

本資料は 年 月 日付で登録区分、  
変更する。 2001. 10. 4 [技術情報室]

生物圏での核種移行等環境リスク  
評価に関する研究 (Ⅱ)  
(受託研究)

技 術 資 料		
開示区分	レポ ー ト No.	受 領 日
P	J1600 92-007	1996. 12.2
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1992年3月

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)

たけに配布するものとして、この資料を複製、転載、引用等には事業団の承認が必要です。

## 生物圏での核種移行等環境リスク評価に関する研究 (II)

大橋弘士\* 佐藤正知\*

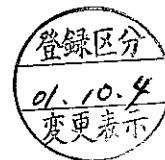
### 要 旨

放射性廃棄物処分の安全評価に関し、生物圏での核種移行に影響する因子について、従来の核種移行モデルに加えて今後検討する必要があるものと考えられる核種の岩石への吸着に対する人工および天然の有機酸の影響について検討した。方法としては、 $Sr-85$  をトレーサーとして用いてバッチ法によりその分配係数の測定を行った。

1) 浅地層中に放射性廃棄物を処分した後、固化体から溶出した核種が、環境を汚染している恐れのある人工の有機物質たとえばEDTA等の除洗剤と相互作用した場合、それが核種の移行挙動に与える影響について検討した。はじめに花崗岩粉末に対する $Sr$ の分配係数の時間依存、 $Sr$ 濃度依存、pH依存など、核種の吸着に関する基礎的特性を測定した。続いて、EDTAがこれらの吸着特性に与える影響を調べるため、 $Sr$ の分配係数のEDTA濃度依存の実験を行った。

2) 地表に近い地層中には動植物の活動の結果生成した高分子有機酸であるフミン酸やフルボ酸が存在する。これらの有機酸はアルカリ土類金属イオンや重金属イオンと錯体を形成する。有機酸は著しく分子量が大きく、また、それがもっている多価イオンを介して鉱物や粘土鉱物に吸着される性質があるため、核種移行挙動は有機酸の挙動に影響される可能性がある。特にフミン酸の影響について検討するため、花崗岩粉末、フミン酸、 $Sr$ イオンからなる系で、花崗岩に対する $Sr$ の分配係数の時間依存、pH依存、 $Sr$ 濃度依存、フミン酸濃度依存について測定を行った。

さらに、放射性廃棄物の地層処分後の安全性を確保するために米国環境保護庁 (EPA) が行った集団線量の評価のための環境影響評価モデルが生物圏での核種移行等環境リスク評価に極めて参考になる文献であることに鑑み、これを抄訳して本報告書に加えた。



NOT FOR PUBLICATION  
PNC-~~F~~J 1600 92-007

Environmental risk assessment for migration of nuclides in biosphere(II)

Hiroshi Ohashi and Seichi Sato

abstract

There are two kinds of chelating substances which may affect migration behavior of nuclides after land disposal and geologic disposal; one is artificial chelating reagents such as EDTA which may contaminate environment and the other is natural chelating substances of organic acid such as fulvic acid and humic acid. In the safety assessment of the radioactive waste disposal, it is necessary that the effects of these two kinds of substances on migration behavior of nuclide are intensively investigated.

In an attempt to study the effects of EDTA on the migration behavior of nuclides, distribution coefficients of Sr were measured as a function of EDTA concentration by a batch method, using Sr-85 as a radiotracer.

Alkali earth ions, transition metal ions and other multivalent heavy metal ions form complex ions with these natural organic acids. The size of these organic acids is very large; these organic acids are sorbed on the surface of rock minerals and clay minerals, where the multivalent ions spans a bridge between organic acids and minerals. The distribution coefficients of Sr in the system of rock particles, humic acid and Sr ions were measured as a function of time, pH, Sr concentration and humic acid concentration, by the batch method.

U.S. Environmental Protection Agency(EPA) published an environmental impact assessment model in 1985. In view of its usefulness to estimate collective dose, the report was partly translated and filed in the last chapter in this report.

---

Work performed by Hokkaido University under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineering,  
Hokkaido University, Sapporo, 060 JAPAN

## 目 次

### 要 旨

第1章	花崗岩に対するストロンチウムの収着に及ぼす EDTAの影響	1
第2章	花崗岩に対するストロンチウムの収着に及ぼす フミン酸の影響	20
第3章	放射性廃棄物地層処分に対するEPAの環境評 価モデル	40
	ま と め	113

# 第1章 花崗岩に対するSrの収着に 及ぼすEDTAの影響

## 1.1 緒言

放射性廃棄物を適切に処分し処分後の安全性を確保できることを示すことは、わが国においてエネルギーの安定供給の一部を担う原子力発電を行っていく上で重要な課題である。

放射性廃棄物は高レベルおよび低レベル共に工学バリアと天然バリアの両者によって隔離し、その中に含まれる核種の保持を確保することとしている<sup>1)</sup>。したがって、放射性廃棄物処分の安全性評価を行う上で、工学バリア中での核種挙動を検討するとともに、漏出後における放射性核種の環境における移行挙動の解明が重要である。各種のシナリオによると、漏出した放射性核種は地下水に溶解し、移行、拡散していく。この移動速度は、核種が岩石や土壌に収着されることによって遅延されると考えられている。収着を支配する因子として、岩石や土壌など収着媒体の種類や収着媒体の表面積など、あるいは温度等の物理的条件および、核種の種類や濃度、pH、酸化還元電位、共存イオンの影響などの化学的因子が考えられている。特に、生物圏においては、フミン酸、フルボ酸などの天然有機物あるいは除洗剤として一般に使用されているEDTAの影響を無視する訳にはいかないと思われる。

本研究では、廃棄物処分の安全性評価の上で重要と考えられる放射性核種、Sr-90（半減期：29.12年）の移行等のリスクを評価するために、モデル物質として花崗岩を選び、これに対するSr-85の分配係数をバッチ法により測定し、Srの収着に対するpHの影響ならびに除洗剤として一般に使用されているEDTAおよびフミン酸の影響を調べた。本章においては、まず、EDTAの影響について述べる。

## 1.2 実験

### 1.2.1 花崗岩試料

本研究では、わが国に広く存在する典型的な岩石の一つである花崗岩（茨城県稲田産）を固相として選んだ。稲田産花崗岩の化学組成並びに鉱物組成及び粒度範囲を表1.1と表1.2に示す<sup>2)</sup>。

この花崗岩をダイヤモンドカッターで厚さ5mm程度に切断し、鉄ルツボを用いて粉碎し、これを30～60メッシュのふるいで500～250 $\mu$ mの粒径に揃えた。この試料を蒸留水で洗浄後、オープンで50 $^{\circ}$ C、24時間乾燥した。なお、BET法により表面積を測定し、2.40m<sup>2</sup>/gを得た。

## 1. 2. 2 Sr 溶液の調製

### (1) Sr-85 溶液と担体 Sr 溶液の調製

本研究では、トレーサーとして市販の Sr-85 (NEN 製品リスト、コード No. NEZ-082-10: 18.5 MBq) を用いた。これは放射性核種純度 99% 以上の 0.5 mol/l HCl 溶液である。Sr-85 の比放射能は  $8.76 \times 10^{14}$  Bq/g であるから、18.5 MBq の Sr-85 の質量は  $2.11 \times 10^{-8}$  g に相当する。

Sr-85 母液の調製は次の手順に従って行った。サンプルびんに 2.0 ml の蒸留水を注入して攪拌した。これからミニバイアルびんに 0.10 ml 採取し、蒸留水を加えて希釈し、1.0 ml とした。したがって、母液中の Sr-85 の濃度は、

$$\begin{aligned} & (2.11 \times 10^{-8} \text{ g} / 2 \text{ ml}) \times (0.10 \text{ ml} / 1 \text{ ml}) \\ & = 1.05 \times 10^{-9} \text{ g} / \text{ml} \\ & = 1.05 \times 10^{-3} \text{ ppm} \end{aligned}$$

となる。また、ミニバイアルびん内の Sr-85 の比放射能は、

$$\begin{aligned} & (18.5 \text{ MBq} / 2 \text{ ml}) \times (0.1 \text{ ml} / 1 \text{ ml}) \\ & = 0.925 \text{ MBq} / \text{ml} \end{aligned}$$

となる。この溶液を母液として以後の実験に用いた。

なお、本研究ではセル壁面等への Sr の収着損失を防ぐために、非放射性的 SrCl<sub>2</sub> 溶液を用いて同位体希釈した。

同位体希釈用 SrCl<sub>2</sub> 溶液の調製では、SrCl<sub>2</sub> · 6H<sub>2</sub>O (分子量: 266.6) を用いた。SrCl<sub>2</sub> · 6H<sub>2</sub>O の乾燥は、61.5°C での SrCl<sub>2</sub> · 2H<sub>2</sub>O への相転移を避けるために、50°C で 24 時間行った。

濃度  $10^4$  ppm の Sr 溶液は、1.521 g の SrCl<sub>2</sub> · 6H<sub>2</sub>O を 50 ml の蒸留水で希釈して調製した。

濃度  $10^2$  ppm の Sr 溶液は、0.304 g の SrCl<sub>2</sub> · 6H<sub>2</sub>O を 1.0 l の蒸留水で希釈して調製した。

### (2) 時間依存実験用溶液の調製

Sr 担体濃度は 0.45 ppm として、Kd の固-液接触時間による変化を調べる実験を行った。10 ppm の SrCl<sub>2</sub> 溶液から 2.0 ml、Sr-85 母液から 100 μl をメスフラスコにとり、蒸留水で 100 ml に希釈した。セルにこの溶液を 10 ml、蒸留水 12 ml を取った。このときの母液からの Sr 濃度は、セル内で  $3.76 \times 10^{-10}$  ppm となるので無視できる。また、この時のセル内の放射能は  $9.25 \times 10^3$  Bq であった。

### (3) Sr 濃度依存実験用溶液の調製

Sr 担体濃度を  $10^{-1}$  ~  $10^4$  ppm まで変化させ、Kd に対する Sr 濃度の依存性を調べる実験を行った。濃度  $10^4$  ppm の Sr 溶液の調製は、セルに (1) で調製した濃度  $10^4$  ppm の Sr 溶液を 22 ml と母液  $10^{-2}$  ml を混合して行った。濃度  $10^3$  ppm

の Sr 溶液の調製は、セルに濃度  $10^4$  ppm の Sr 溶液を 2.2 ml とり、19.8 ml の蒸留水で希釈し、これに母液  $10^{-2}$  ml を加えて調製した。また、この時のセル内の放射能は  $9.25 \times 10^3$  Bq となった。調製後、各セルから初期濃度  $C_0$  測定用に 2.0 ml ずつとりだした。以下、同様にして、Sr 濃度  $10^{-1}$  ppm までの溶液を調製した。

#### (4) pH 依存実験用溶液の調製

平衡後 pH が 1.40 ~ 12.5 になるように、 $1 \text{ mol/l}$  の  $\text{HClO}_4$  ならびに  $0.1 \text{ mol/l}$  の  $\text{NaOH}$  を用いて初期 pH を調節した。このときの Sr 担体濃度は 0.45 ppm とした。トレーサーおよび担体濃度調整用として 200 ml メスフラスコに濃度  $10^2$  ppm の Sr 溶液から 2.0 ml、母液から 100  $\mu\text{l}$  を取り蒸留水で希釈した。この溶液を A 溶液とした。このときの Sr 濃度は、1 ppm である。

酸性側は、 $\text{HClO}_4$  を用いて調製した。平衡後 pH 1.40 溶液は、セルに  $1 \text{ mol/l}$  の  $\text{HClO}_4$  溶液 10 ml、A 溶液 10 ml、蒸留水 2.0 ml を取って調製した。アルカリ側は、 $0.1 \text{ mol/l}$   $\text{NaOH}$  を用いて調製した。平衡後 pH 12.50 溶液の調製は、セルに  $0.1 \text{ mol/l}$  の  $\text{NaOH}$  溶液 10 ml、A 溶液 10 ml、蒸留水 2.0 ml を取って調製した。その他の溶液も同様にして調製した。

調製後、各セルから初期濃度  $C_0$  測定用に 2.0 ml の溶液を分離した。このときの各セルの放射能は、 $4.63 \times 10^3$  Bq である。また、このときの各セル内の Sr 濃度は 0.45 ppm であった。なお、初期 pH は使用する蒸留水の pH によって変化すること、平衡後 pH は固液比によって変化することを考慮した。

#### (5) EDTA 濃度依存実験用溶液の調製

Sr 濃度 0.45 ppm 溶液において EDTA 濃度を  $10^{-3} \sim 10^{-7} \text{ mol/l}$  の範囲で変化させ、平衡後 pH を一定とするために  $\text{HClO}_4$  ならびに  $\text{NaOH}$  を用いて、平衡後 pH が約 5.6 になるようにした。トレーサーおよび担体濃度調整用に、50 ml メスフラスコに濃度 100 ppm の Sr 溶液から 2.5 ml、バイアルびんから 0.15 ml 取り蒸留水で希釈した。この溶液を A 溶液としたとき、Sr 濃度は 5 ppm であった。次に、EDTA 濃度調整用に B 溶液、B' 溶液を調製した。B 溶液の調製は、EDTA (分子量: 292.25) 0.0643 g を 100 ml メスフラスコに取り、蒸留水で希釈した。このときの EDTA 濃度は、 $2.2 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$  であった。B' 溶液の調製は、B 溶液を 0.20 ml とり、蒸留水 19.8 ml で希釈した。このときの EDTA 濃度は、 $2.2 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$  であった。EDTA 濃度  $10^{-3} \text{ mol/l}$  溶液の調製は、セルに A 溶液 2.0 ml、B 溶液 10 ml、蒸留水 10 ml を取り調製した。この時の EDTA 濃度は、 $2.2 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$  であった。以下、同様に EDTA 濃度  $10^{-7} \text{ mol/l}$  溶液まで調製した。

なお、pH 調整のため、 $10^{-3} \text{ mol/l}$  溶液は  $0.1 \text{ mol/l}$   $\text{NaOH}$  を 0.12 ml 加え、 $10^{-4}$  から  $10^{-7} \text{ mol/l}$  溶液には  $1 \text{ mol/l}$   $\text{HClO}_4$  を 0.01 ml 加え



た。調製後、各セルから初期濃度 $C_0$ 測定用に2.0 ml分離した。この時の各セルの放射能は $2.775 \times 10^3$  Bqであった。また $S_r$ 濃度は0.45 ppmであった。

### 1. 2. 3 バッチ法による分配係数 $K_d$ の測定

分配係数 $K_d$ の測定法を大別すると、図1. 1のように区分される。

本研究では、吸着に影響を与える重要因子であるpH、 $S_r$ 濃度、共存物質であるEDTAの効果を比較的容易に測定することができるバッチ法を用いて $K_d$ を求めた。

バッチ法は一定量の吸着物質を含む溶液と土壌とを混合し、固液接触を十分に保った後に固体と液体とに分離し、接触前後の液相中の吸着物質濃度変化から固相の吸着量を決定する方法である。このとき $K_d$ は以下の式によって求められる。

$$K_d = C_{\text{solid}} / C_{\text{solution}} = (C_0 - C) \cdot V / (C \cdot m) \quad (1.1)$$

ここで、 $C_0$ は吸着物質の初期濃度、 $C$ は吸着物質の平衡後の濃度、 $V$ は溶液体積 (ml)、 $m$ は岩石資料添加量 (g) である。

バッチ試験を行うにあたっての検討事項としてとして、1) 吸着物質濃度、2) 共存物質とその濃度、3) 固液比、4) 固液接触方法、5) 固液接触時間、6) 固液分離方法等があげられる。本研究においては、これらの事項について、以下のように検討した。

#### (1) 吸着物質濃度

本研究では、吸着物質として $S_r$ を用い、また、トレーサーとして $S_r-85$ を用いている。

$K_d$ は(1. 1)式より、平衡濃度 $C$ と初期濃度 $C_0$ との比によって、図1. 2の様になる。 $C/C_0 < 0.1$ および $C/C_0 > 0.9$ の領域では $K_d$ 値が急激に変化する。精度のよい $K_d$ 値を求めるためには、 $0.1 < C/C_0 < 0.9$ になるような固液比あるいは初期濃度 $C_0$ を設定しなければならない。本実験では予備実験として担体濃度依存実験を行い、 $S_r$ の担体初期濃度 $C_0$ を0.45 ppmに設定した。

#### (2) 共存物質とその濃度

本研究では共存物質として一般に除染剤として用いられるEDTAを用いた。EDTAは金属イオンと1:1の割合で錯形成を行う。 $S_r$ の初期濃度は0.45 ppmであるから、これと1:1で対応するEDTA濃度 $5.18 \times 10^{-6}$  mol/lをはさむ $10^{-3}$  mol/l $\sim 10^{-7}$  mol/lの範囲でEDTA濃度を変化させた。

#### (3) 固液比

一般に固液比は固液重量比で0.001 $\sim$ 0.1程度が採用されている。本実験では固相1.0 g、溶液量20 mlであり、溶液密度を1.0 g/mlと仮定すると、 $m/V = 1.0/20 = 0.05$ となる。

