

エアロゾルにより輸送された放射性核種の観測 (2011) —福島第一原子力発電所事故に関連して—

金井 豊

Yutaka Kanai (2012) Observation of radionuclides transported with aerosols at the GSJ in 2011: in relation to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 63(3/4), p. 107-118, 10 figs, 1 table.

Abstract: In order to obtain the geochemical knowledge of material cycle as a tracer and to contribute the safety of inhabitant, the aerosol observation data at the GSJ from the end of March to December 2011 were discussed after the establishment of observation and quantification methods for artificial radionuclides.

The detector efficiency was obtained by the standard ore radiation source and the sum effect of Cs-134 was corrected by using of Cs-134/Cs-137 activity ratio. Most of the artificial radionuclides except Cs-134 and Cs-137 in aerosol became below the detection limit at the end of June. The observed concentrations are estimated to be harmless to health. The meteorological effect on Cs-137 concentration such as rainfall and wind direction was not so clearly shown, partly because the time resolution of observation was low and the long time elapsed after the accident.

Keywords: artificial radionuclides, aerosol, Cs-134, Cs-137, Pb-210, Be-7, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Geological Survey of Japan, 2011

要 旨

物質循環のトレーサーとしての地球科学的知見を得ると同時に地域住民の不安感の払拭にも貢献するため、人工放射性核種の観測・定量手法を検討し、福島第一原子力発電所事故後のエアロゾル観測を行い、2011年3月末から12月までの観測データを検討した。

鉱石等の標準線源試料を用いて検出効率を求め、カスケード崩壊するCs-134の定量にはCs-134 / Cs-137比の変化からサム効果の補正法を確立した。3月末のエアロゾル観測開始時から検出された種々の人工放射性核種は、Cs-134とCs-137を除いて6月末にはほとんどが検出限界以下となった。観測期間中の放射性核種の濃度は、いずれも健康を害するレベルではなかった。観測の時間分解能が低いことや事故後の時間が経過していたことから、エアロゾル中のCs-137濃度に対する気象の影響は不明瞭ながらも、サンプリング期間中の雨量や風向が影響している傾向が認められた。

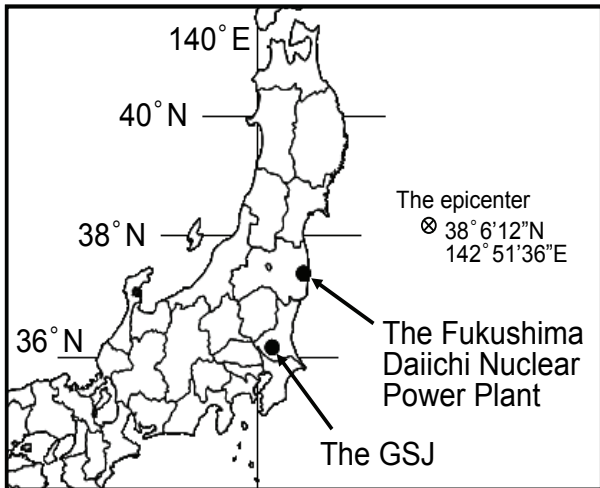
1. はじめに

土壌や湖底の堆積物を構成する要素として大気降下物

があり、また、底質では更に河川を経由する後背地からの二次的供給物がある。湖底に溜まった堆積物などはこうした過去の大気環境や後背地における環境履歴を反映するものとして、良い研究対象となっている。また、大気中のエアロゾルは、現在においても様々な物質の移動・循環の一端を担っており、非常に興味深い対象の一つである。このため、著者らはこれまでに中国大陸を含む東アジア地域における風送ダストの現状把握と地球環境への影響評価等の地球化学的研究を行ってきた(金井, 2001; 上岡・金井, 2002; Kanai *et al.*, 2005; Ohta *et al.*, 2005)。

また、環境中には様々な放射性核種が存在しているが、天然放射性核種の鉛-210 (Pb-210) や人工放射性核種のセシウム-137 (Cs-137) などは大気循環のトレーサー利用の他に堆積速度の算出に有用な核種であり、これまでも多くの研究者により堆積年代学に利用されてきた (Krishnaswami *et al.*, 1971; Koide *et al.*, 1972; Appleby and Oldfield, 1978; 金井ほか, 1995; 1997; 2002; Cochran *et al.*, 1998)。これらは、大気からの降下物として地表面や堆積物中に移動・蓄積したものである。

一方、2011年3月11日に発生した宮城県沖を震源地とする東北地方太平洋沖地震 (M 9.0) とその後におそ



第1図 試料採取地点 (the GSJ) と福島第一原子力発電所の位置関係。

Fig. 1 Location map of sampling station (the GSJ) and the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant.

た大津波は、東日本の各地に大災害をもたらした。中でも東京電力(株)福島第一原子力発電所においては、非常用電源の全喪失によって原子炉の冷却機能が失われ、その後格納容器からのベント、水素爆発、圧力抑制プールの損傷などにより、大気中にヨウ素-131 (I-131) や Cs-137 などの大量の放射性核種が放出され、建造物の倒壊等とは異なる別の大災害となった。更に、建屋の高濃度汚染水が亀裂を通じて海洋に流出し、また、集中廃棄物処理施設にあった低レベル放射能汚染水等を海洋に放出したことなどにより海洋中にも大量の放射性核種が放出され、以前に比べ環境中の放射能レベルはかなり増大した。

産業技術総合研究所地質調査総合センター第7事業所においても震災による被害を受け、施設や実験機器の被害などが生じた。また、当所は福島第一原子力発電所から南南西方向に約170 km 離れているが(第1図)、極微量放射性核種の測定装置においては、原発事故に起因する放射性核種による汚染が観測され、装置の除染作業がなされた(金井・斎藤, 2011a)。

著者らは、環境中の放射性核種の動態を解明する研究の一環として、また、堆積物の構成物質として風送ダストの環境中での動態・影響を明らかにするため、これまでも風送ダストの研究を行い、エアロゾル中の鉛-210 について報告もしたが(Kanai and Yanagisawa, 2002; Kotani *et al.*, 2012)、人工放射性核種を中心とした研究は行っていない。しかし、事故後の放射性核種のモニタリングは、地域住民の放射線被ばくに対する不安感を払拭するのに寄与するばかりでなく、万が一の場合の線量評価にも貢献する。また、地球科学的にも大気による物質移動や堆積物への物質移動のトレーサーとして有用であ

るため、新たに人工放射性核種の定量をめざした観測・定量手法を検討し、事故後20日経過した3月末から大気中のエアロゾルの放射性核種の観測を開始した(金井, 2012; Kanai, 2012)。本研究では、手法の確立と観測結果について検討した事項を報告する。

