

砂糖ラジカル測定による東海村臨界事故の放射線被曝の推定

葛谷昌之,* 近藤伸一, 伊藤幸祐, 澤 崇史
岐阜薬科大学薬品物理化学教室

Estimation of Radiation Exposed Area by the Nuclear Accident Occurred at Tokai Village Using ESR Measurements of Household Sugar

Masayuki KUZUYA,* Shin-ichi KONDO, Kousuke ITO, and Takashi SAWA
*Laboratory of Pharmaceutical Physical Chemistry, Gifu Pharmaceutical University,
5-6-1, Mitahora-Higashi, Gifu 502-8585, Japan*

(Received October 30, 2000; Accepted January 24, 2001)

The area of radiation exposure by the nuclear accident occurred at Tokai village in 1999 was estimated by the ESR measurement of 95 household sugar samples collected from the accident area. These samples were roughly classified into three types of sugar, fine white sugar, fine brown sugar and coarse brown sugar. The control fine white sugar showed no radical in the ESR spectrum, while those of fine brown sugar and coarse brown sugar showed the presence of a small amount of radicals. It was also shown that, among these three kinds of sugar, the radical concentration of fine white sugar sampled from wooden houses at the area similar to each other did not vary much with the samples, while those of fine brown sugar and coarse brown sugar varied to a considerable extent. Thus, the fine white sugar is considered to be more suitable for the estimation of the level of radiation exposure. The radical concentration of each fine white sugar sample was plotted against the distance from the site of the nuclear accident with a correction of the difference in the shielding effect between concrete houses and wooden houses. The samples obtained at more than 2 km north of the site of nuclear accident showed no ESR spectral signal to a detectable extent. On the other hand, the ESR spectra were observed from the samples obtained within 10 km south and 4 km west of the accident site. These results suggest that the radiation exposure by the contaminant blown by the northeast wind blowing on the day of the accident may occur at the south and west areas.

Key words—electron spin resonance (ESR); sugar radical; nuclear accident; radiation; plasma

緒 言

1999年9月30日に東海村ウラン加工施設において日本で初の臨界事故が発生した。10月1日には、原子力事故の重大さの目安である「国際原子力事象評価尺度」(INES)の暫定値として、科学技術庁はこの事故を「レベル4」と発表した。また、この事故はこれまでに世界で発生した臨界事故と比べても最大の部類に入るということも報道された。¹⁾推定値によると、350 m 圏内の住民は、110—1.4 ミリシーベルト (mSv) の被曝をし、避難地域の外側の350—420 m 付近の住民も、臨界が終わった時点までに、被曝量は1 mSv を超えていた可能性があると言われていたが、正確な量は不明である。

一方、我々がかねてより、低温プラズマ化学(低圧気体の放電によって得られる弱電離気体の化学)

を利用する医薬学的応用に関する研究を行ってきた。その一連の研究において、プラズマ表面処理の分子機構を解析するため、種々の分子構造を持つ有機高分子(天然高分子を含む)へプラズマ照射し、生成する複数の難解な表面フリーラジカル種の構造、生成機構及び反応特性などをESRスペクトル測定とそのシミュレーションを駆使した詳細な解析によって明らかにしてきた。^{15—27)}一般に有機ラジカルは空気にさらすと、空気中の酸素と反応し、パーオキシラジカルを経て消失するが、結晶性の単糖類(ブドウ糖や果糖)及び二糖類(砂糖)に生成するプラズマ誘起ラジカルは空気中においても長期間安定に存在することを見出ししている。この事実は、プラズマ照射反応の特徴の1つは表面反応であるが、糖類の強い分子間水素結合のため、酸素が糖の結晶性表面層内部に拡散するのが困難である

ためと考えられる。また、糖類のラジカルは、糖類への種々の放射線照射によっても生成することは良く知られている。²⁸⁾ 事実、中島らは放射線被曝時の放射線線量計として、高分子をはじめ種々の化合物について放射線量と生成ラジカル量との関係について検討しており、糖類の有用性も報告している。²⁹⁻³²⁾

かかる背景より、我々は臨界事故現場付近の住民より、事故発生日から10日以内に提供された住居内の砂糖について、そのESRスペクトルを測定し、観測されたスペクトル強度と事故現場からの距離、家屋の材質を考慮し、放射能の拡散に伴う放射線被曝を推定した。

