

# 福島原発事故後の環境放射線減衰曲線の回帰分析 —放射能濃度および空間線量率の経時的变化の追跡から—

佐藤行彦<sup>1</sup>, 千田浩一<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>東北大学大学院医学系研究科 保健学専攻 放射線技術科学コース 放射線検査学分野

<sup>2</sup>東北大学災害科学国際研究所 災害放射線医学分野

## Regression Analysis on Decay Curve of Contaminated Environment of Fukushima Nuclear Plant Accident Using Time Sequential Change of $\gamma$ Ray Counting and Space Dose Rate

Yukihiko SATO<sup>1</sup> and Koichi CHIDA<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Course of Radiological Technology, Health Sciences, Tohoku University Graduate School of Medicine

<sup>2</sup>Radiation Disaster Medicine, International Research Institute of Disaster Science, Tohoku University

Key words : fallout, soil contamination, space dose rate, decay curve, Fukushima nuclear plant accident

Mega quake occurred on March 11th, 2011 and the Tsunami with the height of 13 m had struck on Fukushima First Nuclear Power Plant. Three of six reactors melted down and huge amount of radioactivity were spread out around the peripheral zone. We had reported decay curve of contaminated soil before<sup>1)</sup>. In this paper, we analyzed this decay curve of radioactivity more precisely using well type NaI (TI) scintillation gamma ray spectroscopy. And we also got decay curve of space dose rate by reading out from the home page of the Nuclear Regulation Office of Japan and other two official data, which also decreased following decay curve theory. We have gotten the following results. The decay curve of sampled soil data showed that the ratio of  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$  at the explosion time was  $\sim 0.5$ . This ratio indicates the used time of nuclear fuel. On the other hand, on space dose rate, the ratio was about  $0.1\sim 0.2$  at the explosion time. This difference of the ratio means that  $^{134}\text{Cs}$  contribute to space dose rate more than  $^{137}\text{Cs}$ . This may correlate to the quality of emitted radiation, for example, the energy of  $\beta$  ray and  $\gamma$  ray.

### はじめに

2011年3月11日の東日本大震災時の大津波は福島第一原発を高さ13mで襲った。これにより外部電力の供給も緊急時用自家発電装置の起動も共に不可能となり、原子炉系への冷却水供給が途絶えた。そのため炉の緊急停止直後の猛烈な壊変

熱の放出が続いた。そして翌12日15時36分に1号炉棟、14日午前11時1分に3号炉棟が水素爆発に至り、また15日午前6時頃には2号炉も原子炉格納容器が破損に至って大量の放射性物質が周辺地域に飛び散った。3つの炉はいずれも炉心溶融に至り、更に点検中で炉には核燃料が無かったものの3号炉配管系と繋がりのあった4号

炉棟も大きく損壊した。その 30 km 圏内は住民避難、数 10 km 更には 100~250 km 圏内にヨウ素 ( $^{131}\text{I}$ )、セシウム ( $^{134}\text{Cs}$ ・ $^{137}\text{Cs}$ ) が飛散したことが確認された。この飛散・降下した放射能については本紀要に事故後 2 年までの土壤等の汚染データの減衰曲線を報告している<sup>1)</sup>。今回は更にその後の 2 年分のデータを追加し、計 4 年分のデータを用いてその減衰曲線の回帰分析を行い、減衰の特徴を更に詳しく調べた。

今回は以前に測定した各試料の放射能の時間変化 (計数率 [cps], および放射能濃度 [Bq/g] に変換) に加え、周辺各地の空間線量率 [ $\mu\text{Sv/h}$ ] の時間変化を原子力規制庁のホームページ (原発 20 km 圏内)、東北大学のホームページおよび仙台圏の地元紙「河北新報」の空間線量率 (原発の 40~120 km 圏内) の日々発表されたデータを読み出してその時間的変化を調べ、そこにみられる減衰の特色・傾向を調査・解析した。

## 方 法

### 1. 時系列データの取得

**1-1. 「試料の放射能」の測定:** 各地で採取した試料 (1 g 前後) を、鉛 20 mm と鉄 35 mm の計 55 mm で遮蔽された井戸型 NaI (Tl) シンチレータ (高さ 3 inch・直径 3 inch) 及び光電子増倍管 (印加電圧 660 V) のシステム (Aloka 社製) より増幅系を経て、マルチチャンネルアナライザ (ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション社製) の波高分析モードにて  $\gamma$  線測定した。試料は各 1 g 程をガラス管 (内径 9.7 mm・長さ 104 mm) に入れ、天秤 (島津製作所製 AEG45SM 型、精度 10  $\mu\text{g}$ ) にて量り、ゴム栓をして測った。

測定は事故直後の 100 日ほどまでは各サンプルを週に 1 回、その後は 2~6 カ月に 1 回行った。ほとんどの場合、1 回につき 6 時間 = 21,600 秒ずつ測定した。井戸型シンチレータの計数効率<sup>2)</sup>は幾何学的計数効率  $\eta_1 = 0.863$ 、シンチレータの吸収効率  $\eta_2 = 0.559$ 、従って全体の計数効率は  $\eta = \eta_1 \times \eta_2 = 0.482$  であった。この際、スペクトルの  $\gamma$  線のエネルギー範囲は 20 keV ~ 1,550 keV を計数した。試料のバックグラウンド値としては、多

くバックグラウンド値を少々上回る程度の場合も多いため、随時ガラス管のみを井戸型シンチレータにて 6 時間測定し、その平均値を用いた。その結果単にガラス管のみを測った場合のバックグラウンド値は 5.05 cps であった (ガラス管無しでは 4.95 cps であり、ガラス管そのものからは 0.10 cps)。以上の分析は  $\gamma$  線スペクトル全体の減衰をみたが、このほかある 1 つの光電ピーク (32 keV 特性 X 線) の減衰曲線を調べるには、その計数値の合計から連続スペクトル部分を差し引いて求めた。

### 1-2. 空間線量率

#### 福島圏の第一原発から 20 km 圏内のデータ

原子力規制庁のホームページには、2011 年 3 月から現在 (2015 年 4 月) までの測定日毎 (月に 4 回ほど) のモニタリングポストの空間線量率値 [単位:  $\mu\text{Sv/h}$ ] が 30~50 地区にファイル化されていて、各地点にひとつの番号を与えてその測定値を読み取れるようになっている。我々はその各測定地点の地図・線量率の数表から 8 地点のみ (50 地点の中から線量率の高い原発から北西方向が主) を読み取り、そのデータ (測定日とその線量率) を数表に作り出した。以上のモニタリング値の測定は、各地での地上 1 m 高に主に  $\gamma$  線の測定に広く利用されている NaI (Tl) シンチレーションカウンタを設置し、その計数値を基にして空間線量率に換算して公表されたものである。河北新報記事および東北大学の空間線量率についても原子力規制庁のものと同様である。

### 2. データの回帰分析

#### 土壤等の試料の減衰曲線の解析、空間線量率の解析

数表に作成した時系列データは原則として 3 核種 (1:  $^{131}\text{I}$ , 2:  $^{134}\text{Cs}$ , 3:  $^{137}\text{Cs}$ ) によるとし、次の式によって変化するとみて爆発して飛散後に各試料の計数値が<sup>3)</sup>何 cps か、および各地点で線量率が<sup>3)</sup>何  $\mu\text{Sv/h}$  かを解析した。

試料の計数値の場合:

$$f(t) = m_{10} \cdot e^{-\lambda_1 t} + m_{20} \cdot e^{-\lambda_2 t} + m_{30} \cdot e^{-\lambda_3 t} + b_g$$

空間線量率の場合：

$$g(t) = m_{10} \cdot e^{-\lambda_1 t} + m_{20} \cdot e^{-\lambda_2 t} + m_{30} \cdot e^{-\lambda_3 t} + b_g$$

回帰曲線を得るために、先ず事故後の日数とその計数値の数表データを作成し、これを曲線の回帰分析ができるソフトウェア「KaleidaGraph」Ver4.1（ヒューリンクス社）にて散布図に描画した。更に各核種の壊変定数 $\lambda$ を日単位に直して上式に当てはめた。各時間 $t$ （爆発後の日数）において、土壌等の各試料の場合はその計数値 $f(t)$  [単

位は cps：count per second] を、空間線量率の場合はその線量率 $g(t)$  [単位： $\mu\text{Sv}/\text{hour}$ ] を与えることで、時間変化の回帰分析を行った。KaleidaGraphでは先ず各々の時系列データつまり経過日数 $t$ と関数値 $f(t)$ あるいは $g(t)$ の数表データを表形式にて入力し、続いてこれらの散布図を描いた。そして最後に回帰式を与えてこの関数への回帰係数 $m_{10}$ 、 $m_{20}$ 、 $m_{30}$ を求めた。つまりこれらが爆発時に遡った時点での各核種の存在量である。壊変定数 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ 、 $\lambda_3$ は、それぞれの核種の半減期

