

福島第一原子力発電所事故の影響により 新潟県において検出された人工放射性核種について

大野 峻史・鈴木 直樹・土田 智宏・春日 俊信・黒崎 裕人・霜鳥 達雄・丸田 文之・山崎 興樹

Artificial radionuclides detected in Niigata Prefecture by the influence of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident using the gamma ray spectrometry.

Takashi Ono , Naoki Suzuki , Tomohiro Tsuchida , Toshinobu Kasuga, Hirohito Kurosaki , Tatsuo Shimotori , Fumiyuki Maruta and Koki Yamazaki

A lot of radioactive materials were emitted into environment by the influence of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident which occurred on March 11, 2011. The influence was also seen in Niigata Prefecture on March 15, observing the dose rate of 0.527 μ Gy/h in Minamiuonuma City. As a result of gamma ray radionuclide analysis about air borne dust, short half-life radionuclides, such as ^{131}I , ^{132}Te - ^{132}I , and ^{133}I were mainly detected. In addition, many artificial radionuclides were detected from snow, fallout, sludge, etc. Those detected radionuclides, radioactivity ratio and dose rate contribution about some samples were described.

The quality of the radionuclides was also examined. It checked that they existed truly by checking those attenuation about the nuclides of ^{95}Zr - ^{95}Nb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}Sb , $^{129\text{m}}\text{Te}$ - ^{129}Te , ^{140}Ba - ^{140}La , etc. Since it was thought that these gamma ray spectra were very useful to future environmental radiation monitoring, it attached in the end of this paper.

Keyword : Gamma ray spectrometry , Germanium detector , Environmental Radiation Monitoring , Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident , Artificial radionuclides

1 はじめに

2011年3月11日に発生した福島第一原子力発電所事故の影響により、全国各地で人工放射性核種が検出されている。新潟県においても、3月15日に福島県に近い南魚沼市及び阿賀町で、空間放射線量率が上昇し、最高値は南魚沼市（3月15日19:00）の0.527 μ Gy/hであった（Fig.1）。同地点の大気浮遊じんをGe半導体検出器を用いて γ 線核種分析を行った結果、 ^{131}I 、 ^{132}Te - ^{132}I 、 ^{133}I 等を中心とした人工放射性核種が検出され、事故の影響が本県にも認められた^{1,2)}。

今回の事故は、1986年に発生したチェルノブイリ原子力発電所事故以来の大規模な放射性物質の放出事故であり、平常時の環境放射線モニタリングでは検出されない人工放射性核種が多数検出された。本稿では、新潟県で検出された人工放射性核種について、半減期測定等による定性及びそれらによる放射線量への影響について検討を行っ

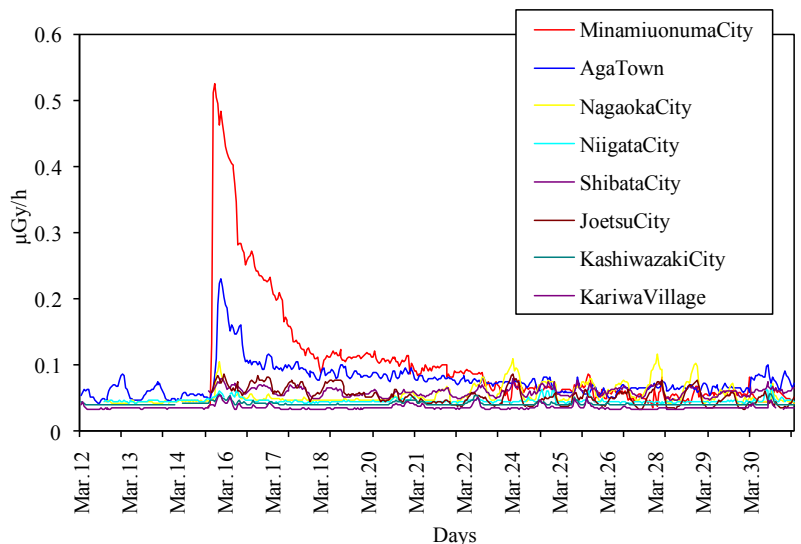


Fig.1 Variations of dose rate every 1 hour using NaI(Tl) detector on March ,2011 in Niigata Prefecture.

たので報告する。なお、今後の核種同定の資料とするため、Ge半導体検出器による γ 線スペクトルを添付した。

2 方 法

γ 線核種分析は、文部科学省放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」³⁾(以下、文科省マニュアル)に準じて行った。測定機器には、Ortec社製及びCanberra社製の高純度Ge半導体検出器を用いた。相対効率は約37%~60%、分解能は約1.9keVであり、110mm厚の鉛遮蔽体によって天然放射性核種及び宇宙線の影響を低減化している。 γ 線スペクトルの解析にはCanberra社製「ガンマエクスプローラー」を用いた。本稿で用いた核種データは、文科省マニュアルに準拠し、同マニュアルに未記載の核種及びピークエネルギーについてはTable of Isotope 8th Editionから引用した。

核種同定については平滑二次微分法によりピークサーチを行い、ピーク中心が各核種のエネルギーから概ね $\pm 0.5\text{keV}$ (1ch)以内で一致していることを同定の基準とした。定量については、今回の事故試料の γ 線スペクトルはピークの数が多く、コベル法ではベースライン等への妨害が危惧されたことから、関数適合法により放射能濃度を算出した。放射能濃度の算出に際しては、荷重平均計算は行わず、他核種からの妨害が少なく放出比の大きいピークを用いた。サム効果補正は、 ^{60}Co 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{132}I 、 $^{134,136}\text{Cs}$ について行い、減衰補正は採取日に遡って行った(逐次壊変核種については、子孫核種の補正が1半減期以内であれば親核種からの生成を考慮し⁴⁾、1半減期以上の場合は親核種の半減期で補正を行った)。

3 結 果

3.1 新潟県で検出された人工放射性核種

福島第一原子力発電所事故の影響により主な環境試料から検出された γ 線放出核種はTable1.のとおりである。表中には、試料毎に最も多くの人工放射性核種が検出された採取日のものを記載した。それ以外の採取日に検出された核種は()内に記載した。なお、計数が計数誤差の2倍を超え、 γ 線スペクトル中にピークが認められた核種については*1を付記して記載した。

Table 1. Artificial radionuclides detected in Niigata (gamma ray emitting nuclides)