#### (4) 固液接触方法

固液接触方法には、マグネチックスターラーによる方法と振とう器(レシプロ式、巡回

式がある)による方法がある。どちらの方法に対しても岩石粒子の破壊、摩耗による有効吸着表面積の増加を防止し、さらにマグネチックスターラーによる方法では、回転子の摩耗も防止する必要がある。本実験ではレシプロ式振とう器を用いて固液接触を行った。

#### (5) 固液接触時間

固相-液相間の吸着反応が平衡に達するまでの接触時間を決定する必要がある。岩石による吸着反応の主要機構であるイオン交換反応は、岩石粒子内での拡散や内部吸着速度を考慮する以外は通常瞬時に平衡に達する。本研究では、予備実験として時間依存実験を行い、短い時間で平衡に達することを確認したが、十分な吸着平衡を得るために3日間の固液接触時間をとった。

#### (6) 固液分離方法

固液分離方法には、遠心分離、メンブランフィルター濾過、限外濾過、膜分離などがある。吸着物質がコロイドを形成する場合には、分離方法はKd値に影響する。すなわちコロイドとして存在する成分が液相成分と見なすことになるか固相成分と見なすことになるかにより相違を生じる。濾紙の孔径が小さくなるほどKdは大きくなるので、目的に応じて固液分離法を使い分ける必要がある。本研究では、静置したセルの上澄み液をマイクロピペットを用いて分離した。また、0.2  $\mu\text{m}$ のシリンジフィルターを用いて分離したが両者に相違はみられなかった<sup>3)</sup>。

### 1. 2. 4 収着実験

1. 2. 2節において調整したSr溶液22mlを図1. 3のセルに入れ、初期濃度測定用に2.0ml分離した後、花崗岩試料1.0gを入れ、25°Cで3.0日間振とうした。なお、時間依存実験においては、振とう時間を1~14日間とした。平衡後、上澄み液2.0mlを取り、NaIシンチレーションカウンターを用いて初期濃度 $C_0$ 、平衡後濃度 $C$ を求め、(1. 1)式によりKdを求めた。Sr溶液量 $V$ は20ml、花崗岩の重量 $m$ は1.0gとした。

なお、この実験のフローチャートは図1. 4に示す通りである。

### 1. 3 結果

花崗岩に対するSrの収着性を示すKdに対する各種因子の影響を調べた実験の結果を以下に示す。

#### 1. 3. 1 時間依存性

花崗岩に対するSrの分配係数Kdに対する接触時間の影響を調べた結果を図1. 5に示す。分配係数Kdは接触時間が1日から15日間にわたり15~20g/mlでほぼ一定であった。このことから $\text{Sr}^{2+}$ の収着速度は高く、1日以内に平衡に達することを確認

した。以後の実験では収着平衡を確実にするために固液接触時間を3日間とした。

### 1. 3. 2 $S_r$ 濃度依存性

分配係数 $K_d$ に対する $S_r$ 濃度の影響を調べた結果を図1. 6に示す。 $K_d$ の対数値( $\log K_d$ )は $S_r$ 濃度の対数値( $\log C$ )の増加とともにほぼ直線的に減少することがわかった。また、同じ実験結果を岩石試料への濃度依存すなわち等温吸着線として図1. 7に示す。ここで吸着量 $q$  (g)は、初期濃度 $C_0$  (c p m)、平衡濃度 $C$  (c p m)、 $S_r$ 濃度 $C'$  (p p m)、溶液量 $V$  (m $\ell$ )として以下の式より求めた。

$$q \text{ (g)} = [(C_0 - C) / C_0] C' V \quad (1.2)$$

この図はフロイドリッヒ型、

$$\log q = \log a + (1/n) \log C \quad (1.3)$$

を示し、最小自乗法により $a = 0.90$ 、 $n = 1.33$ となった。

### 1. 3. 3 pH依存性

分配係数 $K_d$ に対するpHの影響を調べて得た結果を図1. 8に示す。図より、低pH領域からpH11.5まではpHの増加とともに分配係数 $K_d$ は著しく増加することが明らかになった。

### 1. 3. 4 EDTA濃度依存性

分配係数 $K_d$ に対するEDTAの濃度依存性の結果を図1. 9に示す。図より、EDTA濃度が $10^{-4}$ mol/l以下では $S_r$ の岩石への吸着はEDTAの濃度によらないことがわかった。EDTA濃度 $5 \times 10^{-3}$ mol/lでは分配係数 $K_d$ が大きかったが、この場合には平衡後pHが6.6となっており、 $10^{-4}$ mol/l以下の場合と比較することはできない。また、EDTA濃度 $10^{-3}$ mol/lの場合には、pH調整のためにNaOHを用いたが、この影響があるのかもしれない。

## 1. 4 考 察

### 1. 4. 1 吸着の機構

吸着は、大別すると、物理吸着と化学吸着の2種類に分けられる。物理吸着は、吸着分子と固体表面との相互作用がファンデルワールス力を主体とし、それに電気双極子、四重極子などの静電的相互作用が加わったもので、可逆的であり吸着エネルギーは数kcal/mol以下である。また吸着速度および脱着速度は迅速である。化学吸着は吸着分子または原子と固体表面原子の間に化学的な結合を生じるもので、非可逆的であり、吸着エネルギーは十~数十kcal/molである。

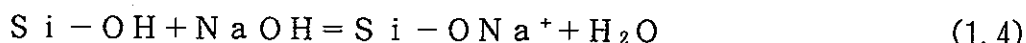
本研究において扱った $S_r$ -花崗岩系における吸着は、これらとは異なるイオン交換に

よる吸着が主体であると考えられる。鉱物に対する金属イオンのイオン交換吸着には同型置換と水酸基におけるプロトンの解離および付加の2種類がある<sup>4)</sup>。

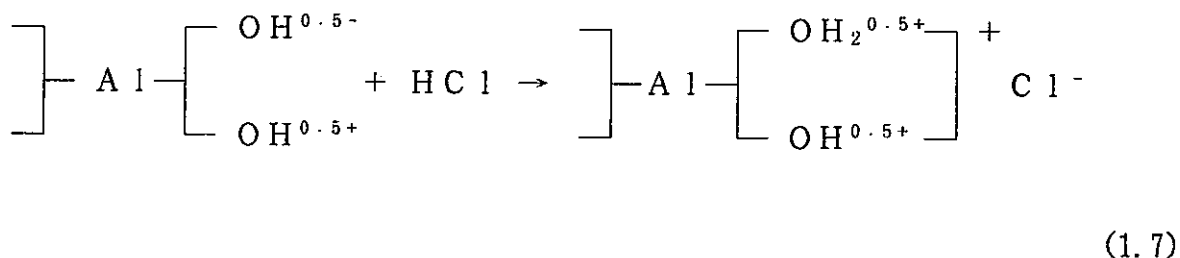
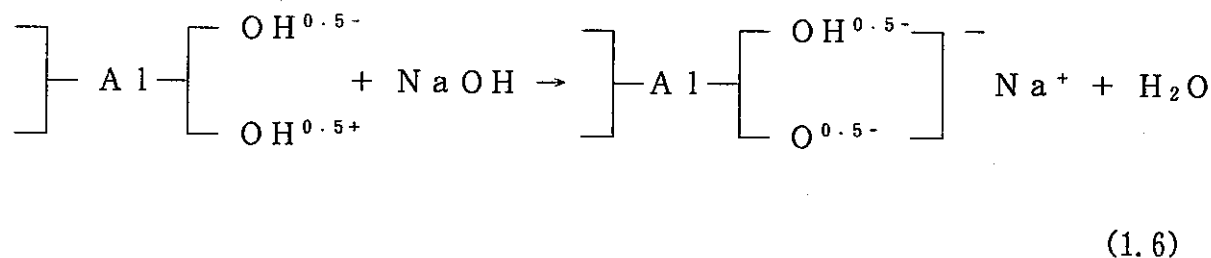
同型置換型のイオン交換吸着の機構は次のように説明される<sup>5)</sup>。2価または3価の金属イオン ( $Mg^{2+}$ または $Al^{3+}$ ) に $O^{2-}$ または $OH^-$  が配位してできる八面体シートとケイ素イオンに $O^{2-}$ が配位してできる四面体シートから構成されている層状ケイ酸塩鉱物では、界面四面体で $Al^{3+}$ による $Si^{4+}$ の置換が生じたとき、過剰の負電荷は主としてその四面体に属する酸素原子のうち表面上にある3個の上に分布する(図1. 10)。また、八面体で置換が生じたときには過剰の負電荷は、その八面体と頂点を共有する両側の4個の四面体に属する10個の酸素原子上に主として分布する(図1. 11)<sup>5)</sup>。これらの機構により鉱物界面付近は負に帯電する。この負電荷と金属イオンが電気的相互作用を行うことにより金属イオンは岩石に吸着する。なお同型置換による鉱物表面の負電荷は八面体シートによるものより四面体シートによるものが局在化している<sup>6)</sup>。

水酸基におけるプロトンの解離および付加の機構は次のように説明される。層状ケイ酸塩鉱物、鉄やアルミニウムの酸化物および水酸化物鉱物は、全ての粒子表面に水酸基を持つ。これらのうち例えばカオリナイトの八面体シートの底面上の水酸基は、隣接する2個の $Al^{3+}$ に共有されている。これに対して、粒子の縁辺部のものは、単一の陽イオンにのみ配位している。

表面電荷の発現に関わるのは、単一の陽イオンに配位した水酸基である。例えば四面体シート縁辺部の $Si-OH$ 基はシラノール基と呼ばれ、次式に示すように電離またはプロトンの付加が起こる。



一方、八面体シート縁辺部の水酸基は、次のように反応する。



鉱物表面に露出した水酸基の量は、同一種の結晶性鉱物の場合でも粒子の大きさによって大きく変わる。これは表面積の増減によって露出した水酸基の量が変わるためである。また、上述の反応式からもわかるように、溶液のpHにより大きく変化する。これは、反応式におけるOH<sup>-</sup>あるいはH<sup>+</sup>の濃度が変わることにより平衡が移るためである。一方、活性な水酸基を持つ鉱物上の正味の表面電荷は、溶液のpHがゼロ電荷点よりも高いときには負、それよりも低いときには正の符号を持つ<sup>6)</sup>。

#### 1. 4. 2 分配係数K<sub>d</sub>のpH依存性

pH依存実験において、分配係数K<sub>d</sub>の対数值(log K<sub>d</sub>)はpHの増加に伴って直線的に増加した。これは、pH = -log[H<sup>+</sup>]の増加に伴い溶液中のOH<sup>-</sup>濃度が増加しこれによって(1. 4)式、(1. 6)式における平衡が右に、一方(1. 5)式、(1. 7)式における平衡が左に移ったためである。また、平衡後pH 1. 40から11. 31の範囲では、pHに対してK<sub>d</sub>が直線的に増加したため、岩石のゼロ電荷点はpH 1. 40以下であると考えられる。pH 12. 50でK<sub>d</sub>が減少したのはSr<sup>2+</sup>がOH<sup>-</sup>イオンと水酸化物を形成したと考えると定性的に理解ができる。Sr<sup>2+</sup>のOH<sup>-</sup>に対する安定度定数β<sub>1</sub>は、



に対して

$$\beta_1 = [\text{SrOH}^+] / [\text{Sr}^{2+}][\text{OH}^-] \quad (1.9)$$

となる。ここで、log β<sub>1</sub> = 0. 8より[Sr<sup>2+</sup>] = C<sub>0</sub>、[SrOH<sup>+</sup>] = Cとおくと<sup>7)</sup>、

$$\log[C / (C_0 - C)] = \text{pH} + 0. 8 - 14. 0 \quad (1.10)$$

となる。いまpHは12. 50より溶液中でのSr<sup>2+</sup>: SrOH<sup>+</sup>の比は6. 0: 1となる。このことより、溶液中でSr<sup>2+</sup>がSrOH<sup>+</sup>となったことによりK<sub>d</sub>が小さくなったと考えられる。

#### 1. 4. 3 K<sub>d</sub>のEDTA濃度依存性

K<sub>d</sub>に対するEDTA濃度依存性は、pHを5. 6 ± 0. 2に調整しEDTA濃度を10<sup>-3</sup> ~ 10<sup>-7</sup> mol/lの範囲で変化させて調べた。この時のSr濃度は0. 45 ppmで、これに1対1に対応するEDTA濃度は5. 18 × 10<sup>-6</sup> mol/lであった。結果より、分配係数K<sub>d</sub>に対するEDTAの影響はみられず、Sr-花崗岩系でのpH依存と同じ形を取った。これは、EDTAがSrと錯形成を行わなかったか行ったとしてもSrへのEDTAの消費量が極めて少なかったためであると考えられる。溶液中では、岩石からCa<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Al<sup>3+</sup>などが溶け出す。これらの金属イオンとEDTAとの安定度定数の対数、log βは、Sr<sup>2+</sup>: 8. 6、Ca<sup>2+</sup>: 10. 7、Mg<sup>2+</sup>: 8. 6、Al<sup>3+</sup>: 16. 1と報告されている<sup>7)</sup>。したがって、EDTAはSrと錯形成することなく、岩石か

ら溶け出した金属イオンと錯形成したため、EDTAが存在する場合にもSrはSr-花崗岩系における場合と同様な振る舞いをした。

### 1. 5 まとめ

本研究においては、Sr-花崗岩-EDTA系についてバッチ法によって分配係数 $K_d$ を測定することにより、Srの花崗岩への収着の機構とともに一般に除洗剤として用いられているEDTAの影響を調べた。

収着の機構はイオン交換が主体であることがわかった。また、EDTAは、Srに対して影響がないことがわかった。このことはSrがEDTAに対して安定度定数が小さいためと考えられ、また、放射性廃棄物の処分と同様に問題となるCsも安定度定数が小さいので、収着に対して特にEDTAの濃度が高い場合を除きその影響はないであろうことが推定できる。

今後の課題としては、EDTA濃度依存実験においてEDTA濃度 $10^{-3}\text{mol/l}$ のときにpH調整のためNaOHを加えた。このことによって $K_d$ が非常に大きな値をとった。これは、 $\text{Na}^+$ イオンが共存イオンとして影響を与えたのか、イオン強度の増加として影響を与えたと考えられる。溶液側についてはこの共存金属イオンとイオン強度の2点について、岩石側については粒径を変えることによって、表面積を変化させたり、化学系が既知である鉱物などを固相に選ぶことによって、Srの花崗岩への収着の機構を明確にすることができるであろう。

### 参 考 文 献

- 1) 下田秀雄他：六ヶ所低レベル放射性廃棄物貯蔵センターの概要と安全確保策、日本原子力学会誌、Vol. 33(No. 11)1049(1991).
- 2) 歌田 実：岩石・鉱物試料、地層処分研究成果報告会論文集、動燃・原安協、p. 11 (1986).
- 3) 環境パラメーター・シリーズ2, 土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数, (財)原子力環境整備センター(1990).
- 4) 早川 宗八郎編：粉体物性測定法, 朝倉書店(1973).
- 5) 日本粘土学会編：粘土ハンドブック第二版、技報堂出版(1987).
- 6) R. E. Grim: Clay Mineralogy, 2nd ed. McGraw-Hill(1968).
- 7) A. Ringbom(田中信行訳)：錯形成反応, 産業図書(1965).

