資 料

東海再処理施設周辺における東電福島第一原発事故後の 降下じん中放射性物質濃度調査結果

永岡 美佳^{*1}, 藤田 博喜^{*1}, 中野 政尚^{*1}, 渡辺 均^{*1}, 住谷 秀一^{*1}

(2013 年 3 月 12 日受理)

(2013 年 5 月 15 日再受理)

The Result of Radionuclide Concentrations in Fallout around Tokai Reprocessing Plant after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

Mika NAGAOKA,^{*1} Hiroki FUJITA,^{*1} Masanao NAKANO,^{*1} Hitoshi WATANABE^{*1} and Shuichi SUMIYA^{*1}

Monthly deposition samples were collected at the Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories located about 115 km south of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (NPP), and the radioactive nuclides were analyzed. Although radionuclides such as ^{131}I , $^{129\text{m}}\text{Te}$, ^{132}Te and ^{132}I with ^{134}Cs and ^{137}Cs were observed by gamma spectrometry at the early time of the Fukushima Daiichi NPP accident, only ^{134}Cs and ^{137}Cs were detected as of September 2011. The annual depositions of ^{134}Cs and ^{137}Cs were about 19,000 and 17,000 Bq m⁻², respectively in March 2011-February 2012 after the accident. Moreover, ^{90}Sr was detected in some samples. Monthly ^{90}Sr deposition in March 2011 was 5.1 Bq m⁻² month⁻¹ and then decreased after that. On the other hand, $^{239, 240}\text{Pu}$ concentration was the same level with the concentration before the accident.

KEY WORDS: fallout, tokai reprocessing plant, fukushima daiichi npp accident, gamma spectrometry, cesium, strontium, plutonium.

I 緒 論

(独) 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所(以下、「研究所」)では、東海再処理施設周辺の環境放射線モニタリングの一環として、研究所内で定期的(毎月)に降下じん(降水及び自然に地表に降下するじん埃)を採取し、全 β 放射能測定及び γ 線放出核種分析を行っている。

2011 年 3 月 11 日の「東北地方太平洋沖地震」に伴う東京電力(株)福島第一原子力発電所(以下、「東電福島第一原発」)での事故後も、空气中浮遊じんや降下じん等を採取し、これらに含まれる γ 線放出核種の分析を

行った^{1, 2)}。それらの結果からは、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs に加えて ^{131}I , ^{129}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$, ^{132}Te 等の様々な短半減期の放射性核種が検出された。これらの核種は、東電福島第一原発周辺の土壌、空气中浮遊じん、海底土といった環境試料からも検出されており³⁾、東電福島第一原発事故の影響によるものである。

本報告では、定常の環境放射線モニタリングについて、事故後約 1 年半にわたって、降下じんの全 β 放射能測定及び γ 線放出核種分析を実施した結果を述べる。また、一部試料について、東電福島第一原発事故影響調査のため、 ^{90}Sr 及びプルトニウム ($^{239, 240}\text{Pu}$ 及び ^{238}Pu) 分析を実施した結果も述べる。

II 実 験 方 法

試料の採取及び分析・測定は文部科学省放射能測定法シリーズ⁴⁻⁷⁾に準拠して実施した。本報告では 2011 年 3 月～2012 年 9 月に採取された降下じん試料について述べる。以下に詳細を記す。

^{*1} (独) 日本原子力研究開発機構東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所放射線管理部; 茨城県那珂郡東海村村松 4-33 (〒319-1194)

Radiation Protection Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Japan Atomic Energy Agency; 4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1194, Japan.

E-mail: nagaoka.mika@jaea.go.jp

東電福島第一原発から南約 115 km に位置する研究所で、地上約 9 m に設置した受水面積 0.5 m² の大型水盤（第 1 図）を用いて、降下じんを 1 か月毎に採取した。試料は、まず全量を 2 インチの試料皿上に蒸発乾固し、GM 管検出器（端窓型）を用いて、全 β 放射能測定を行った。その後、ゲルマニウム（Ge）半導体検出器を用いて γ 線放出核種の分析を実施した（80,000 秒測定）。 γ 線スペクトロメトリのデータの解析は、採取期間中、一定濃度を仮定して、採取開始日から測定終了日までの減衰を補正した。ただし、2011 年 3 月の試料は採取開始日を研究所周辺のモニタリングステーション及びポストで線量率上昇がみられた^{1,2)} 3 月 15 日とし、減衰補正を実施した。さらに、¹³⁴Cs においてはサム効果補正を実施した。なお、放射平衡を形成している親核種と子孫核種（^{129m}Te-¹²⁹Te, ¹³²Te-¹³²I, ¹⁴⁰Ba-¹⁴⁰La）は平衡に達したと考え解析した。

また、⁹⁰Sr 及びプルトニウム（^{239,240}Pu 及び ²³⁸Pu）の系統分析には、2011 年 3 月～6 月の試料を用いた。試料は、 γ 線放出核種分析後の蒸発乾固した試料を硝酸で溶解し、全量の半分である 0.25 m² 相当を用いた。なお、⁹⁰Sr 分析はシュウ酸塩法で実施し、プルトニウム分析は、イオン交換法で実施した。

