JAEA-Review
2013-016

JAEA-Review

核燃料サイクル施設からの放射能放出に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化に関する研究

(学位論文)

Study on the Determination of the Variation of Environmental Gamma-ray Dose Rate due to Radioactivity Discharged from Nuclear Fuel Cycle Facility
(Thesis)

竹安 正則

Masanori TAKEYASU

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
放射線管理部

Radiation Protection Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

July 2013

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（http://www.jaea.go.jp）
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構　研究技術情報部　研究技術情報課
〒319-1195　茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2013

核燃料サイクル施設からの放射能放出に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化に関する研究
（学位論文）

日本原子力研究開発機構　東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所　放射線管理部
竹安　正則

（2013 年 3 月 29 日受理）

本論文は、核燃料サイクル施設からの放射能放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動の定量化を目的として、①再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化のための計算コード・システム(SIERRA-II)の開発、②SIERRA-II を用いた再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化へ向けた検討、③降雨により地表へ降下した雨水中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定と大気中 ^{222}Rn 壊変生成物降雨洗浄モデルの構築、④降雨時に ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化を行ったものである。本研究により、開発した SIERRA-II を用いて再処理施設運転時の環境ガンマ線線量率の変動を実用的な精度で定量化できることが明らかとなった。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の施設等を使用して得られた著者の研究成果を取りまとめ、2007 年 10 月 1 日付で名古屋大学より学位論文（工学）として認定されたものである。

核燃料サイクル工学研究所：〒319-1194　茨城県那珂郡東海村村松 4-33

Study on the Determination of the Variation of Environmental Gamma-ray Dose Rate due to Radioactivity Discharged from Nuclear Fuel Cycle Facility
(Thesis)

Masanori TAKEYASU

Radiation Protection Department
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 29, 2013)

The following studies were carried out with the purpose that the variation of environmental gamma-ray dose rate was determined due to radioactivity discharged from nuclear fuel cycle facility;

i) development of calculation code system (SIERRA-II) in order to determine in quasi-real time the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the operation of reprocessing facility,

ii) examination for determining the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the operation of reprocessing facility using SIERRA-II,

iii) measurement of the concentration of ^{222}Rn decay products in rainwater deposited to the ground surface by rainfall, and construction of the wet scavenging model for the atmospheric ^{222}Rn decay products,

iv) determination of the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the discharged ^{85}Kr during rainfall,

By these studies, it became clear that the developed SIERRA-II could determined the variation of environmental gamma-ray dose rate during the operation of reprocessing facility with practical accuracy.

Keywords: Reprocessing Facility, ^{85}Kr, Environmental Gamma-ray Dose Rate, SIERRA-II, ^{222}Rn Decay Products, Rainwater, Wet Scavenging Model

---

This report, based on the author's research work using facilities of Japan Atomic Energy Agency, was accepted as a doctoral dissertation by the Graduate School of Engineering at Nagoya University on Octorber 1, 2007.

目　　次

1. 序論 …… 1
1.1 本研究の背景 …… 1
1.2 本研究の目的と意義 …… 7
1.3 本研究の構成と内容 …… 7
2. 再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化のための計算コード・システムの開発 …… 10
2.1 緒言 …… 10
2.2 従来の大気拡散・線量計算コード・システム …… 10
2.3 SIERRA-II の開発 …… 11
2.3.1 SIERRA-II で採用したモデル …… 11
2.3.2 計算の流れ …… 12
2.3.3 計算コードのシステム化 …… 18
2.4 東海再処理施設運転に伴う大気中 ^{85}Kr 濃度観測データを用いた SIERRA-II の性能評価 …… 22
2.4.1 東海再処理施設運転時の大気中 ^{85}Kr 濃度の観測 …… 22
2.4.2 排気筒からの ^{85}Kr 放出率の測定および気象状況の観測 …… 24
2.4.3 SIERRA-II を用いた大気中 ^{85}Kr 濃度の計算 …… 24
2.4.4 大気中濃度の計算値と観測値の比較 …… 26
2.5 結言 …… 32
3. 再処理工場運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の SIERRA-II を用いた定量化へ向けた検討 …… 34
3.1 緒言 …… 34
3.2 これまでの研究事例 …… 34
3.3 東海再処理施設運転時の ^{85}Kr の管理放出 …… 35
3.4 東海再処理施設運転時の ^{85}Kr 管理放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動の観測 … 36
3.5 SIERRA-II を用いた環境ガンマ線線量率変動のシミュレーション …… 40
3.6 結言 …… 45
4. 降雨により地表へ降下した雨水中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定 …… 47
4.1 緒言 …… 47
4.2 測定方法 …… 47
4.3 測定結果 …… 51
4.4 大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の降雨洗浄モデルを用いた考察 …… 58
4.4.1 雨雲中の ^{222}Rn 壊変生成物の挙動 …… 59
4.4.2 雨雲下雨水中の ^{222}Rn 壊変生成物の挙動 …… 60
4.4.3 パラメータ値の設定 …… 61
4.4.4 モデルを用いた観測結果の考察 …… 61
4.5 結言 …… 65
5. 降雨時に ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化 …… 67

5.1 緒言 …… 67
5.2 これまでの研究事例 …… 67
5.3 大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の降雨による地表沈着に伴う
環境ガンマ線線量率の変動の解析 …… 68
5.4 降雨時の環境ガンマ線線量率変動の観測 …… 70
5.5 計算結果と観測結果の比較 …… 70
5.6 降雨時に観測された再処理施設からの ^{85}Kr 放出に伴う
環境ガンマ線線量率変動の弁別 …… 73
5.7 結言 …… 78
6. 結論 …… 79
6.1 結論 …… 79
6.2 今後の課題 …… 81
参考文献 …… 82
付録 1. 本論文を構成する発表論文とその他の関連論文 …… 88
付録 2. 降雨時に観測される環境ガンマ線線量率の変動要因 …… 90

CONTENTS

1. Introduction ····· 1
1.1 Background of the study ····· 1
1.2 Purpose and significance of the study ····· 7
1.3 Structure and contents of the report ····· 7
2. Development of calculation code system for determining in quasi-real time the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the operation of reprocessing facility ····· 10
2.1 Introduction ····· 10
2.2 Conventional atmospheric dispersion and dose calculation code system ····· 10
2.3 Development of SIERRA-II ····· 11
2.3.1 Model adopted in the SIERRA-II ····· 11
2.3.2 Calculation flow ····· 12
2.3.3 Systematization of calculation code ····· 18
2.4 Performance test of the SIERRA-II using the observed atmospheric concentration of ^{85}Kr at the operation of the Tokai Reprocessing Plant ····· 22
2.4.1 Observation of the atmospheric concentration of ^{85}Kr at the operation of the Tokai Reprocessing Plant ····· 22
2.4.2 Measurement of the discharged rate of ^{85}Kr from the stack and meteorological condition ····· 24
2.4.3 Calculation of atmospheric concentration of ^{85}Kr by the SIERRA-II ····· 24
2.4.4 Comparison between the calculated and observed atmospheric concentrations 26
2.5 Conclusion ····· 32
3. Examination on the determination of the variation of environmental gamma-ray dose rate in the operation of reprocessing facility by the SIERRA-II ····· 34
3.1 Introduction ····· 34
3.2 Study in the past ····· 34
3.3 Controlled discharge of ^{85}Kr in the operation of the Tokai Reprocessing Plant ····· 35
3.4 Observation of the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the controlled discharge of ^{85}Kr in the operation of the Tokai Reprocessing Plant ····· 36
3.5 Simulation of the variation of environmental gamma-ray dose rate by the SIERRA-II 40
3.6 Conclusion ····· 45
4. Measurement of the concentration of ^{222}Rn decay products in rainwater ····· 47
4.1 Introduction ····· 47
4.2 Procedures of measurement ····· 47
4.3 Results of measurement ····· 51
4.4 Consideration by the wet scavenging model of atmospheric ^{222}Rn decay products ····· 58
4.4.1 Behavior of ^{222}Rn decay products in raincloud ····· 59
4.4.2 Behavior of ^{222}Rn decay products in rainwater under raincloud ····· 60
4.4.3 Setting the parameter ····· 61

4.4.4 Consideration of observation results by the model ····· 61
4.5 Conclusion ····· 65
5. Determination of the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the discharge of ^{85}Kr during rainfall ····· 67
5.1 Introduction ····· 67
5.2 Study in the past ····· 67
5.3 Analysis of the variation of environmental gamma-ray dose rate due to the ground deposition of atmospheric ^{222}Rn decay products by rainfall ····· 68
5.4 Observation of the variation of environmental gamma-ray dose rate during rainfall ··· 70
5.5 Comparisons of calculated results with observed ones ····· 70
5.6 Discrimination of the variation of environmental gamma-ray dose rate due to discharge of ^{85}Kr from reprocessing facility during rainfall ····· 73
5.7 Conclusion ····· 78
6. Conclusion ····· 79
6.1 Conclusion ····· 79
6.2 Further themes ····· 81
References ····· 82
Appendix 1. Papers which constitute this report and the other related papers ····· 88
Appendix 2. Factors affecting the variation of environmental gamma-ray dose rate observed during rainfall ····· 90

1. 序論

1.1 本研究の背景

核燃料サイクル施設には、ウラン鉱石の採鉱および精錬の工場、ウラン燃料製造のための転換・濃縮および燃料体加工の工場、原子力発電所、再処理工場、および廃棄物処理・処分施設などがある。

核燃料サイクル施設で事故・トラブルが発生し放射性物質の閉じこめ機能が失われると、排気筒等から大気中に放射性物質が放出される。例えば、旧核燃料サイクル開発機構東海再処理施設アスファルト固化処理施設火災・爆発事故時には、施設の窓等が破損して開口部ができ、施設内に拡がったセシウム-137(^{137}Cs)などの放射性物質が大気中へ放出された [1)]。株式会社ジェーシーオー(JCO)ウラン転換加工施設における臨界事故時には、放射性希ガスおよびガス状の放射性ヨウ素等の核分裂生成物が大気中へ放出された [2)]。この際、放出された放射性物質のプルームにより風下側に位置したモニタリングステーション(MS)およびモニタリングポスト(MP)で環境ガンマ線線量率が変動した [3)]。この環境ガンマ線線量率変動データは、施設から大気中に放出された放射性物質からの放射線による周辺環境での線量の評価に使用された [4)]。このように、事故時の施設周辺の環境ガンマ線線量率変動データは、事故の環境影響を評価する際の基礎データとなる。

核燃料サイクル施設は、通常運転時に大気中へ気体廃棄物として放射性物質を放出する。世界で稼働している核燃料サイクル施設から大気中への放射性物質放出量は、国連科学委員会の報告書に記載されている [5)]。この報告書によると、ウラン鉱石の採鉱・精錬工場からは、ラドンが放出される。ウラン燃料転換・濃縮・加工施設からは、ラジウム、トリウムおよびウランが放出される。原子力発電所からは、放射性希ガス、トリチウム(^{3}H)、ヨウ素-131(^{131}I)、粒子状放射性物質が放出される。再処理工場からは、クリプトン-85(^{85}Kr)、^{3}H、炭素-14(^{14}C)、ヨウ素-129(^{129}I)が放出される。

日本で稼働している核燃料サイクル施設については、大気中への放射性物質の放出は、指針等で定められた基準以下であることが確認されている [6)]。燃料加工施設からの放射性気体廃棄物の放出量については、3月間の平均濃度が、法令で定める濃度限度を超えないように濃度管理目標値を保安規定で定め、これを超えないように管理されている。実用発電用原子炉施設については、「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針」[7)]に従い、施設周辺の公衆の受ける線量目標値である年間 50 μ Sv を達成するために安全審査の段階で評価され、その放出量を年間放出管理目標値として保安規定に定め、それを超えないように管理されている。研究開発段階にある発電の用に供する原子炉施設からの放射性気体廃棄物の放出量については、原子炉設置許可時の審査の際に用いられた放出量を年間放出管理目標値として保安規定に定め、それを超えないように管理されている。再処理施設からの放射性気体廃棄物の放出量については、事業指定時の審査の際の周辺環境への影響評価に用いられた放出量を基に年間放出管理目標値を保安規定で定め、これを超えないように管理されている。廃棄物管理施設および廃棄物埋設施設からの放射性気体廃棄物の放出量については、3月間の平均濃度を管理目標値として保安規定に定め、

これを超えないように管理されている。

このように、日本で稼働している核燃料サイクル施設からの放射性気体廃棄物は、管理された状態で放出されている。2005 年度のこれらの施設からの放射性気体廃棄物の放出量は、全ての施設において放出管理目標値あるいは濃度管理目標値を下回っていた [6]。2005 年度についての放射性気体廃棄物の放出量は、原子力施設運転管理年報 [6]にまとめられている。それによると、加工施設からのウランの放出量は、全ての施設に対して検出限界濃度未満であった。実用発電用原子炉施設からの希ガスは最大で 10^{11} Bq/年程度、^{129}I は最大で 10^{6} Bq/年程度放出された。その他の核種については、記載がないが、発電用原子炉施設の安全審査時の放射性気体廃棄物の年間放出量の試算によると、その他の核種の放出量は、ヨウ素の放出量より1桁以上小さい [8]。研究開発段階にある発電の用に供する原子炉施設については、^{3}H が最大で 10^{11} Bq/年程度放出された。再処理施設については、東海再処理施設から ^{85}Kr が 10^{15} Bq/年程度、^{129}I が 10^{8} Bq/年程度、粒子状全α放射性物質が 10^{4} Bq/年程度、^{3}H が 10^{12} Bq/年程度、^{14}C が 10^{11} Bq/年程度放出された。廃棄物管理施設については、放出放射能濃度が全ての核種で検出限界濃度未満であった。廃棄物埋設施設については、放射性気体廃棄物の放出はなかった。以上のように、核燃料サイクル施設の中で、再処理施設からの放射性物質、特に ^{85}Kr の放出が多い。^{85}Kr はガンマ線放出核種であるため、再処理施設から ^{85}Kr が放出されると、施設周辺環境中のガンマ線が変動する [9]。

核燃料サイクル施設周辺では、環境放射線モニタリングが実施されている。環境放射線モニタリングの基本的目標は、施設の周辺住民等の健康と安全を守るため、環境における施設に起因する放射性物質または放射線による周辺住民等の線量が、年線量限度を十分に下回っていることを確認することである [10]。具体的には、施設から予期しない放射性物質の放出があった場合に、その影響を的確かつ迅速に評価するために、平常時のモニタリング結果を把握しておくことである。この目標のために、空間放射線が測定されている。平常時における空間放射線の測定は、ガンマ線を対象とする [10]。施設に起因する空間放射線は、通常、施設からの距離が遠くなるに従って減少するので、敷地境界の近傍に連続モニタを具備した MP が配置され、線量率が連続測定される。

連続モニタにより、環境ガンマ線が連続測定される。この測定により、時々刻々の環境ガンマ線の変動の監視を可能にし、変動の監視は、気象観測データ等と比較対照するによって異常の早期発見と原因調査に役立つ。連続モニタの検出部としては、NaI(Tl)シンチレーション検出器がある。この検出器は、ガンマ線に対して高い感度を有するため、低い線量率レベルの測定に有効である [11]。

線量率の変動の監視のために、平均値に対して有意な変動を抽出し、解析を行う。観測された有意変動は、自然現象ならびに人工的な要因による。おもな要因としては、(i)降雨、(ii)積雪、(iii)その他の自然現象、例えば大気逆転層等による放射線レベルの変動、(iv)原子力施設等人工的な放射線源などがある [11]。これらの有意変動の要因の解析のフローチャートの一例が文献に示されている [11]。茨城県では、原子力施設周辺の環境ガンマ線線量率の監視において、有意な線量率上昇が検出された際に、その

原因を迅速に究明して早期に対応するためのマニュアルを策定し、運用している [12]。このマニュアルは、MS および MP でのガンマ線線量率の連続測定データにおける有意上昇の原因が、原子炉事故によるものなのか、降雨など事故以外によるものなのかを迅速かつ的確に究明・断定するための技術マニュアルである。このマニュアルは、異常上昇の原因究明を、上昇の確認後、遅くとも 10 分程度で行うことを目的としている。このマニュアルに従い、2002 年7月より試験運用を開始し、有意上昇が確認された際に原因を判別・究明した。その結果、2002 年7月から 2003 年3月までの期間で、判定された原因は降雨が最も多く、150 回以上であった [12]。

原子力施設からの放射能放出以外でも、自然界の放射線により環境ガンマ線線量率は変動する。環境ガンマ線線量率を変動させる要因には大きく自然的要因と人工的要因がある。自然的要因には、天然放射性核種からの放射線の変動等がある。これは、天然放射性核種の分布状態が変化する際に起こるものがほとんどである。人工的要因には、原子力平和利用に伴う放射線（放射性核種）の放出等がある。環境ガンマ線線量率の変動要因となる環境中の線源の概念図を Fig. 1-1 に示す [13]。以下に、各要因について概観する。

(1)宇宙線誘導放射性核種を除く天然放射性核種からの放射線の変動

地球創世時代から存在し、半減期が長いため現在でも残っている放射性核種がある。これらの放射性核種には地中に存在しているものと地中から散逸して大気中に存在しているものとがある。

地中に存在する天然放射性核種には、ウラン系列、トリウム系列、アクチニウム系列の3系列を構成する核種と単独で存在する核種がある。地中に存在する天然放射性核種のうち重要な核種は、その存在量の多さから、カリウム-40(^{40}K)とウラン系列、トリウム系列を構成する核種である。

3つの壊変系列を構成する核種の中にはそれぞれ気体のラドン-222(^{222}Rn), ラドン-220(^{220}Rn), ラドン-219(^{219}Rn)があり、これらは土壌中の間隙を経て大気中に散逸し、大気中を水平方向および鉛直方向へ移流・拡散する。ここで、間隙とは、土壌中の固層以外の全ての部分を指す。移流・拡散の途中で壊変系列に従って壊変し、壊変生成物に変化していく。大気中に存在する天然放射性核種のうち環境ガンマ線線量率へ寄与するのは、^{222}Rn と ^{220}Rn の壊変生成物である。

地中に存在する天然放射性核種からのガンマ線は、積雪および土壌中水分量の変化に伴い変動する。積雪は地中からの放射線の遮へい材の役割を果たすため地上の放射線強度を弱める。積雪による空間線量率の減少幅は大きく、20 cm の積雪で 50 %減少するという報告もある [14]。そのため、積雪の多い地方では積雪のために空間線量率が季節的な変動を示すことがある。土壌中の水分は土粒子中の天然放射性核種より放射された放射線を遮へいする役目をするため、土壌中水分量が増加するとガンマ線の強度は弱くなる。土壌含水比と環境ガンマ線線量率の関係については、吉岡がそれらの連続測定を行い、解析を行っている [15]。

大気中に存在している天然放射性核種の濃度が変化するとき、地上のガンマ線の強度が変動する。

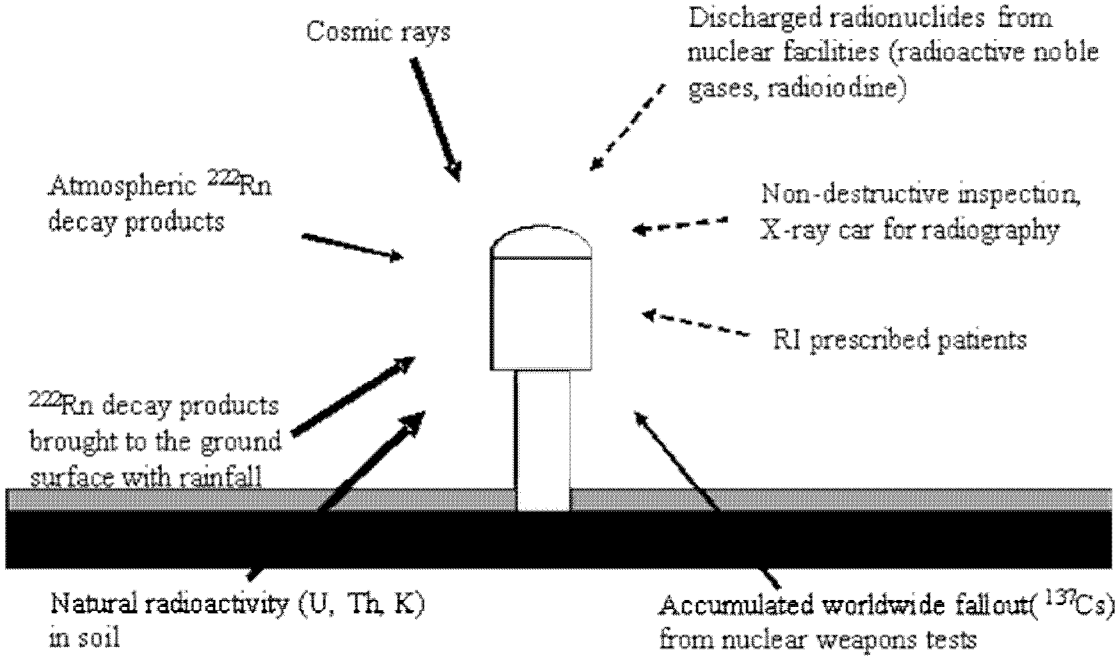


Fig.1-1 Variety of the environmental radiation sources which affect gamma-ray dose rate

大気中の天然放射性核種濃度は大気の安定度によって大きく変化する。昼間、日射により地表面付近の大気が暖められて大気の垂直混合が盛んなときは、地表面近くの天然放射性核種は拡散するため濃度は低い。しかし夜間、地表面が冷えて大気の垂直混合が乏しいときは、天然放射性核種の垂直方向への拡散が小さくなるので濃度は高くなる。特に夜間大気中に逆転層が形成される場合には垂直方向への拡散が著しく抑制されるため、濃度は特に高くなる。このように大気中天然放射性核種濃度が昼間と夜間で変動するときガンマ線強度も同様に変動する。地表付近の大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度が 3 Bq m^{-3} 減少したと仮定し、Yoshioka が評価した換算係数 [15]を用いると、環境ガンマ線線量率は約 1 nGy h^{-1} 減少すると評価される。

大気中の天然放射性核種の分布状態は降雨時にも変化する。すなわち、降雨時には大気中に分布していた天然放射性核種が降雨のレインアウト・ウォッシュアウトの効果により地表面へ沈着する。この時、天然放射性核種は地表面上に濃縮されたことになり、Fig. 1-2 に示すように、ガンマ線強度は上昇する。しかし、降雨が止めば放射線強度は特有の半減期（30～40 分）で平常値に戻る。降雨時の環境ガンマ線線量率の変動については、第5章で詳述する。

(2) 原子力平和利用に伴う放射線と放射性核種

原子力施設内で放射線線源およびX線発生装置などを用いて非破壊検査および放射線測定器の校正等が行われることがある。この時、環境ガンマ線線量率が変動することがある。環境ガンマ線線量率の変動パターンは、検査の方法、校正の方法および使用する線源によって異なってくる。変動の時間幅は1分～数時間で、変動幅は 7～70 nGy h^{-1} 程度である [16]。

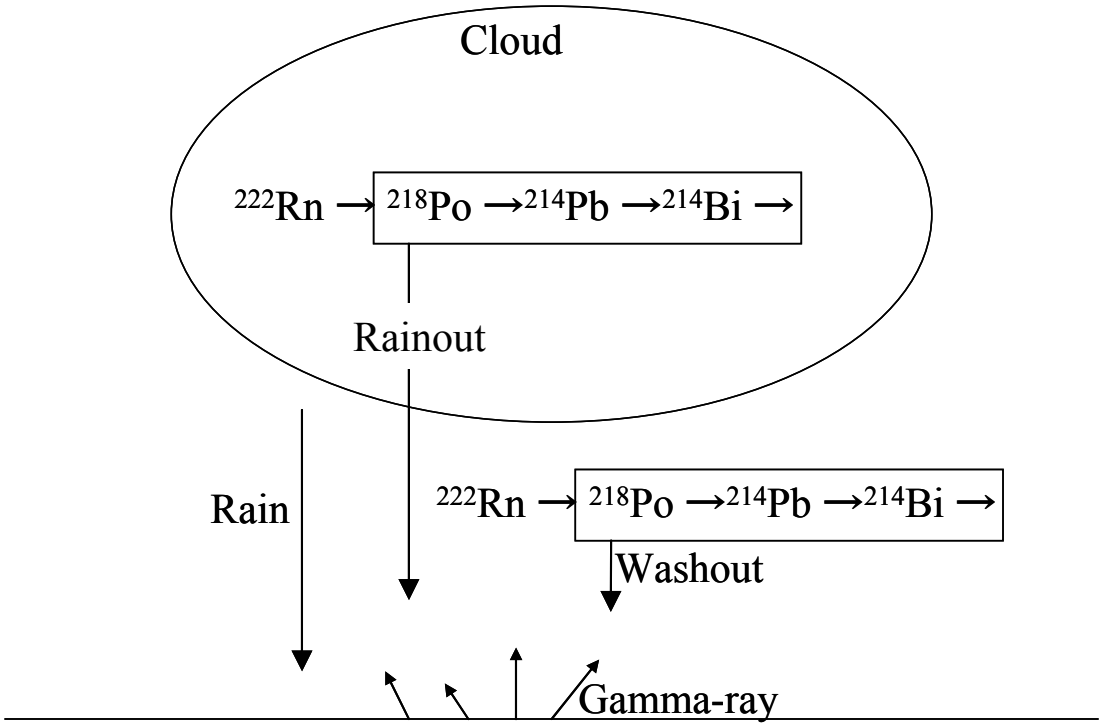


Fig. 1-2 Behavior of ^{222}Rn and its decay products in the environment

MS は、市町村の公共施設の近くに設置されていることが多い。ところが、このような場所にはレントゲン車を持ち込んで市町村の人達のために集団検診が行われることがしばしばある。レントゲン車には遮へいなど施されているが、わずかな放射線ではあるが漏えいする。集団検診が MS の近くで行われると MS での環境ガンマ線線量線量率が変動する。漏えい放射線は、X線装置より 1m 離れた場所においては胸部撮影の場合1回で 10～50 nGy h^{-1} 程度である [16]。

放射性同位元素を投与された人が MS の近くを移動することがある。この時、MS での線量率が変動する。江原らは、核医学診断のためにテクネチウム-99m(^{99m}Tc)の放射性同位元素を投与された患者が MS に接近し、接近した期間に線量率が変動したことを報告した [9]。線量率の変動幅は、通常の線量率のレベルの3倍程度であった。

放射性同位元素運搬車が MS の近くを通過すると漏えいした放射線により線量率が変動することがある。江原らは、非破壊検査用のイリジウム-192(^{192}Ir)を積載した車が MS の近くに駐車したため、線量率の上昇が見られたと報告した [9]。その時の線量率の変動は、放射性同位元素投与患者が MS に接近した時の変動と変動幅および変動時間が類似した変動であった。

(3) 宇宙線と宇宙線誘導放射性核種の存在量の変化

宇宙空間から地球に高エネルギーの放射線が絶えず降り注いでいる。この放射線は一次宇宙線と呼ばれ、大気の上層部で大気中の原子核と反応して二次粒子や電離放射線などの二次宇宙線と、^{3}H, ベリリウム-7, 10(^{7}Be, ^{10}Be), ^{14}C, ナトリウム-24(^{24}Na)などの様々な宇宙線誘導放射性核種を生成する。

一次宇宙線の強度は、太陽の黒点数と関連し太陽活動の盛んな時弱くなる。太陽活動に起因する変動は、太陽の自転周期や 11 年の周期で繰り返される。これらの変動に伴って、地表面付近で二次宇宙線の強度が変動する [17]。大気層の日変動や季節変動に伴う対流圏の上限の高さにも起因して、地上で観測される二次宇宙線の強度は変動する [17]。

(4) 核爆発実験等による放射性核種からの放射線

過去に行われた大気圏内核爆発実験等により核分裂生成物および誘導放射性核種が大気中にばらまかれて対流圏・成層圏に拡散し、放射性塵挨として長期間大気中を漂っている。放射性塵挨が地表へ落下したものをフォールアウトという。辻本は、核爆発実験およびチェルノブイリ原子炉事故により環境中での線量率が上昇した例を報告した [16]。線量率の上昇時間および減衰時間は核爆発実験の種類によって異なる。これは、地表へ降下した放射性核種が異なるためであるとした。しかし、上昇した線量率は、核爆発実験等が行われた後、指数関数的に減衰し、核爆発実験等が行われた後数ヶ月で通常のレベルに戻っている [16]。従って、現在の日本では環境ガンマ線線量率の変動への寄与は無視できると考えられる。

このように、原子力施設からの放射能放出や自然界の放射線により環境ガンマ線線量率は変動する。変動した原因を特定することは、施設からの放射能放出に伴う変動を弁別する上で重要である。施設からの放射能放出に伴う変動を弁別する方法としては、放出される放射能からの放射線と自然放射線のエネルギースペクトルの違いを利用して区別する方法がある。その 1 つとして NaI(Tl)シンチレーション検出器に波高分析回路を組み込む DBM(Discrimination Bias Modulation)方式がある [18]。この方法は、自然ガンマ線と人工ガンマ線のエネルギーの違いによる通過率の差を利用して弁別するものである。ここで、通過率は、NaI(Tl)検出器からの DBM エネルギー補償後の計数率と、エネルギーを補償前の全計数率の比で定義される。この通過率から、入射するガンマ線のエネルギーを推定することが可能である。入射ガンマ線が ^{85}Kr からのみの場合は、通過率からガンマ線が ^{85}Kr 由来であることが推定できる。しかし、入射ガンマ線が複数の起源によるものである場合、ガンマ線エネルギーが複数となり、ガンマ線の起源を弁別することはできない。降雨時に ^{85}Kr が放出された場合のように、複数核種から複数のガンマ線が入射するような時は、通過率からガンマ線放出核種を弁別することは困難である。

施設からの放射能放出に伴う環境ガンマ線線量率変動を弁別するその他の方法としては、シングルチャンネル波高分析器(SCA)あるいは多重波高分析器(MCA)を用いて入射ガンマ線のエネルギーを特定する方法がある [19-20]。これらの方法では、入射ガンマ線エネルギーが特定できるため、人工放射性核種による線量率上昇と自然ガンマ線線量率を弁別することが可能である。そのため、降雨と原子力施設からの放射性物質の大気放出や放射線の漏えいが重なった場合において放出（漏えい）成分の弁別に有効である。しかし、東海再処理施設が設置された日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所においては SCA あるいは MCA が現状一部しか配備されていない。他の核燃料サイクル施設周辺に

ついてもこれらが設置されていないことがある。

1.2 本研究の目的と意義

核燃料サイクル施設には、通常運転時に大気中へ気体放射性廃棄物を放出する。その中で、再処理工場からの ^{85}Kr の放出量が最も多い。^{85}Kr はガンマ線放出核種であるため、再処理工場から放出されると施設周辺での環境ガンマ線線量率が変動する。核燃料サイクル施設周辺では、環境ガンマ線線量率が連続測定されている。時々刻々の線量率の変動を監視し、有意な変動は異常値として抽出される。異常値と判定された測定値は、要因解析のフローチャートに従って原因究明がなされる。

再処理工場から ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率を定量化し、^{85}Kr の放出状況とガンマ線線量率変動の関係を把握しておくことは、以下の点においても、重要である。

核燃料サイクル施設の事故・トラブル時に放射性物質の閉じこめ機能が失われると、大気中へ放射性物質が放出される。そのような場合には、施設周辺で観測された環境ガンマ線線量率の変動データが、施設から大気中へ放出された放射性物質からの放射線による周辺環境での線量評価に使用される。このことから、通常運転時から、施設からの放射性物質の放出状況と、施設周辺での環境ガンマ線線量率の変動を関連づけておくことは、事故・トラブル時に役に立つ。

インターネット上には、原子力施設周辺の MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率が実時間で公開されている[21]。2000 年 9 月 30 日に起きた JCO ウラン加工施設臨界事故時には、インターネットで公開された環境ガンマ線線量率のデータに対して多数の住民からアクセスがあった[22]。旧核燃料サイクル開発機構は、JCO 臨界事故時に、MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率のデータをインターネット上に公開していた[23]。このように、インターネット上に公開されたガンマ線線量率のデータは、一般住民も気にしているものである。この点においても、再処理工場からの ^{85}Kr 放出によるガンマ線線量率の変動を定量化しておくことは重要である。

本研究の目的は、異常値の原因究明に資するために、再処理工場から ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化手法を確立することである。環境ガンマ線線量率は降雨時にも変動することから、降雨時に ^{85}Kr が放出された時のガンマ線線量率を定量化することも検討した。

1.3 本研究の構成と内容

本論文は第1章から第6章までにより構成される。第1章は序論、第2章は再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化のための計算機コード・システムの開発、第3章は、開発した計算コード・システムを用いた再処理運転時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化、第4章は雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定、第5章は降雨時に観測される環境ガンマ線線量率の変動の定量化、第6章は結論である。以下に各章の概略を示す。

第1章では、本研究の背景と、目的と意義、構成と概要についてまとめた。

第2章では、再処理施設運転時の ^{85}Kr 放出に伴う施設周辺の環境ガンマ線線量率の変動を計算するために、”放出放射性物質による緊急時線量シミュレーションコード(Simulation code (II) for Emergency Dose by Released Radioactive Substances ; SIERRA-II)”を開発した。東海再処理施設運転時に施設周辺で観測された大気中 ^{85}Kr 濃度データを用いて、SIERRA-II の性能評価を行った結果についてとりまとめた。再処理工場から放出された ^{85}Kr の大気拡散現象をモデル化し計算するためには、周辺環境の気象場と、気象場に基づく大気拡散のモデルが必要である。気象場と大気拡散のモデルとしては、これまでにいくつかのモデルが提案されているが [24)]、本研究では、気象場の迅速な計算が可能な質量保存風速場モデルを採用した。大気拡散モデルとしては、地形が複雑な地域でも適用可能な粒子拡散モデルを採用した。これらのモデルに基づく計算コードを採用し、改良を加えた。施設の排気筒モニタデータと施設周辺の気象観測データをオンラインで収集するテレメータシステムと連結することにより、風速場・大気拡散計算ができるシステムを開発した。東海再処理施設運転時に施設周辺で観測された大気中 ^{85}Kr 濃度データと計算結果を比較した。

第3章では、東海再処理施設周辺で観測された環境ガンマ線線量率変動データを使用して、開発した SIERRA-II による再処理工場からの ^{85}Kr 放出時のガンマ線線量率変動の定量化について検討した。東海再処理施設周辺監視区域境界付近には、10 基の MS および MP が設置されている。これらの MS と MP において、環境ガンマ線線量率が連続的に測定されている。本研究では、再処理工場からの ^{85}Kr 放出率のデータと施設周辺の気象観測データをもとにガンマ線線量率の変動を計算できる SIERRA-II を用いて、^{85}Kr 放出時に施設周辺で観測されたガンマ線線量率の変動をシミュレートした。各 MS および MP 毎に、観測されたガンマ線線量率変動のシミュレート結果について考察した。

第4章では、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動の要因である雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物の濃度を測定した。測定は、1992 年3月から 1993 年3月に京都大学原子炉実験所で採取した雨水試料に対して行った。^{222}Rn 壊変生成物である鉛-214(^{214}Pb), ビスマス-214(^{214}Bi)の個別の濃度を測定するために、採取した雨水のガンマ線スペクトルをゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した。^{214}Pb と ^{214}Bi のガンマ線ピーク計数率から、これらの核種の個別濃度を求めた。さらに、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の降雨洗浄モデルを構築した。このモデルを用いて、雨水中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定結果の説明を試みた。

第5章では、第4章で構築したモデルに基づいて、降雨による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着による環境ガンマ線線量率の変動を計算した。MS, MP における降雨時の実測環境ガンマ線線量率の変動と比較した。さらに、降雨時に再処理施設から ^{85}Kr が放出された場合に、^{85}Kr 放出に伴う線量率変動を降雨時変動から弁別することを試みた。降雨時の実測環境ガンマ線線量率の変動から、計算による降雨によるガンマ線線量率変動を差し引くことにより、^{85}Kr 放出に起因する線量率変動を求めた。弁別されたガンマ線線量率と、排気筒モニタデータと局地気象観測データをもとに計算された ^{85}Kr 放出に伴う線量率変動を比較した。

第6章では、本研究の結論を取りまとめるとともに、今後の課題について記述した。

付録として、降雨時に観測される環境ガンマ線線量率変動の主要な要因である降雨による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着以外の要因について考察した。これは、第5章で、降雨による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着により降雨時の環境ガンマ線線量率の変動を計算する際に確認すべき内容である。

最後に、今まで述べた本研究の全体像を分かりやすくするために Fig. 1-3 に本研究の構成を図式化した。再処理施設周辺の環境ガンマ線線量率変動を定量化することを最終目的として、開発した計算コード・システムを用いた再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化および降雨時の環境ガンマ線線量率変動の定量化と、本研究で記載されている章との関係について示した。

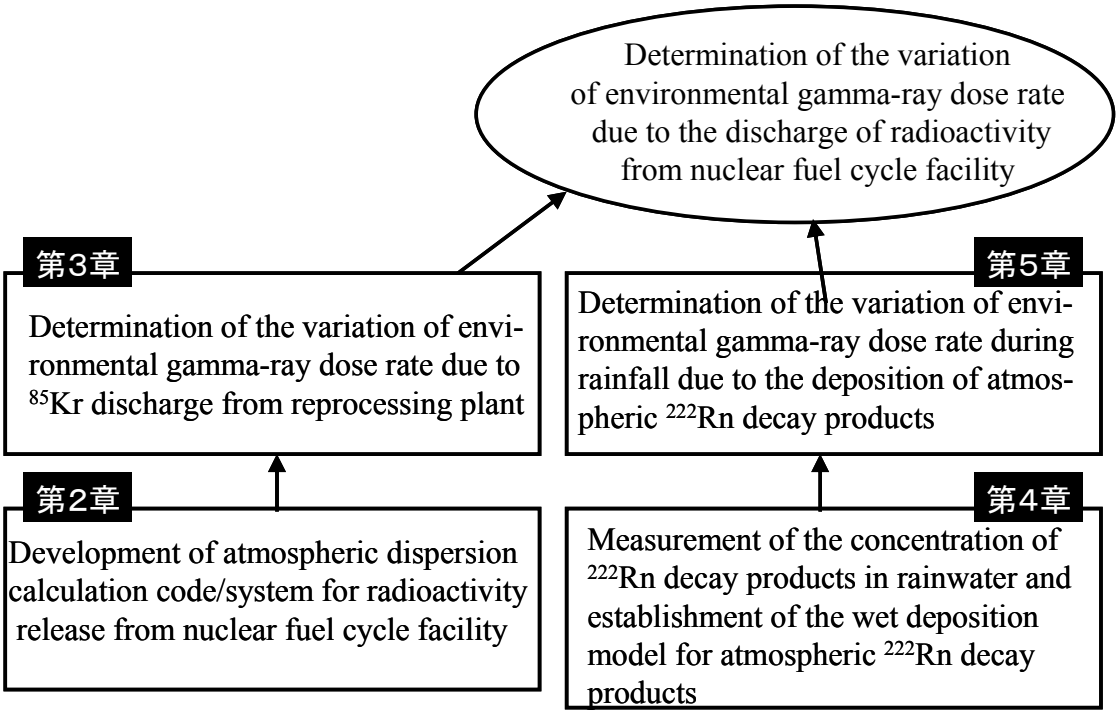


Fig. 1-3 Approach to the determination of the variation of environmental gamma-ray dose