2. 試料と実験装置

2.1 試料採取

試料採取は、風送ダストの研究(金井, 2001; Kanai *et al.*, 2005)で使用した装置を利用して行った。産業技術総合研究所地質調査総合センター第7事業所C-8棟の屋上(地上14 m, 第1図参照)に設置されたハイボリュームエアサンプラー(HV-1000F, Shibata Scientific Co., Ltd.)に、ポリフロンフィルター(PF040, Advantec Co., Ltd., 約25 cm × 20 cm × 0.95 mm 厚)を取り付けて、毎分1000 lの吸引速度で空気中のエアロゾルを採取した。原発事故の緊急時における試料採取では活性炭のフィルターを併用するが(文部科学省, 1992a)、本研究ではガス状ではなくエアロゾルを研究対象としたため、活性炭フィルターは使用していない。使用したポリフロンフィルターは、0.3 μm 粒子に対する捕集効率は95%とされている(Advantec, 2001)。

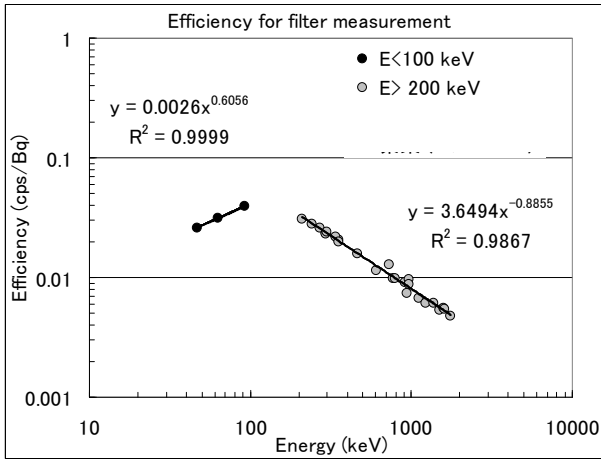
試料採取時間は、初期は6時間程度であったが、その後は3-4日、状況に応じて7日以上に及ぶこともあった。各試料の採取開始時間・終了時間・採取空気量は第1表に示してある。エアロゾルを採取したフィルターは、1/16のサイズに折りたたみ、ポリエチレン袋に封入し、更にポリエチレン容器に入れて測定用試料とした。

2.2 測定装置

放射能測定装置には、井戸型Ge半導体検出器(GWL-120-16-LB-AWT-HJ-S, SEIKO EG&G ORTEC)を備えたMCA7600システムを使用した(金井・斎藤, 2011a, b)。測定は、Ge検出器の上に試料を入れたポリエチレン容器を載せて、おおむね1日間計測した。放射性核種の濃度の定量には、得られたスペクトルを「ガンマスタジオ」ソフトウェア(DS-P240/W32, SEIKO EG&G)を使用して解析し、崩壊補正してサンプリングの開始時間における核種濃度として求めた。

2.3 標準線源試料

ガンマ線スペクトルから核種を定量するには検出効率が必要であるが、これまでは鉱石や環境標準試料から自作した標準線源試料との放射線強度の比較で定量してきた(金井, 1993; 金井ほか, 1995, 1997; 金井・斎藤, 2011a)。しかし、本研究で対象とする人工放射性核種は天然試料には存在せず、比較法では定量できない。そこで、人工放射性核種まで拡張するために検出効率-エネ



第2図 ウラン・トリウム鉱石から調製した標準線源試料を用いて作成した検出効率-エネルギーの関係曲線。

Fig. 2 Correlation curve between detection efficiency and gamma energy obtained by standard sources made of U and Th ores.

ルギーの関係曲線を作成して、求める核種の検出効率を算出した (金井, 2012)。

検出効率を算出するための標準線源試料は、一般には人工放射性核種の線源を使用するが (文部科学省, 1992b), 著者らはこれまでウラン鉱石やトリウム鉱石を利用していた経験から、これらを用いて自作した。NBL (New Brunswick Laboratory) の標準試料である analyzed sample No.79 (1% Th 鉱石) や counter calibration sample (1% U 鉱石) から新たに測定試料と形状を同じにした標準線源試料を調製した。ウラン系列では娘核種間で放射平衡になっていることが必要であるが、系列途中で気体のラドン (Rn-222) があるので、counter calibration sample (1% U 鉱石) を SiO₂ と 5% Fe₂O₃ で希釈した 0.5% U の粉末 1 g を、気体が逃げないようにポリビニールアルコール (液状糊) で練ってフィルターに塗りつけ固定した。それを試料同様に 1/16 のサイズに折りたたんでポリエチレン袋に封入し、更にポリエチレン容器に入れて標準線源試料とした。

3. 結果と考察

3.1 自作標準線源試料による検出効率の決定

ある核種 *i* のガンマ線スペクトルにおけるピークの放射線強度 B_i (Bq / g) は、ピーク強度 P_i (cps / g) と装置の検出効率 ϵ_i 、種々の補正項 f_i とで次式のように表される。

$$B_i = P_i / (\epsilon_i \cdot f_i) \quad \text{式 (1)}$$

検出効率 ϵ_i は試料と検出器との幾何学的配置やエネルギーに依存する係数であり、補正項 f_i は試料の自己吸収

や空気・容器等による吸収・散乱、サム効果等、様々な要因の補正項である。標準線源試料でも同じであるから、それに *s* をつけて示すと、

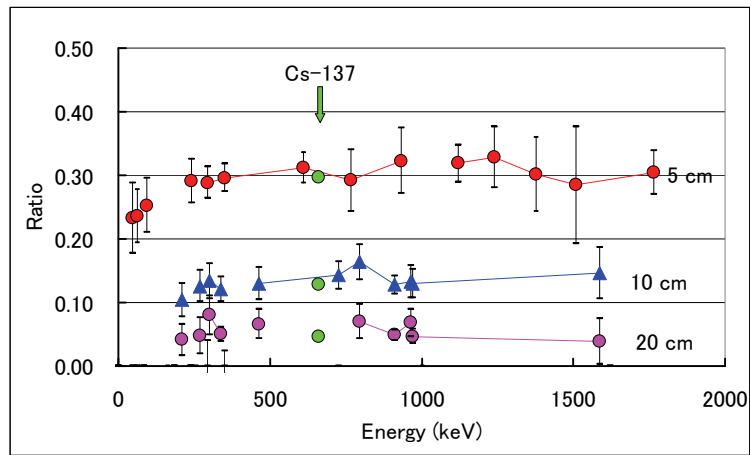
$$B_i = B_{s_i} \cdot (P_i / P_{s_i}) / [(\epsilon_i / \epsilon_{s_i}) \cdot (f_i / f_{s_i})] \quad \text{式 (2)}$$

となる。標準線源試料と試料とを同様な形態で計測すれば補正項 f_i , f_{s_i} の影響はなくなり、更に測定対象とする核種のピークが同じであれば検出効率 ϵ_i , ϵ_{s_i} も同じであるので、標準線源試料と試料との強度の比 (P_i / P_{s_i}) から式 (2) を用いて未知試料の濃度が定量できる。これまではその手法で定量を行ってきた (金井, 1993; 金井ほか, 1995, 1997; 金井・齋藤, 2011a)。しかし、測定対象とする核種の標準線源試料がない場合には P_{s_i} がないので式 (2) を利用できず、検出効率 ϵ_i のエネルギー依存性から ϵ_i を求め (実際には補正項を含む ($\epsilon_i \cdot f_i$))、真の放射線強度 B_i (Bq / g) を式 (1) から算出する。

