PNC TJ1533 91-001

社内資料

分置

本資料は　年　月　日付けで登録区分、
変更する。
01.10.-4 [技術情報室]

環境安全総合評価に関する調査研究(Ⅰ)

(動力炉・核燃料開発事業団　委託研究成果報告書)

1991年3月

財団法人　原子力安全研究協会

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184　茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部　技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

この資料は，動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては，複製．転載．引用等を行わないよう，また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合せは下記に願います。

〒 107　東京都港区赤坂 1 － 9 －13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部　技術管理室

登録区分
2001.10.04
変更表示

社内資料
PNC TJ1533 91-001
1991年3月

環境安全総合評価に関する調査研究（Ⅰ）

松　本　史　朗※

要　旨

本調査研究の目的は，環境面から見た核燃料サイクルに係る安全研究の体系化を図り，現在の研究の動向を整理評価することによって，将来にわたって必要な研究を明確にすることである。

このため，本年度は上記目的達成のための第一段階として以下の調査を実施した。

(1) 年令依存線量係数に関するＩＣＲＰの検討内容の把握，生態圏移行モデルの検証研究（ＢＩＯＭＯＶＳ）の状況の調査および主要な学術誌を対象とした関連文献の抽出による国内外における研究の動向調査。

(2) 他分野の環境研究調査として，最近の酸性雨モデルの検討。

また，上記調査を踏まえ，核燃料サイクル各分野の環境安全研究の体系化を図るための基礎的検討を行った。

本報告書は，㈱原子力安全研究協会が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号　　０２０Ｄ００７５

事業団担当者　浅野　智宏（本社　安全部安全管理課主査）

篠原　邦彦（東海事業所　安全管理部環境安全課長代理）

圓尾　好宏（東海事業所　安全管理部環境安全課観測係長）

※環境安全総合評価専門委員会委員長（埼玉大学教授）

登録区分
2001.10.04
変更表示

OFFICIAL USE ONLY
PNC TJ1533 91-001
March 1991

Study on Evaluation Method of Overall Risk in Environment Around Nuclear Fuel Cycle Facilities

Shiro Matsumoto※

Abstract

The objective of the study is focused to identify some items to be continuously developed, through systematizing the environment safety issues relating to nuclear fuel facilities and analysing the trend of R&D in this field.

As the first step of the study, the following items have been done in this fiscal year.

(1) To study age-dependent dose coefficients in ICRP Publ.56, status of biospheric model validation study (BIOMOVS) and the trends of R&D at home and abroad, through main science magazines.

(2) To study evaluation model of acid rain at present, refering the R&D in other field.

Based on the activities mentioned above, the basic study on systemization of environment safety researches relating to nuclear fuel cycle facilities has been done.

Work performed by Nuclear Safety Research Association under contracts with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison: Tomohiro Asano, Safety Division, Head Office.
Kunihiko Shinohara, Health and Safety Division, Tokai Works.
Yoshihiro Maruo, Health and Safety Division, Tokai Works.

※ Expert Committee on Approaches of Environmental Safety Evaluation for Radioactive Effluents

環境安全総合評価専門委員会

委員構成

平成3年3月現在

（敬称略，順不同）

委員長	松本　史朗	埼玉大学工学部教授
委　員	大橋　弘士	北海道大学工学部教授
〃	小野　哲也	東北大学医学部教授
〃	甲斐　倫明	東京大学医学部助手
〃	小佐古敏荘	東京大学原子力研究総合センター助教授
〃	田中　　知	東京大学工学部附属原子力工学研究施設助教授
〃	鈴木　正昭	東京工業大学原子炉工学研究所助教授
〃	福井　正美	京都大学原子炉実験所助手
〃	西宮　　昌	(財)電力中央研究所狛江研究所発電プラント部次長
〃	村松　康行	放射線医学総合研究所那珂湊支所 環境放射生態学研究部第二研究室長
〃	妹尾　宗明	日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部 深地処分研究室長
〃	本間　俊充	日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部 環境影響解析室研究員
〃	熊谷　幹郎	(財)産業創造研究所化学研究部長 原子力化学工学センター技術部長（兼）
〃	大原　利真	(財)計量計画研究所環境資源研究室
顧　問	浜田　達二	(社)日本アイソトープ協会常務理事

目　　次

まえがき …… 1

第1章　国内外における研究の動向調査 …… 2

1.1　はじめに …… 2

1.2　ＩＣＲＰ－Publication 56 …… 2

（公衆体内被ばく線量評価のための年齢依存の線量係数）

1.3　生態圏移行モデルの妥当性検証国際共同研究 …… 12

（ＢＩＯＭＯＶＳ）

1.4　関連資料の収集 …… 28

第2章　他分野の環境研究に関する調査（最近の酸性雨モデルの概要） …… 50

2.1　はじめに …… 50

2.2　酸性雨の状況 …… 50

2.3　酸性雨の生成メカニズム …… 51

2.4　酸性雨モデルの概要 …… 51

2.5　酸性雨モデルの実例 …… 53

第3章　環境安全研究の体系化に関する基礎調査 …… 89

3.1　はじめに …… 89

3.2　再処理施設の環境安全評価の現状 …… 89

3.3　国の安全研究年次計画 …… 97

3.4　環境安全研究の体系化の検討 …… 100

あとがき …… 104

付録　関連資料 …… 107

諸表リスト

表1.2.1　最近の年齢依存線量評価に関する報告

表1.2.2　ICRP Publication56の年齢区分

表1.2.3　ＳＥＥの計算に用いる標準臓器質量

表1.2.4　食物あるいは飲料水中の放射性核種のための専門家グループが示唆するf_1の値

表1.2.5　セシウムの体内動態データ

表1.2.6　^{137}Ｃｓ線量係数（70歳までの積算値，Ｓｖ／Ｂｑ）

表1.3.1　BIOMOVS 研究に参加している機関

表1.3.2　BIOMOVS 研究の報告書

表1.3.3　シナリオＡ４で用いられた測定データの観測地とデータの種類

表1.3.4　参加機関のモデルとそこで考慮された移行経路

表2.1　モデルの比較

表2.2　沈着速度Ｖｇを構成する抵抗値の設定法

表2.3　ヨーロッパにおける広域的大気汚染に関する国際的な動向

表2.4　ＲＡＩＮＳモデルの影響サブモデルにおける評価指標

表2.5　ＲＡＩＮＳモデルにおけるSO_2排出サブモデル

表2.6　ヨーロッパ27ケ国のSO_2排出動向

表3.1　線量当量評価に用いる気体廃棄物の年間放出量

表3.2　線量当量評価に用いる液体廃棄物の年間放出量

表3.3　成人の経路別実効線量当量計算結果

表3.4　成人の経路別の皮膚の組織線量当量計算結果

表3.5　環境放射能安全研究年次計画（平成３年度～平成７年度）の構成

表3.6　環境総合評価システム構築の基本課題の検討

諸表リスト

表1.2.1　最近の年齢依存線量評価に関する報告

表1.2.2　ICRP Publication 56 の年齢区分

表1.2.3　ＳＥＥの計算に用いる標準臓器質量

表1.2.4　食物あるいは飲料水中の放射性核種のための専門家グループが示唆するf_1の値

表1.2.5　セシウムの体内動態データ

表1.2.6　^{137}Ｃｓ線量係数（70歳までの積算値，Ｓｖ／Ｂｑ）

表1.3.1　BIOMOVS 研究に参加している機関

表1.3.2　BIOMOVS 研究の報告書

表1.3.3　シナリオＡ４で用いられた測定データの観測地とデータの種類

表1.3.4　参加機関のモデルとそこで考慮された移行経路

表2.1　モデルの比較

表2.2　沈着速度Ｖｇを構成する抵抗値の設定法

表2.3　ヨーロッパにおける広域的大気汚染に関する国際的な動向

表2.4　ＲＡＩＮＳモデルの影響サブモデルにおける評価指標

表2.5　ＲＡＩＮＳモデルにおけるSO_2排出サブモデル

表2.6　ヨーロッパ27ケ国のSO_2排出動向

表3.1　線量当量評価に用いる気体廃棄物の年間放出量

表3.2　線量当量評価に用いる液体廃棄物の年間放出量

表3.3　成人の経路別実効線量当量計算結果

表3.4　成人の経路別の皮膚の組織線量当量計算結果

表3.5　環境放射能安全研究年次計画（平成３年度～平成７年度）の構成

表3.6　環境総合評価システム構築の基本課題の検討

図2.21　ＲＡＩＮＳモデルによる降水中のSO_4^{2-}の計算値と実測値の比較図
図3.1　気体廃棄物に起因する線量当量評価
図3.2　液体廃棄物に起因する線量当量評価

まえがき

核燃料サイクル諸施設から放出される放射性物質の環境へ与える影響に関する研究については，原子力安全委員会において取りまとめられている環境放射能安全研究年次計画に示されるように，環境・線量研究，生物影響研究，内部被ばく研究，安全評価研究等の各分野毎に各研究機関が独立する形で実施され，それぞれの分野において研究の成果が蓄積されている。しかし，これらの研究は，基本的には放射線の人体影響を中心に捉えた研究がほとんどであり，生態系まで考慮した研究には至っていない。また，研究の成果に関しても必ずしも全体として体系的に整理されていない状況にあると考えられる。

一方，ソ連チェルノブイル原子力発電所事故以来，原子力および環境問題についての関心が高くなってきていると同時に，地球の温暖化現象等の生態系も含めた環境問題が世界的に議論されるようになって来ている。

これらの背景を考慮し，環境面から見た核燃料サイクルに係る安全研究の体系化を図り，現在の研究動向を整理評価することによって，将来にわたって必要な研究を明確にして行くことは意義あることである。

このような観点からここでは調査の第一段階として以下の項目について基礎的な検討を試みた。

① 国内外における研究の動向調査

② 他分野の環境研究調査

③ 環境安全研究の体系化

この種の検討は一朝一夕に完成するというものではなく，関係各分野の専門家による十分な議論，検討を必要とするものである。本年度の調査もこのような意味においてまだまだ基礎段階のものである。したがって本報告書が関係者に必ずしも十分な情報を提供できるとは限らないが，何らかの参考になれば幸いである。

第１章　国内外における動向調査

1.1　はじめに

原子力の環境安全・評価に関する調査研究は国際機関をはじめ各国の関係機関において様々なテーマについて実施されている。ここではこれらのうち，比較的最近の話題として，放射性核種の摂取による公衆の構成員の年齢依存性に関する国際放射線防護委員会の報告（ＩＣＲＰ Pub. 56)およびスウェーデン国立放射線防護研究所の主催により14ケ国24機関，２国際機関が参加して実施された「生態圏移行モデルの妥当性検証国際共同研究（ＢＩＯＭＯＶＳ）」について紹介する。

さらに，関連する資料ならびに論文についての調査結果もあわせて示した。

1.2　ＩＣＲＰ-Publication 56(公衆の体内被ばく線量評価のための年齢依存の線量係数)

(1)　はじめに

従来，体内被ばく線量評価は職業人に適用するためのデータが中心であり，子供を中心にした公衆の線量評価法については国際的にまとめられたものはなかった。近年，年齢依存に関した線量評価法が関心が高くなり，種々の研究が行われるようになってきた。最近の刊行物を表1.2.1に示す。

体内被ばく線量評価には，放射性核種の体内動態モデルの研究が重要である。とくに，一般公衆の線量評価は，乳幼児，小児あるいは胎児を対象とする必要があるため，職業人を対象とした研究では体内汚染例による経験が重要な知見を提供していたが，子供の場合，完全に動物実験によるデータに依存するしかない。例外は，セシウムとヨウ素である。消化管吸収率の評価研究，母体との濃度比較による胎児線量評価などの動物実験，アクチノイド核種の人体汚染事例研究による体内動態パラメータの評価などが進められている。

(2)　ＩＣＲＰ Publication 56 の概要

最近，ＩＣＲＰからPublication 56として「放射性核種の摂取による公衆の構成員の年齢依存線量」が刊行された。ＩＣＲＰは，放射性核種の単位摂取量あたりに対する預託実効線量当量（Sv/Bq)を体内被ばくの線量係数（dose coefficients)としてまとめた。

線量計算を行う年齢の区分を表1.2.2のようにした。さらに，年齢別に体格，器官線量などを規定し（表1.2.3），元素別に体内動態モデルならびに体内動態パラメータを規定する

ことで，1Bqの摂取による組織線量当量ならびに実効線量当量を計算した。これらの作業はＩＣＲＰの1987年の会議で，年齢依存線量係数設定のためのタスクグループを第2 専門委員会の中に組織して行われた。

Publication 56では，トリチウム，炭素，ストロンチウム，ジルコニウム，ニオブ，ルテニウム，ヨウ素，セシウム，セリウム，プルトニウム，アメリシウム，およびネプツニウムの12元素に対してまとめられた。上記以外の元素については，第2部，第3部として刊行される予定になっている。

Publication 56の構成を下記に示す。

用語解説

諸論

Ⅰ　線量算定モデルと体内動態モデル

1.　線量算定モデル

2.　体内動態モデル

2.1　胃腸管吸収

2.2　呼吸器モデル

2.3　通過コンパートメントモデル

2.4　アクチノイドに関する骨モデル

2.5　体内動態データの年齢依存内挿

2.6　娘核種の体内動態

3.　実効線量当量

Ⅱ　体内動態データと経口摂取線量係数

1.　水素

1.1　トリチウム水

1.2　有機結合トリチウム

2.　炭素

3.　ストロンチウム

4.　ジルコニウム

5.　ニオブ

6.　ルテニウム

7. ヨウ素

8. セシウム

9. セリウム

10. プルトニウム

11. アメリシウム

12. ネプツニウム

附属書　A：アクチノイドのための骨モデルに関する詳細記述

附属書　B：吸入線量係数

(3) 用語について

i）積算線量当量（integrated dose equivalent）

職業人の体内被ばく線量評価には50年間積分の預託線量当量が使用される。預託線量当量は，体内摂取が核種の減衰および人体の代謝に伴って排泄するまで被ばくをもたらすので，それらを考慮して体内に存在する間の被ばく線量を積分した量として定義される。その積分期間が職業人の場合50年間である。しかし，子供の場合，50年間以上の積分期間を考える必要があるので，Publication 56では，子供の年齢に関係なく70年間の積分期間の線量を積算線量当量とした。

ii）線量係数（dose coefficient）

体内被ばくにおける単位摂取量（Bq）あたりの積算線量当量（Sv）は線量係数（Sv/Bq）と呼ばれる。従来の種々の報告では，dose factor などと呼ばれていたが，factorは無次元数に用いるものであるので使用しないようにした。

iii）体内動態（biokinetics）

放射性核種が体内に摂取された場合，人体内での挙動は体内代謝（metabolism）と呼ばれていた。代謝には生化学的変化に着目しているという誤解を与えるが，体内被ばく線量算定での主たる関心は，核種の体内に留まる時間であり排泄の速度であるので，速度論であることを示すために「体内動態（biokinetics)」とした。

(4) 線量算定モデル

線量算定モデルは，体内に分布する核種からの各臓器線量を計算するためのモデルである。Publication 56においてもPublication 30に準じたモデルを使用している。線量算定モデルとして数学ファントムが利用される。数学ファントムを用いて，線源臓器から標的臓器の比

実効エネルギー（ＳＥＥ）が計算される。比実効エネルギーの年齢依存性は，臓器の質量と吸収割合（ＡＦ）から求められる。ＳＥＥの年齢依存性についての計算は，ＯＲＮＬのCristy とEckermanによって考案された種々の年齢の数学ファントムを用いて行われた。Cristyらが用いた年齢以外の年齢におけるＳＥＥは体重を基本とする直線内挿によって求められた。年齢20歳のＳＥＥはその後の生涯にわたって適用される。ＳＥＥの計算に用いた標準臓器の質量を表1.2.3に示す。3カ月齢の乳児のＳＥＥ計算には表1.2.3の新生児の値のと1歳児の値から内挿した。表1.2.3の成人の値は，Publication 23から得られたものである。

生後1年間では，胃腸管からの吸収率および体格が急激に変化する。この期間の合理的な代表値として3カ月齢を採用した。

(5) 体内動態モデル

i）胃腸管吸収

Publication 30では，胃腸管を，胃，小腸，大腸上部および大腸下部の4つのコンパートメントに区分して，それぞれ平均滞留時間は，1，4，12，24時間とし，消化管吸収は小腸のみで行われる胃腸管モデルを採用した。Publication 56では年齢依存性を考慮するには情報が不充分であることから，Publication 30と同じモデルとパラメータをそのまま乳幼児や子供に適用できるとした。実際には，子供の胃腸管の通過時間は成人に比べてかなり短い。したがって，子供の場合，長寿命の核種に対しては胃腸管に対する線量を過大に評価することになるが，物理的半減期が胃内の滞在時間と同様な場合，小腸からの吸収が若干過小評価されるため，消化管以外の臓器の線量を少し過小評価する結果になる。

Publication 30で示した胃腸管での吸収率（f_1）は，職業人が作業環境で接触する可能性のある化学形に対して与えられたものであり，これをこのまま公衆の線量計算に用いるのは適切でない。Publication 56では，27元素を選んで消化管吸収率の年齢依存性のレビューを行ったＯＥＣＤ／ＮＥＡの報告書「選択核種の消化管吸収率」の値を採用している。通常，乳児や子供のf_1は成人よりも大きく，新生児の場合，とくに高い。ＯＥＣＤ／ＮＥＡが採用したf_1を表1.2.4に示す。新生児の情報があるものでも，3カ月齢の乳児の線量係数の計算に用いるf_1は出生から1年間の代表値であることに注意をする必要がある。

ii）吸収器モデル

ＩＣＲＰは，現在，呼吸器モデルの改訂作業（主査 DR. Bair)を行っており，年齢依存

の呼吸器モデルが作成される予定になっている。Publication 56では，新しい呼吸器モデルが未完成なのでPublication 30の呼吸器モデルで計算を行っている。

iii）通過コンパートメントモデル

胃腸管あるいは呼吸器から全身の臓器に移行するまでのコンパートメントである。Publication 56 では，年齢依存のデータがないことから，Publication 30が用いた0.25日という半減期を年齢に依存しないとして用いた。

iv）アクチニド元素のための骨モデル

Publication 56では，ＯＲＮＬのLeggett らが構築した年齢依存モデルを少し変更した簡易モデルを作成した。Leggett モデルでは，肝臓を網内系細胞と肝細胞とに分け，肝細胞は細胞内小器官とその他に分けているが，Publication 56で肝臓という１つのコンパートメントにした。

v）体内動態パラメータの年齢依存性

体内動態パラメータは，①臓器コンパートメントへの移行係数（分布係数），②臓器コンパートメントからの生物学的半減期に分類できる。核種摂取後の人の成長に伴うパラメータの変化は，いづれも年齢間で直線的に内挿できるとした。消化管吸収率は核種摂取後，年齢で変化しないとしている。

vi）娘核種の体内動態

Publication 30と同様に，娘核種が親核種と違う体内動態に従うことが明らかなデータがある場合（ヨウ素）を除いて，娘核種は親核種と同じ挙動をすると仮定した。

(6) 実効線量当量

ＩＣＲＰ Publication 26 で示された荷重係数は，性および年齢に関係なく適用されるものである。年齢に応じた荷重係数を適用するだけの確実な情報が得られていない現段階では，Publication 56においても，性，年齢に関係なく同じ荷重係数を適用した。

(7) 経口摂取時の体内線量算定例（セシウム）

セシウムを例に経口摂取時の体内線量算定を以下に示す。

i）血液への取り込み

可溶性のセシウムは，従来，消化管から完全に吸収されるとされていた。チェルノブイル事故で汚染した鹿の肉を摂取したボランティアによって調べた報告では56%～90%であったが，食品中に取り込まれたセシウムについては十分なデータがないので，Publicati-

on 56 では食品中のすべてのＣｓに対してf_1は全ての年齢で１とした。

ii）分布と残留

セシウムは，筋肉に高濃度に蓄積することが報告されているが，組織間の差は大きくないので全身に均一に分布するとした。

残留については，３カ月の乳児は１成分の，その他の年齢では２成分の指数関数で記述できるとした。

年齢ごとに用いた分布と残留に関する体内動態パラメータを表1.2.5にまとめる。

iii）線量係数

線量係数は，^{134}Ｃｓと^{137}Ｃｓに対して計算されている。^{137}Ｃｓの線量係数を表1.2.6に示す。

参考文献

(1) ICRP Publication 56, Age-dependent Doses to Members of the Public from intake of Radionuclides: Part 1, Annals of the ICRP, Vol.20, No.2 (1989)

(2) ICRP Publication 30. Limits for intakes of Radionuclides by Workers: Part 1, Annals of the ICRP, Vol.2, No.3/4 (1978)

(3) ICRP Publication 25, Recommendatins of the ICRP, Annals of the ICRP, Vol.1, No.3 (1977)

(4) Cristy,M. and Eckermann,K.F., Specific Absorbed Fractions of Energy at Various Ages from Internal Photon Sources, ORNL/TM-8381/V1-7, ORNL (1987)

(5) ICRP Publication 23, Reference Man: Anatomical, Physiological and Metabolic Characteristics, Pergamon Press (1975)

(6) ICRP Publication 48, The Metabolism of Plutonium and Related Elements, Annals of the ICRP, Vol.16, No.2/3 (1986)

(7) OECD/NEA Committee on Radiation Protection and Public Health, Report of an Expert Group on Gut Transfer Factors, Paris (1988)

(8) Leggett,R.W. and Eckerman,K.F., A Model for the Age-dependent Skeletal Retention of Plutonium. In: Radiation Risk Protection (A. Kaul et al., Eds), Vol.1, pp.454-457, Berlin (1984)

表1.2.1　最近の年齢依存線量評価に関する報告

レポート	対象年齢					
ISH-HEFT79 (1985)		1	5	10	15	adult
ORNL/TM-8256 (1984)	0	1	5	10	15	adult
AECL-7919 (1983)	infant					adult
NRPB-GS7 (1987)		1		10		adult
ICRP Publ.53 (1987)		1	5	10	15	adult
ICRP Publ.56 (1989)	0	1	5	10	15	adult

表1.2.2　ICRP Publication 56 の年齢区分

年齢区分		対象の年齢範囲	呼び名
3カ月齢	:	誕生より12カ月まで	Infant（乳児）
1歳	:	1歳と2歳	Children（子供）
5歳	:	3歳以上7歳まで	
10歳	:	8歳以上12歳まで	
15歳	:	13歳以上17歳まで	Teen（ティーン）
成人	:	18歳以上	

表1.2.3　ＳＥＥの計算に用いる標準臓器質量

臓器名	臓器質量（g）					
	新生児	1歳	5歳	10歳	15歳	ICRP標準人[a]
	3.4 kg	9.8 kg	19 kg	32 kg	55 kg	70 kg
副腎	5.83	3.52	5.27	7.22	10.5	14.0
脳	325	884	1260	1360	1410	1400
乳房	0.107	0.732	1.51	2.60	360	360
胆嚢壁	0.408	0.910	3.73	7.28	9.27	10.0
胃腸管						
-下部大腸壁	7.96	20.6	41.4	70.0	127	160
-小腸壁	32.6	84.9	169	286	516	640
-胃壁	6.41	21.8	49.1	85.1	118	150
-上部大腸壁	10.5	27.8	55.2	93.4	168	210
心臓壁	25.4	50.6	92.8	151	241	330
腎臓	22.9	62.9	116	173	248	310
肝臓	121	292	584	887	1400	1800
肺	50.6	143	290	453	651	1000
卵巣	0.328	0.714	1.73	3.13	11.0	11.0
膵臓	2.80	10.3	23.6	30.0	64.9	100
骨格						
-活性骨髄	47	150	320	610	1050	1500
-骨内膜組織	15.0	26.0	37.0	68.0	120	120
皮膚	118	271	538	888	2150	2600
脾臓	9.11	25.5	48.3	77.4	123	180
睾丸	0.843	1.21	1.63	1.89	15.5	35.0
胸線	11.3	22.9	29.6	31.4	28.4	20.0
甲状腺	1.29	1.78	3.45	7.93	12.4	20.0
膀胱壁	2.88	7.70	14.5	23.2	35.9	45.0
尿道	3.85	1.45	2.70	4.16	80.0	80.0

a）ICRP 23による

表1.2.4　食物あるいは飲料水中の放射性核種のための専門家グループが示唆する f_1 の値

元素		吸収割合（f_1）		
原子番号	元素名	ICRP 値（成人）	NEA 専門家グループ（成人）	（誕生後1年間）
26	鉄	0.10	0.30	0.60
27	コバルト	0.30	0.30	0.60
34	セレン	0.80	0.80	0.80
38	ストロンチウム	0.30	0.30	0.60
39	イットリウム	0.0001	0.001	0.01
40	ジルコニウム	0.002	0.01	0.02
41	ニオブ	0.01	0.01	0.02
43	テクネチウム	0.80	0.80	0.80
44	ルテニウム	0.05	0.05	0.10
46	パラジウム	0.005	0.01	0.02
50	スズ	0.02	0.02	0.04
51	アンチモン	0.01	0.10	0.20
53	ヨウ素	1.0	1.0	1.0
55	セシウム	1.0	1.0	1.0
56	バリウム	0.10	0.10	0.20
57	ランタン	0.001	0.001	0.01
82	鉛	0.20	0.30	0.60
84	ポロニウム	0.10	0.30	0.60
88	ラジウム	0.20	0.20	0.40
90	トリウム	0.0002	0.001	0.01
92	ウラン	0.05	0.05	0.10
93	ネプツニウム	0.001	0.001	0.01
94	プルトニウム	0.001	0.001	0.01
95	アメリシウム	0.001	0.001	0.01
96	キュリウム	0.001	0.001	0.01
98	カリホルニウム	0.001	0.001	0,01
103	ローレンシウム		0.001	0.01

表1.2.5　セシウム体内動態データ

		分布（%）		生物学的半減期（日）	
		全身		全身	
年齢	f_1	A	B	A	B
3カ月	1		100		16
1歳	1		100		13
5歳	1	45	55	9.1	30
10歳	1	30	70	5.8	50
15歳	1	13	87	2.2	93
成人	1	10	90	2	110

表1.2.6　^{137}Csの線量係数（70歳までの積算値，Sv/Bq）

摂取時の年齢	3カ月齢	1歳	5歳	10歳	15歳	成人
副腎	1.9 E-08	1.1 E-08	9.1 E-09	1.0 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
膀胱壁	1.8 E-08	1.0 E-08	9.0 E-09	9.5 E-09	1.3 E-08	1.4 E-08
骨表面	2.1 E-08	1.2 E-08	9.5 E-09	1.1 E-08	1.5 E-08	1.5 E-08
脳	1.7 E-08	9.9 E-09	8.2 E-09	8.8 E-09	1.2 E-08	1.1 E-08
乳房	1.6 E-08	9.1 E-09	7.3 E-09	8.0 E-09	1.1 E-08	1.1 E-08
消化管						
胃壁	2.2 E-08	1.2 E-08	9.8 E-09	1.0 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
小腸壁	1.9 E-08	1.1 E-08	9.4 E-09	1.0 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
上部大腸壁	1.9 E-08	1.1 E-08	9.1 E-09	1.0 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
下部大腸壁	1.8 E-08	1.0 E-08	9.0 E-09	9.9 E-09	1.3 E-08	1.4 E-08
腎臓	1.8 E-08	1.1 E-08	8.9 E-09	9.7 E-09	1.3 E-08	1.3 E-08
肝臓	1.9 E-08	1.1 E-08	8.9 E-09	9.7 E-09	1.3 E-08	1.3 E-08
肺	1.8 E-08	1.0 E-08	8.2 E-09	9.2 E-09	1.3 E-08	1.2 E-08
卵巣	1.9 E-08	1.1 E-08	9.4 E-09	1.0 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
膵臓	1.9 E-08	1.1 E-08	9.4 E-09	1.0 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
赤色骨髄	2.7 E-08	1.3 E-08	9.5 E-09	1.1 E-08	1.5 E-08	1.4 E-08
皮膚	1.6 E-08	8.9 E-09	7.2 E-09	7.8 E-09	1.0 E-08	1.1 E-08
脾臓	1.8 E-08	1.1 E-08	8.9 E-09	9.7 E-09	1.3 E-08	1.3 E-08
睾丸	1.7 E-08	9.9 E-09	8.0 E-09	8.9 E-09	1.2 E-08	1.2 E-08
胸線	1.8 E-08	1.0 E-08	8.4 E-09	9.4 E-09	1.3 E-08	1.3 E-08
甲状腺	1.9 E-08	1.1 E-08	8.9 E-09	9.7 E-09	1.3 E-08	1.3 E-08
子宮	1.9 E-08	1.1 E-08	9.4 E-09	1.1 E-08	1.4 E-08	1.4 E-08
実効線量当量	2.0 E-08	1.1 E-08	9.0 E-09	9.8 E-09	1.4 E-08	1.3 E-08

1.3　生態圏移行モデルの妥当性検証国際共同研究（ＢＩＯＭＯＶＳ）

(1)　研究の背景と目的

放射性核種や有害微量物質の生態圏への放出によってもたらされる環境への影響を評価するために，しばしば数学モデルが用いられる。数学モデルおよびその基礎となる概念モデルは現実の世界の近似にすぎないので，その予測には常に不確かさが伴う。したがって，信頼のできる意思決定がなされるためには，このモデルによる予測に付随する不確かさの広がりを推定しておかなければならないし，必要ならばその不確かさを減らすように努力しなければならない。結果の信頼性を高める方法を見つけると同時に，モデルの予測値に付随する不確かさの広がりを推定するには，モデルが厳密な意味で検証されている必要がある。

ＢＩＯＭＯＶＳ（Biospheric Model Validation stydy)は，1985年にスウェーデン国立放射線防護研究所（Swedish National Institute of Radiation Protection:SSI）の主催で，生態圏における放射性核種および他の有害微量物質の移行や蓄積を予測するモデルの検証のために始まった国際共同研究である。この研究は５年間にわたって続けられ1990年に終了した。

ＢＩＯＭＯＶＳ研究の主な目的は，

－選択された汚染質および被ばくとシナリオに対して，環境評価モデルの予測の正確さを検証すること，

－モデル構造の不備，仮定の誤り，あるいは選ばれた入力データの違い等による予測結果の相違とその原因を明らかにすること，

－モデル予測の正確さを改善するために，将来の研究の優先度を低減すること

にあった。またこの他に，生態圏における微量物質の環境中挙動を定量的に評価する際の信頼性を高めるためのアイデアや経験および情報の交換を行うフォーラムとしての役割を果たすことも目的の一つであった。

ＢＩＯＭＯＶＳでは，これらの目的を達成するために２つの異なる方法を用いた。

－アプローチＡと呼ばれる方法では，適切な実測データに基づいてモデル検証を行うシナリオが定式化され，モデルによる予測値がモデルとは独立な実測データと比較される。この場合，実測データは予測値が提出されるまで，解析者には明らかにされない。いわゆるブラインドテストである。

－アプローチＢでは，環境評価の優先度に基づいて選択された検証シナリオに対して，

各モデルによる予測値とそれに付随する不確かさの推定値の比較が行われその違いを解析する。

この研究では，特に被ばく（暴露）評価（アセスメント）にとって重要な陸系および水系の移行経路を対象とした。

(2) 参加機関および研究の実施方法

ＢＩＯＭＯＶＳは正式参加機関の代表各１名から構成される調整グループによって研究方針が決定された。運営はＳＳＩが行い，スウェーデンのコンサルタント会社（Kemakta Co.）がプロジェクト事務局となって進められた。表1.3.1に示すように14ケ国24機関が参加し，このうち12機関がＢＩＯＭＯＶＳ調整グループを構成した。国際原子力機関（ＩＡＥＡ）および経済協力開発機構原子力機関（ＯＥＣＤ／ＮＥＡ）はオブザーバーとして参加した。そのほか，ＳＳＩ以外に国際放射生態学者連合（International Union of Radioecologists: IUR)および北欧原子力関係連絡委員会（Nordic Liason Committee for Atomic Energy)が財政援助を行った。ＢＩＯＭＯＶＳは年２回のワークショップが開かれ，検証シナリオの結果の解析と討論，今後の計画が話し合われた。

一つのシナリオが選択され決定されると，ワーキンググループのリーダーが指名され，その下で参加者から提出された予測結果の取りまとめと議論が行われ，最後にシナリオ毎にワーキンググループリーダーが技術報告書をまとめた。参加者は実測データとの比較（Ａシナリオ）あるいは，他の参加者の予測値との比較（Ｂシナリオ）と解析のために，自分達の計算モデル（コード）による解析を行い結果を提出した。また，自分達の予測結果に付随する不確かさの推定も求められた。各参加者が用いたモデルの記述とパラメータの値は全て技術報告書に記載され，結果の解析に役立てられた。

まとめられた技術報告書には，表1.3.2のように各シナリオ毎の結果と結論以外に，全てのシナリオに共通の事柄をまとめた４つの報告書が含まれている。その一つはモデル化の目的のために用いられる分析データの質の問題について議論を行っている。他の二つは不確かさ解析に用いられる計算ソフトの開発について，もう一つは技術報告書で使われた語の解説である。

(3) 検証シナリオ

アプローチＡでは以下の標題に示すような７つのシナリオが議論の対象となった。

Ａ１：河川への水銀の放出

Ａ２：セラフィールド周辺環境における放射能（削除）

Ａ３：北欧諸国，イタリアおよび日本のフォールアウトデータ（削除）

Ａ４：チェルノブイル事故後のミルク，牛肉，麦中の^{131}Ｉおよび ^{137}Ｃｓ

Ａ５：湖の生態系におけるセシウムの動態

Ａ６：土壌中のセシウムの移動（削除）

Ａ７：土壌中のカドミウムの移動（削除）

このうち，Ａ２とＡ３はチェルノブイル事故以前に提案されたシナリオで，いずれも陸系における放射性核種の食物連鎖中移行を対象としていた。しかし事故後，チェルノブイルデータを用いたＡ４シナリオが作られて削除となった。シナリオＡ６は，チェルノブイル事故で地表に沈着したセシウムの土壌中浸透のデータを用いる予定で提案されたが，時間的な理由から削除された。また同様な理由で，重金属汚染として代表的なカドミウムを対象としたシナリオＡ７も削除された。

したがって，アプローチＡでは３つの検証シナリオＡ１，Ａ４，Ａ５でモデル予測と実測値の比較検討が行われた。Ａ１は，淡水魚の水銀汚染に関するシナリオで，米国およびカナダの３つの河川において過去に工場から水銀の放出が行われ，それによる淡水魚の汚染濃度をモデルで予測するものであった。Ａ４はチェルノブイル事故で放出された ^{131}Ｉおよび ^{137}Ｃｓによるミルク，牛肉，麦の汚染を予測するシナリオで次説でその概要を述べる。Ａ５は，米国 East Twin湖における ^{137}Ｃｓの放出，チェルノブイル事故後のノルウェーHoysjoen 湖およびスウェーデン Hillesjon湖における ^{137}Ｃｓの降下による湖水，堆積物，淡水魚中の濃度時間変化の予測が問題となった。

アプローチＢでは，以下に示すような８つのシナリオが提案された。

Ｂ１：大気からの沈着

Ｂ２：汚染地下水による灌漑

Ｂ３：河川から湖への放出

Ｂ４：大気中への事故による放出（削除）

Ｂ５：湖の時間変化

Ｂ６：汚染地下水の土壌への輸送

Ｂ７：汚染地下水の河川への輸送

Ｂ８：線量評価における生態圏中移行の相対的重要度

このうち，Ｂ４はやはりチェルノブイル事故以前に提案されたシナリオで，事故的な大気放出を仮定して農作物中の放射性核種濃度を予測するものであったが，アプローチＡのシナリオＡ４に置き換えられた。Ｂ１とＢ８を除く５つのシナリオは全て廃棄物処分に関連するものである。Ｂ３とＢ５は湖のような地表面貯留水に達した水中における放射性核種を対象としており，地圏と生態圏の間の境界における核種の移行を問題とするために，Ｂ６とＢ７の２つのシナリオが追加された。

シナリオＢ８は他のシナリオと異なり，生態圏における食物連鎖移行モデルの予測の不確かさが線量評価全体に及ぼす相対的重要度を明らかにすることを目的として提案された。

(4) チェルノブイル事故シナリオ

ｉ）背景と目的

大気中の放射性核種の農作物への移行のモデル化は，核燃料サイクルから放出される核種の放射線影響を評価する際に重要であり，多くの国で原子炉の放出限度の規制や許認可に用いられてきた。用いる移行モデルは，いくつかのステップから成っており，各ステップはまた複数の移行のプロセスを含んでいる。これまで個々の移行のプロセスは実験的にあるいは野外で広範に研究され，それを表す数学表式が導かれる移行係数が評価されてきた。しかしながら，全体の評価モデルの検証は原子炉からの実際の核種の放出や，あるいは核実験によるフォールアウトを利用して僅かに行われていたに過ぎなかった。その意味でチェルノブイル事故の際に測定された様々な環境媒体中の汚染に関するデータは，環境評価モデルの検証のためには貴重であった。欧州，アジア，北米の13地点から集められた汚染データおよびその地域の農畜産関係の情報がシナリオＡ４に利用された（表1.3.3）。

この検証シナリオには，以下に示すようないくつかの制約があった。

－13地点の測定データ1500件以上，25のモデルによる予測値2500件以上と解析すべきデータが膨大である。

－測定データはほとんどの場合，緊急のモニタリング計画により収集されており，周到に準備された放出実験から得られる程のデータの質，量および一様性は期待できない。

－モデルは様々なタイプがあり，また目的もそれぞれ異なっている。

また，測定者によって提供された付帯情報のレベルがサイト毎に異なっているので，詳細な情報を用いるモデルは全てのサイトを一様に評価することができない。これらのこと

を考慮して，この検証シナリオでは特に以下の点に着目した。

－異なるサイトのモデル予測値と測定値についてできるだけ共通の傾向を特定する。

－移行を制御する重要なプロセスを特定する。

－プロセスを最も良く記述する数学表式を特定する。

－仮に利用できた場合に予測値の精度を非常に向上させるような付帯情報を特定する。

ii）検証シナリオとモデル

参加機関に提供されたデータは，チェルノブイル事故後の ^{131}Ｉおよび ^{137}Ｃｓの大気中の日平均濃度および日降水量，牧草および麦の栽培状況，牛の飼育状況である。これらの情報を基に参加機関は，^{131}Ｉおよび ^{137}Ｃｓの地表沈着量，^{131}Ｉの牧草およびミルク中の濃度，^{137}Ｃｓの牧草，ミルク，牛肉および麦中濃度を予測した。また，全ての予測値の不確かさも求められた。参加したモデルはスクリーニングに用いるためにかなり安全側の結果を導くものから，最適予測をめざすもの，チェルノブイル事故後の経験を反映させたものまで多種多様であった（表1.3.4）。

iii）牧草の汚染

図1.3.1，1.3.2に示すように，ほとんどのモデルは牧草中のヨウ素およびセシウムの時間積算濃度をほとんどのサイトで１桁以内で予測し，およそ半数のモデルはファクター２の範囲で予測した。ほとんどのモデルは，降雨後の牧草中のヨウ素濃度を過大評価した。これは，降水沈着のヨウ素と牧草中の濃度の実測データには，ほとんど相関がないのに，それらのモデルで用いられた捕捉割合が大きすぎたことを示している。ヨウ素とセシウムで同じ捕捉割合を用いているほとんどのモデルは，牧草中のヨウ素濃度は過大評価したが，降水沈着と相関のある牧草中のセシウム濃度は比較的よく予測できた。

ウエザリングによる牧草からの減少割合は，ほとんどのモデルで沈着から30日以内の観測値に対してファクター２以内であったが，セシウムの汚染のピーク後30日以降の減少割合をほとんどのモデルは予測できなかった。僅かに３つのモデルが，ピークから30日以後の牧草中の ^{137}Ｃｓの時間的変化を予測できた。そのうちの２つのモデルは，再浮遊のプロセスを考慮しており，また３つのモデル共，牧草汚染のモデル化が他より詳細であった。

iv）ミルクの汚染

ミルク中のヨウ素の時間積算濃度の予測性能は，図1.3.3に示すよう実測値に対する比で２から３桁とかなりの巾に広がっていて，明らかに過大評価の傾向がみられる。セシウ

ムの方が予測性能がよいが，同じように過大評価の傾向がみられる（図1.3.4）。時間積算および時間依存の両方の予測において，牛の体内における核種の以降を模擬した多重コンパートメントモデルの性能は，牧草からミルクへの移行比Ｆｍ値を用いるモデルと大きな相違はなかった。

従来から用いられている飼料からミルクへのヨウ素の移行係数F_m（d/L）の値1×10^{-2} d/L は，各サイトの実測値に基づいて下方修正するのが適当である。ここで観測された値の範囲(4.2×10^{-4}から 7.3×10^{-3}d/L)は，チェルノブイル後の文献値をほとんどカバーしている。図1.3.5に示すように，チェルノブイル後の測定情報を考慮したモデル（ＢＩＬＴＨとＥＣＯＳＹＳ）が，飼料からミルクへの移行を最も正確に予測した。一方セシウムのＦｍ値は，核実験によるフォールアウトデータと一致していた。

生牧草を与えていない期間の比較的低い汚染のレベルを予測するには，呼吸および地表面からの経口摂取をモデルが考慮する必要がある。ピーク時30日までのミルクからの核種の減衰は比較的よく予測できたが，30日以降は土壌摂取および再浮遊を考慮したモデルの方が，考慮しないモデルより予測が良かった。

(5) 得られた成果

ＢＩＯＭＯＶＳは，生態圏における放射性核種の移行を予測するために共通に用いられるモデルの検証と評価のための国際的なフォーラムを提供した。他の国際的な研究が，放射性核種および他の汚染物質の大気や海洋といった一次的な環境媒体での移行の検証と評価に向けられていたのに対し，ＢＩＯＭＯＶＳは放射生態学の分野におけるモデル検証を対象とした初めての組織であった。ＢＩＯＭＯＶＳによってなされた研究は，放射生態学におけるモデル化には一次的な環境媒体（例えば，大気，土壌）とその媒体内の生物要素の間という境界間の移行を扱うという点に重要であった。モデルの検証と評価のための国際組織として，ＢＩＯＭＯＶＳは以下の点で初の試みであった。

－各々のモデル予測に不確かさの定量的な推定が求められ，その不確かさの扱いと結果が評価された。

－非放射性の微量元素（水銀）の生態圏における移行と蓄積を予測するために，放射性核種の評価の目的に開発されたモデルが使われ検証された。

－チェルノブイル事故に起因する降下物の世界各国のデータが，モデル予測の評価のためにブラインドテストとして利用された。

非常に重要な成果は，巾広い研究者の直接の参加にある。特定のシナリオを採用することにより，各参加機関によって様々な目的のために開発されたモデル（あるいは計算コード）の評価のための共通の土俵が提供された。それらのモデルによる結果の相違の理由を調べることによって，モデルが記述する基本的なプロセスの理解が改善され，結果の不確かさに影響を与える多くの要因をよりよく理解することができた。ＢＩＯＭＯＶＳの活動のこの点に関しては，広い範囲の専門知識を持った専門家の存在によるところが大きい。全てのシナリオにおいて，その結果と結論は盛んな議論を通して得られたものである。モデルによる予測値の比較では，多くの場合，結果の提出に責任のあるグループによっては見つけられなかったモデル構造，プロセス記述，コーディングの誤りが見つかった。

Ｂシナリオを通してＢＩＯＭＯＶＳでは，生態圏の主要な要素（例えば，固体廃棄物処分に関連して地下水と土壌，およびその他のリザーバー）への核種の移行およびそれらの間の移行のモデル化のための基礎に関するコンセンサスが得られた。土壌や湖の堆積物中における放射性核種の蓄積に起因する被ばく線量が，飲料水に使われる河川や湖に同量の放射能が入ったことによる線量を超える可能性があることも示した。地圏と生態圏の境界間の核種の移行，および地下水中の核種の放出流域における表面土壌への移行のモデル化に際して生ずる問題点に焦点が当てられた。プロセスの記述とモデル化の方策の改善のためには，さらに野外の研究を必要とする領域である。

ＢＩＯＭＯＶＳには多くの参加者があったため，モデル使用者がモデル予測に及ぼす影響を評価することができた。シナリオ記述の解釈，関連するパラメータ値の選択，不確かさの推定には，モデル使用者の判断が必要であるため，モデル予測の出力にその判断が大きな役割を演ずる。したがって，同じようなデータベースをもつ同じようなモデルでも，異なるグループが使うとしばしば非常に違った結果に至る。このことはまた，適切なパラメータの値を持った基本的に正しいモデルでも，アセスメントの問題の誤った理解や要求事項の不適切な選定によって，誤った結果を導く可能性があることを示唆している。

ＢＩＯＭＯＶＳ研究の成果は，直接参加したものだけに留まるものではない。各検証シナリオの技術報告書には十分な情報が含まれているので，参加できなかったグループも自分達のモデルの検証に役立てることが可能である。モデル予測の相違の理由についての報告書内の議論はまた，新しいモデルの評価の際に有効である。

(6) 結論のまとめ

最後に，ＢＩＯＭＯＶＳ研究から得られた環境評価モデルに関するいくつかの一般的な結論を以下にまとめる。

ｉ）個々の検証シナリオの結果の解析によると，研究の進んでいる核種（^{131}Ｉ，^{137}Ｃｓ）と移行経路（牧草－ミルク経路）に対して，モデル予測の信頼性が最も高く，不確かさは１桁の範囲に含まれた。これに対し，Ｂシナリオで扱った廃棄物処分に関連するような長半減期核種の放出では，不確かさは１桁以上でモデル予測の信頼性が低かった。

ii）ある特定の環境媒体における特定の核種の濃度予測に大きな不確かさが伴っていても，それが必ずしも線量やリスクの総合的な評価の信頼性を損なうわけではない。シナリオＢ８で考察したように，線量全体に対するその核種と移行経路の寄与を考慮しなければならない。

iii）どんなモデルでも，その予測が成功したかどうかの規準は，そのモデルが開発された目的と，そのモデルが通常用いられる適用状況に依存するであろう。したがって，チェルノブイルシナリオで過大評価をした多くのモデルは，実際の濃度を過小評価しないように意図されていたという理由でモデルの変更は必要ないかも知れない。

iv）数多くの実験研究や野外測定から得られたデータの統計値を用いて，パラメータの値とその不確かさを決めるのは必ずしも適当でない。なぜなら，そういったデータは対象とする評価の要求とは異なる状況で測られた可能性があるからである。パラメータの不確かさを表す確率分布を選ぶ際に，文献から無批判に採用するのは適当でない。モデルの適用，パラメータ値の決定，不確かさの推定の際の科学的な判断のためには，モデラーは関連する分野の実験研究者や専門家との協力が重要である。

v）一般にモデルの複雑さ，すなわち一つのプロセスあるいは一連のプロセスを記述する際に用いる詳細さの程度が増すに従い，様々な時間，空間スケールでの予測というような評価のいろいろな要求に対するモデルの融通性が増す。しかしながら，サイト特定のデータが利用できなくて，この融通性が生かされない場合も多い。このような時にデフォルト値が用いられると，モデル構造が複雑であってもより正確な予測は期待できない。

vi）単なる計算ミスの他に，モデルパラメータの値を推定するためのデータとその範囲を誤って使用したり，評価するシナリオを誤って解釈するといった誤りを見つける上でも，ＢＩＯＭＯＶＳで用いたアプローチは共に有効であった。しかしこれらの誤りは結果を提出した後に，他のモデルとの比較検討の際に明らかとなった。これから，重要なアセスメン

トにおいては，二つ以上の異なるグループによる取り組みが重要であるということが言える。

vii）実測値をうまく表すように，モデルを“いじる”ことは簡単にできる。しかし，A4のブラインドテストでは ^{131}Iや ^{137}Csの陸上生態系の移行のように，今までよくわかっていると思われているプロセスのモデル計算でも不確かさが比較的大きいことがわかった。

表1.3.1　BIOMOVS研究に参加している機関

機　　関	国
Studiecentrum voor Kernenenergie, SCK/CEN(*)	Belgium
Atomic Energy of Canada Limited Research Company, AECL(*)	Canada
Chalk River Nuclear Laboratory, CRNL(*)	Canada
Riso National Laboratory, RISO(*)	Denmark
Technical Research Centre of Finland, VTT(*)	Finland
Institute of Radiation Hygiene, BGA	F.R.G.
Gesellschaft für Strahlen- und Umwelt Forschung, GSF	F.R.G.
National Research Institute for Radiobiology and Radiohygiene, NRIRR(*)	Hungary
Comitato Nazionale per l'Energia Atomica-Disp, ENEA-DISP(*)	Italy
Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI(*)	Japan
Laboratory of Radiation Research, RIVM	Netherlands
Centro de Investigaciones Energeticas Medioamientales y Technologicas - Inst. PRYMA, CIEMAT-PRYMA	Spain
Empresa Nacional de Pesiduos Radioactivos, SA(*)	Spain
National Institute of Radiation Protection, NIRP(*)	Sweden
Studsvik Energiteknik AB, Studsvik	Sweden
National Cooperative for the Storage of Radioactive Waste, NAGRA(*)	Switzerland
Paul Scherrer Institute, PSI	Switzerland
Central Electricity Generating Board, CEGB	U.K.
Department of Environment / Associated Nuclear Services, ANS	U.K.
Ministry of Agriculture, Fisheries and Food, MAFF	U.K.
National Radiological Protection Board, NRPB(*)	U.K.
Colorado State University, CSU	U.S.A.
Department of Energy, DOE(*)	U.S.A.
Oak Ridge National Laboratory, ORNL	U.S.A.