2. 再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化のための計算コード・システムの開発

2.1 緒言

再処理施設は、運転に伴い、^{85}Kr を大気中へ放出する。^{85}Kr が大気中に放出されると、施設周辺に設置された MS および MP で環境ガンマ線線量率の変動が観測される。このガンマ線線量率の変動は、^{85}Kr の施設からの放出状況と大気中の拡散状況に依存する。^{85}Kr の放出状況に関するパラメータは、排気筒からの ^{85}Kr 放出率であり、大気中の拡散状況に関するパラメータは、施設周辺の風速場等である。これらのパラメータに基づきガンマ線線量率の変動を解析・評価することは、施設周辺のガンマ線線量率の変動原因を解釈するために必要である。さらに、施設周辺で観測されたガンマ線線量率の変動は、インターネット上に最新の 10 分間平均値が 10 分毎に自動更新され公開されていることから、10 分間隔のような準実時間で解析することは重要である。

^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動を準実時間で解析・評価するためには、上述のパラメータに基づき準実時間で風速場および大気拡散の計算が可能なモデルおよび計算コードが必要である。上述したパラメータのデータをオンラインで自動入力し、これらの入力データをもとに、計算コードを自動的に実行し、計算出力を自動出力するような計算コード・システムが必要である。このようにシステム化された計算コードは、再処理施設で事故・トラブルが発生して放射性物質が施設から大気中へ放出された場合に有用である。再処理施設で事故が発生し希ガス等が大気中へ放出された場合には、施設周辺の環境ガンマ線線量率が変動することが予想される。このような場合、上記の計算コード・システムにより、施設周辺で観測された環境ガンマ線線量率の変動データと、施設からの放出放射性物質量との関連付けが可能となる。

本章では、再処理施設運転時の ^{85}Kr 放出に伴う施設周辺の環境ガンマ線線量率の変動を準実時間で定量化するために、SIERRA-II を開発した。東海再処理施設運転時に施設周辺で観測された大気中 ^{85}Kr 濃度データを用いて、SIERRA-II の性能評価を行った。

2.2 従来の大気拡散・線量計算コード・システム

大気拡散を計算するためのモデルとしては、発電用原子炉施設の安全解析用としてプルームモデルが気象指針 [25]に記載されている。プルームモデルは、気象状態および放射性物質の放出条件が一定で継続する場合の大気拡散を計算するための簡便なモデルである。プルームモデルを用いた計算コード・システムとして、旧動力炉・核燃料開発事業団東海事業所で環境データ図形表示システム(DIAMOND)[26]が開発された。DIAMOND は、東海再処理施設を対象とし、大気放出された放射性物質による環境線量を計算する計算コード・システムとして 1979 年に開発された。しかし、プルームモデルは、気象状態および放射性物質の放出率が変化しないことを仮定しているため、実際の気象状態および放射性物質放出率の時間変化に対応した計算ができない。一方、気象状態および放射性物質放出率の時間変化に対応した計算がで

きるモデルとして、パフモデルがある [24]。パフモデルは、放出された放射性物質を煙の塊(パフ)として取り扱うことにより、気象状態および放射性物質放出率の時間変化に対応した計算を可能とするモデルである。旧動力炉・核燃料開発事業団東海事業所では、パフモデルを用いた計算コード・システムとして、緊急時環境影響シミュレーションシステム(SMAP)を開発した [3]。SMAP により、1999 年に発生した JCO 臨界事故時に放出された放射性核種の大気拡散を計算することができた。JCO 臨界事故時に、旧核燃料サイクル開発機構東海事業所の MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率の変動を解析するのに役立った [3]。しかし、パフモデルは、地形が複雑な地域での大気拡散計算において計算精度に問題が残る [27]。

パフモデルとは別に、放出された放射性物質を粒子群として取り扱い、粒子群の移流と拡散を解く粒子拡散モデルが開発された。粒子拡散モデルは、複雑地形上での放射性物質の大気拡散を計算することができる。このモデルに基づく計算コード・システムとして、日本全国の原子力発電所の近隣地方自治体の地域防災のために整備された SPEEDI ネットワークシステムがある [28]。SPEEDI は、地方自治体が周辺住民の防災対策方針を策定することを目的として開発されたため、原子力発電所から数 km から数十 km 離れた住民の居住地域での大気拡散計算に重点を置いている。そのため、SPEEDI は数十 km 四方の領域の大気拡散計算を迅速に行うために、計算の空間的分解能は最小 200m 四方と比較的大きくし、計算機への負荷を軽くしている。

最近では、より詳細に大気拡散の計算を行うために、粒子拡散モデルで使用する拡散係数等を大気力学モデルで解くようになってきた。大気力学モデルとしては、MM5、RAMS/HYPACT、HOTMAC/RAPTAD 等がある [29-31]。これらの大気力学モデルは、大気状態を支配する方程式を解くため、3次元の拡散係数の分布を計算するのに有効である。大気力学モデルは計算が複雑になるため、計算機への負荷が大きい。しかし、パソコンのハードウェアの近年の急激な進化により、大気力学モデルの計算が短時間できるようになりつつある。

2.3 SIERRA-II の開発

2.3.1 SIERRA-II で採用したモデル

SIERRA-II は、SPEEDI と同じく、放出された放射性物質を粒子群として取り扱い、粒子群の移流・拡散を解く粒子拡散モデルを採用した。SIERRA-II で採用したモデルは、EXPRESS (Exact Preparedness Supporting System) [32]で使用されたモデルに基づいた。EXPRESS は、計算機への負荷を下げ、ワークステーション等の計算機で、放射性物質の三次元大気拡散計算をするために開発された計算コードである。SIERRA-II では、EXPRESS のモデルに種々の改良を加え、計算コード・システム化することにより、Windows OS で動作するようにした。種々の改良により、Windows PC 上で数分以内に1回の計算を終え、10 分間隔で出力が得られるようにした。主な改良点は以下の通りである。

①対象施設から数 km の範囲内での拡散計算の空間的分解能を上げつつ、計算機への負荷を軽減するために、ネステッド格子モデル [33]を採用した。このモデルは、計算格子間隔の粗い大きな計算領

域の中に計算格子間隔を細かくした小さな領域を配置（ネスティング）し、対象施設周辺の計算格子間隔を小さくするものである。ネスティング格子モデルにより、計算機負荷を数十分の 1 程度まで低減することができる [33]。このようにネスティングされた格子配列とすることで、対象施設周辺での拡散計算の空間的分解能を上げつつ、計算機への負荷を軽減した。

②EXPRESS で採用されたモデルでは、Pasquill の線図 [34]から粒子の水平方向および鉛直方向の拡散係数を導出している。Pasquill の線図から導出される鉛直方向の拡散係数は、風下距離が大きくなるに従い大きくなり、風下距離数 km でほぼ一定値になる。EXPRESS では、対象施設から数 km～数十 km 離れた住民居住地域を主な計算対象領域としていることから、鉛直方向の拡散係数として Pasquill の線図から導出される風下距離数 km での一定値を風下距離に係わらず用いている。しかし、SIERRA-II は、施設から数 km の範囲内での大気拡散計算を目的としている。MS および MP は、施設から数百m～数km 程度に設置されているため、これらの領域が SIERRA-II の計算対象である。従って、EXPRESS で用いられた鉛直拡散係数の値は過大である。SIERRA-II では、Pasquill の線図から風下距離の関数として導出される鉛直方向拡散係数の値を用いた。

SIERRA-II は、事故・トラブル等で施設から放射性物質の大気放出が予測される場合にも利用できるようにした。大気力学モデルにより予測された気象データを利用することにより、環境ガンマ線線量率分布等を放出開始前に計算できるようにした。大気力学モデルは、(財)日本気象協会が開発した大気力学モデル(ANEMOS ; Area-oriented Numerical simulation and Environmental assessment MOdeling System)[35]を採用した。このモデルは、Mellor-Yamada が開発した乱流モデル [36]に基づき、大気状態を数値的に解くモデルである。

2.3.2 計算の流れ

SIERRA-II での計算の流れを Fig. 2-1 に示す。計算は、まず、オンラインの局地気象観測データと地形データを入力データとして3次元質量保存風速場計算を行う。これらの計算結果とオンラインの排気筒モニタデータを入力データとして大気拡散計算を行い、大気中濃度・線量を算出する。以下に、計算方法を示す。

2.3.2.1 風速場計算

風速場計算の最初のステップは、風向・風速の観測データを以下の式で3次元の計算格子点へ内外挿することである。

$$(u,v)_{i,j,k} = \sum_{m=1}^{N} (u,v)_m W_m / \sum_{m=1}^{N} W_m \qquad (2\text{-}1)$$

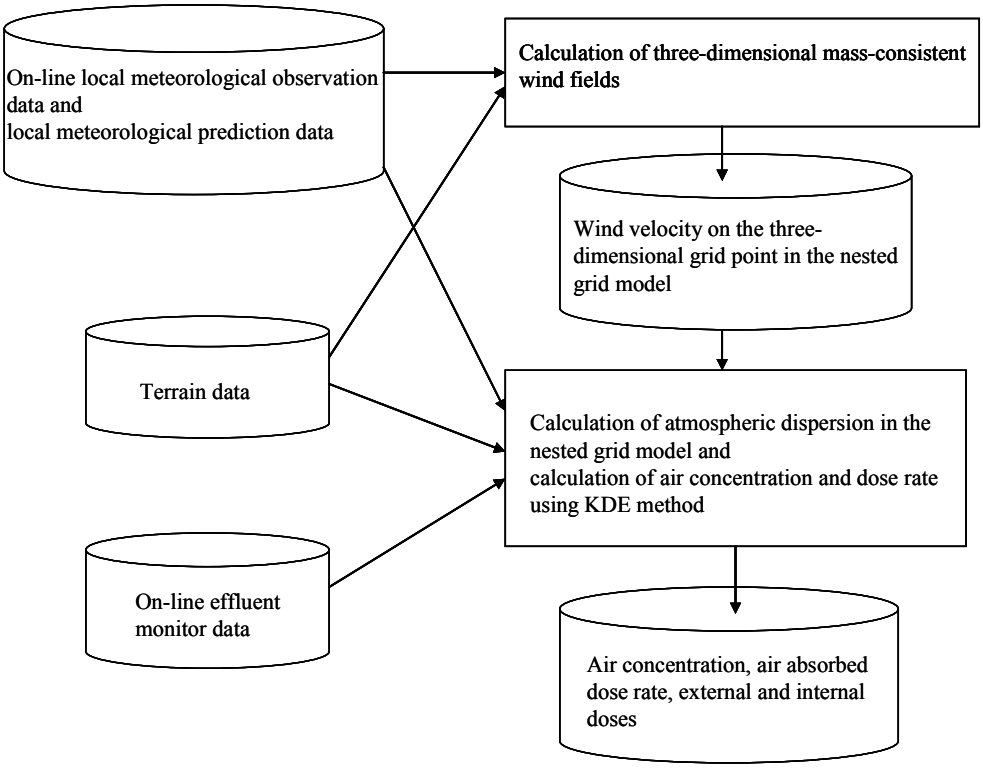


Fig. 2-1 Calculation procedures of the SIERRA-II

ここで、

$(u,v)_{i,j,k}$: 計算格子点(i, j, k)上の風向・風速(m s^{-1})

N : 風向・風速の観測データの数

$(u,v)_m$: m 番目の風向・風速の観測データ(m s^{-1})

W_m : m 番目の風向・風速観測データの荷重係数

である。W_m は、m 番目の観測地点と計算格子点(i,j,k)との間の水平距離および鉛直距離、並びにこれらの地点間に存在する地形障壁の高度により定義する。W_m は、EXPRESS と同様に、観測地点と格子点間の水平距離、鉛直距離および地形障壁との高度差をパラメータとした指数関数で表現した。

風速場計算の次のステップは、計算格子点上に内外挿された風向・風速を、以下の質量保存式を満足するように修正することである。

$$\frac{\partial u}{\partial x}+\frac{\partial v}{\partial y}+\frac{\partial w}{\partial z}=0 \tag{2-2}$$

質量保存風速場(u,v,w)を得るために、以下の変分関数(E)を最小化する(u,v,w)を求める。

$$E = \int_v \left[\alpha_1^2 (u-u_0)^2 + \alpha_1^2 (v-v_0)^2 + \alpha_2^2 (w-w_0)^2 + \lambda \left(\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} \right) \right] dv \quad (2\text{-}3)$$

ここで、

α_1, α_2 ： 風速場の鉛直成分の修正量に対する風速場の水平成分の修正量の相対的大きさを決める係数

(u_0, v_0, w_0) : 計算格子点上に内外挿された風向・風速

λ ：ラグランジアン未定乗数

である。変分方程式を解く方法は、Sherman により議論されている[37]。

α_1 と α_2 の値は、風速場の鉛直方向の修正量に対して水平方向の修正量を調整するための係数である。これらの値は、地形的障壁に対する山越えと迂回の割合が大気の安定度に応じて変化するように設定した。

SIERRA-II では、全体の大きな計算領域と、その領域にネスティングされた小さな計算領域の双方に対して風速場を計算する。計算は、まず、全体の大きな領域に対して行う。その結果をネスティングされた領域の境界条件とし、ネスティングされた領域の風速場を計算する。

2.3.2.2 大気拡散計算

大気拡散の計算は、移流拡散方程式をランダムウォーク法に基づき数値的に解くことにより行う。ある時刻 t において(x_t, y_t, z_t)の位置にある粒子は、Δt時間後に$(x_{t+\Delta t}, y_{t+\Delta t}, z_{t+\Delta t})$の位置に移動するとする。粒子群の移動は、3 次元風速場による移流項と大気乱流に依存する拡散項の和で表される。この関係は、以下の式で表される。

$$x_{t+\Delta t} = x_t + u\Delta t + (24 K_x \Delta t)^{0.5} [-0.5, 0.5] \quad (2\text{-}4)$$

$$y_{t+\Delta t} = y_t + v\Delta t + (24 K_y \Delta t)^{0.5} [-0.5, 0.5] \quad (2\text{-}5)$$

$$z_{t+\Delta t} = z_t + w\Delta t \pm \left[2K_{z0}\Delta t + (K'_{z0}\Delta t)^2 \right]^{0.5} + K'_{z0}\Delta t \quad (2\text{-}6)$$

ここで、

(u, v, w) ： 粒子位置(x_t, y_t, z_t)での風速(m s^{-1})

K_x, K_y ： 水平方向の拡散係数(m^2 s^{-1})

[-0.5,0.5] : -0.5～0.5 の一様乱数

K_{z0} : 鉛直方向の位置 z_0 での鉛直方向の拡散係数($m^2\ s^{-1}$)

K'_{z0} : 鉛直地点 z_0 で微分された鉛直方向の拡散係数の傾き($m\ s^{-1}$)

である。

K_x、K_y、K_{z0}、K'_{z0} の値は、以下の式から求める。

$$K = \frac{1}{2}\frac{dr}{dt}\frac{d\sigma^2}{dr} = u\sigma\frac{d\sigma}{dr} \tag{2-7}$$

ここで、

r : 排気筒の筒頂から粒子位置までの距離(m)

σ : プルームの標準偏差(m)

u : 風速($m\ s^{-1}$)

である。

σ の値は、風下距離と大気安定度に従い、Pasquill の線図から読み取る。Pasquill の線図を Fig. 2-2 に示す。鉛直方向拡散係数 K_{z0} の値は、風下距離の増加とともに増加し、大気安定度が中立あるいは安定の場合は、風下距離数 km で一定値になる。EXPRESS では、風下距離に係わらず、風下数 km での一定値を採用している。しかしながら、SIERRA-II で目的とする計算領域は、施設から数 km までの領域である。よって、EXPRESS で採用された鉛直方向拡散係数は、SIERRA-II で目的とする計算領域に対して過大である。よって、SIERRA-II では、σ_z の値を、大気安定度と風下距離に従い Pasquill の線図から読み取り、K_{z0} と K'_{z0} の値を決定した。

大気拡散の計算に用いる粒子の数は、計算が数分以内で終了するように最適化を行った結果、2 時間あたり 5000 個とした [38]。なお、大気拡散の計算は、風速場計算とは逆に、先に施設近傍の計算格子分解能の大きい領域に対して行い、その結果を領域全体の初期値として領域全体に対する計算を行う。

2.3.2.3 濃度計算

粒子の分布から大気中濃度の計算をするにあたっては、Kernel Density Estimator(KDE)法 [33]を採用した。KDE 法は、各粒子のもつ放射能の分布が粒子位置を中心としてガウス分布に従うと仮定する方法である。濃度は、すべての粒子が持つ放射能の分布を積算することにより計算する。この KDE 法の採用により、計算時間の短縮と粒子数の減少に伴う統計的誤差を低減できる。Yamada[33]によると、KDE 法の採用により、粒子数を 10 分の1にしても粒子数の減少に伴う統計的誤差はあまり増加しない。

地点(x,y,z)における濃度 χ ($Bq\ m^{-3}$)は以下の式により計算する。

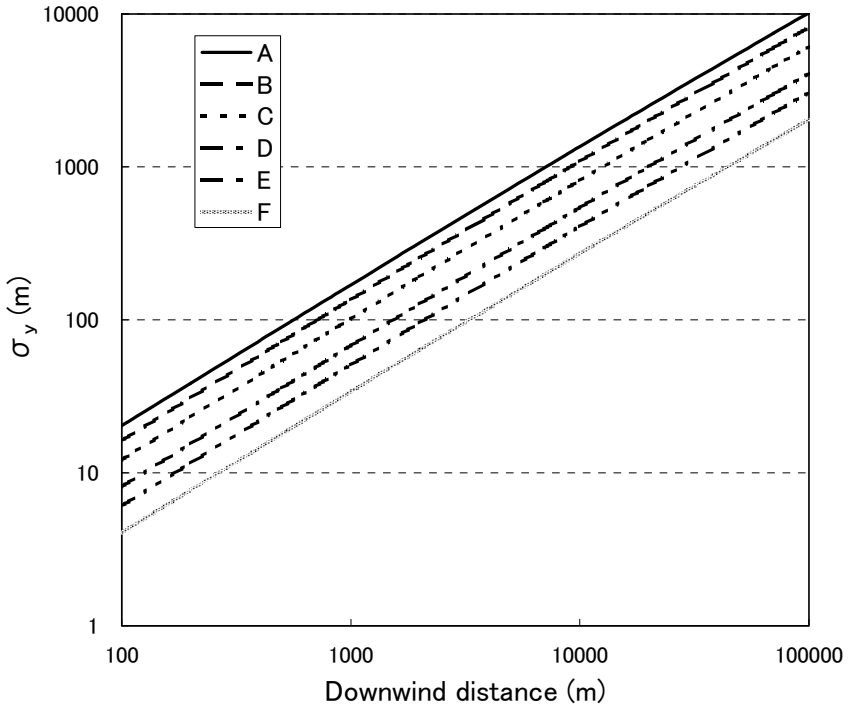


Fig. 2-2(a) Pasquill horizontal dispersion parameter, σ_y, as functions of the atmospheric stability and downwind distance

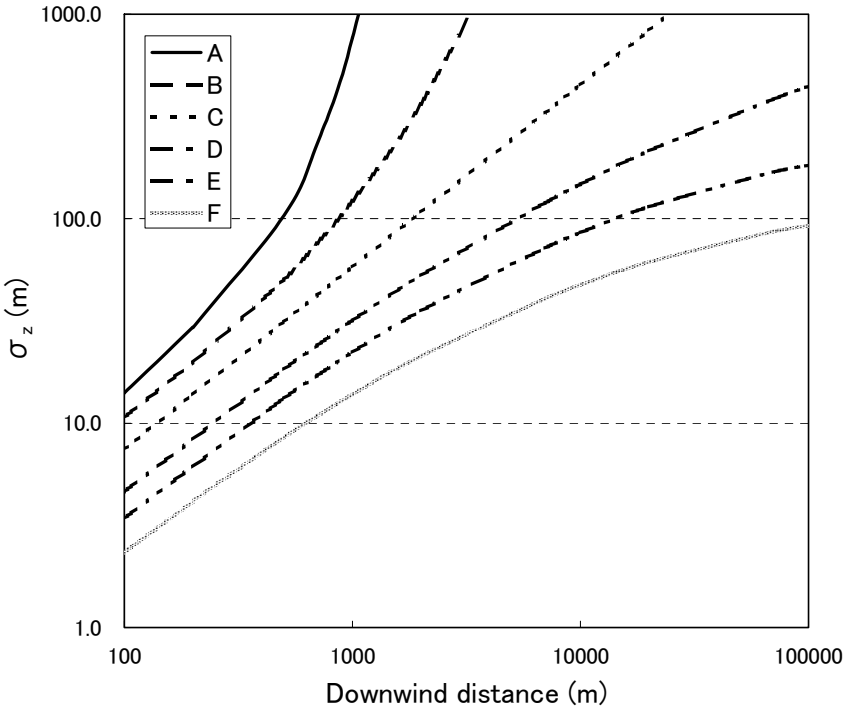


Fig. 2-2(b) Pasquill vertical dispersion parameter, σ_z, as functions of the atmospheric stability and downwind distance

$$\chi(x,y,z)=\sum_{i=1}^{N} Q_i \cdot (\chi/Q)_i(x,y,z) \tag{2-8}$$

$$(\chi/Q)_i(x,y,z)=\frac{1}{(2\pi)^{3/2}\sigma_x\sigma_y\sigma_z}\exp\left\{\frac{(x-X)^2}{2\sigma_x^2}\right\}\exp\left\{\frac{(y-Y)^2}{2\sigma_y^2}\right\}\left[\exp\left\{-\frac{(z-Z)^2}{2\sigma_z^2}\right\}+\exp\left\{-\frac{(z+Z-2z_g)^2}{2\sigma_z^2}\right\}\right] \tag{2-9}$$

ここで、

N ：粒子の総数

Q_i ：粒子iに配分された放射能 (Bq)

$(\chi/Q)_i(x,y,z)$ ：地点(X, Y, Z)にある粒子 i による地点(x, y, z)の濃度(m^{-3})

$\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ ：粒子が持つパフの標準偏差(m)

z_g ：地点(x, y, z)の下の地面の標高高さ(m)

である。

$\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ の値は、Pasquill の線図から読み取る。なお、$(\chi/Q)_i(x,y,z)$の値の計算にあたっては、粒子と濃度評価地点の間の距離、並びに $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ の値等をパラメータとしてあらかじめ作成したテーブルを利用する。

2.3.2.4 線量計算

放射性雲からの空気吸収線量率 $D_r(x,y,z)$は次式により計算する。

$$D_r(x,y,z)=K_1 E_{ef}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{0}^{+\infty}\frac{\mu_{en}(r)\exp(-\mu r)B(E_{av},r)}{4\pi r^2}\chi(x',y',z')dx'dy'dz' \tag{2-10}$$

ここで、

K_1 ：吸収線量率への換算係数 (m^3 nGy MeV^{-1} Bq^{-1} h^{-1})

E_{ef} ：ガンマ線の実効エネルギー (MeV)

$\mu_{en}(r)$ ：空気に対するガンマ線の線エネルギー吸収係数 (m^{-1})

r ：放射性雲中の地点(x', y', z')から線量評価地点(x, y, z)の間の距離(m)

μ ：空気に対するガンマ線の線減弱係数(m^{-1})

$B(E_{av}, r)$: 空気に対するガンマ線のビルトアップ係数

E_{av} ：ガンマ線平均エネルギー(MeV)

である。

なお、放射性雲からの空気吸収線量率の計算は、EXPRESS と同様な方法で行った。KDE 法を適用し、各粒子を(2-9)式で与えられる濃度分布を持ったパフ雲と考えた。パフ雲からのガンマ線のエネルギー、パフ雲から線量率評価地点までの距離と角度、並びにパフ雲の σ_y, σ_z をパラメータとした線量率テーブルをあらかじめ作成した。このテーブルを使用して各パフ雲からの空気吸収線量率を積算することで、評価地点での空気吸収線量率を計算した。

モデルの座標系は直交座標系とした。風速場は、格子点上で定義される。大気中濃度および線量率は、格子メッシュセルの中心地点の値として定義した。地形の標高データは、対応する水平メッシュにおいて実際の標高に最も近い鉛直メッシュ高さに変換する。これらにより、地形は、ブロック状の地形で表現した。

2.3.3 計算コードのシステム化

SIERRA-II は、東海再処理施設から放出される ^{85}Kr による施設周辺の環境ガンマ線線量率を準実時間で計算できるように計算コードをシステム化した。Table 2-1 と Fig. 2-3 に、SIERRA-II の基本的機能とデータの流れをそれぞれ示す。システム化にあたっては、風速場と大気拡散、並びに濃度・線量の計算を数分以内に行って 10 分間隔で出力が得られることを要件とした。そのため、再処理施設の排気筒モニタデータと施設周辺の気象観測データのオンラインデータを利用することが必要である。これらのデータを連続的に収集・保存しているテレメータ装置と SIERRA-II をネットワークで連結し、システム化を図った。

計算対象領域は、核燃料サイクル工学研究所および大洗研究開発センター内の施設で事故・トラブルが発生した場合にも対応できるように、核燃料サイクル工学研究所と大洗研究開発センターを含んだ 40km×40km×400m の領域とした。格子セルを 32×32×20 とし、水平方向格子間隔を 1.25km、鉛直方向格子間隔を 20m とした。さらに、線量率の最大値が出現すると予想される施設近傍の 4km 四方の計算領域に対しては、ネスティングモデルを採用して水平方向格子間隔を 50m とした。

入力データは、核燃料サイクル工学研究所および大洗研究開発センターで 10 分毎に測定・観測されている排気筒モニタデータと局地気象観測データのオンラインデータである。東海再処理施設の排気筒(地上 90m)では、排気筒からの ^{85}Kr の放出率と排気風量を測定している。排気筒高さの風向・風速データは、核燃料サイクル工学研究所敷地内の 2 地点で観測している。1地点は、排気筒から南約 250m の地点にある気象観測塔である。もう1地点は、排気筒から西約 500m の地点にあるドップラーソーダである。地上高さの風向・風速、日射・放射収支量は、核燃料サイクル工学研究所敷地内の排気筒から西約 500m の地点で観測している。排気筒から南西方向約 3km 地点においても、地上高さの風向・風速を観測している。研究所敷地内の地上の風速および日射・放射収支量のデータから、気象指針 [25] に基づき、大気安定度を決定している。

Table 2-1 Functions of the SIERRA-II

Objective facility	Facilities in the Tokai Works and the O-arai Engineering Center
Objective domain	Horizontal : 40 km with the grid interval of 1.25km, especially 4 km with the interval of 50 m Vertical : 400 m with the grid interval of 20 m
Objective period	Up to the maximum 48 h in forecast with time resolution of 1 h
Input data	Real-time local meteorological and effluent data of every 10 min in the Tokai Works and the O-arai Engineering Center, and local meteorological prediction data of every 1 h
Output data	Vector plots of wind fields, contour maps of air concentration and dose rate, and table of dose for arbitrary period
Operation	GUI(graphical user interface) operation on Windows PC

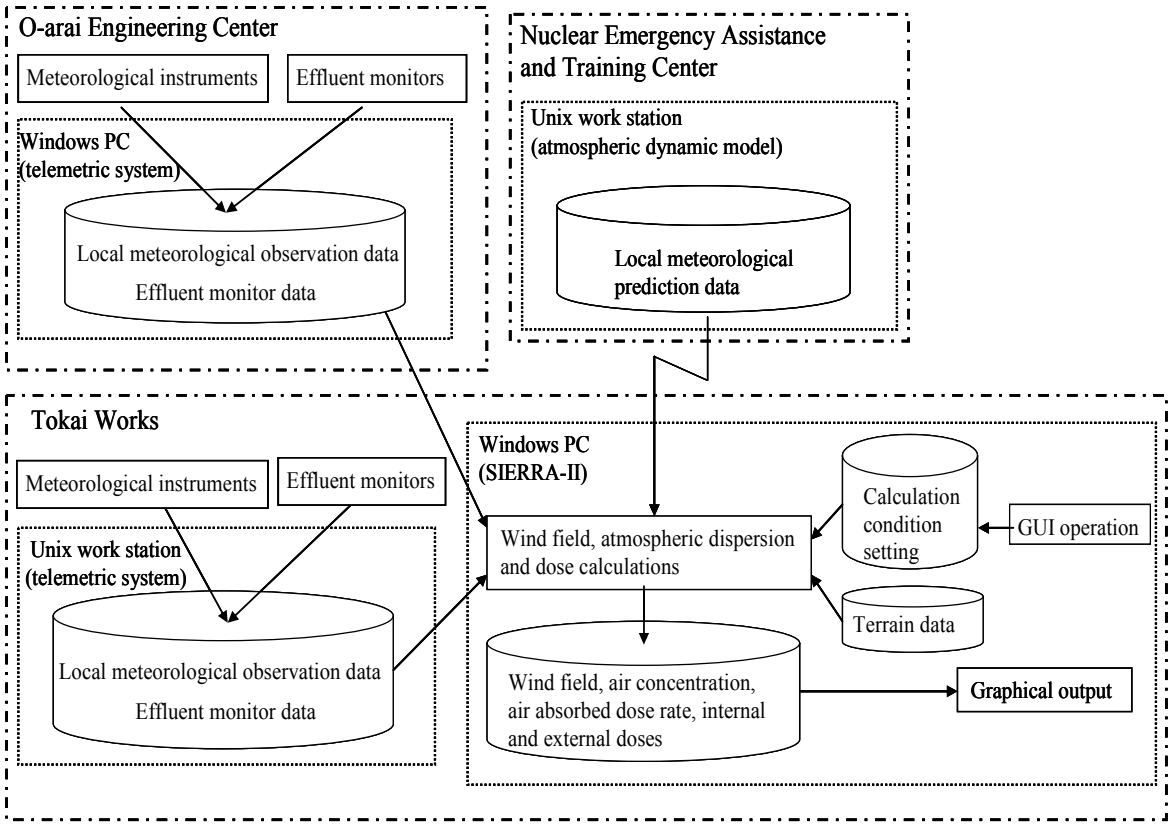


Fig. 2-3 Data flow of the SIERRA-II

核燃料サイクル工学研究所の南方向約 20km に位置する大洗研究開発センターでは、高速増殖実験炉「常陽」の高さ 80m の排気筒から南西方向約 200m の地点に気象観測塔がある。その観測塔位置で、地上の風向・風速および地上 40m および 80m 高さでの風向・風速、並びに日射・放射収支量を観測している。

東海再処理施設や高速増殖実験炉「常陽」のような主要施設については、主要核種の放出率は、排気筒モニタにより測定されている。これらの施設の排気筒以外からの放射性物質の放出に対しては、放出位置、放出高さおよび放出率のような放出源情報を SIERRA-II の GUI(graphical user interface)機能により計算機のモニタ上で設定できる。核燃料サイクル工学研究所および大洗研究開発センターで事故・トラブルが発生したとき、放出される可能性がある放射性物質(希ガス 15 核種、ヨウ素 7 核種、その他の核分裂生成物 64 核種)を SIERRA-II では対象とする。これらの核種のガンマ線実効エネルギーと平均エネルギーのデータ[39-40]は、SIERRA-II のシステムのデータベースに保存されている。

核燃料サイクル工学研究所および大洗研究開発センターからのこれらの入力データは、テレメータシステムにより連続的に収集・保存される。SIERRA-II は、これらのデータを原子力機構内の LAN(local area network)を通じて取得する。

SIERRA-II は、気象予測データを用いて最大 48 時間先までの大気拡散・線量の予測計算ができるように設計されている。気象予測データは、前述した大気力学モデルにより計算された1時間毎の局地気象予測データである。大気力学モデルは、日本の気象庁が1日2回発信する Grid point value (GPV)を入力データとして使用する。大気力学モデルは、核燃料サイクル工学研究所から南方向約 7.5km に位置した原子力緊急時支援研修センター(NEAT)に整備されている。気象庁から発信された GPV データを取得後、数分以内に気象予測の計算を開始する。計算により得られた気象予測データは、SIERRA-II で予測計算を行う時にオンラインで SIERRA-II の計算機が取得する。これらのデータは、地上 10m, 100m, 200m, 300m および 400m の高さの風向・風速データ、大気安定度のデータ等である。これらのデータの地点は、核燃料サイクル工学研究所および大洗研究開発センターを含んだ 40km×40km 四方の領域の中で水平方向分解能 20km で区切った9地点である。

SIERRA-II の出力は、10 分毎の風速場のベクトル図および等値線図である。等値線図の対象は、地上大気中濃度、空気吸収線量率である。等値線図として、吸入摂取による内部被ばく実効線量、地表沈着放射性物質からの外部被ばく線量も出力することができる。風速場のベクトル図の出力例を Fig. 2-4 に、空気吸収線量率の等値線図の出力例を Fig. 2-5 に示す。これらの出力は、施設の事故・トラブル時の緊急時環境放射線モニタリングの環境線量評価にも利用することが可能である。

SIERRA-II システムは、Windows OS 搭載のパーソナルコンピュータ(PC)上で動作する。システムの操作は、計算条件設定、計算実行および出力設定を GUI による対話形式で迅速かつ簡単にできる。計算に必要な地形情報、放出核種の実効エネルギー等の情報は予めデータベースとして格納されており、GUI による操作を簡単にしている。システム操作で使用する主要な画面を Table 2-2 に示す。

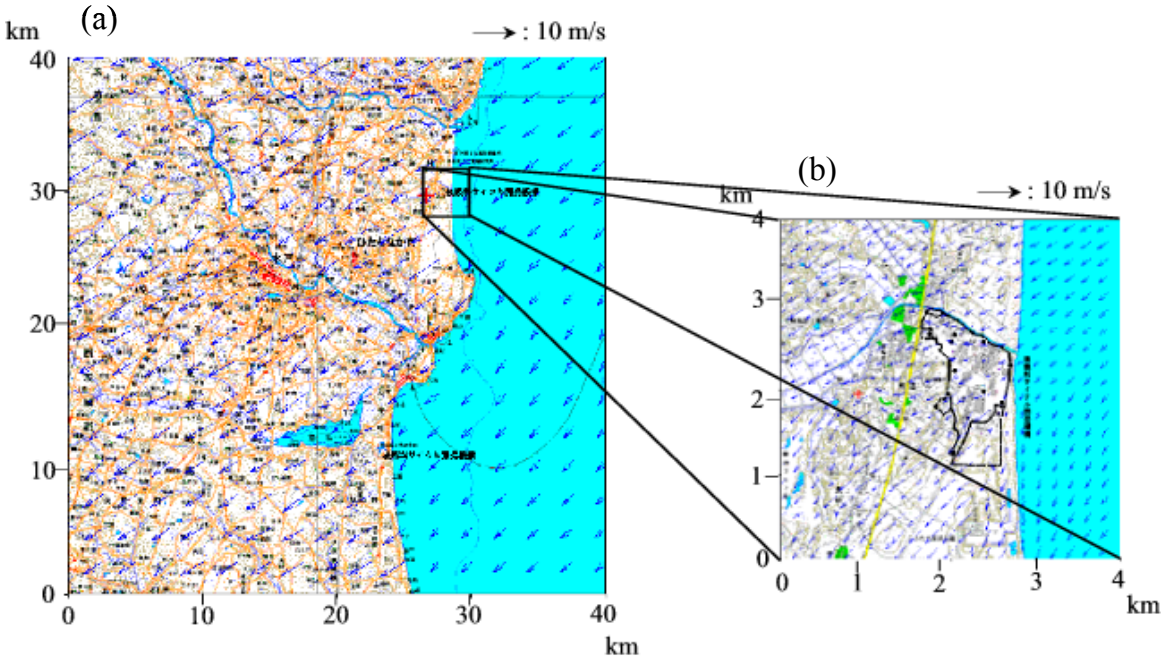


Fig. 2-4 Examples of the vector plots of horizontal wind fields,
(a) wind in the area of 40 km×40 km, (b) wind in the area of 4 km×4 km

MS : monitoring station, MP : monitoring post

Fig. 2-5 Example of the output of the contour map of air absorbed dose rate

Table 2-2 Main GUI windows for the operation of the SIERRA-II

Windows	Functions
System starting	Initiation of the system operation, and the selection of the objective area for calculation (Tokai or O-arai)
Facility selection	Selection of the objective stack of the facility or the set of the release point
Calculation condition setting and calculation execution	Set of radioactivity release condition(the use of effluent monitor data or the assumption of continuous release of unit radioactivity), the set of the evaluation period, and the storage of calculation conditions and the calculation execution
Graphical output	Selection of the item for the output (wind fields, air concentration, dose rate, and so on), and the graphical output of the calculation results
System exit	Storage of the calculation results, and the termination of the system operation

2.4 東海再処理施設運転に伴う大気中 ^{85}Kr 濃度観測データを用いた SIERRA-II の性能評価

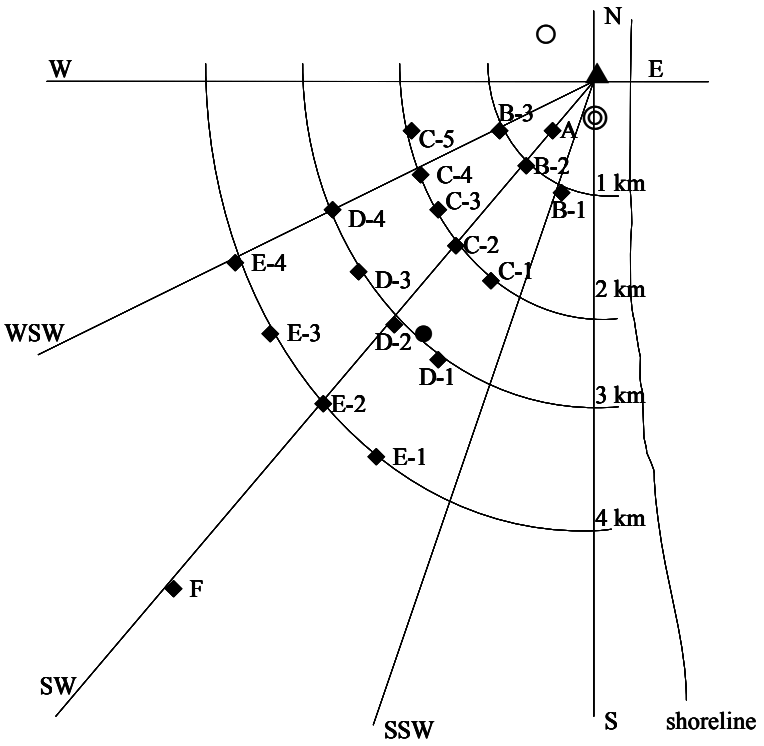
システム化した SIERRA-II を用いて、東海再処理施設運転時の ^{85}Kr 放出に伴う施設周辺の環境ガンマ線線量率変動を定量化する。そのためには、システム化によりオンラインで収集した入力データを用いた SIERRA-II の性能を評価することが重要である。本節では、1986 年7月 11 日の東海再処理施設運転時の ^{85}Kr 放出時に、施設から数 km の領域で ^{85}Kr の大気中濃度を観測した。その観測結果と、SIERRA-II での計算結果を比較することにより、SIERRA-II の性能を評価した。大気中濃度は、環境ガンマ線線量率より ^{85}Kr の大気拡散状態をより直接的に表す指標である。よって、大気中濃度での計算結果と観測結果の比較は、線量率の比較より SIERRA-II の大気拡散計算の性能評価に有効である。