Sample Category	Artificial radionuclides	Sampling date	Sampling location
Air Borne Dust	$^{95}\text{Nb}^{*2}$, $^{99}\text{Mo}^{*1}$ - $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{131\text{m}}\text{Te}$ - ^{131}Te - ^{131}I , ^{132}Te - ^{132}I , ^{133}I - $^{133\text{m}}\text{Xe}^{*1}$, ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ($^{110\text{m}}\text{Ag}$, $^{125}\text{Sb}^{*1}$)*2	March,15 (April,18 to 21)	Minamiuonuma City (Aga Town)
Fallout	^{95}Zr - ^{95}Nb , $^{129\text{m}}\text{Te}$ - ^{129}Te , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ^{140}La , ($^{110\text{m}}\text{Ag}$, $^{125}\text{Sb}^{*1}$)*2	April,1 to 30	NiigataCity (Kashiwazaki-Kariwa area)
Snow	^{65}Zn , ^{86}Rb , ^{95}Nb , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, $^{111}\text{In}^{*1}$ - $^{111\text{m}}\text{Cd}^{*1}$, ^{113}Sn - $^{113\text{m}}\text{In}$, $^{114\text{m}}\text{In}$, $^{117\text{m}}\text{Sn}$, ^{125}Sn , $^{127\text{m}}\text{Te}^{*1}$ - ^{127}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$ - ^{129}Te , ^{131}I , ^{132}Te - ^{132}I , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ^{140}Ba - ^{140}La	March,15 to April,1	Minamiuonuma City
Sludge	^{60}Co , ^{95}Nb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{113}Sn - $^{113\text{m}}\text{In}$, ^{124}Sb , ^{125}Sb , $^{127\text{m}}\text{Te}^{*1}$ - ^{127}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$ - ^{129}Te , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs	March to May	Kashiwazaki-Kariwa area
River water	^{131}I , ^{132}Te - ^{132}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs	March,18	Kanose Bridge at Aga Town
Agricultural and Livestock Product	^{131}I , ^{132}Te - ^{132}I , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs	March,23	Other prefecture

*1 Trace of peak was discovered in gamma ray spectrum.

*2 It shows the artificial radionuclide detected on other days.

3.2 半減期測定による人工放射性核種の同定

3.2.1 ^{110m}Ag , ^{113}Sn , $^{124,125}\text{Sb}$, $^{127m-127,129m-129}\text{Te}$, $^{134,136,137}\text{Cs}$

今回の事故により環境中に放出された人工放射性核種の同定は、ピークエネルギーの一致以外にも同じ試料を繰り返し測定することにより、その核種の半減期で減衰するか確認した。Fig.2 は各核種の繰り返し測定で得られた値と、初回の測定値を始点として、その核種の半減期で減衰すると仮定した曲線を示した。なお、逐次壊変によって生成する子孫核種は親核種の半減期 >> 子孫核種の半減期の条件下で過渡平衡を仮定し、親核種の半減期で減衰するとした。

Fig.2 中の核種は数十日～数十年の半減期を持つ核種であるが、半減期が長い ^{137}Cs 以外は概ねそれらの核種の半減期で減衰しており、 ^{110m}Ag , ^{113}Sn , $^{124,125}\text{Sb}$, $^{127m-127,129m-129}\text{Te}$, $^{134,136,137}\text{Cs}$ の核種が試料中に存在していることを確認した。

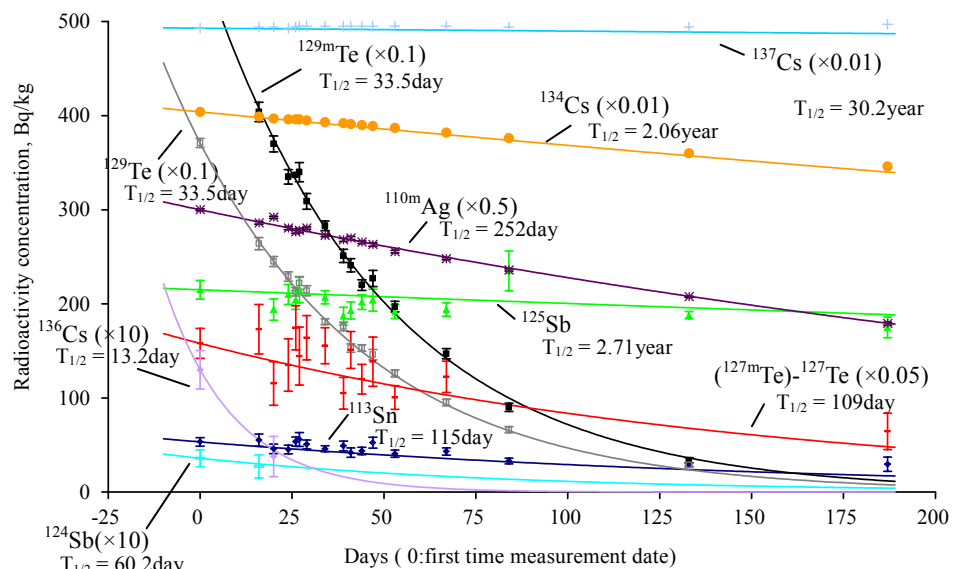


Fig.2 Decay curve of artificial radionuclides in sludge sample.

3.2.2 ^{140}Ba - ^{140}La

^{140}La (半減期 1.68 日)は ^{140}Ba (半減期 12.8 日)を親核種とする壊変系列を作るが、 ^{140}Ba が検出されず、 ^{140}La の 1,596keV (放出比 95.4%) ピークのみが検出された試料があったため、 ^{140}La のみが検出された試料を用いて繰り返し測定を行い、 ^{140}La が存在しているのか確認した (Fig.3) . 図中の黒点はその測定値であるが、100 日以上経過しても検出され続けたため、他の核種の寄与が疑われた。同じピークエネルギーとして ^{110m}Ag のサムピークである 1595.3keV (657.8keV+937.5keV) の寄与が考えられたため、初回測定から 133 日後の測定値

(長時間測定のため、他の測定日のものよりも誤差が小さい) を半減期 12.8 日の ^{140}Ba - ^{140}La が既に減衰していると仮定し、その日以前の測定時点に ^{110m}Ag の半減期を用いて減衰補正を行い、測定値から ^{110m}Ag の寄与分として差し引いた。図中の黒点線が ^{110m}Ag の寄与分である。 ^{110m}Ag の寄与を差し引いた結果は赤点であり、 ^{140}Ba - ^{140}La の半減期である 12.8 日で減衰していると仮定した赤曲線に従い減衰していることがわかった。

^{140}Ba は主要ピーク (537keV) の放出比が 24.4%と低く、 $^{134,137}\text{Cs}$ 濃度が高い試料ではそれらの核種のコンプトン散乱等が妨害となる。一方、 ^{140}La は $^{134,137}\text{Cs}$ 等の妨害の少ない高エネルギー側に放出比が高い γ 線を放出するため、 ^{140}Ba に比べて検出されやすいと考えられるが、 ^{140}La のみが検出され ^{110m}Ag も検出されている

