

放射性降下物の空気中濃度変化と
その呼吸による線量評価

1968 年 3 月

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

日本原子力研究所は、研究成果、調査結果の報告のため、つぎの3種の研究報告書を、それぞれの通しナンバーを付して、不定期に公刊しております。

- | | | |
|---------|----------------------------------|-----------------|
| 1. 研究報告 | まとめた研究の成果あるいはその一部における重要な結果の報告 | JAERI 1001-3999 |
| 2. 調査報告 | 総説、展望、紹介などを含め、研究の成果、調査の結果をまとめたもの | JAERI 4001-5999 |
| 3. 資料 | 研究成果の普及、開発状況の紹介、施設共同利用の手引など | JAERI 6001-6999 |

このうち既刊分については「JAERI レポート一覧」にタイトル・要旨をまとめて掲載し、また新刊レポートは「原研びよりお」でその都度紹介しています。これらの研究報告書に関する頒布、版権、複写のお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あてお申し越しください。

Japan Atomic Energy Research Institute publishes the nonperiodical reports with the following classification numbers:

1. JAERI 1001-3999 Research reports,
2. JAERI 4001-5999 Survey reports and reviews,
3. JAERI 6001-6999 Information and Guiding Booklets.

Any inquiries concerning distribution copyright and reprint of the above reports should be directed to the Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan

放射性降下物の空气中濃度変化とその呼吸による線量評価

要 旨

原子力施設周辺における放射能監視の一つに、核爆発実験による放射性降下物 (fallout) を明確に評価しておく必要がある。一方それによってうける線量を評価することは、国民線量を推定する上にもまた必要である。

1961年9月に核爆発実験が再開され、それによる空气中の放射能濃度が急激に上昇した。その1961年から1964年末までの、空気中の ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{131}I , ^{125}Sb の濃度および地上蓄積量をもとめた。またその期間の降下物のγ線エネルギー分布の時間変化を明らかにした。

一方核種の空气中濃度から呼吸による体内蓄積量と線量を、地上蓄積量から外部線量を評価した。その結果、とくに1963年の地上蓄積量からの外部線量は22.8 mrem/yと、自然放射線からの線量に匹敵するものであった。また ^{95}Zr - ^{95}Nb の呼吸によって肺に与えた線量は3.2 mrem/yであった。

1968年1月

日本原子力研究所 東海研究所
保健物理安全管理部

笠 井 篤

Estimation of Dose by Inhalation and Monthly Concentration in Air of Fallout

Summary

This paper describes the estimation of the internal dose by the inhalation and the external dose from the fallout on the ground surface due to nuclear detonations.

The fallout samples were collected with the continuous dust-samples.

Zirconium-Niobium-95, Caesium-137, Strontium-90, Iodine-131 and Antimony-125 in the fallout were determined by using the gamma spectrometry and chemical analysis.

The external dose from the ground surface in 1963 was 22.8 mrem per year. It was same order for the dose from natural radiation. The lung dose by the inhalation of the Zr-Nb-95 in 1963 was 3.2 mrem per year.

January 1968

ATSUSHI KASAI

Division of Health Physics and Safety,
Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

目 次

1. まえがき	1
2. 試料の採取	2
2.1 大容量湿式電気集塵器	2
2.2 連続移動ロ紙式集塵器	2
2.3 土壤試料の採取	2
3. 核種の分析測定法	3
3.1 ^{95}Zr - ^{95}Nb の分析測定	3
3.2 ^{90}Sr , ^{137}Cs の分析	4
3.3 ^{131}I の分析	4
3.4 ^{125}Sb の分析	4
3.5 土壤中の fallout の分析	5
3.5.1 γ 線スペクトルの分解	5
4. 測定結果と考察	7
4.1 核種の空気中濃度と相互関係	7
4.1.1 ^{95}Zr - ^{95}Nb の空気中濃度	7
4.1.2 ^{90}Sr と ^{137}Cs の空気中濃度	8
4.1.3 ^{131}I の空気中濃度	8
4.1.4 ^{125}Sb の空気中濃度	9
4.2 Fallout の γ 線エネルギー分布と時間変化	9
4.2.1 γ 線エネルギー分布の時間変化 とエネルギーの比率	10
4.2.2 平均 γ 線エネルギー	11
4.3 土壤中の fallout の蓄積量	12
5. Fallout からの被曝線量の評価	13
5.1 地表面からの線量	13
5.2 呼吸による体内蓄積量と被曝線量	13
5.2.1 ^{90}Sr , ^{137}Cs の呼吸による体内蓄積量	13
5.2.2 ^{95}Zr - ^{95}Nb の呼吸による体内蓄積量 と被曝線量	14
5.2.3 食物摂取との比較	15
6. むすび	17
参考文献	18

Contents

1. Introduction	1
2. Sampling	2
2.1 High volume air sampler	2
2.2 Continuous dust-sampler	2
2.3 Sampling of soil	2
3. Analytical methods of nuclides	3
3.1 Analysis of Zr-Nb-95	3
3.2 Analysis of Sr-90 and Cs-137	4
3.3 Analysis of I-131	4
3.4 Analysis of Sb-125	4
3.5 Analysis of fallout in soil	5
4. Results and discussion	7
4.1 Concentration of nuclides in air	7
4.2 Gamma energy distribution of fallout	9
4.3 Accumulation of fallout on surface	12
5. Dose estimation from fallout	13
5.1 External dose from surface	13
5.2 Body burden and internal dose by inhalation	13
6. Conclusion	17
References	18

1. まえがき

地球上における人工的な放射性汚染源は、大別して原子力の平和利用による放射性廃棄物と、核爆発実験の放射性降下物 (fallout) とに分けられる。この両者がいったん環境に放出されると、いずれも核分裂生成物であるため、両者の区別はきわめて困難となる。

原子力の平和利用が急速の進歩をとげ、大型施設の稼動にともなって、放射性廃棄物の処分による環境汚染が問題となるため、この fallout の評価を厳密におこなつておく必要がある。

一方 fallout は地球上全域にわたる広い範囲の汚染をもたらすため、それによって人類が受ける放射線線量を明確に評価する必要がある。これらの報告は今までに非常に多くの論文が発表されている。それらの代表的な資料をすべて、もうら検討して世界的な観点から評価をしている、国際連合科学特別委員会報告がある¹⁾²⁾³⁾⁴⁾。

日本においても、各研究機関において fallout の観測および評価がなされている⁵⁾。しかしそれは主に、fallout の降下量および蓄積量と、人間への影響については、食物による摂取が主なものである。長期間にわたる、fallout の空気中濃度と、その呼吸による人間への影響について

てはあまりなされていない。これは fallout によって直接汚染された空気を呼吸することによって、放射性核種が人間にとりこまれる割合は、食物摂取によるものと比べて小さいとして無視されており、両者の定量的な関係は明らかでなかった。

本報はこの関係を明らかにするとともに、もう一つの観点として、原子力施設周辺の放射能監視のための一つに、fallout を明確に評価しておく必要があった。すなわち “background level” をたえず明らかにしておかねばならない。この二つの観点から、核爆発実験が再開された1961年後半から1965年までの空気中塵埃を、24時間の連續集塵によって採取し、その中の特に問題となる核種である ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{131}I , ^{125}Sb を分析定量した。そしてその濃度変化と核種相互の関係およびこの期間の fallout の性質を明らかにした。

またこれらの放射性核種の地上蓄積量と、それからの線量および核種の空気中濃度から、その呼吸による体内蓄積量と線量をもとめた。それを食物摂取によるものと比較し両者の関係を明らかにした。

2. 試料の採取

大気圏内でおこなわれた核爆発による核分裂生成物の大部分は、空气中塵埃または核爆発のおこなわれた場所によって、土壤や岩石の破片に付着しそれが大気圏内を浮遊して移動する¹⁾²⁾。それゆえ fallout 中の放射性核種を分析するための試料としては、この空气中浮遊塵を効率よく捕集しなければならない。ここで用いた空气中塵埃の採取は、次の2種類によった。

2.1 大容量湿式電気集塵器⁶⁾

これは大型の湿式電気集塵器で、その特性は次のとおりである。

吸引量: 8750 m³/h

集塵効率: サブミクロン以上の粒子に対し ~100%

集塵電圧: 直流 8000 V

この集塵器は、非常に大型のものでしかも取り扱いがはんざつなため、長時間連続して使用することはできなかった。試料採取は、1960年10月6日空気の吸引量21000 m³、同13日に13100 m³、1961年10月26日および同30日にそれぞれ43000 m³である。

試料は蒸溜水中に塵埃が懸濁された状態で採取される。この懸濁液を蒸発乾涸した残渣を、分析測定試料とした。

2.2 連続移動口紙式集塵器⁷⁾

この集塵器は Fig. 1 にしめすような機構である。口紙は 2.5 cm/h の一定速度で巻取られる。この集塵器と使用した口紙の特性は次のとおりである。

吸引量: 280 l/min

口紙の移動速度: 2.5 cm/h

吸引口の高さ: 地上約 1.5 m

口紙: Hollingsworth & Vose # H-70

集塵効率: 0.2 μ 以上の粒子 99%

この集塵器は原研構内外におかれているモニタリングステーションの一部として、24 時間の連続集塵をおこなった。試料採取した場所は原研構外である。

この連続集塵した口紙を、約 1~2 月分をまとめ、そ

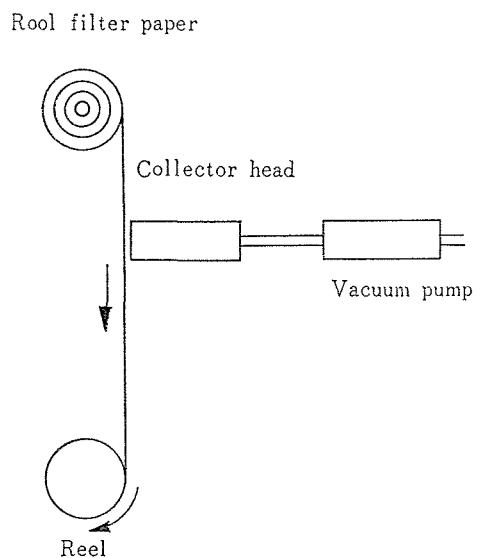


Fig. 1 Mechanical view of continuous dust sampler

れを電気炉で灰化 (450°C) したものを作成測定試料とした。

2.3 土壤試料の採取

Fallout は土壤に蓄積され、それからの直接の放射線寄与と同時に、食物循環の最初の点となるため、土壤中の fallout 蓄積量をもとめた。

土壤の採取は Fig. 2 にしめすように、直径 13 cm、深さ 7 cm のプラスチック製容器を土中に埋込み、地表面をできるだけそのままの状態で採取した。測定はこの容器ごとおこなった。この方法で採取した土壤の重量は、土質によって異なるが、ほぼ 1 kg から 1.5 kg の範囲である。

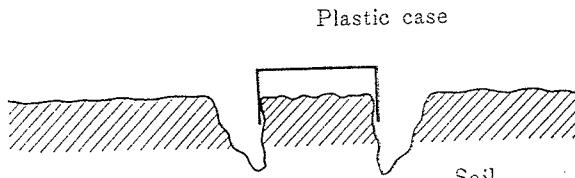


Fig. 2 Sampling method of soil

3. 核種の分析測定法

採取した空気中塵埃は、全量を分析測定試料とした。放射性核種の分析は、最初に試料を一定容器（直径 12 cm, 試料厚 2~3 cm）に入れ NaI(Tl) クリスタルに密着させ γ 線スペクトロメータで γ 線エネルギースペクトルを測定した。その後放射化学分析をおこなった。