2.4.1 東海再処理施設運転時の大気中 ^{85}Kr 濃度の観測

東海再処理施設は東京から北東方向約 100 km に位置している。施設は、沿岸地帯に位置しており、地形は比較的平坦で海抜は最大で 30m である。^{85}Kr ガスは、東海再処理施設の放出基準に基づき、使用済み燃料の剪断・溶解時に海抜 96m(地上 90m)高さの排気筒から放出される。排気風量は約 40000 m^3 h^{-1} であり、吹き上げ高さは風速にもよるが、数十 m である。排気筒からの ^{85}Kr の放出率は、端窓型 GM 検出器を装備した排気筒モニタにより測定される。排気筒モニタにおける ^{85}Kr の検出下限値は、1.8×10^{-3} Bq cm^{-3} である。^{85}Kr の大気中濃度は、1986 年7月 11 日 10 時に施設から数 km の領域で観測した。これらの観測データは、プルームモデルに基づく大気拡散・線量評価コード(DIAMOND)[26]の妥当性検証に使

用された。

^{85}Kr の濃度は、以下の手順により観測した。1986 年7月 11 日 10 時から 25 分間、地表で空気試料を採取した。採取した時間帯において、排気筒から ^{85}Kr が放出されていた。Fig. 2-6 に、排気筒および空気試料採取地点を示す。空気試料採取装置を 14 地点に配置した。これらの地点は、排気筒の南南西から西南西方向の半径 2, 3, 4km の円弧上、および排気筒から南西方向 1km および 6.3km の地点である。タイマーにより制御されたポンプにより、地面から 1.5m 高さで 100 L の採取バッグ（テドラーバック）に空気試料を同時に採取した。採取装置の構造を Fig. 2-7 に示す。採取した空気試料は、約-196 ℃まで冷却した活性炭に捕集・濃縮した後、ガスクロマトグラフィにより空気から Kr ガスを分離した。分離した Kr ガスは、5 g のジフェニルオキサゾール(PPO)と 3 g のフェニルオキサゾリル(POPOP)を 1L のトルエンに溶かし込むことにより作製した 22 cm^3 の液体シンチレータに溶かした。そして、低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ(model LSC-LB1; アロカ株式会社)で 250 min 間測定を行った。^{85}Kr の大気中濃度の検出限界値は、3.3×10^{-2} Bq m^{-3} である。



▲: Stack, ◆: Air sampling point, ◎ : Instruments for the wind at the height of the stack and the vertical air temperature profile, ○: Instruments for the surface wind, the insolation and the net radiation, ●: Instrument for surface wind

Fig. 2-6 Location of the stack, samplers, and meteorological observation instruments

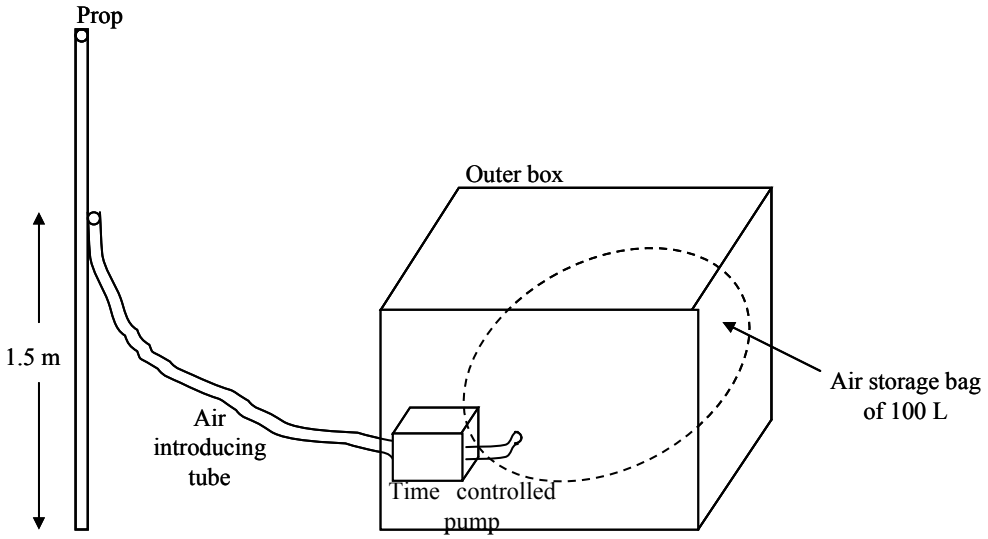


Fig. 2-7 Structure of an air sampling device

2.4.2 排気筒からの ^{85}Kr 放出率の測定および気象状況の観測

^{85}Kr の大気中濃度を観測した 1986 年7月 11 日 10 時前後における東海再処理施設排気筒からの ^{85}Kr の放出率の時間変化を Fig. 2-8 に示す。Fig. 2-8 より、8時 40 分頃、放出率は 4.6×10^{4} GBq h^{-1} のピークを示した。その後、放出率は 7×10^{3} GBq h^{-1} 程度まで低下した後、10 時頃まで緩やかに上昇した。空気試料を採取した 10 時頃は、放出率は比較的一定であり、1.5×10^{4} GBq h^{-1} 程度であった。

気象観測についても、排気筒高さでの風向・風速、地上の風向・風速、日射・放射収支量を 2.4.1 節で記述した地点で行っている。Fig. 2-6 に、気象観測測器の位置を示す。Fig. 2-9 に、風向・風速、並びに地上高さの風速および日射・放射収支量のデータから求めた大気安定度の時間変化を示す。^{85}Kr の大気濃度を観測した時の気象状態は、Fig.2-9 より以下の通りであった。

北東の風あるいは東の風が吹き、風向の時間的変化は比較的小さかった。風速は、排気筒高さで 6 m s^{-1} 程度、地上高さで 3～5 m s^{-1} 程度であり、風速の時間的変化も比較的小さかった。定常的に北東系の風が吹くのは、茨城県東海地区での典型的な気象状況である [41]。大気安定度は、空気試料を採取した 10 時頃までは、CあるいはDで中立であった。その後、大気安定度はBとなり、大気は少し不安定になった。

2.4.3 SIERRA-II を用いた大気中 ^{85}Kr 濃度の計算

風速場と大気拡散の計算手順は、2-3 節で述べた方法によった。計算は、10 km×10 km×400 m の領域を 200×200×20 の格子セルに分割し、水平方向分解能は 50m、鉛直方向分解能は 20m とした。排気筒モニタおよび気象観測の入力データは、2-3 節で述べた 10 分間隔のデータである。大気安定度については、気象指針 [25]に基づき、安定度が A-B の時は B, B-C の時は C, C-D の時は D と

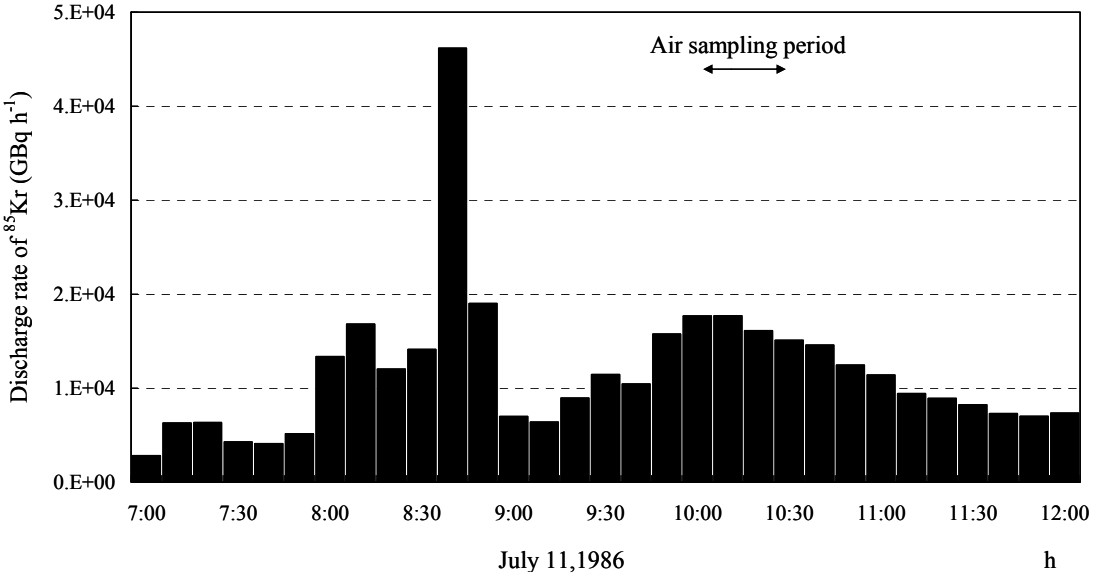


Fig. 2-8 Time variation of the discharge rate of ^{85}Kr on July 11, 1986, effluent speed 18 m s^{-1}, stack diameter 2.9 m

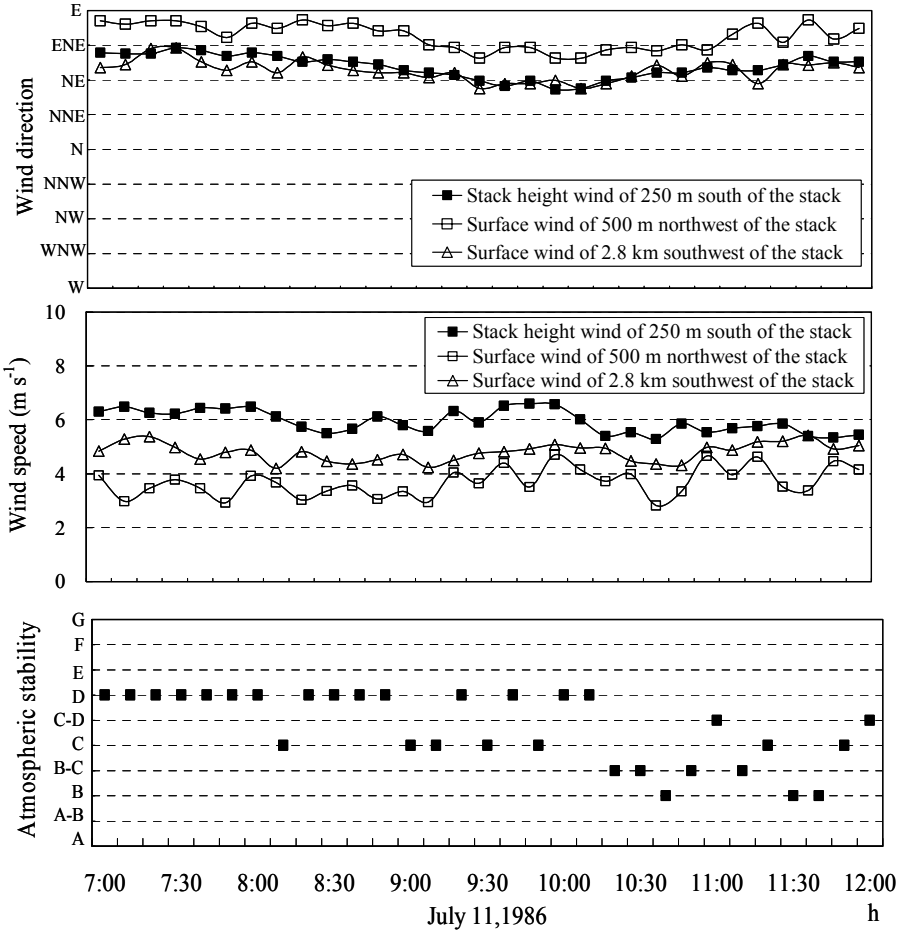


Fig. 2-9 Time variations of the observed wind direction, wind speed and atmospheric stability

して計算をした。SIERRA-II の出力は、空気中濃度の等値線図である。観測濃度との比較のために、計算濃度は、空気を採取した期間で平均化し、平均化した計算濃度を観測濃度と比較した。

2.4.4 大気中濃度の計算値と観測値の比較

Table 2-3 に、^{85}Kr 濃度の計算結果と観測結果を比較する。^{85}Kr のバックグラウンドの濃度は、1986 年の北半球に対して 1.0 Bq m^{-3} と推定された [42]。計算結果との比較においては、観測濃度からこのバックグランド濃度を差し引いた。Table 2-3 より、計算濃度と観測濃度はファクタ 5（2つの値の比が係数5以内にある状態）で 14 データのうちの 8 データ、すなわち 57%、ファクタ 2（2つの値の比が係数2以内にある状態）で 14 データのうちの 4 データ、すなわち 29%が一致した。mean fraction bias(MFB)[43]は以下の式で定義され、値は-2.0(極めて過大評価)～+2.0(極めて過小評価)の間の値をとる。MFB の値は、-0.6 であり、計算濃度が少し過大評価であることを示した。

$$Mean \quad fraction \quad bias = \frac{\bar{C}_o - \bar{C}_C}{0.5(\bar{C}_o + \bar{C}_C)} \tag{2-11}$$

ここで、

$\bar{C}_o$: 観測された濃度の平均値 (Bq m^{-3})

$\bar{C}_c$: SIERRA-II により計算された濃度の平均値 (Bq m^{-3})

である。

2.4.4.1 風下方位での濃度の比較

風下方位の軸上での計算および観察された大気濃度を、Fig. 2-10 に比較する。Fig. 2-10 では、最大濃度が観察された南西方位での濃度の比較を示す。Fig. 2-10 から、計算濃度は、風下 4km までは観測濃度より高く、4km 以遠では、観測濃度とほぼ同じであることが明らかである。SIERRA-II により計算された最大濃度は、最大濃度が観察された地点より排気筒近傍に出現した。

大気が不安定なとき、大気の鉛直混合が大きいため、最大濃度はより排気筒近傍に出現する SIERRA-II での計算で使用した大気安定度は、海岸線から内陸約 800m で観察された地表風速、日射・放射収支量のデータに基づいている。濃度を比較した時は、定常的に海から風が吹いていた。海からの風が吹く時、上空に安定な大気の層が形成される [44]。SIERRA-II での計算に使用した大気安定度は、地面に近い大気に対して測定したものであり、不安定であった。一方、上空では、海風により安定な大気の層が形成していたことが推察される。

Table 2-3 Comparison of calculated and observed air concentrations of ^{85}Kr on July 11, 1986

Sampling point	^{85}Kr Concentration (Bq m^{-3})		
	Observed	Calculated	$(\frac{\text{Calculated}}{\text{Observed}})$
A	1.8×10^{2}	1.8×10^{3}	9.5
B-1	7.5	6.9×10^{1}	9.2
B-2	2.0×10^{3}	8.1×10^{3}	4.0
B-3	2.1×10^{2}	5.5×10^{2}	2.6
B-4	8.7×10^{-1}	5.0×10^{-2}	5.7×10^{-2}
C-1	2.3	3.3×10^{2}	1.4×10^{2}
C-2	4.4×10^{3}	7.7×10^{3}	1.7
C-3	1.3×10^{3}	5.5×10^{2}	0.4
C-4	1.3	1.9×10^{-1}	0.2
D-1	1.1	2.5×10^{2}	2.3×10^{2}
D-2	4.6×10^{3}	6.1×10^{3}	1.3
D-3	1.6×10^{2}	2.1×10^{2}	1.3
D-4	1.2	0	0
E	2.6×10^{3}	2.5×10^{3}	1.0

The observed concentration is which the background concentration was subtracted, and the calculated concentration disregarded the internal boundary layer.

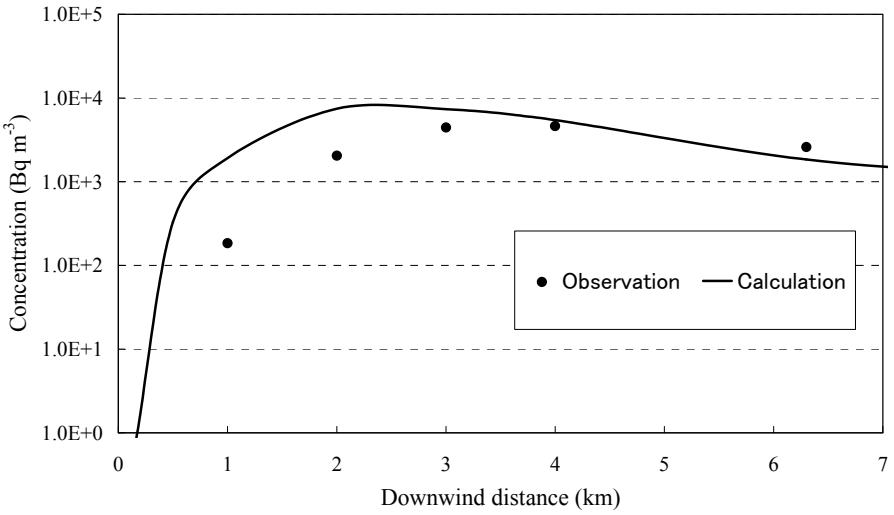


Fig. 2-10 Comparisons of the ^{85}Kr concentration in the downwind direction between the calculation and the observation on July 11, 1986

2.4.4.2 風下直角方位での濃度の比較

風下直角方位の円弧上の点で、計算および観察された大気濃度を比較した。Fig. 2-11(a), (b), (c)に、それぞれ 2, 3, 4 km 風下距離の円弧上での比較を示す。ここで、水平軸は、風下方位を表し、垂直軸は濃度を示す。Fig. 2-11(a) より、風下 2km の円弧上の比較においては、計算濃度は観測濃度より高くなったことが分かる。この結果は、前節で排気筒近傍で計算濃度が観測濃度より高くなった結果と整合している。Fig. 2-11(b), (c) の比較では、計算された濃度の拡がりは、観測された濃度の拡がりより、南側に片寄った。これは、計算された風向が実際の風向より北寄りであったため、計算された放射能の拡散は南寄りになったことに起因する。排気筒から離れた利用できる唯一の風データは、南西方向の風下約 2.8km の地点のデータのみである。よって、計算風向は、その地点での風向に大きく依存する。その地点での風向は、排気筒の近くで観測された他の風向データより北側であったことに起因すると考えられる。

2.4.4.3 内部境界層のモデル化

海風が吹いている場合は、地表での大気より安定な大気が上空を通過し、内部境界層が形成される [43]。内部境界層が形成されている時、大気の安定状態の異なった大気層が鉛直方向に形成される。この時、それぞれの鉛直方向に大気の状態の異なった大気層に対応する拡散係数を決定する必要がある。

1986 年には、排気筒高さまでの気温を気象観測塔で観測していた。観測の高さは、地上から 1.5 m、10 m、47 m、70 m(海抜 31m、39m、76m、99m)である。Fig. 2-12 に、気象観測塔で観測された気温の時間変化を示す。気温は、7月 11 日9時頃以降、日射による地面温度の上昇のため、地上 1.5m の高さ(海抜 31m)と地上 10m の高さ(海抜 39m)での大気温度が上昇するとともに、それらの温度差が大きくなっていった。一方、地上 47m の高さ(海抜 76m)と地上 70m の高さ(海抜 99m)の気温は9時以降もあまり上昇しなかった。10 時以降は、地上 47m の高さ(海抜 76m)と地上 70m の高さ(海抜 99m)の気温差は小さくなった。この期間、定常的な北東系の海風により、地上 70m の高さ（海抜 99m）の気温が影響を受けていることが示唆された。

Fig. 2-13 は、内部境界層が発達している大気状態の模式図である。Fig. 2-13 には、1986 年 7 月 11 日 10 時 10 分に気象観測塔で観測された海岸線から内陸約 400m での大気温度の鉛直プロファイルを示している。気温の鉛直プロファイルによると、海抜 39m の高さと 76m の高さの気温は、海抜 31m の高さの気温より低くなった。海抜高度が高くなるに従い、気温は低くなった。この気温減少割合は、乾燥断熱減率(Γ_d)よりも大きかった。しかし、76m の高さと 99m の高さでの大気温度はほとんど同じであった。このことは、気象観測塔の位置で、内部境界層が海抜約 76m の高さ付近で形成されていることを示唆している。

内部境界層のモデル化に当たっては、大気を海抜 100m の高さで分割した。この高さは、濃度を比較した海岸から数 km の地帯で内部境界層が発達していると考えられる高さである。内部境界層より下の大気層は地面の影響を受けるため、地表の風速と日射・放射収支量から大気の安定度を決定した。内部境界層より上の大気層に対して大気の安定度をEあるいはFと設定した。内部境界層により分割された 2 つの大気

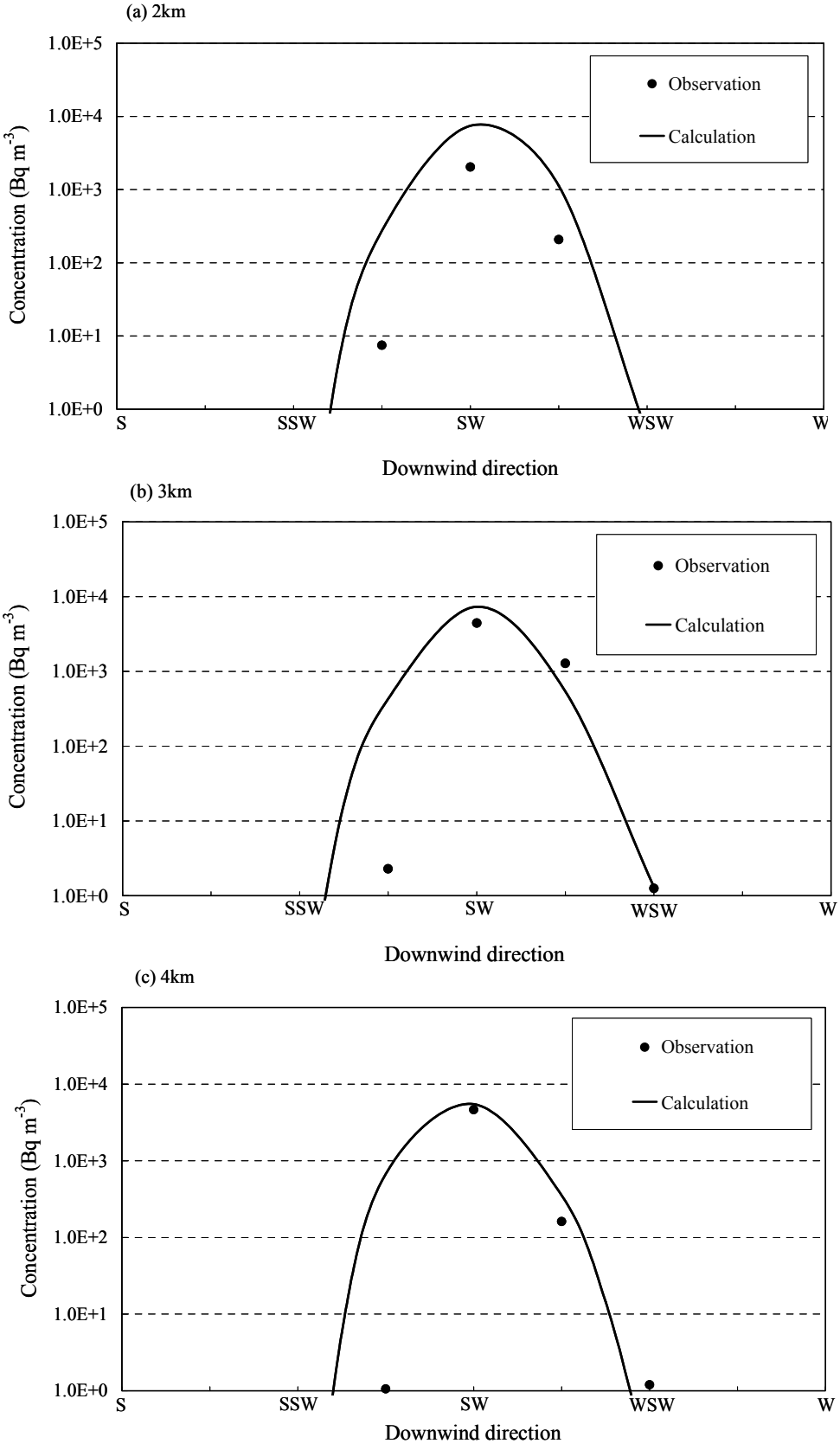


Fig. 2-11 Comparison of the concentration on the arc between the calculation and the observation on July 11, 1986

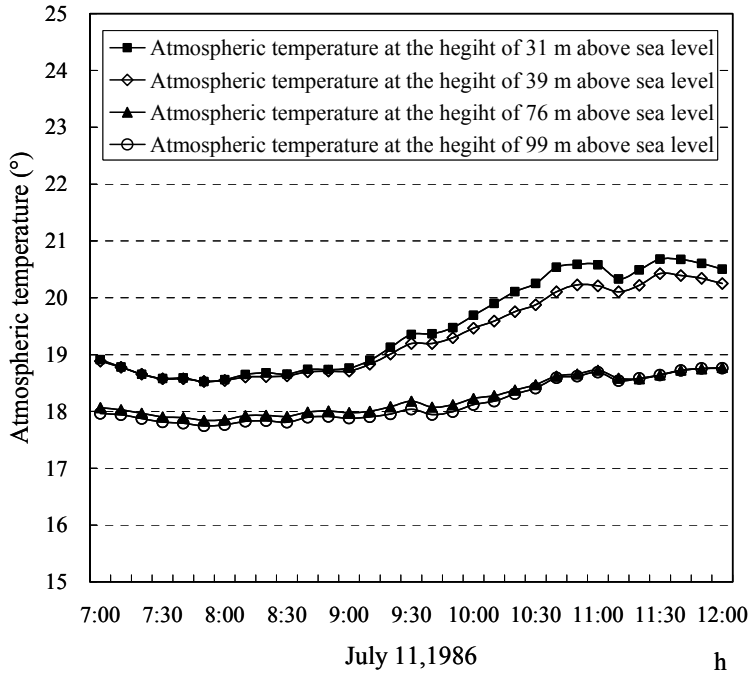


Fig. 2-12 Time variation of the atmospheric temperature observed at the meteorological observation tower on July 11, 1986

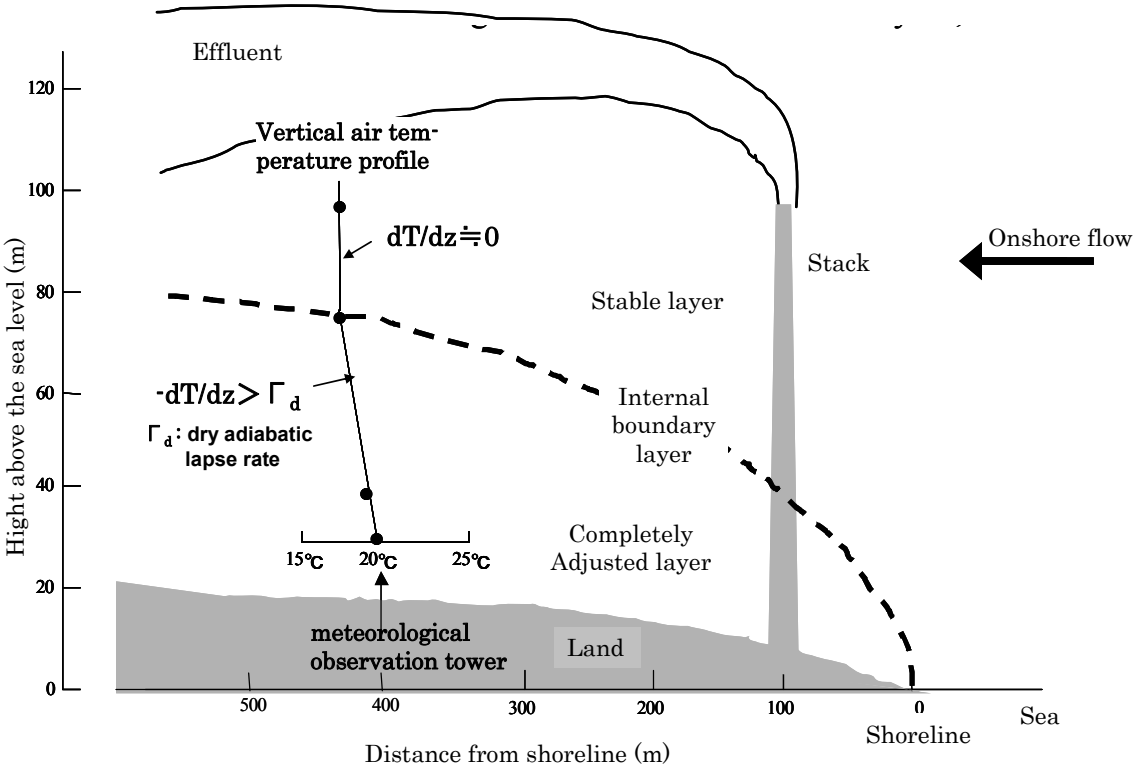


Fig.2-13 Vertical atmospheric temperature profile during the air sampling period on July 11, 1986, and modeling of the internal boundary layer

層に対する大気の安定度に基づいて、拡散係数を計算した。

Fig. 2-14 に、風下方位での濃度の比較を示す。Fig. 2-14 より、上空大気の安定状態を E あるいは F として計算した時、内部境界層を考慮しない場合と比較して、濃度は低く計算され、風下 3km 地点で、観測濃度と比較的よく一致していることが明らかである。さらに、上空大気層の安定性を F とした場合、排気筒の近傍での濃度はさらに低くなり、風下 1km と 2km 地点での観測濃度との一致度が増した。これらの結果は、以下の通りに説明される。内部境界層より上の大気層がより安定しているほど、この大気層での拡散係数、特に鉛直拡散係数が小さくなる。その結果、放出された放射性物質の鉛直方向の拡散が小さくなる。そのため、排気筒近くの地表での濃度が小さくなる。上空大気層の安定度を E あるいは F とした場合、それぞれ、風下 1-2km、3km で観測濃度との一致度が増した。このことは、安定度が E と F の中間程度である場合に対して計算された拡散係数を使用すると、風下 1～3km で観測濃度とよく一致することを意味する。なお、上空大気層が安定なほど、放射性物質の鉛直方向の拡散が小さくなるため、排気筒から遠くへ拡散し、、排気筒から遠方の計算濃度が比較的高くなると考えられる。Fig. 2-14 では、風下 7km までしか示していないが、風下距離がさらに大きくなると、上空大気層の安定度が E、さらに F の時、大気が不安定な時よりも濃度が高くなると考えられる。

Fig. 2-15(a), (b), (c) には、上空大気の安定度をEあるいはFと設定した時の風下直角方位の円弧上での計算と観測の比較結果を示す。Fig. 2-15(a), (b), (c) より、上空大気の安定度を考慮しない場合、および

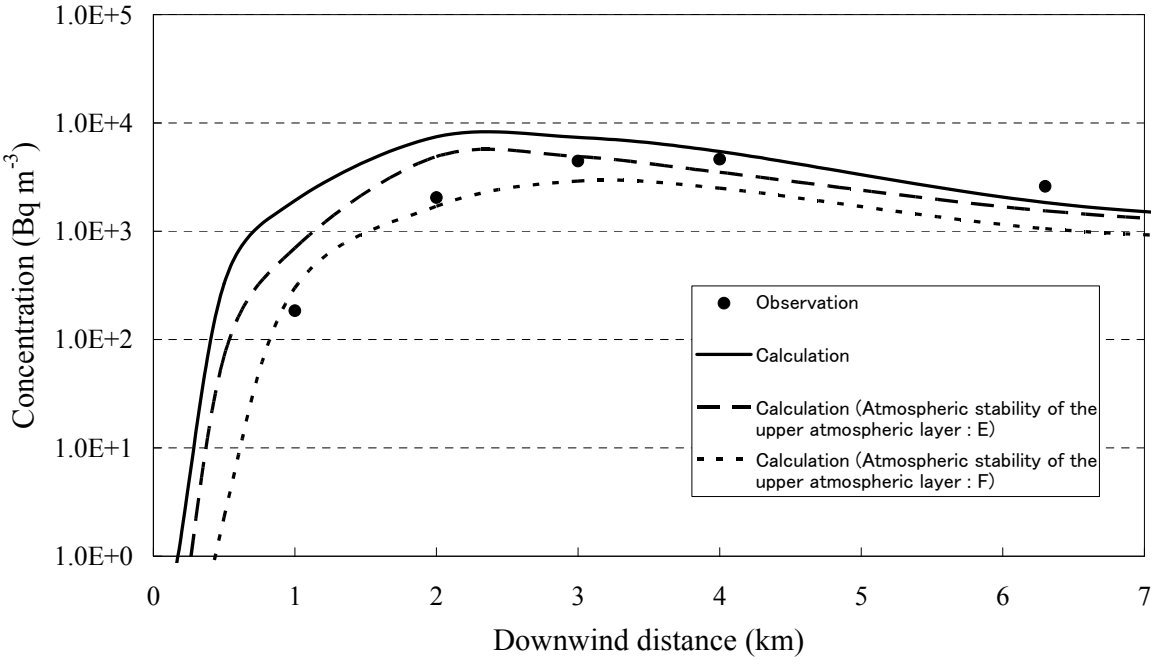


Fig. 2-14 Comparison of the ^{85}Kr concentration in the downwind direction between the calculation and the observation on July 11, 1986

上空大気の安定度を E および F とした場合、最大濃度が出現した方位は計算と観測でほぼ一致したことが明らかである。円弧上での濃度の拡がりについては、上空大気の安定度をEあるいはFと設定した時、それぞれ風下 3～4 km、および 2 km で観測濃度とよく一致した。

以上のように、MFB (Mean fraction bias)は、上空大気層の安定度をEとした時-0.1 であり、安定度を F とした時 0.5 であった。内部境界層を考慮しない場合は-0.6 であったことから、内部境界層を考慮しなかった時より一致度は向上した。

内部境界層の高さは、時間とともに変化すると考えられる。内部境界層の高さは、ドップラーソーダのデータから求めることができる。SIERRA-II を用いて、大気拡散計算をするためには、ドップラーソーダのデータから内部境界層高さを求め反映することが必要である。SIERRA-II を実運用するための課題である。

2.5 結言

再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動を準実時間で定量化するために、”放出放射性物質による緊急時線量シミュレーションコード SIERRA-II を開発した。SIERRA-II の特徴は、以下の通りである。

(1)質量保存風速場モデルと粒子拡散モデルに基づき、施設から放出された放射性物質の3次元大気拡散を計算する。

(2)施設周辺での計算の空間的分解能を上げ、かつ計算機への負荷を下げるために、ネステッド格子モデルを採用している。

(3) SIERRA-II は、10 分間隔の施設周辺で観測された局地気象のオンラインデータおよび排気筒モニタのオンラインデータを入力データとし、風速場のベクトル図、大気中濃度、空気吸収線量率等の等値線図を出力する。

(4)SIERRA-II は、Windows OS 搭載のパーソナルコンピュータ(PC)上で、GUI(Graphical User Interface)による操作ができる。

東海再処理施設運転時に施設周辺で観測された環境放射線モニタリングデータを用いて SIERRA-II の沿岸地域での性能評価を行った。その結果は、以下の通りである。

(1)東海再処理施設から風下 4km の範囲で、^{85}Kr の計算濃度は観測濃度より高くなった。水平方向への濃度の拡がりについては、計算結果は観測結果より大きかった。計算濃度と観測濃度の一致度は、ファクタ 5 で 57%、ファクタ 2 で 29%であった。MFB(mean fraction bias)は-0.6 で、少々過大評価であった。

(2)大気温度の鉛直プロファイルの観測結果に基づき、内部境界層を SIERRA-II でモデル化した。計算結果と観測結果を比較したところ、内部境界層上の大気層の大気の安定度を E および F と設定した場合、MFB は、それぞれ-0.1、0.5 であり、内部境界層を考慮しないときより一致度が向上した。

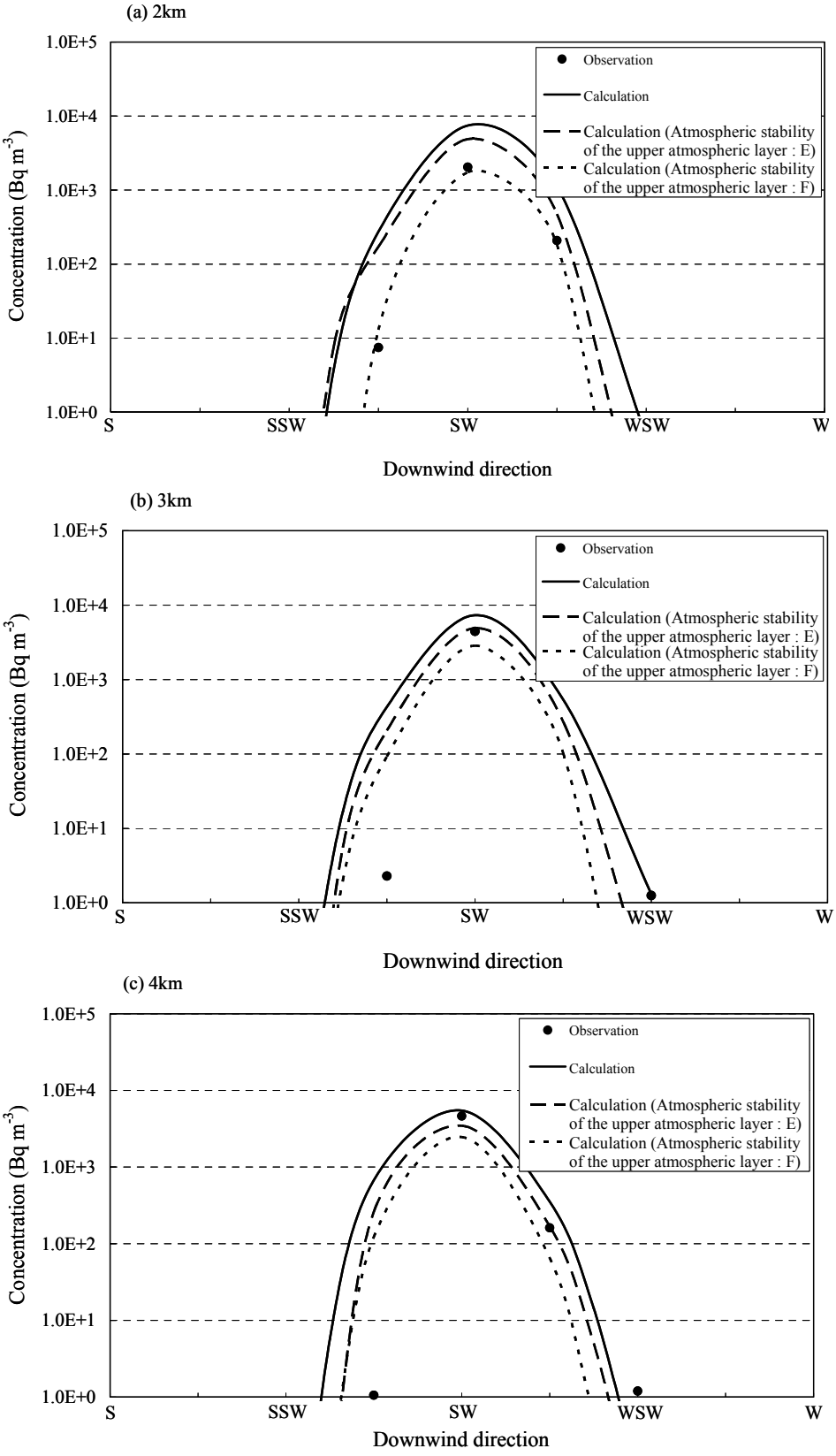


Fig. 2-15 Comparison of the concentration on the arc between the calculation and the observation on July 11, 1986