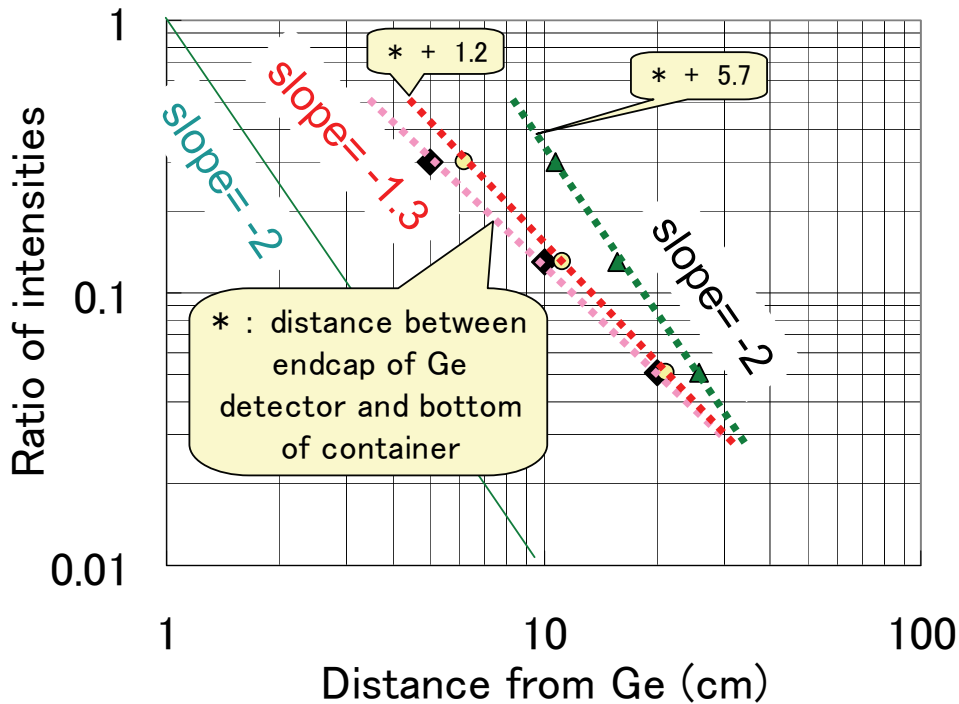
ウラン・トリウム鉱石から調製した標準線源試料を用いて作成した検出効率-エネルギーの関係曲線を、第2図に示した。ピーク強度の算出には、ウラン系列の Pb-210 (46.5 keV), Th-234 (63.29 keV, 92.8 keV), Pb-214 (241.92 keV, 295.22 keV, 351.99 keV), Bi-214 (609.31 keV, 768.36 keV, 934.06 keV, 1120.29 keV, 1238.11 keV, 1377.67 keV, 1509.23 keV, 1764.5 keV) やトリウム系列の Ac-228 (209.5 keV, 270.2 keV, 338.7 keV, 463.3 keV, 795 keV, 911.2 keV, 964.4 keV, 968.8 keV, 1588.3 keV), Pb-212 (300.11 keV), Bi-212 (727.27 keV, 1620.62 keV) 等のピークを使用している。どれも 100 keV までと 200 keV 以上とで両対数上で直線関係が見られている。この直線関係から、任意のエネルギーを持つ核種の検出効率を得て、真の放射線濃度を式 (1) から算出した。

本検出器は井戸型の Ge 半導体検出器であり、その絶対検出率は試料を井戸の中に挿入して計測した場合には、ガンマ線のエネルギーがおおむね 50 keV あたりで 0.6-0.7, 200 keV あたりで 0.5, 1MeV で 0.08-0.1 程度であったが (金井・齋藤, 2011a), 本研究のように Ge 検出器の上部に試料を載せた場合には、50 keV や 200 keV あたりで 0.03, 1 MeV で 0.008 程度と、1/10 以下の検出効率に低下しており (第2図参照), 検出器と試料との位置関係がかなり重要であることが示された。また、井戸の中に線源を入れて検出した場合の Bi-214 の 609.31 keV, 1120.29 keV のピークでは直線から外れており (金井・齋藤, 2011a の第5図), サム効果で見かけ上の効率が低下していた。

一方、井戸の中でなく検出器の上に置いて測定した場合でも、Cs-134 のように複数の放射線を放出する核種は、サム効果により見かけ上の検出効率が低下する。サム効果の補正方法には、全てのエネルギー準位の遷移パターンを拾い出し複雑な計算をしなければならず、そう



第3図 検出器から離れた場合 (x cm) と置いて測定した場合 (0 cm) の放射線強度の比.
 Fig. 3 Ratio of radiation intensity of source measured above the detector (x cm) to that on the detector (0 cm).

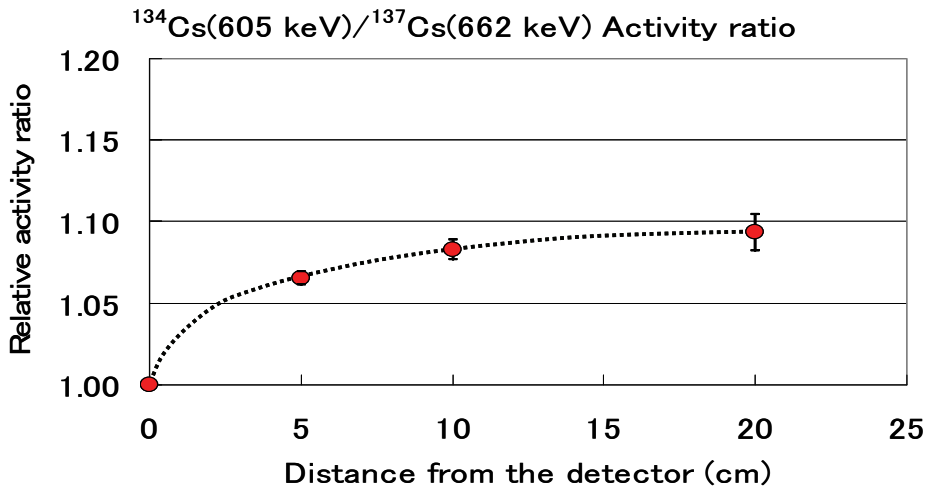


第4図 検出器からの距離と放射線強度の関係.
 Fig. 4 Correlation between radiation intensity and distance from detector to source.

したプログラム化もされているが (文部科学省, 1992b ; セイコー・イージーアンドジー, 2009), 井戸型検出器に適用できるものはない (小村, 2006). 線源を検出器から離すことによりサム効果の影響を減少することができるが, 同時に検出効率も低下する. 検出器から常時離して検出効率の低い状態で試料測定することは, 測定時間がかかると同時に測定誤差も大きいため効率的ではない. そこで, Cs-134 の定量のためにサム効果のない Cs-

137 のピークを利用し, Cs-134/Cs-137 ピーク強度比を用いて補正することにした.