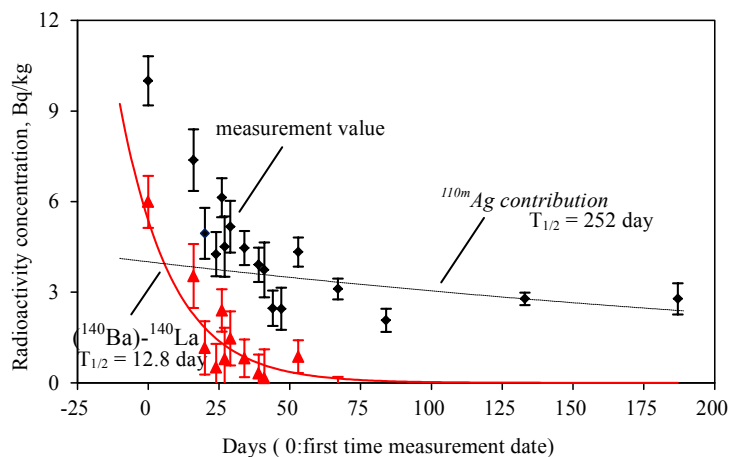


Fig.3 Decay curve of ^{140}La ? (1,596keV peak) in sludge sample.

場合には、ピークエネルギーや放射能の減衰確認等が必要である。特に ^{110m}Ag は他にも ^{97}Zr - ^{97}Nb の主要ピークも妨害するため、注意が必要である。

3.2.3 ^{95}Zr - ^{95}Nb

^{95}Zr (半減期 64.0 日) は ^{95}Nb (半減期 35.0 日) と親子関係にあるため、本来ならば両核種は同時に検出されると考えられるが、 ^{95}Zr 及び ^{95}Nb が両方検出された試料と ^{95}Nb のみが検出された試料が存在したため、前項同様、その核種の半減期に従って減衰するかどうかを確認した。

Fig.4(a)中の曲線は測定日からの理論減衰曲線を示しており、 ^{95}Zr は 64 日の半減期で減衰すると仮定し、 ^{95}Nb は ^{95}Zr からの生成を考慮している²⁾。その結果、 ^{95}Zr 及び ^{95}Nb の両核種が検出された試料は、概ね妥当な減衰を示した。Fig.5(a)中の曲線は、 ^{95}Nb が 35 日の半減期で減衰するとした理論減衰曲線である。 ^{95}Nb のみが検出された試料は、概ね ^{95}Nb の半減期で減衰しており、 ^{95}Nb が試料中に存在しているものと考えられた。

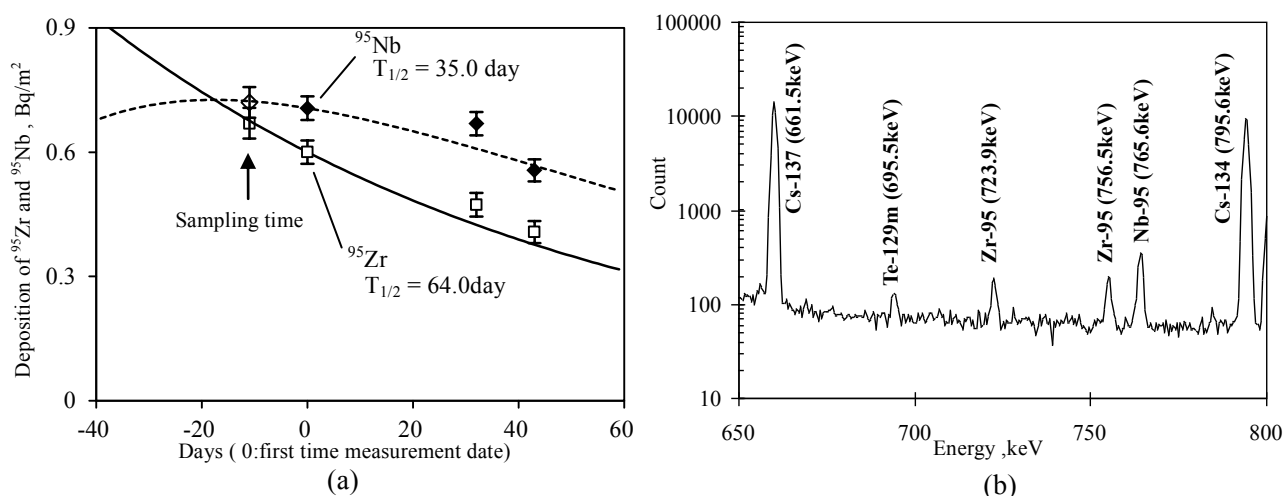


Fig.4 Monthly fallout of ^{95}Zr - ^{95}Nb in Niigata City collected during April 2011.

(a) Decay curve of ^{95}Zr and ^{95}Nb . (b) Gamma ray spectrum.

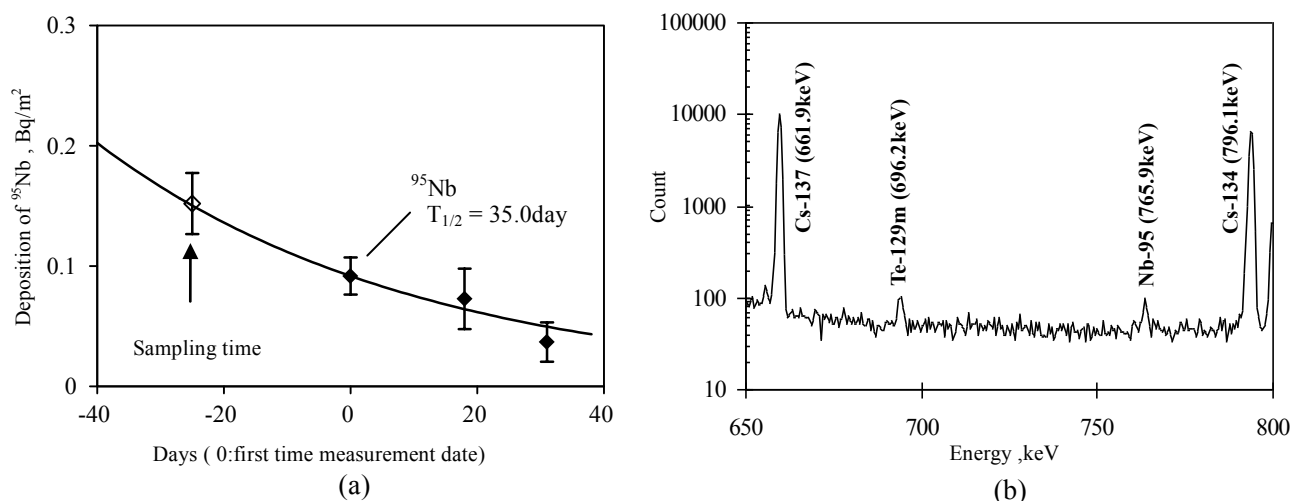


Fig.5 Monthly fallout of ^{95}Nb in Kashiwazaki City collected during April,2011.