(*)　調整グループを構成している機関

表1.3.2　BIOMOVS研究の報告書

1.	A1	Technical Report No. 7: Mercury in Aquatic Ecosystems
2.	A4	Technical Report No. 13: International Model Testing Using Chernobyl Fallout Data for I-131 in Forage and Milk, and Cs-137 in Forage, Milk, Beef and Grain
3.	A5	Technical Report No. 12: Dynamics within Lake Ecosystems
4.	B1	Technical Report No. 8: Atmospheric Deposition
5.	B2	Technical Report No. 6: Irrigation with Contaminated Groundwater
6.	B3	Technical Report No. 1: Release of Radium-226 and Thorium-230 to a Lake
7.	B5	Technical Report No. 5: Aging of a Lake
8.	B6	Technical Report No. 9: Transport of Radionuclides to Root-Zone Soil from Contaminated Groundwater
9.	B7	Technical Report No. 10: Transport of Contaminated Groundwater to a River
10.	B8	Technical Report No. 11: The Relative Importance of Ingestion for Multiple Pathway Dose assessments
11.	TAM3	A program demonstrating Monte Carlo sensitivity and uncertainty analysis. April 1988.
12.	B. Salbu. The quality of analytical data for modelling purposes. September 1988.	
13.	Users guide for the program TAMDYN, May 1989.	
14.	The Glossary.	

表1.3.3　シナリオＡ４で用いられた測定データの観測地とデータの種類

Site			I-131					Cs-137							
Code	Location	Country	Wet Deposition	Dry Deposition	Total Deposition	Pasture Vegetation	Milk	Wet Deposition	Dry Deposition	Total Deposition	Pasture Vegetation	Milk	Beef	Winter Grain	Spring Grain
T	Roskilde	Denmark	X		X	X	X	X		X	X	X	X	X	X
S	Geel	Belgium	X			X	X	X			X	X			X
C	Tokai	Japan	X		X	X	X	X		X	X	X		X	
H	Tranvik	Sweden	X		X	X	X	X		X	X	X	X	X	
E	Anguillara	Italy				X	X	X	X	X	X	X	X		
R	Petten	Netherlands	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			
N	Neuherberg	Germany, F.R.	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	
O	Oak Ridge	Tennessee	X			X	X								
B	Tarapur	India				X	X								
Y	Berlin	Germany, F.R.	X			X	X	X			X	X			
L	Loviisa	Finland			X	X	X			X	X	X	X	X	X
IV	Budapest	Hungary	X	X	X	X	X			X	X	X	X		
V	Portland	Oregon	X			X	X								

表1.3.4　参加機関のモデルとそこで考慮された移行経路

Models			Processes																										
			Model Characteristics				Deposition				Vegetation Contamination						Contamination Losses of Vegetation			Milk/Beef					Grain Contamination				
No	Name	Country	equilibrium	time-dependent	conservative	best estimate	volumetric mixing ratio	washout rate constant	speciation of washout	speciation of fallout	area interception	Chamberlain's equation	plant partitioning	resuspension	rainsplash	root uptake	weathering	growth dilution	harvesting/grazing	transfer factor approach	multicompartment cow	inhalation of airborne s/h	inhalation of resuspended water	soil ingestion	spring grain	winter grain	distribution of cereals
1	ABG	FRG	X		X			X	X	X	X						X			X									
2	AIRDOS/EPA	USA	X			X		X		X	X						X			X									
3	BIOPATH	Sweden	X			X		X		X	X						X			X									
4	CHRONIC	Japan	X			X	X		X	X		X					X			X					X	X			
5	CRRIS	USA	X			X	X		X	X							X			X									
6	FOOD	USA	X			X			—	X	X						X			X									
7	RIST	Denmark	X			X																							
8	SCHRAADLO	Czechoslovakia	X			X	X		X	X	X						X			X									
9	SS57	IAEA/USA	X		X			X	X	X	X						X			X									
10	TERFOC	Japan	X			X	X		X	X		X					X			X					X	X			
11	BILTH	Netherlands		X		X		X	X	X	X						X				X			X						
12	CHERPAC	Canada		X	X		X		X	X	X					X	X			X		X			X	X			
13	CIRCLE	Japan		X		X	X		X		X	X				X	X	X		X									
14	DETRA	Finland		X		X		X			X			X		X	X		X		X		X	X	X				
15	DOSDIM	Belgium		X		X		X		X	X						X			X				X					X
16	ECOSYS	FRG		X		X		X	X	X							X	X		X					X	X			
17	ENEA PAS	Italy		X	X			X	X	X	X						X			X									
18	FARMLAND	UK		X		X		X	X	X		X					X				X	X	X	X	X	X			
19	PATHWAY	USA		X		X						X	X	X	X	X	X	X	X	X				X					
20	PRYMA	Spain		X		X		X	X	X	X		X	X	X	X	X	X			X			X						
21	RAGTIME	USA		X		X	X		X	X		X		X	X	X	X	X	X	X										
22	SPADE 2	UK		X		X						X	X	X	X		X		X		X	X		X	X	X			
23	SIRATEC	Hungary		X	X			X	X	X	X						X			X					X	X			

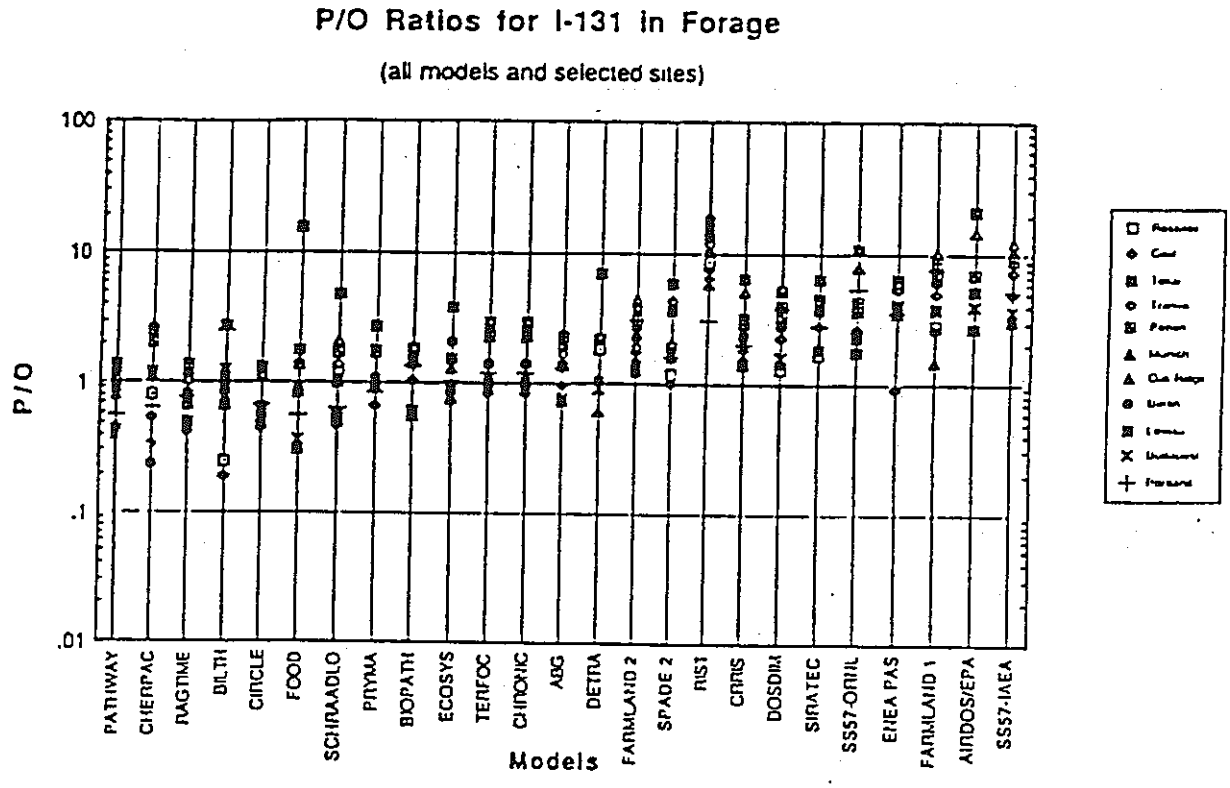


図1.3.1　牧草中の^{131}Iの時間積算濃度に関する比（モデル予測値／測定値）

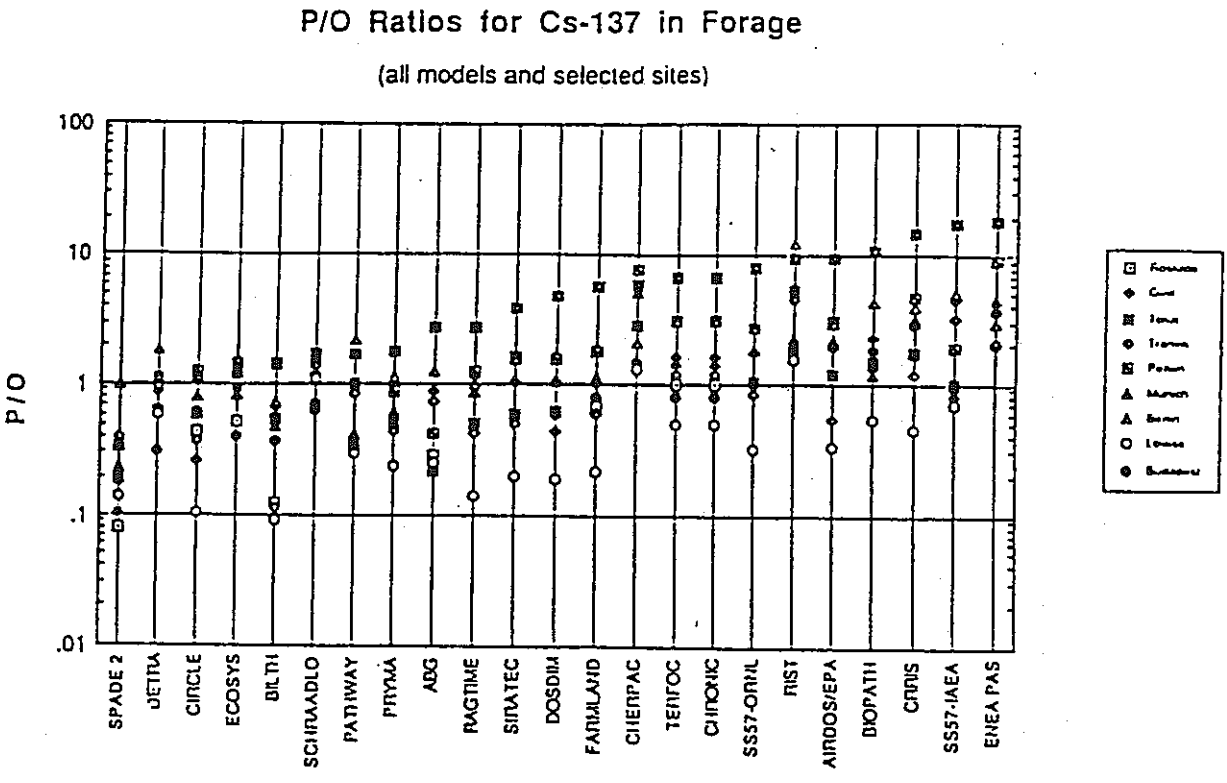


図1.3.2　牧草中の^{137}Csの時間積算濃度に関する比（モデル予測値／測定値）

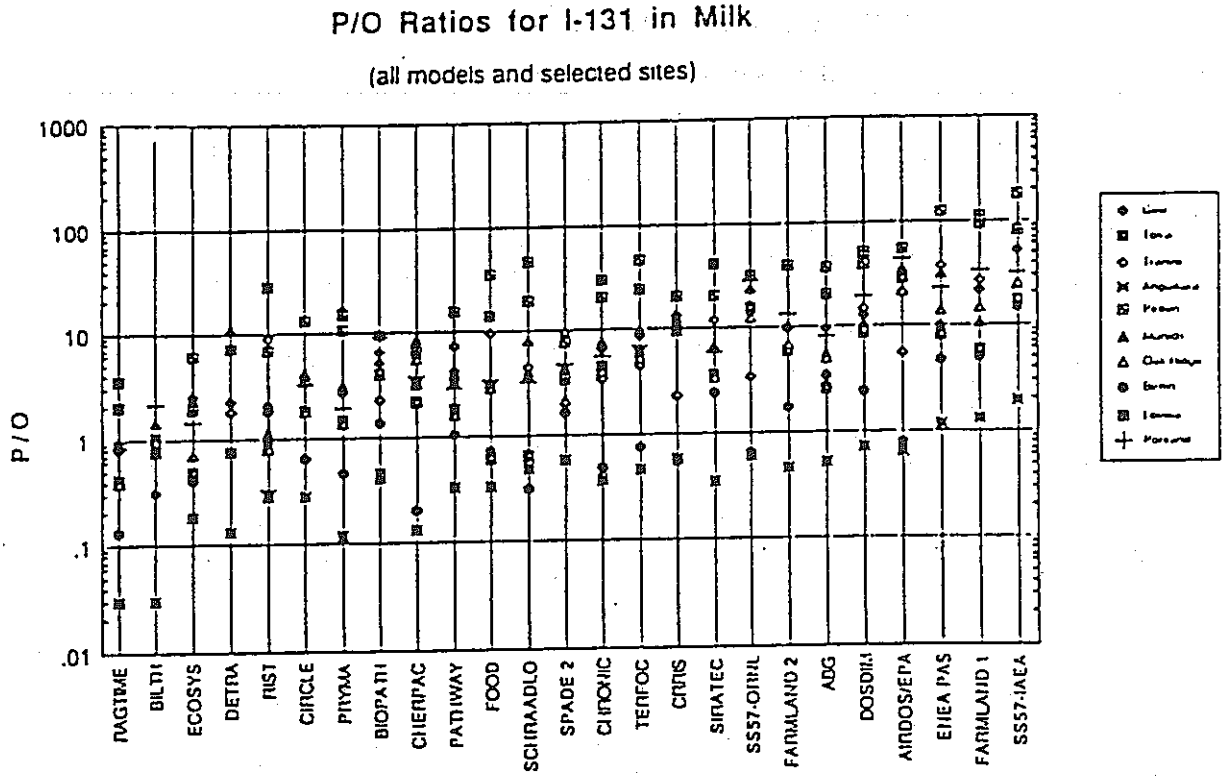


図1.3.3　ミルク中の^{131}Iの時間積算濃度に関する比（モデル予測値／測定値）

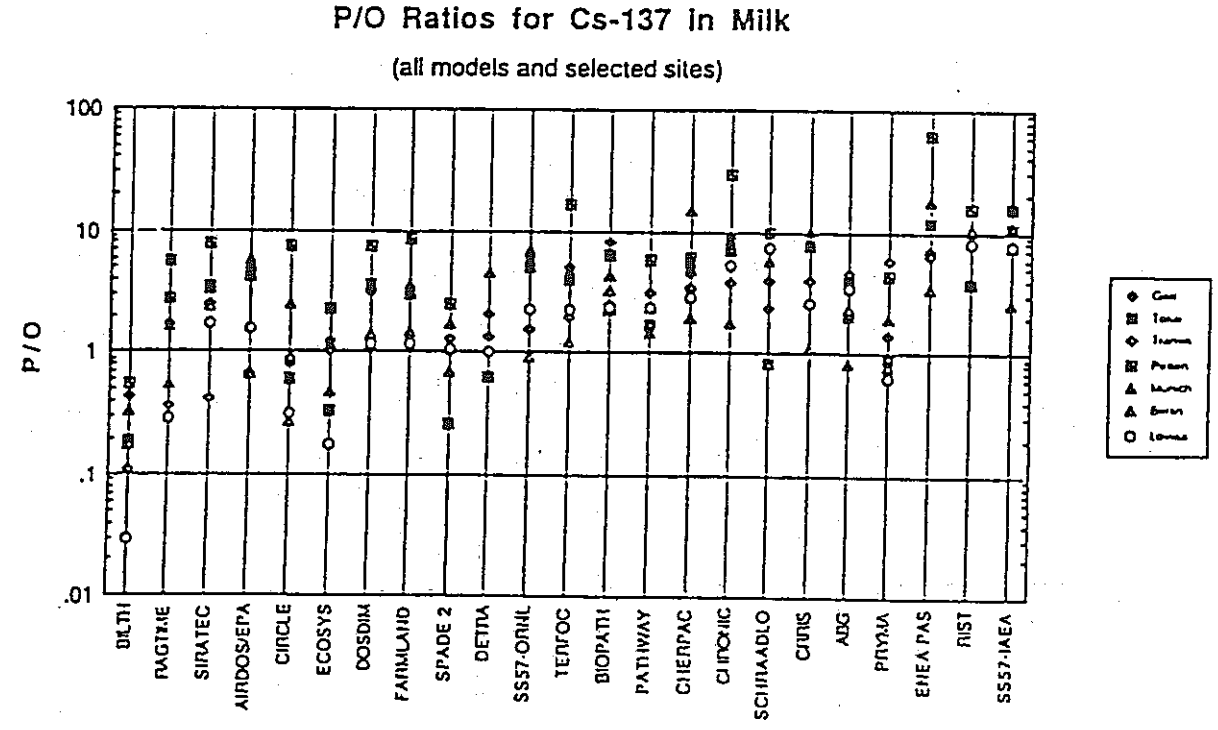


図1.3.4　ミルク中の^{137}Csの時間積算濃度に関する比（モデル予測値／測定値）

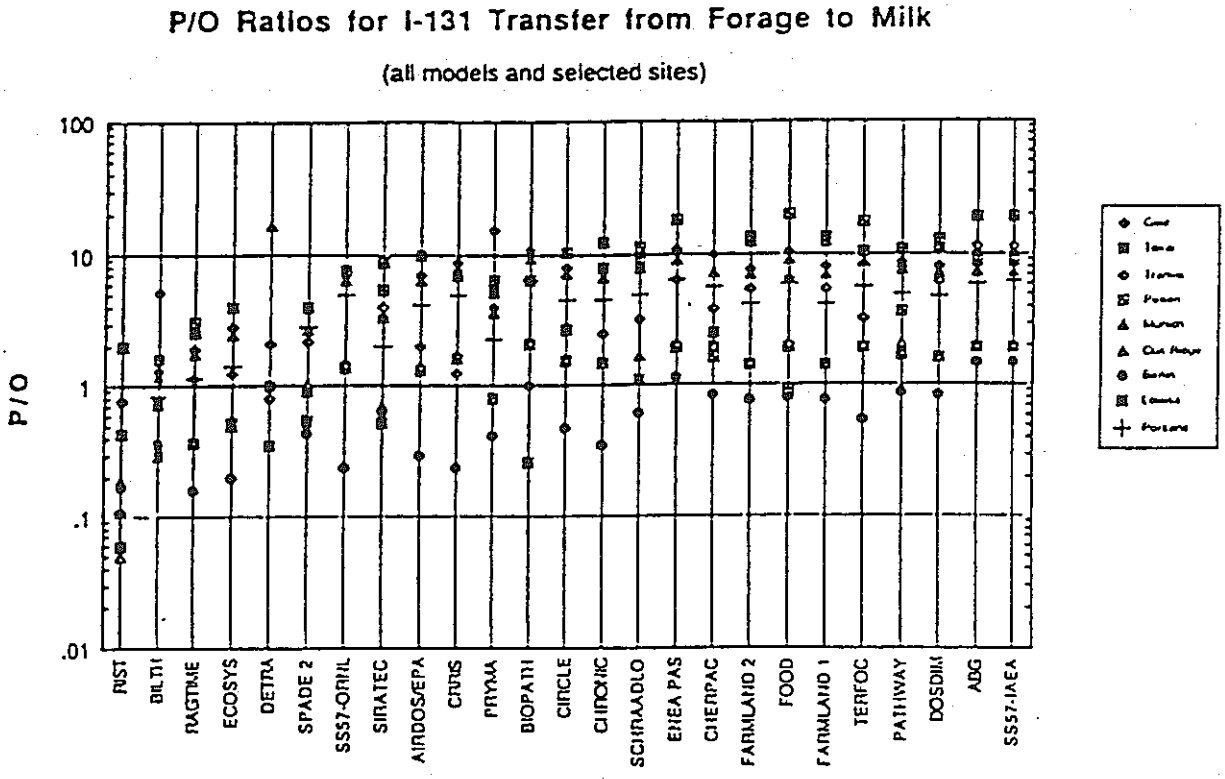


図1.3.5 ^{131}Iの牧草からミルクへの移行に関する比（モデル予測値／測定値）

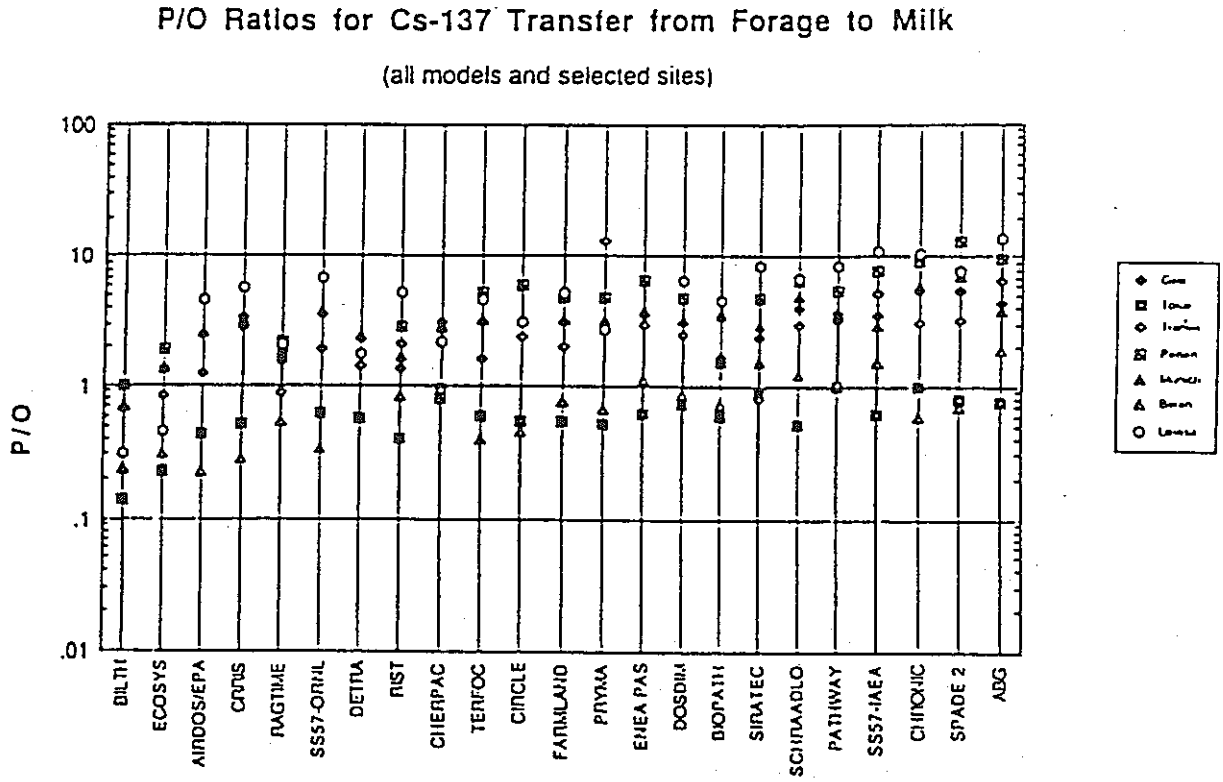


図1.3.6 ^{137}Csの牧草からミルクへの移行に関する比（モデル予測値／測定値）

1.4　関連資料の収集

国内外の動向について調査するため関連する文献について調査を行った。調査にあたっては，まず環境安全研究の体系化についての基礎的検討の参考として，これまで国内外において，放射性物質の環境への影響，環境での挙動等について総合的に扱った資料の抽出を試みた。また，最近の研究の動向については関連する海外の学術誌について主要論文の抽出を行った。以下にそれら文献の概要を示す。

(1)　環境安全に関する総合的な資料

i）海外の資料

① Radiological Assessment : A Textbook on Environmental Dose Analysis NUREG/CR-3332 1983.9

（放射線学的評価：環境線量解析のためのテキスト）

この報告書は1980年にワシントン州のシアトルで開催された保健物理学会の夏季スクールに提出された資料をもとにしてさらに編集し直されたものである。本報告書には，日常的または事故的に環境に放出された放射性物質の評価に広く利用される計算モデル，データベース，規制規準等について，その時点における最新の情報がまとめられている。この報告書の構成は以下のとおりである。

序論

1. 原子力施設および，医療や産業施設に関するソースターム
2. 大気中での放射性物質の輸送
3. 地表水中での放射性物質の輸送
4. 地下水中での放射性物質の輸送
5. 地上および水中の食物連鎖経路
6. 規準（標準）人：内部被ばく線量計算のシステム
7. 内部被ばく線量評価
8. 外部被ばく線量評価
9. 特別な放射性核種についてのモデル
10. 被ばくした人々の健康影響の計算
11. 環境放射線評価モデルの不確実性の評価
12. 放射性物質の環境への放出に関する規制基準

13. 放射線学的評価に関する計算コードの開発

14. 放射性物質の事故的放出の評価

② Radiological Assessment : Predicting the Transport, Bioaccumulation, and Uptake by Man of Radionuclides Released to the Environment NCRP Report No.76 1984.3.

（環境に放出された放射性核種の評価：移行，生物濃縮および人の摂取の予測）

この報告書は米国放射線防護測定審議会（ＮＣＲＰ）により放射性核種の環境への放出すら人の摂取までの移行に関するモデルの適用の現状についてレビューする目的で作成されたものである。この報告書の構成は以下のとおり。

はじめに

1. 序

2. 大気中に放出された放射性核種の評価

3. 地表水に放出された放射性核種の評価

4. 地下水中に放出された放射性核種の評価

5. 人の被ばく線量予測に関する係数の使用

6. モデル予測により生じる不確実性の同定

7. 環境評価に関するモデルの使用

8. 結論および推奨

付録Ａ：日常的放出モデルの事故時への適用可能性

付録Ｂ：用語

③ Generic Models and Prameters for Assessing the environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases - Exposures of Critical Groups IAEA Safety Series No.57 1982.

（日常的放出による放射性核種の環境への移行を評価する際の一般的モデルならびにパラメータ）

この報告書は，国際原子力機関（ＩＡＥＡ）により，放射性物質の環境への影響解析を担当する人々，とりわけ，大気中や水系への日常的な放出により最大に被ばくする者についての線量の一般的査定を行う，国の規制機関および技術担当者ならびに管理担当者に向けて書かれたものである。この報告書の構成は以下のとおり。

1. 序
2. 放射性物質の放出による局地的線量の評価方法
3. 大気への放出
4. 環境水中への放出
5. 陸地および水中の食物連鎖による放射性核種の移行
6. 算出した線量が，該当する線量限定に近ずく時点を知る方法
7. 結論
8. 要約

④ Critical Review : Radionuclide Transport, Sediment Transport, and Water Quality Mathematical Modeling ; and Radionuclide Adsorption/Desorption Mechanisms

NUREG/CR-1322 1981.1.

（放射性核種の輸送，堆積物の輸送，および水質の数理学的モデルのレビュー，および放射性核種の吸着および脱着機構）

この報告書は放射性核種の移行モデルの河川，河口，沿岸水，五大湖および貯水への適用性についての詳細な文献調査結果をまとめたものである。また幾つかの代表的な堆積物輸送モデルおよび水質モデルについて，放射性核種の輸送モデルの作成にあたって容易に適用可能かどうかを評価するために，同様に調査されている。

さらに，この報告書では放射性核種の吸着／脱着の分配係数についての議論，および吸着／脱着の機構についての提案等が含まれている。

なお，報告書の構成は以下のとおり。

概要

1. 序
2. 結論および推奨
3. 数値モデルについての概括
4. 非潮河における放射性核種の輸送
5. 河口における放射性核種の輸送
6. 海および五大湖における放射性核種の輸送
7. 湖および貯水池における放射性核種の輸送

8. 放射性核種の吸着／脱着

ii）国内の資料

① 環境被曝線量評価：㈳日本原子力学会「環境被曝線量評価」研究専門委員会 1975.8.

この報告書は㈳日本原子力学会に設置された「環境被曝線量評価」研究専門委員会において原子力施設周辺の住民のより正確な線量を評価する方法等について調査，研究された成果をまとめたものである。同委員会では，①環境における自然放射線，放射能のレベルとその変動状況，②原子力施設から環境へ放出される放射性排気，排水，③環境放射線測定と線量算定法，④環境試料の採取，放射能測定と線量算定法，⑤環境モニタリングシステム，⑥環境の被ばく線量算定コードなどについて検討されており，この報告書ではこれらについて以下の構成でまとめられている。

Ⅰ．原子力施設と環境

Ⅱ．被曝線量計算法

Ⅲ．線量算定コード

Ⅳ．大気拡散および沈着

Ⅴ．水系における拡散および沈着

Ⅵ．食物連鎖

Ⅶ．環境における放射性核種の挙動

Ⅷ．環境放射能・放射線の測定

Ⅸ．環境放射線管理について

Ⅹ．環境放射線モニタリング

XI．今後の課題

② 環境放射線ハンドブック：情報センター出版会　昭和60年11月

この試料は環境放射線の安全管理や調査研究に携わる者が必要とするデータを1冊にまとめることを目的として作成されたものであり，教育的内容も含め基本的事項から，放射線および放射能の測定の実際，被ばく線量の評価，さらにモニタリングの計画と実施について，体系的に必要とされるデータを網羅したものである。本書の構成は以下のとおり。

第1章　放射線と放射能に関する基礎

第2章　環境における放射線源とそのレベル

第３章　放射線の測定

第４章　放射能の測定

第５章　被曝線量の評価

第６章　環境放射線のモニタリング

③　環境放射線モニタリング：実務テキストシリーズNo.４；昭和62年７月

㈶原子力安全研究・環境放射線モニタリングテキスト編集委員会

このテキストは原子力施設の安全業務に従事する者，地方公共団体の環境安全の現場にいる者などを対象として，従来の調査研究成果，最近のデータ，情報等をまとめたものである。このテキストの構成は以下のとおり。

第１章　人間と環境放射線モニタリング

第２章　環境における放射線の分布と挙動

第３章　環境における放射性核種の分布と挙動

第４章　環境放射線モニタリングの考え方

第５章　環境放射線モニタリングの実際

第６章　被曝線量評価

第７章　測定結果の評価と公表

④　環境放射能－挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価－：佐伯誠道編，ソフトサイエンス社　1984年

この本は環境放射能に関連する過去30年の成果をまとめたものであり，放射性物質による環境汚染機構を体系的に解説してある。放射性物質の気圏，淡水圏，海洋における環境と生物相互の移行，さらに人体への摂取と代謝の機構，また放射線被ばく算定の手法を包含して一元化してある。

なお，この本の構成は以下のとおり。

1.　総論

2.　気圏における挙動

3.　陸圏，淡水圏における挙動

4.　海洋における挙動

5.　人体の放射性物質

6.　人体の放射線被曝線量評価

7. 環境放射性生態学実験法

8. 資料

(2) 最近の関連研究論文

最近の環境安全研究の動向を知るうえでの一助として，関連する学術誌について調査を行った。本年度は調査の第一段階として，Health Physics誌，J. Contaminant Hydrology誌，J. Environmental Radioactivity誌，およびWaste Management誌を対象としてここ１～２年の環境汚染に関する論文の抽出を試みた。以下に今回抽出した論文の概要を示す。

i) Health Physics誌

① Oxidation and Dispersion of HT in the Environment: The August 1986 Field Experiment at Chalk River.

R.M. Brown, G.L. Ogram and S.F. Spencer

環境中におけるＨＴの酸化と拡散：チョークリバーでの1986年８月の野外実験

Vol.58, No.2(Feb.), pp.171-181

ＨＴの野外放出実験を行い，比較的近距離での拡散状況を検討するとともに，ＨＴからＨＴＯへの変換，ＨＴの沈着速度測定，土壌と植物水分中ＨＴＯ濃度変化などを実測した。

② Ground Distribution Patterns of Selected Radioactive, Chemical, and Physical Contaminants from Dispersion of U Mill Tailings.

Shawki A. Ibrahim, F. Ward Whicker and Steven L. Simon

ウラン尾鉱の拡散による特定の放射性，化学及び物理的な汚染物の地中分布形態

Vol.58, No.3(Mar.), pp.321-328

ウラン尾鉱堆積場周辺の ^{226}Ｒａ，全α放射能が土壌のｐＨ，硫酸塩，塩化物，電導度などと共に測定され，硫酸塩濃度が汚染の指標となることが明らかにされた。

③ Examination of the Impact of Radioactive Liquid Effluent Releases form the Rancho Seco Nucear Power Plant.

C.W. Miller, W.D. Cottrell, J.M. Loar and J.P. Witherspoon

ランチォセコ原子力発電所からの放射性液体廃棄物放出によるインパクト評価

Vol.58, No.3(Mar.), pp.263-274

ランチォセコ原子力発電所周辺の環境影響評価がＯＲＮＬにより行われ，被ばく経路

は排水の流入する小河川中の ^{137}Ｃｓ，^{134}Ｃｓ，^{60}Ｃｏ，^{58}Ｃｏによる魚の摂取と灌漑用水によるが，周辺住民への影響はないとしている。

④ Recent Swedish Experiences in ^{222}Rn Control.

Gun Astri Swedjemark and Astrid M kitalo

^{222}Ｒｎ制御における最近のスウェーデンでの経験

Vol.58, No.4(Apr.), pp.453-460

室内でのＲｎ平衡等価濃度の調査が行われ，新築家屋，改修家屋，現存家屋の基準に対して現状がどの程度満足されているかが報告されている。

⑤ Measurement of ^{239}Pu in Soil and Plants in the Nishiyama District of Nagasaki.

Shunzo Okajima, Tatsuya Shimasaki and Tsuyoshi Kubo

長崎西山地区における土壌と植物中 ^{239}Ｐｕの測定

Vol.58, No.5(May.), pp.591-596

長崎西山地区における $^{239+240}$Ｐｕを測定し，未耕地土壌中では 20Bq/kgとコントロール地区の８倍，農産物への移行係数は10^{-4}～10^{-3}と ^{137}Ｃｓの１／100～１／200であることを示した。

⑥ Modeling Transfer of ^{137}Cs Fallout in a Large Finnish Watercourse.

Riitta Korhonen

フィンランドの大水路におけるフォールアウト ^{137}Ｃｓ移行のモデル化

Vol.59, No.4(Oct.), pp.443-454

フィンランドの湖を含む水路における ^{137}Ｃｓの挙動を魚への移行，底質土への沈着および水中濃度についてモデル化し，チェルノブイル原子炉事故や核実験によりモデルの検証を行った。

⑦ Overview of the Department of Energy's Off-Site Radiation Exposure Review Project(ORERP).

B.W. Church, D.L. Wheeler, C.M. Campbell and R.V. Nutley

エネルギー省の敷地外放射線被ばく検討プロジェクト（ＯＲＥＲＰ）の概要

Vol.59, No.5(Nov.), pp.503-510

米国エネルギー省にネバダ核実験場での核実験によるフォールアウト，敷地外公衆

への被ばく線量と健康影響などを再検討するプロジェクトが設けられ，その概要が報告されている。

⑧ Models of Radioiodine Transport to Populations within the Continental U.S.
Andre Bouville, Mona Dreicer, Harold L. Beck, Walter H. Hoecker and Bruce W. Wachholz
米国大陸における住民への放射性ヨウ素移行のモデル
Vol.59, No.5(Nov.), pp.659-668

1950-1960 年代にネバダ核実験場で行われた大気圏内実験の ^{131}I による被ばく線量評価が国立がん研究所により行われ，沈着による牛乳摂取の重要性が再認識された。

⑨ Atmospheric Deposition, Resuspension, and Root Uptake of Pu in Corn and Other Grain-Producing Agroecosystems near a Nuclear Fuel Facility.
J.E. Pinder Ⅲ, K.W. McLeod and D.C. Adriano
核燃料施設近傍におけるＰｕの大気中沈着，再浮遊およびトウモロコシや他の穀物生産農業環境中における根系吸収
Vol.59, No.6(Dec.), pp.853-867

サバンナリバーＤＯＥのＨ区域にある核燃料の化学分離施設近傍で穀物中のＰｕ濃度が測定され，沈着速度，移行率などが過去のパラメータと比較された。

⑩ Desorption Kinetics and Mobility of Some Radionuclides in Sediments.
Masami Fukui
底質土中における放射性核種の脱離挙動と易動性
Vol.59, No.6(Dec.), pp.879-889

沿岸海底土に吸着されたいくつかの放射性核種の脱離特性が種々の溶離剤を用いて検討されると共に，その不可逆性と底質土内拡散分布から移行モデル再検討の必要性が示されている。

ii) J. Contaminant Hydrology誌

① Assessment of Groundwater Contamination Resulting from a Major Accident in Land Nuclear Power Plants(LNPP), Ⅰ: Concepts and Methodology.
Abraham Mercado
内陸の原子力発電所（ＬＮＰＰ）における重大事故による地下水汚染の評価，Ⅰ：概

念と評価手法

Vol.5, No.1(Dec.), pp.33-41(1989)

冷却材喪失と炉心溶融事故を想定し，格納容器底部から放射性物質が漏洩して地下水を汚染するシナリオについて点状汚染源の移流－拡散式の解析解の適用が示されている。

② Assessment of Groundwater Contamination Resulting from a Major Accident in Land Nuclear Power Plants(LNPP), Ⅱ : Evaluation of a Melt-through Event.
Abraham Mercado
内陸の原子力発電所（ＬＮＰＰ）における重大事故による地下水汚染の評価，Ⅱ：溶融事故の評価

Vol.5, No.1(Dec.) pp.43-66(1989)

想定したインベントリについて移行，その他の評価パラメータを安全側に仮定した場合とパラメータを三角状の確率分布と仮定して確率的に地下水の汚染帯を予測する場合について評価を行っている。

③ Modeling the Mass-Transfer Rate of Radioactive Cobalt from a Synthetic Groundwater to Volcanic Tuff Media.
M. Gopala Rao, Hector R. Fuentes, Wilfred L. Polzer and Edward H. Essinton
人工地下水から火山凝灰岩媒体への放射性コバルトの物質移動速度のモデル化

Vol.6, No.1(July.) pp.69-84(1990)

ロスアラモス国立研究所の低レベル放射性廃棄物に対する自然バリアとして用いられている凝灰岩へのＣｏの吸着現象に物質移動を組み合わせたモデルの提案と実証を行っている。

④ Adsorptive Solute Transport in Fractured Rock : Analytical Solutions for Delta-Type Source Conditions.
Yoko Fujikawa and Masami Fukui
亀裂岩石中における吸着性溶存物質移行：δ型汚染条件に対する解析解

Vol.6, No.1(July.) pp.85-102(1990)

岩石亀裂とマトリックス内拡散を考慮した場でのδ型汚染物質を２つの境界条件について予測する解析解を示している。

⑤ The Separation of Radionuclide Migration by Solution and Particle Transport in Soil.

J. Torok, L.P. Buckey and B.L. Woods

土壌中における放射性核種の溶存物質と粒子状物質移行の分離

Vol.6, No.2(Sept.) pp. 185-203(1990)

ライシメータ内に，コバルト，セシウム，ストロンチウムの固化体をベントナイトなどと埋設し，低レベル廃棄物処分場を想定して，各核種の移行機構の相違を検討している。

⑥ Modeling of Stontium Sorption and Speciation in a Natural Sediment-Ground-Water System.

V. Koss and J.I. Kim

自然の堆積土－地下水系におけるストロンチウムの吸着・形態のモデル化

Vol.6, No.3(Oct.) pp.267-280(1990)

ドイツ，ゴアラーベンの地質試料を用いて，イオン状の形態だけでなく，錯体形成が無視できない粘土質試料についての吸着を分配係数概念に取り入れている。

iii) J. Environmental Radioactivity誌

① The Detection of Radioactive Material from a Venting Underground Nuclear Explosion

B. Bjurman他

地下核実験起源の放射性物質の検出

Vol.11(No.1) pp.1-14

1987年8月ソ連が Novaya Zemlyaで行った地下実験より漏れ出した放射性物質が北ヨーロッパの各地で微量ながら浮遊塵として検出された。測定された核種の種類，量，及び，気象条件などをまとめた。

② Characteristics of Plant Cocentration Ratios Assessed a 64-site Field Survey of 23 Elements

S.C. Sheppard & W.G. Evenden(Canada)

野外64地点で調べた23元素についての植物中の濃縮比の特性

Vol.11 (No.1) pp.15-36

植物による元素の濃縮比（ＣＲｓ）および転流率（ＴＦｓ）に関する統計的特性は野外においてあまり行われていない。植物としてブルーベリーを用い，カナダの異なった地域から採取し，その中に含まれる23元素の測定を行った。

③ Measurements of α-Emitting Plutonium and Americium in the Intertidal Sands of West Cumbria (UK)

J.D. Eakins, A. Morgan, G.N. Baston, F.W. Pratley, L.P. Strange & P.J. Burton (UK)

英国West Cumbriaの潮間帯の砂に含まれるα放射体プルトニウムおよびアメリシウムの測定

Vol.11 (No.1) p.37-54

Silloth とWalney島の間の潮間帯の砂（表面）および砂のコア試料中の ^{238}Ｐｕ，$^{239+240}$ＰｕおよびＡｍの分析を行った。α放射体の95%以上が砂に存在し，シルトと共にあったのは５%以下であった。しかし，潮間帯のプルトニウムとアメリシウムに起因する放射線の影響は海産食品経路と比べて非常に小さい値であった。

④ The Contamination of the North Sea by Artificial Radionuclides During Year 1987

H. Nies (FRG)

1987年に於ける人工放射性核種による北海の汚染

Vol.11 (No.1) 55-70

北海における ^{137}Ｃｓ，^{134}ＣｓおよびSｒの1987年の濃度を測定した。チェルノブイリ事故に起因する核種も検出された。また，セラフィールドおよびラ・アーグの再処理施設から放出されたプルトニウムおよびアメリシウムが海水中に検出できた。

⑤ Origins, Concentrations and Distributions of Artifical Radionucldes Discharged by the Rhone River to the Mediterranean Sea

J.M. Martin & A.J. Thomas (France)

Rhone 河から地中海に放出された人工放射性核種の起源，濃度および分布

Vol.11 (No.2) 105-139

Marcoule再処理施設を主な起源とする14種類の人工放射性核種の水および堆積物中における濃度を測定した。この河により供給される放射能の量は１日平均約 70GBqで

あり，ラ・アーグ再処理施設からの放出量に比べ1桁低い。予備的な評価では，ほとんど放射性核種は河口から数km以内で沈降する。

⑥ Time Dependent Transport of Chernobyl Radioactivity between Atomosperic and Lichen Phases in Eastern Canada

J.N. Snith & K.M. Ellis (Canada)

カナダ東部におけるチェルノブイル起源の放射性物質の大気と地衣類間での時間に関係した移行

Vol.11. (No.2) 151-168

チェルノブイリ事故による放射性プルームは1986年5月7～9日にかけてカナダ東部に飛来した。地衣類中の放射性核種濃度の測定からそれらの各放射性核所の取り込み割合を推定した。沈着速度としては 1.1cm／ｓという値が得られた。

⑦ Recent Levels of ^{90}Sr Activity in the Environment of the Krsko Nuclear Power Plant

K. Juznic (Yugoslavia)

Krsko 原子力発電所（ユーゴスラビア）周辺環境中の^{90}Ｓｒの最近のレベル

Vol.11 (No.2) 169-176

1987年から1988年にかけて，Krsko 原子力発電所周辺環境から採取した土壌，植物，果実，および畑作物中の^{90}Ｓｒを測定した。農作物においては，根菜の値が高く，果実は低い値であった。

⑧ Concentration of Radiocaesium in Italian Durum Wheat and its Products after the Chernobyl Accident

M. Lotfi, M. Notaro, D. Azimi-Garakani, R. Cubadda, G.P. Santaroni & L. Tom masino (Italy)

チェルノブイル事故後におけるイタリア産マカロニ小麦及び加工品中の放射性セシウムの濃度

Vol.11 (No.8) 177-182

400 種類を超えるイタリア産マカロニ小麦をチェルノブイル事故後イタリー各地で採取し，^{137}Ｃｓの汚染があるか調べた。また，パスタを調理する際の放射性セシウムの含量の変化を測定したところ，多くがパスタを茹でることにより除かれることが

わかった。

⑨ The Behaviour of ^{137}Cs in Some Edible Fruits

L. Monte, S. Quaggia, F. Pompei & S. Fratarcangeli (Italy)

いくつかの食用果実中での ^{137}Ｃｓの挙動

Vol.11 (No.3) 207-214

チェルノブイル事故後３年にわたってヘーゼルナッツ中の放射性セシウムの測定を行った。^{137}Ｃｓの値は対数的に減少した。^{134}Ｃｓ／^{137}Ｃｓ比から考え，ナッツ中の ^{137}Ｃｓは葉からの流転が主たるものであると推定された。また，ナッツ，オリーブ，リンゴでのセシウムの半減期と流転率を調べた。

⑩ A Novel Method Used to Examine Variation in Tc Sorption Among 34 Soils , Aerated and Anoxic

S.C. Sheppard, M.I. Sheppard & W.G. Evenden (Canada)

34種の土壌へのＴｃの吸着の変化を調べる有効な方法

Vol.11 (No.3) 215-233

新しく開発した方法により，Ｔｃの好気状態および嫌気状態による各種土壌へ吸着を調べた。求まったＫｄ値は，好気状態においては鉱物質土壌では０，有機土壌では 0.5 litre Kg^{-1}であった。また嫌気状態ではそれぞれ18と68 litre Kg^{-1}と高い値であった。

⑪ A Review of Erosional Behaviour of Radionuclides in Selected Drainage Basins

P.J.P. Bonnett (UK)

流域における放射性核種の侵食による挙動に関する評価

Vol.11 (No.3) pp.251-266

流域の土壌中は起源を異にする人工放射性核種が存在する。これらが侵食作用による再分配がおこり移動する可能性がある。既存のデータを集め再検討した。

⑫ Ingestion of Chernobyl ^{137}Cs in Akita City, Japan

S. Hisamatsu & Y. Takizawa (Japan)

秋田市におけるチェルノブイルの ^{137}Ｃｓの摂取量

Vol. 11(No.3) pp.251-266

1985-1988 年秋田市における ^{137}Ｃｓの摂取量に関する研究を行った。チェルノブイル起源の ^{137}Ｃｓの摂取量の実効半減期は 1.6年であった。１人当たりのチェルノブイル ^{137}Ｃｓの摂取量は合計で62Bqであり，そのうちで乳製品の占める割合が42%と高かった。

⑬ Mass-Spectrometric Analysis of Plutonium in Soil Near Sellafield

W. McCarthy & T.M. Nicholls(UK)

セラフィールド周辺の土壌中のプルトニウムの質量分析

Vol.12(No.1) pp.1-2

セラフィールド周辺の土壌中から分離したプルトニウムの 249/239比は1950年代の大気放出による燃焼度の低いプルトニウムの存在を示す。 240/239比の主たる要因は1970年代に放出された燃焼度の高いプルトニウムによる。海岸近くの砂での比は海洋放出による。

⑭ Evaluation of the Environmental Transfer Parameters for ^{131}I and ^{137}Cs using the Contamination Produced by the Chernobyl Accident at a Site in Central Italy.

L. Monte (Italy)

中部イタリアにおけるチェルノブイル事故により汚染された作物を用いた ^{131}Ｉおよび ^{137}Ｃｓの環境での移行パラメータの評価

Vol.12(No.1) pp.13-22

^{131}Ｉと ^{137}Ｃｓの沈着－植物－ミルク経路における移行パラメータについて中部イタリアのデータを用いて調べた。得られた結果は変化に富んでいたが，おおよその値は一般的に用いられているＩＡＥＡ Safety Series No.57の値に近いものであった。しかし， ^{137}Ｃｓの乾性沈着速度は大きく異なった。これは，沈着粒子の性質，作物の表面や極所地域での気象条件によるものと考えられる。

⑮ ^{137}Cs Fallout Depth Distributions in Forest Versus Field Sites:Implications for External Gamma Dose Rates

K. Miller, J.J. Kuiper & K. Helfer (USA)

森林および畑地におけるフォールアウト ^{137}Ｃｓの深度分布：ガンマ線による外部被ばくとの関係

Vol.12 (No.1) pp.23-47

アメリカ北東部においてフォールアウト ^{137}Csの深度分布を森林と畑地で比べた。その結果，線量率は森林のほうが畑地より約4倍大きいことがわかった。

⑯ The Transfer of Radionuclides from Sea to Land via the Air: A Review

W.A. Mckay & N.J. Pattenden (UK)

海洋から大気を通じて陸上への放射性核種の移行

Vol.12 (No.1) pp.49-77

ある海岸地域では，海洋に放出された人工放射性核種が海洋－大気境界を通じて少量ではあるが陸地に移行している。泡が破裂することによりできるエアロゾールに放射性核種が濃縮され運ばれる。セラフィールドを中心にモデルを立て研究を行った結果，海洋から陸に移行した核種による影響は今のところ少ないが，2000年には，海洋物経由からの被ばくの20－30%になると推定した。

⑰ Radionuclide Concentrations in Air and their Deposition at Saluggia (North-west Italy) Following the Chernobyl Nuclear Accident.