検出器から距離を離れたときの放射線強度は, 点線源の場合には検出器からの距離のマイナス 2 乗に比例して変化する. 線源試料のピークではおおむね各ピークは離れた距離に応じて一定の比で減少し (第 3 図), その比の平均値はエンドキャップから容器の底面までの距離のマイナス 2 乗ではなく, マイナス 1.3 乗に比例した (第



第5図 検出器からの距離と Cs-134/Cs-137 ピーク強度比の関係。

Fig. 5 Correlation between Cs-134/Cs-137 intensity ratio and distance from detector to source.

4 図). 本装置の Ge 結晶の長さは 7.1 cm, エンドキャップから実際の Ge 結晶までが 1.2 cm, ポリエチレン容器の底面の厚みが 0.2 cm, また試料の厚みも 1.5 cm なので, これから計算すると Ge 結晶と試料の仮想的な中心間の距離は 5.7 cm 加えた距離となる. そこで, Ge 結晶と試料の仮想的な中心間の距離として 5.7 cm を加えた距離を用いると, 放射線強度はちょうどマイナス 2.0 乗に比例した (第 4 図). この結果, 放射線強度と検出器からの距離との間に一定の関係があることが確認され, ピーク強度比を利用する妥当性が評価できた.

検出器からの距離に対する Cs-134 / Cs-137 ピーク強度比の変化を第 5 図に示した. 検出器から離すにしたがって Cs-134 / Cs-137 ピーク強度比は増加し, 10 cm から 20 cm 程度離すとおおよそ 8-9 % 増大することが判明した. そこでサム効果の影響が無視できると考えられる 10 cm 及び 20 cm の値について誤差による荷重平均をとって, サムピークを補正した Cs-134 ピーク強度として, 直接測定した Cs-137 ピーク強度の 1.085 倍したものをを用いた.

3.2 エアロゾル観測開始前の放射性核種

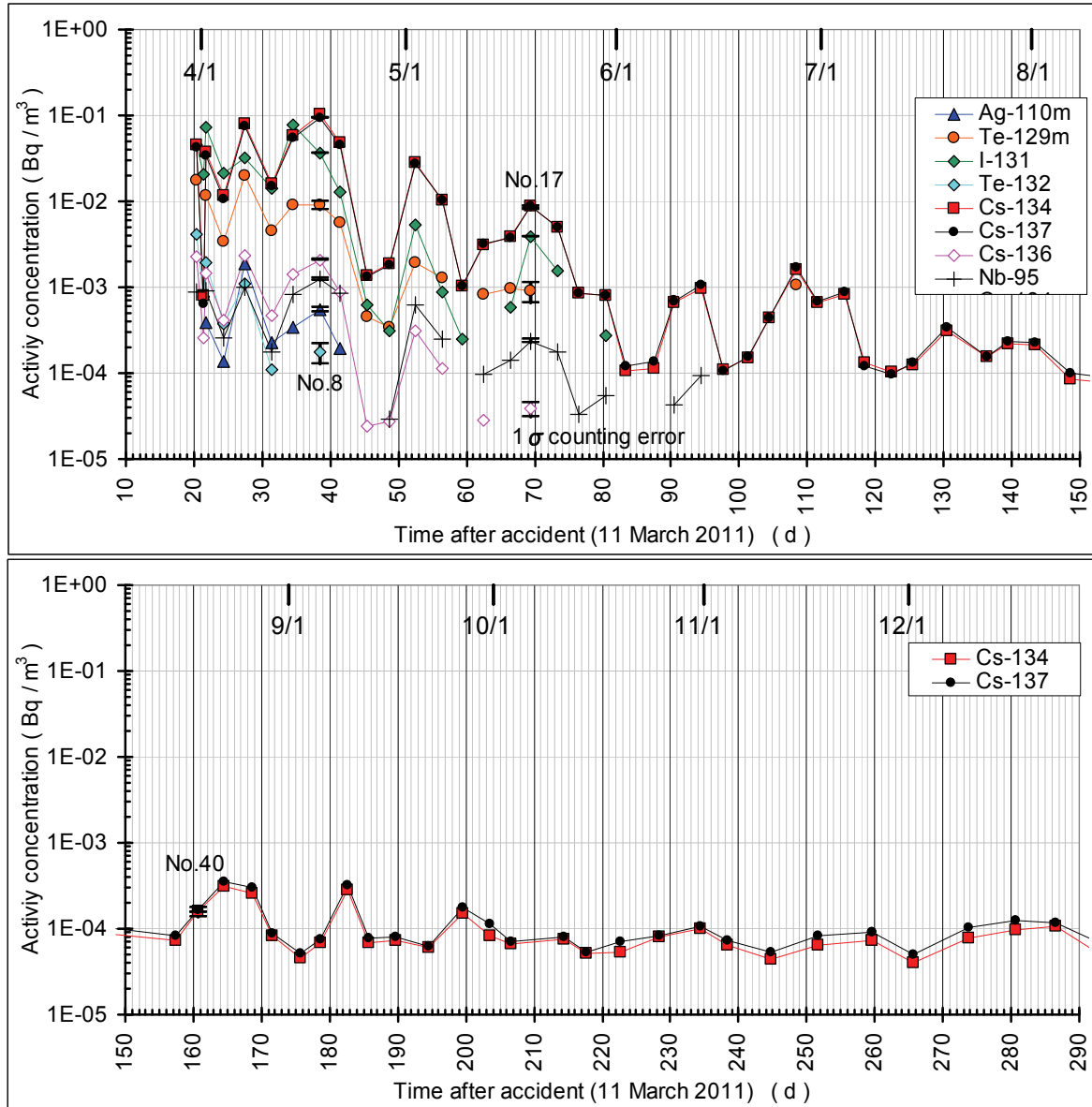
2011 年 3 月 11 日の大災害以降, 測定装置において原発事故に起因する放射性核種による汚染が観測された (金井・齋藤, 2011). 初期の汚染状況から, 3 月 17 日の時点におけるエアロゾル由来核種として, Xe-133 (81 keV のピークで 1.4×10^2 cps), Te-132 / I-132 (主なピークの和で 7.4×10^3 cps), I-131 (主なピークの和で 3.7×10^2 cps), Cs-137 (662 keV のピークで 1.0×10^3 cps), Cs-134 (主なピークの和で 1.9×10^3 cps) が検出されている. その後 Xe-133 は検出限界以下となったが, 代わりに Tc-99m (6.02 時間), Cs-134 (2.062 年), Cs-136 (13.16 日), Te-129m (33.5 日) / Te-129 (69 分) などが現れている. 産総研でも地表面に降下した人工放射性核種とし

て, 3 月 15 日に Xe-133, Te-132 / I-132, I-131, I-133, Cs-134, Cs-137 などが検出されている (産業技術総合研究所, 2011).

当所における事故直後の大気中エアロゾル濃度は観測前であり不明であるが, 3 月 15 日のつくばにおける I-131 と Te-132 の観測値がそれぞれ 3.0×10^5 Bq/cm³, 2.0×10^5 Bq/cm³ と報告されている (高エネルギー加速器研究機構, 2012). これらの値は, 当所での観測が開始した 3 月 31 日の濃度よりも $10^3 - 10^4$ 倍高濃度であった.