実験の部

1. 試料 茨城県東海村周辺の住民より提供された95検体の砂糖は、そのままESR測定用試料として用いた。また、ブランクとして岐阜地区で市販の砂糖についても同様にそのまま測定した。

2. ESRスペクトル測定 試料約300mgをESRチューブに入れ、密栓をした。ESRスペクトルは、JES-RE1X（日本電子株）を用い、磁場変調100kHz、磁場変調幅1.25mT、マイクロ波出力5mW、時定数0.03秒、掃引時間4分、磁場掃引幅15mTにて測定した。スペクトル強度は、観測されたスペクトルを2回積分することにより求めた。また、ラジカル量（スピン数）は1,1-diphenyl-2-picrylhydrazyl (DPPH) を混入した polymethylmethacrylate (PMMA) を用いて検量線を作成し、観測されたスペクトルを2回積分し、その積分値との比較により算出した。

なお、今回のESRスペクトルの測定は、ラジカ

ルの構造解析のためでなく、ラジカルの検出及びラジカル量の地域的比較を目的としているため、正常な測定条件に比して高出力の変調マイクロ波を用いて測定した。その結果、いずれも飽和スペクトルとなっているが、すべて同一条件下での測定であるので、スペクトル強度は互いに比較可能である。

結果・考察

1. 砂糖試料のESRスペクトル 東海村及びその周辺の住民より提供された砂糖試料95検体について、ESRスペクトル測定を実施した。Fig. 1は、観測された代表的な砂糖のラジカルのESRスペクトルである。大部分の試料は、Fig. 1Aに示したブロードな一重線スペクトル ($\Delta H_{msl} = 2.67$ mT) であったが、一部の粒子の粗い試料においては、Fig. 1Bに示したように、より線幅の狭い一重線スペクトル ($\Delta H_{msl} = 1.29$ mT) が観測された。提供試料は、白砂糖、三温糖、粗目糖の三種類に分けられた。Table 1に示すように、ブランクの白砂糖は検出範囲内においてラジカルが観測されなかったのに対し、三温糖、粗目糖においてはラジカルが観測され、粗目糖に最も多くのラジカルが含まれていることが示された。

したがって、三温糖及び粗目糖については、Table 1の試料の値を差し引いて、同一地区におけるラジカル量のばらつきについて検討を行った。その結果、例えば、ある地区では $1.0 - 7.7 \times 10^{12}$ spin numbers/g の範囲のラジカル量が観測され、ラジカル量に大きなばらつきが認められた。このようなばらつきの原因として、家屋の材質及び砂糖の種類（放射線に対する感受性の違い）による影響が考え

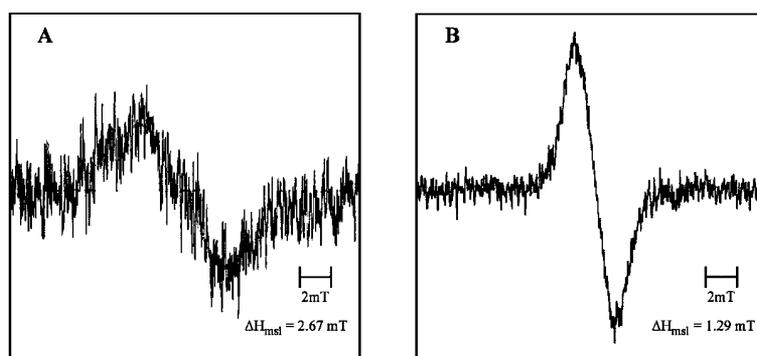


Fig. 1. Representative ESR Spectra Observed with Household Sugar Samples
A: fine white sugar and fine brown sugar, B: coarse brown sugar.