3. 再処理工場運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の SIERRA-II を用いた定量化へ向けた検討

3.1 緒言

再処理工場は、第1章で論じたように、核燃料サイクル施設の中で大気中への放射能の放出が多い。再処理工場では、原子力発電所で発生した使用済み燃料をせん断および溶解するときに排気筒から ^{85}Kr を放出する。せん断は、貯蔵プールから取り出した使用済み燃料をせん断装置で 4 cm 程度の小片に切り刻む工程であり、溶解は、小片にせん断された使用済み燃料を溶解槽の中で硝酸に溶かす工程である。せん断工程時には、排気筒から ^{85}Kr がパルス的な放出率で放出される。溶解工程時の排気筒からの ^{85}Kr 放出率は、溶解開始とともに増加し、溶解継続期間中に徐々に減少していく。

再処理工場から ^{85}Kr が放出された際の MS および MP での環境ガンマ線線量率の変動を実時間で解析できるようにしておくことは、環境放射線モニタリングを実施する上で重要である。さらに、再処理工場で臨界事故が発生した場合には、放射性希ガスおよび放射性ヨウ素が放出され、施設周辺の MS および MP で環境ガンマ線線量率が変動することが想定される。再処理工場運転時の ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率変動を解析しておくことは、事故発生時の施設からの放出放射能量と施設周辺で観測される環境ガンマ線線量率を関連づけるのに有用である。

本章は、東海再処理施設から ^{85}Kr が放出された際の施設周辺の MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率の変動を、第2章で開発した SIERRA-II を用いてシミュレーションし、SIERRA-II の性能を評価することにより、^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化へ向けた検討を行った。

3.2 これまでの研究事例

現在、再処理工場としては、日本には東海再処理施設と、2006 年3月から使用済燃料を用いた総合試験（アクティブ試験）を開始した六ヶ所再処理施設がある。他の国では、フランスでラ・アーグ再処理工場が、イギリスでセラフィールド再処理工場が商業用に稼働している。東海再処理施設の運転時の ^{85}Kr 放出に伴う施設周辺の環境ガンマ線線量率の変動については、茨城県が設置した MS での観測例が報告されている [9]。それによると、1994 年5月 19 日 14 時 57 分～15 時 02 分までの時間帯で、ガンマ線線量率が管理基準値の 100 nGy h^{-1} を超えた。14 時 58 分には、143 nGy h^{-1} のガンマ線線量率のピークを示した。ガンマ線の多重波高分析装置(MCA)を用いて解析を行ったところ、通常のガンマ線スペクトルと比較して 519 keV のガンマ線ピークが確認された。このことから、519 keV のガンマ線を放出する ^{85}Kr によりガンマ線線量率が変動したことが確認された。1990 年4月～1995 年3月の間で、^{85}Kr 放出に伴う同様なガンマ線線量率の変動が、数回観測された。

ラ・アーグ再処理工場周辺での環境ガンマ線線量率の変動については、排気筒から風下方位の数地点で観測が行われた研究例がある [45]。その結果、環境ガンマ線線量率は 100 nGy h^{-1} 以上まで上昇した。

ラ・アーグ再処理工場周辺で観測された ^{85}Kr の大気中濃度をいくつかのプルームモデルでの計算濃度と比較した研究例 [46]、ラグランジェ型粒子拡散モデルでの計算濃度と比較した研究例 [47]がある。その結果、排気筒から風下 2 km 程度までの範囲でプルームモデルでの計算濃度が観測濃度より過小評価であった。セラフィールド再処理工場に対しては、工場周辺で測定された大気中 ^{85}Kr 濃度とプルームモデルの計算結果を比較した研究例がある [48]。六ヶ所再処理施設を対象としては、ラグランジェ型粒子拡散モデルを用いた計算機システムが開発されつつある [49]。

再処理工場からの ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率変動を弁別する方法としては、^{85}Kr から放出されるガンマ線と自然のガンマ線のエネルギーの違いを利用する方法がある。その 1 つとして NaI(Tl)シンチレーション検出器に波高分析回路を組み込む DBM(Discrimination Bias Modulation)方式がある [18]。この方法は、^{85}Kr からのガンマ線と自然のガンマ線のエネルギーの違いによる通過率の差を利用して弁別するものである。ここで、通過率は、NaI(Tl)検出器からの DBM エネルギー補償後の計数率と、エネルギーを補償前の全計数率の比で定義される。この通過率から、入射するガンマ線のエネルギーを推定することが可能である。入射ガンマ線が ^{85}Kr からのみの場合は、通過率からガンマ線が ^{85}Kr 由来であることを推定できる。しかし、入射ガンマ線が複数の起源によるものである場合、ガンマ線エネルギーが複数となり、ガンマ線の起源を弁別することはできない。降雨時に ^{85}Kr が放出された場合のように、複数核種から複数のガンマ線が入射するような場合は、通過率からガンマ線放出核種を弁別することは困難である。

施設からの放射能放出に伴う環境ガンマ線線量率変動を弁別するその他の方法としては、シングルチャンネル波高分析器(SCA)あるいは多重波高分析器(MCA)を用いて入射ガンマ線のエネルギーを特定する方法がある [19-20]。これらの方法では、入射ガンマ線エネルギーが特定できるため、人工放射性核種による線量率上昇と自然ガンマ線線量率を弁別することが可能である。そのため、降雨と原子力施設からの放射線の漏えいが重なった場合において漏えい成分の弁別に有効である。東海再処理施設が設置された核燃料サイクル工学研究所には、SCA あるいは MCA が一部配備されている。しかし、他の核燃料サイクル施設周辺についてもこれらが設置されていないことがある。

3.3 東海再処理施設運転時の ^{85}Kr の管理放出

茨城県東海村にある核燃料サイクル工学研究所では、東海再処理施設が稼働している。東海再処理施設は、運転に伴い、地上高 90 m（海抜 96 m）の高さの排気筒から ^{85}Kr を大気中に放出する。^{85}Kr の大気放出は、放出率と気象条件により、以下のように規制されている。^{85}Kr の排気中濃度は、再処理施設主工場内に設置された排気モニタのうちクリプトンモニタにより連続測定されている。放出率の管理基準が、1時間平均で 2.2×10^{5} GBq h^{-1} と定められている。^{85}Kr 放出率が管理基準値を超えないように監視されている。排気筒高さの風速によっても、^{85}Kr の放出は規制されている。気象観測塔で観測された排気筒高さの平均風速が 10 分間平均で 1 m s^{-1} 以下の場合には拡散希釈効果が低下するため、排気

は一時停止され、タンクに貯蔵される。なお、東海再処理施設の排気筒から放出される放射性気体廃棄物により周辺公衆が受ける年間の実効線量は、国から認可を受けた年間の最大放出量が放出されたとしても、1.3×10^{-2} mSv と評価されている [50]。この実効線量の値は、1年間に自然放射線源から受ける線量よりも十分小さい。

放出される排気を排気筒からサンプリング管を通じてポンプ等により分取し、容積約 14 m^3 のサンプリング容器に排気を通気させながら、排気に含まれる ^{85}Kr の濃度が連続的に測定されている。再処理施設運転に伴って主排気筒から放出される ^{85}Kr の濃度は、運転状況によって大きく変化する。バックグラウンドレベルからせん断・溶解時にみられるような比較的高濃度まで広い濃度範囲にわたって計測するために、主排気筒のクリプトンモニタには放射線検出感度の異なる2種類の検出器、すなわち端窓型 GM 検出器および NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用している。NaI(Tl)シンチレーション検出器は 2" ϕ ×50 mm で、サンプリング容器は鉛 50mm 厚の遮へい体で覆われている。また、機能維持のために必要な定期点検時等においても欠測する時間を極力なくすために、検出器や測定系は 2 重化している。検出下限濃度は、2.4×10^{-3} Bq cm^{-3} である。通常の排気風量(約 4×10^5 m^3 h^{-1})を乗じると、検出下限放出率は、約 1 GBq h^{-1} である。検出器の校正の不確かさは、10 %程度である。

東海再処理施設は、2003 年9月から 11 月まで連続運転(キャンペーン)を行い、合計 13.9 t の使用済み燃料を再処理した。このキャンペーン中の ^{85}Kr の総放出量は、2.3×10^6 GBq であった [51]。

3.4 東海再処理施設運転時の ^{85}Kr 管理放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動の観測

東海再処理施設の周辺には、環境放射線モニタリングのために、10 基の MS および MP が配備されている。MS および MP の配置を、再処理施設の排気筒の位置とともに Fig. 3-1 に示す。MS および MP は海抜数 m～約 30 m の地面に設置されている。排気筒からの距離は、約 200 m～約 1200 m である。MS および MP には、地上約 2 m の高さの屋根に 2"×2" ϕ DBM 方式エネルギー補償型 NaI(Tl) シンチレーション検出器が設置されている。これらの NaI(Tl)シンチレンーション検出器により環境ガンマ線線量率が連続測定されている。測定されたガンマ線線量率のデータは、テレメータシステムによって収集され、保存されている。自然放射線成分によるガンマ線線量率の平均的なレベルは、30～50 nGy h^{-1} である。降雨に影響された期間のデータを除き、3時間にわたってガンマ線線量率のデータを統計処理すると、10 分平均のガンマ線線量率のデータの標準偏差は 1 nGy h^{-1} 未満である。

再処理施設運転時は、MS および MP で環境ガンマ線線量率の一時的な変動が観測される。なお、再処理施設の安全審査では、ガウスプルームモデルを用いて年間毎の運転に伴う大気放出に係る外部被ばくに係る実効線量を算出している。この方法を用いて、2003 年度の放射性物質の大気放出量と当該年の気象観測データから 2003 年度の一般公衆に対する外部被ばく実効線量を評価すると、約 2×10^{-4} mSv であった [51]。この値は、公衆の線量限度(1 mSv y^{-1})の約 0.02%であったことから、適正に排気管理されていることが確認される。

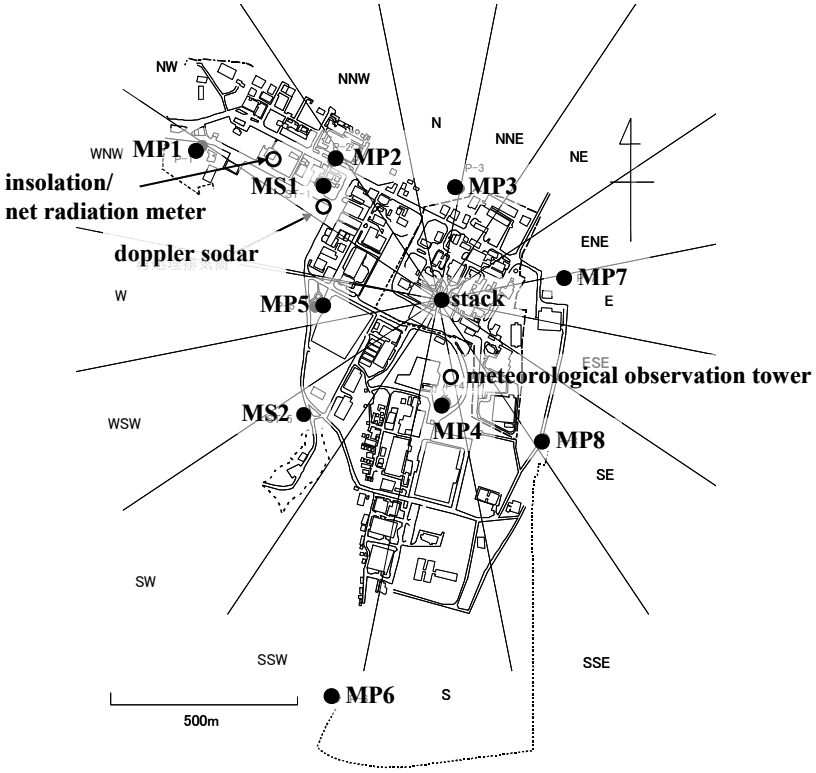


Fig. 3-1 Location of the stack, meteorological instruments and monitoring stations/posts inside the Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, JAEA (MS: monitoring station, MP: monitoring post)

Fig. 3-2 と Fig. 3-3 に、^{85}Kr 放出に伴い MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率の変動例を示す。Fig. 3-2(a)は、2003 年 10 月 20 日に観測された例である。Fig. 3-2(a)には、排気筒からの ^{85}Kr の放出率も示している。Fig. 3-2(b)には、環境ガンマ線線量率変動時の風向、風速、大気安定度の気象観測データを示す。気象の観測地点は、第2章で論じたように Fig. 3-1 に示した研究所敷地内であり、排気筒から南方向約 250 m の気象観測塔での排気筒高さの風向・風速、西方向約 500 m のドップラーソーダでの排気筒高さおよび地上 10 m 高さの風向・風速である。風向・風速のデータは、気象の手引き[52)]に基づき 10 分で平均したデータである。地上 10 m 高さの風速と、排気筒から西方向約 500 m の地点にある日射・放射収支計のデータから、気象指針[25)]に基づき大気安定度を求めた。Fig. 3-2(a)より、17 時 40 分頃、約 3×10^4 GBq h^{-1} の ^{85}Kr の放出率のピークがあり、18 時 20 分頃、約 1.5×10^4 GBq h^{-1} の放出率のピークがあった。Fig. 3-2(b)より、17 時～19 時は、排気筒高さおよび地上 10 m 高さともに、北東～東北東の風が定常的に吹いていた。風速は、排気筒の高さで 6 m s^{-1} 程度、地上 10 m 高さで 3 m s^{-1} 程度であり、あまり変化はなかった。大気安定度は E～F で、大気は比較的安定であった。Fig. 3-2(a)より、MS2 において、17 時 40 分に通常のガンマ線線量率レベルより 13 nGy h^{-1} ほど高いガンマ線線量率ピークが観測された。18 時 20 分には、通常レベルより 3 nGy h^{-1} ほど高いピークが観測された。排気

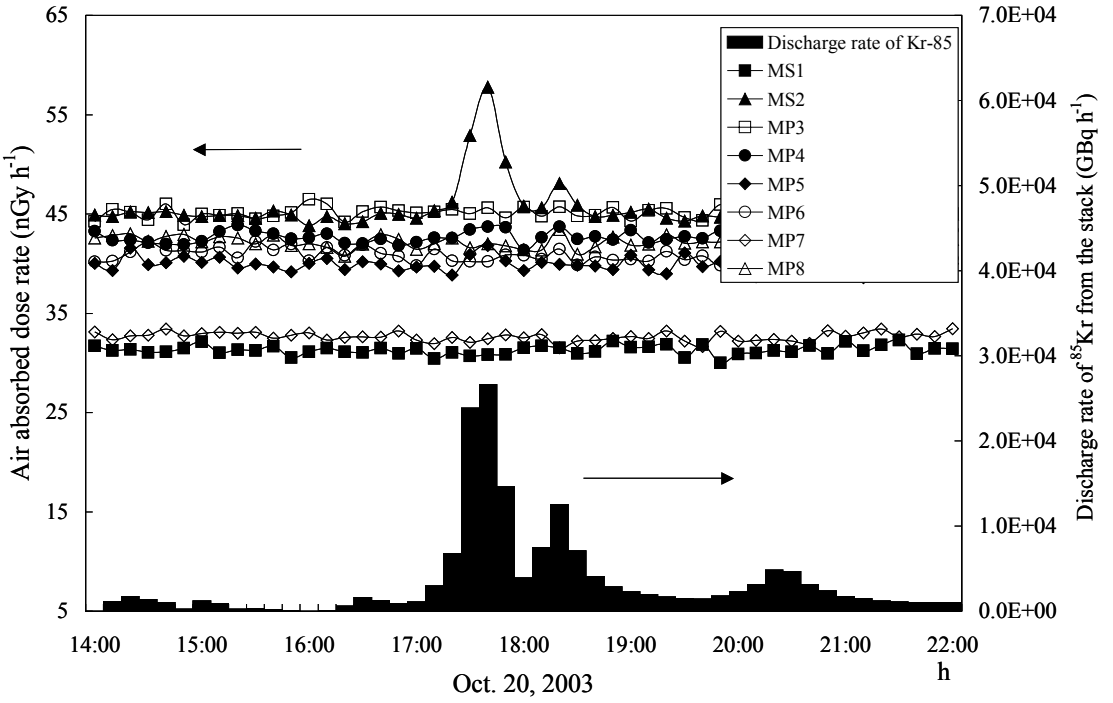


Fig. 3-2(a) Temporal variation of environmental gamma-ray dose rate at monitoring stations and monitoring posts on Oct. 20, 2003

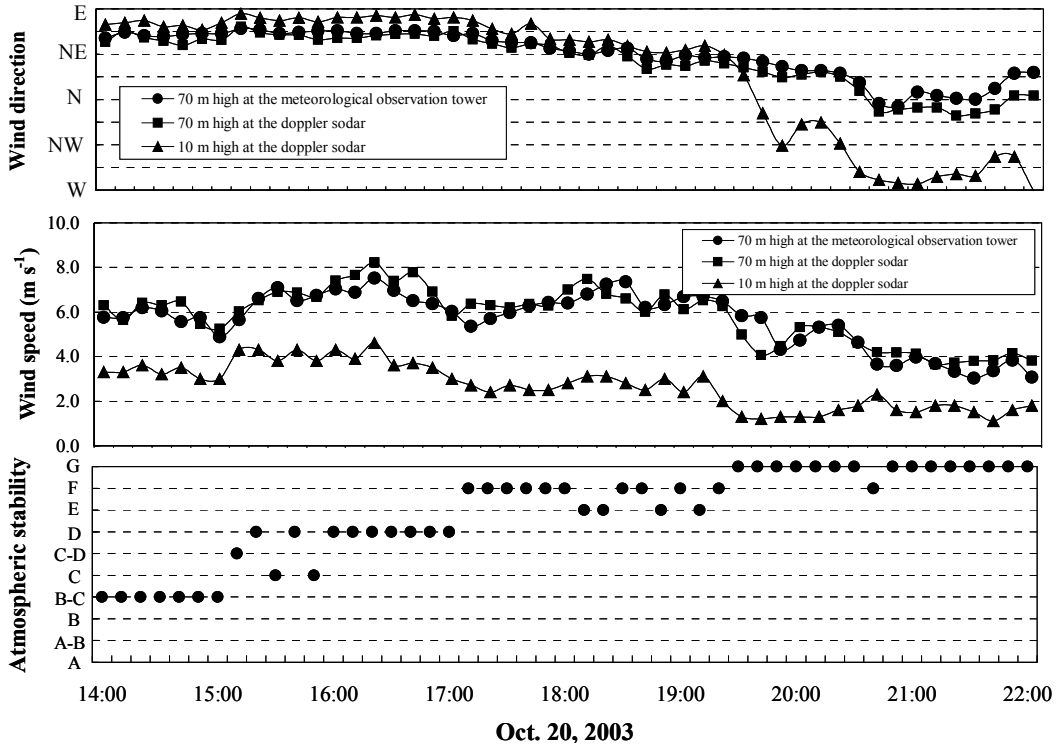


Fig. 3-2(b) Variations of wind direction, wind speed and atmospheric stability when the environmental gamma-ray dose rate varied as shown in Fig. 3-2(a)

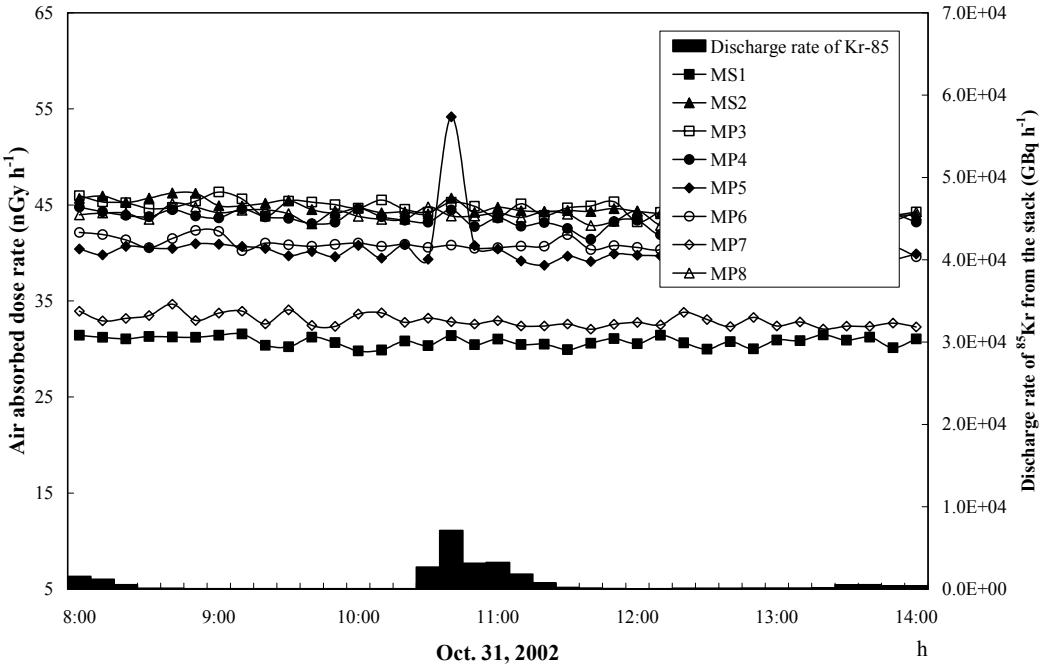


Fig. 3-3(a) Temporal variation of environmental gamma-ray dose rate at monitoring stations and monitoring posts on Oct. 31, 2002

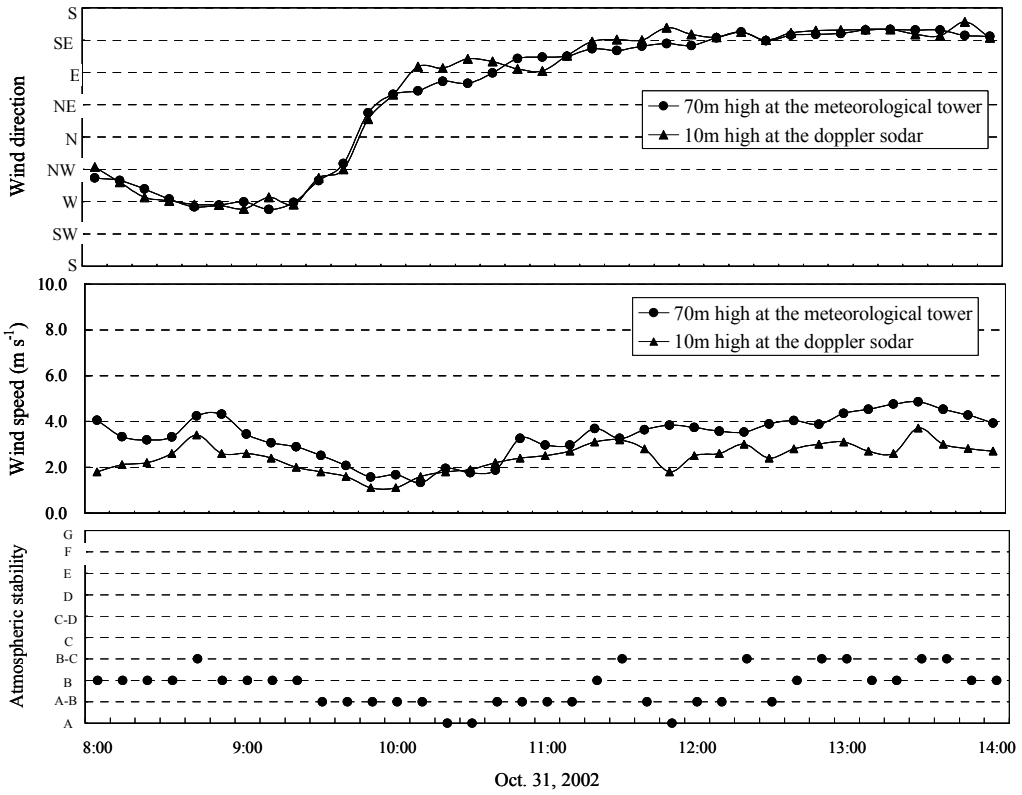


Fig. 3-3(b) Variations of wind direction, wind speed and atmospheric stability when the environmental gamma-ray dose rate varied as shown in Fig. 3-3(a)

筒に近い MP4 においても、同時刻に通常のガンマ線線量率より高いガンマ線線量率が観測された。その他の MS および MP ではガンマ線線量率の変動は観測されなかった。Fig. 3-2(b)より、北東系の風が定常的に吹いていたことから、排気筒の風下方位の南西にある MS2 においてガンマ線線量率の変動が観測された。

Fig. 3-3(a)は、2002 年 10 月 31 日に ^{85}Kr 放出に伴い MP で環境ガンマ線線量率の変動が観測された例である。Fig. 3-3(b)には、風向、風速、大気安定度の気象観測データを示す。Fig. 3-3(a)より、10 時 40 分頃、約 1×10^{4} GBq h^{-1} の ^{85}Kr の放出率のピークがあった。Fig. 3-3(b)より、10 時～11 時にかけて、排気筒高さおよび地上 10 m 高さの風は北東から南東へ変化した。風速は、排気筒高さおよび地上 10 m 高さともに 2 m s^{-1} 程度であった。大気安定度は A～A-B で、大気は不安定であった。Fig. 3-3(a)より、MP5 において 10 時 40 分に通常のガンマ線線量率レベルより 15 nGy h^{-1} ほど高いガンマ線線量率のピークを観測した。他の MS および MP では、環境ガンマ線線量率の変動は観測されなかった。Fig. 3-3(b)より、10 時 40 分頃、風が東風になったことから、排気筒の風下方位の西にある MP5 において環境ガンマ線線量率の変動が観測された。なお、Fig. 3-2(a)と Fig. 3-3(a)で示した両日とも、降雨はなかった。

以上のように、^{85}Kr 放出率が数千 GBq h^{-1} を超えると、排気筒の風下方向にある MS および MP において環境ガンマ線線量率変動が観測された。ガンマ線線量率の上昇幅は最大 20 nGy h^{-1} 程度、一回の変動継続期間は 30 分以内であった。ガンマ線線量率の上昇幅は、排気筒からの ^{85}Kr 放出率にほぼ比例しており、変動期間は、^{85}Kr の放出継続時間とほぼ対応していた。これらのことから、^{85}Kr の放出率と風向のデータに基づき、ガンマ線線量率の変動が ^{85}Kr の放出に伴う変動であることが特定できる。

3.5 SIERRA-II を用いた環境ガンマ線線量率変動のシミュレーション

東海再処理施設の連続運転時に対して、第2章で開発した SIERRA-II を用いて ^{85}Kr 放出に伴う施設周辺の環境ガンマ線線量率を計算した。なお、1990 年代に東海再処理施設の沿岸が火力発電所立地のため埋め立てられた。東海再処理施設は、海岸から約2km 内陸に位置するようになった。従って、本節で解析を行うデータに対しては、第 2.4.4.3 節で考察した内部境界層の影響は小さくなったと考えられる。本節での SIERRA-II を用いた計算においては内部境界層を考慮せず、オンラインデータを入力データとして準実時間で計算した結果について比較・検討を行った。

第2章の Fig. 2-5 に、2003 年 10 月 20 日 17 時 40 分における SIERRA-II により計算された環境ガンマ線線量率の等値線図を示した。Fig. 2-5 より、環境ガンマ線線量率は排気筒から南西方向で高く、MS2 の位置で環境ガンマ線線量率が高くなったことが明らかである。環境ガンマ線線量率の風向直角方向円弧上での拡がりは小さく、隣接する MP5 で環境ガンマ線線量率は上昇しなかった。この計算結果は、Fig. 3-2(a)で MP5 で環境ガンマ線線量率が上昇していない結果と一致した。

計算されたガンマ線線量率と、Fig. 3-2(a)と Fig. 3-3(a)で示した MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率の時系列変動の比較を、Fig. 3-4 と Fig. 3-5 に示した。これらの比較においては、計算された

ガンマ線線量率は、^{85}Kr 放出の影響を受けて環境ガンマ線線量率が変動した期間の前後の通常期間のガンマ線線量率レベルの観測値に、計算された線量率を加算した。Fig. 3-4 より、2003 年 10 月 20 日 17 時 40 分および 18 時 20 分に MS2 で観測された環境ガンマ線線量率の変動が SIERRA-II を用いた計算により再現可能であった。17 時 40 分における観測された環境ガンマ線線量率の変動が 13 nGy h^{-1} であったのに対し、計算された変動は 4 nGy h^{-1} であった。18 時 20 分において観測された環境ガンマ線線量率の変動が 3 nGy h^{-1} であったのに対し、計算では 2 nGy h^{-1} であった。

Fig. 3-5 では、2002 年 10 月 31 日 10 時 40 分に MP5 で観測された環境ガンマ線線量率の変動パターンと、SIERRA-II を用いた計算結果を比較した。観測された環境ガンマ線線量率の変動は 15 nGy h^{-1} であったのに対し、計算された変動は 2 nGy h^{-1} であった。Fig. 3-5 では、計算された変動は、観測された変動よりも小さい値を示した。Fig. 3-5 で計算値と観測値を比較した時の風向の時間変化は、Fig. 3-4 で比較したときの風向の時間変化より大きかった。

Fig. 3-6 には、風向の時間変化に対する計算値と観測値の一致の度合いの関係を示した。Fig. 3-6 より、風向の時間変化が小さい時、計算値と観測値の一致度は高いことが明らかである。

SIERRA-II では、ガンマ線線量率の計算のために、10 分平均の風向データを使用している。そのため、分単位で変化するような気象状況下では、10 分平均の風向データが実際の風向変化を追い切れない。Fig. 3-5 で示したように、分単位で風向が変化するような場合は、実際の風向変化を計算することができず、ガンマ線線量率を正確に計算することができないと考えられる。

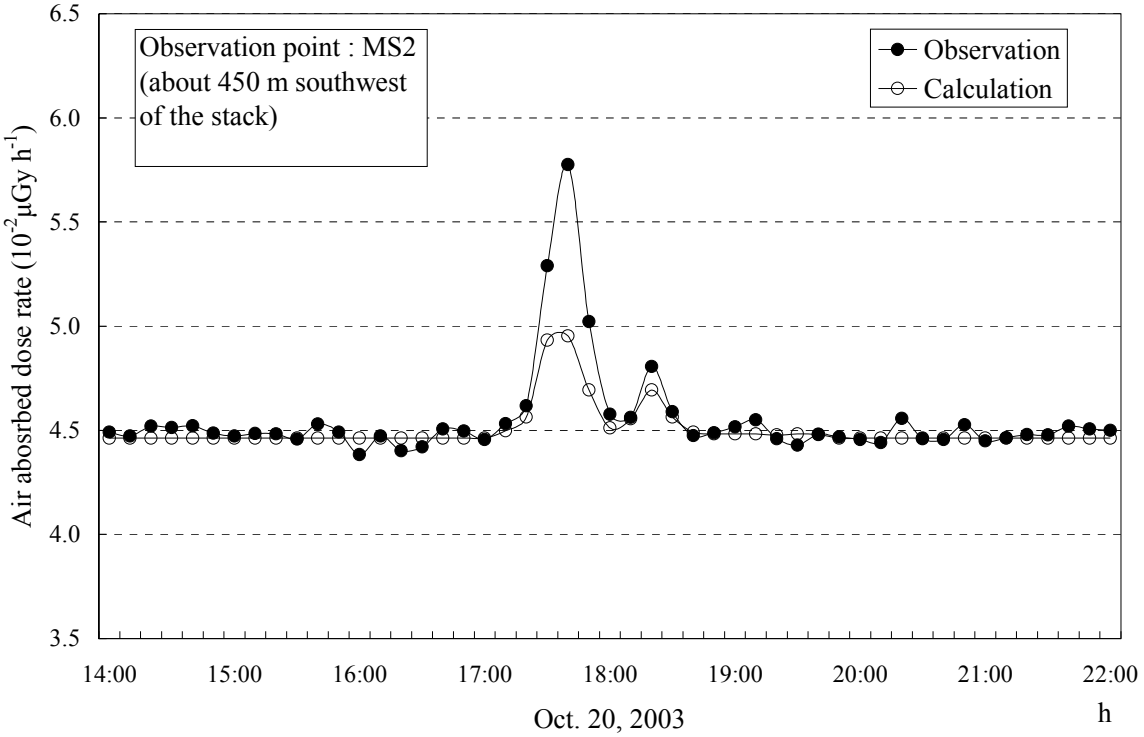


Fig. 3-4 Comparison of the calculated variation of environmental gamma-ray dose rate to the observed one in Oct. 20, 2003

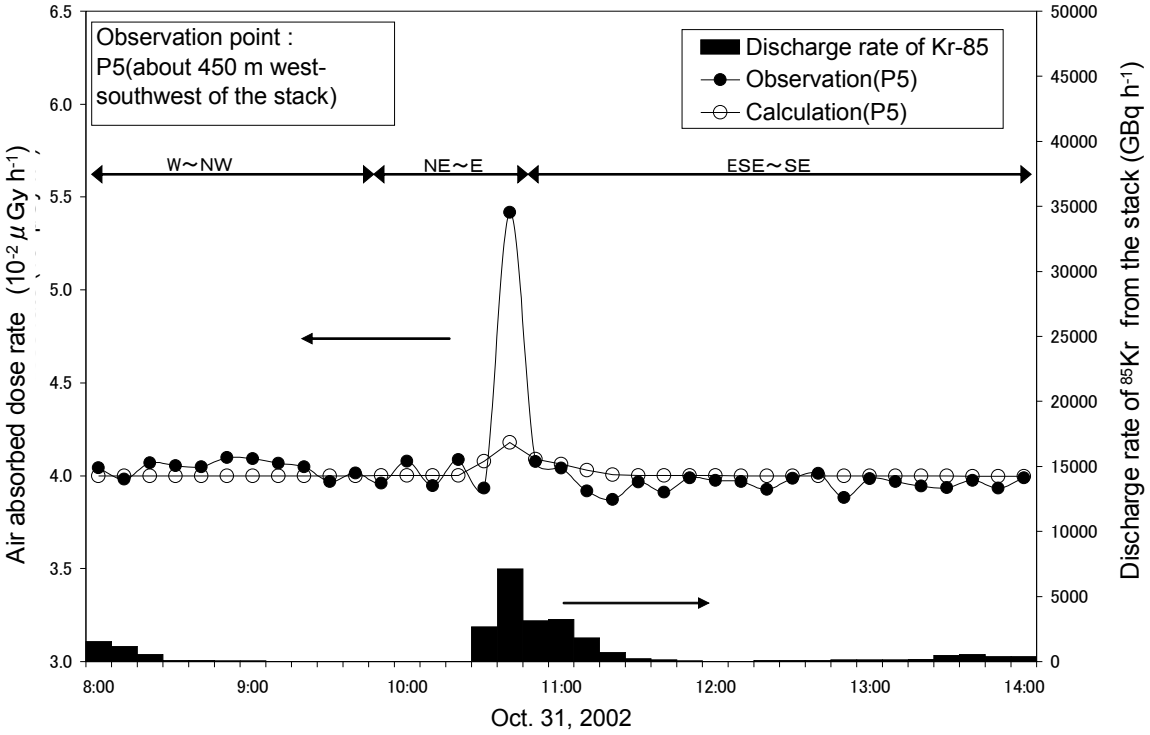


Fig. 3-5 Comparison of the calculated variation of environmental gamma-ray dose rate to the observed one in Oct. 31, 2002

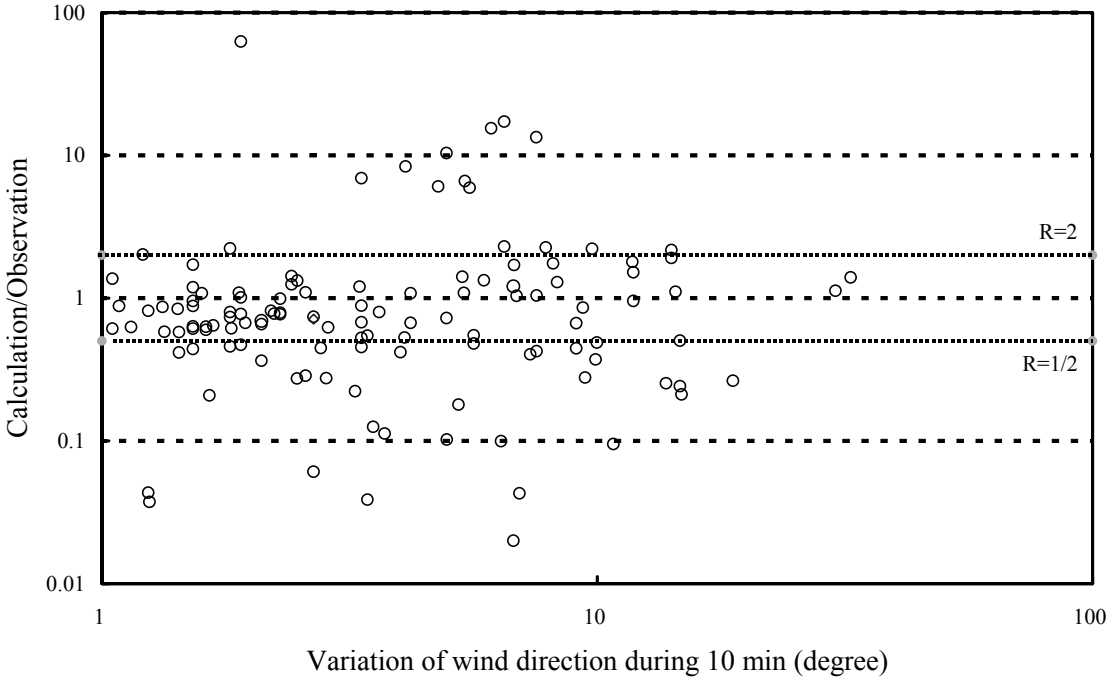


Fig. 3-6 Relationship between the variation of wind direction during 10 min and the ratio of calculated dose rate to the observed one

