

## ダストモニタ連続採取ろ紙によるガンマ線放出核種分析について

野村健吾 西田典由 影浦久 松本純子 山内昌博

### 1. はじめに

本県では、伊方発電所の周辺住民等の被ばく線量の推定及び評価を目的として、伊方発電所から 5km 圏内の 4 地点について、ハイボリュームエアサンプラ（以下「ハイボリ」という。）により大気浮遊じんを採取し、高純度ゲルマニウム半導体検出器によりガンマ線放出核種分析を実施してきた。

令和 3 年度より、平常時モニタリングの目的の一つである「原子力施設からの予期しない放射性物質又は放射線の放出の早期検出及び周辺環境への影響評価」の充実のため、伊方発電所の周辺で実施してきたダストモニタを用いた連続採取による大気中の放射能濃度連続測定地点を 1 地点から 4 地点に増やし、常時監視体制の強化を図った<sup>1)</sup>。これに伴い、大気浮遊じんの採取方法を、ハイボリによる 1 日採取から、ダストモニタによる 1 か月連続採取に変更した。

試料採取方法の変更に際して、使用するろ紙の材質や形状、採取流量等が従来と異なることから、事前検討として、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた測定方法の検討やハイボリとダストモニタの同時採取による比較を行った。

また、令和 3 年度ダストモニタにより採取した試料（以下「ダストモニタ試料」という。）の測定結果が、令和 2 年度までの

ハイボリにより採取した試料（以下「ハイボリ試料」という。）の測定結果と差異が認められたことから、主要人工放射性核種であるセシウム-137(Cs-137)、環境試料で検出される自然放射性核種であるベリリウム-7(Be-7)及びカリウム-40(K-40)に係るダストモニタ試料の分析の妥当性について考察したので報告する。

### 2. 試料採取及び測定の検討

#### 2.1. 使用機器等

・試料採取機器

(ハイボリ)

紀本電子工業(株) MODEL-120B  
(ダストモニタ)

(株)千代田テクノル THC-P106

・試料採取用ろ紙

(ハイボリ用ろ紙)

ガラス繊維ろ紙 GB-100R

(ダストモニタ用ろ紙)

PTFE メンブレン長尺ろ紙

FLUOROPORE FSLW

・ガンマ線放出核種測定器

(高純度ゲルマニウム半導体検出器)

ORTEC® GEM40-70-XLB-C(1 台)

ORTEC® GEM40-76-LB-C-S(1 台)

ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ(株)

GC4018(2 台)

(多重波高分析装置)

セイコー・EG&G(株) MCA7

## 2.2. 各種検討・考察

### 2.2.1. 測定方法の検討

令和 2 年度までの大気浮遊じん調査は、ハイボリによりガラス繊維ろ紙に採取した試料を U-8 容器内径に合わせて打ち抜いた後充填し、高純度ゲルマニウム半導体検出器により測定を実施してきた。

ダストモニタに使用する PTFE メンブレン長尺ろ紙は測定実績がなく、原子力規制庁の放射能測定法シリーズにも定めがないことから、測定方法について検討した。

検討に当たっては、試料を灰化又は酸抽出する方法も考えられたが、灰化による有害ガスの発生が懸念されることやダストモニタの放射能濃度が上昇した際に速やかな測定が求められることから、これまでの測定と同様に U-8 容器にろ紙を直接詰める方法を選択した。

ダストモニタ用ろ紙の集じん径が約 25mm であり、U-8 容器内径の約 45mm に比べて小さいこと、また、帯電性であることから、打ち抜き法により均一に詰めることが難しいため、ろ紙を細断して可能な限り均一に詰めて、上から未使用のろ紙を重石として詰めたものを測定試料とした。

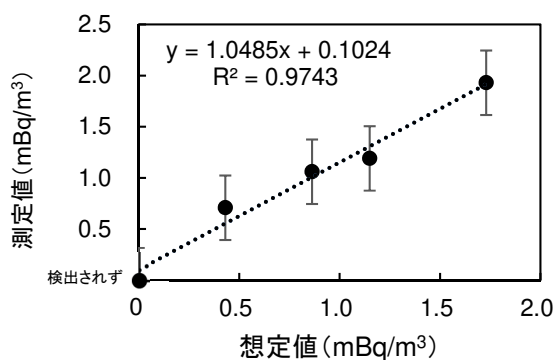


図1 ハイボリ用ろ紙測定値と K-40 想定値の比較

ダストモニタ用ろ紙の測定の妥当性を検討するため、ハイボリによる採取で検出されている K-40 濃度程度に相当する塩化カリウム (KCl) 溶液を未使用のハイボリ用ろ紙及びダストモニタ用ろ紙にそれぞれ滴下し、乾燥した後、高純度ゲルマニウム半導体検出器により測定し、計算により得られた K-40 想定値と比較した。

