

宮城県環境放射線監視センター一年報

第 3 卷

平成 29 年

ANNUAL REPORT

OF

MIYAGI PREFECTURE ENVIRONMENTAL RADIATION

MONITORING CENTER

VOL.3 (2017)

宮城県環境放射線監視センター

はじめに

当センターは、平成27年4月に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に名称を変え、場所も女川町内から仙台市宮城野区幸町に移し、業務を開始してから4年間が経過しようとしています。管轄地域も女川原子力発電所周辺地域から宮城県内全域に範囲を広げ、環境放射線及び環境放射能の測定を実施しているところです。

東京電力(株)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8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。

女川原子力発電所周辺地域の監視測定については、東日本大震災の津波によりモニタリングステーション7局中4局が全壊しましたが、その後、復興公営住宅の整備状況を勘案しながら設置場所の選定を進め、平成31年3月末までにモニタリングステーション4局を再建することができました。

また、環境試料の採取は、東日本大震災の影響で従来の地点から変更することが避けられず、暫定的に場所を変えて行ってきましたが、農作物の耕作及び海産物の養殖再開等を受け、現状に合わせた形に測定基本計画等を改正し、来年度からその計画に基づき監視測定を実施することとしております。

女川原子力発電所の状況は、1号機が平成30年12月21日付けで廃止され、今後、廃炉に向けた手続きを経て、施設の解体等が行われることとなります。

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。

このたび、平成29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3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31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3巻(2017)

I 宮城県環境放射線監視センター概要	1
II 論文	
1 褐藻類アラメにおける ^{137}Cs と ^{40}K の濃度の藻体内分布と経時変動 及び濃縮係数	7
石川陽一、小笠原一孝、高群富貴、畠山紀子、新井康史、阿部郁子、高橋正人、 安藤孝志	
III 技術報告	
1 指標線量率設定値の変更について	15
木村幸由、石幡茜、木村昭裕、伊藤節男、高橋正人、安藤孝志	
2 新たな指標海産物の検討状況について	20
小笠原一孝、高群富貴、石川陽一、高橋正人、安藤孝志	
3 ICP発光分析における内標準法を用いた試料調製について	24
伊藤節男	
4 福島第一原発事故後の空間ガンマ線量率の経時変動	27
安藤孝志、石川陽一、木村昭裕、高橋正人	
5 NaI(Tl)検出器による空間ガンマ線スペクトルの解析に基づく放射性 セシウム寄与の変動	31
石川陽一、木村昭裕、高橋正人、安藤孝志	
IV 資料	
資料1 宮城県における環境放射能核種分析結果	39
(1) Ge半導体検出器による分析結果	42
(2) Sr-90分析結果	54
(3) H-3分析結果	54
(4) 原子力規制庁委託調査結果	55
資料2 環境試料の放射化学分析結果	59
資料3 積算線量測定用素子の校正照射の方法と感度の経年変化について	65
資料4 環境放射線監視システムの機能強化について	68
資料5 環境放射線測定装置の更新等について	73

C o n t e n t s

Preface

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

II Paper

1 Body Distribution and Temporal Trends of ^{137}Cs and ^{40}K Radioactivity in a Brown Alga, Arame, following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident	7
<i>Yoichi Ishikawa, Kazutaka Ogasawara, Tomitaka Takamura, Noriko Hatakeyama, Yasufumi Arai, Ikuko Abe, Masato Takahashi and Takashi Ando</i>	

III Technical Papers

1 Setting Values of Artificial Dose Rates in Radiation Monitoring	15
<i>Yokiyoshi Kimura, Akane Ishihata, Akihiro Kimura, Setsuo Ito, Masato Takahashi, Takashi Ando</i>	
2 An Investigation of a New Indicator Organism for Monitoring Marine Environments	20
<i>Kazutaka Ogasawara, Tomitaka Takamura, Yoichi Ishikawa, Masato Takahashi, Takashi Ando</i>	
3 A Sample Preparation Method Using an Internal Standard Method in the ICP Optical Emission Spectrometer	24
<i>Setsuo Ito</i>	
4 Temporal Variation of Environmental Gamma Ray Dose Rates Following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident	27
<i>Takashi Ando, Yoichi Ishikawa, Akihiro Kimura, Masato Takahashi</i>	
5 Evaluation of Radiocesium Contribution in Gamma Ray Dose Rates by Spectrum Analysis, and Its Temporal Variation	31
<i>Yoichi Ishikawa, Akihiro Kimura, Masato Takahashi, Takashi Ando</i>	

IV Data

1 Results of Radionuclide Analysis of Environmental Samples	39
(1) Results of Gamma-ray Spectrometry with Ge-detectors.	42
(2) Results of Sr-90 Analysis	54
(3) Results of H-3 Analysis	54
(4) Fallout Survey Data in Miyagi Prefecture	55
2 Results of Radiochemical Analysis of Environmental Samples	59
3 A Method of Irradiation to calibrate integrating dosimeter elements and about dosimeter sensitivity secular variation	65
4 Reinforcement of the Environmental Radiation Monitoring System	68
5 Renewal of the Environmental Radiation Measuring Equipments	73

I 宮城県環境放射線監視センター概要

1 所在地

宮城県仙台市宮城野区幸町四丁目7-1-2

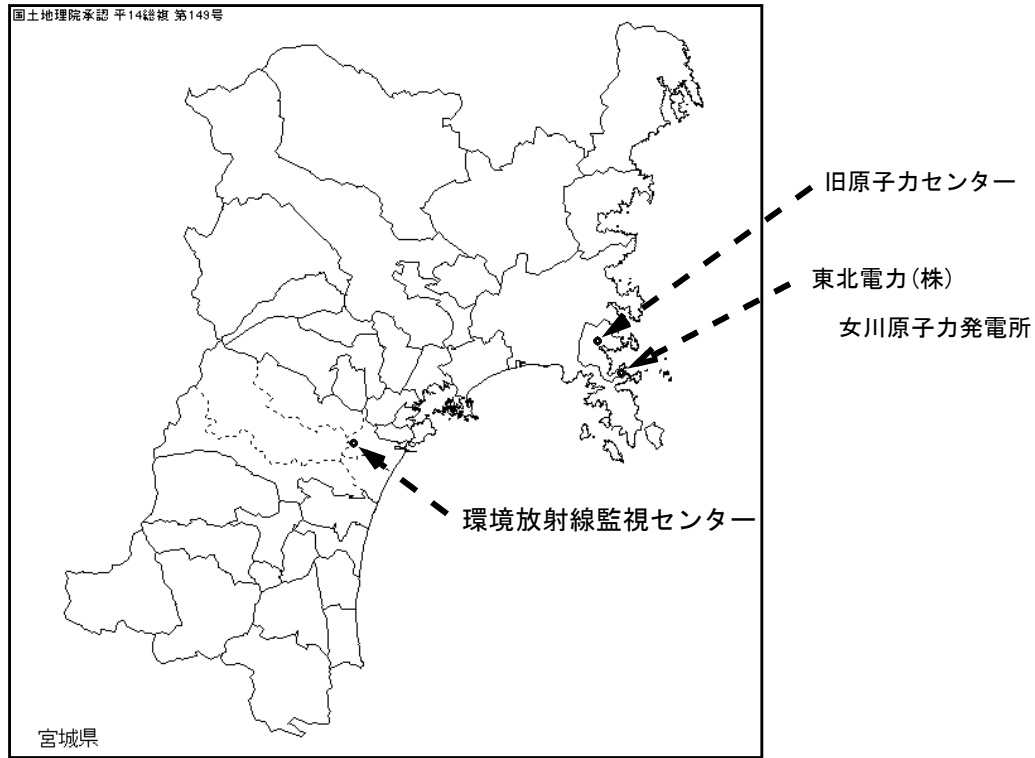


図-1 位置図

2 組織及び名簿（平成29年4月1日現在）

職名（担当）		氏 名	配属年月日
所 長		安 藤 孝 志	H 29. 4. 1
次長（総括担当兼班長）		高 橋 正 人	H 28. 4. 1
庶務担当	次長（庶務担当）	八木田 達 也	H 27. 4. 1
	主 査	工 藤 孝 夫	H 26. 4. 1
	主 査	鈴 木 稔	H 27. 4. 1
監視測定班	上席主任研究員	伊 藤 節 男	H 26. 4. 1
	研究員	木 村 昭 裕	H 25. 4. 1
	研究員	石 幡 茜	H 28. 4. 1
	技 師	畠 山 紀 子	H 26. 4. 1
	技 師	高 群 富 貴	H 27. 4. 1
	技 師	小笠原 一 孝	H 29. 4. 1
	環境放射線・放射能測定評価 技術指導員	石 川 陽 一	H 24. 4. 1

3 決算（平成29年度歳入歳出決算書）

(1) 歳入

単位：円（平成30年5月31日現在）

科 目	決 算 額	摘 要
10 財産収入	1,500	
01 財産運用収入	1,500	
01 財産運用収入	1,500	電柱敷地等
14 諸収入	142	
06 雑入	142	
05 雑入	142	雇用保険返還金
合 計	1,642	

(2) 歳出

単位：円（平成30年5月31日現在）

科 目	決 算 額	摘 要
(通常予算)		
02 総務費	190,476,159	
01 総務管理費	9,460	
02 人事管理費	9,460	
10 生活環境費	190,466,699	
01 生活環境総務費	718,839	
07 環境放射能監視測定費	189,747,860	環境放射能監視測定事業
合 計	190,476,159	

4 主要設備・機器（重要物品）

平成30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 環境放射線測定装置（線量率測定演算部）	日立アロカメディカル(株)・ACE-451	3台	H11	女川局, 小屋取局, 寄磯局撤去品
	2 ダスト・ヨウ素モニタ	日立アロカメディカル(株)・DMS-R41-21087	1台	H12	予備機
	3 電離箱式放射線監視装置	日立アロカメディカル(株)・RIC-388 他	3台	H12	女川局, 小屋取局, 寄磯局撤去品
	4 標準線量計	ポニー工業(株)・AE-1326 他	1台	H17	
	5 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
	6 蛍光ガラス線量計	AGCテクノグラス(株)・FGD-252	1台	H19	

区分	名称	メーカー・型式等	数量	取得年度	備考	
監視・測定用	7	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
	8	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	
	9	ポータブルゲルマニウム 線核種分析装置	セイコー・イメージアクトジック(株)・ Trans-SPEC-DX-100T 他	1台	H23	
	10	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
	11	電離箱検出器	富士電機(株)・NCE207K	10式	H24	
	12	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, 合同庁舎 (大河原, 大崎, 栗原, 登米, 石巻), 気仙沼保健福祉事 務所(放射能水準 調査用)
	13	高純度ゲルマニウム 半導体検出器	セイコー・イメージアクトジック(株)・ GEM25型 他	1台	H24	放射能水準調査用
	14	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	
	15	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
	16	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
	17	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	
	18	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	
	19	消臭・脱煙装置	(株)東京技術研究所・VM-B	3台	H26	
	20	低線量率測定装置	ASM-1465	7台	H29	女川局, 小屋取局, 寄磯局, 再建4局
	21	電離箱式検出器	RIC-338	7台	H29	女川局, 小屋取局, 寄磯局, 再建4局
	22	電離箱式検出器収 納筐体	OVN-R41-23078	3台	H29	女川局, 小屋取局, 寄磯局
	23	電離箱式検出器収 納筐体	OVN-17	4台	H29	再建4局
	24	高線量率測定装置	ASE-1452	7台	H29	女川局, 小屋取局, 寄磯局, 再建4局

区分	名称	メーカー・型式等	数量	取得年度	備考	
監視・測定用	25	γ線標準照射装置	ポニー工業(株)・PSR-102M S型	1台	H22	
	26	高純度ゲルマニウム半導体検出器	ORTEC(セイコー・インジニアリング(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
	27	Ge半導体検出器用予備電気冷却装置	セイコー・インジニアリング(株)・CFG-X-COOL-III-115	1台	H26	
	28	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	
	29	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	
	30	低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター	日立アロカメディカル(株)・LSC-LB 7	1台	H26	
	31	ハンドフットクロズモニタ	日立アロカメディカル(株)・MBR-201H	1台	H26	
	32	ゲルマニウム半導体検出器用大型遮蔽体		1台	H29	
	33	半導体検出器(GEM型)	GEM25-70	1台	H29	
	34	検出器冷却用液体窒素凝縮装置	MOBIUS	1台	H29	
	35	オートサンプルチェンジャー付き鉛遮蔽体		1台	H29	
	36	解析用ソフトウェア	Gamma Station	1式	H29	
	37	検体採取車	トヨタハイエース, 2690cc	1台	H23	
	38	移動観測車	スバルフォレスター, 1990cc	1台	H23	NaI検出器(外部解析可)搭載
39	MS点検車	ホンダフリードスパイク, 1490cc	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	



図-2 環境放射線監視センター配置図

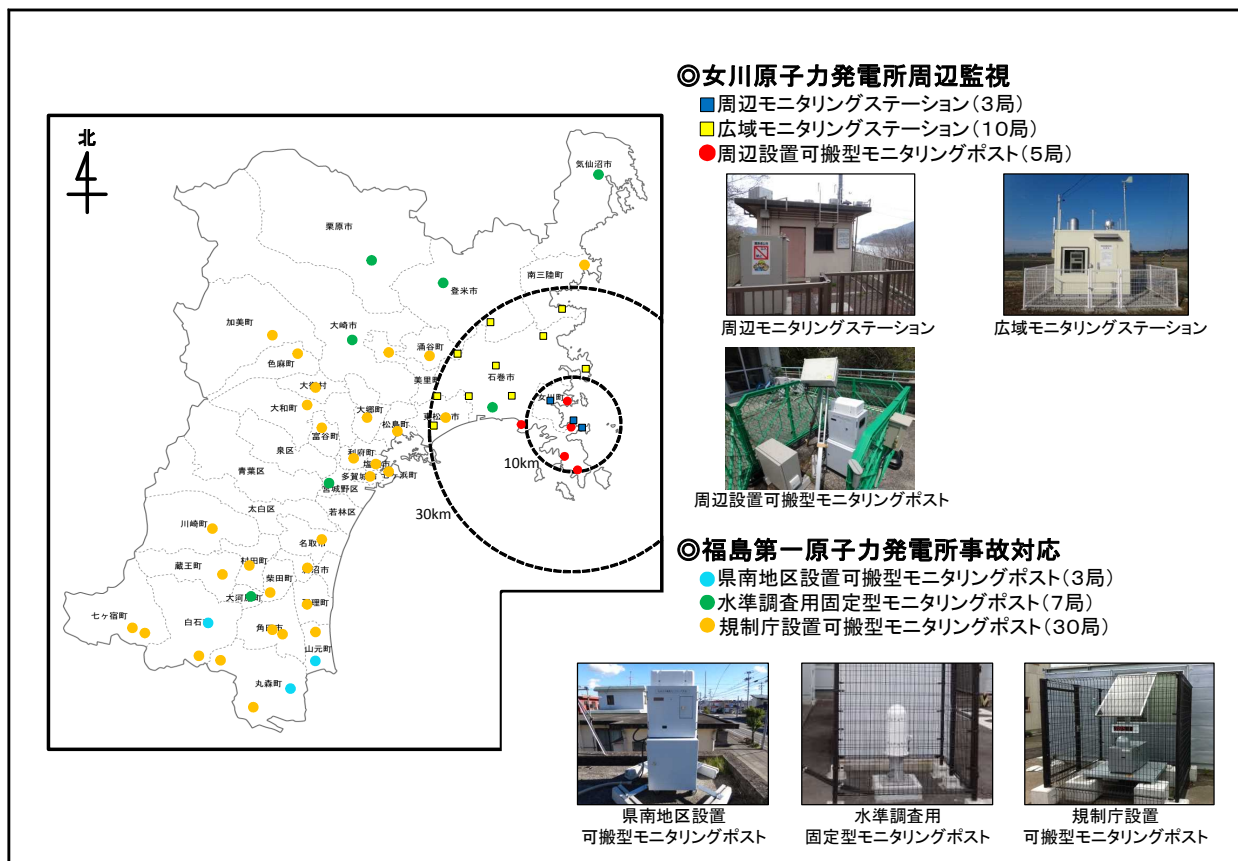


図-3 放射線測定装置配置図

5 学会発表等の要旨

2016 (平成 28) 年度

(1) 第 17 回環境放射能研究会、つくば市、2017. 3. 8-10

題目：宮城県における福島第一原子力発電所事故による放射能及び放射線影響

発表者：石川陽一、高群富貴、木村昭裕、佐藤健一、榎野光永

要旨：2011 年に起きた福島第一原子力発電所事故によるガンマ線線量率、積算線量及び環境試料中放射能における影響を評価した。事故前のバックグラウンド線量率が未知の場合でも、NaI(Tl)検出器のスペクトル解析によって放射性セシウム寄与分を分離評価した。事故後、仙台市における ^{137}Cs 降下量は大幅に増加し、また松葉、ヨモギ葉及び海藻（アラメ）においても、 ^{137}Cs 濃度は数十倍から数桁程度増加した。海水とアラメ中の ^{137}Cs 濃度の環境半減期は、事故前と後とでそれぞれ約 20 年及び約 1 年程度であった。