P. Spezzano & R.Giacomelli (Italy)

チェルノブイル事故によるSaluggia（北西イタリア）の大気と沈着物中の放射性核種濃度

Vol.12(No.1) pp.79-91

チェルノブイル事故による放射性核種濃度を大気，降下物土壌中において測定した。地表への沈着量とフォールアウトの測定値，また，実測値と計算値の間に良い一致が見られた。しかし，ヨウ素に関しては大気中での分布と化学形に関して不明な点が多くあった。

⑱ Environmental Transfer Parameters and Radiological Impact of the Chernobyl Fallout in and around Bonn (FRG)

G. Clooth & D.C. Aumann (FRG)

ボンおよびその周辺における環境移行パラメータおよびチェルノブイル降下物の放射科学的インパクト

Vol.12(No.2) pp.97-119

チェルノブイル事故後ボンにおいて土壌，農作物，ミルク，牧草中の ^{103}Ru，

^{131}I，^{134}Cs，^{137}Csを測定した。放射性セシウムを含んだ食品を摂取することによる被ばく線量を推定したところ，1986年では14.7μSv，また1987年では0.56μSvであった。

⑲ The Influence of Grassland Management on the Radionuclide Inventory of Soils in West Cumbria, UK

A.D. Horrill & S. Mudge (UK)

英国West-Cumbriaにおける草地管理が土壌中の放射性核種のインベントリーに与える影響

Vol.12(No.2) pp.143-165

土壌および植物中の^{137}Cs，$^{239\cdot240}$Pu，^{238}Pu，^{241}Am，^{40}Kの濃度は草地管理により変化することが認められた。利用度が高い土地ではそうでない土地に比べて土壌および植物中の核種濃度が低かった。これは，物理的な攪拌，天然および人工添加物および収穫による除染が関係している。

⑳ Contamination of Eood in Czechoslovakia by Caesium Radioisotopes from the Chernobyl Accident

V. Kliment & I. Bucina (Czechoslovakia)

チェルノブイル事故によるチェコスロバキアの食品の放射性セシウムの汚染

Vol.12(No.2) pp.167-178

チェコスロバキアの食品中の^{137}Csと^{134}Csの測定を行い，食品摂取量の値から実効線量当量を推定した。また，年齢別の線量および，主要な食品である肉とミルクについては季節変化も調べた。

㉑ Radiocaesium Contents of Meat in Italy After the Chernobyl Accident and Their Changes During the Cooking Process

M. Lotfi 他 (Italy)

チェルノブイル事故後のイタリアにおける肉中の放射性セシウムの濃度と調理による変化

Vol.12(No.2) pp. 179-183

1986年4月以降，放射性セシウムの各種肉中の値を測定した。ラム肉中の値が他に比べて高かった。また，調理による変化を調べるために，1％の食塩水で茹でたとこ

ろ80%の減少が見られた。

㉒ A Sediment History of Sellafiels Discharges

P.J. Kershaw 他 (UK)

セラフィールドからの放出物の堆積物中での時間変化

Vol.12 (No.3) pp.201-241

セラフィールド工場からアイリッシュ海に放出された人工放射性核種の堆積物コア中濃度を測定した。時間的変化を堆積物中の核種の濃度，アイソトープ比，および，放出情報より調べた。

㉓ Plutonium and Americium Behaviour in Cumbrian Near-Shore Waters

W.A. McKay & M.I. Walker (UK)

プルトニウムとアメリシウムの Cumbria沿岸における挙動

Vol.12 (No.3) pp. 267-283

セラフィールドから放出されたＰｕとＡｍの沿岸海水および堆積物中の濃度と挙動を調べた。その結果，放出されたアクチノイドは沿岸海水に溜まり，６年以上してから海水から陸上への移行に供される。

㉔ Radionuclide Transfer from Sellafield to South-West Scotland

P. McDonald, G.T. Cook, M.S. Baxter & J.C. Thomson (UK)

放射性核種のセラフィールドから南西スコットランドへの移行

Vol.12 (No.3) pp.285-298

セラフィールドから南西スコットランドへ，移動する海底堆積物を採取し調べた。その結果，人工放射性核種の濃度は，堆積物の種類，粒形，放出源からの距離により異なることがわかり，粒子に吸着した放射性核種の物理的な移動により核種も南西スコットランド方面に動いていると推定された。

㉕ An Assessment of Onland Transfer of Radioactivity near Douneay, Scotlend

J. Toole他 (UK)

スコットランドDounreay周辺での放射能の移行に関するアセスメント

Vol.12 (No.3) pp. 299-329

1981－1987年にかけて，Dounreay原子力施設周辺で土壌を採取し，^{137}Ｃｓ，^{238}Ｐｕおよび $^{239\cdot240}$Ｐｕの測定を行った。過剰なＰｕの沈着とアイソトープ比より，

Ｐｕが海からも移行していることが推定された。しかし，インハレーションや放射性核種が沈着した粒子からの放射能の摂取量は少ないと推定された。

iv) Waste Mnagement誌

① Tritium Penetration Through Concrete

コンクリート中へのトリチウムの浸透

G.G. Eichholz, W.J. Park, C.A. Hazin

Vol.9, No.1 27-36(1989)

低レベル廃棄物貯蔵施設において，核種移動の第１バリアとなるコンクリート中でのトリチウムの浸透実験を行った。被覆なしのコンクリートはトリチウムを8×10^{-4} $cm^3cm^{-2}d^{-1}$で吸収し，間隙率と透水係数のみに支配される。表面被覆が浸透性の低下に有効である。

② Modeling of Release of Radionuclides From an Engineered Disposal Facility for Shallow-Land Disposal of Low-Level Radioactive Wastes

低レベル放射性廃棄物の浅地処分のための工学処分施設からの放射性核種の放出のモデリング

H.Matsuzuru, A.Suzuki

Vol.9. No.1, 45-56(1989)

工学処分施設からの放射性核種の放出のシミュレーション用コンピュータコードＥＮＢＡＲ－１を開発し，発生源の評価を行った。考察したシステムは，埋め戻し材を用いて廃棄物パッケージを定置するというものである。開発したコードはコンクリートピットへの水の浸透，ドラム缶の腐食，廃棄物形態からの放射性核種の浸出，埋め戻し材中の核種の移動およびピットからの放射性核種の放出の各モジュールからなる。

③ Modelling of Radium-226 Leaching from Barium-Radium Sulfate Sludges

硫酸バリウムーラジウムスラッジからの^{226}Ｒａの浸出のモデリング

P.M. Huck, G.L. McClymont, F.W. Schwartz, B.E. Nesbitt, W.B. Anderson, B. Kratochvil

Vol.9, No.3, 157-163(1989)

(Ba, Ra)SO_4 スラッジの浸出に地球化学的コンピュータモデルを適用した。SO_4^{2-}とＢａ$^{2+}$の濃度，ｐＨ，イオン強度などの浸出剤の性質が重要であることは

すでに実験によって知られている。コンピュータシミュレーションはこれらの実験データを確証した他にスラッジー浸出剤系のレドックス状態がより重要であることを示した。すなわち酸化性条件では（Ba, Ra）SO_4 はほとんど溶けない。条件が還元性になると$BaSO_4$ はもはや安定ではなく，$^{226}Ra^{2+}$の全質量が液相に移行しうる。

④ The Influence of Complexation on Radionuclide Migration: A Theoretical Study

放射性核種の移動に対する錯成形の影響：理論的研究

L. Carlsen, O.J. Nielsen, P.Bo

Vol.9, No.3, 165-169 (1989)

過剰の錯化剤を含む環境における放射性核種などの金属イオンの移動に対する錯化剤の影響の理論的評価を行った。金属の遊離イオンと錯イオンとの間の変換速度が系での滞留時間に比べて速いならば2種の化学種は同じ速度で移動する。また保持性能は錯形成の程度に依存する。

⑤ Continuous-Flow Leach Tests of simulated High-Level Waste Glass in Synthetic Basalt Groundwater

合成玄武岩地下水中での模擬高レベル廃棄物ガラスの連続流浸出試験

H. Kamizono, T. Sagawa, S. Tashiro

Vol.9, No.3, 189-194 (1989)

90℃で 180日まで合成Grande Ronde玄武岩地下水中で模擬高レベル廃棄物ガラスの連続流浸出試験を行った。Siの濃度の時間依存を追跡し，プラトーでの最大濃度を推定した。

⑥ Thermohydraulic Analysis of a Potential Nuclear Waste Repository Site in Bedrock

岩盤中の核廃棄物処分場として可能性のある用地の熱水力学的解析

M.T. Kangas, P.D. Lund

Vol.10, No.1, 3-10(1990)

核廃棄物処分場の熱水力学的解析を多孔質アプローチを用いた数値シミュレーションによって行った。熱，流体流れおよび不均一透水率を完全に含む3次元シミュレーションにより，処分後5000-10000年の間，熱は処分用地近傍および熱的影響のある区域以外でも地下水流に影響することを見出した。

⑦ Radionuclide Transport Within a Low-Level Radioactive Waste Repository With a Cylindrical Nuclide-Path Model

円柱状核種経路モデルによる低レベル放射性廃棄物処分場内の放射性核種の移動

J. Ahn, A. Suzuki

Vol.10, No.1, 29-40(1990)

処分場内の核種の移動経路を埋め戻し材内に封じられた有限円柱と単純化し，移流，分散，収着平衡および先行核のない放射性壊変を仮定して，低レベル放射性廃棄物処分場からの放射性核種の放出と移動を解析した。

⑧ Physical and Chemical Containment of Organic Contaminants in Solidified Wastes

廃棄物固化体中の有機汚染物の物理・化学的閉じ込め

P.L. Cote, R. Caldwell, C.C.Chao

Vol.10, No.2, 95-102(1990)

セメント基の廃棄物形態における種々の汚染物に対する閉じ込めの物理的成分と化学的成分を区別する方法を開発した。4種の有機汚染物を含む7種の廃棄物形態を例示してこの方法を説明した。フェノールとアニリンに対しては主として物理的閉じ込めが，アセナフテンとビス（2－クロロエチルエーテル）に対しては化学的閉じ込めがより重要である。

⑨ Partitioning of Organic Materials in Porous Beds Under Unsaturated Water Flow Conditions

不飽和水流条件下での多孔質地層中における有機物質の分配

W. Park, G.G. Eichholz

Vol.10, No.2 125-139(1990)

不飽和土壌条件下の浅地埋設用地からの混合廃棄物成分の移動特性を調べるために，種々の飽和度の砂を用いたカラム実験を行った。気体放出と同伴の割合は含水率の1次関数ではなく，細孔内に残存する水膜の性質および不飽和度，溶解度，揮発性などに依存した。

⑩ Earthen Barriers Technology for Waste Containment

廃棄物の閉じ込めに対する土壌バリア技術

T.B. Edil, P.M. Berthouex

Vol.10, No.2, 147-153(1990)

都市・産業廃水および埋立地で発生する浸出物の閉じ込めに使われる数種の土壌バリア（ライナー）の性能評価データを示した。ライナーの透水性の測定に関する重要因子について論じ，低透水性バリアを得る方法を提案した。

⑪ Assessment of Groundwater Contamination Subsequent to an Environmental Release

環境への放出の結果として起こる地下水汚染の評価

M.T. Galceran, R. Rubio, G. Rauret, L. Alonso

Vol.10, No.4, 261-268(1990)

スペイン，カタロニアのLes Franqueses del Valles において1987年に起こった地下水汚染を研究した。電導度，ｐＨ，塩化物，アンモニア性窒素，シアン化物，ＣＯＤ，Ｈｇ，有機物の中性＋塩基性分と酸性分および全有機化合物を主要汚染物として選んだ。得られた結果から汚染の発生源を特定し，環境への放出の低減策を講じた。

⑫ Behavior of Uranium Migration in Epigenetic Uranium Ore Deposits with Reference to Radioactive Waste Isolation in Geologic Media

地質媒体における放射性廃棄物隔離に関連した後生ウラン鉱床におけるウランの移動挙動

K.Doi, S. Hirono

Vol.10, No.4, 275-284(1990)

日本の新第三紀堆積岩の基底部をなしている後生ウラン鉱床中のウランの挙動を調べ，放射性核種の移動に対して地下水の流れと速度，核種と周囲の地質媒体の関係および物理・化学的環境が重要な要因であることを示した。

⑬ Radionuclide Behavior at the Oklo Nuclear Reactor, Gabon

ガボン国オクロ原子炉における放射性核種の挙動

D.G. Brookins

Vol.10, No.4 285-296 (1990)

オクロ天然原子炉の岩石は，多孔質，透水性でかつ破砕されており，含水率も高いにもかかわらず，核分裂生成物とアクノニドが生成の場所あるいはそのごく近傍に保

持されていることを示し，その理由を説明した。

第２章　他分野の環境研究に関する調査
－最近の酸性雨モデルの概要－

2.1　はじめに

酸性雨は，今日，地球規模の環境問題の１つとして大きな政治的社会的問題となっており，この現象を予測するためのシミュレーションモデルの作成とその運用が，世界各国において精力的に進められている。この酸性雨モデルで使用されている手法は，大気中に放出された放射性物質の環境安全評価手法にも通じるところが多いものと考えられる。このため，ここでは比較的最近作成された酸性雨モデルの概要として以下の内容について紹介する。なお，モデルを理解しやすくするために，最初に酸性雨の状況およびそのメカニズムについて簡単に触れることとする。

① 酸性雨の状況
- 日本と欧州におけるｐＨ，酸性降下量分布
- 日本と欧州における酸性雨影響の例

② 酸性雨の生成メカニズムの概要

③ 酸性雨モデルの概要
- モデルの全体像
- 乾性沈着モデル
- 湿性沈着モデル

④ 酸性雨モデルの実例
- 詳細モデルの例 …… ＲＡＲＭＳモデル
- 簡略・総合モデルの例 …… ＲＡＩＮＳモデル

2.2　酸性雨の状況

図2.1は，世界において現在，酸性雨の影響が問題となっている地域および近い将来，問題が生じることが予想される地域を示す。酸性雨による被害は北米東部，欧州北部，中国沿岸部において顕著である。

図2.2および図2.3は，日本および欧州地域におけるｐＨの測定結果である。また，図2.4は，世界の各地点の降水の酸性度とアルカリ度のポテンシャルを示す。日本におけるｐＨの最

低値は 4.6程度であり，欧米に較べると高い。日本における降水中のSO_4^{2-}，No_3^- 濃度は北米と同程度であるが，NH_4^+やCa^{2+}のアルカリ成分により中和される割合が高いため，ｐＨはやや高くなるものと考えられている。

酸性雨は，欧州や北米において森林の枯死，湖沼の魚の死滅等様々な形で生態系に影響を与えている（例えば図2.5）。我が国では諸外国で見られているような生態系に対する影響は現段階では顕在化していないと公式的には言われている（「環境白書」等）が，酸性雨が大きな要因であると考えられるような影響例（例えば，杉枯れやコンクリートのつらら等）が最近幾つか報告されている。

2.3　酸性雨の生成メカニズム

工場や自動車から排出された窒素酸化物（NOx）や硫黄酸化物（SO_2）は，風によって長時間運ばれる間に，複雑な変質過程のもとに，各々，硝酸（塩），硫酸（塩）となる。これらの生成物質の１部は地表面に沈着するが，１部は雲や雨，霧にとりこまれて酸性の雨や霧を生成し，地表に降下する。これが酸性雨，酸性霧である（図2.6参照）。酸性雨現象は従来の大気汚染現象に較べてスケールが大きいこと（長距離輸送現象），多数の物理・化学過程が関係すること，関連する排出物質の種類が多いこと等のため，そのメカニズムを理解しモデル化を図ることがかなり困難である。また，同時に，この現象はこれまでの多くの大気汚染問題（例えば，光化学大気汚染やNO_2 汚染等）を包括していると言えよう。

日本では，大気汚染物質の長距離輸送現象を示す事例として，東京湾岸地域で発生した汚染物質が変質しながら信越線に沿って北上し，碓氷峠を越えて長野県東部に至ることが知られている（図2.7）。この過程において，１次汚染物質（NOx やSO_2 等）は光化学反応を起こしながら変質し，２次汚染物質（硝酸塩や硫酸塩等）になることが確認されている。このことは，降水現象が生起すれば降水中に酸性物質が多量に含まれることを意味するが，ｐＨはカチオン類とのバランスにより決定されるため必ずしも酸性雨が生成されるとは言えない。

2.4　酸性雨モデルの概要

再処理施設（大気放出）による線量評価で使用されているモデルと酸性雨モデルとを比較すると概ね，表2.1に示すとおりである。

図2.8には詳細型の酸性雨モデルで対象とされる物理化学過程の概要を，図2.9にはモデル

の構成要素を，各々示す。図2.9に示されているモデルは米国で最近開発された大規模な実用型モデルであり，数多くのサブモデルにより構成される。通常の酸性雨モデルでは，図2.8や図2.9の物理化学過程を全て一様なレベルで扱うことは少なく，目的に応じて簡略化が図られる。

以下，線量評価モデルにも共通すると考えられる沈着モデル（乾性沈着と湿性沈着モデル）について概説する。

(1) 乾性沈着モデル

物質の沈着過程は沈着速度v_gにて表現されることが多く，ある物質の地表面への沈着フラックスF_gは

$$F_g = -v_g \cdot C \qquad C：基準高の濃度$$

にて表される。また，v_gは，3種類の抵抗和の逆数として定式化される（図2.10参照）。

$$v_g = \frac{1}{r_a + r_b + r_s}$$

沈着速度を構成する抵抗値の設定法は表2.2のとおりである。

(2) 湿性沈着モデル

大気汚染物質が降水に取り込まれ地表面に沈着する過程を湿性沈着と呼ぶ。雲滴，雨滴，雲片への各種ガス，エアロゾル粒子成分の取り込み機構は図2.8に示したとおりである。このうち雲中での洗浄を rainout，雲底下の洗浄を washoutという。

湿性沈着機構を考える場合，物質の空間分布，特に鉛直分布，雲の中の気流分布，特に雲底における気流，また降雨機構の差が重要である。また，以上の機構の中での重要な因子として，雲滴，氷粒子，雨滴の粒度分布，雲水量，鉛直気流速がある。

湿性沈着を評価するためには，以上のような雲物理過程および物質の取り込み過程をモデル化する必要がある。これまでは簡単にこれらのメカニズムをブラック・ボックスとして扱い，洗浄比（＝降水中濃度／空気中濃度；∝降水量のべき乗）にて表現することが多かった。しかし，最近ではより現象に忠実なモデルが作成されている。

① 雲物理過程

雲，雨，雪等の水分量の保存式を解く方法が一般的である。水分の相変化の模式図と基

礎方程式の例を図2.11に，また，計算結果の１例を図2.12に示す。現在の酸性雨モデルにおいては，雲物理モデルは本体モデルの外に置かれ，本体モデルに雲パラメータに関する計算結果を提供する役割を担う。

② 物質移動

物質移動を表現する方法は，モデルにより大きく異なる。

気相から液相への移行に関しては，十分小さい液滴径としてヘンリー則による気液平衡を仮定する場合が多い。しかしながら，液滴が大きな場合や濃度が極めて小さい場合には，気液平衡が成立しなくなるために，速度論的に扱われることもある。一方，水分の相変換（interconversion)による効果を取り入れているモデルは，まだ少ない。また，エアロゾルのscavengingに関しては，雲生成時のnucleationの効果を初期濃度として与えたり，落下する雨や雪による捕集効果をモデル化したりしている。

2.5 酸性雨モデルの実例

ここでは，酸性雨モデルの実例として，次の２種類のモデルを紹介する。

① ＲＡＲＭＳモデル（Regional Acid Rain Modelling System)

関東地域における酸性雨現象を予測するために，現在，環境庁が開発を進めているモデル。３次元オイラー型の詳細モデル。これまで，液相を含めない３次元モデルおよび液相を含んだ１次元モデルが作成されている。

② ＲＡＩＮＳモデル（Regional Acidification Information and Simulation)

欧州における広域的な酸性雨影響に関して，科学的な知見を政策決定に役立たせるための情報提供を目的としたモデル。簡略的なモデルであるが，生態系への影響まで含めて総合的に評価することをねらったものである。

(1) ＲＡＲＭＳモデル

ＲＡＲＭＳモデルは，ガス，雲，雨滴（雪）中の化学成分の輸送・変質・沈着を３次元のオイラー型モデルで記述する。

基本方程式系は次式で表現される：

Gase Phase :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t}+\frac{\partial (U_j C_i)}{\partial x_j}=\frac{\partial}{\partial x_j}\left[K_{jj}\frac{\partial C_i}{\partial x_j}\right]+R_i+S_i+G_i$$

$$(j=1,\ldots,N_{gt})$$

Cloud Phase :

$$\frac{\partial (S\overline{C}_k)}{\partial t}+\frac{\partial (U_j-V_s) S\overline{C}_k}{\partial x_j}$$

$$=\frac{\partial}{\partial x_j}\left[\overline{K}_{jj}\overline{C}_k\frac{\partial S}{\partial x_j}\right]+R_k+G_k$$

$$(k=1,\ldots,N_{ct})$$

Rain (Snow) Phase :

$$\frac{\partial (S_m\overline{C}_{rm})}{\partial t}+\frac{\partial (U_j-V_{sm}) S_m\overline{C}_{rm}}{\partial x_j}=R_{rm}+C_{rm}$$

$$(r=1,\ldots,N_{rt})$$

$m=1$ for rain, $=2$ for snow

ここで，C_i，$\overline{C}_k$，$\overline{C}_{rm}$はそれぞれガス，雲，液滴中の濃度を示し，U_j は風速，Sは liquid water content，V_s はsettling velocity，K_{jj}，$\overline{K}_{jj}$，はそれぞれガスと雲水の乱流拡散係数を意味する。また，R_i，G_i，S_i はそれぞれ化学反応 mass transfer，発生項（沈着を含む）を意味する。N_{gt}，N_{ct}，N_{rt}はそれぞれのphase で扱う化学成分の数を意味する。

ＲＡＲＭＳモデルのシステム構成は図2.13のとおりであり，データベースとプロセッサー群より構成されている。データベースとしては，酸性雨シミュレーションを行うために必要な諸データ（地上気象データ，地表面特性データ，排出量データ，大気汚染濃度データ）がある。これらのデータベースは，アメダスデータ，気象官署データ，国土数値情報，大気汚染常時監視測定局データ，移動発生源によるＮＯx，SO_2，ＮＭＨＣ排出量データおよび固定発生源ＮＯx，SO_2，ＮＭＨＣ排出量データ等多数のデータソースから作成される。

プロセッサー群はこれらのデータベースから出発して，シミュレーションを実行するために必要な入力データを生成するプリプロセッサーおよび本体のシミュレーションプロセッサ

ーにより構成されている。

以下に，各プロセッサー（モジュール）の概要を記す。

① 計算条件・メッシュシステム作成モジュール

基本となるメッシュ系（標高を考慮した座標変換を含む）の生成，気象等の入力データ作成に利用する測定局の選択，基本的な計算パラメータ等の作成を行う。

② 気象データ処理モジュール，メッシュ内挿モジュール

データベースから，対象期間（時間）の必要とする測定項目・測定局のデータを抽出し，時間補間・欠値処理，高度補正等の処理をした上で出力する。さらに，メッシュ内挿モジュールにより，グリッド点の値として標準化する。

③ 客観解析計算モジュール

地上風データから，上層を含めた全グリッド点の風速を推定するモジュールである。推定の方法は，指数則による上層風推定値を初期値として変分法による修正を行うものである。

④ 気象拡散パラメータ計算モジュール

風速，日射量，雲量，地表面粗度等から，拡散係数K_x，K_y，K_zおよび境界層高度，摩擦速度等を計算する。K_x，K_y，K_zの計算式は標準法を内蔵しているが，ユーザーが設定することもできる。

⑤ 雲パラメータ計算モジュール

各グリッド点の雲・雨・雪の水分含有量（大気容積あたり）およびこれらの相間の転換速度を計算する。雲物理過程は多様であり，十分正確に上記の諸量を予測できる単一のモデルはまだ無い。今年度調査ではＰＬＵＶＩＵＳと呼ばれるモデルを導入した。このモデルでは，雲量，降水量，地表温度，雲底高度といったデータを入力として，上記の水分含有量，相転換速度の鉛直分布を解析式により算出する。

⑥ 乾性沈着速度計算モジュール

気体・粒子状成分の乾性沈着速度をグリッド別・時刻別に計算する。沈着速度の逆数（沈着抵抗）は一般に空気力学的抵抗，表面抵抗，残差抵抗（地物，水中への移動抵抗）の３種類の和によって表される。空気力学的抵抗は乱流拡散より成分間共通に，表面抵抗は成分毎に空気中の分子拡散により，残差抵抗は成分毎に地表面性状別の概略値（既往の乾性沈着測定結果の知見による）を設定して計算を行う。

⑦ 時刻別メッシュ排出量推計モジュール（発生源プリプロセッサー）

NOx，SO_2，NMHCの3次メッシュ（約1kmの経緯度系メッシュ）別年間排出量データベースより，シミュレーション対象期間の時刻別・シミュレーショングリッド別の排出強度を推定計算する。固定NOx，SO_2発生源については個別煙源データより気象条件を考慮した有効煙突高度を算定し排出層を推定している。

⑧ 反応計算式作成モジュール

シミュレーションに組み込む成分（気相，液相）の基本定数および反応式を入力し，反応計算プログラムを出力する。

⑨ 光解離定数計算モジュール

地上の紫外線量と太陽高度からNO_2の光解離定数を計算し，Demerjian のテーブルにより他成分（HONO，O_3 等）を含めて，高度別の光解離定数を設定する。

⑩ 移流拡散反応プロセッサー

以上の各プロセッサー（モジュール）による出力ファイルを入力して，移流拡散反応に関する基礎微分方程式を時間積分する本体プログラムである。基礎方程式は差分化し，タイムフラクショナルステップ法で項別に解く。水平方向移流拡散項は2次元FCT法，鉛直拡散項はクランクニコルソン法により求める。反応系は，マストランスファー，相移動による転換を含め semi-implicit Euler法またはGEAR法により求める。

南関東地域（図2.14）における光化学オキシダント（Ox ）の予測を目的としたRARMSモデルによるシミュレーション計算結果を図2.15～図2.17に示す。モデルの現況再現性は比較的高いことが認められる。

(2) RAINSモデル

RAINS (Regional Acidification Information and Simulation)モデルは，ヨーロッパにおける広域的な酸性雨影響に関して，科学的な知見を政策決定に役立たせるための情報提供を目的としている。ヨーロッパにおける国際的な問題は主として硫黄化合物による大気汚染，酸性降下物およびそれによる森林等の被害，湖沼の酸性化であるが，政府間の対策に向けての合意形成のためには，汚染物質の排出から影響までの過程を科学的に究明し，かつ，長期的な排出対策とその効果およびコストを簡明に示すことが必要である。

RAINSモデルは，総合的な視点から政策判断を支援するためのシステムを目指して，1983年以来開発されてきた。その背景には表2.3に示す国際的な動向がある。1988年現在，

モデルは硫黄化合物を対象物質として，土壌の酸性化，湖沼の酸性化，森林への直接影響，地下水の酸性化を取り扱い，硫黄化合物の各国の排出量変化に対するこれらの影響の変化の感度分析や一定の影響基準に抑える場合の最適削減計画の探索等の機能をもっている。

モデルの開発にあたっては，次の点が指針とされた（Alcamo et al. 1986）。

1) システムは解析家，専門家，使用者の共同で設計されるべきである。

2) モデルは交換のきくモジュール群で構成すべきである。

3) サブモデルは可能な限り簡潔にすべきだが，より詳細なモデルの裏付けをもつこと。

4) モデルの利用のためには，やりとりのできる入力と簡明な出力の機能が必要である。

5) モデルは原因と影響を動的に記述できるものであること。

これらの指針は，通常の分析システムの設計における減速と共通していると考えられるが，酸性雨の場合，考慮しなければならない事柄として次の点が特徴と思われる。

1) 評価尺度が多様であること（土壌，湖沼，ガス・エアロゾルの直接影響，地下水等）

2) 土壌の酸性化等の現象の時間スケールが数10年と長く，長期政策としての時間スケールと同程度であること

i）ＲＡＩＮＳモデルの全体構成

1988年現在，ＲＡＩＮＳモデルはサルファーのみを取り扱っており，図2.18のサブモデルで構成されている。なお，窒素酸化物については，一部のサブモデル（排出，輸送沈着）が作成された段階である。

ＲＡＩＮＳモデルに含まれる影響予測モデルは，土壌，湖沼，地下水，森林直接影響であり，表2.4のような評価指標を用いている。

ii）SO_2 排出モデル

ヨーロッパの27ヵ国について，エネルギー統計（ＥＣＥによる）に基づいて1960～1980年の排出量推移が把握されている。将来排出量の推定モデルは，表2.5のように，燃料種類別の基本的なパラメータ（発熱量，硫黄含有量，残灰中硫黄含有量）および対策パラメータを用いて，エネルギー政策による燃料選択の結果としてSO_2 排出量を推定するものである。なお，工業の非燃焼起源のSO_2 排出量は別途予測される。

Iversen 等（1989）により現況排出量について補足すると，1985年議定書により，各国が提出したデータにより1980～1987年の各国の排出量の推移がまとめられている。（表2.6）。データを提出しない国もあって一部分は推定値であるが，1980～1987年の間に約20

%の排出削減が実現した模様である。

iii）輸送・沈着サブモデル

SO_2 の排出量により，大気中のSO_2，SO_4^{2-}濃度とSO_4^{2-}の沈着量を予測するサブモデルである。影響の程度を表す第1段階の評価指標であると同時に，沈着以降の影響過程の入力値となる。RAINSモデルでは後者にも力を入れているので，輸送・沈着サブモデルはシステムのごく一部を構成するものである。影響から排出へのフィードバックを考えると，このサブモデルは簡略的なほど望ましい。そこで，RAINSモデルでは，単位排出量あたりの移流沈着係数をEMEPの詳細モデル出力結果から引用して，これをデータベースとしている。

移流沈着係数マトリックス　$|a_{in}|$（i国起源によるnメッシュへの沈着係数）

↓

nメッシュの総沈着量　$d_n = \sum_i S_i \cdot a_{in} + b_n$

S_i ：i国の排出量

b_n ：バックグラウンド沈着量

a_n は複数年にわたる長期シミュレーションから得られたもので，季節的な気象条件の変動（風向風速，降水量等）を反映した実質平均値である。したがって，RAINSモデルでは$|a_{in}|$をデータベースとして持っていれば，輸送・沈着過程には一切ふれずに分析を行うことができる。

図2.19および図2.20は，各々基礎方程式とパラメータを示す。

iv）計算結果

各メッシュについて，さかのぼる96時間の流跡線を6時間おきに次々に推定し，それぞれの流跡線に前述のモデル計算を適用することにより，SO_2，SO_4^{2-}濃度およびSO_2，SO_4^{2-}の沈着量の長期変動値が得られる。1985年の年平均値をEMEPのモニタリング値と比較した結果が図2.2.1である。

	相関係数
SO_2 濃度	0.74
SO_4^{2-}濃度	0.70
SO_4^{2-}濃度（降水中）	0.59

この結果は，モデルが実用的かどうかの判定が難しいぎりぎりのところであると思われる。ただし，降水についてのモニタリングの難しいことも指摘されており，実測値の精度をも配慮して，モデルに採用されたものであろう。

2.5 おわりに

本章では，一般環境における問題として特に取り上げられることが多い酸性雨を対象に，その現状とメカニズムおよび予測モデルの概要について報告した。ここで使われているモデルやその運用方法等は原子力分野における環境安全評価手法を検討する上で，参考になる点が多いものと考えられる。

酸性雨予測モデルは，現在まだ開発途上にあり，今後，様々な面での改良が必要である。主な課題は次の通りである。

(1) モデルの総合化

これまでの酸性雨モデル（特に日本において）は，汚染物質の排出・輸送・沈着プロセスを計算し酸性降下物量を予測するモデルがほとんどであり，生態系に与える影響まで含む総合的なモデルは極めて少ない。その意味で，2.4節のＲＡＩＮＳモデルは先駆的なモデルと言える。

モデル総合化のメリットとしては次のような点が考えられる。

① 一貫した前提条件で予測できる。
② 従って，政策判断のための整合性のとれた資料提供ができる。
③ 総合解析者として自らの理解を進めるための道具としても用いることができる。

政策決定に役立つような情報を提供することが酸性雨モデルの最大の目的であることを考えると，汚染物質の排出から影響に到る過程を総合的に評価できるモデルであることが望ま

しく，モデルの総合化を図ることが大きな課題であろう。

(2) モデル再現性能の向上

2.3節で述べたように，酸性雨は非常に複雑な物理化学過程を伴う現象であり，そのモデル化は極めて難しい。従って，一般的にモデルは複雑なものとなり，一方，ＲＡＩＮＳモデルのような簡略モデルでは科学的裏付けが不充分となる。

モデルの現況再現目標は，そのモデルの目的や対象，運用方法等に依存するものと考えられるが，モデルをより実用的なものとするためには，再現性能の向上が大きな課題であろう。

参考資料

(1) 2.2節関係

① Environmental Data Report ; United Nations Environment Programme, Second Edition 1989/1990

国連環境プログラム（ＵＮＥＰ）が世界各国における環境問題に関連するデータを整理・収録した資料である。酸性雨関連部分は頁数にして20頁ほどであるが，酸性雨の世界的状況が概括的に把握できる。なお，参考までに資料構成を示すと次の通り。

Part 1 Environmental Pollution
Part 2 Climate
Part 3 Natural Resources
Part 4 Population/Settlements
Part 5 Human Health
Part 6 Energy
Part 7 Transport
Part 8 Wastes
Part 9 Natural Disasters
Part10 International Co-operation

② 特集／酸性雨図－現象の実態と推移；公害と対策 Vol.27 No.2 1991

日本全国における酸性雨の実態と推移について，主として日本各地の自治体研究者によって取りまとめられた資料である。

③ 酸性雨対策調査報告書；酸性雨対策検討会大気分科会 平成２年１月

環境庁内に設けられた酸性雨対策検討会大気分科会によって取りまとめられた資料である。環境庁は，昭和58年度から５ヵ年計画で，第１次酸性雨対策調査として，全国における酸性雨成分分析調査および酸性雨による湖沼，土壌等への影響を把握するための調査を実施している。本資料は，この第１次酸性雨対策調査のうち，酸性雨成分分析調査結果について，日本における酸性雨の現状を整理したものである。

④ 平成元年度公害の状況に関する年次報告（環境白書）

酸性雨に関する記述は少ない（頁数にして２～３頁）が，環境庁の酸性雨に対する基本的な認識が示されている。

⑤ 酸性雨土壌・植生への影響；環境庁水質保全局土壌農薬課監修，公害研究対策センター 1990年５月

環境庁が設置している酸性雨対策検討会土壌・植生分科会において，酸性雨の土壌・植生への影響について取りまとめられた資料である。

資料構成は次の通り。

第１部　酸性雨の土壌・植生影響

・雨水の酸性化の実態と地域性

・酸性雨の土壌影響

・酸性雨の植生影響

第２部　酸性雨調査マニュアル編

第３部　酸性雨実態調査編（日本・欧米）

(2) 2.3節関係

① 酸性雨：気象研究ノート第 158号；日本気象学会　1987年９月

酸性雨の現状，現象からモデル，影響まで含めた総合的な参考資料である。

資料構成は次の通り。

1. 酸性雨の歴史
2. 世界各地の酸性雨の現状
3. 大気中におけるSO_2，NOx の変換
4. 大気中の酸性物質
5. 汚染物の沈着機構
6. 長距離輸送モデル

7. 酸性雨の生態系への影響

② 酸性雨の物理と化学；大喜多敏一，公害と対策 Vol.19 No.12, 1983～ Vol.20 No.13, 1984

酸性雨の生成メカニズムを中心として，雑誌「公害と対策」に10回にわたって連載された資料である。各回のテーマおよび掲載号は次の通り。

第1講	酸性雨の発生・対策の歴史	Vol.19 No.2
第2講	降水の捕集分析法	Vol.19 No.13
第3講	大気中における二酸化硫黄と窒素酸化物の酸化過程（Ⅰ）	Vol.20 No.3
第4講	〃 〃 （Ⅱ）	Vol.20 No.4
第5講	気相反応によるSO_2，NOx の酸化および硫酸塩粒子の態動	Vol.20 No.6
第6講	硝酸および硝酸塩粒子の地域的分布および時間変動	Vol.20 No.7
第7講	酸性物質の乾性沈着	Vol.20 No.9
第8講	酸性物質の湿性沈着（Ⅰ）	Vol.20 No.10
第9講	〃 （Ⅱ）	Vol.20 No.11
第10講	酸性雨の解析およびボックスモデル	Vol.20 No.13

(3) 2.4 節関係

①・The NCAR Eulerian Regional Acid Deposition Model ; The NCAR Acid Deposition Modelling Project, NCAR/TN-256+STR, June 1985.

・Preliminary Evaluation Studies with the Regional Acid Deposition Model(RADM), The NCAR Acid Deposition Modelling Project, EPA/600/3-86/024, March 1986.

これらの資料は，米国で開発された大規模な酸性雨モデルＲＡＤＭについて解説したもので，モデルの詳細が記述されている。

② A Second Generation Model for Regional-Scale Transport/Chemistry/Deposition ; G.R. Carmichael et al., Atmos. Environ, 20-1, 1986

ＲＡＤＭと同様，米国で開発された酸性雨モデルに関する論文である。このモデルの改訂版は，関東地域から長野県に到る長距離輸送計算にも適用されている。

(4) 2.5節関係

ｉ）ＲＡＲＭＳモデル関係

① 地域スケールにおける酸性雨把握システム作成調査（昭和63年度環境庁委託調査）；

財団法人　計量計画研究所　平成元年３月

② 光化学オキシダント長期予測モデル作成調査（平成元年度環境庁委託調査）；

財団法人　計量計画研究所　平成２年３月

ii）ＲＡＩＮＳモデル関係

① Integrated Analysis of Acidification in Europe ; Alcamo, J. et al., RR-86-2, IIASA, 1986.

② A Framework for Error Analysis of a Long-Range Transport Model with Emphasis on Parameter Uncertainty ; Alcamo, J. and J. Bartnicki, RR-87-23, IIASA, 1987.

③ Acidification in Europe : A Simulation Model for Evaluating Control Strategies ; Alcamo, J. et al., RR-88-2, IIASA, 1988.

④ Nitrogen Deposition Calculations for Europe ; Alcamo, J. and J. Bartnicki, WP-88-025, IIASA, 1988.

⑤ Modelling of Long-Range Transport of Sulphur over Europe : A Two-Year Model Run and Some Model Experiments ; Eliassen, A. and J. Saltbones, Atmos. Environ., 17-8, 1983.

表2.4　ＲＡＩＮＳモデルの影響サブモデルにおける評価指数

事　象	指　標	備　考
土壌酸性化	土壌ｐＨ	森林衰退，地下水，表層水酸性化の指標として。
湖沼酸性化	アルカリ度，ｐＨ	魚の生存条件の指標。
地下水酸性化	飲料水の鉛，C_d 汚染の危険度	水道管の腐食。
森林直接影響	影響出現年数／森林交替年数	SO_2 の長期暴露による影響発現年数のフィールド調査結果に基づく。

表2.1　モデルの比較

	酸　性　雨	再処理施設（大気放出）による線量評価
ソース	SO_2，NOx，NH_3，NMHC，……	核種（^{85}Kr，……　　）
移流・拡散	・トラジェクトリィ型 （流跡線モデル） or ・グリッド型 （拡散方程式の数値解）	解析解型（プルーム式）
変　質	気相反応，液相反応，	放射性崩壊
沈　着	・湿性沈着（レインアウト，ウォッシュアウト） ・乾性沈着	同　左
評価項目	酸性物質降下量，ｐＨ ⇩ ・土壌，湖沼，地下水の酸性化指標 ・森林の影響指標	線量当量 外部被ばく （放射性雲，地表面沈着） 内部被ばく （呼吸，農畜産物）
評価期間	短期評価　～　長期評価 （１日程度）　（１年以上）	年間評価（？）
評価地域	・メソスケール(100kmオーダー) or ・リージョナルスケール (1000kmオーダー)	数km程度

表2.2　沈着速度V_gを構成する抵抗値の設定法

		算　定　式
空気力学的抵抗 ra		$ra=\frac{\ell n Zc/Z_0-\psi c(\zeta c)}{\kappa U_*}$　　Zc:reference height (=12.5mとする) $u_*=\frac{\kappa Uc}{\ell n Zc/Z_0-\psi_m(\zeta c)}$ $\phi c, \phi_m$はBusinger(1971)に従う $\psi c=\int_{\zeta_0}^{\zeta c}\frac{1-\phi c(\zeta)}{\zeta}d\zeta$,　$\phi c=\begin{cases}0.74+4.75\zeta, & \zeta>0\\ 0.74(1-9\zeta)^{-0.5}, & \zeta<0\end{cases}$ $\psi_m=\int_{\zeta_0}^{\zeta c}\frac{1-\phi_m(\zeta)}{\zeta}d\zeta$,　$\phi_m=\begin{cases}1+4.7\zeta, & \zeta>0\\ (1-15\zeta)^{-0.25}, & \zeta<0\end{cases}$ $\zeta=Z/L$
表面抵抗 rb	1)陸上	$rb=\frac{2}{\kappa U_*}(\frac{\kappa}{Dc})^{2/3}$　[Wesely & Hicks(1977)] κ：空気の分子熱拡散係数(=0.214cm²/s,20℃,1atm,乾燥空気) Dc：空気中における微量ガスの分子拡散係数 O_3：0.157cm²/s NO：0.199cm²/s NO_2：0.154cm²/s HNO_3：0.160cm²/s etc
	2)水上	$rb=\frac{1}{\kappa U_*}\ell n(\frac{\kappa U_* Z_0}{Dc})$　[Garratt & Hicks (1983)]
残差抵抗 rs		O_3, NOx：地表面性状別　(下表参照)→6kmメッシュ別に土地利用類型データから計算 HNO_3　：一律 0.1s/cm その他は0とする。 [Voldner etal (1986)]

表2.3　ヨーロッパにおける広域的大気汚染に関する国際的な動向

1972	ＯＥＣＤ「大気汚染物質の長距離輸送評価のための技術協力計画」を発足。
1979	同上計画の知見発表。以後、ＯＥＣＤよりＵＮ－ＥＣＥに移行。 ヨーロッパ32ヶ国，ＥＥＣ，カナダ，米国による「長距離国際大気汚染に関する協定」調印（1983発効）。ＷＭＯとＥＣＥによるＥＭＥＰ（ヨーロッパにおける大気汚染物質の長距離輸送の監視と評価の協同計画）発足。1983現在22ヶ国の81測定局が稼働。
1985/86	３つの国際協力計画が発足。①物質への暴露　②川・湖の酸性化の評価と監視　③森林への影響の評価と監視
1985	議定書（1985 protocol）「サルファーの排出量または国境を越える輸送量を1993年までに1980年現在より少なくとも30％削減」（英国等は署名せず）

表2.4　RAINSモデルの影響サブモデルにおける評価指標

事　象	指　標	備　考
土壌酸性化	土壌ｐＨ	森林衰退，地下水，表層水酸性化の指標として。
湖沼酸性化	アルカリ度，ｐＨ	魚の生存条件の指標。
地下水酸性化	飲料水の鉛，C_d 汚染の危険度	水道管の腐食。
森林直接影響	影響出現年数／森林交替年数	SO_2 の長期暴露による影響発現年数のフィールド調査結果にもとづく。

表2.5　RAINSモデルにおけるSO_2排出サブモデル

Box 1: SO_2—Emissions submodel

Symbols:

E	energy use
hv	heat value
sc	sulfur content
sr	fraction of emissions retained in ash
x	fraction of emissions removed by pollution control
S	sulfur emissions
S^p	sulfur emissions from industrial (non combustion) processes
i	country (27ヶ国)
j	fuel type
k	economic sector
l	abatement technology
t	time

Sulfur emissions calculation:

Sectoral emissions per fuel:

$$S_{i,j,k}(t) = \sum_{l} E_{i,j,k,l}(t) \frac{sc_{i,j,k}}{hv_{i,j}} (1-sr_{j,k}) (1-x_{i,k,l})$$

Total sulfur emissions per country:

$$S_i(t) = \sum_{j} \sum_{k} S_{i,j,k}(t) + S_i^p(t)$$

j : brown coal
　　hard coal
　　derived coal
　　light oil
　　medium destillate
　　heavy oil
　　gas
　　other fuels (no emission)

k : conversion
　　power plants
　　domestic
　　industry
　　transportation

表2.6　ヨーロッパ27ケ国のＳＯ$_2$排出動向

		1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1990
Albania	AL		[25]	[25]	[25]	[25]	[25]	[25]	[25]	[25]	[25]	[25]	
Austria	AT	187	(182)	177	(155)	(134)	112	91	85	(80)	(75)	(70)	60
Belgium	BE		(414)	414	356	347	280	250	225	237	224	(234)	
Bulgaria	BG		(517)	517	(517)	(570)	570	(570)	(570)	535	535	(535)	
Czechoslovakia	CS		(1550)	1550	(1550)	(1575)	(1575)	(1575)	1575	1511	1450	(1425)	1[illegible]
Denmark	DK		(273)	224	(182)	(184)	(156)	(148)	170	(139)	(124)	127	133 90
Finland	FI		(292)	292	(255)	(217)	179	180	185	162	162	(159)	155 90
France	FR		(1756)	1756	1368	1320	1119	998	870	798	759	(759)	
German Dem. Rep.	DD		(2500)	2500	(2500)	(2500)	(2500)	(2500)	(2500)	2500	(2495)	(2495)	
Germany Fed. Rep. of	DE		(1600)	1600	(1525)	1450	1375	1400	1200	1100	1000	(945)	550 95
Greece	GR	350	(200)	200	(200)	(180)	180	(180)	(180)	(180)	(180)	(180)	
Hungary	HU		(817)	817	(795)	(774)	(752)	730	710	(710)	(710)	(707)	
Iceland	IS		(3)	3	(3)	(3)	(3)	3	3	(3)	(3)	(3)	
Ireland	IE		(110)	110	(100)	(90)	(80)	70	69	(77)	(84)	(92)	107
Italy	IT		(1900)	1900	(1792)	(1683)	1575	1328	1252	(1185)	(1185)	(1185)	
Luxembourg	LU		(11)	11	(10)	(8)	6	(6)	7	(7)	(6)	(6)	5
Netherlands	NL		(232)	232	(210)	(180)	167	(153)	138	138	141	(136)	125
Norway	NO		(71)	71	63	56	52	48	49	45	36	36	
Poland	PL		(2050)	2050	(2050)	(2150)	2150	(2150)	2150	2150	2100	2100	2250
Portugal	PT		(133)	133	(140)	(146)	153	(144)	(134)	(125)	(116)	(106)	87
Romania	RO		(100)	100	(100)	(100)	(100)	(100)	(100)	(100)	(100)	(100)	
Spain	ES		(1625)	1625	1625	1625	1625	(1614)	(1603)	(1592)	(1581)	(1570)	
Sweden	SE		(242)	232	(209)	(176)	143	132	135	122	(116)	(110)	91
Switzerland	CH		(63)	63	(59)	(56)	(52)	48	48	32	(31)	(31)	29 93
Turkey	TR		(138)	(138)	(138)	(138)	(138)	138	161	177	(177)	(177)	
Soviet-Union *)	SU		(6400)	6400	6300	6100	5900	5700	5550	5450	5100	5000	4800
United Kingdom	GB		2600	2335	2150	2000	1850	1770	1780	1870	1935	1890	1900
Yugoslavia	YU		(588)	588	(622)	(657)	(691)	725	(725)	(725)	(725)	(725)	
Sum			26392	26063	24999	24444	23508	22776	22199	21175	21095	20928	

Data that have been officially submitted are underlined. Interpolated data are shown by a paranthesis. Data estimated by MSC-W/CCC are given in square brackets. The table includes corrections received at the ECE Secretariat up to 1 May 1989.
Submitted emission predictions for future years are also shown.

*)European part of USSR, within EMEP area of calculation.