γ 線スペクトロメーターで定量した核種は、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn, ¹²⁵Sb である。しかし ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb の多いときの ¹³⁷Cs の定量は、γ 線スペクトロメーターでは困難なため、放射化学分析をおこなった。

一般に 2 種以上の核種が混合している場合、その γ 線スペクトルを測定して目的とする核種を定量する方法は、代表的なものとして HEATH⁸⁾ の方法がある。すなわち、strip-off と最小自乗法の両方を用いて、単一核種のスペクトルに分解する方法である。

本報では手計算でスペクトルを分解したため、同一核種の標準スペクトルを用いて、strip-off 法でおこなった。現在では電子計算機を用いてスペクトルを分解しており、それには strip-off 法と最小自乗法を適当に組合せておこなうことができる⁹⁾。

核種の分析測定で用いた主な測定器は次のものである。

(1) γ 線スペクトロメータ

TMC-402 型 400 チャンネル

(2) 検出器

NaI(Tl) 5" φ × 4" 円管型

検出器は厚さ 20 cm の鉄室において。

(3) 低バックグラウンドカウンタ

CE-14 (Tracerlab)

しゃへい体の厚さ 20 cm

ガスフロー GM 管 × 2 (有効直径 5 cm)

逆同時計数型

3.1 ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb の分析測定

⁹⁵Zr-⁹⁵Nb は γ 線スペクトロメータで測定して定量した。その代表的な γ 線スペクトルを Fig. 3 に示した。このスペクトルの ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb の 0.76 MeV ホトピーク計数率より定量したのであるが、Fig. 3 のスペクトルのように、0.76 MeV より高いエネルギーがある場合は、そのコンプトン寄与を差引き正味のホトピーク計数率をもとめた。

また fallout 中の ¹³⁷Cs の 0.662 MeV のピークが ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb の 0.76 MeV のホトピークに重なる部分があるので、しかしその重なりの割合は 0.662 MeV (¹³⁷Cs) が約 2 衍

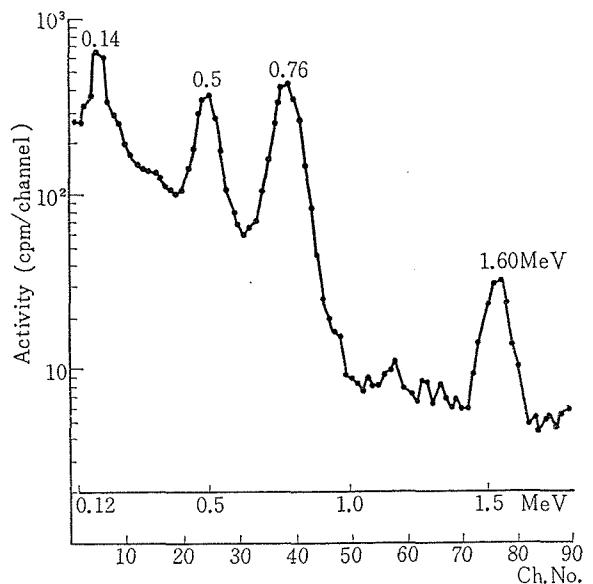


Fig. 3 Gamma-ray spectrum of fallout

ないし 3 衍低いため、重なりによる誤差は無視できる。

一方 ⁹⁵Zr とその娘核種である ⁹⁵Nb はすべて放射平衡（過渡平衡）にあるとしてあつかった。

一般に過渡平衡にある A, B の放射性核種の放射能 a_1, a_2 は崩壊定数を λ_1, λ_2 とすると次式の関係がある。

$$\frac{a_2}{a_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (1)$$

⁹⁵Zr-⁹⁵Nb ではこの a_2/a_1 は 2.20 である。実際に計測される 0.76 MeV のホトピーク計数率は、⁹⁵Zr + ⁹⁵Nb の計数率 (N) であるため式 (1) の値と、⁹⁵Zr, ⁹⁵Nb の γ 線放出率の補正をして、⁹⁵Zr と ⁹⁵Nb それぞれの計数率 n_1, n_2 は次式でもとめた。

$$n_1 = 0.322 N \quad (2)$$

$$n_2 = N - n_1 \quad (3)$$

n_1, n_2 より ⁹⁵Zr, ⁹⁵Nb の濃度 A_1, A_2 は次式でもとめた。

$$A_1 = \frac{n_1}{2.18\eta} e^{t/\tau} / V \quad (^{95}\text{Zr, pCi/m}^3) \quad (4)$$

$$A_2 = \frac{n_2}{2.22\eta} e^{t/\tau} / V \quad (^{95}\text{Nb, pCi/m}^3) \quad (5)$$

ここで η は 0.76 MeV のピークエフィシエンシーであり、 $\exp(t/\tau)$ は減衰による補正係数で、 t は採取から測定までの時間、 τ は、半減期/0.693 である。また V は全吸引量 (m^3) である。

また ⁹⁵Zr と ⁹⁵Nb の γ 線の放出率は、⁹⁵Zr が 0.757 MeV 49% と 0.724 MeV 49% で、両者のエネルギーが近接しているため、これは 0.75 MeV 98% とした。

^{95}Nb は 0.768 MeV 100% である¹⁰⁾.

3.2 ^{90}Sr , ^{137}Cs の分析

^{90}Sr と ^{137}Cs の分析法は数多くの方法が紹介されており、すでに固定化している。その中でも標準の分析法ともいべきものが、WHO/IAEA および科学技術庁から出されている¹¹⁾¹²⁾。ここで用いた方法は、その標準の方法に、イオン交換樹脂を併用して操作を簡易化した。この方法は同一試料から、 ^{90}Sr と ^{137}Cs を同時に分離定量することができる。

^{90}Sr の分析の場合、核分裂生成物を含む試料であると、 ^{89}Sr も ^{90}Sr とともに分離されるので、 ^{90}Sr のみを決定するには、 ^{90}Sr の娘核種である ^{90}Y を分離し、 ^{90}Y の放射能から ^{90}Sr 量を決定する。すなわち ^{90}Sr と ^{90}Y が放射平衡であると $\frac{\beta^-}{\lambda_1} \rightarrow ^{90}\text{Y} \rightarrow ^{90}\text{Zr}$ (安定), $\lambda_1 \ll \lambda_2$ であるから、 ^{90}Sr , ^{90}Y の原子数 N_1 , N_2 は $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$ となる。それゆえ ^{90}Y の崩壊率から ^{90}Sr の崩壊率がそのままもとまる。

分析法は試料を濃塩酸で加熱抽出を 2 回おこなう。抽出液に Sr, Cs キャリヤーを加え蒸発乾涸する。硅酸を除去したのち、3 規定塩酸 100 ml に溶解する。これをイオン交換樹脂柱 (Amberlite CG-120, 100~200 mesh, 1.7 cm ϕ × 20 cmH $^+$ 型) に通す。溶離液 I (2M-CH $_3$ -COONH $_4$ +CH $_3$ OH, 1 : 1) 205 ml で Na, K, Mg, Ca が溶離される。つづいて溶離液 II (2M-CH $_3$ COONH $_4$) 154 ml で Sr と Cs が溶出する。この溶離液 II から Sr は炭酸ストロンチウムとして、Cs は塩化白金酸セシウムの沈殿として分離する。 ^{90}Sr は ^{90}Y の平衡になるのをまって ^{90}Y を分離しその放射能を、 ^{137}Cs はそのまままでいずれも低バックグラウンドカウンタで測定し、その計数率から次式により ^{90}Sr と ^{137}Cs の濃度 (C) をもとめた。

$$C = \frac{A}{2.22\eta R} e^{t/\tau} / V \quad (\text{pCi/m}^3) \quad (6)$$

A : ^{90}Y (^{137}Cs) の計数率

R : Sr(Cs) キャリヤーの回収率

η : ^{90}Y (^{137}Cs) の計数効率

t : ^{90}Y の分離から計測までの経過時間

τ : ^{90}Y 半減期/0.693

V : 全吸引量 (m 3)

3.3 ^{131}I の分析

^{131}I の分析は前処理の抽出過程で、酸による抽出ができないため、 ^{90}Sr , ^{137}Cs の分析試料とは別に、独自の試料を用いる必要がある。ここでは ^{131}I 分析試料として大容量電気集塵器で集めた試料を用いた。

分析法は、最初の抽出段階で ^{131}I の損失を最小にし、

しかも完全に抽出する必要がある。このため試料によって抽出方法が異なるが、大別して、1) カセイソーダ溶液で抽出後、硝酸酸性にし 4 塩化炭素で抽出する。2) 試料(溶液)を硝酸酸性にし 4 塩化炭素で抽出する方法である¹³⁾¹⁴⁾。空気中塵埃は 1) の方法で 4 塩化炭素で抽出し、これを亜硫酸で水層に逆抽出する。これを最後にヨウ化銀の沈殿として分離しその放射能を低バックグラウンドカウンタで測定する。 ^{131}I の空気中濃度は式(6)と同様にしてもとめた。またこの ^{131}I を含んだヨウ化銀の沈殿を γ 線スペクトロメータで測定し定量した。その γ 線スペクトルを Fig. 4 にしめした。

