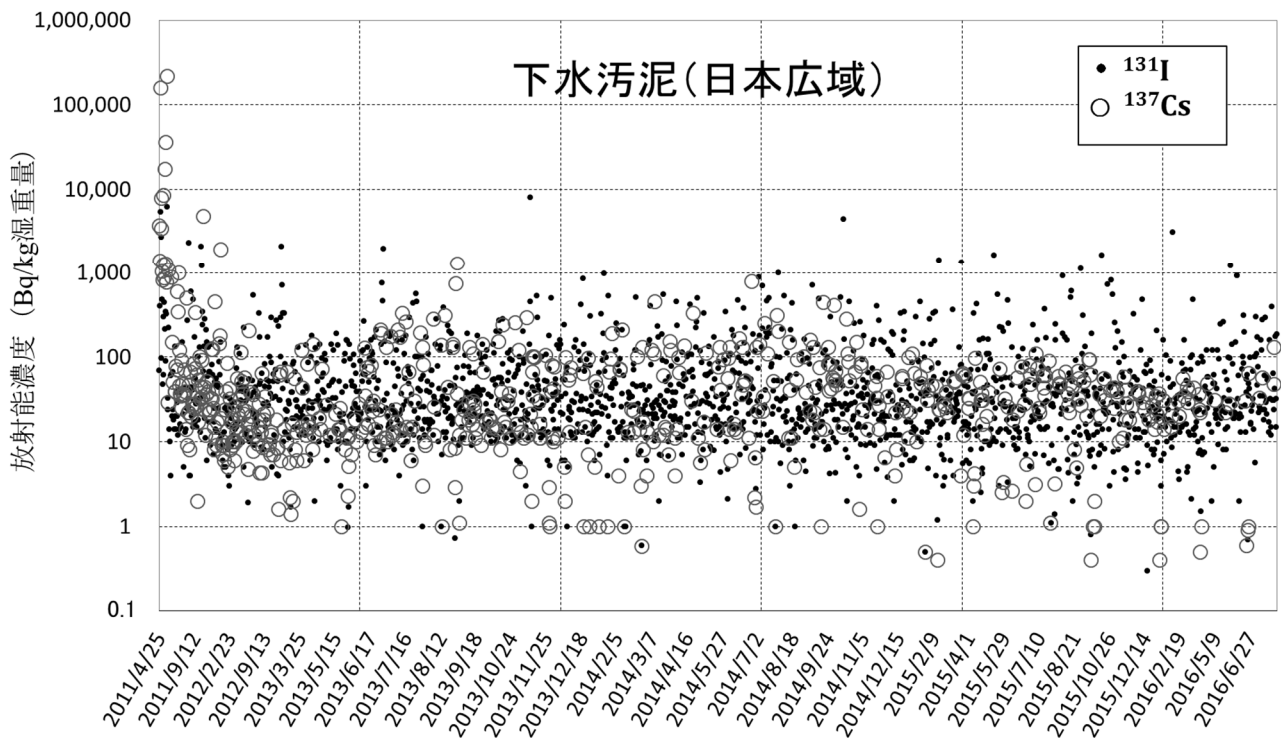
$$T_d = \frac{T_p T_e}{T_p - T_e} \quad (\text{ii})$$

<付録 II> 下水汚泥中の放射能濃度



付図1 福島第一原発事故後の2011年7月-2016年7月の期間の宮城県下水汚泥中¹³¹Iと¹³⁷Csの濃度変動。

データ出典：国土交通省ホームページ²⁹⁾による（測定誤差の記載なし）。



付図2 福島第一原発事故後の2011年7月-2016年7月の期間の日本広域下水汚泥中¹³¹Iと¹³⁷Csの濃度変動。

データ出典：国土交通省ホームページ²⁹⁾による（測定誤差の記載なし）。