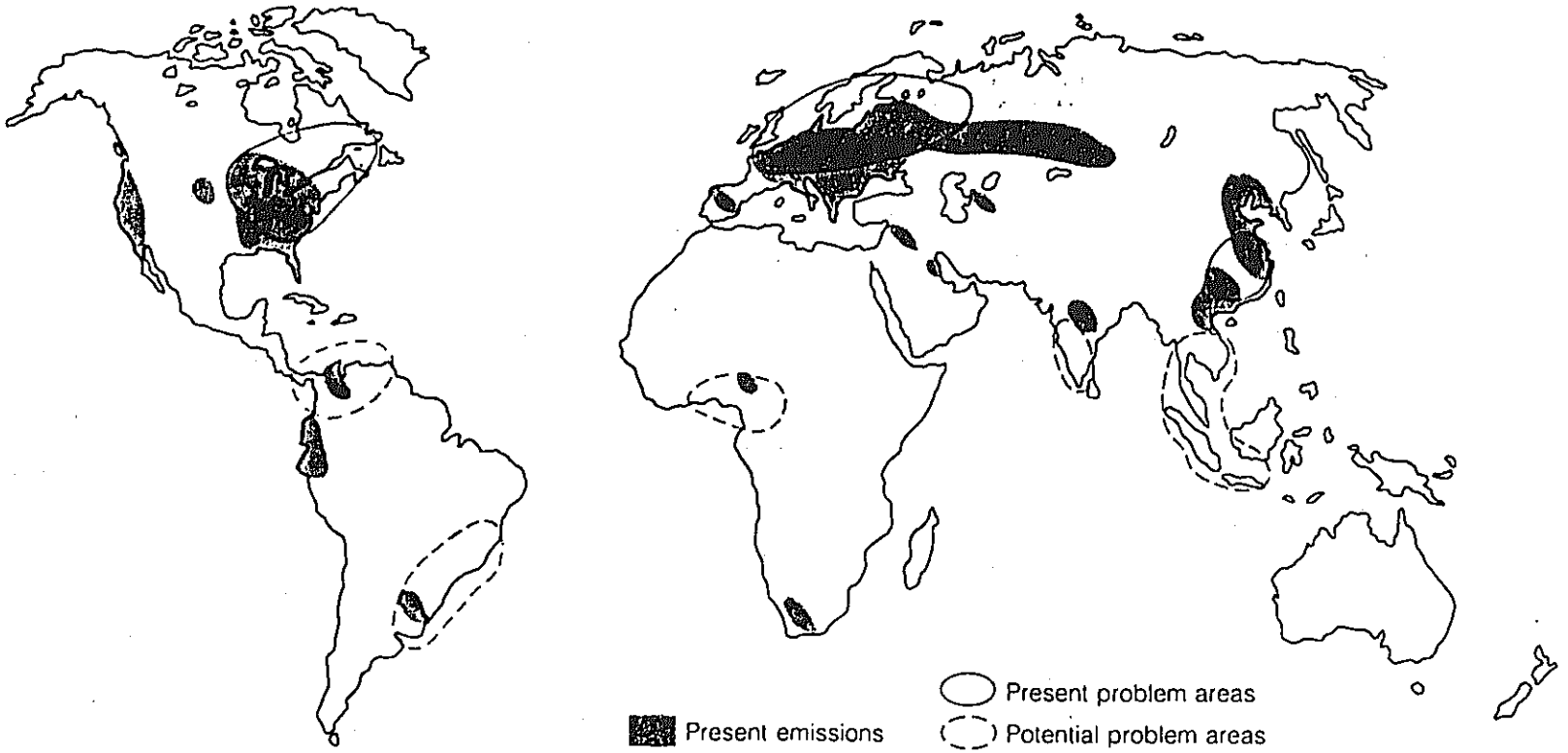


図2.1　酸性雨の問題地域（ＵＮＥＰ：Environmental Data Report (1989/90)）

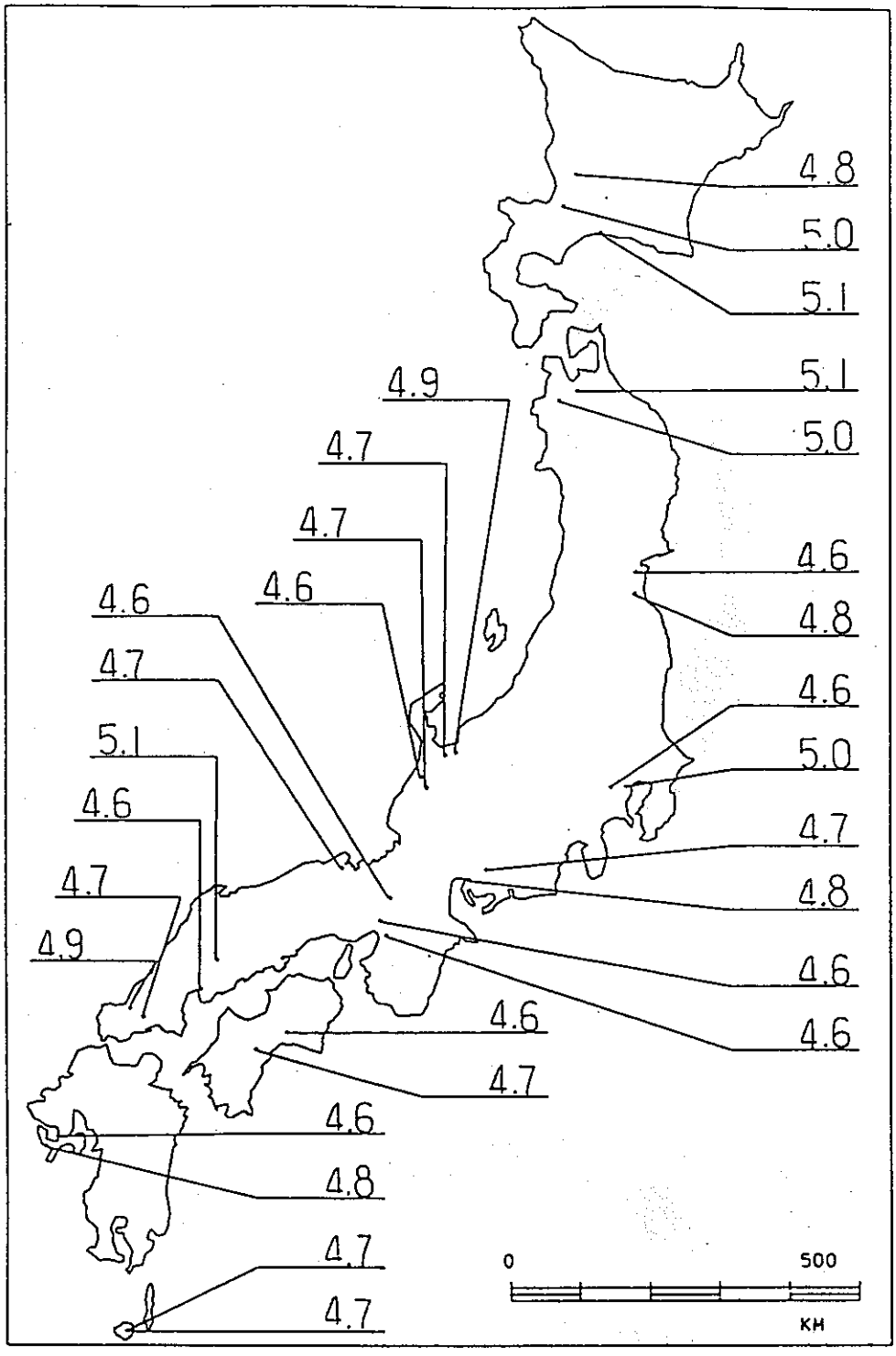
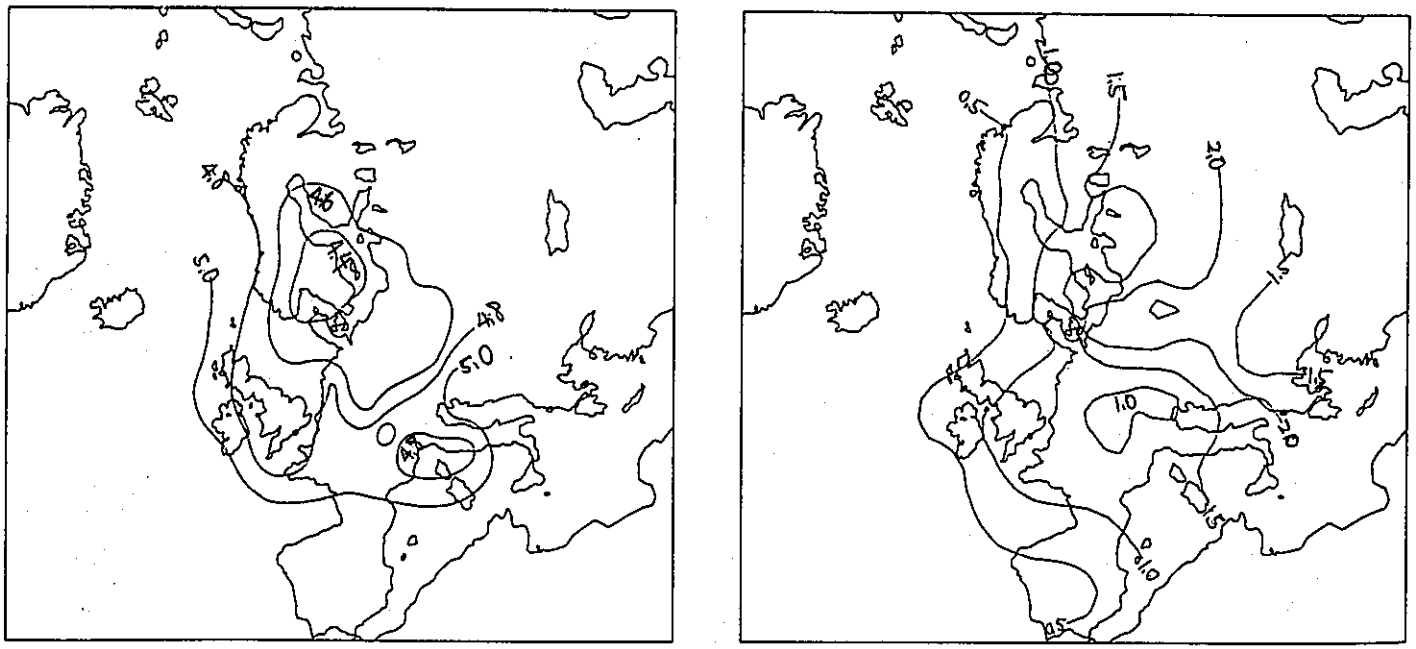


図2.2　pH平均値　全国分布図（ろ過式採取器）

長期モニタリング地点では昭和59～62年度の，
短期モニタリング地点では昭和61～62年度の
それぞれ平均値である。　＜環境庁調査結果＞



a) pH　　b) SO_4^{2-} (mg l^{-1} S)

図2.3　欧州におけるｐＨおよびＳＯ$_4^{2-}$の分布図

世界各地の降水のpH（年平均値）

No.	地点	測定年	pH
1	北京	'81	6.80
2	上海	83-86	5.92
3	貴陽	82-84	4.07
4	重慶	82-84	4.14
5	峨眉山頂	85-86	4.69
6	Hrádeku Pacova	78-92	4.38
7	Stoke Ferry	81-82	4.07
8	State Colledge	84	4.10
9	Pasadena	82-84	4.50
10	横浜	85	4.68
11	綾里	82-84	4.58
12	MaunaLoa	80-82	5.36
13	Samoa	80-82	5.51

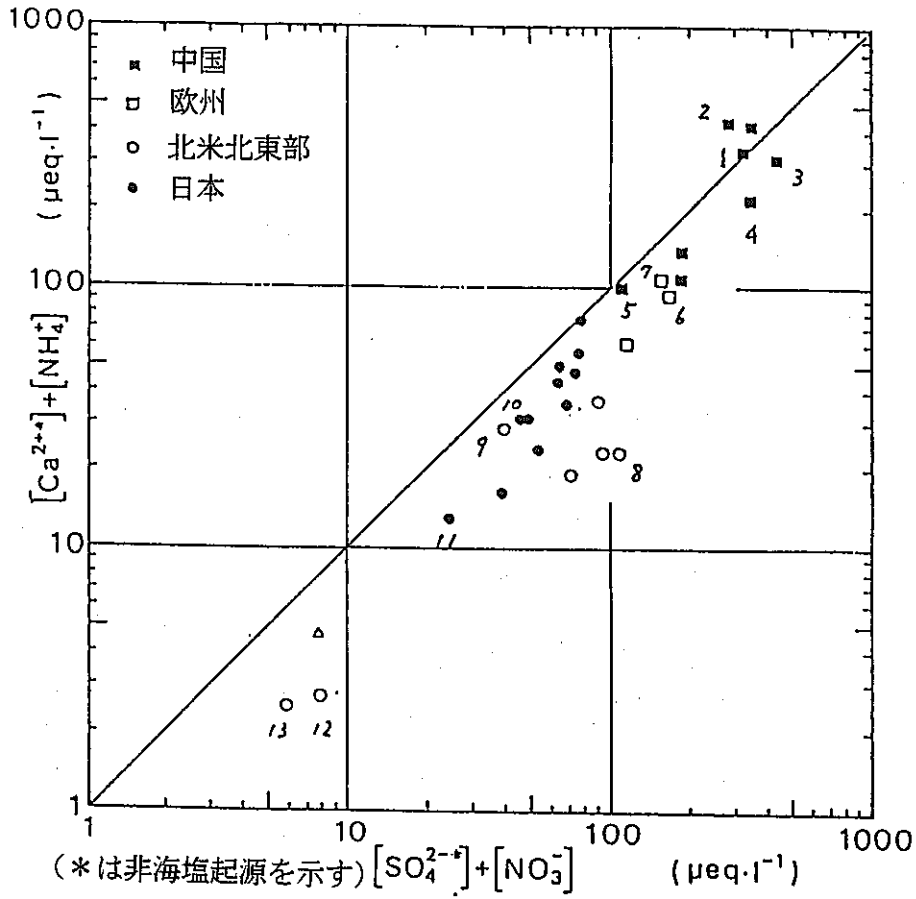


図2.4　世界の各地点の降水の酸性度とアルカリ度のポテンシャル　鶴田治雄（1989）

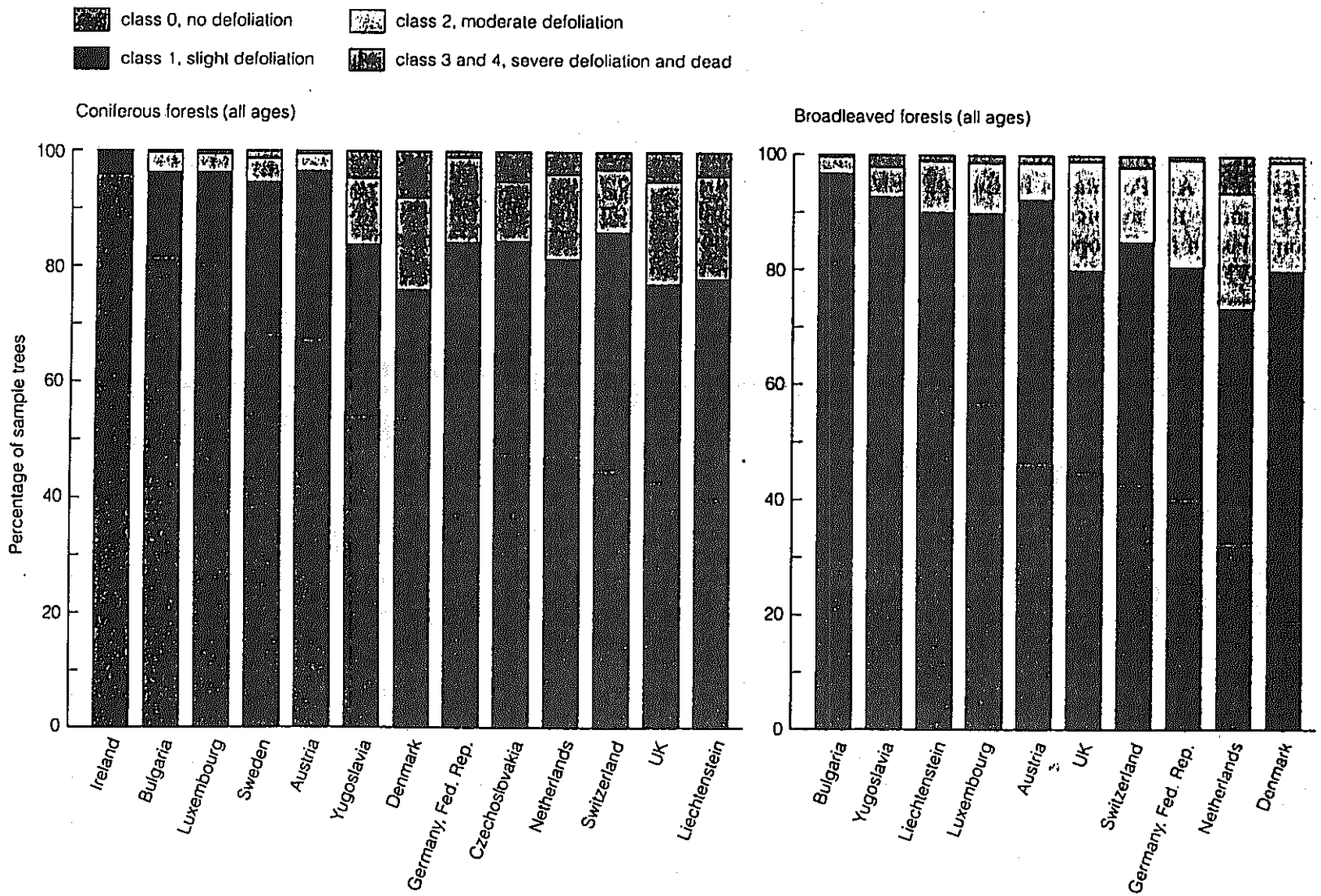
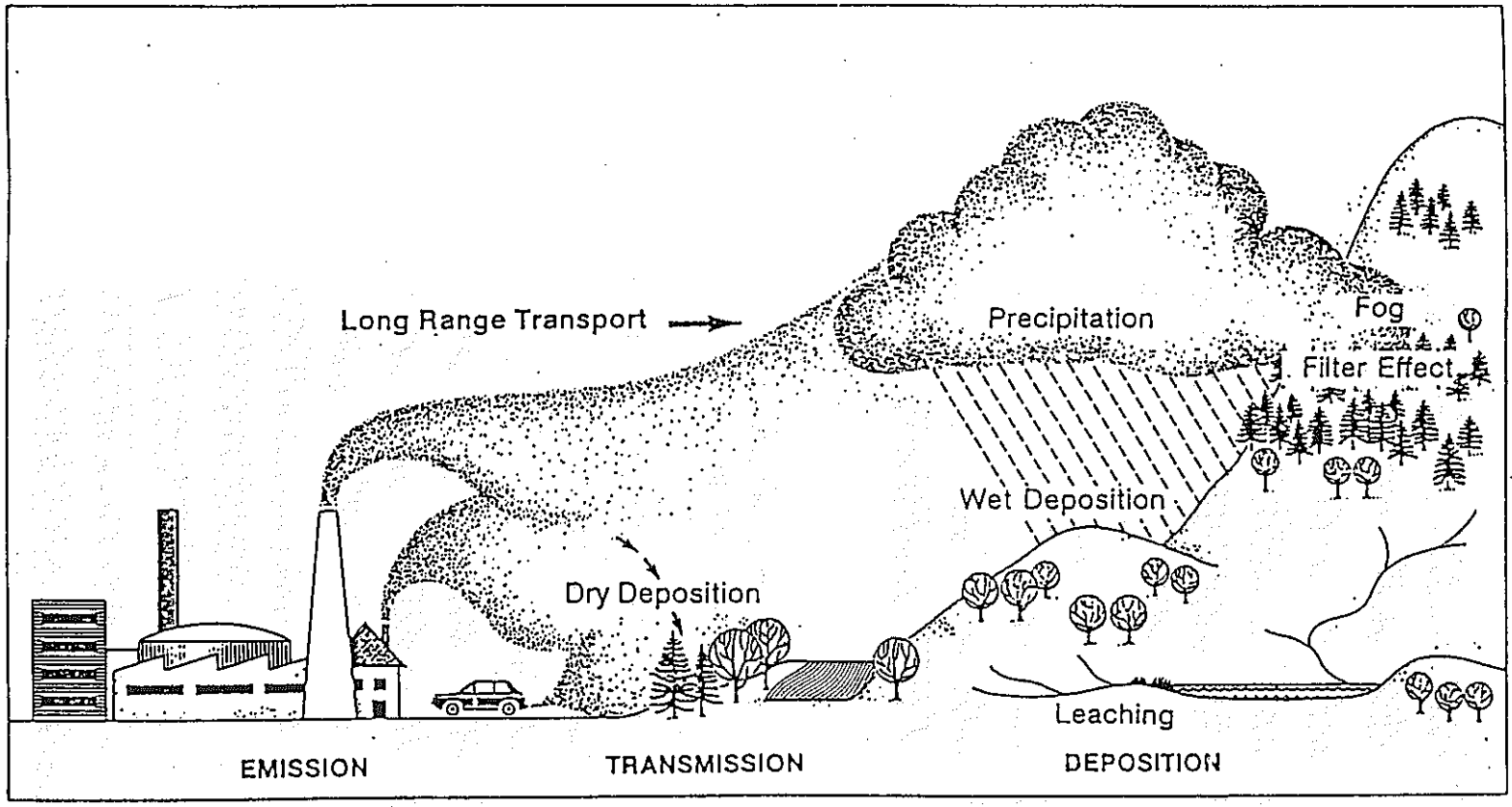


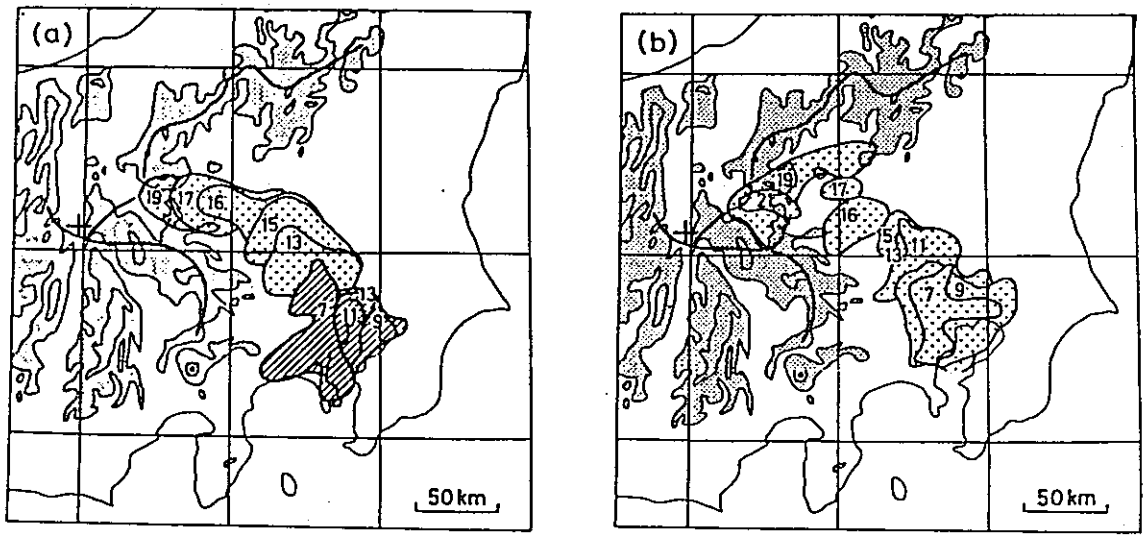
図2.5　欧州における森林の被害度（ＵＮＥＰ：Environmental Data Report(1989/90)）



Long Range Transport

Spatial dispersion of emissions and deposition of pollutants. The emitted pollutants remain for differing periods of time in the atmosphere, depending on the height of the source, wind conditions and other climatic and meteorological influences. They can thus be transported a long way from their source. During this long range transport numerous pollutants react with the oxygen in the air, with humidity, or with each other. The acids or photooxidants formed are often more toxic for plants than the initial pollutant. Deposition can be in wet or dry form. When there is fog there is a particularly high input of pollutants in the forests. The enormous surface area of leaves and needles acts as a filter for heavy metal dusts and liquid and gaseous pollutants.

図2.6　酸性雨生成の概念図



Ox，NO_x および SP の高濃度域の移動。
1983年7月29日。太線は太平洋側と日本海側の大規模風の収束線。
(a) Ox ≥ 100ppb ; NO_x ≥ 40 ppb
(b) SP ≥ 90 $\mu g\,m^{-3}$

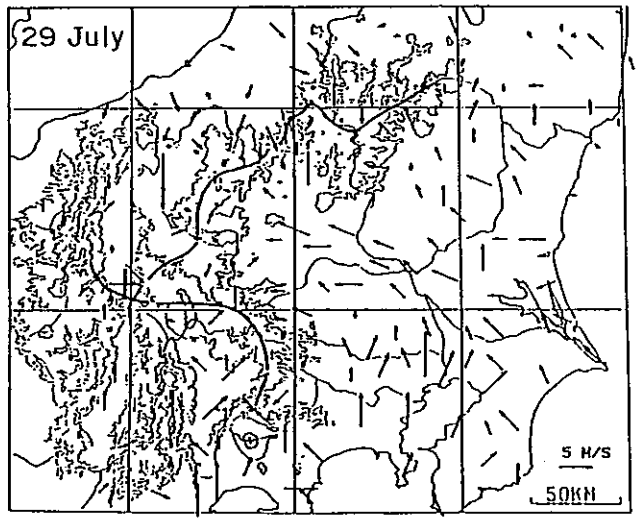
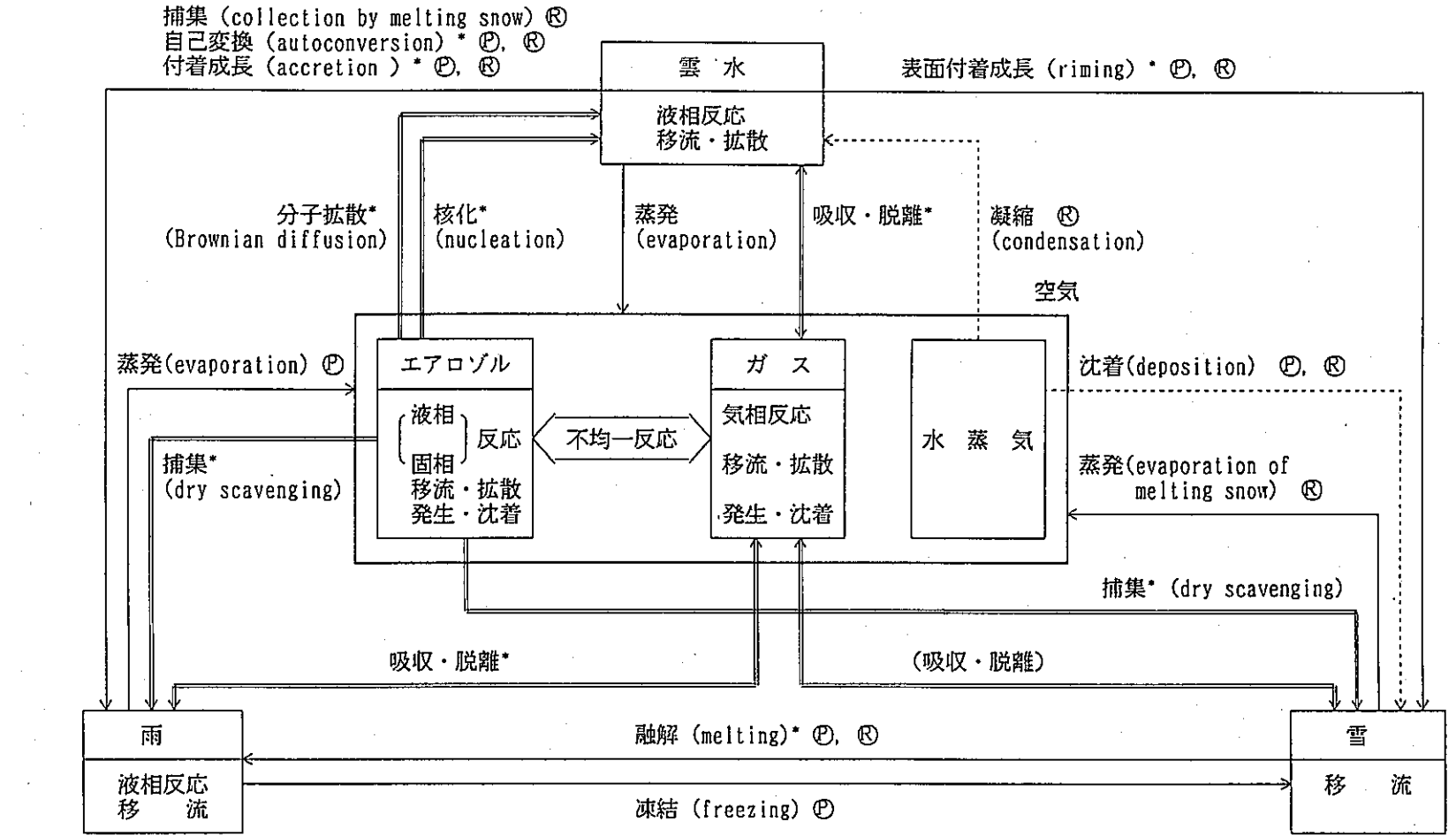


図2.7　日本における大気汚染物質の長距離輸送の例

「内陸域における大気汚染の動態（昭和61年3月）」（環境科学研究報告B280-R11-2）



凡例　⟶ 水分及び化学種の移動　⋯⋯> 水分のみ移動　⟹ 化学種のみ移動
Ⓟ PLUVIUSモデルにおけるパス　Ⓡ Rutledge and Hobbs (1983)におけるパス　＊ Hegg et al.(1984)で使われている物質移動のパス

（注）① この図は、物質移動プロセスを中心に整理したものである。
② 液相として、雲水，雨，雪のみを対象とした。

図2.8　酸性雨モデルにおける物理化学過程の概要

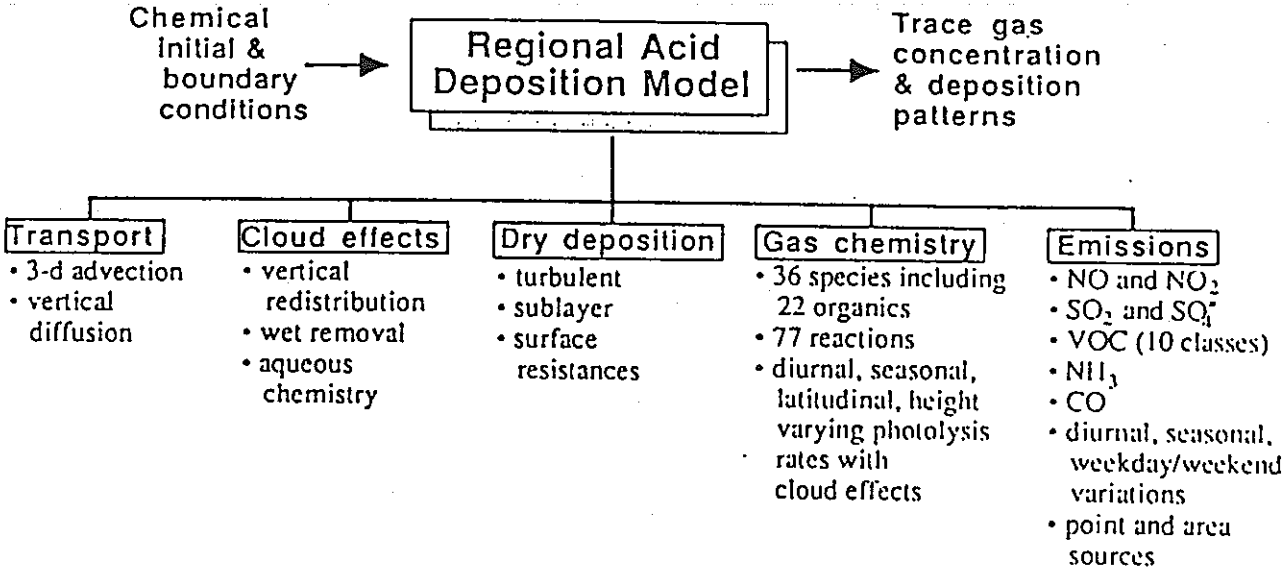
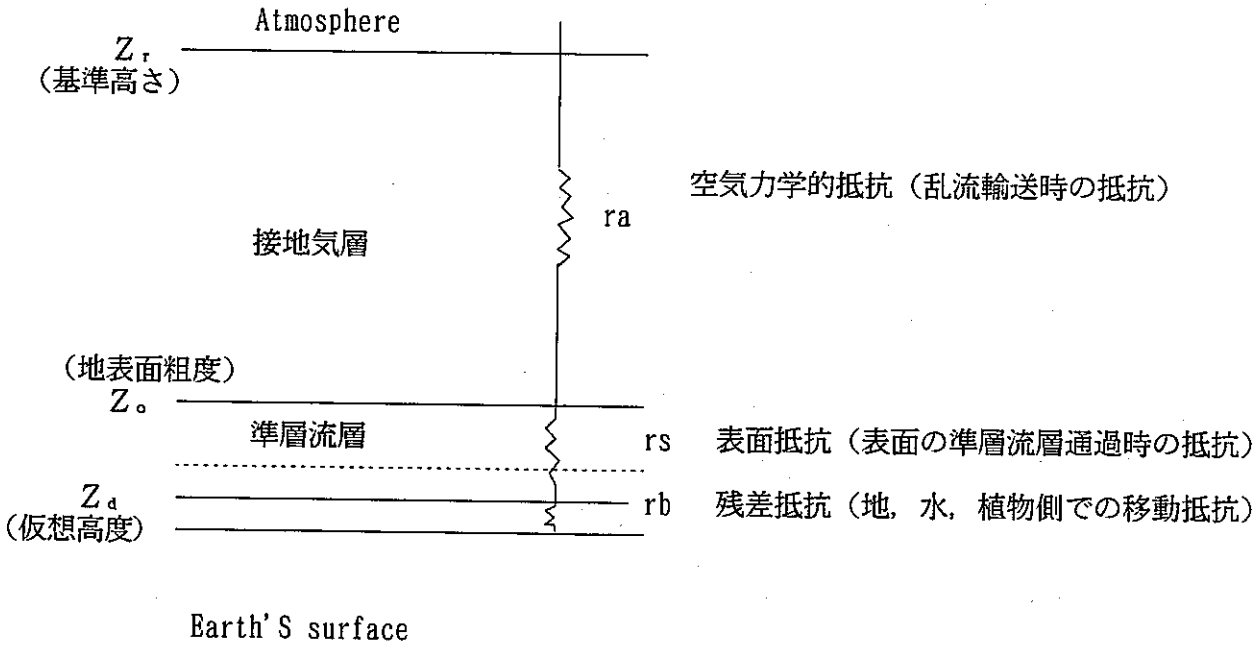


図2.9　詳細型の酸性雨モデルの構成（Chang et al.(1987), JGR.92-D12）



Rutledge and Hobbs (1983) の層状雲モデル

水分量の保存式は次のとおりである。

$$\frac{\partial q_c}{\partial t} = -w\frac{\partial q_c}{\partial z} + wq_c\frac{\partial (\ln \rho_a)}{\partial z} + S_c \quad : \text{雲粒}$$

$$\frac{\partial q_r}{\partial t} = -(w+V_R)\frac{\partial q_r}{\partial z} - q_r\frac{\partial V_R}{\partial z} + q_r V_R\frac{\partial (\ln \rho_a)}{\partial z} + S_R \quad : \text{雨滴}$$

$$\frac{\partial q_s}{\partial t} = -(w+V_s)\frac{\partial q_s}{\partial z} - q_s\frac{\partial V_s}{\partial z} + q_s V_s\frac{\partial (\ln \rho_a)}{\partial z} + S_s \quad : \text{雪片}$$

ρ_a ：密度 ，　　w：上昇気流速度

V_R ， V_s ：雨滴，雪片の平均落下速度

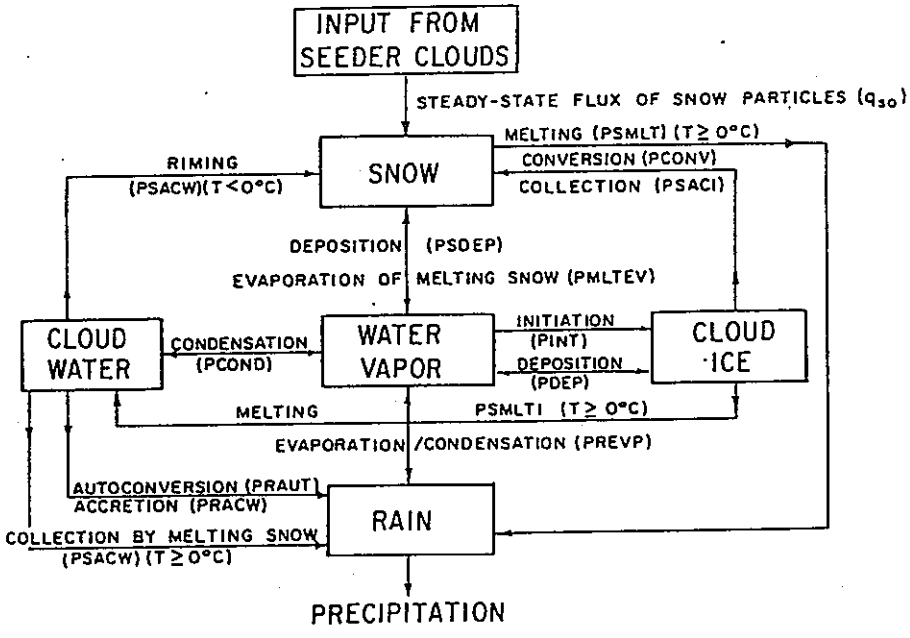
S_c ， S_R ， S_s ：相変換による発生項

相変換に伴う各相の発生項は

S_c ＝凝縮（PCOND）－自己変換（PRAUT）－雨による付着（PRACW）
－雪による添加（PSACW）

S_R ＝PRAUT＋PRACW－蒸発（PREVP）＋雪の融解（PMELT）

S_s ＝PSACW－PMELT＋水蒸気沈着（PDEP）－昇華（PSUB）



水分の相変化の模式図（Rutledge and Hobbs, 1983）[2)]

