

分置

公開資料

PNC TN8410 89-049

# 安全管理部研究開発成果外部発表要旨

(昭和63年度下期)

1989年4月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

計画管理部技術情報室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Information Service

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo, Japan

## 安全管理部研究開発成果外部発表要旨 (昭和 63 年度下期)

石 黒 秀 治\*

### 要 旨

安全管理部の研究開発に係る業務は、必要に応じ日本保健物理学会や日本原子力学会の研究発表会及びその他の機会をとらえ随時発表している。

本報告書は、昭和63年度の安全管理部内の技術開発推進委員会の企画として、昭和63年度上期に引き続き、下期に外部発表した7編の発表要旨をまとめたものである。今回の発表の場としては、日本原子力学会「1988年秋の大会」、IAEA/RCA Regional Workshop on Personnel and Environmental Intercomparison Study 等である。

本報告書が、発表の記録としてではなく、研究開発に従事している関係職員の業務遂行上の一助となることを期待するものである。

---

\* 安全管理部技術開発推進委員会委員長（放射線管理第二課長）

# 目 次

外部発表一覧 .....	1
1. 核燃料施設における中性子線量測定法の検討 (I)	
アルベド型 TLD 個人線量計の中性子エネルギー 応答関数の評価 .....	2
2. 核燃料施設における中性子線量測定法の検討 (II)	
作業環境の中性子エネルギー スペクトルと TLD による線量測定法について .....	9
3. 電気化学エッチング CR-39 の中性子エネルギー レスポンスの評価 .....	15
4. Personnel Radiation Monitoring in Japan	
- Personnel Dosimeter and Its Quality Assurance - .....	23
5. 環境中でのトリチウムの動態について .....	37
6. 環境におけるヨウ素の移行に関する研究 .....	46
7. Environmental Radioactivity around Tokai-Works	
after the Reactor Accident at Chernobyl .....	52

## 外部発表一覧

・日本原子力学会「1988年秋の大会」(S 63.10.8～10.10, 神戸商船大学)

No	タ イ ト ル	発表日	発表者	所 属	共同発表者
1	核燃料施設における中性子線量測定法(I) アルベド型TLD個人線量計の中性子エネルギー応答関数の評価	10.9	岩井 敏*	安対課	百瀬, 宮部, 大和, 林津*
2	核燃料施設における中性子線量測定法(II) 作業環境の中性子エネルギースペクトルとTLDによる線量測定法	10.9	百瀬 琢磨	安対課	宮部, 大和, 岩井*, 林津*
3	電気化学エッチングCR-39の中性子エネルギーレスポンスの評価	10.9	二之宮和重	安対課	大和

\*三菱原子力工業㈱

・IAEA/RCA Regional Workshop on Personnel and Environmental Intercomparison Study  
(S 63.10.17～10.21, 日本原子力研究所 東海研究所)

4	Personnel Radiation Monitoring in Japan -Personnel Dosimeter and Its Quality Assurance-	10.17	二之宮和重	安対課	
---	--	-------	-------	-----	--

・環境放射能調査研究成果報告会(S 63.11.30, 放射線医学総合研究所)  
・文部省エネルギー特別研究(核融合)研究成果報告会(H 1.1.24～1.25, 神田・学士会館)

5	環境中でのトリチウムの動態について	11.30 1.24	住谷 秀一 片桐 裕実	環安課	渡辺, 成田
---	-------------------	---------------	----------------	-----	--------

・環境放射能安全研究成果報告会(S 63.12.20, 科学技術庁)

6	環境におけるヨウ素の移行に関する研究	12.20	片桐 裕実	環安課	成田, 北原
---	--------------------	-------	-------	-----	--------

・J. Environ. Radioactivity 7 (1988) 17-27

7	Environmental Radioactivity around Tokai-Works after the Reactor Accident at Chernobyl	—	石田順一郎	環安課	宮河, 渡辺, 浅野, 北原
---	---	---	-------	-----	-------------------

## 1. 核燃料施設における中性子線量測定法の検討(I)

— アルベド型TLD個人線量計の中性子エネルギー応答関数の評価 —

Study on Neutron Dosimetry in Nuclear Fuel Facilities (I)

— Evaluation of Neutron Energy Response Function of Albedo TLDs —

動力炉・核燃料開発事業団      百瀬 琢磨, 宮部賢次郎, 大和 愛司  
三菱原子力工業株式会社      ○岩井 敏, 林津 雄厚

### 1. はじめに

プルトニウム・ウラン混合酸化物燃料等を取り扱う核燃料施設では、 $\gamma$ 線その他、中性子線に対する被ばく管理が重要である。今後、ICRPにおける中性子線質係数の見直し、プルトニウム利用の拡大及び軽水炉使用済み燃料の高燃焼度化等が進むにつれ、これらの施設における中性子線の被ばく管理が一層重要になると考えられる。

現在、中性子個人線量計としてはNTAフィルム、アルベドTLD、固体飛跡検出器等が市販されているが、それぞれ測定できるエネルギー範囲が異なるため、使用する場所の中性子エネルギーの分布に応じて適切なものが選ばれている。精度良い線量評価のためには、適切な線量計の選択とともに、その線量計のエネルギー特性を良く把握し、使用する場所の中性子エネルギースペクトルを考慮して適切な校正を行うことが重要である。

本論では、核燃料施設で用いられているアルベド型TLDの線量評価精度の向上のために、人体に装着したアルベド型TLDのエネルギー応答関数を計算及び実験により評価した結果について報告する。

### 2. 線量計

動燃事業団で用いているアルベド型TLDバッジの構造を図1に示す。この線量計は、人体の中性子減速散乱効果（アルベド効果）と、カドミウムが熱中性子を除去するフィルタ効果を利用して、熱中性子及び速中性子をそれぞれ分離評価できるように設計されている<sup>(1)</sup>。素子1( $T_1$ )は、中性子に感度のない $^7\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ であり、 $\gamma$ 線補償に用いられる。素子2～素子4( $T_2 \sim T_4$ )は、主として熱中性子に感度のある $^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ であり、それぞれCd（熱中性子除去フィルタ）及びSn（ $\gamma$ 線透過率はCdと等価であるが、熱中性子を除去する効果はない）の組合せの違いによってエネルギー特性が異なっている。

## 3. 応答関数の計算

応答関数の計算の全体の手順を図2に示す。

まず、 ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$  素子及び  ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$  素子の自由空間中における中性子エネルギー応答関数を Tanaka の方法<sup>(2)</sup>に基づいて Hasikura らが開発した計算コード<sup>(3)</sup>を用いて求めた。この計算原理の概要は次のとおりである。

TLD の発光量の入射中性子エネルギーに対する応答関数  $G(E_n)$  は、次のように表現できる。

$$G(E_n) = \sum_r \sum_i \bar{\eta}_i(\bar{E}_{ri}) \cdot K_{ri}(E_n) \cdots \cdots \cdots \textcircled{1}$$

但し、 $K_{ri}(E_n)$  はエネルギー  $E_n$  の入射中性子により TLD の構成物質の原子核に生ずる核反応  $r$  により発生する荷電粒子  $i$  に対する単位質量あたりの TLD の吸収エネルギーである。また、 $\bar{\eta}_i(\bar{E}_{ri})$  は核反応  $r$  により発生した荷電粒子  $i$  の平均初期運動エネルギー  $\bar{E}_{ri}$  がすべて TLD に吸収されたときの TLD の平均発光量である。

$K_{ri}(E_n)$  は以下の要素から成立している。

$$K_{ri}(E_n) = C \cdot N_r \cdot \sigma_{ri}(E_n) \cdot \bar{E}_{ri}(E_n) \cdots \cdots \cdots \textcircled{2}$$

但し、 $C$  は  $\text{MeV/g}$  から  $\text{erg/g}$  への変換係数、 $N_r$  は核反応  $r$  に関する核種の原子密度 (Atoms/g)、 $\sigma_{ri}(E_n)$  はエネルギー  $E_n$  の中性子に対して荷電粒子  $i$  を発生する核種の核反応断面積 (barn)、 $\bar{E}_{ri}(E_n)$  はエネルギー  $E_n$  の中性子によって生ずる核反応  $r$  で発生する荷電粒子  $i$  が TLD に与える平均エネルギー (MeV) である。

$\bar{\eta}_i(\bar{E}_{ri})$  は次式で表現される。

$$\bar{\eta}_i(\bar{E}_{ri}) = \bar{\eta}_i^{\text{rel}}(\bar{E}_{ri}) \cdot \eta({}^{60}\text{Co}) \cdots \cdots \cdots \textcircled{3}$$

[ R  ${}^{60}\text{Co}$  equivalence / erg · g<sup>-1</sup> ]

但し、 $\eta({}^{60}\text{Co})$  は TLD の 1R  ${}^{60}\text{Co}$  equivalent の発光量とそのときの TLD の吸収エネルギーとの換算係数である。

1R の  ${}^{60}\text{Co}$   $\gamma$  線に対する TLD の吸収エネルギー  $D_{\text{TLD}}({}^{60}\text{Co})$  は近似的に次式で求められる。

$$D_{\text{TLD}}({}^{60}\text{Co}) = 86.9 \times \frac{{}_m\mu_{\text{TLD}}({}^{60}\text{Co})}{{}_m\mu_{\text{air}}({}^{60}\text{Co})} \cdots \cdots \cdots \textcircled{4}$$

ここで、 ${}_m\mu_{\text{TLD}}$ 、 ${}_m\mu_{\text{air}}$  は TLD、空気の質量エネルギー吸収係数であり、1R あたりの空気の吸収エネルギー 86.9 erg/g である。

従って、換算係数 $\eta(^{60}\text{Co})$ は $D_{\text{TLD}}(^{60}\text{Co})$ の逆数を用いて次式で表現される。

$$\eta(^{60}\text{Co}) = \frac{1}{D_{\text{TLD}}(^{60}\text{Co})} = \frac{1}{86.9} \cdot \frac{m\mu_{\text{air}}(^{60}\text{Co})}{m\mu_{\text{TLD}}(^{60}\text{Co})} \quad \text{.....⑤}$$

$\bar{\eta}_i^{\text{rel}}(\bar{E}_{\text{ri}})$ は、核反応 $r$ で生じた荷電粒子 $i$ に対する相対的平均発光効率であって、これは荷電粒子の初期エネルギーに対する質量阻止能から文献<sup>(3)</sup>により求められる。

式②、③を式①に代入すると、 $G(E_n)$ は式⑥によって得られる。

$$G(E_n) = C \cdot \eta(^{60}\text{Co}) \cdot \sum_r \sum_i N_r \cdot \sigma_{ri}(E_n) \cdot \bar{E}_{ri}(E_n) \cdot \bar{\eta}_i^{\text{rel}}(\bar{E}_{ri}) \quad \text{.....⑥}$$

なお、計算を行うのに必要となる断面積のデータは ENDF/B-V<sup>(4)</sup>、ENDL-78<sup>(5)</sup>より、また $\bar{\eta}_i^{\text{rel}}$ を計算するための質量阻止能は Nuclear Data Table<sup>(6)</sup>より引用した。

この方法で求めたTLDのエネルギー応答関数を図3に示す。1 mremに相当する中性子のフルエンスが、熱中性子に対して約 $9 \times 10^5/\text{cm}^2$ 、10 keV 中性子に対して約 $1 \times 10^6/\text{cm}^2$ であることから、 $^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子は、熱中性子から数10 keVまでの速中性子に対して実用的な感度があることがわかる。さらに、 $\gamma$ 線補償用の $^7\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子は、 $^6\text{Li}_2^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子に比べて2桁以上も中性子感度が低いので、実質的に中性子に対する感度がないことがわかる。

次に、これらの素子をSn、Cdフィルターの付いたバジケースに収納して人体胸部に着用したときの中性子エネルギー応答関数を、三次元多群モンテカルロコードMORSE-CG<sup>(7)</sup>を用いて求めた。計算に用いた数学的人体モデルは、後述の実験に用いた電力中央研究所所有の人骨入り中性子ファントム<sup>(8)</sup>を参考に、図4のように作成した。但し、肺及び骨の占める領域はMIRDモデル<sup>(9)</sup>を参考にして作成した。また、元素組成はMIRDモデルの値を使用した。線量計の着用位置は左胸で、体表面より1 cmの位置にした。中性子の入射条件は前方平行入射とし、中性子入射方向に対するTLDの感度の方向依存性はコサイン分布と仮定した。

以上の方法で求めたエネルギー応答関数の計算結果を図5に示す。図中、①は $T_2$ の発光量から $T_1$ の発光量を減じた値、②は $T_3$ の発光量から $T_1$ の発光量を減じた値、③は $T_4$ の発光量から $T_1$ の発光量を減じた値、のエネルギー応答関数である。

図3と図5の結果を比較すると、自由空間中の線量計に比べ、人体に着用した線量計の素子の感度は、人体による中性子の反射、減速の効果により、数eVより高いエネルギーの中性子に対して顕著に高くなり、③では約100倍、①②でも約10倍の感度差が認められる。

#### 4. 実験値との比較

計算結果の妥当性を検証するために、電子技術総合研究所の単色中性子場における実験結果<sup>(1)</sup>と



比較した。その結果も同時に図4に示す。計算値と実験値の比は1.0を中心として0.6～2.0の範囲であるが、計算に用いた数学的ファントムは肺及び骨があるのに対し、実験ではパラフィンファントムを用いていること、及びTLDの中性子方向依存性が厳密にはコサイン分布でないことを考慮すると、両者の傾向はほぼ一致しており、計算結果は妥当であると考えられる。

## 5. まとめ

本研究により、動燃事業団で用いられているアルベドTLDの自由空間中及びファントム装着時の中性子エネルギー応答関数が、加速器による単色中性子照射実験が困難であった数eV～10 keVのエネルギーの範囲を含めて、計算により求められた。なお、数10 keV以上は実験により検証された。この結果は、エネルギースペクトルを考慮した線量計の校正に有用である。

## 参考文献

- (1) 宮部賢次郎 他 : PNC841 84-48 (1984)
- (2) S. Tanaka et al. : Nucl. Instr. Meth 140 (1977) 395
- (3) H. Hasikura al. : J. the Fac. of Eng. Tokyo Univ. (B) Vol. XXXIX, No 1 (1987)
- (4) ENDF/B Summary Documentation, BNL-NCS-1754 (ENDF-201), 2nd ed. (ENDF/B-IV) D. Ed. Garber : Available from the Brookhaven National Laboratory, Upton, New York (Oct. 1975)
- (5) R. J. Howerton et al. : UCRL-50400 col. 15 Part A (Sept. 1975)
- (6) L. C. Northcliffe and R. F. Shilling : Range and Stopping Power Tables For Heavy Ions, Nucl. Data Tables A7, 233-463 Academic Press, Inc. (1970)
- (7) M. B. Emmeth : ORNL-4972 (1975)
- (8) 石田健二 他 : 電中研 研究報告 TN86009 (1986)
- (9) W. S. Snyder et al. : MIRD pamph. No 5 (1969)

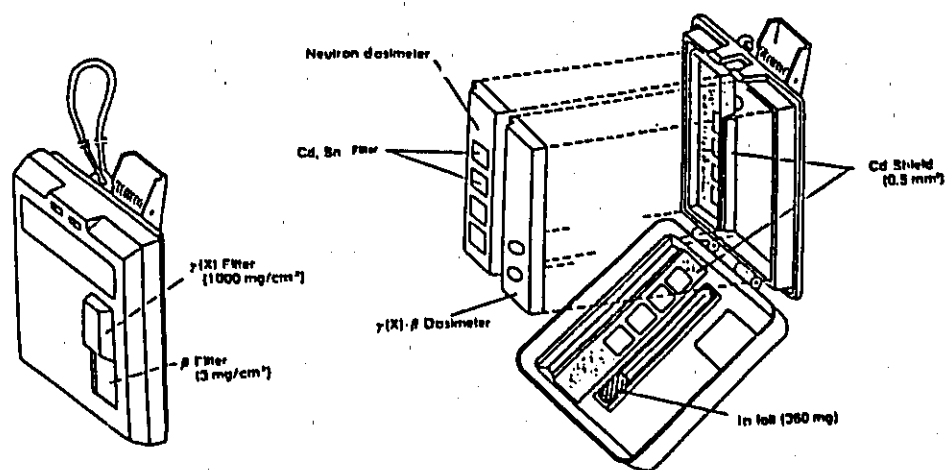
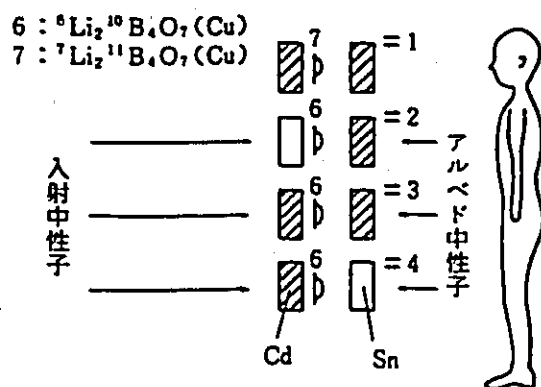


図1 中性子用 TLD バッジの構造

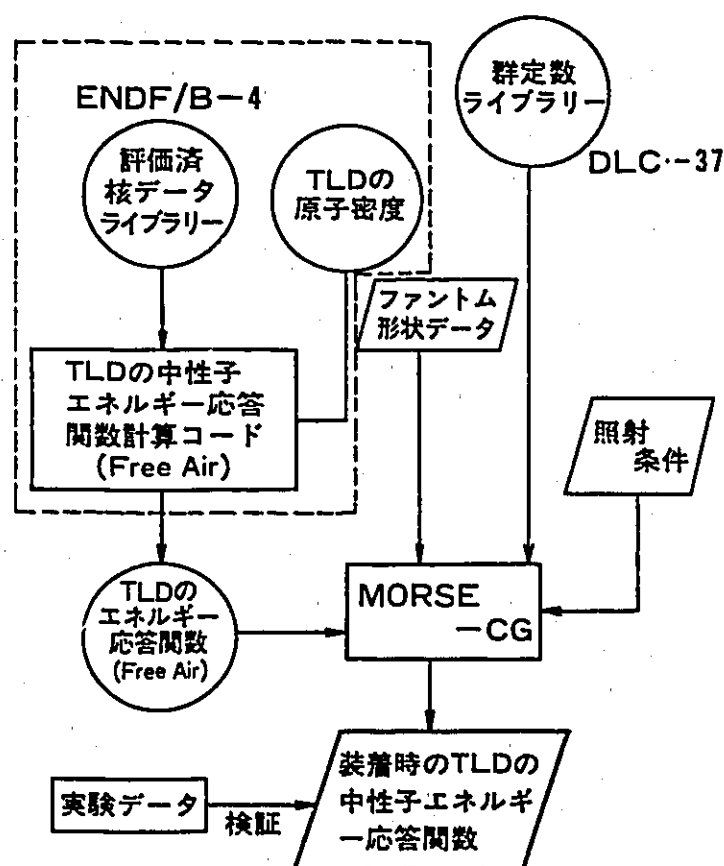


図2 エネルギー応答関数の計算手順

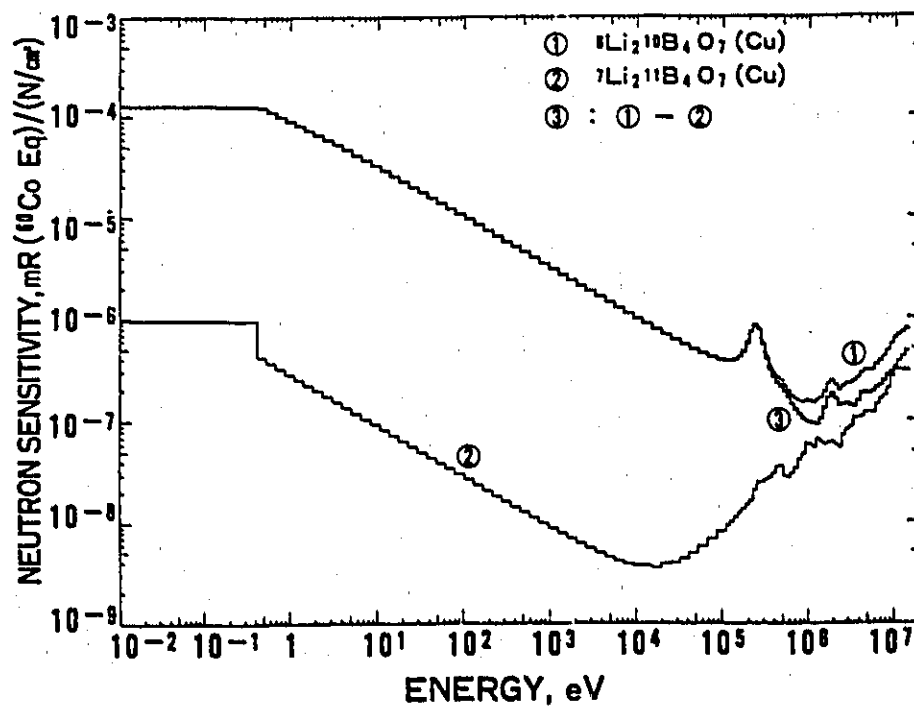


図3 自由空間中の ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7 (\text{Cu})$ ,  ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7 (\text{Cu})$ のエネルギー応答関数