(a) Decay curve of ^{95}Nb . (b) Gamma ray spectrum.

^{95}Zr 及び ^{95}Nb の両核種が検出された試料と ^{95}Nb のみが検出された試料が存在した理由については、明確な理由は不明であったが、今回の事故では、3 基の原子炉から放射性物質が放出⁵⁾され、それぞれの炉心内の状態が異なると想定すれば、炉心からの放出時期や放出時の気象条件によって ^{95}Zr 、 ^{95}Nb の両核種が検出されるか、 ^{95}Nb のみが検出されるかが異なった可能性がある。

3.3 人工放射性核種の放射能比及び空間放射線量率寄与

Table 1.のとおり、新潟県においても多数の人工放射性核種が検出されたが、それらの核種の影響を調べるため、放射能比及び空間放射線量率への寄与について比較検討を行った。Fig.6～8 に、稿末のAppendix1～3 で検出された人工放射性核種について、¹³⁷Cs に対する他の人工放射性核種の放射能比(以下、放射能比)及び地上 1m 高さにおける空間放射線量率(以下、線量率)への寄与率を核種毎に示した。

(1) 事故直後の試料

Fig.6 は 3 月 15 日に南魚沼市において採取した大気浮遊じんの測定結果である。線量率への換算は空気中一様分布を仮定した換算係数を用いた⁶⁾。その結果、¹³¹I、¹³²Te-¹³²I の放射能比が大きく、線量率寄与もそれらが計 87%と大部分を占めており、揮発性の高い核種の影響が大きいことがわかった。この試料は粒子状物質のみの捕集であるため、気体状の¹³¹Iを含めた¹³¹Iの放射能比及び線量率寄与はさらに大きいものと考えられる。また、試料採取後すぐに測定を実施したため、^{131m}Te、¹³³I等の半減期が数時間の核種も検出されている。なお、^{131m}Teは¹³¹Iに壊変するため、¹³¹Iの減衰補正時には^{131m}Teの生成も考慮する必要があるが、^{131m}Te/¹³¹I放射能比は1/100程度であり、^{131m}Teの寄与は十分小さかったと判断し、本稿では補正を行わなかった。

Fig.7は4月1日に南魚沼市において採取した雪の測定結果である。検出された人工放射性核種の大半は3月15日の降雪に伴い降下したと仮定し、測定値は同日に減衰補正した。線量率への換算は地表面

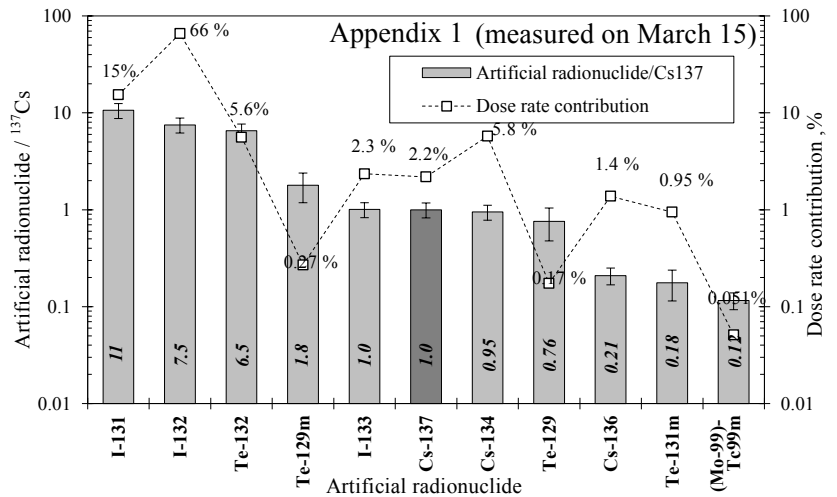


Fig.6 Radioactivity ratio of artificial radionuclide to ¹³⁷Cs in air borne dust sample collected at Minamiuonuma City on March 15, 2011.

(Decay correction was made to March 15, 2011.)

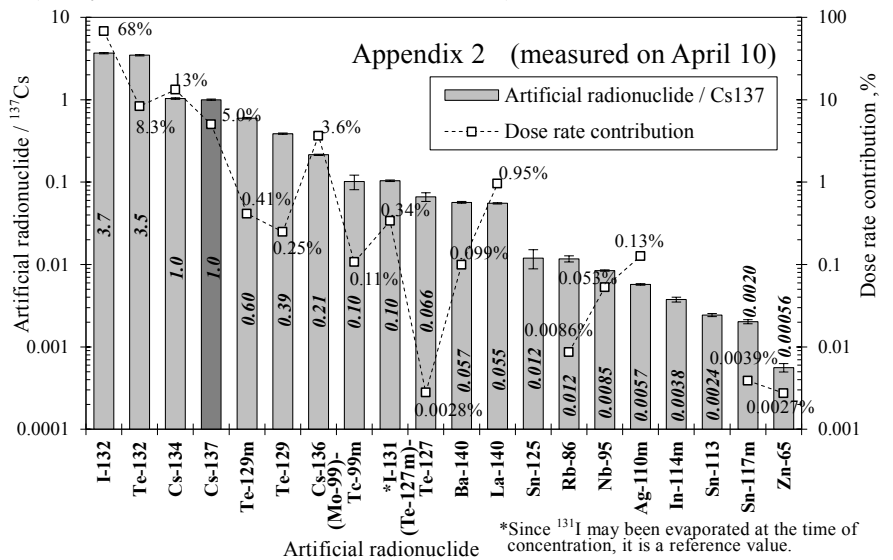


Fig.7 Radioactivity ratio of artificial radionuclide to ¹³⁷Cs in snow sample collected at Minamiuonuma City during the period from 15, March to 1, April.

(Decay correction was made to March 15, 2011.)