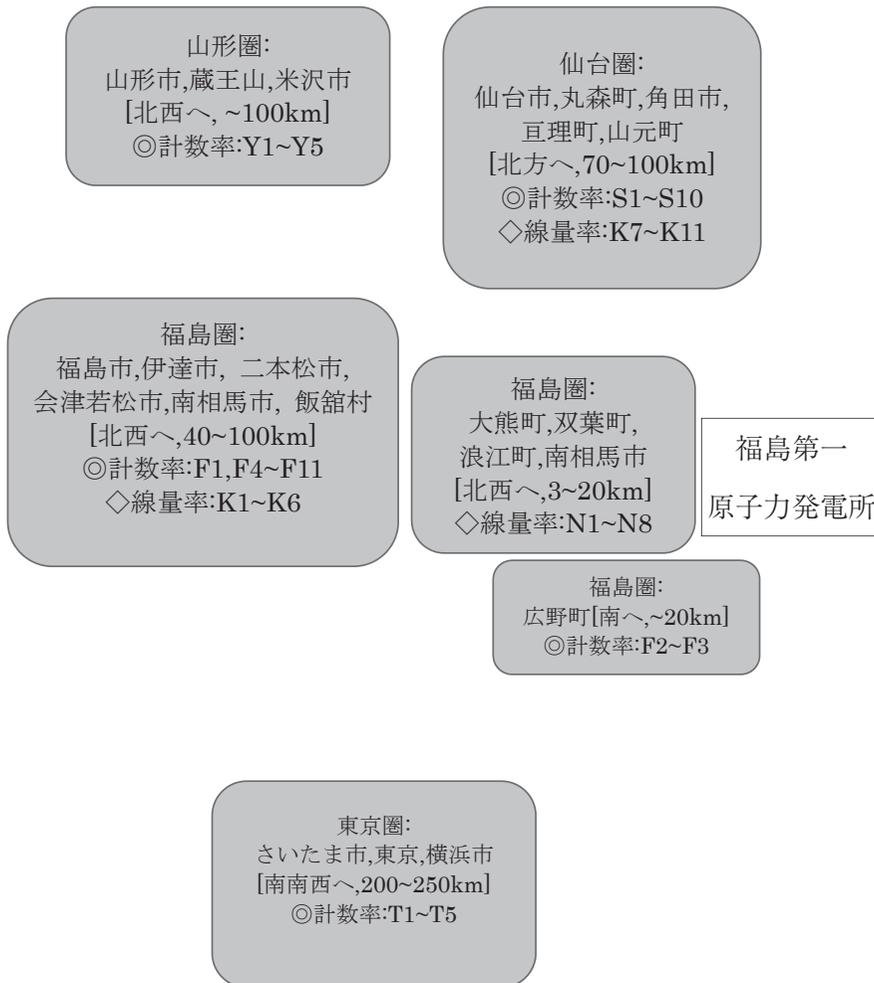


図 1. 各対象圏の地理的關係 [北は図の上部]  
各圏内市町村への原発からの方角・距離、測定量と図表中の各データ・コードとの対応を記した。

(1:  $^{131}\text{I}$ =8.021 日, 2:  $^{134}\text{Cs}$ =2.065 年, 3:  $^{137}\text{Cs}$ =30.07 年) をもとに日単位にて与えた。 $m_1$ ,  $m_2$ ,  $m_3$  は初期値として適宜大まかな値を与えて計算を開始し, 逐次近似法にて値を求めていく(縦軸値の初期値は各曲線の計数値・線量率程度の値で, それぞれ 10~100 程度の値)。そして曲線の回帰分析の結果得られた係数の最適な最終結果が  $m_{10}$ ,  $m_{20}$ ,  $m_{30}$  である。図の各回帰曲線のグラフ上の数表では求めた  $m_{10}$ ,  $m_{20}$ ,  $m_{30}$  を表示した。 $b_g$  はバックグラウンド値で, 計数値  $f(t)$  では数回の測定平均値である  $b_g=5.05$  [cps], 空間線量率  $g(t)$  では福島原発事故以前における宮城県・福島県での平均的な空間線量率とほぼいえる  $b_g=0.05$  [ $\mu\text{Sv/h}$ ] を与えている。これらは特に低計数値・低線量率の場合の回帰曲線への当てはめには大きく関与する。

## 結 果

図 1 に各データを取得した市町村の地理的な関係の説明図を示す。図 2 には 3 つの試料の  $\gamma$  線スペクトルの時間的減衰の様子を示す。いずれも東北大学キャンパス内の試料で, 事故後 21 日~49 日までの土壌と 26 日~57 日までの草の葉(成長力の強い“スイバ”) および 147 日~1,563 日までのアイソトープ施設の空気フィルタ用濾紙(本学 RI 実験室の排気設備用にて事故前後の数か月間使用中だったもので, 屋外空気を吸引後にサンプリングして屋外へ排気)について示した。土壌と草の葉のスペクトルでは, 1 月間で  $^{131}\text{I}$  の 364 keV 光電ピークが急激に減っているのがみてとれる。30 keV 光電ピーク(これはいくつかの核種

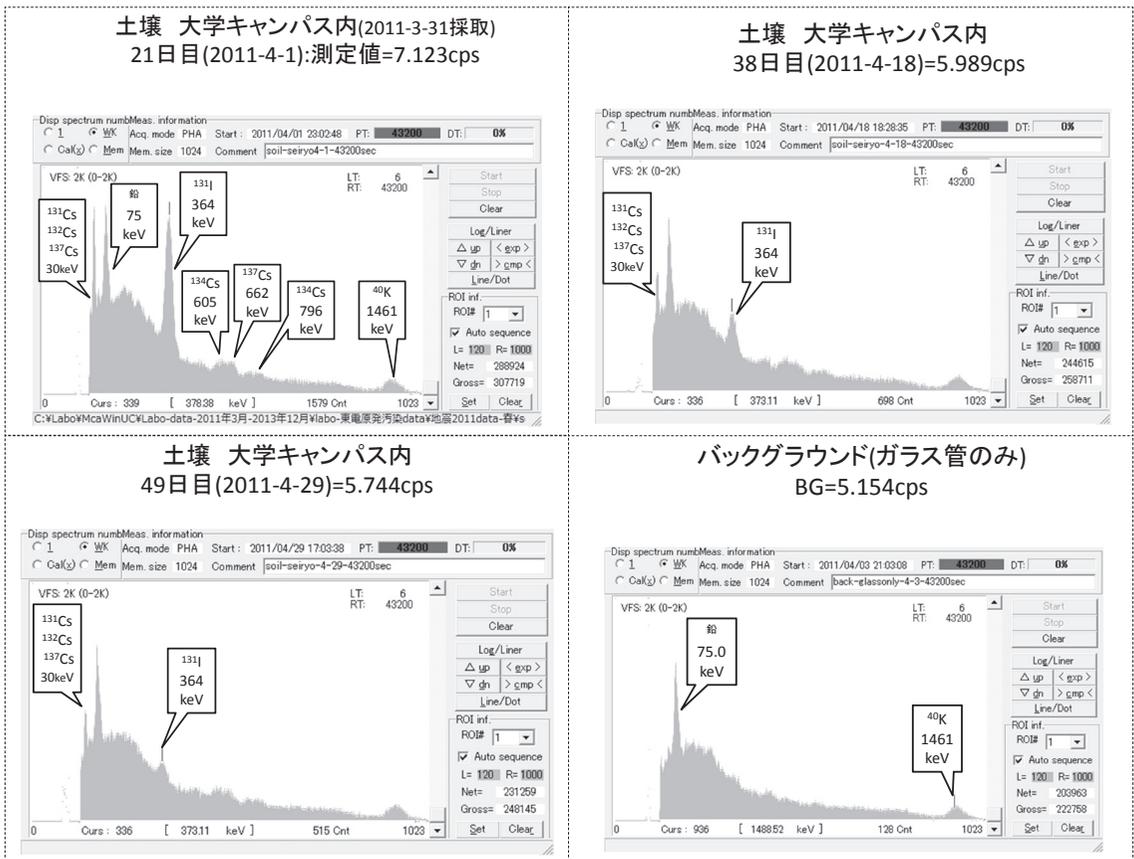


図 2. 土壌の放射能スペクトルの時間的減衰 (30 keV 特性 X 線ピークおよび  $^{131}\text{I}$  364 keV ピーク)