東海再処理施設がある茨城県東海地区では、気象の特徴として、秋に北東の定常風が多く出現する。北東風は、他の風向の風より風向継続時間が長い。一方、海陸風循環時には、短期に大きな風向変化が現れる[27]。Fig. 3-1 で示した 10 基の MS および MP での環境ガンマ線線量率変動は、これらの北東風および海陸風の特性に影響されていると考えられる。そこで、風向別に環境ガンマ線線量率変動の計算結果および観測結果について考察した。

Table 3-1 に、排気筒の各方位に配置された MS および MP 毎に、2003 年9月～11 月に計算および観測されたガンマ線線量率を比較した。MS2 および MP5 は排気筒の南西および西に位置し、北東の風で風向変化が少ない気象状況でガンマ線線量率が変動したものである。ガンマ線線量率の変動継続時

Table 3-1 Results of the agreement of the calculation results of the SIERRA-II with the observed ones for each monitoring station/post. The data was obtained during the period from Sep. to Nov., 2003

	MS1(24)	MS2(100)	MP1(8)	MP2(18)	MP3(7)
FA5	0.79(19)	0.70(70)	1(8)	0.89(16)	1(7)
FA2	0.42(10)	0.55(55)	0.63(5)	0.28(5)	0.71(5)
MFB	0.60	0.35	0.65	0.56	0.32

( ) : number of data

	MP4(101)	MP5(34)	MP6(27)	MP7(45)	MP8(75)
FA5	0.81(82)	0.82(28)	0.56(15)	0.67(30)	0.61(46)
FA2	0.42(42)	0.56(19)	0.19(5)	0.53(24)	0.19(14)
MFB	0.14	0.04	1.12	0.45	0.72

( ) : number of data

間が長い回数が他の MS,MP のそれよりも多い。MS2 と MP5 でのファクタ2での一致度はそれぞれ 0.55, 0.56、MFB (Mean Fraction Bias)はそれぞれ 0.35, 0.04 であった。ファクタ2での一致度は、他の MS,MP よりも比較的高い値であった。MS2 と MP5 での MFB の値は、他の MS,MP のそれよりも比較的小さく、SIERRA-II での計算での過小評価の度合いは比較的小さかった。

一方、MP6 でのファクタ2での一致度は 0.19、MFB の値は 1.12 であり、他の MS,MP のそれと比較して一致度は低く、過小評価の度合いが大きかった。MP6 で環境ガンマ線線量率が変動した時は、変動継続時間が短い場合が多かった。これは、MP6 で環境ガンマ線線量率が変動した時の気象条件として、海陸風による風向変化が大きかったことが低い一致度の原因として考えられる。これらのことから、SIERRA-

II での計算は、北東系の風向変化の少ない風の場合は観測結果との一致度が大きく、海陸風循環時の風向変化が大きい時は観測結果との一致度が小さいことが考えられる。なお、茨城県東海地区では、風向変化が大きい気象状況が多く発生する季節と、発生頻度が小さい季節がある[27]。風向変化が大きい気象状況の発生頻度が小さい季節では、計算結果と観測結果の一致度が良くなると考えられる。

Fig. 3-7 に、計算および観測された環境ガンマ線線量率の散布図を示した。この散布図は、2003 年9月から 11 月の再処理施設の連続運転期間において Fig. 3-1 に示した 10 地点の MS および MP で環

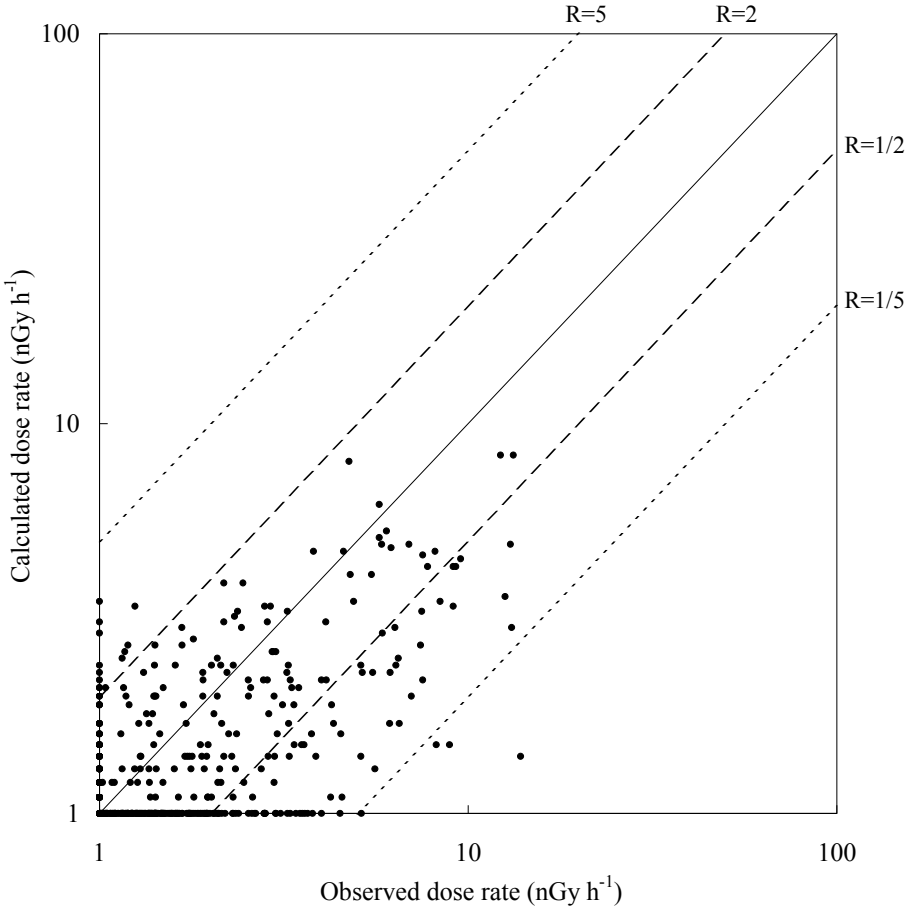


Fig. 3-7 Scatter plots of calculated and observed air absorbed dose rates

境ガンマ線線量率の変動が観測あるいは計算された全ての期間に対してのものである。Fig.3-7 では、有意な計算値および観測値を 1 nGy h^{-1} 以上とし、環境ガンマ線線量率の変動が有意に観測された場合に対する SIERRA-II での計算値、および SIERRA-II での計算値が有意になった場合に対する環境ガンマ線線量率の観測値の変動量を示した。観測された環境ガンマ線線量率の変動量は、^{85}Kr 放出に伴う付加線量率であり、^{85}Kr の放出開始に先立つ3時間の環境ガンマ線線量率の平均値を環境ガンマ線線量率の通常値として差し引くことにより求めた。観測された環境ガンマ線線量率に対する計算された環境ガンマ線線量率の比は R で示している。各座標軸上の点は、1 nGy h^{-1} 以下の計算値あるいは観測値である。Fig.3-7 より、ファクタ2およびファクタ5での一致度は、それぞれ 42%、74%であった。MFB の値

は 0.41 であり、SIERRA-II による計算は過小評価ぎみであった。

^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動は、排気筒からの ^{85}Kr の放出状況と風向に依存する。環境ガンマ線線量率の変動継続時間は、おおむね 30 分間以内であった。この変動継続時間におけるガンマ線線量率の変動の積算値は、^{85}Kr の放出に伴う外部線量となる。2003 年9月～11 月の再処理施設運転期間において、前述した MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率の変動継続期間毎に線量率の変動量を積算し、SIERRA-II により計算された環境ガンマ線線量率の変動の積算値と比較した。Fig. 3-8 に、1回の環境ガンマ線線量率の変動継続期間毎に積算された環境ガンマ線線量の変動量について、計算および観測された積算変動線量の散布図を示す。Fig. 3-8 では、1回の変動継続期間内の積算変動線量について、観測された積算線量が 0.1 nGy 以上の場合に対する SIERRA-II での計算値、および SIERRA-II で計算された積算線量が 0.1 nGy 以上となった場合に対する観測された積算線量を示した。観測された環境ガンマ線積算変動線量は、^{85}Kr 放出に伴い変動した線量率の積算値であり、^{85}Kr の放出開始および放出終了時の環境ガンマ線線量率の値を環境ガンマ線線量率の通常値として差し引くことにより求めた。観測された環境ガンマ線積算変動線量に対する計算された値の比は R で示した。各座標軸上の点は、0.1 nGy 以下の計算値あるいは観測値である。ファクタ2およびファクタ5での一致度は、それぞれ 48%、75%であり、MFB は 0.43 となった。Fig. 3-7 で示した環境ガンマ線線量率の計算結果と観測結果との比較における結果とほぼ同じ値となった。

3.6 結言

再処理施設運転時に ^{85}Kr が大気中に放出された際、施設周辺で環境ガンマ線線量率の変動が観測される。変動が観測された時、再処理施設からの ^{85}Kr の放出状況および気象状況等の情報が収集され、線量率の変動の原因が ^{85}Kr 放出であるかどうか原因究明がなされる。本章では、観測された東海再処理施設からの ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動を、第2章で開発した SIERRA-II を用いてシミュレーションすることにより、^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動を定量化することを試みた。結果は、以下の通りである。

(1)再処理工場からの ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動は、排気筒の風下方位の MS および MP で観測された。環境ガンマ線線量率の変動期間は ^{85}Kr の放出継続期間と対応していた。これらのことから、^{85}Kr の放出率と風向の情報に基づき、^{85}Kr の放出による環境ガンマ線線量率の変動を特定した。

(2)SIERRA-II により計算された環境ガンマ線線量率の変動パターンは、施設周辺の MS および MP で観測された環境ガンマ線線量率の変動パターンと比較的よく一致した。2003 年9月～11 月の東海再処理施設連続運転時について、SIERRA-II により環境ガンマ線線量率の変動幅と、観測された環境ガンマ線線量率の変動幅を比較した。それらの一致度は、ファクタ2で 42%、ファクタ5で 74%であった。MFB (Mean Fraction Bias)は 0.41 であり、SIERRA-II による計算結果は過小評価

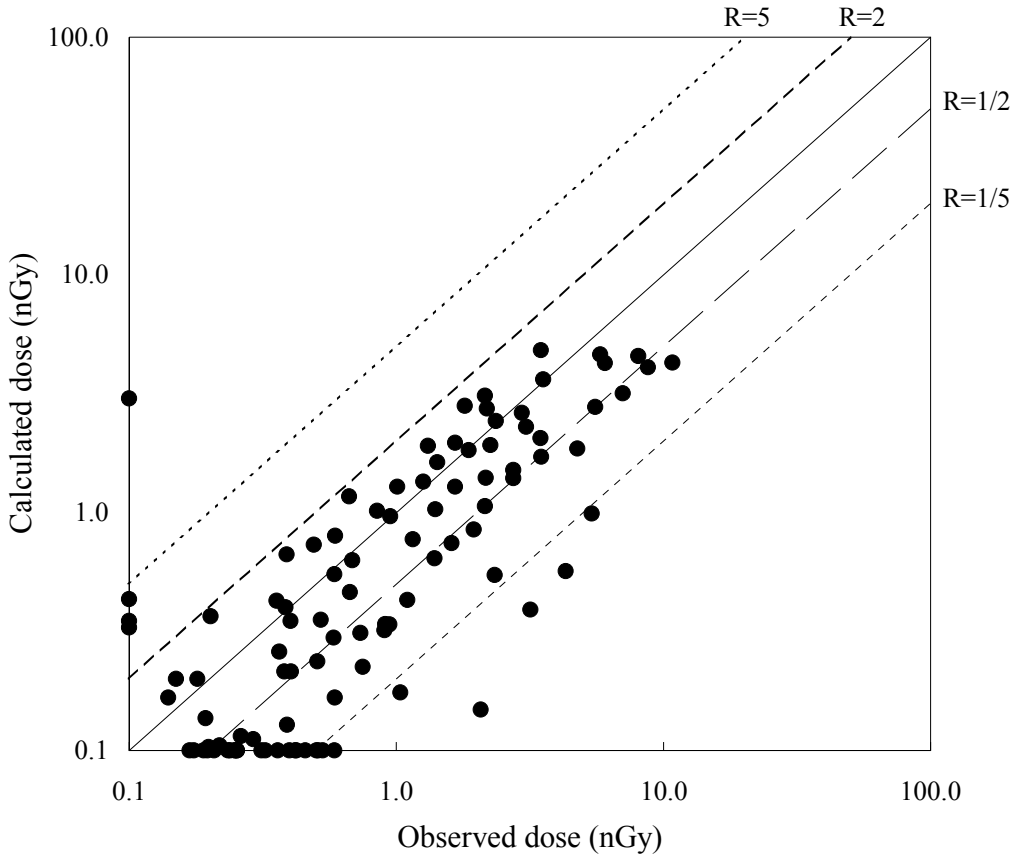


Fig. 3-8 Scatter plots of calculated and observed cumulative air absorbed doses during one series of the increase period

ぎみであった。東海再処理施設周辺では北東の風が定常的に吹くことが多い。北東海風で風向変化の少ない時、SIERRA-II での計算結果と観測結果との一致度が大きく、海陸風循環時の風向変化が大きい時は観測結果との一致度が小さかった。

4. 降雨により地表へ降下した雨水中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定

4.1 緒言

ラドン(^{222}Rn)は、半減期が 3.82 日であり、土壌中の ^{226}Ra の壊変により生成するガス状の放射性核種である。^{222}Rn は、地表から大気中へ散逸し、空気の移流と拡散に伴って大気中へ拡がる。そして、拡がりながら、^{218}Po, ^{214}Pb, ^{214}Bi へと、壊変系列に従って壊変していく。

大気中に拡がった ^{222}Rn 壊変生成物は、降雨時に、降雨の洗浄作用により地表へ降下する。その結果、地表でのガンマ線線量率が大きく上昇する。この環境ガンマ線線量率の変動は、原子力施設からの予期しない放射性物質の放出の監視にとって重大な妨害要因となる[53]。この降雨に伴う環境ガンマ線線量率の上昇レベルが、原子力施設周辺で観測されている環境ガンマ線線量率の原因調査のアクションレベルを超える事象が観測された[53]。これらのことから、^{222}Rn 壊変生成物の降雨沈着による環境ガンマ線線量率の上昇に関する研究は、環境ガンマ線線量率の上昇の原因を正確に評価するために必要である。

これまでに多くの研究者により、降雨により地表へ降下した雨水中の ^{222}Rn 壊変生成物の濃度が調査されてきた。雨水を採取し、採取した雨水の放射能を GM 検出器あるいは NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて測定し、雨水中の ^{222}Rn 壊変生成物濃度を測定した研究がある[54-56]。野外にゲルマニウム検出器を設置し、降雨時のガンマ線スペクトルの変動を測定することにより、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表面沈着量の変化を調査した研究がある[57-59]。降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の洗浄モデルも提案されている[60-62]。降雨時の環境ガンマ線線量率の変動データに基づき、降雨中の ^{222}Rn 壊変生成物の濃度を見積もった研究もある[63-65]。しかし、これらの研究のほとんどは、雨水中に含まれた ^{222}Rn 壊変生成物の合計濃度に関した研究であり、^{222}Rn 壊変生成物の個々の濃度に関する研究は少ない。環境ガンマ線線量率を変動させる ^{222}Rn 壊変生成物は、^{214}Pb と ^{214}Bi である。^{214}Bi のガンマ線のエネルギーは ^{214}Pb のガンマ線のエネルギーより大きいため、^{214}Bi の沈着に伴う環境ガンマ線線量率の変動は、^{214}Pb の沈着に伴うそれよりも大きい[66]。よって、^{222}Rn 壊変生成物の個々の濃度を測定することは、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動を定量化するために必要である。

本章では、雨水を採取し、採取雨水のガンマ線スペクトルをゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した。そして、雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物の個別濃度およびそれらの比を調査した。さらに、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の洗浄モデルを用いて、これらの結果を説明することを試みた。

4.2 測定方法

京都大学原子炉実験所において、1992 年3月から 1993 年3月までの降雨に対して測定を行った。測定を行った降雨は、24 回の降雨事象である。京都大学原子炉実験所の位置を Fig. 4-1 に示す。テフロン製集雨器(100 cm×100 cm)を用いて雨水試料約 250 cm^3 をポリエチレン製容器(72 mmϕ ×60 mm)に採取

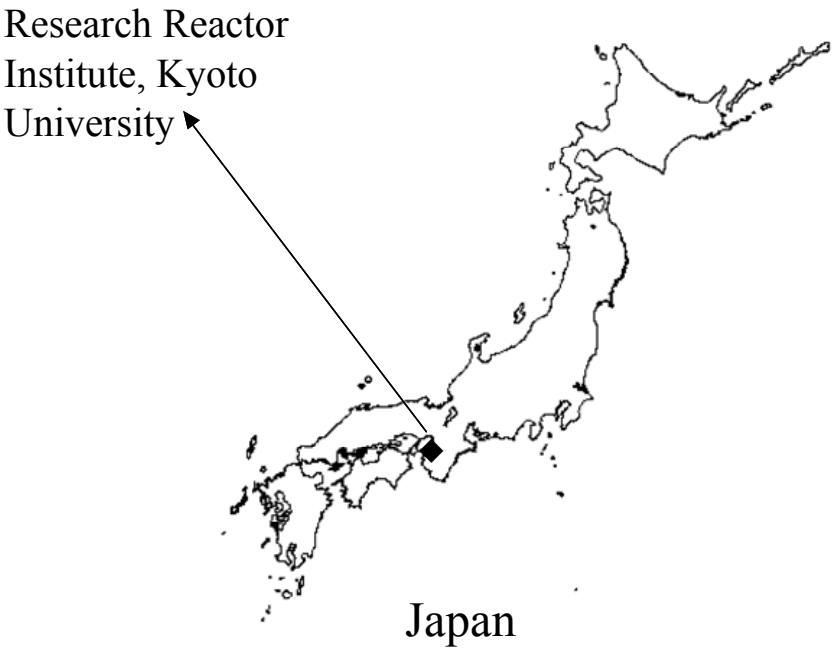


Fig. 4-1 Location of the sampling of rainwater

した。雨水試料採取時間は 30 分以内である。採取した試料のガンマ線スペクトルを、採取終了から約3分後に、低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器を用いて 30 分間測定した。これらの手順を降雨が継続している間、繰り返し行った。なお、雨水を採取するための集雨器としては、当初、塩化ビニル製の2つの集雨器(A:480 cm×240 cm、B:480 cm×210 cm)、並びに、試作したステンレス製の2つの集雨器(C:70 cm×70 cm、D:100 cm×100 cm)を用いていた。しかし、雨水中に含まれた ^{222}Rn 壊変生成物がこれらの集雨器本体に付着し、採取容器に ^{222}Rn 壊変生成物のすべてを捕集できないことが明らかとなった。そのため、^{222}Rn 壊変生成物が付着しないテフロンシート(100 cm×100 cm)を集雨器として採用した。使用したゲルマニウム検出器は、高純度ゲルマニウム検出器(東芝社製、50 mm φ ×60 mm)であり、76 mm (3 in.) φ×76 mm (3 in.) NaI (Tl) シンチレーション検出器の効率と比較して、相対効率は 32.4%、^{60}Co の 1.33 MeV のガンマ線に対する分解能は 1.75 keV である。ガンマ線ピーク計数率は、東芝社製のガンマ線核種分析プログラム(NLAB-GAMMA)を用いて計算した。ゲルマニウム検出器の計数効率は、^{60}Co, ^{137}Cs 等の既知量の放射性核種を含んだ標準点線源を使って決定し、雨水試料容器の形状の体積線源に対する 1.46 MeV の ^{40}K のガンマ線ピーク計数効率を用いて補正した。雨水試料のガンマ線スペクトルの例を Fig.4-2 に示す。Fig.4-2 から、ガンマ線ピークのほとんどは、^{222}Rn 壊変生成物、すなわち ^{214}Pb と ^{214}Bi から

のガンマ線であることがわかる。^{214}Pb と ^{214}Bi のガンマ線放出率は、それぞれ 352 keV と 609 keV が最大である。よって、これらのガンマ線ピーク計数率から、^{222}Rn 壊変生成物の個々の濃度を計算した。計算にあたっては、雨水試料採取時間、試料採取からガンマ線スペクトル測定開始時間までの経過時間、並びに測定時間を考慮した。

濃度の計算は、以下の仮定に基づいて行った。

(i) Miyake らは、雨水中に ^{222}Rn はほとんど含まれていないことを雨水を測定することにより示した [67]。よって、雨水中に含まれる ^{222}Rn の壊変に伴う壊変生成物の生成は無視する。さらに、地表へ降下した雨水中には、^{218}Po は含まれないとする。これは、^{218}Po の半減期が約3分であるので、上空の雨雲水中に含まれた ^{218}Po は雨水が地表へ到達する時点で壊変し ^{214}Pb になってしまっていると考えられるからである。よって、地表に降下した雨水中に含まれる短寿命 ^{222}Rn 壊変生成物のうち、ガンマ線放出に関係する核種は、^{214}Pb と ^{214}Bi のみである。

(ii) 雨水試料採取時間内において、地表へ降下する雨水中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度並びに降雨強度は一定であるとする。採取容器に溜まった雨水試料中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi は、壊変系列に従い、時間の経過とともに壊変していく。

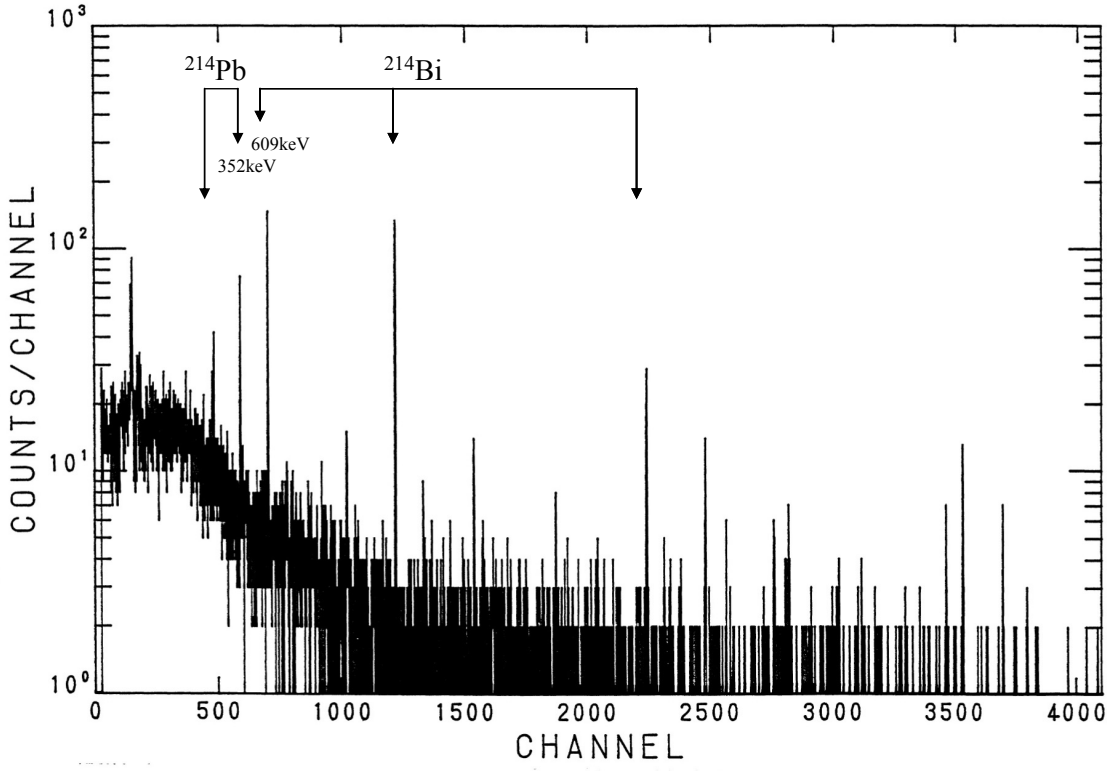


Fig. 4-2 Example of the gamma-ray spectrum of rainwater (date of measurement: Dec. 7, 1992; sampling amount of rainwater: 250 cm^3; measuring time: 30 min)

以上の仮定のもとで、雨水試料採取中および試料採取終了直後での雨水試料中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の放射能は、以下の式で表される。

$$\lambda_{Pb} N_{Pb}(T_s) = N_{Pb}^0 S\left(1 - e^{-\lambda_{Pb} T_s}\right) \tag{4-1}$$

$$\lambda_{Bi} N_{Bi}(T_s) = \left(N_{Pb}^0 + N_{Bi}^0\right) S\left(1 - e^{-\lambda_{Bi} T_s}\right) + \frac{\lambda_{Bi} N_{Pb}^0 S}{\lambda_{Pb} - \lambda_{Bi}}\left(e^{-\lambda_{Pb} T_s} - e^{-\lambda_{Bi} T_s}\right) \tag{4-2}$$

ここで、T は雨水試料の採取時刻で、T=0 は雨水試料採取開始時刻、T=T_s は雨水試料採取終了時刻を表す。$N_{Pb}(T_s)$と $N_{Bi}(T_s)$は、雨水試料採取終了時(T_s)での試料採取容器中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の原子数で、λ_{Pb} と λ_{Bi} は壊変定数(s^{-1})である。N_{Pb}^0 と N_{Bi}^0 は、それぞれ、地表へ降下する雨水中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の原子数(cm^{-3})で、(ii)の条件から定数である。S は、雨水試料採取率(cm^3 s^{-1})で、降雨強度に雨水試料採取面積を乗じることにより求められる。(ii)の条件より降雨強度は定数なので、Sも定数である。

雨水試料採取終了後の試料採取容器中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の放射能は、以下の式で与えられる。

$$\lambda_{Pb} N_{Pb}(t) = \lambda_{Pb} N_{Pb}(T_s) e^{-\lambda_{Pb} t} \tag{4-3}$$

$$\lambda_{Bi} N_{Bi}(t) = \lambda_{Bi} N_{Bi}(T_s) e^{-\lambda_{Bi} t} + \lambda_{Pb} N_{Pb}(T_s) \frac{\lambda_{Bi}}{\lambda_{Bi} - \lambda_{Pb}}\left(e^{-\lambda_{Pb} t} - e^{-\lambda_{Bi} t}\right) \tag{4-4}$$

ここで、$\lambda_{Pb}N_{Pb}$(t)と $\lambda_{Bi}N_{Bi}$(t)は、雨水試料採取終了から時間 t (s)が経過した時点での試料採取容器中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の放射能(Bq)である。

試料採取終了から t_c (s)経過した後、t_m (s)間、ガンマ線スペクトルを測定したとすると、^{214}Pb および ^{214}Bi のガンマ線ピーク計数値 C_{Pb} と C_{Bi} は、以下の式で表される。

$$C_{Pb} = \varepsilon_{Pb} a_{Pb} N_{Pb}(T_s)\left(1 - e^{-\lambda_{Pb} t_m}\right) e^{-\lambda_{Pb} t_c} \tag{4-5}$$

$$C_{Bi} = \varepsilon_{Bi} a_{Bi} N_{Bi}(T_s)\left(1 - e^{-\lambda_{Bi} t_m}\right) e^{-\lambda_{Bi} t_c} + \varepsilon_{Bi} a_{Bi} N_{Pb}(T_s) \frac{1}{\lambda_{Bi} - \lambda_{Pb}}\left\{\lambda_{Bi}\left(1 - e^{-\lambda_{Pb} t_m}\right) e^{-\lambda_{Pb} t_c} - \lambda_{Pb}\left(1 - e^{-\lambda_{Bi} t_m}\right) e^{-\lambda_{Bi} t_c}\right\} \tag{4-6}$$

ここで、ε_{Pb} と ε_{Bi} は、それぞれ ^{214}Pb の 352 keV と ^{214}Bi の 609 keV のガンマ線エネルギーに対する検出器

の検出効率、a_{Pb}とa_{Bi}は、それぞれのガンマ線の放出割合である。

これらのガンマ線ピーク計数値 C_{Pb}と C_{Bi}から、地表へ降下した雨水中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度($\lambda_{Pb}N^0_{Pb}$, $\lambda_{Bi}N^0_{Bi}$; Bq cm^{-3})を逆算した。

4.3 測定結果

Table 4-1 に、雨水採取・測定を行った降雨事象毎の雨水採取・測定の回数、降雨強度の範囲、雨水中に含まれる ^{214}Pb の濃度の範囲、^{214}Bi の濃度の範囲、並びに ^{214}Pb 濃度に対する ^{214}Bi 濃度の比の範囲を示す。ここで、降雨強度は、雨水試料採取量(約 250 cm^3)を試料採取面積(100 cm×100 cm)および試料採取時間により割ることにより求めた。なお、1回の降雨事象とは、直前の降雨が終了してから6時間以上の無感雨時間がある降雨事象とする。途中降雨の中断があっても、中断が6時間未満である場合は1回の降雨事象とする。降雨事象毎の濃度測定回数は、降雨継続時間に依存する。測定した降雨事象に対しては、1回～12 回の測定回数であった。各降雨事象の降雨強度は、0.1 mm h^{-1} のオーダから 10 mm h^{-1} のオーダに分布した。

Table 4-1 から、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は、一雨において 0.1 Bq cm^{-3} 程度～数 Bq cm^{-3} まで分布した。これらの濃度の値は、池辺らが名古屋で測定した濃度と同程度であった [62]。池辺らは、濃度が冬季に高く、夏季に低いという季節変動を報告した。本研究では、1992 年4月および 1993 年1月の降雨で ^{214}Pb が高い濃度を示した。1992 年4月、6月および 1993 年1月の降雨で ^{214}Bi が高い濃度を示した。これらの結果は、冬から春先にかけて高い濃度であることを示しており、池辺らの報告と一致している。この季節変動は、これまでの研究により説明される [68]。すなわち、冬季は、季節風が主に北や北西、すなわちシベリア方面から吹き、日本に大陸性ラドンが大量に輸送され、大気中 ^{222}Rn 濃度が上昇する。それに伴い、^{222}Rn 壊変生成物の大気中濃度も上昇し、降雨の洗浄作用により地面へ移行する ^{222}Rn 壊変生成物濃度も上昇する。

雨水中に含まれる ^{214}Pb の濃度に対する ^{214}Bi の濃度の比については、個々の降雨事象に対して、0.1～2の範囲に分布した。濃度比の季節的変動は、明らかには現れなかった。この結果は、池辺らが報告した結果と一致した [62]。

Fig.4-3(a)と Fig.4-3(b)は、降雨継続時間が長い降雨事象に対して、1回の降雨事象において雨水試料を繰り返し採取・測定した時に観測された ^{214}Pb 濃度と ^{214}Bi 濃度、それらの濃度比、並びに降雨強度の時間変化の例である。Fig.4-3(a)と Fig.4-3(b)は、1992 年 5 月 8 日～9 日と 1992 年 11 月 20 日の2回の降雨事象に対するそれらの時間変化を示す。Fig.4-3(a)と Fig.4-3(b)から、降雨強度が変化するとともに、^{214}Pb 濃度、^{214}Bi 濃度、並びにそれらの濃度比は、変化した。本研究では、雨水採取が手作業のため、降り始めの雨水を採取できていなかった。よって、雨の降り始めに濃度が高いかどうかはわからなか

Table 4-1 The number of measurements and the ranges of the rainfall rate, ^{214}Pb and ^{214}Bi concentrations and the ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb concentrations in the rainwater.

Date	Number of measurements	Range of rainfall rate (mm h^{-1})	Range of ^{214}Pb concentration in rainwater (Bq cm^{-3})	Range of ^{214}Bi concentration in rainwater (Bq cm^{-3})	Range of the ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb concentrations
Mar. 15, 92	2	2.6～4.0	0.34±0.031～0.44±0.035	0.16±0.079～0.24±0.062	0.46±0.050～0.66±0.08
Apr. 15-16, 92	3	0.79～4.4	1.2±0.055～2.1±0.074	0.70±0.068～1.1±0.11	0.48±0.050～0.97±0.11
Apr. 22, 92	7	2.3～26.7	0.31±0.018～2.2±0.051	0.11±0.02～2.2±0.078	0.35±0.070～1.0±0.04
Apr. 24, 92	1	1.8	2.3±0.045	1.7±0.15	0.75±0.07
May 2, 92	1	4.1	1.6±0.043	0.93±0.071	0.58±0.05
May 8-9, 92	12	1.4～39.9	0.078±0.010～1.4±0.05	0.13±0.031～1.1±0.088	0.43±0.11～1.4±0.13
May 9, 92	3	1.6～5.3	1.4±0.039～1.7±0.045	0.63±0.064～0.97±0.11	0.36±0.18～0.71±0.19
May 13-14, 92	4	3.9～10	1.1±0.037～1.8±0.048	0.82±0.049～1.2±0.065	0.65±0.040～0.72±0.05
May 30, 92	3	2.6～8.4	0.31±0.021～0.88±0.033	0.22±0.031～0.27±0.053	0.31±0.060～0.74±0.14
June 7, 92	8	1.5～15	0.18±0.013～1.7±0.043	0.12±0.019～2.0±0.075	0.67±0.12～1.3±0.13
July 11, 92	1	1.9	0.67±0.021	0.38±0.04	0.57±0.06
Aug. 3, 92	1	0.4	0.35±0.019	0.22±0.047	0.63±0.14
Sep. 14, 92	1	0.75	0.75±0.029	0.96±0.058	1.3±0.09
Sep. 25, 92	3	0.75～2.0	0.93±0.031～1.2±0.038	0.71±0.049～0.91±0.059	0.67±0.060～0.88±0.06
Sep. 29, 92	7	2.3～22	0.21±0.014～0.60±0.023	0.094±0.021～0.70±0.039	0.28±0.070～1.3±0.09
Oct. 8-9, 92	5	2.1～4	0.16±0.013～0.40±0.02	0.27±0.024～0.47±0.035	1.0±0.11～1.7±0.20
Oct. 14, 92	2	0.64～2.5	0.21±0.016～0.21±0.015	0.16±0.031～0.28±0.0326	0.76±0.16～1.3±0.016
Nov. 9, 92	7	1.3～5.6	0.29±0.019～0.58±0.025	0.39±0.031～0.77±0.041	1.2±0.09～1.7±0.16
Nov. 20, 92	10	1.3～17	0.098±0.011～0.99±0.036	0.035±0.011～1.4±0.062	0.36±0.12～1.4±0.08
Dec. 7, 92	3	0.97～7.1	0.16±0.013～0.19±0.013	0.11±0.018～0.35±0.03	0.58±0.10～1.9±0.24
Jan. 10, 93	2	3.2～4.2	1.3±0.040～2.7±0.061	1.9±0.11～2.2±0.066	0.69±0.040～1.7±0.07
Jan. 15, 93	1	0.54	0.89±0.034	1.1±0.069	1.2±0.09
Feb. 21, 93	1	0.78	0.58±0.031	1.1±0.061	2.0±0.15
Mar. 15, 93	4	2.3～3.7	0.12±0.015～0.22±0.018	0.22±0.023～0.42±0.03	1.8±0.23～2.4±0.37

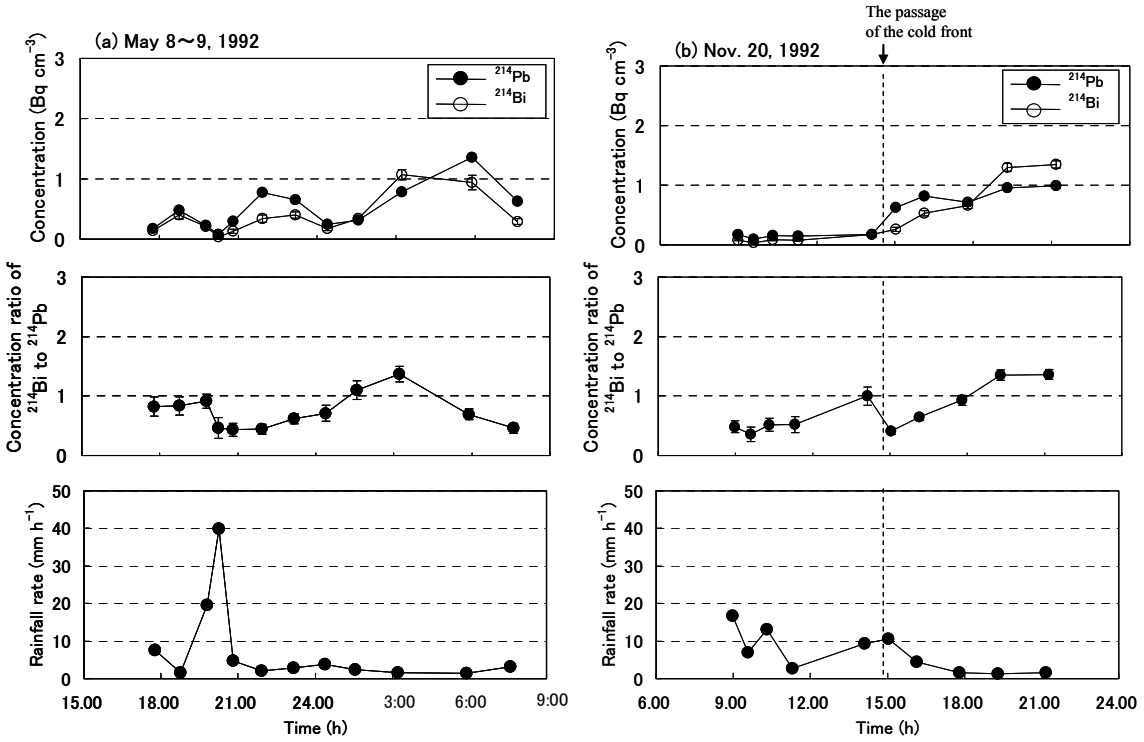


Fig. 4-3 Time variations of the concentrations and their ratio of ^{214}Pb and ^{214}Bi in the rainwater and rainfall rate during one rainfall event on (a) May 8～9, 1992 and (b) Nov. 20, 1992

った。^{222}Rn 壊変生成物の降雨洗浄はレインアウトの効果が大きいという論文が多くある [58]。雨雲中に存在する大気中 ^{222}Rn から生成した ^{218}Po のほとんどは、後述するように、雲粒に付着する。大気中 ^{222}Rn の濃度は、降雨に影響されないので、^{218}Po の生成は降雨継続期間中継続する。雲水に取り込まれた ^{218}Po から生成する ^{214}Pb と ^{214}Bi が降雨とともに地表へ降下する。この降下量が大きい時、ウォッシュアウトにより雨の降り始めに濃度が高くなることが考えられる。

Fig.4-3(b)で示した降雨事象においては、降雨の途中(14 時 30 分頃)に寒冷前線が通過した。この前線通過を境にして、風向が南から北西へ変化した。^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は、前線通過前は 0.2 Bq cm^{-3} 以下であったのに対し、前線通過後は 1 Bq cm^{-3} 程度まで上昇した。この原因としては、降雨の途中で前線が通過したことに伴い大気の気団が変化し、大気中 ^{222}Rn およびその壊変生成物の濃度が変化したと考えられる [69]。すなわち、前線通過前は南風が吹き、海洋性気団により大気中 ^{222}Rn および壊変生成物の濃度は低くかった。一方、前線通過後は北西風が吹き、大陸性気団により大気中 ^{222}Rn および壊変生成物の濃度が高くなったと考えられる。