Table 1. Radical Concentration of Commercial Sugars

試料	ラジカル量 ($\times 10^{13}$ spin numbers/g)
白砂糖	—
三温糖	0.80
粗目糖	2.19

Table 2. Radical Concentration of Sugar Sampled from Wooden Houses of the Same Area

地区	ラジカル量 ($\times 10^{13}$ spin numbers/g)	
	白砂糖	三温糖
A	0.62	0.11
	0.63	0.77
B	0.79	0.53
	0.86	1.00

られた。まず、同一地区の木造家屋について、砂糖の種類によるラジカル量の差異について検討した。Table 2は、その結果である。試料は白砂糖と三温糖である。白砂糖についてはA地区、B地区ともに10%程度の誤差であるのに対し、三温糖では大きく値が異なっていた。同様な傾向は他の地区においても認められた。このように三温糖において大きなばらつきが見られる理由としては、三温糖は品質

にばらつきがあり、かつ白砂糖に比べて吸湿性が高く、ラジカル量が外的条件に影響を受けやすいためと考えられる。したがって、以下の検討においては白砂糖の結果についてのみ検討を行った。

2. 事故現場の距離とラジカル量 砂糖は室内にあるので、外部からの放射線は建物の遮蔽効果によって弱められる。 γ 放射線は5 cm厚の通常のコンクリートによりその50%が遮蔽され、木材では50%遮蔽するためには20 cmの厚さが必要であることが知られている。³³⁾ 実際の家屋では、個々に壁の厚みには差異があるが、コンクリート家屋、木造家屋ともに壁の厚さを5 cmと仮定して計算すると、コンクリート家屋の方が約1.6倍遮蔽効果が大きくなる。かかる遮蔽効果を考慮してコンクリート家屋の結果を木造家屋の値に補正し、地区毎にラジカル量の平均値を求め、事故現場からの距離でプロットした。Fig. 2はその結果であり、ブロックの高さは相対的なラジカル量を表している。また、円の中央が事故現場であり、事故当日は北東の風が吹いていたことが試料提供者の手紙により解っている。

Fig. 2から明らかなように、半径2 km以内では、事故現場の東側を除く全方向においてラジカルが観測され、特に南側において大きな値を示した。また、東側の地区で検出範囲内においてラジカルが

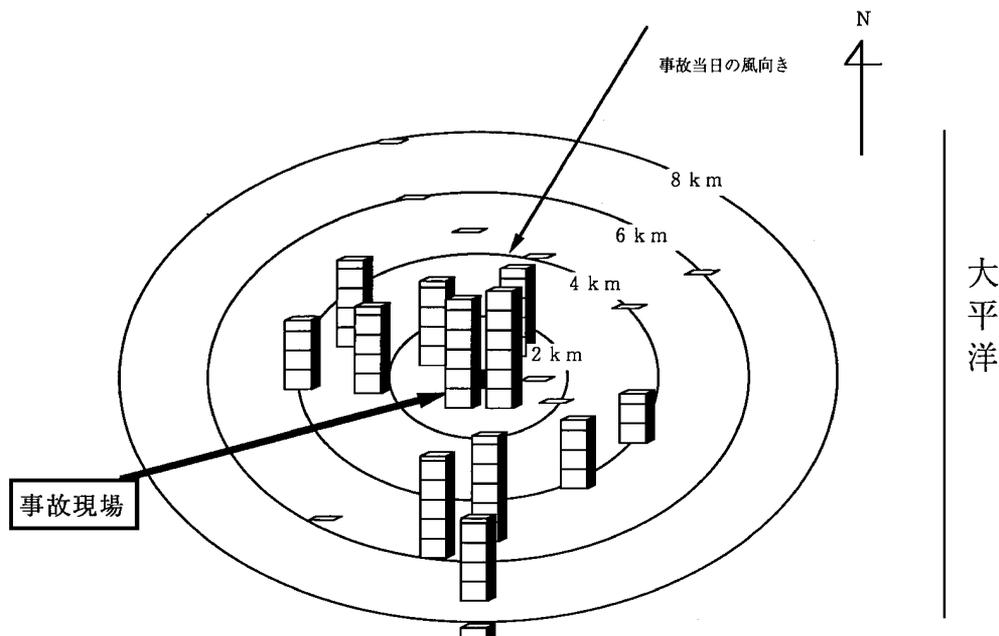


Fig. 2. Plots of Corrected Radical Concentration (Arbitrary Units) of Various Areas against the Distance from the Site of the Nuclear Accident