ハイボリ用ろ紙及びダストモニタ用ろ紙の測定値と K-40 想定値との関係をそれぞれ図 1 及び図 2 に示す。ろ紙の測定値は、どちらも K-40 想定値と同程度であり、測定による差異は認められなかった。

### 2.2.2. 試料採取期間等の検討

ダストモニタ試料の採取期間等について検討するため、ダストモニタとハイボリの同時採取による比較を実施した。

ダストモニタとハイボリの同時採取の実施に際して、ハイボリについても、ダストモニタの平常時の集じん期間である約 1 か月間集じんすることが必要であることから、ハイボリの採取流量、採取期間及びろ紙の交換頻度を検討した。

ハイボリの 1 回当たりの連続採取設定時間は最長で 99 時間であることから、

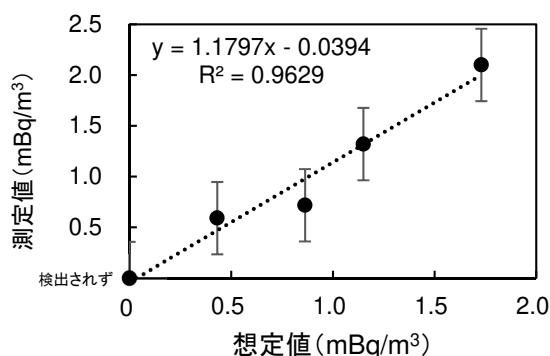


図2 ダストモニタ用ろ紙測定値と K-40 想定値の比較

4日間(96時間)の採取とし、採取流量は、ろ紙の目詰まりを考慮し、できる限り低流量かつ流量が安定する 800L/分とした。これを、現行法のハイボリ測定での採取時間である 1 日間(24 時間)及び採取流量 1200L/分で採取した試料と比較した。

U-8 容器への試料の充填に当たり、十分な充填量となるようろ紙の打ち抜き枚数を調整した。

それぞれの結果を表 1 に示す。Be-7 についてはそれぞれの試料で同程度の結果が得られた一方で、K-40 について

は低流量にすることにより濃度が低くなる結果が得られた。

次に、ダストモニタとハイボリにより 1 か月間並行して試料採取を実施した。ダストモニタについては、採取流量 40L/分で 8 時間ごとに自動でろ紙送りをし、1 か月間連続採取した。ハイボリについては、採取流量 800L/分で、4 日間ごとにろ紙を交換した。

それぞれの測定結果を表 2 に示す。

Be-7 については、それぞれの試料で同程度の濃度であり、流量 40L/分のダ

表 1 並行測定によるハイボリ試料(現行法)とハイボリ試料(長期間採取)の比較

		ハイボリ試料(現行法)	ハイボリ試料(長期間採取)
ろ紙		ガラス繊維ろ紙(GB-100R)	ガラス繊維ろ紙(GB-100R)
流量(L/分)		1200	800
ろ紙交換頻度(時間)		24	96
採取期間(日)		4	4
採取量(m <sup>3</sup> )		7001.4	4687.0
供試料率(%) (供試料/採取量)		30.8	66.0
放射能濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	Be-7	5.96 ± 0.11	5.28 ± 0.077
	K-40	0.45 ± 0.055	0.14 ± 0.029

表 2 並行測定によるハイボリ試料(長期間採取)とダストモニタ試料の比較

		ハイボリ試料(長期間採取)	ダストモニタ試料
ろ紙		ガラス繊維ろ紙(GB-100R)	PTFE メンブレン長尺ろ紙
流量(L/分)		800	40
ろ紙交換頻度(時間)		96	8
採取期間(日)		28	28
採取量(m <sup>3</sup> )		33109.2	約 1600
供試料率(%) (供試料/採取量)		30.8	100
試料の状態		打ち抜き	細断
放射能濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	Be-7	5.40 ± 0.046	3.92 ± 0.084
	K-40	0.14 ± 0.016	検出されず

ストモニタにおいて、ハイボリと同程度に捕集できることがわかった。

K-40 については、ハイボリ試料では低濃度の傾向ながらも検出されたのに対し、ダストモニタ試料では検出されなかった。K-40 濃度の差異の原因として、ろ紙の性質による違い等が考えられた。