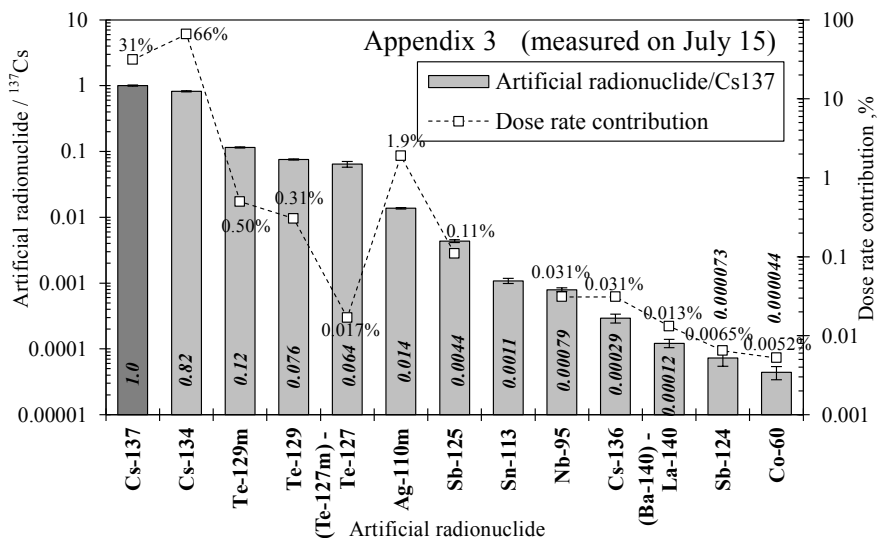


Fig.8 Radioactivity ratio of artificial radionuclide to ¹³⁷Cs in sludge sample collected at Kashiwazaki-Kariwa area during the period from March to May.

(Decay correction was made to July 15, 2011.)

一様分布を仮定した換算係数⁷⁾(鉛直分布のパラメータ $\beta=0$ とした.)を用いたが、換算係数の記載がないものについては線量率計算をしていない。その結果、大気浮遊じんと同様に ^{132}Te - ^{132}I の放射能比及び線量率寄与が大きかったことがわかった。 ^{132}Te - ^{132}I の線量率寄与は計76%であった。なお、 ^{131}I は濃縮処理過程で一部揮散した可能性があるため参考値である。また、約100Lの試料を濃縮したことにより、大気浮遊じんでは検出できなかった多数の人工放射性核種を検出した。しかし、それらの放射能比は小さく、半減期も数日～数十日程度であることから線量率への寄与は短期的かつ僅かであったと推定された。

(2) 事故から4ヶ月経過した試料

Fig.8は柏崎刈羽地域において3～5月に集積した汚泥の放射能比である。測定が7月であったため、短半減期核種である ^{131}I 、 ^{132}Te - ^{132}I は減衰して検出されず、長半減期核種である $^{134,137}\text{Cs}$ 、 ^{125}Sb 等が中心に検出されるようになったことがわかった。線量率への換算は、この試料を地表面に均一に分布させたと仮定しFig.7の方法と同じ換算係数を用いて、7月時点の線量率を算出した。その結果、線量率寄与は $^{134,137}\text{Cs}$ が大部分を占めており、それらの寄与は計97%であった。

なお、核分裂生成物だけでなく放射化生成物も検出されているが、他県の環境放射能水準調査結果⁸⁾や東京電力(株)のモニタリング結果⁹⁾においても、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 等の放射化生成物が検出されており、核分裂生成物だけでなく、放射化生成物も僅かながら環境中に放出された可能性がある。しかし、Fig.7, 8のとおりそれらの放射能濃度は極めて小さく、検出された試料は前処理で濃縮を行った試料及び汚泥などの構造的な要因により放射性物質が濃縮されたものからであった。これらの同定については、核種の半減期は確認できずピークエネルギーの一致のみであったが、安全側に評価し検出と判断した。これらの核種がどのようなプロセスで発電所から環境中への放出されたか(又はされていないか)については、各地のモニタリング結果や様々な機関で進められている研究結果を注視し、随時検討していく必要がある。

4 ま と め

2011年3月11日に発生した福島第一原子力発電所事故の影響により、新潟県において検出された人工放射性核種(γ 線放出核種)について検討を行い、以下のことがわかった。

- (1) ^{131}I 、 ^{132}Te - ^{132}I 、 $^{134,137}\text{Cs}$ を中心とする放射性核種が主に検出された。チェルノブイリ発電所事故時に多く検出された $^{103,106}\text{Ru}$ 、 $^{141,144}\text{Ce}$ 等の核種¹⁰⁾、核実験時に多く検出された ^{97}Zr - ^{97}Nb 、 ^{239}Np 等の核種¹¹⁻¹⁴⁾は、当県の試料からは検出されなかった。
- (2) ^{95}Zr - ^{95}Nb 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{125}Sb 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ - ^{129}Te 等について、繰り返し測定を行うことにより、これらの核種が存在していることを確認できたが、 ^{140}La (1,596keV)のみが検出された試料については、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の妨害が考えられるため、時間をおいて測定を行う等の確認作業が必要である。
- (3) 新潟県では多数の人工放射性核種が検出されたが、 ^{131}I 、 ^{132}Te - ^{132}I 、 $^{134,137}\text{Cs}$ に比べて他の核種の放射能濃度は小さかった。
- (4) 事故初期の ^{131}I 、 ^{132}Te - ^{132}I が検出されていた時期には、それらの核種の線量率寄与が大きく、その大部分を占めていたことがわかった。また、事故数ヶ月経過した試料では長半減期核種 $^{134,137}\text{Cs}$ の影響が大きかったことがわかった。

謝 辞

核種の同定方法に関してご助言頂きました新潟県原子力発電所周辺環境監視評価会議委員の工藤久昭新潟大学理学部教授、解析ソフトウェアの改良に尽力頂きましたキャンベラジャパン株式会社酒井国博様に感謝申し上げます。最後に、試料の採取、前処理及び測定には、保健環境科学研究所、各環境センターの職員の皆様に多大なる御協力を頂きました。ここに記して感謝の意を表します。