表1. 1 稲田産花崗岩の化学組成<sup>(2)</sup>

成分	割合 (%)
SiO <sub>2</sub>	76.49
TiO <sub>2</sub>	0.19
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	12.06
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.57
FeO	1.16
MnO	0.03
MgO	0.20
CaO	1.98
Na <sub>2</sub> O	3.00
K <sub>2</sub> O	3.02
H <sub>2</sub> O (+)	0.30
H <sub>2</sub> O (-)	0.40

表1. 2 稲田産花崗岩の鉱物組成および粒度範囲<sup>(2)</sup>

鉱物	鉱物組成 (vol.%)	粒度範囲
斜プチロル沸石	30-50	0.01>
α-クリストバル石	30-50	0.001>
モンモリロナイト	15-20	0.001>
セラドナイト	5-10	0.001>
石英	5-10	0.1-2.0
斜長石	5-10	0.1-2.0
普通角内石	rare	0.1>

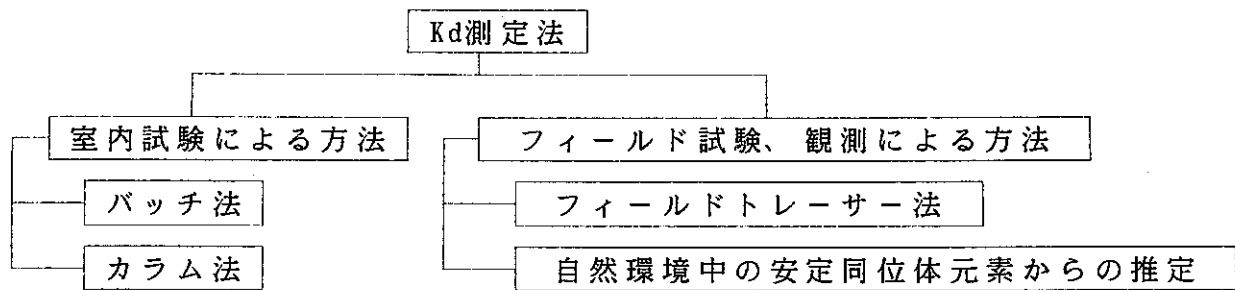


図 1. 1 分配係数  $K_d$  の測定方法

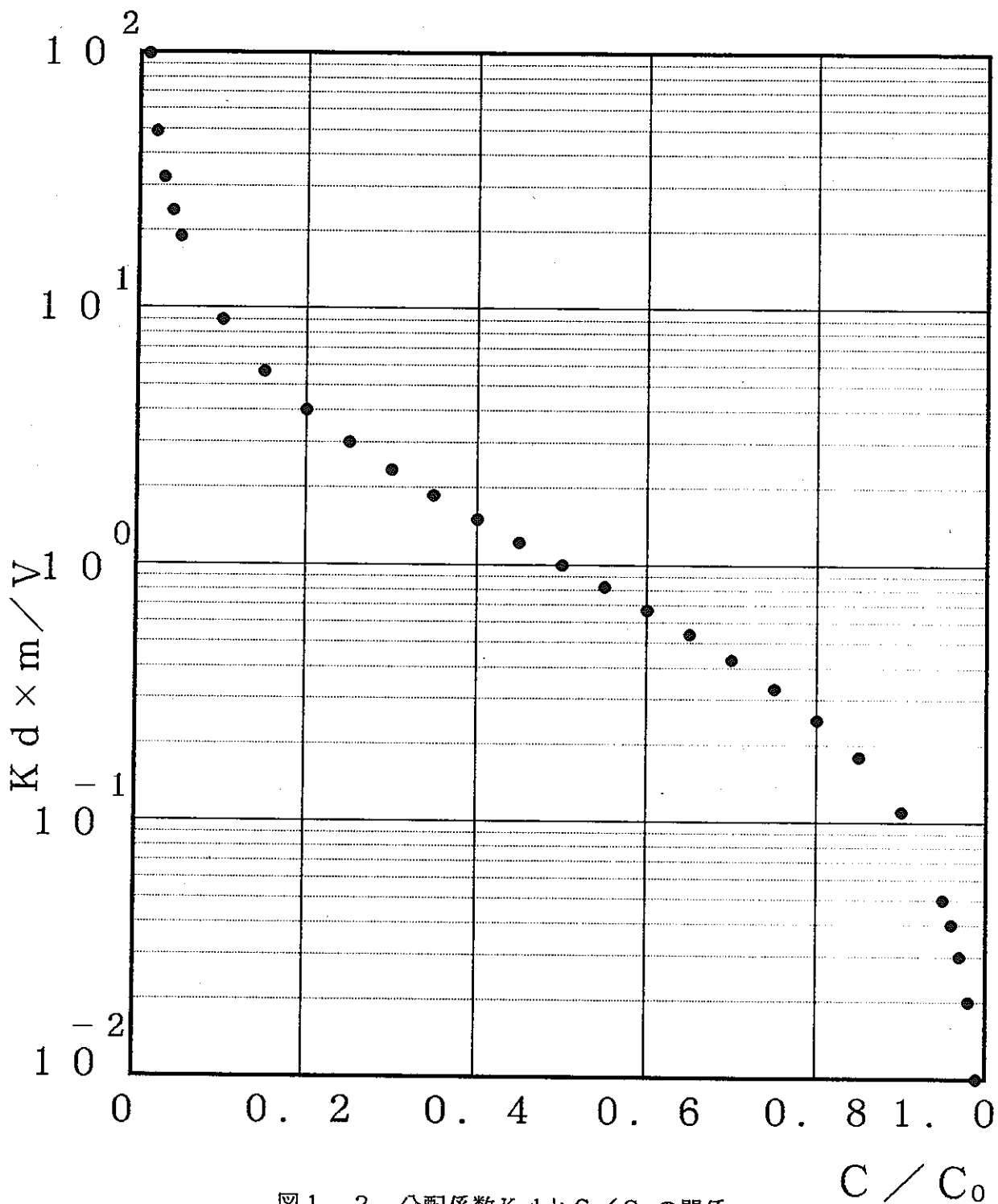