原発事故汚染環境の減衰曲線回帰分析

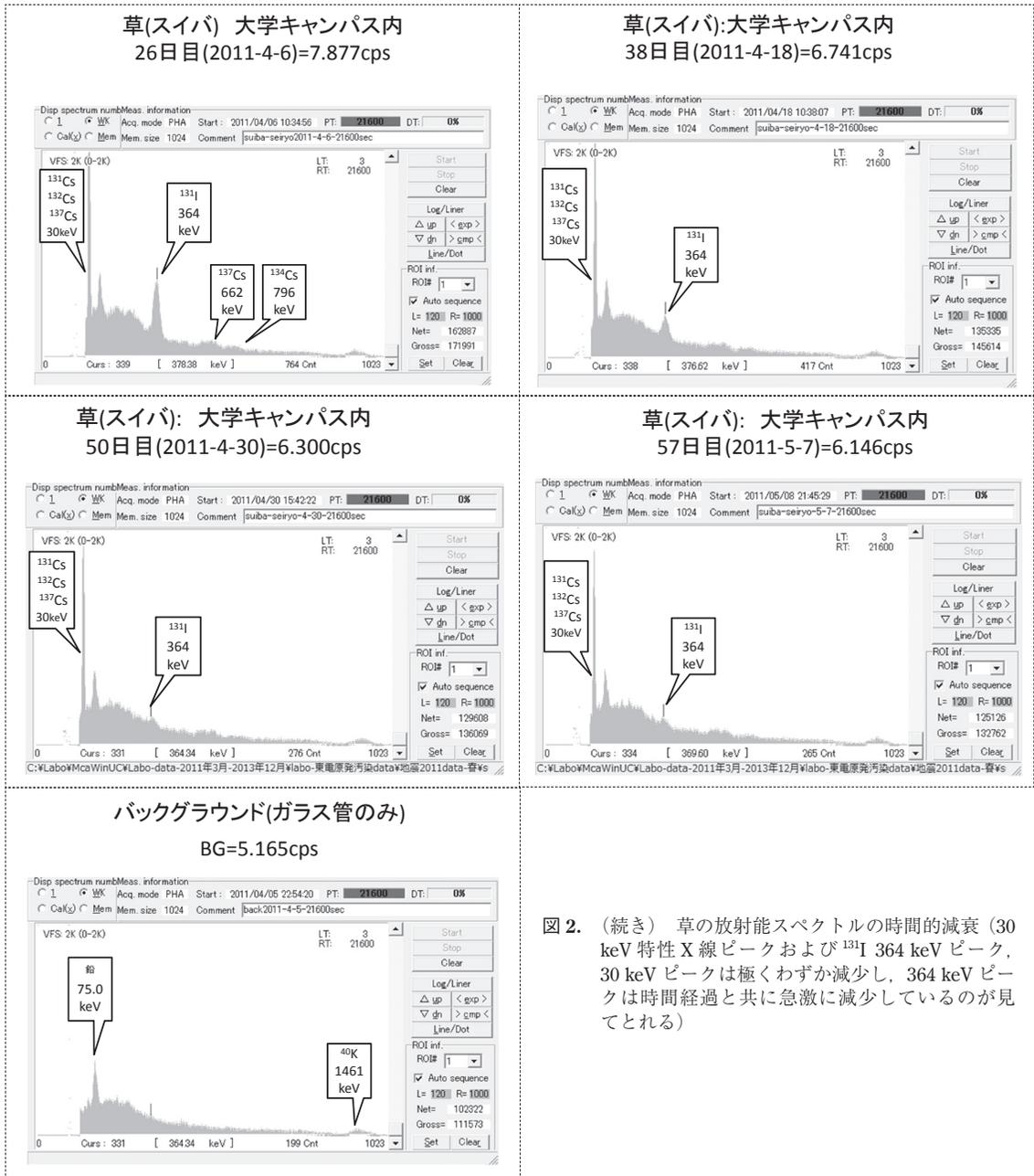


図 2. (続き) 草の放射能スペクトルの時間的減衰 (30 keV 特性 X 線ピークおよび  $^{131}\text{I}$  364 keV ピーク, 30 keV ピークは極くわずかに減少し, 364 keV ピークは時間経過と共に急激に減少しているのが見てとれる)

からの特性 X 線が混じっていると考えられる)の減り方は土壌と草で強度パターンの変化の仕方は幾分異なっていた。これらは 3 つの半減期の短

い  $^{131}\text{Cs}$  (半減期 9.7 日, EC 100%),  $^{132}\text{Cs}$  (半減期 6.5 日, EC 97%),  $^{136}\text{Cs}$  (半減期 13 日,  $\beta$ -91%,  $\beta$ -壊変に続き 18% が異性体転移など)<sup>5,6)</sup> と長

い<sup>137</sup>Cs(半減期 30.07 年)に伴う特性 X 線が混じったものと考えられ(詳しくは次項の“考察 D 項”を参照), 事故後 100~150 日で<sup>137</sup>Cs 由来以外の

30 keV 成分は減衰したと思われる。また空気フィルタ用濾紙のスペクトルでは,<sup>137</sup>Cs の光電ピーク [32.2 keV, 662 keV] は 1,500 日間でほとんど

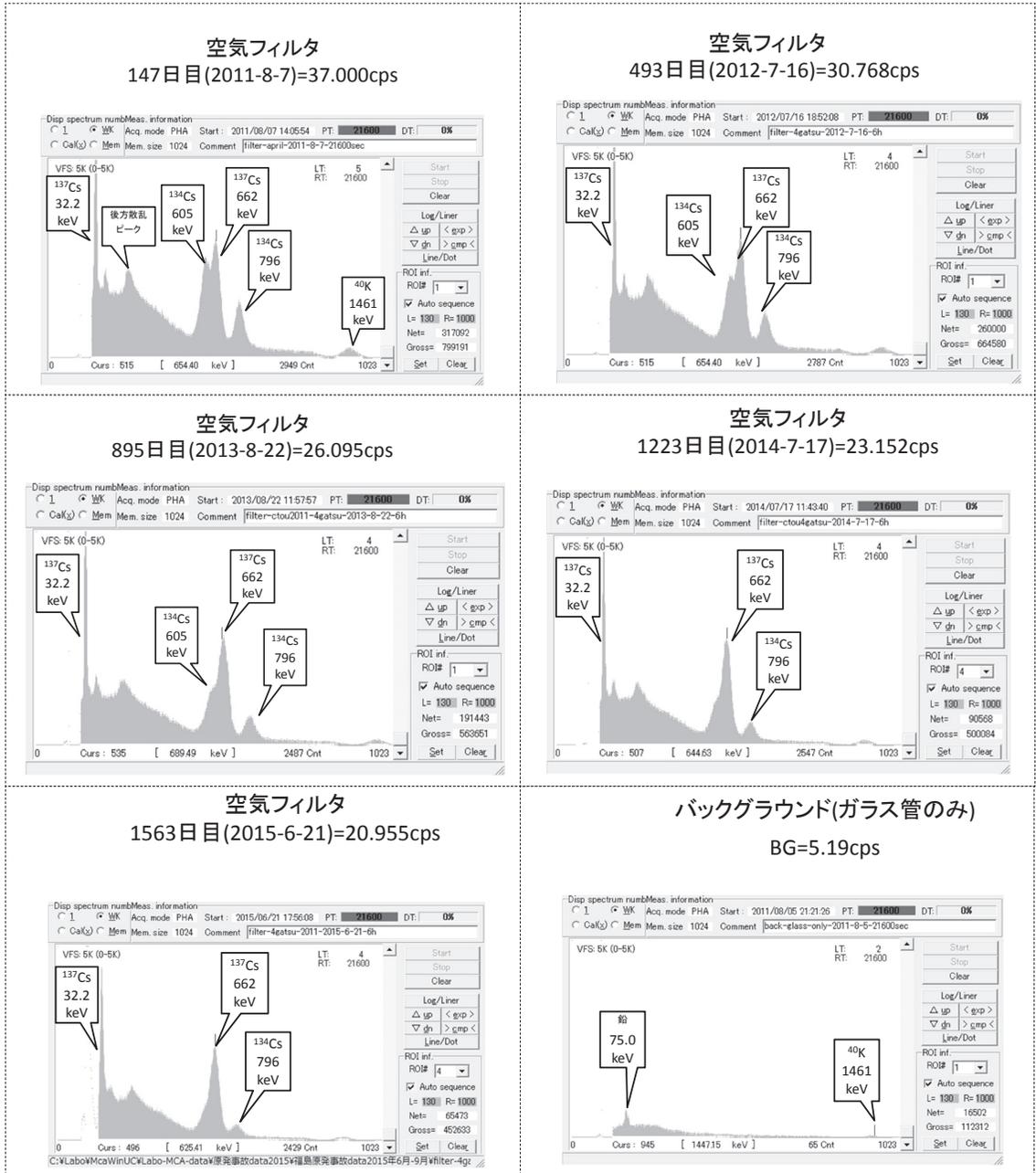


図 2. (続き) 空気フィルタの放射能の時間的減衰 (<sup>134</sup>Cs ピークに比べ <sup>137</sup>Cs ピークはほんの少ししか減衰していない)

減っていないのに対して、 $^{134}\text{Cs}$ の光電ピーク [605 keV, 796 keV] は、はじめは $^{137}\text{Cs}$ と同程度量だったものが次第に減っていつているのが見てとれる。そしてその結果、爆発時に遡って比べると、事故後の100~150日程度までは $^{131}\text{I}$ (半減期8.05日)からの放射能は爆発時に遡って比べるとセシウム( $^{134}\text{Cs}$ )の数倍~数百倍であるが、その後の放射線の成分核種は $^{134}\text{Cs}$ (半減期2.06年)と $^{137}\text{Cs}$ (半減期30.07年)であることが見出せた。この2核種の放射能濃度比は、各試料において爆発時点では $^{137}\text{Cs}$ が $^{134}\text{Cs}$ に対して1対2ほどであった。また表1に、地理圏毎に記号・番号を付し、試料採取地、原発との位置関係、試料採取日、減衰曲線の特徴を記した。そして地域圏ごとの記号・番号を付してこの表1と図3との対応を記した。この図3には各地のサンプルについての「カウント数(cps値)の時間的減衰」のプロット図並びに回帰曲線の各核種の爆発時の計数值 $m_{10}$ 、 $m_{20}$ 、 $m_{30}$ や $R^2$ 値(決定係数)などの分析値を示した。また表1には試料とバックグラウンドの計数率の差をNaI(Tl)シンチレータの計数効率で割り、更にその試料の質量で割った放射能濃度(Bq/g)などを示した。尚、 $m$ の値( $m_{10}$ 、 $m_{20}$ 、 $m_{30}$ )が負の場合には核種の存在比率は計算していない。図2に示した土壌と草(スイバ)の $\gamma$ 線スペクトルの減衰の様子をもとに、図4にはその中の特性X線ピーク[30 keV]の減衰曲線[count/12 h, count/6 h]を示した。