3.3 エアロゾル中の人工放射性核種の濃度変化

東京電力 (株) 福島第一原子力発電所の事故から 20 日経過した 2011 年 3 月 31 日から, エアロゾルの採取と観測を開始した. 2011 年 12 月末までの観測結果を第 1 表及び第 6 図に示す. 測定開始直後には, Tc-99m (半減期: 6.02 時間, 以下同様), Cs-134 (2.062 年), Cs-136 (13.16 日), Te-129m (33.5 日) / Te-129 (69 分), I-131 (8.04 日), Te-132 (78 時間) / I-132 (2.28 時間), Cs-137 (30.17 年) などが継続的に観測されていたが, 半減期の短い核種は 5 月中にほとんどが本装置の測定検出限界以下となり, 6 月 27 日の Te-129m / Te-129 を最後に Cs-134 と Cs-137 のみが検出されるようになった. その後, 両セシウム同位体は 10^{-4} Bq/m³ のレベルで漸減している. これらの濃度は, Cs-137 の濃度に関していえば, 事故前の大気中平均濃度レベル 10^{-6} Bq/m³ (日本分析センター, 2012) と比べればおおよそ 100 倍程度高い値となっているが, チェルノブイリ原発事故後の約 10 倍程度, 1970 年代にも同程度の濃度が観測されている. また, 放射性同位元素利用施設の排気中の濃度限度 30 Bq/m³ と比較すると, その濃度は 10 万分の 1 以下である. いずれにせよ, 観測期間中の放射性核種の濃度は, いずれも健康を害するレベルではなかった.



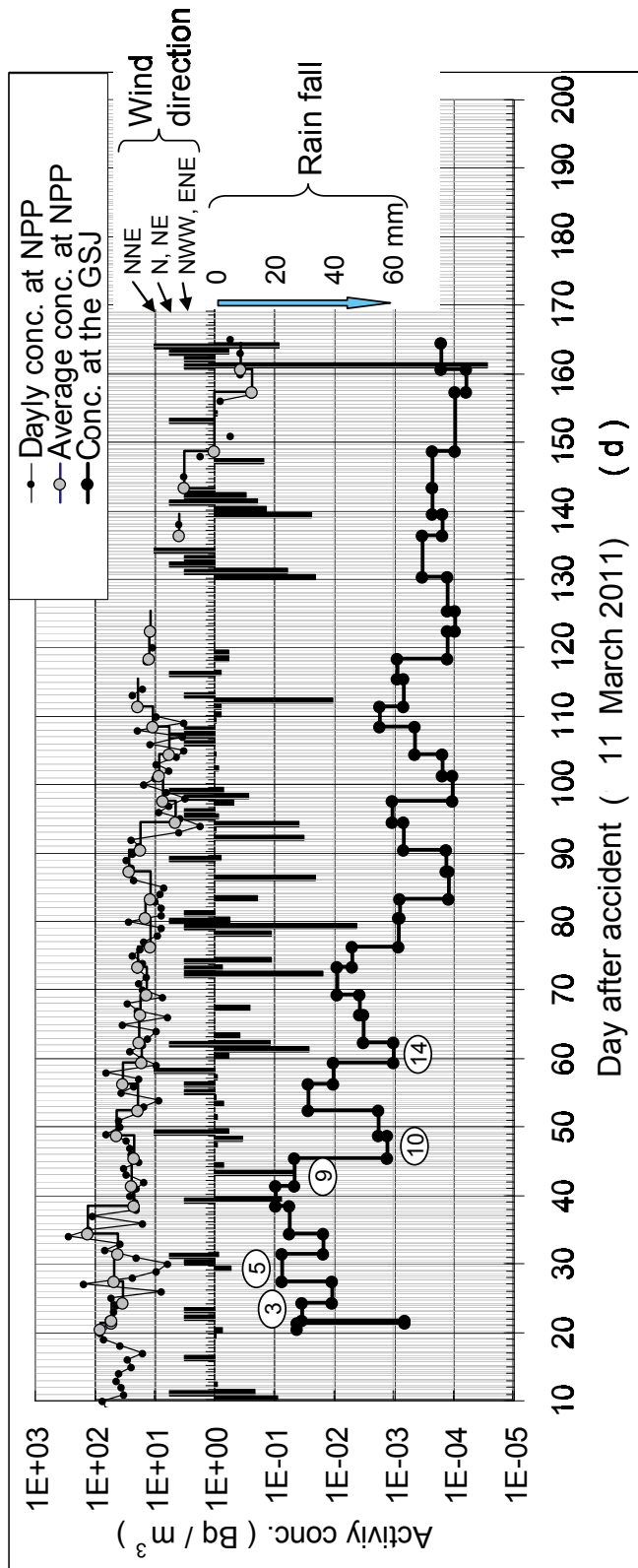
第6図 GSJにおけるエアロゾル中の人工放射性核種の濃度変化。No.8, 17, 40 に計数誤差 (1σ) を示してある。
 Fig. 6 Activities of artificial radionuclides in aerosols obtained at the GSJ. Counting statistic errors for No.8, 17 and 40 are shown.

本研究では事故後の途中からの観測であり、総フラックスを見積もることは困難であるが、原子炉1-3号機の放射性物質の総量は、I-131については 6.1×10^{18} Bq, Cs-137については 7.1×10^{17} Bqと見積もられ、また、使用済み燃料プールではI-131が 1.1×10^{16} Bq, Cs-137が 2.3×10^{18} Bqと見積もられている。これらのうち、3月11日から4月5日までに大気に放出された総量は、I-131が 1.5×10^{17} Bq, Cs-137が 1.2×10^{16} Bqと推定されており(内閣官房内閣広報室, 2011), 数%とはいえ総量としては膨大な量である。2011年10月末には一部の建屋の覆いながされ、放出量は以前と比べてかなり減少したものの未だに放出が継続しており(経済産業省, 2012), 今後継続する量と既に放出された莫大な総量の除染・回収な

どは大きな課題である。放出が継続している間や、また、放出が停止した後も汚染土壌の再巻き上げによる飛散等に注目する必要があるため、安全確保の点からも観測と監視を継続していくことは重要であろう。