図 1. 2 分配係数  $K_d$  と  $C / C_0$  の関係



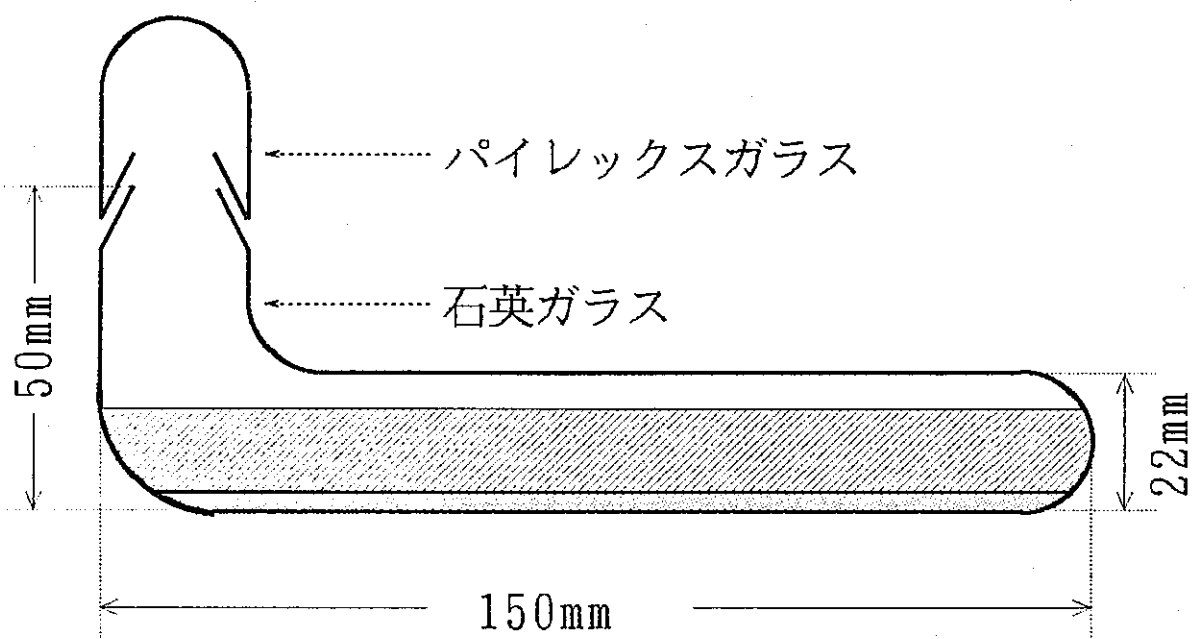


図1. 3 バッチ法による分配係数の測定に用いたセル

図 2 - 3 本実験フローチャート

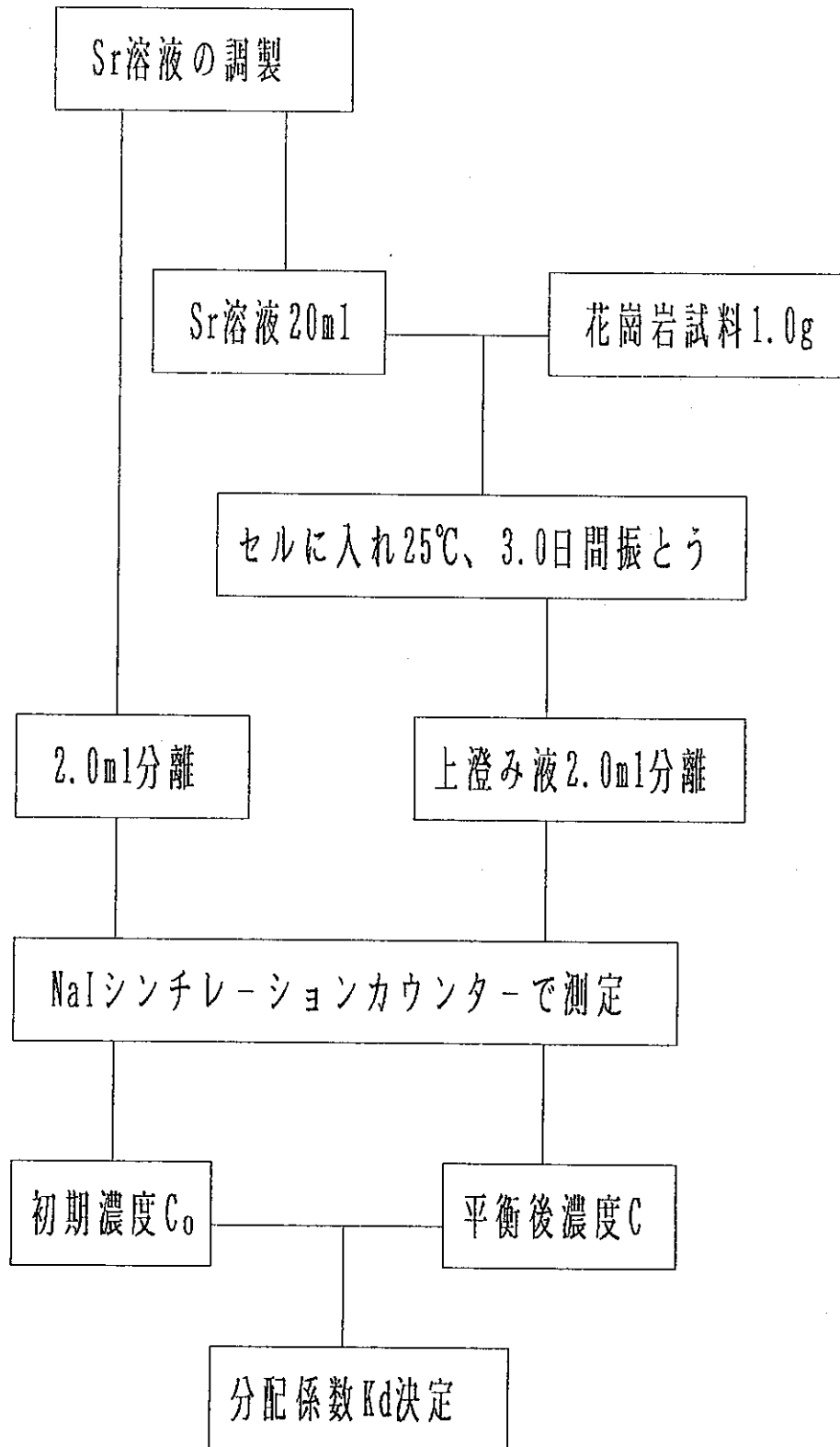


図 1. 4 バッチ法による分配係数の測定手順

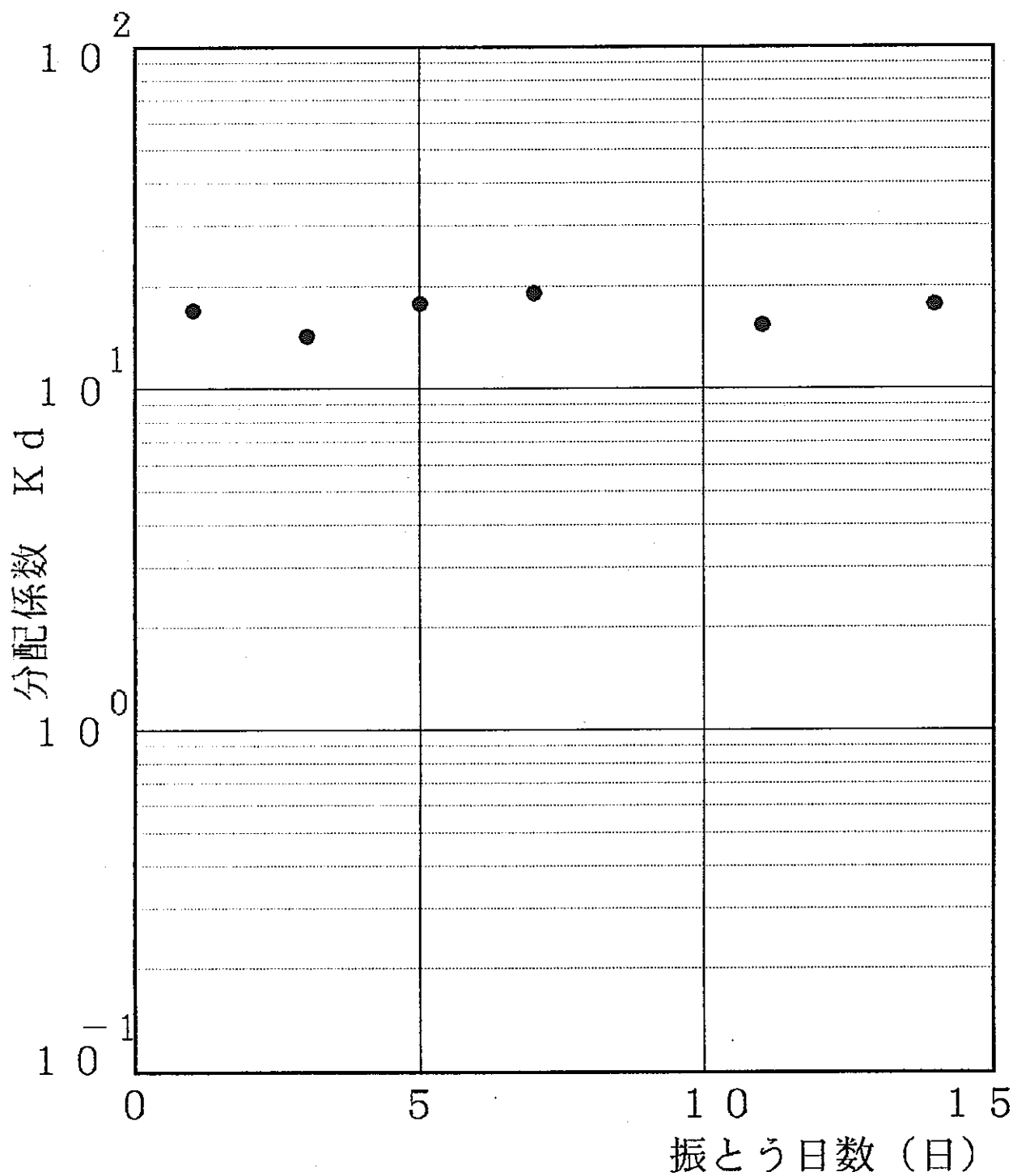


図1. 5 花崗岩粉末に対するSrイオンの分配係数 $K_d$  (ml/g) の時間依存

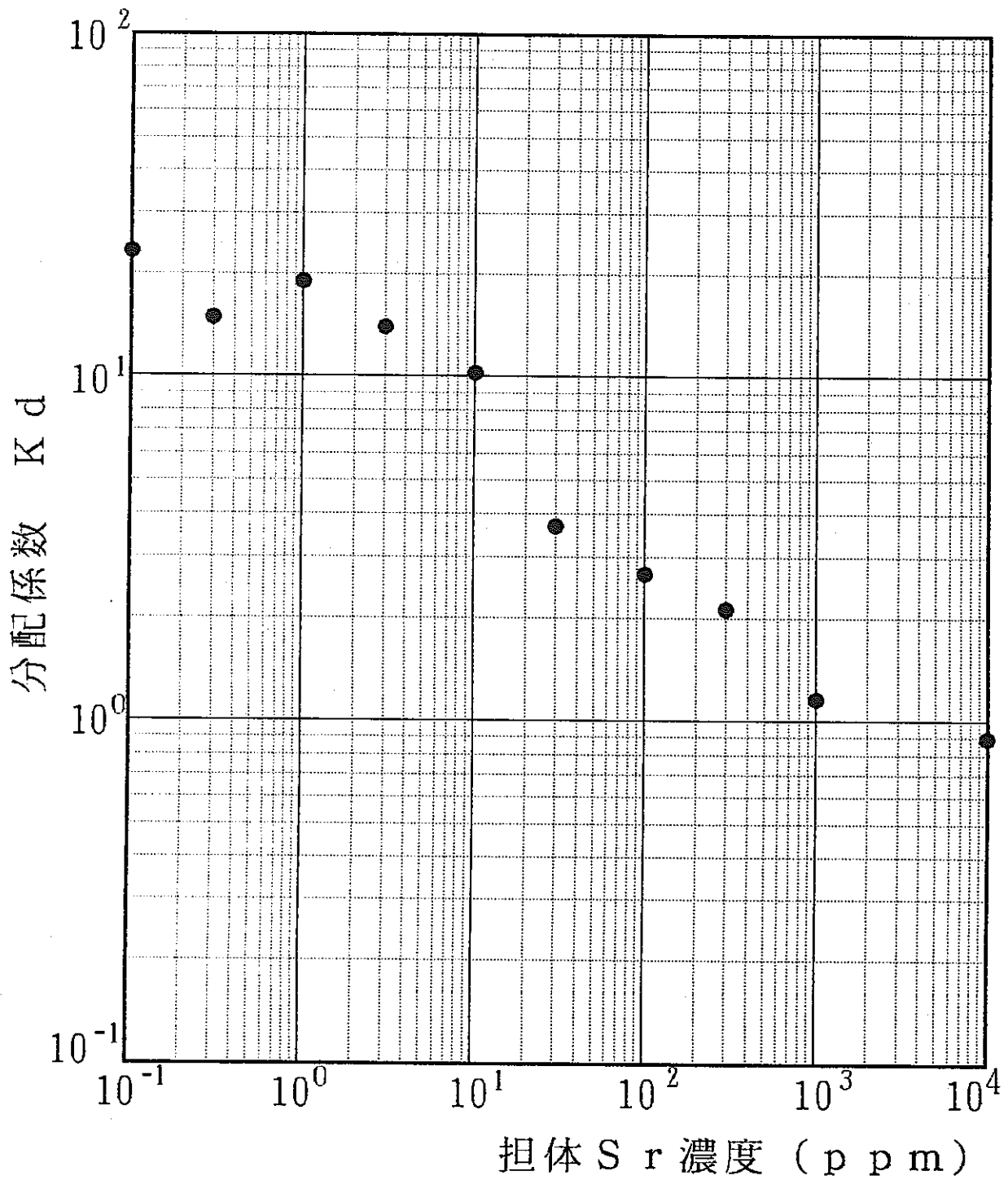


図1. 6 花崗岩粉末に対するSrイオンの分配係数Kd (ml/g) のSr濃度依存

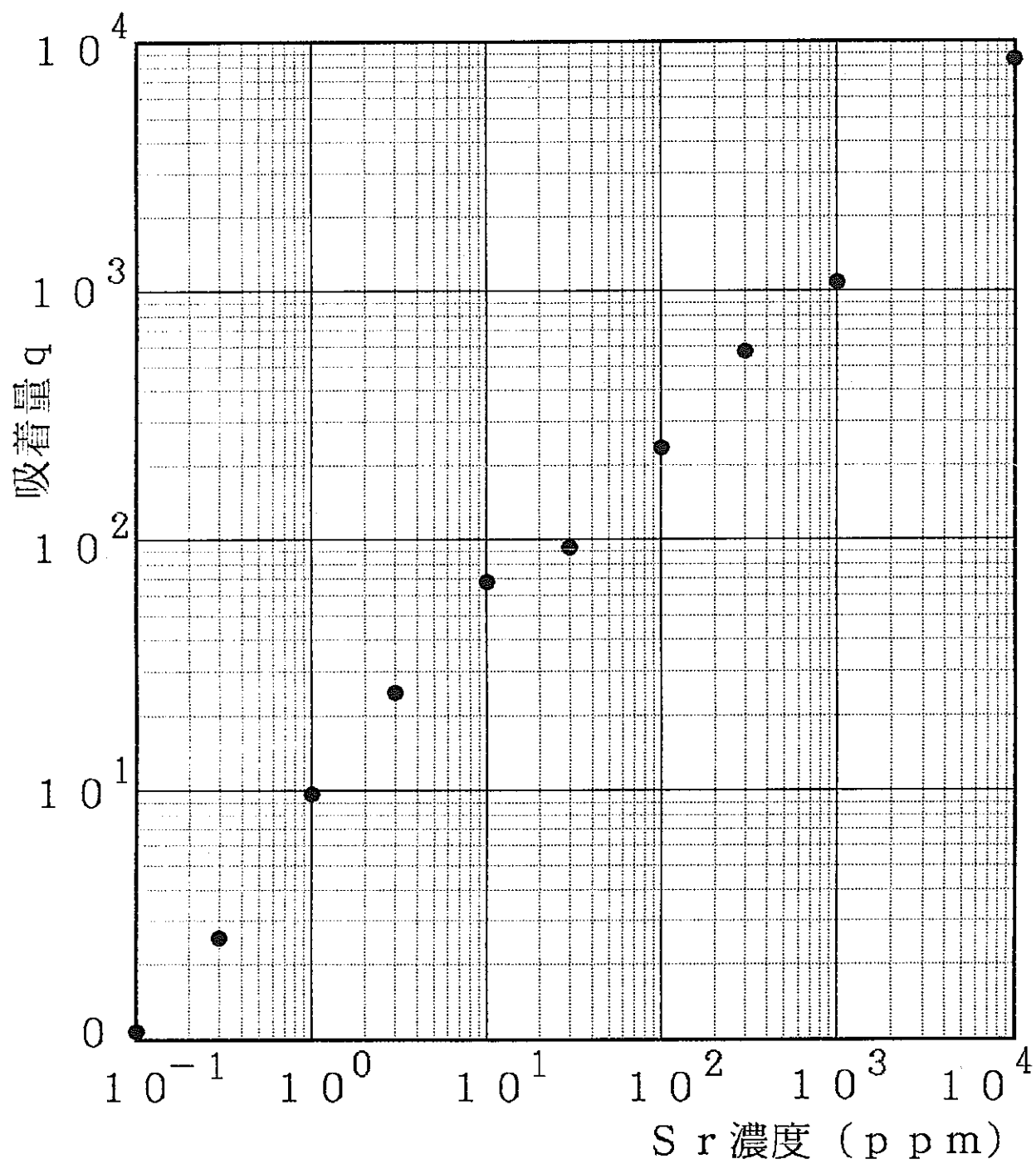


図1. 7 花崗岩粉末に対するSrイオンの吸着等温線

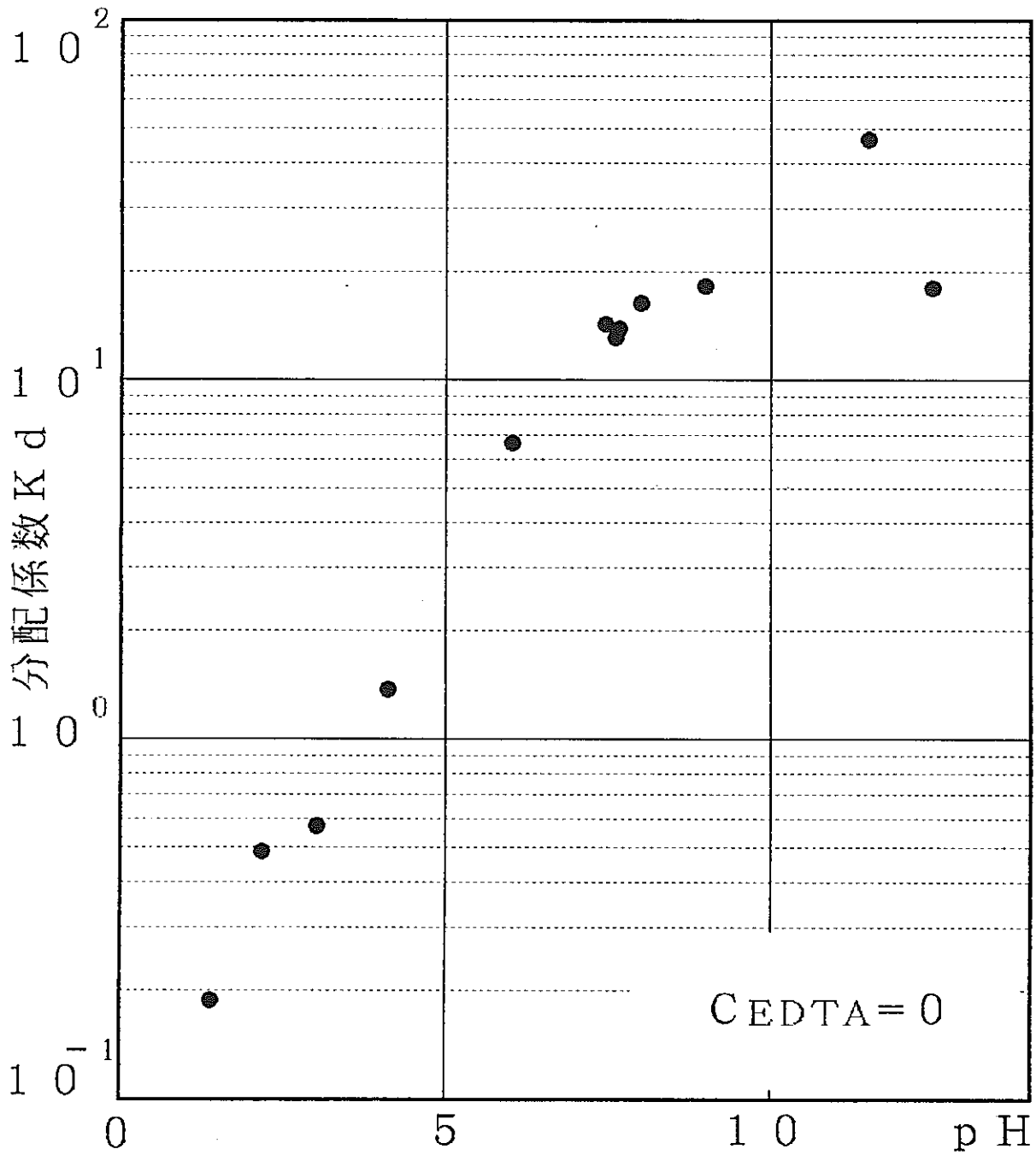


図1. 8 花崗岩粉末に対するSrイオンの分配係数 $K_d$  (ml/g) のpH依存

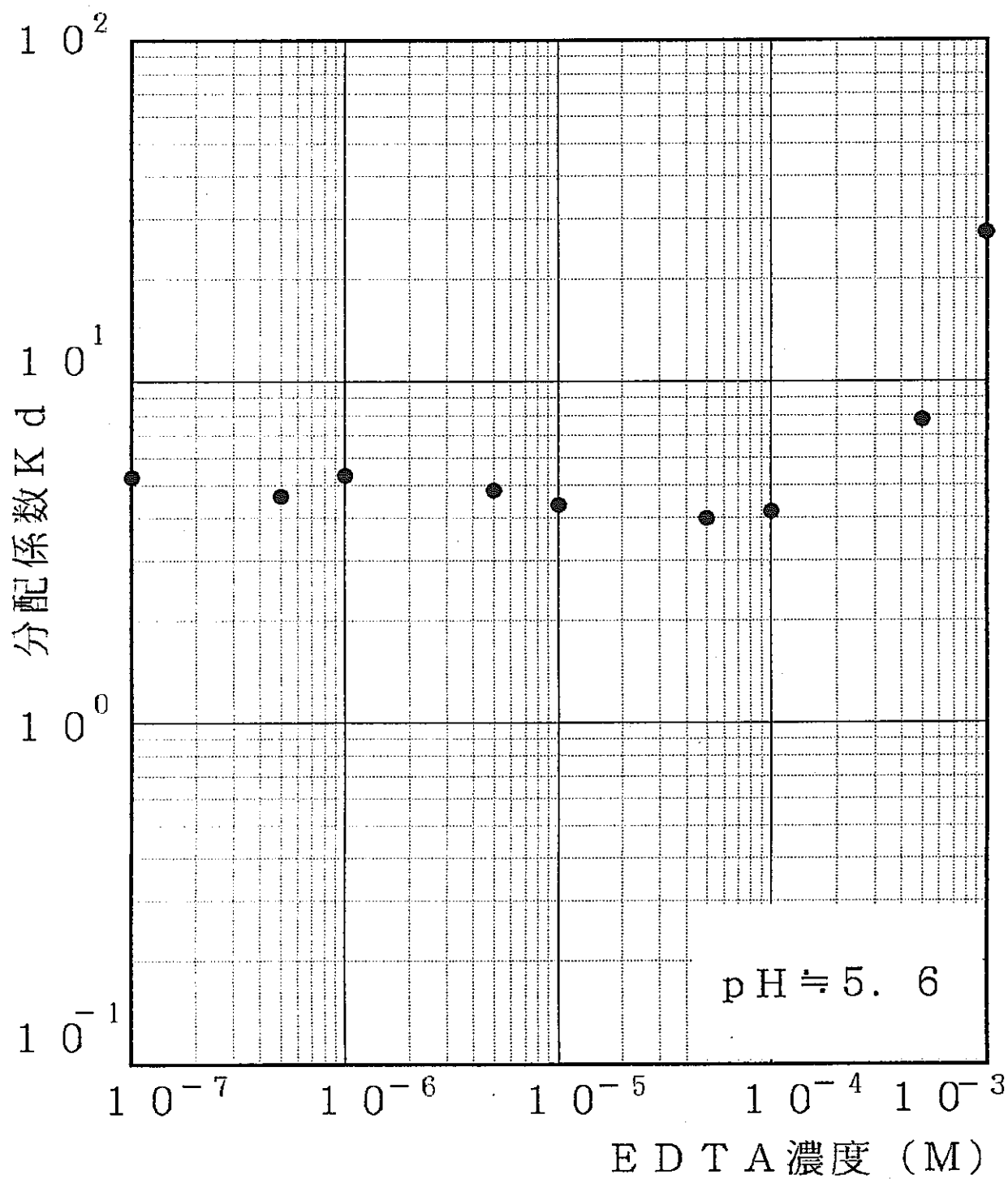
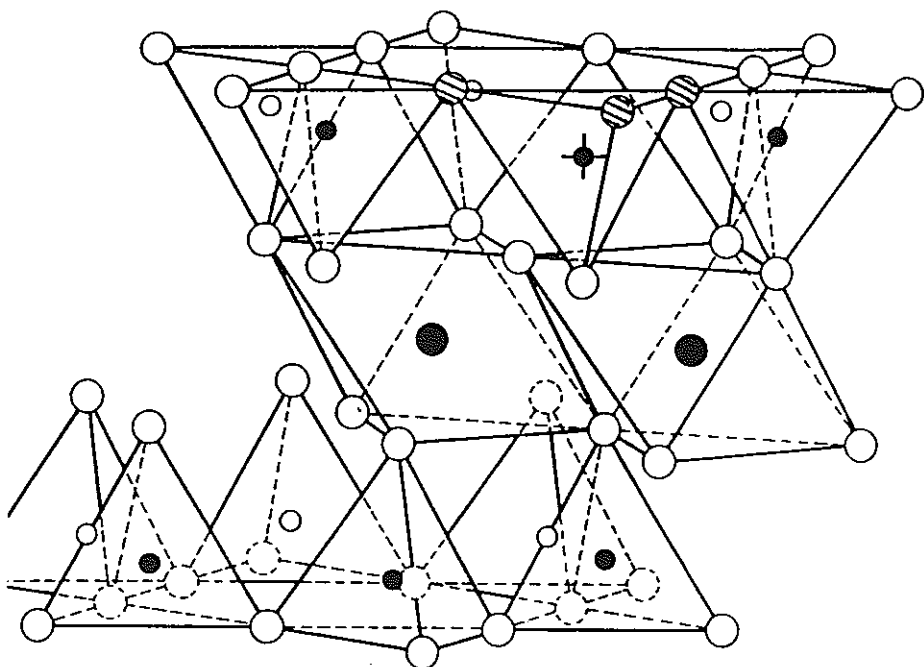
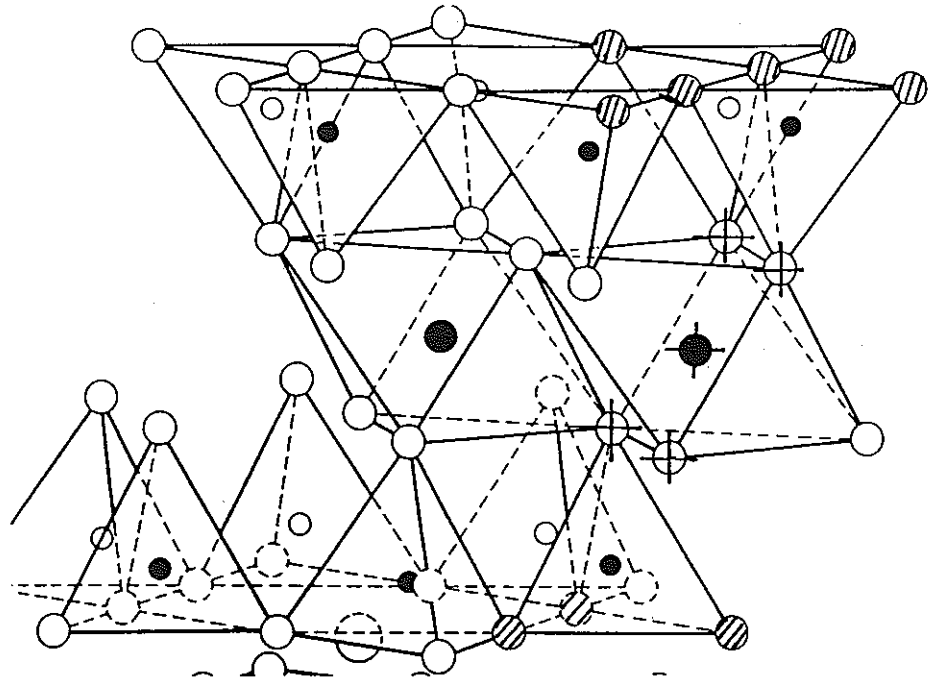


