資 料

福岡県における全ベータ放射能調査

(1965 年度~1994 年度)

楠 崎 幸 範^{*1}

(1997 年 1 月 6 日受理)
(1997 年 4 月 18 日再受理)

Gross β Activity Survey in Fukuoka Prefecture

(Fiscal Years 1965-1994)

Yukinori NARAZAKI^{*1}

Based on the results from an analysis of the fallout collected in Fukuoka Prefecture in fiscal years 1965-1994, further analysis was carried out to determine the relation between gross β activity and some radionuclides, such as ^{40}K , ^{90}Sr , ^{137}Cs and so on, which are regarded as key nuclides in assessing radiological impact on human health. Gross β activity in fiscal years 1964-1984 decreased in accordance with a regression curve given by $F(x) = 2.58 \times 10^6 e^{-0.126x}$, where $r = 0.655$. The gross β activity during the period of fiscal years 1965-1981, when the influence of atmospheric nuclear explosion tests prevailed, was found to be in the range of 3.70-61,700 MBq/km², among which 64% of the data was lower than 200 MBq/km². The mean contributions of ^{90}Sr and ^{137}Cs to gross β activity were estimated to be only 1.9% and 3.4%, respectively. No significant correlation was found between the radioactivities of these two nuclides and gross β activity.

After 1982, gross β activity decreased to a level ranging from ND to 666 MBq/km², in which 50% of the data was evaluated to be ND. In recent years, natural ^{40}K is found to be the major contribution to gross β activity.

KEY WORDS : cesium-137, deposition, gross β activity, natural radionuclide, potassium-40, strontium-90

I 結 言

核爆発実験等によって環境中に放出される人工放射性核種はその多くがベータ線を放出する。しかし、ベータ壊変するこれらの核種を個々に測定することは容易ではない。全ベータ放射能測定は、これら複数のベータ放出体を総合的にしかも迅速に定量可能で、環境放射能調査が組織的に開始された当初から現在まで豊富なデータの

蓄積がある¹⁾。

科学技術庁委託による環境放射能水準調査はこの全ベータ放射能測定を主体に福岡県では1957年に開始した。1989年度以降は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の導入により放射能測定の中心はガンマ線核種分析へと移ったが、今でも定時採取による降雨ごとの降水では全ベータ放射能を測定している。

これは試料採取から測定までの所要時間が短く、早期の影響判断に役立つためであるが、核種の同定が不可能なうえ人工放射能と自然放射能の区別がつかないことなどから、核種分析を行うまでの補足的な意味合いが強く、

^{*1} 福岡県保健環境研究所; 福岡県太宰府市向佐野 39
(〒818-01)

Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences; 39, Mukaizano, Dazaifu 818-01, Japan.

測定自体の意義が問われている。

それゆえ、全ベータ放射能調査の意義を確認する目的で、福岡県における 1965～1994 年度の降下物の測定結果を用い、全ベータ放射能と環境影響評価上重要な核種である ^{40}K , ^{90}Sr , ^{137}Cs 等との関連性について解析を試みた。

II 実験方法

科学技術庁の環境放射能水準調査における月間降下物および定時採取による降雨ごとの降水を対象に解析を実施した。各試料は環境試料採取法²⁾に基づき採取および前処理を行った。

1965～1972 年度の降下物は福岡市, 1973～1994 年度は太宰府市に移転した福岡県保健環境研究所の屋上(地上 15 m)に設置したステンレス鋼製大型水盤(受水面積 4,960 cm^2)で 1 か月ごとに採取し、月間降下物とした。

1965～1989 年度の全ベータ放射能は月間降下物を試料とした。1990～1994 年度は定時採取(9 時～翌朝 9 時)による降雨ごとの降水を屋上に設置した雨水採取器(受水面積 968 cm^2)で採取し、この測定値を積算して月間降下量とした。

全ベータ放射能の分析は全ベータ放射能測定法³⁾により U_3O_8 を標準線源に用いて GM 計数装置で 30 分間計測した。

^{90}Sr , ^{137}Cs は月間降下物を前処理後, 財団法人日本分析センター(1974 年以前は財団法人日本分析化学研究所)に送付し, 当該センターが放射性ストロンチウム分析法⁴⁾および放射性セシウム分析法⁵⁾により分析した。ただし, 1973 年度については測定を行っていない。