図5には原子力規制庁ホームページおよび河北新報記事・東北大学ホームページにおける各地の「空間線量率の時間的減衰」の様子を示した(地理的な関係は図1を参照)。表2には図5の各曲線の解析結果の特徴を記した。空間線量率値を比べると原発から北西方向に線量率が高くなっていることがみてとれる。

その結果、事故直後の100~150日間ほどまでは $^{131}\text{I}$ からの放射能の寄与が強くみられるが、それ以後は $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ のみの和として変化していることがみてとれた。尚、福島圏の双葉町長塚(表2のコード“K2”)で1,400日目頃に1点だけ線量率が極端に低い点があるが、これはその時期に

あった大量の積雪による放射線遮蔽からくる外れ値と思われる。この1点を除いて得た曲線の $R^2$ 値は0.727で、この1点を含めた場合の $R^2$ 値は0.335であった。

## 考 察

### A 同一試料の放射能の変化について

いずれの試料においても事故から100~150日ほどまでの間に $^{131}\text{I}$ の放射能は消え、その後 $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ がそれぞれの半減期に従って減衰していることがみてとれた。グラフ中の $m_{10}$ 、 $m_{20}$ 、 $m_{30}$ の値はそれぞれの核種(順に $^{131}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ )の $t=0$ (爆発時)の時点でのcps値を示す。表1の各試料にみられるように爆発日に遡っての比率( $^{137}\text{Cs}$ の $^{134}\text{Cs}$ を基準とした比率)が0.4~0.55ほどとなっていた。但し計数率が小さい場合にはこの比率が低くなる傾向がみられた。原発で新しいウランやプルトニウム燃料を装荷して運転に入ると次第に長半減期核種の割合が増すため(特にこれらの3核種ではその質量数が130~140の範囲にあり、核分裂の性質としてよく知られているように核分裂収率はいずれも数%ほどと高い)、この比率は、短半減期核種は生成しても壊れ方も早い一方、長半減期核種ほど運転期間の長さとともに増えていく。よってこの比率は、どの位使用開始から経過した核燃料であるかの目安になる量と考えられる。しかし、現在の所これに関する情報を当方では見出していないため、飛散した放射能が溶融した福島第一原発1, 2, 3号炉のいずれに由来するかを特定する判断材料にはなっていない。またこの比率は、次に述べる空間線量率での比率とは幾分違いがみられた。尚、2年前に報告したデータ<sup>1)</sup>では特定の光電ピークのみに関する1つの核種の減衰曲線は調べたもののスペクトル全体に亘るこの曲線の回帰分析はしていなかったため、今回は爆発時点での核種の存在比率分析を加えて以上のごとく考察した。

表 1. 福島原発事故による土壌等の汚染データ (“-----”は回歸式の係数値のいづれかが負となってしまうもの)

地域 (区分記号)	採取場所	原発からの方向と距離	試料採取日	試料の種類	試料の量	1,000 日後 のカウント 数 (cps)	1,000 日後 の比較射能 [Bq/g]	減衰曲線 の R <sup>2</sup> 値	曝露日に 於ける ( <sup>137</sup> Cs)/ ( <sup>134</sup> Cs)	曝露日に 於ける ( <sup>137</sup> Cs)/ ( <sup>134</sup> Cs)
仙台区 [Sendai]										
S1	大学キャンパス内 (仙台市街)	原発から N 97 km	2011/3/31	土壌	1.323 g	5.3	0.4	0.99	-----	17
S2	大学キャンパス内 (仙台市街)	〃	2011/4/6	草 (スイバ) の葉	1.277 g	5.3	0.4	1.00	-----	14
S3	大学キャンパス近辺 (仙台市街)	〃	2011/3 月の雪水	雪水	2 ml	5.2	0.2	0.95	-----	8
S4	大学キャンパス内 (仙台市街)	〃	2011/7-6 月に使用	ろ紙フィルター (空気が排気系)	直径 47 mm (0.5 g)	25.0	82.8	1.00	0.53	8,220
S5	大学キャンパス近辺 (仙台市街)	〃	2011/11/10 八幡町	土壌 (御溝)	1.00 g	7.3	4.7	0.98	0.58	-----
S6	大学キャンパス近辺 (仙台市街)	〃	2011/4/10	草の根 (ヒメジョオン)	1.00 g	5.4	0.7	0.99	0.19	4
S7	大学キャンパス近辺 (仙台市街)	〃	2011/4/10	草の葉 (ヒメジョオン)	1.05 g	5.4	0.7	0.99	-----	2
S8	大学キャンパス内 (仙台市街)	〃	2011/11/5	土壌	1.11 g	5.5	0.8	0.73	0.8	-----
S9	大学キャンパス内 (仙台市街)	〃	2012/5/12	土壌	1.50 g	6.4	1.8	0.95	0.43	-----
S10	大学キャンパス内 (仙台市街)	〃	2012/8/12 星陵町	土壌 (御溝)	1.50 g	6.8	2.4	0.99	0.51	-----
山形圏 [Yamagata]										
Y1	米沢市街	原発から NW 100 km	2011/12/18	土壌	1.10 g	5.3	0.5	0.73	0.027	-----
Y2	山形市街	原発から NNW 110 km	2012/7/7	土壌 (御溝)	1.07 g	8.4	6.5	0.99	0.60	-----
Y3	山形市 山寺地区	原発から NNW 110 km	2011/11/1	土壌	1.04 g	6.2	2.3	0.95	0.79	-----
Y4	蔵王山 (1,500 m 地点)	原発から NNW 95 km	2011/6/5	泥と雪水	2 ml	13.9	9.2	1.00	0.55	68
Y5	蔵王山 (1,500 m 地点)	原発から NNW 95 km	2011/6/5	雪	2 ml	5.3	0.3	0.47	0.54	-----
福島圏 [Fukushima]										
F1	会津若松市	原発から W 100 km	2011/6/12	土壌	1.13 g	6.9	3.4	0.99	0.38	-----
F2	広野町	原発から S 20 km	2011/6/15	土壌 (御溝)	1.09 g	92.0	165.5	1.00	0.68	242
F3	広野町	原発から S 20 km	2011/6/15	土壌 (砂状)	1.09 g	13.2	15.5	1.00	0.50	971
F4	福島市街 (森合)	原発から NW 63 km	2011/11/5	土壌 (御溝)	1.00 g	42.0	76.7	1.00	0.58	-----
F5	福島市街 (森合)	〃	2011/11/5	草の葉	0.67 g	6.0	2.9	0.94	0.51	-----
F6	福島市街 (天神)	〃	2011/11/5	土壌 (砂状)	1.00 g	5.5	0.8	0.89	0.40	-----
F7	福島市街 (県庁前)	〃	2011/6/14	土壌	1.04 g	10.0	9.9	1.00	0.55	529
F8	福島市街 (県庁前)	〃	2011/7/2	土壌	1.01 g	17.0	24.5	1.00	0.45	2,544
F9	南相馬市 (馬事公苑)	原発から N 25 km	2011/7/2	土壌	1.05 g	5.4	0.6	1.00	0.54	3,134
F10	福島市 (駅前)	原発から NW 63 km	2012/5/12	土壌 (御溝)	1.00 g	104.0	205.3	1.00	0.58	-----
F11	福島市 (県庁前)	〃	2011/6/14	木の葉	0.777 g	6.8	4.5	1.00	0.85	1,176
東京圏 [Tokyo]										
T1	東京駅 (丸の内口)	原発から SSW 230 km	2012/8/28	土壌 (花壇)	1.50 g	7.8	3.8	0.99	0.58	-----
T2	東京大学赤門前 (文京区)	〃	2012/8/28	土壌 (御溝)	1.50 g	10.7	7.8	1.00	0.61	-----
T3	東京大学講堂前 (文京区)	〃	2012/8/28	土壌 (御溝)	1.50 g	7.6	3.5	0.97	0.57	-----
T4	横浜市 (桜木町)	原発から SSW 250 km	2013/4/14	土壌	1.00 g	5.4	0.7	0.87	0.32	-----
T5	さいたま市 (大宮駅)	原発から SSW 210 km	2013/4/14	土壌 (御溝)	1.00 g	6.2	2.3	0.99	0.10	-----