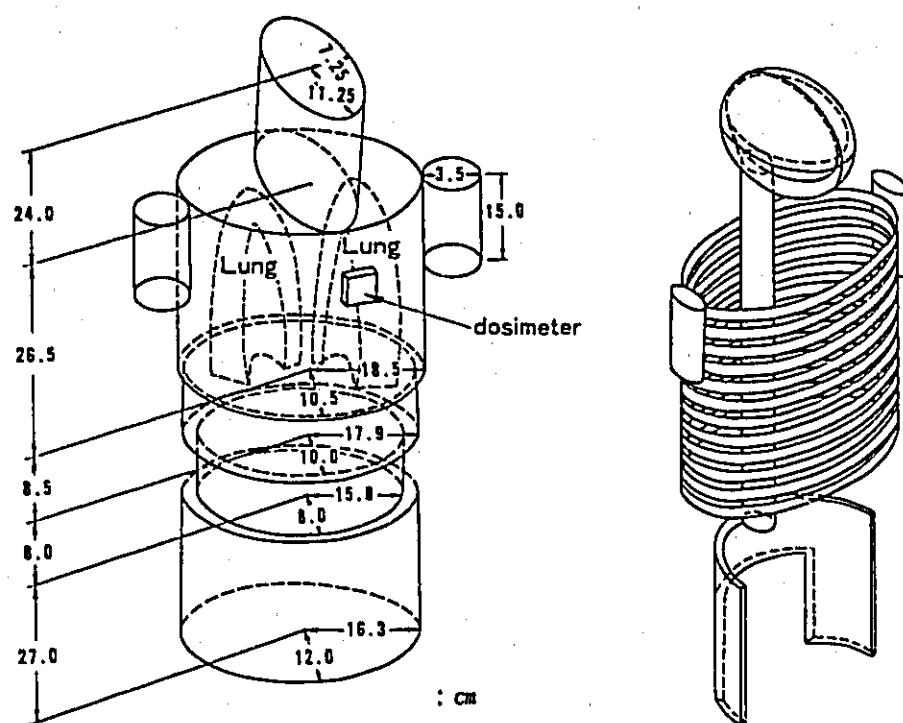


図4 中性子ファントムのモデル(体格及び骨格)

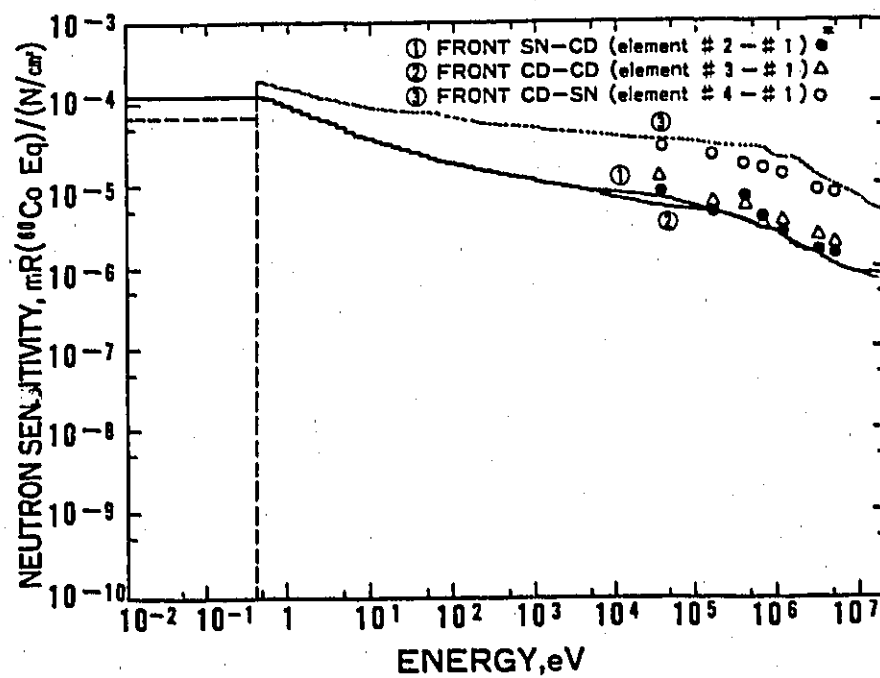


図5 前方平行ビーム照射条件における各TLD素子の中性子エネルギー応答関数

## 2. 核燃料施設における中性子線量測定法の検討(Ⅱ)

—作業環境の中性子エネルギースペクトルとTLDによる線量測定法について—

Study on Neutron Dosimetry in Nuclear Fuel Facilities (Ⅱ)

—TLDs Characteristic Study Based on Neutron Energy Spectrum—

動力炉・核燃料開発事業団    〇百瀬 琢磨, 宮部賢次郎, 大和 愛司  
三菱原子力工業 株式会社    岩井 敏, 林津 雄厚

### 1. はじめに

動力事業団東海事業所には、使用済み燃料の再処理によって取り出されたプルトニウム溶液をウラン溶液と混合し、プルトニウム・ウラン混合酸化物に転換する転換技術開発施設と、主として新型転換炉及び高速増殖炉用の混合酸化物燃料を製造するプルトニウム燃料開発施設がある。これらの施設では、グローブボックス内で核燃料を取り扱う作業が主であり、表1に示すように、作業者の中性子線による被ばくと $\gamma$ 線による被ばくはほぼ同程度である。本論では、これらの施設の代表的な作業環境における中性子エネルギースペクトルを明らかにするとともに、エネルギー特性の観点からアルベド型TLDによる線量測定法について考察する。

### 2. 測定方法

上記施設において、ウラン、プルトニウムの粉末、溶液、ペレット及び燃料集合体等を取り扱う工程の、それぞれ代表的な作業環境で、合計21点の中性子エネルギースペクトルを測定した。中性子の測定には、封入ガス圧5気圧及び0.1気圧の球形 $^3\text{He}$ 検出器と、大きさの異なる4種類の中性子減速材及びCd板(熱中性子フィルタ)で構成される球形減速材付 $^3\text{He}$ 中性子スペクトロメータを用いた。検出器のエネルギー応答関数は、ANISNによる計算評価及び、東京大学原子核研究所中性子標準場での校正により決定した。エネルギースペクトルの評価は、熱中性子については、Cd板有/無の $^3\text{He}$ 検出器の計数率の差より求め、熱中性子よりエネルギーの高い中性子については、NEUPAC<sup>(1)</sup>及びSAND-II<sup>(2)</sup>を用いてアンフォールディングを行った。

### 3. 測定結果

例として、プルトニウム転換技術開発施設における測定結果について述べる。図1は、 $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ 粉末を取り扱うグローブボックス周辺の測定結果である。ほとんどが速中性子の成分で、1 MeV ~ 2 MeVにピークがあり、線量当量換算では、10 keV以上の速中性子の寄与が90%以上を占めている。また、比較のため、プルトニウム燃料開発施設で測定した $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ 混合酸化物の線源スペクトルも同時に図1に示す。線源スペクトルは、自発核分裂で生成した中性子(数100

keV 付近のピークに対応)と、酸素との( $\alpha, n$ )反応により生成した中性子(数 MeV 付近のピークに対応)があるのに対し、プルトニウム転換技術開発施設における測定結果では、数 100 keV 付近にピークが見られない。これは、約 10 cm 厚のアクリル等から構成されるグローブボックスの遮蔽効果により、即ち、アクリル中の水素の散乱断面積の特性で数 100 keV までの速中性子が良く減速された結果、スペクトルが硬くなったものと考えられる。

図 2 は、 $UO_2 - PuO_2$  粉末を中間貯蔵する工程のコンクリート遮蔽の外側のエネルギー・スペクトルである。コンクリートの効果によって典型的な  $1/E$  型の減速スペクトルになっている。その他の点の測定結果は、線源の状態(溶液、粉末)、遮蔽材の種類、厚さ)等によって中性子の減速効果の違いによるスペクトル変化が認められたが、いずれも同様に、数 100 keV ~ 数 MeV の速中性子線が主な成分であった。

また、スペクトルの測定結果に基づき、従来用いられていた線量当量(ICRP Publ. 21)、法令に定める 1 cm 線量当量(ICRP Publ. 51)及び、実効線量当量(ICRP Publ. 51 PA 照射)を各測定点で比較した結果を表 2 に示す。従来の線量当量と 1 cm 線量当量は良く一致した。また、1 cm 線量当量は実効線量当量の約 1.8 倍であった。

#### 4. TLD による線量評価

TLD バッジのエネルギー 2 群の線量評価式は以下の通りである。

$$H_{th} = C_{th} (T_2 - T_3)$$

$$H_f = C_f \{ T_4 - T_1 - C_{th}' (T_2 - T_3) \}$$

但し、 $H_{th}$ 、 $H_f$  : 熱中性子、速中性子線量当量

$T_1 \sim T_4$  : 各素子の発光量( $^{60}Co$  7 線 mR 換算)

$C_{th}$ 、 $C_f$  : 発光量 - 線量当量換算係数

$C_{th}'$  : 素子 4 の熱中性子に対する感度を( $T_2 - T_3$ )の項で補償する係数

本式において、3 で述べた各地点の中性子エネルギー・スペクトル及び前発表で述べた TLD のエネルギーレスポンスから、 $H_f$  及び  $T_1 \sim T_4$  の値が求められるので、それらを代入して  $C_f$  を計算することができる。図 3 に、単色エネルギーの中性子に対する  $C_f$  と、この方法で求めた  $C_f$  を施設毎に、フルエンスの平均エネルギーに対して示す。本図より、エネルギー・スペクトルの測定から求められた中性子の平均エネルギーは施設によって若干異なるが、場所による  $C_f$  の変化はあまり大きくないことがわかる。この結果は、Burgkhardt らの原子力施設における TLD のアルベドレスポンスに関する実験結果<sup>(3)</sup>と一致しており、したがって、これらの施設では、 $C_f$  に一定の値を用いたとしても、エネルギー特性の観点からは  $\pm 30\%$  の精度で線量当量を評価できると考えられる。

## 5. ま と め

動燃事業団東海事業所の核燃料取扱施設における作業環境の中性子エネルギー・スペクトルを測定した。場所によって若干のエネルギー・スペクトルの変化はあるが、数100 keV～数MeVの速中性子線が主な成分であった。これらの施設では、1cm線量当量と実効線量当量の比は約1.8であった。さらに、スペクトルの測定結果から、TLDの速中性子に対する線量当量－発光量の関数が求められた。これらの施設では、 $C_f$ に一定の値を用いたとしても、エネルギー特性の観点からは±30%の精度で線量当量を評価できることを確認した。

## 参考文献

- (1) T. Taniguchi et al. : NEUT Research Report 83-10 (1983)
- (2) W. N. McElroy et al. : AFWL-TR-67-41, Vol. I ~ N, Air Force Weapons Lab.
- (3) Burgkhardt B et al. : Field Calibration Technique for Albedo Neutron Dosimeters, 6th Symp. Neutron Dosimetry, Oct. 12-16, Neuherborg.

表1 プルトニウム燃料開発施設における被ばく線量

年度	作業人数 (のべ)人	有意検出 者数(人)	集団被ばく線量 (man·Sv)		
			$\gamma$	中性子	合計
1982	584	266	0.26	0.27	0.53
1983	721	254	0.28	0.30	0.58
1984	692	279	0.32	0.38	0.70
1985	660	220	0.28	0.31	0.59
1986	762	231	0.21	0.20	0.41

表2 線量当量(ICRP 21),  $H_{\text{icm}}$ ,  $H_{\text{e}}$ の比較

(単位: mrem/h)

測 定 点	1	2	3	4	5	6
線量当量(ICRP 21)	2.49	1.04	1.32	4.37	5.67	0.63
$H_{\text{icm}}$	2.49	1.05	1.32	4.38	5.62	0.62
$H_{\text{e}}$ (AP)	1.36	0.54	0.73	2.39	3.08	0.34
$H_{\text{icm}}/H_{\text{e}}$	1.8	1.9	1.8	1.8	1.8	1.8



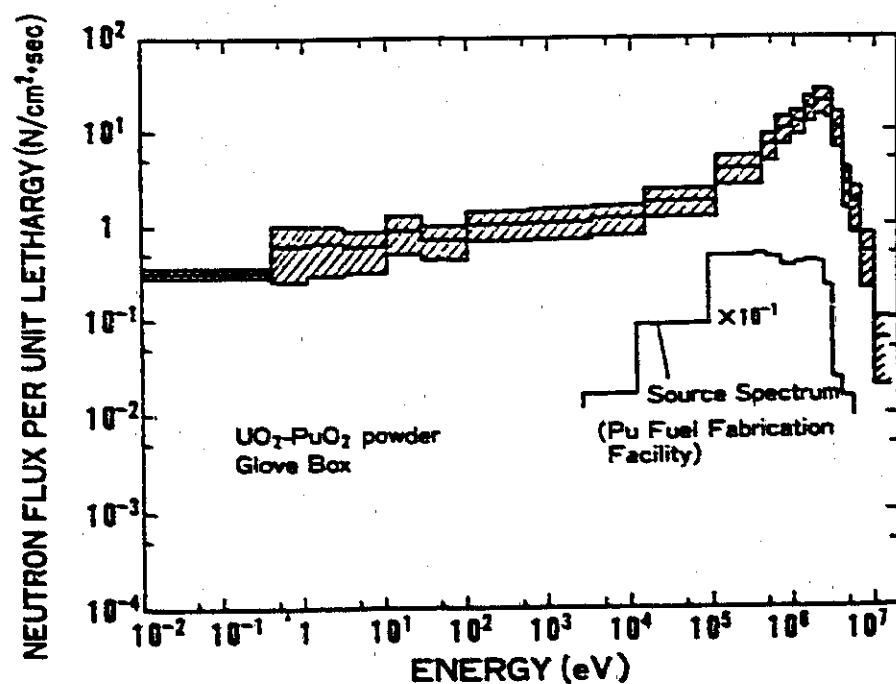


図1 転換技術開発施設における中性子エネルギースペクトル  
(グローブボックス周辺)

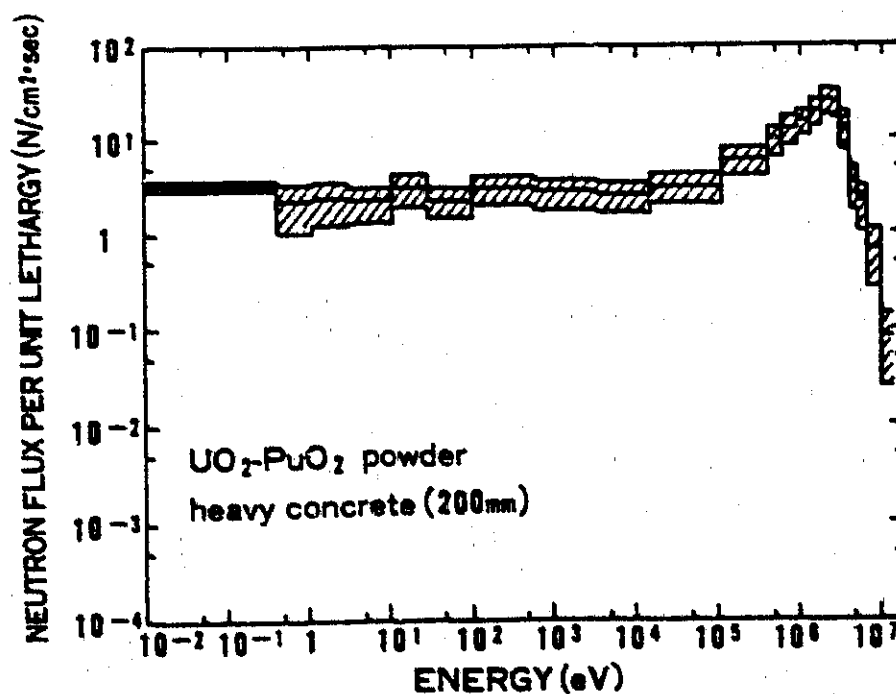


図2 転換技術開発施設における中性子エネルギースペクトル  
(コンクリート外側)

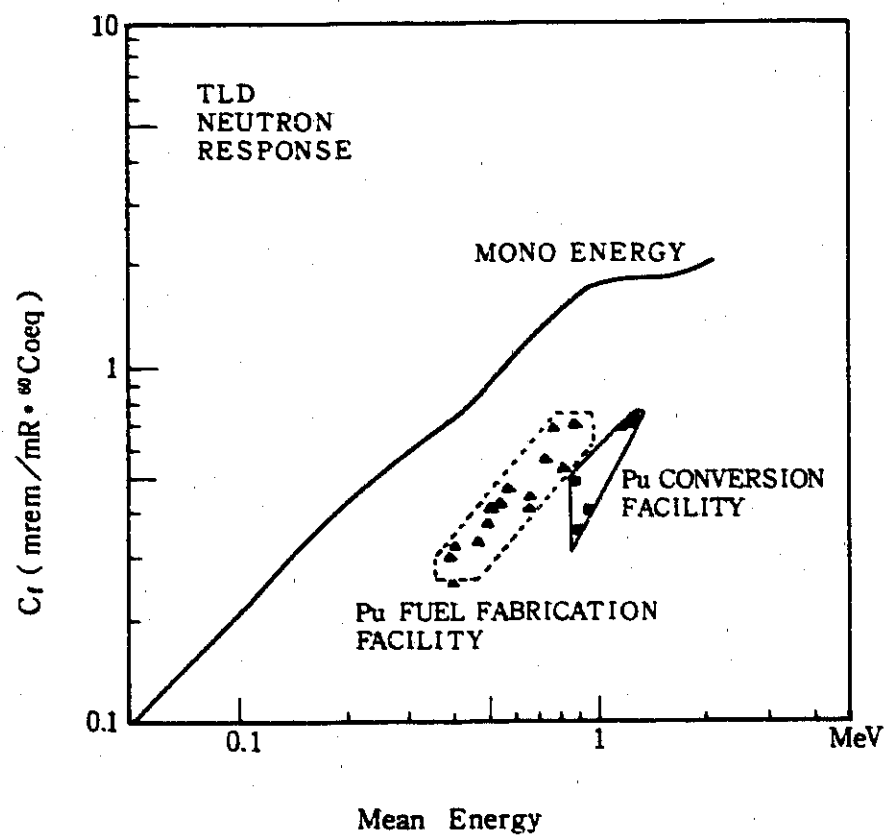


図3 中性子の平均エネルギーに対するTLDバッジの校正定数

### 3. 電気化学エッチング CR-39 の中性子 エネルギーレスポンスの評価

Evaluation on Neutron Energy Response of Electrochemically  
Etched CR-39

動力炉・核燃料開発事業団      ○二之宮和重, 大和 愛司

#### 1. はじめに

CR-39 は高速中性子による反跳陽子の検出が可能な固体飛跡検出器で、現在、高速中性子に対して最も感度が高い検出器として知られている。化学エッチングを用いた CR-39 中性子線量計は国内でも実用化され、一部、測定サービスが開始されているが、電気化学エッチングによる実用化された中性子線量計は国内にはまだ無い。電気化学エッチングは、化学エッチングに比べて、得られる飛跡の大きさが大きく計数が容易であるほか、特に低エネルギー中性子に対する感度が上昇するという利点を有している。

本論では、電気化学エッチングによる CR-39 について、エッチング時の電界強度の影響を述べるとともに、計算により求めた中性子エネルギーレスポンスと、144 keV ~ 14.8 MeV の単色中性子及び  $^{252}\text{Cf}$  によって照射した結果を報告する。

#### 2. 方 法

##### (1) 使用機材

実験に用いた CR-39 とラジエータは以下のとおりである。

- ① CR-39 : American Acrylics (米国) および Pershore Mouldings (英国)
- ② ラジエータ : ポリエチレン, ポリカーボネート, CR-39

エッチング装置は西ドイツの KfK で開発されたエッチングセルと高周波・高電圧発生装置で、エッチングセルを 2 個直列に接続することにより、1 度に 40 枚の CR-39 をエッチングすることが可能である。

飛跡の読み取りは、エッチングした CR-39 をマイクロフィッシュリーダーにかけ、約 40 倍の倍率の拡大コピーを採取して、飛跡を手で計数する方法で行った。

##### (2) エッチング条件

エッチングは、60℃、6 N の KOH を用いて、次の条件で行った。

- ① ステップ 1 : 1500 Vrms, 100 Hz, 5 hr
- ② ステップ 2 : 1500 Vrms, 2 kHz, 1 hr

電界強度の影響を調べる実験では、ステップ 1, ステップ 2 とも電圧を 850 V から 1700 V まです段階的に変化させ、その他のパラメータは一定の条件で行った。

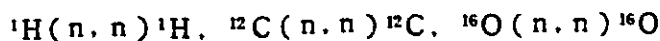
## (3) 中性子エネルギーレスポンスの計算

中性子エネルギーレスポンスの計算はFig.1に示す体系で行った。すなわち、CR-39の前面にラジエータを密着し、それに中性子が前方から垂直に入射する条件で計算した。

CR-39は、エッチングに伴う剥離領域と、非エッチング領域に2区分し、ラジエータ内で発生した反跳粒子または $\alpha$ 粒子の角度とエネルギーを計算し、それがCR-39に到達するかどうか、また、それが飛跡形成の臨界角を満足するかどうかを判別することによりレスポンスを計算した。

考慮した反応は以下の6種類の反応である。

## ① 弾性散乱

②  $(n, \alpha)$  反応③  $3\alpha$  反応

反応の微分断面積は、弾性散乱と $\alpha$ 粒子放出反応で以下の式を使用した。

## ① 弾性散乱

$$\frac{d\sigma(E_n, \theta)}{d\theta} = 2 \cdot \sigma_T(E_n) \cdot \sin \theta \cdot \cos \theta \quad \dots\dots\dots (1)$$

②  $(n, \alpha)$  又は  $(n, n')$   $3\alpha$  反応

$$\frac{d\sigma(E_n, \theta)}{d\theta} = \frac{\sigma_T(E_n)}{2 \cdot \sin \theta} \quad \dots\dots\dots (2)$$

臨界角に関しては、反跳陽子については1986年にCRNLのCrossらが行った実験結果(約25 keV/cmの電界強度でエッチング条件はKfKとはほぼ同様である)を用いた。反跳陽子以外の粒子については、現在のところ適当な実験結果がないため、これまでの経験から、入射角が70°以下で、かつ、CR-39内での飛程が0.5  $\mu\text{m}$ 以上であれば飛跡の計数が可能であると仮定した。