2017 (平成 29) 年度

(1) 第 61 回放射化学討論会、つくば市、2017. 9. 6-8

題目：宮城県陸域における福島第一原子力発電所事故の放射能影響

発表者：石川 陽一、高群 富貴、畠山 紀子、新井 康史、高橋 正人、安藤 孝志

要旨：2011 年の福島第一事故によって、 ^{137}Cs 降下量は事故前の約 0.1 Bq/m^2 以下から約 $10,000 \text{ Bq/m}^2$ に大幅上昇し、土壌中インベントリーは事故直前の約 $100\text{--}200 \text{ Bq/m}^2$ から約 2 桁程度上昇した。指標植物中の ^{137}Cs 濃度も事故前の約 $0.1\text{--}1 \text{ Bq/kg}$ (生重量) から約 2 桁程度上昇した。降下物中の ^{137}Cs 放射能を蒸発残渣量及び浮遊塵中 ^{137}Cs 放射能と比較検討した。

(2) 日本原子力学会 2017 年秋の大会、札幌市、2017. 9. 13-15

題目：空間 γ 線線量率測定方法変更に伴う人工放射性核種寄与分の推定方法について

発表者：木村 昭裕、石幡 茜、伊藤 節男、石川 陽一、高橋 正人、安藤 孝志

要旨：空間 γ 線線量率測定において、人工放射性核種の影響を高感度で検出する目的で NaI(Tl)検出器下方に鉛遮へいを設置していたが、沈着した放射性セシウムの影響を正確に推定するために取り外した。このことが γ 線スペクトル解析による人工放射性核種寄与線量率評価に与える影響を調べた。

(3) 第 18 回環境放射能研究会、つくば市、2018. 3. 14-16

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

発表者：石川陽一、高群富貴、畠山紀子、新井康史、高橋正人、大倉 靖

要旨：宮城県沿岸海域のマガキに検出される微量の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の起源として第 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が考えられた。その生態学的半減期は約 $0.35\text{--}0.56$ 年で、物理学的半減期 (0.68 年) を考慮して海水中の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の移流・拡散に起因する半減期を試算したところ、 $0.7\text{--}3.2$ 年という比較的短い結果が得られた。2006 年以降のアラメ中 ^{131}I 濃度は、天然の ^{40}K に比べれば微量であるが、約 0.5 Bq/kg (生重量当たり) 以下の値で継続的に検出されている (福島第一原発事故直後を除く)。近年、宮城県も含めて全国的に下水汚泥中に継続的に ^{131}I が検出されており、このこととの関連が考えられた。

II 論 文

褐藻類アラメにおける ^{137}Cs と ^{40}K の濃度の藻体内分布と経時変動 及び濃縮係数

石川陽一、小笠原一孝、高群富貴、畠山紀子、新井康史*、阿部郁子**
高橋正人、安藤孝志

福島第一原子力発電所事故後の宮城県において、褐藻の一種であるアラメ中の ^{137}Cs と ^{40}K の濃度の藻体内分布と経時変動及び濃縮係数を調べた。2012年8月と11月の牡鹿半島西方及び2012年11月の牡鹿半島北方において、アラメ茎中 ^{137}Cs 濃度は葉部に比べて約10倍程度高く、顕著な部位間差が認められた。 ^{40}K については大きな部位間差はみられなかった。1カ所から採取されたアラメ葉部混合試料内でも、まれに ^{137}Cs 濃度の顕著な不均一が認められた。濃度の季節変動は ^{40}K では顕著に認められたが、 ^{137}Cs では認められなかった。

I はじめに

宮城県では関係機関の間で定めた測定計画に基づいて1981年から女川原子力発電所周辺で環境放射能モニタリングを行っており、環境汚染を反映する指標海産生物の一つとして、海藻のアラメ (*Eisenia bicyclis*) を用いている。アラメは褐藻類に属するコンブ目コンブ科の一種で¹⁾、寿命が約3-7年程度の多年生であり、潮間帯から水深数mの岩上に生育する²⁾。ワカメなどに比べると茎と葉が丈夫で海上が悪天候の際にも流失しにくく、海藻の中では広域で四季を通じて比較的採取しやすいため測定対象としている。

宮城県において、2006年度以降は、アラメ中に微量に検出される ^{131}I のモニタリング強化のために測定場所数と頻度を増やして測定を実施している³⁾。これまでに1980年以前の過去の大気圏内核実験や1986年の旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所事故、2011年の福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故等に由来する ^{137}Cs などの核種のほか、医療由来と推定される極微量の ^{131}I なども検出されている³⁾。一般に、ワカメやコンブなどの海藻の放射能モニタリングにおいては、通常、可食部の葉が測定対象とされる。あまり食用には供されないアラメについても同様で、宮城県のモニタリングにおいても葉部を用いている。我が国では、これまでに海藻体内の濃度不均一については大きな注意が払われておらず、国が定めた測定法にも明確な注意書き等の記載はない⁴⁾。FDNPP事故由来の海藻中 ^{137}Cs についても既に多くの報告があるものの⁵⁻⁸⁾、部位間濃度差等には言及されていない。しかし、同事故後の宮城県において、海藻試料を分割して生のまま測定する方法 (迅速法) と灰化後に測る方法 (灰化法) とで ^{137}Cs 濃度にかかなりの程度の食い違いが生じる場合があった⁹⁾。図1にその例を示す (図2の場所aの場合)。この現象は、海藻体内又は複数の海藻間の濃度不均一に起因すると考えられたため調べる必要が生じた。一方、海産生物の放射能モニタリングにおいては濃度の季節差や地域差などの特性を把握することも重要であるが、特に前者の季節変動に関する報告は極めて少ない。

本研究は、アラメにおける FDNPP 事故後の ^{137}Cs 濃度及び天然の ^{40}K 濃度の体内分布と経時変動傾向を明らかにすることにより、今後の環境放射能モニタリングに役立つ知見を得ることを目的とする。

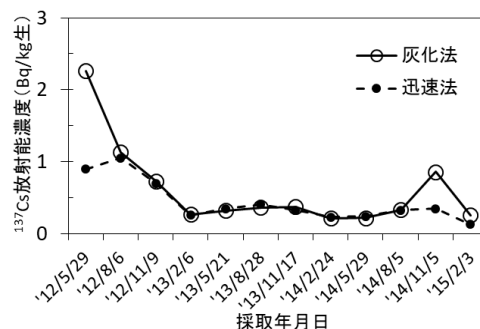


図1 灰化法と迅速法によるアラメ (葉部) の ^{137}Cs 濃度の比較例 (文献⁹⁾ のデータより作成)。

* 現在、宮城県原子力安全対策課 ** 現在、宮城県大崎保健所

II 方法

アラメ試料の採取は図2に示す3カ所の沿岸海域で定期的に行った。約四半期毎に女川原子力発電所放水口付近(場所c)のほか、対照用として女川原子力発電所から10 km以上離れた牡鹿半島西方(場所a)と北方(場所b)の海域でも採取した。採取に当たっては成長年齢を区別せず、外部機関に委託して主に潜水法により1回当たり約10-20 kg程度(根元から先の個体約10から20本程度)を採取した。図3にアラメの模式図を示すが、根の部分(付着器)より上の部分を採取した。後述のように、通常測定用には葉部のみを、部位別測定用には茎の部分も使用した。表1に、アラメの採取場所毎に採取年月日及び ^{137}Cs と ^{40}K の放射能濃度のデータを示す。場所cにおいては海水試料(表層)も採取しており、表2と表3に採取年月日とともに ^{137}Cs と ^{40}K のそれぞれの放射能濃度を示す。

放射能測定用アラメ試料は以下のように調製した。通常の試料は、葉部全体を数cm程度に裁断して大きな容器にひとまとめにして混合し、生のまま測定する試料(迅速法)と灰化して測定する試料(灰化法)に分けた。迅速法試料は生試料約3 kg程度を粉砕機(ロボクープR-8E)によって一度に微粉砕し、2 Lマリネリビーカーに充填、秤量した。灰化法試料は約110°Cで約1昼夜乾燥後、約450°Cで約1昼夜灰化し、混合後、灰数十gをU8型容器に充填して秤量した。別途、葉部灰中 ^{137}Cs 不均一分布も検討したが、その場合は同一試料の灰を3又は4個に3段階に分けてU8容器に充填し、秤量した。一方、一部の期間については、茎の部分小型ミキサーで粉砕し、容量250 mLのポリエチレン製容器に充填し、秤量した。

海水中の ^{137}Cs の分析は文部科学省測定法シリーズNo. 13¹⁾に基づいて行い、リンモリブデン酸アンモニウムによって ^{137}Cs を捕集後乾燥し、U8型プラスチック容器に充填して測定試料とした。海水の ^{40}K 測定は直接法で行い、試料水を2Lマリネリビーカーに充填し、測定試料とした。

放射能測定には相対効率約25%のGe半導体検出器を主として用い、通常は1回当たり8万秒測定した。 ^{137}Cs 濃度が低い一部の試料については、測定時間を30万秒程度まで延長、または相対効率約40%の検出器を用いて測定を行った。検出器の効率は、日本アイソトープ協会を通じて入手した既知量の約10種類の放射性核種を含む標準試料により校正した。表1-表3のほとんどの放射能濃度データは文献9)に記載されている。また、図表に記載されている誤差は全て放射能測定時の計数誤差(標準偏差)を示す。

なお、東日本大震災による測定施設被害のため、2011-2015年度の多くの試料処理と2011-2012年度の放射能測定は外部機関に委託した。

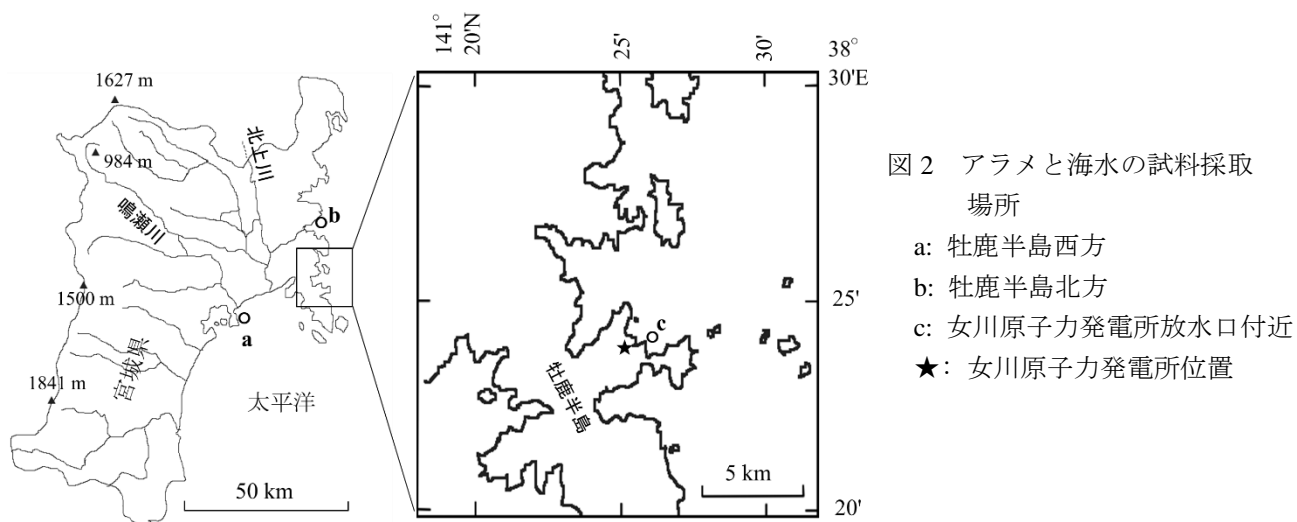


図2 アラメと海水の試料採取場所
a: 牡鹿半島西方
b: 牡鹿半島北方
c: 女川原子力発電所放水口付近
★: 女川原子力発電所位置

III 結果及び考察

3.1 アラメ葉部と茎における ^{137}Cs と ^{40}K 濃度の部位間差

図4(A)は、表1に示すデータのうち、アラメの葉部と茎の両方のデータが得られた場合の部位別

^{137}Cs 濃度を比較した結果である。濃度単位は生重量 1 kg 当たりの Bq 数で表した。場所 a では 2012 年の 8 月と 11 月の 2 回とも両部位間に顕著な濃度差がみられ、葉部よりも茎の方が約一桁高かった。2012 年 11 月の場所 b において、 ^{137}Cs 濃度自体は場所 a よりも低かったが、やはり葉部よりも茎の方が約一桁高かった。図 4 (B) に同じ葉部と茎試料の ^{40}K 濃度の比較結果を示す。 ^{40}K の場合は葉部よりも茎の方が高めであ

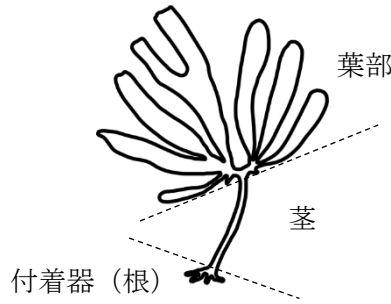


図 3 アラメの模式図

表 1 2011-2017 年の宮城県沿岸におけるアラメ葉部と茎中の灰化法による ^{137}Cs と ^{40}K の放射能濃度

採取場所	採取年月日	部位	濃度 (Bq/kg生)		誤差
			^{137}Cs	^{40}K	
a	2012/5/29	葉	2.26	± 0.05	376 ± 2
	2012/8/6	葉	1.13	± 0.04	253 ± 2
	2012/8/6	* 茎	10.3	± 0.5	401 ± 11
	2012/11/9	葉	0.73	± 0.04	322 ± 2
	2012/11/9	* 茎	7.05	± 0.38	420 ± 9
	2013/2/6	葉	0.27	± 0.03	331 ± 2
	2013/5/21	葉	0.32	± 0.03	324 ± 2
	2013/8/28	葉	0.36	± 0.03	270 ± 2
	2013/11/17	葉	0.37	± 0.04	366 ± 2
	2014/2/24	葉	0.21	± 0.03	346 ± 2
	2014/5/29	葉	0.22	± 0.03	319 ± 2
	2014/8/5	葉	0.33	± 0.03	249 ± 2
	2014/11/5	葉	0.86	± 0.05	369 ± 2
	2015/2/3	葉	0.26	± 0.03	383 ± 2
	2015/5/26	葉	0.17	± 0.03	375 ± 2
	2015/8/18	葉	0.25	± 0.03	245 ± 2
	b	2015/11/30	葉	0.18	± 0.04
2016/2/22		葉	0.15	± 0.03	333 ± 2
2016/5/24		葉	0.15	± 0.03	402 ± 2
2016/9/5		葉	0.33	± 0.03	322 ± 2
2016/11/7		葉	0.30	± 0.03	375 ± 2
2017/2/8		葉	0.15	± 0.03	382 ± 2
2012/5/29		葉	0.13	± 0.03	324 ± 2
2012/8/6		葉	0.17	± 0.03	238 ± 2
2012/11/9		葉	0.11	± 0.02	370 ± 2
2012/11/9		* 茎	1.1	± 0.3	412 ± 9
2013/2/6		葉	0.11	± 0.02	393 ± 2
2013/5/21		葉	0.067	± 0.021	313 ± 2
2013/8/28		葉	0.065	± 0.016	298 ± 2
2013/11/17		葉	0.063	± 0.016	368 ± 2
2014/2/24		葉	0.093	± 0.028	365 ± 2
2014/5/29		葉	0.055	± 0.009	278 ± 1
2014/8/5		* 茎	0.13	± 0.03	354 ± 2
c	2011/11/14	葉	1.50	± 0.04	300 ± 2
	2012/2/6	葉	0.39	± 0.04	382 ± 2
	2012/5/17	葉	0.39	± 0.04	375 ± 2
	2012/8/7	葉	0.30	± 0.03	300 ± 2
	2012/11/21	葉	0.15	± 0.04	380 ± 2
	2013/2/4	葉	0.09	± 0.02	410 ± 2
	2013/5/16	葉	0.16	± 0.03	319 ± 2
	2013/8/12	葉	0.10	± 0.03	281 ± 2
	2013/11/14	葉	0.19	± 0.04	358 ± 2
	2014/2/24	葉	0.084	± 0.021	373 ± 2
	2014/5/7	葉	0.074	± 0.017	254 ± 2
	2014/8/5	葉	0.088	± 0.028	295 ± 2
	2014/11/12	葉	0.080	± 0.016	294 ± 2
	2015/2/12	葉	0.11	± 0.02	369 ± 2
	2015/5/11	葉	0.060	± 0.018	268 ± 2
	2015/8/5	葉	0.15	± 0.03	242 ± 2
	2015/11/16	葉	0.086	± 0.026	299 ± 2
2016/2/3	葉	0.086	± 0.018	385 ± 3	
2016/5/10	葉	0.071	± 0.022	331 ± 2	
2016/8/25	葉	0.080	± 0.025	260 ± 2	
2016/11/7	葉	0.10	± 0.03	312 ± 2	
2017/2/14	葉	0.065	± 0.024	402 ± 2	

誤差は計数誤差を示す。

ったが ^{137}Cs ほどの大きな違いはみられなかった。なお、場所 c においては茎に ^{137}Cs が検出されなかったためデータを省いた。

^{137}Cs における葉部と茎間の顕著な濃度差の原因は、部位による核種取込・生理活性に関連があると考えられる。過去にアラメ中の放射性セシウム濃度の部位間差の報告はみられないが、桐原ら¹⁰⁾はアラメと同じコンブ科のツルアラメ (*Ecklonia stolonifera*) における ^{137}Cs 等の添加実験から、成葉から茎を通り匍匐枝を通して幼葉に移動する転流があると述べている。Carlson & Erlandsson¹¹⁾は1984年におけるヒバマタ目の褐藻

(*Fucus vesiculosus*) について ^{137}Cs 等の部位別濃度を報告しているが、葉部と茎間にあまり大きな濃度差はなかった。Floc'h¹²⁾によるとコンブ目海藻では葉部の成長帯(茎に近い下部)及び付

表2 場所 c における海水中 ^{137}Cs 濃度

採取年月日	^{137}Cs 濃度(Bq/L)
'11/11/15	0.0094 ± 0.0006
'12/5/30	0.0054 ± 0.0008
'12/11/13	0.0045 ± 0.0008
'13/5/20	0.0023 ± 0.0008
'13/11/13	0.0033 ± 0.0008
'14/5/19	0.0027 ± 0.0006
'14/11/10	0.0029 ± 0.0008
'15/5/20	0.0019 ± 0.0003
'15/11/12	0.0034 ± 0.0008
'16/5/24	0.0019 ± 0.0004
'16/11/8	0.0042 ± 0.0008

誤差は計数誤差.