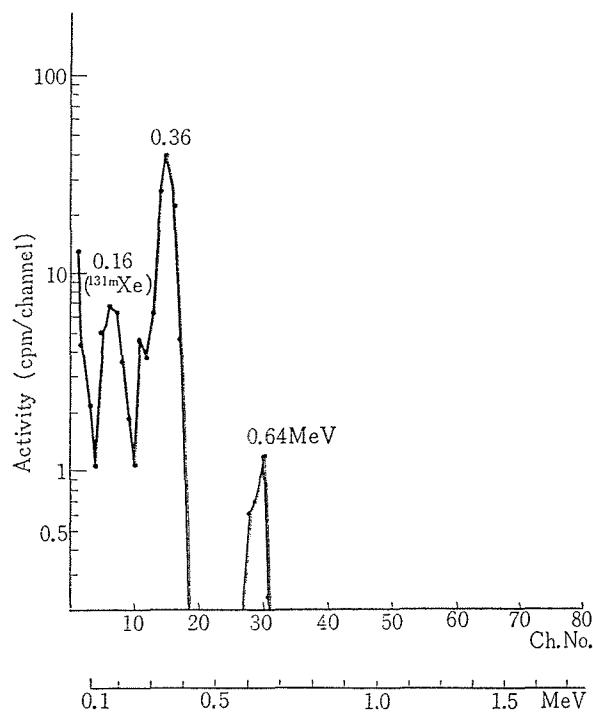


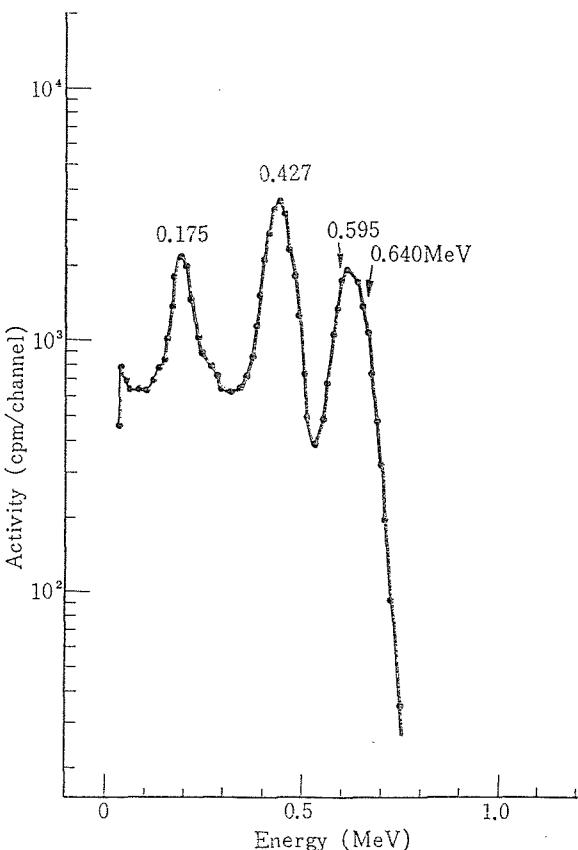
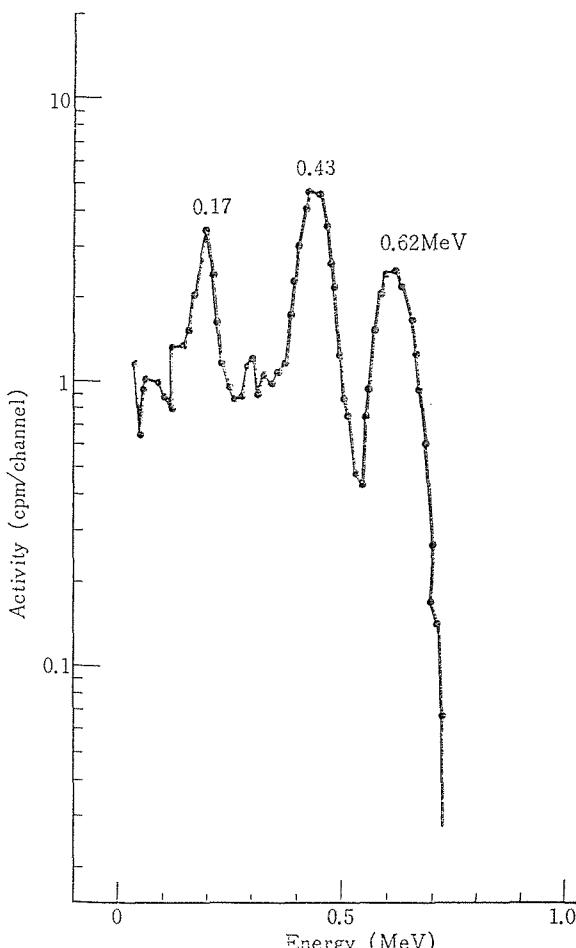
Fig. 4 Gamma-ray spectrum of ^{131}I in airborne dust

3.4 ^{125}Sb の分析

核爆発後 1~2 年経過すると fallout 中の核種は大部分が長半減のもののみになる。その中で 2.7 年の半減期をもつ ^{125}Sb の存在が、かなりの量になっていることが γ 線スペクトルから推定されたので、空気中塵埃の試料から ^{125}Sb を分離定量した。

分析法は試料を塩酸で加熱抽出したのち、H $_2$ S によって Sb を沈殿させた。この沈殿には Sb の他に As, Sn, Ag, Cu などが硫化物としてともに沈殿する。この沈殿を γ 線スペクトロメータで測定してもよいが精製のため沈殿を、Na $_2$ S で溶解し H $_2$ S で再沈殿したものを γ 線スペクトロメータで測定した。

^{125}Sb の放出する γ 線は複雑であるが、実際にスペクトロメータで得られるスペクトルは Fig. 5 にしめした標準の ^{125}Sb のスペクトルのように 3 つのホトピークをもっている。試料より分離した Sb 沈殿のスペクトル Fig. 6 をみると、標準の ^{125}Sb スペクトルと同一であ

Fig. 5 Gamma ray spectra of standard ¹²⁵SbFig. 6 Gamma ray spectra of ¹²⁵Sb separated from air-born dust

る。これは ¹²⁵Sb のみで他の核種の混入は認められない。そしてそのスペクトルの 0.43 MeV のホトピーク計数率から ¹²⁵Sb の濃度 (C) を次式によつてもとめた。

$$C = \frac{P_{\text{std}}}{N_{\text{std}}} n/V \quad (\text{pCi/m}^3) \quad (7)$$

N_{std} : 標準 ¹²⁵Sb の崩壊率 (pCi)

P_{std} : 標準 ¹²⁵Sb の 0.43 MeV ホトピーク計数率 (cpm)

n : 試料の ¹²⁵Sb の 0.43 MeV ホトピーク計数率 (cpm)

V : 全吸引量 (m³)

3.5 土壤中の fallout の分析

土壤に蓄積された fallout の核種の分析は、 γ 線スペクトルを測定し、そのスペクトルを解析して核種を定量した。それゆえ対象とした核種は限られており、ここでは ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn などである。また土壤中には、fallout の他に天然放射性核種があり、それも当然測定される。

測定は 2.3 にのべた土壤試料を、NaI クリスタルの上にのせエネルギー幅 3 MeV で 400 分測定をおこなつた。測定した γ 線スペクトルの代表的なものを Fig. 7 にしめした。このスペクトルで、0.50 MeV (¹⁰³Ru, ¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rh), 0.66 MeV (¹³⁷Cs), 0.76 MeV (⁹⁵Zr-⁹⁵Nb) のホトピークは、fallout による核種からのものであり、1.46 MeV (⁴⁰K), 2.19 MeV (²³⁸U の娘核種), 2.62 MeV (²³²Th の娘核種) は天然の放射性核種によるものである。

3.5.1 γ 線スペクトルの分解

土壤試料の γ 線スペクトルは、数多くの核種からの γ 線が混合しているため、スペクトルを分解して核種ごとの単一のスペクトルにした。*(strip-off method)* そして正味のホトピークの計数率 (n_1) を次式によつてもとめた。

$$\begin{aligned} n_1 &= N_1 \\ n_2 &= N_2 - a_1 n_1 \\ n_3 &= N_3 - a_2 n_1 - b_1 n_2 \\ &\vdots \\ n_n &= N_n - a_{n-1} n_1 - b_{n-2} n_2 - \dots - m_{n-(n-1)} n_{n-1} \end{aligned} \quad (8)$$

n_{1-n} : 正味のホトピーク計数率

N_{1-n} : 計測されたホトピーク計数率

$\left. \begin{array}{l} a_{1-n-1} \\ \vdots \\ m_{n-(n-1)} \end{array} \right\}$: ホトピークへの寄与率

ここでホトピークへの寄与率は、標準試料のスペクトルからもとめた。この γ 線スペクトルの分解を図示すると Fig. 8 のようになる。

標準試料は、U と Th については濃度既知の U, Th ore を、⁴⁰K は KCl を土壤試料と同一形態にしたもの用いた。Fallout の ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb, ¹³⁷Cs, ⁵⁴Mn は崩壊率既

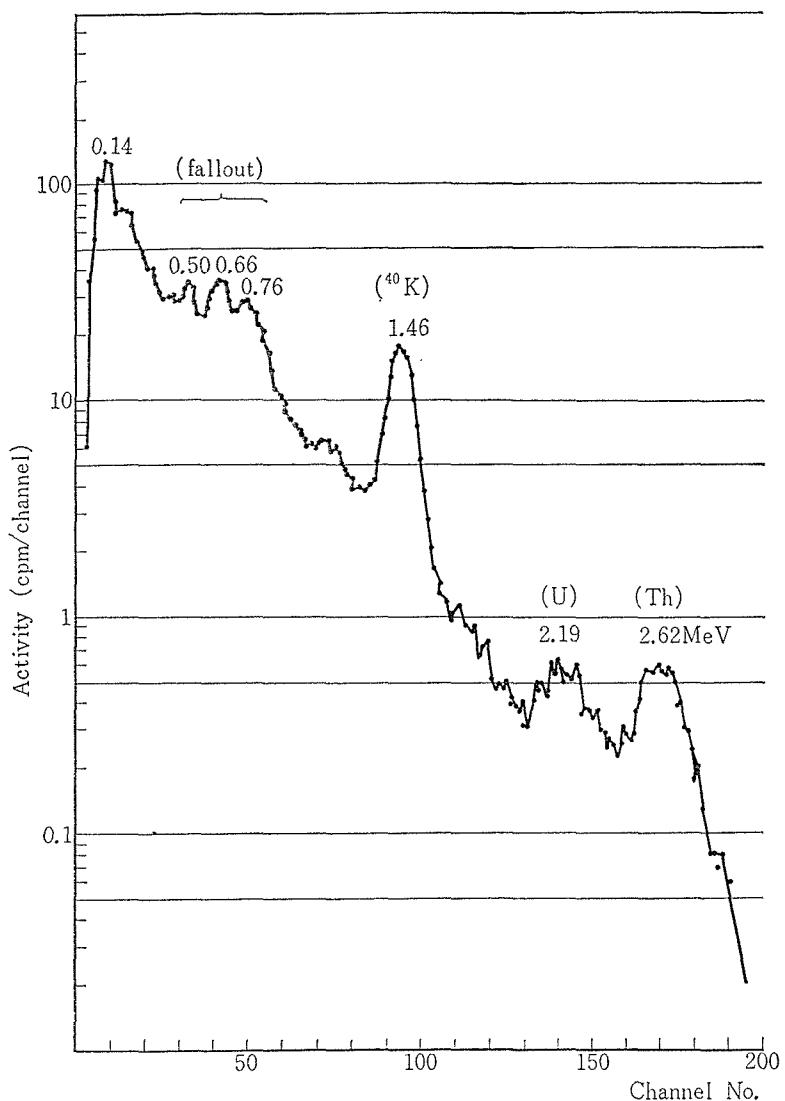


Fig. 7 Gamma ray spectra of soil

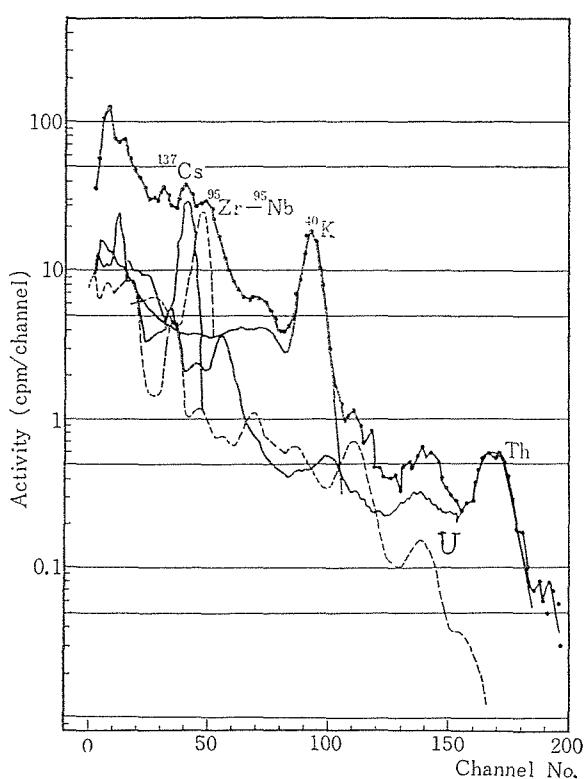


Fig. 8 Analysis of gamma ray spectra of soil

知の溶液を寒天で固めたものである。この標準試料の幾何学的状態は、fallout の土壤中における蓄積状態が、深さ 1 cm までのところに 90% 以上がとどまっていることから、標準試料の厚さを 1 cm にした。

このようにしてもとめた正味のホトピーク計数率と標準試料からもとめた放射能への換算係数から核種の濃度

をもとめた。

この方法は土壤中の核種の定量のみでなく、空気中塵埃のγ線スペクトルの分解の場合でもこれと全く同様である。なお現在ではこのスペクトルの分解は、電子計算機によっておこなっている⁹⁾。

4. 測定結果と考察

4.1 核種の空気中濃度と相互関係

前述したように、1961年9月に核爆発実験が再開され、翌1962年12月まで続いた。この間の空気中濃度は最も高い値をしめしており、それが1964年頃まで続いた。その後は定常状態が続いている。各核種の空気中濃度とその変化、およびそれらの核種の相互関係を各核種ごとに考察する。