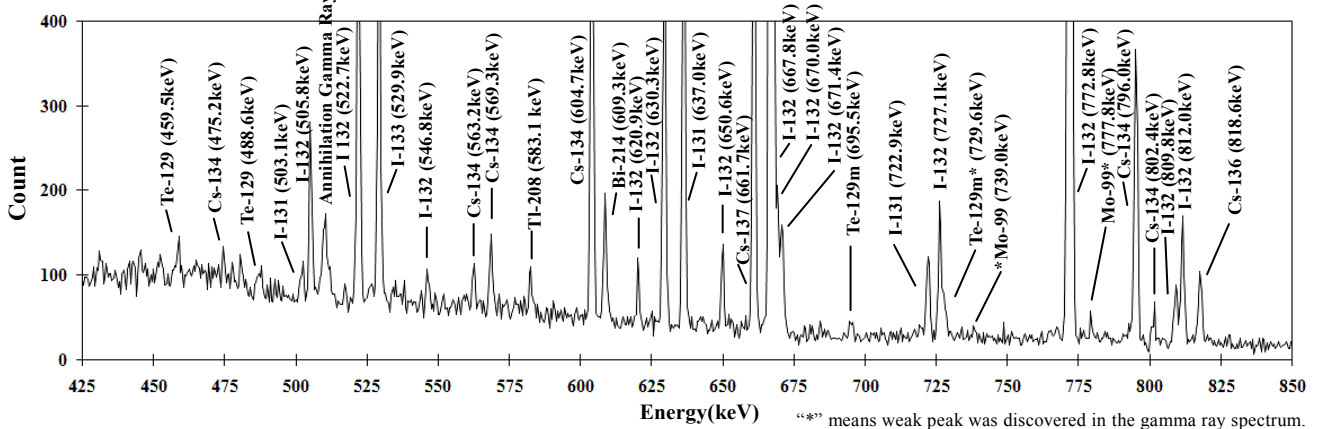
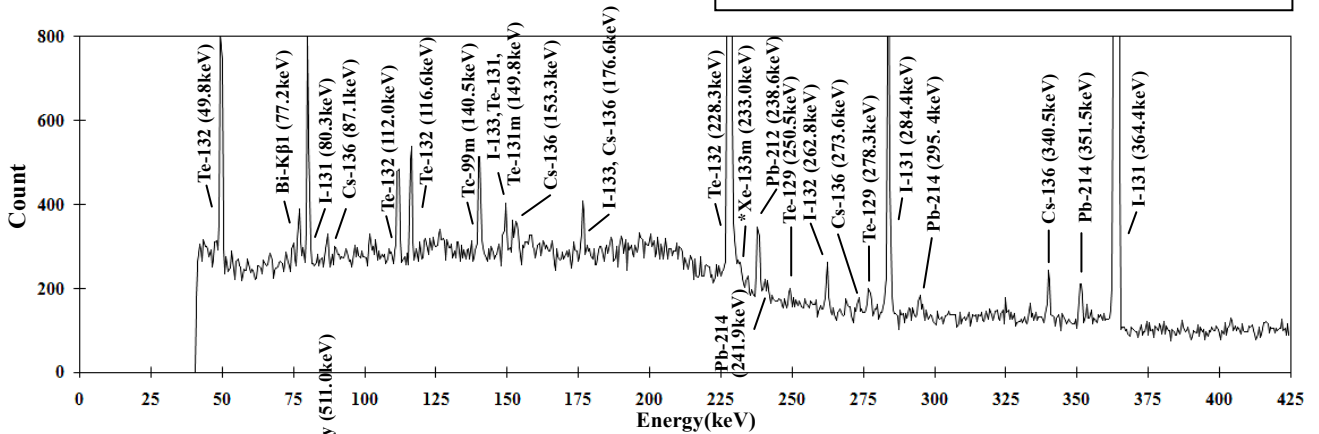
参 考 文 献

- 1) 新潟県報道発表資料:南魚沼地域振興局で採取した大気浮遊じんから放射性物質を検出しました。、http://www.pref.niigata.lg.jp/HTML_Article/477/754/4-141-bussitukensyutu,0.pdf (閲覧2011年3月16日)。
- 2) 新潟県報道発表資料:福島第一原発事故による新潟県への放射能の影響についてこれまでの結果をとりまとめたので公表します, <http://www.pref.niigata.lg.jp/genshiryoku/1307999805302.html> (閲覧2011年6月14日)。
- 3) 文部科学省:放射能測定法シリーズ「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」, 7, (1992)。
- 4) 財団法人 日本分析センター:平成21年度放射能分析確認調査技術検討会資料, 189-197, (2009)
- 5) 経済産業省報道発表資料:東京電力株式会社福島第一原子力発電所及び広島に投下された原子爆弾から放出された放射性物質に関する試算値について, <http://www.meti.go.jp/press/2011/08/20110826010/20110826010-2.pdf> (閲覧2011年8月26日)。
- 6) P.Jacob,H.Rosebaum,N.Petoussi,M.Zankl: Calculation of Organ Doses from Enviromental Gamma Rays Using Human Phantoms and Monte Carlo Methods Part II : Radionuclides Distributed in the Air or Deposited on the Ground, GSF-Bericht12/90, (1990)。
- 7) International Commission on Radiation Units and Measurements : 「Gamma Ray Spectrometry in the Enviroment」, ICRU Report, 53, (1994)。
- 8) 文部科学省:第53回環境放射能調査研究成果論文抄録集(平成22年度), 128, (2011)。
- 9) 東京電力株式会社:当社福島第一原子力発電所における核種分析結果の厳重注意に対する対応について(続報2), http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu11_j/images/110508o.pdf (閲覧2011年5月8日)
- 10) 斉藤真一 他:新潟県衛生公害研究所年報, 2, 119-124, (1987)。
- 11) 菅井隆一, 石橋幸三, 井口捨三郎, 鈴木斉, 殿内重政:第15回放射能調査研究成果発表会論文抄録集, 26-30, (1973)。
- 12) 殿内重政, 石橋幸三, 鈴木斉, 井口捨三郎, 菅井隆一:新潟県公害研究所研究報告, 1, 55-57, (1976)。
- 13) 殿内重政, 石橋幸三, 鈴木斉, 井口捨三郎, 菅井隆一:新潟県公害研究所研究報告, 2, 28-30, (1977)。
- 14) 殿内重政, 石橋幸三, 鈴木斉, 菅井隆一:新潟県公害研究所研究報告, 4, 55-56, (1979)。