III 結果及び考察

1. 全 β 放射能

1986 年 4 月～2012 年 9 月の期間に研究所で観測された、降下じん中全 β 放射能濃度（月間の単位面積あたりの全 β 放射能降下量）の推移を第 2 図に示す。2011 年 3 月に東電福島第一原発事故を受け、全 β 放射能濃度が

上記期間において最大となる 11,000 Bq m⁻² month⁻¹ を観測した。本調査で観測された最大濃度はチェルノブイリ事故時に観測された濃度（1986 年、300 Bq m⁻² month⁻¹）の約 37 倍であった。全 β 放射能濃度は徐々に減少し、2012 年 9 月には、19 Bq m⁻² month⁻¹ となった。さらに、調査期間における γ 線放出核種濃度（月間の単位面積あたりの γ 線放出核種降下量）及び全 β 放射能濃度（第 3 図参照）を比較すると、全 β 放射能濃度は ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs 濃度の変動と一致しており、全 β 放射能濃度に対して、放射性セシウムの寄与が大きいことがわかる。ここで、全 β 放射能濃度が ¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs 濃度合算値の約半分の値をとるのは、濃度算出に比較試料として塩化カリウム（KCl）試薬を用いており、⁴⁰K と放射性セシウムの β 線のエネルギーの相違による機器効率及び自己吸収の程度の差に起因するものである。

2. γ 線放出核種

(1) γ 線放出核種濃度

調査期間における γ 線放出核種濃度を第 1 表及び第 3 図に示す。第 1 表において、 γ 線放出核種濃度が検出下

第 2 図 降下じん中全 β 放射能濃度の推移

第 1 図 降下じん採取用水盤

第 3 図 降下じん中放射性核種濃度

第1表 降下じん中 γ 線放出核種濃度

試料採取月	2011年3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	2012年1月
採取期間	2011/3/1~4/1	2011/4/1~5/2	2011/5/2~6/1	2011/6/1~7/1	2011/7/1~8/1	2011/8/1~9/1	2011/9/1~10/3	2011/10/3~11/1	2011/11/1~12/1	2011/12/1~2012/1/4	2012/1/4~2/1
測定日	2011/4/18	2011/6/29~7/6	2011/7/16	2011/7/14	2011/10/24	2011/10/26	2011/10/26	2012/1/8	2012/1/8	2012/1/16	2012/3/8
測定量 (g)	1.54	21.38	2.83	1.28	1.23	0.88	4.41	0.88	0.91	0.95	0.89
濃度単位	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹
⁹⁵ Nb	1.0E+02	1.7E+01	6.6E+00	2.8E-01	< 9.0E-01	< 3.8E-01	< 1.8E-01	< 4.0E-01	< 1.1E-01	< 9.9E-02	< 1.2E-01
^{110m} Ag	2.4E+01	1.9E+01	2.1E+00	9.5E-01	3.5E-01	3.4E-01	< 1.0E-01	< 7.9E-12	< 6.3E-02	< 6.3E-02	< 7.5E-02
¹²⁵ Sb	< 5.9E+00	< 2.8E+00	2.1E+00	7.8E-01	< 4.8E-01	< 3.2E-01	< 3.8E-01	< 2.7E-01	< 1.9E-01	< 2.3E-01	< 2.6E-01
^{129m} Te	7.6E+03	5.9E+02	7.7E+01	3.1E+01	< 1.9E+01	< 8.9E+00	< 5.0E+00	< 9.3E+00	< 4.0E+00	< 2.7E+00	< 4.5E+00
¹²⁹ Te	4.3E+03	3.7E+02	5.7E+01	1.4E+01	< 1.2E+01	< 5.4E+00	< 3.4E+00	< 5.5E+00	< 2.2E+00	< 1.5E+00	< 2.6E+00
¹³¹ I	1.4E+03	< 2.5E+02	< 1.7E+01	1.4E+00	< 6.2E+02	< 3.8E+01	< 2.7E+00	< 8.5E+01	< 4.7E+00	< 6.4E-01	< 4.8E+00
¹³² Te	6.2E+03	< 1.4E+06	< 2.8E+03	< 1.3E-01	< 6.9E+07	< 9.9E+04	< 1.1E-02	< 1.2E+06	< 1.4E+03	< 7.3E+00	< 1.0E+03
¹³⁴ Cs	1.6E+04	2.6E+03	3.3E+02	1.1E+02	6.6E+01	3.4E+01	6.6E+01	1.8E+01	1.3E+01	1.8E+01	2.6E+01
¹³⁶ Cs	1.1E+03	< 1.7E+01	< 2.5E+00	< 4.7E-01	< 1.3E+01	< 2.3E+00	< 5.5E-01	< 3.5E+00	< 5.9E-01	< 1.7E-01	< 5.9E-01
¹³⁷ Cs	1.4E+04	2.2E+03	3.3E+02	1.0E+02	6.9E+01	3.8E+01	7.0E+01	2.1E+01	1.5E+01	2.1E+01	2.8E+01
¹⁴⁰ Ba	2.9E+02	< 8.0E+01	< 1.4E+01	< 2.2E+00	< 1.1E+02	< 1.5E+01	< 2.9E+00	< 2.2E+01	< 3.2E+00	< 9.6E-01	< 3.5E+00
¹⁴⁰ La	2.5E+02	< 5.9E+00	< 9.1E-01	< 2.0E-01	< 9.9E+00	< 2.0E+00	< 3.0E-01	< 3.7E+00	< 7.2E-01	< 1.8E-01	< 5.2E-01
⁴⁰ K	< 1.2E+01	6.0E+00	1.9E+00	1.2E+00	5.7E-01	8.1E-01	1.4E+00	7.0E-01	1.1E+00	9.8E-01	9.1E-01