4.1.1 ^{95}Zr - ^{95}Nb の空気中濃度

1961年9月から1964年11月までの ^{95}Zr - ^{95}Nb の空気中濃度とその変化は、TABLE 1 および Fig. 9 に他の核種といっしょにしめした。それでみると、1961年9月末から10月にかけての濃度は 4 pCi/m³ と高い値をしめしている。1961年8月の値は、バックグラウンドレベルで、 ^{95}Zr - ^{95}Nb は検出限界以下であった。これは当時大気圏内での核爆発実験が1958年末でもって中止されており、fallout 中の比較的短い半減期の核種は非常に少なくなっていた。しかし1961年9月初旬に核爆発実験が再開され、9月末から10月にかけて大型の核爆発実験が、北極圏でおこなわれた。9月末から10月の急激な増加は、この一連の核爆発による核分裂生成物が直接やってきたことによる。

とくに ^{95}Zr - ^{95}Nb の半減期は 65 日と比較的短いが、核分裂収率が大きく、KATCOFF の表¹⁵⁾によると 6.2% である。また放射能の相対強度は、HUNTER and BALLOU の表¹⁶⁾によると、核分裂後 20 日から 200 日の間で最も大きくその値は最大値で 40% をしめる。それゆえ核爆直後に急激に増加する。しかし大気圏への注入がなければ比較的早く減少する。

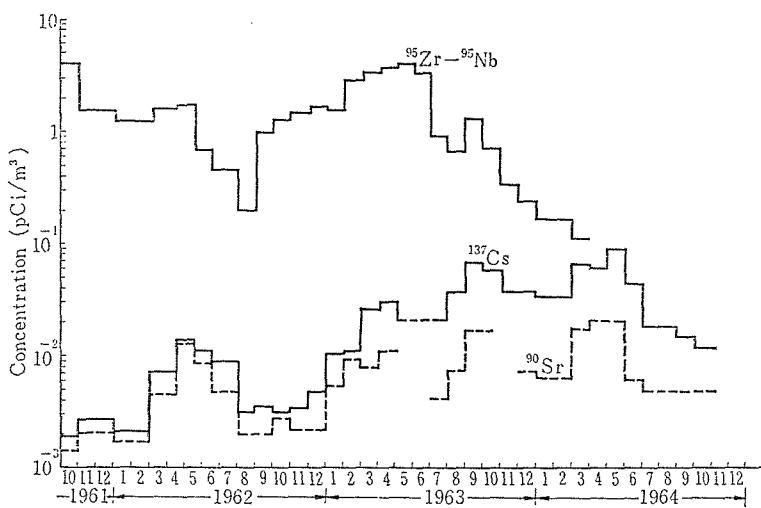
1961年11月から1962年2月までは、 ^{95}Zr - ^{95}Nb の濃度は減少している。しかし3月、4月、5月には再び上昇した。これは新しい核爆発によるものではなく、対流圏および成層圏に注入された核分裂生成物の季節変動による增加である。すなわち対流圏および成層圏に注入された核分裂生成物の地上降下率の年変化をみると、春3月、4月、5月には注入がなくとも顕著な増加が周期的に認められる。

TABLE 1 Monthly average concentration of ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{137}Cs and ^{90}Sr in air from Sep. 1961 to Nov. 1964.

Sampling date	Concentration pCi/m ³			
	^{95}Zr - ^{95}Nb	^{137}Cs	^{90}Sr	
1961	9. 22-10. 30	4.1	1.4×10^{-3}	1.9×10^{-3}
	11. 1-12. 31	1.6	2.7 "	2.1 "
	1. 1- 3. 3	1.2	2.1 "	1.7 "
	3. 4- 4. 14	1.6	7.1 "	4.5 "
	4. 15- 5. 14	1.7	13.9 "	12.9 "
	5. 15- 6. 17	0.68	11.1 "	8.5 "
	6. 18- 7. 30	0.46	8.7 "	4.8 "
	8. 1- 9. 2	0.20	3.1 "	2.0 "
	9. 3- 9. 30	1.1	3.5 "	
	10. 1-10. 27	1.3	3.2 "	2.8 "
1962	10. 28-12. 3	1.5	3.4 "	
	12. 4-12. 31	1.7	4.8 "	2.2 "
	1. 1- 1. 29	1.6	10.4 "	5.4 "
	2. 5- 3. 3	2.9	10.6 "	9.4 "
	3. 4- 4. 7	3.4	27.0 "	7.8 "
	4. 8- 5. 5	3.8	33.1 "	11.0 "
	5. 6- 6. 3	4.1		
	6. 4- 6. 30	3.2		
	7. 1- 7. 29	0.93	21.7 "	4.3 "
	7. 30- 9. 3	0.69	38.6 "	7.5 "
1963	9. 4- 9. 29	1.4	69.3 "	18.9 "
	9. 30-11. 4	0.73	59.2 "	
	11. 5-12. 2	0.35	39.8 "	
	12. 3- 1. 6	0.25	38.7 "	7.4 "
	1. 7- 3. 3	0.17	34.5 "	6.2 "
	3. 4- 3. 29	0.12	67.4 "	18.9 "
	3. 30- 5. 4		64.5 "	21.3 "
	5. 5- 5. 31		93.6 "	
	6. 1- 7. 5		45.0 "	6.3 "
	7. 6- 8. 29		19.1 "	4.5 "
1964	8. 30-10. 5		15.1 "	
	10. 6-11. 9		12.0 "	

められる。

その後8月には最低の濃度になったが、8月末から再び核爆発実験がおこなわれたことにより濃度は急激に増加した。この一連の核爆発は大型のもので、12月末まで北極圏および中部太平洋においておこなわれた。それゆ

Fig. 9 Monthly concentration of ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{137}Cs and ^{90}Sr in air

え1963年にはいり核爆発実験が中止されたにもかかわらず、 ^{95}Zr - ^{95}Nb の濃度は減少しなく、しかも季節変動による増加期にはいったため、この年の5月の平均濃度は最高値にたった。その後は激減が著しく、1964年末には最高値の約1/100になり検出限界近くになったため、 ^{95}Zr - ^{95}Nb の濃度測定を打切った。

4.1.2 ^{90}Sr と ^{137}Cs の空気中濃度

^{90}Sr および ^{137}Cs の濃度変化をみると (Fig. 9, TABLE 1)， ^{95}Zr - ^{95}Nb の濃度変化とは一致していない。これは ^{90}Sr と ^{137}Cs は核分裂による生成過程、収率および半減期などが類似している。しかし ^{95}Zr - ^{95}Nb とはそれらが大きく異なるためである。

Fig. 9 からもわかるように、 ^{95}Zr - ^{95}Nb は核爆発直後に急激に増加する。それに反し ^{90}Sr , ^{137}Cs は核爆発直後には急激な増加はしない、しかし半減期が長いため長期間にわたりその影響が続きしだいに増加している。なかでも 1962 年、1963 年、1964 年の 4 月、5 月、6 月の

TABLE 2 Concentration ratio of ^{137}Cs and ^{90}Sr in dry fallout in 1962.

Date		$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$
1961	Nov.	1.3
	Dec.	1.3
1962	Jan.	1.2
	Feb.	1.2
	Mar.	1.6
	Apr.	1.1
	May	1.3
	Jun	1.8
	July	1.8
	Aug.	1.5
	Sep.	—
	Oct.	1.1
	Nov.	—
	Dec.	2.2
Average		1.5

増加は著しい。これはおもに成層圏に注入された核分裂生成物が、しだいに対流圏に移行しそれが季節変動としてあらわれたものである。

つぎに濃度を ^{95}Zr - ^{95}Nb と比較すると、そのレベルは ^{90}Sr と ^{137}Cs は同程度であるが、 ^{95}Zr - ^{95}Nb は高い時期だと約100倍ほど高いレベルである。しかし 1964 年には同オーダーとなつた。

一方 1962 年の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ の比をみると TABLE 2 にしめしたように、その値は 1.1 から 2.2 までほぼ一定の値をしめしている。その平均値は 1.5 である。核分裂による $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ の比は 1.7 と報告されている¹²²⁾。この値に非常に近い値である。これはこの試料が雨を含まない、いわゆる dry fallout であることによる。雨を含む fallout 中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ の比は 2 以上であり、その値は大きく変化している¹⁷⁾。

4.1.3 ^{131}I の空気中濃度

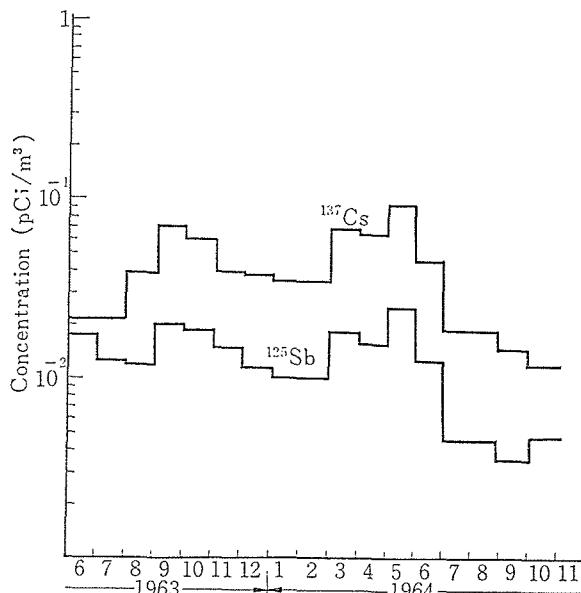
^{131}I の空気中濃度は ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{90}Sr , ^{137}Cs などと異なり連続して試料を採取してないため、月ごとの平均濃度および濃度変化をもとめることはできなかった。

^{131}I を測定したのは 1961 年 10 月 26 日と同 30 日の 2 回でそれぞれ約 4000 m³ の空気を吸引した試料についてである。この時は最も大型の核爆発実験がおこなわれたときである。

^{131}I の測定結果は TABLE 3 にしめした。1961 年 10 月末から 11 月にかけて ^{131}I の空気中濃度は 0.1 pCi/m³ のオーダーであったことは明らかである。そして TABLE 3 の値は、この期間の他核種の濃度変化からして ^{131}I 濃度の最高値に近い値であろうと推測される。その後の試料については、 ^{131}I は検出されなかつた。

TABLE 3 Concentration of ^{131}I in air.

Sampling date	Concentration of ^{131}I pCi/m ³
1961. 10. 26	0.35
1961. 10. 30	0.059

Fig. 10 Monthly concentration of ^{125}Sb and ^{137}Cs in airTABLE 4 Monthly average concentration of ^{125}Sb and ^{137}Cs in air.