図2.11　雲物理モデルの例

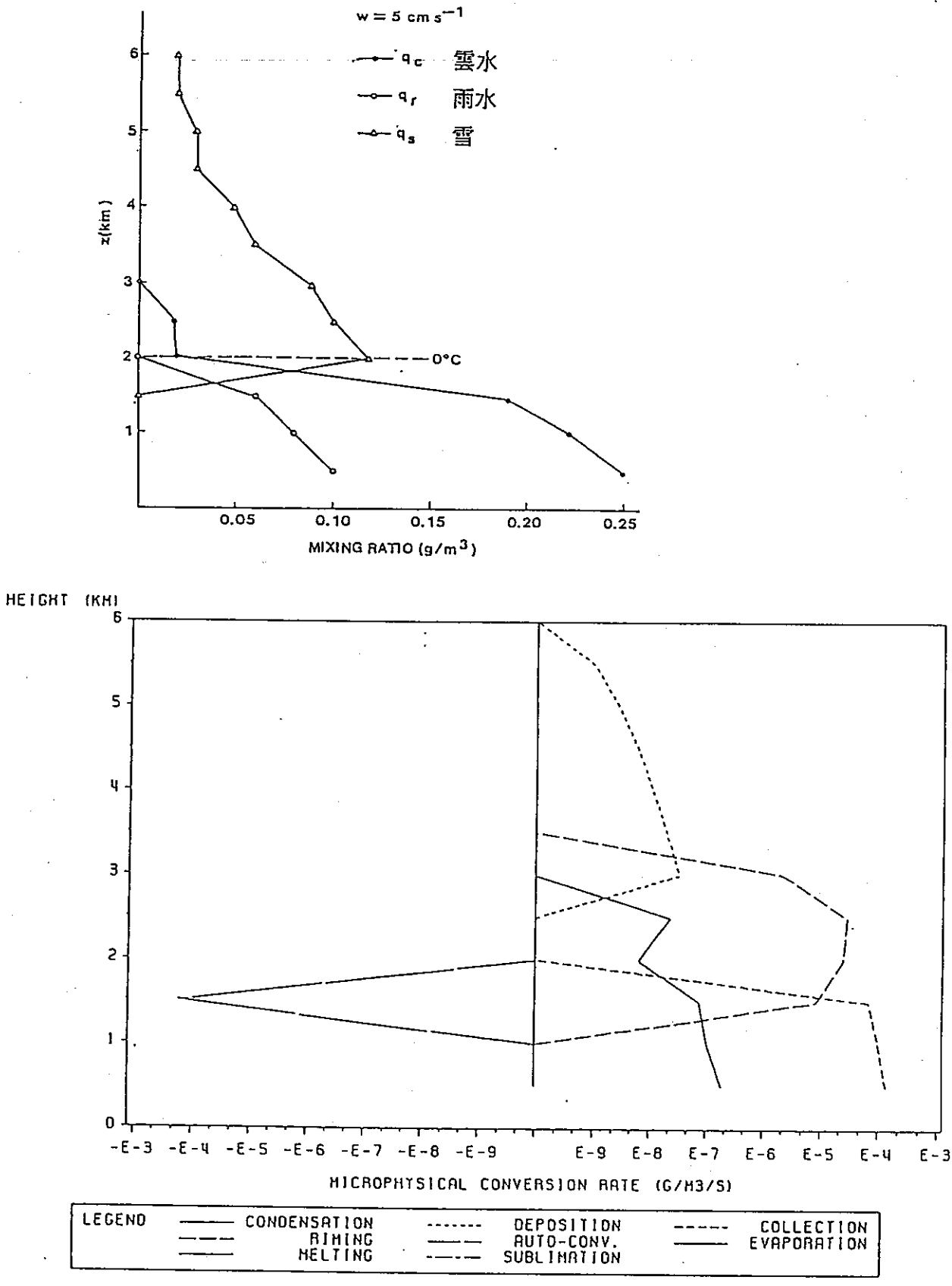


図2.12　雲物理モデルの計算例

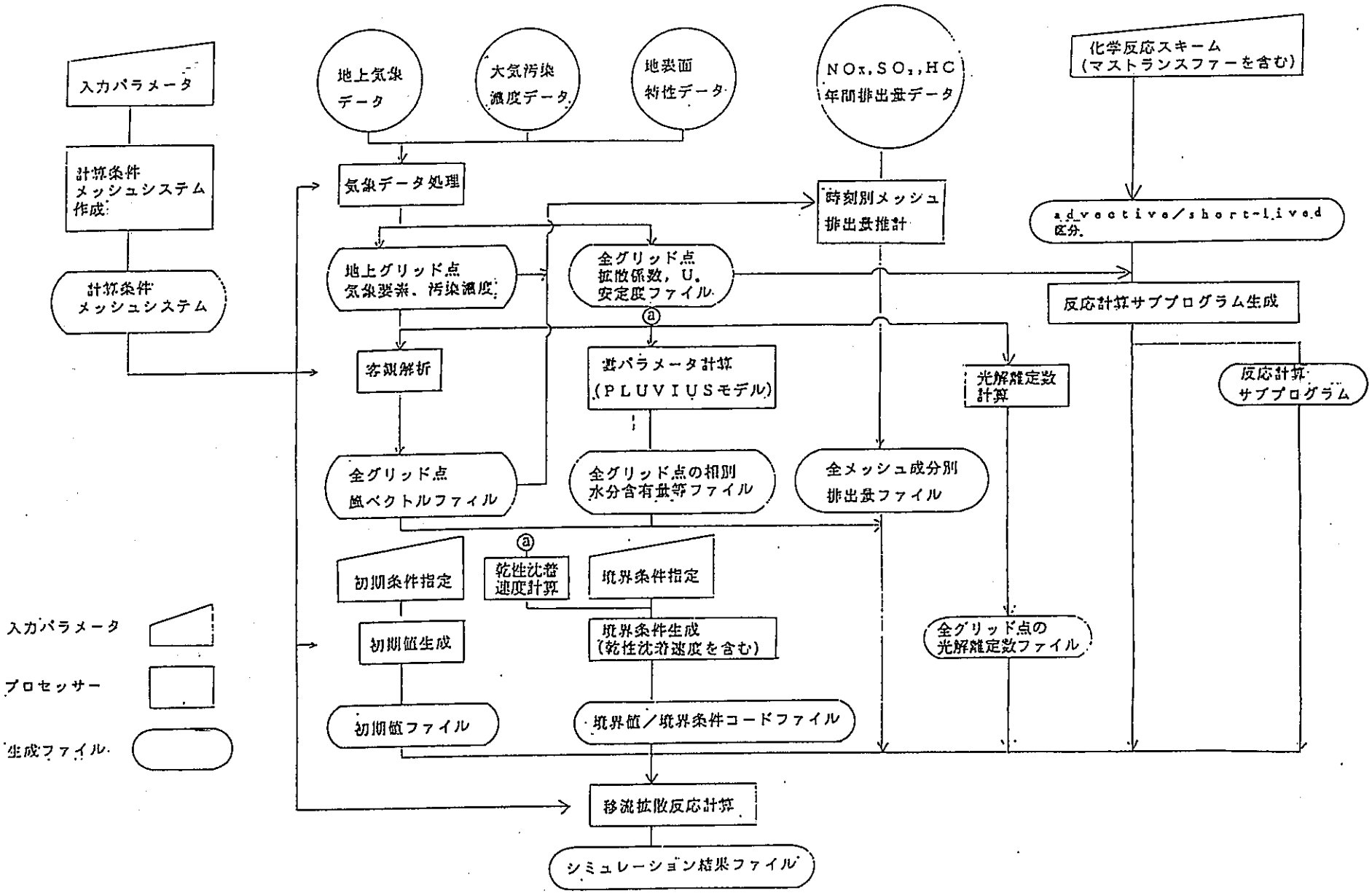


図2.13　RARMSモデルのシステム全体構成

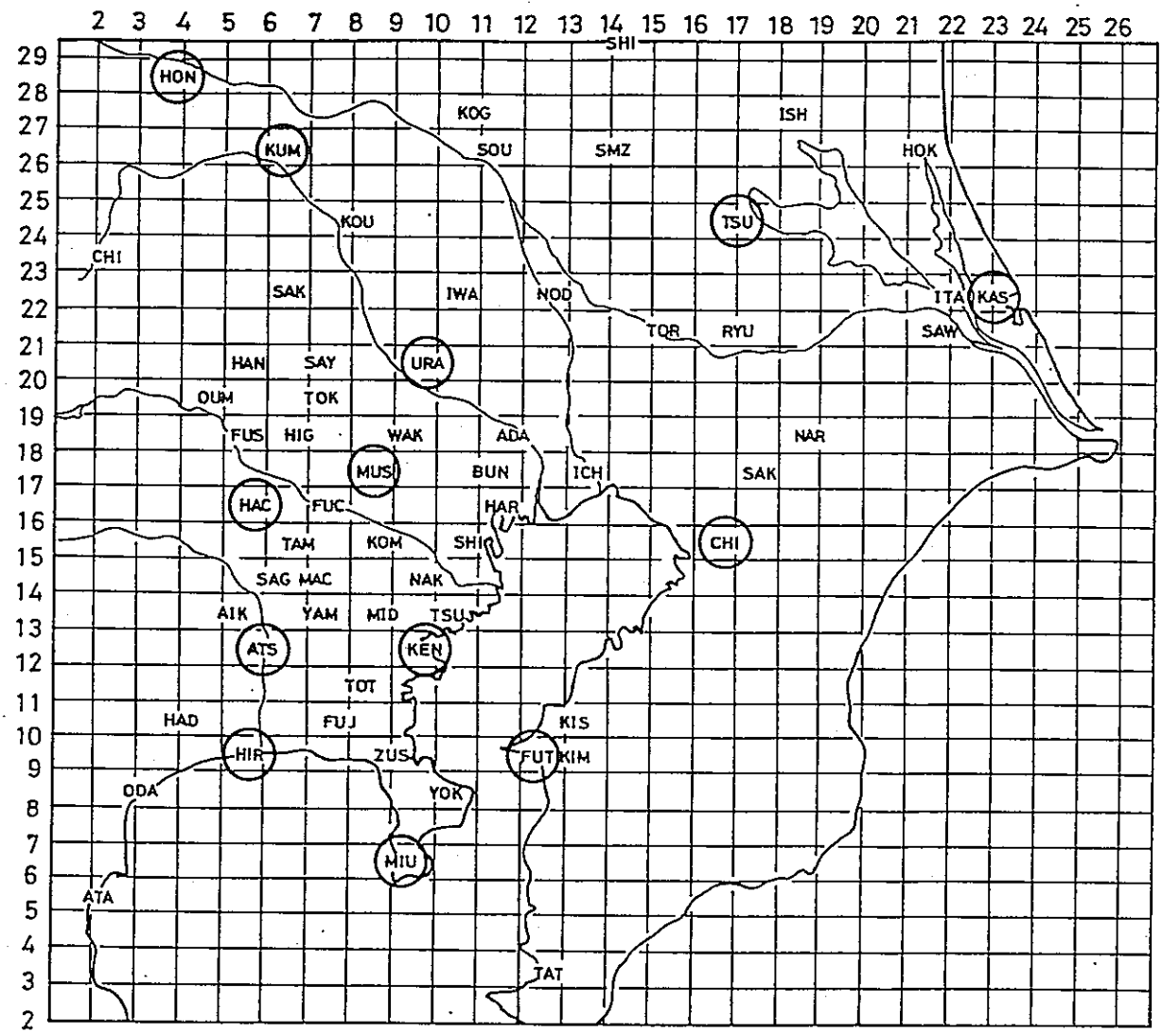


図2.14　ＲＡＲＭＳモデルによるシミュレーション計算領域と評価対象とした常監局位置

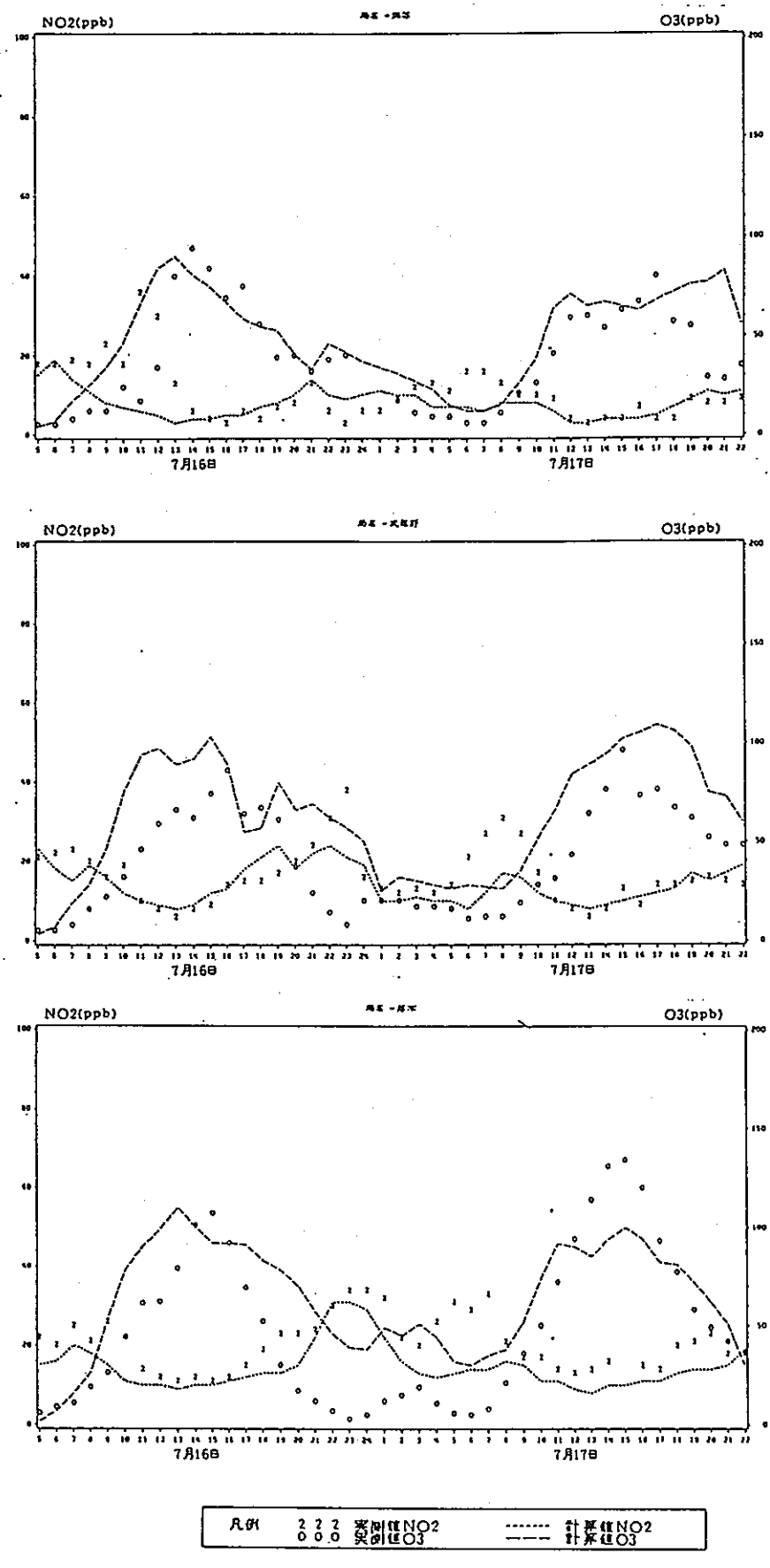


図2.15　ＲＡＲＭＳモデルによるO_3，NO_2 濃度経時変化の計算値と実測値の比較図

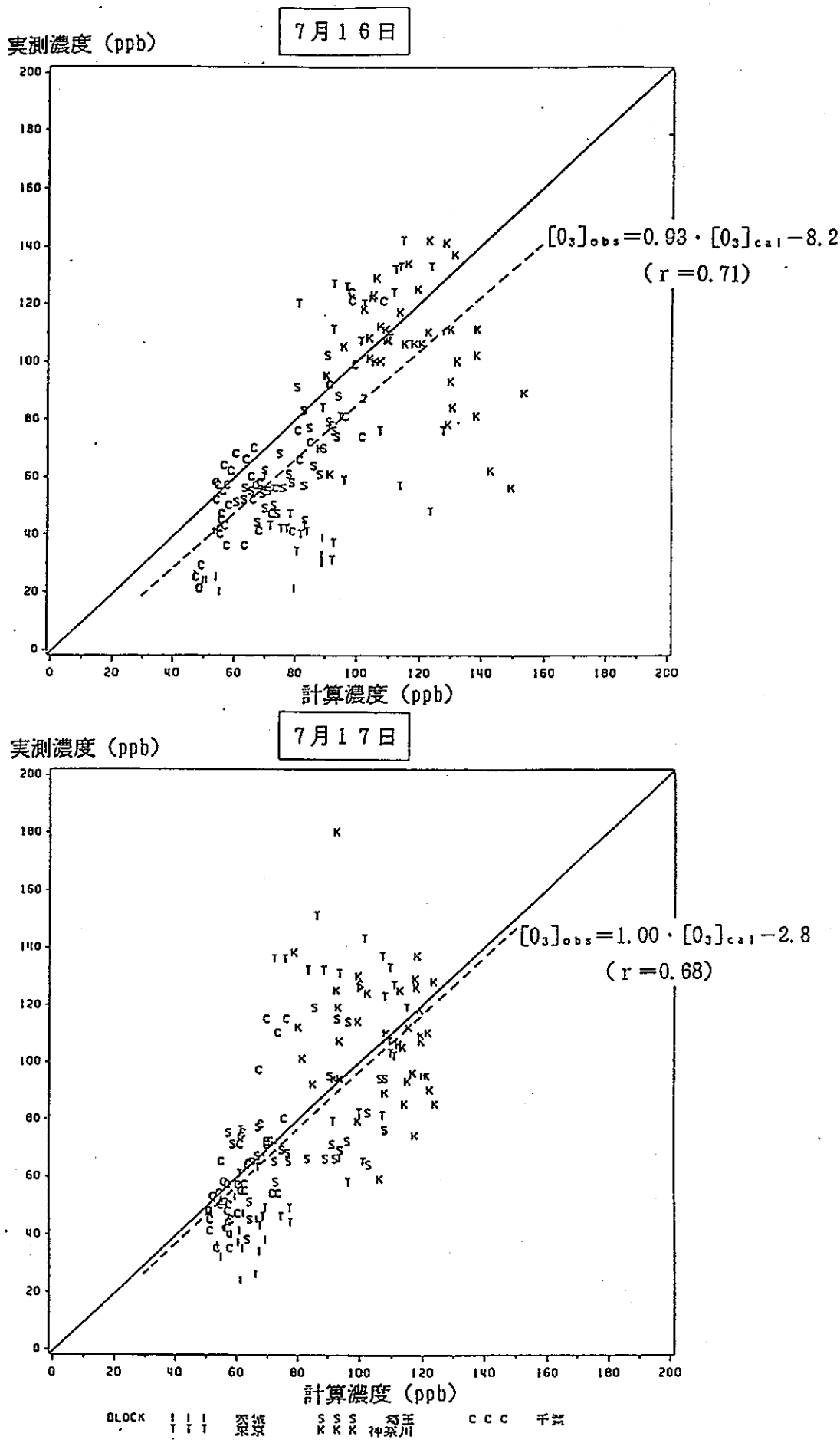


図2.16　RARMSモデルによるメッシュ別O_3日最高濃度の実測値と計算値の比較

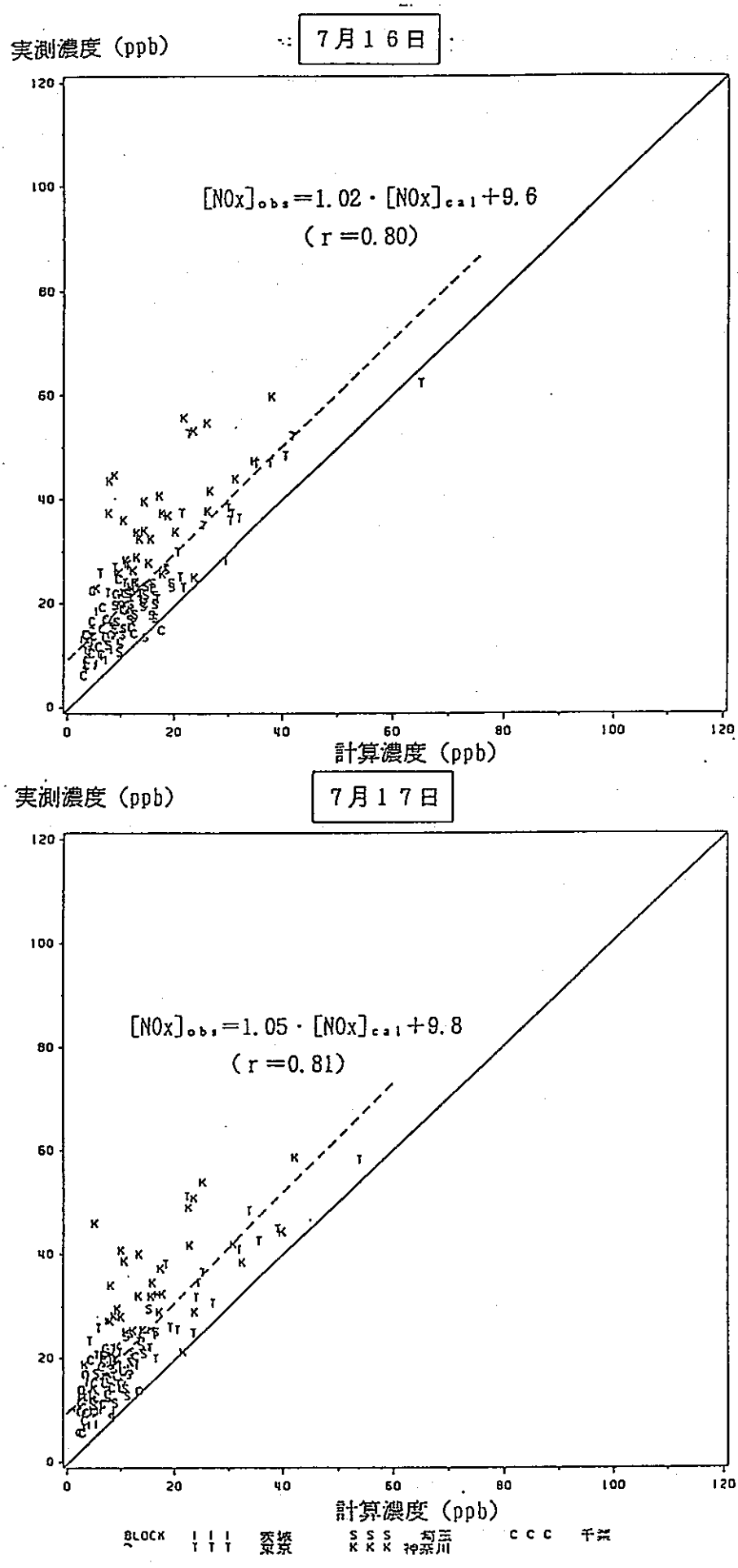


図2.17　ＲＡＲＭＳモデルによるメッシュ別ＮＯｘ日平均濃度の実測値と計算値の比較

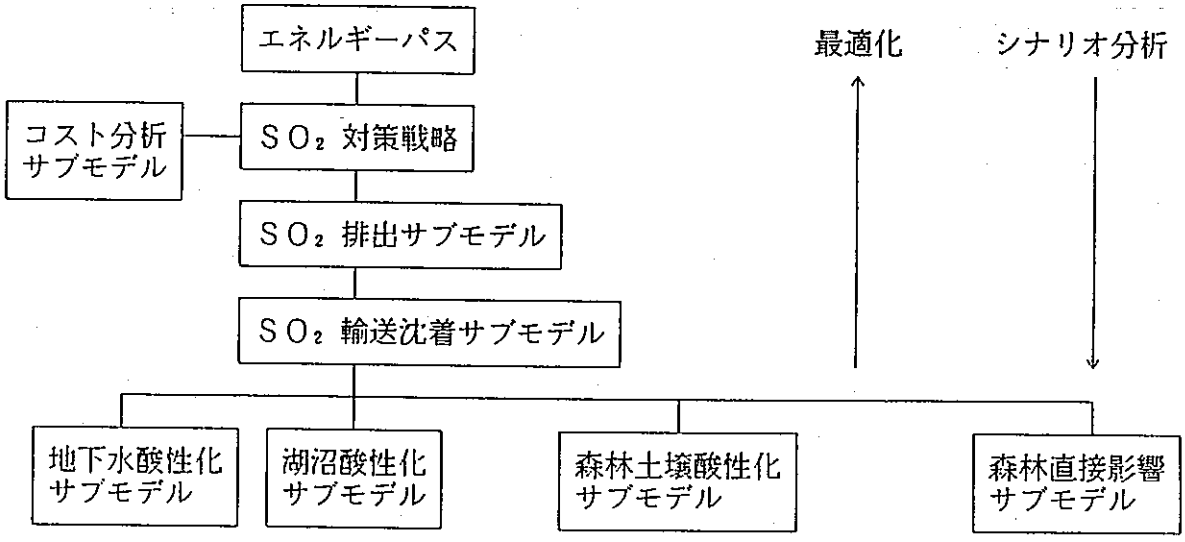


図2.18　ＲＡＩＮＳモデルの構成

基礎方程式　特定の流跡線を決めたときの流跡線上の濃度変化を記述する方程式

$$\text{SO}_2\ \text{濃度}\ (q)\quad \frac{Dq}{dt} = -\left(\frac{v_d}{h} + k_t + k_{w,q}\right) q + (1-\alpha-\beta)\frac{Q}{h} \qquad (3.1)$$

発生寄与項

乾性沈着　wet 沈着　初期 SO_4^{2-} 比率

SO_4^{2-} への変換　初期沈着比率

$$\text{SO}_4^{2-}\ \text{濃度}\ (s)\quad \frac{Ds}{dt} = -\left(\frac{w_d}{h} + k_{w,s}\right) s + k_t q + \beta\frac{Q}{h} \qquad (3.2)$$

乾性沈着　wet 沈着　発生寄与項

SO_2 からの変換生成

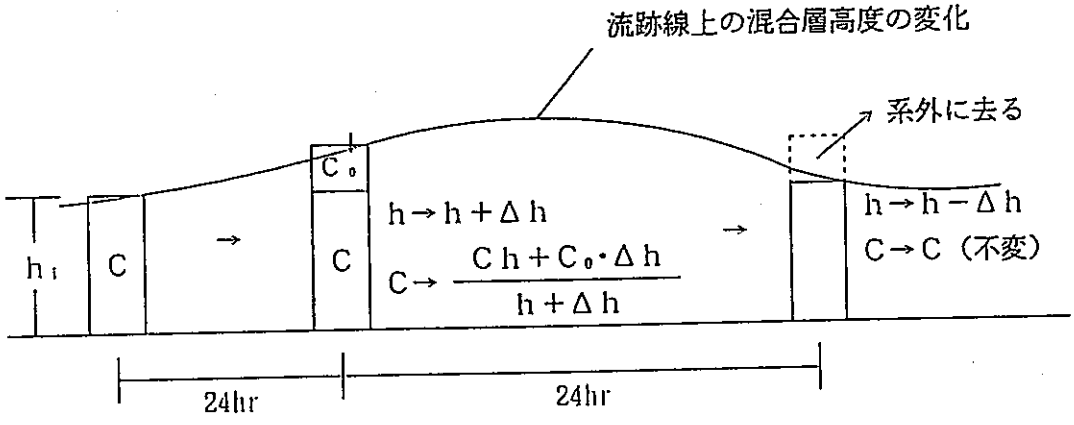
h：混合層高度

Q：SO_2 排出速度

ただし、

$$\frac{D}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v}_h \cdot \nabla \qquad \text{（流跡線に沿った経路上の時間微分）}$$

〈上層自由大気との交換過程〉



上図のように２４時間毎の混合層高度の変化に応じて自由大気との交換が行われると仮定する。

図2.19　ＲＡＩＮＳモデルにおける輸送・沈着サブモデルの基礎方程式

パラメータの推定

1）h（混合層高度）

Eliassen et al(1983)によると、hは24時間毎のラジオゾンデの気温鉛直分布の観測から推定されている。

2）V_d（SO_2 の乾性沈着速度）

$$V_d(\phi, \tau) = \begin{cases} a_1(\tau)\cdot\Delta(t)\cdot V_{d1} + a_2(\tau)\cdot V_{d2}(\phi) & \text{（陸上）} \\ V_{d1} & \text{（海面）} \end{cases}$$

ϕ：緯度　　τ：季節

V_{d1}：夏の基本値（＝0.8cm/s）

$V_{d2}(\phi)$：冬の基本値　0.4 cm/s:45°N　0.15cm/s:70°N

$\Delta(t)$：時刻による植物気孔寄与の違いを表す係数
4～22時：$\Delta = 1$
23～3時：$\Delta = 0.25$

a_1, a_2 は
$a_1(\tau) + a_2(\tau) = 1$ の条件を満たす季節（τ）のウェイト係数

ただし、上式は地上高さ1mで定義した沈着速度であり、シミュレーションでは高さ50mの値に換算して用いられる。

3）W_d（SO_4^{2-} の乾性沈着速度）

0.1cm/s 一定値としている（粒径1 μm以下と仮定）。

4）K_1（$SO_2 \rightarrow SO_4^{2-}$ の擬一次反応定数）

$$K_1(\tau) = 3\times10^{-6} + 2\times10^{-6}\sin\left(2\pi\frac{\tau}{T} + \theta\right) \quad (sec^{-1})$$

T：年間　　τ：季節　　θ：夏至に最大となるような位相設定

$$\sim \begin{cases} 0.36\%/hr & \text{（冬）} \\ 1.8\%/hr & \text{（夏）} \end{cases}$$

5）$K_{w,q}$, $K_{w,s}$（降水による除去率）

$$K_{w,q} = 2\times10^5\frac{P_6}{h}, \quad K_{w,s} = 7\times10^5\frac{P_6}{h} \qquad (P_6：6時間降水量)$$

図2.20　RAINSモデルにおける輸送・沈着パラメータ

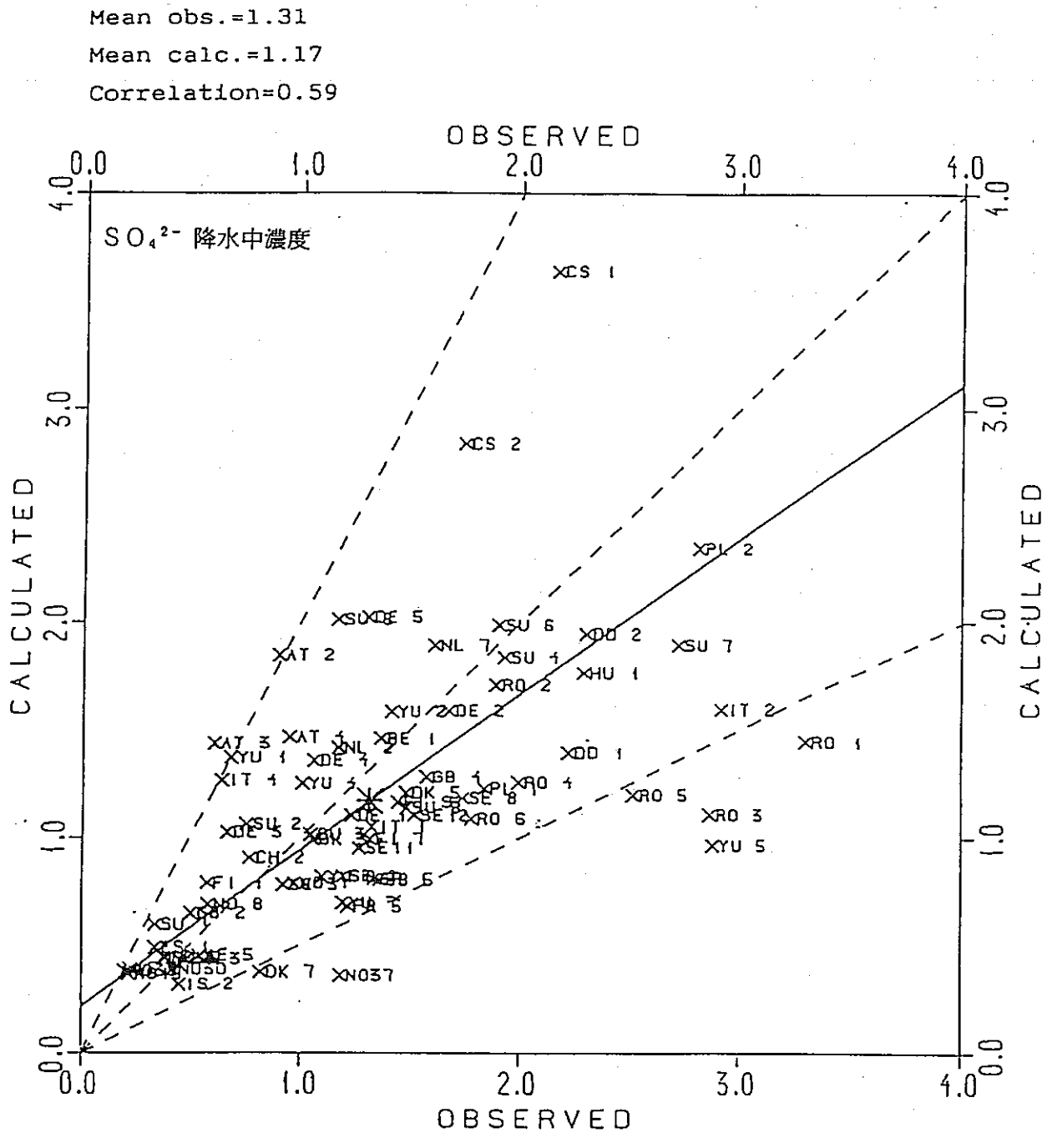


図2.21　ＲＡＩＮＳモデルによる降水中のSO_4^{2-}の計算値と実測値の比較図

第３章　環境安全研究の体系化に関する基礎調査

3.1　はじめに

これまで第１章および第２章において原子力の環境問題に関する最近の話題および，最近特に，一般環境の問題として話題となっている酸性雨のモデルの概要ならびに関連する資料について検討してきた。原子力分野における環境安全研究の体系化ならびに今後の研究課題を検討するうえで，現状の把握に努めることは重要である。しかしながら，現状の全てを短期間に把握することは簡単ではなく，また現状調査を全て終わらなければ体系化の議論が全くできないと言うものでもない。

このため，本章では第１章，第２章の検討も踏まえながら，これまで行われてきた再処理施設の環境安全評価の現状および国で定められている環境放射能安全研究年次計画等についての整理を通して，環境安全研究の体系化のための基礎的な検討を行い，今後検討すべき事項またはその方法について考察を試みる。

3.2　再処理施設の環境安全評価の現状

(1)　線量当量評価の考え方

再処理施設の平常運転に伴い一般公衆の受ける線量当量の評価は，気体廃棄物および液体廃棄物の放出に起因する線量当量ならびに放射性廃棄物の保管廃棄施設等に起因する線量当量について行う。線量当量評価は，「再処理施設安全審査指針」に基づいて，実効線量当量ならびに皮膚および眼の水晶体の組織線量当量を対象とする。

気体廃棄物に起因する線量当量の評価は，放射性雲からの外部被ばく，呼吸摂取による内部被ばく，地表に沈着する放射性物質による外部被ばくおよび農・畜産物の摂取による内部被ばくについて行う（図3.1）。液体廃棄物に起因する線量当量の評価は，海産物摂取による内部被ばくならびに漁業活動および海浜利用による外部被ばくについて行う（図3.2）。また，放射性廃棄物の保管廃棄施設に起因する線量当量の評価は，直接ガンマ線およびスカイシャインガンマ線による外部被ばくについて行う。これら線量当量の評価は成人を対象とする。

実効線量当量に係る被ばく経路の合算に当たっては，放射性雲からの外部被ばく，呼吸摂取による内部被ばくおよび地表に沈着する放射性物質による外部被ばくは，同一地点におい

て同時に被ばくするものとして，実効線量当量を加算する。さらに，この値に，農・畜産物摂取および海産物摂取による内部被ばくならびに漁業活動および海浜利用による外部被ばくによる実効線量当量を加算する。また，放射性廃棄物の保管廃棄施設等に起因する実効線量当量を合算するに当たっては，その評価対象地域において最大となる地点の値を用いることとする。

成人以外の年齢グループに対する実効線量当量は，幼児（5歳）および乳児（1歳）について，農・蓄・海産物の態様，実効線量当量換算係数などを考慮して，成人の実効線量当量を1とした場合の成人に対する比率として幼児および乳児に対する内部被ばくによる実効線量当量を計算する。気体廃棄物に起因する外部被ばくによる実効線量当量については，成人と同様とし，液体廃棄物に起因する外部被ばくによる実効線量当量については，幼児および乳児の海浜利用は考慮するが，漁業活動は考慮しない。

組織線量当量に係る被ばく経路の合算に当たっては，放射性雲からの外部被ばくおよび地表に沈着する放射性物質による外部被ばくは，同一地点において同時に被ばくするものとし，加算する。さらに，この値に，漁業活動および海浜利用による外部被ばくによる組織線量当量を加算する。また，放射性廃棄物の保管廃棄施設等に起因する組織線量当量を合算するに当たっては，その評価対象地域において最大となる地点の値を用いることとする。

(2) 気体廃棄物に起因する線量当量評価

ⅰ）放射性核種の放出量

線量当量評価に用いる気体廃棄物の年間放出量は，表3.1のとおりである。

ⅱ）空気中における放射性核種濃度の計算および地表面への沈着

空気中における放射性核種濃度は，「発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針について」（原子力安全委員会，平成元年3月27日一部改訂）に基づき計算する。地表面の放射性核種濃度は，文献調査および事業団における調査研究成果から得られたデータを考慮し，降水による沈着効果も含めて設定した年間平均沈着速度を年間平均空気中放射性核種濃度に乗じて計算する。

ⅲ）実効線量当量の計算

① 放射性雲からの外部被ばく

放射性雲からの外部被ばくによる実効線量当量は，クリプトン－85のガンマ線に起因する実効線量当量を計算する。計算方法は，「発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標

値に対する評価指針について」（原子力安全委員会，平成元年３月27日改訂）を参考とする。

② 呼吸摂取による内部被ばく

空気中の放射性物質の呼吸摂取に起因する内部被ばくによる実効線量当量は，空気中濃度の計算結果および「試験研究の用に供する原子炉等の設置，運転等に関する規則等の規定に基づき，線量当量限度等を定める件（昭和63年７月26日，科学技術庁告示第20号）」（以下「告示20号」という）に示される吸入摂取の場合における年摂取限度に基づき計算する。呼吸率については，ICRP Publication 23 を参考とする。トリチウムについては，ICRP Publication 30 を参考として経皮吸収を考慮し，上記の呼吸率を 1.5 倍して用いる。

③ 地表面に沈着した放射性核種による外部被ばく

地表面に沈着した放射性核種による実効線量当量は，地表面の放射性核種濃度の計算結果に，地表面１メートル高さにおける実効線量当量換算係数を乗じることにより計算する。

④ 農・畜産物摂取による内部被ばく

農・畜産物摂取に起因する内部被ばくによる実効線量当量は，葉菜，米および牛乳の摂取を対象とし，これら農・畜産物への放射性核種の移行は，米国原子力規制委員会のRe gu- latory Guide 1.109を参考として計算する。ここで，空気中から葉菜，米および牧草への放射性ヨウ素の移行率は，東海村周辺でのフィールドデータを基に設定する。農・畜産物摂取量は，米： 300ｇ／日，葉菜： 100ｇ／日，牛乳:200㎖／日とし，実効線量当量は告示20号に示される経口摂取の場合における年摂取限度に基づき計算する。葉菜，米および牧草中のトリチウムおよび炭素－14濃度は，比放射能法により計算する。

iv）組織線量当量の計算

① 放射性雲からの外部被ばく

放射性雲からの外部被ばくによる皮膚の組織線量当量は，クリプトン－85のサブマージョンによる組織線量当量を，ICRP Publication 30 に基づき計算する。

② 地表面に沈着した放射性核種による外部被ばく

地表面に沈着した放射性核種による皮膚の組織線量当量は，地表面の放射性核種濃度

計算結果に，地表１メートル高さにおける皮膚の組織線量当量換算係数を乗じることにより計算する。

(3) 液体廃棄物に起因する線量当量評価

ｉ）放射性核種の放出量

線量当量評価に用いる液体廃棄物の年間放出量は，表3.２のとおりである。

ii）海水中の放射性核種濃度の計算

海水中の放射性核種濃度の計算は，流れの軸上濃度および海域平均濃度について行う。流れの軸上濃度の計算は，東海沖の海洋拡散モデルを用い，評価地点における海水中の年間平均濃度は，流動調査結果に基づく当該方位への流向頻度を考慮して計算する。

iii）実効線量当量の計算

① 海産物摂取による内部被ばく

海産物摂取に起因する内部被ばくによる実効線量当量は，シラス，成魚，褐藻，紅藻，貝類，頭足類および甲殻類を対象とし，放射性核種の摂取量および告示20号に示される経口摂取の場合における年摂取限度に基づき計算する。海産物の濃縮係数は，東海村周辺におけるフィールドデータおよび文献値を基に設定する。海産物摂取量は，シラス：50ｇ／日，成魚： 120ｇ／日，褐藻：38ｇ／Ｉ日，紅藻：２ｇ／日，貝類：10ｇ／日，頭足類：30ｇ／日および甲殻類：10ｇ／日とする。

② 外部被ばく

漁業活動および海浜利用に伴う外部被ばくによる実効線量当量は，海岸砂からの被ばく，魚網からの被ばく，海面からの被ばく，海水中での被ばくおよび船体からの被ばくを対象として計算する。海岸砂等に含まれる放射性核種濃度から，実効線量当量への換算は，被ばくの形態に応じて線源形状を考慮して計算する。魚網等の汚染係数および被ばく時間は，東海村周辺におけるフィールドデータおよび文献値を基に設定する。

iv）組織線量当量の計算

実効線量当量と同様，海岸砂からの被ばく，漁網からの被ばく，海面からの被ばく，海水中での被ばくおよび船体からの被ばくを対象とし，皮膚の組織線量当量を計算する。

(4) 線量当量評価結果のまとめ

ｉ）線量当量評価結果

気体廃棄物および液体廃棄物に起因する成人に対する実効線量当量の合算値は約 2.1×

表3.1　線量当量評価に用いる気体廃棄物の年間放出量

核種	年間放出量　(GBq)
Kr-85	8.9×10^{7}
H-3	5.6×10^{5}
C-14	9.7×10^{3}
I-129	1.7
I-131	1.6×10

また、上記以外の核分裂生成物の年間放出量は、1.3×10^{2}GBq (Zr-95:2.2GBq, Nb-95:4.4GBq, Ru-103:5.6GBq, Ru/Rh-106:89 GBq, Cr/Pr-144:18GBq, Cs-137:2.6GBq, Sr-90:8.2GBq)として、プルトニウムの年間放出量は0.81GBq とする。

表3.2　線量当量評価に用いる液体廃棄物の年間放出量

核種	年間放出量　(GBq)
Sr-89	1.6×10
Sr-90	3.2×10
Zr-95	1.4×10
Nb-95	2.7×10
Ru-103	6.4×10
Ru/Rh-106	5.1×10^{2}
Cs-134	6.0×10
Cs-137	5.5×10
Ce-141	5.9
Ce/Pr-144	1.2×10^{2}

また、放射性ヨウ素の年間放出量は、I-129 が、2.7×10GBq, I-131 が 1.2×10^{2}GBqとし、トリチウムの年間放出量は、1.9×10^{6}GBqとし、α線を放出する核種はプルトニウム（α）の年間放出量を 2.3GBq とする。

表3.3　成人の経路別実効線量当量計算結果

	経路	実効線量当量　(mSv/y)
気体	放射性雲からの外部被ばく	約 4.8×10^{-3}
	地表沈着による外部被ばく	約 9.0×10^{-4}
	呼吸摂取による内部被ばく	約 3.6×10^{-4}
	農・畜産物摂取による内部被ばく	約 7.8×10^{-3}
	計	約 1.4×10^{-2}
液体	海産物摂取による内部被ばく	約 5.3×10^{-3}
	外部被ばく	約 1.8×10^{-3}
	計	約 7.1×10^{-3}
	合　計	約 2.1×10^{-2}

表3.4　成人の経路別の皮膚の組織線量当量計算結果

	経路	皮膚の組織線量当量　(mSv/y)
気体	放射性雲からの外部被ばく	約 1.4×10^{-1}
	地表沈着による外部被ばく	約 9.2×10^{-2}
	計	約 2.3×10^{-1}
液体	外部被ばく	約 9.1×10^{-3}
	計	約 9.1×10^{-3}
	合　計	約 2.4×10^{-1}

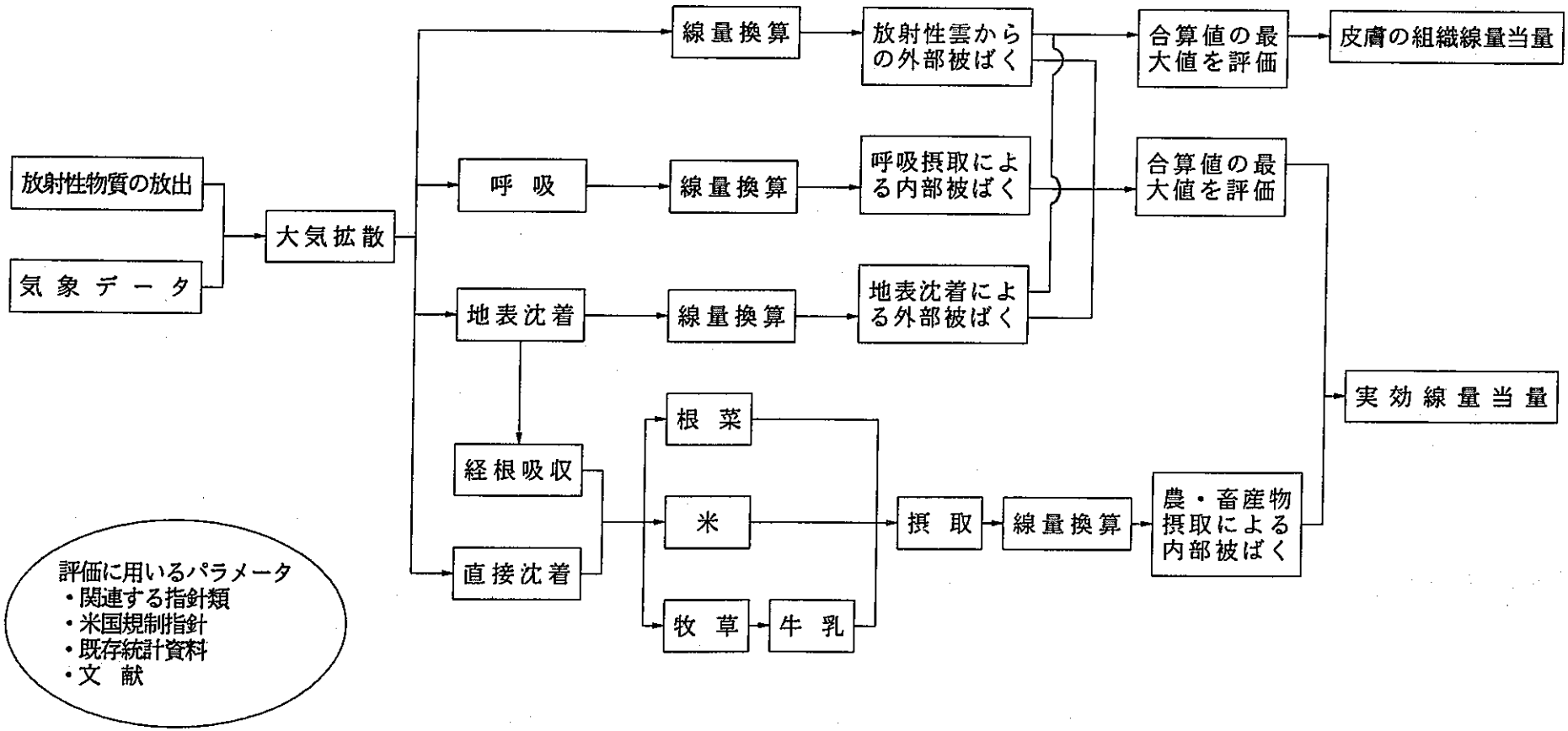


図3.1　気体廃棄物に起因する線量当量評価

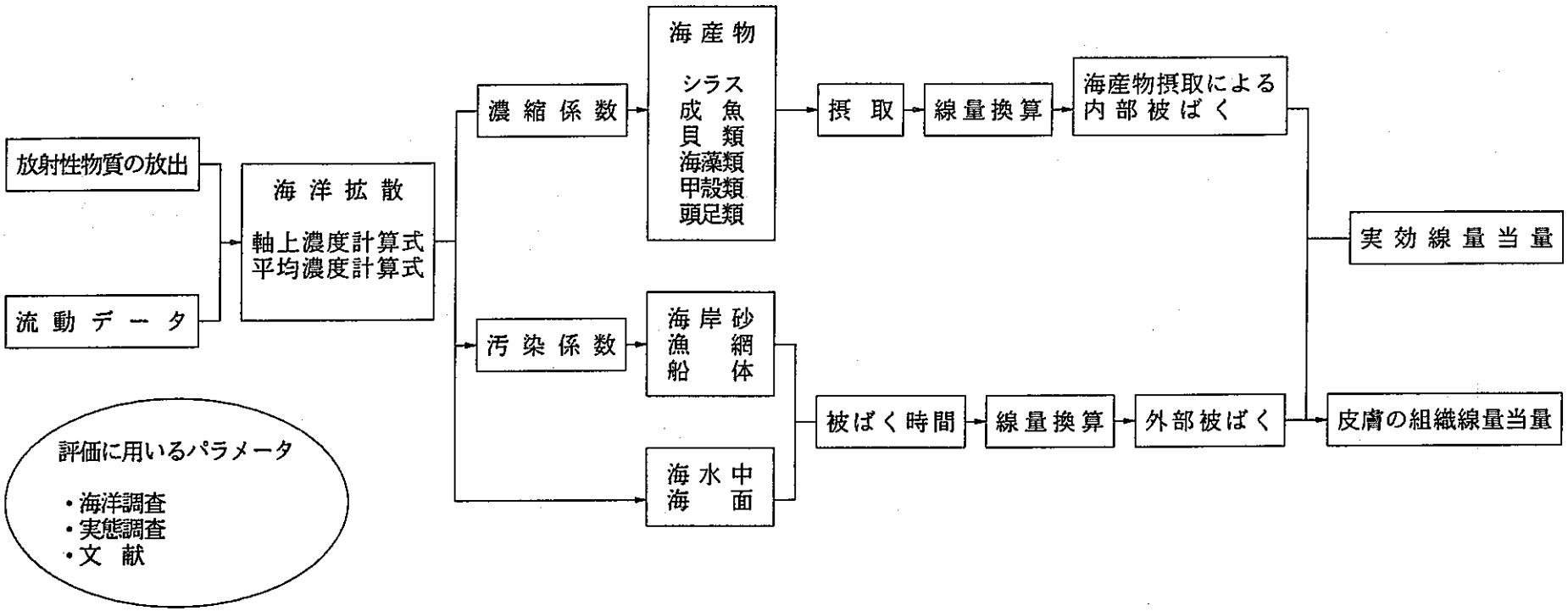


図3.2　液体廃棄物に起因する線量当量評価

10^{-2}mSv／年，皮膚の組織線量当量の合算値は約 2.4×10^{-1}mSv／年である。

評価経路別の実効線量当量評価結果を表3.3に，また組織線量当量評価結果を表3.4に示す。眼の水晶体の組織線量当量は，ガンマ線被ばくによる線量当量については，皮膚の組織線量当量と同程度であり，ベータ線被ばくによる線量当量については，皮膚および眼の水晶体に係る減衰層の厚さの違いを考慮すると，最大限に見積もっても皮膚の組織線量当量と同程度かあるいはそれ以下である。

ii）年齢グループ別の実効線量当量

年齢グループ別の気体廃棄物および液体廃棄物に起因する実効線量当量は，ICRP Publication 56 を参考として計算する。成人の実効線量当量を1とした場合，その割合は，幼児（5歳）については約 1.0，乳児（1歳）については約0.99である。

3.3 国の安全研究年次計画

(1) 経　緯

我が国の原子力分野に関する安全研究については原子力安全委員会において各分野ごとに以下の年次計画が定められている。

① 環境放射能安全研究年次計画

② 原子力施設等安全研究年次計画

③ 低レベル放射性廃棄物安全研究年次計画

④ 高レベル放射性廃棄物安全研究年次計画

これらの年次計画に基づき原子力の安全研究は，原子力開発利用の拡大と多様化に対応して，安全基準，指針等の整備や安全審査に当たっての判断資料となるデータ，あるいは原子力施設の安全性の向上に資する知見を蓄積し，これを適宜有効に活用することにより原子力の安全性を今後とも高い水準に維持することを目的として推進されている。

環境安全研究に関する主要な計画としては，上記①の環境放射能安全研究年次計画がある。この年次計画は昭和51年8月に当時の原子力委員会・環境放射能安全研究専門部会により策定された後，原子力安全委員会の設置と共に同委員会・環境放射能安全研究専門部会に引き継がれ昭和55年6月（昭和56年度～昭和60年度）および昭和60年10月（昭和61年度～昭和65年度（平成2年度））の改定が行われてきている。

さらに，平成2年9月に新たに平成3年度から平成7年度の間に国として当面実施すべき

安全研究に関し，特に，研究の重要性・緊急性の観点から審議を行い，その結果が年次計画として取りまとめられている。

この年次計画の構成は表3.5に示す通りであり，ここではこの年次計画について概要を紹介する。

(2) 目的および範囲

この年次計画において環境放射能安全研究の目的は，今後の原子力開発利用の拡大と多様化に対応し，原子力に対する国民の関心の高まりを背景として，国民の健康の確保，環境の保全等，安全の確保に関する技術および知見のより一層の充実を図るとともに各種指針等の整備や安全審査に当たっての判断資料となるデータの蓄積に資することとされている。

またその範囲は，以下のように示されている。

① 天然放射性核種を含む一般公衆の生活環境における各種の放射線源について，そのレベルおよび挙動等の特性の把握ならびにそれらによる被ばく線量の測定・評価に関する研究。

② 低線量放射線の人体に及ぼす身体的・遺伝的影響の解明に関する研究および高線量放射線による急性効果の防護と治療に関する研究。

③ 各種の放射線源から人体が受ける被ばくのリスクの評価に関する研究を行うとともに，当該リスクの低減化に資する研究を行う。

(3) 内　容

上記研究計画の範囲に基づき研究内容についてはⅰ）環境・線量研究，ⅱ）生物環境研究，ⅲ）特定核種の内部被ばく研究およびⅳ）安全評価研究，の4つに分類され示されている。以下に分類ごとに概要および研究項目を示す。

ⅰ）環境・線量研究

原子力施設等に由来する放射線ならびに放射性物質に主眼を置きつつ，一般公衆の生活環境に係る全ての放射線源について，そのレベル，特性および挙動に関する研究を行う。

以下に研究項目を示す。

① 放射線の分布と特性に関する研究

② ラドン・トロンおよびその娘核種の分布と挙動に関する研究

③ 放射性物質の分布と移動に関する研究

④ 放射性物質の人体内における挙動に関する研究

⑤ 線量算定モデルおよび国民の被ばく線量の算定に関する研究

⑥ 環境放射線（能）測定・モニタリング技術および測定技術の開発

ii）生物環境研究

放射線が生命にどう働くかという作用機構に関する基礎的研究，ヒト集団に対する影響の把握に関する疫学的研究を行う。また，放射線の急性効果およびその防護と治療法に関する研究を行う。

以下に研究項目を示す。

① 放射線影響の基礎研究

② 低線量放射線の影響研究

③ 疫学的研究

④ 放射線の急性効果およびその防護と治療法に関する研究

iii）特定核種の内部被ばく研究

核燃料サイクル事業の本格化，核融合研究の進展に応じて，超ウラン元素を中心とするα放射体およびトリチウムによる内部被ばく研究の重要性が増している。また，ラドン・トロンおよびその娘核種による内部被ばくは自然界からの放射線被ばくの中でも大きな割合を占めており，関心も高いことから，これらの核種の生物学的影響の解明に関する研究は重要である。

以下に研究項目を示す。

① 超ウラン元素による内部被ばく研究

② トリチウムによる内部被ばく研究

③ ラドン・トロンおよびその娘核種による内部被ばく研究

iv）安全評価研究

上記の分野における研究の成果を活用し，放射線に係る現実の人間生活の安全性評価につなげる安全評価研究とリスク低減策の研究は，環境放射線安全研究の終局的目標である。

以下に研究項目を示す。

① 低線量放射線影響評価の方法論に関する研究

② リスク解析・評価のモデル化に関する基礎研究

③ リスク評価研究

④ 放射線防護と放射線リスクの低減・管理に関する研究

表3.5　環境放射能安全研究年次計画（平成3年度～平成7年度）の構成

Ⅰ．まえがき

Ⅱ．本年次計画策定の基本方針

Ⅲ．安全計画年次計画

1.　環境・線量研究

1－1　研究の必要性および研究の概要

1－2　当面実施すべき重要な研究課題

2.　生物影響研究

2－1　研究の必要性および研究の概要

2－2　当面実施すべき重要な研究課題

3.　特定核種の内部被ばく研究

3－1　研究の必要性および研究の概要

3－2　当面実施すべき重要な研究課題

4.　安全評価研究

4－1　研究の必要性および研究の概要

4－2　当面実施すべき重要な研究課題

Ⅳ．安全研究年次計画線表

（参考1）環境放射能安全研究専門部会構成および開催日

（参考2）環境放射能安全研究専門部会基本方針検討委員会構成および開催日

（参考3）環境放射能安全研究専門部会分科会構成および開催日

3.4　環境安全研究の体系化の検討

戦後の驚異的な経済復興を経て，高度成長の担い手となった大量生産の大規模工場や重厚長大産業構造の社会から，エレクトロニクスを代表する付加価値の高い軽薄短小産業および情報化社会へと推移してきた今日，消費者のニーズは多様化し，同じものを大量に生産しても売れなくなってきている。そこで，多品種少量受注に耐えられる生産システムの構築へと，生産工

場はコンピュータ制御によるオンライン化を進め，各製品について販売・生産計画を立てる統合情報システムを導入して，生産管理を効率化し，需要動向に応じて機敏に対応できる体制すなわち，コンピュータによる統合生産システムへと移りつつある。

一方，環境問題も高度成長のローカルな問題から，広域的な酸性雨問題やフロン，炭酸ガス等による地球規模の環境問題へと変化してきている。これらの問題は，極めて複雑多岐な問題であることから，その対応もその場しのぎでは済まされず，長期的に取り組まれざるを得ない状況にある。このような社会状況の中で，化学産業はフロンのみならず，プラスチックスをも含めて，最近の社会問題に取り組み，製品の開発から廃棄に至るまで環境・安全・健康面を責任を持って配慮するべきこととして，環境の保護や従業員，市民の安全・健康を確保するため，操業の安全や製品の輸送，使用廃棄までのすべての段階での環境や安全・健康への配慮を研究開発段階を含めて検討していく方針を打ち出している。また，最近の動きとして，廃棄物についての関心も高く，廃棄物の再資源化のみならず，廃棄物排出量の抑制の方向へと進まざるを得ない状況にあると言える。

ところで，原子力開発においては，開発の初期から放射性物質が環境に与える影響について検討されてきており，施設の工学的安全性およびその信頼性を確保することに極力留意すると同時に，施設に由来する放射能および放射線を安全に管理することに精力を傾注してきた。その結果として，環境線量研究，生物影響研究，内部被ばく研究，安全評価研究等の各分野の研究成果が蓄積されてきたが，基本的には放射線の人体影響を中心に捉えた研究が中心で体系的に整理されてはいない状況にあると考えられる。これからも原子力利用に際して，従来より増して安全確保に留意すると同時にその利用の拡大が期待されることから，今後の原子力開発およびその利用の多様化に対し，国民の健康の確保，環境の保全等の安全確保に関する技術および知見のより一層の充実を図ることが必要である。その際，原子力以外での安全確保に関する技術および知見をも参考にしながら環境安全に関する総合的な評価システムを構築していくことが期待されるところである。

今後も科学技術は発展進歩し，高度情報化社会へと益々進む，一方，環境への配慮は欠くことのできない条件となる。また，生産は廃棄物問題抜きにしては考えられず，環境の保全等の安全確保に関する内容は益々複雑となってくるなかで原子力利用も開発の段階から定着の段階に入り，今後は新しい展開が期待されるところでもあり，時代の流れに沿った新しい技術を取り入れながらより高度な技術開発が進められるものと思われる。しかしながら，原子力開発の

リードタイムは長く，これからも一歩一歩着実に進められなければならなく，21世紀への環境総合評価システム構築に向けて，核燃料サイクルとの関連から環境安全研究に関する基本的な考え方を整理しておくことが必要である。ここではその枠組みを考え，今後の検討課題としたい。以下にその基本的視点を挙げておく。

(1) 環境評価手法の現状把握

(2) 科学技術の発展によって評価手法およびそのパラメータの精度の向上が期待されるもの

(3) 情報科学の発展によって進歩が期待されるもの

(4) 廃棄物との関連から今後考えて行かねばならないもの

(5) 長期的視点で検討しなければならないもの

(6) リスク評価をどのようにとり込むか

(7) コンピュータによる総合評価システムの構築をどのように考えていくのか

具体的には今後の検討として環境影響評価手法およびそのパラメータについて表3.6に示すような形式で検討課題を抽出する作業を行うこととする。

表3.6　環境総合評価システム構築の基本課題の検討

環境影響評価手法 項目等	科学技術の発達によって期待される内容	情報科学の発展によって期待される内容	
希薄濃度核種の化学形態と挙動の解明	放射性核種の放射能量は測定可能であるが、その化学形態およびその挙動は必ずしも解明されていない環境への放出時の化学形がはっきりし、環境中でのその運命が明らかにされれば、ソースタームおよび環境影響評価手法およびその信頼性が高まる。 分析手法分析技術は今後さらに発達すると期待されることから何をどのように解明できればよいかを、今後議論を深め、主要課題を抽出する。		
コンピュータによる総合評価システム		コンピュータおよびソフト技術の発達は今後も期待されることから、コンピュータ支援の研究開発システムの構築および環境影響評価システム構築へ計算科学の利用をどのように考えていくべきかを検討する。	

あ　と　が　き

原子力開発において，使用済燃料の再処理，廃棄物の処理・処分を必要とする核燃料サイクルに関する研究開発が相対的に重要な位置付けとなってきている。しかしながら，ＴＭＩ事故，特にチェルノブイル事故を契機に，原子炉事故の地球規模的な影響に関心がもたれたのみならず，原子力エネルギー利用に伴う放射線によるリスク，さらに放射性廃棄物の処理・処分による環境影響評価に関心が向けられてきた。

一方，原子力以外の分野でも，化石燃料等の使用に伴う酸性雨による森林被害，炭酸ガス，メタン等による地球温暖化問題や，フロン等によるオゾン層破壊の地球規模の環境問題に非常な関心がもたれている。

このような最近の環境問題に関する話題は，人類の活動に伴って発生する環境問題が以前からのＮＯx，ＳＯx等の局所的な環境問題のみならず，地球規模までのグローバルな問題として捉えなければならないことを提示したと受け止める必要がある。したがって，核燃料サイクル施設に係る環境安全評価においても今後，廃棄物処理・処分による環境影響評価が重要な位置付けとなってくると思われることから，グローバルな視点を含めて長寿命核種の長期的かつ総合的な環境影響評価が重要となるのである。

以上のような状況を踏まえ，核燃料サイクル施設に係る環境安全研究の体系化を図り，将来にかけて必要な研究を抽出するための第一段階として，本年度においては原子力ならびに一般環境問題における最近の話題について幾つか検討するとともに関連する文献の調査，および体系化についての基礎的な検討を実施した。

このような検討の中から，今後の検討を進めていく上での基本的な視点として次の点が挙げられた。

(1) 環境評価手法の現状把握

(2) 科学技術の発展によって評価手法およびそのパラメータの精度の向上が期待されるもの

(3) 情報科学の発展によって進歩が期待されるもの

(4) 廃棄物との関係から今後考えて行かねばならないもの

(5) 長期的視点で検討しなければならないもの

(6) リスク評価をどのように取り込むか

(7) コンピュータによる総合評価システムの構築をどのように考えて行くか

今後ともこのような視点から検討課題を抽出するための検討を進めるとともに，環境評価手法のみならず，関連する研究動向についても十分注意を払いながら調査を進めることが望まれる。

付録 関連資料

本資料は本文1.4節において関連学術誌より抽出した環境の汚染に関する論文のうち以下に示すものについて仮訳を作成したものである。

1. THE INFLUENCE OF COMPLETARION ON RADIONUCLIDE MIGRATION: A THEORECTICAL STUDY; Waste Management, Vol.9, pp.165-169, 1989

2. ASSESSMENT OF GROUNDWATER CONTAMINATION SUBSEQUENT TO AN ENVIRONMENTAL RELEASE; Waste Management, Vol.10, pp.261-268, 1990.