試料採取月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	2011年度年間降下量	2012年度年間降下量	事故後約1年間の年間降下量
採取期間	2012/2/1~3/1	2012/3/1~4/2	2012/4/2~5/1	2012/5/1~6/1	2012/6/1~7/2	2012/7/2~8/1	2012/8/1~9/3	2012/9/3~10/1	2011/3/1~2011/4/1	2011/4/1~2012/4/2	2011/3/1~2012/3/1
測定日	2012/3/21	2012/5/11	2012/5/31	2012/7/4	2012/7/18	2012/7/18	2012/12/7	2012/12/7	2011/3/1~2011/4/1	2011/4/1~2012/4/2	2011/3/1~2012/3/1
測定量 (g)	1.07	18.65	3.17	2.57	1.81	1.45	2.04	2.67	2011/3/1~2011/4/1	2011/4/1~2012/4/2	2011/3/1~2012/3/1
濃度単位	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻² month ⁻¹	Bq m ⁻²	Bq m ⁻²	Bq m ⁻²
⁹⁵ Nb	< 1.1E-01	< 2.9E-01	< 2.6E-01	< 1.0E-01	< 8.0E-02	< 2.1E+00	< 5.4E-01	< 2.3E-01	1.0E+02	2.4E+01	1.2E+02
^{110m} Ag	< 7.5E-02	< 1.0E-01	< 9.8E-02	< 6.4E-02	< 6.4E-02	< 1.5E-01	< 8.2E-02	< 6.6E-02	2.4E+01	2.3E+01	4.7E+01
¹²⁵ Sb	< 2.7E-01	< 3.4E-01	< 3.9E-01	< 2.3E-01	< 2.5E-01	< 4.0E-01	< 2.2E-01	< 2.2E-01	—	2.9E+00	2.9E+00
^{129m} Te	< 3.4E+00	< 7.3E+00	< 6.1E+00	< 3.9E+00	< 2.9E+00	< 4.7E+01	< 1.5E+01	< 6.9E+00	7.6E+03	7.0E+02	8.3E+03
¹²⁹ Te	< 2.0E+00	< 4.1E+00	< 3.9E+00	< 2.3E+00	< 1.8E+00	< 3.6E+01	< 8.3E+00	< 4.5E+00	4.3E+03	4.4E+02	4.7E+03
¹³¹ I	< 1.3E+00	< 9.6E+00	< 4.9E+00	< 3.8E+00	< 9.3E-01	< 2.2E+04	< 8.4E+02	< 6.4E+01	1.4E+03	—	1.4E+03
¹³² Te	< 4.2E-01	< 2.5E+03	< 4.3E+02	< 6.3E+02	< 1.6E+01	< 6.8E+11	< 4.2E+08	< 8.8E+05	6.2E+03	—	6.2E+03
¹³⁴ Cs	2.5E+01	4.8E+01	5.0E+01	1.5E+01	2.0E+01	1.7E+01	1.1E+01	1.3E+01	1.6E+04	3.4E+03	1.9E+04
¹³⁶ Cs	< 2.8E-01	< 1.0E+00	< 6.8E-01	< 5.1E-01	< 2.3E-01	< 1.3E+02	< 1.4E+01	< 2.8E+00	1.1E+03	—	1.1E+03
¹³⁷ Cs	3.1E+01	5.8E+01	6.7E+01	2.1E+01	2.7E+01	2.3E+01	1.6E+01	1.9E+01	1.4E+04	3.0E+03	1.7E+04
¹⁴⁰ Ba	< 1.6E+00	< 6.6E+00	< 4.4E+00	< 2.7E+00	< 1.2E+00	< 8.4E+02	< 8.5E+01	< 1.6E+01	2.9E+02	—	2.9E+02
¹⁴⁰ La	< 2.4E-01	< 1.1E+00	< 4.6E-01	< 4.3E-01	< 1.8E-01	< 1.4E+02	< 1.7E+01	< 2.6E+01	2.5E+02	—	2.5E+02
⁴⁰ K	7.5E-01	3.9E+00	1.4E+00	2.7E+00	1.2E+00	< 1.1E+00	8.7E-01	9.8E-01	—	2.0E+01	1.6E+01

※1 γ 線放出核種濃度において、検出下限値に満たないものは、検出下限値を記載した（<検出下限値）。
 ※2 γ 線放出核種濃度の各年度及び事故後約一年間の年間降下量において、一度も検出されなかった場合は、“—”と記載した。

限值に満たないものは、検出下限値を記載した。さらに、採取期間、測定日及び測定量を記載した。試料は採取後約14日～120日後に測定された。そのため、採取日と測定日の間隔が長期にわたる場合、短半減期の核種は検出下限値が高くなった。特に、 ^{132}Te 等は、低エネルギー側であるためコンプトン散乱によるベースライン計数の上昇の影響を強く受けていることも考えられる。