^{214}Pb 濃度に対する ^{214}Bi 濃度の比は、前線通過前よりも前線通過後のほうが大きくなった。この現象は次のように説明される。前線通過後の降雨は、寒冷前線、すなわち対流性雲による降雨である。対流性雲は、雲の厚さが厚く、雲水の鉛直方向の対流が大きい。対流性雲の中では、^{222}Rn 壊変生成物が雲水に付着してから雨水として地表へ到達するまでの経過時間が長い。この時、^{214}Pb の壊変が増え、その結果、^{214}Bi の生成量が増える。地表に到達する雨水中に含まれる ^{214}Pb の濃度に対する ^{214}Bi の濃度の比は大き

くなる。

Fig.4-3 に例示した降雨事象に対して、濃度と降雨強度の関係を示したのが Fig.4-4 である。Fig.4-4(a)より、1992 年5月８日～９日の降雨事象に対しては、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は降雨強度と負の相関があることが分かる。Fig.4-4(b)と Fig.4-4(c)より、1992 年 11 月 20 日の降雨事象に対しては、寒冷前線通過前については濃度と降雨強度の間で負の相関関係は明らかでなく、降雨強度に関わらず濃度はほぼ一定であることが分かる。一方、前線通過後については、濃度は降雨強度と負の相関関係があった。Fig.4-4(b)と Fig.4-4(c)で示したように、濃度が大きく変化し、濃度と降雨強度の関係が降雨の途中で変化することが寒冷前線の通過に伴い起こった。西川らの研究においては、降水量と降水により地表面へ運ばれたラドン壊変生成物の量との関係が、雲の性質や雲底高度の変化に伴い変化したことを議論している [69]。本研究での結果は、西川らの研究結果と整合している。3回以上雨水を連続的に採取・濃度測定した 14 回の降雨事象に対して、濃度(y)の降雨強度(x)依存性の測定結果を最小自乗法によりベキ関数($y=ax^b$; a,b:定数)にフィッティングした。その結果、14 回の降雨事象で、濃度が降雨強度と負の相関関係にあったのは8回の降雨事象であり、濃度と降雨強度の相関は明らかでなく、降雨強度に関わらず濃度がほぼ一定であったのは6回の降雨事象であった。

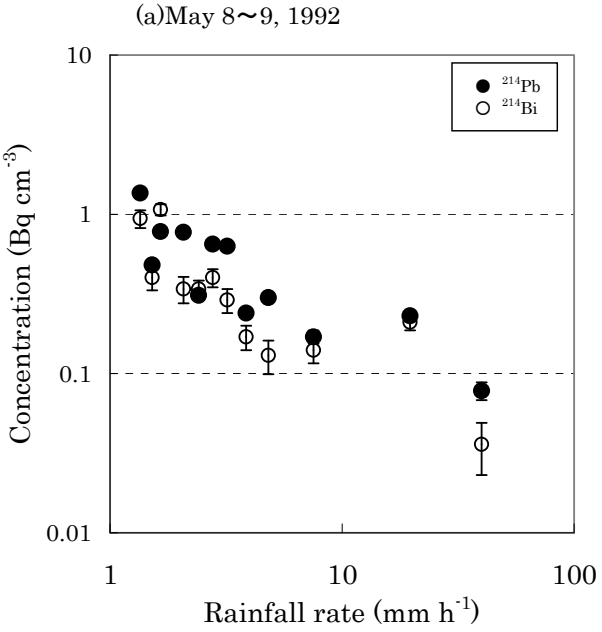


Fig. 4-4 (a) Rainfall rate dependency of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi in therainwater in the rainfall event on May 8-9, 1992

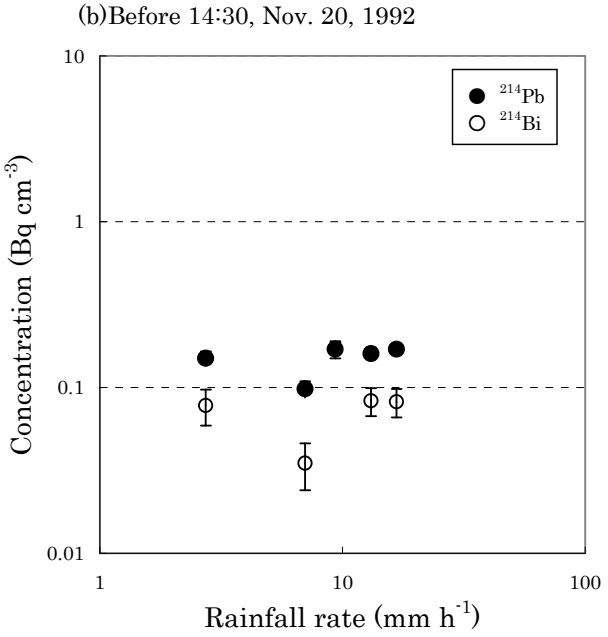


Fig. 4-4 (b) Rainfall rate dependency of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi before the passage of the cold front in the rainwater in the rainfall event on Nov. 20, 1992

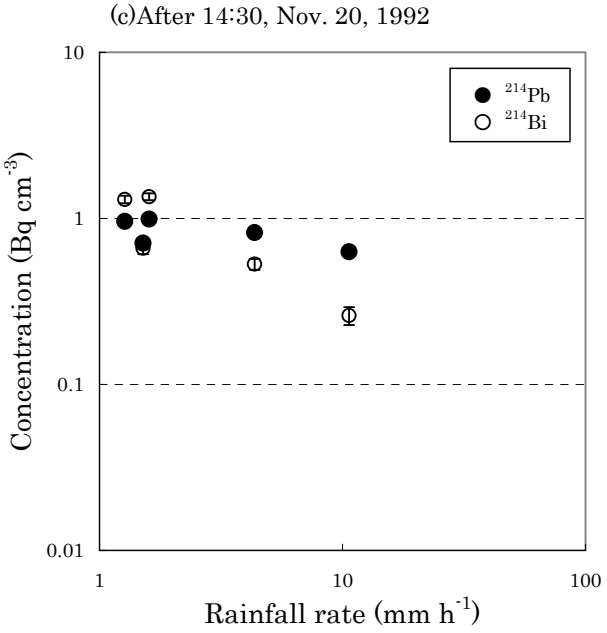


Fig. 4-4 (c) Rainfall rate dependency of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi after the passage of the cold front in the rainwater in the rainfall event on Nov. 20, 1992

これまで、雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物の濃度と降雨強度の間には、負の相関があることが多くの研究者により報告された [54), 70)]。一方、西川らは、降雨強度が弱い場合には、濃度は高い値から低い

値まで広く分布し、降雨強度が強い場合には、濃度が低くなったと報告した [69]。西川らは、地表への ^{222}Rn 壊変生成物の降下量と降雨強度についても調査した。その結果、それらの間には正の相関があると報告した。本研究の測定結果においては、いくつかの降雨事象では降雨強度に関わらず濃度がほぼ一定であった。この時、濃度に降雨強度を乗じることにより求められる地表への沈着量は降雨強度と正の相関関係にある。よって、本研究の観測結果は、西川らの観測結果と整合している。

Fig.4-3 に例示した降雨事象に対して、^{214}Pb に対する ^{214}Bi の濃度の比と降雨強度の関係を Fig.4-5 に示す。Fig.4-5(a)と Fig.4-5(c)より、濃度比は降雨強度と弱い負の相関関係にあることが分かる。一方、Fig.4-5(b)では、濃度比と降雨強度依存性の関係は明らかでなく、濃度比はほぼ一定であった。弱い負の相関関係は、測定を行った他の降雨事象のほとんどにおいて観測された。降雨強度が強くなると、雨粒が雲底から地表面まで落下するのに要する時間は短くなる。この時、雨粒中に含まれる ^{214}Pb の壊変が少なくなり、その結果、^{214}Bi の生成量が少なくなる。地表へ降下した雨水中に含まれる ^{214}Pb に対する ^{214}Bi の濃度の比が小さくなる。これが、濃度比が降雨強度と弱い負の相関関係にある原因と考えられる。

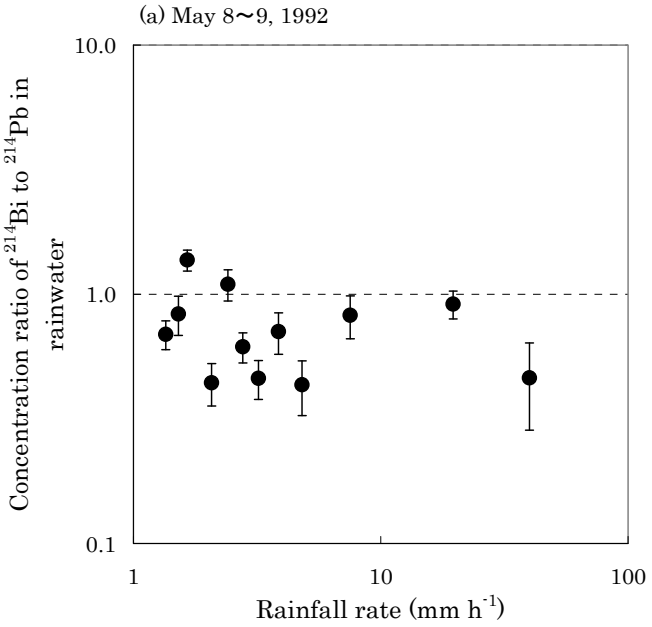


Fig. 4-5 (a) Rainfall rate dependency of the concentration ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb in the rainwater in the rainfall event on May 8-9, 1992

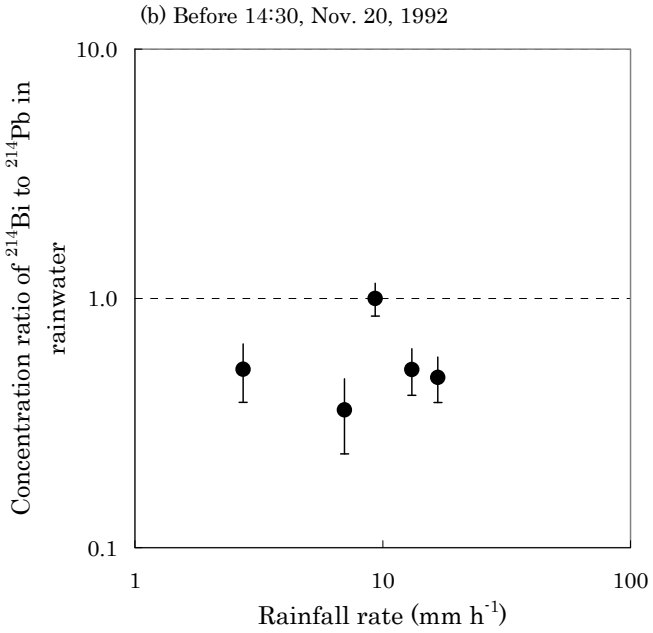


Fig. 4-5 (b) Rainfall rate dependency of the concentration ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb before the passage of the cold front in the rainwater in the rainfall event on Nov. 20, 1992

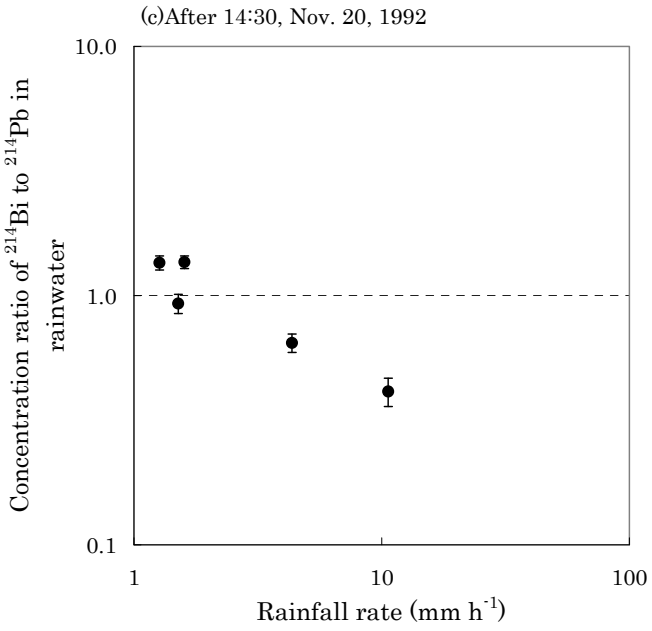


Fig. 4-5 (c) Rainfall rate dependency of the concentration ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb after the passage of the cold front in the rainwater in the rainfall event on Nov. 20, 1992

4.4 大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の降雨洗浄モデルを用いた考察

以上の観測結果を、大気中 ^{222}Rn 壊変生成物降雨洗浄モデルを構築して説明することを試みた。一般に、降雨には2つの洗浄機構、すなわちレインアウトとウォッシュアウトがある[71]。雨水中に取り込まれた ^{222}Rn 壊変生成物は、主にレインアウトの機構によるものである[60-61]。本研究では、レインアウトのモデルを構築し、雨水中に含まれる ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度、並びに ^{214}Pb に対する ^{214}Bi の濃度比の降雨強度依存性の観測結果を説明することを試みた。

本研究で構築した降雨洗浄モデルは、藤波らにより提案されたモデルをより詳細にしたモデルである[72]。藤波らは、降雨による^{222}Rn壊変生成物の地表沈着量の降雨強度依存性の観測結果から雲物理パラメータを見積もるための降雨洗浄モデルを提案した。藤波らは、モデル構築に際し、雨水中に含まれる^{214}Pbに対する^{214}Biの濃度の比を1とするなど、いくつかの仮定を設定した。本研究で構築したモデルは、藤波らがモデル構築に際し設定した仮定のいくつかをより現実的な数値に設定した。

本モデルでは、降雨による^{222}Rn壊変生成物の動態をFig. 4-6のように設定した。まず、雨雲大気中の^{222}Rnから生成した^{218}Poが雲水に取り込まれる。雲水に取り込まれた^{218}Poは、壊変系列に従い、雲水中で^{214}Pb, ^{214}Biへ壊変する。雲水は雨水として雨雲中から地表へ落下する。雨水が地表へ落下する間、雨水

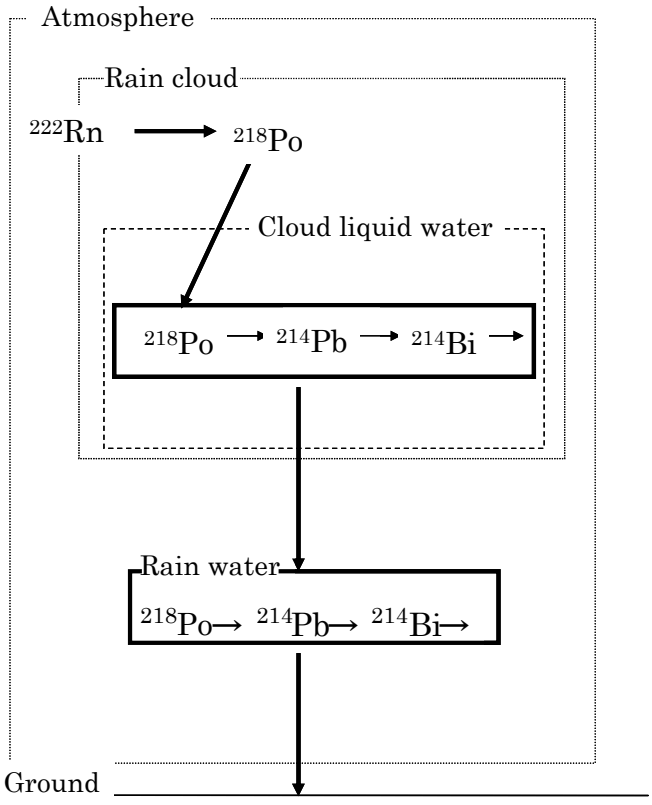


Fig. 4-6 Outline of the proposed scavenging model by rainfall for ^{222}Rn decay products in the atmosphere

に含まれた^{222}Rn壊変生成物は壊変系列に従い壊変する。本モデルでは、以下のとおり雨雲等の条件を設定した。これらの条件のうち、③と⑥の条件において、藤波らのモデルより^{222}Rn壊変生成物の動態をより現実的に設定した。

①雨雲は、上空大気中に一様に分布する。

②大気中の^{222}Rnは雲水中に取り込まれず、濃度は一定である。雨雲中の大気中に均一に分布する。

③大気中の^{222}Rnは、壊変系列に従って、^{218}Po, ^{214}Pb, ^{214}Biへ壊変する。藤波らは、^{218}Poを考慮せず、^{222}Rn が^{214}Pb, ^{214}Biへ壊変すると仮定するとともに、^{214}Pb, ^{214}Biを単一核種として取り扱った。

④雲水中に含まれた^{222}Rn壊変生成物の濃度は平衡状態に達しており、濃度が一定となっている。

⑤雨雲中から除去された雲水は、すべて雨水として地表に移行する。

⑥雲底から地表への雨水の移行時間を降雨強度の関数として設定する。藤波らは、降雨強度に係わらず、雨水の地表への移行時間を一定値で与えている。

以上の条件のもとで、雲水中あるいは雲底下の雨水中に含まれる^{222}Rn壊変生成物は以下のように与えられる。

4.4.1 雨雲中の ^{222}Rn 壊変生成物の挙動

雨雲中に取り込まれた ^{222}Rn 壊変生成物の量は、以下の式に従い時間とともに変化する。

$$\frac{dN_{Po}^{w}}{dt} = \Lambda N_{Po}^{a} - (\lambda_{Po} + \psi) N_{Po}^{w} \tag{4-7}$$

$$\frac{dN_{Pb}^{w}}{dt} = \lambda_{Po} N_{Po}^{w} - (\lambda_{Pb} + \psi) N_{Pb}^{w} \tag{4-8}$$

$$\frac{dN_{Bi}^{w}}{dt} = \lambda_{Pb} N_{Pb}^{w} - (\lambda_{Bi} + \psi) N_{Bi}^{w} \tag{4-9}$$

ここで、N_i^w は雲水中に含まれる^{222}Rn壊変生成物iの原子数（m^{-3}(大気)）、Λは雨雲大気中の^{218}Poが雲水へ付着し取り込まれる速度を表す係数(s^{-1})、N_{Po}^a は大気中の^{218}Poの原子数(m^{-3})、λ_i は^{222}Rn壊変生成物iの壊変定数(s^{-1})、Ψは雲水の雨雲からの除去率(s^{-1})である。

池辺[73]によれば、大気中の^{222}Rnの壊変により生成した^{218}Poは大気エアロゾルに付着せず、雲水に付着する。よって、

$$\Lambda N_{Po}^{a} = \lambda_{Rn} N_{Rn}^{a} \tag{4-10}$$

ここで、$\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}$ は、大気中^{222}Rn濃度(Bq m^{-3})であり、②の条件から一定値である。

④の条件に従い、(4-7)～(4-10)式を平衡状態、すなわち、$\frac{dN_{Po}^{w}}{dt}=\frac{dN_{Pb}^{w}}{dt}=\frac{dN_{Bi}^{w}}{dt}=0$ で解く。その結果、雲水中に含まれる^{222}Rn壊変生成物の原子数が得られる。

雲水中に含まれる^{222}Rn壊変生成物の原子数 N_i^w (m^{-3}(大気))は、次式よりn_i^w (cm^{-3}(雨水))に変換できる。

$$\lambda_i n_i^w = \frac{\lambda_i N_i^w}{M} \tag{4-11}$$

ここで、Mは、雨雲の含水量(cm^{-3} m^{-3}(大気))である。

4.4.2 雨雲下雨水中の^{222}Rn壊変生成物の挙動

雨雲から除去された雨水が雲底から地面へ落下する期間において、落下中の雨水に含まれる^{222}Rn壊変生成物の量は、以下の式に従い時間とともに変化する。

$$\frac{dn_{Po}^{r}}{dt} = -\lambda_{Po}n_{Po}^{r} \tag{4-12}$$

$$\frac{dn_{Pb}^{r}}{dt} = \lambda_{Po}n_{Po}^{r} - \lambda_{Pb}n_{Pb}^{r} \tag{4-13}$$

$$\frac{dn_{Bi}^{r}}{dt} = \lambda_{Pb}n_{Pb}^{r} - \lambda_{Bi}n_{Bi}^{r} \tag{4-14}$$

ここで、n_i^r は落下中の雨水に含まれる^{222}Rn壊変生成物iの原子数(m^{-3}(雨水))で、⑤の条件から、平衡状態に達したn_i^w が、n_i^r の初期値となる。

式(4-12)～(4-14)を解くことにより、雨水中に含まれる^{214}Pbと^{214}Biの濃度およびそれらの濃度の比に関する以下の式が得られる。

$$\lambda_{Pb}n_{Pb}^{r} = \frac{\lambda_{Po}\lambda_{Pb}\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}}{(\lambda_{Po}+\psi)(\lambda_{Pb}+\psi)M}e^{-\lambda_{Pb}t} + \frac{\lambda_{Po}\lambda_{Pb}\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}}{(\lambda_{Po}+\psi)(\lambda_{Pb}-\lambda_{Po})M}\left(e^{-\lambda_{Po}t}-e^{-\lambda_{Pb}t}\right) \tag{4-15}$$

$$\lambda_{Bi} n_{Bi}^{r} = \frac{\lambda_{Po}\lambda_{Pb}\lambda_{Bi}\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}}{(\lambda_{Po}+\psi)(\lambda_{Pb}+\psi)(\lambda_{Bi}+\psi)M} e^{-\lambda_{Bi}t}$$
$$+ \frac{\lambda_{Po}\lambda_{Pb}\lambda_{Bi}\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}}{(\lambda_{Po}+\psi)(\lambda_{Pb}+\psi)(\lambda_{Bi}-\lambda_{Pb})M} \left(e^{-\lambda_{Pb}t} - e^{-\lambda_{Bi}t}\right)$$
$$+ \frac{\lambda_{Po}\lambda_{Pb}\lambda_{Bi}\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}}{(\lambda_{Po}+\psi)(\lambda_{Pb}-\lambda_{Po})M} \left\{ \frac{1}{\lambda_{Bi}-\lambda_{Po}} \left(e^{-\lambda_{Po}t} - e^{-\lambda_{Bi}t}\right) - \frac{1}{\lambda_{Bi}-\lambda_{Pb}} \left(e^{-\lambda_{Pb}t} - e^{-\lambda_{Bi}t}\right) \right\}$$

(4-16)

$$\frac{\lambda_{Bi} n_{Bi}^{r}}{\lambda_{Pb} n_{Pb}^{r}} = \left[\frac{\lambda_{Bi}}{(\lambda_{Pb}+\psi)(\lambda_{Bi}+\psi)} e^{-\lambda_{Bi}t} + \frac{\lambda_{Bi}}{(\lambda_{Pb}+\psi)(\lambda_{Bi}-\lambda_{Pb})} \left(e^{-\lambda_{Pb}t} - e^{-\lambda_{Bi}t}\right) + \frac{\lambda_{Bi}}{(\lambda_{Pb}-\lambda_{Po})} \right.$$
$$\left. \left\{ \frac{1}{\lambda_{Bi}-\lambda_{Po}} \left(e^{-\lambda_{Po}t} - e^{-\lambda_{Bi}t}\right) - \frac{1}{\lambda_{Bi}-\lambda_{Pb}} \left(e^{-\lambda_{Pb}t} - e^{-\lambda_{Bi}t}\right) \right\} \right]$$
$$/ \left\{ \frac{1}{(\lambda_{Pb}+\psi)} e^{-\lambda_{Pb}t} + \frac{1}{(\lambda_{Pb}-\lambda_{Po})} \left(e^{-\lambda_{Po}t} - e^{-\lambda_{Pb}t}\right) \right\}$$

(4-17)

4.4.3 パラメータ値の設定

雨水中に含まれる^{214}Pbと^{214}Biの濃度およびそれらの濃度の比に関する式(4-15)～(4-17)の中で未定パラメータは、大気中^{222}Rn濃度($\lambda_{Rn}N_{Rn}^{a}$)、雲水が雨雲から徐去される除去率(Ψ)、雨雲の含水量(M)、並びに雨雲から除去された雨水が雲底から地面まで落下するのに要する時間(t)である。雲水の除去率(Ψ)については、Takedaらにより行われたレーダ観測によれば、雲の種類によらず降雨強度とよい相関があった[74]。雨水の落下時間(t)については、雲底の高度と、雨雲から除去された雨水の落下速度から計算される。雲底高度は、池辺らが標準的な層状性雲の雲底高度として3000mを採用した[62]。雨水の落下速度に関しては、Masonが平均雨滴直径と降雨強度の関係並びに雨滴直径と雨滴最終落下速度の関係を与えた[75]。よって、池辺らが採用した雲底高度とMasonが与えた関係に基づき、雨水の落下時間(t)を降雨強度の関数として設定した。降雨強度が1 mm h^{-1}の時、落下時間は約20分、降雨強度が10 mm h^{-1}の時、落下時間は約10分である。

4.4.4 モデルを用いた観測結果の考察

雨水中に含まれる^{214}Pbと^{214}Biの濃度およびそれらの濃度比の降雨強度依存性の観測結果について、上記のモデルを用いて説明を試みた。濃度の降雨強度依存性に対するモデル計算結果と観測結果の比較をFig.4-7に示す。濃度比の降雨強度依存性に対する比較をFig.4-8に示す。ここで、Fig.4-7では、

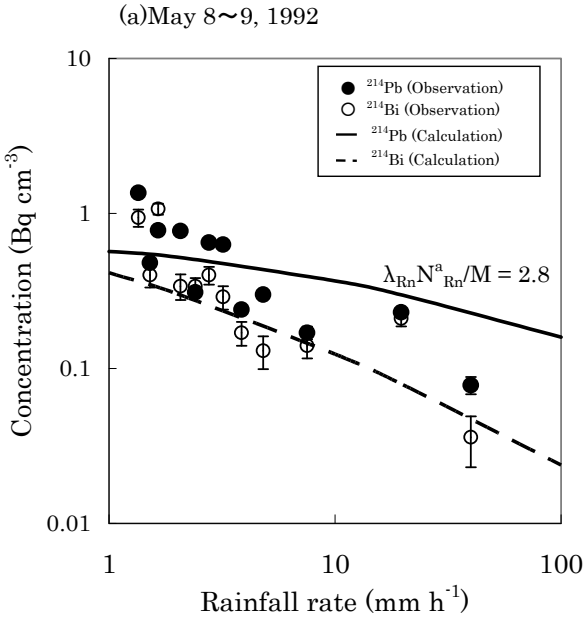


Fig. 4-7(a) Rainfall rate dependency of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi in the rainwater; the value of $\lambda_{Rn}N^{a}_{Rn}/M$ is the concentration of ^{222}Rn in the rain cloud (Bq cm^{-3}(cloud water)) derived from the normalization of the calculated concentration of ^{214}Pb to the observed one

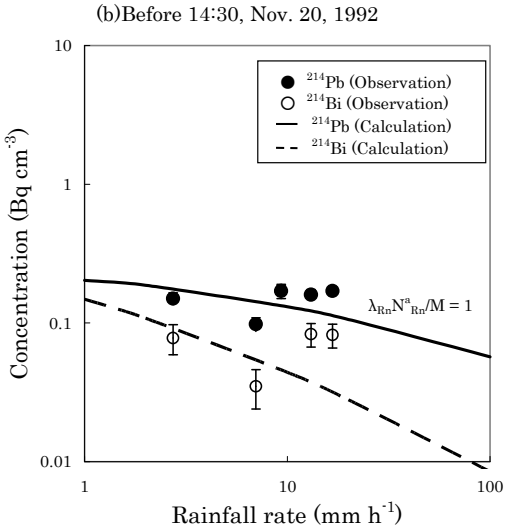


Fig. 4-7(b) Rainfall rate dependency of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi in the rainwater; the value of $\lambda_{Rn}N^{a}_{Rn}/M$ is the concentration of ^{222}Rn in the rain cloud (Bq cm^{-3}(cloud water)) derived from the normalization of the calculated concentration of ^{214}Pb to the observed one

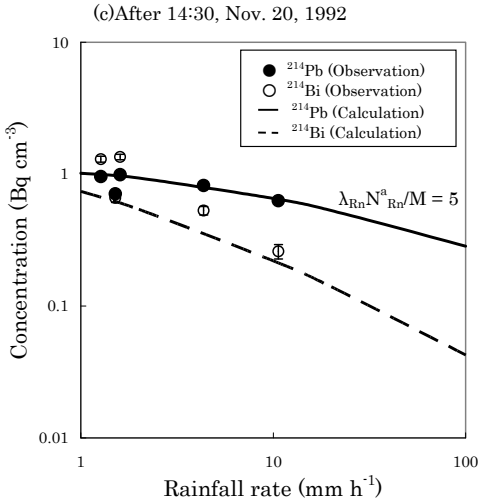


Fig. 4-7(c) Rainfall rate dependency of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi in the rainwater; the value of $\lambda_{Rn}N^{a}_{Rn}/M$ is the concentration of ^{222}Rn in the rain cloud (Bq cm^{-3}(cloud water)) derived from the normalization of the calculated concentration of ^{214}Pb to the observed one

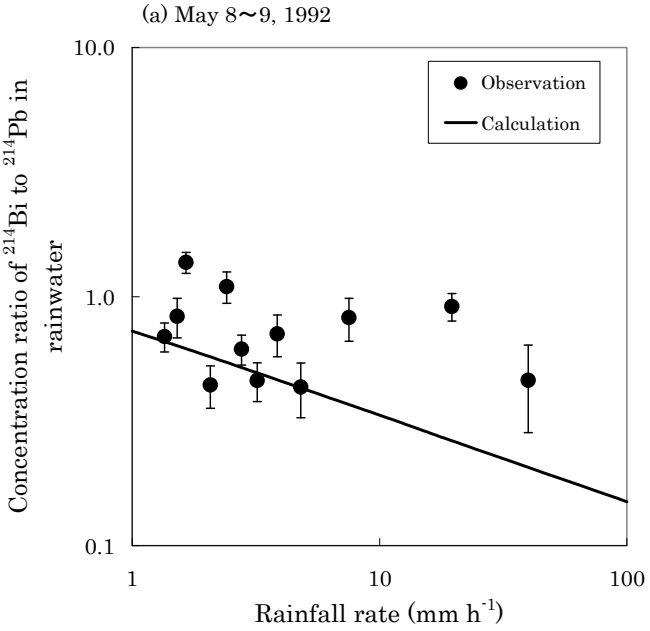


Fig. 4-8 (a) Rainfall rate dependency of the concentration ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb in the rainwater

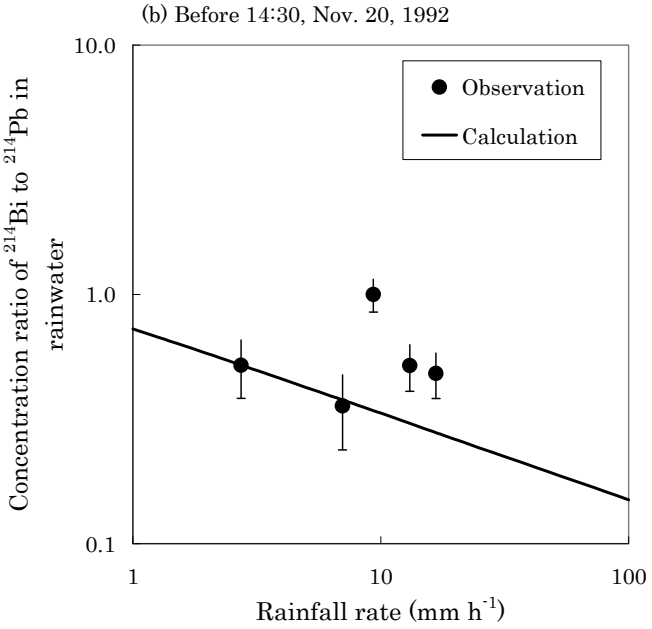


Fig. 4-8 (b) Rainfall rate dependency of the concentration ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb in the rainwater

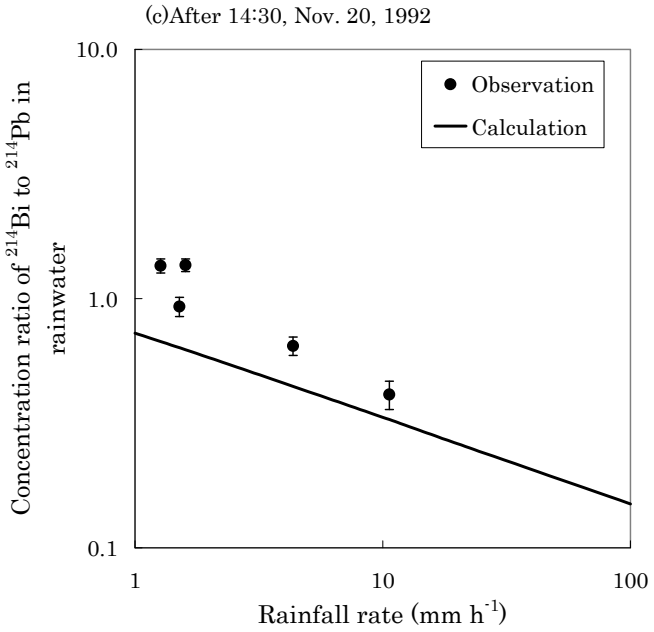


Fig. 4-8 (c) Rainfall rate dependency of the concentration ratio of ^{214}Bi to ^{214}Pb in the rainwater

雨水中^{214}Pb濃度の計算結果と観測結果が合うように、雨雲含水量で除した大気中^{222}Rn濃度を規格化した。Fig.4-7の比較より、^{214}Pb濃度の計算結果を観測結果へ規格化したにもかかわらず、^{214}Bi濃度の計算結果は観測結果とよく一致した。Fig.4-7(b)の計算結果では、濃度と降雨強度の間に弱い負の相関が見られた。一方、観測結果では、濃度と降雨強度の間に相関は見られなかった。これは、上空大気中^{222}Rn濃度等が降雨継続期間内で変化し、濃度と降雨強度の間の関係が変化したため、観測結果で相関が見られなくなったと考えられる。

濃度比の降雨強度依存性についての比較では、Fig.4-8より、計算結果と観測結果ともに、濃度比が降雨強度が強くなるに従い小さくなる傾向を示した。しかし、計算結果の値が観測結果の値より小さくなる傾向が見られた。計算結果の値が小さくなる原因の1つとして、本モデルで設定した雲底高度が実際の高度と違うことが考えられる。本モデルでの雲底高度は、雲水が雨雲中で落下し始める平均的な高度という意味合いである。本モデルでは、層状性雲で平均的な雲底高度である3000mを採用した。しかし、対流性雲の場合は、雲水が雨雲中で落下し始める高度がもっと高いことが予想される。落下高度が高い時、雨水が地表まで落下するのに要する時間が長くなる。その結果、落下期間中での雨水中^{214}Pbの壊変および^{214}Biの生成が多くなり、^{214}Pbに対する^{214}Biの濃度の比は大きくなる。このように、雲水の落下高度が高い対流性雲も考慮しつつモデルを構築することにより、モデルによる計算結果が観測結果とより一致するようになると考えられる。

Fig.4-7 でのモデル計算結果と観測結果との比較において、雨雲含水量で除した大気中 ^{222}Rn 濃度を規格化した。ここで、雨雲含水量を設定すると、大気中 ^{222}Rn 濃度が計算される。雨雲含水量を 0.2 (cm^3 m^{-3}(大気))と仮定した [76]。その結果、本研究で考察した各降雨事象での大気中 ^{222}Rn 濃度は 0.2～3 Bq m^{-3} と計算された。ラドン濃度は夏に低く、冬に高いという季節変動を示した。Iida らは、春先に日本中部地方で航空機を用いて上空数 km 高さで大気中 ^{222}Rn 濃度を測定した結果、1 Bq m-3 程度の結果を得た [77]。本研究で計算された濃度と整合した。季節変動については、日本において地表近くで測定した大気中 ^{222}Rn 濃度の季節変動と一致した [68]。以上の結果から、本研究で構築したモデルが妥当であることが裏付けられる。

4.5 結言

雨水中に含まれた ^{222}Rn 壊変生成物の個々の濃度およびそれらの濃度比を、低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリにより測定した。測定結果を説明するために、降雨による壊変生成物洗浄モデルを提案した。結果は以下の通りである。

① ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は、0.1 Bq cm^{-3}～数 Bq cm^{-3} まで分布し、冬季から早春の期間に高い濃度が観測された。^{214}Pb に対する ^{214}Bi の濃度比は、0.1～2の範囲に分布し、濃度比の季節変化は明らかでなかった。

② 1回の降雨事象において、降雨強度が時間とともに変化するように、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度および濃度比

も時間とともに変化した。1回の降雨事象の途中で前線が通過した際に、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は、大きく変化した。

③ いくつかの降雨事象において、濃度は降雨強度と負の相関があった。他の降雨事象においては、濃度と降雨強度の相関は明らかでなく、降雨強度に関わらず濃度がほぼ一定であった。濃度の降雨強度依存性の変化は前線の通過後に起こった。一方、濃度比の降雨強度依存性は、測定した降雨事象の大部分に対して降雨強度と弱い相関を示した。

④ 雨水中に含まれた ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度および濃度比の降雨強度依存性の観測結果を説明するために、 降雨による洗浄モデルを構築した。構築したモデルによる計算結果は、観測結果とよく一致した。雨水中に含まれる ^{214}Pb の濃度の降雨強度依存性の計算結果と観測結果の比較から、大気中 ^{222}Rn 濃度を計算した結果、日本上空で測定された濃度とほぼ同じであった。

5. 降雨時に ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化

5.1 緒言

核燃料サイクル施設周辺では、環境放射線モニタリングの一環として環境ガンマ線線量率が連続測定されている。測定で用いられる測定器は、施設からの放射性核種による放射線を検知するのみでなく、自然界に存在する放射性核種による放射線も検知する。よって、自然界に存在する放射性核種による放射線の変動を把握することが重要である。環境モニタリングで測定されるガンマ線線量率に寄与する天然の放射性核種としては、地中に存在する ^{40}K、ウラン(^{238}U)およびその壊変生成物、トリウム(^{232}Th)およびその壊変生成物、並びに大気中に存在する ^{222}Rn の壊変生成物である。環境モニタリングにおけるガンマ線線量率の変動要因は、第1章で論じたように、種々の要因がある。これらの要因のうち、積雪の少ない地域では、環境ガンマ線線量率を変動させる一番の要因は降雨である [53]。よって、環境放射線モニタリングで実施される環境ガンマ線線量率の観測の結果をより正確に評価するためには、降雨時のガンマ線線量率の変動の解析が重要である。

本章は、降雨時に観測される環境ガンマ線線量率の変動を定量化することを目的とする。降雨時には、大気中の ^{222}Rn 壊変生成物が降雨により地表へ降下し、ガンマ線線量率を変動させる。降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表降下による環境ガンマ線線量率の変動については、第4章で構築した降雨による ^{222}Rn 壊変生成物洗浄モデルを用いて定量化することを試みた。降雨時の環境ガンマ線線量率の変動を引き起こす可能性があるその他の要因についても考察した。降雨時に再処理施設から ^{85}Kr が放出された場合、降雨によるガンマ線線量率の変動に ^{85}Kr 放出による変動が上乗せされることが観測される。そのような場合に、^{85}Kr 放出に伴う線量率変動を降雨による変動から弁別することを試みた。