中性子感度は次式により計算した。

$$S(E_n) = \sum_j \sum_i \sigma_j(E_n) \cdot N_j \cdot t_i \cdot \epsilon_{i,j}(E_n) / F(E_n) \quad \dots\dots\dots (3)$$

$S(E_n)$  : 中性子感度 (tracks/cm/mSv)

$\sigma_j(E_n)$  : 各反応の全断面積 (cm<sup>2</sup>)

$N_j$  : 各反応にあずかる原子数密度 (cm<sup>-3</sup>)

$t_i$  : ラジエータまたはCR-39の(分割した)厚み ( $\mu\text{m}$ )

$\epsilon_{i,j}(E_n)$  : 飛跡形成の割合 (tracks/n)

$F(E_n)$  : 中性子フルエンスから線量当量への換算計数 (mSv/n/cm<sup>2</sup>)

## (4) 中性子線源による照射

単色中性子による照射は、西ドイツPTBのヴァン・デ・グラフ型加速器を用いて、144 keV、250 keV、570 keV、1.2 MeV、2.5 MeV、5.0 MeV、14.8 MeV について行った。 $^{252}\text{Cf}$  による照射は西ドイツKfKにおいて行った。

## 3. 結果及び考察

Fig. 2に、エッチング時の電圧を変化させた時の144 keV単色中性子、 $^{252}\text{Cf}$  中性子、1 MeV 単色中性子に対する感度とBG計数の変化を測定した実験結果を示す。横軸の電界強度は電圧をCR-39の厚みで除した値を表す。これより、BG飛跡密度は電界強度が高くなるにつれて指数関数的に増加すること、およびレスポンスも電界強度に依存し、特に144 keVの低エネルギー中性子の場合はそのレスポンスが大きく電界強度に依存するのに対して高エネルギーではより低い電界強度で飽和することが明らかとなった。

Fig. 3に、ラジエタの種類を変えてCR-39の中性子エネルギーレスポンスを計算した結果を示す。これより、ラジエタとしてポリエチレンを用いた場合が最も高感度が得られること、および約0.5 MeV以上のエネルギーにおいてラジエタの効果が現れることが明らかとなった。ポリエチレンを用いた時が最も高い感度が得られるのは、主にラジエタ中の水素原子数の違いによるものが支配的である。Fig. 4に、ラジエタとしてCR-39自体を用いた場合の計算結果と実験結果を示す。実験に用いたのはPershore Mouldings社製のCR-39で、その電界強度は約25 kV/cmであり、計算値と実験結果は良い一致を示し、本計算結果の妥当性が確認された。

ラジエタとしてポリエチレンを使用し、American Acrylics社のCR-39を用いて電界強度を変化させた場合の計算値と実験結果をFig. 5に示す。これより、電界強度が25 kV/cmの場合は実験値と計算値が一致するのに対して20 kV/cmでは実験値が低くなることが判明した。この理由は、計算に用いている臨界角データが電界強度によって変化するためと考えられた。そこで実験結果にフィットするような臨界角データを繰り返し計算により求めた結果、Fig. 6に示すBの臨界角データが最も実験値にフィットすることが明らかとなった。

本臨界角データを用いて計算した結果と実験値をあわせてFig. 7に示す。電界強度が25 kV/cm、20 kV/cmの場合とも実験値と計算値は良い一致を示した。これより、電界強度を低くした場合には陽子に対する臨界角は、最大角度が小さくなり、検出下限エネルギーが上昇することが判明した。

## 4. まとめ

電気化学エッチングしたCR-39について、エッチング時の電界強度が中性子感度とBG飛跡密度に与える影響が明らかとなった。また、CR-39の中性子エネルギーレスポンスを評価する計算コードを開発し、計算結果と実験値は良く一致した。

CR-39 は、ラジエータとしてポリエチレンを使用し、電界強度を約20 kV/cm とした2ステップの電気化学エッチングを行うことにより、約100 keVから10 MeV程度まで良好なエネルギー特性が得られ、検出器としては実用上十分な性能を有していることが分かった。今後は、核燃料施設における中性子個人線量計としての適用の可能性を検討していきたい。

< 謝 辞 >

本発表は発表者が1年間、西ドイツのKfKに原子力留学生として滞在した間の研究成果の一部であり、終始親切に御指導頂いたKfKのDr. Piesch及びDr. Al-Najjarに感謝する。また、このような機会を与えて頂いた関係者の皆様に心より感謝する。

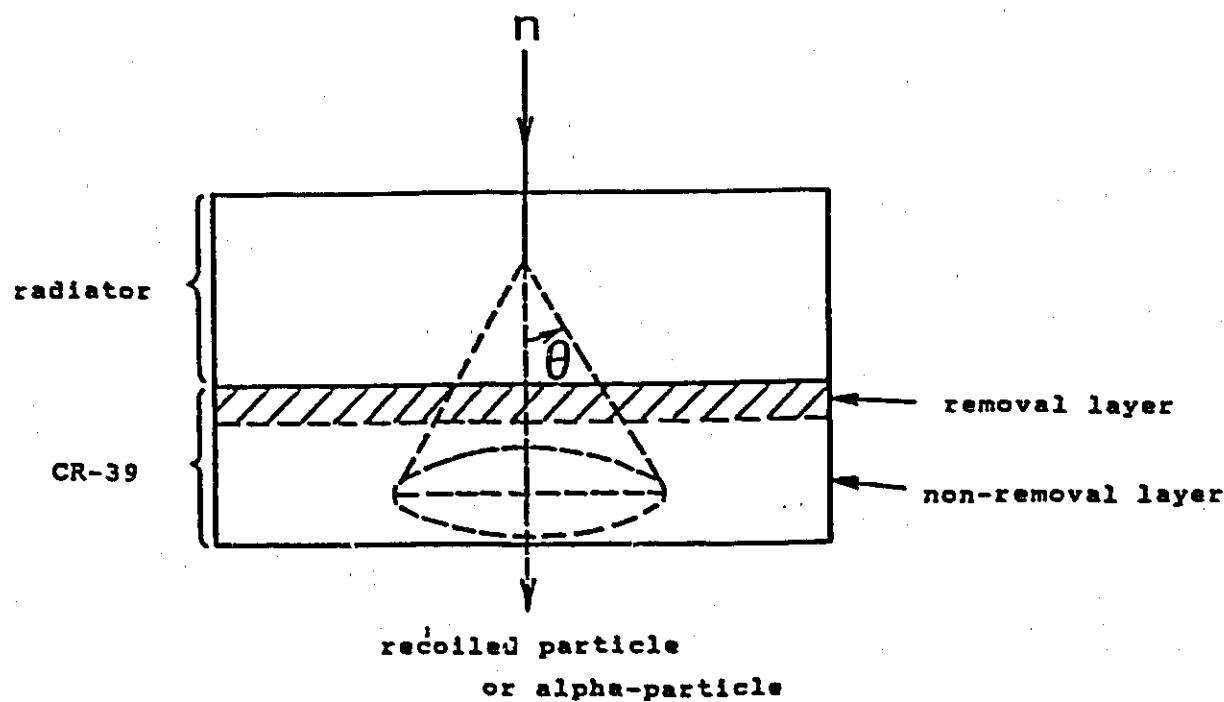


Fig. 1 Geometry for calculation of neutron response of CR-39

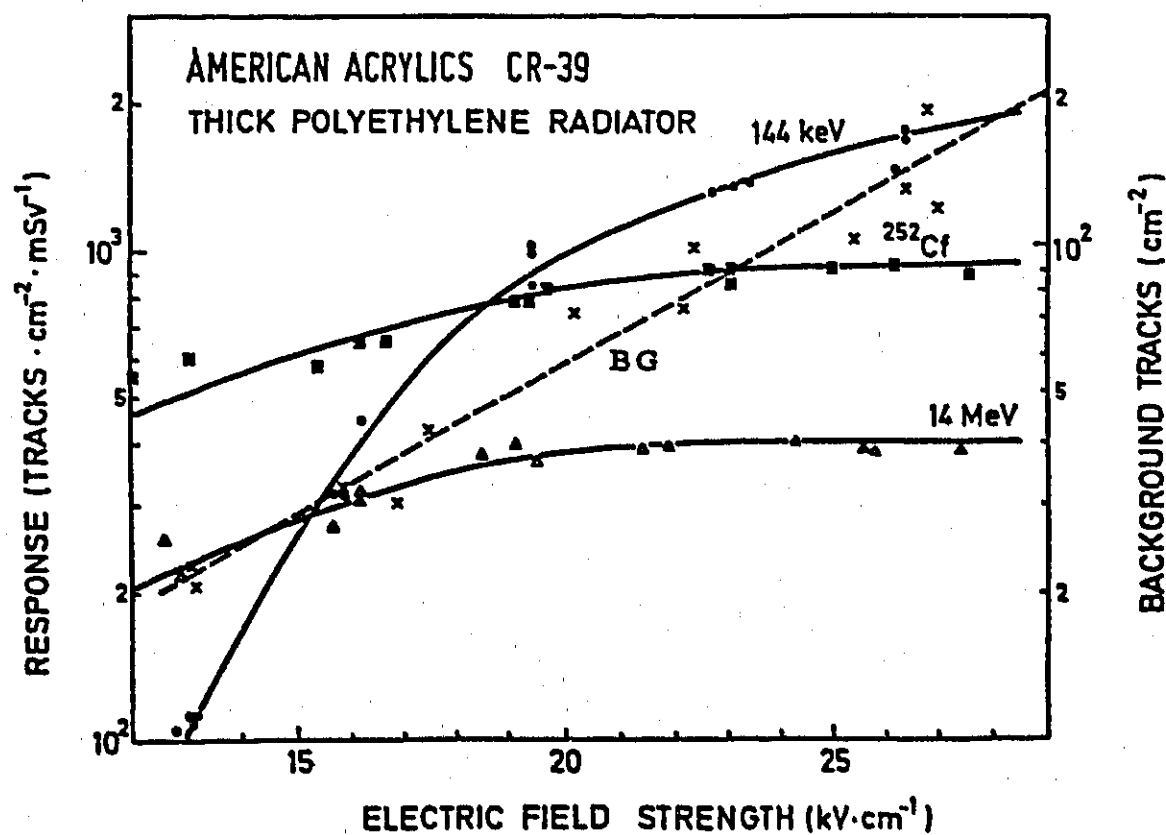


Fig. 2 BG and neutron sensitivity of electrochemically etched CR-39 detectors as a function of electric field strength.

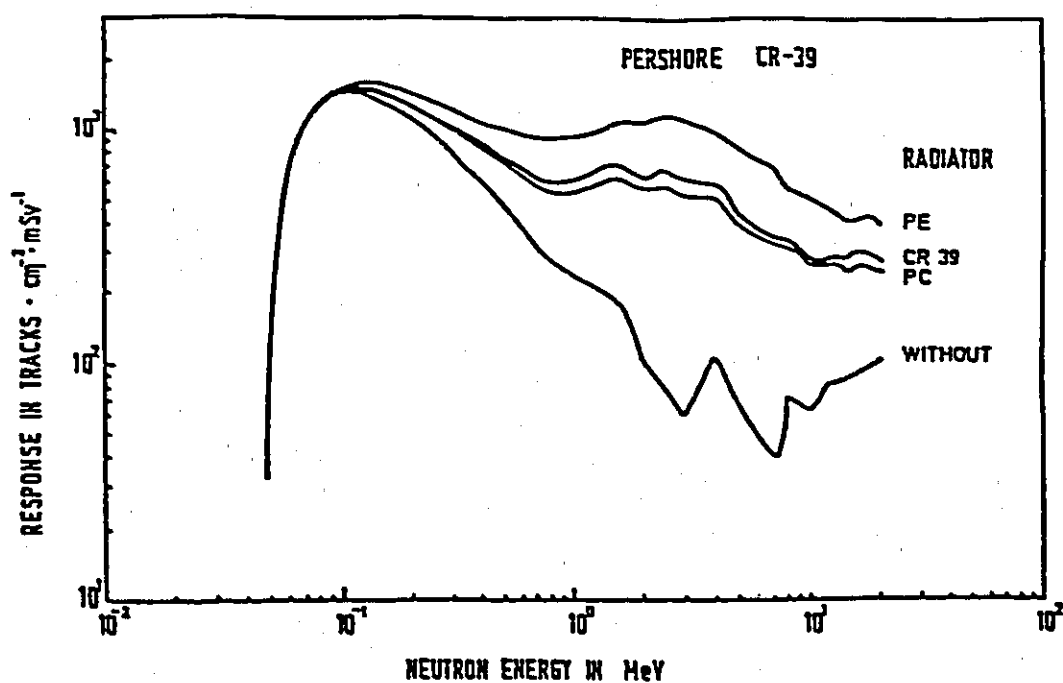


Fig. 3 Calculated response of CR-39 detector with various radiator as a function of neutron energy.

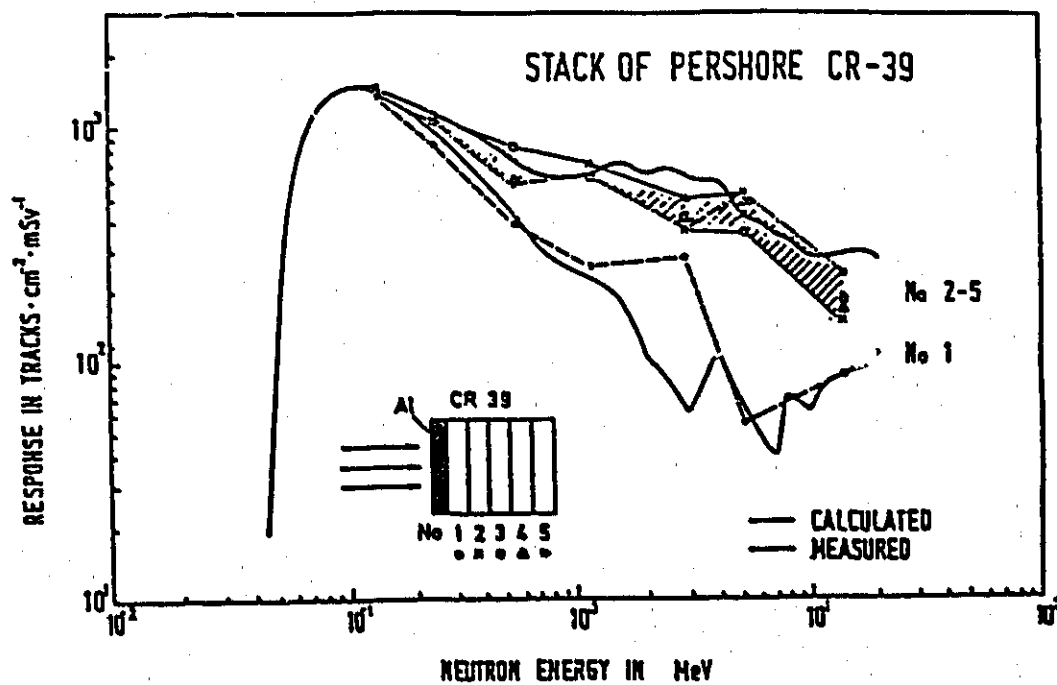


Fig. 4 Calculated and measured response of CR-39 detector. (Persshore Mouldings)



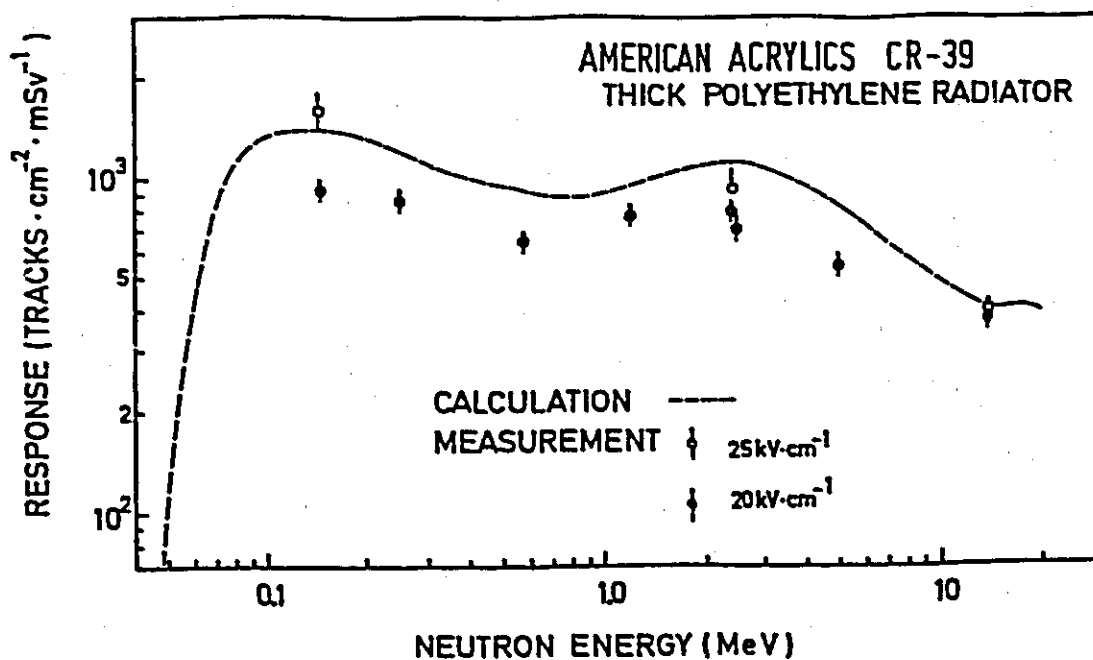


Fig. 5 Calculated and measured neutron response of electrochemically etched CR-39 detectors.

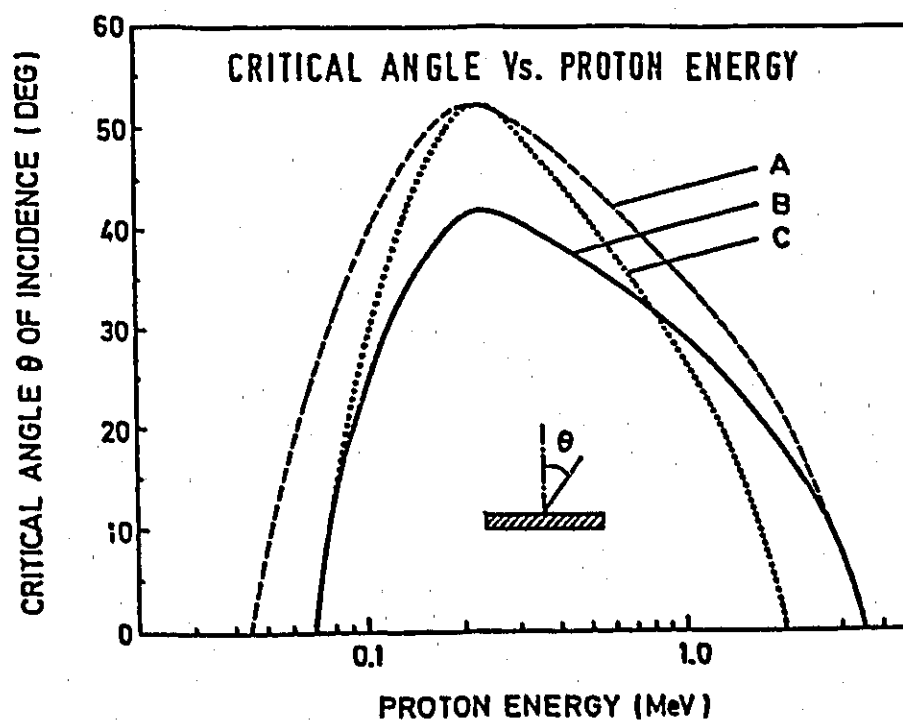


Fig. 6 Critical angle for detection with proton energy.