### 2.2.3. 試料前処理方法の検討

ダストモニタ試料の前処理方法について、ろ紙の細断による機器等の汚染を考慮し、ろ紙全体を細断せず袋に入れよく混ぜた後袋ごと詰めた試料の測定方法を検討することとした。

前項で採取したダストモニタ試料について、ろ紙を細断した試料と、ろ紙を細断せず袋に入れよく混ぜた試料との測定結果の比較を実施した。(図 3)

それぞれの結果を表 3 に示す。

Be-7 についてはそれぞれの試料で同程度の濃度であり、K-40 については検出されなかった。

ダストモニタ試料において、ろ紙を細断した試料と細断せずよく混ぜた試料の

測定結果が同程度であることから、ろ紙を細断せずよく混ぜる充填方法で定量が可能であると判断した。

### 2.2.4. 試料採取用ろ紙の考察

ろ紙の捕集性能等に違いがあると推測し、それぞれの性質について比較するため、光学顕微鏡及び電子顕微鏡を用いてろ紙を観察した。それぞれの結果を図 4 に示す。

ろ紙表面の観察により、ハイボリ用ろ紙では直径 10 $\mu$ m 以上の大きな粒子が観察された一方で、ダストモニタ用ろ紙では直径 10 $\mu$ m 以上の粒子はほとんど見られなかった。

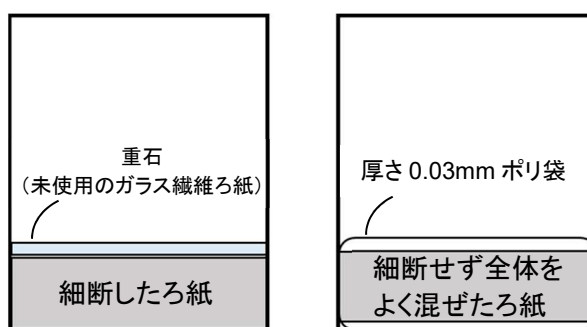
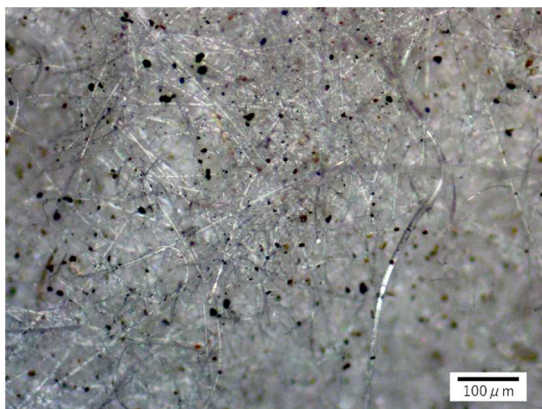


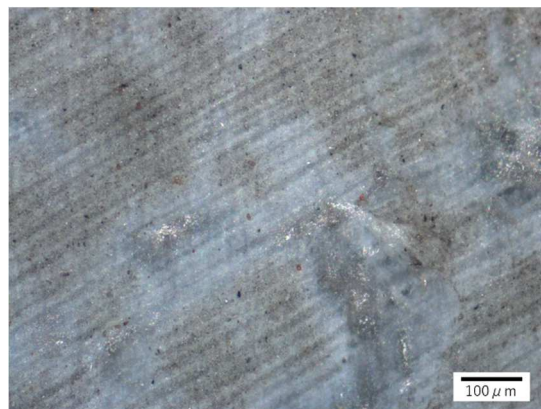
図3 ダストモニタ用ろ紙の入った U-8 容器

表3 ダストモニタ試料の前処理方法の比較

		ダストモニタ試料	
ろ紙		PTFE メンブレン長尺ろ紙	
流量(L/分)		40	
ろ紙交換頻度(時間)		8	
採取期間(日)		28	
採取量(m <sup>3</sup> )		約 1600	
供試料率(%) (供試料/採取量)		100	
試料の状態		細断	袋ごと
放射能濃度 (mBq/m <sup>3</sup> )	Be-7	3.92 ± 0.084	4.51 ± 0.11
	K-40	検出されず	検出されず



ハイボリ用ろ紙表面の観察(100倍)