図1.9 花崗岩粉末に対するSrイオンの分配係数 $K_d$  (ml/g) の EDTA濃度依存



- :  $\text{Si}^{4+}$
- : 酸素
- ⊕ : 置換した  $\text{Al}^{3+}$
- ⊖ : 負に帯電した酸素

図1. 10 4面体シートにおける置換



- :  $\text{Si}^{4+}$
- : 酸素
- ⊕ : 置換した  $\text{Al}^{3+}$
- ⊖ : 負に帯電した酸素

図1. 11 8面体シートにおける置換



## 第2章 花崗岩に対する Sr の収着に 及ぼすフミン酸の影響

### 2. 1 緒 言

低レベル放射性廃棄物には浅地層処分が有力な処分様式の一つである。一方、高レベル放射性廃棄物処分の最も有力な方法は地層処分であるとして研究開発が進められている<sup>1)</sup>。放射性廃棄物処分の安全評価上、重要な因子の一つは地下環境における核種の移行速度である。核種が地層中に放出された場合、核種は地下水により移行する。核種は地層を形成する岩石や土壌との間で収着、脱離を繰り返しながら移行する。したがって、移行速度は地下水の流動挙動とともに、収着をはじめとした地下環境体系との化学的相互作用に支配されると考えられている。低レベル放射性廃棄物の処分では、工学障壁材から周囲の環境へ核種が漏出した場合を想定して、環境中での核種の移動の速度を明らかにすることが重要である。高レベル放射性廃棄物の処分の場合も同様であり、また、深地層天然障壁中で核種が鉱物に収着されることによる遅延効果が評価上重要な因子である。

低レベル放射性廃棄物処分の安全評価、または、高レベル放射性廃棄物処分の安全評価において、地表近くの核種移行を考える場合にはさらに考慮すべき因子が加わる。この因子は浅層地下水中に存在するフミン酸、フルボ酸等の高分子有機酸の影響である。有機酸にはその他にも種々のものが知られているが普通の地下水状態では、金属イオンとの錯形成の安定度定数の大きさから言って特にフミン酸とフルボ酸が重要である。一般に、これら有機酸は放射性核種を収着し核種の岩石や土壌への収着を抑え移行を促進する効果と、放射性核種が有機酸とコロイドを生成し岩石による濾過の効果を生じさらに遅延を増す効果の二つの効果を共に有するものと考えられる。

本研究では、日本で地層処分を行う際に候補の一つとなり得ると考えられる典型的な岩盤である花崗岩と、漏出核種として典型的な核分裂生成元素の一つであるストロンチウムとの化学的相互作用についてバッチ法で実験し、ストロンチウムが花崗岩に収着する際のフミン酸の影響を調べた。

特にフミン酸の特徴のうち移行速度を支配する一つの因子となり得るフミン酸の粒径に着目して、Srの分配係数に対する接触時間、pH、Sr濃度およびフミン酸濃度の影響について明らかにした。

### 2. 2 実 験

#### 2. 2. 1 岩石試料および溶液の調製

本研究は花崗岩-ストロンチウム-フミン酸の系においてバッチ法により岩石と溶液間

における放射性核種の分配係数を測定した。バッチ法で実験を行うに当たっていくつか検討しなければならない事項がある。Sr 溶液の濃度とフミン酸の濃度を適切に選ばなければならない。花崗岩を添加する段階では、固液比の選択、十分な固液接触の確保が重要である。また、固液接触方法、接触時間、分離法などについてもあらかじめ検討しておく必要がある。

一般に固液比は重量比で0.001~0.1程度が採用されているので、本研究では固液比を0.05とし、Srを含む溶液20ml、花崗岩1.0gの条件で実験を行った。その他の実験条件は菅野等の報告<sup>2)</sup>を参考にして選択した。

### (1) 花崗岩試料

花崗岩試料としては茨城県稲田産花崗岩を用いた。この花崗岩は粗粒結晶による典型的な等粒組織を示す。化学組成、鉱物組成と粒度範囲は表1.1と表1.2に示した。

花崗岩をダイヤモンドカッターで厚さ約5mmに切断した後、鉄乳鉢を用いて粉碎し、粒径250~500 $\mu$ m(30~60mesh)にふるい分けた。水で上澄み液が透明になるまで洗浄し、2回蒸留水でさらに洗浄し、50 $^{\circ}$ Cに保ったオープン中で1~2日間乾燥させた。乾燥後花崗岩の中に鉄錆のようなものが見受けられたが、これはおそらく鉄乳鉢でたたいた時に混入したものであろう。実験では乾燥花崗岩をそのまま使用した。

### (2) Sr 溶液

Sr 溶液はSrCl<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>Oを用いて調製した。0.3115gの和光製薬製SrCl<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>Oをイオン交換水で溶解し1.0 $\ell$ とした。この溶液中のSr濃度は100ppm-Srとなる。

### (3) トレーサー溶液

トレーサーとしてSr-85を用いた。Sr-85は、質量数:A=85、半減期:T<sub>1/2</sub>=64.84d、崩壊形式:EC(100%)、 $\gamma$ 線エネルギー:E <sub>$\gamma$</sub> =0.514MeVの特性を有している。

本研究で用いた試薬は、NEN製品リスト:コードNo. NEZ 082-10のもので、Sr-85は0.5mol/ $\ell$  NH<sub>4</sub>Clに溶かされており、放射能量は18.5MBq(=500 $\mu$ Ci)で、比放射能は111GBq/g~1.11TBq/g(3~30 $\mu$ Ci/g)、純度>99%(Sr-89<1%)である。

純粋なSr-85の比放射能は、8.763 $\times$ 10<sup>14</sup>Bq/gである。この試薬は比放射能が111GBq/g~1.11TBq/gであるから、

$$(1.11\sim 11.1)\times 10^{11}/(8.76\times 10^{14}) \\ = (1.27\sim 12.7)\times 10^{-4}$$

の割合でSr-85を含む。よって、Srの総重量は、

$$18.5\times 10^6/[(8.76\times 10^{14})(1.27\sim 12.7)\times 10^{-4}] \\ = (1.67\sim 16.7)\times 10^{-5}\text{g}$$

である。半減期補正を施すと、この試料は1991年9月1日購入であるから実験開始の10月20日の時点では、

$$1. 85 \times 10^7 \times (1/2)^{50/64.84} = 1.08 \times 10^7 \text{ Bq}$$

すなわち、10.8 MBq (10/20/1991) となっている。10.8 MBq 中の Sr の総重量は

$$1.08 \times 10^7 / [(8.76 \times 10^{14})(1.27 \sim 12.7) \times 10^{-4}] \\ = (9.70 \sim 97.0) \times 10^{-6} \text{ g}$$

である。以上が購入した Sr-85 の放射化学的性質である。ただし、このままでは Sr-85 は少量で、送られてきた瓶の中から所定の量を採取することができず、また、放射能も高いので、以下の操作にしたがって実際に研究で用いる試料とした。

試料 (10.8 MBq) を 2.0 ml の蒸留水で希釈すると、Sr 濃度： $8.34 \times 10^{-6} \text{ g/ml} \sim 8.34 \times 10^{-5} \text{ g/ml}$ 、すなわち、8.34 ppm $\sim$ 83.4 ppm、放射能濃度：5.40 MBq/ml が得られる。次に、上述の試料 0.1 ml をバイアル瓶に取り出し、蒸留水で 1.0 ml とすると、Sr 濃度：0.834 ppm $\sim$ 8.34 ppm、放射能濃度：540 kBq/ml となる。

以下の実験では、この溶液を Sr-85 母液とし、適宜希釈して用いた。

#### (4) フミン酸溶液

和光製薬製フミン酸 20.8 mg と 0.1 mol/l NaOH 5.0 ml を 1 l メスフラスコに入れ、2回蒸留水で 1.0 l とした。マグネチックスターラーを使って 41 時間攪拌したものを用いた。このときの最終 pH は 7.69 であった。

### 2.2.2 実験操作

本研究で行ったバッチ法は一定量の吸着性物質を含む溶液と花崗岩粉末とを混合し、固液接触を十分に保った後に固体と液体とに分離し、液相中の吸着性物質の濃度変化から、液相中の吸着性物質濃度に対する固相への吸着量、すなわち分配係数 (Kd 値) を算定する方法である<sup>3)</sup>。

実験で用いた石英ガラスセルを図 2.1 に示す。このセル中に Sr 溶液、トレーサー溶液、フミン酸溶液を混合した後、マイクロピペット (最大 1.0 ml) で 2.0 ml (1.0 ml  $\times$  2 回) とりだし、これを C<sub>0</sub> 測定用とする。花崗岩粉末 1.0 g を添加し CO<sub>2</sub> が溶解しないようすり合わせ部分にシリコングリスを塗り外気と遮断した。25℃ に保った振とう器中で攪拌し平衡に達した後 2.0 ml の上澄み液をとりだしこれを濃度 C 測定用とした。このとき Kd 値は次式で与えられる。

$$Kd = q/C = (C_0 - C)V / (CW) \quad (2.1)$$

ここで、Kd は分配係数 (ml/g)、C<sub>0</sub> は被吸着物質の初期濃度 (mg/l)、C は平衡後の濃度 (mg/l)、V は溶液体積 (ml)、W は吸着材 (花崗岩) の添加量 (g) である。

## 2. 2. 3 分配係数の測定法

### (1) 分配係数の時間依存性

本研究ではまず最初にストロンチウム-花崗岩-フミン酸系が平衡に達するまでの時間を知ることが必要である。

図2. 1に示したガラスセル中において、Sr溶液、トレーサー溶液、フミン酸溶液を以下に示す割合で混合した溶液2. 0 mlをC<sub>0</sub>測定用およびpH測定用としてマイクロピペットで取り出した。花崗岩1. 0 gを入れ、シリコングリスを用いてセルのふたを固定した。ガラスセルに各試料を封入したものを九つ用意し、25℃で一定に保った振とう器で攪拌した。1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 14, 32日後に1本ずつとり出し、上澄み液をマイクロピペットで2. 0 mlとり出し平衡後の濃度Cとした。さらに上澄み液を0. 20 μmのシリンジフィルターで濾過し、濾液を同様に2. 0 mlとり出して放射能測定を行った。

濃度調整は以下の手順で行った。100 ppm Sr溶液を1. 8 ml、Sr-85溶液を0. 05 ml、蒸留水を8. 15 ml、20 mg/l フミン酸を12 ml、花崗岩を1. 0 gとした。このとき、Sr濃度は8. 18 ppm、フミン酸濃度は10. 9 mg/lとなる。

### (2) 分配係数のpH依存性

フミン酸はCOOH基に富んだ高分子化合物である。この基は酸性側ではCOOH、イオン化するとCOO<sup>-</sup>となる。よって酸性側では球状であるが、解離(イオン化)が進むと負に荷電した官能基が静電的な力によって相互に反発しあい線状になることが知られている。そこでSrの花崗岩への吸着に与えるpHの影響をK<sub>d</sub>値とフミン酸の粒径依存性について検討する。

HClを加えて最終pHを酸性にした系と、NaOHを加えてアルカリ性にした系で時間依存実験同様25℃で一定に保った振とう器で3日間攪拌した。

ガラスセルに以下の手順で22 mlの溶液を加えた。100 ppm Sr溶液を3. 6 ml、Sr-85溶液を0. 02 ml、pH調整剤を2. 0 ml、蒸留水を4. 4 ml、20 mg/lフミン酸を12 mlおよび花崗岩1. 0 gを加えた。この時、Sr濃度は16. 37 ppm、フミン酸濃度は10. 91 mg/lとなる。

### (3) 分配係数のSr濃度依存性

フミン酸はそれ自身分子量が大きい場合コロイドとして存在している場合が多いが、Srを多量に吸着することによりフミンコロイドの粒径が大きくなり沈殿すると考えられる。そこでK<sub>d</sub>値に与えるSr濃度の影響とフミン酸の粒径の影響について測定した。ここで、液相に含まれる金属イオンはSrイオンのみであり、Sr濃度変化とともにイオン強度が変化するが、特に調整はしなかった。

Sr 溶液、蒸留水、フミン酸を以下のように調合し、上と同様 25℃で3日間振とう器を用いて攪拌した。濃度  $10^4$  ppm の Sr 溶液は Sr-85 溶液 0.05 ml, 20 mg/l フミン酸溶液 10 ml に濃度  $10^5$  ppm の Sr 溶液 2.2 ml を加え、蒸留水で全量を 22 ml として調製した。濃度、 $10^3$ 、 $3 \times 10^3$ 、 $10^2$  および  $3 \times 10^2$  mol/l の Sr 溶液は  $10^5$  ppm Sr 溶液の代わりに  $10^4$  ppm Sr 溶液をそれぞれ 0.22、0.66、2.2 および 6.6 ml 用いて調製した。さらに、濃度 1、3、10 および 30 ppm の Sr 溶液は  $10^2$  ppm Sr 溶液を 0.22、0.66、2.2 および 6.6 ml 用いることにより調製した。いずれの溶液もフミン酸濃度は 9.09 mg/l となる。

先に 100 ppm Sr 溶液を調製したが、100 ppm 以上の高濃度領域用に  $10^5$  ppm Sr 溶液を新たに用意した。これは 15.215 g の  $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  を二回蒸留水で溶かして 50 ml にすることによって得た。

また、 $10^4$  ppm Sr 溶液は  $10^5$  ppm Sr 溶液を正確に 10 倍に薄めることによって得た。

攪拌終了後、それぞれのセルより 2.0 ml ずつ取り出し、さらに 0.80、0.45 および 0.20  $\mu\text{m}$  のフィルターを通したろ液を 2.0 ml ずつ取り出した。

#### (4) 分配係数のフミン酸濃度依存性

時間依存実験と同じようにフミン酸濃度を 0.02、0.2、2.0 および 20 mg/l と変え、25℃に保った振とう器で3日間攪拌した。

### 2.2.4 放射能の測定

測定は、NaI シンチレーションカウンター (アロカ社製 オートウェルガンマーシステム ARC 500) を用いて行った。測定条件は、エネルギーピーク:  $E = 514 \text{ keV}$ 、ウィンドウ:  $w = 40$ 、計測時間: 10 分であった。

ウィンドウとは図 2.2 における W のことで、カウンターが計数するエネルギー幅を表す。W は次式で表される。

$$W = (w/100) \cdot E$$

ここで、E は Sr-85 から放出される  $\gamma$  線エネルギーで、 $E = 514 \text{ keV}$  であるから、 $W = 205.6$  となる。つまり  $514 \pm 205.6 \text{ keV}$  の幅で計数した。若干幅が大きいが、単一核種であるのでこの条件で計測した。

## 2.3 結果

### 2.3.1 分配係数の接触時間依存性

攪拌後の液相濃度を C とし、(2.1) 式に従って  $K_d$  値を求めた。液相中にはフミンコロイドに収着した Sr も含まれているため、本研究で測定される濃度は見かけの濃度となる。そこで、本研究で得られた  $K_d$  値は見かけの  $K_d$  値である。縦軸に見かけの  $K_d$  値、

横軸に時間をそれぞれ対数プロットして図2. 3に示す。0. 2  $\mu\text{m}$ のポアを有するフィルターで濾過した濾液の濃度を用いて求めた $K_d$ 値(図中B)は時間とともに徐々に増大し、30日程ではほぼ平衡に達した。しかしフミンコロイドも含めた液相全体の $S_r$ 濃度をベースにして求めた場合(図中A)では、 $K_d$ 値が10日程までは減少しそれ以降は増加して一定となった。なおこの時のpHは $7.3 \pm 0.3$ であった。

フミン酸濃度が高い場合には、多価陽イオンは粘土鉱物や他の鉱物と比べ、フミン酸に優先的に収着する<sup>2)</sup>。 $S_r$ の場合でもこれと同様な結果があてはまるとすると、2段階の $K_d$ 値の変化を説明できる。すなわち、初期の段階では $S_r$ は主にフミン酸に収着しているか真性イオンとして存在している。よって、 $S_r$ は固相に執着するよりも液相に多く存在し、 $S_r$ のフミン酸への収着が進むにつれて $K_d$ 値は減少する。しかしさらに $S_r$ のフミン酸への収着が進むとフミン酸が持つ $-\text{COO}-$ の電氣的な力が弱まり、負に帯電した花崗岩表面へのフミン酸の収着が容易になる。結果としてフミン酸に収着した $S_r$ も一緒に花崗岩表面に収着することになり液相の $S_r$ 濃度が減少し、 $K_d$ 値が増加する。十分に時間がたつと $S_r$ -フミン酸-花崗岩3元系が平衡に達し $K_d$ 値が一定になる。