5.2 これまでの研究事例

降雨による環境ガンマ線線量率の変動については、これまで多くの研究が行われてきた。湊は、1977年～1980 年の期間において、環境ガンマ線線量率と降雨強度を同時観測し、ガンマ線線量率の変動と降雨強度の関係について考察した [63), 78)]。その結果、単位降雨あたりの線量上昇は、冬高く夏低いという季節変動を示した。片瀬らは、九州大学構内で、1978 年に Ge(Li)検出器を用いて降雨時に地表面 1m の高さでの環境ガンマ線強度の変動を測定した [79-80)]。その結果、降雨時は、^{40}K からの 1461 keV のガンマ線強度は変化しないのに対し、^{222}Rn 壊変生成物である ^{214}Pb と ^{214}Bi のガンマ線の強度は大きく変動した。片瀬らは、大気中 ^{222}Rn 壊変生成物のレインアウト・ウォッシュアウトモデルを構築し、降雨時のガンマ線強度の変動を説明することを試みた [80)]。池辺らは、名古屋大学構内で 1982 年から 1983 年にかけて雨水中の放射能と環境ガンマ線線量率の測定を行った [81)]。その結果、雨水中の ^{214}Pb と ^{214}Bi の合計濃度は降雨強度と逆相関があった。雨水中の ^{222}Rn 壊変生成物濃度と環境ガンマ線線量率の関係も調査した。西川らは、1982 年から 1984 年にかけて福井大学構内で降雨および降雪に含まれた ^{222}Rn 壊

変生成物濃度を測定した [56]。降雨により地表へ降下したラドン壊変生成物が環境ガンマ線強度に与える影響についても検討を行った [82]。その結果、地表へ沈着した ^{222}Rn 壊変生成物の量と環境ガンマ線計数率にはよい相関が見られた。

降雨時に環境ガンマ線線量率を変動させる要因としては、降雨による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着以外にも以下の要因がある。

(1) 降雨の洗浄作用による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の減少
(2) 土壌含水比の増加に伴う大地ガンマ線の遮蔽
(3) 積雪による大地ガンマ線の遮蔽
(4) 降雨による宇宙線中性子の吸収と宇宙線誘導放射性核種の地表沈着
(5) 降雨の洗浄作用による大気圏内核実験フォールアウトの地表沈着

各要因については、付録 2 に詳細に記述する。以上の要因を考慮すると、積雪がない場合、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着以外の要因による環境ガンマ線線量率の変動は最大でも 4 nGy h^{-1} 程度であり、^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着による変動と比較して小さいことが推測される。

降雨による環境ガンマ線線量率の変動の弁別については、いくつかの研究が行われている。早川らは、原子力発電所周辺の環境ガンマ線線量率を測定するために設置されている NaI(Tl)シンチレーション検出器に対して、^{214}Bi のガンマ線のエネルギーを測定するためのシングルチャンネルアナライザー(SCA)を設置した [83]。そして、^{214}Bi のガンマ線エネルギーに対する SCA の計数率と NaI(Tl)シンチレーション検出器で測定されたガンマ線線量率の関係を調べた。その結果、両者にはよい相関関係が見られた。山西らは、隣接した複数のモニタリングステーションで同時に観測される環境ガンマ線線量率の変動データをもとに、降雨時のガンマ線線量率の変動パターンの解析から、降雨時の線量率の変動が自然放射能によるものであることを特定する手法を提唱した [84]。

5.3 大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の降雨による地表沈着に伴う環境ガンマ線線量率の変動の解析

本章では、第4章で構築した大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の降雨洗浄モデルを用いて、降雨に伴う環境ガンマ線線量率の変動を計算した。この降雨洗浄モデルを用いると、大気中 ^{222}Rn 濃度、雨雲の含水量および降雨強度から、(4-15)式と(4-16)式により雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物濃度が計算される。ここで、大気中 ^{222}Rn 濃度と雨雲含水量は降雨事象毎に、1回の降雨事象においてその途中で前線が通過し、気団が変化した場合にはその前後において一定値と仮定する。降雨強度については、0.5 mm 転倒ます型雨量計と感雨計を用いて積算降雨量と降雨時間を連続測定することにより求めた。すなわち、連続した3つのデータ時刻 t-10, t, t+10 (min) における積算降雨量(y)から、積算降雨量の時間変化を2次関数 $y=at^2+bt+c$ (a,b,c:定数)で表現した。そして、時刻 t (min)における傾き $y'=2at+b$ の値を求めた。この傾きの値を時刻 t-5～t+5 (min)における降雨強度とした。以上の手順を降雨の降り始めから降り終わりまでの時刻に対して行うことにより、降雨継続時間帯の全期間における降雨強度を求めた。

時刻 t_j-5～t_j+5 (min)の間に降った降雨による ^{222}Rn 壊変生成物 i (i=^{214}Pb, ^{214}Bi)の地表降下量 D_{ji} (atom cm^{-2}s^{-1}))は、雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物濃度に降雨強度を乗じることにより求められ、(5-1)式で表される。ただし、j は1回の降雨事象の降雨継続時間に対応した数値であり、t_1 は降雨開始時間に対応する。例えば、降雨継続時間が 60 分なら、j=1～6 となる。

$$D_{ji} = \frac{2.8\times10^{-5} A_{ji} P_j}{\lambda_i} \tag{5-1}$$

ここで、A_{ji} は時刻 t_j-5～t_j+5 (min)に降った雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物 i の濃度(Bq cm^{-3})、P_j は降雨強度(mm h^{-1})、λ_i は ^{222}Rn 壊変生成物 i の壊変定数(s^{-1})である。ここで、(5-1)式中の係数は、単位換算のための係数である。

地表へ降下した ^{222}Rn 壊変生成物は、地表面で表面流出等により損失しないと仮定する。そうした場合、時刻 t_j-5～t_j+5 (min)の間に降った降雨による地表面上の ^{222}Rn 壊変生成物 i の存在量(N_{ji} ; atom cm^{-2})は以下の式に基づき時間変化していく。

(1) t_j-5< t < t_j+5 に対して

$$\frac{dN_{jPb}}{dt} = D_{jPb} - \lambda_{Pb} N_{jPb} \tag{5-2}$$

$$\frac{dN_{jBi}}{dt} = D_{jBi} + \lambda_{Pb} N_{Pbj} - \lambda_{Bi} N_{Bij} \tag{5-3}$$

(2) t_j+5 < t に対して

$$\frac{dN_{jPb}}{dt} = -\lambda_{Pb} N_{jPb} \tag{5-4}$$

$$\frac{dN_{jBi}}{dt} = \lambda_{Pb} N_{Pbj} - \lambda_{Bi} N_{Bij} \tag{5-5}$$

時刻 t_j+5 (min)までに降った降雨により地表へ降下した ^{222}Rn 壊変生成物 i に起因する時刻 t (t_j+5<t) (min)での地表単位面積当たりの存在量(S_{ji} ; atom cm^{-2})は次式で与えられる。

$$S_{ji} = \sum_{k=1}^{j} N_{ki} \tag{5-6}$$

地表面上での ^{214}Pb と ^{214}Bi の地表単位面積当たりの存在量から環境ガンマ線線量率への換算は、Minato が 計算した換算係数を用いた [66]。Minato は、^{214}Pb と ^{214}Bi が地表面上で無限平面線源を形成すると仮定して地上 1m の高さにおける環境ガンマ線線量率の変動をモンテカルロ計算することにより換算係数を導出した。

5.4 降雨時の環境ガンマ線線量率変動の観測

旧核燃料サイクル開発機構東海事業所敷地内の平坦地に、DBM エネルギー補償型 2" φ ×2" NaI(Tl) シンチレーション検出器が設置されている。この検出器を用いて、環境ガンマ線線量率を連続測定し、2003 年 12 月 26 日～27 日、2003 年 11 月 20 日の降雨時の環境ガンマ線線量率の変動を観測した。なお、測定器の校正は、^{137}Cs 標準線源を用いて行った。

5.5 計算結果と観測結果の比較

Fig. 5-1(a), (b) に、降雨時の環境ガンマ線量率の計算結果と観測結果を比較する。計算結果は、5.3 節で示した方法により雨水中に含まれる ^{222}Rn 壊変生成物濃度から環境ガンマ線線量率の変動を計算した結果である。ここで、降雨開始時および降雨終了時に観測された線量率のレベルを直線で結び、それを降雨がない場合の通常の線量率レベルと見なし、計算された線量率変動を加算した。なお、計算結果と観測結果との比較においては、計算された線量率変動の積算値が、観測された線量率変動の積算値に合うように、(大気中 ^{222}Rn 濃度)/(雨雲中水分量)を規格化した。図中には、(大気中 ^{222}Rn 濃度)/(雨雲中水分量)の値を示した。2003 年 12 月 26 日～27 日の降雨に対して 30 Bq cm^{-3}、2003 年 11 月 20 日の降雨に対して 7 Bq cm^{-3} であった。第4章と同様に、雨雲中水分量を 0.2 (cm^3 m^{-3}(大気))と仮定すると、上空大気中 ^{222}Rn 濃度は、それぞれ 6 Bq m^{-3}、3.5 Bq m^{-3} と見積もられた。2003 年 12 月 26 日～27 日の線量率上昇は最大 100 nGy h^{-1} ほどで、茨城県東海地区で過去最大の上昇であった [85]。このように大きな線量率上昇があった時、上空大気中 ^{222}Rn 濃度は高かったと考えられる。線量率が大きく上昇した降雨イベント時には、気圧配置が西高東低の冬型の気圧配置で、大陸起源の ^{222}Rn が大量に流れ込み、大気中 ^{222}Rn 濃度が高くなったと考えられる。一方、2003 年 11 月 20 日の降雨イベント時は、海洋性の気団の影響により大気中のラドン濃度が低かったと考えられる。

Fig. 5-1(a), (b) での比較では、計算および観測された線量率の変動の傾向はよい一致を示した。Fig. 5-2(a), (b) には、Fig. 5-1(a), (b)で比較した降雨に対して計算および観測された線量率の差をそれぞれ示す。Fig. 5-2(a), (b) より、計算と観測された線量率の差は、それぞれ 10 nGy h^{-1} 以内、4 nGy h^{-1} 以内であった。Fig. 5-1(a), (b)で比較した降雨に対して観測された環境ガンマ線線量率の変動幅は、60 nGy

h^{-1}、10 nGy h^{-1} であった。これらのことから、Fig. 5-1(a), (b)で比較した降雨に対して計算および観測された線量率の差は、それぞれ、降雨時に観測された線量率の変動幅の 20%, 40% 以内であった。これらの結果より、計算による線量率は、降雨時に観測された線量率変動と±30%程度で一致すると考えられる。

Ikebe らは、降雨強度が 5 mm h^{-1} 以上の時、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表降下量から計算された環境ガンマ線線量率の変動幅が、降雨時に観測されたガンマ線線量率の変動幅より大きくなったと報告した [81]。これは、降雨強度が強いときに地表面へ降下した雨水が地表面上を表面流出することに伴い、地表面へ降下した ^{222}Rn 壊変生成物も表面流出し損失が生じたためであるとしている。さらに、流出水中の放射能濃度が降雨中濃度の約 1/2 程度認められたとしている。これらのことから、降雨強度が弱いときには無限平面線源の仮定は成立していること、降雨強度が強いときには雨水の流出効果を考慮に入れるべきであると結論づけた。本研究では、降雨により地表面へ降下した ^{222}Rn 壊変生成物が無限平面線源を形成すると仮定して計算した結果と降雨時の線量率観測結果の値は、降雨強度が強い時、計算値が観測値より過大評価となった。これは、地表面へ降下した ^{222}Rn 壊変生成物の表面流出の影響が考えられる。地表面上での表面流出がないと仮定してモデル計算された線量率の積算値を観測された線量率積算値へ規格化した。観測では強降雨時に表面流出により線量率上昇が抑えられたのに対し、

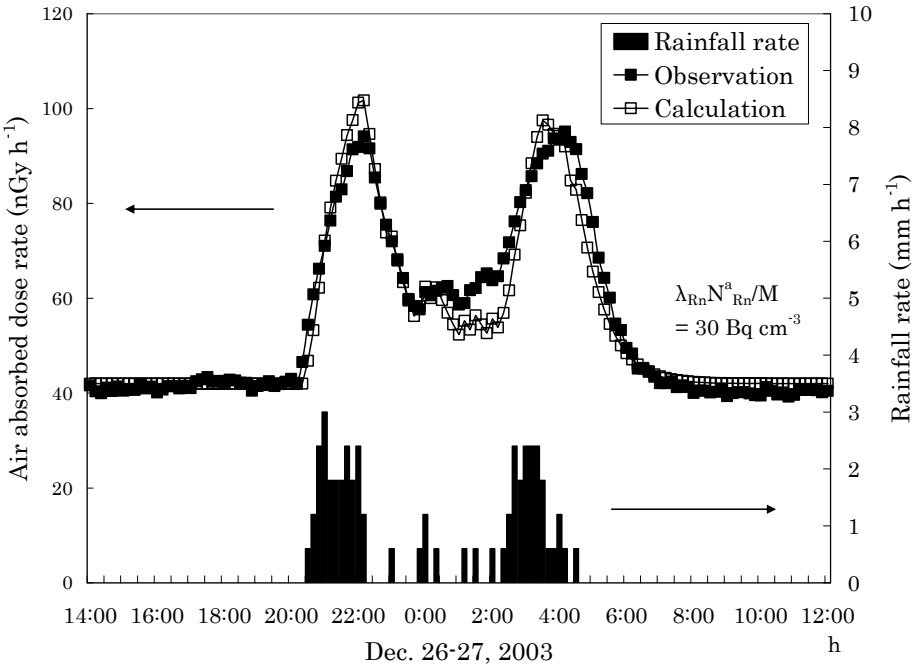


Fig.5-1(a) Comparison between the calculated and observed variations in the dose rate during the rainfall event of Dec. 26-27, 2003

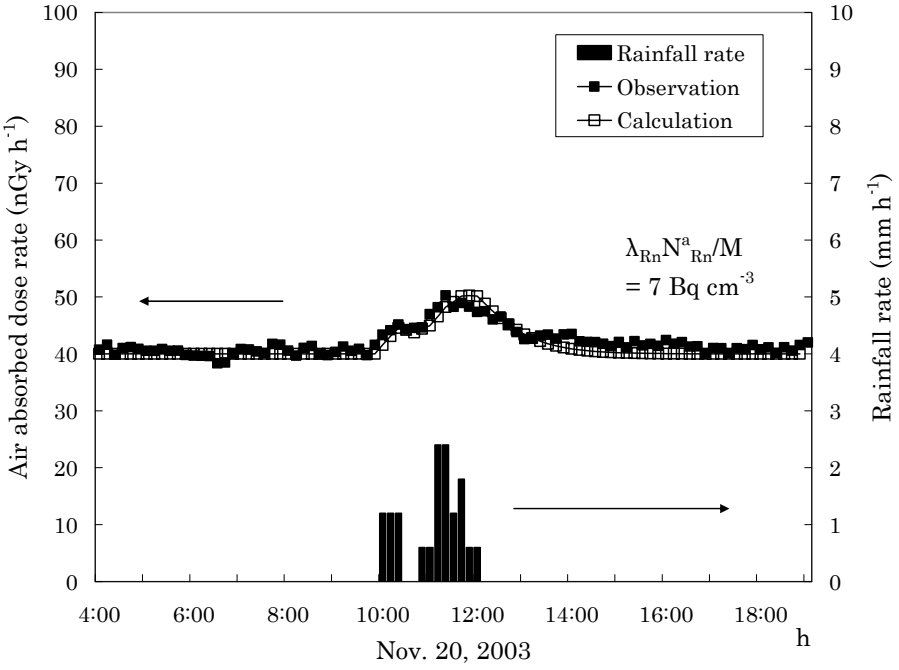


Fig.5-1(b) Comparison between the calculated and observed variations in the dose rate during the rainfall event of Nov. 20, 2003

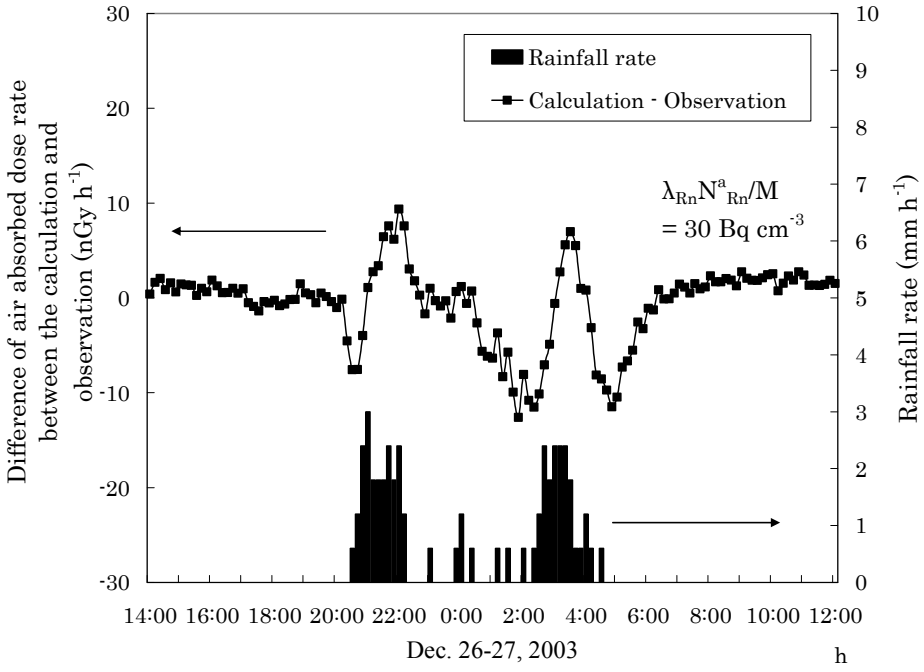


Fig.5-2(a) Difference between the calculated and observed dose rates during rainfall event of Dec. 26-27, 2003

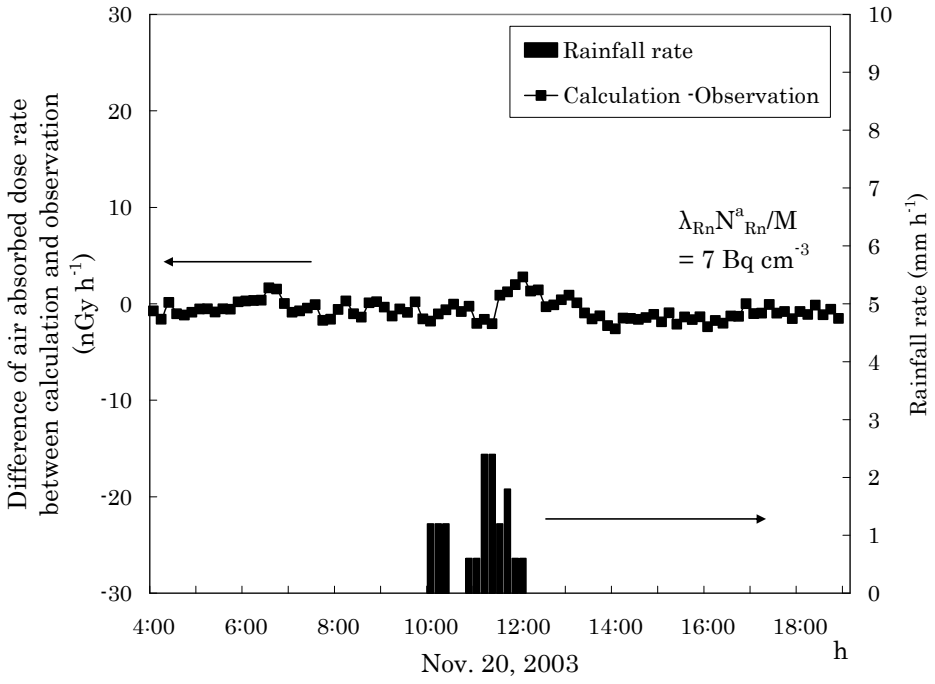


Fig.5-2(b) Difference between the calculated and observed dose rates during rainfall event of Nov. 20, 2003

表面流出がないと仮定して計算値を規格化したため、強降雨時は計算値が観測値より小さくなった。一方、表面流出のない線量率変動の立ち上がり部分では計算値が観測値より過小評価となったと考えられる。

5.6 降雨時に観測された再処理施設からの ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率変動の弁別

5.5 節での比較により、降雨時に観測される環境ガンマ線線量率の変動は主に降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着による。よって、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着による環境ガンマ線線量率を計算することにより、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動を定量化することができる。本節では、これらの結果に基づき、降雨時に再処理施設から ^{85}Kr が放出された時に、^{85}Kr 放出に伴う線量率変動を降雨時変動から弁別することを試みた。Fig. 5-3 に、降雨時に再処理施設から ^{85}Kr が放出された時に環境ガンマ線線量率が変動する時の線源の位置関係を示す。

Fig. 5-4 に、核燃料サイクル工学研究所に設置された東海再処理施設において、降雨時に ^{85}Kr が放出された時に観測された施設周辺での環境ガンマ線線量率の変動を示す。ガンマ線線量率の観測地点は、施設の排気筒から南西方向約 500 m にあるモニタリングステーションである。観測

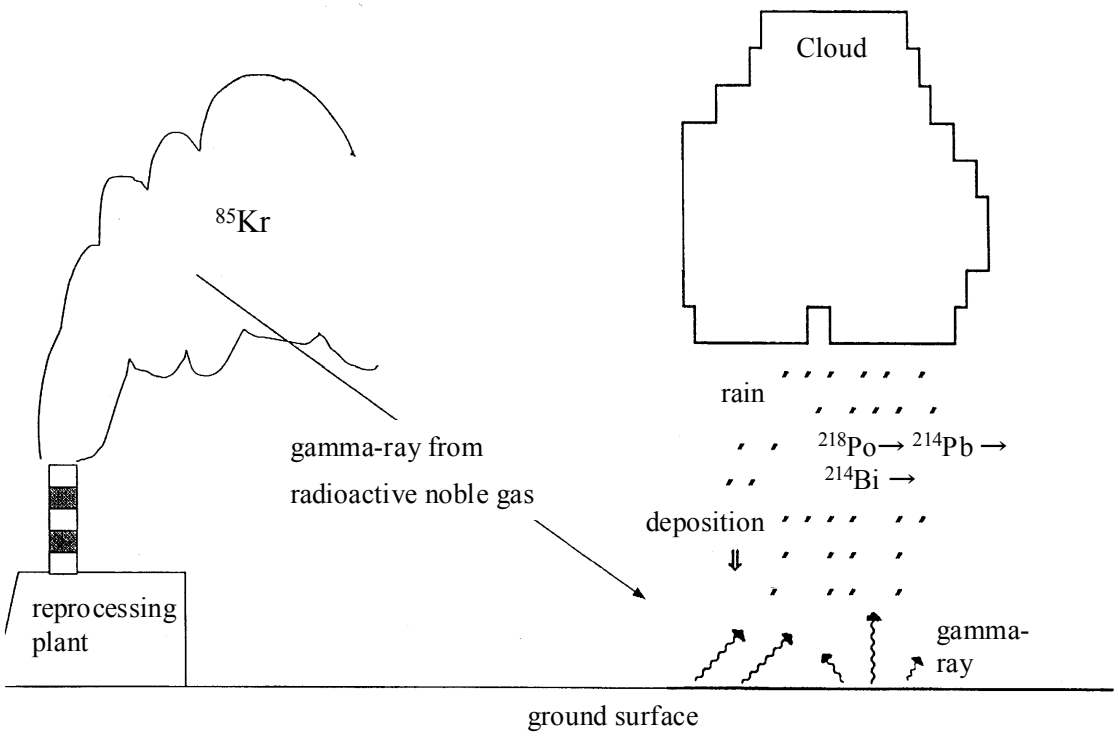


Fig.5-3 Schematic diagram of the contribution to the dose rate of the discharge of ^{85}Kr from a reprocessing plant and the ground deposition of the ^{222} Rn decay products

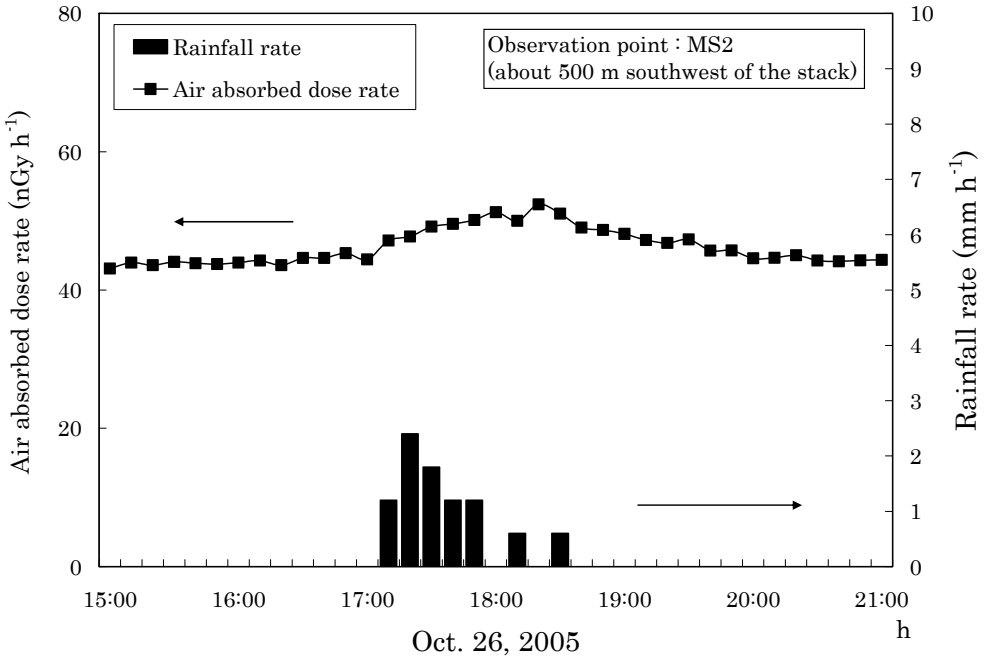


Fig. 5-4 Variation in the dose rate due to the discharge of ^{85}Kr from the Tokai Reprocessing Plant under a rainy condition on Oct. 26, 2005

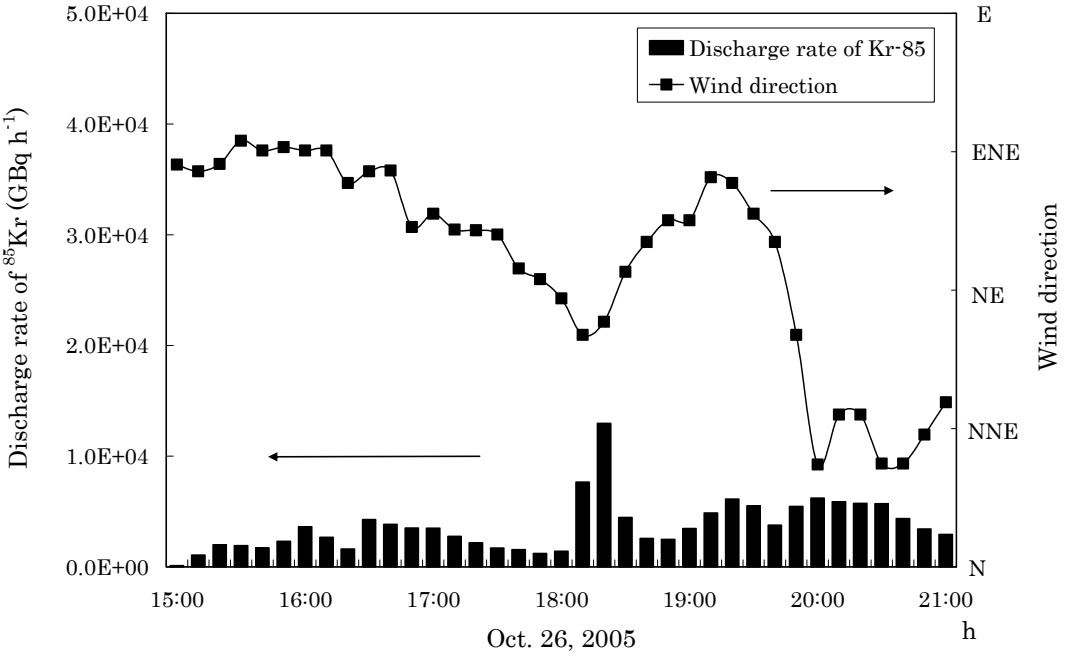


Fig.5-5 Variations of the discharge rate of ^{85}Kr from the stack and wind direction at the height of the stack on Oct. 26, 2005

日は、2005 年 10 月 26 日である。Fig.5-4 より、17 時 00 分～20 時頃にかけて降雨に伴う環境ガンマ線線量率の変動が観測された。施設からの ^{85}Kr 放出率の変化および排気筒高さでの風向の時間変化を Fig. 5-5 に示す。Fig. 5-5 より、18 時 20 分頃、排気筒から約 1.5×10^{4} GBq h^{-1} 程度の ^{85}Kr が放出されたことが分かる。この時、北東の風が吹いており、Fig. 5-4 に示したガンマ線線量率を観測したモニタリングステーションは風下方位にあった。よって、^{85}Kr 放出に伴い、ガンマ線線量率変動が観測されたことが推定される。

降雨によるガンマ線線量率の変動の計算は、5.3 節と同様の手順に従って行った。降雨時の(大気中 ^{222}Rn 濃度)/(雨雲中水分量)を単位量(1 Bq cm^{-3})と仮定し、雨水中の ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度を降雨強度から求めた。雨水中の ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度に、降雨強度を乗じることにより、降雨による ^{214}Pb と ^{214}Bi の地表降下量を計算した。さらに、地表面での ^{214}Pb と ^{214}Bi の減衰と生成を考慮しつつ、これらの核種が半無限平面線源を形成すると仮定してガンマ線線量率を計算した。計算されたガンマ線線量率変動の積算値が、降雨時に観測されたガンマ線線量率変動の積算値に合うように、(大気中 ^{222}Rn 濃度)/(雨雲中水分量)を規格化した。この方法は、^{85}Kr が放出され線量率が変動した場合には、^{85}Kr 放出寄与分も含めて降雨による線量率変動と見積もられてしまうため、^{85}Kr 放出に伴う線量率を過小評価してしまう可能性がある。しかし、降雨による線量率変動の積算値のほうが ^{85}Kr 放出による線量率変動の積算値より一般に大きいので、過小評価の度合いは小さいと推察される。Fig. 5-6 に、計算されたガンマ線線量率と、

降雨時に観測されたガンマ線線量率を比較した。ここで、計算されたガンマ線線量率は、降雨がない時に観測されたガンマ線線量率の平常値に計算値を加算している。(大気中 ^{222}Rn 濃度)/(雨雲中水分量)の値は、6 Bq cm^{-3} と見積もられた。Fig. 5-6 より、計算および観測されたガンマ線線量率の変動の傾向はよく一致したことが分かる。Fig. 5-6 より、18 時 20 分において、観測された線量率が計算された線量率より大きくなった。Fig. 5-7 に、計算および観測されたガンマ線線量率の差を示した。Fig. 5-7 より、18 時 20 分に観測されたガンマ線線量率は、計算されたガンマ線線量率より 2.8 nGy h^{-1} ほど大きくなったことが分かる。Fig. 5-7 でのガンマ線線量率の観測値と計算値との差と、Fig. 5-5 での ^{85}Kr 放出率の変動を比較すると、18 時 20 分にガンマ線線量率の差のピーク並びに ^{85}Kr 放出率のピークが現れた。これらのことから、^{85}Kr 放出に起因するガンマ線線量率の変動が、計算および観測されたガンマ線線量率の変動の差をとることにより弁別されたことがわかる。Fig. 5-7 より、^{85}Kr 放出に起因するガンマ線線量率の変動として弁別された 18 時 20 分の線量率は、2.8 nGy h^{-1} であった。

一方、排気筒モニタデータと局地気象観測データをもとに SIERRA-II を用いて計算された ^{85}Kr 放出に起因する 18 時 20 分のガンマ線線量率は、Fig. 5-8 に示すように、1.8 nGy h^{-1} であった。これらの結果より、弁別された ^{85}Kr 放出に起因するガンマ線線量率と、SIERRA-II により計算されたガンマ線線量率は比較的よく一致した。

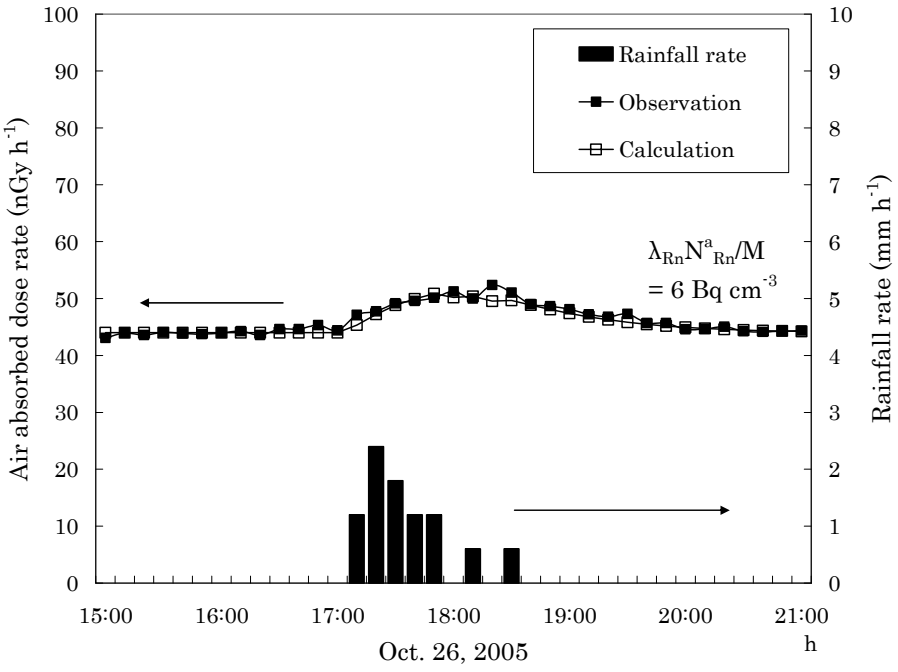


Fig.5-6 Comparison of the dose rate between calculated by the ground deposition amount the ^{222}Rn decay products and observed during rainfall event on Oct. 26, 2005

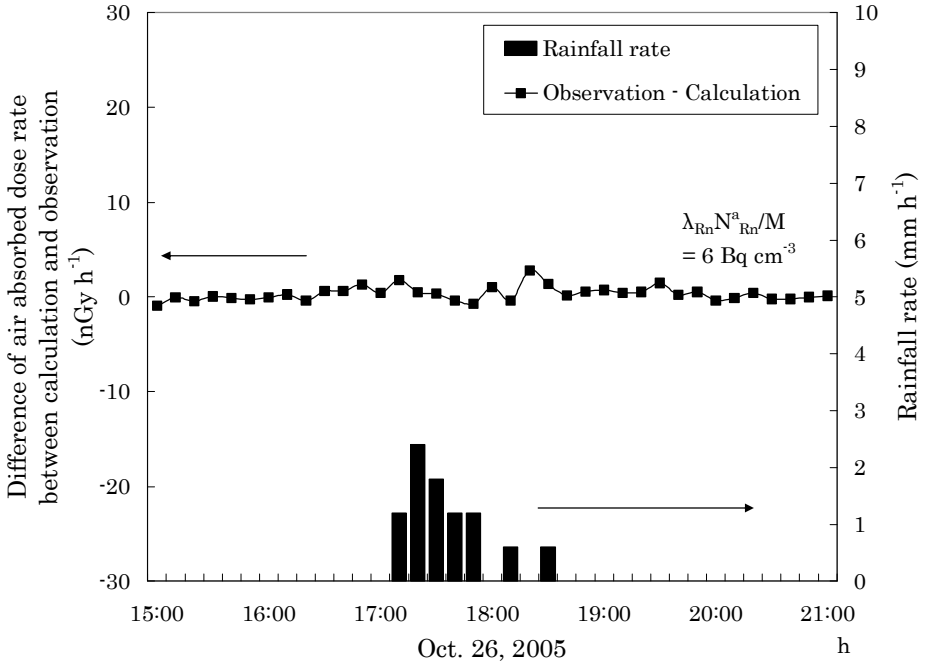


Fig.5-7 Difference between calculated dose rate due to the ground deposition of the ^{222}Rn decay products and the variation of the dose rate observed during rainfall event on Oct. 26, 2005

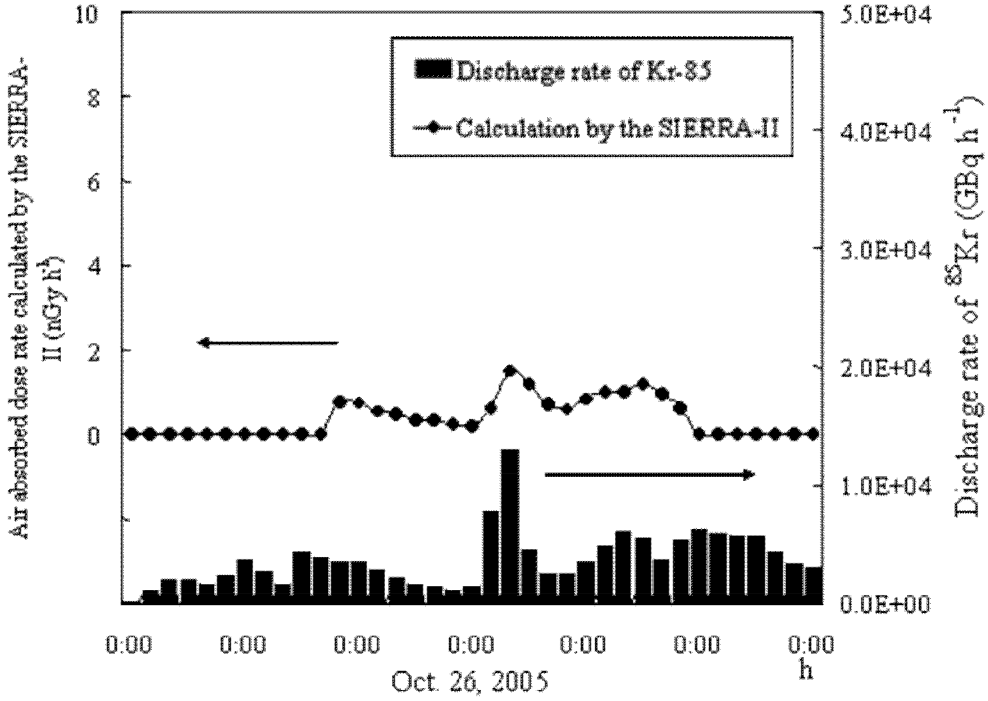


Fig. 5-8 Air absorbed dose rate calculated by the SIERRA-II on Oct. 26, 2005

5.7 結言

核燃料サイクル施設運転時の ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動を除くと、ガンマ線線量率を変動させる主要な要因は、降雨である。本章では、降雨による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着による環境ガンマ線線量率の変動を計算した。計算された変動と、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動を比較した。さらに、降雨時に再処理施設から ^{85}Kr が放出された場合において、^{85}Kr 放出に伴うガンマ線線量率変動を降雨時のガンマ線線量率の変動から弁別することを試みた。結果は、以下の通りである。