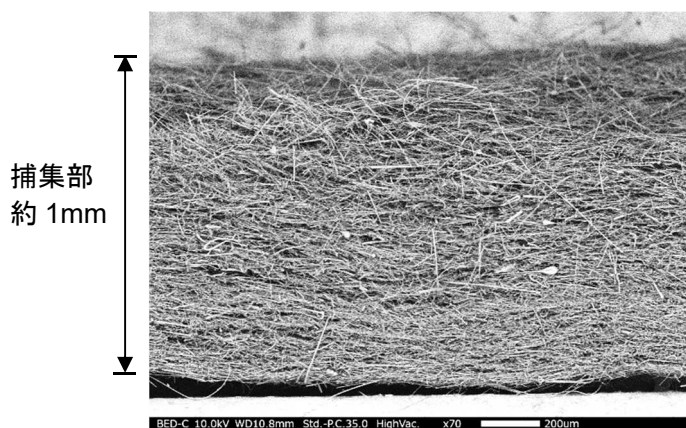
ダストモニタ用ろ紙表面の観察(100倍)



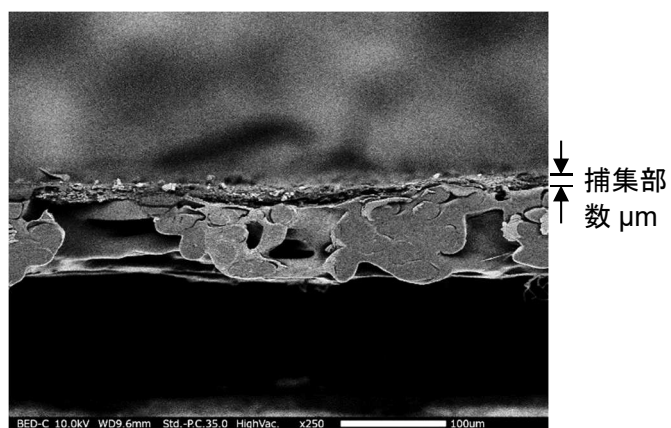
ハイボリ用ろ紙表面の観察(500倍)



ダストモニタ用ろ紙表面の観察(500倍)



ハイボリ用ろ紙断面の観察(50倍)



ダストモニタ用ろ紙断面の観察(100倍)

図4 顕微鏡によるろ紙の観察

ろ紙断面の観察により、ハイボリ用ろ紙の捕集部の厚さは約 1mm であり粒子がろ紙内部に吸着される構造であるのに対し、ダストモニタ用ろ紙の捕集部の厚さは、ろ紙表面の数  $\mu\text{m}$  であることがわかった。

メーカー提供資料においても、ダストモニタ用ろ紙は、アルファ線を効率よく測定するためにろ紙表面に試料が吸着する性質を利用しているが、これにより直径が  $10\mu\text{m}$  以上の粒子に対する捕集率は極めて小さいことが示されている。

ダストモニタ用ろ紙で採取可能な核種についてさらに考察するため、粒子の直径と放射性核種濃度との関係について調査した。

K-40 について、本県で採取された微小粒子状物質(以下「PM2.5」という。)について調査したところ、過去に実施された成分分析<sup>2)</sup>から、微粒子に含まれる K-40 の放射能濃度を推定すると、 $0.005\text{mBq}/\text{m}^3$  程度であり、検出下限値である約  $0.05\text{mBq}/\text{m}^3$  未満であることがわかった。

また、本県で調査している PM2.5 及び浮遊粒子状物質(以下「SPM」という。)を採取したろ紙を高純度ゲルマニウム半導体検出器により測定したところ、K-40 は検出されなかった。

これらの結果により、K-40 は直径  $10\mu\text{m}$  以上の粒子(土壌や花粉等)に多く含まれていると考えられ、これらの粒子はハイボリ用ろ紙では捕集できるが、ダストモニタ用ろ紙では捕集できないため、ダストモニタ用ろ紙の測定では K-40 が検出されなかったと考えられる。

Be-7 について、大気中の Be-7 を含む粒子のほとんどが直径  $3\mu\text{m}$  以下であることが報告されており<sup>3)</sup>、ハイボリ試料及びダストモニタ試料の測定結果が同程度であったことから、ダストモニタにより、Be-7 のような直径  $3\mu\text{m}$  以下程度の粒子については、ハイボリと同程度に捕集、定量できると考えられる。

Cs-137 について、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故時に放出された Cs-137 を含む粒子の多くは直径が約  $2\mu\text{m}$  程度であったことが報告されている<sup>4)</sup>。また、ガラス繊維ろ紙及び PTFE ろ紙の Cs-137 に対する捕集性能は同程度であること、PTFE ろ紙による SPM の集じんにおいて Cs-137 が捕集されることも報告されている<sup>5)</sup>。