表3 場所 c における海水中 ^{40}K 濃度

採取年月日	^{40}K 濃度(Bq/L)
'12/5/30	11.6 ± 0.6
'12/8/9	11.9 ± 0.6
'12/9/13	11.0 ± 0.6
'12/11/13	11.3 ± 0.5
'13/2/6	12.3 ± 0.5
'13/3/13	12.3 ± 0.5
'13/5/20	11.6 ± 0.5
'13/8/5	10.4 ± 0.5
'13/9/18	10.3 ± 0.5
'13/11/13	10.9 ± 0.5
'14/2/26	10.5 ± 0.5
'14/3/13	10.7 ± 0.5
'14/5/19	11.3 ± 0.5
'14/8/4	12.2 ± 0.5
'14/9/18	12.0 ± 0.5
'14/11/10	11.5 ± 0.5
'15/2/16	11.8 ± 0.5
'15/3/12	11.9 ± 0.5
'15/5/20	10.5 ± 0.5
'15/8/4	11.4 ± 0.5
'15/9/15	10.4 ± 0.5
'15/11/12	10.0 ± 0.5
'16/2/2	11.1 ± 0.5
'16/3/17	10.7 ± 0.5
'16/5/24	11.4 ± 0.5
'16/8/2	11.6 ± 0.5
'16/9/15	10.4 ± 0.5
'16/11/8	12.0 ± 0.5
'17/2/6	11.3 ± 0.5

誤差は計数誤差.

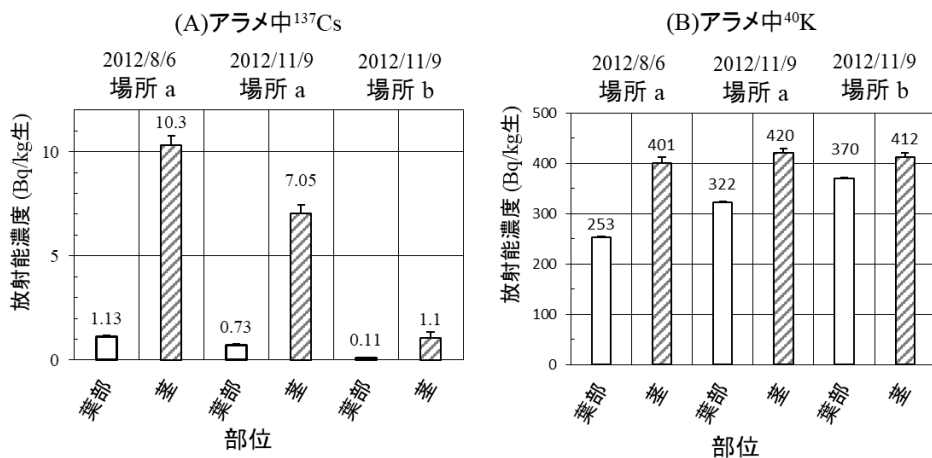


図4 アラメの葉部と茎間の灰化法による ^{137}Cs (A) 及び ^{40}K (B) 放射能濃度比較.

元のデータは表1に記載. 誤差は計数誤差.

着器の方向に髄層を通して物質が移動するとされる。吉崎¹³⁾は、アラメには植物における師管に相当する細胞があり、葉部から茎や根に栄養分を運ぶ働きがあると示唆している。石井ら¹⁴⁾はアラメの葉部や茎内で鉄などの金属元素濃度に分布差があることを報告している。以上のような先行研究からは、アラメ内の¹³⁷Csの濃度分布差の明確な説明はできない。しかし、海藻体内では明白に物質移動があると考えられ、葉部と茎間のみでなく、葉部内でも部位によって放射性核種濃度に分布差が生じうるものと考えられる。すると、多数本のアラメの葉部のみを多量に用いた場合、濃度不均一によって片寄りが起きる可能性があるが、このことについては後述する。なお、茎の⁴⁰K濃度が葉部よりも少し高めなのは、濃度不均一のほかに、葉部よりも丈夫で固く密度が高いことも一つの理由であると考えられる。

3.2 アラメ葉部における¹³⁷Cs濃度の不均一性

図1と方法の項で述べたように、多数のアラメ個体の葉部を刻んで混合した場合でも、時々、¹³⁷Cs濃度に分布差がみられる。そこで、2017年11月14日に場所cで採れたアラメ葉部(生重量3.48kg、灰重量179g)にそのような兆候がみられたため、詳しく調べた。表4は灰試料の分割方法を示している。灰試料の大部分を使って3個の測定試料AからC(1次分割)を作って放射能を測定したところ、図5(i)に示すように、Aの¹³⁷Cs濃度(Bq/kg生)がほかより5倍程度高かった。一方、同図(ii)に示すように⁴⁰K濃度には違いがなかった。次いで、AをA-aからA-dに4分割(2次分割)して測定したところ、図6(ii)に示すように、A-dがほかより10倍程度高くなった。更にA-dをA-d-aからA-d-dまで4分割(3次分割)して測定したところ、A-d-dがほかより40倍程度高くなった。この理由としては、高濃度¹³⁷Cs粒子の存在が強く示唆される。FDNPP事故後、福島県や近隣の地域において、陸上では大気浮遊塵¹⁵⁾や土壌¹⁶⁾、最近では海底土¹⁷⁾や動物性プランクトン^{17,18)}においても不溶性の高濃度¹³⁷Cs粒子の存在が報告又は強く示唆されている。アラメにおいても類似の観点から説明可能と考えられる。なお、¹³⁷Cs値が高濃度を示した試料において、原因となる¹³⁷Cs粒子が1個又は少数であれば試料の¹³⁷Cs濃度が不均一であるため、放射能測定値も正確ではないが値の大小の比較は可能である。以上のことから、海藻中¹³⁷Csの放射能測定とデータ評価の際には大きな注意が必要であることがわかった。アラメ葉部の¹³⁷Cs濃度の分布差の原因は¹³⁷Csの偏在に基づくものと推定されるが、詳細なメカニズム等については今後の研究が必要である。

表4 ¹³⁷Cs濃度分布検討用同一灰試料の分割方法

試料：2017年11月14日の採取場所cにおけるアラメ葉部

1次分割灰試料	灰重量(g)	2次分割灰試料	灰重量(g)	3次分割灰試料	灰重量(g)		
A	54.26	A-a	12.06	A-d-a	3.29		
		A-b	14.86			A-d-b	3.92
		A-c	13.39			A-d-c	2.94
		A-d	13.35			A-d-d	3.12
B	54.25						
C	54.26						

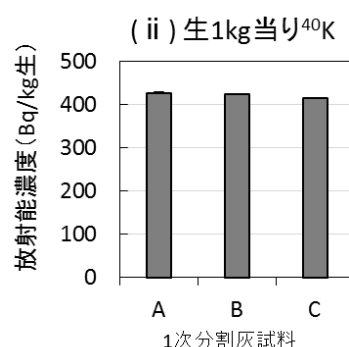
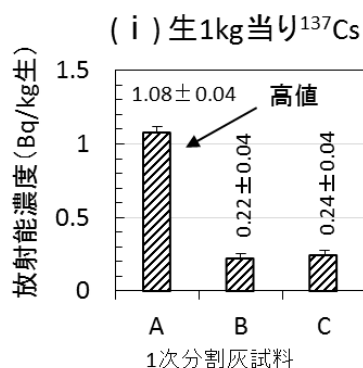


図5 採取場所cにおける2017年11月14日のアラメ葉部灰1次分割試料A-C間の(i)¹³⁷Csと(ii)⁴⁰K濃度の比較(単位生重量当りのBq数に換算)。

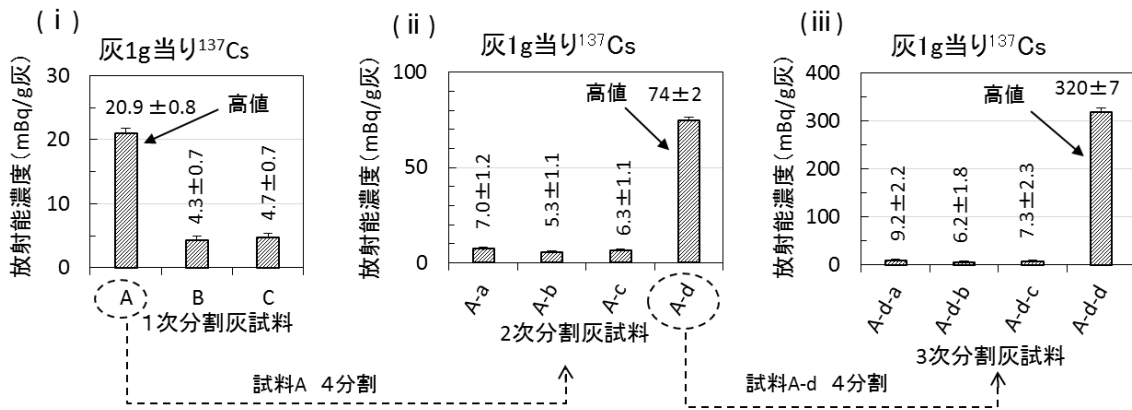


図6 場所cにおける2017年11月14日のアラメ葉部灰試料の分割段階別¹³⁷Cs濃度(mBq単位). (i):1次分割灰試料, (ii):2次分割灰試料, (iii):3次分割灰試料.

3.3 アラメ葉部における¹³⁷Csと⁴⁰K濃度の経時変動及び濃縮係数

図7は(A)場所a-cにおける2011-2017年初期までのアラメ葉部(灰化法)と(B)場所cにおける海中¹³⁷Cs濃度の経時変動を示す。これらの図によると、2012年末頃まではFDNPP事故由来の¹³⁷Csの影響によって値が高めであったが、2013年以降は濃度が低下して大体一定に近い値となった。アラメの¹³⁷Cs

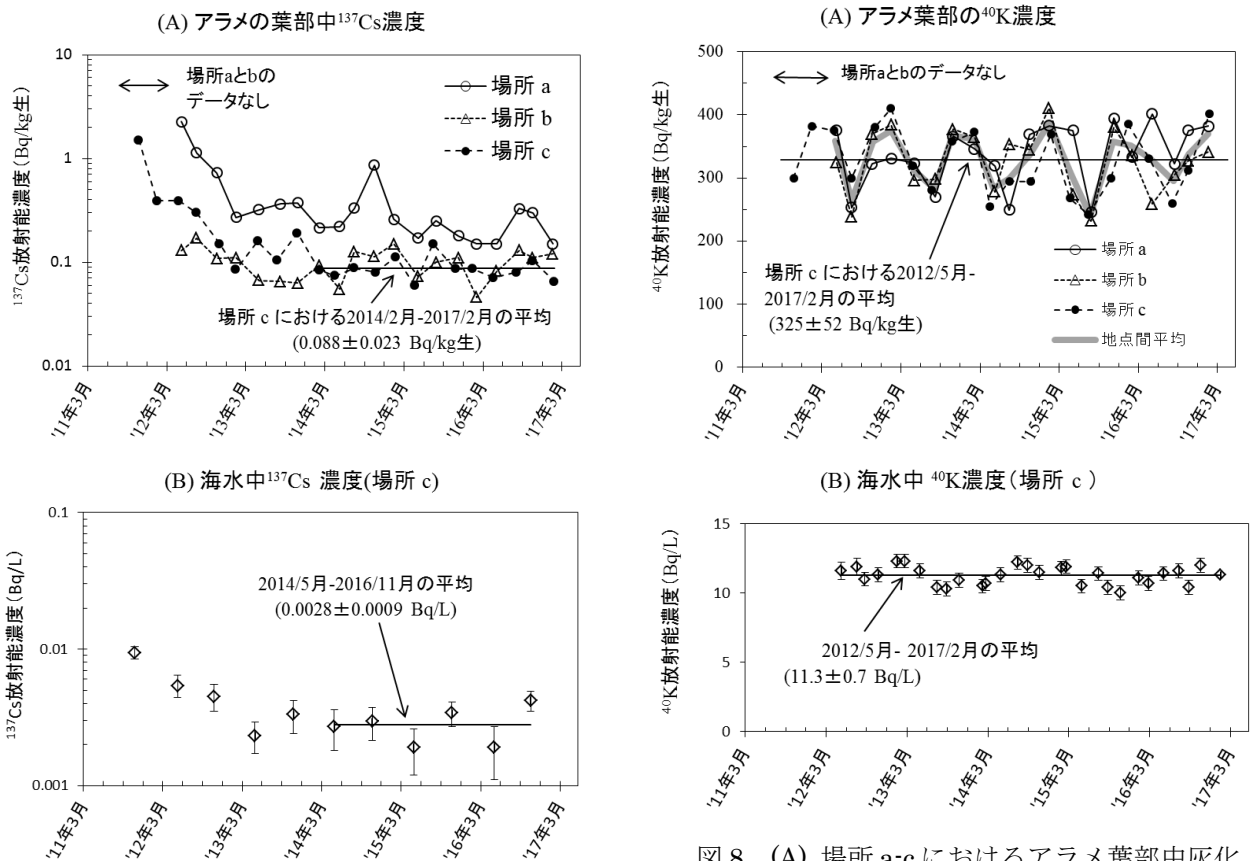


図7 (A) 場所a-cにおけるアラメ葉部中灰化法¹³⁷Cs濃度及び(B)場所cにおける海水中¹³⁷Cs濃度. 直線は値がほぼ一定になってからのcにおける平均値. 誤差は計数誤差. (A)のaにおけるデータは図1の灰化法によるデータと同じ.

図8 (A) 場所a-cにおけるアラメ葉部中灰化法⁴⁰K濃度及び(B)場所cにおける海水中⁴⁰K濃度. (B)の直線は平均値. (A)の灰色太線は時期毎の地点間平均値. 誤差は計数誤差.

濃度は変動が大きく、また海水では計数誤差も大きいため、季節変動傾向は不明瞭であった。一方、図8は、同じ期間と試料に対する⁴⁰Kの濃度変動を示す。(A)がアラメ、(B)が海水についての値を表す。アラメ葉部の⁴⁰Kには季節的変動の傾向が認められ、概ね秋から冬にかけて値が高めであり、また場所によっても少し傾向が異なった。海水の⁴⁰K濃度には多少の変動がみられたが、概ね一定値を示した。

海水中でアラメによる放射性核種の取込・離脱が平衡にあれば、濃度比(アラメ中濃度/海水中濃度)からアラメに対する海水からの濃縮係数を求めることができる。図7と図8の図中に示した濃度安定期間の値を用いて算出した結果を次に示す。表5は¹³⁷Cs、また表6は⁴⁰Kについての、場所cにおける結果を示し、どちらの核種についても約30程度であった。アラメについての過去の文献値は、¹³⁷Cs又はCsに関して記載があり、それぞれ24-51¹⁹⁾(福岡県内)及び38²⁰⁾(宮城県内)で、本研究の結果と同程度であった。

表5 場所cにおけるアラメ中¹³⁷Csの濃縮係数の算出

算出期間	試料	n	¹³⁷ Cs平均濃度*	濃度単位	濃縮係数(L/kg生)**
'14/2/24~'17/2/14	アラメ(葉部)	13	0.088 ± 0.023	Bq/kg生	31 ± 13
'14/5/19~'16/11/8	海水(表層)	6	0.0028 ± 0.0009	Bq/L	

* ¹³⁷Cs平均濃度の誤差は、算出期間内の濃度のバラツキを表す不偏標準偏差

** 濃縮係数の誤差は、アラメと海水の¹³⁷Cs平均濃度の標準偏差から誤差伝搬則により算出した標準偏差

表6 場所cにおけるアラメ中⁴⁰Kの濃縮係数の算出

算出期間	試料	n	⁴⁰ K平均濃度*	濃度単位	濃縮係数(L/kg生)**
'12/5/17 - '17/2/14	アラメ(葉部)	20	325 ± 52	Bq/kg生	29 ± 5
'12/5/30 - '17/2/6	海水(表層)	29	11.3 ± 0.7	Bq/L	

* ⁴⁰K平均濃度の誤差は、算出期間内の濃度のバラツキを表す不偏標準偏差

** 濃縮係数の誤差は、アラメと海水の⁴⁰K平均濃度の標準偏差から誤差伝搬則により算出した標準偏差

IV まとめ

宮城県で、FDNPP事故後の2011-2017年初期の期間について、褐藻のアラメ中の¹³⁷Csと天然の⁴⁰K濃度の部位間差と経時変動を調べた。2012年の8月と11月の牡鹿半島西方及び2012年11月の牡鹿半島北方において、アラメの茎中の¹³⁷Cs濃度は葉部に比べて約10倍程度高く、顕著な部位間差が認められた。⁴⁰Kについては大きな部位間差はみられなかった。アラメ葉部を混合した試料内でも、まれに¹³⁷Cs濃度の顕著な不均一が認められた。一方、アラメ葉部中の放射性核種濃度の経時変動を調べたところ、¹³⁷Csには明瞭な季節変動は認められなかったが、⁴⁰Kについては季節変動が認められた。今後の課題として、海藻中の¹³⁷Cs濃度不均一と不溶性高濃度¹³⁷Cs粒子との関連や季節変動のメカニズムについて更に調べる必要がある。