観測されなかったのは、これらの地区は市街地の住宅密集地区であり、放射線が複数の家屋を通過するために、放射線量が減少したと推測される。また、Fig. 3はインターネットの「広報とうかい」のwebサイトで公開された事故当時の事故現場周辺 γ 線量当量率測定値である。事故現場の南西部分が特に高い値を示しており、北東部では小さな値を示している。この結果は、Fig. 2の南部において特に大きなラジカル量が示された結果と良く符合している。また、東部においてラジカルが検出範囲内において観測されなかったことは、地理的条件に加え、北東において放射線量が少ないことも関与していると考えられる。

事故現場より2 km以上離れると、北部及び北東部では検出範囲内においてラジカルは観測されなかった。西部では約4 km離れたところでも、事故現場付近の約70%のラジカルが観測された。しかし、4 km以西の試料は得られなかったため、それより遠方のラジカル量の分布は不明である。南東部では約4 kmの所では約半分減少しているが、南側については、事故現場より6 km離れた地点においても事故現場付近の約90%、7 kmの所で約70%とかなり広い範囲でラジカルが観測された。しかしながら、南側においても10 kmを超える所からは、検出範囲内においてラジカルは観測されなかった。これらの結果から明らかなように、被曝したと考えら

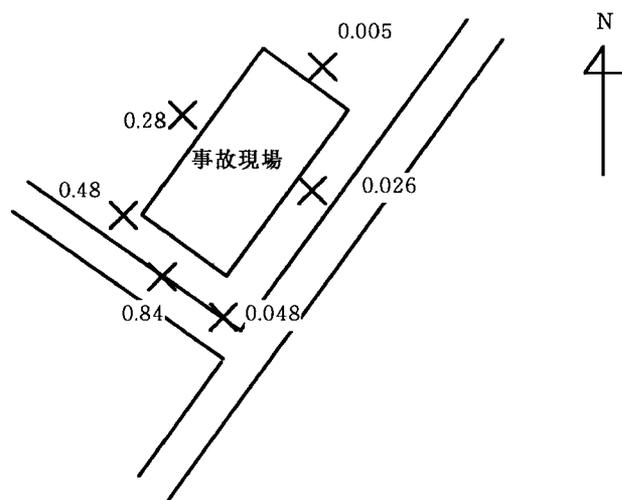


Fig. 3. γ -Ray Dose Equivalent Rate (mSv/h) around the Site of the Nuclear Accident on that Day

These data were cited from the web page of Tokai Village (<http://www.net-ibaraki.ne.jp/as-tokai/koho06.htm>).

れる地域は事故現場からの距離に依存するのではなく、事故現場の南及び西側の地区であることが示された。当日の風が北東からの風であったことを考えると、放射線の被曝は風向きと密接に関係しており、事故現場からの放射性物質などが風に運ばれ、これらの地域において放射能汚染を起こしたと推測される。

結 論

本調査研究は、我々がこれまでに取り組んできた低温プラズマ化学の医薬学的応用を目指した一連の研究の中で、単糖及び二糖類に生成するラジカルが空気中においても長期間安定に存在するという知見を基に、東海村での臨界事故による周辺地域への放射線被曝状況について、砂糖に生成するラジカル量比を利用して検討を試みたものである。

今回送付された試料には大きく分けて、3種類の砂糖があったが、白砂糖がブランクの試料においてラジカルが観測されず、かつ、同一地区の同じ材質の建物から集められた試料ではラジカル量のばらつきが小さく、測定試料に適していることが解った。

また、建物の材質の違いによる遮蔽効果を考慮して、事故現場を中心にラジカル量をプロットしたところ、半径2 km以上の北部では、検出範囲内においてラジカルが観測されないのに対し、南部及び西部では広い範囲において、特に南部では10 km圏においてもラジカルが観測された。このラジカル分布は、事故当時、北東からの風が吹いていたため、放射性物質が風に運ばれ、これらの地域に広まったものと推定される。

本調査研究により、砂糖の放射線線量計としての有用性が確認されるとともに、放射線被曝した可能性のある地域は、事故当時の風下にあたる地域であることなどが明らかになった。

謝辞 本調査研究の実施に当たり、砂糖試料を提供して戴きました東海村地区住民の皆様へ深謝致します。また、砂糖試料の収集をラジオ放送及び新聞報道によってご協力戴きました茨木放送及び東京新聞の関係各位にお礼申し上げます。

REFERENCES

- 1) Asahi Shimbun, 5th December (1999).