ガンマ線核種分析は月間降下物を濃縮し, U-8 容器で乾固後, ゲルマニウム半導体検出器付ガンマ線スペクトロメータで 80,000 秒計測した⁶⁾。

なお, いずれの分析でも計数値がその計数誤差の 3 倍以下の値は不検出 (ND) とした。

III 結 果

1. 全ベータ放射能の分布

1965～1994 年度における全ベータ放射能の月別分布を Fig. 1 に示す。

1965～1984 年度は全試料から全ベータ放射能が検出され, その推移は 1900 年度を基準とした経過年数を x とすると $F(x) = 2.58 \times 10^6 e^{-0.126x}$ ($r = 0.655$) の回帰式で表された。回帰式から求めた見かけの半減期は 5.5 年であった。全ベータ放射能が 1,000 MBq/km^2 を超えたのは 1965～1968, 1971, 1972 年度の降下物で, これらは ^{90}Sr , ^{137}Cs の増加と対応することが多かった。なお, 1985 年度の降下物中の全ベータ放射能はすべて ND で

Fig. 1 Variation of gross β activity by seasonal fallout measurements.

The seasonal gross β activities for the respective fiscal years are shown with ○ for April-June, ● for July-September, □ for October-December, ■ for January-March. The decay curve of gross β activity in fiscal years 1964-1984 is expressed by $F(x) = 2.58 \times 10^6 e^{-0.126x}$, $r = 0.655$ (solid line). Each circled number at the upper part of the figure means a serial number of the atmospheric nuclear explosion tests by China.

あった。また、1986年度のチェルノブイリ原発事故後は一時548 MBq/km²を示したが、その後は検出される割合が年々低下した。

1965～1981年度の全ベータ放射能には中国による大気圏内核爆発の影響が認められるが、その影響は実験直後より、むしろその年あるいは翌年の4～6月の方が高

くなることが分かった。1982年度以降は1～3月の降下物から検出される頻度が比較的高かったが、明確な季節変化は認められなくなった。

2. 全ベータ放射能の階級別頻度分布

全ベータ放射能の階級別頻度分布をFig. 2に示す。

大気圏内での核爆発実験の影響が認められる⁷⁾ 1965～1981年度の全ベータ放射能は3.70～61,700 MBq/km²であった。その頻度分布は100 MBq/km²以下が39%, 100～200 MBq/km²は25%であった。また、1982～1994年度の全ベータ放射能は最大でも666 MBq/km²で、NDの頻度が50%と最も多く、100 MBq/km²以下は85%であった。

3. 全ベータ放射能に対する⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの寄与率

1965～1981年度の⁹⁰Sr降下量はND～17.4 MBq/km²(平均2.35 MBq/km²), ¹³⁷Cs降下量は0.111～37.4 MBq/km²(平均4.05 MBq/km²)で、この間の¹³⁷Cs/⁹⁰Sr比は平均1.7であった。また、検出された全ベータ放射能に対する⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの寄与率はFig. 3に示すようにそれぞれ0～29%(平均1.9%), 0.01～46%(平均3.4%)であった。このうち93%以上の試料では⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの寄与率が0.1～10%の範囲にあった。なお、1965, 1966および1980年度の降下物には⁹⁰Sr, ¹³⁷Csの寄与率が20%を上回るものもあった。

Fig. 2 Frequency distribution of concentration level of gross β activity.

The least-level and the most-level distribution represents that for ND and bigger the 1000 MBq/km² respectively.

Fig. 3 Contributions of ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K and other nuclides to gross β activity from monthly fallout measurements.

The ratio of ⁹⁰Sr to gross β activity from monthly fallout measurements during the period of fiscal years 1965-1994 is shown with ● and those of ¹³⁷Cs with □ respectively. Likewise, those of ⁴⁰K during the period of fiscal years 1990-1994 are shown with ▲ and those of other natural radioactive nuclides with ◇ respectively. The β activity of other natural radioactive nuclides represents an aggregate of ²⁰⁸Tl, ²¹²Pb, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi and ²²⁸Ac.