原発事故汚染環境の減衰曲線回帰分析

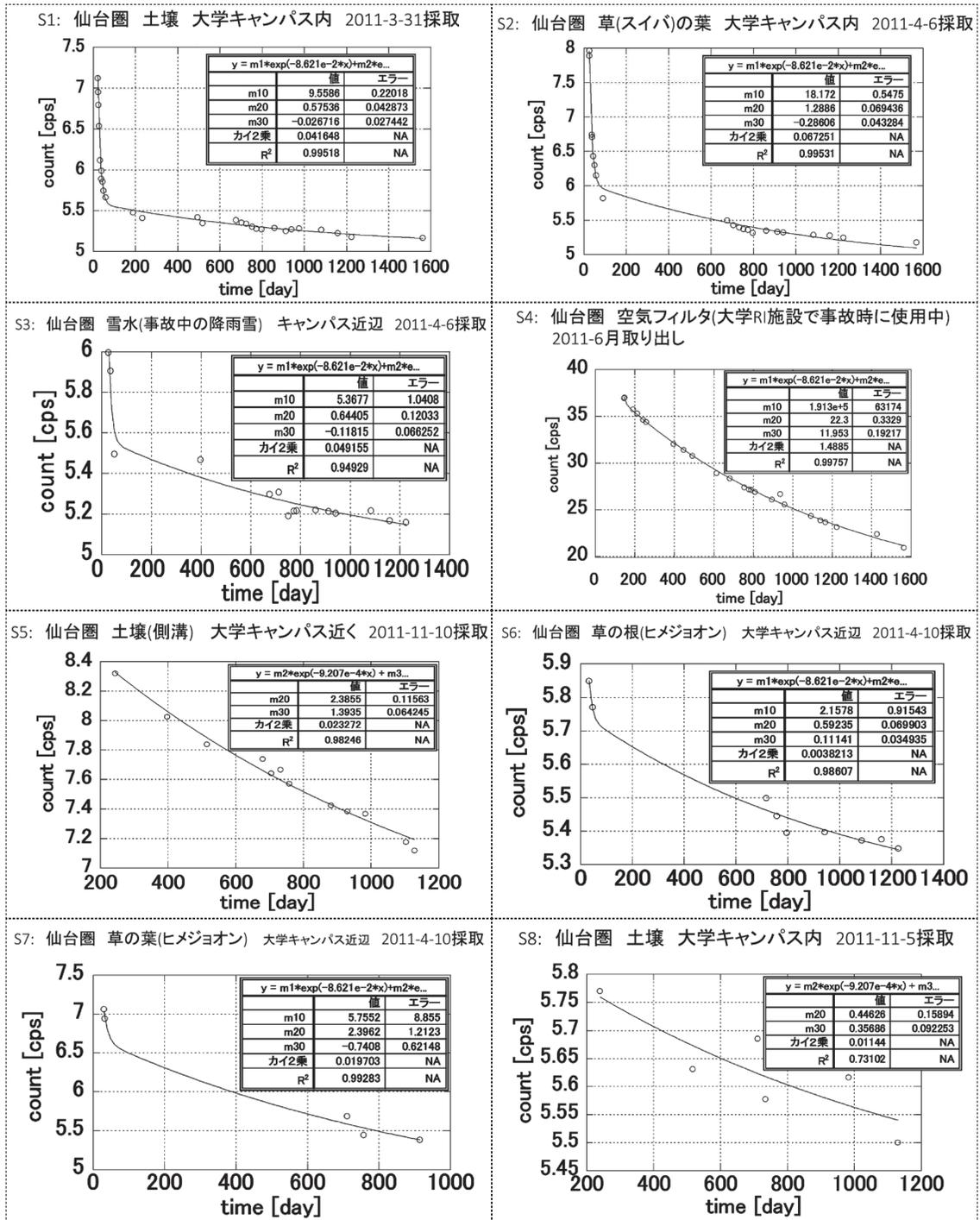


図3. 各試料の計数値の減衰曲線

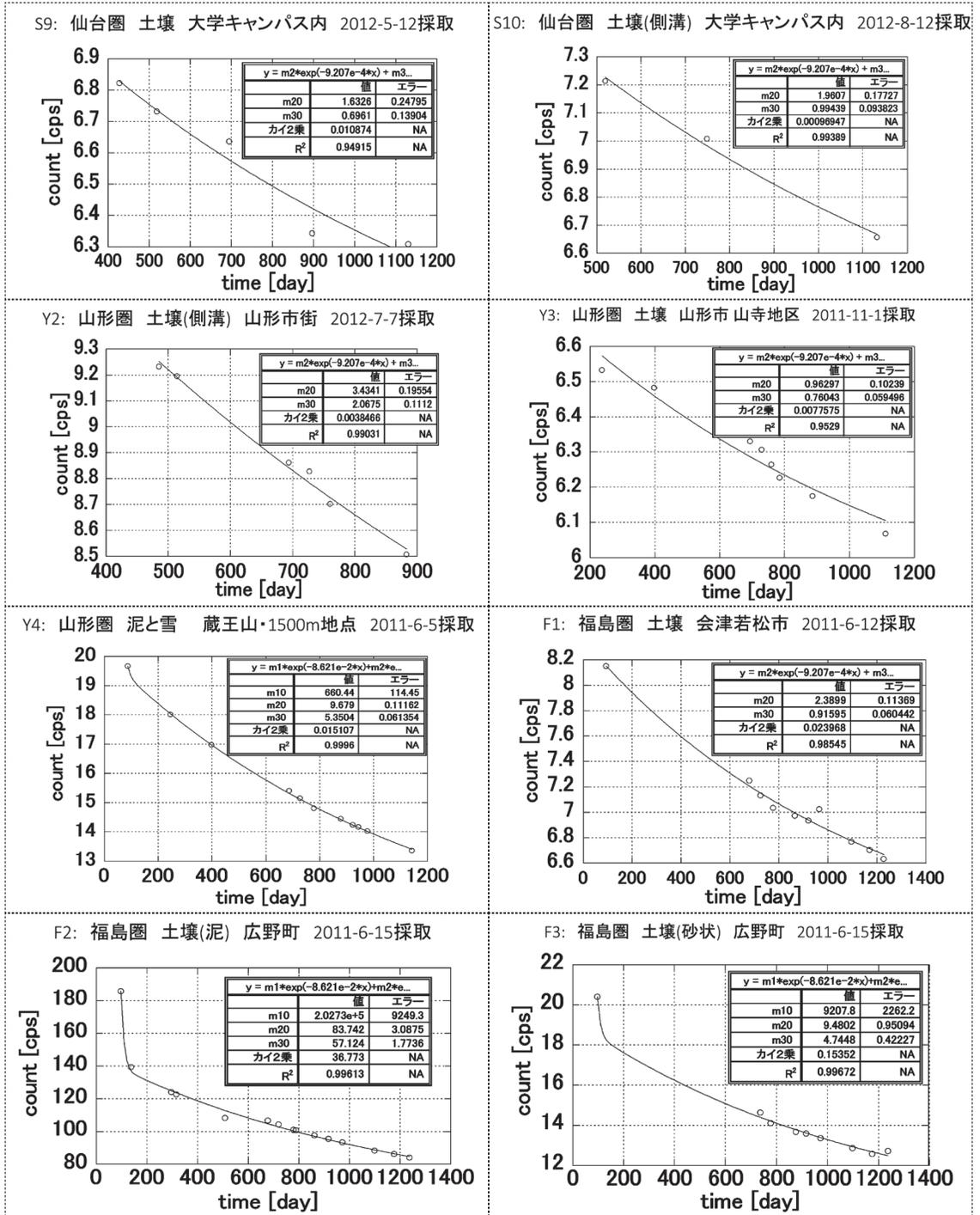


図3. (続き) 各試料の計数値の減衰曲線

原発事故汚染環境の減衰曲線回帰分析

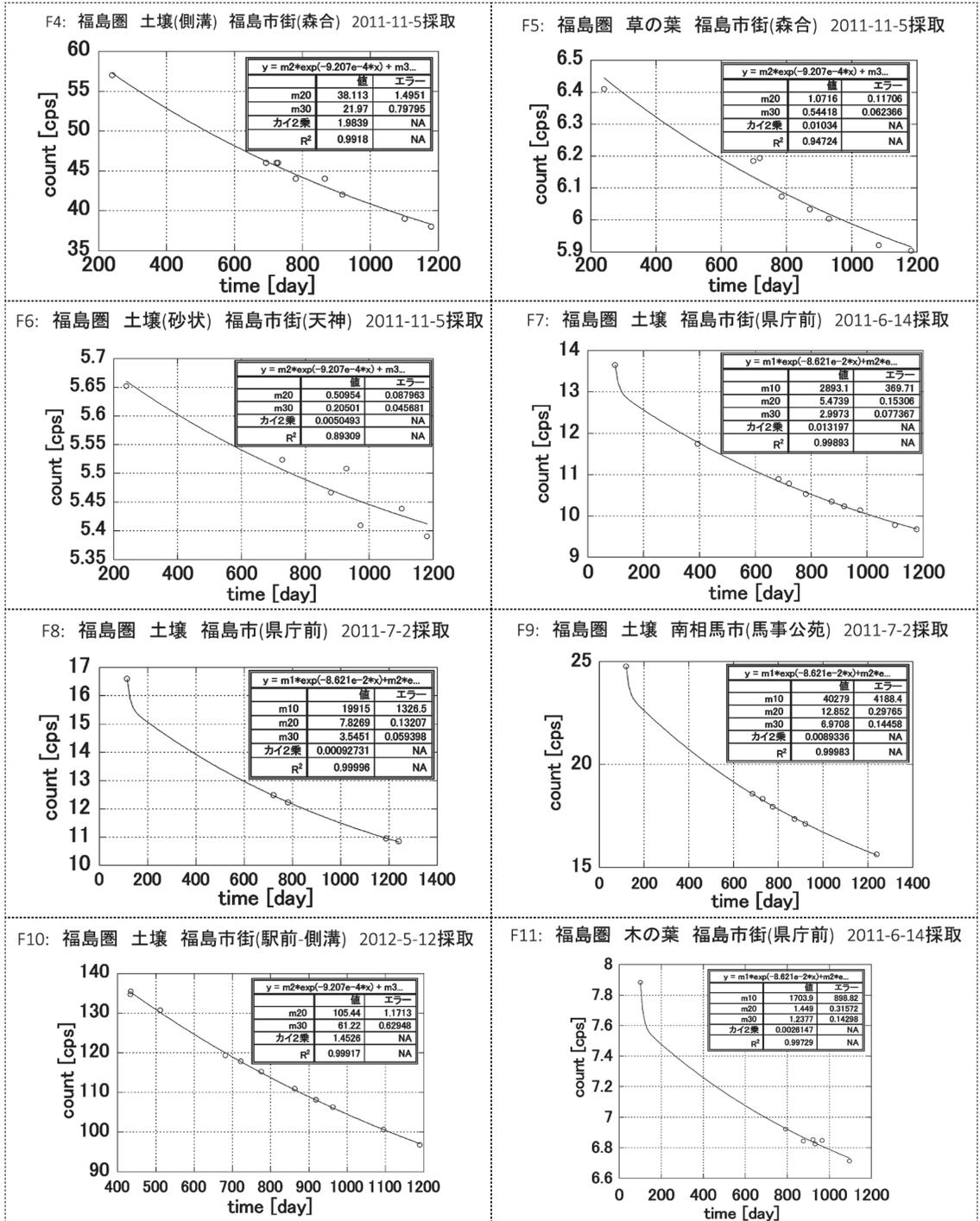


図3. (続き) 各試料の計数値の減衰曲線

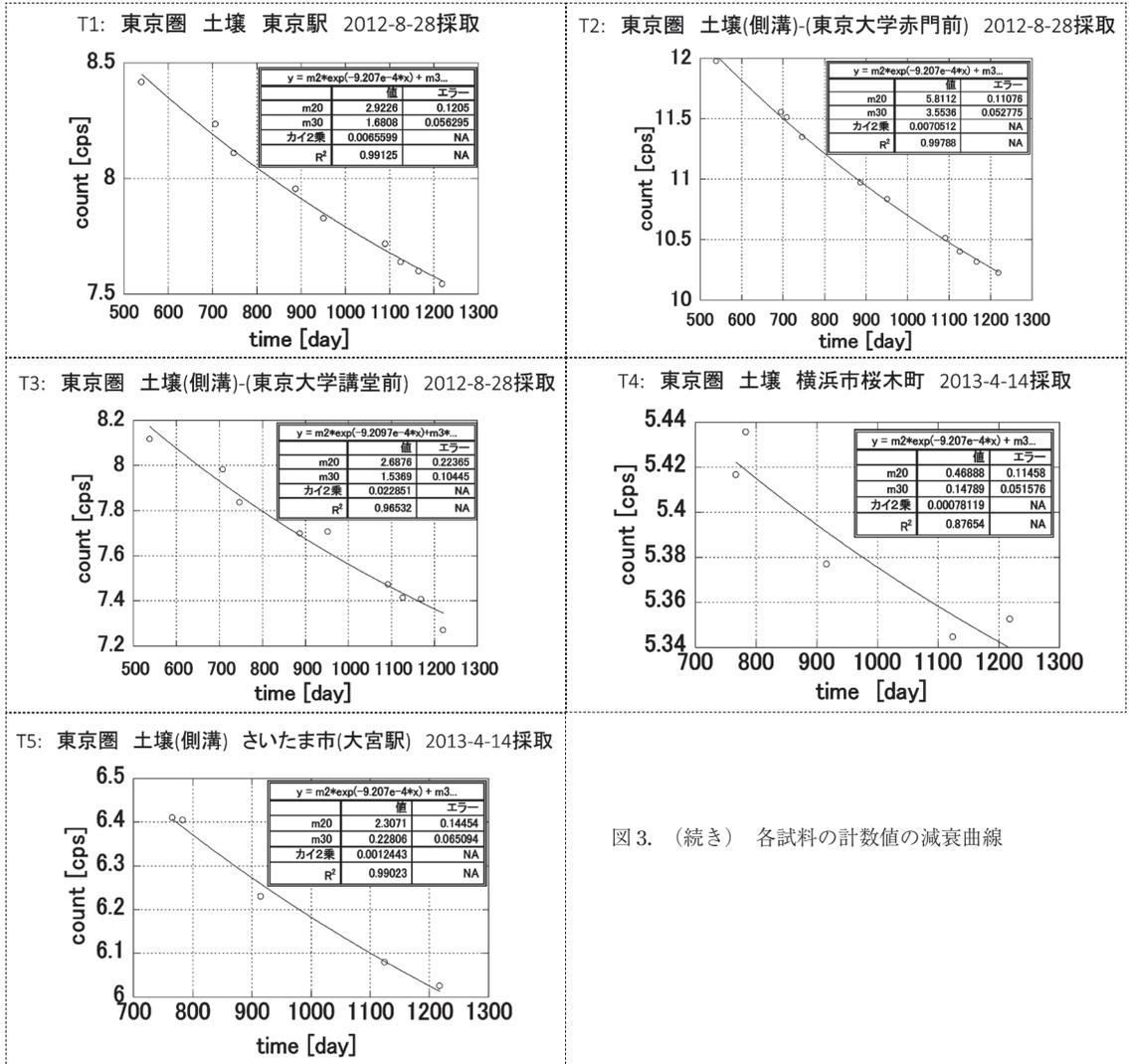


図3. (続き) 各試料の計数値の減衰曲線

**B 空間線量率について (原子力規制庁のホームページデータ・河北新報社の毎日の記事・東北大学ホームページからのデータ)**

これも同一試料の放射能の時間変化と同様に<sup>137</sup>Csと<sup>134</sup>Csの混合として変化していることが回帰曲線から確認できた。理論曲線への適合度の目安となるR<sup>2</sup>値(原子力規制庁ホームページ: 0.90~0.97, 河北新報記事・東北大学ホームページ: 0.81~0.97)は, 試料を採取して測定した放