Sampling date	Concentration pCi/m ³	
	^{125}Sb	^{137}Cs
1963 6. 3- 6. 30	1.8×10^{-2}	
7. 1- 7. 29	1.2 "	2.2×10^{-2}
7. 30- 9. 3	1.2 "	3.9 "
9. 4- 9. 29	2.0 "	6.9 "
9. 30-11. 4	1.9 "	5.9 "
11. 5-12. 2	1.5 "	4.0 "
12. 3- 1. 6	1.2 "	3.9 "
1964 1. 7- 3. 3	1.0 "	3.5 "
3. 4- 3. 29	1.8 "	6.7 "
3. 30- 5. 4	1.6 "	6.5 "
5. 5- 5. 31	2.5 "	9.4 "
6. 1- 7. 5	1.2 "	4.5 "
7. 6- 8. 29	4.7×10^{-3}	1.9 "
8. 30-10. 5	3.5 "	1.5 "
10. 6-11. 9	4.7 "	1.2 "

4.1.4 ^{125}Sb の空気中濃度

^{125}Sb の空気中濃度は、比較的短い半減期の $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$, ^{103}Ru および $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ が減衰し、それらの濃度が低くなった 1963 年からその存在が顕著にあらわれてきた。これは ^{125}Sb の半減期が 2.7 年と比較的長いためである。この ^{125}Sb の各月の平均濃度を Fig. 10 と TABLE 4 に、 ^{137}Cs の濃度と比較してみた。 ^{125}Sb の平均濃度としては、 $2 \times 10^{-2} \text{ pCi/m}^3$ で同時期の ^{137}Cs のそれと比較すると $1/2 \sim 1/5$ ほど低い値である。濃度変化は、 ^{137}Cs と同じ変化をしめしている。

この fallout 中の ^{125}Sb の生成であるが、生成過程に二通り考えられる。一つは核分裂によって生ずる核分裂生成核種である。しかし ^{125}Sb の核分裂収率は非常に小さく、その値は 0.02% と報告されている¹⁴⁾。 ^{137}Cs の

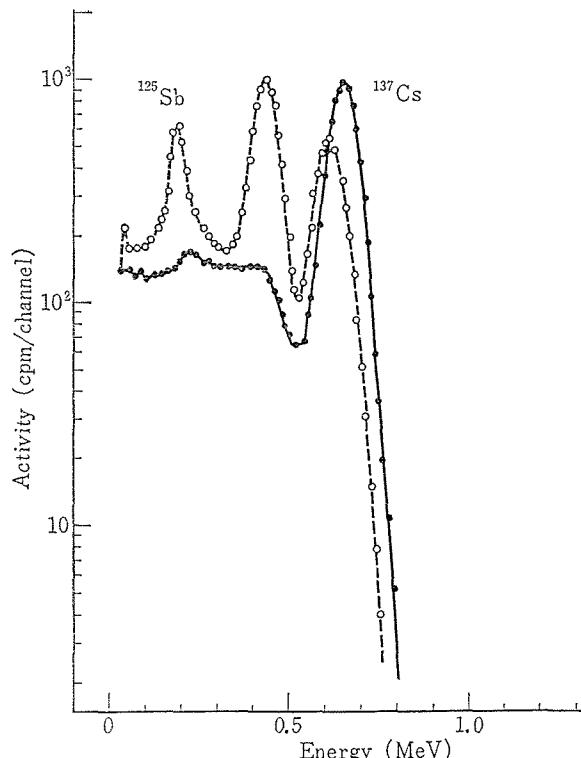
約 1/100 の収率である。

一方 ^{125}Sb は、 ^{124}Sn の中性子照射による誘導放射性核種として、すなわち $^{124}\text{Sn}(n, \gamma)^{125}\text{Sn} \rightarrow ^{125}\text{Sb}$ によっても生成する。

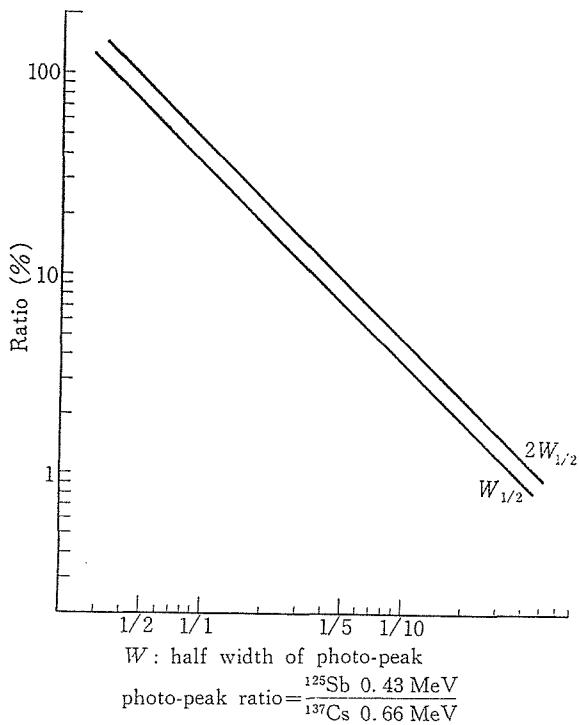
Fallout 中の ^{125}Sb は、その存在量が ^{137}Cs と同程度であることから、核分裂によるものより、誘導放射能によって生じたものが大部分であろうと推定される。

γ 線スペクトロメーターで ^{137}Cs を定量する場合この ^{125}Sb の存在により妨害をうける。とくに ^{137}Cs を化学処理せずに γ 線スペクトラルから定量する場合、 ^{137}Cs の 0.66 MeV より高いエネルギーの γ 線によるコンプトン散乱の寄与は、スペクトルを分解する際に差引かれるので問題はない。しかし ^{125}Sb のような場合は、Fig. 11 にしめすように、 ^{125}Sb の 0.62 MeV が ^{137}Cs の 0.66 MeV に重なってくる。それを補正しなければ ^{137}Cs の値は不正確になる。とくに ^{137}Cs と ^{125}Sb の存在量が接近しているときははなはだしい。

^{125}Sb の 0.62 MeV が ^{137}Cs の 0.66 MeV のホトピークにどの位寄与するかをしめしたのが Fig. 12 である。実際に 1963 年から 1964 年の間での ^{125}Sb の ^{137}Cs にたいする過大評価分をみると最小 31% から最大 59% となる。これと全く同じことが $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ の場合も考慮しなければならない。

Fig. 11 Gamma-ray spectra of ^{125}Sb and ^{137}Cs 4.2 Fallout の γ 線エネルギー分布と時間変化

核分裂生成物の放射性核種の時間的变化は実験的、理論的にかなりよく知られている¹⁵⁾¹⁶⁾¹⁸⁾。しかしながら核

Fig. 12 Contribution to ^{137}Cs of ^{125}Sb

爆発実験による fallout については、単一の核分裂による核種の時間的変化とはかならずしも一致しない。それは、fallout の場合は単一な核分裂でなく、核分裂の時間が異なり、また核分裂生成物の大気中における拡散そのほか気象条件など種々の要素がはいってくるためである。とくに核分裂したときの時間が異なることは、古い核分裂生成物と新しい核分裂生成物とが混合してくるため、単一の核分裂による核種の時間的変化とは明らかに異なってくる。しかし、fallout が単一の核分裂と同じか、もしくはそれに非常に近い条件のものであるならば、それらと単一の核分裂による核種の割合とその時間変化とを比較検討することができる。その一つの方法として fallout の γ 線エネルギー分が実際にどのようなものか、またそれが経過時間によってどのように変化するかを、各月の測定した γ 線スペクトルよりもとめた。

4.2.1 γ 線エネルギー分布の時間変化とエネルギーの比率

各月ごとの空気中塵埃の γ 線スペクトルは、その代表的なものを Fig. 13 にしめした。NaI は入射エネルギーによって、その特性が異なるため、その補正をして測定したスペクトルから、各エネルギーの占める割合 (E_i) を次式によってもとめた。

$$E_i = n_j \sigma_j / \sum_{i=1}^n n_i \sigma_i \quad (9)$$

n_i, n_j : フォトピーク計数率

σ_i, σ_j : フォトピーク効率の補正係数

この各エネルギーの占める割合を、1961年9月から1962年8月までのものについて図示したのが Fig. 14 である。1961年9月1日を時間0 (T_0) にとり、各試料の

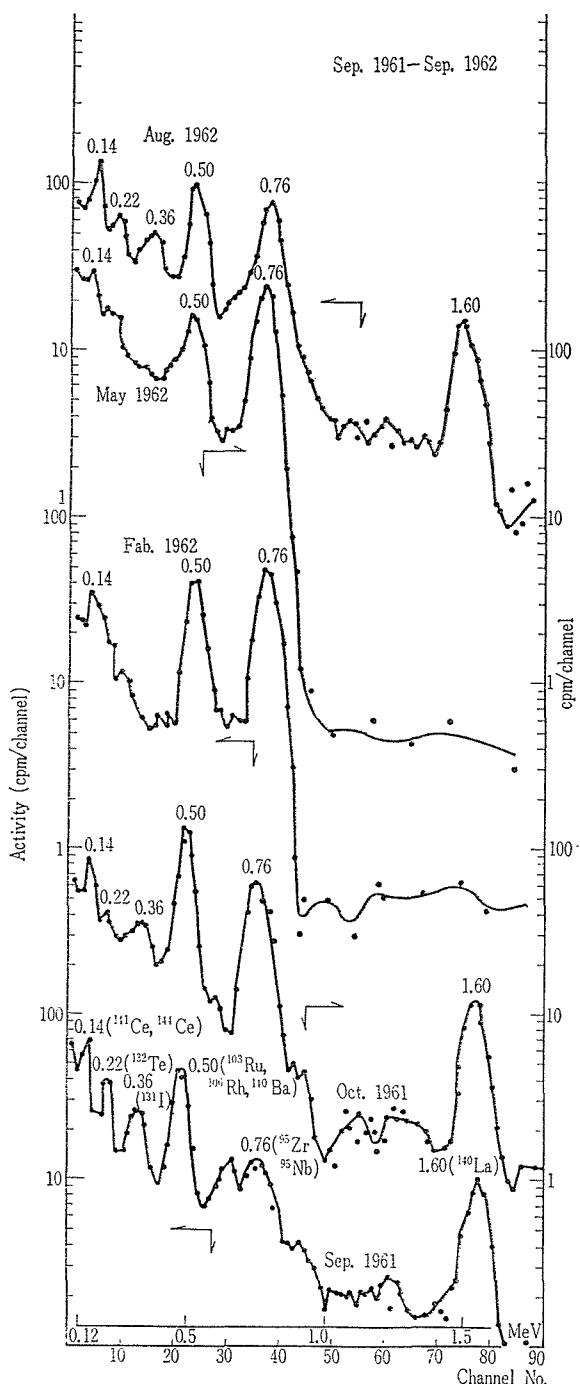


Fig. 13 Gamma-ray spectra of fallout

測定日までをその試料の経過時間 (T) としてしめした。1961年9月1日を時間0にとったのは、9月1日以前の fallout の γ 線スペクトルが、バックグラウンドレベルに近く、また核爆発実験が再開された最初の核爆発が、9月上旬におこなわれたことによる。

Fig. 14において、No. 5 の試料は採取直後に測定したのち、1カ月間放置し No. 6 の試料と同じ日に測定した。すなわち試料の採取時期が異なり、経過時間が等しい場合である。この両者の各エネルギーの占める割合は、まったく等しくなっている。このことは、この時期の fallout 中の核種の割合とその時間的変化は、経過時間にのみ依存していたといえる。