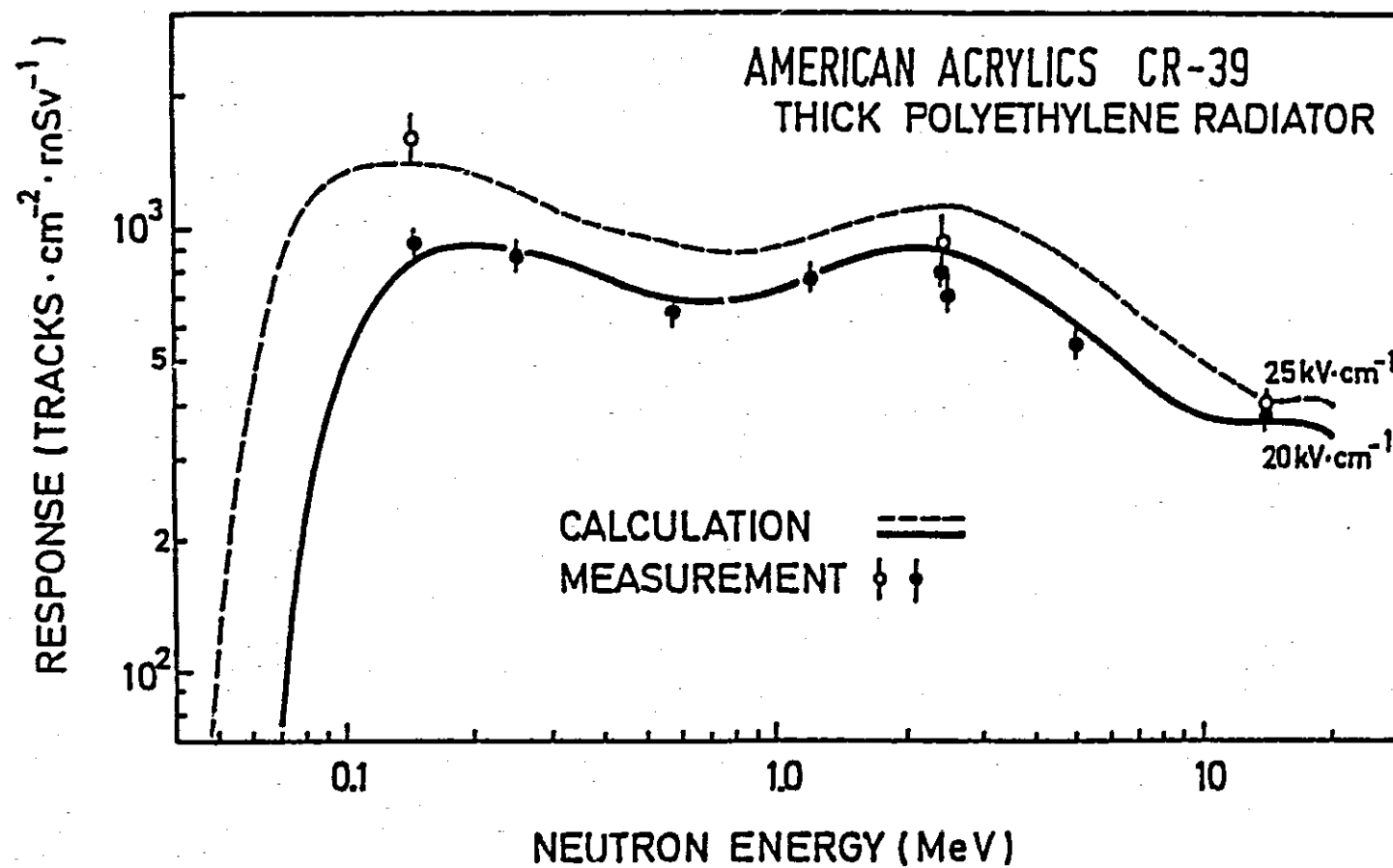


Fig.7 Calculated and measured neutron response of electrochemically etched CR-39 detectors.

#### 4. Personnel Radiation Monitoring in Japan

—Personnel Dosimeter and Its Quality Assurance—

K. Ninomiya

Health and Safety Division,  
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation  
4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki,  
319-11, JAPAN

##### 1. Abstract

This Paper describes the present status of personnel radiation monitoring in Japan, especially the monitoring system, characteristics of personnel dosimeter, traceability and quality assurance. While personnel monitoring is classified into external radiation monitoring and internal radiation monitoring, and further, the objective to be monitored includes X-rays,  $\gamma$ -rays,  $\beta$ -rays and neutrons, the following description will cover, in particular, whole-body personnel monitoring for external radiation with emphasis on X and  $\gamma$ -rays.

##### 2. Introduction

Number of persons monitored for occupational exposure in Japan is roughly amount to a total of 270 thousand persons over the fields of medicine, research, education, Nuclear industry and other industries. These radiation workers in various fields are controlled by suitable personnel monitoring in compliance with the corresponding regulations so that their individual exposure may not only exceed a maximum permissible dose defined by the regulations but also be maintained sufficiently low values, based on the principle of ALARA.

Film badges and TLDs are the main personnel dosimeters currently used. While dosimetry is conducted by several commercial service companies in addition to the organizations which perform this work by themselves including national institutes such as JAERI and PNC, the measuring accuracy of personnel dose is kept at a high level by each quality assurance based on the traceability system of our country.

##### 3. Number of Radiation Workers and the System of Monitoring

Now 35 of commercial nuclear power reactors are in operation in our country and the users of radio-isotopes amount to 4630. Also there exist a number of nuclear facilities in addition to one reprocessing plant, and their number is expected to increase more. [1][2]

The current number of persons monitored for occupational exposure is as shown in Table 1 and the total number is estimated to be about 270 thousand including the workers in the fields of medicine, research, education, nuclear industry and other industries. [3][4][5]

National institutes for research and development of atomic energy (JAERI, PNC) and one of nuclear power plants are doing personnel dosimetry by themselves, but most of other facilities are entrusting it to commercial service. As such companies now, there are two or three large companies and some small ones.

Table 1 Number of persons monitored for occupational exposure.  
(approximate number)

Medical	Research and Teaching	Nuclear Industry	Other Industry	Total
138,000	40,000	58,000	50,000	276,000

#### 4. Limit of Personnel Dose by Regulations

The laws relating to the prevention of radiation hazard in our country are mainly divided into three laws:

- 1) The law for regulations of nuclear source material, nuclear fuel material and reactors.
- 2) The law concerning prevention from radiation hazards due to radio-isotopes, etc.
- 3) The law for occupational safety and health.

The regulations under these laws provide the permissible radiation dose for radiation workers.

Fundamental concepts in these laws rely on ICRP Publ. 6 (1962) [6] in which  $D = 5(N-18)$  and 3rem/3months are provided respectively as the maximum permissible cumulative dose and maximum permissible dose for a radiation worker (Table 2). The amended provisions are scheduled to be effective from April, 1989 in compliance with ICRP Publ. 26(1977) [7], so that the past regulation for the maximum permissible cumulative dose is abandoned and the new limits of 50mSv/year, 150mSv/year and 500mSv/year is adopted for the effective dose equivalent, lens of eye and other tissue, respectively (Table 3).

Table 2 Permissible exposure dose by regulations. (current)

Category	Portions of the body	Permissible Dose
Radiation Workers	Whole body	5 (N-18) 3rem/3months*
	Skin	5rem/3months
	Hand, Forearm, Foot or Foot joint	20rem/3months
	Whole body	15rem/1year
Workers occasionally enter controlled area	Skin	2rem/1year
Members of public	Whole body	2rem/1year

- \* 1.2rem/3months for women who is possible to conceive
- \* 1 rem for pregnant women

Table 3 Limits of dose equivalent by new regulations.  
(from April 1, 1989)

Category	Item	Limit
Radiation Workers	Effective dose equivalent	50 mSv/year*
	Tissue dose equivalent	Lens of eye 150 mSv/year
		Others 500 mSv/year
Members of Public	Effective dose equivalent	1 mSv/year
	Tissue dose equivalent	20 mSv/year

- \* 10 mSv/3months for women who is possible to conceive
- \* 10 mSv for pregnant women

## 5 Types and Characteristics of Personnel Dosimeters

Among various types of personnel dosimeters, such as, TLD, film, fluorescent glass dosimeter, pocket dosimeter, alarm meter, etc., a suitable dosimeter should be selected in consideration of 1) purpose of measurement, 2) type and energy of radiation, 3) condition of radiation work.

The film badge and TLD is widely used as a dosimeter which measures the exposure dose over a relatively long period (1 or 3 months) for the purpose of personnel monitoring. Pocket dosimeter and alarm meter is often used for anticipated high-level exposure and for daily check of dose after work. Recently, TLDs are used for passage control at the gate of the controlled area in a large facility such as nuclear power plant, and further a TLD reader directly coupled with a computer is sometimes used to measure the exposure every time a personnel exits the controlled area. The following is the description of film badge and TLD badge that are currently in wide use.

### (1) Film Badge

#### ① Structure of Film Badge

Now several types of film badges are available in our country and the films for badges are produced by Fuji Film Inc. or of Kodak Inc. Fig.1 shows the structure of JAERI type W film badge. This film badge is now used as an official personnel dosimeter in JAERI. It has three kinds of plastic filters for  $\beta$ -ray measurement and two kinds of filters for  $\gamma$ -ray. Thermal neutron is measured by using the captured  $\gamma$ -ray by Cd filter, and fast neutron is measured by NTA film. Activation foiles are also provided the case of emergency.

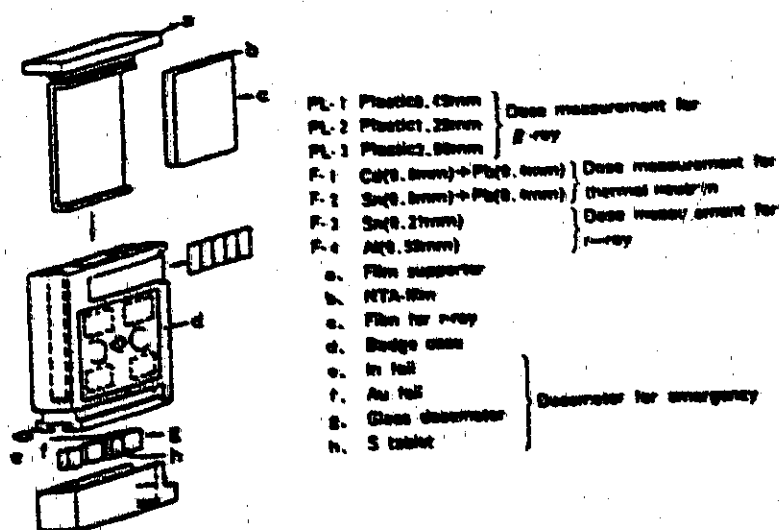


Fig.1 Construction of film badge.

(JAERI type IV)

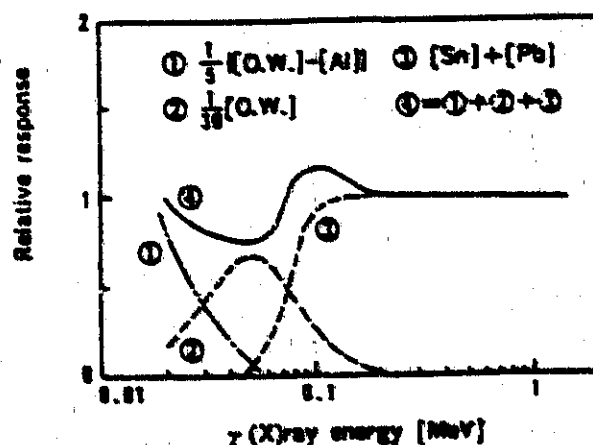


Fig.2 Improvement of energy dependence for  $\gamma$  (X)-ray. (example)

## ② Dose Evaluation by Film Badge

Dose is obtained by a characteristic curve, namely, a curve which is provided by a reference radiation source to give a relationship between dose and concentration.

The dose of  $\gamma$ (X)-rays can be obtained by determining the energy from the ratio of equivalent doses under different filters and the sensitivity for that energy. The other method is to correct energy dependence of the film by using following formula.

$$D = k_1 [Sn+Pb] + k_2 [Cu] + k_3 [Al] + k_4 [O.W] \text{ -----(1)}$$

where

$k_1, k_2, k_3, k_4$  : Constants

[i] : equivalent concentration under i filter

## ③ Characteristics of Film Badge

Fig. 2 shows an example of the results obtained by improving the energy dependence for  $\gamma$ (X)-rays using formula (1). The energy dependence in this case is about  $\pm 20\%$ .

The measuring dose range of the film badge is 0.1mSv-40mSv for X-rays, 0.1mSv-60mSv for  $\gamma$ -rays and extendable to the extent of about 10 times these values by changing the development condition.

## ④ Factors for Evaluation Errors

Major factors for the evaluation errors are as follows.

### 1) Fading

- influenced remarkably by atmospheric moisture.
- relations with temperature and humidity are important.
- can be usually neglected by moisture-proof packaging.

### 2) Dispersion of Products

- dispersion due to the differences of production lots.
- use the films by the same production lot for one measurement.

### 3) Influence of high energy $\gamma$ -rays

- the film sensitivity is significantly enhanced for high energy  $\gamma$ -rays such as 6MeV  $\gamma$ -rays from  $^{14}N$  in reactors.
- adequate calibration is necessary for such a place.

## (2) TLD Badge

### ① Structure of TLD Badge

There are many fluorescence material such as LiF, CaF<sub>2</sub>, CaSO<sub>4</sub>, or Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub> for TLD. Various types of TLDs are commercially available and used in many countries of the world. The following description, in particular, relates to a fully automatic reading type TLD system developed by PNC and Matsushita Electrical Co. Ltd. [8][9][10]

Fig. 3 shows the structure of a PNC-type TLD badge. This TLD badge is now used in all PNC facilities and one of commercial atomic power plant as official personnel dosimeter.  $\gamma$ -rays,  $\beta$ -rays, thermal-, epithermal-, and fast neutrons can be measured simultaneously by this TLD Badge. Two elements of TLD are used to measure  $\beta$ -rays, other two are for  $\gamma$ (X)-rays, and another four elements are used for neutron measurement. Two elements for  $\beta$ -rays are  $^7Li$ ,  $^{10}B$ ,  $^{60}Co$  (Cu) and elements for  $\gamma$ -rays are  $^7Li$ ,  $^{10}B$ ,  $^{60}Co$  (Cu) and  $CaSO_4$  (Tm). The elements for  $\gamma$ -rays are located under 1000mg/cm<sup>2</sup> of plastic.

$^6\text{Li}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $\text{O}$ , is high sensitive to thermal neutrons and  $^7\text{Li}$ ,  $^{11}\text{B}$ ,  $\text{O}$ , have almost no sensitivity for neutrons. Fast neutrons are detected by means of "Albedo" technique by combining Cd and Sn fillters.

## ② Dose evaluation by TLD badge

In general, dose for  $\gamma$ (X)-rays is determined from the measured value of TLD using the following formula:

$$D = f_1 f_2 f_3 (L-C) \text{-----(2)}$$

where D :dose equivalent

L :quantity of luminescence of TLD

C :back ground

$f_1$  :conversion factor from quantity of luminescence to dose equivalent

$f_2$  :correction factor for energy dependence

$f_3$  :correction factor for others(such as fading)

As  $f_2$  and  $f_3$  can be considered substantially unity in the ordinary conditions of use for PNC-type TLD badge, dose equivalent is obtained directly from the quantity of luminescence. As for  $f_1$ , the TLD reader is calibrated so as to give  $f_1=1$  using a  $^{137}\text{Cs}$  standard source.

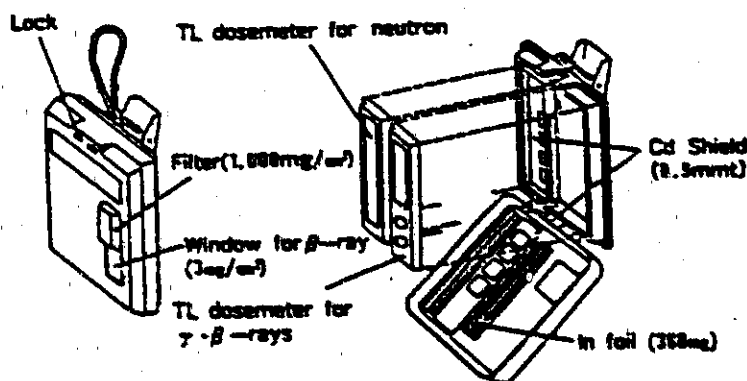


Fig.3 Construction of TLD badge.

(PNC type)

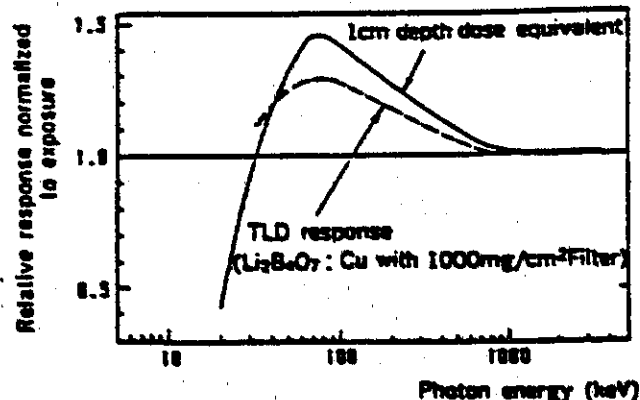


Fig.4 Energy dependence of TLD badge for  $\gamma$ (X)-ray.

## ③ Characteristics of TLD Badge

Measurable Dose range of TLD badge is from 0.1mSv to 10 Sv over the energy range of 30keV to 2MeV for  $\gamma$ -rays.

Fig.4 shows the energy dependence of TLD badge for  $\gamma$ -rays.

When the TLD badge is set on phantom, the response of  $^7\text{Li}$ ,  $^{11}\text{B}$ ,  $\text{O}$ , under a 1000mg/cm<sup>2</sup> filter is very close to the 1cm depth dose equivalent curve.

## ④ Factors causing Evaluation Errors

Effects to be considered in using TLDs for personnel monitoring are as follows:

1)dispersion of sensitivity of TLD elements.

-due to differences of production lots

-due to variations in quantities of phosphor and activator

→quality control of TLD elements

2)stability of TLD reader

-dust contamination of the optical system

-degradation of the photomultiplier

→sensitivity confirmation and calibration at regular intervals

## 6. Quality Assurance

Quality assurance means a systematic, programmed action which is required for imparting sufficient reliability to the results of monitoring programme.

ICRP Publ.35(1982)[11] gives some factors to be considered in planning a quality assurance programme, and these requirements may be summarized in the following with respect to personnel monitoring.

- 1) The quality of dosimeter used is good controlled, and the radiation field for calibration of dosimeters has traceability to the national standard.
- 2) Instruments for reading are controlled and maintained in good condition; they are checked and recalibrated in respect to their performance at necessary intervals.
- 3) Personnel completely understand the characteristics of instruments and are well-trained for the use of them.

### (1) traceability

Radiation sources or reference instruments to be used for the calibration of personnel dosimeters are required to be traceable to the national standard. Fig.5 shows the traceability system of  $\gamma(X)$ -ray measuring instruments in our country.

The traceability for  $\gamma(X)$ -rays is established on the basis of exposure dose, and primary standard chamber which is calibrated directly by the national standard is provided in main calibration facilities. Personnel dosimeters are calibrated in the radiation field evaluated with this primary standard chamber or secondary standard chamber.

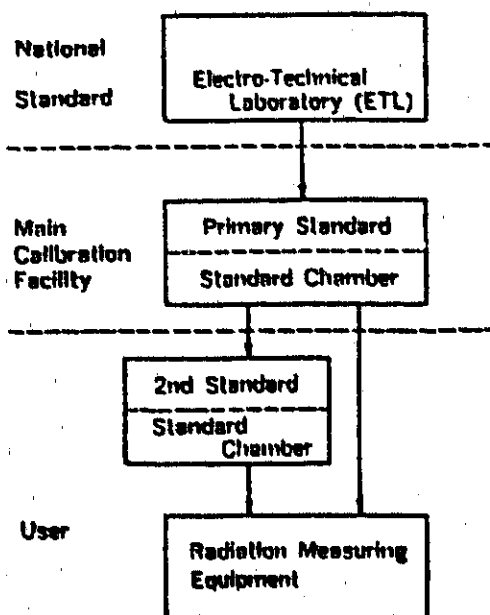


Table 4 Quality control programme of TLDs and TLD-reader at PNC.

—	Time	Frequency	Item
TLD Element	Before Service	—	• Outward Looking • Zero-dose • Sensitivity for $^{137}\text{Cs } \gamma$
	In Service	1/year	Same above
TLD Reader	Daily Inspection	1/day	• Sensitivity check by using reference light source • Cleaning up of Optical parts (if necessary)
	Monthly Inspection	1/month	• Check of heating condition • Calibration of reader by using Standard TLD( $^{137}\text{Cs } \gamma$ )
	Overhaul	2/year	Overhaul by manufacturer

Fig.5 Traceability system of  $\gamma(X)$ -ray measuring instrument in Japan.



(2) Quality Control in Personnel Dose Measuring Organizations

While films, TLDs for personnel dosimeters are produced in conformity with Japanese Industrial Standard (JIS) and come onto market, a strict quality control is taken for any film and TLD in personnel dose measuring organizations.

Table 4 shows an example of the quality control programme for TLDs and TLD readers in PNC. TLDs are subjected to visual inspection, confirmation of zero-dose, and sensitivity test using  $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$ -rays at the time of purchase and, after that, once a year.

TLD readers are subjected to daily routine inspection, monthly inspection, and the overhaul by manufacturer.

Film badge and related apparatuses are well quality controlled by their own manner in each dose measuring organizations.

(7) Summary and Suggestions for Intercomparison

As stated above, personnel dosimetry in our country is done by using film badges or TLD badges in several organizations. The measuring accuracy of personnel dose is kept at a high level by each quality assurance based on the traceability system of our country.

To assure and keep the accuracy of personnel dosimetry, the following three conditions are necessary:

- 1) The quality of dosimeter used is well controlled, and the radiation field for calibration of dosimeters has traceability to the national standard.
- 2) Instruments for reading are controlled and maintained in good condition; they are checked and recalibrated in respect to their performance at necessary intervals.
- 3) Personnels completely understand the characteristics of instruments and are well-trained for the use of them.

Intercomparison should be carried out for the dosimeters which satisfy these three conditions in order to confirm the maintained precision.

Although intercomparison between personnel dose measuring organizations has not yet been performed in Japan, in the near future, the need to plan an intercomparison programme may arise upon request from measuring organizations themselves or related societies.

In such a case, recommended intercomparison programme of IAEA[12] will be referred to.