2011年3月には、 ^{95}Nb ($T_{1/2}$: 35 d, 括弧内以下同)、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ - ^{129}Te (33.6 d), ^{131}I (8.02 d), ^{132}Te - ^{132}I (3.2 d), ^{136}Cs (13.2 d), ^{140}Ba - ^{140}La (12.8 d) といった短半減期核種が検出された。その他にも、長半減期核種である ^{134}Cs (2.06 y), ^{137}Cs (30.2 y), $^{110\text{m}}\text{Ag}$ (250 d) が検出された。 ^{137}Cs は最大で $14,000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ 検出され、その濃度は、チェルノブイリ事故時に研究所で観測された降下じん中 ^{137}Cs 濃度⁸⁾ (1986年, $140 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$) の100倍であった。また、本調査で観測された核種は、チェルノブイリ事故時に検出された核種 (^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , $^{129\text{m}}\text{Te}$ 等) と同様であった。短半減期核種は、徐々に検出されなくなり、事故から6か月が経過した2011年9月には ^{134}Cs , ^{137}Cs のみの検出となった。さらに2011年9月における放射性セシウム濃度は2011年3月の1/200にまで減少した。また、検出された核種の経時変化は文部科学省が公表している「環境放射能水準調査結果 (月間降下物)⁹⁾」とも良い一致を示した。

本調査結果から、事故後約1年間 (2011年3月～2012年2月) の年間降下量を算出すると、 ^{134}Cs は $19,000 \text{ Bq m}^{-2}$, ^{137}Cs は $17,000 \text{ Bq m}^{-2}$ であった。このことから、事故後約2週間で1年間の放射性セシウム降下量の約80%が降下したと考えられる。また、これらの放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}=1.1$) からは、東電福島第一原発事故により、同程度の放射能量で ^{134}Cs と ^{137}Cs が降下したことが読み取れる。

また、第4図に研究所で観測された2000年1月～2012年9月の降下じん中放射性セシウム濃度の推移を示す。さらに第4図には、参考のため ^{40}K 濃度の推移も記載した。 ^{134}Cs は過去10年間一度も検出されていないが、 ^{137}Cs は過去10年間においても何度か検出されている。いずれも春に検出されることが多く、過去のフォールアウトが土壌等から大気中へ再浮遊したためと考えられる^{10, 11)}。一方、2011年3月以後に観測された放射性セシウムは、東電福島第一原発事故の影響である。また、文部科学省が実施している茨城県の放射能測定調査 (1963年5月～2007年3月: 水戸市, 2007年3月～: ひたちなか市)¹²⁾ 結果と研究所で採取した降下じん

中 ^{137}Cs 濃度測定結果の経時変化を併せて第5図に示す。東電福島第一原発事故影響による ^{137}Cs 最大濃度は、茨城県ひたちなか市で $17,000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ であり、研究所で観測された濃度 ($14,000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$) とほぼ一致している。また、大気圏核実験 (1964年) 及びチェルノブイリ事故 (1986年) 時に茨城県内で観測された ^{137}Cs 濃度と、2011年3月に研究所で観測された濃度を比較すると、それぞれ90倍及び110倍と過去に比べてかなり大きいことがわかる。

さらに、最大値であった2011年3月の降下じん中放射性セシウム濃度から、実効線量を算出する。土壌からの外部被ばく線量及び土壌からの再浮遊に由来する吸入被ばく線量の積算値について、IAEAが提案している緊急事態時の被ばく評価方法¹³⁾に基づき、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の預託実効線量を換算係数をそれぞれ $0.0051 \text{ mSv kBq}^{-1} \text{ m}^2$ と $0.13 \text{ mSv kBq}^{-1} \text{ m}^2$ として算出すると、放射性セシウムによる50年間積算実効線量は 1.9 mSv となる。

第4図 研究所で観測された降下じん中放射性セシウム濃度の推移

第5図 茨城県及び研究所で観測された降下じん中 ^{137}Cs 濃度の経時変化

(2) ^{137}Cs 濃度との放射能比

降下じん中 ^{137}Cs 濃度とその他 γ 線放出核種濃度との放射能比を第6図に示す。その他 γ 線放出核種として、2011年4月以降にも検出された ^{95}Nb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, $^{129\text{m}}\text{Te}$, ^{129}Te , ^{134}Cs を対象とし記載した。また、参考のために ^{40}K についても記載した。2011年3月～2012年9月までの期間の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は0.68～1.2の範囲であった。東電福島第一原発事故による $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は事故当時約1¹⁴⁻¹⁷⁾とされており、良い一致を示した。その値は、チェルノブイリ事故によるフォールアウト値 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比: 0.5¹⁸⁾) よりも大きく、東電福島第一原発事故では同程度の放射能量で ^{134}Cs と ^{137}Cs が降下したと考えられる。

さらに第6図からは、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が徐々に減少傾向にあることがわかる。これは半減期の違いによるものであり、時間とともに以下の式(1)のように変化していく。

$$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = (^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs})_0 \cdot \exp(-(\lambda_{134} - \lambda_{137}) \cdot t) \quad (1)$$