(1)大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の降雨地表沈着モデルから計算された環境ガンマ線線量率は、降雨時に観測された環境ガンマ線線量率の変動の傾向と一致した。降雨強度が強い場合は、計算値が高めになった。雨の降り始めは、計算値が低めになった。計算値と観測値の差は、平均して±30%程度であった。

(2)降雨時の環境ガンマ線線量率の変動の観測結果から降雨によるガンマ線線量率の変動の計算結果を差し引くことにより求められたガンマ線線量率の変動は、施設からの ^{85}Kr 放出率の変動と比較的よく一致した。計算および観測されたガンマ線線量率の差と、排気筒モニタデータと局地気象観測データをもとに SIERRA-II により計算された線量率の値は比較的よく一致した。これらのことから、^{85}Kr 放出に起因するガンマ線線量率の変動の弁別が示唆される。

6. 結論

本論文は、核燃料サイクル施設からの放射能放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動の定量化を目的として、①再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化のための計算コード・システム(SIERRA-II)の開発、②SIERRA-II を用いた再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化へ向けた検討、③降雨により地表へ降下した雨水中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定と大気中 ^{222}Rn 壊変生成物降雨洗浄モデルの構築、④降雨時に ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化を行ったものである。本研究により、開発した SIERRA-II を用いて再処理施設運転時の環境ガンマ線線量率の変動を実用的な精度で定量化できることがわかった。

得られた成果を要約すると以下の通りとなる。

6.1 結論

(1) 再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化のための計算コード・システム(SIERRA-II)の開発

質量保存風速場モデルと粒子拡散モデルに基づき、施設から放出された放射性物質の3次元大気拡散を準実時間で計算できる計算コード・システム(放出放射性物質による緊急時線量シミュレーションシステム;SIERRA-II)を開発した。SIERRA-II は、計算の空間的分解能を上げるためにネステッド格子モデルを採用することにより、準実時間で計算するために計算機への負荷を下げた。インプットデータは、施設周辺で観測された局地気象のオンラインデータ、並びに排気筒モニタのオンラインデータである。これらのデータは、10 分間隔のデータである。これらのデータは、テレメータシステムにより収集される。SIERRA-II とテレメータシステムをオンラインで連結することにより、10 分間隔の準実時間で入力データを SIERRA-II が取得できるようにした。これらの入力データをもとに、風速場のベクトル図、大気中濃度、空気吸収線量率の等値線図等を 10 分間隔で出力できるように、計算コードをシステム化した。SIERRA-II は、Windows OS 搭載のパーソナルコンピュータ(PC)上で GUI により簡便に操作できるにした。

東海再処理施設運転時に施設周辺で観測された環境放射線モニタリングデータを用いて SIERRA-II の沿岸地域での性能評価を行った。東海再処理施設排気筒から数 km の領域で ^{85}Kr の大気中濃度の計算結果と観測結果を比較した。その結果、計算濃度は、風下 4 km までの範囲で観測濃度より高かった。風下水平方向への濃度の拡がりについての計算結果は、観測結果のそれより大きかった。計算濃度と観測濃度の一致度は、ファクタ5で 57%、ファクタ2で 29%であった。MFB(Mean Fraction Bias)は-0.6 で、少し過大評価であった。大気温度の鉛直プロファイルの観測結果に基づき、内部境界層を SIERRA-II でモデル化した。計算結果と観測結果を比較したところ、内部境界層の上の大気層の安定性を E およびFと設定した場合、MFB は、それぞれ-0.1、0.5 であり、内部境界層を考慮しない時より一致度が向上した。

(2) SIERRA-II を用いた再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の定量化へ向けた検討

再処理工場からの ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動を観測した。^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動を、第2章で開発した SIERRA-II を用いて定量化することを試みた。その結果、^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の変動は、排気筒の風下方位のモニタリングステーションおよびモニタリングポストで観測された。環境ガンマ線線量率の変動期間は ^{85}Kr の放出継続期間と対応していた。これらのことから、^{85}Kr の放出率と風向の情報に基づき、環境ガンマ線線量率の変動が ^{85}Kr の放出によるものであることが特定できた。

SIERRA-II により計算された環境ガンマ線線量率の変動パターンは、施設周辺のモニタリングステーションおよびモニタリングポストで観測された環境ガンマ線線量率の変動パターンとよい一致を示した。2003年9月～11 月の東海再処理施設連続運転時について、SIERRA-II により環境ガンマ線線量率の変動幅と、観測された環境ガンマ線線量率の変動幅を比較した。それらの一致度は、ファクタ2で 42%、ファクタ5で74%であった。MFB は 0.41 であり、SIERRA-II による計算結果は過小評価ぎみであった。東海再処理施設周辺では北東系の風が定常的に吹くことが多い。北東系の風向変化の少ない時、SIERRA-II での計算結果と観測結果との一致度が大きく、海陸風循環時の風向変化が大きい時は観測結果との一致度が小さかった。

(3) 降雨により地表へ降下した雨水中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の測定と大気中 ^{222}Rn 壊変生成物降雨洗浄モデルの構築

雨水中に含まれた ^{222}Rn 壊変生成物の個々の濃度およびそれらの濃度比を、低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した。その結果、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は、0.1 Bq cm^{-3}～数 Bq cm^{-3} まで分布し、冬季から早春の期間に高い濃度が観測された。^{214}Pb に対する ^{214}Bi の濃度比は、0.1～2の範囲に分布し、濃度比の季節変化は明らかでなかった。1回の降雨事象において、降雨強度が時間とともに変化するように、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度および濃度比も時間とともに変化した。1回の降雨事象の途中で前線が通過した際に、^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度は、大きく変化した。いくつかの降雨事象において、濃度は降雨強度と負の相関があった。他の降雨事象においては、濃度と降雨強度の相関は明らかでなく、降雨強度に関わらず濃度がほぼ一定であった。濃度の降雨強度依存性の変化は前線の通過後に起こった。一方、濃度比の降雨強度依存性は、測定した降雨事象の大部分に対して降雨強度と弱い相関を示した。

雨水中に含まれた ^{214}Pb と ^{214}Bi の濃度および濃度比の降雨強度依存性の観測結果を説明するために、降雨による洗浄モデルを構築した。構築したモデルにより、観測結果をよく説明できた。雨水中に含まれる ^{214}Pb の濃度の降雨強度依存性の計算結果と観測結果の比較から、大気中 ^{222}Rn 濃度を計算した結果、日本上空で測定された濃度とほぼ同じであった。

(4) 降雨時に ^{85}Kr が放出された時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化

環境ガンマ線線量率は、降雨時に大気中ラドン壊変生成物の地表沈着により変動する。大気中ラドン壊変生成物の地表沈着モデルを構築し、降雨時の環境ガンマ線線量率変動を計算するとともに、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動と比較した。さらに、降雨時に再処理施設から ^{85}Kr が放出された場合において、^{85}Kr 放出に伴う線量率変動を降雨時変動から弁別することを試みた。その結果、大気中ラドン壊変生成物の地表沈着モデルにより計算された環境ガンマ線線量率は、降雨時に観測された環境ガンマ線線量率と比較的よく一致した。降雨強度が強い場合は、表面流出により計算値が観測値より高めになった。表面流出のない雨の降り始めは、計算値が低めになった。計算値と観測値の差は、平均して±30%程度であった。

降雨時に観測された環境ガンマ線線量率の変動から降雨によるガンマ線線量率を差し引くことにより求められた線量率の変動は、施設からの ^{85}Kr 放出率の変動と比較的よく一致した。このことから、^{85}Kr 放出に起因するガンマ線線量率の変動が降雨時変動から弁別されていることが示唆された。弁別された ^{85}Kr 放出に起因するガンマ線線量率の値と、排気筒モニタデータと局地気象観測データをもとに SIERRA-II により計算された線量率の値は比較的よく一致した。

6.2 今後の課題

本論文では、再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化と、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化について検討を行った。再処理施設運転に伴う環境ガンマ線線量率変動の準実時間定量化については、海陸風循環時のような風向が急激に変化する場合に対する計算コード・システムの計算精度の向上が必要である。降雨時の環境ガンマ線線量率の変動の定量化については、本研究で開発したモデルを用いた方法では準実時間で評価することが困難である。準実時間で評価するための方法を検討する必要がある。

本研究で得られた成果は、近々本格運転を開始する予定の六ヶ所再処理施設に対しても適用可能である。本研究で開発した大気拡散計算コード・システムと同様なシステムが六ヶ所再処理施設に対して整備されることが望まれる。整備された計算コード・システムを使用することにより、本研究の成果が六ヶ所再処理施設からの ^{85}Kr 放出に伴う環境ガンマ線線量率の定量化に貢献できることを期待する。

参考文献

1) 須藤俊幸ほか, アスファルト固化処理施設の火災爆発事故による放射性物質の放出量並びに公衆の被ばく線量の評価, 動燃技報, vol.107, 1998, pp.65-75 .
2) 日本原子力学会 JCO 事故調査委員会, JCO 臨界事故 その全貌の解明－事実、要因・対応－, 東海大学出版会, 2005.
3) 竹安正則, 須藤俊幸他;JCO 臨界事故時の放出放射性物質の評価(時間変化), 日本原子力学会 2000 年春の年会要旨集, 2000, p.16.
4) 原研 SPEEDI による線量評価、JCO 臨界事故における原研の活動, JAERI-Tech 2000-074, 2000, pp.153-169.
5) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, United Nations, New York, 1993.
6) 原子力安全基盤機構安全情報部, 平成 18 年度版(平成 17 年度実績)原子力施設運転管理年報, 原子力安全基盤機構, 2006, pp.665-675.
7) 原子力委員会, 発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針, 平成 13 年3月一部改訂, 1975.
8) 原子力安全委員会, 発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について, 平成 13 年3月一部改訂, 1989.
9) 江原 孝ほか, モニタリングステーションにおける空間線量率の異常上昇例, 茨城公技研報, vol.8, 1997, pp.33-42.
10) 原子力安全委員会, 環境放射線モニタリングに関する指針, 平成 13 年3月一部改訂, 1989.
11) 文部科学省, 連続モニタによる環境γ線測定法, 放射能測定法シリーズ 17, 1996.
12) 武田文宣ほか, 環境放射能に係る異常現象(原子力事故の前兆現象を含む)の携帯電話による監視システムの導入, 日本原子力学会 2004 年春の年会要旨集, 2004, p.F9.
13) Yamazaki, K., Studies on Factors Associated with the Variations of Environmental Radiation Dose, Doctoral thesis, Graduated School of Science and Technology, Niigata University, 2004.
14) 藤元憲三, 大地からのγ線に対する雪の遮蔽効果, 保健物理, vol.21, 1986, pp.3-8.
15) Yoshioka, K., Soil Moisture Gauge using Terrestrial Gamma-Rays, Nucl. Geophys., vol.3, 1989, pp.397-401.
16) 辻本 忠, 環境放射線の変動について・パターン集・その2・人工的要因, 放射線科学, vol.37, 1994, pp.130-133.
17) 占部逸正, 自然現象に起因する空間放射線の変動, ESI-NEWS, vol.12, 1994, pp.5-10.

18) 原子力辞典編集委員会編, 原子力辞典, 日刊工業新聞社, 2005, p.312.

19) 松田秀晴ほか, 3”φ×3”NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメーターによる微弱漏洩γ線線量評価の新しい方法(第 7 報), 名古屋工業技術試験所報告, vol.37, 1988, pp.37-42.

20) 早川博信ほか, 大気中および雨水中ラドン娘核種による線量率と施設寄与による線量率の弁別, 大気中のラドン族と環境放射能 III, 日本原子力学会, 1995.

21) 日本分析センター, 平成 15 年度日本分析センター年報, 日本分析センター, 2004, p.40.

22) Nakashima, N. I. et al., Real-time Environmental Monitoring Data on the Internet, Proceedings of the 10th International Radiation Protection Association, Hiroshima, Japan, 2000, P-10-161.

23) 今泉謙二ほか, 環境監視情報のインターネット化, 第 40 回環境放射能調査研究論文抄録集(平成9年度), 科学技術庁, 1999, pp.107-108.

24) 茅野政道, 原子力と大気拡散研究, 日本原子力学会誌, vol.32, 1990, pp.1080-1086.

25) 原子力安全委員会, 発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針, 平成 13 年3月一部改訂, 1983.

26) 岩井誠ほか, 環境データ図形表示システム DIAMOND 説明書(Rev.1), 動力炉・核燃料開発事業団技術資料, PNC TN8430 86-021, 1986.

27) 茅野政道, 緊急時計画のための東海原子力サイト周辺の大気拡散特性の数値解析, 日本原子力学会誌, vol.32, 1990, pp.395-402.

28) 茅野政道, 緊急時環境線量情報予測システム SPEEDI について, 保健物理, vol.21, 1986, pp.285-294.

29) Cotton, W. et al., The Colorado State University three-dimensional cloud/mesoscale model, J. Rech. Atmos., vol.16, 1982, pp.195-320.

30) Pielke, R., A., Mesoscale meteorological modeling, Academic Press, New York, USA, 1984.

31) Yamada, T. et al., A numerical study of nocturnal drainage flows with strong wind and temperature gradients, J. Appl. Meteor., vol.28, 1989, pp.545-554.

32) Chino, M., Manual of a Suite of Computer Codes, EXPRESS, JAERI-M 92-082, 1992.

33) Yamada, T. et al., Development of nested grid, second moment turbulence closure model and application to the 1982 ASCOT Brush Creek data simulation, J. Appl. Meteor., vol.27, 1988, pp.562-578.

34) Turner, D. B., Workbook of atmospheric dispersion estimates, Lewis Publishers, Boca Raton, USA, 1994, pp.2-11.

35) Nakanishi, M., Large-eddy simulation of radiation fog, Bound.-Layer Meteorol., vol.94, 2000, pp.461-493.

36) Mellor, G. et al., Development of a turbulence closure model for geophysical fluid problems, Rev.

Geophys. Space Phys., vol.20, 1982, pp.851-875.

37) Sherman, C. A., A mass-consistent model for wind fields over complex terrain, J. Appl. Meteorol., vol.17, 1978, pp.312-319.

38) 宮内和也ほか, 緊急時環境モニタリング等に係る拡散予測システムの構築, 核燃料サイクル開発機構技術資料, JNC TJ4410 2000-001, 2000.

39) 原子力安全委員会, 被ばく計算に用いる放射線エネルギー等について, 平成 13 年3月一部改訂, 1989.

40) 原子力安全委員会, 発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について, 平成 13 年3月一部改訂, 1989.

41) 茅野政道, 原子炉事故時における環境放射能の実時間予測に関する研究, 名古屋大学博士論文, 1990, p.72.

42) Igarashi, Y. et al., ^{85}Kr and ^{133}Xe monitoring at MRI Tsukuba and its importance, J. Environ. Radioactivity, vol.48, 2000, pp.191-202.

43) Cooper, J. R. et al., Radioactive Releases in the Environment: Impact and Assessment, John Wiley &Sons, Bognor Regis, UK, 2003, p.351.

44) 茅野政道ほか, 3層モデルによる内部境界層存在時の拡散シミュレーション, 大気汚染学会誌, vol.20, 1985, pp.158-167.

45) Gurriaran, R. Maro, D., Bouisset, P., et al.; In situ metrology of ^{85}Kr plumes released by the COGEMA la Hague nuclear reprocessing plant, J. Environ. Radioact., 72, pp.137-144 (2004).

46) Maro, D. et al., A study of the near field atmospheric dispersion of emissions at height: Comparison of Gaussian plume models (Doury, Pasquill-Briggs, Caire) with krypton-85 measurements taken around La Hague nuclear reprocessing plant, Radioprotection-Colloques, vol.37, 2002, pp.1277-1282.

47) Bouzom, M. et al., COMPARISON of LAGRANGIAN ATMOSPHERIC DISPERSION MODELS (DIFPER, SPRAY) WITH ^{85}KRYPTON MEASUREMENTS TAKEN AROUND LA HAgue SPENT FUEL REPROCESSING PLANT, Proc. of 8th Int. Conf. on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, 2001, pp.205-209.

48) Hill, R. et al., Comparison between field measurements of ^{85}Kr around the BNFL Sellafield reprocessing plant and the predictions of the NRPB R-91 and UK-ADMS atmospheric dispersion models, Int. J. Environ. Pollution, vol.16, 2001, pp.315-327.

49) 五代儀貴ほか, 稲葉次郎他;レーダーアメダスデータの大気拡散モデルへの組み込み, 日本保健物理学会第 39 回研究発表会, 2005, p.150.

50) 日本原子力研究開発機構, 東海再処理施設事業指定申請書, 2005.

51) 武石稔ほか, 東海再処理施設周辺の環境放射線モニタリング結果-2003 年度-(業務報告), 核燃料

サイクル開発機構, JNC TN8440 2004-002, 2004.

52) 気象庁, 気象観測の手引き(気象庁編), 気象業務支援センター, 1998, p.18.

53) 外山浩司ほか, 環境放射線常時監視に係る事例対応について, 茨城県公害技術センター研究報告, vol.14, 2005, pp.17-20.

54) Damon, P. E. et al., On the natural radioactivity of rainfall, Trans. Am. Geophys. Union, vol.35, 1954, pp.208-216.

55) Bhandari, N. et al., Study of atmospheric washout processes by means of radon decay products, J. Geophys. Res., vol.68, 1963, pp.3823-3826.

56) Nishikawa, T. et al., Time variation of ^{222}Rn progeny concentration in rainwater, Health Phys., vol.49, 1985, pp.1284-1289.

57) Finck, R. R. et al., In situ Ge(Li)-spectrometric measurements of gamma radiation from radon daughters under different weather conditions, Proceedings of the Natural Radiation Environment III, CONF-780422, Springfield, VA, 1980, pp.357-369.

58) Katase, A. et al., Variation of intensity of environmental gamma rays measured with Ge(Li) spectrometer, J. Nucl. Sci. Technol., vol.19, 1982, pp.918-927.

59) Horng, M. C. et al., In situ measurements of gamma-ray intensity from radon progeny in rainwater, Radiat. Meas., vol.38, 2004, pp.23-30.

60) Minato, S., Estimate of radon-222 concentrations in rainclouds from radioactivity of rainwater observed at ground level, J. Radioanal. Chem., vol.78, 1983, pp.199-207.

61) Takeuchi, N. et al., Rainout-washout model for variation of environmental gamma-ray intensity by precipitation, J. Nucl. Sci. Technol., vol.19, 1982, pp.393-409.

62) Ikebe, Y. et al., A model for precipitation scavenging of short-lived Rn-222 daughters, Res. Lett. Atmos. Electric., vol.5, 1985, pp.17-21.

63) Minato, S., Analysis of Time Variations in Natural Background Gamma Radiation Flux Density, J. Nucl. Sci. Technol., vol.17, 1980, pp.461-469.

64) Hayakawa, H., Radon-concentration-in-cloud and rainfall-rate dependency of short-lived radon daughters in rainwater, J. Nucl. Sci. Technol., vol.22, 1985, pp.292-300.

65) Fujinami, N. et al., Influence of the precipitation rate on the seasonal variation in the specific radioactivity of short-lived ^{222}Rn daughters in precipitation, J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett., vol.95, 1985, pp.111-118.

66) Minato, S., Monte carlo calculation of gamma radiation field due to precipitation washout of radon daughters from the atmosphere to the ground surface, Hoken Butsuri, vol.15, 1980, pp.19-24.

67) Miyake, Y. et al., Lead-210 and Radon-222 contents of rainwater in Tokyo, Proceedings of the Natural Radiation Environment III, Conf-780422, Springfield, VA, 1980, pp.547-559.

68) 下道國ほか, 自然環境における ^{222}Rn, ^{220}Rn およびそれらの短半減期娘核種の濃度, 保健物理, vol.14, 1979, pp.251-259.

69) 西川嗣雄ほか, 降雨・降雪に含まれるラドン娘核種の濃度の時間変化, 大気中のラドン族と環境放射能(岡部茂編), 日本原子力学会, 1985, pp.115-126.

70) Minato, S., Some observations of the variations in natural gamma radiation due to rainfall, Proceedings of the Natural Radiation Environment III, Conf-780422, Springfield, VA, 1980, pp.370-382.

71) Engelmann, R. J., The calculation of precipitation scavenging in meteorology and atomic energy, Slade, D. H. (Ed.), USAEC Rep. TID-24190, 1968.

72) Fujinami, N. et al., Estimation of cloud parameters from short-lived Rn daughter activities of rainwater, Nucl. Geophys., vol.7, 1993, pp.359-366.

73) 池辺幸正, 雲や降水によるエアロゾル粒子の除去機構, 大気中のラドン族と環境放射能, 日本原子力学会, 1985, pp.235-242.

74) Takeda, T. et al., Estimation of liquid water amount in an extended cloud by nimbus-5 microwave data, J. Meteor. Soc. Jpn., vol. 60, 1982, pp.1153-1164.

75) Mason, B. J., The physics of clouds, Oxford University Press, London, 1971.

76) 水野　量, 雲と雨の気象学, 朝倉書店, 2003, p.95.

77) Iida, T. et al., Vertical profile of radon concentrations in the atmosphere, In:Inaba, J., Tsukada, H. and Takeda, A. (Eds.) Radioecology and Environmental Dosimetry, Institute for Environmental Sciences, Japan, 2003.

78) 湊　進, 降水による環境γ線の変動, 環境放射線研究の現状と展望, 日本原子力学会, 1984, pp.87-97.

79) Kataoka, T. et al., Influence of Short-Lived Radon-222 Daughters Present in Atmosphere on Natural Environmental Gamma-Radiation Field, J. Nucl. Sci. Technol., vol.19, 1982, pp.831-836.

80) 片瀬　彬, レインアウト・ウォッシュアウト現象による環境ガンマー線強度の変動, 大気中のラドン族と環境放射能, 日本原子力学会, 1985, pp.187-195.

81) 池辺幸正ほか, 降水の放射能と環境ガンマ線, 大気中のラドン族と環境放射能, ラドン族調査研究委員会(編集:岡部茂), 1985, pp.203-210.

82) 岡部　茂ほか, 大気中および降雨・降雪に含まれるラドン娘核種の濃度と環境γ線との関係, 大気中のラドン族と環境放射能(岡部茂編), 日本原子力学会, 1985, pp.127-137.

83) Hayakawa, H. et al., Measuring additional dose Rate Contributed by Nuclear Plants, Health Phys., vol.64, 1993, pp.306-310.

84) Yamanishi, H. et al., Separation of Natural Background by using Correlation of Time-Series Data on Radiation Monitoring, J. Nucl. Sci. Technol., vol.44, 2003, pp.44-48.

85) 茨城県東海地区環境放射線監視委員会, 環境放射線監視季報, 第 126 報(平成 15 年度第3四半期), 茨城県, 2003, p.3.

86) 西川嗣雄, 大気中のラドン娘核種の挙動とその環境γ線強度への影響に関する研究, 九州大学大学院工学研究科博士論文, 1989.

87) 山縣　登, 環境放射線ハンドブック, 情報センター出版会, 1985.

付録 1. 本論文を構成する発表論文とその他の関連論文

(1) Takeyasu, M., Takeishi, M., Iida, T., and Shimizu, T.; Development of a Real-Time Environmental Radiation Dose Evaluation System for the Vicinity of a Nuclear Facility, Japanese Journal of Health Physics, 39, 382-390 (2004)（第2章）

(2) Takeyasu, M., Iida, T., Watanabe, H., Takeishi, M. and Yamamoto, A.; Simulation of the atmospheric dispersion of Kr-85 from a reprocessing plant over a coastal area -Performance examination of an environmental radiation dose evaluation code system, SIERRA-II-, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 275, 43-54 (2008)（第2章）

(3) Takeyasu, M., Iida, T., Takeishi, M., Tsujimoto, T., Yamasaki, K., and Ogawa, Y.; Concentrations and their ratio of ^{222}Rn decay products in rainwater measured by gamma-ray spectrometry using a low-background Ge detector, Journal of Environmental Radioactivity, 88, 74 - 89 (2006) (第 4,5 章)

博士論文を構成する国際会議発表論文

(1) Takeyasu, M., Nakano, M., Miyagawa, N., Takeishi, M.; Examination of Atmospheric Dispersion's Performance -Comparison with the Monitoring Data under the Normal Operation of the Tokai Reprocessing Plant-, Proceedings of the 11th International Congress of the International Radiation Protection Association, 6C39, Oct. Spain (2004)（第3章）

(2) Takeyasu, M., Nakano, M., Takeishi, M.; Verification of atmospheric dispersion model with monitoring data under normal operation of the Tokai reprocessing plant, Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry, 511-515, Oct., Aomori (2003)（第3章）

(3) Takeyasu, M., Yamasaki, K., Tsujimoto, T., Ogawa, Y., Urabe, I.; Radon-222 Progeny in Precipitation, Proceedings of the Asian Congress on Radiation Protection, pp.618-621, Oct., Beijing (1993) (第 4 章)

その他の論文

(1) Ogawa, Y., Takeyasu, M., Yoshimoto, T., Okamoto, K-I., Tsujimoto, T., Kimura Y., and Honda, Y.; Measurements and Analytical Methods of Radon Daughters in Rain Water by Gamma-ray Spectrometry with a Low Background Germanium Detector, Journal of Faculty of Science and Technology, Kinki University, 28, pp.189-192(1992)

(2) Nakamura, S., Takeyasu M. and Akiba K.; Liquid membrane Transport of Lanthanoid Elements using

Organophosphinic Acid, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 181, pp.281-289(1994)

(3) Nakashima, N., Maruo, Y., Tobita, K., Takeyasu, M.; Real-time Environmental Monitoring Data on the Internet, Proceedings of the 10th International Congress of the International Radiation Protection Association, P-10-161, May, Hiroshima (2000)

(4) Takeyasu, M., Takeishi, M.; Real-time Simulation of Environmental Dose in the Normal Operation of Tokai Reprocessing Plant by Dose Evaluation Computer Code (SIERRA-II), Proceedings of AOCRP-1, OP6C-3, Oct., Seoul (2002)

(5) Takeyasu, M., Takeishi, M.; Simulation of Atmospheric Dispersion of Krypton-85 Discharged to Atmosphere from Tokai Reprocessing Plant by Dose Estimation Computer System (SIERRA-II), Proceedings of the International Symposium: Transfer of Radionuclides in Biosphere -Prediction and Assessment-, pp.178-180, Dec., Mito (2002)

(6) Takeyasu, M., Iida, T., Tsujimoto, T., Yamasaki, K.; Measurements of concentrations and its ratio of radon decay products in rainwater by gamma-ray spectrumetry with a low background germanium detector, Proceedings of the 6th International Conference on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas, pp.289-290, Sep., Osaka (2004)

(7) 中野政尚, 竹安正則, 藤田博喜, 武石稔; 海産生物における超ウラン核種の濃縮係数について, RADIOISOTOPES, 55, pp.197-203 (2006)

(8) Takeyasu, M., Iida, T., Takeishi, M.; Analysis of Rn-222 concentration in the upper atmosphere during rainfall using the wet scavenging model for its decay products, Proceedings of the 2nd Asian and Oceanic Congress of Radiation Protection,, Oct., Beijing (2006)

付録 2. 降雨時に観測される環境ガンマ線線量率の変動要因

降雨時に観測される環境ガンマ線線量率の変動の主な要因は、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着である。本付録では、降雨時に環境ガンマ線線量率を変動させる他の要因について考察する。

降雨時に環境ガンマ線線量率を変動させる要因としては、降雨による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着以外にも、土壌含水比の変化、大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の変化等、以下の要因がある。

(1) 降雨の洗浄作用による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の減少
(2) 土壌含水比の増加に伴う大地ガンマ線の遮蔽
(3) 積雪による大地ガンマ線の遮蔽
(4) 降雨による宇宙線中性子の吸収と宇宙線誘導放射性核種の地表沈着
(5) 降雨の洗浄作用による大気圏内核実験フォールアウトの地表沈着

以下に、各要因に伴うガンマ線量率の変動について概観する。

(1) 降雨の洗浄作用による大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の減少

降雨の洗浄作用により大気中 ^{222}Rn 壊変生成物は地表へ沈着する。その結果、大気中の ^{222}Rn 壊変生成物の濃度が減少する。Kataoka らによれば、高度 100m 以上の大気中に存在する ^{222}Rn 壊変生成物が地表面のガンマ線線量率へ及ぼす影響は小さい [79]。西川によれば、降雨時に、地上高さ 6m での大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度は、顕著な増減は示さず、緩やかに変化した [86]。Yoshioka によれば、地上高さ 1.5m での大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度の変動が地上高さ 1.5m の環境ガンマ線線量率に及ぼす影響として、$0.34 nGy h^{-1} (Bq m^{-3})^{-1}$ と評価した [15]。仮に、地上付近の大気中 ^{222}Rn 壊変生成物濃度が 3 Bq m^{-3} 減少したと仮定し、Yoshioka が評価した換算係数を用いると、環境ガンマ線線量率は約 1nGy h^{-1} 減少すると評価される。

(2) 土壌含水比の増加に伴う大地ガンマ線の遮蔽

降雨により雨水が地表へ降下すると、雨水が地表面上を覆うとともに土壌中に浸透し、土壌中の間隙に入り込む。その結果、地表面上に溜まった雨水と土壌中水分により大地ガンマ線が遮蔽され、環境ガンマ線線量率は減少する。大雨による冠水が起こった場合には、大地ガンマ線の遮蔽が大きくなることが予想される。土壌含水比と環境ガンマ線線量率の関係については、吉岡が 1987 年から 1988 年にかけてそれらの連続測定を行い、解析を行った [15]。土壌含水比は、砂質系シルト土壌の深さ 5cm、10cm および 30cm の地中に石膏ブロック電極を埋設することにより測定した。その解析によると、深さ 5 cm での土壌含水比が 2.5%から 13%へ変動することにより、大地ガンマ線線量率が 46 nGy h^{-1} から 42 nGy h^{-1}

へ約 8%ほど減少した。土壌含水比の変動幅は土壌によって異なるので、保水性の良い土壌であれば土壌含水比の変動幅は大きくなる。土壌深さ 0～10cm の表層土壌に存在する線源からの大地ガンマ線線量率の寄与は約 68%、0～30cm からの寄与は 94%である。従って、地表面近くの土壌の含水比の変動が大きいほど、大地ガンマ線線量率の変動幅は大きい。旧核燃料サイクル開発機構東海事業所敷地内の測定地点において降雨がない時間帯での環境ガンマ線線量率は最大約 40 nGy h^{-1} である。この線量率が大地ガンマ線によるものとすると、土壌中水分量の増加に伴うガンマ線線量率の変動は最大で 40 nGy h^{-1} の 8%、すなわち約 3 nGy h^{-1} ほどガンマ線線量率が変動すると評価される。

(3) 積雪による大地ガンマ線の遮蔽

降雪があり、地表面を覆うような場合には、大地ガンマ線が遮蔽される。積雪による大地ガンマ線線量率の遮蔽については、藤元が研究を行った [14]。藤元は、大地の土壌層内に一様に分布するカリウム、ウラン系列、トリウム系列からのガンマ線が地表面を覆った積雪の層を通って地上 1m での線量率へ及ぼす影響をモンテカルロ法により計算した。その結果、日本の冬によく観測される密度 ρ =0.4 g cm^{-3} 程度の重い雪が積雪として 50cm 積もった場合、大地γ線線量率は4分の1以下に減少すると評価した。占部は、福井県若狭地方での測定で積雪約 20 cm で線量率の減少が観測されており、積雪の条件によっては線量率が数十%程度減少する場合があると報告している [17]。このように、積雪があるような地域においては、積雪による大地ガンマ線の遮蔽により、降雨時に環境ガンマ線線量率が大きく変動することを考慮する必要がある。

(4) 降雨による宇宙線中性子の吸収と宇宙線誘導放射性核種の地表沈着

大気上層では、1次宇宙線と大気中原子の相互作用により中性子が生成される。生成された中性子は、大気中で大気を構成する原子と弾性散乱してエネルギーを失いながら地表面へ到達する。大気中で熱中性子エネルギーレベルまで減速されると、中性子は大気水分中の水素原子に捕捉される。その捕捉過程で、2.22 MeV のガンマ線を発生する。従って、降雨により大気中水分量が増加すると、捕捉される中性子が増え、その結果、発生するガンマ線量も増加することが予想される。しかし、海面レベルでの中性子密度は、6.5～6.9×10^{-3} atom cm^{-2} s^{-1} であり、中性子密度が非常に小さい [87]。よって、中性子捕捉に伴うガンマ線発生数は少なく、環境ガンマ線線量率への寄与は無視できる。大気上層には、絶えず宇宙線（H^{+}, He^{2+}）など）が入射している。宇宙線のエネルギーは非常に大きいので、大気を構成する原子と相互作用して種々の放射性核種が生成する。それらの核種のうち、ガンマ線を放射する核種は、^{7}Be, ^{22}Na である。降雨時には、大気中に存在するこれらの核種が雨水中に取り込まれ地表へ沈着することにより、環境ガンマ線線量率を変動させることが予想される。しかし、これら核種の雨水中濃度は、^{7}Be で 7 mBq cm^{-3} 程度, ^{22}Na で 3×10^{-3} mBq cm^{-3} 程度なので [87]、これら核種が降雨時に地表へ沈着することによる環境ガンマ線線量率の変動は無視できる。

(5) 降雨の洗浄作用による大気圏内核実験フォールアウトの地表沈着

過去に行われた大気圏内核爆発実験により成層圏にばらまかれたフォールアウトおよび誘導放射性核種が少しずつ対流圏に降下している。これらの核種は、降雨の洗浄作用により地表へ沈着する。このため、降雨時の環境ガンマ線線量率の変動に寄与する可能性がある。しかし、第4章の Fig. 4-2 で示したように、雨水のガンマ線スペクトル上で核爆発実験による核分裂生成物および誘導放射性核種のガンマ線ピークは検出されなかった。従って、降雨時の環境ガンマ線線量率への寄与は無視できる。

以上の要因を考慮すると、積雪がない場合、降雨による ^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着以外の要因による環境ガンマ線線量率の変動は最大でも 3nGyh^{-1} 程度であり、^{222}Rn 壊変生成物の地表沈着による変動と比較して小さいことが推測される。

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立法メートル	m^3
速さ，速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^2
波数	毎メートル	m^{-1}
密度，質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m^2
比体積	立方メートル毎キログラム	m^3/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度(a)，濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率(b)	（数字の） 1	1
比透磁率(b)	（数字の） 1	1

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン(b)	rad	1 (b)	m/m
立体角	ステラジアン(b)	sr(c)	1 (b)	m^2/m^2
周波数	ヘルツ(d)	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		m kg s^{-2}
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	m^{-1} kg s^{-2}
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	m^2 kg s^{-2}
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	m^2 kg s^{-3}
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	m^2 kg s^{-3} A^{-1}
静電容量	ファラド	F	C/V	m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m^2 kg s^{-3} A^{-2}
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	m^{-2} kg^{-1} s^3 A^2
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	m^2 kg s^{-2} A^{-1}
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	kg s^{-2} A^{-1}
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m^2 kg s^{-2} A^{-2}
セルシウス温度	セルシウス度(e)	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr(c)	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	m^{-2} cd
放射性核種の放射能(f)	ベクレル(d)	Bq		s^{-1}
吸収線量，比エネルギー分与，カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m^2 s^{-2}
線量当量，周辺線量当量，方向性線量当量，個人線量当量	シーベルト(g)	Sv	J/kg	m^2 s^{-2}
酸素活性	カタール	kat		s^{-1} mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m^{-1} kg s^{-1}
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m^2 kg s^{-2}
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s^{-2}
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m^{-1} s^{-1}=s^{-1}
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	m m^{-1} s^{-2}=s^{-2}
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	kg s^{-3}
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m^2 kg s^{-2} K^{-1}
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m^2 s^{-2} K^{-1}
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m^2 s^{-2}
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s^{-3} K^{-1}
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	m^{-1} kg s^{-2}
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s^{-3} A^{-1}
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	m^{-3} sA
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	m^{-2} sA
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	m^{-2} sA
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s^{-2} A^{-2}
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m^2 kg s^{-2} mol^{-1}
モルエントロピー，モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m^2 kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}
照射線量（X線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	kg^{-1} sA
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m^2 s^{-3}
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m^4 m^{-2} kg s^{-3}=m^2 kg s^{-3}
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2$ sr)	m^2 m^{-2} kg s^{-3}=kg s^{-3}
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	m^{-3} s^{-1} mol

表５．SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨタ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^{6}	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	$1ha=1hm^2=10^4m^2$
リットル	L, l	$1L=11=1dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	$1t=10^3$ kg

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	$1eV=1.602\ 176\ 53(14)\times10^{-19}J$
ダルトン	Da	$1Da=1.660\ 538\ 86(28)\times10^{-27}kg$
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	$1ua=1.495\ 978\ 706\ 91(6)\times10^{11}m$

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	$1\ bar=0.1MPa=100kPa=10^5Pa$
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	$1\ Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m$
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	$1\ b=100fm^2=(10^{-12}cm)2=10^{-28}m^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デジベル	dB	

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	$1\ erg=10^{-7}$ J
ダイン	dyn	$1\ dyn=10^{-5}$N
ポアズ	P	$1\ P=1\ dyn\ s\ cm^{-2}=0.1Pa\ s$
ストークス	St	$1\ St=1cm^2\ s^{-1}=10^{-4}m^2\ s^{-1}$
スチルブ	sb	$1\ sb=1cd\ cm^{-2}=10^4cd\ m^{-2}$
フォト	ph	$1\ ph=1cd\ sr\ cm^{-2}\ 10^4lx$
ガル	Gal	$1\ Gal=1cm\ s^{-2}=10^{-2}ms^{-2}$
マクスウェル	Mx	$1\ Mx = 1G\ cm^2=10^{-8}Wb$
ガウス	G	$1\ G=1Mx\ cm^{-2}=10^{-4}T$
エルステッド(c)	Oe	1 Oe ≙ $(10^3/4\pi)A\ m^{-1}$

(c) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表10．SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R=2.58\times10^{-4}C/kg$
ラド	rad	$1\ rad=1cGy=10^{-2}Gy$
レム	rem	$1\ rem=1\ cSv=10^{-2}Sv$
ガンマ	γ	1γ=1 nT=10-9T
フェルミ		1フェルミ=1 fm=10-15m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー）4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	μ	1 μ =1μm=10^{-6}m

（第8版，2006年改訂）

この印刷物は再生紙を使用しています