謝辞

当センターからの委託に基づいてアラメの採取、処理及びGe半導体検出器による放射能測定の一部を担当していただいた協力企業並びに公益財団法人日本分析センターの関係者に感謝致します。

参考文献

- 1) 瀬川宗吉, 原色日本海藻図鑑, 保育社, 大阪, 1981年, pp.39-44.
- 2) 三重県農林水産部, 藻場造成ガイドブック 改訂版2013.
- 3) 石川陽一, 高群富貴, 畠山紀子, 新井康史, 高橋正人, Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity (第18回環境放射能研究会), KEK proceedings, 2017-6.
- 4) 原子力規制庁, 日本の環境放射能と放射線, 放射能測定法シリーズ等, No.4, No.7, No.13.
- 5) T. Aono, Y. Ito, T. Sohtome, T. Mizuno, S. Igarashi, J. Kanda, T. Ishimaru, "Radiation Monitoring and Dose Estimation of the Fukushima Nuclear Accident", ed. by S. Takahashi, Springer, 2014, pp.115-123. <https://link.springer.com/book/10.1007/978-4-431-54583-5>, 2019/2/20 確認

- 6) 根本芳春, 島村信也, 五十嵐敏, 日本水産学会誌, 78, 514-519, 2012.
- 7) N. Hamada, H. Ogino, Y. Fujimichi, J. Radiat. Res., 53, 641-671, 2012.
- 8) H. Kawai, A. Kitamura, M. Mimura, T. Mimura, T. Tahara, D. Aida, K. Sato, H. Sasaki, J. Plant Res., 127, 23-42, 2014.
- 9) 宮城県, 女川原子力発電所環境放射能調査結果(年報), 平成23年度(2011)-平成27年度(2015)分.
<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/kankyo-onhaisui.html> 2019/2/20 確認
- 10) 桐原 慎二, 中村 良一, 中原 元和, 能登谷 正浩, 有賀 祐勝, 日本水産学会誌, 59, 589-592, 1993.
- 11) L. Carlson, B. Erlandsson, Environ. Pollution, 73, 53-70, 1991.
- 12) J. Y. Floc'h, "Synthetic and Degradative Processes in Marine Macrophytes", ed. by L. M. Srivastava, Walter de Gruyter & Co., Berlin, 1982, pp. 139-165.
- 13) 吉崎 誠, 東邦大学, 東京湾海藻日誌, 東京湾の海藻(5), 褐藻アラメ・カジメ(コンブの仲間には篩管がある), 1996年, <http://www.mnc.toho-u.ac.jp/v-lab/kaisou/tokyo/5/tokyo-51.html>, 2019/2/20 確認
- 14) 石井紀明, 鈴木 謙, 松葉 満江, 小柳 卓, 日本水産学会誌, 46, 185-189, 1980.
- 15) Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y. and Igarashi, Y. (2013). Sci. Rep., 3, 2554, doi: 10.1038/srep02554.
- 16) Itoh, S., Eguchi, T., Kato, N. and Takahashi, S. (2014). Soil Sci. Plant Nutr., 60, 540-550.
- 17) (公財) 海洋生物環境研究所, 平成29年度 海洋環境における放射能調査及び総合評価 調査報告書, pp.129-134, pp.170-172. <http://www.kaiseiken.or.jp/publish/itaku/itakuseika.html>
- 18) Ikenoue, T., Takata, H., Kusakabe, M., Kudo, N., Hasegawa, K. and Ishimaru, T., Sci Rep 39874.
- 19) Y. Tateda and T. Koyanagi, J. Radiat. Res., 35, 213-221 (1994).
- 20) 放射線医学総合研究所, 平成23年度放射性核種生物圏移行評価高度化調査, 平成24年(2012)3月, pp. 68.

Abstract

Body Distribution and Temporal Trends of ^{137}Cs and ^{40}K Radioactivity in a Brown Alga, Arame, following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

Yoichi Ishikawa¹, Kazutaka Ogasawara¹, Tomitaka Takamura¹, Noriko Hatakeyama¹, Yasufumi Arai², Ikuko Abe³, Masato Takahashi¹ and Takashi Ando¹

¹Miyagi Prefecture Environmental Radiation Monitoring Center, ²Miyagi Prefecture Nuclear Safety Division, ³Miyagi Prefecture Osaki Public Health Center

Body distribution of ^{137}Cs and ^{40}K radioactivity in a brown alga, arame (*Eisenia bicyclis*) and also temporal trends of the ^{137}Cs activities in the laminae were investigated in Miyagi Pref., Japan, following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) Accident on March 11, 2011. In the western and northern areas of the Oshika peninsula in August and November 2012, remarkable inter-tissue differences in ^{137}Cs activities in arame were observed. The ^{137}Cs activities in the stipes of the arame were an order of magnitude higher than those in the laminae. On the other hand, there was not much difference between stipes and laminae in ^{40}K . No clear seasonal fluctuations in ^{137}Cs activity of laminae of arame were found in the early 2011 to 2017, although seasonal fluctuations were observed in ^{40}K . Remarkable heterogeneity of ^{137}Cs concentration was occasionally observed in a mixed laminae sample collected from one place. The reason may be explained by ^{137}Cs -enriched particles released from the FDNPP Accident.

III 技術報告

指標線量率設定値の変更について

木村幸由, 石幡茜, 木村昭裕, 伊藤節男, 高橋正人, 安藤孝志

女川原子力発電所周辺のモニタリングステーションにおいて、当県では上方からの放射性物質に対する感度を高めるために NaI(Tl)シンチレーション検出器の下方を鉛で遮へいしていたが、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故由来の Cs-137 及び Cs-134 の寄与量評価等のため平成 28 年 6 月に鉛遮へいを取り外した。それに伴い、人工放射線の推定寄与量を示す指標線量率のスクリーニングレベルである設定値を、暫定的に 4nGy/h としたところである。その後、鉛遮へい取り外しから約 1 年経過し測定データが蓄積されてきたことから、指標線量率の設定値の見直しを行った。

I はじめに

宮城県では、従来、女川原子力発電所周辺のモニタリングステーション（以下「MS」という。）において、大地や局舎建屋からの自然放射線の影響を少なくし、上方の人工放射性物質に対する感度を高めるため^{1, 2)}、NaI(Tl)シンチレーション検出器（以下「NaI 検出器」という。）の下方立体角 2π を鉛で遮へいしていた。原子力施設立地道府県のうち、鉛遮へいをしているのは宮城県のみであり、他県等との線量率の比較が困難であった。また、東京電力（株）福島第一原子力発電所事故由来の Cs-137 及び Cs-134 の寄与量評価も困難であったことから、平成 28 年 6 月に鉛遮へいを取り外した。それに伴い、指標線量率を用いた環境監視では、暫定的設定値を 4 nGy/h として運用することにした³⁾。その後、鉛遮へい取り外しから約 1 年経過し、測定データが蓄積されてきたことから指標線量率の設定値の見直しを行った。

なお、指標線量率とは、図 1 に示すように空間 γ 線スペクトル（以下「スペクトル」という。）をレスポンスマトリクス法⁴⁾ で処理して得られる γ 線線量率 (RM 線量率) から天然放射性核種寄与分 (推定バックグラウンド線量率。以下「推定 BG 線量率」という。) を差し引いて得られる値で、人工 γ 線の影響を示す指標である^{5, 6)}。当県においては、指標線量率の設定値を超過した場合には、直ちに担当者の携帯電話へ自動通報され、スペクトルの確認を行うなどの詳細調査を実施することになっている。

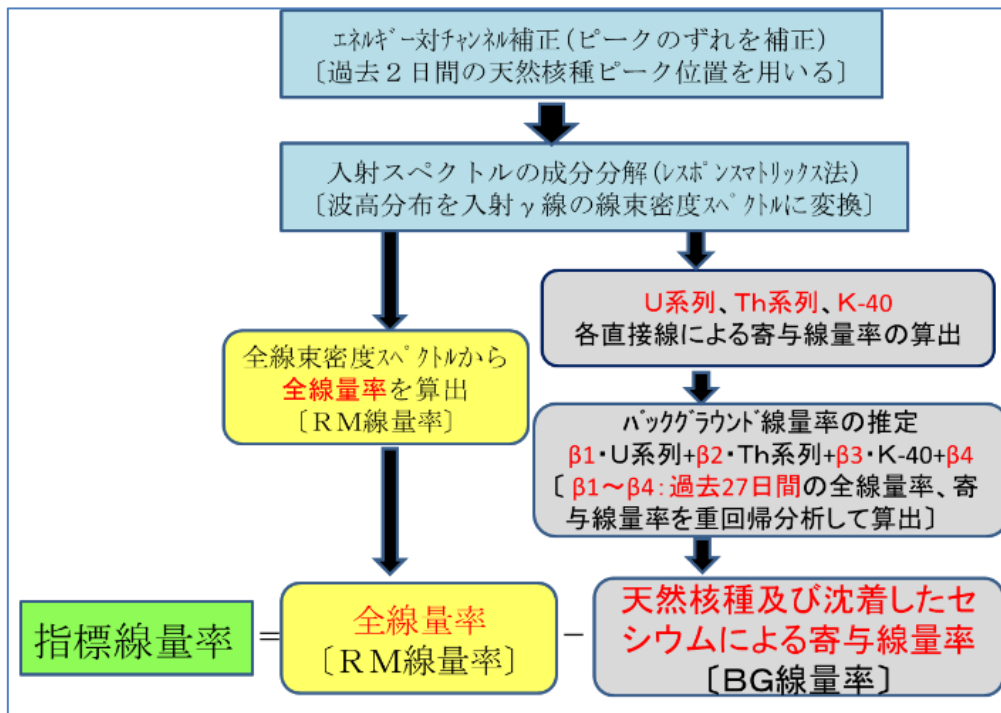


図1 指標線量率の算出方法

II 検討の方法

鉛遮へいを取り外した後のNaI検出器による空間γ線線量率（以下、「NaI線量率」という。）と指標線量率の測定結果を整理した。その後、鉛遮へい取り外し前後の指標線量率の標準偏差を算出し、両者を比較することで適切な設定値を求めた。

III 結果及び考察

1 鉛遮へい取り外し前後NaI線量率と指標線量率の測定結果

まず、鉛遮へい取り外し前後のNaI線量率を比較した。参考として、図2に女川局における鉛遮へい取り外し前後のNaI線量率の測定結果を示す。NaI線量率は鉛遮へい取り外し後20~30 nGy/h程度上昇し、それに伴い指標線量率のばらつきも増加したことが分かる。

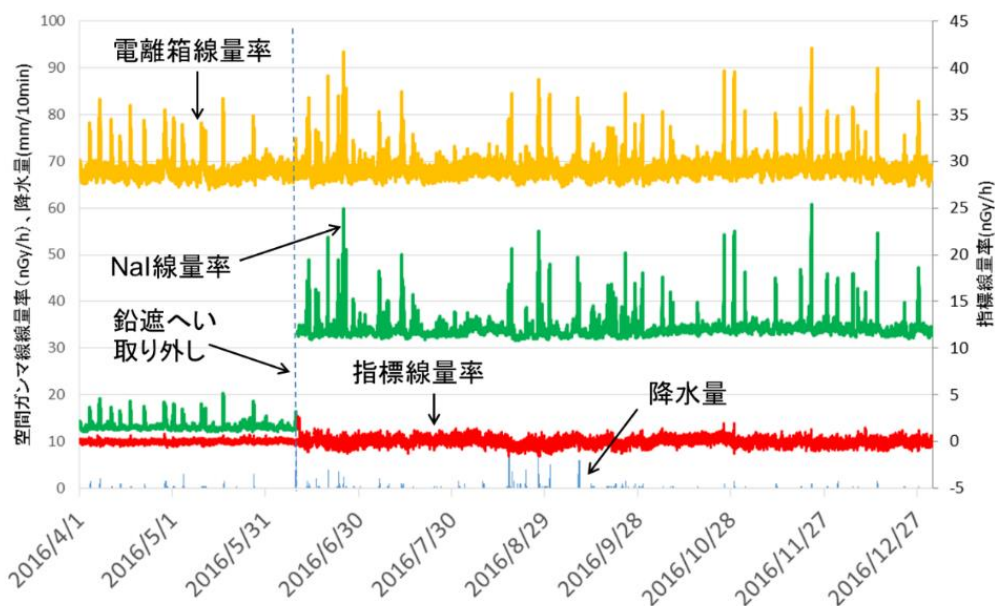


図2 鉛遮へい取り外し前後の線量率比較

そこで、鉛遮へい取り外し前後の各測定局における指標線量率の標準偏差を算出した。その結果を、表1に示す。どの測定局においても女川局と同様に、鉛遮へいを取り外した後は、指標線量率の標準偏差がともに上昇していたことが分かる。

表1 鉛遮へい取り外し前後の指標線量率の標準偏差と NaI 線量率の平均値

	MS	宮城県設置			東北電力設置			
		女川	小屋取	寄磯	塚浜	寺間	江島	前網
指標線量率 平均値	鉛遮へい取り外し前	0.0	-0.1	0.0	-0.1	0.0	0.0	-0.1
	鉛遮へい取り外し後	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
指標線量率 標準偏差	鉛遮へい取り外し前	0.21	0.31	0.35	0.26	0.21	0.18	0.28
	鉛遮へい取り外し後	0.37	0.54	0.48	0.46	0.44	0.35	0.74
NaI線量率 平均値	鉛遮へい取り外し前	13.7	26.0	19.6	22.0	15.4	10.6	27.4
	鉛遮へい取り外し後	33.8	54.6	45.2	52.7	40.8	34.7	60.5

鉛遮へい取り外し 県: 2016/6/10 電力: 2017/3/22~23 単位: nGy/h
算出期間 取り外し前: 2015/6~2016/5 取り外し後: 2017/4~2017/12

さらに、各測定局における鉛遮へい取り外し後 NaI 線量率の平均値と指標線量率の標準偏差の関係を調査したところ、図3に示すような線形関係にあることが判明した。

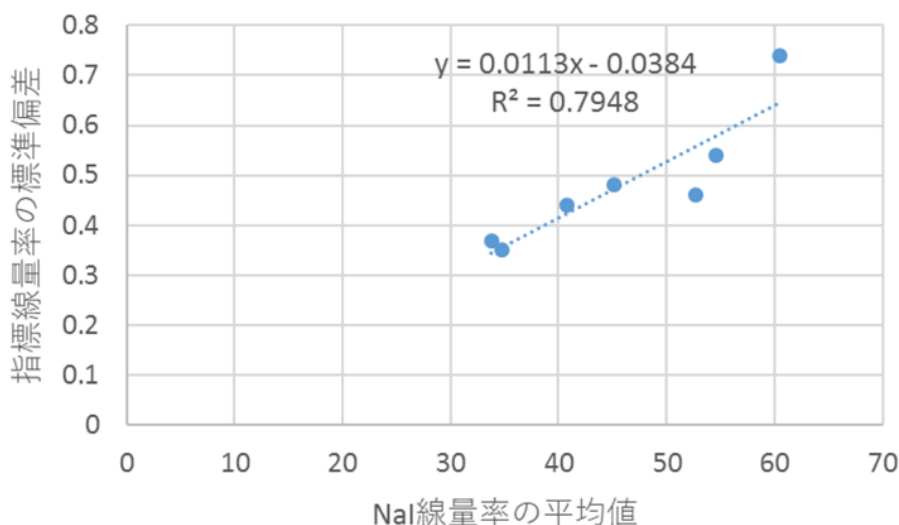


図3 NaI線量率の平均値と指標線量率の標準偏差の関係

2 指標線量率の設定値の検討

鉛遮へいを取り外す前の指標線量率の設定値は2 nGy/hであった。この設定値は、人工放射線照射試験を行った結果、指標線量率の定量限界は1～2 nGy/hの範囲にあったため、指示値の信頼性を重視し2 nGy/hに設定したものである⁵⁾。当該設定値を採用したのは平成14年度からであるため、前年度である平成13年度の指標線量率の標準偏差の平均値を算出した。その結果、表2に示すとおり平成13年度の標準偏差の平均値は0.27 nGy/hであった。設定値2 nGy/hは当該値の7.4倍であることから、表3に示すとおり、各局の鉛遮へいを取り外した後の標準偏差の平均値を7.4倍した値を、仮の設定値とした。

なお、指標線量率の標準偏差はNaI線量率に相関するため、従来のような一律の設定値とはせず、局毎に設定値を算出した。この場合において、前網局は暫定値である4 nGy/hを超えることから、暫定値4 nGy/hを継続することにした。

表2 平成13年度の指標線量率の標準偏差と指標線量率の設定値

H13年度	女川	飯子浜	小屋取	寄磯	鮫浦	谷川	平均
標準偏差	0.20	0.28	0.37	0.25	0.26	0.24	0.27

単位:nGy/h

次に、指標線量率の適切なスクリーニングレベルを決定するため、表3のとおり指標線量率の設定値にした場合の指標線量率超過数を算出した。鉛遮へいを取り外した後の仮設定値における指標線量率超過数の試算結果を表4に示すが、鉛遮へいを取り外してから平成29年12月までの約1年間での超過数は3個となった。鉛遮へいを取り外す前の設定値の超過数は年平均4.1個であったため、従来と同程度の超過数が見込まれ、鉛遮へいを取り外す前と同程度の水準で監視を行うことが可能になると考えられる。