ここで、(1)式において、 $(^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs})_0$ は東電福島第一原発事故後初期の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比、 λ はそれぞれの核種の壊変定数、 t は東電福島第一原発事故後初期からの経過時間を示す。(1)式から計算される傾きは $-0.0261 \text{ month}^{-1}$ であり、第6図から得られる傾きは $-0.0244 \text{ month}^{-1}$ と良い一致を示している。

また、 ^{131}I は2011年3月のみの検出であるが、 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は0.1であった。

(3) 土壌等からの再浮遊の影響

降下じん中放射性セシウム濃度、 ^{40}K 濃度及び同地点における月間降雨量を第7図に示す。降雨量は転倒マス型雨量計 (0.5 mm 計) を用いて観測した¹⁹⁾。 ^{40}K 濃度と

第6図 降下じん中 ^{137}Cs 濃度とその他 γ 線放出核種濃度との放射能比

第7図 降下じん中放射性セシウム濃度、 ^{40}K 濃度と月間降雨量

放射性セシウム濃度の増減はほぼ一致していた。空気中浮遊物質からは ^{40}K は通常検出されないことから、周辺土壌及び樹木等の表面へ沈着した放射性核種が大気中に再浮遊し、降雨等により採取用水盤 (地表面) へ到達したと考えられる。

次に、2011年3月～2012年9月の降下じん試料と、降下じんと同じ地点で採取された空気中浮遊じん試料¹⁹⁾の ^{137}Cs 濃度から再浮遊係数を式(2)から算出した (第2表参照)。

再浮遊係数 =

(粒子状放射性物質の空気中 ^{137}Cs 濃度 Bq m^{-3})

／(降下量の蓄積量 Bq m^{-2}) (2)

東京電力 (株) によると、2011年4月以降の放射性物質の大気中への放出量は3月の放出量の1%未満との報告がある²⁰⁾。そこで、再浮遊係数は、(2)式より2011年4月以降から算出した。なお、降下量の蓄積量は降下じん中 ^{137}Cs 濃度の積算値とし、2011年3月の値も含めた。その結果得られた再浮遊係数は $3.6\text{E}-09 \sim 8.6\text{E}-06 \text{ m}^{-1}$ の範囲であり、2011年4月から7月にかけては減少傾向にあるもの、2011年8月以降はほぼ一定の値であった。さらに東京電力 (株) から報告されている2011年4月以降の放出量評価²⁰⁾をみると、4月から7月にかけて放出量は減少傾向にあり、8月以降は、放出があまりないことが読み取れる。そこで、2011年8月以降の再浮遊係数において平均値を算出すると、 $2.5\text{E}-08 \text{ m}^{-1}$ となる。IAEA SS111-P-1.1, 1992²¹⁾, SRS²²⁾ 及び NCRP-R-129, 1999²³⁾ によると、汚染表面からの再浮遊係数 (m^{-1}) は第3表のように数値が求められている。本調査結果から算出した再浮遊係数はそれらと同じレベ

第2表 降下じん及び空气中浮遊じんの¹³⁷Cs濃度から算出した再浮遊係数

採取月	降下じん		空气中浮遊じん	再浮遊係数 ^{※2} (m^{-1})
	¹³⁷ Cs濃度 ($\text{Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$)	降下量の ^{※1} 蓄積量 (Bq m^{-2})	¹³⁷ Cs濃度 (Bq m^{-3}) (月平均値)	
2011年3月	1.4E+04	1.4E+04	1.7E-01	-
4月	2.2E+03	1.6E+04	1.4E-01	8.6E-06
5月	3.3E+02	1.7E+04	1.8E-02	1.1E-06
6月	1.0E+02	1.7E+04	1.6E-02	9.6E-07
7月	6.9E+01	1.7E+04	3.4E-03	2.0E-07
8月	3.8E+01	1.7E+04	7.4E-04	4.4E-08
9月	7.0E+01	1.7E+04	8.0E-04	4.8E-08
10月	2.1E+01	1.7E+04	1.3E-03	7.7E-08
11月	1.5E+01	1.7E+04	2.9E-04	1.7E-08
12月	2.1E+01	1.7E+04	1.1E-04	6.5E-09
2012年1月	2.8E+01	1.7E+04	8.5E-05	5.0E-09
2月	3.1E+01	1.7E+04	2.0E-04	1.2E-08
3月	5.8E+01	1.7E+04	4.6E-04	2.7E-08
4月	6.7E+01	1.7E+04	6.2E-05	3.6E-09
5月	2.1E+01	1.7E+04	2.1E-04	1.2E-08
6月	2.7E+01	1.7E+04	9.7E-04	5.7E-08
7月	2.3E+01	1.7E+04	1.1E-04	6.4E-09
8月	1.6E+01	1.7E+04	9.7E-05	5.7E-09
9月	1.9E+01	1.7E+04	3.9E-04	2.3E-08
2011年8月以降の再浮遊係数の平均値				2.5E-08
全期間における最小値				3.6E-09
全期間における最大値				8.6E-06