# References

- [1] "Nuclear Safety White Paper(1988)":  
Nuclear Safety Commission (in Japanese)
- [2] "Statistics on the use of radiation in Japan(1987)":  
Japan Radioisotope Association
- [3] "News of Radiation Dose Registration Center for Workers",  
Vol.12 (1987) (in Japanese)
- [4] "Film Badge Letter", Vol.128(1988) :  
Nagase Landauer Ltd. (in Japanese)
- [5] "Film Badge News", Vol. 133(1987) :  
Chiyoda Safety Appliance Co. Ltd. (in Japanese)
- [6] ICRP Publ. 6 (1962)
- [7] ICRP Publ.26 (1977)
- [8] Ishiguro, H and Takeda, S :Hoken Butsuri, Vol.16, 305-316  
(1981) (in Japanese)
- [9] Ishiguro, H and Takeda, S :Hoken Butsuri, Vol.17, 27-36  
(1982) (in Japanese)
- [10] Ishiguro, H and Miyabe, K :Hoken Butsuri, Vol.18, 327-335  
(1983) (in Japanese)
- [11] ICRP Publ. 35 (1982)
- [12] IAEA-TECDOC-402 : "Personnel Radiation Dosimetry", (1987)  
241-242

## 4. 日本における個人放射線モニタリング

### — 個人線量計とその品質保証 —

動力炉・核燃料開発事業団

○二之宮 和 重

#### 1. 概 要

日本における個人放射線モニタリングの現状として、個人モニタリングの体制、個人線量計の特性、トレーサビリティ及び品質保証等について記す。

個人モニタリングとしては外部被ばくのモニタリングと内部被ばくのモニタリングがあり、モニタリングの対象とする放射線にもX線、 $\gamma$ 線、 $\beta$ 線、n線その他があるが、ここでは特にX線、 $\gamma$ 線を中心として、全身の個人外部被ばくモニタリングについて記す。

#### 2. はじめに

日本における個人放射線モニタリングの対象者数は現在、医療、研究・教育、原子力及び一般工業を合わせて合計27万人程度である。これらの放射線作業者は、それぞれの職種に応じて適用される法令のもと、適切な個人モニタリングが行われ、法令で定められた線量限度を超えないことはもちろん、ALARAの原則に則り、できるだけ放射線被ばく線量が少なくなるように管理されている。

使用されている個人線量計はフィルムバッジ及びTLDが主である。線量測定は、JAERIやPNCのような国立機関のように自前で測定・評価を行う機関のほか、数社の線量測定サービス業者によって行われているが、いずれも我が国のトレーサビリティ体系のもと独自の高度な品質保証体系により、線量の測定精度は高い水準に維持されている。

#### 3. 個人モニタリングの対象者数及び個人モニタリングの体制

現在我が国では35基の発電用原子炉が稼動しており、放射性物質の使用事業者数も4,630に達している。その他、使用済燃料の再処理工場1カ所をはじめ、核燃料物質の使用施設、加工施設も数多く存在し、今後ともその数はますます増加することが予想されている。

これらの施設の放射線作業従事者として、現在、個人モニタリングの対象者数はTable. 1に示すとおりであり、医療、研究・教育、原子力及び一般工業を合わせて約27万人と推定される。

原子力の国家研究・開発機関(JAERI、PNC)や、一部の原子力発電所では個人モニタリングのための線量測定を自前で行っているが、他の大部分の事業所では線量測定業務を測定サービス業者に委託している。

線量測定サービス業者としては、現在、大手のものとして2～3社があり、その他、より小規模

のものも若干存在する。

#### 4. 法令による個人の線量当量限度

放射線障害防止に関わる我が国の法律には大きく分けて①核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律、②放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律、③労働安全衛生法の3つの法律がある。

これらの法律に基づいて、その下部の規則、告示等で放射線作業者の「許容線量」が定められている。

これらの現在の法律は、その基本的考え方をICRP Publ. 6 (1962)によっており、放射線作業者の許容集積線量として $D = 5 (N - 18)$ を、許容被ばく線量として全身に対して3レム/3カ月を定めている (Table. 2)。

1989年4月より、ICRP Publ. 26 (1977)を取り入れた法令改正が施行されることとなっており、従来の許容集積線量は廃止され、放射線業務従事者に対して実効線量当量が50 mSv/年、眼の水晶体に対して150 mSv/年、その他の組織について500 mSv/年の限度が採用される (Table. 3)。

#### 5. 個人線量計の種類と特性

個人線量計にはフィルムバッジ、TLD、蛍光ガラス線量計、ポケット線量計、アラームメータなどがあるが、①測定目的、②放射線の種類とエネルギー、③放射線作業の性質等を考慮して、最適な線量計を選択しなければならない。

個人モニタリングの目的で、比較的長期間 (1カ月または3カ月) の被ばく線量を測定する個人線量計としては、フィルムバッジまたはTLDが広く用いられる。ポケット線量計やアラームメータは高被ばくが予想される場合や、毎日の作業後の確認用として用いられることが多い。また、最近では原子力発電所などの大規模施設では管理区域への出入り管理用としてTLDを用い、TLDリーダーとコンピュータを直結させて管理区域入域のつど被ばく線量を測定するものも用いられている。

以下に現在広く用いられているフィルムバッジ及びTLDの特性について記す。

##### (1) フィルムバッジ

##### ① フィルムバッジの構造

現在、我が国で使用されているフィルムバッジには数種類のものがあり、バッジ用フィルムとしては、富士写真フィルム (株) 製のX線、 $\gamma$ 線用フィルムやコダック社製のフィルムがある。

Fig. 1に、JAERI type IVのフィルムバッジの構造を示す。このフィルムバッジはJAERIにおける公式個人線量計として現在用いられているもので、 $\beta$ 線測定用としてプラ

スチックの3種類のフィルター、 $\gamma$ 線測定用としてSnとAlの2種類のフィルターを有しているほか、熱中性子線の測定及びNTAフィルムによる速中性子線の測定が行われる。また、事故時用に放射化フォイル等が設置されている。

## ② フィルムバッジによる線量評価法

線量は、基準照射によって得られた線量と濃度の関係を示す曲線（特性曲線）を用いて求められる。 $\gamma$  (X) 線の線量は、異なったフィルター下の等価線量の比から $\gamma$  (X) 線のエネルギーを判定し、そのエネルギーに対する感度を基にして求めることができる。しかしながら、多数のフィルムをすべてこの方法で線量評価することは大きな労力を必要とし実用的でないの、以下に示すエネルギー依存性の補正が行われる。

$$Dr = k_1 [Sn + Pb] + k_2 [Cu] + k_3 [Al] + k_4 [O. W.] \text{ --- ①}$$

ここに $k_1 \sim k_4$  : 定数

[Sn + Pb] : Sn + Pbフィルター下の等価濃度

[Cu] : Cuフィルター下の等価濃度

[Al] : Alフィルター下の等価濃度

[O. W.] : Open Window下の等価濃度

## ③ フィルムバッジの特性

①式を用いて $\gamma$  (X) 線のエネルギー依存性を改善した結果をFig. 2に示す。

この場合のエネルギー依存性は約±20%である。

フィルムバッジによる線量測定範囲はX線に対して0.1 mSv ~ 40 mSv、 $\gamma$ 線に対して0.1 mSv ~ 60 mSv 程度であり、現像方法を変えればその10倍程度まで、測定は可能である。

## ④ フィルムバッジにおける評価誤差の要因

フィルムバッジにおける評価誤差の要因として大きなものは次のものがあり、使用にあたってはこれらのことを考慮に入れなければならない。

### 1) フェーディング

………空気中の水分の影響が大きく、温度・湿度との関連が重要。

→防湿包装を行えば通常は無視できる。

### 2) ばらつき

………生産ロットのちがいによるばらつき

→1回の測定では同じ生産ロットのフィルムを使用する。

### 3) 高エネルギー $\gamma$ 線の寄与

………原子炉における $^{16}\text{N}$  (6 MeV  $\gamma$ 線) 等の高エネルギーの $\gamma$ 線に対しては、フィルム感度が著しく増大する。

→作業場に応じた校正を行う。

## (2) TLDバッジ

## ① TLDバッジの構造

TLD用の蛍光体としては、 $\text{LiF}$ 、 $\text{CaF}_2$ 、 $\text{CaSO}_4$ 、 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  等があり、現在、種々のタイプの線量計が市販され、世界各国で使用されている。ここでは、特に、PNCと松下電器（株）によって開発された、全自動読み取り型TLDシステムについて記す。

Fig. 3にPNCタイプのTLDバッジの構造を示す。本TLDバッジは、現在PNCの全ての施設及び一つの原子力発電所で公式の個人線量計として用いられているもので、 $\beta$ 線、 $\gamma$ （X）線、熱中性子、熱外中性子、高速中性子の分離測定が可能である。

TLD素子は、 $\beta$ 線及び $\gamma$ （X）線用に4個、中性子用に4個あり、 $\beta$ 線用に異なった厚みのプラスチックフィルターを有した2個の $^7\text{Li}$ 、 $^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ （Cu）、 $\gamma$ 線用に1000 mg/cm<sup>2</sup>のプラスチックフィルターを有した $^7\text{Li}$ 、 $^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ （Cu）と $\text{CaSO}_4$ （Tm）が用いられる。

また、本TLDバッジでは熱中性子に対して感度の高い $^6\text{Li}$ 、 $^{10}\text{B}_4\text{O}_7$ （Cu）と、熱中性子にほとんど感度を持たない $^7\text{Li}$ 、 $^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ （Cu）を用い、CdとSnフィルターを組み合わせることによって熱中性子、熱外中性子、高速中性子の評価が可能である。高速中性子の検出は、人体に入射して体からはね返る熱中性子（アルベド中性子）を検出することによって行われる。

## ② TLDバッジによる線量評価法

一般に、 $\gamma$ （X）線による被ばく線量はTLDの測定値から次式で求められる。

$$D\gamma = f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot (L - C) \quad \text{--- ②}$$

ここで  $D\gamma$  : 線量当量

$L$  : TLD素子の発光量

$C$  : TLDのバックグラウンド発光量

$f_1$  : 素子の発光量から線量当量への変換係数

$f_2$  : エネルギー依存性の補正係数

$f_3$  : フェーディング等誤差要因に対する補正係数

PNC type のTLDバッジでは通常の使用条件では上記の係数のうち $f_1$ 及び $f_3$ は実質上1と考えてよく、TLD素子の発光量より直接線量当量が求められる。 $f_1$ については通常、 $^{137}\text{Cs}$ の標準線源を用いて $f_1 = 1$ となるようにTLDリーダーの校正が行われる。

## ③ TLDバッジの特性

TLDバッジの測定範囲は $\gamma$ （X）線に対しては30 keV～2 MeVのエネルギー範囲において、最低0.1 mSvから10 mSvに渡って測定が可能であり、照射線量と読取線量の比例関係も極めて良好である。

また、TLDバッジの $\gamma$ （X）線に対するエネルギー特性をFig. 4に示す。本図はTLD

バッジをファントムに装着した場合のデータであり、 $1000 \text{ mg/cm}^2$  のフィルター下の  $\text{Li}$ 、 $\text{B}$ 、 $\text{O}$  の読み取り値は  $1 \text{ cm}$  線量当量に極めて近い特性が得られている。

#### ④ TLD バッジにおける評価誤差の要因

TLD を用いて個人モニタリングを行う際に特に考慮に入れなければならないことは、次の点である。

##### 1) TLD 素子の感度のばらつき

.....・製造ロットのちがいによるばらつき

・同一ロット内でも蛍光体、アクチベータの量の多少によるばらつき

→TLD 素子の受入検査等の品質管理

##### 2) TLD リーダーの安定性

.....・光学系のよごれ

・フォトマルの劣化

→試験用標準光源による感度確認および定期的な校正

## 6. 品質保証

品質保証とは、モニタリングプログラムの結果に十分な信頼性を与えるのに必要な、計画された組織的な行為のことである。

ICRP Publ. 35 (1982) では、品質保証プログラムの計画にあたって考慮すべき因子が示されているが、個人モニタリングに関してそれらをまとめると、次のように言うことができる。

1) 使用する線量計の品質が良好であり、線量計を校正する放射線場が国家標準とトレーサビリティを有すること。

2) これらの計測器はよい状態に保守・管理され、必要な頻度で性能のチェック及び再校正がなされていること。

3) 職員は計測器の特性を十分理解し、その使用について適切な訓練を受けていること。

#### (1) トレーサビリティ

個人線量計の校正に際して用いられる放射線源または基準放射線測定器は、国家標準（国際比較を通じて、その精度が確かめられる）とのトレーサビリティを有している必要がある。Fig. 5 に我が国の  $\gamma$  (X) 線用測定器のトレーサビリティ体系図を示す。

$\gamma$  (X) 線に対しては、トレーサビリティは照射線量を基に確立されており、主な校正室には国家標準で直接校正された 1 次基準線量計が備えられている。個人線量計は、これら 1 次基準線量計または、2 次基準線量計で値付けされた放射線場で校正が行われる。

#### (2) 個人線量測定機関における品質管理

個人線量計に用いられるフィルム、TLD 等は JIS に基づいて製品化され市販されているが、個人線量計測定機関においても、フィルムバッジ、TLD バッジを問わず厳格な品質管理体制が

とられている。

例として、PNCにおけるTLDバッジ及びTLDリーダーの品質管理プログラムをTable.4に示す。TLDは購入時及びその後1年に1回、外観検査、ゼロ・ドーズ確認及び $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$ 線に対する感度試験が行われる。

また、TLDリーダーについて日常点検、月例点検、リーダーのオーバーホールが行われる。

フィルムバッジを使用している個人線量測定機関においても、独自にフィルム及びフィルム現像装置の品質管理がきめ細かに行われている。

## 7. まとめ及び個人線量計の相互比較のための提言

以上のように、我が国の個人線量計測は、フィルムバッジまたはTLDバッジを用いて、数か所の個人線量測定機関によって行われているが、いずれも、我が国のトレーサビリティ体系と独自の高度な品質保証体制により、線量の測定精度は高い水準に維持されている。

個人線量計測の精度を確保し、維持するためには、

- 1) 使用する線量計の品質が良好であり、線量計を校正する放射線場が国家標準とトレーサビリティを有すること。
- 2) これらの計測器はよい状態に保守・管理され、必要な頻度で性能のチェック及び再校正がなされていること。
- 3) 職員は計測器の特性を十分理解し、その使用について適切な訓練を受けていること。

の3条件が必要である。

相互比較は、これらの3条件が整い、日常の線量計の精度が維持されているものについて、それを確認するために補助的に行われるべきものである。

日本においては、未だ個人線量測定機関相互の比較は行われていないが、今後、測定機関自体または社会的な要請に基づいて相互比較プログラムを立案する必要性が生じてくるかもしれない。その際には、IAEAで推薦された相互比較プログラムが参考となろう。

(Fig., Tableについては英語版を参照のこと。)



## 5. 環境中でのトリチウムの動態について

動力炉・核燃料開発事業団

○住谷 秀一、渡辺 均、○片桐 裕実、成田 備

### 1. 概 言

動力事業団においては、大気、雨水、土壌水及び植物中のトリチウム濃度の分布から環境中でのトリチウムの動態に関する調査研究を実施してきている。

本報では、トリチウム水について、大気、土壌水等から植物への移行についてこれまで得られた結果を報告する。

### 2. 調査研究の概要

#### (1) 採取及び分離方法

検討に用いた試料は、東海事業所内の定点及び事業所周辺において採取したものをを用いた。

##### ① 大 気：

モレキュラーシブ、低トリチウム水電解セル、パラジウム等からなるサンプリング装置（図1）により、1週間毎にHTO、HTを分離捕集し、蒸留精製した後一定量を測定試料とした。

##### ② 雨 水：

受水面積 500  $\text{m}^2$  の降水採取装置により月毎に採取し、蒸留精製した後一定量を測定試料とした。

##### ③ 植 物：

植物試料として松葉及び葉菜を用いた。松葉は1年目の葉と思われる部分を松から直接採取し、葉菜は事業所周辺の畑から直接採取した。

採取した試料は真空凍結乾燥器で自由水（TFWT）を捕集し、その後、乾燥試料を図2に示す石英二重管内において酸素気流中で燃焼させ、その燃焼水を組織結合水（TBW）として捕集した。捕集した試料はそれぞれ $\text{Na}_2\text{O}_2$ または $\text{KMnO}_4$ を加え蒸留精製した後一定量を測定試料とした。

##### ④ 土 壌 水：

植物を採取した付近において表層5 cmの土壌を採取し、真空凍結乾燥器で土壌中に含まれる水分を捕集した。捕集した土壌水は蒸留精製した後一定量を測定試料とした。

#### (2) 測定方法

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（Aloka LSC-LB1）を用い、測定時間500分（50分×10回）の測定を実施した。

### 3. 結 果

大気中のHTO及びHTの経年変化を図3に示す。

大気中のHTOは、大気中の湿分量との相関があり、夏期の多湿時期に高く、冬期の乾燥時期に低くなる傾向を有することが知られているが、1985年からの測定結果においても、同様の傾向を示している。また、年平均値は各年とも殆ど一定で、およそ $1 \text{ pCi}/\text{m}^3$  ( $37 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ )であった。

また、HTはHTOに見られる様な季節による大きな変動は見られず、年間を通してほぼ一定で、HTOと比較して若干高い値であった。

大気中トリチウムの変動調査と合わせて実施した植物（松葉、葉菜）及び土壌水中のトリチウム濃度測定結果を表1、表2に示す。

松葉中のTFWT濃度は平均 $98 \text{ pCi}/\text{g}$  ( $56 \sim 150 \text{ pCi}/\text{g}$ )で、TBT濃度は平均 $200 \text{ pCi}/\text{g}$  ( $150 \sim 250 \text{ pCi}/\text{g}$ )であった。松葉中のTFWT濃度について、同時期の大気及び土壌水との関連を見てみると、若干ではあるが大気及び土壌水と比較して低いレベルであり、大気とは図4に示す様に正の相関（相関係数：0.77）が見られた。

葉の表面で起こる大気水蒸気との交換反応、根から葉への水の移動等を考慮すると、TFWT濃度は土壌水と近い値を示すものと考えられたが、実測値は低くなる傾向を示した。このことは松の根域が深く低レベルの地下水等の摂取により希釈されたためと考えられる。

また、TBTとTFWTの濃度比は、平均で2.2 ( $1.2 \sim 3.2$ )という値であった。同比が1を超えている例はこれまでも報告されており<sup>1</sup>、この原因については、環境トリチウムレベルが高い時期に形成された有機物の取込み等によるとの考えもあるが<sup>2</sup>、まだ明確な機構の解明はなされていない。

一方、葉菜中のTFWT濃度は平均 $80 \text{ pCi}/\text{g}$  ( $44 \sim 98 \text{ pCi}/\text{g}$ )で、TBT濃度は平均 $130 \text{ pCi}/\text{g}$  ( $96 \sim 170 \text{ pCi}/\text{g}$ )であり、TBTとTFWTの濃度比は、平均で1.7 ( $1.1 \sim 2.5$ )と松葉より若干低い値が得られた。

また、葉菜のTFWTと土壌水の濃度は松葉と比較し良く一致した値が得られた。このことは葉菜の根域が松に比べて浅く表層土壌から水分を摂取しているためと考えられる。

#### 4. 今後の課題

今回の調査から得られた植物（松葉、葉菜）及び土壌水中のトリチウム濃度は変動幅が大きく、環境中でのレベル及び動態を把握するためには、さらにデータの蓄積を図ることが必要である。

また、植物の燃焼方法及び試料の精製方法について今後も検討し測定精度の向上を図ることが必要である。

#### 参考文献

- 1) 高島良正他：昭和 62 年度文部省科研費 核融合特別研究  
「環境トリチウムの変動測定とその解析」
- 2) 岡田重文他：昭和 62 年度文部省科研費 核融合特別研究  
「トリチウム資料集・1988」