3. GROUND DISTRIBUTION PATTERNS OF SELECTED RADIOACTIVE, CHEMICAL, AND PHYSICAL CONTAMINANTS FROM DISPERSION OF U MILL TAILINGS; Health Physics Vol.58, No.3 pp.321-329, 1990.

4. RECENT SWEDISH EXPERIENCES IN ^{222}Rn CONTROL; Health Physics, Vol.58, No.4 pp.453-460.

放射性核種の移行に及ぼす錯化の影響：理論的研究

THE INFLUENCE OF COMPLEXATION ON RADIONUCLIDE MIGRATION: A THEORETICAL STUDY

Lars Carlsen, Ole John Nielsen, and Peter Bo

Chemistry Department, Risφ National Laboratory, DK-4000 Roskilde, Denmark

概　要

本論文では，過剰量の錯化剤を含有する環境中における金属イオン（例，放射性核種）の移行に及ぼす錯化の影響について理論的に検討した。すなわち，遊離金属イオンと錯体金属イオン間の平衡は，偽一次反応速度論に従うとみなすことができる。遊離金属イオンと錯金属イオンの相互変換速度は，調べた系内における滞留時間に比べて速く，この２つの種は，“実効保持係数”にコントロールされ，同一速度で移行するであろうと示唆された。錯化がゼロに近づくに伴い，実効保持抑制が高い種（遊離金属イオン）の保持に近づき，一方，錯化が進むにつれて実効保持抑制が少ない種（錯体）の保持に近づくことが実証された。地球環境内における放射性核種の分布が何を意味するかについて検討した。

はじめに

実にさまざまな化学的および物理化学的反応が地球環境中放射性核種の移行挙動に影響を及ぼすとアプリオリに予測できる。これらの反応は，放射性崩壊，吸着／解離，沈澱／溶解，ろ過，酸化還元平衡，分解，置換，加水分解および錯およびコロイド生成などで成り立っている（１，２）。地下水中に見られる配位子による錯生成は，放射性核種の移行挙動に有意な影響を及ぼす（例　遊離金属イオンと錯体金属イオンにおける電荷の差による）と言われてきた（３－６）。特に最近になって，放射性核種が有機配位子類と錯化する可能性が，かなり注目されるようになってきている(7)。

地下水中に含まれる自然由来の配位子（例　フミン酸およびフルボ酸）が金属イオン移行に及ぼし得る影響に関して，数名の著者らが検討している（８－12）。したがって，ウラニルイオンとフミン物質間の相互作用が，天然の鉱床におけるウラン集積機構としての可能性を有するのではないかと言われてきた(13, 14)。地球環境における例えば放射性核種のような金属イオンの移行挙動を最終的に検討するためには，錯化が果たし得る役割をさらに定量的に示すことが必須のようである。

安定定数を求めるための方法のひとつは，金属イオンのイオン交換樹脂に対する吸着が液相有機配位子の含量増加に伴い低下することを基準としている(15，16)。陽イオン樹脂を充填材として用いるカラム形式の実験では，保持物質の量が顕著に減少するに伴い，有機配位子濃度上昇によるこの影響が著しく見られたことが実証された。

反応生成物すなわち錯体金属イオンが地下水系における有機配位子と放射性核種の錯化に関連して関心を集めている。また，本反応の速度論も重大な役割を果しているのであろう。Pagenkoph (17)は，金属イオン－フミン／フルボ酸錯体の形成／解離は，地質化学的時間尺度から見ると迅速である（すなわち，本系がほとんどの場合動的平衡に近づくであろう）と結論した。したがって，金属イオン－フミン／フルボ酸の平均寿命が，固相と錯体および／または固相と遊離金属イオン間のそれぞれの不均質相互作用ならびにこれらの形成／解離速度によって決定される。

本論文では，COLUMN 2 コード(18)を使用し，放射性核種移行に及ぼす錯生成の影響および遊離金属イオンと錯体の保持特性による相互作用をそれぞれ解明するための理論的研究を述べた，錯生成の影響は関連錯体の安定度定数として表され，これが真の安定性である。

計　算

COLUMN 2 コンピュータコード(18)を用いて研究した。このコードは，１次元で移行式を解く。

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} = \frac{D_j}{R_f(j)} \frac{\partial^2 c_j}{\partial x^2} - \frac{V}{R_f(j)} \frac{\partial c_j}{\partial x} + F(c_j, t)$$

式中，C_j，D_j および Ｒｆ（ｊ）は，成分のｊの濃度，拡散係数および保持係数であり，Ｖは地下水速度である。項Ｆ（c_j，ｔ）によって，起こり得る化学的および物理化学的反応を考慮することができる。

金属イオンＭと有機配位子Ｌの一般的反応は，下記の式で示される。ここで，ｉは，金属イオン１個当たりの平均配位子数である。

$$M + iL \rightleftharpoons ML_i.$$

これに質量作用の法則を適用する。

$$\frac{[ML_i]}{[M][L]^i} = \beta = \frac{k_1}{k_{-1}}$$

式中，βは錯生成速度定数と錯解離速度定数の比として表した錯体の安定度定数。

通常，配位濃度は，放射性核種濃度よりもはるかに高い。したがって，配位子濃度“L”は総配位子濃度“L^{tot}”によって近似することができ，このことは，下記の式を意味する。

$$\frac{[ML_i]}{[M]} = \beta[L^{tot}]^i = \frac{k_1[L^{tot}]^i}{k_{-1}}$$

$$= \frac{k_1[L^{tot}]^i}{k_{-1}} = \frac{k_1'}{k_{-1}} = \beta'.$$

β'は，錯生成偽一次速度定数と錯解離一次速度定数の比として表した錯体の見かけの安定定数である。

すなわち，安定定数βおよび錯体中1金属原子当たりの配位数iがわかれば，錯化された金属の錯化されていない金属に対するモル比が，安定度定数と総配位子濃度のi乗の積として近似することができる。低濃度を高安定定数によって補うことが可能であることが明らかである。

適用したコンピュータコードは，カラムを通過する化学種の移動を記述するものである。本研究では，カラム長さ 100mとし，地下水速度を1m／年，拡散係数を0.03㎡／年と想定し，偽一次速度論平衡系移行について述べる。

$$M \underset{k_{-1}}{\overset{k_1' = k_1[L^{tot}]^i}{\rightleftarrows}} ML_i$$

カラム入口における非錯体金属イオンの初期濃度〔M〕0および錯体金属イオン〔ML_i〕0の初期濃度は，それぞれ，1モル／㎥および0モル／㎥と想定した。金属イオンは，単独パルスとしてカラムに導入した。

本研究では，0（すなわち，錯化が起きていない）から1000までの見かけの平衡定数を示す平衡系を研究した。全ての場合において Pagenkopf(17)の研究を考慮し，関連する両反応を，

検討下のカラム内における平衡系の保持時間と直接比較した。

一般的仮定（7)と調和するように，錯体金属イオンは保持されることなくカラム内を移行し（すなわち，Ｒｆ（ＭＬｉ）＝１），一方，非錯体金属イオンの保持係数は，１から 100まで変化させた。しかし，１組の計算ではＲｆ（ＭＬｉ）＝５と想定して行った。

結果と考察

見かけの安定度定数である遊離金属イオンおよび錯体の速度定数の比，ならびにこれらに対して適用された保持係数のそれぞれに関係なく，平衡系の両者が“実効保持係数”のコントロール下に同一速度でカラム内を移行すると言うことができる。したがって，本系の２つの化学種は，カラム出口から同時に溶出されるであろう。この事実は，図１に示した代表的溶出曲線によって示される。図１の曲線は，見かけの安定度定数 100，遊離金属イオンの保持係数が２から10をそれぞれ示す平衡系の溶出を表している。双方の場合において，錯体の保持係数は，１に等しいとしてある。Ｍ／ＭＬｉ平衡系が，保持増加すなわちカラム内における保持増加によって拡散も当然増加するようになることが明らかである。

金属イオン保持増加のために溶出時間が増加すること，表１に示した保持時間を示す計算値がそれぞれ，102，110，115，150および 200年であることが明らかにわかる。さらに，見かけの安定度定数の真の値が錯体金属イオンと遊離金属イオンの溶出濃度の比に反映されることがわかる。表１にまとめて示したように，この特徴は，一定の安定度定数に共通の傾向として現れる。

表２は，見かけの安定度定数が１から10,000まで変化する平衡系の平均計算溶出時間を示したものである。全ての場合において，遊離金属イオンと錯体の保持係数をそれぞれ 100および５に固定した。

金属イオン保持増加の増加について上記に述べたこととは別に，表に示した数値は，関連化学種の固定保持係数に関して，錯体の見かけの安定性増加の関数として溶出時間が有意に減少することを明確に実証している。表に示した平均計算溶出時間を，全く相互作用を想定せず，２つの種について理論的に得られた値と比較した。これらの値は，Ｌ・Ｒｆ（ｉ）／Ｖで示され，ＬおよびＶは，それぞれカラム長さと地下水速度である。研究した系では，これらの値は，100・Ｒｆ（Ｍ）および 100・Ｒｆ（ＭＬｉ）で示された。上記に述べた２つの効果を図２および３に示した。遊離金属イオンの保持係数（固定錯体安定性）および見かけの安定度定数

（固定金属イオン保持）の関数として，平均計算溶出時間を示した。図3のデータに基づき，下記に示した実効保持係数極限値がカラムを介した平衡系の移行に明らかに適用されると結論される。

$$\beta' \longrightarrow 0 \quad \text{に対して} \quad R_f^{eff} \longrightarrow R_f(M)$$

$$\beta' \longrightarrow \infty. \text{ に対して} \quad R_f^{eff} \longrightarrow R_f(ML_i)$$

遊離金属イオンおよび錯体のそれぞれの保持係数および見かけの安定度定数の関数としての実効保持係数に，下記の式が適用されることが示唆される。上記に述べた限定条件に従うこととは別に，本式が，先に提案されたより単純な系（2)についての式と一致することがわかる。これらは，保持係数にわずかな差があるのみである。

$$R_f^{eff} = \frac{R_f(M) + \beta' R_f(ML_i)}{1 + \beta'}.$$

本式を適用し，表2に示した平衡系について下記の実効保持係数を得た。（ ）に示した値は，COLUMN 2計算から示したものである（表2から）：5250（5308），2083（2175），1364（1507），686(685)，594(592)，501(500)。表1に示した系を用いて，同様に比較することができる。

緒言の部分で，実にさまざまな実験データから有機金属錯イオンがいくらかでも吸着されることがあるとすれば，限定的吸着のみの対象となることが明確に示唆されていることを述べた。上記の計算値は，地球環境内における金属イオン移行に及ぼす錯化の影響を明確に示している。錯体の真の高い安定性および配位子濃度増加のいづれかの結果として，錯体の見かけの安定度定数が平衡系の実効保持を有意に低下させる。以上より，金属イオンと強固な錯体ないしは極めて強固な錯体を形成する自然界に存在する有機配位子（すなわち，フミン酸およびフルボ酸）(7) が放射性核種の移行挙動に大きな影響を及ぼし，その結果，移行速度が増加すると明らかに予測されることが結論される。同様に，大部分の多価金属イオンと極めて安定した錯体を形成する人工的に導入された強い配位子（例えばＥＤＴＡ）が存在する可能性を除去すべきである。その理由は，たとえ極めて低濃度であってもこれらの化合物が金属イオン移行のコントロールに果たす役割が重大であるからである (7)。最終処理廃棄形態においてこれらの多座配位子類の存在を排除するために先に提案された廃棄物処理法（19，20）が，上記に述べた計算値によって極めて確証の高い裏付けが得られたことになる。

参考文献

1. Carlsen, L., Nielsen, O. J., Bo, P., Ditlevsen, C. The influence of Chemical Reactions on the Mobility of Radionuclides in the Terrestrial Environment. Risø-M-2533, Risø National Laboratory, Roskilde, (1986).
2. Carlsen, L., Nielsen, O. J., and Bo, P. Chemical Dispersion — How chemial reactions influence migration In: *The Geological Disposal of High Level Radioactive Wastes*, D. G. Brookins, ed., pp. 459–494. Theophrastus Publications, Athens (1987).
3. Nilsson, K., Jensen, B. S., and Carlsen, L. The migration chemistry of technetium. *Eur. Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.* 7: 1–22 (1985).
4. Nilsson, K., Jensen, B. S., and Carlsen, L. The migration chemistry of cobalt. *Eur. Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.* 7: 23–86 (1985).
5. Nilsson, K., Jensen, B. S., and Carlsen, L. The migration chemistry of rare earth elements. *Eur. Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.* 7: 87–148 (1985).
6. Nilsson, K., Jensen B. S., and Carlsen, L. The migration chemistry of strontium. *Eur. Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.* 7: 149–200 (1985).
7. Carlsen, L. The role of organics in the migration of radionuclides in the geosphere. *Eur. Appl. Res. Rept.-Nucl. Sci. Technol.*, (in press).
8. Jackson, K. S., Jonasson, I. R. and Skippen, G. B. *The nature of metal-sediment-water interactions in freshwater bodies, with emphasis on the role of organic matter. Earth-Science Rev.* **14**: 97–146 (1978).
9. Bolter, E. and Butz, T. R. Mobility of heavy metal humates in soils and surface waters, PB-278 050, Missouri Water Resources Research Center, Rolla (1977).
10. Means, J. F. and Hastings, D. W. Status report on the importance of natural organic compounds in groundwater as radionuclide-mobilizing agents, ONWI-84, Batelle Columbus Laboratories, Columbus (1979).
11. Beveridge, A. and Pickering, W. F. Influence of humate-solute interactions on aqueous heavy metal ion levels. *Water, Air, Soil Pollut* **14**: 171–185 (1980).
12. Halbach, P., von Borstel D., and Gundermann, K.-D. The uptake of uranium by organic substances in a peat bog environment on a granitic bedrock. *Chem. Geol.* **29**: 117–138 (1980).
13. Ibarra, J. V., Osácar, J. and Gavilán, J. M. Retention of metallic cations by lignites and humic acids. *Fuel* **58**: 827–830 (1979).
14. Borovec, Z., Kribek, B. and Tolar, V. Sorption of uranyl by humic acids, *Chem. Geol.* **27**: 39–46 (1979).
15. Schubert, J. Use of ion exchangers for the determination of physical-chemical properties of substances, especially radiotracers. *J. Phys. Colloid Chem.* **52**: 340–350 (1948).
16. Maes, A. De Brabandere, J., and Cremers, A. A modified Schubert method for the measurement of the stability of europium humic acid complexes in alkaline conditions. *Radiochim. Acta* **44/45**: 51–57 (1988).
17. Pagenkopf, G. V. Metal-ion transport mediated by humic and fulvic acids. In: *Organometals and Organometalloids. Occurrence and fate in the environment*, F. E. Brinckman and J. M. Bellama, eds., ACS-Symposium Series 82, American Chemical Society, Washington pp. 372–387. (1978).
18. Nielsen, O. J., Bo, P. and Carlsen, L. COLUMN2 — A computer program for simulating migration, EUR-10120 EN, Commison of the Europian Communities. Nuclear Science and Technology, Luxembourg, 1985, 69 pages. Available with an improved input procedure as Risø-R-514, Risø National Laboratory, Roskilde, 85 pages (1985).
19. Means J. L. and Alexander, C. A. The environmental biochemistry of chelating agents and recommendations for the disposal of chelated radioactive wastes *Nucl. Chem. Waste Manag.* **2**: 183–196 (1981).
20. Means, J. L., Kucak, T., and Crerar, D. A. Relative degradation rates of NTA, EDTA and DTPA and environmental implications *Environ. Pollut. Ser. B* **1**: 45–60 (1980).

表1　見かけの安定度定数および保持係数の関数としての平均溶出時間

k_1'	k_{-1}	β'	$R_f(M)$	$R_f(ML_i)$	$T_{elution}$
1	1	1	2	1	151
			5	1	300
			10	1	561
			50	1	2657
			100	1	5171
5	1	5	2	1	117
			5	1	168
			10	1	257
			50	1	959
			100	1	1780
10	1	10	2	1	110
			5	1	143
			10	1	185
			50	1	500
50	1	50	2	1	104
			5	1	115
			10	1	125
			50	1	200
			100	1	294
100	1	100	2	1	102
			5	1	110
			10	1	115
			50	1	150
			100	1	200
500	1	500	5	1	103
			10	1	103
			100	1	121
1000	1	1000	5	1	102
			10	1	102
			50	1	107
			100	1	112

表2　見かけの安定度定数の関数としての平均溶出時間

k_1'	k_{-1}	β'	$R_f(M)$	$R_f(ML_i)$	$T_{elution}$
1	1	1	100	5	5308
5	1	5	100	5	2175
10	1	10	100	5	1507
50	1	50	100	5	685
100	1	100	100	5	592
10000	1	10000	100	5	500

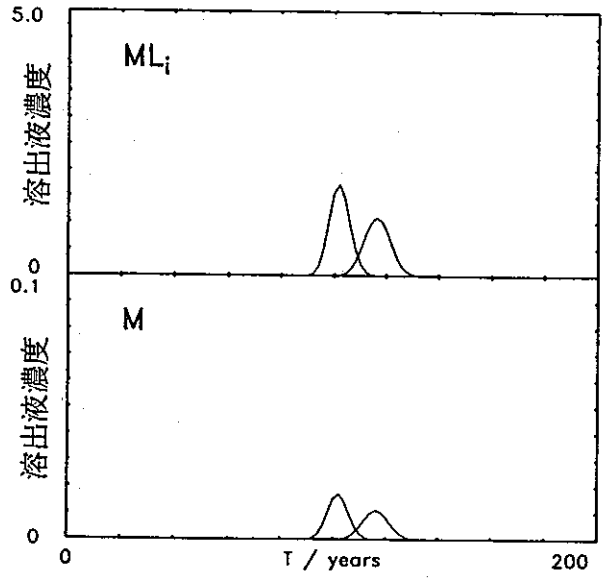


図１　M／ＭＬｉ平衡系の成分の溶出曲線
（見かけの安定度定数は100）
Ｒｆ（ＭＬｉ）が双方において１とすると，
Ｒｆ（Ｍ）はそれぞれ，２および10に等しい

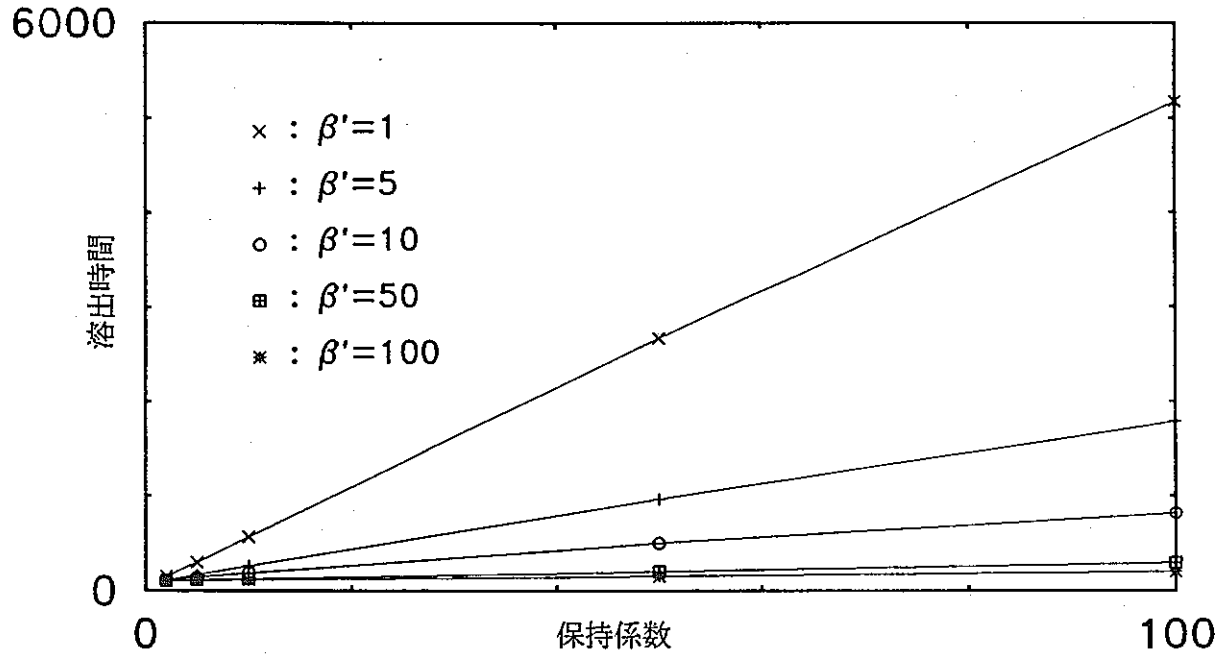


図２　遊離金属イオンの保持係数（錯体の安定性を固定）の関数としての
M／ＭＬｉ平衡系の平均溶出時間

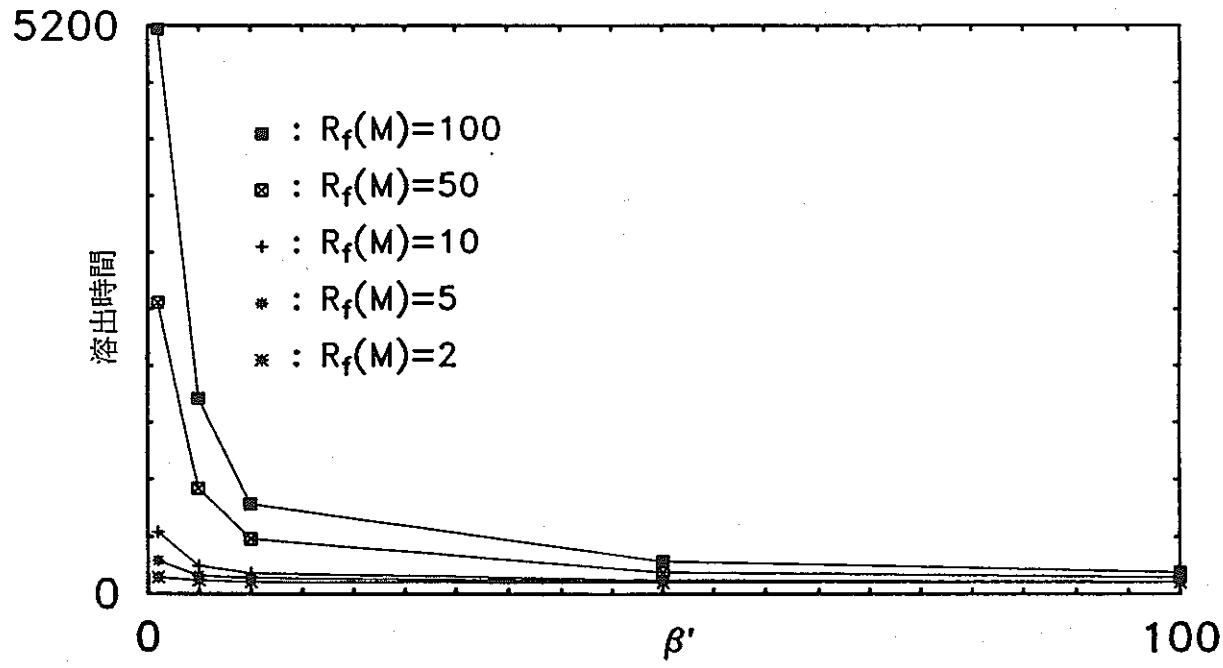


図３　見かけの安定度定数（固定金属イオン保持を固定）の関数としての
M／ＭＬｉ平衡系の平均溶出時間

環境放出後の地下水汚染の評価

ASSESSMENT OF GROUNDWATER CONTAMINATION SUBSEQUENT TO AN ENVIRONMENTAL RELEASE

M.T. Galceran, R. Rubio, and G. Rauret

Department of Analytical Chemistry University of Barcelona. Diagonal 647.08028 Barcelona. Spain

L. Alonso

Servei de Medi Ambiem, Diputació de Barcelona. Spain

概　要

Les Franqueses del Vallés(Catalonia, Spain) 地方で1987年初期に起こった地下水汚染事故について調査した。電導度，ｐH，塩化物，アンモニア性窒素，シアン化物，化学的酸素要求量，水銀，および有機物由来の中性＋塩基分画ならびに酸性分画，総有機化合物を重大な汚染物質として選択した。検出した有機化合物の中から，その出現頻度が高いかまたは高濃度で存在するかのいづれかの理由により30種を重要とみなした。得られた結果から，主汚染源が，土壌中に埋設された壊れたタンク中に貯蔵されていた化学物質であることが突き止められた。地方当局が迅速に介入したため，環境中への放出を早急に低下させることができた。

はじめに

ほとんどの重大な水系汚染事故は，地下水コンパートメントから汚染物質を除去することが困難であるという理由から，地下水に被害を与えるものである。このことが，事故発生後すぐに地下水汚染を確認し調査しなければならない理由である (1)。地下水汚染のリスクは，カタロニア地方（スペイン）オリエンタル谷の一部の地域で見られるようにfreatic layer （変動層）が地表面近くにあるとき増加する。その理由は，土壌中分解プロセスが起こる程度が低いからである。この場合，十分な防護をせず土壌中に廃棄すなわち埋設された汚染物質がいかなるものであってもそれが簡単に地下水に到達する。被害が余り深刻にならないうちに汚染源を見つけだし除去することが，この場合，必要になる。また，監視計画によって継続的評価を行うことも重要であり (2)，これによって地下水供給および灌がい利用について，的確な決定を下すことができる。

1987年初期，カタロニア地方（スペイン）のLes Franqueses del Vallés で起こった地下水

汚染事故について調査した。この一帯は農業および工業地域であり，灌がい用井戸が事故によって重大な被害を受けた。まず最初に，この地帯の一部の井戸，およびある工場の中庭地面に置かれていた壊れたタンクに貯蔵されていた溶媒蒸発残渣から試料を採取し，主要汚染源がこれらのタンクに含まれていた製品によるものであることを突き止めた。地方当局はこの工場を閉鎖し，主要汚染源を除去した時点で，Diput ació de Barcelona （バルセロナ地方当局）の命令により主要汚染物質の時間的推移調査に乗り出した。

調査の第１段階において，ｐＨ，電導度，温度，硬度，カルシウム，マグネシウム，ナトリウム，カリウム，塩化物，アルカリ度，硫酸塩，乾燥残渣，硝酸塩，亜硝酸塩，化学的酸素要求量（過マンガン酸塩），アルミニウム，鉄，マンガン，銅，カドミウム，亜鉛，鉛，ヒ素，セレン，水銀，ニッケル，クロム（Ⅲ）および（Ⅵ），シアン化物，界面活性剤，およびアンモニア性窒素，ならびにｐＨ８において塩化メチレンで抽出可能な有機物に関して測定した。

この第１段階で得られた情報から，いくつかの無機化合物のみが全ての重要汚染源として重大な意味を有するとみなされ，かつ汚染源となり得るだけの高濃度であることが示された。これと対照的に，有機化合物は，この事故状況においてある重要な役割を果しているらしかった。この理由のみに基づき，ｐＨ，電導度，塩化物，アンモニア性窒素，シアン化物，化学的酸素要求量，水銀，および有機物由来の中性＋塩基性分画と酸性分画，さらに，総有機化合物濃度を選択し，地下水汚染経過を調査することにした。本論文では，1987年に行われた本調査で得られた結果について述べた。また，有機化合物測定に用いた方法についても記載した。

実　験

帯水層の特徴

この汚染地帯は，基本的に砂と砂利から構成されている Congost川の砂れき帯水層内にあった。この帯水層は，水で飽和したとき最大厚３ｍの遊離型のものである。Freatic layer（変動層）は深さ３－４ｍのところにあり，その不透過床はマイセン粘土でできている。

水挙動

この帯水層は，わき水，雨水，さらに Congost川の河川水が流入した過剰の状態となっている。地下水は一般的に言って帯水層の流路に従い流れるものであるが，帯水層水位がCongost川より高い時，その表面下から Congost川へ流入する。

この河川水の汚染レベルが高く，このために川床が耐水性となることから，通常この河川水と地下水は水文学的には連結されていない。

帯水層利用

この地下水は，周辺の村（Granollers，Les Franquesesなど）の給水，灌がい，および工業用として広い範囲で使用されている。

この帯水層は，Congost 川の水が汚染されており利用できないことおよび下を流れるマイセン帯水層も各井戸につき１－２トン／時間しか供給できないような流量の少ない層であることから，一帯の給水源として重要である。

試料採取

試料採取場所は，スペイン，カタロニア地方の Les Franqueses del Valles内とした。Congost 川の近くの図１に示した狭い地域に所在する井戸19カ所から試料を採取した。調査井戸は，工業用および農業用井戸であるが，その位置は，汚染源として疑いがもたれている地点および川に沿った地下水の推定流路に基づき，選択した。

試料採取は，井戸の特性に応じて手動またはポンプ汲み上げで行った。試料採取を手動で行った場合，Ｎｉｓｋｉｎ瓶・モデル101005.51(General Oceanics Inst.社，米国フロリダ州マイアミ）を用いた。一般的な物理化学的パラメータおよび無機パラメータ測定用水試料はポリエチレン瓶で採取し，一方，有機パラメータ用には，ガラス瓶を用いた。試料採取用瓶は，通常の方法で洗浄した（3)。

試料採取は，1987年３月，７月および11月に行った。表１に，調査井戸の種類，試料採取法および試料採取日を示した。

試料は，分析するまで４℃に保存した。微量元素測定に用いた一定量を酸性とし，ｐＨ２とした。その後，0.45μm のメンブレンフィルターでろ過した。シアン化物およびアンモニア性窒素測定に使用した分割は，アルカリ性媒体および酸性媒体中にそれぞれ保存した。

材　料

全ての試薬は，Merck 社製分析用試薬または“超純粋”等級のものとした。二回脱イオン水（Culligan Ultrapure GS 18.3MΩcm^{-1}抵抗）を用いた。全ての溶媒は，分析用Carlo Er-

ba社製のものとし，ガラス器具で蒸留した。ガラスマイクロファイバーフィルター（ＧＦ－Ｃ）Whatman 0.45μm のフィルターとセルロースエステルメンブレンフィルターGelman0.45μm のフィルターを使用した。

有機分析に使用した器具類は，下記のように洗浄した。ガラス類は，洗浄剤溶液中で超音波洗浄し，二回脱イオン水およびアセトンですすいだ。硫酸ナトリウム，シリカゲル，およびアルミナは，ソクスレー抽出器で24時間，塩化メチレン－メタノール（２：１）で抽出した。

蒸留溶媒は全て，100mlを10μℓまで濃縮後ガスクロマトグラフィー（ＧＣ）でその残渣を分析した。微量金属分析に用いた全てのガラス器具類およびプラスチック器具類は，少なくとも24時間硝酸 100ml／ℓに浸積した後二回脱イオン水で洗浄した。

分析方法

一般的な物理化学的および無機パラメータ類は，米国公衆保健協会(American Public Health Public Health Association)の標準的手法 (4)に従い測定した。シアン化物は，先に蒸留した後ＵＶ－ＶＩＳ BeckmanモデルＤＵ－７（Irvine，米国カルフォルニア州）を用いて分光学的に測定した。水銀は，二重ビーム，バックグラウンド補正用重水素ランプ，および中空カソードランプ付きのPerkin-Elmer原子吸光分析器モデル 4,000を用いて，冷却蒸気法による原子吸光分光分析で測定した。ほう素化水素ナトリウムは，還元溶液とした用いた。

有機化合物は，下記のようにして分析した。試料（1500ml）を水酸化ナトリウムでｐＨ８に調整し，塩化メチレン（50mlづつで３回）で抽出，塩基＋中性分画（Ｂ＋Ｎ）を得た。試料を次に塩酸でｐＨ２に調整し，同溶媒で３回抽出，酸分画（Ａ）を得た。この分画を先に２mlまで濃縮し，20%三フッ化ほう素／メタノール10mlで一晩エステル化した。その後，ほう素－メタノール錯体を水20mlで分解し，脂肪酸メチルエステルをｎ－ヘキサン５mlで抽出した。

各分画を全てロータリエバポレーションを用いて適当な容量（50－100ml)まで濃縮後，純粋の冷窒素気流中で蒸発させた。

抽出試料は，水素炎イオン化検出器（ＦＩＤ）およびスプリットレスインジェクター付属ＤＡＮＩ（Monza，イタリア）モデル 3,800GCを用いてガスクロマトグラフィーで分析した。カラムはＲＳＬ－200でポリジフェニレニルメチルシロキサン溶融シリカを十分にコーティ

ングしたオープン型筒状カラムとし，直径 0.2㎜，長さ30m，フィルム厚0.20μm のカラムを用いた。ヘリウムをキャリアガス（26cm／s）とした。温度は，8℃／分で40℃から260℃となるようにプログラムした。インジェクターおよび検出器温度をそれぞれ 250℃および260 ℃とした。スピードバルブを45秒間閉としスプリットレス法（ホットニードル法）でインジェクションした。

化合物を，Hewlett-Packard（Palo Alto，米国，カリフォルニア州）モデル5985GC-MS 装置を用いて，ガスクロマトグラフィー質量分析（ＧＣ－ＭＳ）で同定した。ガスクロマトグラフィーカラムは，５％フェニルメチルシリコン（0.52μm フィルム厚），0.2㎜ 直径，25m長さとした。条件は先に述べたものと同一とした。マススペクトルは，70eV電子衝撃で得た。

試料の保持時間およびマススペクトルデータを標準化合物またはスペクトルライブラリに保存されているデータと比較し，試験確認を行った。このガスクロマトグラフィー分析によって存在する総有機化合物を推定でき，さらに，外部標準ステアリン酸メチルで得られたＦＩＤ反応係数を用いて特定の有機化合物を推定した。ＧＣ－ＭＳ解析では，また，特定のフラグメントイオンが集積し分解の不十分な混合物中における特定の化合物を推定できる。しかし，本研究では，この手法を定性的手段としてのみ使用した。

結果および考察

重要汚染物質として選択したパラメータの結果を表２～表４に示した。３回の試料採取時における全ての地下水試料の電気伝導度が，全般的に高値であることが示されている。井戸72および77で最高値が示され，７月に採取した試料の最大値は，有機汚染を発生させたものとは異なる別の汚染源からこの塩汚染が由来することを示している。電導度に大きな関連を示すパラメータ，塩化物含有量は，この採取時期において最大平均値を示している。

アンモニアは，多くの非汚染水中よりも高かった。３回目の試料採取時において，全ての井戸でこの値が著しく減少した。しかし，井戸71，72および77では高濃度がそれでもなおかつ残留し，一方，塩基＋中性化合物は減少し，これは重要なことであった。

調査した井戸のシアン化物含量の推移に特に注目した。３月にはシアン化物が６カ所の井戸で検出されたが，飲用水基準ＣＥＥ(5) に比較して顕著に高濃度を示したものは，試料72と81だけであった。これらの井戸は，塩基性および中性分画も最大値を示した。第２回および第３

回の試料採取において，シアン化物ばかりでなく塩基および中性分画さらに特定化合物のイソシアノメチルベンゼンがかなり減少し，このことから，シアン化物および一部の特定有機化合物が共通の由来のものであるかどうかについて疑問が生じる。さらに汚染水中シアン化物測定を行いシアノ基含有有機化合物の挙動について調べたところ，本研究に用いた方法も含めて異なる3種の方法でシアン化物を測定した場合，これらの種類の化合物が，通常，正の干渉作用を示すことが明らかとなった (6)。

化学的酸素要求量（ＣＯＤ）が第3回目の試料採取時において最高値を示すというそれまでと異なる挙動が観察された。この測定ＣＯＤ値は，一般に，公共給水系に許容されている値よりも高い。

水銀は，66および71の2試料についてのみ第1回目の試料採取時において検出された。測定濃度は，公共給水系に許容されている値よりも低かった。

塩基および中性化合物および酸性化合物から抽出された有機汚染物質の総量を，表2～表4に示した。分析試料中にかなり頻繁に検出されたことまたは調査した井戸の一部で高濃度で存在していることの理由により，検出された全ての化合物中，30種が重要であった。試験的に同定された化合物を表5～表7に示した。

全ての井戸で観察された酸性化合物は，芳香族カルボン酸，フェノール類，およびフタル酸のようなその他の化合物少量と脂肪酸の混合物であった。後者すなわちその他の化合物は一部の井戸でかなりの量存在していた。これは，ほとんどの場合，第3回目の試料採取時において観察された（1987年11月）。酸性分画の総濃度および各化合物の濃度（表2～表4）は大幅に変化しているが，しかし，脂肪酸は全ての井戸に存在しており，一方，ベンゼンカルボジチオール酸または2，6－ビス（1，1－ジメチルエチル）フェノールのような化合物は，一部の井戸にしか存在していなかった。おそらくこれは，特殊な汚染によるのであろう。

塩基＋中性化合物は，さまざまな性質を有する。可塑材として使用されるフタル酸，抗酸化剤として使用される4－（｛4－メチルフェニル｝スルホニル）モルホリン，製薬および化粧品業界で使用されているオクタデノール，キナゾリン，硫黄化合物（ジメチルトリスフィド，カルボノジチオールジメチルエステル）およびその他化合物が挙げられる。これらの一部については，地下水汚染物質として記載されている（7－11）。この分画の濃度は一般に酸性分画に比べて低く，第1回試料採取時の井戸72と81におけるイソシアノメチルベンゼン，第2回試料採取時の井戸63の4－（｛4メチルフェニル｝スルホニル）モルホリンのような特定の化合

物が高濃度であることは，おそらく特殊な汚染を示唆しているのであろう。

脂肪酸およびフタル酸のような一部の化合物が調査した全ての井戸で観察されたこと，および３回に及ぶ全ての試料採取時において 0.5～110μg ／ℓ範囲内の異なる量で検出されたことは，おそらくこの地域の活発な工業利用に関連した化合物が帯水層中に存在する可能性を示唆する。その他の化合物は一部の井戸にしか存在しておらず，その濃度は時間経過とともに低下した。これらの化合物は，おそらく，たった１回の汚染事故が起こった結果を示すのであろう。例えば，井戸71では３月に２－メチルキナゾリンが76.8μg ／ℓであったのが７月には9.9μg ／ℓとなり，11月には全く観察されなかった。ジメチルトリスルフィド，イソシアノメチルベンゼン，カルボノジチオールジメチルエステル，２－（４－クロロフェノキシ）－２－メチルプロパン酸のような他の化合物も同一の経過を示した。土壌に設置した損傷タンク内に化学物質を貯蔵した工場が一時的に地方当局によって閉鎖されたという事実とこれらの値の低下を関連させることができるであろう。

地方当局は，工場閉鎖の他に土壌に残留している汚染物質が地下水に流入しないように措置を講じた。タンクを埋設していたエリアの影響を受けた土壌を30×10m，深さ５mにわたって掘削した。また，帯水層を縦断するギャラリーを有し深さ 1.3kmにある井戸からポンプをくみ出し継続して行った。

こうした措置によって，ある程度ではあるが汚染を狭い地域に限定し，給水，工場および灌がいに使用している地帯の井戸に問題が拡大するのを防止した。汚染の拡大は工業が盛んな地域における地下水汚染を顕著なものとし，かつ，このことは解決が極めて困難でしかも多額の費用を強いるものとなったであろう。

この地下水サーベイの結論として，これまで見てきたように地方当局の迅速な介入によって汚染拡大を迅速に低下させることができたことを挙げることができる。にもかかわず，おそらく Congost川周辺一帯が工業利用が盛んであることによるのであろうが，この一帯では，比較的高レベルの地下水汚染が見られた。Congost 川には，未処理の流入物質がコントロールされることもなく流れ込んでいる。さらに，７月に検出された塩化物，11月に検出されたフタル酸のような特定の汚染物質をモニタリングプログラムによって今後も継続して測定評価していくことになるはずである。

ＣＡＳ登録番号

ジメチルトリスルフィド，3658－80－8；ベンゼンアセトニトリル，140－29－4；イソシアノメチルベンゼン，10340－91－7；カルボノトリチオールジメチルエステル，2314－48－9；2－メチルキナゾリン，700－79－8；2－ペンタデール，4，6－ジメチル1－3ジオキサン，56599－77－0；4（｛4メチル－フェニル｝－スルホニル）モルホリン，6339－26－0；ベンゾチオフェン，3－フェニル，14135－12－9；4，8，12トリメチル3，7，11－トリデカトリエンニトリル，6006－01－5；オクタデカノール，112－92－5；ジエチルフタレート，84－66－2；ブチル2－メチルプロピルフタレート，17851－53－5；ジ－n－ブチルフタレート，84－74－2；ビス（2－エチルヘキシル）フタレート，117－81－7；ジイソオクチルフタレート，27554－26－3；2，6ビス（－1，1－ジメチルエチル）フェノール，128－39－2；ベンゼン酢酸，103－82－2；ベンゼンカルボチオール酸，98－91－9；ベンゼンα－ヒロドキシ酢酸，515－30－0；2（4－クロロフェノキシ）2－メチルプロパン酸，55162－41－9；フタール酸，88－99－3；n－ノネノン酸，3760－11－0；n－ノナノン酸，112－05－0；n－ドデカン酸，143－07－7；n－テトラデカノン酸，544－63－8；n－ペンタデカノン酸，1002－84－2；n－ヘキサデセノン酸，2091－29－4；n－ヘキサデカノン酸，57－10－3；n－オクタデセノン酸，506－17－2；n－オクタデカノン酸，57－11－4。

参考文献

1. Mackay, D. M., Roberts, P. V., and Cherry, J. A. Transport of organic contaminants in groundwater. *Environ. Sci. Technol.* **19**: 384–392 (1985).
2. Josephson, J. Groundwater monitoring. *Environ. Sci. Technol* **15**: 993–996 (1981).
3. Hunt, D. T. E. and Wilson, A. L. *The chemical analysis of water*. pp. 78–99. The Royal Society of chemistry, 2nd ed. Oxford (1986).
4. American Public Health Association. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 16th ed. APHA, Washington, DC. (1985).
5. European Community Council. Directive concerning the quality of drinking water. Brussels, Belgium (July 15, 1980).
6. Rubio, R., Galceran, Ma. T., and Rauret, G. Nitriles and isonitriles as interferences in cyanides determination in polluted waters. *The Analyst* **115**: 959–963 (1990).
7. De Smedt, F. Modelling of groundwater transport of microorganic pollutants: State-of-the-art. In: *Organic Micropollutants in the Aquatic Environment*, pp. 387–400. G. Angeletti and A. Björseth, eds. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands (1988).
8. Garman, J. R., Freund, T., and Lawles, E. W. Testing for groundwater contamination at hazardous waste sites. *J. Chromatog. Sci.* **25**: 328–337 (1987).
9. Stuermer, D. H., Ng, D. J., and Morris, C. J. Organic contaminants in groundwater near an underground coal gasification site in Northeastern Wyoming. *Environ. Sci. Technol.* **16**: 582–587 (1982).
10. Albaigés, J., Casado, F., and Ventura, F. Organic indicators of groundwater pollution by a sanitary landfill. *Water Res.* **20**: 1153–1159 (1986).
11. Barber, L. B., Thurman, E. M., Schroeder, H. P., and Le Blanc, D. R. Long-term fate of organic micropollutants in sewage-contaminated groundwater. *Environ. Sci. Technol.* **22**: 205–211 (1988).

表1　調査井戸および試料採取日

Sample	Characteristics	Sampling	Date, 1987		
			March	July	November
28	R	P	X		
34	R	P	X	X	X
55	R	M	X	X	X
57	I	M	X	X	X
63				X	X
66	R	M	X	X	X
71	I	M	X	X	X
72	R	P	X	X	X
77	I	P	X	X	X
80				X	
81	R	P	X	X	X
82	R	P	X		
89	I	P	X	X	X
91	I	M	X	X	X
97	R	P	X	X	X
99				X	X
103	R	P	X		X
108				X	X
C.S.	R	P	X		

R = rural, I = industrial, P = by pumping, M = manually.

表2　重要汚染物質として選択されたパラメータの結果（1987年3月）

Sample	Parameter								
	pH	Electrical Conductivity (μS cm^{-1})	Cl^- (mg L^{-1})	Nitrogen (NH_4^+) (mg L^{-1})	CN^- (total) (μg L^{-1})	Oxygen Demand (mg L$^{-1}O_2$)	Hg (μg L^{-1})	Organic Basic + neutral Compounds (μg L^{-1})	Organic Acid Compounds (μg L^{-1})
28	6.9	2,617	575	<0.03	ND	7.07	<1.0	26	46
34	7.5	2,197	517	<0.03	ND	3.40	<1.0	70	30
55	6.9	2,187	529	3.5	3.1	8.48	<1.0	18	80
57	6.9	2,292	536	<0.03	0.6	3.52	<1.0	17	61
66	6.7	1,900	362	<0.03	ND	2.44	9.9	23	120
71	7.5	1,108	189	7.0	ND	16.4	<1.0	154	201
72	7.1	4,250	1,326	43	147	62.3	3.1	225	175
77	7.0	5,348	1,761	4.5	ND	16.0	<1.0	14	95
81	6.6	2,139	517	26	148	51.9	<1.0	287	86
82	6.2	1,337	214	<0.03	ND	1.88	<1.0	8	87
89	7.5	778	89	<0.03	ND	0.28	<1.0	9	44
91	7.3	2,841	840	3.4	19.2	11.9	<1.0	58	330
97	7.2	2,006	486	<0.03	ND	2.68	<1.0	38	42
103	6.8	1,261	147	<0.03	ND	0.72	<1.0	19	53
C.S.	6.7	2,282	570	25	14.0	28.0	<1.0	51	145

ND = not detected.

表3　重要汚染物質として選択されたパラメータの結果（1987年7月）

Sample	Parameter								
	pH	Electrical Conductivity (μS cm^{-1})	Cl^- (mg L^{-1})	Nitrogen (NH_4^+) (mg L^{-1})	CN^- (total) (μg L^{-1})	Oxygen Demand (mg L$^{-1}O_2$)	Hg (μg L^{-1})	Organic Basic + neutral Compounds (μg L^{-1})	Organic Acid Compounds (μg L^{-1})
34	6.9	3,060	704	0.26	ND	6.52	<1.0	8	44
55	6.9	3,110	754	0.07	ND	7.36	<1.0	12	128
57	7.2	4,030	972	0.26	ND	8.83	<1.0	14	40
63	6.9	3,240	716	10.75	49	18.95	<1.0	461	51
66	7.2	1,650	278	0.67	ND	2.91	<1.0	13	93
71	7.3	1,016	194	6.64	ND	14.34	<1.0	15	139
72	7.0	7,000	1,077	9.67	10	14.81	<1.0	24	19
77	7.0	5,580	1,512	7.10	ND	18.07	<1.0	9	26
80	7.2	1,780	387	<0.03	ND	3.41	<1.0	16	47
81	6.9	2,930	632	1.03	30	8.50	<1.0	126	50
89	7.8	1,017	103	0.03	ND	2.53	<1.0	9	30
91	6.9	3,000	790	5.19	ND	9.00	<1.0	26	50
97	7.0	2,820	794	<0.03	ND	7.15	<1.0	11	33
99	6.9	4,210	972	0.32	ND	12.23	<1.0	9	40
108	7.0	3,200	692	14.78	ND	13.68	<1.0	80	90

ND = not detected.