※1 降下量の蓄積量は、降下じん中¹³⁷Cs濃度の積算値とした。

※2 再浮遊係数は放出量の多かった2011年3月を除いて、4月から算出した。

第3表 再浮遊係数の試算値と他文献値との比較

引用文献	汚染表面からの 再浮遊係数 (m^{-1})	備考
本調査結果 (全期間) (2011年8月以降の平均値)	3.6E-09～8.6E-06 2.5E-08	
IAEA SS111-P-1.1, 1992 ²¹⁾	1.0E-06	
SRS ²²⁾	1.0E-07	都会, 非農耕地
SRS ²²⁾	1.0E-05	農耕地の土壌
NCRP-R-129, 1999 ²³⁾	1.0E-06	汚染直後
NCRP-R-129, 1999 ²³⁾	3.3E-08	汚染後30日
NCRP-R-129, 1999 ²³⁾	1.0E-09	汚染後1,000日
NCRP-R-129, 1999 ²³⁾	7.5E-10	学校, 公園, レクリエーション施設

ルであった。

3. 降下じん中⁹⁰Sr濃度

降下じん中¹³⁷Cs濃度の比較的高い2011年3月～6月の試料を用いて、⁹⁰Sr (28.8 y) 分析を実施した。その結果を第4表に示す。2011年3月の⁹⁰Sr測定値は $5.1 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ であり、その後¹³⁷Cs濃度と同様に、値は減少していった(第8図)。文部科学省によって報告された⁹⁰Sr濃度の東電福島第一原発事故後の最大値は、2011年3月、茨城県(ひたちなか市)において $6.0 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ であり²⁴⁾、研究所で採取した降下じん中⁹⁰Sr濃

度はこれと同程度であった。

次に、第5表に降下じんとその他陸上環境試料中の⁹⁰Sr/¹³⁷Cs放射能比を示す。ここで、その他陸上環境試料は、2011年3月～2012年9月の期間に研究所周辺で採取した、空气中浮遊じん(約3か月間採取、流量約 $11,000 \text{ m}^3$)¹⁹⁾及び土壌(2011年6月7日、11月17日採取)^{6, 19)}とする。2011年3月の降下じん及び2011年3月15日～6月14日における空气中浮遊じんにおける⁹⁰Sr/¹³⁷Cs放射能比はそれぞれ1/2700及び1/3000～1/1700と小さな値であった。一方、東電福島第一原発事故で大気中へ放出された⁹⁰Sr/¹³⁷Cs放射能比は約1/110と

第4表 降下じん中 ^{90}Sr 濃度, $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度及び ^{137}Cs 濃度との放射能比

採取年月	測定値 ($\text{Bq m}^{-2} \text{month}^{-1}$)			$^{90}\text{Sr} / ^{137}\text{Cs}$	$^{239,240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$
	^{90}Sr	^{137}Cs	$^{239,240}\text{Pu}^{*1}$		
2011年3月	5.1E+00	1.4E+04	9.3E-03	1/2700	6.6E-07
2011年4月	3.2E+00	2.2E+03	5.9E-03	1/690	2.6E-06
2011年5月	9.9E-01	3.3E+02	4.5E-03	1/330	1.4E-05
2011年6月	1.4E-01	1.0E+02	3.0E-03	1/710	3.0E-05

*1 ^{239}Pu と ^{240}Pu はそれぞれの放出する α 線のエネルギーが近く区別できないため、合算値として定量した。

第8図 降下じん中 ^{137}Cs 濃度, ^{90}Sr 濃度及び $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比

試算されており¹⁷⁾、比較すると研究所周辺で観測された放射能比は小さく、 ^{137}Cs の寄与が大きいと考えられる。なお、4月以降の降下じんの $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比にばらつきがあるのは、土壌等からの再浮遊の影響を含んでいると考えられる。2011年6月7日に採取した土壌中の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 1/73 及び 1/51 と降下じん等に比べて大きな値であるが、これは、過去の大気圏核実験等のフォールアウトの影響を含んでいるためと考えられる。なお、東電福島第一原発事故以前の研究所周辺の土壌における $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は、1/80 ~ 1/1.2 (1986年~

2009年)の範囲で、平均値は 1/20 であった。

次に、文部科学省が実施している茨城県の放射能測定調査(1963年5月~2007年3月:水戸市, 2007年3月~:ひたちなか市)¹²⁾結果と研究所で採取した降下じん中 ^{90}Sr 濃度測定結果の経時変化を合わせて第9図に記載した。東電福島第一原発事故影響により研究所で観測された ^{90}Sr 濃度の最大値は、茨城県内で大気圏核実験(1964年)及びチェルノブイリ事故(1986年)時に観測された濃度のそれぞれ 0.040 倍及び 2.8 倍であった。東電福島第一原発事故影響による ^{90}Sr 濃度は過去の大気圏核実験に比べて小さいことがわかる。

さらに、最大値であった2011年3月の降下じん中 ^{90}Sr 濃度より、放射性セシウムと同様に、実効線量を算出すると、 ^{90}Sr 預託実効線量を含む換算係数 $0.021 \text{ mSv kBq}^{-1} \text{ m}^2$ ¹³⁾を用いて算出した50年間積算実効線量は、0.00011 mSv となる。先に記した放射性セシウムによる実効線量(1.9 mSv)に比べ、非常に小さいことがわかる。