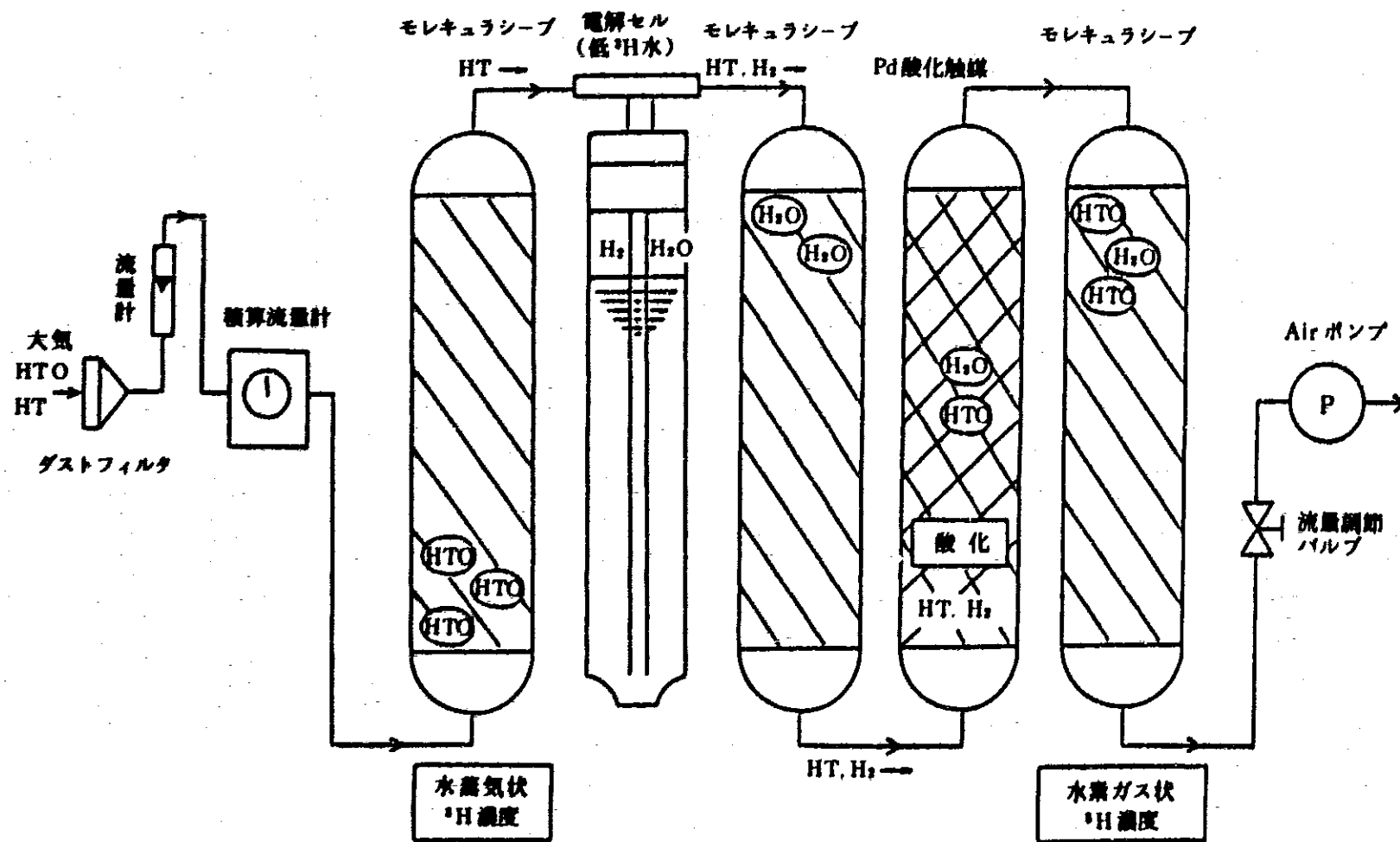


図1 大気中トリチウムサンプラ系統図

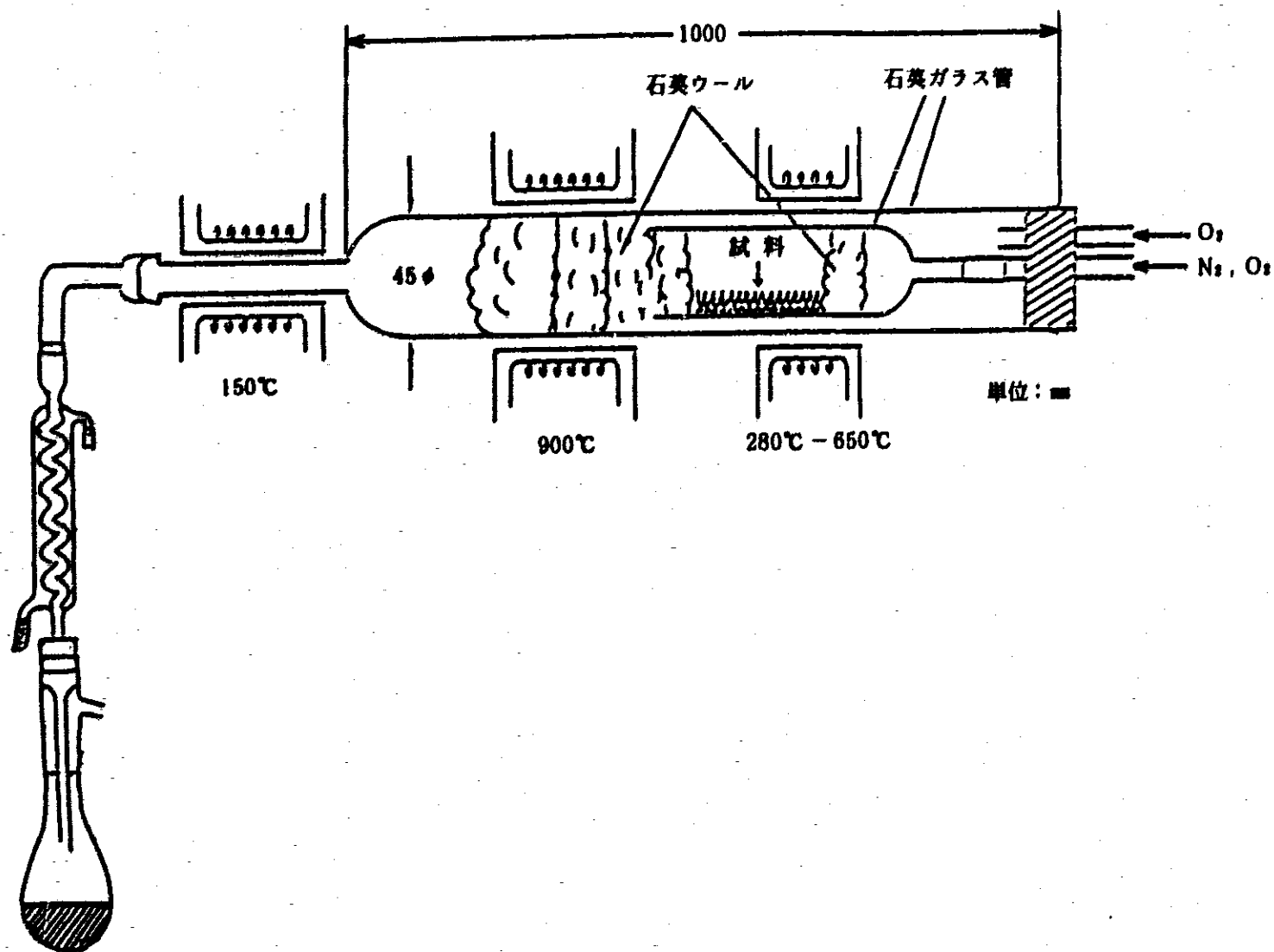


図2 試料燃焼装置

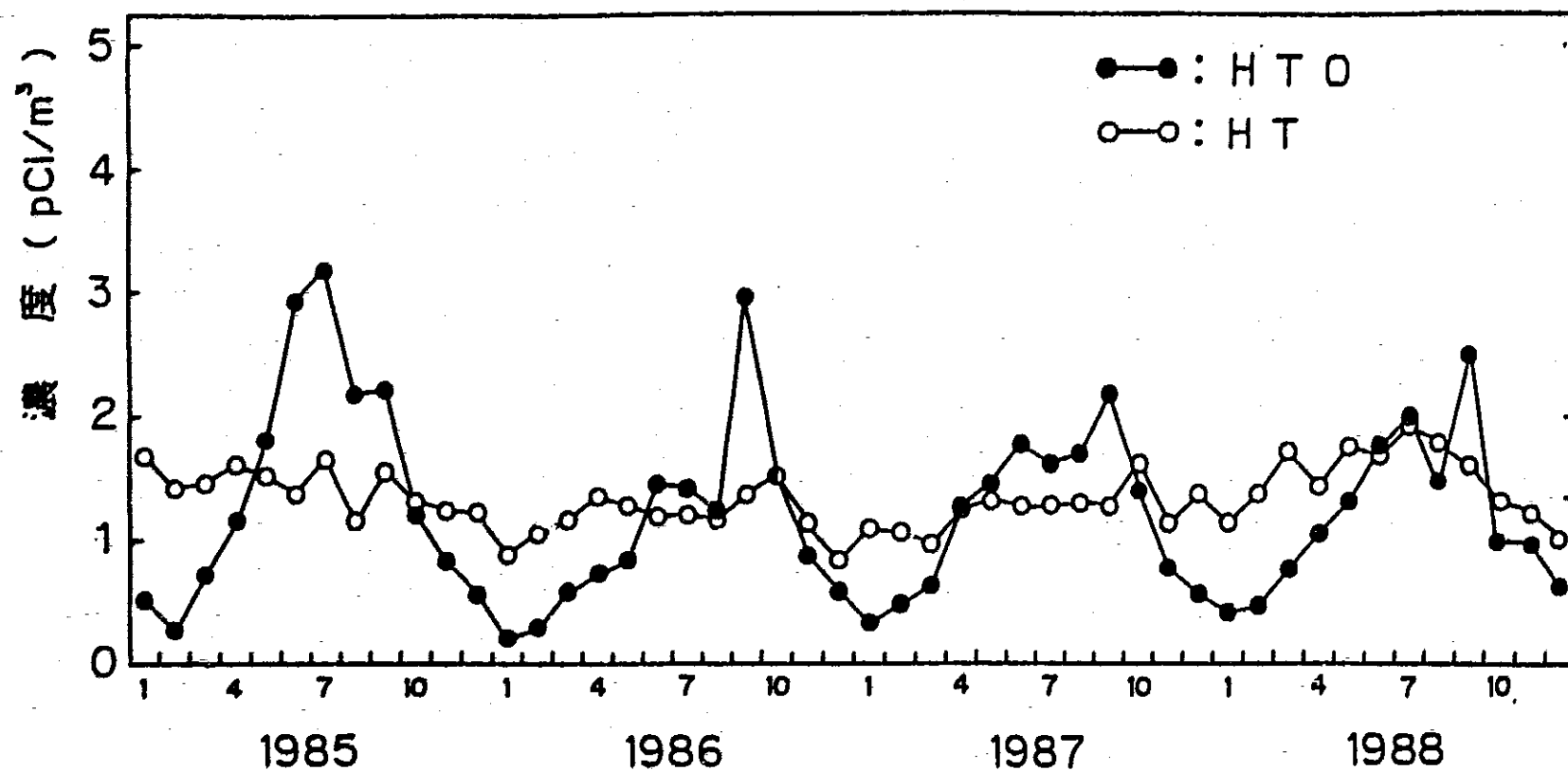


図3 大気中HTO及びHTの経年変化

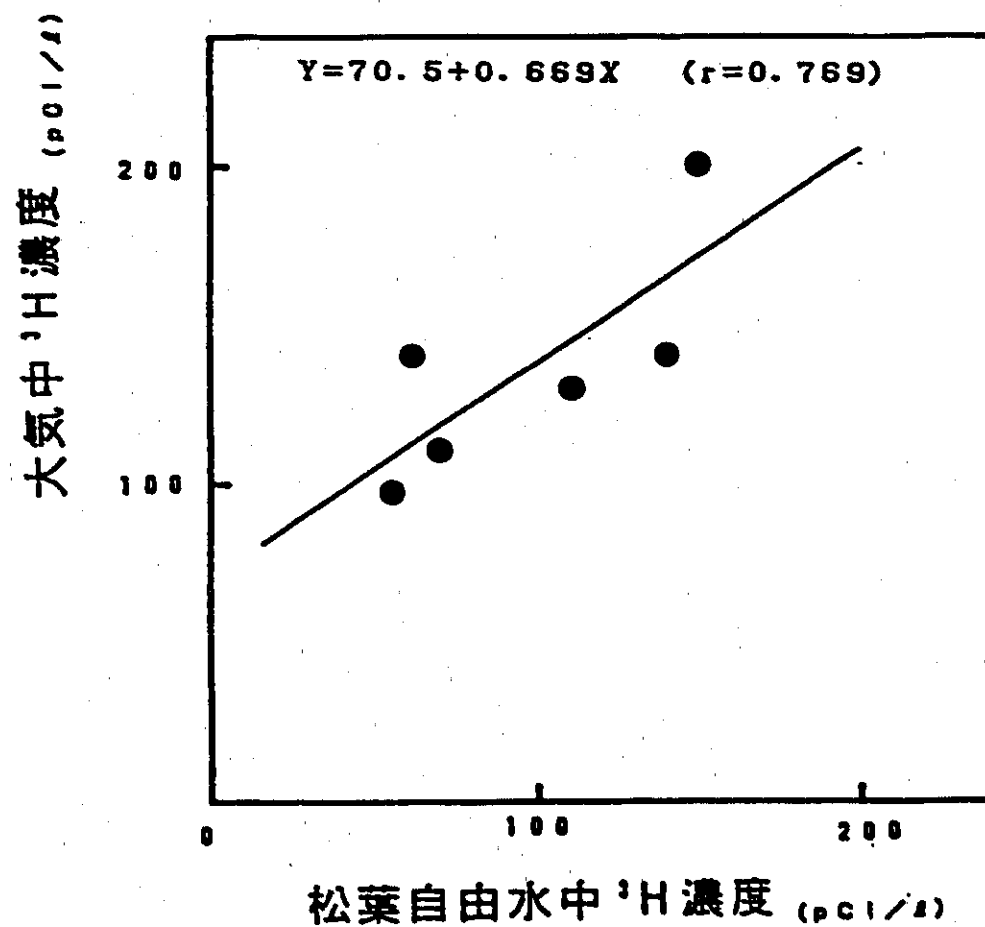


図4 松葉自由水と大気中 HTO 濃度の関係

表1 松葉及び土壌中のトリチウム濃度

pCi/ℓ  
(Bq/ℓ)

試 料	採 取 月	組 織 自 由 水 ①	組 織 結 合 型 水 ②	② / ①	土 壌 水	大気中トリチウムHTO	雨 水
松葉-1	1987年6月	62 ± 7.9 (2.3 ± 0.3)	150 ± 19 (5.6 ± 0.7)	2.4		140 (5.2)	77 (2.8)
松葉-2	1987年7月	56 ± 7.6 (2.1 ± 0.3)	180 ± 14 (6.7 ± 0.5)	3.2		97 (3.6)	88 (3.3)
松葉-3	1987年12月	71 ± 12 (2.6 ± 0.4)	170 ± 14 (6.3 ± 0.5)	2.4	140 ± 13 (5.2 ± 0.5)	110 (4.1)	86 (3.2)
松葉-4	1988年4月	150 ± 10 (5.6 ± 0.4)	190 ± 11 (7.0 ± 0.4)	1.3	130 ± 10 (4.8 ± 0.4)	200 (7.4)	170 (6.3)
松葉-5	1988年5月	140 ± 10 (5.2 ± 0.4)	230 ± 12 (8.5 ± 0.4)	1.6	220 ± 10 (8.1 ± 0.4)	140 (5.2)	75 (2.8)
松葉-6	1988年6月	110 ± 10 (4.1 ± 0.4)	250 ± 11 (9.3 ± 0.4)	2.3	130 ± 10 (4.8 ± 0.4)	130 (4.8)	43 (1.6)



表2 葉菜及び土壌中のトリチウム濃度

pCi/l  
(Bq/l)

試 料	採 取 月	組 織 自 由 水 ①	組 織 結 合 型 水 ②	② / ①	土 壌 水	大気中トリチウムHTO	雨 水
葉菜-1	1988年1月	95 ± 8.5 (3.5 ± 0.3)	170 ± 28 (6.3 ± 1.0)	1.8	72 ± 8.4 (2.7 ± 0.3)		
葉菜-2	1988年4月	98 ± 10 (3.6 ± 0.4)	150 ± 14 (5.6 ± 0.5)	1.5	98 ± 9.8 (3.4 ± 0.4)		
葉菜-3	1988年4月	95 ± 9.8 (3.5 ± 0.4)	130 ± 28 (4.8 ± 1.0)	1.4	100 ± 10 (3.7 ± 0.4)	160 (5.9)	54 (2.0)
葉菜-4	1988年4月	58 ± 9.5 (2.1 ± 0.4)	98 ± 13 (3.6 ± 0.5)	1.7	30 ± 9.4 (1.1 ± 0.3)		43 (1.6)
葉菜-5	1988年10月	44 ± 13 (1.6 ± 0.5)	110 ± 26 (4.1 ± 1.0)	2.5	88 ± 14 (3.3 ± 0.5)	80 (3.0)	24 (0.89)
葉菜-6	1988年11月	91 ± 9.5 (3.4 ± 0.5)	96 ± 13 (3.6 ± 0.5)	1.1	100 ± 14 (3.7 ± 0.5)		

注) 葉菜-1: 白菜      葉菜-2, 3, 4: ホウレン草      葉菜-5, 6: キャベツ

## 6. 環境におけるヨウ素の移行に関する研究

動力炉・核燃料開発事業団

○片桐 裕実, 成田 脩, 北原 義久

## 1. はじめに

再処理施設の運転に伴って環境へ放出される I-129 から周辺住民が受ける被ばく線量については、施設からの放出量及び環境中での挙動等を考慮した被ばく線量評価モデルによって計算され、そのうち、大気中へ放出された I-129 による被ばく経路としては、直接植物体の葉基部、開花中の花部、成熟途中の子実部等に付着し捕捉されて可食部へ取り込まれる経路、及び大気から一旦土壤に沈着した物が根部から吸収され可食部へ取り込まれる経路が考えられている。

これを評価モデルで示すと以下のように示される。

$$C = X \cdot V_g \cdot \left[ \frac{r (1 - e^{-\lambda_e t_e})}{Y \cdot \lambda_e} + \frac{B (1 - e^{-\lambda t_b})}{P \cdot \lambda} \right] e^{-\lambda t_b}$$

但し、C : 葉菜等のヨウ素-129濃度 (Bq/g・生)

X : 空気中濃度 (Bq/cm<sup>3</sup>)

V<sub>g</sub> : 沈着速度 (cm/s)

r : 直接沈着による可食部への移行率

B : 土壤から可食部への移行率 (Bq/g・生 / Bq/g・乾)

Y : 栽培密度 (g/cm<sup>2</sup>)

P : 土壤有効面密度 (g・dry/cm<sup>2</sup>)

このように、被ばく線量評価モデルの中では各種のパラメータが用いられているが、特に r 及び B については十分な基礎データが無い現状にあり、NRC Reg guide 1-109 等の値を参考とした保守的な評価がなされてきている。このため、動燃事業団においてはより現実的な被ばく線量評価を行う観点から、フィールドデータを基にした放射性気体廃棄物の大気放出に係る移行パラメータについて調査研究を実施して来ている。

本報では、I-129 の被ばく線量評価上重要な経路である原乳、精米、葉菜等に関する移行パラメータのうち、r (大気から直接沈着した放射性物質の可食部への移行率：但し、植物中ヨウ素-129濃度と大気中ヨウ素-129濃度との比の形で) 及び B (大気から土壤に沈着した放射性物質の可食部への移行率) について報告する。

## 2. 方 法

### (1) I-129 の分析手法

各種環境試料中 I-129 濃度は、燃焼法により試料からヨウ素を分離し、臭素を分離する化学処理を行った後放射化分析法により定量した。図-1 に土壤試料を例とした分析フローを示す。

大気試料の場合は I-129 を捕集した活性炭カートリッジを、原乳の場合は I-129 を捕集したイオン交換樹脂を、また、葉菜、精米は乾燥させた試料を同様に処理した。

移行率は以下の考え方に基づいて算出した。

- ・ 空気中から原乳等への移行率

$$\text{移行率} = \frac{\text{原乳等のヨウ素-129濃度} - \text{土壤経路による寄与分}}{\text{空気中ヨウ素-129濃度}}$$

ここで、試料中の濃度から土壤経路による寄与分を差し引いて、空気中からの移行部分のみを評価した。

この土壤経路の寄与分の算出は、植物等の栽培されている土壤中の濃度に安全審査で用いた移行パラメータ ( $2 \times 10^{-2}$ ) を掛け合わせる事によって算出した。但し、精米については、水田土の測定を行っていないため、単純に精米中濃度を空気中濃度で割った値を示している。

また、大気中濃度は対象試料に応じた栽培期間における I-129 の放出量およびその期間の気象データから拡散計算によって得られた結果を基に算出した。

- ・ 土壤からの移行率

葉菜中のヨウ素-129 と安定ヨウ素の原子比は、土壤の原子比の一部と大気の原子比の一部との和と考えられることから以下の式により算出した。

$$\text{土壤から葉菜への移行率} = \frac{\text{葉菜中ヨウ素-129濃度} \times A}{\text{土壤中ヨウ素-129濃度}}$$

但し、A は葉菜中ヨウ素-129 の原子比を考えた場合の土壤からの寄与分を示す。

$$[\text{葉菜中の原子比} = \text{土壤の原子比} \times A + \text{大気の原子比} (1 - A)]$$

### (2) 安定ヨウ素の分析手法

試料中の安定ヨウ素の分析法は、精米については放射化分析法、葉菜については炭酸塩ばい焼-イオン電極法により定量した。土壤に関しては、炭酸塩ばい焼-イオン電極法により定量し、全ヨウ素および水田土についてのみ移行に寄与すると考えられる可給態（水で 14 日間のインキュベーションを行った条件で浸出されたもの）についても定量した。

移行率の算出は、葉菜等（生）の安定ヨウ素濃度を栽培土壤（乾）の安定ヨウ素濃度で割ったものを移行率とした。

### 3. 結 果

#### (1) 大気から植物へ直接沈着した放射性物質の可食部への移行率

表-1 に直接沈着した放射性物質の可食部への移行率の算出結果を示す。

原乳では平均  $2.5 \times 10^5$  , 葉菜では平均  $6.7 \times 10^5$  , また、精米では何れの試料からも検出されなかった為にその時の検出下限値から算出したが、平均で  $4.5 \times 10^5$  という結果であった。また、土壌への沈着率は平均  $1.0 \times 10^5$  という結果であった。

#### (2) 大気から土壌に沈着した放射性物質の可食部への移行率

##### ・ヨウ素-129の濃度からの算出

表-2 に土壌に沈着した放射性物質の可食部への移行率の算出結果を示す。

葉菜（種類はハウレン草）では平均が  $1.2 \times 10^{-2}$  であった。

##### ・安定ヨウ素濃度からの算出

表-3 に安定ヨウ素濃度から算出した移行率の算出結果を示す。

葉菜についてはハウレン草で平均が  $6.7 \times 10^{-3}$  , 白菜で平均が  $2.6 \times 10^{-3}$  , また、精米については、全ヨウ素で平均が  $1.1 \times 10^{-3}$  , 水溶性ヨウ素で平均が  $7.4 \times 10^{-3}$  , という結果であった。

### 4. 考 察

#### (1) 大気から植物等へ直接沈着した放射性物質の可食部への移行率

表-1 の結果を見ると、これらは全てフィールドデータで実際の環境を反映していることから降雨の効果も含んでいる訳であるが、いずれの環境試料においても平均値で約一桁、特に精米については一桁以上低い値であった。このことは、大気中へ放出されたヨウ素-129 が試料に直接沈着して可食部へ移行する割合はこれまで報告されている NRC Reg guide 1-109 等の評価結果に比較して極めて低いことを示している。

また、土壌については比較的良く一致していることからすると、大気拡散及び沈着に関しては現実的なモデルであることが判る。

#### (2) 大気から土壌へ沈着した放射性物質の可食部への移行率

NRC Reg guide 1-109 においては  $2 \times 10^{-2}$  が用いられており、近年の報告でも、これに近い値として DOE/TIC-11468<sup>1)</sup> においては  $5.5 \times 10^{-2}$  が、また、IAEA TECDOC-401<sup>2)</sup> においては  $2 \times 10^{-2}$  が報告されている。これに対し、今回のヨウ素-129 から算出した移行率については比較的良く一致したが、安定ヨウ素から算出した移行率については若干低い結果であった。これは、安定ヨウ素からの結果が、土壌中のマトリックスに閉じ込められている物も含めた全ヨウ素を基準としているのに対して、ヨウ素-129 については、環境へ供給されてからの期間が短いために、土壌のマトリックスに取り込まれず可給態に近い形で存在しているものであることに起因すると考えられる。

また、精米についてはさらに約一桁低いレベルであった。これは、これまでの報告が葉菜等の可食部を対象としているが、穀類は葉菜等に比較してヨウ素が移行しにくいことによるものと考えられる。

我が国の場合、ヨウ素の被ばく経路を考える上で精米は重要であるが、移行に関する報告例は少ない。今回得られた結果を、全ヨウ素について唯一の報告である高城らの報告<sup>3)</sup>  $1 \times 10^{-4} \sim 8 \times 10^{-3}$  と比較すると比較的近い値であった。

ヨウ素の水田での移行を考えた場合、可給態（水溶性ヨウ素）を考慮する必要があるものと考えられ、今回の結果からも全ヨウ素の場合に比べ約一桁高い結果となっているが、可給態については、現在のところ分析手法として明確なものは無く、浸出する条件等でも異なるため今後検討の必要性があるものと考えられる。

#### 参考文献

- 1) Models and parameters for environmental radiological assessments.  
DOE/TIC-11468, 31, 1984.
- 2) Exemption of radiation sources and practices from regulatory control,  
TECDOC-401, IAEA, Vienna, 1987.
- 3) 高城裕之, 木村敏正他; 水田土壌から米への安定ヨウ素の移行について  
保健物理 Vol 20, pp251-257, 1985.