表4　重要汚染物質として選択されたパラメータの結果（1987年11月）

Sample	Parameter								
	pH	Electrical Conductivity ($\mu S\ cm^{-1}$)	Cl^- ($mg\ L^{-1}$)	Nitrogen (NH_3) ($mg\ L^{-1}$)	CN^- (total) ($\mu g\ L^{-1}$)	Oxygen Demand ($mg\ L^{-1}O_2$)	Hg ($\mu g\ L^{-1}$)	Organic Basic + neutral Compounds ($\mu g\ L^{-1}$)	Organic Acid Compounds ($\mu g\ L^{-1}$)
34	6.7	2,440	525	<0.03	ND	25.22	<1.0	3	50
55	6.6	2,370	591	0.37	4.0	9.18	<1.0	7	87
57	6.7	2,290	942	<0.03	ND	15.61	<1.0	7	106
63	6.7	2,710	624	<0.03	ND	18.95	<1.0	73	50
66	6.7	2,010	378	<0.03	ND	20.39	<1.0	7	85
71	6.7	685	61	2.74	ND	28.83	<1.0	24	111
72	6.5	3,380	810	10.18	ND	43.98	<1.0	21	123
77	6.6	5,810	1,724	10.05	ND	24.19	<1.0	4	156
81	6.6	2,570	469	<0.03	ND	23.85	<1.0	30	110
89	6.9	1,620	279	<0.03	1.0	23.78	<1.0	19	144
91	6.6	2,800	506	<0.03	ND	25.83	<1.0	64	91
97	6.6	2,400	510	<0.03	8.0	28.37	<1.0	11	101
99	6.8	3,555	867	<0.03	4.0	27.69	<1.0	18	98
103	6.8	1,360	137	<0.03	ND	26.47	<1.0	13	96
108	6.5	2,590	469	<0.03	ND	28.18	<1.0	24	50

ND = not detected.

表5　分析試料中の測定化合物（1987年3月）

Compound	Well ($\mu g/L$)														
	28	34	55	57	66	71	72	77	81	82	CS	89	91	97	103
Dimethyltrisulfide	–	–	–	–	–	–	4.9	–	11.5	–	–	–	1.9	–	–
Isocyanomethylbenzene/benzeneacetonitrile	–	–	–	–	–	6.5	37.1	–	35.3	–	–	–	2.26	4.9	–
Carbonotrithioic dimethyl ester	–	–	–	–	–	–	16.0	–	19.5	–	1.0	–	–	–	–
2 Methylquinazoline	–	–	–	–	–	76.8	–	–	–	–	1.8	–	–	–	–
Family acetamides	–	–	–	–	–	–	8.5	–	13.8	–	3.2	–	–	–	–
Pentadecyl-dimethyl-dioxane isomer	–	–	–	1.3	–	–	–	0.2	–	–	1.2	–	1.3	0.9	–
4-((4-Methyl-phenyl)sulphonyl)morpholine	1.9	13.5	1.2	–	–	–	3.1	–	–	–	–	0.3	–	–	–
4,8,12 Trimethyl 3,7,11-tridecatriene nitrile	2.3	0.9	1.4	0.6	–	–	–	–	–	1.3	0.9	0.8	–	1.9	0.08
Diethyl phtalate	0.6	–	–	2.5	–	14.3	13.0	0.3	12.1	0.3	4.4	–	2.5	1.0	0.4
Bis(2-ethylhexyl)phtalate	1.2	3.4	0.6	–	–	–	–	0.4	–	0.5	–	0.4	0.7	–	0.6
Diisooctyl phtalate	1.1	–	0.5	0.7	–	–	–	0.4	–	0.5	0.7	0.4	2.0	2.7	7.1
2,6 Bis(1,1-dimethyl-ethyl)phenol	–	–	–	0.9	–	–	–	–	5.7	–	1.4	–	5.8	0.5	–
Benzene carbothioic acid	–	–	–	–	–	3.2	4.8	–	–	0.4	–	–	136.9	–	–
Benzene α-hydroxy acetic acid	0.1	0.2	–	–	–	–	–	0.5	1.5	2.2	–	–	–	–	0.3
2-(4-Chlorophenoxy)2-methyl propanoic acid	–	–	–	–	–	50.4	–	3.7	–	1.2	2.3	–	–	–	–
n-nonenoic acid	0.7	0.4	1.8	1.1	3.0	2.2	–	2.1	1.5	1.9	4.4	7.9	–	0.9	1.1
n-nonanoic acid	2.2	1.5	6.8	4.6	8.6	6.6	5.2	7.2	6.1	6.6	11.4	3.2	2.3	2.6	3.9
n-tetradecanoic acid	2.5	1.7	6.2	3.5	7.6	6.4	13.6	5.6	10.3	4.5	9.9	2.2	18.8	2.8	3.3
n-pentadecanoic acid	0.7	3.5	0.4	–	0.6	–	–	0.4	–	0.5	–	0.4	0.8	–	0.6
n-hexadecenoic acid	4.3	3.1	12.6	8.9	14.4	12.8	11.2	12.6	8.9	9.4	17.3	4.6	10.2	4.8	6.4
n-hexadecanoic acid	9.2	5.9	22.8	15.6	25.7	17.5	22.4	20.3	20.4	16.4	27.2	10.0	22.7	10.8	14.9
n-octadecenoic acid	2.3	2.5	8.2	7.7	13.5	8.8	8.4	8.4	8.4	9.3	13.9	5.2	13.5	4.7	4.9
n-octadecanoic acid	2.9	1.4	5.6	5.2	7.5	6.6	7.0	5.7	6.9	6.1	9.9	3.5	0.8	3.1	12.3

表6　分析試料中の測定化合物（1987年7月）

Compound	Well (μg/L)														
	34	55	57	63	66	71	72	77	80	81	89	91	97	99	108
Dimethyltrisulfide	–	–	–	–	–	–	–	–	–	3.4	–	–	–	–	1.7
Isocyanomethylbenzene/benzeneacetonitrile	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	2.5	–	–	6.1
Carbonotrithioic dimethylester	–	–	–	16.6	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
2 Methyl quinazoline	–	–	–	–	–	9.9	–	–	–	–	–	–	–	–	–
4((4-Methylphenyl)sulphonyl)morpholine	–	–	–	36.4	–	–	3.4	–	–	18.0	–	2.8	–	–	10.1
Benzothiophene, 3-phenyl	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	1.8	–	–	–
4,8,12-Trimethyl 3,7,11-tridecatienenitrile	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	0.7	–
Diethylphtalate	–	–	–	20.2	–	2.1	–	–	0.8	–	–	–	–	–	–
Di-n-butyl phtalate	0.5	0.8	–	–	1.3	–	–	–	0.2	–	–	–	–	–	–
Diisooctylphtalate	0.9	0.8	1.3	–	0.7	–	–	0.6	1.6	–	2.9	–	0.9	0.5	–
2,6-Bis(1,9-dimethyl ethyl)phenol	–	–	–	27.6	–	–	1.4	–	–	12.3	–	2.3	–	–	–
Benzeneacetic acid	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–	10.9
2(4-Chlorophenoxy)2-methyl propanoic acid	–	–	–	–	–	33.4	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Phtalic acid	17.1	55.2	–	–	45.7	27.2	–	–	24.8	–	–	–	–	–	–
n-nonenoic acid	–	–	0.4	0.6	–	–	–	2.1	–	0.8	0.1	0.6	0.6	0.6	1.5
n-nonanoic acid	–	7.6	3.2	–	–	–	1.8	2.1	–	3.6	–	2.8	2.1	2.7	6.6
n-dodecanoic acid	–	–	–	2.6	–	–	–	–	–	3.4	–	–	–	–	–
n-tetradecanoic acid	0.7	1.1	3.2	19.8	1.6	–	1.7	0.6	1.0	12.8	2.3	1.4	2.7	2.7	4.9
n-hexadecenoic acid	5.1	11.2	3.3	–	1.8	9.5	4.0	0.8	–	5.2	3.1	6.0	–	3.4	12.9
n-hexadecanoic acid	10.3	24.0	14.5	11.1	12.9	18.2	8.1	9.6	9.4	10.7	10.8	13.8	10.5	8.5	16.6
n-octadecenoic acid	–	7.6	2.9	–	1.1	–	–	3.6	–	5.1	2.7	4.5	4.7	2.4	4.5
n-octadecanoic acid	0.9	8.3	6.2	3.5	1.0	–	4.6	1.3	4.9	13.8	3.4	5.1	0.9	2.8	12.8

表7　分析試料中の測定化合物（1987年11月）

Compound	Well (μg/L)														
	34	55	57	63	66	71	72	77	81	89	91	97	99	105	108
Bis dimethyl ethyl phenol	–	–	–	2.5	–	–	–	0.3	0.8	–	–	–	–	–	–
Imidazol dienones isomers	–	–	–	–	–	1.6	–	–	–	–	0.7	–	0.4	–	–
Methyl pentadecyl 1,3 dioxane isomers	–	–	0.4	–	–	0.8	–	–	2.1	5.2	–	–	–	–	–
1-Isocyanate haphthalene	–	–	–	4.2	–	1.4	1.1	0.2	1.3	–	1.9	–	0.8	0.3	–
Benzenesulphocyanide	–	–	–	3.6	–	–	–	–	0.6	–	–	–	–	–	1.9
4-((4-Methylphenyl)sulphonyl)morpholine	–	–	–	6.2	0.2	–	2.5	–	6.0	–	5.1	1.1	0.6	0.4	3.7
Octadecanol	–	–	–	1.8	–	–	–	–	0.4	1.6	–	–	–	–	–
4,8,12-Trimethyl-3,7,11-tridecatriene nitrile	0.4	0.2	–	0.2	0.3	–	0.9	0.1	0.5	0.4	2.2	1.3	0.5	0.8	0.6
Diethyl phtalate	–	–	–	1.5	–	0.6	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Butyl 2-methylpropyl phtalate	–	0.2	0.6	2.7	–	1.7	1.0	0.2	–	–	2.3	0.6	0.6	0.9	0.9
Di-n-butyl phtalate	0.3	0.9	–	4.7	0.7	–	–	0.5	3.6	–	–	0.7	–	2.8	–
Diisooctyl phtalate	3.8	4.8	4.1	3.0	5.4	8.1	25.0	3.3	6.4	23.5	4.9	3.1	3.4	7.6	2.4
2-(4-Chlorophenoxy)2-methylpropanoic acid	–	–	–	–	–	21.3	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Phtalic acid	2.3	67.8	87.2	27.2	48.9	19.2	56.9	109.6	84.0	68.8	25.6	51.7	88.5	68.2	38.0
Decanoic acid (isomer)	1.6	1.5	–	1.6	3.7	3.2	3.9	4.1	1.8	3.6	2.6	3.4	–	1.7	1.1
n-tetradecanoic acid	1.5	1.0	–	7.4	2.8	2.8	2.8	2.4	1.9	3.1	5.3	4.7	–	1.3	4.2
n-pentadecanoic acid	–	–	–	1.1	–	1.7	–	–	–	–	–	0.3	–	–	–
n-hexadecenoic acid	5.5	5.7	2.6	2.6	5.5	9.0	7.1	5.5	3.4	9.1	7.4	3.5	0.6	2.1	0.7
n-hexadecanoic acid	1.3	6.0	8.5	6.2	9.2	13.4	15.5	13.9	11.1	17.9	12.9	12.3	4.4	6.9	6.0
n-octadecenoic acid	3.8	2.4	2.6	1.6	4.5	11.7	5.8	5.3	3.4	8.2	3.3	3.5	–	2.2	2.0
n-octadecanoic acid	2.1	2.2	2.2	8.3	3.4	4.9	5.7	5.0	6.5	7.9	3.9	3.4	2.0	1.5	2.5

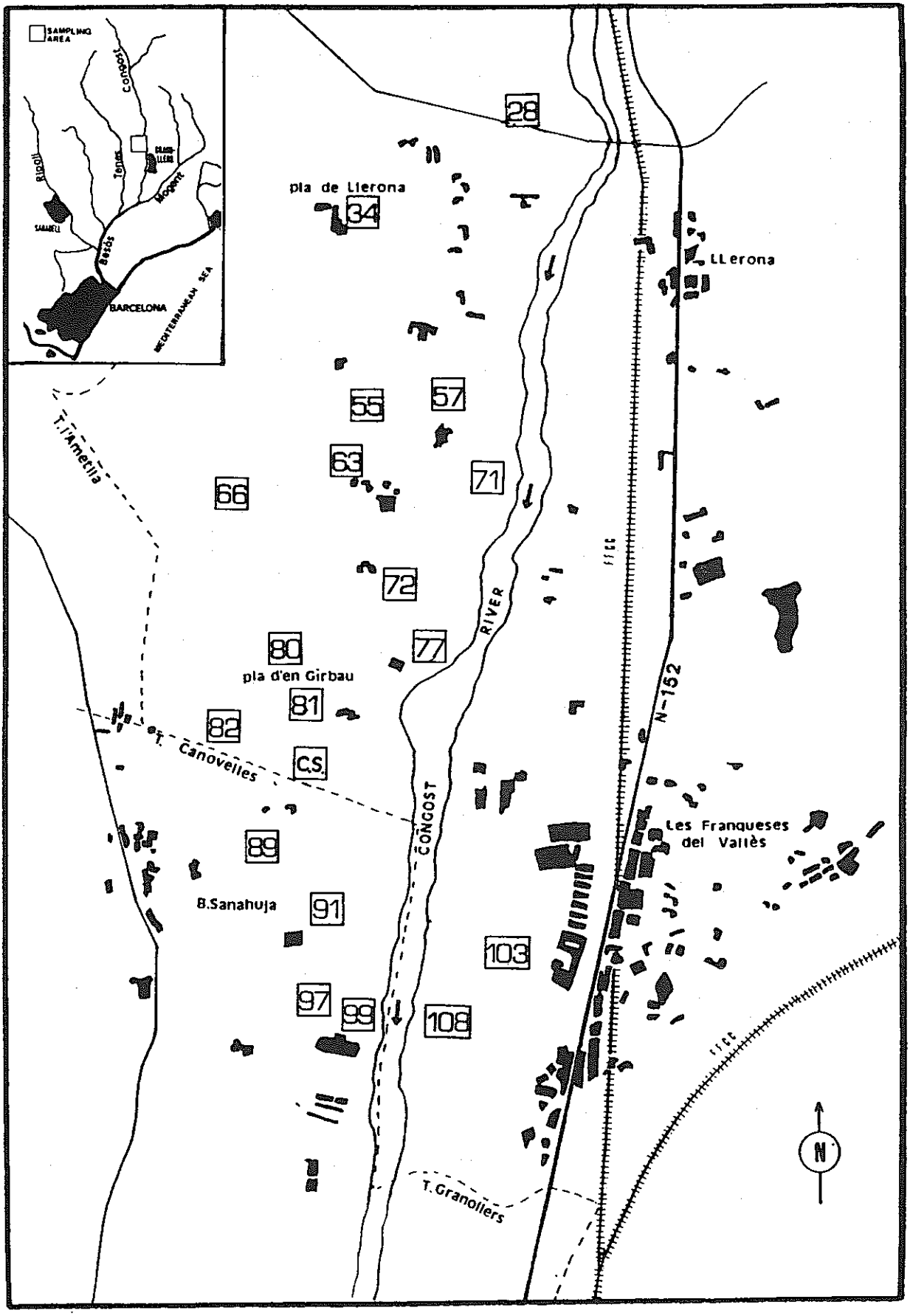


図1　試料採取地点の位置

ウラン粗精錬尾鉱由来の放射性，化学的および物理的特定汚染物質の地表面分布様式

GROUND DISTRIBUTION PATTERNS OF SELECTED RADIOACTIVE, CHEMICAL, AND PHYSICAL CONTAMINANTS FROM DISPERSION OF U MILL TAILINGS

Shawki A. Ibrahim, F. Ward Whicker and Steven L. Simon
Department of Radiology and Radiation Biology, Colorado State University, Fort Collins, CO 80523

概　要

Ｒａ-226および全α放射能の地表面濃度を土壌深度およびウラン粗精錬尾鉱からの距離の関数，ならびに，土壌ｐＨ，硫酸塩，塩化物および電導度の関数として測定した。土壌深度および線源からの距離が増加するに伴い汚染が減少した。測定パラメータのほとんどは，粗精錬尾鉱集積場からの距離が 3.3km以上離れるとバックグラウンドと識別不能となった。汚染物質全てについて最大濃度が，土壌表面（０～0.6cm）において直径 0.45mm未満の粒子中で観察された。この分画は，総土壌量の４～10%にすぎない。全ての汚染物質について 2.0mmを超える土壌粒子は，中程度粒径（0.045～2.0mm）分画よりも高濃度であった。細粒土が団粒化して２mmを超える粒度が形成されるか，または尾鉱砂分画が優先的に侵食され運搬されることで説明できるのではないかと提案された。種々の測定値間の相関で有意であったのは，土壌Ｒａ-226対全α放射能，硫酸塩濃度，および電導度であった。後記２つのパラメータは，硫酸に浸出された尾鉱を示唆するものである。この硫酸濃度は，尾鉱汚染および土壌相への移行を感度良好にかつ容易に検出する指標であるらしい。さらに，硫酸塩は，その他の環境汚染源（ウラン鉱石ダスト，イエローケーキ，自然増加ウランおよびラジウム）から酸性ウラン尾鉱を識別するために使用することができる。実際にサイトで測定した表面Ｒａ-226濃度は，ＭＩＬＤＯＳコンピュータコードで予測した値のおよそ２倍となっている。

はじめに

活性および非活性のウラン粗精錬尾鉱周辺において，放射性核種および有毒物質の存在が健康ならびに環境に対して及ぼす潜在的影響を推定することが頻繁に必要になる。このような尾鉱は環境から十分隔離されていないことが多く，しかもその成分が漏出し隣接環境と相互作用を起こすことがある。現在ウラン尾鉱サイトの浄化が重視されていることから，本研究では，

ウラン粗精錬尾鉱の拡散による汚染物の運搬について，関連するいくつかの問題を述べた。

当初のウラン鉱石が有する放射能のほとんど全て，すなわちＴｈ-230，Ｒａ-226およびＲｎ-222の崩壊生成物，特にＰｂ-210およびＰｏ-210が尾鉱に存在している。これらの放射性核種のレベル上昇ならびにＭｏ，Ｓｅ，Ｖ，Ａｓ，ＣｕおよびＮｉのような微量元素のレベル上昇がウラン採掘およびウラン粗精錬操業場の周辺でこれまで報告されてきた（Ibrahim & Whicker 1987 ;Ibrahim & Whicker 1988a, 1988b; Dreesen & Marple 1979)。酸浸出法によって発生したウラン粗精錬尾鉱は，また，粗精錬サイクル工程による硫酸塩および塩化物をも含有し，その結果，汚染土壌のＰｈが低下し，電導度が高くなる。

尾鉱汚染物質に対するヒト被ばく経路として，気体状および粒子状汚染物質の吸入，および汚染食料および水の摂取，ならびに地面さらに大気中のγ線被ばくが挙げられる。ウラン採掘および粗精錬によるヒトの潜在的放射線量を推定するために，いくつかモデルが開発されている（例　ＭＩＬＤＯＳ，Strenge & Bander 1981)。ウラン尾鉱由来粒子状物質の風による拡散は，風速，粒子径分布，地表面トポグラフィ，およびその他パラメータを考慮した理論的・経験的風－侵食式に基づき，これらのモデルの大部分において推定されているモデル予測値と実際の屋外での測定値を比較したものはほとんどない（Skinner 1983）。

本研究では，(1)活性ウラン粗精錬尾鉱貯蔵場からの放射能（Ｒａ-226および全α放射能）地表面濃度を線源からの距離および土壌深度の関数として求めること，(2)酸性尾鉱に特徴的な化学的物理的パラメータ類（土壌ｐＨ，硫黄塩，酸化物，および電導度）を土壌粒子径の関数として求めること，(3)放射線・化学・物理の各パラメータ間の相関の大きさを求めること，(4)地面汚染に関するモデル予測値と屋外データを比較するためにサイトで直接測定した値を報告すること，などを目的とした。

材料および方法

調査サイト

調査したウラン採掘および粗精錬場は，ワイオミング州南東部高地の高度 2,200mに位置している。ウラン鉱石は，地表面からおよそ 100m地下にあり，1969年以降，露天掘方式で採掘を行ってきた。このサイトでは，1960年に採掘が開始され，当時は地下法を採用していた。1963年になって，溶液掘削が開始され，1969年までこの方式が続行された。調査エリアは，年間平均降雨量25cmの半乾燥地帯である。風は強くしつこく続き，その方角は主に西お

よび南西方向である。調査エリアの主な地勢および年間風向を図１に示した。粗精錬は従来の酸浸出法により行い，その最大鉱石処理量は 1.4×10^{6} kg d^{-1}である。湿潤粉砕を行った後，鉱石を硫酸および塩素酸ナトリウム酸化剤で浸出する。ウラン保持浴を清澄槽に注ぎ，一方残渣の鉱石スラリーを洗浄し尾鉱貯蔵場にポンプで汲み出す。浸出溶液は，ウラン吸着能を有する一連のイオン交換体を通過させる。ウランを濃縮塩化ナトリウムを用いてイオン交換体樹脂から剥離し，アンモニアと接触させイエローケーキを沈澱させる。尾鉱スラリーの砂径分画は貯蔵場の排出口付近に集まり，露天尾鉱の主要部分となる。径がこれより小さい（スライム）分画はさらにゆっくり集まるので，貯蔵場全体に分散することになる。

本調査時点において，処理鉱石等級は，およそ（U_3O_8として）0.15%であり，尾鉱が固体：液体比１：１で年間 2.7×10^{8} kg生産されていた。鉱石からの総U抽出回収率はおよそ95%であった。粗精錬処理において使用する硫酸および塩化ナトリウムは，それぞれ，鉱石1,000 kg当たり，45kgおよび 4.5kgの割合で添加した。

本調査の間，２つの尾鉱貯蔵場があり，およそ 1.4×10^{6} m^2を占めていた。双方ともに自然の地勢とダムによって包囲されていた（図１）。ダムNo.４は，成形された土壌充填ダムであり，およそ浸出溶液 2.3×10^{6} m^3を含有していた。このダムは，1970年の操業開始以来，粗精錬によって発生した尾鉱を貯蔵するために建設された。ダムNo.５は，高さ20m，長さ1,830mの工学的に建設された土壌充填ダムであり，溶液およそ 8.2×10^{5} m^3を貯蔵していた。貯蔵エリア全体で，尾鉱固体としておよそ 6×10^{9} kgであった。蒸発および波の作用によって尾鉱固体が浜辺の様になっており，これが粒子汚染の主要源となっていた。

放射線・化学・物理測定値

風向きから予測されるように，風拡散尾鉱プルームがダムNo.５から東方向に広がっている。2.5×2.5cmのＮａ１結晶付スケーラーを用いて周辺γ線線束を測定し，それに基づき漏出尾鉱拡散のパターンを調べた。周辺γ線線束測定値から拡散尾鉱の方角を確認したが，この方角は優勢な風向きと対応していた。縦断アーチに沿った尾鉱ダム（Ｄ１，Ｄ２，Ｄ３）の３点のγ線計測値を図２に示した。これらのデータに基づき，尾鉱貯蔵場の風下方向に0.04, 0.16, 1.1, 3.3および 6.6kmの東西縦断線に沿って５ヵ所の試料採取位置を選んだ。それらは，また，γ線線束ピーク値を示す地点でもあった。この地点をそれぞれ，Ｄ１，Ｄ２，Ｄ３，Ｄ４，Ｄ５とした（図１）。尾鉱貯蔵場北西 3.4kmに位置する風上方向の地点１ヵ所を

調査地点に含め，コントロールとして使用した。

土壌試料 500ｇを同一試料についてそれぞれ４個，各地点において採取した。深度は，０～0.6，　０～15，および０～30cmとした。表面土壌試料（０～0.6 cm）は，土壌ふるいを用いて粒子径によって 0.045mm未満，0.045～2.0mm，および 2.0mmを超える分画に分類した。試料を70℃のオーブンで約12時間乾燥後室内空気と12時間平衡とし，秤量した。

Ｒａ-226は，γ線スペクトロメトリを用いて土壌のままで測定した。本法では，気体密封容器に処理試料を密封し，Ｒｎ-222およびその娘核種をＲａ-226と平衡となる様にした（20日後内部成長97％）。娘核種Ｂｉ-214の1.7MeVγ線を，10×20cmＮａｌまたは同軸型Ｇｅ－Ｌｉ検出器（7.5×7.5cmＮａｌに比較して効率30％）を用いて次に測定した。国際標準局（ＮＢＳ）から入手した１次標準で校正した２次標準尾鉱試料と比較して，1.76MeV 光子ピーク領域における正味の係数率をＲａ-226のmBqに変換した。

全α係数装置は，シングルチャンネルアナライザーとインテグラル光増倍管付属10cm直径のＺｎＳシンチレーションプローブで構成されている（Smith & Whicker 1982）。土壌試料を乾燥後乳鉢と乳棒で粉砕し，均質とした。8.8×1.3cmのプラスチックシャーレに試料を配置し計測を均一に行うようにしたが，このシャーレには各試料を約 100ｇ入れることができた。各土壌試料の全α放射能測定の前に，検出器のバックグラウンド測定を行った。土壌試料の物理化学パラメータ分析は，標準的手法に基づき行った（Page 1982）。土壌ｐＨは，試料を精製水と完全に混合（比１：１）し10分間放置した後，標準ｐＨ電極を用いて測定した。硫酸塩，塩化物，および電導度は，最初に土壌を空気乾燥し振とう機中で１時間精製水と振とう（比１：１）後，ろ過して得た土壌試料の水性抽出物について推定した。電気伝導度は，直接読みとり型電導度計で測定した。硫酸塩は，塩化バリウムを用いて$BaSO_4$ 懸濁液に変換し，生じた濁度をスペクトロメータで測定，結果を標準溶液で作成した曲線と比較した。塩化物は，銀電極による電気滴定によって測定した。

データ処理

実験では，土壌中６つの変数をそれぞれ測定することでした。すなわち，Ｒａ-226濃度（$mBq \cdot g^{-1}$），全α放射能（ｃｐｓ），ｐＨ，塩化物濃度（$meq \cdot L^{-1}$），硫酸塩濃度（$meq \cdot L^{-1}$），および電気伝導度（$mmhos \cdot cm^{-1}$）である。この６つの変数は土壌粒子径・尾鉱ダム風下方向への距離，および土壌深度に応じて測定した。このデータを，Ｂ

MDP統計ソフウウエア（Dixon ら，1981）を用いて多変量分散解析（Morrison 1976)によって解析した。データを対数（log$_e$）変換しデータ分布を標準化し，かつ，これら変数の分散と平均との相関を排除した（Kleinbaum & Kupper 1978)。予備的記述統計ではひずみが示唆されていたが，このlog$_e$変換によって，当初の単位による解析に比較して結論が変化することは全くなかった。

因子分析（Morrison 1976)を用いて高い相関性を示す変数群としての“因子”を正確に記述することによって，データの従属的構造を解明した。因子分析の目的は，各因子内の変数が高い相関を示すようにデータの分散と共分散をいくつかの少数因子で説明することにある。

回帰分析を用いて，有意に相関している変数測定値から表層土壌中Ra-226濃度の予測値を誘導し，かつ，尾鉱ダムからの風下方向への距離による関数としての表層土壌中Ra-226濃度を予測する式を誘導した。この分析において，全ての粒子径を用い，さらに，風下地点5ヵ所の表層土壌Ra濃度の平均値から回帰をコンピュータ計算した。異なる関数形を比較し，誤差の平方和を最小とすることを基準として，回帰直線への適合性を評価した。

結論および考察

独立パラメータ測定値

Ra-226平均濃度，全α，pH，塩化物，硫酸塩，電導度を，表層（0～6cm）土壌の粒子径および測定地点別に示した（表1）。尾鉱風下方向の汚染のほとんどは土壌表面で観察されたので，下記では主に，土壌表面測定に関するデータについて考察することにした。土壌pHを除き，全ての測定パラメータは，線源からの距離および深度が増加するに伴い減少した。

Ra-226濃度最大値は11Bqであり，この値は，表層土壌中粒子径 0.045mm未満の地点D1（40m風下）で観測された。ラジウム濃度は，尾鉱貯蔵場からおよそ 3.3km離れた風下地点でバックグラウンドレベル(0.2Bq・g^{-1}）にまで低下した。Ra-226汚染のほとんどが最表面土壌層に封じ込められているようであり，このことは，土壌浸透および混合が限定されていることを示唆している。風下方向で測定した粒子汚染の主要汚染源は精錬尾鉱に由来するもののようであった。過去のある研究では，鉱石中および尾鉱サイズの異なる2つの分画（砂とスライム）におけるRa-226平均濃度が，それぞれ，18.5，6.1 および30.0Bq・g^{-1}であると報告されている（Flot 1983)。

中程度の径（0.045～2.0mm）分画に比べて 2.0mmを超える粒子径分画のＲａ-226濃度が高いのは予測外であった。これと同じことが，全α放射能，水素イオン濃度，塩化物，硫酸塩，および電導度についても観察された。我々は，大きな粒子径に関連して濃度が高いことは小粒子が団粒を形成する傾向があることによるのではないかと予測している。尾鉱粒子径増加に関連して同様の２項分布がＰｂ-210に認められることが，Schwendiman らによって述べられている（1980）。また，大粒子径分画では，極めて浸食性の尾鉱砂が多くなるであろう。同一土壌試料の全α測定値（ｃｐｓ）から，露天尾鉱からの距離および土壌深度によって放射能が低下するという同様の傾向が示唆された。地点Ｄ４およびＤ５に比較してわずかに高い全α放射能がバックグラウンド地点で観測された。しかし，バックグラウンド地点とＤ５の間の比較から，Ｒａ濃度は統計的に識別不可能であることが示唆された。

土壌ｐＨが，貯蔵場からの距離および土壌深度増加の関数として増加することが測定値から示唆された。全ての粒子径分画についてＤ１で測定した表層土壌ｐＨ値は，4.5～5.5の範囲に分布していた。尾鉱風下（6.6 kmまで）で採取した全ての地点の表層土壌試料は，酸性であった。バックグラウンド地点の表層土壌は同様にわずかに酸性であり，特に粒子が細かい分画で酸性であった。

尾鉱に最も近い地点の硫酸塩濃度は，全ての深度において全粒子径分画で高かった。硫酸塩濃度は，露天尾鉱からの距離とともに減少した。硫酸塩は，尾鉱拡散および土壌中垂直移行を確実に感度良好に示すインジケータであるらしい。このことは，SO_4 とＲａの相関の大きさ（ｒ＝0.91）およびSO_4 とαの相関（ｒ＝0.84）から示唆される。一方，塩化物は確実なインジケータではなく，その濃度は極めて変動しやすかった。塩化物イオンは，土壌を介して硫酸塩に比較して容易に浸出されてしまったのであろう。

土壌電導測定値は，硫酸塩濃度に類似の傾向を示した。土壌電導度最大値は全粒子径分画のＤ１表層土壌で記録された。また，比較的高い土壌電導度がその他の深度層のＤ１で測定された。全ての粒子径分画の表面土壌の土壌ｐＨ，硫酸塩および電導度測定値を尾鉱からの距離の関数として図３に示した。種々の粒子分画の重量%値（表１）から，表層土壌について，直径0.45mm未満の粒子が総重量の４～10%を占めることがわかる。本分画が最大濃度の放射能および化学汚染を含有していることが明らかであり，したがって本分画は，U尾鉱汚染物質の環境測定に適しているといえる。

Ｄ１において，Ｒａ-226，全α，硫酸塩，および電導度を粒子径および深度別に統計的に

比較した。これら4つの変数は，汚染記述における重要性およびそれらが比較的複数の相関を示すことなどの理由により選択し，解析した。Ｒａ-226濃度は表層土壌の全粒子分画間で有意に（ｐ＜0.05）異なっており，一方，α放射能は異ならなかった。表層土壌硫酸塩濃度は粒子分画＜0.045mm および 0.045～2.0mm 間，　0.045～2.0mm および＞2.0mm 間で異なっていたが，しかし，＜0.045mm および＞2.0mm 間ではそうではなかった。同様に，中深度および深層土壌層（0～15および0～30cm）で，2種の異なる粒子分画の硫酸塩に差が生じた。表層土壌の電導度のみが中等度粒子径分画および大粒子径分画で異なっていたが，しかし，より深い層では，全ての分画において電導度が変化した。

パラメータ間の相互作用および相関

これらの変数に関する表層土壌データを，2方向（粒子径および位置）多変量分散分析で解析した。本解析では，同時に作用する全変数の検定（多変量）および各従属変数の単変量検定を行った。位置別（ダムからの風下方向への距離）および粒子径別にそれぞれ解析したが，多変量検定および単変量検定の双方について有意であった（ｐ＜0.01）。このことは，これらの変数が位置および粒子径の双方によって変化することを示唆している。第3番目に，位置と粒子径との相互作用を解析した。多変量分散分析は，単変量検定と同様に（α放射能を除く，ｐ＜0.03；およびｐＨ，ｐ＜0.28），有意であった（ｐ＜0.01）。本解析から，全ての変数が同時に作用する（すなわち，バラバラでなく）こと，および（ｐＨを除く）全ての変数が位置および粒子径によってそれぞれ変化したことが示唆される。

因子分析によって，表層土壌データを用いて測定パラメータの2因子モデルを決定した。これらの計算では，表2に示した相関マトリックスを用いた。α放射能，Ｒａ-226，硫酸塩，および電導度は極めて高い相関を示し，共分散の70％を占める1次因子を構成した。塩化物および粒子径は，変動の残りの30％を占める2次因子を構成した。

回帰分析

我々は，尾鉱からの風下方向への距離の関数およびその他測定変数の関数としてＲａ-226濃度を予測する式を求めようとした。表層土壌中Ｒａ-226濃度を距離の関数として予測するために比較するべき式の種類は，べき乗関数および種々の指数を組み合わせたものであった。誘導した数種の式のうちで，2成分指数関数プラスバックグラウンド放射能定数（図4）の

適合が優れたものであった。

表１のＲａ-226データおよび表面α放射能をそれぞれ，各試料採取地点（Ｄ１からＤ５まで）における各粒子径範囲の総重量分画で重み付けした。各地点の加重濃度に土壌密度(1.0 g・cm^{-3}）および試料採取最表面層深度(0.6cm）を掛け，Bq・cm^{-2}に変換した。αｃｐｓをα検出器の表面積（78.5cm^2）で割った。計算したBq・cm^{-2}またはｃｐｓ・cm^{-2}を，２成分指数関数プラス定数の形の式にそれぞれ適合させた。すなわち，

$$\text{Bq・cm}^{-2}\text{またはcps・cm}^{-2} = \alpha_1 * \exp(-\alpha_2 * d) + \alpha_3 * \exp(-\alpha_4 * d) + B \quad (1)$$

{式中，ｄは風下方向への距離（km），およびＢはバックグラウンド放射能である}。本式は，放射能がバックグラウンドレベルに近づいているような数km離れた地点においてさえも良好な予測値出すと思われる。べき乗関数は，これまで同サイトにおいて距離とともにＲａ-226放射能が低下することを説明するために報告されている（Skinner 1982）。Ｒａ-226について，0.074 Bq・g^{-1}（＝2.0pCi・g^{-1}）および深度 0.6cmと想定してバックグラウンド濃度を計算した。バックグラウンド表面α放射能は，0.033dps／78.5cm^2（＝2.0 dpm／78.5 cm^2）と想定した。

これらのバックグラウンド値は，我々が測定した値が幾分高かったので，広い範囲の地域バックグラウンドを表すものとして選択した（Myrickら，1983；Ibrahim & Whicker 1988a)。Ｒａ-226のα１，α２，α３，α４，α５，Ｂはそれぞれ，0.49Bq・cm^{-2}，0.76km^{-1}，4.5 Bq・cm^{-2}，20.5km^{-1}，および 0.044Bq・cm^{-2}であった。表面α放射能式のα１，α２，α３，α４，α５，Ｂはそれぞれ，0.5cps・cm^{-2}，13.0km^{-1}，0.005cps・cm^{-2}，0.31km^{-1}，および0.00042cps・cm^{-2}であった。

他の測定変数を表面土壌ラジウム濃度予測因子として利用することが，段階的回帰の結果として記されている（表３）。最も重要な予測変数は，因子分析によって選択された変数と同一であった（すなわち，α，SO_4 および電導度）。研究者数名が，全α放射能が土壌中Ｒａ-226の良好な推定因子であることを見いだしている（Smith & Whicker 1982；Dreesen & Wienke 1978）。ｌｏｇ。対数変換値を利用することによって，他の変数も回帰式に入れられる。しかし，それらが既に有意となった予測能を向上させることはない。実際，硫酸塩のみで，他の変数を組み合わせたものと同等に土壌Ｒａを予測できるようである（表２対表

3）。これらの予測式は，極めてサイト特異性が高いと確信されている。しかし，ある物理的因子または化学的因子の測定値がＲａ汚染を十分に予測するものとして利用できることも明らかである。硫酸塩および電導度が環境中の他物質（ウラン鉱石，イエローケーキ，自然上昇放射能など）から酸性ウラン尾鉱汚染を識別する能力も重要である。

ＭＩＬＤＯＳ予測値と表面汚染の比較

ＭＩＬＤＯＳコンピュータコードは，全てのＵ施設の放射線評価のために開発された。比較的単純な装置でモニターできる点線源放出と異なり，尾鉱貯蔵場からの放出はそう簡単には測定できない。拡散線源はまた安定放出体でないので，容易には測定できない。風に吹き飛ばされ起こる表面からの放出は自然に起こるものである。ダスト発生は，強風時に主に起こる。ＭＩＬＤＯＳの１次輸送仮定は，基本的な直線ガウスプルームモデルである。放射性粒子の沈着および再浮遊のような機構が，このコードでは考慮されている。

Ｒａ-226について上記の回帰式(1)を用いて予測し，ＭＩＬＤＯＳで得られたデータと比較した。1.47kmＮＮＥの地点と比較した。イエローケーキダスト，風に飛ばされた鉱石および尾鉱による地表面汚染のＭＩＬＤＯＳ予測値は，1,050 Bq・m^{-1}（ＭＩＬＤＯＳコンピュータコード評価結果，鉱山－精錬中間報告，1981）であった。我々の試料データをもとに回帰式から予測した値は，2,043 Bq・m^{-2}であった。（わずかに異なる横断面に沿った）我々の予測値は，ＭＩＬＤＯＳ予測値のおよそ２倍であった。双方の予測値がかなり不確かであるので，サイト特異的データを用いて調査を継続することでこの不確かさの要因を解明することが確実となるであろう。

実際のデータを用いて計算したα：Ｒａの比を比較し図５に示した。Ｒａ-226（Bq・cm^{-2}）に対する表面α放射能(cps・cm^{-2}）の比は，Ｒａ-226，１崩壊当たりの計数率αという単位となっている。このデータまたは前記の関数のいずれかを用いて，尾鉱ダムからの距離が増加する（約４kmまで）に伴い，Ｒａ-226，１崩壊当たりのα計数の増加が示唆される。４kmを超える距離の地点では，α：Ｒａの比は，α放射能およびＲａ-226濃度のバックグラウンドレベルから計算した比まで低下していた。風下方向でα：Ｒａの比が増加することを説明するものとして，Ｒｎ-222およびＲｎ娘核種（例，Ｐｏ）保持ダスト粒子の拡散とその後の沈着が挙げられる。同様の現象が，大気中Ｐｂ-210および精錬尾鉱線源の風下方向の地面濃度についてのＭＩＬＤＯＳコードで予測されている。代表的ＭＩＬＤＯＳ演算では，気

象および尾鉱線源の物理特性に応じて，およそ10kmまでのところにおいてＰｂの増加を示している。

結論および勧告

1. 操業およそ20年を経たU尾鉱の拡散による土壌汚染のほとんどは，尾鉱貯蔵場から風下方向へ 3.3kmの地帯で見られた。土壌最表面の直径＜0.045mm の粒子と関連していた。復旧活動目的のため，尾鉱サイト周辺の土壌汚染の程度およびその範囲を調べるための環境モニタリングプログラムは，これらの知見をもとにして計画することができる。
2. 硫酸塩濃度は，硫酸浸出尾鉱拡散を確実にしかも感度良好に示すインジケータである。したがって，硫酸塩は，鉱石から尾鉱を識別するために使用することができる。その理由として，尾鉱は，復旧活動の浄化要件によってさまざまに処理されることが挙げられる。
3. 測定表面Ｒａ-226濃度は，ＭＩＬＤＯＳコンピュータコード予測のおよそ２倍であった。この比較は限定されたデータに基づいてはいるが，上記の差は，特に規制目的に使用する予測モデルの有効性を確認するために，さらにサイト特異的なデータが必要であることを特に強く示している。

謝　辞

本論文は，米国エネルギー省が当初コロラド大学へ援助した第DE-AC02-79EV10305号の資金援助を受けた。本論文のためにさまざまな援助をしてくれた J. Brown, G. Whicker, D. Skinner, および J. Smith の諸氏に感謝いたします。

参考文献

Dixon, W. J.; Brown, M. B.; Engelman, L.; Fran, J. W.; Hill, M. A.; Jennrich, R. I.; Toporek, J. D. BMDP statistical software, 1st ed. Berkeley: University of California Press; 1981.

Dreesen, D. R.; Marple, M. L. Uptake of trace elements and radionuclides from uranium mill tailings by four-wing saltbush (*Atriplex canescens*) and alkali sacaton (*sporobolus airoides*). Proceedings of the Second Symposium on Uranium Mill Tailings Management. Fort Collins, CO: Colorado State University; 1979.

Dreesen, D. R.; Wienke, C. L. Gross alpha activity as an estimator of Ra-226 activity in soils and tailings at an inactive U mill tailings site. Los Alamos, NM: Los Alamos Scientific Laboratory; LA-7529-MS; 1978.

Flot, S. L. The effects of barium chloride treatment of uranium mill tailings and ore on radon emanation and ^{226}Ra levels. Colorado State University, Fort Collins, CO; 1983. M.S. thesis.

Ibrahim, S. A.; Whicker, F. W. Plant accumulation and plant/soil concentration ratios of ^{210}Pb and ^{210}Po at various sites within a U mining and milling operation. Environment. Experiment. Botany 27:203–213; 1987.

Ibrahim, S. A.; Whicker, F. W. Plant/soil concentration ratios of ^{226}Ra for contrasting sites around an active U mine-mill. Health Phys. 55:903–910; 1988a.

Ibrahim, S. A.; Whicker, F. W. Comparative uptake of U and Th by native plants at a U production site. Health Phys. 54: 413–419; 1988b.

Kleinbaum, D. G.; Kupper, L. L. Applied regression analysis and other multivariate methods. North Scituate, MA: Duxbury Press; 1978.

Morrison, D. F. Multivariate statistical methods. 2nd ed. New York: McGraw-Hill Book Co.; 1976.

Myrick, T. E.; Berven, B. A.; Haywood, F. F. Determination of concentrations of selected radionuclides in surface soil in the U.S. Health Phys. 45:631–642; 1983.

Page, A. L., editor. Methods of soil analysis. Madison, WI: American Society of Agronomy; 1982.

Schwendiman, L. C.; Schmel, G. A.; Horst, T. W.; Thomas, C. W.; Perkins, R. W. A field and modeling study of windblown particles from a U mill tailings pile. Washington, DC: U.S. Nuclear Regulatory Commission; NUREG CR-1407, PNL-3345; 1980.

Skinner, D. J. ^{226}Ra contamination of soil and foliage as a function of distance downwind from uranium mill tailings. Fort Collins, CO: Colorado State University; 1982. M.S. thesis.

Skinner, D. J. A comparison of ^{226}Ra deposition predictions obtained from MILDOSE-ANL Computer Code to soil concentrations measured downwind from a U mill tailings complex. Abstract. Health Phys. 45:222; 1983.

Smith, W. J.; Whicker, F. W. An in situ gross alpha monitoring technique for delineating fugitive mill tailings. In: Management of wastes from uranium mining and milling. Proceedings of an International Atomic Energy Agency Conference. Vienna: IAEA; IAEA-SM-262/35; 1982:621–632.

Strenge, D. L.; Bander, T. J., editors. MILDOS—A computer program for calculating environmental radiation doses from uranium recovery operations. Washington, DC: U.S. Nuclear Regulatory Commission; NUREG/CR-2011, PNL-3767; 1981.

表1　異なる地点の表層（0－6cm）土壌中のRa－226，全α，pH，塩化物，硫酸塩，電導度測定　粒子径別に示した

Particle size (mm)	Location[a]	^{226}Ra (Bq g^{-1}) Mean	SD	Gross alpha (cps $cm^{-2}x10^{-3}$) Mean	SD	pH Mean	SD	Chloride (meq L^{-1}) Mean	SD	Sulfate (meq L^{-1}) Mean	SD	Conductivity (mmho cm^{-1}) Mean	SD	Fraction of Total Weight (%) Mean	SD
< 0.045	D_1	11	3.0	39	12	4.7	0.7	54	8.7	6728	1216	1.0	0.3	5.0	1.5
	D_2	1.3	0.22	7.2	0.59	5.0	0.4	61	5.3	316	192	0.10	0.04	9.4	2.1
	D_3	0.70	0.30	2.8	1.3	5.5	0.5	65	3.9	88	5.3	0.22	0.18	8.2	3.2
	D_4	0.22	0.06	1.3	0.25	5.0	1.0	28	12	51	4.0	0.37	0.24	7.3	2.8
	D_5	0.16	0.09	0.42	0.30	4.6	0.3	43	2.9	59	4.0	0.1	0.01	3.9	1.1
	BG	0.20	0.05	1.2	0.51	5.5	0.3	96	57	54	2.6	0.70	0.18	9.8	2.0
0.045-2.0	D_1	3.5	0.85	31	8.9	5.5	1.3	21	0.2	2098	255	0.67	0.03	79	3.0
	D_2	0.93	0.19	9.3	1.6	5.5	0.3	45	17	464	5.4	0.15	0.02	68	5.0
	D_3	0.34	0.12	4.0	0.68	6.6	0.8	24	0.4	184	116	0.16	0.03	64	3.0
	D_4	0.13	0.02	1.8	0.15	6.4	0.4	15	0.4	21	0.5	0.23	0.07	62	6.0
	D_5	0.20	0.21	2.1	0.32	6.7	0.2	29	12	91	58	0.15	0.01	63	4.0
	BG	0.17	0.03	3.2	0.72	6.9	0.3	30	11	16	4.8	0.56	0.03	64	2.0
> 2.0	D_1	5.6	0.78	46	12	4.5	0.6	24	0.3	5297	1253	1.3	0.30	16	2.0
	D_2	1.5	0.48	19	0.85	4.7	0.2	55	23	298	184	0.2	0.06	23	3.0
	D_3	0.56	0.06	6.2	1.1	5.7	0.8	22	1.3	78	41	0.3	0.02	28	5.0
	D_4	0.10	0.03	1.3	0.49	5.7	0.8	16	0.3	22	0.4	0.2	0.07	30	7.0
	D_5	0.10	0.02	2.0	0.21	5.8	0.03	15	0.3	20	0.4	0.3	0.05	33	3.0
	BG	0.24	0.18	3.6	1.0	6.6	0.2	23	6.0	20	0.1	0.9	0.02	26	1.0

[a]See Fig. 1.

表２　表層（０－0.6cm）土壌試料の相関

	Distance	Depth	Ra	Alpha	pH	Cl	SO_4	Cond.
Distance	1.000							
Depth	0.000	1.000						
Ra	-0.313[a]	-0.338[a]	1.000					
Alpha	-0.360[a]	-0.351[a]	0.882[a]	1.000				
pH	0.262	0.590[a]	-0.478[a]	-0.514[a]	1.000			
Cl	-0.158	0.055	0.094	0.065	-0.089	1.000		
SO_4	-0.335	-0.243[a]	0.913[a]	0.840[a]	-0.409[a]	0.111	1.000	
Cond.	-0.295[a]	-0.130	0.706[a]	0.741[a]	-0.286[a]	0.254[a]	0.866[a]	1.000

[a]Significant at 0.01 level

表３　表面土壌中Ｒａ濃度の予測に関する回帰式の段階的計算の概要

(1) All variables included in the original units of measurement.

^{226}Ra (Bq g^{-1}) = 1.09 + 0.0188 (Alpha) + 0.0016 (SO_4) - 5.69 (Cond.)

r^2 = 0.93

(2) All variables included and $\log_e$ transformed (except distance).

$\log_e$ ^{226}Ra (Bq g^{-1}) = -1.60 - [0.11 (km) + 0.39 ($\log_e$ Alpha) - 0.21 ($\log_e$ pH) + 0.014 ($\log_e$ Cl) + 0.21 ($\log_e$ SO_4) + 0.26 ($\log_e$ Cond.)]

r^2 = 0.94

(3) All variables included (except location) and $\log_e$ transformed.