1982年度から3年間の ^{90}Sr , ^{137}Cs の寄与率では試料の約半数が0.03~0.5%の範囲にあった。しかも0.1%以下の寄与率が増加し, 1985年度以降両核種は検出されないことが多くなった。また, 1986年度のチェルノブイリ原発事故直後には ^{137}Cs の寄与率が24%に増加した。

1990~1994年度に検出された全ベータ放射能に対する ^{90}Sr および ^{137}Cs の寄与率を合わせると0~1.7% (平均0.15%) であった。

4. 全ベータ放射能に対する天然放射性核種の寄与率

1990~1994年度において, 全ベータ放射能が有意に検出された割合は43%であった。このうち全ベータ放射能に対する ^{40}K の寄与率は0~72% (平均16%) であった。また, 全ベータ放射能に対する ^{232}Th の娘核種である ^{208}Tl , ^{212}Pb , ^{228}Ac および ^{238}U の娘核種である ^{214}Pb , ^{214}Bi の寄与率を合わせると0~8.6% (平均1.1%)

であった (Fig. 3)。

5. 全ベータ放射能と ^{90}Sr , ^{137}Cs 濃度との相関関係

全ベータ放射能と ^{90}Sr および ^{137}Cs 濃度との相関関係を Fig. 4に示す。1965~1981年度の相関係数はそれぞれ0.111, 0.108であり, 1982~1994年度ではそれぞれ0.265, 0.041であった。

IV 考 察

大気圏内核爆発実験は1963年の米・英・ソによる部分的核爆発実験停止条約により禁止された。しかし, 翌年には中国が大気圏内での核爆発実験を開始し1980年までに22回実施された⁸⁾。なお, フランスも1974年まで南太平洋で大気圏内核爆発実験を実施したが, 成層圏および対流圏における両半球間の移流は少なく, わが国におよぼす影響は軽微であった⁹⁾。

1965~1981年度の全ベータ放射能は試料の64%が3.70~200 MBq/km²の範囲にあった。また, 全ベータ放射能に対する ^{90}Sr および ^{137}Cs の寄与率は大部分が0.1~10%の範囲にあり, 両核種を合わせた寄与率は平均5.3% (0.02~75%) であった。

1965, 1966, 1971年度の全ベータ放射能には第2~5回および第12回中国核爆発実験によると思われる増加がみられた。また, 第3, 4, 5回には強放射性粒子の飛来も確認された¹⁰⁾。ところで, 一般に大気圏内核爆発実験直後には ^{90}Sr , ^{137}Cs よりも ^{95}Sr , ^{131}I , ^{144}Ce 等の短寿命核種の影響が強く現れる傾向が認められる¹¹⁾。さらに, 降下物中には ^{95}Zr - ^{95}Nb および $^{103,106}\text{Ru}$ - $^{103,106}\text{Rh}$ の放射能レベルが ^{137}Cs の約10倍以上を示した報告もあり¹²⁾, ^{90}Sr と ^{137}Cs だけで人工放射性核種の量を推定することはできない。

1977年度には大規模な黄砂の飛来¹³⁾が観測されており, 全ベータ放射能の増加は ^{210}Pb をはじめ ^{238}U および ^{232}Th の寄与が加わったもの¹⁴⁾と考えられる。また, 1980年度には大気中 ^{210}Pb の増加が確認されており¹⁴⁾, 米国で噴火したセントヘレンズ火山の噴火灰の降下の影響とも考えられる。

なお, 1975年度の核爆発実験休止期に ^{90}Sr , ^{137}Cs の寄与率が高いのは, 全ベータ放射能が低いため, これらの核種の寄与率が相対的に増大したものである。中国も1980年を最後に実験場を大気圏から地下へと移したため, 1982年度以降は ^{90}Sr , ^{137}Cs を検出することはまれになり, 全ベータ放射能も年々低下した。

1965~1981年度の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比は平均1.7で, 大気圏内核爆発実験で生成される大気中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比1.6¹⁵⁾とほぼ一致している。また, ^{90}Sr , ^{137}Cs には成層圏を経

Fig. 4 Correlation between gross β activity and ^{90}Sr and ^{137}Cs as found in monthly fallout.

Correlation between gross β activity and ^{90}Sr are shown with $\bullet$ and that between the same and ^{137}Cs with $\square$ respectively.