射能の場合(R<sup>2</sup>値=0.95~0.99)よりもやや悪いが, いずれもR<sup>2</sup>値はほぼ1となっていて, とまにかなり壊変理論と一致した減衰曲線であるといえよう。全体に線量率が低めではR<sup>2</sup>値はやや低くなっている。更に爆発日に遡っての<sup>137</sup>Csと<sup>134</sup>Csの比率は0.01~0.05(新聞記事からのデータ), 0.1~0.2(規制庁ホームページからのデータ)で, 採取試料に基づく放射能・計数率の場合での比率~0.5に比べるとかなり小さい。これは<sup>134</sup>Cs

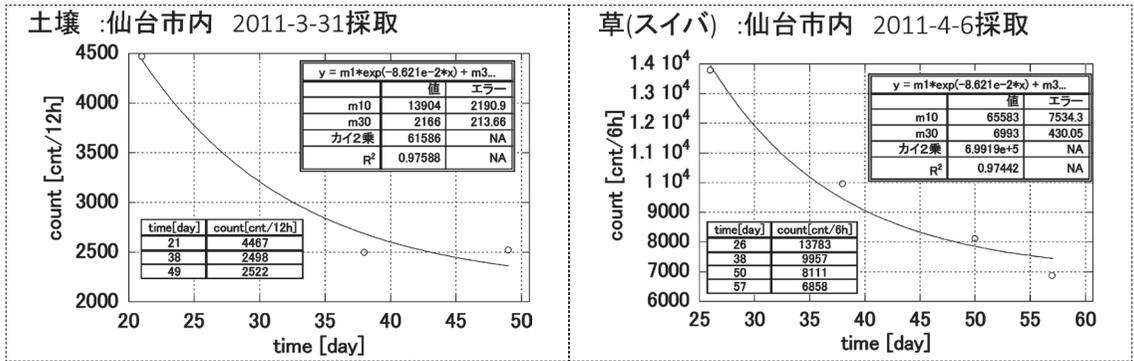


図 4. 特性 X 線 [30 keV 付近] の減衰曲線

からの放射線と <sup>137</sup>Cs からの放射線の線質 (β 線か γ 線か、またそのエネルギー) の違いによるものと推測している<sup>2,7)</sup>。