これらのことから、Cs-137 を含む粒子に対して、ハイボリ用ろ紙とダストモニタ用ろ紙は同程度に捕集可能であり、ダストモニタ試料は高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた測定により、主要人工放射性核種である Cs-137 の定量が可能であると考えられる。

### 3. 環境試料測定結果

最後に、令和 3 年度に採取したダストモニタ試料のガンマ線放出核種測定結果と、平成 28 年度から令和 2 年度までの過去 5 年間に採取したハイボリ試料の測定結果の平均値との比較を報告する。

Be-7 については、図 5 に示したとおり、夏場に低くなる季節変動も含め、ハイボリ試料とダストモニタ試料で同程度の結果が得られた。K-40 については、ハイボリ試料では年間を通して平均で

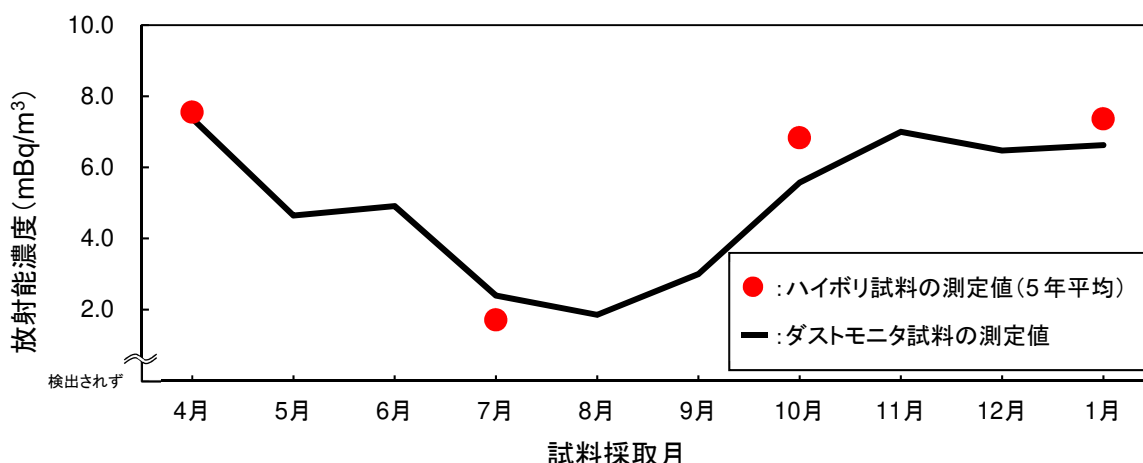


図5 Be-7 濃度の季節変動

0.6mBq/m<sup>3</sup> 程度であるのに対し、ダストモニタ試料では検出されなかった。

これらの結果は、事前検討で得られた結果と同様の傾向を示しており、K-40については粒子の直径等による捕集性能の違いと考えられる。

また、ダストモニタ試料の測定において人工放射性核種は検出されていないため、引き続き調査を進める中で検討していきたい。

#### 4. まとめ

ダストモニタによる試料採取、ダストモニタ試料の測定において、以下のことを確認することができた。

- ①流量 40L/分において、Cs-137, Be-7 等の直径が小さい粒子に含まれる核種については、ハイボリと同程度に捕集できる。
- ②K-40 等の直径が 10μm 以上の粒子に含まれる物質については、十分な捕集ができない。

③大気浮遊じん中に含まれる Cs-137 等の人工放射性核種について、ろ紙をポリ袋に入れ U-8 容器に詰めることで、高純度ゲルマニウム半導体検出器の測定により定量が可能であり、周辺住民等の被ばく線量の推定及び評価が可能であると考えられる。

#### 【参考文献】

- 1) 宮城雅彦, 渡邊雅也, 松本純子, 山内昌博, 愛媛県原子力センター所報, 7(2022)3.
- 2) 山内正信, 芝和代, 兵頭大輔, 篠崎由紀, 和田修二, 愛媛県立衛生環境研究所年報, 15(2012)23.
- 3) 阿部道子, エアロゾル研究, 10(1995)283.
- 4) K. Adachi, M. Kajino, Y. Zaizen, Y. Igarashi, Scientific Reports, 3(2013)1.
- 5) 大浦泰嗣, 鶴田治雄, 海老原充, 大原利眞, 中島映至, 分析化学, 69(2020)1.