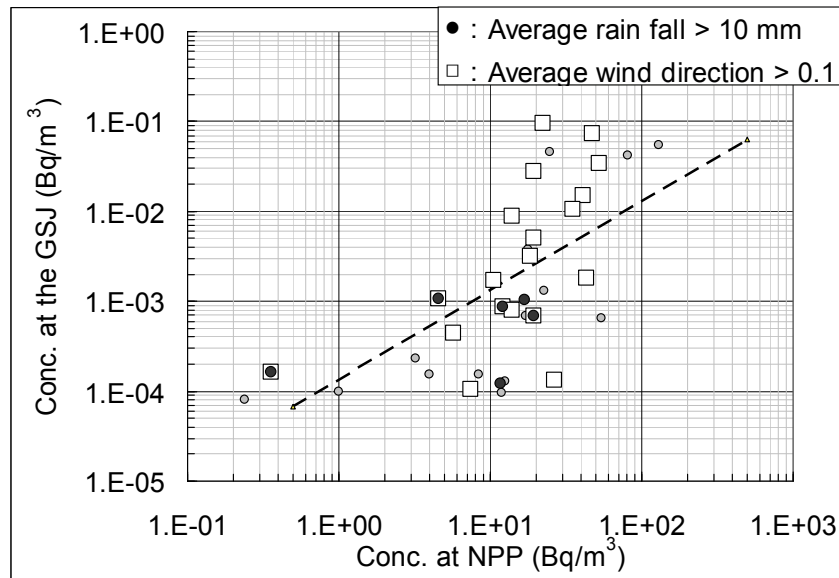
3.4 エアロゾル中の人工放射性核種への影響因子

地質調査総合センター(以下、GSJとする)で観測されるエアロゾルは、原子力発電所のエアロゾルを含む気団やプルームとして移動・拡散してくると考えられるため、観測される人工放射性核種の濃度は、放出源の濃度、風向・風速・降雨などの気象条件に依存して変動すると考えられる。そこで、8月までのデータに関して、GSJでのCs-137観測値と原子力発電所における観測値(毎日



第7図 GSJ と福島第一原子力発電所における Cs-137 の変動と降雨・風向の気象条件. 丸の数字は、試料番号を示す.

Fig. 7 Variations of Cs-137 concentrations at the GSJ and the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant and climate conditions such as rain fall and wind direction. The number in circle indicates sample number.



第8図 GSJでのCs-137観測値と福島第一原子力発電所におけるCs-137報告値の関係。
 Fig. 8 Correlation between Cs-137 concentrations at the GSJ and those at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant.

の値と各サンプリング期間の平均)の変化を、つくばにおける降雨量・風向とあわせて第7図に示した。福島第一原子力発電所がGSJの北北東(NNE)の方向にあるので、風向はNNEが1、北(N)と北東(NE)は0.75、西北西(WNW)と東北東(ENE)は0.5として定量化した。

原子力発電所でのCs-137濃度はGSJでの濃度より約3000-4000倍高く、後者は前者によって著しく影響を受けると推定される。観測の時間分解能が低いと細かい変動は観測できないが、GSJにおける観測濃度が上昇している時にはサンプリング期間中に北よりの風が吹き、逆に濃度が低下している時には期間中に降雨がある傾向が定性的・部分的には確認できる。例えば、No.3, No.5, No.12等の高濃度時に北よりの風が卓越しているし、No.9, No.10, No.14, No.19, No.21等の低濃度時には降雨があった。一方、No.8, No.11等では北よりの風と降雨が重なり、大きな濃度変化は示していない。

放出源での濃度変動の影響と気象条件による影響を区別するために、GSJでの観測期間中の放出源での平均濃度を計算し、両者の濃度の関係を第8図に示した。両者は概して正相関を示しているが、詳しくみると、サンプリング期間中の平均雨量が10mm以上の場合には、一般的濃度傾向のラインよりも低下する傾向がみられる。降雨によるウォッシュアウト効果で低下しているのであろう。一方、北よりの風は、一般的濃度傾向のラインよりも増加している傾向が強く、高濃度のエアロゾルが運搬・拡散してきているように思われる。このように、エアロゾル濃度に対する気象の影響が弱いながらも示唆される。詳細な検討には気象データを用いたモデル解析(気象研究所, 2012)などが必要で、それに関しては今後の

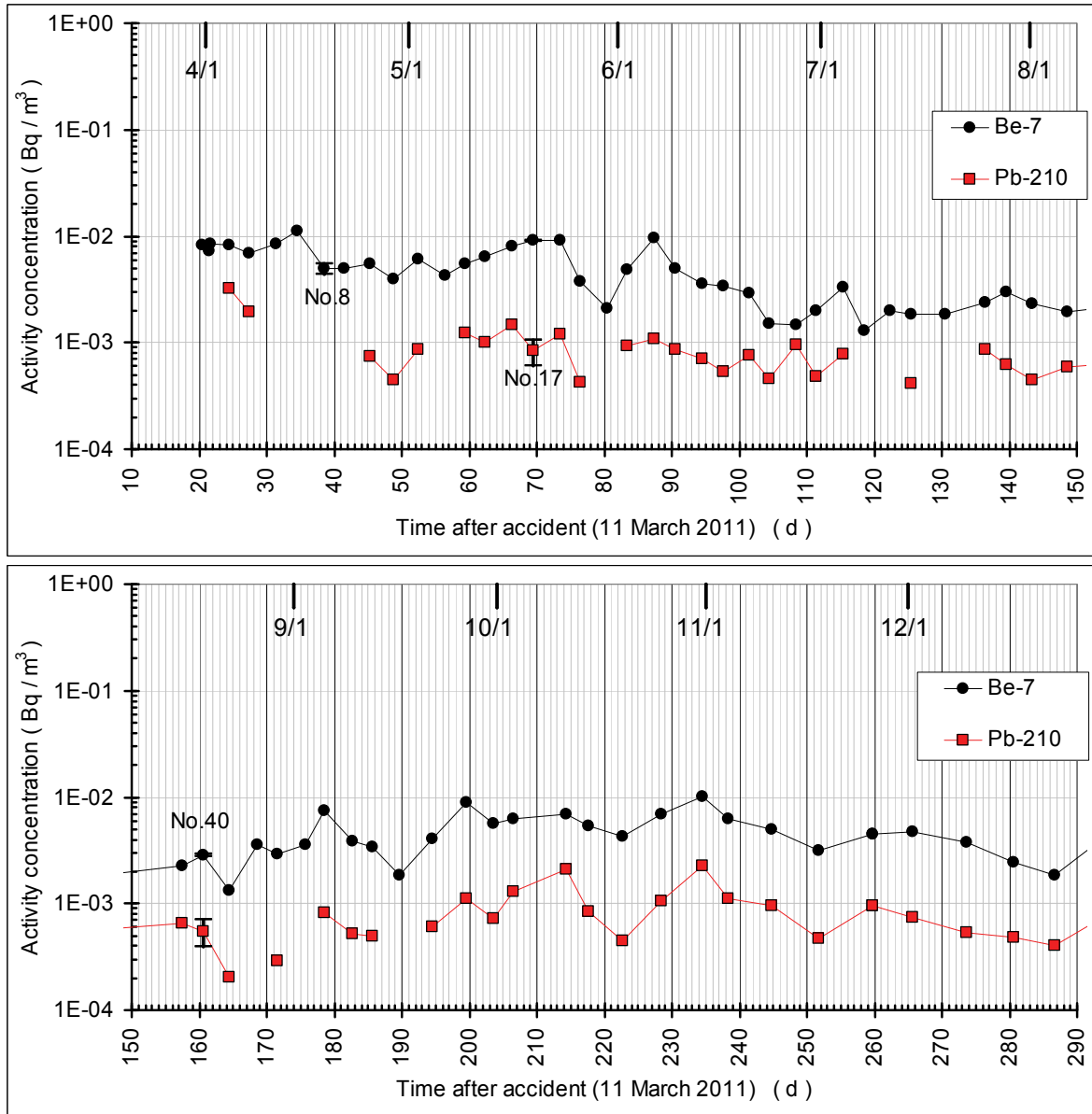
課題である。

しかしながら、事故で放出された高濃度プルームは世界中を回っており、事故後約1週間以内にアメリカに(Leon *et al.*, 2011)、2週以内にギリシアに(Manolopoulou *et al.*, 2011)到着し検出されている。Cs-137は既に地球の対流圏に拡散し、ある程度の濃度で存在している。したがって、事故後1ヶ月ほど経過した時点では、観測された濃度に対する気象の影響は事故後の初期段階における影響よりもはるかに小さくなっていることも、不明瞭となった一因と考えられる。