**C 放射能と空間線量率の <sup>137</sup>Cs/<sup>134</sup>Cs の比率, <sup>131</sup>I/<sup>134</sup>Cs の比率について**

この比率については、試料の放射能では比 <sup>137</sup>Cs/<sup>134</sup>Cs が概ね 0.5 程度であったのに対して、

空間線量率では 0.1~0.2 程度であった。これは核種から放出される放射線の種類・エネルギーの違いからくるものと考えられる。γ 線のエネルギーが <sup>134</sup>Cs では 605 [keV], 796 [keV] と主なものが 2 本, <sup>137</sup>Cs では 662 [keV] であり、これらが関係してくるだろう。<sup>134</sup>Cs は β 線が 658 [keV] (70.2%), <sup>137</sup>Cs は β 線が 514 [keV] (94.4%) であ

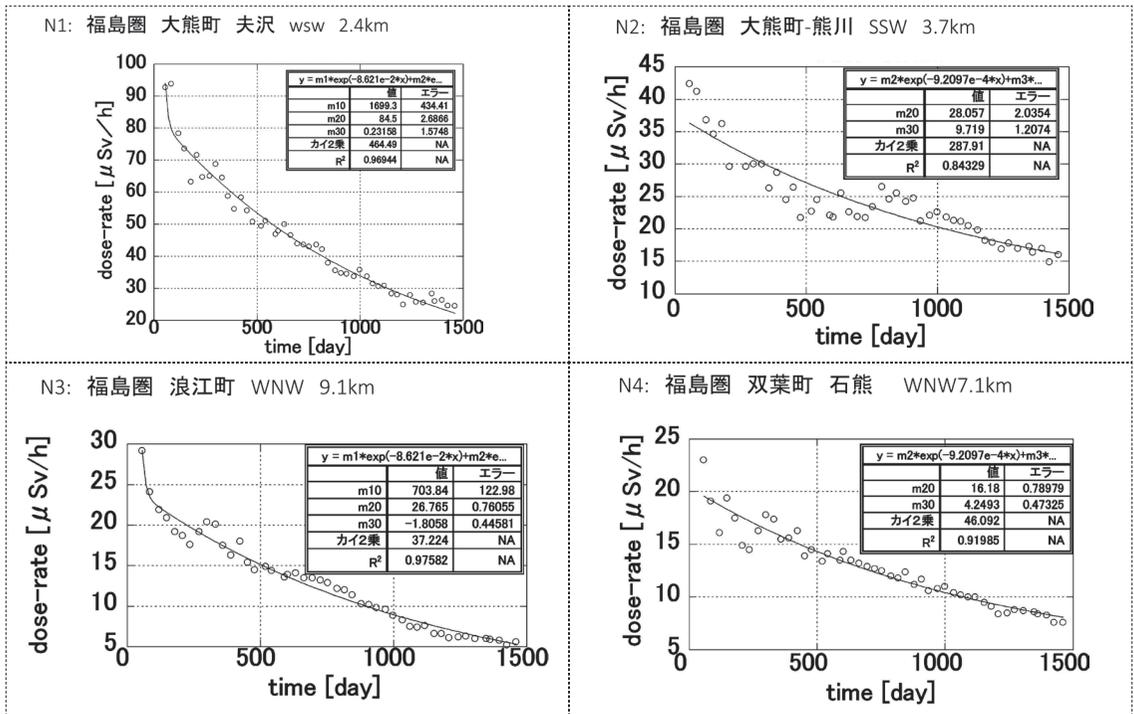


図 5. 各地の空間線量率の減衰曲線

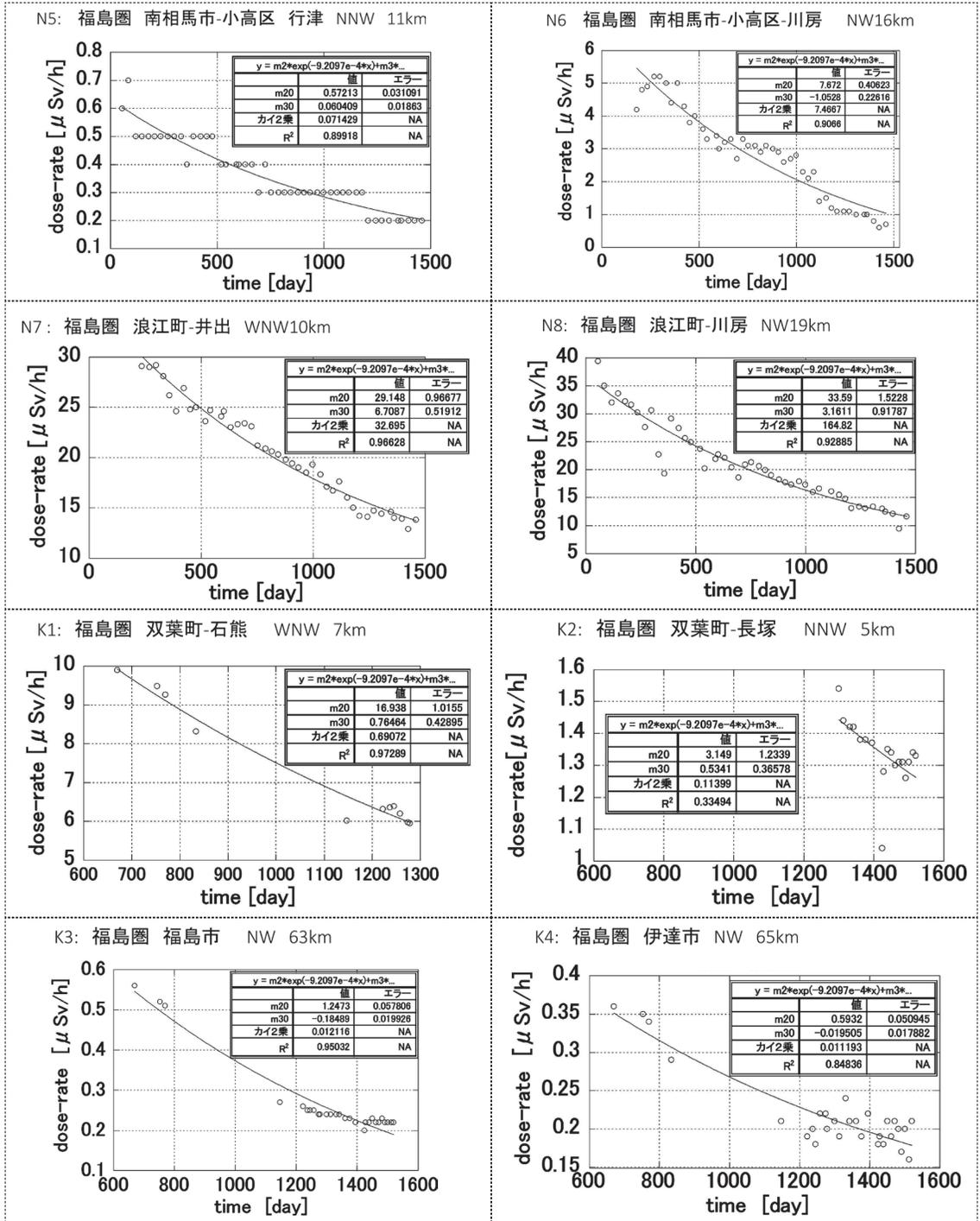


図5. (続き) 各地の空間線量率の減衰曲線

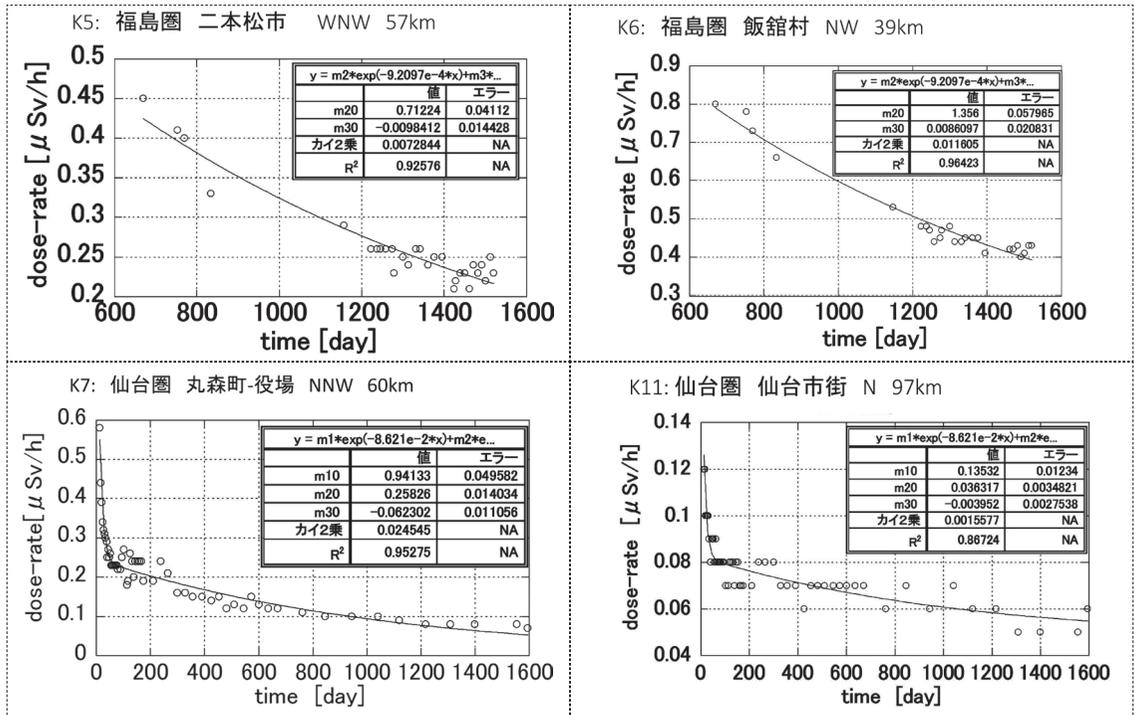


図5. (続き) 各地の空間線量率の減衰曲線

り<sup>2)</sup>, <sup>134</sup>Csのβ線ではその最大エネルギーが<sup>137</sup>Csよりも144 [keV] 高いので、物質透過性もやや高い。<sup>137</sup>Cs(厳密には<sup>137m</sup>Ba) 662 [keV] γ線では内部転換係数が0.092であり、これも幾分関与が考えられる。総合して実効線量係数(吸入摂取の場合)は、<sup>134</sup>Csで $9.6 \times 10^{-3}$  [μSv/Bq], <sup>137</sup>Csで $6.7 \times 10^{-3}$  [μSv/Bq]と、<sup>134</sup>Csの方が高値となる<sup>7)</sup>。また同様の線質指標たる1 cm線量当量率定数Γでみても<sup>134</sup>Csで $2.44 \times 10^{-1}$  [μSv・m<sup>2</sup>/(MBq・h)], <sup>137</sup>Csで $9.1 \times 10^{-2}$  [μSv・m<sup>2</sup>/(MBq・h)]と実効線量係数と同様で<sup>134</sup>Csの方が共に2.7倍ほど高値となる<sup>2)</sup>。このような放射性物質の線質の核種による違いが、線量率への寄与に関与しているとみられる。つまり放射性セシウムからの放射線数[粒子数・光子数] (<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Cs)がここ当分は<sup>134</sup>Csの半減期の2年ほどで減少するが、空間に出てくる放射線の吸収量[エネルギー量]は、この先の数年~数10年ほどは物理的半減期に更にエネルギーの違いを加味した形で現れ、空間線量

率つまりエネルギーで見た影響は計数値つまり放射線の粒子数でみた影響よりも幾分早く減っていきと考えてよいだろう。

#### D エネルギーが30 keV付近の特性X線の計数値について

図2に示したスペクトルには30 keV 辺りにセシウム核種由来の特性X線の光電ピークがみられる。これらは<sup>131</sup>Cs, <sup>132</sup>CsのEC: Electron Capture由来のXe特性X線 [29.8 keV]と<sup>137</sup>Cs由来のBa特性X線 [32.2 keV]が混じったものと考えられる。<sup>136</sup>Csはβ線に続いて818 [keV], 1,048 [keV]のγ線も出す筈だが<sup>5,6)</sup>、これらはほとんどγ線スペクトル中に見えないので、核分裂生成時の他の要因(同じ質量数の核種の基底状態エネルギー単位の関係<sup>6)</sup>や安定中性子数の魔法数“82”などが絡んで生成量は少ないものと思われる。<sup>131</sup>Cs, <sup>132</sup>Cs, <sup>136</sup>Csは半減期がいずれも10日前後、<sup>137</sup>Csのそれは30年であること、この30 keV付近の光電ピークが爆発後30~60日ほどの間に目

表2. 福島原発事故後の空間線量率データ

データ源	測定場所	原発からの方向	1,000 日後 の線量率 [ $\mu\text{Sv/h}$ ]	減衰曲線 の $R^2$ 値	爆発日に 於ける 比率 ( $^{137}\text{Cs}$ )/ ( $^{134}\text{Cs}$ )	爆発日に 於ける 比率 ( $^{131}\text{I}$ )/ ( $^{134}\text{Cs}$ )
原子力規制庁 HP (原発 20 km 圏内)						
N1 [Nuc. Reg. Office]	大熊町 夫沢 3.0 km	原発の WSW 2.4 km	34	0.969	0.0027	20
N2	大熊町 熊川 3.7 km	原発の SSW 3.7 km	20	0.843	0.33	-----