さらに、これらの各エネルギーの占める割合を経過時

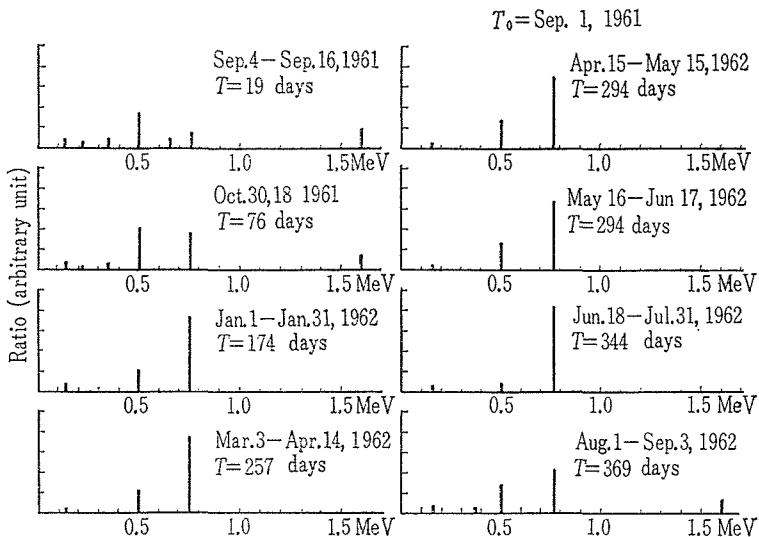
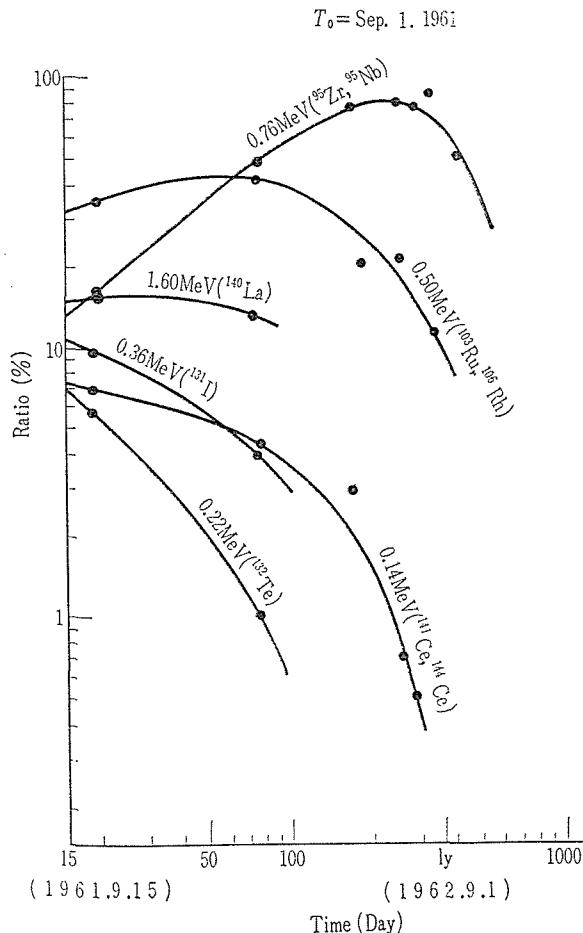


Fig. 14 Gamma energy distribution of fallout

Fig. 15 Energy ratio to γ total activities of fallout

間に對してプロットすると Fig. 15 のようにいずれも HUNTER and BALLOU の時間的変化と同じ曲線となってい。たとえば、大きな割合を占めている、 0.50 MeV と 0.76 MeV の時間的変化は 60 日前後から圧倒的に 0.76 MeV が大きくなっている。しかしこれらの曲線にのるのは、1962年7月までの fallout で、8月以降のものは新しい核分裂生成物の混入により、いずれも曲線にのらなくなっている。

これらのことから少なくとも、1961年10月から1962年7月までの fallout は、単一の核分裂の場合と非常に近い状態であったといえる。これは1961年9月から11月にかけて非常に短い期間内に核爆発が集中しておこなわれたことと、とくにその中で大型の核爆発があったことによる。すなわち、経過時間に対して、核爆時の時間的な差を無視しうるということである。それゆえこの期間内の fallout については HUNTER and BALLOU の表などを適用してもさしつかえない。

つぎに1964年9月までの、各月ごとの各エネルギーの占める割合を、TABLE 5 にしめた。これはまた、そのエネルギーに対応する核種の占める割合でもある。この表からもわかるとおり、1963年までは、 0.76 MeV (^{95}Zr - ^{95}Nb) の占める割合が圧倒的に大きく、50% から90% 近くを占めている。1964年になると、この ^{95}Zr - ^{95}Nb の割合は急激に減少し、 0.66 MeV (^{137}Cs) の占める割合が大きくなっている。この両者の傾向は、単一の核分裂による核分裂生成物の時間的変化と一致している。

4.2.2 平均 γ 線エネルギー

核分裂生成物の平均 γ 線エネルギーについては計算がなされているが¹⁹⁾、厳密には核分裂後の経過時間によって多少異なってくる。

ここでは、実際に各月の試料を測定した γ 線エネルギースペクトルからもとめた各エネルギーのフォトピーク計数率より、fallout の平均 γ 線エネルギー (\bar{E}_γ) を次式によってもとめた。

$$\bar{E}_\gamma = \sum_{i=1}^n E_i n_i \sigma_i / \sum_{i=1}^n n_i \sigma_i (\text{MeV}) \quad (10)$$

E_i : 単一の γ 線エネルギー (MeV)

n_i : フォトピーク計数率

σ_i : フォトピーク効率の補正係数

このようにしてもとめた1961年10月から、毎月の fallout の平均 γ 線エネルギーを、TABLE 6 にしめた。

TABLE 5 Gamma energy ratio for total gamma activity of fallout.

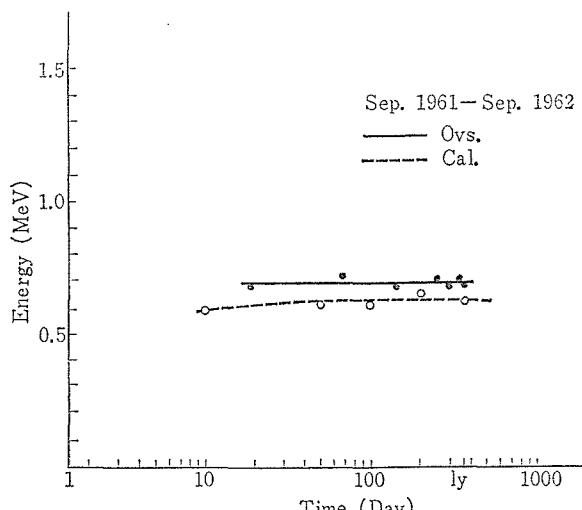
Date	Energy (MeV)	Energy ratio (%)				
		0.14	0.50	0.76	1.60	Others
Nuclides	^{141}Ce , ^{144}Ce	^{103}Ru , ^{106}Rh	^{95}Zr , + ^{95}Nb	^{140}La	^{132}Te , ^{131}Te etc	
1961	Oct.	4	41	37	13	
	Nov.-Dec.	3	23	75		
1962	Jan.-Feb.	4	12	82		
	Mar.	2	10	88		
	Apr.	4	22	75		
	May	1	24	75		
	Jun-Jul.	4	10	86		
	Aug.	8	26	45	13	9
	Sep.	6	19	74	2	
	Oct.	4	22	62	10	1
	Nov.	5	25	58	11	2
	Dec.	6	24	60	11	1
1963	Jan.	5	24	64	7	
	Feb.	4	18	76		
	Mar.	5	15	80		
	Apr.	3	10	88		
	May	4	12	85		
	Jun	4	12	84		
	Jul.	4	12	85		
	Aug.	6	9	85		
	Sep.	6	12	82	0.66	
	Oct.	8	13	80	^{137}Cs	
	Nov.	9	12	63	15	
	Dec.	9	19	53	20	
1964	Jan.-Feb.	10	15	51	23	
	Mar.	15	21	37	28	
	Apr.	12	23	32	33	
	May	13	23	31	33	
	Jun	13	22	27	38	
	Jul.-Aug.	11	27	22	39	
	Sep.	13	31	18	38	

そして Fig. 16 には 1961 年 9 月 1 日を時間 0 とした経過時間に対応させ、また HUNTER and BALLOU の表から計算によってもとめた平均 γ 線エネルギーとともにしめした。この図および表からわかるように、fallout の平均 γ 線エネルギーは、 γ 線エネルギー分布が異なっても変化なく、ほぼ一定の値であり、平均値として 0.68 MeV である。しかし、1964 年の各月の値はそれ以前の値より全体に低くなっている。これは 1963 年まで大きな割合を占めていた 0.76 MeV (^{95}Zr - ^{95}Nb) が減少し、それに対して 0.66 MeV (^{137}Cs) の割合が大きくなってしまっても、0.14 MeV (^{141}Ce , ^{144}Ce) および 0.50 MeV (^{103}Ru , ^{106}Rh) のしめる割合が、減少していないため、平均エネルギーとしては低い値に傾いている。

一方 fallout の平均 γ 線エネルギーと、HUNTER and BALLOU の表から計算した平均エネルギーと比較すると、計算値はその経過時間におけるすべての核種からの γ 線についての平均エネルギーである。そして計算値の平均

TABLE 6 Average gamma energy of fallout.

Sampling date	Average γ energy (MeV)	Sampling date	Average γ energy (MeV)
1961 Sep.	0.68	1963 May	0.71
Oct.	0.70	Jun.	0.70
Nov.-Dec.	0.69	Jul.	0.71
1962 Jan.-Feb.	0.72	Aug.	0.70
Mar.	0.71	Sep.	0.69
Apr.	0.69	Oct.	0.69
May	0.69	Nov.	0.65
Jun.-Jul.	0.71	Dec.	0.64
Aug.	0.69	1964 Jan.-Feb.	0.63
Sep.	0.69	Mar.	0.59
Oct.	0.75	Apr.	0.60
Nov.	0.74	May	0.60
Dec.	0.75	Jun.	0.60
1963 Jan.	0.73	Jul.-Ang.	0.59
Feb.	0.69	Sep.	0.57
Mar.	0.69		
Apr.	0.72	Mean	0.68

Fig. 16 Average γ energy of fallout

エネルギーは、fallout の値より全体に低い。これは測定ではカットされてしまうような、数十 keV 以下の低い γ 線をも、計算値ではすべてその中に含まれているためである。

一般に核分裂生成物の平均 γ 線エネルギーは 0.7 MeV の値が多く用いられているが、経過時間によって値が変り、とくに核分裂後 2 年以上経過したもののが平均エネルギーは 0.6 MeV の値を用いるのが妥当と思われる。

4.3 土壤中の fallout の蓄積量

土壤中の fallout の 1963 年から 1965 年の間の蓄積量を TABLE 7 にしめした。その値は原研構内を含めて、東海村周辺の 26 地点の値の平均値である。この 26 地点は地質も異なり、一部畠地もあるが大部分未耕地の荒地である。この各地点の値はかなりばらついていたが、そ

TABLE 7 Accumulation of fallout on the surface in various years.

	Accumulation mCi/km ²			
	⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	¹³⁷ Cs	⁵⁴ Mn	¹²⁵ Sb
1963	127	32.2	—	—
1964	34.9	45.1	—	—
1965	12.7	39.5	5.1	7.6

これは地上に蓄積された fallout が主に雨によって移動集散がおこなわれるからであろう。しかし 26 地点の平均値は、その時期の蓄積量を代表しているとみてさしつかえないと思う。

核種別に蓄積量の変化をみると、⁹⁵Zr-⁹⁵Nb は 1963 年の値が著しく高く、その半年後には約 1/10 近く減少している。この減少は主に⁹⁵Zr-⁹⁵Nb の物理的半減期(65 日)によるものである。

5. Fallout からの被曝線量の評価

5.1 地表面からの線量

地表面に蓄積された fallout からの線量は、地上で測定器でもって測定して、fallout からのみの線量を評価することはかなりむずかしい。それは同時に地中から出る自然放射線からの線量とを区別しなければならないからである。しかし土壤に蓄積されている放射性核種の蓄積量がわかれば、地上における線量を計算することができる。

すなわち、放射性核種が無限平面に均一に分布した場合の地上 1 m における線量率は次式でもとめられる。

$$\frac{dD_j}{dt} = K_j \cdot B_j \cdot F_{a^j}(t) \quad (11)$$

$\frac{dD_j}{dt}$: mrad/y で表わされる線量率

K_j : 1 次放射線からの線量率 (mrad/y/mCi/km²)

B_j : 線量 build-up 係数

F_{a^j} : 核種の蓄積量 (mCi/km²)

ここで、 $K_j \cdot B_j$ の値であるが、この値は GUSTAFSON ら他に二、三の数値が報告されている²⁰⁾。ここでは、これらの値を国連科学委員会で吟味して、suggested value として報告されている値を用いた。その値は次のとおりである。

$K_j \times B_j$ in mrad/y per mCi/km²

⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	0.15
¹³⁷ Cs	0.12
⁵⁴ Mn	0.16
¹²⁵ Sb	0.06

1963 年から 1965 年までの fallout の蓄積量から上式を用いて外部線量をもとめた。その値を TABLE 8 にしました。これをみると、1963 年の値は⁹⁵Zr-⁹⁵Nb の蓄積量が大きいため、線量は非常に高く、22.8 mrad/y の値は、関東ローム層における自然放射線からの外部線量 30 mrad/y²¹⁾ と同程度の値である。それゆえ 1963 年の全線量は自然放射線量の約 2 倍の線量であった。その後

TABLE 8 External dose from fallout on the surface.