表3 鉛遮へいを取り外した後の指標線量率の標準偏差と指標線量率の設定値

	女川	小屋取	寄磯	塚浜	寺間	江島	前網
標準偏差	0.36	0.52	0.47	0.46	0.44	0.35	0.74
	↓ × 7.4						
設定値(仮)	2.7	3.8	3.5	3.4	3.3	2.6	5.4 4.0※

※ 前網局においては、暫定設定値4.0nGy/hを継続。 単位:nGy/h

表4 仮設定値における指標線量率超過数

	宮城県設置			東北電力設置			
	女川	小屋取	寄磯	塚浜	寺間	江島	前網
設定値(仮) 単位:nGy/h	2.7	3.8	3.5	3.4	3.3	2.6	4.0
超過数 (H29年4月～H29年12月)	0	0	0	3	0	0	0

IV まとめ

今回、MSにおける鉛遮へい取り外しから約1年経過し、測定データが蓄積されてきたことから指標線量率の設定値の見直しを行った。指標線量率の標準偏差はNaI線量率と線形的関係にあることが判明したため、見直しにあたっては従来のような一律の設定値とはせず、局毎に「鉛遮へいを取り外した後の指標線量率の標準偏差を7.4倍した値」として設定値を算出した。ただし、暫定値である4nGy/hを超えた前網局は、暫定値4nGy/hを継続することにした。本設定値では、約1年間の超過数が3個であり、鉛遮へいを取り外す前の設定値の超過数と同程度であることから、当該設定値を採用することで鉛遮へいを取り外す前と同程度の水準で監視を行うことが可能になると考えられる。

今後、指標線量率の精度向上のために計算方法の見直し等を行った際には、改めて設定値を検討する。

V 参考文献

- 1) 文部科学省、放射能測定法シリーズ17
- 2) 森内茂、スペクトル加重関数方式による環境γ線線量測定器に関する研究、JAERI-M7066, 1977
- 3) 石幡茜ほか、宮城県環境放射線監視センター年報、第2巻、p.20-26(2016)
- 4) 湊進、名古屋工業技術試験所報告、27、p.384-397(1978)
- 5) 今野達矢ほか、宮城県原子力センター年報、第19巻、p.46-52(2001)
- 6) 木立博ほか、宮城県原子力センター年報、第20巻、p.18-32(2002)

新たな指標海産物の検討状況について

小笠原一孝，高群富貴，石川陽一，高橋正人，安藤孝志

女川原子力発電所環境放射能及び温排水測定基本計画等に基づき，従来からアラメを指標海産物として位置づけて放射能を測定してきたが，東日本大震災後に磯焼けが牡鹿半島においても進行し，近い将来アラメの採取が困難となることが懸念された。この状況に鑑み，代替試料としてエゾノネジモクの試験採取及び放射能測定を行ったところ，指標海産物としての適合性が示唆された。

I はじめに

宮城県及び東北電力株式会社（以下，東北電力）では，女川原子力発電所環境放射能及び温排水測定基本計画等に基づき，従来から年 4 回アラメを採取し，放射能濃度を測定してきた。原子力発電所周辺の動植物調査は放射能漏洩の有無を判断する上で重要なものであり，特にアラメについては，放射性ヨウ素の検知が期待されていることから，その重要性は高い。

しかし，東日本大震災時の津波の影響によって海域の状況が安定していない上，ウニの大量発生による食害で，いわゆる磯焼けが牡鹿半島においても進行し，アラメが以前ほど生息していない状況である。このため，現在も辛うじて採取は出来ているものの，個体は以前よりも痩せており，近い将来採取が困難となることが懸念された。

この状況に鑑み，2017年3月に学識経験者の意見を聴取するなど，各種の検討を行ったところ，牡鹿半島東側はアラメよりもホンダワラ類が優占種であり，その中でもホンダワラ属のエゾノネジモク^{1,2)}が広域的に分布しているため，採取対象として好適であると考えられた。そこで，宮城県及び東北電力では，アラメの放射能測定と並行して，エゾノネジモクの試験採取及び測定を行い，指標海産物としての適合性を検討した。

II 採取の検討

1 エゾノネジモクの生態

エゾノネジモクは，褐藻類ヒバマタ目ホンダワラ科ホンダワラ属の海藻であり，太平洋沿岸では北海道函館から宮城県牡鹿半島，日本海沿岸では北海道留萌から長崎県五島に分布する²⁾。冬季に生長し，夏季に主枝が脱落する。一般に波当たりの強い暗礁の，水深が浅い硬い岩の上に生育する。また，アラメと同様に概ね水深1メートルから3メートルの範囲に存在する。

2 試料の選定

食品とは別に、海洋放射能汚染を把握するために調べる試料を指標海産物と称している。従来から調査しているアラメは指標海産物であり、その I-131 の濃縮係数の高さから³⁾、海水中の放射性ヨウ素の濃度変動の指標となる。I-131 は原子炉内では核燃料物質の核分裂により生成されるため、アラメは原子力施設からの予期しない放射性物質の漏洩検知に有用である。

原子力規制庁から示されている資料⁴⁾によると、指標海産物の選定には一定の条件があり、四半期など一定間隔で継続的に採取可能であること、放射性物質の生体濃縮の速度や度合いが大きいこと、監視対象の地域で容易に採取できることが挙げられている。具体例としては、ホンダワラ、カジメ等がある。宮城県では現状、海藻としてアラメ、貝類としてムラサキイガイを選定している。

これらの選定条件をもとにエゾノネジモクを検討対象とした理由は、牡鹿半島においてはアラメよりもホンダワラ属の方が優占種であること、他のホンダワラ属（アカモク等）と比較して通年採取可能であり、アラメと比較して魚介類による食害の影響が小さいなどの特徴による。また、エゾノネジモクの付着器には、複数の茎が密集している。この外見は他のホンダワラ属と明らかに異なるものであり、現場での同定が容易であることも対象にした理由の一つである。さらに、エゾノネジモクは褐藻類であり、一般的に褐藻類はヨウ素を濃縮しやすい⁵⁾と言われ、海水中の放射性ヨウ素の濃度変動の指標として期待される。

また、他道府県の採取状況を確認したところ、エゾノネジモクに限定して調査している道府県は無いが、9 道府県でホンダワラ属を調査しており、そのうち 4 県で福島第一原発事故後に I-131 の検出例がみられた^{6)~10)}。

3 採取地点の検討

採取方針として、従来アラメを採取している地点を調査し、生育が認められない場合は他地点を検討することとした。調査の結果、牡鹿半島西側の宮戸では生育が確認できず、小竹浜で採取可能であった。同様に牡鹿半島南側の鮎川清崎でも生育しておら

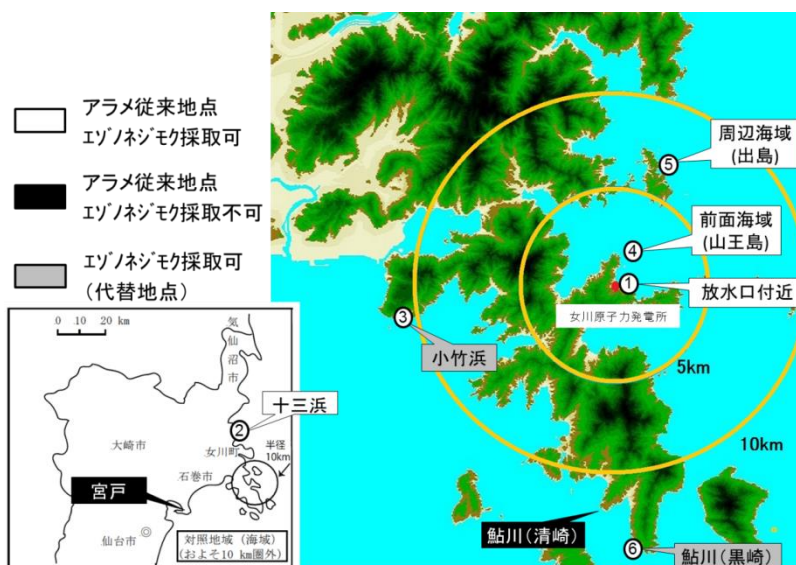


図1 採取地点図

ず、鮎川黒崎で採取可能であった。周辺海域（出島）では波の高い日が続き採取不可であったが、2018年2月に調査を実施し生育していることを確認した。他の地点ではアラメと

同じ地点で採取が可能であった。

III 測定結果

1 放射能濃度

2017年7月～2018年2月の間に行った試験測定の結果を表1に示す。採取地点は周辺海域（出島）を除いた5地点、総試料数は9検体であった。

I-131は全ての試料において検出されなかったが、2018年2月の放水口付近の1試料に僅かなピークが見られた。また、Cs-137は不検出（以下ND）～0.56 Bq/kg生の範囲で検出され、アラムの測定値範囲と同程度であった。その他の対象核種（Mn-54, Co-58, Fe-59, Co-60, Cs-134）は全ての試料において検出されなかった。

表1 放射能濃度測定結果

単位：Bq/kg 生

採取地点	放水口付近					牡鹿半島北側(十三浜)			
	アラム		エゾノネジモク			アラム		エゾノネジモク	
採取月日	2017.5.18	2017.11.7	2017.7.31	2017.11.20	2018.2.8	2017.5.11	2017.11.14	2017.8.10	2017.11.29
Cs-137	ND	(0.10)	0.098±0.014	0.14±0.04	ND	ND	ND	0.20±0.04	(0.084)
I-131	ND	ND	ND	ND	(0.11)	ND	ND	ND	ND
K-40	319±2	361±2	180.2±0.9	257±2	275±2	236±2	367±2	274±3	291±2

採取地点	牡鹿半島西側(宮戸)		牡鹿半島西側(小竹浜)	
	アラム		エゾノネジモク	
採取月日	2017.5.11	2017.11.14	2017.12.7	
Cs-137	0.25±0.03	0.17±0.04	0.13±0.03	
I-131	(0.14)	ND	ND	
K-40	364±2	422±2	274±2	

前面海域(山王島)			
アラム		エゾノネジモク	
2017.6.9	2017.11.15	2017.8.28	2017.11.15
ND	0.098±0.018	0.098±0.018	(0.071)
ND	ND	ND	ND
394±2	354±2	281±1	278±1

採取地点	周辺海域(出島)			
	アラム		エゾノネジモク	
採取月日	2017.5.22			
Cs-137	(0.057)			
I-131	ND			
K-40	290±1			

牡鹿半島南側(鮎川:清崎)		牡鹿半島南側(鮎川:黒崎)	
アラム		エゾノネジモク	
2017.5.18	2017.11.13		2017.11.13
0.070±0.016	0.14±0.02		0.56±0.02
ND	ND		ND
344±1	385±2		266±1

(注) カッコ()内の値は、検出下限値未満であるが、スペクトルに光電ピークが存在する場合の検出下限値を示す。

2 濃縮係数

Cs-137とK-40の濃縮係数¹¹⁾(=海
藻中の含有濃度 / 海水の含有濃度)の比
較を表2に示す。

2核種の比較であるが、アラムとエゾノ

表2 濃縮係数の比較

核種	アラム	エゾノネジモク
Cs-137	30 ¹²⁾ 24～51 ¹⁴⁾	63 ¹³⁾ 20～29 ¹⁴⁾
K-40	30 ¹⁵⁾	24 ¹³⁾

ネジモクの濃縮係数は同程度であった。

IV まとめと今後の予定

以上の結果から、エゾノネジモクの新たな指標海産物としての適合性が示唆された。

今後、アラメと同様に四半期ごとに採取し、安定的な採取の可否及び放射能濃度を確認する。また、エゾノネジモクは褐藻類であるが、一般的に褐藻類はヨウ素を濃縮しやすい⁵⁾ため、安定ヨウ素等の元素濃度を測定し、アラメとエゾノネジモク間の濃縮係数を比較し、アラメに代わる新たな指標海産物としてのより詳細な適合性を検証する予定である。

V 参考文献

- 1) Y.Agatsuma, K.Narita, and K.Taniguchi, *SUISANZOSHOKU*, **50**(1),25-30(2002).
- 2) 能登谷正浩編著, 藻場の海藻と造成技術, p.75-83(2003).
- 3) 石川陽一, 博士論文, p.204(1992).
- 4) 原子力規制庁, 平常時モニタリングについて(原子力災害対策指針補足参考資料), p.47(2018).
- 5) 布施養善, *Biomed Res Trace Elements*, **24**(3), 117-152(2013).
- 6) 石川県, 志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書 平成 23 年度第 1 報, p.44(2012).
- 7) 愛媛県, 伊方原子力発電所周辺環境放射線等調査結果, p.88-91,p.114-115(2012).
- 8) 佐賀県, 玄海原子力発電所の運転状況及び周辺環境調査結果(季報), II-5(2011).
- 9) 福井県, 原子力発電所周辺の環境放射能調査報告 平成 22 年度年報, p.114(2011).
- 10) 福井県, 原子力発電所周辺の環境放射能調査報告 平成 23 年度第 1 報, p.57(2011).
- 11) IAEA, *Technical Reports Series*, No.422, **26**. 51-52 (2004).
- 12) 女川原子力発電所環境放射能調査結果の放水口データより算出(2014-2017).
<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/kankyo-onhaisui.html>
- 13) 宮城県, 平成 29 年度環境放射能監視検討会: 資料 3.
<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/o-kyogikaigijyutukaikentokai.html>
- 14) Y.Tateda, T.Koyanagi: *J.Radioat.Res.*, **35**, 213-221(1994).
- 15) 女川原子力発電所環境放射能調査結果の放水口データより算出(2012-2017).
<http://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/kankyo-onhaisui.html>

ICP 発光分析における内標準法を用いた試料調製について

伊藤節男

当センターでは2015年度から放射性ストロンチウム分析の一環として、ICP発光分析装置(サーモフィッシャー ICP-OES 7400)を使用した環境試料中の金属(主に Sr, Ca)の分析を行っている。

このICP-OESを用いた分析については、物理干渉やイオン化干渉がたびたび影響を及ぼすことが報告されている。当センターでは、これまでイオン化干渉抑制剤及び物理干渉抑制のための内標準元素について検討した。その後の検討でも未解決の問題はあるが、成果を踏まえた実用的な方法を紹介したい。この方法は、干渉を除去しきれない測定試料の場合に実施する標準添加法でも大幅な省力化が可能であると考えている。

I はじめに

内標準法は物理干渉の補正に大変有用であるが、対象溶液中の濃度は正確に調製する必要がある。そのため通常の調製方法では母溶液を正確に一定量メスフラスコに採取し、内標準液も正確に一定量をそのメスフラスコに添加し、純水で正確にメスアップする。

この方法の問題点は、多数検体の場合に相当の労力を要することであり、また、標準添加法を行う場合は、その労力が、さらに3倍～4倍に増加する。

そういった問題点を解決するため、今回ICP-OESの多元素・多波長の同時測定機能を活用して正確な結果が期待でき、かつ、簡易な試料調製方法を検討したので紹介する。

II 測定手順

1. 内標準液(イオン化干渉抑制剤を含む)の調製
2. 測定対象溶液(灰化試料を塩酸で抽出し0.45 μ mメンブレンで濾過し定量にしたもの。)を、いくつかの希釈倍率で正確に希釈したものを用意する。ここでは、ホールピペットとメスフラスコを用いる。
3. 15ml ねじ口試験管(ポリプロピレン製)に対象溶液を正確に、例えば1.0 mlを採取する。
4. 内標準液を正確に1.0ml 加える。
5. 純水を約9ml(正確でなくてもよい)加え攪拌混合する。
6. ICP-OESを用いて内標準法で測定する。
7. 同様に標準試料(Ca, Sr, Mg各50.0mg/Lの濃度に調製)を正確に分取して調製した標準溶液を内標準法で測定し検量線を作成し、濃度を算定する。

算定した濃度に対象溶液の希釈倍率を乗ずることで母溶液の濃度が算定できる。

標準添加法では、対象溶液に標準試料を正確かつ段階的に添加・調製し内標準法で測定する。

III 改善提案

ここで、問題になるのが試料を正確かつ手軽に量れるかということだが、これはGilson社のマイクロマン(登録商標、以下同じ)というマイクロピペットの使用で解決できる。