3元系の充分な平衡という点では短すぎるというきらいがないでもないが、一応3日間の接触後の分配係数を以下の実験における接触時間とした。なお、他の研究でも、使用核種がアクチノイド系なので直接の比較はできないが、例えばMoulinの場合<sup>4)</sup>、岩石とフミンとの接触時間を2日、核種を加えて2日間接触させている。

### 2. 3. 2 pH依存性

$K_d$ 値は時間依存実験のときと同様にして決定した。縦軸に見かけの $K_d$ 値を対数表示で、横軸にpHをとって図2. 4に示す。また、0. 80  $\mu\text{m}$ 以上、0. 45~0. 80  $\mu\text{m}$ 、0. 20~0. 45  $\mu\text{m}$ の各粒径に収着した $S_r$ の割合は次式によって求めた。

$C_0$ を初期濃度(c p m)、 $C_1$ を平衡後の全液相濃度(c p m)、 $C_2$ 、 $C_3$ 、 $C_4$ をそれぞれ0. 80、0. 45、0. 20  $\mu\text{m}$ で濾過した濾液の濃度(c p m)としたとき、全液相中に占める0. 80  $\mu\text{m}$ 以上のフミン酸に収着した $S_r$ の割合は、

$$F_{0.80} = [(C_1 - C_2) / C_1] \times 100 (\%) \quad (2.2)$$

全液相中に占める0. 45~0. 80  $\mu\text{m}$ のフミン酸に収着した $S_r$ の割合は、

$$F_{0.45 \sim 0.80} = [(C_2 - C_3) / C_1] \times 100 (\%) \quad (2.3)$$

全液相中に占める0. 20~0. 45  $\mu\text{m}$ のフミン酸に収着した $S_r$ の割合は

$$F_{0.20 \sim 0.45} = [(C_3 - C_4) / C_1] \times 100 (\%) \quad (2.4)$$

となる。これらの関係を模式的に示したのが図2. 5である。

低pH領域では3日間の攪拌の後、セル内に0. 80  $\mu\text{m}$ のフィルターで容易に濾過される大量の沈殿がみられた。これはフミン酸の $\text{COOH}$ 基が解離状態から未解離の酸の状態に戻ることによる球状化の結果であろうと思われる。結果のグラフによればこの領域で

のS rのフミン酸への収着は認められていない。粒径が0.80  $\mu$ m以上のフミン酸は弱酸性領域で、それ以下のフミン酸は弱アルカリ性のところに収着のピークがみとめられた。本実験で用いたフミン酸はpH7.2~7.3に緩衝する作用があり、0.80  $\mu$ m以下のフミン酸の収着ピークはこのpH領域とほぼ一致する。それに対応してS rの収着も盛んになっているように思われる。粒径0.80  $\mu$ m以上のフミン酸はそれ自身固相のようにたらし、フミン酸の緩衝溶液的な性質には関与せず独自のメカニズムによってS rの収着をするとも考えられる。

### 2.3.3 S r濃度依存性

K d値を時間依存のときと同様に求めた。縦軸に見かけのK d値、横軸にフミン酸の濃度をそれぞれ対数プロットして図2.6に示す。このときのpHは7.2 $\pm$ 0.3であった。S r濃度30 ppm以下では見かけのK d値が一定となり、S r濃度がそれ以上になるとK d値が直線的に減少した。各粒径のフミン酸に収着したS rの割合と比較してみると、S r濃度30 ppm以下の、K d値がほぼ一定になる領域では比較的小さい粒径のフミン酸が寄与し、K d値が落ち込む30 ppm以上の領域では比較的大きなフミン酸が寄与していることがわかる。

### 2.3.4 フミン酸濃度依存性

この実験におけるS r濃度は18 ppmであり、フミン酸が存在しない時のK d値は時間依存実験およびS r濃度依存実験の結果より、ほぼ9.0である。縦軸にK d値、横軸にフミン酸濃度を対数でプロットしたグラフを図2.7に示す。

フミンコロイドも含めた全液相からみた見かけのK d値は、フミン酸濃度1.0 mg/ $\ell$ の付近でフミン酸が存在しないときのK d値となっている。この濃度ではフミン酸がほとんど効いていないと見てよいであろう。しかし0.20  $\mu$ mで濾過した濾液からみたK d値は0.10 mg/ $\ell$ の濃度まで影響が認められる。このことは0.20  $\mu$ m以上のフミン酸がS rを伴ったコロイドとして液相中に存在していることを示している。

本研究ではフミン酸の薄め方が適当ではなく、十分な範囲でフミン酸の濃度の影響を測定することができなかったが、全実験を通じて用いた10 mg/ $\ell$ に充分影響を与えているということは確認できた。

## 2.4 考 察

### 2.4.1 フミン酸について

#### (1) フミン酸の定義

土壌中の有機物質の存在割合は、場所によって大きく異なるが、例えば、やや乾燥した草原の地表15 cm程度の所には5~6%、砂を含む土壌中には1%程度、水はけの悪い

ところでは10%程度の有機物質が存在する。また、地下水や地表水といった天然水中にも浅地層中の地下水には、炭素量にして0.1~1.3mg/lから河川水で3~20mg/l含まれている<sup>5)</sup>。これらの有機物質は、動植物の遺体が、種々の微生物によって分解される過程で生成したものである。フミン物質はこのような腐食物質の水溶性部分を起源とした代表的なものでタンパク質の分解生成物と炭水化物などの縮合によって形成された高分子化合物である。

フミン物質は、土壌フミン、フミン酸、フルボ酸の総称である。フミン物質をアルカリ抽出し不溶性の土壌フミンを除いた後、抽出液を酸性にすると不溶性の残渣が残る。これがフミン酸である。一方、酸にも溶解する物質はフルボ酸である。フミン酸の構造は、腐食の対象となる物質、微生物の種類、温度、水中に含まれる塩分などの環境条件によってかなりの差異を生じる。このため、フミン酸の構造式は一義的には定められない。現在、研究者によっていろいろな構造が示されている<sup>6)</sup>。その一例を図2.8に示す。分子量はフルボ酸300~2,000、フミン酸1,000~5,000、土壌フミン5,000~100,000の範囲にあると言われている。

## (2) フミン酸の特性

フミン酸、フルボ酸などフミン物質は、COOH基を多く含有する。pHが増加しイオン化が進むとCOOH基が $-COO^-$ となり、負電荷の相互の反発によって分子は伸張し線状となる。一方、pHが低下しイオン化していた $-COO^-$ がCOOHとなると電荷を失い分子は凝集する。線状分子は凝集分子より粘度が高い。このような現象はフミン酸自身の濃度、電解質の濃度およびpHに依存する。

またフミン物質は、腐食が進むにつれ、土壌フミンからフミン酸、フルボ酸の順で重量あたりのCOOH基の含有量が増加する。さらに腐食が進むと鉱物化するか、あるいは堆積物の環境によってケローゲン(油母頁岩中の混合有機物)あるいは石炭様生成物に変化する。

フミン酸はかなり強い還元性を有し、実質的にFe(III)をFe(II)に還元する<sup>5)</sup>。

## (3) フミン酸と陽イオンとのイオン交換と錯形成

フミン酸やフルボ酸は天然水中では一般に $Na^+$ 、 $K^+$ 、 $Ca^{2+}$ 、 $Mg^{2+}$ のような陽イオンと結合しているが、ここに他のイオンが加えられるとイオン交換が起こる。この場合一般に一価のイオンよりも多価のイオンの方が、また、原子価が同じであれば水和イオン半径の小さいイオンの方が交換能が大きく吸着されやすい。アルカリ金属イオンであれば、 $Li^+ < Na^+ < K^+ < Rb^+ < Cs^+$ の順に交換能が大きくなる。

フミン酸やフルボ酸は金属イオンと錯体を形成する。地下水中にフミン酸が存在し、そこに放射性核種のイオンがくると地下水中の金属イオンと核種イオンのフミン酸錯体の安定度定数の違いにより、どちらのイオンが錯形成するかが決まる。金属・土壌・有機物質系の安定度定数は土壌や地下水での重金属イオンの挙動を予測する上で農学の分野で非



常に重要とみなされている。このことはそのまま陸地処分や地層処分の核種移行評価上、重要な因子の一つとなることを意味する。

次の錯形成反応を考える。



この反応の平衡定数は、

$$K = [M_j A_i] / \{[M]^j \cdot [A]^i\} \quad (2.6)$$

と書くことができる。ここに、Mは金属イオン、Aは配位子である。Kを生成定数または安定度定数、Kの逆数を解離定数と呼ぶ。フミン物質の錯形成を考える場合には、1)  $M_j A_i$  錯体と見なし金属イオンを中心に考える場合と、2)  $M_j A_i$  錯体と見なしフミン物質を中心に考える場合がある。フミン物質を扱う場合、モル濃度で整理する訳には行かないことが難点である。KはpHに依存して変化する。金属イオンの安定度定数は、EDTAのような錯形成剤に比べ、フミン酸の方が一般に小さいと言われている。フミン物質は多価陽イオンや粘土との化学的相互作用により、安定化し分解が抑制されることは良く知られている。植物への養分の供給について金属イオンのフミンへの収着と移動は重要な検討課題とされている。

アクチニド元素の陽イオンのように、高い酸化状態をとる酸は、COOH基に高い選択性を持ち、その他の官能基には多くの場合反応しない。ゆえに、COOH基に富んだフミン酸やフルボ酸は普通の地下水条件においては、重要な錯化剤となる。鉱物表面に吸着したフミン物質は、そのイオン交換性などによって溶液中のアクチニドイオンを収着する。一方、地下水中に溶存しているフミン物質は、アクチニド元素イオンなどと錯形成し、これが地層中の移行を促進することも考えられる。

#### (4) フミン物質とコロイド

コロイドとはイオンや分子サイズの粒子と重力の効果で沈殿する粒子との中間にある粒子である。コロイドには疎水性と親水性のコロイドがあるが、フミンコロイドは親水性のコロイドである。既に、(1)で述べたように、フミン物質には分子量100程度のフルボ酸から数十万程度の土壌フミンに至るまで存在するが、その直径は $1.0 \sim 0.001 \mu m$  ( $10,000 \sim 10 \text{ \AA}$ )、一方、フルボ酸はコロイドというには小さすぎる。分子量の決定には、遠心分離法、粘度測定、凝固点降下測定、蒸気圧測定、浸透圧測定、光散乱、濾過、X線回折、X線小角散乱、電子顕微鏡観察など多くの方法が知られている。

地下水中の可溶性フミン物質は、水中に含まれている金属イオン、例えば $Fe^{3+}/Fe^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ 、希土類元素イオンと錯体を形成しており、フミンコロイドとして存在している。超ウラン元素が添加されるとイオン交換により容易に擬似コロイドをつくる。3価あるいは4価の超ウラン元素はフミン酸やフルボ酸と錯体をつくと安定なコロイド錯体になると考えられている。このようなフミンコロイドあるいは擬似コロイドは、緩衝材や帯水層中で濾過され遅延される可能性もあるが、一方、錯体がコロイドや擬似コロイドを生成せ

ずに核種の移動を速める可能性もある。従って、核種移行過程を解明する上で、フミン酸の性質や、地下水条件における錯形成挙動の検討は欠くことができない重要事項である。

#### (5) 粘土鉱物と有機物質の錯形成と安定な凝集体の形成

粘土はフミン酸やフルボ酸を安定化させる傾向を持つ。有機物は粘土の微粒子間の架橋結合に関与する。この結果、安定な集合体を形成する。粘土は収着した有機物の係わる反応の媒体として働く。

土壌中の粘土鉱物は、大きく次の4種類に分類できる。すなわち、1) バーミキュライト、2) モンモリロナイト、3) イライト、4) カオリナイトである。陽イオン交換能はバーミキュライトとモンモリロナイトが最も高く、イルイト、カオリナイトの順に低下する。土壌中に有機物質が存在する化学形態としては、不溶性のフミン酸やフルボ酸錯体、Ca、Fe、Alなどの多価イオンと結合したフミン酸やフルボ酸、粘土鉱物に有機物質が収着する場合、陽イオン交換を通じて粘土/金属イオン/フミン物質からなるブリッジを形成した存在、この他、水素結合やファン・デル・ワールズ結合が関与する場合もある。また、モンモリロナイトなどの膨潤する層間に入り込む形で存在することが知られている。通常、粘土は陰電荷を持っているので、高分子陽イオンとなっているフミン酸やフルボ酸だけがモンモリロナイトに吸着する。フミン酸はFe、Alなどの多価イオンを吸着させることによって、モンモリロナイトに吸着する。これらは、フミンと粘土の結合の橋渡しをしている。

#### (6) 分光学的検討

紫外部(200-400 nm)、可視部(400-800 nm)では原子・電子の振動スペクトルに関する情報が得られる。酸素、硫黄、ハロゲン、 $-C=C-$ も吸収する可能性がある。しかし、フミン酸の黒ずんだ色が何によるかははっきり特定されていない。

赤外線スペクトルは、分子構造、特に酸素を含む官能基、タンパク質の存在が反映されているため、有力な研究手法の一つである。金属イオンや粘土の存在をはじめ無機不純物の存在が分かる。ESRスペクトルも有用である。フミン酸は安定な遊離基を有していることが特徴であることが明らかになっている。そのほか、NMRを用いた研究手法もある。

### 2. 4. 2 実験結果の考察

前節ではフミン酸の諸特性について簡単に整理した。これらの知見を参考にしながら実験結果について考察する。

#### [1] フミン酸の存在下におけるSrの花崗岩への収着に対する時間依存性

結果でも触れたように図2. 3を見る限り収着平衡に達するには数十日の接触期間では充分ではない。バッチ法による花崗岩に対する $Sr^{2+}$ の収着実験では1日以内、アクチニドの収着実験が1週間程度で、一応の平衡になるのに対して、フミン酸が存在する場合はさらに時間がかかることが分かった。このことは、後にも述べるが、フミン酸による錯形

成、凝集化過程、金属イオンによるフミン酸の会合過程、金属イオンを介しての岩石表面とフミン酸との架橋形成反応、フミン酸の酸化や加水解離等多くの過程があり、平衡に達するのに時間がかかるものと考えられる。この点については今後の検討が必要である。

## [2] フミン酸の存在下における見かけの収着係数に与える pH の影響

3日間の接触攪拌実験終了後の図2.4の結果を四つのpH域に分けて整理する。

1) pH 4以下: Srイオンはフミン酸にあまり収着されず、図1.8からも分かるように収着係数も小さいことから岩石にも余り収着されない。このことはフミン酸の-COOH等が未解離となり凝集化しSrイオンはフミン酸錯体を形成しにくくなったものと考えられる。この時、Srイオンはいずれにも収着されることなく水溶液中に比較的安定に存在しているものと考えられる。

2) pH 4~7: 0.8 μm以上の凝集した大きなフミン酸がSrイオンの大半を収着する。また、Srイオンがフミン酸の凝集に主要な役割をはたしている可能性も考えられる。このときの収着係数はフミン酸を含まない場合に対する図1.8に見られる収着係数とほぼ同じ程度の値であり、またpHとともに同程度に増加している。このことはSrイオンを収着したフミン酸が溶液中に浮遊するとともに、図2.8の下の図に見られるように花崗岩構成鉱物にも収着していると考えられる。

3) pH 7~8: 0.8 μm以下のフミン酸がSrイオンを収着する割合が高くなる。このとき、フミン酸を含まない場合に対して示した図1.8においては花崗岩に対するSrイオンの収着係数はlog KdとしてpH増加とともに直線的に増加している。しかし、図2.4の結果は、収着係数が逆に減少することを示している。このことは、このpH領域において花崗岩構成鉱物に比べ、0.8 μmよりもサイズの小さいフミン酸に対するSrイオンの収着が進み、水相に存在して収着係数が頭打ちになったと考えられる。Srイオンを収着したフミン酸の鉱物への収着も顕著ではないと思われる。

4) pH 9以上: フミン酸はSrイオンを収着している可能性はあるが0.2 μm以上のフミン酸はほとんどSrを収着していない。しかし、図1.8の収着係数の値に比べ、フミン酸存在下での収着係数はpHの増加とともに増加しておらず、Srイオンは水相中に存在していることを示している。このことは比較的小さいフミン酸がSrイオンを収着して水相に存在しているものと考えれば説明がつく。

## [3] Sr濃度依存

図2.6にフミン酸を含む系と含まない系の収着係数をSr濃度に対して示す。この結果から分かるように、フミン酸を含む系の収着係数は含まない系の収着係数に比べ広いSrイオンの濃度範囲で小さい値となっており、収着係数へのフミン酸の影響が認められる。また、Sr濃度30 ppm以下では収着係数はほぼ一定であり、比較的小さいサイズのフミン酸がSrイオンを収着していることが分かる。一方、30 ppm以上では収着係数は減少するが、ここでは大きなフミン酸がSrイオンを収着し、収着係数に影響を与えてい

ることが分かる。このことは、むしろSrがフミン酸に収着されるとともにフミン酸同士を結合させサイズを大きくする働きをしていることを意味していると考えの方が妥当であろう。