Year	External dose mrad/y				
	⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	¹³⁷ Cs	⁵⁴ Mn	¹²⁵ Sb	Total
1963	18.6	4.2	—	—	22.8
1964	4.7	5.4	—	—	10.1
1965	1.9	4.7	0.8	0.5	7.9

は急激に減少しているが、それでも自然放射線量の約 30% に相当する線量が fallout の線量として寄与している。

5.2 呼吸による体内蓄積量と被曝線量

5.2.1 ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs の呼吸による体内蓄積量

空気中塵埃の fallout 核種の平均濃度は、その期間、その濃度の空気を連續して呼吸したことであり、それによって放射性核種が人体内にとりこまれる。その体内に蓄積された量を、空気中濃度から計算によってもとめた。

計算式は、体内に摂取された放射性核種の排泄が指數函数であるとした。これは ICRP 専門委員会 II の報告²²⁾にこのモデルを用いて計算している。また計算に用いた常数もまた、ICRP 専門委員会 II に採用されている値をもちいた。

体内的放射性核種の排泄が指數函数であり、ある時間放射性核種を一定濃度で連續摂取した場合の体内蓄積量(Q_0) は次式によってもとめられる。

$$Q_0 = \frac{C \cdot f_a \cdot K}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (12)$$

ここで

C : 空気中濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)

f_a : 呼吸による RI の関連臓器に達する割合

K : 空気 1 日の呼吸量 ($2 \times 10^7 \text{ cm}^3/\text{day/person}$)

λ : 有効崩壊定数 $0.693/T_{\text{eff}}$

T_{eff} : 有効半減期 (day), $T_\gamma T_b / T_\gamma + T_b$

T_γ : 物理的半減期 (day)

T_b : 生物学的半減期 (day)

t : RI の摂取期間 (day)

(今後はすべてこの記号を用いる。)

また放射性核種の空気中濃度が、連続変化している場合のある時間における体内蓄積量 (Q_t) は (12) 式より次式があたえられる。

$$Q_t = \sum_{i=1}^n \frac{C_i \cdot f_a \cdot K}{\lambda} (1 - e^{-\lambda(t_{i+1}-t_i)}) e^{-\lambda(t-t_{i+1})} \quad (13)$$

$$t_{n+1} \leq t$$

^{90}Sr , ^{137}Cs の呼吸による体内蓄積量は (13) 式により 4.1.2 にしめした ^{90}Sr , ^{137}Cs の各月の平均濃度から計算した。

ここで f_a 値に関連する、呼吸によって RI (粒子状) が肺に達する割合であるが、これは ICRP 専門委員会 II の報告にしめされている。その後この問題は、ICRP Task Group on Lung Dynamics によって検討され、呼吸によって肺に達する割合は粒子の粒度分布の関数としてあたえられなければならないとしている²³⁾。しかしこれに適用できる具体的な値がないため、ここでは ICRP 専門委員にしめされている値を用いた。その値は TABLE 9 にしめした。

TABLE 9 Particulates in respiratory tract of the standard man.*

Distribution	Readily soluble compounds (%)	Other compounds (%)
Exhaled	25	25
Deposited in upper respiratory passage and subsequently Swallowed	50	50
Deposited in the lung (lower respiratory passages)	25 (this is taken up to the body)	25**

* This table is from report of ICRP committee II.

** Of this, half is eliminated from the lungs and swallowed in the first 24 hrs, making a total of 62.5 per cent swallowed. The remaining 12.5 per cent is retained in the lungs with a half-life of 120 days, it being assumed that this portion is taken up into body fluids.

^{90}Sr と ^{137}Cs は溶性であるため、呼吸したもののが 25% が肺に沈着し、50% は消化管に移行し、25% は呼気とともに排出されるとした。

また ^{90}Sr については、関連臓器としては骨と全身について計算し、 ^{137}Cs は全身を関連臓器として計算した。それらについての常数は次の値をもちいた。

^{90}Sr について

$f_a = 0.4$ (全身), 0.12 (骨)

有効半減期 $T_{\text{eff}} = 5,700$ 日 (全身), 6,400 日 (骨)

空気 24 時間の 1 人当たり呼吸量 $K = 2 \times 10^7 \text{ cm}^3$

^{137}Cs について

$f_a = 0.75$ (全身)

有効半減期 $T_{\text{eff}} = 70$ 日

TABLE 10 Body burden of ^{137}Cs and ^{90}Sr by inhalation at November 1964.

	Body burden (pCi)	
	^{137}Cs	^{90}Sr
Total body	40	(11.8 nCi Human counter)
Bone		20

また (13) 式の t の値すなわち ^{90}Sr と ^{137}Cs の摂取期間は、1961 年 9 月から 1964 年 12 月までである。それゆえ Q_t 値は 1964 年 12 月の値である。その計算の結果を TABLE 10 にしめした。参考までにヒューマンカウンタの測定値 (^{137}Cs のみ) をもしめした。表からもわかるように 1964 年 12 月の ^{90}Sr と ^{137}Cs の呼吸による体内蓄積量は 20 pCi および、40 pCi である。

5.2.2 $^{95}\text{Zr-95Nb}$ の呼吸による体内蓄積量と被曝線量

$^{95}\text{Zr-95Nb}$ は、 ^{90}Sr および ^{137}Cs とことなり不溶性であるため、体内への蓄積は吸のみである。この $^{95}\text{Zr-95Nb}$ の空気中濃度から、呼吸による肺への蓄積量は、 ^{90}Sr と ^{137}Cs と同様に (13) 式で計算した。ただ ^{90}Sr と ^{137}Cs と異なるのは f_a 値である。それは TABLE 9 にしめしてある値の不溶性粒子の値を用いた。すなわち呼吸によって体内にはいる割合の 75% は溶性の場合と同じであるが、その中の 12.5% が肺に沈着し、残りの 62.5% は 24 時間以内に消化管に移行する。それゆえ、 $^{95}\text{Zr-95Nb}$ は、 $f_a = 0.125$ 、有効半減期 $T_{\text{eff}} = 42.2$ 日、空気 1 日の摂取量 $K = 2 \times 10^7 \text{ cm}^3/\text{day}$ の値を用いて計算した。

その結果、1964 年末における $^{95}\text{Zr-95Nb}$ の肺への蓄積量は TABLE 11 にしめすように 470 pCi である。一方同じ頃の全身カウンタによる肺の測定結果は、700 pCi で

TABLE 11 Lung burden of $^{95}\text{Zr-95Nb}$ by inhalation at April 1963.

	Lung burden of $^{95}\text{Zr-95Nb}$ (nCi)
Estimation	0.47
Human counter	0.7

ある。この全身カウンタによる測定結果は、測定者数が少ないとこと、検出限界近いところであるため、多少幅があると思われる。しかし、空気中濃度から計算によつてもとめた蓄積量と同じオーダーである。

この $^{95}\text{Zr-95Nb}$ の肺への蓄積により肺に与えた線量を計算した。それは (13) 式を時間積分することによりその時間内の蓄積線量 (R_t) がもとめられる。

すなわち

$$R_t = \sum_{i=1}^n F \left\{ \int_{t_i}^{t_{i+1}} \frac{C_i \cdot f_a \cdot K}{\lambda} (1 - e^{-\lambda(t-t_i)}) dt + \int_{t_{i+1}}^t \frac{C_i \cdot f_a \cdot K}{\lambda} (1 - e^{-\lambda(t_{i+1}-t_i)}) e^{-\lambda(t-t_{i+1})} dt \right\} \quad (14)$$

これは

$$R_t = \sum_{i=1}^n F \left\{ \frac{C_i \cdot f_a \cdot K}{\lambda} \left[(t_{i+1} - t_i) - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda(t_{i+1} - t_i)}) \right] + \frac{C_i \cdot f_a \cdot K}{\lambda^2} (1 - e^{-\lambda(t_{i+1} - t_i)})(1 - e^{-\lambda(t - t_{i+1})}) \right\} \quad (15)$$

F は rem への換算係数で次式による。

$$F = \frac{3.6 \times 10^4 \times t \times 1.6 \times 10^{-6} E_i (\text{RBE})_i n_i}{100 m} \quad (16)$$

m : 決定臓器の質量 (g)

$E_i (\text{RBE})_i n_i$: i 原子 1 崩壊に相当する有効エネルギー (MeV)

この肺の質量 m は ICRP にしめされている標準人の値を、また有効エネルギーも ICRP の次の値を用いた。

$$m = 1,000 \text{ (g)}$$

$$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb} \text{ の } E(\text{RBE})n = 0.52 \text{ (MeV)}$$

ここで m の値に肺の総重量を用いることは、必ずしも適当ではないかもしれないが、実際に肺における RI の沈着機構が明らかでないため肺の総重量を用いた。

以上の値を用いて (15) (16) 式によって、1961 年 10 月より 1964 年 4 月までの $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ の呼吸による肺への蓄積線量をもとめた。その結果 TABLE 12 にしめしたように、その期間に肺に与えた線量は、6.4 mrem であり、年平均約 3 mrem/y である。

TABLE 12 Estimated dose of lung and GI by inhalation of $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ from 1961 to 1964.

Organ	Accumulated dose	Dose rate
Lung	6.4 mrem	3.2 mrem/y
GI (LLI)	0.95 mrem	0.3 mrem/y

一方、前述したように、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ が肺に沈着するのは、呼吸したもののは 12.5% であり、62.5% は 24 時間以内に消化管に移行する。それゆえ消化管への被曝ももとめた。消化管への被曝は、もっとも滞留時間の長い大腸下部を決定臓器とし、それに与えた線量 (R_g) を次式によつてもとめた。

$$R_g = \sum_{i=1}^n C_i \cdot f_a \cdot K \frac{3.7 \times 10^4 \times 18 \times 3600 \times 1.6 \times 10^6 \varepsilon_i}{2 \times 100 m} (t_i - t_{i+1}) \quad (17)$$

ここで ε_i は大腸下部に対する $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ の有効エネルギーである。

また、

$$f_a = 0.625$$

$$m = 150 \text{ (g)}$$

$$\varepsilon_i = 0.43 \text{ (MeV)}$$

の値を用い、また大腸下部の滞留時間は 18 時間とした。

その結果は、肺への線量と同じく TABLE 12 にしめしたが、1961 年 10 月より 1964 年 4 月までの大腸下部に与えた線量は 0.95 mrem である。これを肺の線量と比較すると、消化管に対しては、とりこむ量は大きいが蓄積効果がないため線量としては、はるかに小さい値である。

5.2.3 食物摂取との比較

今まで呼吸による放射性核種の体内蓄積量および被曝線量をもとめた。それと食物摂取によるものと比較した。食物摂取による放射性核種の摂取量および体内蓄積量は、藤田らがおこなった 2 日常食中の ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ を分析した値²⁴⁾ からもとめた。その値から食物による核種の 1 人あたり 1 日の摂取量をもとめ、呼吸による摂取量とをそれぞれの核種について時間変化として Fig. 17, 18, 19 にそれぞれしめた。