4. 降下じん中プルトニウム濃度

降下じん中 ^{137}Cs 濃度の比較的高い2011年3月~6月の試料を用いてプルトニウム分析を実施した。 ^{238}Pu , ^{239}Pu 及び ^{240}Pu は α 線放出核種であり、電着後 α 線スペ

第5表 降下じんとその他陸上環境試料における $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比

試料名	採取日時及び採取期間	$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比	平均
降下じん	2011/3 (2011/3/1~4/1)	1/2700	—
	2011/4 (2011/4/1~5/2)	1/690	—
	2011/5 (2011/5/2~6/1)	1/330	—
	2011/6 (2011/6/1~7/1)	1/730	—
空気中浮遊じん	2011/3/15~6/14	1/3000~1/1700	1/2500
	2011/6/14~9/20	1/480~1/46	1/230
	2011/9/20~12/20	1/690~1/25	1/350
	2011/12/20~2012/3/19	1/160~1/45	1/92
	2012/3/19~6/19	1/1400~1/36	1/430
	2012/6/19~9/18	1/660~1/34	1/310
土壌	2011/6/7	1/73, 1/51	1/62
	2011/11/17	1/130~1/1000	1/500

第9図 茨城県及び研究所で観測された降下じん中 ^{90}Sr 濃度の経時変化

第10図 全国及び研究所で観測された降下じん中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の経時変化

クトロメトリで測定する。その場合、 ^{239}Pu (24,100 y) と ^{240}Pu (6,560 y) の α 線のエネルギーが近く区別できないため、合算値 ($^{239,240}\text{Pu}$) として定量する。上記期間における $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は $0.0030 \sim 0.0093 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ の範囲であった(第4表参照)。一方、 ^{238}Pu は検出されなかった。福島県内の一部地域では、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比が0.214であり、東電福島第一原発事故以前の全国平均(0.0261)よりも高いため、事故影響の可能性があると報告されているものの²⁵⁾、研究所で採取された降下じんからは、東電福島第一原発事故影響はみられなかった。また、原子力施設等の立地都道府県で実施されている、原子力施設周辺環境放射線モニタリング調査¹²⁾の $^{239,240}\text{Pu}$ 降下量の測定結果(1978年～、第10図参照)によると、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の範囲はND(不検出)～ $0.2923 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ であった。なお、最大値は1978年3月に福井県で観測された。今回の降下じん中プルトニウム測定結果からは東電福島第一原発事故影響は認め

られず、また、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は、全国の過去の降下量における範囲内であり、その最大値と比較しても十分小さいものであった。

IV 結 論

東海再処理施設周辺の環境放射線モニタリングの一環として採取している、降下じん試料の放射性核種濃度について、2011年3月11日の東電福島第一原発事故の影響を調査した。事故後の2011年3月には、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs に加えて、 ^{131}I 、 ^{129}Te 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ 、 ^{132}Te 等の短半減期の放射性核種が検出されたが、2011年9月以降は、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs のみの検出となった。また、事故から約1年間(2011年3月～2012年2月)の年間降下量(^{134}Cs : $19,000 \text{ Bq m}^{-2}$ 、 ^{137}Cs : $17,000 \text{ Bq m}^{-2}$)及び $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(約1)からは、東電福島第一原発事故によって、ほぼ同程度の放射能量で ^{134}Cs と ^{137}Cs が降下したことがわかった。さらに、空气中浮遊じん試料の ^{137}Cs 濃度と降下じんの ^{137}Cs 濃度から再浮遊係数を算出したところ、放射性物質の大気中への放出量が減少し、放出があまりなくなると推測される、2011年8月から2012年9月までの平均値から $2.5\text{E-}08 \text{ m}^{-1}$ と算出された。

一部降下じん試料では、 ^{90}Sr 濃度が2011年3月に最大値である $5.1 \text{ Bq m}^{-2} \text{ month}^{-1}$ を観測し、その後濃度は減少傾向にあった。また、2011年3月～6月における $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は $1/2700 \sim 1/330$ と広範囲におよんでおり、周辺土壌等からの再浮遊の影響もみられた。一方プルトニウムにおいては、 $^{239,240}\text{Pu}$ は検出されたが、 ^{238}Pu は検出されず、過去のフォールアウトによるもので、東電福島第一原発事故影響は認められなかった。

東電福島第一原発事故により観測された ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度を事故以前に観測された濃度と比較すると、 ^{137}Cs 濃度は大気圏核実験及びチェルノブイリ事故時に観測された濃度のそれぞれ90倍、110倍であるのに対し、 ^{90}Sr 濃度はそれぞれ0.040倍、2.8倍であった。また、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は過去に観測された降下量の範囲内であった。本調査により、東電福島第一事故により観測された降下じん中放射性物質は、放射性セシウムにかなり偏ったものであることがわかった。

東電福島第一原発事故から約2年が経過し、短半減期核種は既に検出されないものの、長半減期核種である ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 及び ^{90}Sr においては、今後も継続的に環境試料中の濃度測定を実施していくことが、環境監視の観点から重要である。