## 2. 5 まとめ

花崗岩に対する見かけのSrイオンの収着係数に与えるフミン酸の影響については、pH 7以上の領域で顕著である。また、実験を行った広い範囲のSrイオン濃度（1～1000 ppm）で収着係数に与えるフミン酸の効果がはっきり見られた。

フミン酸は金属イオンと錯体を形成する。Ca<sup>2+</sup>がフミン酸錯体を形成することが知られており、地下水に存在するCa<sup>2+</sup>よりも水和イオン半径の小さいSr<sup>2+</sup>は更に安定な錯体を形成し、選択的にフミン酸に収着されるものと考えられる。また、粘土がフミン酸を安定化することは良く知られているが、岩石表面もこのような傾向を有するものと思われる。フミン酸は、1) 溶液中のSr<sup>2+</sup>を錯形成により捕獲し溶液中での自由なSr<sup>2+</sup>イオンの濃度を低下させるとともに、溶液中での見かけのSr濃度を増加させる役割（岩石のみかけの収着係数低下に寄与）を有する。2) 岩石表面は通常の処分条件でのpHでは負電荷を有しており、この点フミン酸も同様である。従って、Sr<sup>2+</sup>は両者の橋渡し役として働き、負電荷同士の反発力をやわらげることにより、フミン酸やSr<sup>2+</sup>を取り込んだフミン酸を岩石表面に収着させる役割（岩石の収着係数増加に寄与）を有する。pH 7～10で、フミンが存在しない場合のSr<sup>2+</sup>の収着係数は、10～20 ml / g程度であり、一方、図2. 4から分かるようにフミン酸を含む系では1～2 ml / gであり、フミン酸を含む系の収着係数は1桁小さい。このことは、1) による見かけの収着係数の低下の効果が2) による増加の効果より支配的であることを示している。しかし、酸性側のpH 4～5では1) と2) の効果はともに弱いか打ち消し合い、フミン酸の存在によるSrの収着係数への影響は小さい。

Srイオン濃度が高くなるにつれて、また、pHが低くなるにつれて、液相に沈殿が生じた。沈殿を生じる領域つまり高濃度のSr、低pHにおける0.2 μm以上のフミン酸へのSrの収着割合は0に近づいている。従って、この領域では0.2 μm以上のフミン酸はほとんど系に影響を与えていないように見える。一方、Kdは確実に減少している。このことは、Srの濃度依存実験において液相中にSrの真性イオンが増加したこと、また、pH依存実験において花崗岩の表面のゼロ電荷点が約pH 2であることから、花崗岩表面の負電荷の密度が減少してSrが花崗岩に収着しづらくなったものと説明できるであろう。

一口に粒径といっても、純粋なフミン酸粒子、Srを収着した粒子、Srが複数のフミン酸の架橋となっている粒子、細長い粒子など様々であろうが、各粒径のフミン酸に収着したSrの割合がピークという形で現れた。このことは、フミン酸がSrを吸着しやすい最適条件（例えば、Sr濃度依存実験を例に取れば、0.8 μm以上のフミン酸ならば、

Sr濃度100ppmで最もSrを収着しやすい性質を持つ)が存在することを意味しており興味深い。

本研究では実験室での研究により核種移行挙動に与えるフミン酸の影響について検討した。まだ、この分野は放射性廃棄物の処分に関する観点からは、特に我国においてはほとんど研究されていない。今後フミン酸の挙動についてますます研究が盛んになる必要があるが、これとともにフルボ酸や土壌フミンについても、収着にどの程度寄与するか検討する必要がある。

#### 参 考 文 献

- 1) NAGRA, Project Report NGB85-09, "Nuclear Waste Management in Switzerland; Feasibility Studies and Safety Analysis", Baden Switzerland (1985).
- 2) 菅野卓治、"核種移行におけるフミン物質とコロイドの影響"、放射性廃棄物管理専門研究会報告書; KURRI-TR361, 49-67(1991).
- 3) (財)原子力環境整備センター編、"土壌と土壌溶液間の放射性核種の分配係数"、環境パラメーター・シリーズ2(1990).
- 4) V. Moulin and D. Stammose, "Effect of Humic Substances on Americium(III) Retention onto Silica", in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XII, 723-727(1989).
- 5) N. Paxeus, B. Allard, U. Olofsson and M. Bengtsson, "Humic Substances in Ground Waters", in Scientific Basis for Nuclear Waste Management IX(1986).
- 6) F. J. Stevenson, "HUMUS CHEMISTRY", John Wiley & Sons, New York(1982).

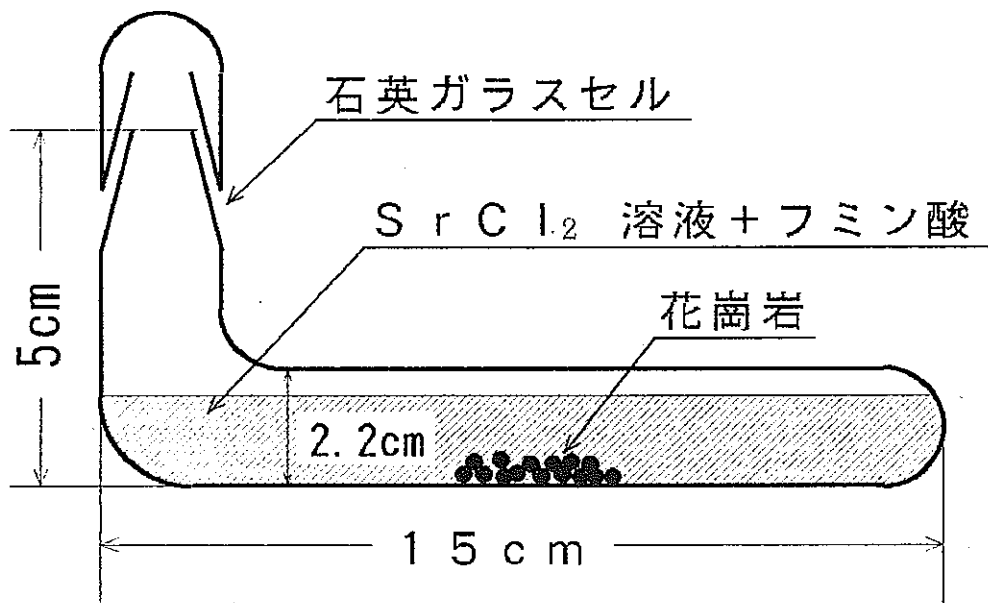


図 2. 1 実験で用いた石英ガラスセル

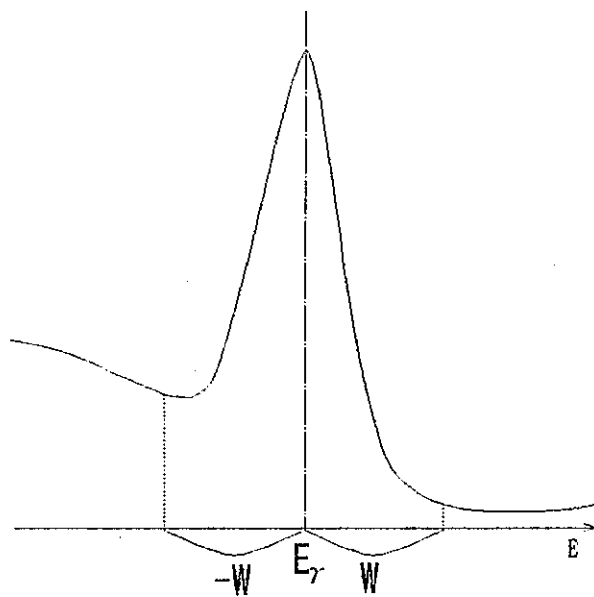


図 2. 2 シンチレーションカウンターを用いた  
γ線計測に関するウインドウの設定

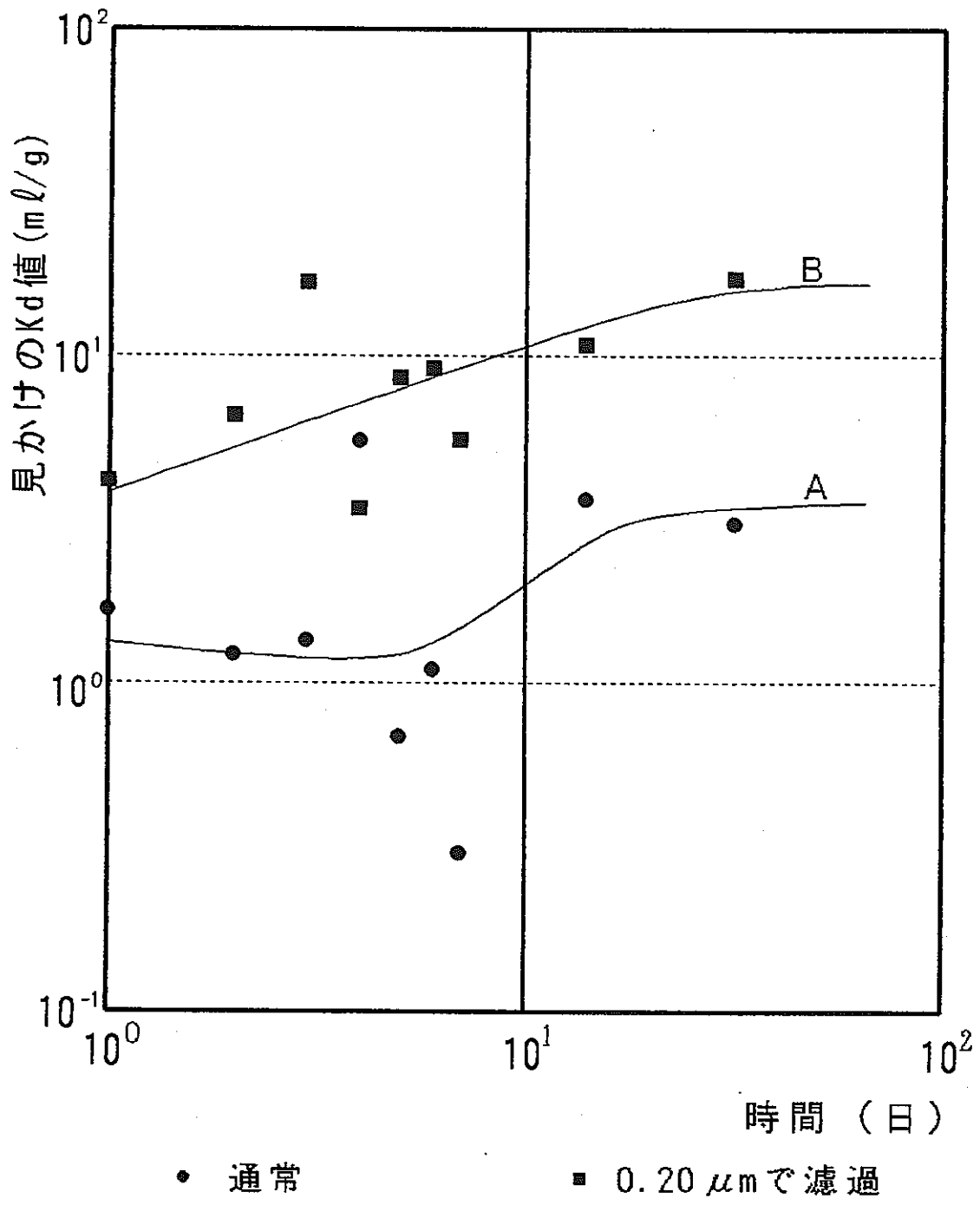
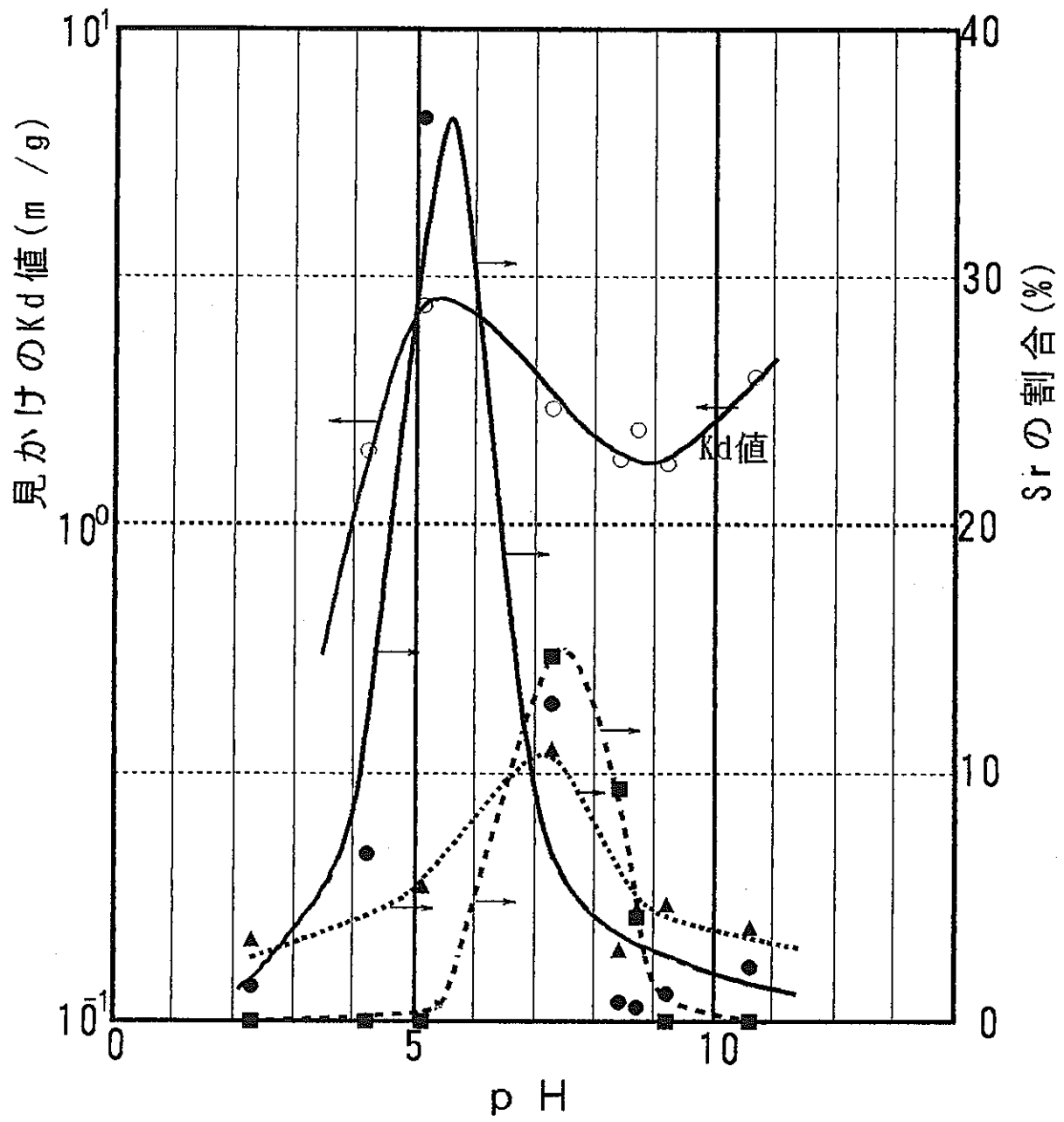


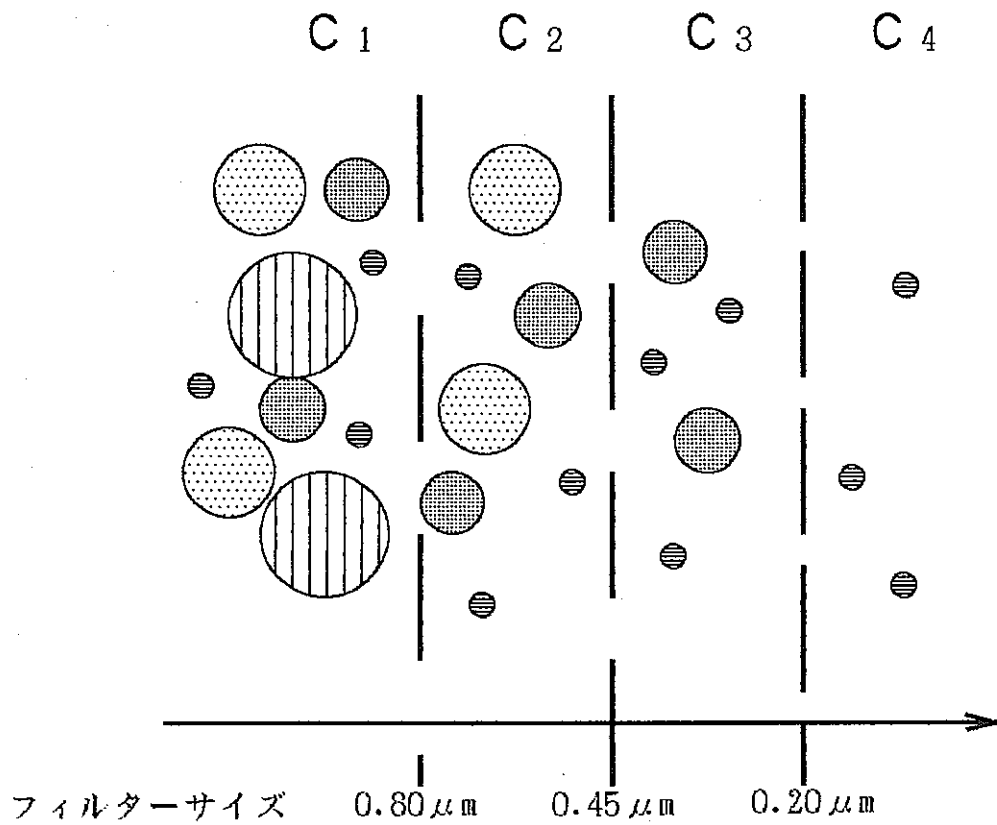
図2.3 Srの花崗岩に対するみかけの取着係数の時間依存



● 0.80  $\mu\text{m}$ 以上   ■ 0.45-0.80  $\mu\text{m}$    ▲ 0.20-0.45  $\mu\text{m}$   
 ○ 見かけの $K_d$ 値