N3	浪江町 9.1 km	原発の WNW 9.1 km	9	0.976	0.21	26
N4	双葉町 石熊 7.1 km	原発の WNW 9.1 km	11	0.92	0.26	-----
N5	南相馬市 小高区 行津 11 km	原発の NNW 11 km	0.26	0.899	0.11	-----
N6	南相馬市 小高区 川房 16 km	原発の NW 16 km	2	0.907	-----	-----
N7	浪江町 井出 10 km	原発の WNW 10 km	18	0.966	0.23	-----
N8	浪江町 川房 19 km	原発の NW 19 km	17	0.929	0.09	-----
河北新報記事 (K1 と K2 以外は原発 30 km 圏以遠)・東北大学 HP						
福島圏 (河北新報記事)						
K1 [Kahoku]	双葉町 石熊	原発の WNW 7 km	7.5	0.971	0.05	-----
K2	双葉町 長塚	原発の NNW 5 km	1.65	0.727	0.17	-----
K3	福島市 (人口 $\approx$ 30 万人)	原発の NW 63 km	0.37	0.935	-----	-----
K4	伊達市 (人口 $\approx$ 6 万人)	原発の NW 65 km	0.33	0.926	0.051	-----
K5	二本松市 (人口 $\approx$ 6 万人)	原発の WNW 57 km	0.33	0.926	0.051	-----
K6	飯館村 (人口 $\approx$ 5,000 人)	原発の北西 39 km	0.59	0.815	0.011	-----
仙台圏 (東北大学 HP)						
K7	丸森町 役場	原発の NNW 60 km	0.09	0.952	-----	3.47
K8	山元町 坂口駅西 1.5 km	原発の N 64 km	0.06	0.906	-----	-----
K9	角田市 裏町	原発の NW 66 km	0.09	0.981	-----	-----
K10	亶理町 上町	原発の N 72 km	0.12	0.953	-----	-----
K11	仙台市 市街地 (人口 $\approx$ 100 万人)	原発の N 97 km	0.06	0.860	-----	-----

2015 年 5 月作成

立って減少していることから、この光電ピークはこれらの核種に由来するものと考えられる。尚、我々のエネルギー分解能が粗い NaI (Tl) シンチレータ検出器では Xe と Ba の特性 X 線ピークの分離測定は無理で、それにはエネルギー分解能が

1~2 keV と格段によい Ge 検出器による測定が必要である。

## 結 語

福島第一原発事故により飛散した放射性物質

は、土壌等の試料では放射線数が各核種固有の半減期に従って減衰していること、環境（空間）の線量率すなわち物質によるエネルギー吸収はそれぞれの核種の半減期に従ってはいるが、そのエネルギー吸収の比率は各核種固有の放射線の性質によって幾分補正された形で減衰していることがみてとれた。また同一試料の減衰曲線の回帰分析により、爆発して飛散・降下した時点での核種の存在の比率も推定できることが分かった。更に水素爆発後 20～100 日ほどの放射性降下物 [fallout] の減衰の様子は、セシウムとヨウ素の放射性核種の減衰曲線の特徴から把握できることがわかった。

#### 謝 辞

本研究に当り、アイソトープ実験施設の測定系・解析系の利用に協力・助言頂いた本放射線技術科学専攻の志田原美保先生、原発事故直後の福島県住民放射線モニタリングの機会などを利用して事故直後期の試料採取に協力頂いた同じく本専攻の小山内実先生、細貝良行先生、小倉隆英先生にお礼申し上げます。

#### 文 献

- 1) 佐藤行彦：福島第一原発水素爆発後の  $\gamma$  線スペクトル測定に基づく土壌放射能調査—中・低度汚染地域（半径 20-250 km 内）に於ける放射能レベル—, 東北大学医学部保健学科紀要, **22**(2), 79-89, 2013
- 2) 日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳第 11 版, 丸善株式会社, 東京, 2009
- 3) 原子力規制庁ホームページ：放射線モニタリング情報（原子力規制委員会）, <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/204/list-1.html>
- 4) 東北大学ホームページ [医学系研究科・医学部]：放射線モニタリング情報, <http://www.med.tohoku.ac.jp/index.html>
- 5) Lederer, C.M., Hollander, J.M., Perlman, I. : Table of Isotopes 6th Edition, John Wiley & Sons Inc, New York, 1967
- 6) Firestone, R.B., Baglin, C.M., Editor Shirley, V.S. : Table of Isotopes 8th Edition, John Wiley & Sons Inc, New York, 1996
- 7) 日本アイソトープ協会：アイソトープ法令集（III）労働安全衛生・輸送・その他関係法令, 丸善株式会社, 東京, 2011