3.5 エアロゾル中の天然放射性核種の観測

エアロゾル中には、天然起源の核種としてウラン系列・トリウム系列の核種が観測される。それは系列途中の気体核種であるラドン(Rn-222)やトロン(Rn-220)に由来するもので、Pb-214, Bi-214, Pb-210やPb-212, Bi-212, Tl-208などである。これらは観測されるものの半減期が比較的短いために、サンプリング・測定中における減衰と娘核種の成長などが複雑であり、半減期の長いPb-210を除いて定量計算が困難である。また、エアロゾルの試料中には、大気上層部において宇宙線による酸素・窒素の核破砕反応によって生じるベリリウム-7(Be-7)も観測されるので、ここではPb-210とBe-7について結果を報告する。

第9図及び第1表に、Pb-210とBe-7の観測結果を示す。Pb-210は0.2-3.2 mBq/m³、Be-7は1.3-11 mBq/m³と変動はあるものの、おおむね一定の範囲内である。3月から5月までを春季、6月から8月までを夏季、9月から11月までを秋季、12月を冬季として2011年の測定結果



第9図 GSJにおけるエアロゾル中のPb-210とBe-7の濃度変化。No.8, 17, 40に計数誤差(1σ)を示してある。

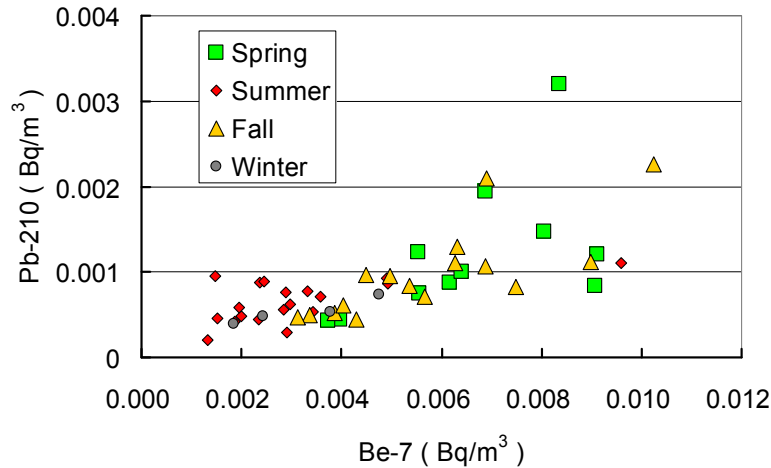
Fig. 9 Activities of Pb-210 and Be-7 in aerosols obtained at the GSJ. Counting statistic errors for No.8, 17 and 40 are shown.

を分類して図示すると、第10図に示されるように両者とも春季と秋季に高く夏季と冬季に低くなるパターンが認められる。また、全体でも両者の間に1%の危険率で有意な相関が認められた(相関係数 $R=0.69$)。山形県でのPb-210の観測結果では春季に(Kanai and Yanagisawa, 2002), また、1987年～1992年におけるつくばでの観測結果でも春と秋に高く夏に低くなるパターンが報告されている(土井, 2008; 土井・佐藤, 2004)。Pb-210の月平均大気中濃度は $0.2 - 0.8 \text{ mBq/m}^3$ と土井・佐藤(2004)は報告しているが、本研究での季節毎の平均は $0.5 - 1.2 \text{ mBq/m}^3$ で、それよりも幾分高めであった(観測データ全体の平均値は 0.9 mBq/m^3)。

一方、Be-7も春季の圏界面の破れと春季・秋季の移動

性高気圧による下降気流が、成層圏から対流圏への増大をもたらすとされており、つくばでのBe-7の月平均濃度は $1 - 7 \text{ mBq/m}^3$ で、Pb-210と同様に二山のパターンを報告している(土井・佐藤, 2004; 土井ほか, 1993)。本研究では、季節毎の平均は $2.9 - 6.9 \text{ mBq/m}^3$ 、全体での平均は 4.8 mBq/m^3 であり、ほぼ一致する濃度範囲であった。

このように、GSJで観測されたエアロゾル中の天然放射性核種であるPb-210とBe-7は、原発事故とは関係なくこれまでに報告されているのと同様の季節変動パターンを示していることが確認された。



第10図 エアロゾル中のPb-210とBe-7の季節変動。

Fig. 10 Seasonal variation of Pb-210 and Be-7 in aerosols.

4. まとめ

2011年3月11日の巨大地震に起因する福島第一原子力発電所の事故後の放射性核種のモニタリングは、物質循環や堆積物への物質移動のトレーサーとして地球科学的に有用であるばかりでなく、地域住民の放射線被ばくに対する不安感の払拭、万が一の場合の線量評価にも貢献する。このため、著者らは新たに人工放射性核種の定量をめざした観測・定量手法を検討して、事故後20日経過した3月末から大気中のエアロゾルの放射性核種の観測を開始した。

鉍石等を使用した自作の標準線源試料を用いて作成した検出器の効率-エネルギー関係曲線を利用して検出効率を求め、原発事故で環境中に放出された人工放射性核種の定量を行った。カスケード崩壊するCs-134の定量にはCs-134/Cs-137比の変化からサム効果の補正法を確立した。このように、低濃度ウラン鉍石等を利用することで、法規制を受ける人工的な放射線源を使用せずに放射性同位元素の管理区域外での効率算出や計測が可能であることが示された。

原発事故によって当所の測定システムは汚染されたが、繰り返し洗浄によって汚染を低減して測定を行った。3月末のエアロゾル観測開始時から検出された種々の人工放射性核種は、Cs-134とCs-137を除いて6月末にはほとんどが検出限界以下となった。観測の時間分解能が低いことや事故後の時間が経過していたことから、エアロゾル中のCs-137濃度に対する気象の影響は不明瞭ながらも、サンプリング期間中の雨量や風向が影響している傾向が認められた。

観測期間中の放射性核種の濃度はいずれも健康を害するレベルではなかったが、未だに原子力発電所からの放出が継続して、現在も採取されるエアロゾルにCs-137などが検出されており、今後継続する量と既に放出さ