これは、ポジティブディスプレイメント(チップ内にピストンを内蔵している)方式を採用していて、メーカーの説明書にも正確性・繰り返し再現性が記載されている。

当センターでは、この正確性・繰り返し再現性を検証し、十分な繰り返し再現性を確認した。その結果を次の表に示す。

表 マイクロマンでの設定値と採取量の関係

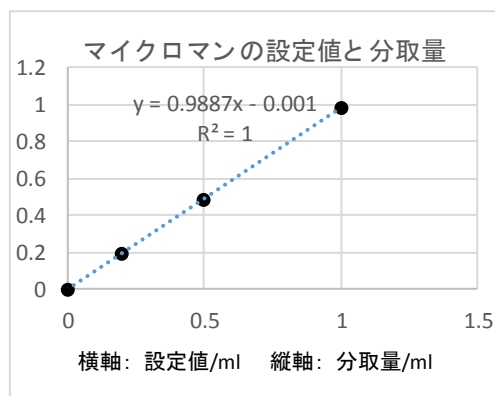
回数	イオン交換水				カキ分解液			
	設定値=1.000mL		設定値=0.500mL		設定値=0.200mL		設定値=1.000mL	
	重量(g)	容量(ml) ^{*1}	重量(g)	容量(ml) ^{*1}	重量(g)	容量(ml) ^{*1}	重量(g)	容量(ml) ^{*2}
1	0.9857	0.9876	0.4919	0.4928	0.1947	0.1951	1.0081	0.9903
2	0.9874	0.9893	0.4924	0.4933	0.1960	0.1964	1.0077	0.9899
3	0.9869	0.9888	0.4937	0.4946	0.1944	0.1948	1.0076	0.9898
4	0.9862	0.9881	0.4927	0.4936	0.1955	0.1959	1.0091	0.9913
5	0.9851	0.9870	0.4936	0.4945	0.1949	0.1953	1.0081	0.9903
6	0.9853	0.9872	0.4933	0.4942	0.1946	0.1950	1.0090	0.9912
7	0.9866	0.9885	0.4933	0.4942	0.1953	0.1957	1.0093	0.9915
8	0.9861	0.9880	0.4927	0.4936	0.1949	0.1953	1.0084	0.9906
9	0.9862	0.9881	0.4917	0.4926	0.1944	0.1948	1.0097	0.9919
10	0.9845	0.9864	0.4918	0.4927	0.1958	0.1962	1.0080	0.9902
最小値		0.9864		0.4926		0.1948		0.9898
平均値		0.9879		0.4937		0.1954		0.9907
最大値		0.9893		0.4946		0.1964		0.9919
標準偏差		0.0009		0.0008		0.0006		0.0007

*1 : イオン交換水の密度 (ホールピペット+天秤で測定) = 0.99809g/ml で換算

*2 : カキ分解液の密度 = 1.01797g/ml で換算

イオン交換水での設定値と採取量の相関性

	平均	最小	最大
0	0	0	0
0.2	0.1954	0.1948	0.1964
0.5	0.4937	0.4926	0.4946
1	0.9879	0.9864	0.9893
傾き	0.9887	0.9873	0.9899
切片	-0.0010	-0.0012	-0.0006
相関係数	1.0000	1.0000	1.0000



また、ダイヤル表示と採取量に1%程度のずれが認められるが、検量線作成と測定試料分取を同一のピペットで調製(当然チップは交換する)することで問題にはならない。

この方法の採用によって、ホールピペットでの秤量、メスフラスコでのメスアップの回数を大幅に低減でき、標準添加法を行う場合でもそれほどの負担無く実施できるものと考えている。

IV 測定事例

以下に、測定試料として海藻のアラメの分解液(灰試料を塩酸抽出し0.45μmメンブレンで濾過し定量する)を希釈し内標準液(当センターでは、Y 10mg/L, Yb 10mg/L, La 20mg/Lの濃度で、かつ、イオン化干渉抑制剤(CsCl)を同時に含む。)を加え標準添加法で測定した例を示す。

測定試料等

標準試料： Ca, Sr, Mg 各 50.0mg/L(混合液として調製する)

内標準液： Y10 mg/L, Yb10 mg/L, La20mg/L, 0.8M CsCl (混合液として調製する)

測定試料1 標準試料 (0, 0.5, 1.0, 2.0 ml) + 純水

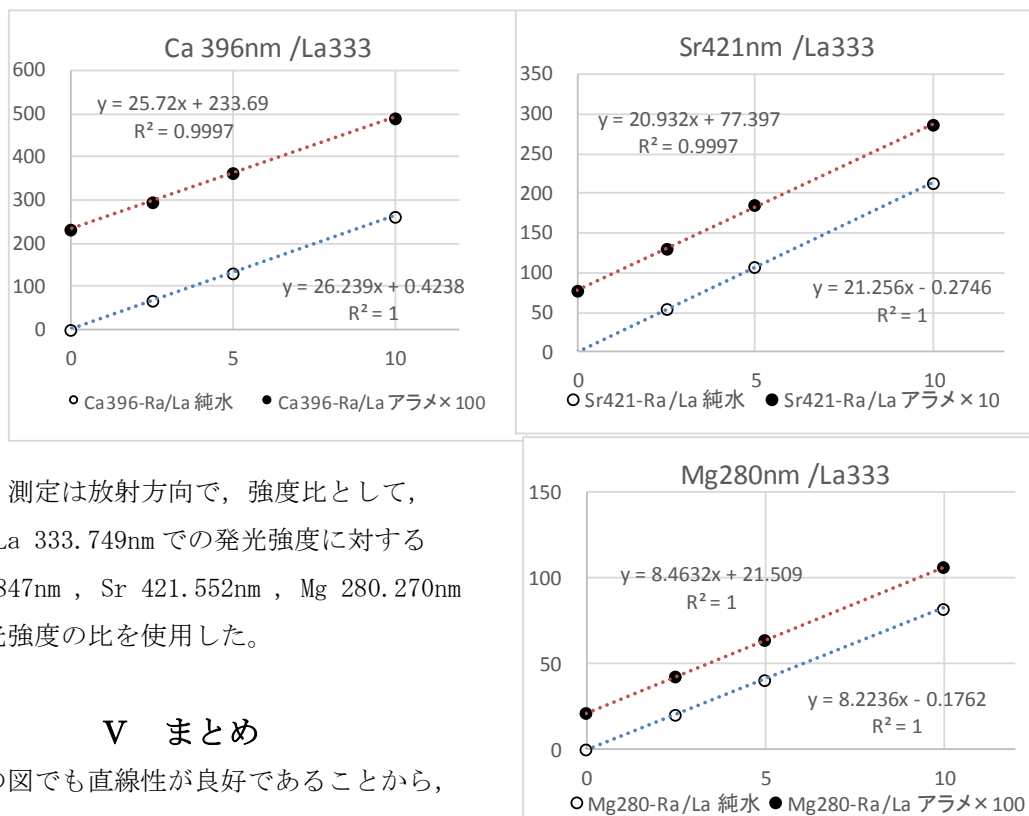
測定試料2 アラメ分解液 10 倍希釈 1.0ml + 標準試料 (0, 0.5, 1.0, 2.0ml) + 純水

測定試料3 アラメ分解液 100 倍希釈 1.0ml + 標準試料 (0, 0.5, 1.0, 2.0ml) + 純水
全測定試料に内標準液を 1.0ml 添加した。

この条件では、標準添加に際しての増分が、Ca, Sr, Mg とも 0~10mg/L となる。

IV-2 結果

添加量	Ca396-Ra/La		Sr421-Ra/La		Mg280-Ra/La	
	純水	アラメ×100	純水	アラメ×10	純水	アラメ×100
0	0.151	233.620	-0.025	76.089	0.024	21.507
2.5	65.790	296.324	52.543	130.294	20.186	42.481
5	132.511	364.922	105.991	183.827	40.836	64.110
10	262.424	489.990	212.376	285.697	82.162	106.046
傾き	26.239	25.720	21.256	20.932	8.224	8.463
切片	0.424	233.688	-0.275	77.397	-0.176	21.509
相関係数	1.0000	0.9997	1.0000	0.9997	1.0000	1.0000



なお、測定は放射方向で、強度比として、
内標準 La 333.749nm での発光強度に対する
Ca 396.847nm, Sr 421.552nm, Mg 280.270nm
での発光強度の比を使用した。

V まとめ

いずれの図でも直線性が良好であることから、
本提案の有用性が示されている。

ただし、イオン化干渉抑制剤を用いても、干渉を完全に除去することが達成できていない。
このことは、引き続き今後の検討課題にしたい。

福島第一原発事故後の空間ガンマ線量率の経時変動

安藤孝志, 石川陽一, 木村昭裕, 高橋正人

2011年3月の福島第一原発事故後、全国的なモニタリング体制を整備するために環境放射能水準調査として県内7か所に設置したモニタリングポストにおける空間ガンマ線量率の推移をまとめたところ、ほとんどの地点で同事故由来による放射性物質の影響がみられたが、石巻市内に設置したモニタリングポストでは、その影響はほとんどみられなかった。これは、設置した地点が東日本大震災による津波で冠水したことから、放射性物質の地面への蓄積がほとんどなかったためと考えられた。

また、ガンマ線スペクトルから推定した放射性セシウム寄与量の推移は、計算値より速いペースで低減していた。これは、ウエザリング効果の影響であると考えられた。

I はじめに

2011年8月2日、モニタリング調整会議決定の「総合モニタリング計画」において、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故（以下「福島第一原発事故」）を受け、空間ガンマ線量率や土壌等の放射能調査体制の強化を図るため、都道府県に各1基設置されているモニタリングポスト（以下「MP」）を約250基増設するという方針が示された¹⁾。その計画を受け、宮城県においても、従来、仙台市内1か所に設置していたMPを、2012年3月末までに県内7か所に増設し、空間ガンマ線量率を連続測定している。

MP増設後、6年が経過したことから、これまでの測定結果の時系列を整理し、その傾向の解析を行ったので報告する。

II 方法

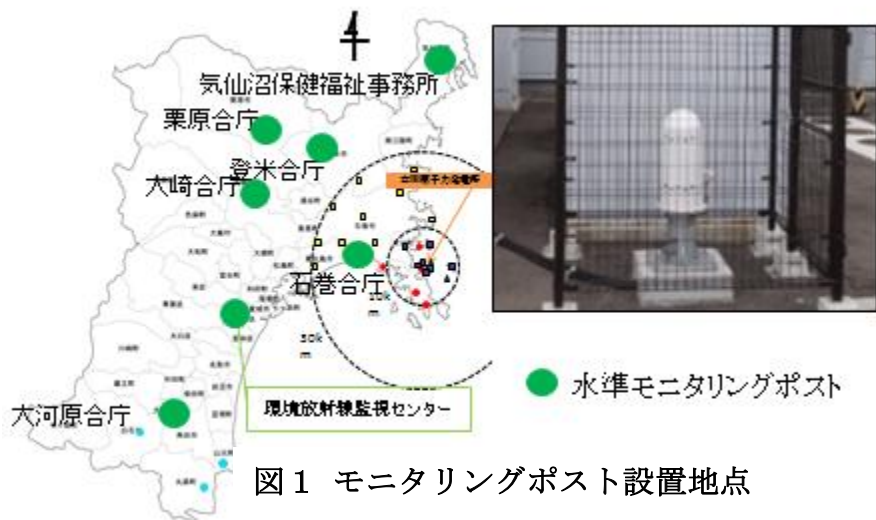
MPの設置地点は、図1に示す7地点である。

また、測定機器の仕様等については、以下に示すとおりである。

- 1 測定器 環境放射線モニタ（温度補償型2”φ×2” NaI(Tl)シンチレーション検出器、日立アロカメディカル(株)製 MAR-22)
- 2 測定高 地上高1m
- 3 データ転送 県内7か所の測定データは、宮城県環境放射線監視センター（以下「監視センター」）内に設置しているサーバーで収集し、日本分析センター内に設置している収集サーバーへ転送している。その結果は、原子力規制委員会のホームページ²⁾上でリアルタイムに公開されている。
- 4 伝送頻度 10分値平均値を10分毎に伝送
空間ガンマ線量率の解析は、原子力規制委員会のホームページ²⁾から10分値をダウンロードし、月平均値等を算出して解析に用いた。

また、ガンマ線スペクトルの解析は、メモリ媒体で収集したガンマ線スペクトルを放射

線地学研究所製スペクトル解析ソフトウェア SUCSF-K³⁾ を用いて行い、Cs-137 及び Cs-134 等の寄与分を算出した。



III 結果及び考察

各MPにおける2012年4月から2018年3月までの月平均値の推移を図2に示す。石巻合同庁舎（以下「合庁」）及び監視センターを除く地点では、福島第一原発事故の影響による空間ガンマ線量率の上昇が大きく、その後徐々に低下する傾向が見られた。

一方、石巻合庁（図3）及び監視センターでは、空間ガンマ線量率の変動がほとんどみられなかった。石巻合庁は、東日本大震災の津波に伴い敷地全体が冠水⁴⁾したことから（図4）、福島第一原発事故由来の放射性物質が地面にほとんど蓄積しなかったためと考えられた。

また、監視センターは、2015年3月に新たに宮城県保健環境センター敷地内に建設したもので、建設工事に伴い敷地表面のはぎ取り等が行われたことにより、福島第一原発事故の影響がほとんどないと考えられた。

降雨による空間ガンマ線量率の上昇がない2012年4月8日及び2016年12月3日の11時から12時までの積算ガンマ線スペクトルの解析による各地点のCs-137及びCs-134の寄与量（以下「Cs-137等寄与量」）を表1に示す。石巻合庁及び監視センターを除く5地点では、2012年4月8日の推定バックグラウンドとCs-137等寄与量との比は、0.90～2.21で、高い値を示していた。一方、石巻合庁では、0.38と低い値であった。

2012年4月8日と2016年12月3日のCs-137等寄与量を比較すると、監視センターを除く6地点で、Cs-137等寄与量は約60%低下していた。物理学的半減期から計算した値では、約39%の低下となることから、降水による流出及び地中へ浸透等のウエザリング効果⁵⁾により計算値よりも大きい低下率となったものと考えられた。

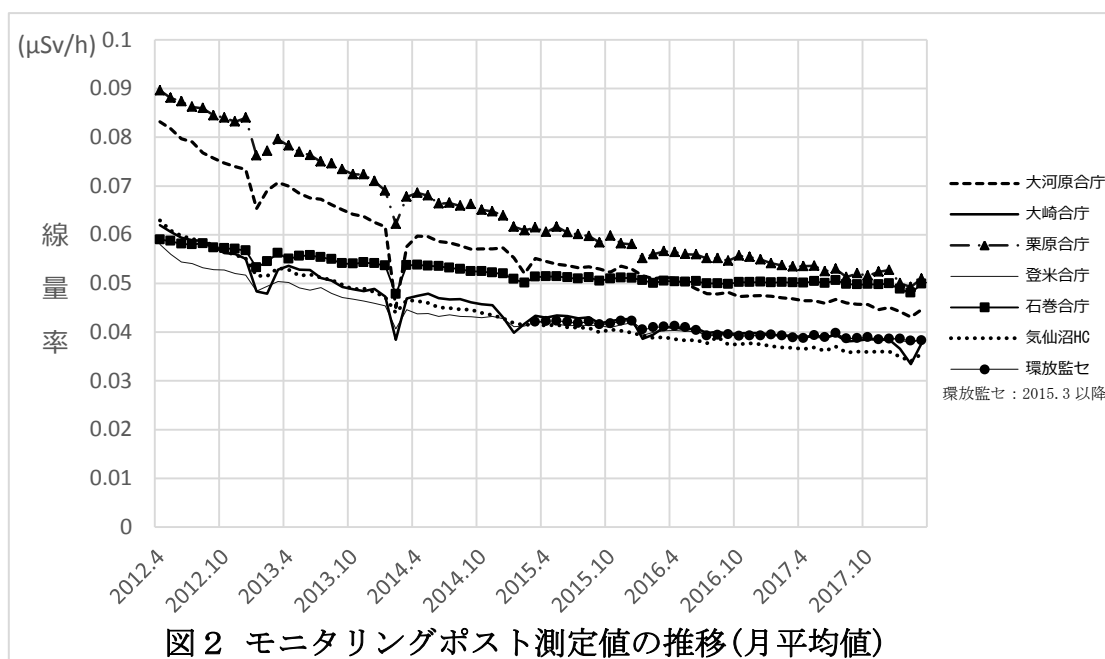


図2 モニタリングポスト測定値の推移(月平均値)



図3 石巻合庁モニタリングポスト



図4 石巻合庁冠水状況⁴⁾

表1 各モニタリングポストにおけるCs-137, 134 寄与量等*

	大河原合庁		石巻合庁		大崎合庁		登米合庁		栗原合庁		気仙沼保福事務所		環放監センター
	2012/4/8 (a)	2016/12/3 (d)	2012/4/8 (e)	2016/12/3 (d)	2012/4/8 (e)	2016/12/3 (d)	2012/4/8 (e)	2016/12/3 (d)	2012/4/8 (e)	2016/12/3 (d)	2012/4/8 (e)	2016/12/3 (d)	2016/12/3 (d)
線量率(ベクトル解析) (nGy/h) (a)	91	53	61	53	66	44	61	44	97	62	65	37	44
Cs-137,134 寄与量 (nGy/h) (b)	63	21	17	7	39	17	29	10	65	27	42	16	9
推定バックグラウンド (BG) (nGy/h) (a-b)	28	32	44	46	27	26	32	33	32	35	24	22	35
MP線量率 (nSv/h)	83	47	58	50	61	39	58	39	89	55	63	37	39
BGとCs-137,134の比 (b/BG)	2.21	0.65	0.38	0.15	1.45	0.66	0.90	0.31	2.00	0.77	1.75	0.72	0.27
Cs-137,135の低下割合 (bc-bd)/bc		0.67		0.59		0.56		0.64		0.59		0.62	

* スペクトル解析による線量率は、ガンマ線入射方向等補正後の値(1.34倍)⁶⁾

2012年4月8日の空間ガンマ線量率であり差のない大崎合庁と石巻合庁のガンマ線スペクトルを図5に示す。大崎合庁のガンマ線スペクトルでは、Cs-137及びCs-134の

きなピークが確認でき、その寄与量が大きいことがわかる。一方、石巻合庁のガンマ線スペクトルでは、Cs-137 及び Cs-134 のピークはさほど大きくはなく、他の部分のカウント数が多いことから、天然放射性核種の影響が大きいと考えられた。