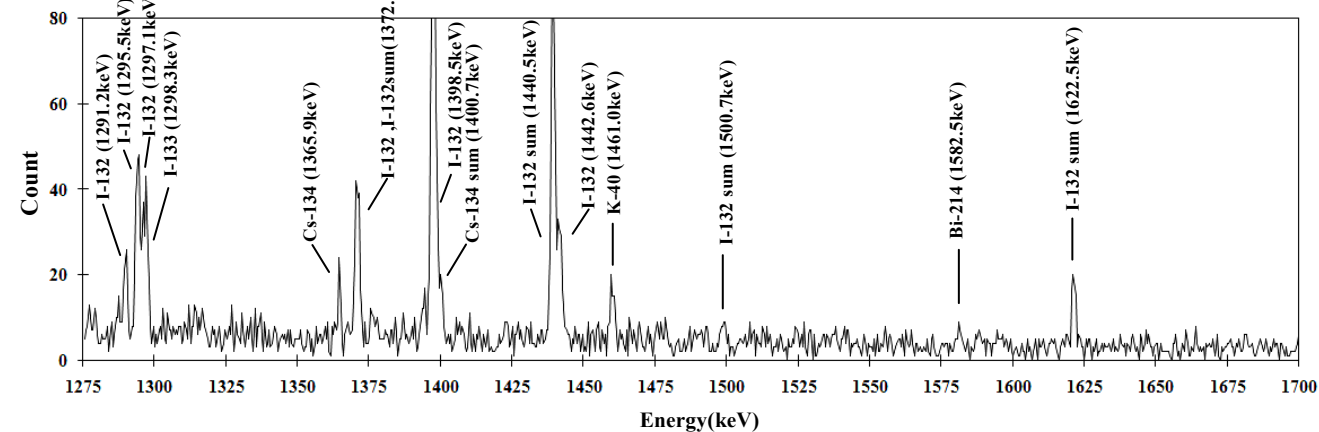
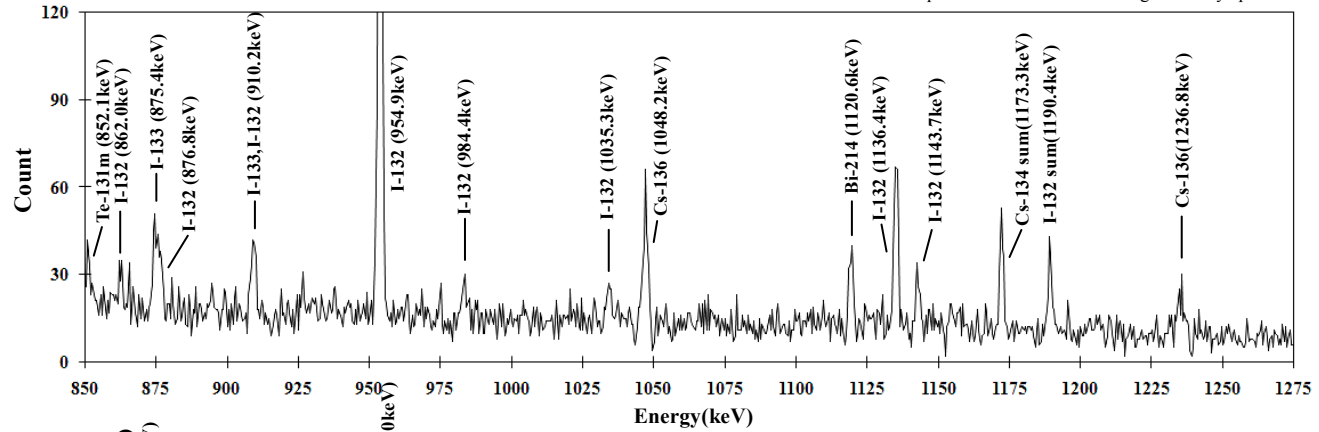
Appendix 1

Air borne dust sample collected at Minamiuonuma City.
(Mar. 15 ,2011 16:43~18:43)

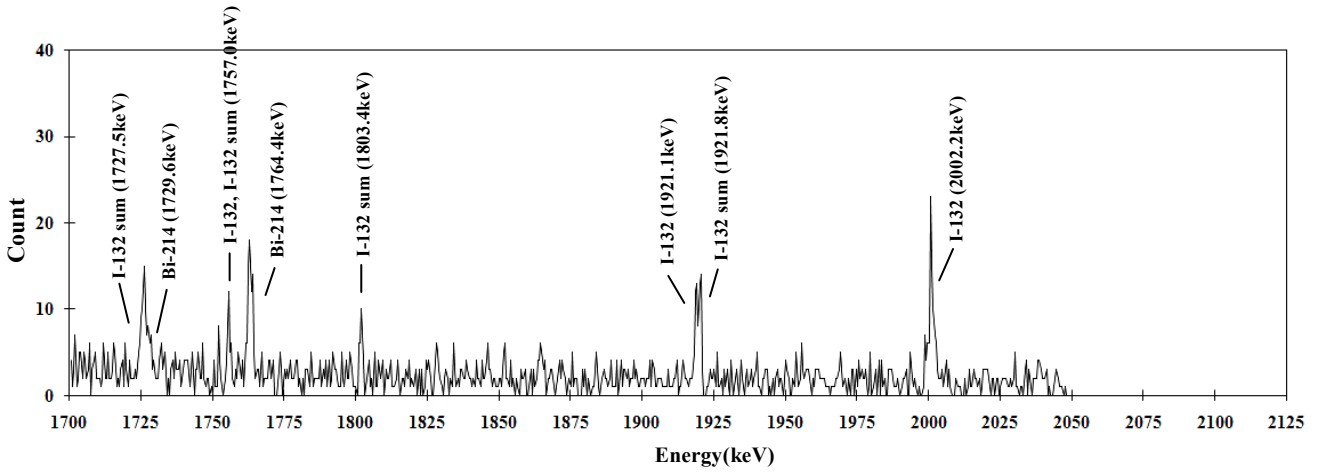
Measured time : 20,000sec (Live time)
Dead time : 0.17% , Quantity of analyzed : 80.56m³



“**” means weak peak was discovered in the gamma ray spectrum.