$\log_e$ ^{226}Ra (Bq g^{-1}) = 3.077 + [0.60 ($\log_e$ Alpha) - 0.21 ($\log_e$ pH) + 0.014 ($\log_e$ Cl) + 0.26 ($\log_e$ SO_4)]

r^2 = 0.92

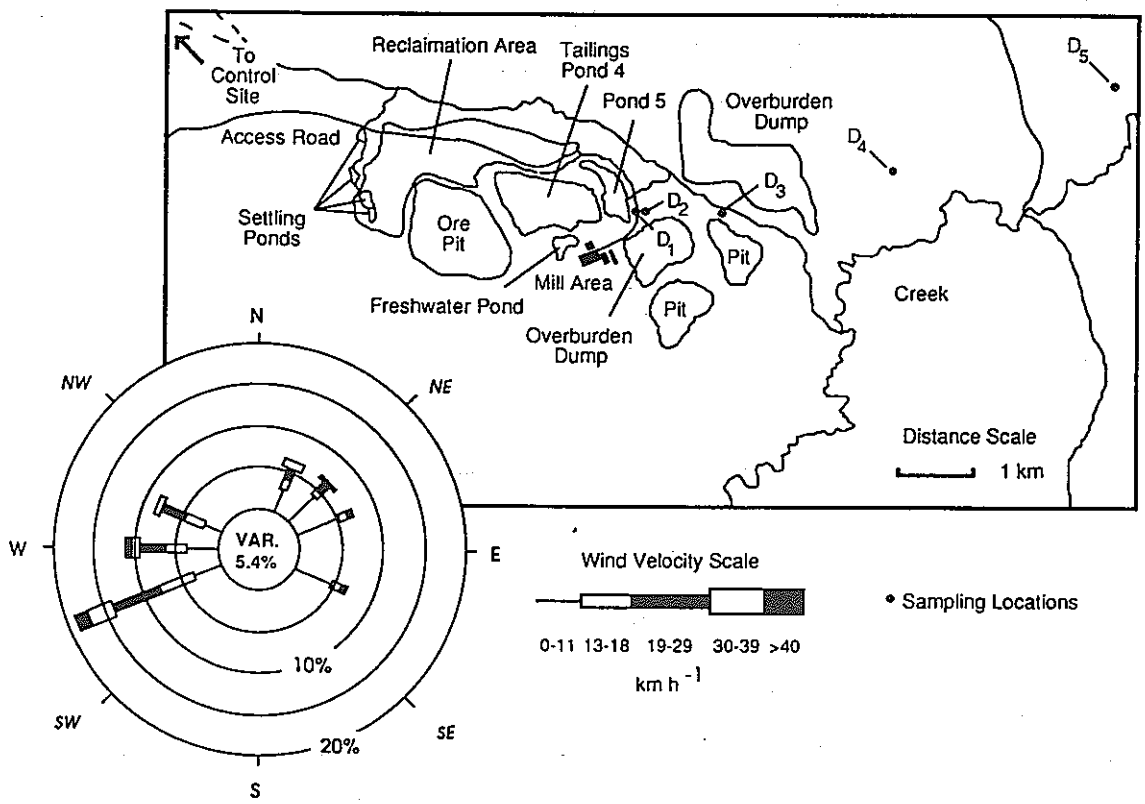


図1　U鉱山および周辺の地図（1981年作成）
主な地勢，年間風向き，および試料採取地点を示した

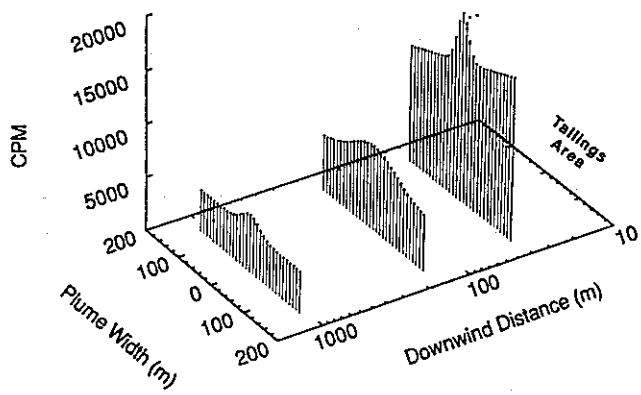


図2　尾鉱ダムからの距離の関数としてのガンマサーベイデータ
Gaussian関数に適合する

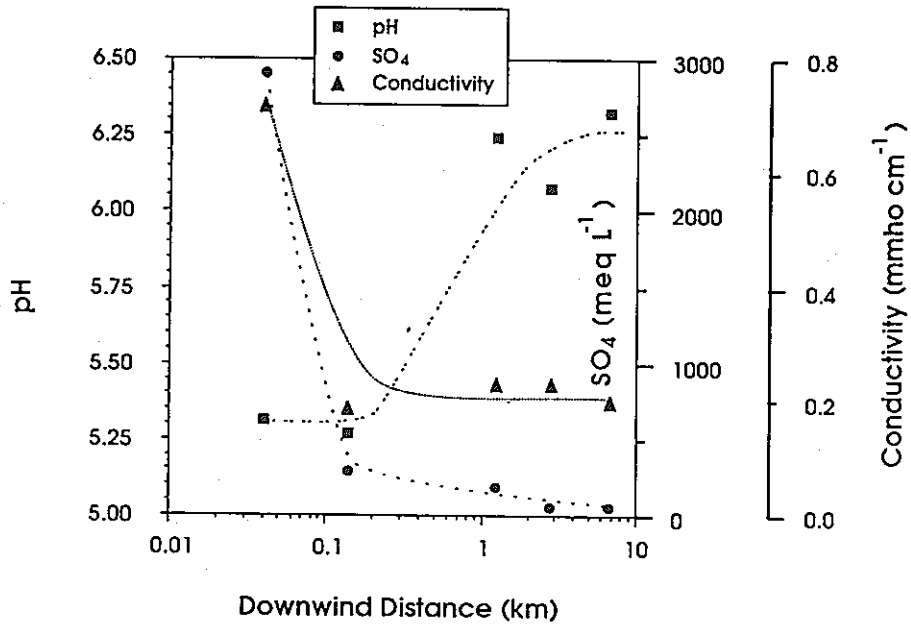


図３　尾鉱からの距離の関数として示した土壌ｐＨ，硫酸塩，および電導度

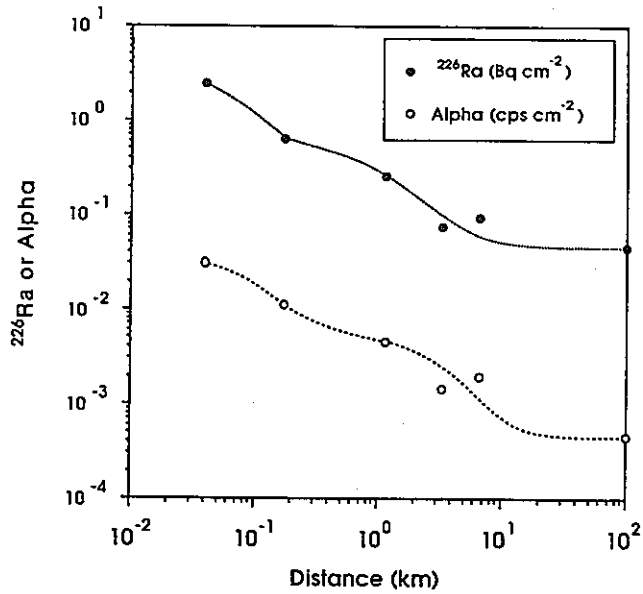


図４　尾鉱ダムからの距離関数としてのＲａ－226 およびα放射能
データはすべての粒径について表層（０－６㎝）を示している。回帰直線は，２成分指数関数プラス定数に基づいている。定数項は，地方バックグラウンド推定値を示している

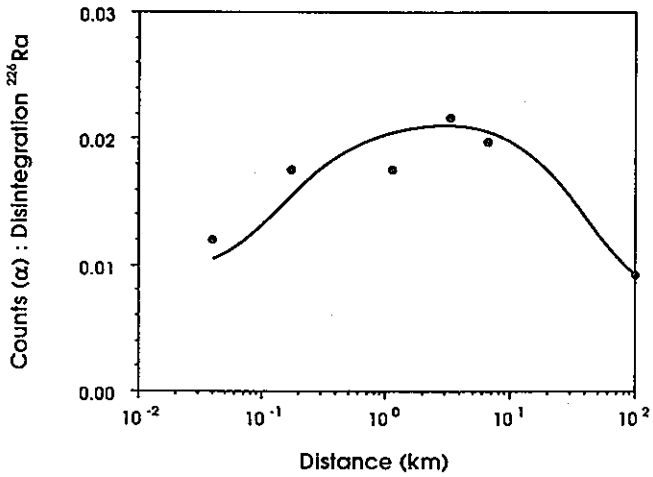


図５　尾鉱からの距離の関数としての ^{226}Ｒａに対するα放射能比

Ｒｎ-222コントロールに関する最近のスウェーデンにおける経験

RECENT SWEDISH EXPERIENCES IN ^{222}Rn CONTROL

Gun Astri Swedjemark: Swedish National Institute for Radiation Protection, Box 60204, S-10401 Stockholm, Sweden

Astrid Mäkitalo: Swedish National Board of Health and Welfare, FAP 3, S-10630 Stockholm, Sweden

概　要

スウェーデン地方当局は，その管轄領域内において屋内Ｒｎ-222崩壊生成物濃度を低減する責任を有している。こうした経験を全般的に展望するために，1986年，関係国家当局が地方当局に対して質問事項を送付した。政府は，財政的援助，限度などに関するこれまでの方針を改訂するかどうか決定するためのひとつの基盤とするためにこの結果を利用することを目的としていた。また，政府当局が限度および勧告決定においてこの結果を利用し，一方，地方当局は野外作業決定に利用することも，目的としていた。本サーベイのひとつの結果として，スウェーデンの政治家およびマスメディアの間で，Ｒｎ問題に対する関心が大いに高まった。このように関心が高まった結果，1987年から1989年にかけて全国的および地方レベルで続けられてきた屋内Ｒｎレベルの低減作業を新たに計画することになった。地方当局は，Ｒｎ崩壊生成物レベルが調査した新規建築住宅の97%において計画レベル以下であることを経験的に理解した。同様に，Ｒｎ崩壊生成物濃度が過去においてこの限度を超えていた既存家屋の53%が，改築限度以下であることがわかった。

はじめに

Ｒｎ-222レベルおよび建築物における低減効果に関する1980年以降のデータを1986年にスウェーデン地方当局から収集し，政府に報告した（ＳＮＩＲＰ 1987)。本調査の一部は，他所で既に公開されている（Swedjemarkら，1987；Swedjemarkら，1988；Swedjemarkら，1989）。さらに詳細に結果を検討したものが引き続き公開された（ＳＮＢＨＷ 1988）。下記の低減効果報告の大部分は，この検討に基づいている。政府に対して提出された報告書によって．政治家およびマスメディアの間でＲｎ問題に対する関心が高まり，その結果，全国的および地方レベルの両方で続けられてきた屋内Ｒｎレベルの低減作業を新たに計画するかあるいは見直すこと

になった。

1975年度建築物原簿に記載されていたスウェーデン国内家屋のＲｎ崩壊生成物濃度を1980～1982年に測定しその算術平均を求めたところ，50Bq・m^{-3}ＥＥＲ（定義に付いては下記参照）であり，10%が 100Bq・m^{-3}を超え，１%が 400Bq・m^{-3}以上であった（Swedjemark & Mjones 1984）。上記値は，他の多くの国の値よりも高い。多くのスウェーデン家屋で屋内Ｒｎレベルが上昇しているのは，(1)土壌のＵ含量が高いこと，(2)Ｒａ-226含量が高い建築材料を使用していること，および(3)気候が寒いため，換気頻度を減らすことでエネルギーを節約することが多いこと，などによる。また少数の家屋では，水道水が屋内Ｒｎ濃度に寄与している。

スウェーデンおよびフィンランドのみが，屋内Ｒｎ濃度低減限度を公表している。多くの諸国では公式の勧告を公表している。勧告に示されたアクションレベルは任意のものであり，一方，限度とは，コストの有無に関わらず遵守せねばならないものである。

スウェーデン国内住宅のＲｎ崩壊生成物濃度低減のための限度および勧告は，1980年に作成された。この限度は，ラドン平衡濃度当量（Equilibrium Equivalent Concentration of Radon；ＥＥＲ）単位で年間平均として示されている。この単位は，“ラドンの短半減期崩壊生成物類と放射平衡にあるラドン放射能濃度であり，この濃度は真の非平衡混合物と同一の潜在的αエネルギー濃度を有する”（1 Bq・m^{-3}＝2.7×10^{-4}ＷＬ＝5.6×10^{-9}Ｊ・m^{-3}）（ＵＮＳＣＥＡＲ　1982）。

新規建築物に対する設計レベルは70Bq・m^{-3}ＥＥＲであり，改築家屋限度は 200Bq・m^{-3}（ＳＮＢＰＰＢ　1980），既存住宅限度は 400Bq・m^{-3}（ＳＮＢＨＷ　1980）であり，レベルが 100Bq・m^{-3}を超えた時の濃度低減のための勧告と組み合わせて（もし簡易な方法で組合せが可能である場合）適用される。この限度を既存住宅に付いて 200Bq・m^{-3}に，改築住宅に付いて70Bq・m^{-3}に低減することが，現在検討されている。限度低減の理由として，(1)リスク推定に関してよりすぐれた基準が使用できるようになったこと，(2)スウェーデン国内労働者の放射線防護に関してこれまでより低い生涯限度が1988年に確立されたこと，および(3)低減に関する資料が整ってきたことなどが挙げられる。建築材料および屋内γ線被ばくについてのこれまでの限度が，勧告に変えられている。

上記に述べた政府に対する報告書のひとつの成果として，一戸建住宅の所有者がＲｎ濃度低減のための政府財政援助を受けられる可能性が1988年以降高まった。

測定方法

ＲｎおよびＲｎ崩壊生成物濃度の測定および規定限度との比較は，地方当局または測定会社が行った。これらの会社に対して，測定プロトコールおよび年間平均の計算プロトコールを示した。かれらに対して，その校正線源を国立放射線防護研究所（National Institute of Radiation Protection）で検査する機会を与え，その後当研究所のリストに載せられることになっている。測定プロトコールは1980年以降確立されており，最近改訂されたものである。

年間平均の算出基準として，数種の方法を使用することができる。短期間測定，積分測定，および連続記録測定などである。例えば，寝室と居間のように少なくとも２室を通常の居住条件下で（短期測定を除く）測定しなければならない。一戸建住宅では，各階について少なくとも１回は測定すること。地下室は，日常的に使用されている場合のみ年間平均の算出に含めること。換気系は測定時機能しているものとし，かつ，換気ダクトは開とすること。測定は，暖房期間にのみ行う。季節的影響の補正はしなかった。

短期間測定においては，測定前および測定時において家屋の換気，電気掃除機による清掃，および気象条件に関して特別の制限が課せられる。1989年以降，地表面と接触していない，例えば換気装置の付いたアパートの上階にある住宅のような家屋に付いてのみ，瞬間的（Instantaneous)測定が認められている。

依頼に応じてまたは地方当局が実施した測定は，その測定の質がさまざまであろう。1980年代初期以降大規模測定用検出器が開発され，測定精度が向上した。一部の地方検査官はＲｎ測定能力が極めて高く，これらの人たちがほとんどの測定を行った。

1978－1980年に建築されたスウェーデン国内住宅および一戸建住宅のＲｎレベルを調べるために，ＴＬＤ付きパッシブＲｎモニタで測定した（Swedjemark & Mjones 1984）。これらの検出器は，スウェーデン国立放射線防護研究所が設計したものである。検出器の再現性は５％（１標準偏差）である。測定は，寝室１，居間１に付いて暖房期間中の２週間にわたり行われた。

既存家屋における低減効果

地方当局は高Ｒｎレベルの住宅調査時において，住宅51,991戸の年間平均（測定プロトコールのところで定義）を報告した。平均の他に，短期測定を6,085戸の住宅に付いて行い，高レベルの家屋を調査した。総計5,300 戸の家屋（58,076戸の９％）が限度 400Bq・m^{-3}以上の

Ｒｎ崩壊生成物濃度であることが判明した。さらに，149戸(0.7%）は2,000Bq・m^{-3}を超えていた。地方当局は，特に，測定のためＲｎ高濃度の一戸建住宅を特定するのに慣れており，代表的家屋を選択し調査した研究結果（SwedjemarK & Mjones 1984）と比較した。年間平均最大報告値は，28,000Bq・m^{-3}であった。

低減措置前後において1,875戸の家屋を測定した。地方当局は実施措置の種類を報告した。これらの家屋のうち1,412 戸は，ミョウバン頁岩を基材とした発泡コンクリートで建築されていた（図１）。また，463 戸は，他の材料で建築されていた。ミョウバン頁岩基材発泡コンクリート材の家屋（図１）は，他の建築材料で建築された家屋に比較してＲａ－226 濃度が高かった。これらの家屋の主なＲｎ源は建築材料であり，時に土壌および水道水がこれに加わることがあった。この建築材料は1929年から1974年にかけて製造されていたものであり，スウェーデンの住宅のおよそ10%に含まれている。他材で建設された住宅では土壌が主なＲｎ源であり，水道水がこれに加わるケースはまれであった。

低減措置以前には 1,463戸の住宅（78%）が 400Bq・m^{-3}以上のＲｎ崩壊生成物濃度を示しており，200Bq・m^{-3}未満である住宅は78戸（４%）であった。低減の目的はＲｎ崩壊生成物濃度を 100Bq・m^{-3}以下に低下させることであり，このレベルは新規建築物の限度である 200 Bq・m^{-3}を超えてはならない。

低減措置を講じる前に 400Bq・m^{-3}を超えていた家屋の88%で，この限度以下にまで低下していた。53%では，200Bq・m^{-3}以下に低下した。家屋の12%では，70Bq・m^{-3}以下にまで低下していた。この効果は，全てのコントロール措置について報告されている。同一家屋において何度もＲｎ－222 低減措置を試みたのかも知れない。こうした結果を全て，図１および図２にまとめて報告した。ミョウバン頁岩基材コンクリートでできた家のレベルを70Bq・m^{-3}以下にまで低減すること（70Bq・m^{-3}以下10%）は，他の材料で建築された家屋（70Bq・m^{-3}以下19%）に比べて困難であった。

低減方法は，主要Ｒｎ源に応じて変わるものである。スウェーデン政府は，Ｒｎレベルが余り高くなければ最初に簡単なＲｎ濃度低減方法を講じてみることを住宅所有者に対して勧告した。ひびわれおよび穴を目張りすることのような簡単な方法やさらに既存の換気措置の改善によっても，図１，図２から明らかなように良い結果が得られるであろう。しかし，家屋によっては，こうした簡単な方法ではうまくいかず，その後他の方法を用いなければならないことになるであろう。さらに作業が必要になる家屋の割合は20%であり，この値は，建築材料または

土壌が主要Ｒｎ源であるかどうかには関係ない。こうした措置が効果をおさめた土壌が主要Ｒｎ源であるかどうかには関係ない。こうした措置が効果をおさめた３地方の例を図３に示した。Ｒｎ崩壊生成物濃度を 200Bq・m^{-3}以下に低減することが困難であった家屋は，図３に示したように，低減措置前のＲｎ崩壊生成物濃度が15,720Bq・m^{-3}と最大値を示していた。床板スラブを密封し，かつ既存の自然通風換気装置を改良することによって，このレベルが 8,360Bq・m^{-3}以下にまで低下した。次の段階で３枚のサブスラブサクションをさらに追加設置し，これによってＲｎ崩壊生成物濃度が 500Bq・m^{-3}以下にまで低下した。次に，レベルが十分に低下することを期待して，ＦＴＸ換気装置を設置すること（図２）になるだろう。しかし，図３の家屋の多くで，第２の方法が成果をおさめている。

平均的低減措置がより大きな効果をもたらさなかった別の理由として，問題解決のために最初に講じた措置を家屋所有者が実行する際の間違いが挙げられる。多くの方法が1980年代初期に初めて講じられたものであり，その後研究者らが実験的建物を用いて結果を報告した。

換　気

298 戸の住宅において，窓枠のシールを取り外し，入り口ダクトをもうけ，出口ダクトを開放し，さらに換気ダクトを洗浄するという簡易な方法で換気を50％も改善することができた。Ｒｎ濃度メジアンは，440から 220Bq・m^{-3}にまで低下した。これらの措置は，特に，ミョウバン頁岩コンクリートで建築された住宅で有効であった。

1970年代に講じられた建物内部におけるエネルギー節約措置の結果，空気換気率が極めて低くなり，屋内大気圧と土壌空気圧の差が特に一戸建住宅において増大した。既存システムを改善することにより，Ｒｎ濃度を低下することができた。その程度はおそらく，エネルギー節約がそれほど厳しく行われていない諸国に比較して大きいものであったはずである。

Ｒｎ低減のための機械的換気システムが 710戸の住宅に設置された。ある場合には，濃度が低下せずあるいは増加したところさえあったが，これは，機械にによる換気または吸気と外部排気のアンバランス（熱交換器付属の場合もあればそうでない場合もある）によって，屋外および床板スラブ下の土壌中と比較して屋内大気圧が低下し，それによって屋内へのＲｎ流入が増加したという事実によるのである。低下割合は80％であった。また，低減措置実行後のメジアンは，150Bq・m^{-3}であった。

クロールスペース*

クロールスペース上に立てられた住宅は，スウェーデンではよくみられる。地表面からのＲｎ－222 は，この空間から家屋内に侵入し，特にこの空間の受動換気用ダクトが雪またはエネルギー節約のために閉鎖されている時，あるいは，家屋が高Ｒｎ濃度土壌の上に建設されている時，侵入が顕著である。クロールスペースに立てられた従来式の建築物では，極めて高い屋内Ｒｎ濃度となるであろう。一部の住宅ではこの空間に多くのダクトを設置したりまたはダクトの径を大きくしたが，この結果低減度を平均すると65％となった。一般に，これらの方法は不十分であることが判明した。14戸の住宅では機械的換気装置をクロールスペースに設置したが，この結果，低減度は85％となった。床下または縁の下の空間の換気を改善する時には地面および配管凍結のリスクがあるために注意しなければならない。家屋が堅い岩盤の上に建築されていない場合，地面凍結によってひびわれを生じたり土台の沈下が生じたりすることがある。

サブスラブサクションおよびＲｎ井戸

80戸の家屋では，地面からのＲｎ漏洩を減少させるためにサブスラブサクションが用いられていた。サブスラブサクションは，床板スラブの大気圧を低下させる。１本～２本の配管を床板スラブおよび家屋に通し，地下室側面または屋根のところまで屋外に持って行く。壁の内側または外側の近くで，ファンにより土壌空気を地下から吸入させる。このファンを屋内に設置するとき，ファンの加圧側をできるだけ堅固にすることが重要である。そうでないと，土壌空気が配管から漏れだし，屋内Ｒｎレベルを上昇させることになる。また，外に廃棄された空気の量は余り多くないようにすることも重要であり，その理由として，土台の下の地面が凍結する危険が挙げられる。平均低減度は80％であった。しかし，家屋の50％では，このレベルが１００Bq・m^{-3}以下には下がらなかった。

10戸の家屋にＲｎ井戸（図２に９戸の住宅を示した。１戸は図１に示されているが特定していない）が設置されていた。平均低減度は95％であった。1986年以降，およそ50箇所のＲｎ井戸が設置された。これらの家屋のうち31戸に付いて，設置前後において測定した。メジアンは，設置前 650Bq・m^{-3}ＥＥＲ（範囲 460－4,000），設置後65Bq・m^{-3}（範囲10－ 150）であり，

＊脚注：Crawl space，建築物内の狭い空間。配管，配線など設備関係を点検するための空間。

低減度はおよそ92%であった。Ｒｎ井戸は，地面が極めて透過性である条件において井戸から約60mの範囲内においてＲｎ濃度を減少させることができる。Ｒｎ井戸は，家屋から10－60mの距離において深さ４ｍまで深く掘られている。強力なファンを用いて，Ｒｎを井戸から吸い上げることができる。

床板スラブの補強

床板スラブの補強は極めて容易であり，床板スラブの上に直接建築されている65戸の住宅で行われてきた。水道管および電気系統配管周囲のひび割れや穴を補強した。Ｒｎ低減度は70%であり，低減メジアンは 600～100Bq ・m^{-3}であった。65戸のうち29戸で，床を補強した。この家屋の一部では，補強後も 400Bq・m^{-3}を超えるＲｎ崩壊生成物が観察されており，これらの家屋では，サブスラブサクションまたはＲｎ井戸を追加しなければならなかった。

その他の措置

土台下の土壌空気の減圧，床板スラブと床との間の換気，屋内空気による床下または縁の下の空間の換気など他のＲｎ－222 低減措置を講じた家屋は少なかった。良好な成果をおさめた家屋も一部に見られた。床板スラブおよび地下の食料貯蔵室壁の換気および補強を併用した場合に良好な結果が得られることが多かった。

新規建築物

建築許可を発行する際には，建築計画を担当する地方当局が建築許可の前にＲｎ崩壊生成物濃度測定を要請することができる。また，こうした要請がなくても，建築者または地方の保健当局が測定を実行することが多い。土台補強のためにさまざまな措置が講じられるが，配管周囲または床と地下室壁の間の補強に付いては忘れることもあるだろう。

新規建築住宅におけるＲｎ崩壊生成物濃度を限度70Bq・m^{-3}以下に保つという目的を達成するために，全国物理計画建築委員会（National Board of Physical Planning and Building）は，地方当局が土地を分類し，屋内高レベル確率を調べることを勧告した（ＳＮＢＰＰＢ 1982)。分類原則に付いては，他所に譲る（Akerblom 1987;Swedjemark 1986)。本原則を簡単に要約し表１に示した。土壌空気中Ｒｎ濃度，土壌透過性などを測定した後，土地を分類する。土地の分類に関するハンドブックが発行されている（Akerblomら1988）。土地条件に加えて，

家の建築法も屋内Ｒｎ濃度に重要な意味を持っている。

建築設計は，土地の分類およびこの土地からの関連屋内Ｒｎリスクに基づき，決定される。全国物理計画建築委員会は，Ｒｎ安全性に富みかつＲｎ防護性の建設方法を公表しているＳＮＢＰＰＢ 1982)。詳細な低減手段については，あるハンドブックに記載されている（Clavens jo &Kumlin 1984)。新規建築物におけるラドン安全性に富みかつラドン防護性の建築は，的確な建築方法を選択することによって達成することができる。例えば，土台を極めて堅固とし，かつ永久性のものとして建築した住宅では，一部でコンクリートスラブ内部またはその下に配管を施しており，必要に応じてファン付きまたはファン無しの煙突に接続することができる。換気系は高品質のものとし，屋内大気圧と土壌中空気圧に大きな差を生じないようにしなければならない。屋内の圧力が異常に高くなることにより，壁内部の湿分が高くなり，その結果凍結温度で壁が破壊される危険があるので勧められない。

Ｒｎ濃度高値または正常値の地面に1981年から1985年に建築された1,158 戸の住宅を地方当局が検査した。地方当局によっては，この後，新規建築許可の前にＲｎ崩壊生成物濃度を検査するように勧告を出したところもある。全く検査を行わない当局もあり，また，自局管轄内新規建築住宅に付いて主要点のみを測定したところもある。したがって，このデータは，本期間内に建築された住宅20万戸全てを代表するものではない。報告値のほとんどは，Ｒｎ高濃度土壌に建設された住宅由来のものである。結果を図４に示した。

土壌Ｒｎ防護措置を講じないまま建設された一戸建家屋（図４）のうち，３％が400Bq・m^{-3}を超えるＲｎ崩壊生成物濃度を示し，18％にものぼる家屋が70Bq・m^{-3}以上であった。Ｒｎ安全性または防護性であるように建築された一戸建住宅（全体的には，Ｒｎ高濃度土壌に立てられている）の上記に対応する数値は，それぞれ，1.4％および 6.4％であった。以上より，Ｒｎ安全性または防護性である建築物の平均Ｒｎレベルは低く，かつ高レベルの住宅の割合も低かった。但し，このサンプルでは，Ｒｎ高レベル土壌に建設された住宅の割合が高かった。

この結果を，1978－1980年に建設された一戸建住宅で行った調査と比較することができる（Swedjemark & Mjones 1984）。本調査の目的は，1980年に70Bq・m^{-3}という限度が設置される以前にミョウバン頁岩コンクリート材を使用せずに建築された家屋において，Ｒｎ崩壊生成物濃度がこの限度以下であるかどうかを調べることにあった。この期間においては，ミョウバン頁岩が使用されていなかったはずである。Ｒｎ高濃度土壌という問題が指摘されていない（Ｒｎ低濃度または正常値）管轄内から無作為に抽出した92戸の住宅に付いて測定した。Ｒｎ

安全性かつＲｎ防護性に建築された一戸建住宅に付いて地方当局が行った測定から，平均レベルが無作為抽出よりもはるかに低いことが示された。この結果から，地面からのＲｎ侵入防護を補強する住宅建設法がＲｎ高濃度の地面および正常値の地面の双方に対して良好な効果を及ぼすことがわかった。新規建設一戸建住宅のうち９戸が 200Bq・m^{-3}以上のレベルを示したからといって，この結論が変わるものではない。これらの住宅は1980年代にかなりＲｎリスクが高い土地（Ｒｎ高濃度）に建てられたもので，この時点で，住宅所有者はＲｎ安全設計について十分な知識を持っていなかった。

1981年１月以降建設された土壌Ｒｎの住宅内侵入低減措置を講じていない一戸建住宅は，平均として，上記に述べた無作為抽出一戸建住宅のＲｎ崩壊生成物濃度と同レベルの濃度を示した。しかし，ひとつ違う点が見いだされた。地方当局が測定した一戸建住宅のおよそ８％でレベルが 200Bq・m^{-3}を超えており，これは，無作為抽出サンプルでこうした住宅が全くないことと比べられる。調査した住宅の大部分はＲｎ高濃度土壌に建設されており，一方，無作為サンプル群では，土壌からのＲｎ問題が明らかとなっている土地が除外されていた。

複合家族住宅の結果は，小数の例外はあるにしても低いものであった（図４）。住宅の27％は70Bq・m^{-3}以上のＲｎ崩壊生成物濃度を示しており，これらの住宅が地面と直接接触していた可能性がある。Ｒｎ安全性またはＲｎ防護性に作られた住宅では，３％のみが70Bq・m^{-3}以上のレベルを示していた。

Ｒｎ崩壊生成物濃度が70Bq・m^{-3}限度以上であった新規建設住宅中13戸では，レベルを限度以下にまで低下させる低減措置の効果が地方当局に報告された。２戸を除く全ての住宅において，70Bq・m^{-3}以下に低下した。このことは，換気の改善および土台の補強によって達成された。

Ｒｎ－222 濃度が70Bq・m^{-3}限度以下まで低減しなかった２戸の住宅のうち１軒では，サブスラブサクションによって6,000Bq ・m^{-3}から 300Bq・m^{-3}まで濃度が低下した。もう１軒では，自然通風換気装置を活発に作動させることによって6,000Bq ・m^{-3}から 110Bq・m^{-3}まで濃度が低下した。

結　論

地方当局の経験から，ほとんどの既存住宅においてＲｎ崩壊生成物濃度を70Bq・m^{-3}以下にまで低下できること，ただし，場合によっては，違った低減措置を用いて数回試みなければな

らないことが示された。低減責任を有する住宅所有者は，低減が成功するために的確な情報を必要としている。初期において厳しいＲｎプログラムを講じていた地方では，低減が最も有効に行われた。方法が有効であるかどうかは，主要Ｒｎ源によって異なる。地面が主なＲｎ源である時には，サブスラブサクションおよびＲｎ井戸が最も有効な方法であることが判明した。しかし，Ｒｎ井戸では，透過性の土壌を必要とする。使用した全ての方法が，的確に選択されかつ実行された時，有効であった。うまくいかなかったケースは，大部分が特に1980年代初期における知識の不足が原因となっていた。

スウェーデン国内住宅の空気交換率は，建築法によれば，限度 $0.5h^{-1}$よりも一般に低かった。したがって，基本的勧告として，住宅の換気を改善すること，これは，Ｒｎ濃度上昇の有無に関わらず必要に応じて行うことが挙げられる。

Ｒｎ安全またはＲｎ防護性として建築されている新規建築物のうち，調査した住宅の95％が，新規建設住宅の限度70Bq・m^{-3}以下のレベルであった。

研究者らは実験的に低減措置を施した住宅を用い，Ｒｎ崩壊生成物濃度が今後５年の追跡期間内に有意に増加することはないことを示した(Ericsonら1988)。しかし，Ｒｎ濃度，ならびに既存の住宅およびＲｎに対し安全あるいはＲｎに対し防護された建築物における低減措置によって生ずる可能性のある問題，の双方の観点から，長期間にわたる影響を追跡調査することが重要である。

参考文献

Åkerblom, G. Investigations and mapping of radon risk areas. In: Geology for environmental planning, proceedings of the International Symposium on Geoological Mapping in the Service of Environmental Planning, Trondheim 1986; 1987. Available from: Norwegian Geological Survey, P.O. 3006, Trondheim, Norway, 96–106.

Åkerblom, G.; Pettersson, B.; Rosén, B. Radon in dwellings–Radon from the soil. Handbook for investigation and report of soil radon conditions. National Council for Building Research, R85:1988; 1988 (in Swedish). Available from: Svensk Byggtjänst, Box 7853, S-103 99 Stockholm.

Clavensjö, B.; Kumlin, H. Radon in dwellings. Building technique measures in new constructions and reconstructions. Swedish Council for Building Research R90; 1984 (in Swedish). Available from: Svensk Byggtjänst, Box 7853, S-103 99 Stockholm.

Ericson, S. O.; Nilsson, I.; Schmied, H. Radon in dwellings: Approvement and evaluation of building- and installation technique measures. National Council for Building Research, R88; 1988 (in Swedish). Available from: Svensk Byggtjänst, Box 7853, S-103 99 Stockholm.

Swedish National Board of Health and Welfare. The ordinance issued by the Board with advice and instructions concerning measures to be taken on account of radon in dwellings. SOSFS(M) 1980:71; 1980 (in Swedish).

Swedish National Board of Health and Welfare. The municipalities and the radon question. Stockholm, 1988. Report Socialstyrelsen redovisar; 1988:3 (in Swedish, a summary in English). Available from Allmänna förlaget, Kundtjänst, S-106 47 Stockholm.

Swedish National Board of Physical Planning and Building. Swedish Building Code 1980. Chapter 21 and comments to the Building Code, Stockholm; 1980 (in Swedish).

Swedish National Board of Physical Planning and Building. Radon: Planning, building licenses and protection measures. Report 59. Stockholm; 1982 (in Swedish). Available from: Svensk Byggtjänst, Box 7853, S-103 99 Stockholm.

Swedish National Institute of Radiation Protection, National Board of Health and Welfare, National Board of Physical Planning and Building. Radon in Dwellings. Interim report SSI 87-17; 1987 (in Swedish). Available from: National Institute of Radiation Protection, Box 60204, S-104 01 Stockholm.

Swedjemark, G. A. Swedish limitation schemes to decrease Rn daughters in indoor air. Health Phys. 51:569–578; 1986.

Swedjemark, G. A. Search for buildings with high radon levels in Sweden: Measurements carried out by local authorities in both older and newly built homes. Radiat. Prot. Dosim. 24: 397–400; 1988.

Swedjemark, G. A.; Mjönes, L. Exposure of the Swedish population to radon daughters. In: Proceedings of the 3rd International Conference on Indoor Air Quality and Climate, Stockholm 1984. Indoor Air 2:39. Swedish Council for Building Research. Available from: Svensk Byggtjänst, Box 7853, S-103 99 Stockholm.

Swedjemark, G. A.; Wahren, H.; Mäkitalo, A.; Tell, W. Experience from indoor radon-daughter limitation schemes in Sweden. In: Proceedings of the 4th International Conference on Indoor Air Quality and Climate; 1987:425–429. Available from: Institute for Water, Soil and Air Hygiene, Corrensplatz 1, D-1000 Berlin 33.

Swedjemark, G. A.; Wahren, H.; Mäkitalo, A.; Tell, W. Experience from indoor radio-daughter limitation schemes in Sweden. Environ. Int. 15:253–260; 1989.

United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Ionizing radiation: Sources and biological effects. New York: United Nations; Publication No. E.82.IX.8; 1982.

表１　スウェーデン全国物理計画建築委員会発行Ｒｎガスリスクおよび防護措置種類による土壌の分類に関する勧告（ＳＮＢＰＰＢ　1982）

Risk classification	Percentage of Swedish surface	Ground types	Building technical requirements
High risk areas	10%	Uranium-rich granites, pegmatites, and alum shale. Highly permeable soils, for example gravel and coarse sand. Radon-222 concentration in soil gas >50,000 Bq m^{-3}.	Radon-222 safe construction, such as thicker, reinforced concrete foundation or ventilation below the foundation.
Normal risk areas	70%	Rocks and soil with low or normal U content and average permeability. Radon-222 concentration in the soil gas 10,000–50.000 Bq m^{-3}.	Radon-222 protective construction. No open holes in the foundation.
Low risk areas	20%	Rocks with very low U content, for example, limestone, sandstone and basic igneous and volcanic rocks. Soils with very low permeability, for example, clay and silt or soils where the ^{222}Rn concentration in the soil gas is <10,000 Bq m^{-3}.	Traditional

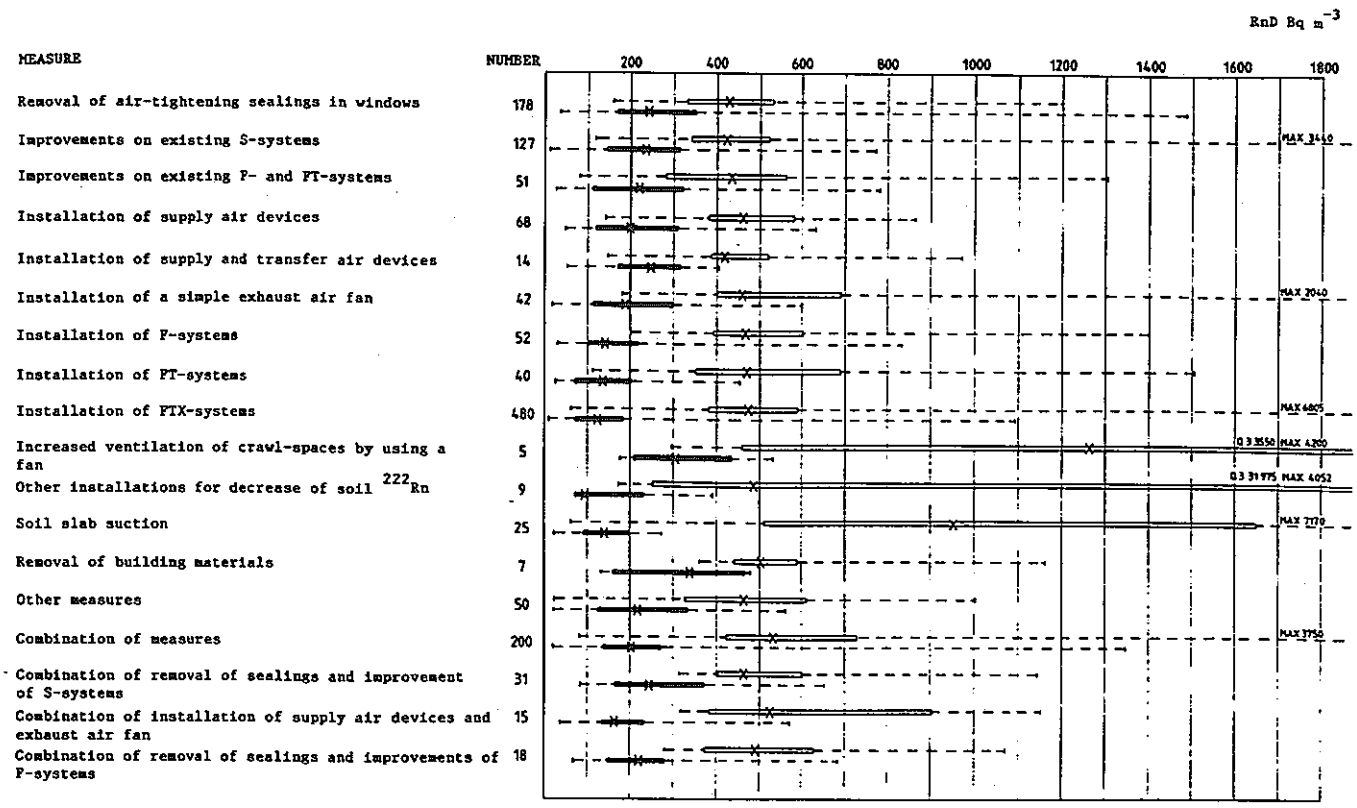


図１　ミョウバン頁岩基材コンクリート建築の住宅内Ｒｎ－222 低減結果（ＳＮＢＨＷ　1988）。記号については，図２を参照

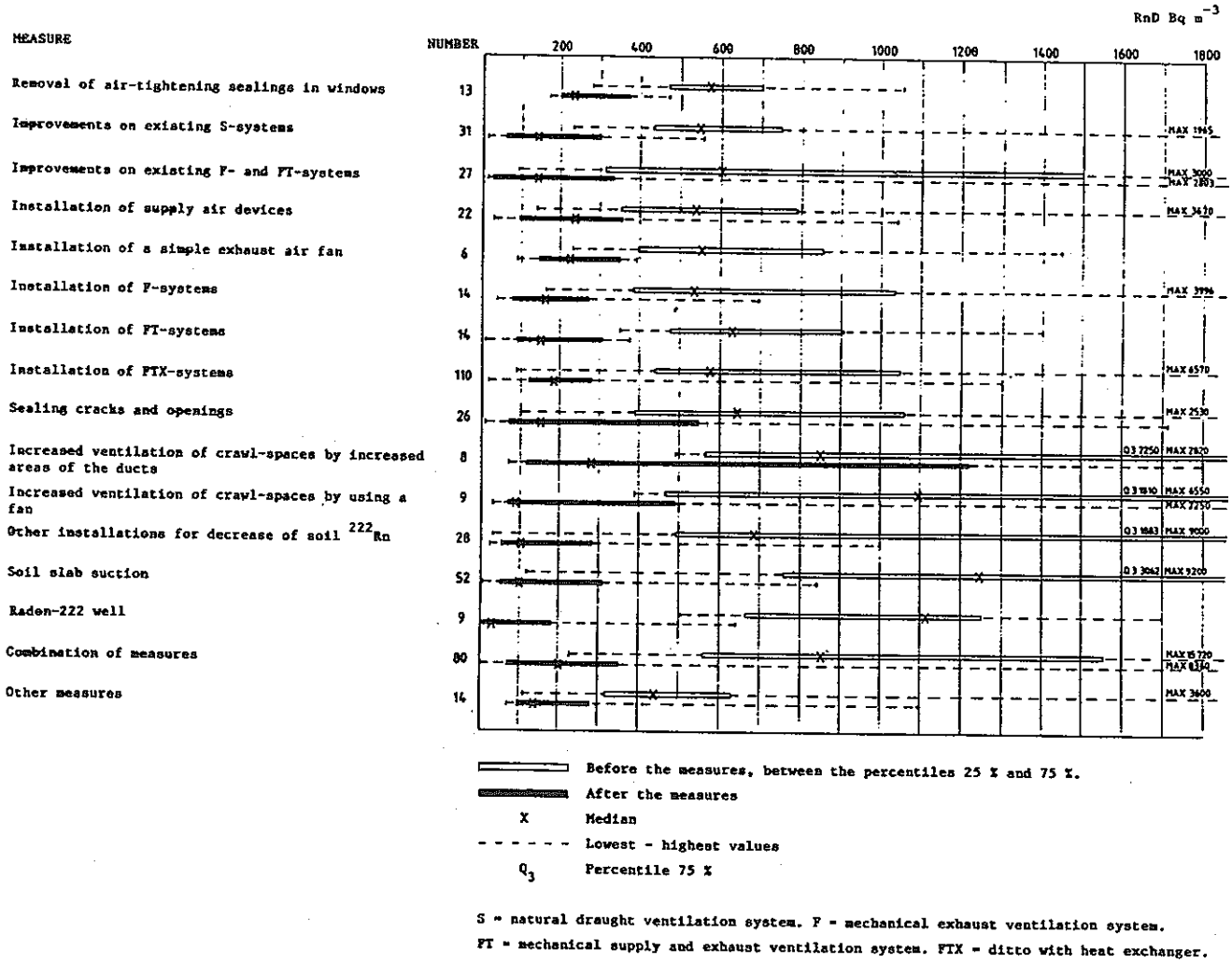


図2　木材，レンガなどで建築した住宅内におけるＲｎ－222 低減結果（ＳＮＢＨＷ　1988）。

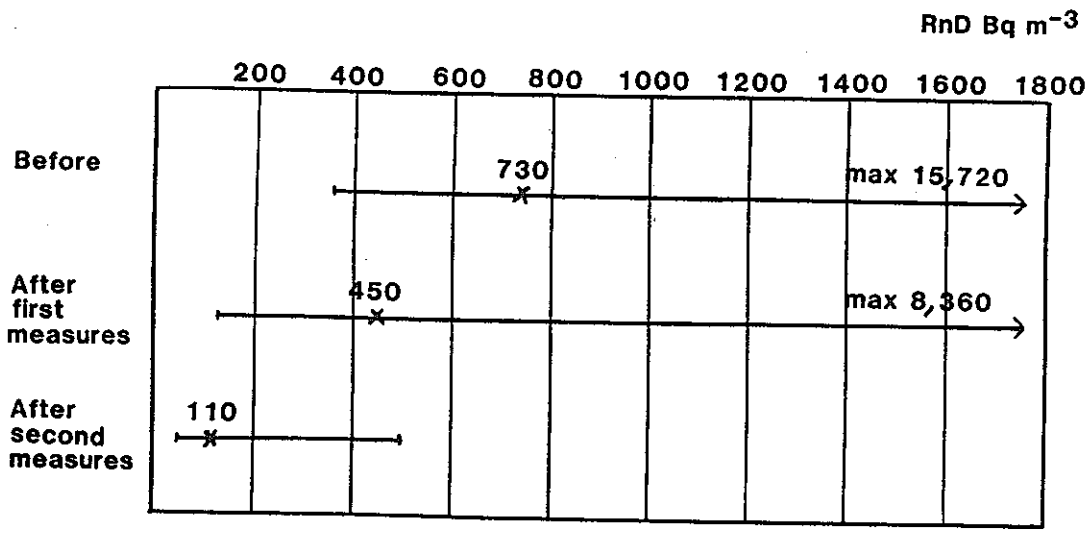
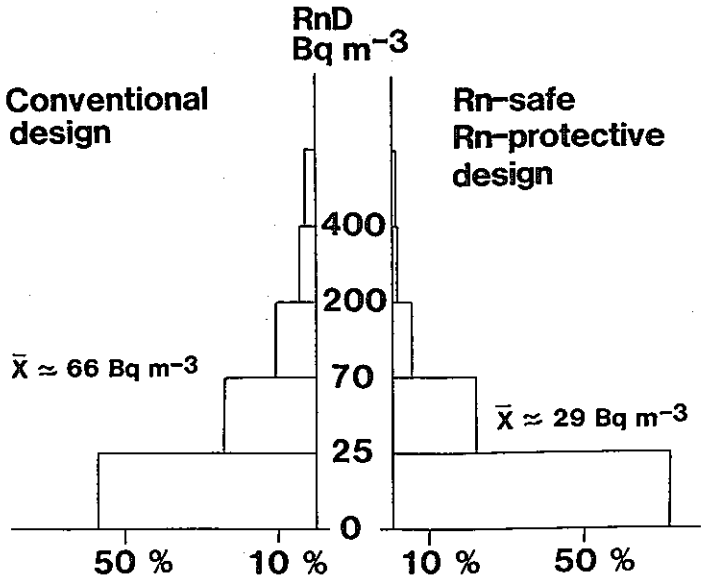
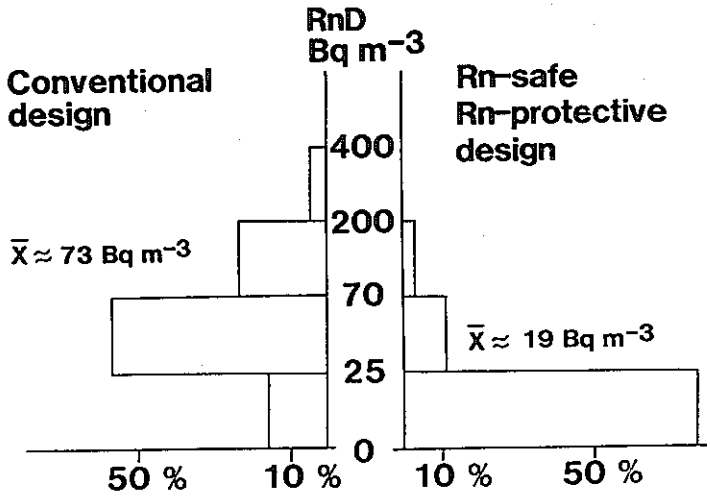


図3　簡易措置による第１回作業，より広範囲の低減措置による第２回作業の効果。データは，３つの地方のデータ（27戸）を要約したものである。Ｒｎ－222 濃度のメジアン，最小値，および最大値を報告。



核家族用住宅．新規建設核家族用住宅926戸



複合家族用住宅．新規建設複合家族用住宅232戸

図４　新規建設住宅限度が有効となった1981年１月以降建設された住宅における
Ｒｎ－222 崩壊生成物濃度