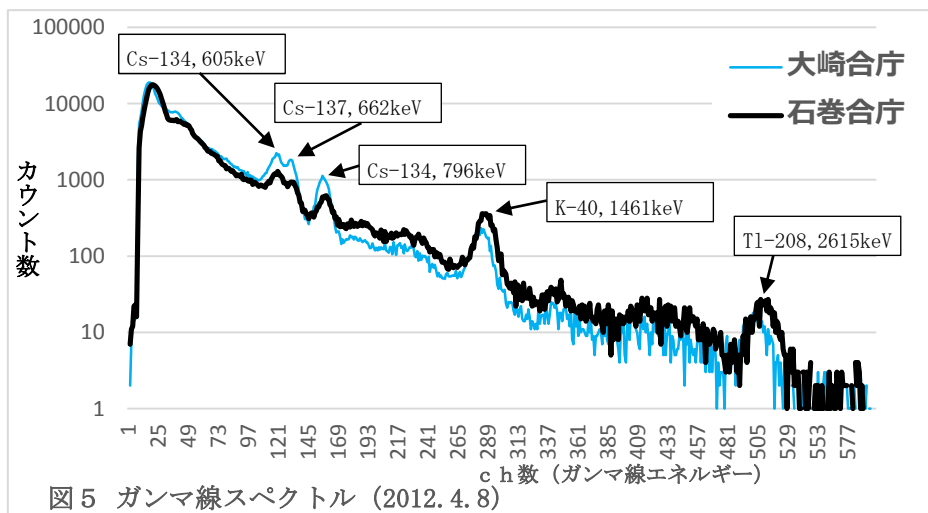


図5 ガンマ線スペクトル (2012. 4. 8)

IV まとめ

MPは、福島第一原発事故前は、仙台市内1か所のみであり、県内全域の空間ガンマ線量率を把握することは難しかったが、同事故後、7か所に増設することにより、県内全域の空間ガンマ線量率レベルの傾向を把握することが容易になったと考えられる。

仙台市内以外では、同事故以前の空間ガンマ線量率の測定データはないが、同事故後に測定したガンマ線スペクトルから Cs-137 及び Cs-134 の寄与量等を算出することが可能であり、石巻合庁及び監視センターを除く5地点では、2012年4月8日における Cs-137 等寄与量が推定バックグラウンド値と同等かそれ以上の値を示しており、県内全域へ同事故の影響があったことを確認することができた。また、Cs-137 等寄与量は、監視センターを除く7地点で、ウエザリング効果により物理学的半減期よりも早いペースで低下していた。

なお、本報告は、原子力規制庁から受託して実施している「環境放射能水準調査」のデータを活用してとりまとめたものである。

V 参考文献

- 1) モニタリング調整会議，総合モニタリング計画(平成23年8月2日決定)，3 1)
- 2) 原子力規制委員会，放射線モニタリング情報，全国及び福島県の空間線量測定結果
<http://radioactivity.nsr.go.jp/map/ja/>
- 3) 湊 進，環境 γ 線解析用 49×49 応答行列の紹介(2015)，放地研ホームページ
<http://www1.s3.starcat.ne.jp/reslnote/>
- 4) 宮城県環境生活部，東日本大震災～宮城県環境生活部の活動記録～，p.200-201
- 5) 飽本一裕，福島第一原発事故が及ぼしたセシウム起源空間放射線量率の福島県における経時変化と場所依存性，Radioisotopes61,373-378,2012
- 6) 宮城県環境放射線監視センター年報，第1巻，p.14-25，2015

NaI(Tl)検出器による空間ガンマ線スペクトルの解析に基づく

放射性セシウム寄与の変動

石川陽一、木村昭裕、高橋正人、安藤孝志

福島第一原発事故後の2012年4月-2018年4月に宮城県北部でNaI(Tl)検出器により測定された空間ガンマ線スペクトルをレスポンスマトリクス法で処理し、事故由来放射性セシウム(Cs-134、Cs-137)起因ガンマ線の線束密度と線量率を分離評価した。セシウム寄与線量率に対する周辺環境の違いや積雪の有無、ウェザリングなどによる影響を検討した。Cs-134とCs-137の全線量率の減衰率から、物理学的半減期を考慮後のセシウムのウェザリング半減期は、周辺が土壌の場合約15-23年、舗装面の場合約7-8年と算出された。周辺が土壌の場合のCs-134, 137一次ガンマ線(直接線)から求めた同半減期は約11-12年であり全線量率より短かった。セシウムの線量ビルドアップファクターが経年増加傾向を示したことから合わせ考えると、セシウムの土壌中への浸透が示唆された。

I はじめに

福島県の北隣に位置する宮城県は、2011年3月の東京電力福島第一原発事故起因の放射性物質によって広域汚染を受けたが、それから数年以上が経過して放射線・放射能による影響はかなり落ち着いてきている。しかし、当初の汚染の程度が同程度であっても周辺環境によってその後の経過に違いが出ることも予想される。また、同じ場所であっても、年数が経過することによって地表に沈着した放射性セシウム(Cs-134, 137)の水平・垂直分布が次第に変化することも報告されている¹⁾。宮城県内には県や市町村設置分のほかに国設置分も含めると多数(75カ所)の放射線測定器がある。それらのうち、国が設置した放射能水準調査用モニタリングポストは県広域の7カ所に配置されている(主に県合同庁舎敷地内)。これらの測定設備においては、NaI(Tl)検出器が地上1m高に設置されており、比較的良好な環境の箇所もある。これらの測定設備では全線量率のほかにガンマ線スペクトルも測定されているが、Cs-134, 137寄与分の線量率などを弁別評価可能なソフトウェアは整備されていないため、リアルタイムでは活用されていない。同事故後、湊²⁾は従来の22×22行列を用いるレスポンスマトリクス(RM)法に改良を加えて49×49行列を用いる高分解能スペクトル解析法(以後、単に”RM法”という)を開発し、容易にCs-134, 137や自然放射性核種の寄与評価が可能となった。本研究では、RM法を用いたNaI(Tl)スペクトル解析によって、空間ガンマ線の放射性セシウム寄与に対する周辺環境の違い、積雪の有無及びウェザリングなどによる影響を検討した。

II 方法

1 測定地点と周辺環境

図1に測定地点の地図と測定器周囲状況の写真を示す。7カ所のうち、本報告では比較的環境条件のよい北部の3地点、a 宮城県大崎合同庁舎(以下、大崎)、b 宮城県栗原合同庁舎(以下、栗原)、c 宮城県登米合同庁舎(以下、登米)を選び、2012年4月-2018年4月のデータを解析した。地点aは周囲が芝生面で、比較的良好な測定環境である。2017年11月21日には測定器周囲約2m以内の4



図1 測定地点地図と測定器周囲の状況

- a (●): 宮城県大崎合同庁舎
- b (●): 宮城県栗原合同庁舎
- c (●): 宮城県登米合同庁舎
- : ほかの放射能水準調査用
モニタリングポスト (MP)
- NaI(Tl)検出器地上高: 1 m
- a, b の周囲は芝生面
- c の周囲はアスファルト舗装面。

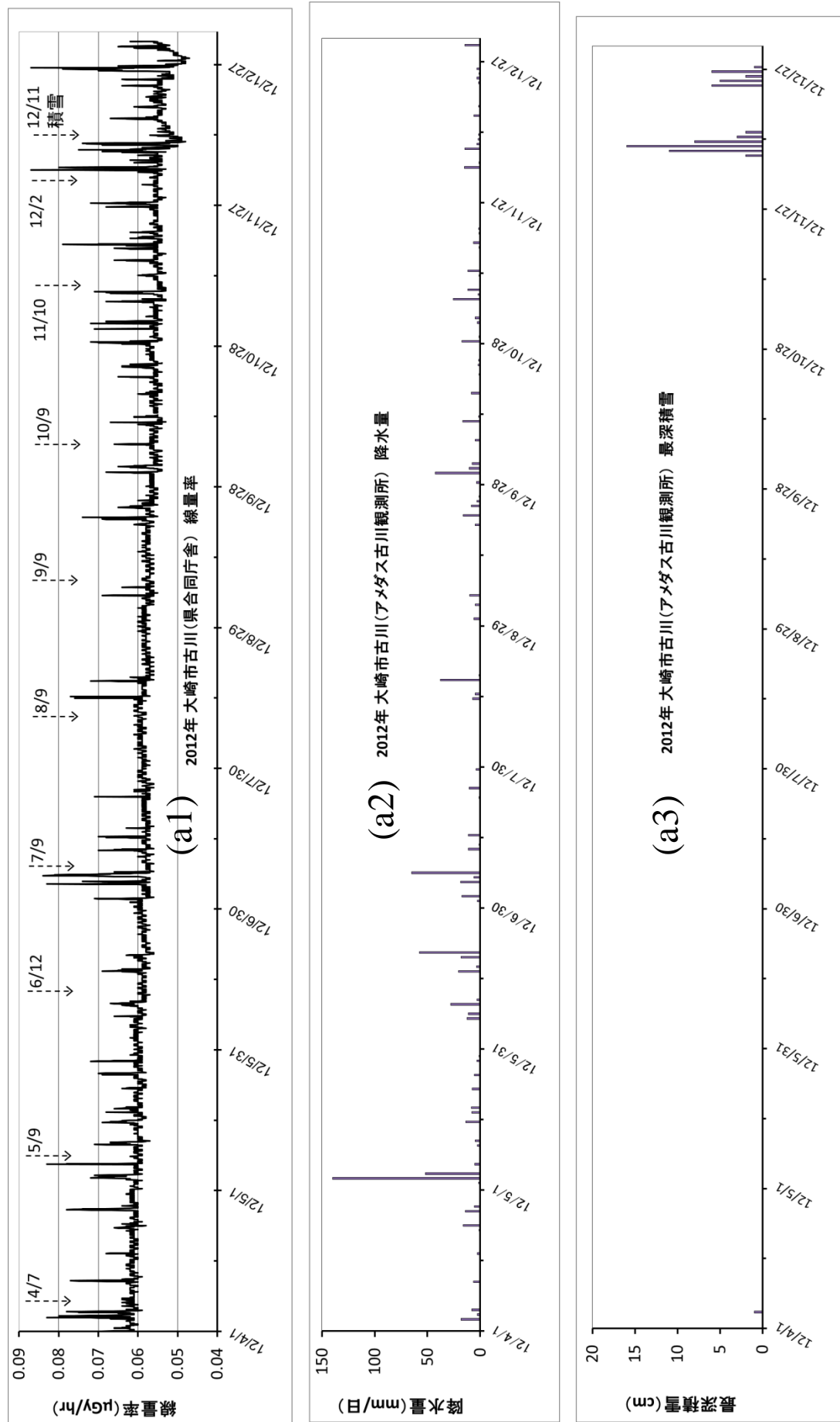


地点から地表 0-6 cm までの土壌を 1 cm 厚毎に採取し、層毎に混合して Ge 半導体検出器により放射能を測定して深度分布を求めた。b の栗原も周囲は土壌面であり、また c の登米はアスファルト舗装面となっている。

2 NaI (Tl) 検出器及びスペクトルデータの選択と処理

測定器は日立アロカ社製円筒形 2" × 2" NaI (Tl) 検出器を使用した。10分毎に測定されているスペクトルデータをCFメモリにて回収し、毎月1回、非降水日の昼間の1時間分を積算して使用した(図2)。積雪の影響を調べるため、遮蔽効果により線量率が低い時期のスペクトルデータも選択した。データ処理には、湊が 2" × 2" NaI (Tl) 検出器用に開発した 49 × 49 行列のレスポンスマトリクスを用いるソフトウェア (SUCSF2)²⁾ を使い、自然放射性核種と放射性セシウム (Cs-134, 137) 起因の線束密度、線量率及び線量ビルドアップファクター (DBF; dose buildup factor) などを求めた。なお、RM法で得られた全線量率を従来法 (G(E) 関数法、以後 "G(E) 法") と比較する際には補正係数を乗じる必要がある。湊によれば³⁾、低エネルギー散乱線成分が多くかつ主に水平に近い方向から均等入射する環境ガンマ線の場合、軸方向から標準線源で校正する通常G(E)法に比べると1.34倍程度低めの値を示す。理論上はRM法の方がより正確な線量率を示すものと考えられるが、日常的なモニタリングにおいてはG(E)法が用いられているため、本報告においては2種類の方法で得られた全線量率を比較する際には、RM法による線量率に1.34を乗じた。

図 2 2012 年 4-12 月の大崎における G(E)関数法によるガンマ線線量率 (a1)、降水量 (a2) 及び最深積雪 (a3) . 線量率グラフに矢印で示した月/日はスペクトル解析を行った日を示す.



III 結果及び考察

1 ガンマ線線量率の変動傾向

図2は2012年4-12月の大崎におけるG(E)法によるガンマ線線量率(a1)、気象庁アメダスによる降水量(a2)と最深積雪(a3)のデータを例として示す。線量率グラフに矢印で示した月/日はスペクトル解析用のデータ選択日を示す。前述のように、非降水日の昼間の1時間分のスペクトルを積算して使用した。線量率が上昇しているのはほとんどの場合降水に含まれるラドン娘核種による。冬期の12月に低下しているのは積雪による遮蔽効果による。12/11には積雪影響を調べるためにスペクトルデータを選択した。なお、NaI検出器が設置されている大崎合庁は積雪量を測っているアメダス観測所とは数km離れているため、必ずしもその場の積雪状況を反映していない可能性もある。同様に栗原と登米のデータも選択した。

2 スペクトルの経年変動と積雪による変化

図3は大崎における非積雪時(2012年から2年毎の4月)のスペクトルの経年変化を示す。右側にセシウム領域の部分拡大図も示す。Cs-134のピークが速やかに減少していることがわかる。しかし、未処理のスペクトルの観察では詳細な経年変動傾向や背景現象等を把握することが困難であるため、後述のようにスペクトル解析を行った。図4は大崎における比較的近い時期の非積雪時(2012/12/2)と積雪時(2013/1/16)のスペクトルを比較したものである。積雪によって、セシウム領域付近から低エネルギー側の計数が顕著に低下していることがわかる。

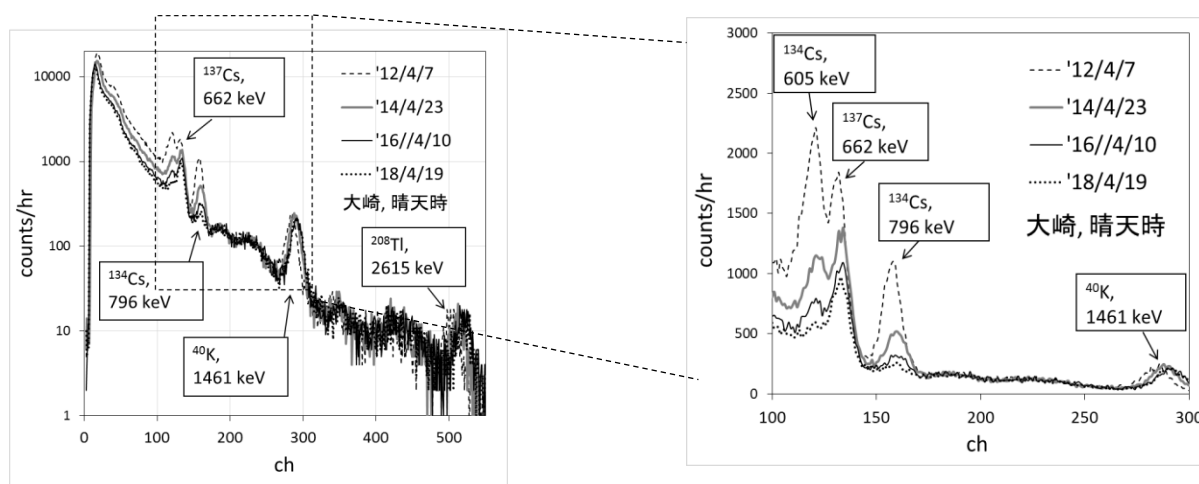


図3 大崎における非積雪時(2012, 2014, 2016, 2018年の4月)のスペクトルの経年変化

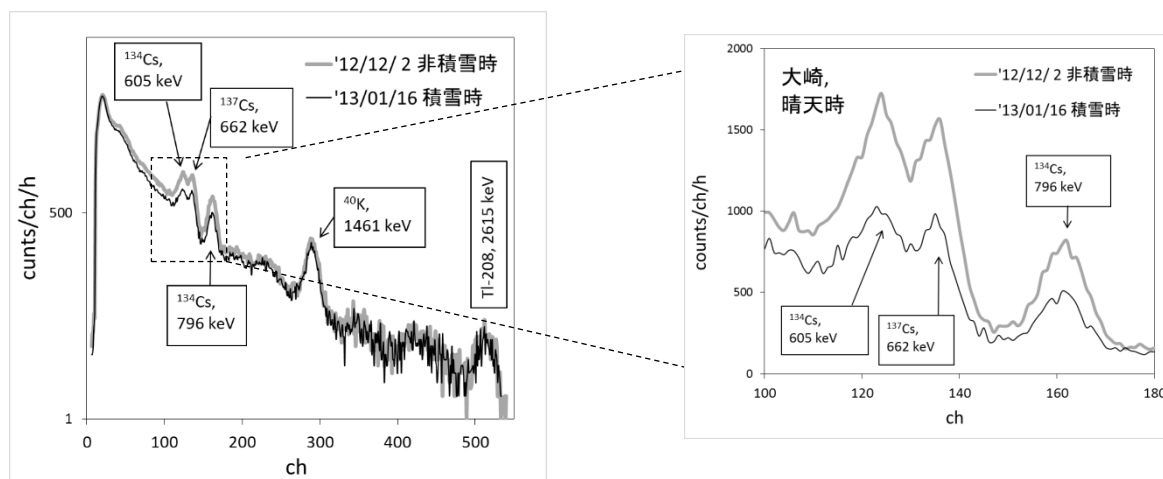


図4 大崎における非積雪時(2012/12/2)と積雪時(2013/1/16)のスペクトル比較

3 線束密度における経年変化と積雪の影響

図5は線束密度の経年変化を示しており、非積雪時の大崎における2012年12月2日と約5年余り後の2018年3月19日の全線束(a1)、自然核種線束(a2)及びCs-134, 137線束(a3)を比較したものである。当然ながら自然核種線束に変化はないが、半減期が約2年のCs-134の線束は顕著に減少している。Cs-137も半減期が約30年にもかかわらずかなり減少している。これは、後述のように当初は表面分布していた放射性セシウムが次第に地下浸透または流失等のウェザリングを受けたためと考えられる。図6はRM法で求めた、大崎における非積雪時(2012/12/2)と積雪時(2013/1/16)の全線束(b1)、自然核種線束(b2)及びCs-134, 137線束の比較(b3)結果を示す。積雪により自然核種線束は低エネルギー側で少し低くなっており、Cs-134, 137線束も顕著に低くなっていることがわかる。