れた莫大な総量の除染・回収などは喫緊の大課題であろう。

謝辞: 本研究において、研究環境安全本部環境安全管理部の上岡 晃氏からは原稿をとりまとめるにあたり貴重なコメントをいただいた。ここに記して深く感謝申し上げます。

文献

- Advantec (2001) 24 ポリフロンフィルター. Advantec 総合カタログ 2001-2002, p.709.
- Appleby, P.G. and Oldfield, F. (1978) The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported ^{210}Pb to the sediment. *Catena*, **5**, 1-8.
- Cochran, J.K., Frignani, M., Salamanca, M., Bellucci, L.G. and Guerzoni, S. (1998) Lead-210 as a tracer of atmospheric input of heavy metals in the northern Venice Lagoon. *Mar. Chem.*, **62**, 15-29.
- 土井妙子 (2008) 「大気中の放射性核種濃度モニタリングデータ集」(国立環境研究所 1987-1999). 国立環境研究所研究報告 第198号 (R-198-2008), 105p.
- 土井妙子・佐藤 純 (2004) つくばにおける大気中 ^{210}Pb , ^{212}Pb , ^7Be 濃度. 第48回放射化学討論会, 東京, p.118.
- 土井妙子・細見正明・溝口次夫・佐藤 純 (1993) つくばにおける大気中のオゾンとベリリウム-7の濃度変化. *天気*, **40**, 827-834.
- 上岡 晃・金井 豊 (2002) つくば市において粒径別に採取された風送塵中の水溶性成分の化学組成. 第49回日本地球化学会年会, 要旨集 p.136.
- 金井 豊 (1993) 微量環境試料測定用井戸型 Ge 検出器の効率特性, *Radioisotopes*, **42**, 169-172 (1993).
- 金井 豊 (2001) 風送ダストプロジェクトの概要と地質・

- 地球化学におけるエアロゾル研究. 地質ニュース, **565**, 11-23.
- Kanai, Y. (2012) Monitoring of aerosols in Tsukuba after Fukushima Nuclear Power Plant incident in 2011. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 33-37. doi:10.1016/j.jenvrad.2011.10.011.
- 金井 豊 (2012) エアロゾル中の人工放射性核種に関する観測・測定を試み. 第13回「環境放射能」研究会要旨論文集, P-15.
- 金井 豊・齋藤文紀 (2011a) 環境ガンマ放射線測定用井戸型ゲルマニウム検出器の特性と原発事故によるバックグラウンド汚染 —地質調査総合センターに設置されたシステムを例に—, 地質調査研究報告, **62**, 357-369.
- 金井 豊・齋藤文紀 (2011b) 地質調査総合センターの堆積年代測定システムとその検出特性. *Proceedings of the 12th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2011-7*, 141-146.
- Kanai, Y. and Yanagisawa, F. (2002) Seasonal variation of lead-210 in aerosol in Yamagata Prefecture. *J. Arid Land Studies*, **11**, 301-306.
- 金井 豊・井内美郎・片山 肇・齋藤文紀 (1995) ^{210}Pb , ^{137}Cs 法による長野県諏訪湖底質の堆積速度の見積り, 地調月報, **46**, 225-238.
- 金井 豊・井内美郎・片山 肇・齋藤文紀 (1997) 低バックグラウンド放射能測定システムによる長野県諏訪湖底質の放射能測定と堆積速度の見積り, 地調月報, **48**, 277-295.
- 金井 豊・山室 真澄・井内美郎・徳岡隆夫 (2002) 島根・鳥取県中海における堆積速度と堆積環境. 地球化学, **36**, 161-178.
- Kanai, Y., Ohta, A., Kamioka, H., Terashima, S., Imai, N., Kanai, M., Shimizu, H., Takahashi, Y., Kai, K., Hayashi, M., Zhang, R. and Sheng, L. (2005) Characterization of Aeolian dust in east China and Japan from 2001 to 2003. *J. Meteorological Soc. Japan*, **83A**, 73-106.
- 経済産業省 (2012) 添付2 福島第一原子力発電所における現状の放射性物質の放出量評価及び敷地境界における被ばく線量評価について, <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/111216e.pdf> (2012/5/2)
- 気象研究所 (2012) 東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の移流拡散について, http://www.mri-jma.go.jp/Topics/H23_tohoku-taiheiyo-okieq/1107fukushima.html (2012/5/2)
- Koide, M., Soutar, A. and Goldberg, E.D. (1972) Marine geochronology with Pb-210. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **14**, 442-446.
- 小村和久 (2006) 「超低レベル放射能測定の現状と展望」まとめ. *Radioisotopes*, **55**, 691-697.
- Kotani, T., Yanagisawa, F., Kanai, Y., Miyaoka, A. and Akata, N. (2012) Combination of sulfur isotope ratio of non-sea salt sulfate and lead-210 concentration in aerosols as an index of long-range transported aerosols. *Radioisotopes*, **61**, 65-70.
- 高エネルギー加速器研究機構 (2012) 環境放射線の測定結果, <http://www.kek.jp/ja/Research/ARL/RSC/Radmonitor/> (2012/5/2)
- Krishnaswami, S., Lal, D., Martin, J.M. and Mrybeck, M. (1971) Geochronology of lake sediments. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **11**, 407-414.
- Leon, J.D., Jaffe, D.A., Kasper, J., Knecht, A., Miller, M.L., Robertson, R.G.H. and Schubert, A.G. (2011) Arrival time and magnitude of airborne fission products from the Fukushima, Japan, reactor incident as measured in Seattle, WA, USA. *J. Environ. Radioact.* **102**, 1032-1038.
- Manolopoulou, M., Vagena, E., Stoulos, S., Ioannidou, A. and Papastefanou, C. (2011) Radioiodine and radiocesium in Thessaloniki, Northern Greece due to Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.* **102**, 796-797.
- 文部科学省 (1992a) 放射能測定法シリーズ 24 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法. 文部科学省科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室, 平成4年.
- 文部科学省 (1992b) 放射能測定法シリーズ 7 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. 文部科学省科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室, 平成4年改訂.
- 内閣官房内閣広報室 (2011) VI. 放射性物質の環境への放出. 内閣官房内閣広報室, <http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/pdf/06-kankyo.pdf> (2012/5/2)
- 日本分析センター (2012) 大気浮遊じん中のCs-137の経年変化, <http://www.kankyo-hoshano.go.jp/01/0101flash/01010121.htm> (2012/5/2)
- Ohta, A., Terashima, S., Kanai, Y., Kamioka, H., Imai, N., Matsuhisa, Y., Shimizu, H., Takahashi, Y., Kai, K., Hayashi, M. and Zhang, R. (2005) Grain-size distribution and chemical composition of water-insoluble components in aeolian dust collected in China in spring 2002. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **56**, 259-272.
- 産業技術総合研究所 (2011) つくばセンター放射線測定結果, 産総研, <http://www.aist.go.jp/taisaku/ja/measurement/index.html> (2012/5/2)
- セイコー・イーゲーアンドジー (2009) Gamma Studio. DS-P240/W32.

(受付: 2012年5月18日; 受理: 2012年7月25日)