※The energy values in those figures were evaluated by the peak search procedure

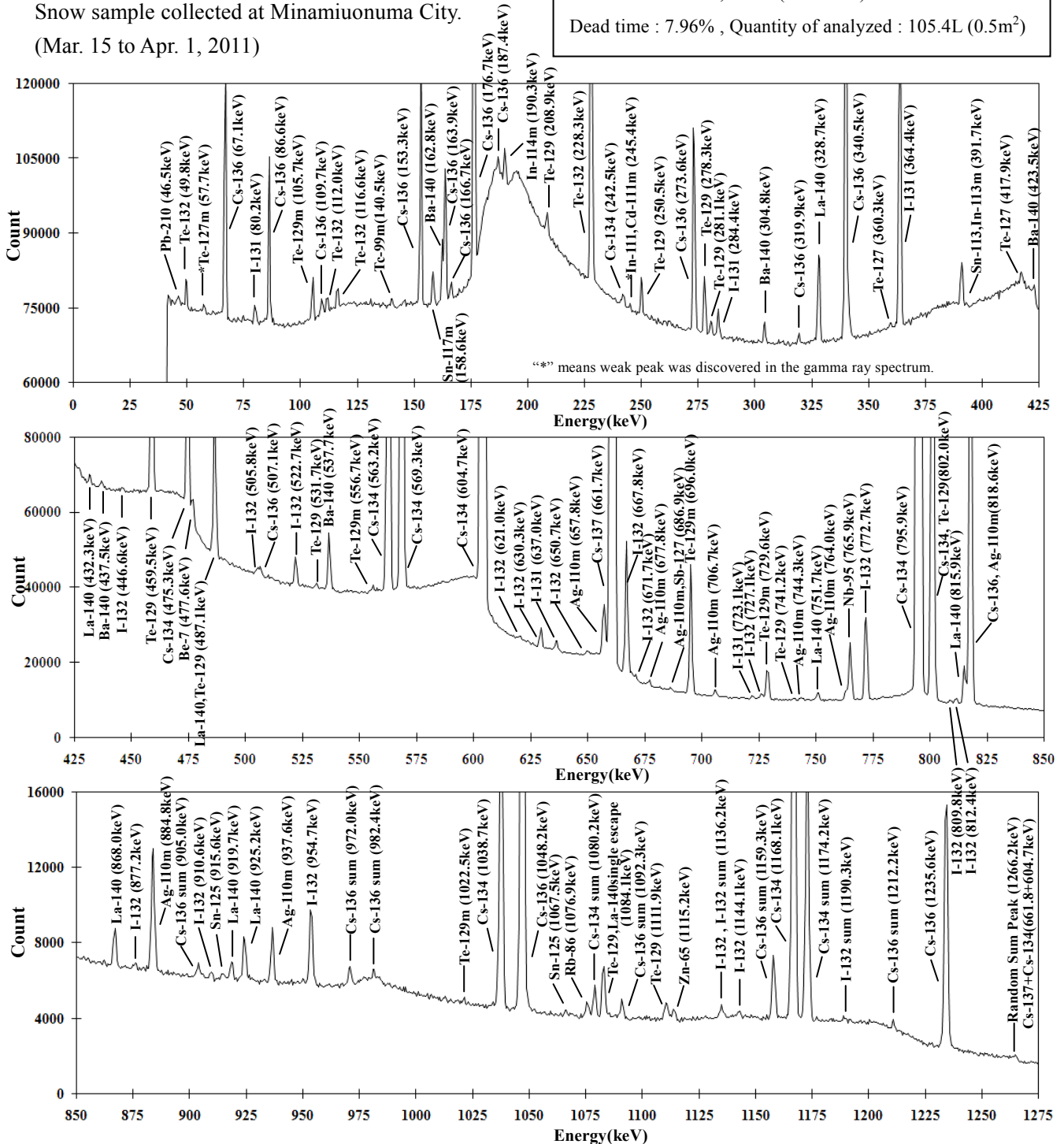


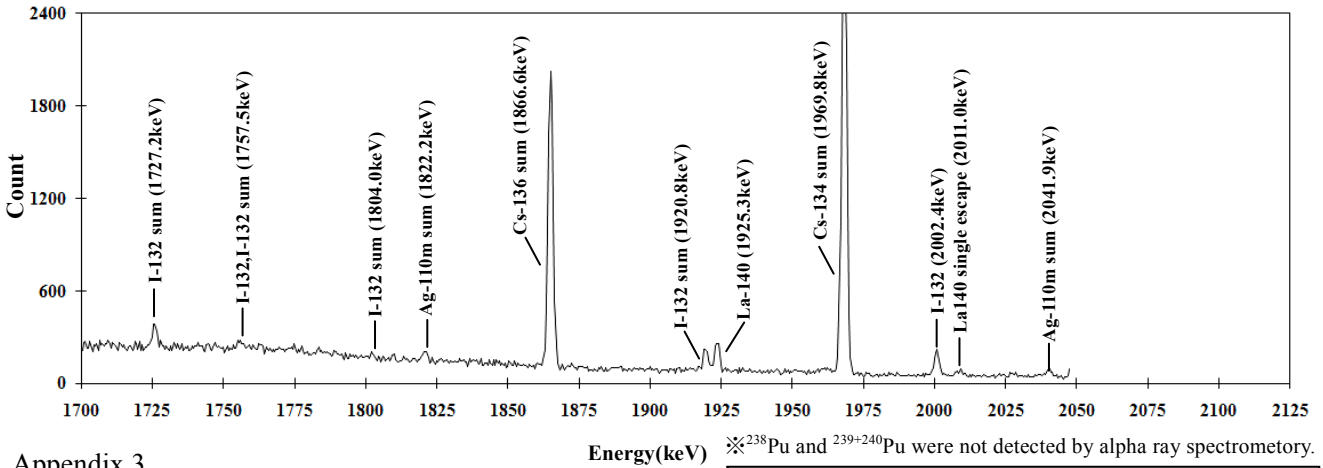
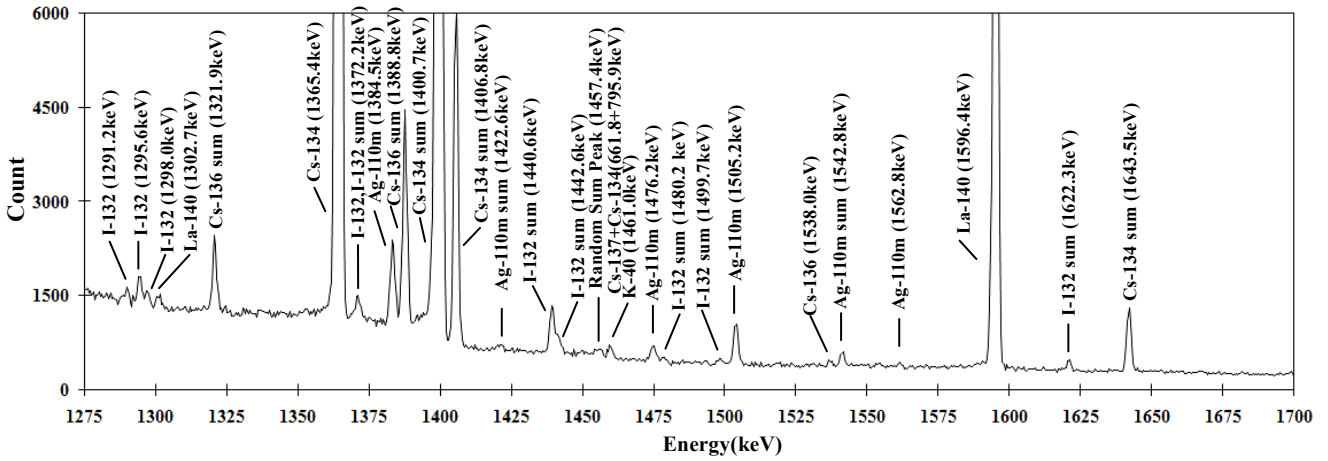
Appendix 2

Snow sample collected at Minamiuonuma City.
(Mar. 15 to Apr. 1, 2011)

Measured time : 80,000sec(Live time)

Dead time : 7.96% , Quantity of analyzed : 105.4L (0.5m²)





Energy(keV) $\times^{238}\text{Pu}$ and $^{239+240}\text{Pu}$ were not detected by alpha ray spectrometry.

Appendix 3

Sludge sample collected at Kashiwazaki-Kariwa area.

(Mar. to May, 2011)

Measured time : 531,200sec (Live time)
 Dead time : 16.7%, Quantity of analyzed : 0.61kg wet