由し4～6月に降水量が増大するスプリングピークが確認されており⁷⁾、全ベータ放射能にも同様な季節変化が認められた。

1990～1994年度における月間降下物中の核種分析結果によれば、全ベータ放射能に対する⁴⁰Kの寄与率は平均16%である。これは核種分析で検出されたベータ放出体の中で最も寄与率が高く、全ベータ放射能の変動は天然放射性核種⁴⁰Kによるものと推定された。

全ベータ放射能に対して核種分析で検出されるベータ放出体の寄与率がかなり低いのは、1990～1994年度の全ベータ放射能は降雨ごとの測定値の積算であり、比較的半減期の短い核種も多く含まれていることやGM計数装置の検出感度はゲルマニウム半導体検出器付ガンマ線スペクトロメータより優れていることが理由にあげられる。なお、全ベータ放射能はエネルギーの異なる多数の未知核種を U_3O_8 で基準化することによって求められており、個々のベータ放出体の放射能の合計とは必然的に異なってくる。

V 結 語

1965～1981年度の全ベータ放射能には中国の核爆発実験によると思われる人工放射性核種の寄与が大きく、⁹⁰Sr、¹³⁷Csの影響も無視できない。しかし、全ベータ放射能に占めるこれらの寄与率は平均でそれぞれ1.9および3.4%であった。しかも全ベータ放射能と⁹⁰Sr、¹³⁷Csとの間に有意な相関関係は認められなかった。また、大気圏内核爆発実験直後の全ベータ放射能には⁹⁰Sr、¹³⁷Cs以外の人工放射性核種の寄与も大きく、両核種だけで全放射能の量や推移を説明することはできず、早期フォールアウトの推移のあらましに関する情報が得られる全ベータ放射能調査の意義は大きかった。

一方、1982～1994年度の全ベータ放射能に対する⁹⁰Sr、¹³⁷Csの寄与率はさらに低下し、その量はわずかで両核種を精度よく測定することはできなくなった。さらに近年の全ベータ放射能は検出されることがまれで、しかも大部分は天然放射性核種⁴⁰Kの寄与によると思われる。しかしながら、1986年のチェルノブイリ原発事故にみられるように全ベータ放射能調査は、降下物中の未知核種の濃度や変化を総合的に判断するモニタリング方法として有用であり、今後も有効な監視指標であると考えられる。

本調査にあたって、永年⁹⁰Sr、¹³⁷Csの分析に携わっていただいた(財)日本分析センターの担当者各位、また、貴重な御助言をいただいた(財)日本分析センターの吉清

水克己分析部参事ならびに福岡大学薬学部加留部善晴助教授に深謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 科学技術庁(編)；第1回放射能調査研究成果発表会論文抄録集，東京(1959)～都道府県における放射能調査，第36回環境放射能調査研究成果論文抄録集，東京(1994)。
- 2) 科学技術庁(編)；“環境試料採取法”，放射能測定法シリーズ16，東京(1983)。
- 3) 科学技術庁(編)；“全ベータ放射能測定法”，放射能測定法シリーズ1，東京(1976)。
- 4) 科学技術庁(編)；“放射性ストロンチウム分析法”，放射能測定法シリーズ2，東京(1983)。
- 5) 科学技術庁(編)；“放射性セシウム分析法”，放射能測定法シリーズ3，東京(1976)。
- 6) 科学技術庁(編)；“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”，放射能測定法シリーズ7，東京(1990)。
- 7) 檜崎幸範，中山一成，加留部善晴；福岡県における環境放射能調査(1963年度～1990年度)，保健物理，**30**，323(1995)。
- 8) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation；“Ionizing Radiation：Sources and Biological Effects,” United Nations, New York(1982)。
- 9) 葛城幸雄，三宅泰雄；日本における¹³⁷Cs、⁹⁰Srの降下量，第11回放射能調査研究成果発表会論文抄録集6，東京(1969)。
- 10) 福岡県衛生研究所；福岡県衛生研究所報，**12**，40(1968)；福岡県衛生研究所報，**13**，41(1969)。
- 11) 静岡県環境放射能測定技術会；浜岡原子力発電所周辺環境放射能調査結果(昭和47年度～昭和56年度)，静岡(1984)。
- 12) 笠井 篤，梁瀬芳晃，前沢慶治，今井利夫；大気中の放射性核種濃度と月間の降下量，第15回放射能調査研究成果発表会論文抄録集，66，東京(1973)。
- 13) 福岡管区気象台(編)；地上観測日原簿，福岡(1977)。
- 14) 松並忠男，溝畑 朗，伊藤憲男；大阪における²³⁸Uおよび²³²Th降下量，保健物理，**24**，337(1989)。
- 15) A.W. KLEMENT, Jr.；Radioactive fallout phenomena and mechanisms, *Health Physics*, **11**, 1265(1965)。