表-1 大気から直接沈着した放射性物質の可食部への移行率

試 料	範 囲	幾何平均値	安全審査評価値
原 乳	$1.4 \times 10^4 \sim 2.8 \times 10^6$	$2.5 \times 10^5$	$1.5 \times 10^6$
葉 菜	$2.4 \times 10^5 \sim 1.7 \times 10^6$	$6.7 \times 10^5$	$6.8 \times 10^6$
精 米	$<4.1 \times 10^4 \sim <3.7 \times 10^6$	$<4.5 \times 10^5$	$4.9 \times 10^6$
土 壤	$8.7 \times 10^5 \sim 1.4 \times 10^6$	$1.0 \times 10^6$	$1.3 \times 10^6$

単位: Bq/ml または Bq/g 生 / Bq/cm<sup>2</sup>

注) 精米については土壌寄与分も含む

表-2 大気から土壌に沈着した放射性物質の可食部への移行率

試 料	範 囲	幾何平均値	安全審査評価値
ハウレン草	$5.5 \times 10^{-4} \sim 4.6 \times 10^{-2}$	$1.2 \times 10^{-2}$	$2.0 \times 10^{-2}$

単位: Bq/g・生 / Bq/g・乾

表-3 葉菜及び精米における土壌からβ安定ヨウ素の移行率

種 別	範 囲	幾何平均値
ホ ウ レ ソ 草	$3.7 \times 10^{-3} \sim 1.3 \times 10^{-2}$	$6.7 \times 10^{-3}$
白 菜	$1.2 \times 10^{-3} \sim 4.4 \times 10^{-3}$	$2.6 \times 10^{-3}$
精米(全ヨウ素)	$2.4 \times 10^{-3} \sim 4.5 \times 10^{-2}$	$1.1 \times 10^{-3}$
精米(水溶性ヨウ素)	$4.3 \times 10^{-3} \sim 1.6 \times 10^{-2}$	$7.4 \times 10^{-3}$

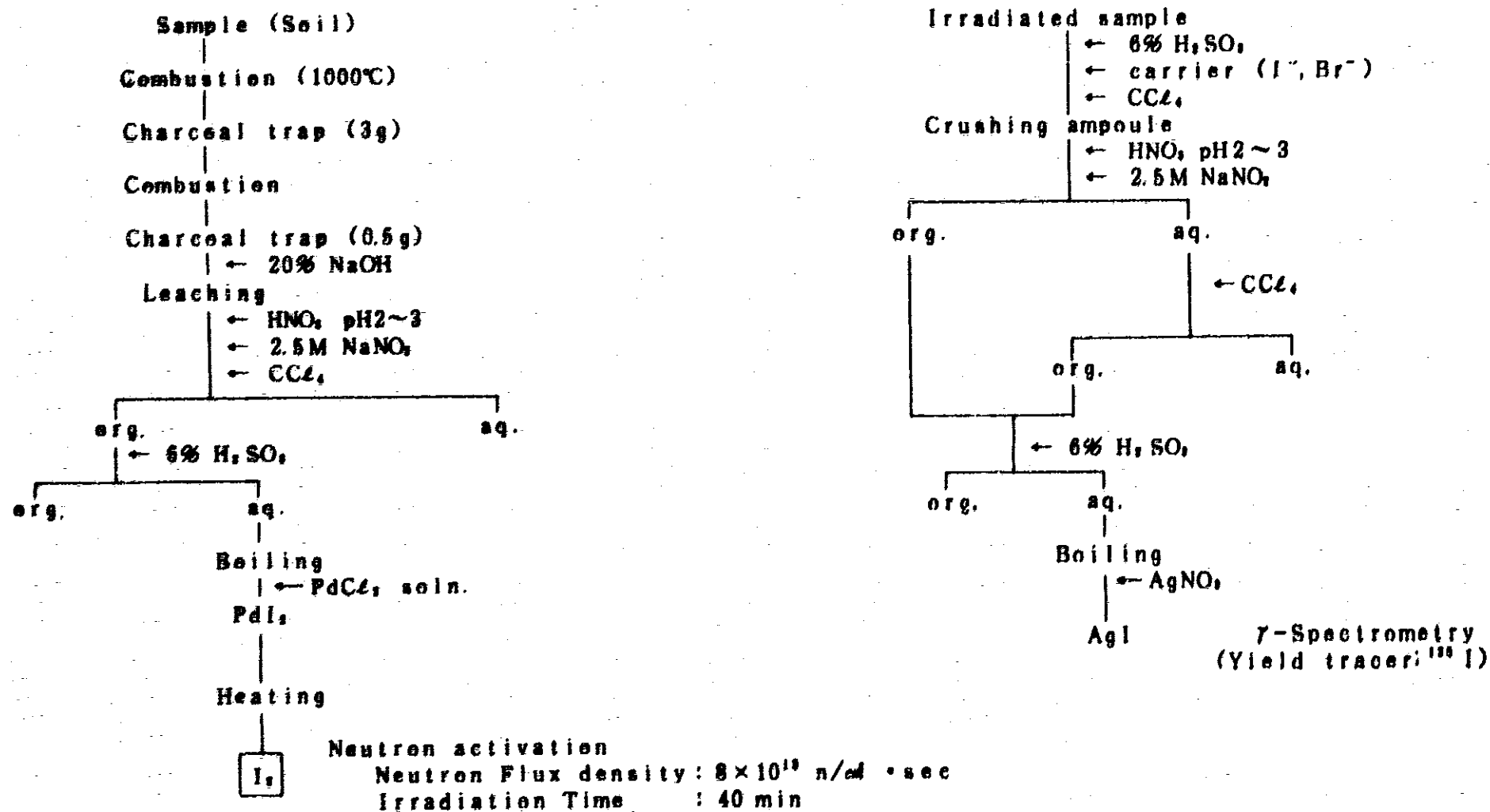


図-1 土壤中ヨウ素-129分析フロー

## 7. Environmental Radioactivity around Tokai-Works after the Reactor Accident at Chernobyl

Junichiro Ishida, Naoto Miyagawa, Hitoshi Watanabe,  
Tomohiro Asano and Yoshihisa Kitahara

Health and Safety Division, Tokai-Works,  
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation,  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan

(Received 13 April 1987; accepted 9 July 1987)

### ABSTRACT

Following the reactor accident at Chernobyl, environmental samples of air, rain water and agricultural and marine products were collected and analyzed by gamma- and alpha-spectrometry. The highest concentrations of  $^{131}\text{I}$  in the environmental samples were as follows:  $1.0 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$  (aerosol-associated in air);  $3.0 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$  (gaseous in air);  $2.1 \times 10^2 \text{ Bq kg}^{-1}$  (plants);  $1.4 \times 10^1 \text{ Bq litre}^{-1}$  (milk). Other nuclides such as  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{129\text{m}}\text{Te}$ ,  $^{132}\text{I}$ / $^{132}\text{Te}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ / $^{140}\text{La}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  and  $^{144}\text{Ce}$  were also observed in various environmental samples.  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  was only detected in marine products such as cephalopoda and shellfish.  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  originating from the accident were not identified.

Based on the monitoring results at one dairy farm, we have derived an equation to model the transport of  $^{131}\text{I}$  from pasture grass to milk. This equation was then applied to the data from two other farms around Tokai-Works and the calculated  $^{131}\text{I}$  activities in milk were compared with those measured. The equation shows good predictive capabilities for quantification of the peak concentrations of  $^{131}\text{I}$  in milk but underestimates longer-term activities.

### INTRODUCTION

Since 1977 an extensive environmental monitoring programme has been carried out around the reprocessing plant at Tokai-Works (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC)) located 120 km north of



*J. Ishida, N. Miyagawa, H. Watanabe, T. Asano, Y. Kitahara*

Tokyo. From 30 April 1986, after the reactor accident occurred at Chernobyl, this programme was accelerated, particularly with regard to air and rainfall sampling. The radionuclides originating from the accident were first detected in the rain of 3 May and thereafter we intensively monitored air, fallout, water, soil and agricultural and marine products around Tokai-Works, paying particular attention to activities of  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$ . Based on our measurements, we have derived an equation to predict the transport of  $^{131}\text{I}$  from pasture grass to milk (Kinoshita, 1986).

## METHODS AND RESULTS

### Air

Airborne particles and gaseous iodine were collected using a cellulose glass-fibre filter (Toyo HE-40T) in combination with an activated charcoal cartridge containing 10% triethylenediamine (Toyo CHC-50). The filter and cartridge were changed and measured daily starting on 30 April. The air flow rate was regulated at around 60 litres  $\text{min}^{-1}$ . Radioactivity was first measured by gamma-spectrometry.  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  were then analyzed after chemical treatment of composite filters.

$^{131}\text{I}$  and other gamma-emitting nuclides were detected for the first time in air sampled on 3-4 May at Tokai-Works. The concentration of the gaseous  $^{131}\text{I}$  was  $1.1 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$  and that of aerosol-associated  $^{131}\text{I}$  was  $9.3 \times 10^{-2} \text{ Bq m}^{-3}$ . The highest concentration of  $^{131}\text{I}$  was measured in air sampled on 8-9 May. Gaseous and aerosol-associated concentrations were  $3.0 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$  and  $1.0 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$ , respectively. The concentration of  $^{131}\text{I}$  decreased gradually after 9 May (Fig. 1). The concentration of aerosol-associated  $^{131}\text{I}$  declined during rainfall events to a greater extent than did gaseous  $^{131}\text{I}$ . The ratios of aerosol-associated  $^{131}\text{I}$  to gaseous  $^{131}\text{I}$  changed daily. The lowest ratio was less than 0.035 in the 29-30 May air sample and the highest was 1.0 on 25-26 May, as shown in Fig. 2 which also indicates the time and amount of precipitation. The average ratio during the observation period was 0.32. One of the reasons for this variance may have been caused, at least partly, by changes in the meteorological conditions, such as rainfall, which decreased the aerosol concentrations in the air (Fig. 1). Although gas-to-aerosol transformation of  $^{131}\text{I}$  might have happened during transit to Japan, if aerosols were preferentially scavenged by rainfall, the ratio may have changed depending on the generation and/or decrement of aerosol-associated  $^{131}\text{I}$ .

Other nuclides detected were  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{108}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{132}\text{I}/^{133}\text{Te}$ ,

## Environmental radioactivity around Tokai-Works

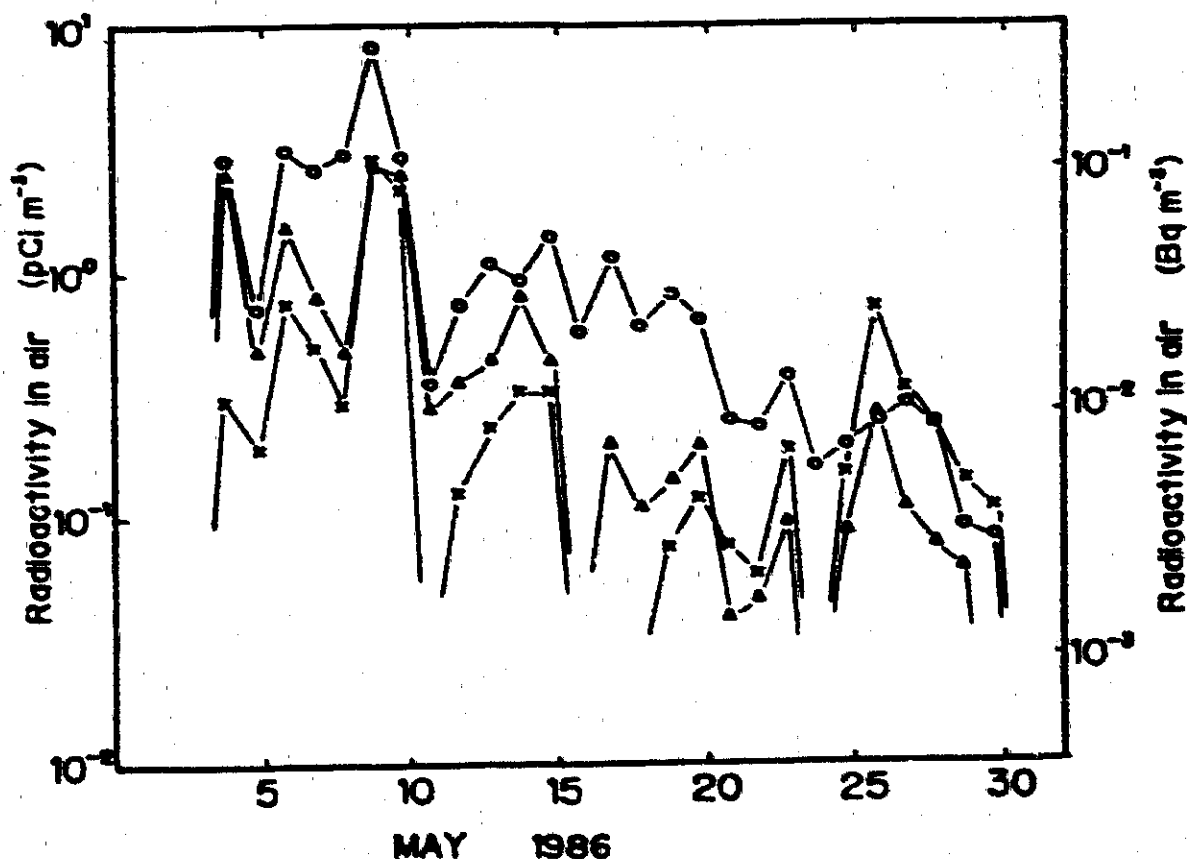


Fig. 1. Temporal trends of the concentrations of  $^{133}\text{Ru}$  ( $\times$ ), gaseous  $^{131}\text{I}$  ( $\text{O}$ ) and aerosol-associated  $^{131}\text{I}$  in air ( $\Delta$ ).

$^{95}\text{Nb}$ , and  $^{141}\text{Ce}$ . The highest concentrations were measured in air on 8-9 May as shown in Table 1. Figure 1 shows the temporal variation of  $^{133}\text{Ru}$  concentrations in air. During the sampling period, the average ratio of  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  was 0.5 which is the same as found elsewhere (Bondietti & Brantley, 1986; Devell *et al.*, 1986; Fry *et al.*, 1986).

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  were also analyzed, using two sets of composite filters obtained from 30 April to 21 May and from 21 May to 25 June. First the filters were ashed at  $550^\circ\text{C}$  for 4 h, dissolved in  $\text{HNO}_3$  and  $\text{H}_2\text{O}_2$ , and then each nuclide separated chemically.  $^{90}\text{Sr}$  was analyzed by the  $^{90}\text{Y}$ -milking method and  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  were analyzed by alpha-spectrometry. The concentrations of  $^{90}\text{Sr}$  were  $4.1 \times 10^{-3} \text{ Bq m}^{-3}$  and  $1.2 \times 10^{-3} \text{ Bq m}^{-3}$  but those of  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  were below detection limits ( $^{239,240}\text{Pu} < 3.7 \times 10^{-8} \text{ Bq m}^{-3}$ ,  $^{241}\text{Am} < 1.9 \times 10^{-8} \text{ Bq m}^{-3}$ ).

### Fallout

Wet and dry deposition was collected in a tray ( $0.5 \text{ m}^2$ ) every month. The total depositions of major nuclides in May are shown in Table 2.  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  depositions were similar to those from previous measurements and

J. Ishida, N. Miyagawa, H. Watanabe, T. Asano, Y. Kuwahara

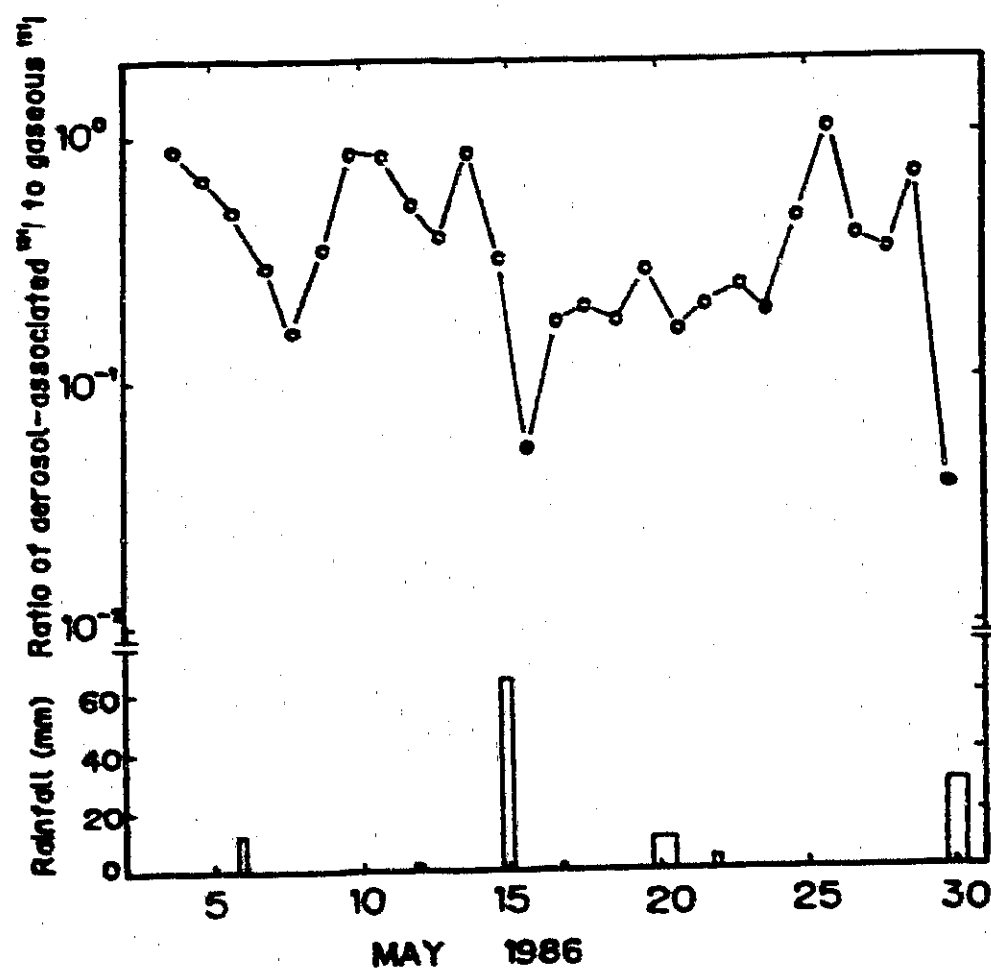


Fig. 2. Variation with time of the ratio of aerosol-associated  $^{131}\text{I}$  to gaseous  $^{131}\text{I}$ . ● is the ratio calculated using the detection limit value for aerosol-associated  $^{131}\text{I}$ . Rainfall is also shown.

TABLE I  
The Maximum Observed Concentrations of Radioactivity in Environmental Samples

	$^{131}\text{I}$	$^{133}\text{Rn}$	$^{136}\text{Rn}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$
Air <sup>(1)</sup> ( $\text{Bq m}^{-3}$ )	$4.0 \times 10^{-1}$	$1.1 \times 10^{-1}$	$4.1 \times 10^{-2}$	$2.2 \times 10^{-2}$	$5.6 \times 10^{-2}$
Plant <sup>(2)</sup> ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )	$2.1 \times 10^2$	$3.0 \times 10^1$	$1.2 \times 10^1$	$1.0 \times 10^1$	$1.8 \times 10^1$
Milk ( $\text{Bq litre}^{-1}$ )	$1.4 \times 10^{1(3)}$	"	"	$1.2^{(4)}$	$2.4^{(4)}$

\* Radioactivity within  $3\sigma$  of background.