その図でみると、 ^{90}Sr と ^{137}Cs については両者の摂取量は、食物によるものが 2 衡程度大きい。しかし $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ は、両者の差はあまりなく、同程度の摂取量である。

この摂取量の差はそのまま体内蓄積量の差とは必ずしも一致しない。それは食物によってとりこまれる核種が、決定臓器にたいする割合、 f_w 値と、呼吸によるそれ f_a 値とが異なるためである。この 3 核種についての f_a と f_w の値を TABLE 13 にしめた。この値を用いて、

TABLE 13 Comparison of f_a and f_w *

Nuclides	Organ	f_a	f_w
^{137}Cs	Total body	0.75	1.0
^{90}Sr	Total body	0.4	0.3
	Bone	0.12	0.09
$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$	Lung	0.125	
	GI	0.625	

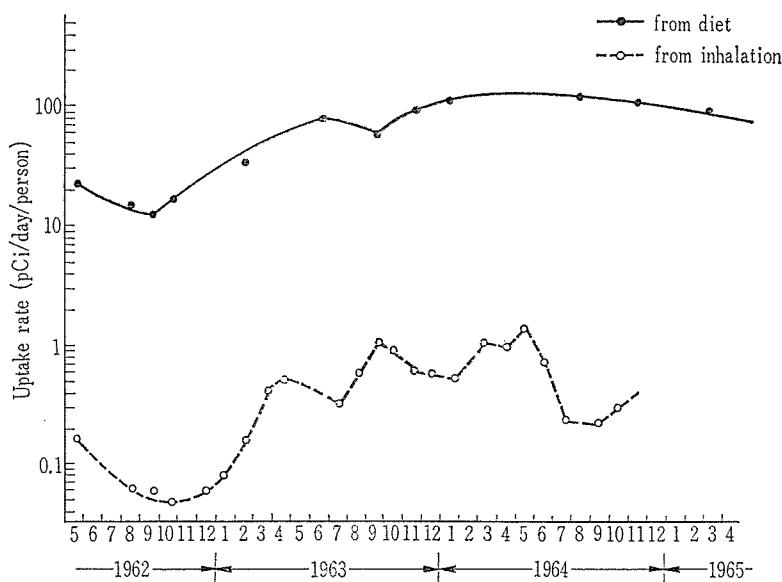
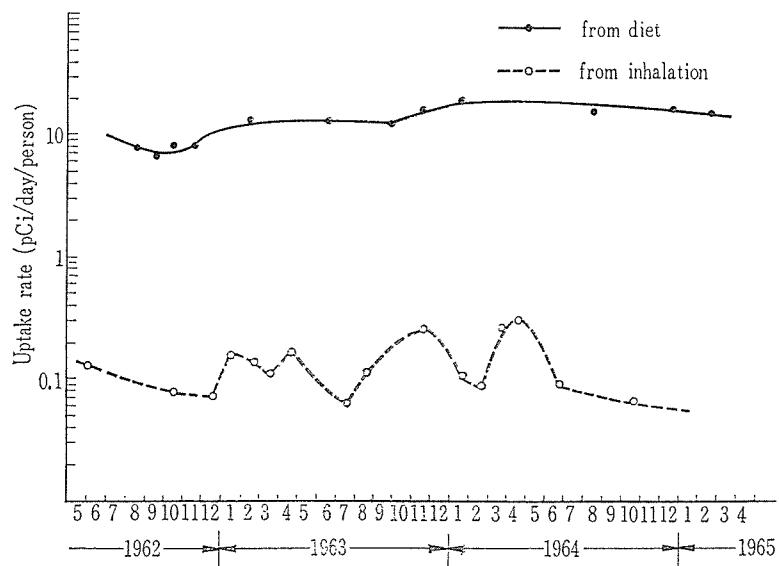
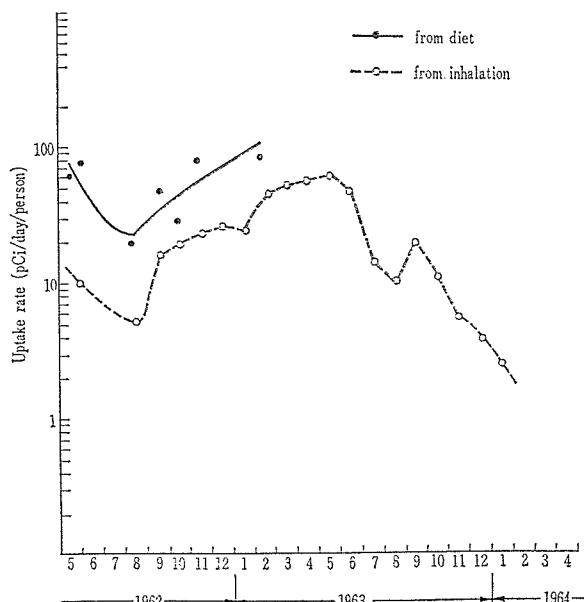
* from report of ICRP Committee II.

TABLE 14 Comparison of body burden by ingestion and inhalation.

Body burden and dose		
^{137}Cs (total body)		
Inhalation		0.04 nCi
Human counter		11.8 nCi
^{90}Sr (bone)		
Inhalation		20 pCi
Ingestion		930 pCi
Bone analyses		680 pCi (NIRS)
$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Zr}$ (lung)		
Inhalation		0.47 nCi
Human counter		0.7 nCi
Dose		
Lung		6.4 mrem
GI		0.95 mrem

5.2 にのべたそれぞれの計算式によって食物からの体内蓄積量をもとめ、両者の値を比較すると TABLE 14 にしめた値となる。 ^{137}Cs についてみると、呼吸による体内蓄積量は 40 pCi である。 ^{137}Cs は、 f_a , f_w の差がほとんどないので、体内蓄積量は摂取量の差がそのまま差となる。ヒューマンカウンタの値（非職業人 12 名についての平均値）をみると 11.8 nCi でこれと比較すると約 1/1000 であるため、 ^{137}Cs については呼吸による寄与は無視できるほど小さい。

^{90}Sr については、1961 年から 1964 年の間の呼吸によ

Fig. 17 Uptake rate by ingestion and inhalation of ^{137}Cs Fig. 18 Uptake rate by ingestion and inhalation of ^{90}Sr Fig. 19 Uptake rate by ingestion and inhalation of $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$

る蓄積量が 20 pCi で、食物からの蓄積量は、食物中の ^{90}Sr の全平均濃度から計算した値で 930 pCi となる。一方骨の中の ^{90}Sr 実測値で 25 歳以上の成人の平均値が 0.68 S.U. (1964 年) を用い²⁵⁾、骨の Ca 含有量を 1000 g として計算すると、 ^{90}Sr の体内蓄積量は 680 pCi となる。これらの値を比較すると、呼吸による寄与は数十分の一程度であり、 ^{137}Cs に比べてその程度は大きく、 ^{137}Cs のように一概には無視することはできないであろう。

$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ については、呼吸によって消化管にはいる摂取量は食物からのそれの約 1/2 であり、これは呼吸か

らの寄与を無視することはできない。 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ は前述したように不溶性であるため体内への沈着は肺のみで、その蓄積量は 470 pCi である。線量で比較すると、消化管に対する線量は呼吸によるものと、食物からのとを合せても、呼吸によって肺に与える線量よりはるかに小さい。

このように、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ で代表されるような放射性核種について、食物摂取と同時に呼吸による寄与を十分に考慮する必要がある。

6. む す び

1961 年後半から 1964 年までの fallout の影響はいちじるしく、なかでも、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs の空気中濃度および地上蓄積量の増加は顕著であった。それゆえいわゆるバックグラウンドレベルの変化は、はげしかった。

この期間の fallout による核種の空気中濃度の時間的变化は、核爆発実験がおこなわれた回数が多いにもかかわらず、単一の核分裂による核分裂生成物に近い変化をしめしていたことは、この期間の fallout の特徴である。

一方これらの放射性核種の空気中濃度および地上蓄積量から、人体に与えた線量はいずれも大きく、とくに 1963 年の地上蓄積からの外部線量は、天然の放射線による線量と同レベルまでにたった。また、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$

の呼吸によって肺に与えた線量は年平均 3 mrem/y の値である。

現在では、核爆発実験の中止にともない一部小規模な実験がおこなわれているが、全体の傾向としては、fallout の降下量は減少しており、定常状態に近くなっている。それゆえこの 1961 年より 1964 年までの fallout による線量は、いずれも、将来何らかの形で国民線量を推定する時に加算されなければならないものと考える。

終りに、試料の採取などで協力していただいた片桐浩および旧野外管理班の諸氏に厚くお礼を申しあげるとともに、ヒューマンカウンタの測定をしていただいた大谷暁氏に感謝する。

参 考 文 献

- 1) United Nations: Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, No. 17 (A/3838), New York (1958)
- 2) United Nations: Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, No. 16 (A/5216), New York (1962)
- 3) United Nations: Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, No. 14 (A/5814), New York (1964)
- 4) United Nations: Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, No. 14 (A/6314), New York (1966)
- 5) National Institute of Radiological Sciences: Radioactivity Survey Data in Japan, No. 1~No. 12, Chiba, Japan (1963~1966)
- 6) 笠井 審, 石原豊秀: JAERI 5003, 188 (1961)
- 7) 森内 茂, 笠井 審: JAERI 5002, 253 (1960)
- 8) R. L. HEATH, et al.: The Calculation of Gamma-Ray Shapes for Sodium Iodide Scintillation Spectrometers, IDO-17017 (1965)
- 9) 今井和彦: JAERI-memo 2723 (1967)
- 10) S. KINSMAN, et al.: "Radiological Health Handbook", U. S. Department of Health, Education, and Welfare (1960)
- 11) I. A. E. A.: Joint WHO/FAO Expert Committee on Radiochemical Methods of Analysis (1958)
- 12) 放射能測定部会: 放射性ストロンチウム, セシウム137分析法, 科学技術庁 (1963)
- 13) M. B. LEBOEUF: Analysis of Vegetation for I-131, HW-15743 (1950)
- 14) HELGE BERGH: A Method for the Determination of Very Small Amounts of I-131 in Biological Materials, Especially in Milk, A/conf. 15/p. 586 (1958)
- 15) S. KATOCOFF: Nucleonics, 18 (No. 11), 201 (1960)
- 16) H. F. HUNTER, and N. E. BALLOU: Nucleonics, 9 (No. 11), C-2 (1951)
- 17) 科学技術庁: 第2回放射能調査研究成果発表会論文抄録集, p. 16 (1960)
- 18) D. H. PERISON: Brit. J. Appl. Phys., 6, 444 (1955)
- 19) NAOMI A. HALLDEN: U.N. Document, A/AC, 82/INF. 1 (1956)
- 20) P. F. GUSTAFSON: Assesment of the Radiation Dose due to Fallaut, Radiology, 75, 282 (1960)
- 21) T. DOKE, et al.: External Gamma Dose Rate from Naturally Occuring Radio-nuclides in Japan (1960)
- 22) I. C. R. P.: Report of ICRP Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, J. Health Physics, 3 (1960)
- 23) ICRP: Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry of the Human Respiratory Tract, J. Health Physics, 12, 173 (1966)
- 24) M. FUJITA et al.: Fallout Radioactivity in Excreta and Diet, JAERI 1057 (1964)
- 25) NIRS: Radioactivity Survey Data in Japan, No. 3 (1964)

JAERI 1156 正誤表

ページ	行	誤	正
3	右, 上から 6	$\frac{a_2}{a_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1}$	$\frac{a_2}{a_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$
14	右, 上から 10	蓄積は吸のみ	蓄積は肺のみ
15	右, 上から 5	2 日常食	日常食