参 考 文 献

- 1) S. FURUTA, S. SUMIYA, H. WATANABE, M. NAKANO, K. IMAIZUMI, M. TAKEYASU, A. NAKADA, H. FUJITA, T. MIZUTANI, M. MORISAWA, Y. KOKUBUN, T. KONO, M. NAGAOKA, H. YOKOYAMA, T. HOKAMA, T. ISOZAKI, M. NEMOTO, Y. HIYAMA, T. ONUMA, C. KATO and T. KURACHI; Results of the environmental radiation monitoring following the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, JAEA-Review 2011-035 (2011) (in Japanese).
- 2) M. TAKEYASU, M. NAKANO, H. FUJITA, A. NAKADA, H. WATANABE, S. SUMIYA and S. FURUTA; Results of environmental radiation monitoring at the Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, JAEA, following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **49**, 281-286 (2012).
- 3) 東京電力(株) ホームページ; 福島第一原子力発電所周辺環境への影響, <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/index2-j.html>, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.
- 4) 文部科学省; 放射能測定法シリーズ, No. 2 放射性ストロンチウム分析法 (2003).
- 5) 文部科学省; 放射能測定法シリーズ, No. 12 プルトニウム分析法 (1990).
- 6) 文部科学省; 放射能測定法シリーズ, No. 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 (1982).
- 7) 文部科学省; 放射能測定法シリーズ, No. 16 環境試料採取法 (1983).
- 8) T. ASANO, J. ISHIDA, Y. KITAHARA and M. KINOSHITA; Summary report on the environmental monitoring around Tokai area following the accident at Chernobyl Nuclear Power Plant, PNC-TN8420 86-10 (1986) (in Japanese).
- 9) 原子力規制委員会ホームページ; 放射線モニタリング情報, 定時降下物のモニタリング, 平成 23 年 3 月～平成 24 年 9 月, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/195/list-1.html>, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.
- 10) Y. IGARASHI; Approaches for dust transport by using resuspension of ^{90}Sr and ^{137}Cs , *J. Aerosol Res.*, **17** (4), 252-258 (2002) (in Japanese).
- 11) Y. IGARASHI, M. OTSUJI-HATORI and K. HIROSE; Recent deposition of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in Tsukuba, *J. Environ. Radioact.*, **31**, 157-169 (1996).
- 12) 原子力規制庁ホームページ, 環境放射線データベース, <http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search> top, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.
- 13) International Atomic Energy Agency; Generic procedures for assessment and response during radiological emergency, IAEA-TECDOC-1162, IAEA, VIENNA, 2000 (2000).
- 14) 青山道夫, 五十嵐康人, 廣瀬勝己; 月間降下物測定 660 カ月が教えること, *科学*, **82** (4), 442-457 (2012).
- 15) K. HIROSE; 2011 Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: summary of regional radioactive deposition monitoring results, *J. Environ. Radioact.*, **111**, 13-17 (2012).
- 16) Y. KANAI; Monitoring of aerosols in Tsukuba after Fukushima Nuclear Power Plant incident in 2011, *J. Environ. Radioact.*, **111**, 33-37 (2012).
- 17) 首相官邸ホームページ; 原子力災害対策本部; 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書—東京電力福島原子力発電所の事故について—, 平成 23 年 6 月. http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/iaea_houkokusho.html, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.
- 18) International Atomic Energy Agency; Summary report on the post-accident review meeting on the Chernobyl accident, Safety Series No. 75-INSAG-1 (1986).
- 19) S. SUMIYA, K. MATSUURA, M. NAKANO, M. TAKEYASU, M. MORISAWA, T. ONUMA, H. FUJITA, T. MIZUTANI, H. WATANABE and M. SUGAI; Manual for environmental radiological surveillance, JAEA-Review 2009-064 (2010) (in Japanese).
- 20) 東京電力(株) ホームページ; 福島第一原子力発電所事故における放射性物質の大気中への放出量の推定について, http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu12_j/images/120524j0105.pdf, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.
- 21) International Atomic Energy Agency; Application of exemption principles to the recycle and reuse of materials from Nuclear Facilities, Safety Series No. 111-P-1.1 (1992).
- 22) Centers for Disease Control and Prevention (CDC); Risk-based screening of radionuclide releases from the Savannah River Site, Atlanta, GA, p. 8-6 March (2005).
- 23) National Council on Radiation Protection and Measurements; Recommended screening limits for contaminated surface soil and review of factors relevant to Site-Specific Studies, NCRP Report No. 129 (1999).
- 24) 原子力規制委員会ホームページ; 報道発表, 都道府

県別環境放射能水準調査（月間降下物）におけるストロンチウム 90 の分析結果について，平成 24 年 7 月 24 日，http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5808/24/194_Sr_0724.pdf, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.

25) 原子力規制委員会ホームページ；福島県における土壌の放射線モニタリング調査結果，平成 24 年 4 月 6 日．http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/1000/308/24/232_120409.pdf, 閲覧 2013 年 4 月 9 日.

永岡 美佳（ながおか みか）

石川県金沢市出身。金沢大学大学院自然科学研究科修士課程修了。平成 22 年（独）日本原子力研究開発機構に入所。現在は核燃料サイクル工学研究所で再処理施設周辺の環境放射線（能）モニタリング業

務に従事。

E-mail: nagaoka.mika@jaea.go.jp