(1) Air sampled on 8-9 May 1986.

(2) Plant sampled on 11-17 May 1986.

(3) Milk sampled on 12 and 15 May 1986.

(4) Milk sampled on 22 May 1986.

*Environmental radioactivity around Tokai-Works*

TABLE 2  
Radioactivity in Fallout (May 1986)

	<i>Radioactivity in fallout (MBq km<sup>-2</sup>)</i>				
	<sup>103</sup> Ru	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>239,240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
Wet and dry deposition	$2.5 \times 10^2$	$6.7 \times 10^1$	$1.4 \times 10^2$	$3.0 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-3}$
Precipitation	$2.0 \times 10^2$	$6.2 \times 10^1$	$1.2 \times 10^2$	—	—

— = Not measured.

TABLE 3  
Observed <sup>103</sup>Ru and <sup>137</sup>Cs Depositions for May through December 1986

	<i>Radioactivity deposited (MBq km<sup>-2</sup>)</i>	
	<sup>103</sup> Ru	<sup>137</sup> Cs
May	$2.5 \times 10^2$	$1.4 \times 10^2$
June	4.1	2.6
July	1.0	$8.5 \times 10^{-1}$
Aug.	$3.1 \times 10^{-1}$	1.0
Sep.	*	$2.7 \times 10^{-1}$
Oct.	*	*
Nov.	*	$1.9 \times 10^{-1}$
Dec.	*	$2.2 \times 10^{-1}$

\* Radioactivity within 3σ of background.

thus it is difficult to determine whether the Chernobyl accident contributed at all to these fluxes. <sup>103</sup>Ru and <sup>137</sup>Cs were measured during the subsequent months of 1986, as shown in Table 3. Prior to the accident, <sup>137</sup>Cs deposition had been above detection limits ( $<7.4 \times 10^{-2}$  MBq km<sup>-2</sup> per month) on, typically, only a few months of each year.

Precipitation was measured during each rainfall period which deposited radioactivity to ground. Precipitation in May was as follows: number of events—eight; total precipitation—133.4 mm, average rate during each event—1.6 mm h<sup>-1</sup>. From the May deposition data for the major nuclides shown in Table 2 it follows that, on average, 86% of the total activity deposition in May was carried by rainfall.

The concentration of <sup>3</sup>H in samples from the seven precipitation episodes in May 1986 was, on average, 4.1 Bq litre<sup>-1</sup>, which is the same as the average concentration observed during the previous seven years at Tokai-Works.

## Plants

Spinach, mugwort and pasture grass were also collected around the Tokai-Works. Each plant was cut, homogenised by mashing and placed in a 2 litre Marinelli beaker for gamma-spectrometric measurement. The highest concentrations of nuclides originating from the accident were observed in the mugwort sample collected on 11-17 May, as shown in Table 1.

Figure 3 shows the temporal changes of  $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  and  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in mugwort. Radioactivity decreased through radioactive decay, natural removal and growth dilution. Air concentrations declined much more rapidly (Fig. 1), so that deposition of  $^{131}\text{I}$  from air to plants after 8-9 May was ignored in calculating the effective half-life in plants. Based on this assumption, the effective half-life of  $^{131}\text{I}$  in spinach, mugwort and pasture grass, calculated by the method of least squares, was 5.1-5.7 days. The data for the post-maximum activity period were used in the calculation. In a similar manner, effective half-lives of 9 days for  $^{103}\text{Ru}$  and 10-12 days for  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were calculated. These results indicate that the half-lives of the radionuclides in plants, with regard to natural removal and growth dilution, are 10-12 days for  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , and 14-20 days for  $^{131}\text{I}$ .

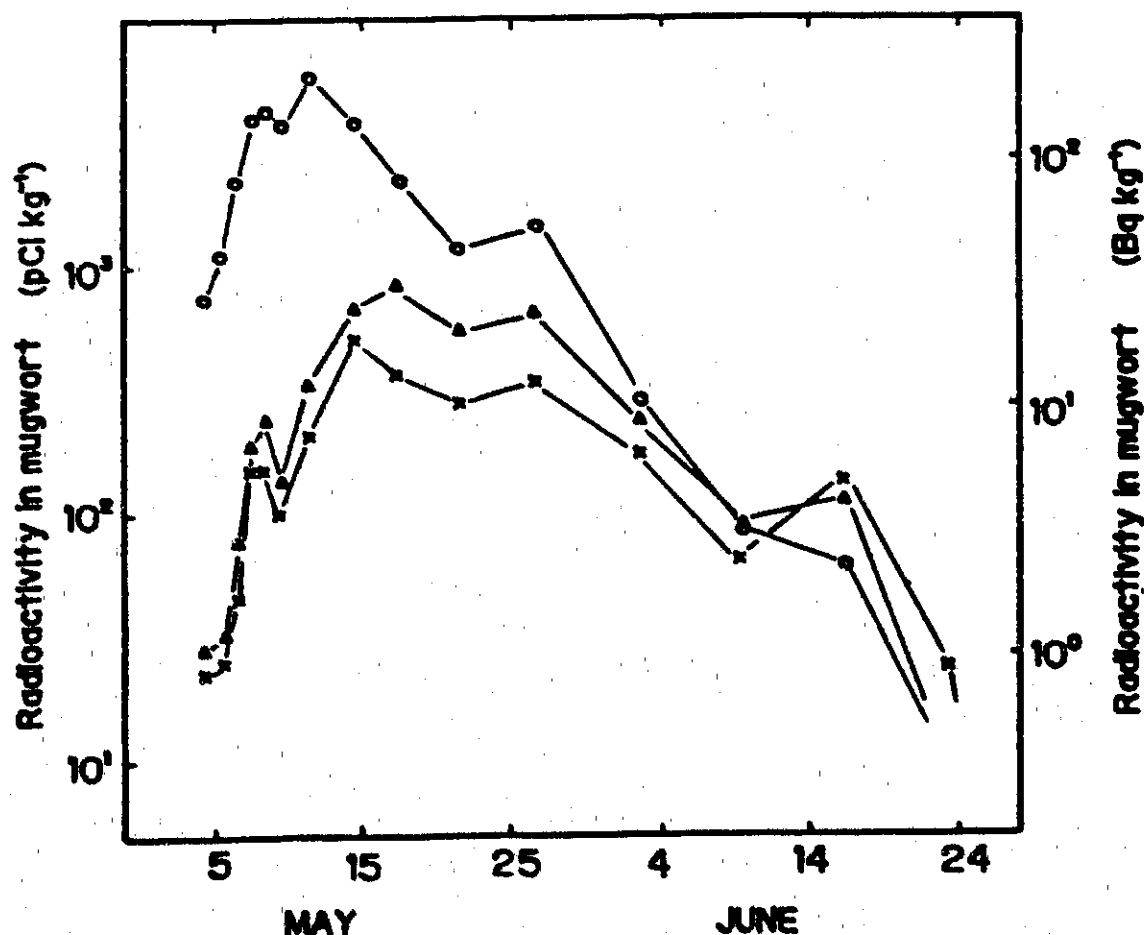


Fig. 3. Radioactivity in mugwort versus time. O =  $^{131}\text{I}$ ,  $\Delta$  =  $^{103}\text{Ru}$  and  $\times$  =  $^{137}\text{Cs}$ .

*Environmental radioactivity around Tokai-Works*

These results may well indicate that the particulate materials were deposited on to the plants, while gases were absorbed into them. Gaseous  $^{131}\text{I}$  was three times greater than the aerosol-associated  $^{131}\text{I}$  and thus weathering removal was more effective for  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , the half-lives on the plants for the latter group therefore being shorter than for  $^{131}\text{I}$ .

The effects of washing, boiling and ashing on nuclide removal were tested using spinach. The collected spinach was parcelled into four lots, the first for nontreatment, the second for washing in water as housekeepers do, the third for washing and boiling, and the last for ashing. The boiling time was five minutes. Each sample, except the ashed one, was cut, homogenised by mashing and analyzed. The ashed sample was analyzed directly.

Decontamination depended on the physical and chemical forms of the nuclides. Thus washing removed 0-25% of the  $^{131}\text{I}$  (average: 14%) and 15-60% of the  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  (average: 40%). Particulate materials such as  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were more easily removed than gaseous  $^{131}\text{I}$ , which had probably been absorbed into the plants through the stomata. On the other hand, both washing and boiling removed 70-80% of the radioactivity, with little difference between the nuclides.

The volatility of  $^{131}\text{I}$  during ashing was also examined. The plants were ashed in a furnace at 450°C for three days. The results for 12 samples showed that, on average, 86% of the original  $^{131}\text{I}$  remained in the ash.

**Milk**

Milk was collected almost daily in May and June at two dairy farms in Naka-machi and Katsutashi, around Tokai-Works. The highest concentrations found were:  $1.4 \times 10^1$  Bq litre<sup>-1</sup> of  $^{131}\text{I}$  on 12 and 15 May; 1.2 Bq litre<sup>-1</sup> of  $^{134}\text{Cs}$  and 2.4 Bq litre<sup>-1</sup> of  $^{137}\text{Cs}$  on 22 May. The concentrations of the other nuclides were below detection limits.

**Marine produce**

Marine samples such as whitebait, flatfish, seaweed, shellfish, shrimp and squid were collected, along with seawater.  $^{131}\text{I}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  and  $^{106}\text{Ru}$  were detected in seaweed,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  and  $^{110m}\text{Ag}$  in cephalopoda and shellfish.  $^{110m}\text{Ag}$  was measured only in the marine products, the highest concentration being 4.1 Bq kg<sup>-1</sup> in the internal organs of squid sampled on 11 July 1986.

**TRANSPORT OF  $^{131}\text{I}$  FROM PASTURE GRASS TO MILK**

The transport of Chernobyl  $^{131}\text{I}$  from pasture grass to milk was evaluated, the results being shown in Fig. 4. The concentration of  $^{131}\text{I}$  in pasture grass

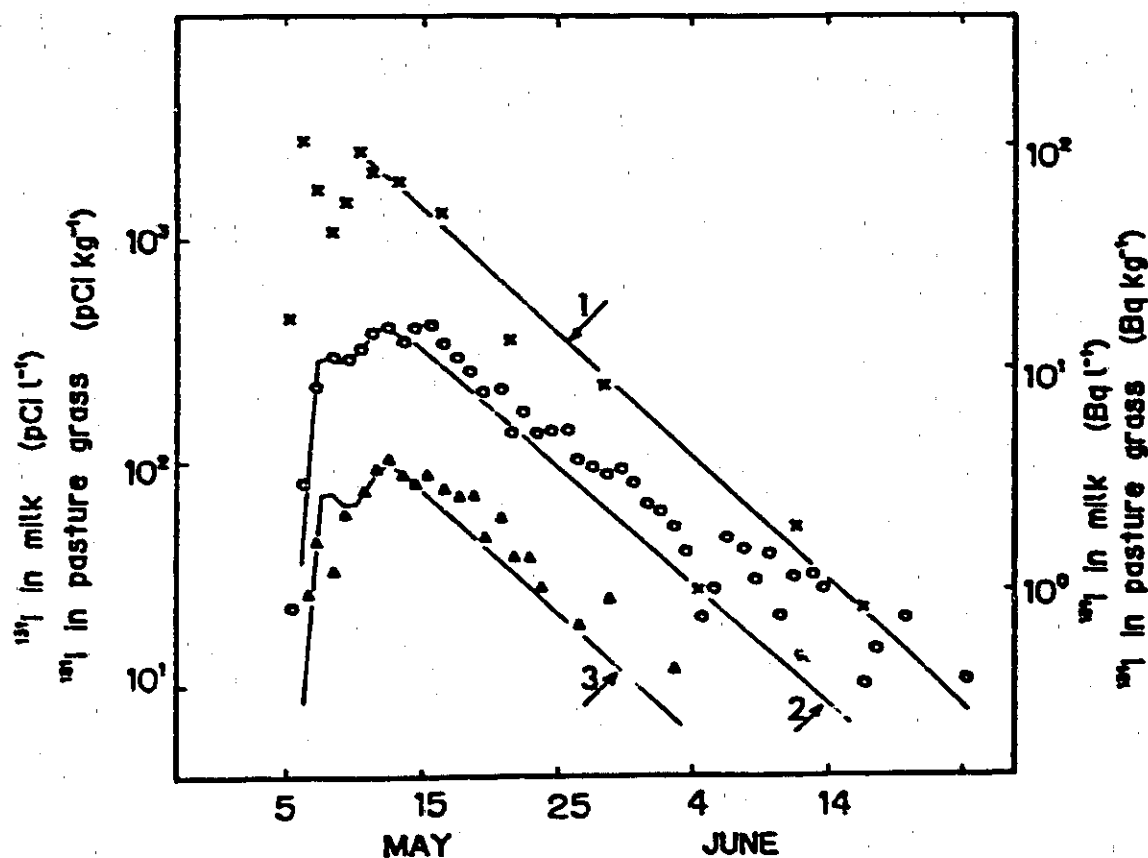


Fig. 4. Calculated and measured  $^{131}\text{I}$  in pasture grass and milk. Measured  $^{131}\text{I}$ :  $\times$  = in pasture grass,  $\circ$  = in milk at Naka-Machi and  $\Delta$  = in milk at Oarai-Machi. Calculated  $^{131}\text{I}$ : (arrows) 1 = in pasture grass, 2 = in milk at Naka-Machi and 3 = in milk at Oarai-Machi.

was  $9.6 \times 10^1 \text{ Bq kg}^{-1}$  (the highest value) on 6 May, decreasing to  $4.1 \times 10^1 \text{ Bq kg}^{-1}$  on 8 May following rainfall and then increasing to  $8.9 \times 10^1 \text{ Bq kg}^{-1}$  on 10 May. Thereafter concentrations decreased exponentially with a half-life of 5.7 days. Dairy cattle were fed on the pasture grass but feeding conditions differed between farms. The feeding programmes at two dairy farms at which milk was collected are shown in Table 4.

In formulating an equation to predict the transfer of  $^{131}\text{I}$  from pasture grass to milk, it is necessary to know the transport time from the feed into the milk. Regulatory Guide 1.109 (NRC, 1977) assumes an average transfer time of two days. The concentration of  $^{131}\text{I}$  in milk decreases according to an exponential function of one day half-life (Miyamoto, 1979).  $^{131}\text{I}$  in milk may in theory result from the  $^{131}\text{I}$  in air, water and soil, besides feed. But even the highest concentration in air here was  $4.1 \times 10^{-1} \text{ Bq m}^{-3}$  (total) and this decreased rapidly as shown previously in Fig. 1. The concentration of  $^{131}\text{I}$  in water was less than  $1.0 \times 10^{-1} \text{ Bq litre}^{-1}$ . Thus, relative to the  $^{131}\text{I}$  concentrations in feed, the other potential source materials are unimportant in determining the  $^{131}\text{I}$  level in milk. Therefore only the input from feed is considered here.

*Environmental radioactivity around Tokai-Works*

TABLE 4  
Feeding Conditions of Dairy Cattle

	Location	
	Naka-machi	Katsuta-shi
Dairy cattle	10 head	38 head
Feed		
Italian ryegrass	30 kg	10 kg
Assorted feed	2 kg	6 kg
Crushed oats	2 kg	—
Husk of bean curd	—	6 kg
Straw	1.2 kg	2 kg
Beet pulp	—	1 kg
(Dairy cattle were fed as shown twice daily)		
Dairy time	Morning and evening (twice daily)	
Milking	~15 litres day <sup>-1</sup> per animal	
Drinking water	~3 times milk production (40-50 litres day <sup>-1</sup> )	

Based on the above assumptions, we derived the following equation to model the transfer of Chernobyl <sup>131</sup>I from pasture grass to milk:

$$C_m(I) = F_t \cdot Y \cdot K \cdot \{ \sum C_t(I-t) \cdot \exp(-\lambda_c \cdot t) \} \quad (1)$$

where

- $C_m(I)$  : the concentration of <sup>131</sup>I in milk on the day of milking, I, in Bq litre<sup>-1</sup>;  
 $F_t$  : the fraction of pasture grass to total feed in the daily intake (dimensionless);  
 $Y$  : the pasture yield, in kg m<sup>-2</sup>;  
 $K$  : the transport ratio from pasture grass to milk, in m<sup>2</sup> litre<sup>-1</sup>;  
 $C_t(I-t)$  : the concentration of <sup>131</sup>I in pasture grass on the day of sampling, (I-t), in Bq kg<sup>-1</sup>;  
 $\lambda_c$  : the radiological and biological decay constant of <sup>131</sup>I in milk.

The constant,  $\lambda_c$ , is 0.693 (Miyamoto, 1979). The fraction,  $F_t$ , is determined by the feeding conditions (Table 4). The pasture yield,  $Y$ , is 2.8 kg m<sup>-2</sup> based on an estimate from unit acreage sampling. The transport ratio,  $K$ , is calculated via the following equation, using the measured concentrations of <sup>131</sup>I in pasture grass and milk at Naka-machi during the period 5-12 May. The <sup>131</sup>I in milk before 4 May is assumed to be zero.

$$K = C_m(I) \cdot \{ F_t \cdot Y \cdot \sum C_t(I-t) \cdot \exp(-\lambda_c \cdot t) \}^{-1} \quad (2)$$



*J. Ishida, N. Miyagawa, H. Watanabe, T. Asano, Y. Kitahara*

Seven sets of data from 5-12 May gave a  $K$  value of  $0.087 \pm 0.012$ . Therefore the equation for transfer of  $^{131}\text{I}$  from pasture grass to milk at Naka-machi is described as follows:

$$C_m(I) = 0.20 \cdot \left\{ \sum_{i=1}^7 C_i(I-t) \cdot \exp(-0.693 \cdot t) \right\} \quad (3)$$

The influence of  $^{131}\text{I}$  in the pasture grass prior to seven days before milking is ignored because it is calculated to contribute less than 1%.

Pasture grass was collected daily during 5-11 May but at reduced sampling frequency thereafter. To calculate  $C_m(I)$  from eqn (3), a series of seven days' data for pasture grass is ideally required. Hence the concentrations of  $^{131}\text{I}$  in pasture grass after 11 May were calculated by applying the method of least squares to the measured data for the period from 10 May until 16 June. These measured and calculated data were then used in eqn (3) to calculate the concentrations of  $^{131}\text{I}$  in milk. The results are shown in Fig. 4. The predicted concentrations of  $^{131}\text{I}$  before 15 May are in good agreement with the measured values but, beyond 20 May, the measured data show a tendency to follow radioactive decay rather than the calculated trend.

In a similar manner, eqn (1) was applied to the data from the other dairy farms in Oarai-machi and Katsuta-shi, located 20 km and 3 km south of Tokai, respectively. The concentrations of  $^{131}\text{I}$  in air were almost the same as those in the Tokai-Works. Only the feeding conditions were different. The dairy cattle at Oarai-machi were fed 30 kg of pasture grass daily, half that at Nakamachi (Igarashi, 1986). The results for Oarai-machi are shown in Fig. 4. The calculated data show good agreement with the measured values in milk, especially around the peak activities, but the calculation underestimates the levels observed in the longer term. Thus the measured  $^{131}\text{I}$  concentrations decreased more slowly than predicted by the model. The data for Katsuta-shi show a similar tendency. Biological metabolism and contributions from air, water and soil may therefore need to be taken into account in more precise assessments.

## CONCLUSIONS

(1)  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{129\text{m}}\text{Te}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}/^{132}\text{Te}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}/^{140}\text{La}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  and  $^{144}\text{Ce}$  were detected in a variety of environmental samples.  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  was found only in marine products.

(2) Gaseous  $^{131}\text{I}$  activities were, on average, about three times greater than those of aerosol-associated  $^{131}\text{I}$ , which changed daily.

(3) The average ratio of  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  was 0.5.

*Environmental radioactivity around Tokai-Works*

(4) The effective half-life of  $^{131}\text{I}$  in plants was 5.1–5.7 days, and those for  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were 9–12 days.

(5) Washing removed, on average, 14% of  $^{131}\text{I}$  and 40% of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  from plants, respectively. Washing and boiling removed 70–80%. Little  $^{131}\text{I}$  was lost during ashing.

(6) The derived equation shows a relatively good relationship between the predicted and measured  $^{131}\text{I}$  levels in milk.

## ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to Mr M. Kinosita and Dr A. Yamato of the Health and Safety Division, Tokai-Works, PNC, for their kind suggestions and for their encouragement of this work. We also wish to thank Dr M. Iwai, Mr K. Shinohara, Mr T. Oka and all members of the Environmental Protection Section at Tokai-Works for their assistance and many helpful suggestions.

## REFERENCES

- Bondietti, E. A. & Brantley, J. N. (1986). Characteristics of Chernobyl radioactivity in Tennessee. *Nature* 322, 313–4.
- Devell, L., Tovedal, H., Bergstrom, U., Appelgren, A., Chyssler, J. & Andersson, L. (1986). Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl. *Nature* 321, 192–3.
- Fry, F. A., Clarke, R. H. & O'Riordan, M. C. (1986). Early estimates of UK radiation doses from the Chernobyl reactor. *Nature* 321, 193–4.
- Igarashi, T., Shindo, K., Mizutani, K. and Kawamura, S. (1986). *Summary Report on the Environmental Monitoring around O-arai Area following the Accident at Chernobyl Atomic Power Station*. PNCT N9410 86-117 in Japanese.
- Kinoshita, M. (1986). *Summary Report on the Environmental Monitoring around Tokai Area following the Accident at Chernobyl Nuclear Power Plant*. PNCT N8420-86-10 in Japanese.
- Miyamoto, S. (1979). The transfer of radionuclides into domestic animals and their products. *NIRS Environmental Seminar Series*, 154–164 in Japanese.
- NRC (1977). Office of Standards Development. Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR PART 50, Appendix I. Regulatory Guide 1.109.