4 RM法による線量率と線量ビルドアップファクター(DBF)の経年変化

図7は福島第一事故後の1-7年間の大崎と登米におけるRM法とG(E)法による全線量率(a1, b1)、Cs-134とCs-137の全線量率(a2, b2)、非積雪時のDBF(a3, b3)及び積雪時のDBF(a4, b4)の経年変動を示す。図8には栗原における福島第一事故後1-5年間の非積雪時のCs-134とCs-137の全線量率と一次(直接線)線量率の経年変動を示す。図7(a1, b1)のとおり、全線量率は次第に減少し、またRM法とG(E)法の値は割合よく一致した。Cs-134, 137線量率は縦軸を対数目盛にしてあるが、きれいな直線となり、指数関数的に減少している。またDBFは経年的に上昇傾向が認められる。これらのことから、次に述べるように地表における放射性セシウムの挙動に関する知見が得られる。

5 放射性セシウムの環境半減期とウェザリング半減期

地表に沈着した福島第一事故由来放射性セシウムの環境半減期からウェザリング半減期を試算する。セシウム放射能(または線量率)をCとし、ウェザリングによる減少が時間的に指数関数であらわされると仮定する。すると、Cが物理学的半減期による減衰率(壊変定数) λ_p とウェザリングによる減衰率 λ_w の両者によって減衰するので、これらの関係は次の(1)式の微分方程式で表される。

$$-\frac{dC}{dt} = (\lambda_p + \lambda_w)C \quad (1)$$

$\lambda_e = \lambda_p + \lambda_w$ と置くと λ_e は環境半減期(見かけの半減期)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ウェザリングによるセシウムの真の減衰半減期 T_w は次式で表される。

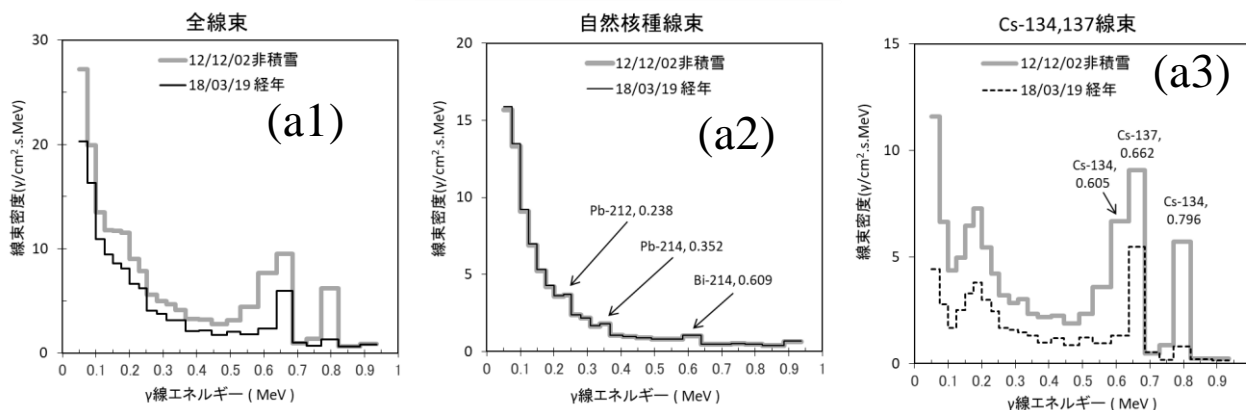


図5 非積雪時の大崎における2012年(12/2)と約5年余り後の2018年(3/19)の全線束(a1)、自然核種線束(a2)及びCs-134, 137線束の比較(a3)

$$T_w = \frac{T_p T_e}{T_p - T_e} \quad (2)$$

ここで、 $T_w = \ln 2 / \lambda_w$ 、 $T_p = \ln 2 / \lambda_p$ 及び $T_e = \ln 2 / \lambda_e$ である。Cs-134またはCs-137のガンマ線線量率の経年減衰を指数関数回帰式に当てはめて見かけの半減期 T_e を求めると、 T_p は既知であるから、(2)式からウェザリングによる半減期が求められる。

表1にこのような方法で算出した環境半減期とウェザリング半減期を示す。Cs-134とCs-137の環境挙動は同じなので値は一致すべきであるが、測定誤差等により少し異なる場合もあった。周囲が土壌の大崎と栗原では全Cs-134, 137線量率のウェザリング半減期が約15-23年と長かった。これに対して、周囲がアスファルト舗装面の登米では物質が流失しやすいためと考えられるが約7-8年と短かった。保坂ら⁴⁾は著者らと同様にNaI検出器による東京都内のCs-134の測定結果から、ウェザリング半減期を4.65-10.66年と求めているが、その値から推定すると恐らく測定器周辺が土壌面ではないものと考えられる。一方、栗原について、Cs-134, 137一次(直接線)線量率のウェザリング半減期は約11-12年で、Cs-134, 137全線量率よりも短かった。これは、次に大崎のデータで示すように、Cs-134, 137が地中に浸透し、地上に放出される一次ガンマ線に対する遮蔽効果が大きくなっていくためと考えられる。

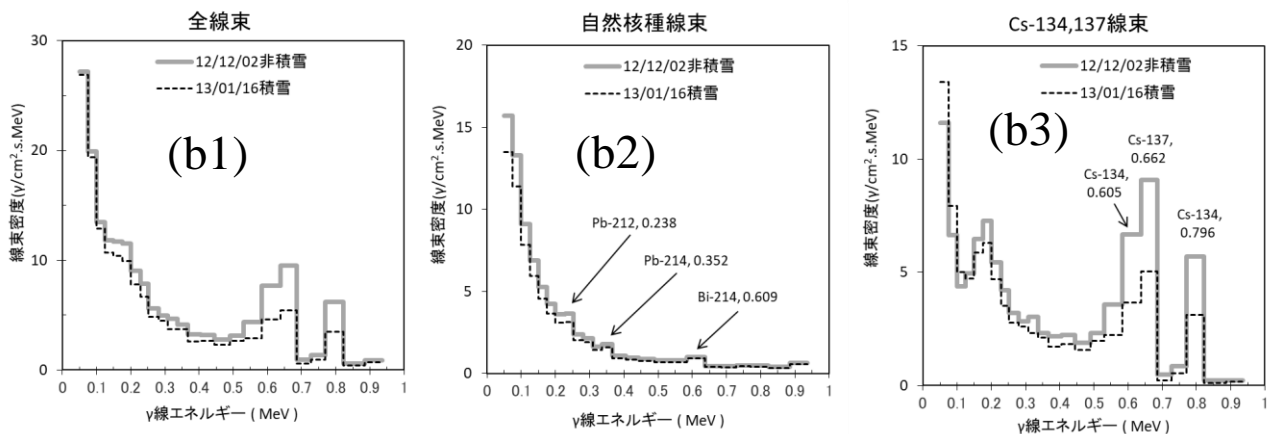


図6 大崎における非積雪時(2012/12/2)と積雪時(2013/1/16)の全線束(b1)、自然核種線束(b2)及びCs-134, 137線束の比較(b3)

表1 Cs-134とCs-137の核種別線量率の環境半減期からウェザリング半減期の算出

地点	核種別線量率*	減衰率	環境半減期	物理学的半減期	ウェザリング半減期
		λ_e (年 ⁻¹)	T_e (年)	T_p (年)	T_w (年)
大崎	全Cs-134	0.381	1.82	2.0648	15.3
	全Cs-137	0.0535	13.0	30.07	22.8
登米	全Cs-134	0.443	1.56	2.0648	6.5
	全Cs-137	0.104	6.66	30.07	8.6
栗原	全Cs-134	0.380	1.82	2.0648	15.5
	全Cs-137	0.0659	10.5	30.07	16.2
栗原	一次Cs-134	0.397	1.75	2.0648	11.3
	一次Cs-137	0.0824	8.41	30.07	11.7

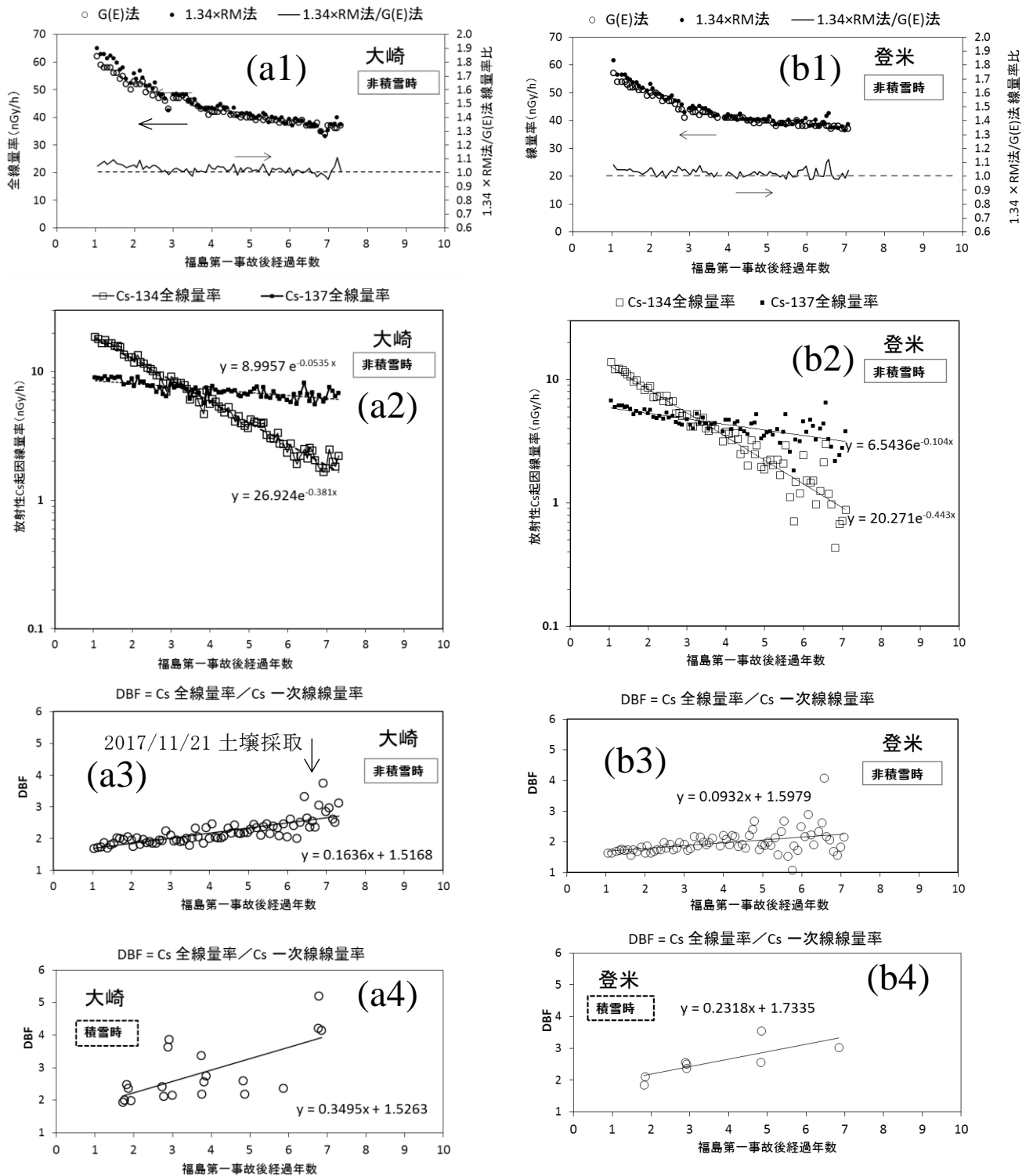


図7 福島第一事故後の1-7年間の大崎と登米における全線量率のRM法対G(E)法間比較(a1, b1)、Cs-134とCs-137の全線量率(a2, b2)、非積雪時の線量ビルドアップファクターDBF(a3, b3)及び積雪時の線量ビルドアップファクターDBF(a4, b4)。横軸起点：2011年3月25日(図8も同様)。

図9は2017年11月21日に大崎のモニタリングポスト付近で採取した表層6 cmまでの土壤中Cs-137の深度分布を示す。フォールアウト核種が土壤表面に降下した後、初期には地表で濃度が高く、深さ方向に指数関数的に急速に減衰する分布になることが多いが¹⁾、図9ではCs-137が表層から深さ方向に少し浸透した分布となっている。このことはDBFが経年的に次第に上昇していく傾向とも整合性が取れている。すなわ

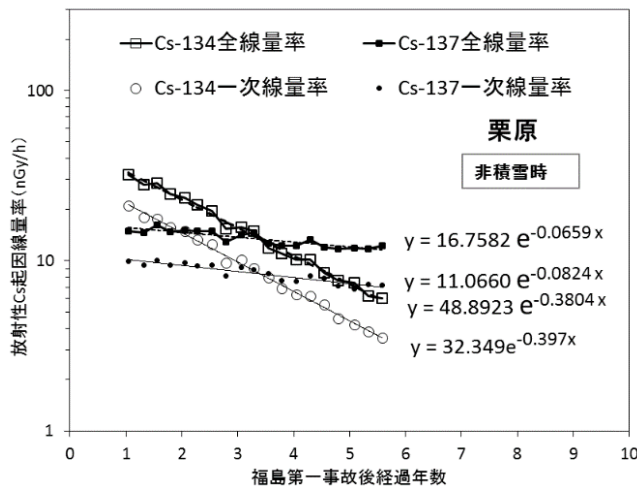


図8 福島第一事故後の1-5年間の栗原における非積雪時のCs-134とCs-137の全線量率と一次線量率

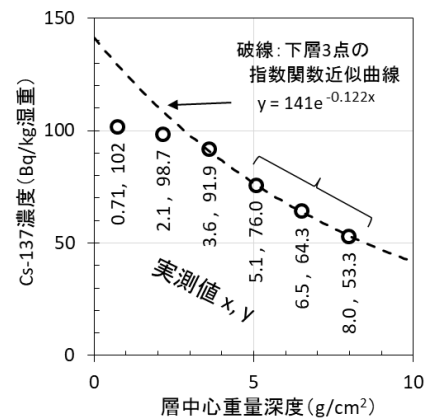


図9 2017年11月21日の大崎MPにおけるCs-137の土壌中深度分布
層中心重量深度：各土壌層中心から上部の重量（深さにほぼ比例）

ち、福島第一事故によってもたらされたCs-134, 137は最初は地表付近にとどまっていたが、経年的に次第に地下に浸透し、そのためセシウムからの一次ガンマ線が検出器に達しにくく、かつ散乱線割合が多くなるためDBFが上昇したものと解釈される。

本報告は原子力規制庁環境放射能水準調査の成果の一部である。

V まとめ

福島第一原発事故後の2012-2018年に宮城県北部でNaI(Tl)検出器により測定された空間ガンマ線スペクトルをレスポンスマトリクス法で処理し、事故由来放射性セシウム（Cs-134, Cs-137）起因の線束密度と線量率を分離評価した。セシウム寄与線量率に対する周辺環境の違いや積雪の有無、ウェザリングなどによる影響を検討し、幾つか有益な知見が得られた。セシウムのウェザリング半減期は、周辺が土壌の場合約15-23年、舗装面の場合7-8年と算出された。セシウム一次ガンマ線（直接線）から求めた同半減期が短かったことと線量ビルドアップファクターが経年増加傾向を示したことから、セシウムの土壌中への浸透効果が示唆された。詳細については今後更に検討を続ける必要がある。

謝辞

放射線地学研究所の湊 進博士にはレスポンスマトリクス法による解析の大部分を実施していただき、かつ貴重なご助言をいただきました。ここに厚く感謝致します。

参考文献

- 1) 日本原子力研究開発機構, 平成29年度原子力規制庁委託事業「東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約」成果報告書, Part2: 土壌における放射性セシウムの分布調査. <https://fukushima.jaea.go.jp/fukushima/try/entry10.html> (2019/2/20確認)
- 2) 湊 進, 環境ガンマ線解析用 49×49 応答行列の紹介 (2015), 放射線地学研究所ホームページ. <http://www1.s3.starcat.ne.jp/reslnote/> (2019/2/20 確認)
- 3) 放射線地学研究所ホームページ, 自来也堂, 放射線地学ノート旧号, 正面入射と等方入射 (四方山話# 291). (2019年2月現在では表題のみ. 内容はホームページ管理者へ請求必要.)
- 4) 保坂三継ほか, 都内環境における原発事故由来放射能の挙動と将来予測に関する研究, 東京健安研セ年報, 66, pp. 35-47, 2015.