- 2) Kuzuya M., Noguchi A., Ito H., Ishikawa M., *DDS*, **6**, 119–125 (1991).
- 3) Kuzuya M., Ito H., Noda N., Yamakawa I., Watanabe S., *DDS*, **6**, 437–441 (1991).
- 4) Kuzuya M., Matsuno Y., *DDS*, **8**, 149–159 (1993).
- 5) Kuzuya M., *Farumashia*, **30**, 511–515 (1994).
- 6) Kuzuya M., Kondo S., *Kagaku to Yakugaku no Kyoushitsu*, **118**, 20–23 (1995).
- 7) Ishikawa M., Noguchi T., Niwa J., Kuzuya M., *Chem. Pharm. Bull.*, **44**, 2215–2220 (1995).
- 8) Kuzuya M., Ishikawa M., Noguchi T., Niwa J., Kondo S., *Chem. Pharm. Bull.*, **44**, 192–195 (1996).
- 9) Kuzuya M., *Yakugaku Zasshi*, **116**, 266–285 (1996).
- 10) Ishikawa M., Hattori K., Kondo S., Kuzuya M., *Chem. Pharm. Bull.*, **44**, 1232–1237 (1996).
- 11) Kuzuya M., *Nihon Byouin Yakuzaishikai Zasshi*, **33**, 84–85 (1997).
- 12) Kuzuya M., *Sougou Rinsho*, **47**, 3011–3012 (1998).
- 13) Furuta Y., Nishimura K., Kuzuya M., *Yakugaku Zasshi*, **119**, 929–935 (1999).
- 14) Kuzuya M., Kondo S., *Ouyou Butsuri*, **69**, 401–405 (2000).
- 15) Kuzuya M., Noguchi A., Ishikawa M., Koide A., Sawada K., Ito A., Noda N., *J. Phys. Chem.*, **95**, 2398–2403 (1991).
- 16) Kuzuya M., Ito H., Kondo S., Noda N., Noguchi A., *Macromolecules*, **24**, 6612–6617 (1991).
- 17) Kuzuya M., Noda N., Kondo S., Washino K., Noguchi A., *J. Am. Chem. Soc.*, **114**, 6505–6512 (1992).
- 18) Kuzuya M., Niwa J., Ito H., *Macromolecules*, **26**, 1990–1995 (1993).
- 19) Kuzuya M., Morisaki K., Niwa J., Yamauchi Y., Xu K., *J. Phys. Chem.*, **98**, 11301–11307 (1994).
- 20) Kuzuya M., Yamauchi Y., Niwa J., Kondo S., Sakai Y., *Chem. Pharm. Bull.*, **43**, 2037–2041 (1995).
- 21) Kuzuya M., Niwa J., Kondo S., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **273**, 343–349 (1996).
- 22) Kuzuya M., Matsuno Y., Yamashiro T., Tsuiki M., *Plasmas and Polymers*, **2**, 79–89 (1997).
- 23) Kuzuya M., Yamauchi Y., *Thin Solid Films*, **316**, 158–164 (1998).
- 24) Kuzuya M., Kondo S., Sugito M., Yamashiro T., *Macromolecules*, **31**, 3230–3234 (1998).
- 25) Kuzuya M., Yamashiro T., Kondo S., Sugito M., Mouri M., *Macromolecules*, **31**, 3225–3229 (1998).
- 26) Kuzuya M., Yamauchi Y., Sugito M., *Chem. Pharm. Bull.*, **47**, 273–278 (1999).
- 27) Kuzuya M., Ito K., Kondo S., Yamauchi Y., *Thin Solid Films*, **345**, 85–89 (1999).
- 28) Sonntag C., “Advances in Carbohydrate Chemistry and Biochemistry,” ed. by Tipson R. S., Horton D., Academic Press, New York, 1980, **37**, pp. 7–77.
- 29) Nakajima T., *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**, 1077–1084 (1982).
- 30) Nakajima T., *Health Phys.*, **55**, 951–955 (1988).
- 31) Nakajima T., *Appl. Radiat. Isot.*, **46**, 819–825 (1995).
- 32) Nakajima T., *Appl. Radiat. Isot.*, **45**, 113–120 (1994).
- 33) “Ningen Kankyou to Shizen Houshasen,” ed. by Houshasen Igaku Sougou Kenkyujo, Gijutsu Kiyu Kenkyukai (1979).