図2.4 Srの花崗岩に対するみかけの取着係数のpH依存





フミン酸の粒径について

0.80 μm以上	...	C1-C2	} により求めた
0.80 μm < 粒径 < 0.45 μm	...	C2-C3	
0.45 μm < 粒径 < 0.20 μm	...	C3-C4	

図2. 5 3種類の孔径の異なるフィルターを用いての  
大きさの異なるフミン酸分離の概念図

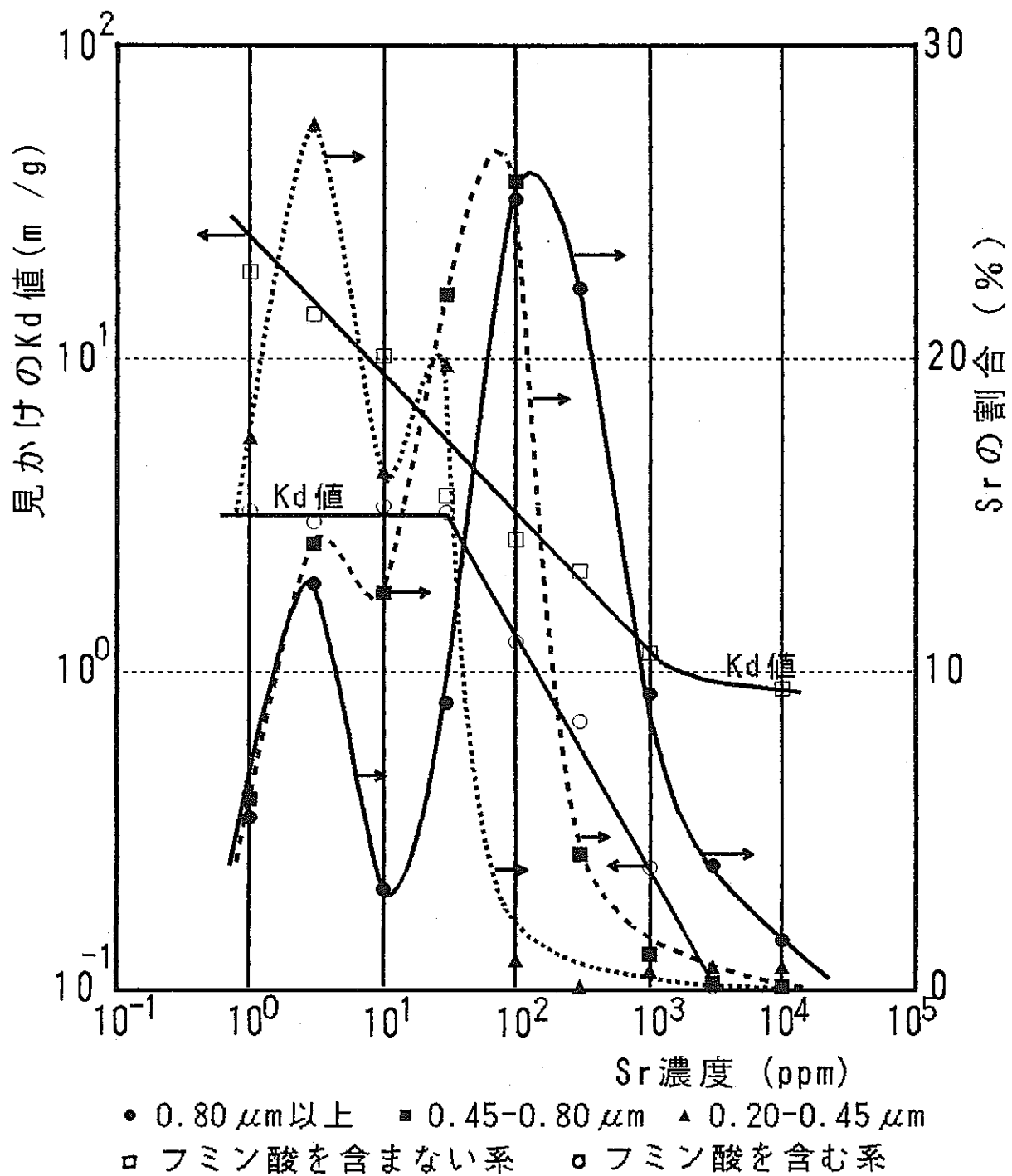


図2. 6 Srの花崗岩に対するみかけの収着係数のSr濃度依存

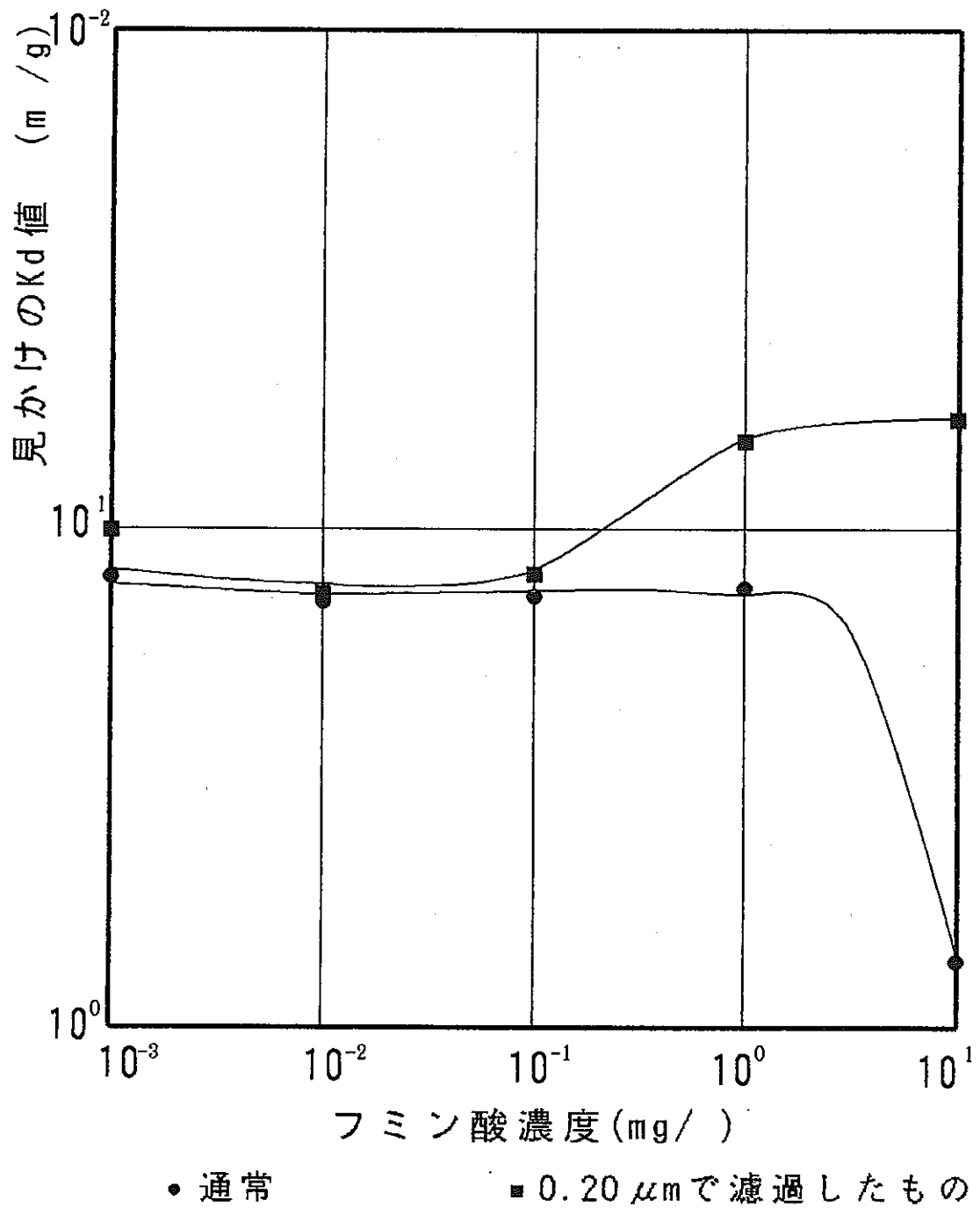


図2. 7 Srの花崗岩に対するみかけの取着係数のフミン酸濃度依存

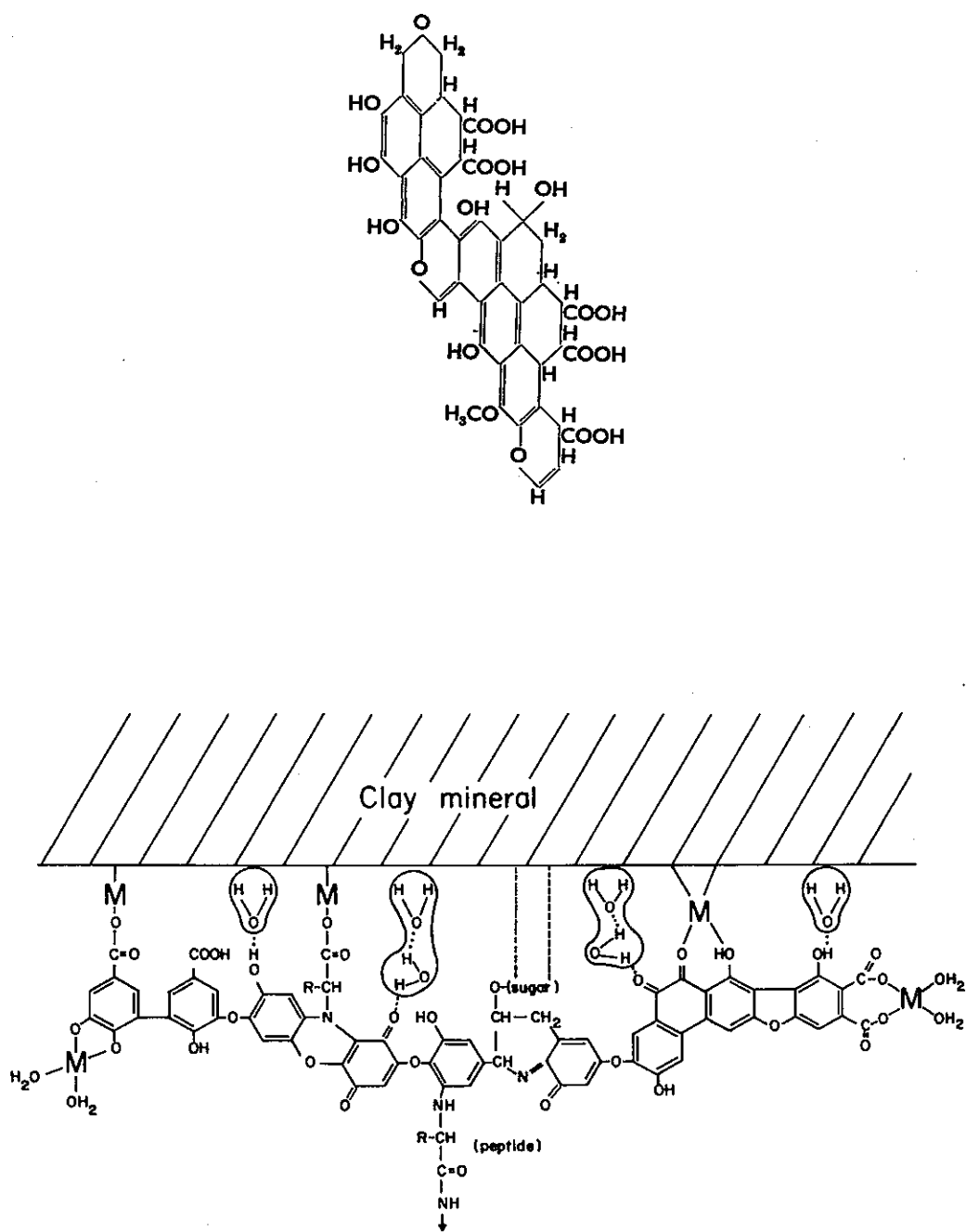


図2. 8 フミン酸の一例（上）と、フミン酸が金属イオン等を介して粘土鉱物に取着的している状態を示す概念図（下）

# 第3章 放射性廃棄物の地層処分に対する EPAの環境影響評価モデル

## 3.1 はじめに

### 3.1.1 経緯と背景

本章は、「地層処分場における高レベル放射性廃棄物の処分による集団への健康の影響を評価するための環境経路モデル」(EPA/520/5-85-026, TI86 901474; J. Michael Smith, Ted W. Fowler and Abraham S. Goldin: Environmental Pathway Models for Estimating Population Health Effects from Disposal of High-Level Radioactive Waste in Geologic Repositories, U.S. Environmental Protection Agency(August 1985))を抄訳したものである。本報告書には、高レベル放射性廃棄物の処分場から環境へ漏れ出る放射性核種による集団への将来のガン死亡率を推定するためにEPAが使った方法が述べられている。特に言及しない限り、ここでは“超過の”ガン死亡率、すなわち、放射線レベルを高めることおよびこれに他の原因によるものを加えることによってひき起こされるガン死亡率を推定している。これらのガン死亡率を推定するための数学モデルを提示した。接近可能な環境に放出されたいくつかの放射性核種の1Ci当りの致死ガンの推定値は、EPAの高レベル廃棄物基準において放出限度(Ci)を定めるのに使う必要があり、この推定値は3.6節に示した。

ここで、集団環境線量(ここでは簡単のために、“線量当量”を“線量”ということにする)預託を算出するために他の人々によって用いられた方法と矛盾がない方法で集団ガン死亡率の推定値を得た。それらとの相違は、ここでの計算において線量換算係数の代りにリスク換算係数を用いたことである。したがって、3.3節に与えられている式は、環境線量預託よりもむしろ集団“環境リスク預託”を決定するために使われる。環境リスク預託を示すために使われる記号は $FHE_{n,p}$ で、添字のnは放射性核種を、pは経路を示す。

環境線量預託は、ICRP勧告、Pub. 26(ICRP77)および「電離放射線の発生源と影響」という報告書(UN77)に使われているように、集団線量預託Sと同等である。数学的には、環境線量預託は

$$S = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} D' N(D', t) dD' dt \quad (3.1.1-1)$$

と表される。ここで $D'$ は線量預託率で、 $N(D', t) dD'$ は時間tにおいて $D'$ と $D'+dD'$ の間にある線量預託率を受ける人の数である。不完全な集団線量預託 $S(t)$ は、

$$S(t) = \int_0^t \int_0^\infty D' N(D', t'') dD' dt'' \quad (3.1.1-2)$$

のように定義される。ここで使われているように、“線量預託率”は内部被曝の場合の摂取による個人への50年間の線量預託率、あるいは外部被曝の場合には、単純に年間線量率を意味する。この評価においては、問題となる集団は期間tの間一定と仮定される全世界の集団である。特に、ここでは

$$\int N(D', t) dD' = N(t) = 10^{10} \text{人} \quad (\text{UN77}) \quad (3.1.1-3)$$

と仮定する。

これ以外の他のEPA報告書では、線量評価とEPAの高レベル廃棄物基準に対する健康上のリスク解析について論じている(EPA85a、EPA85b)。これらの報告書においては、処分場から放射性核種を放出する種々のシナリオに対する個人および集団のリスク評価を論じている。リスク評価報告書(EPA85a)では、EPAの基準に含めるための処分場放出限度を決めるために使われたリスク評価について論じている。

### 3. 1. 2 考察した経路

これらの解析では廃棄物処分場からの放射性核種の放出について四つの一般的なモード、すなわち、河川への放出、海洋への放出、地表面への放出および廃棄物処分場と火山あるいは隕石との相互作用による放出を考察した。河川、海洋あるいは地表面への放出は多数の事象によって引き起こされる。たとえば、処分場へ至る掘削孔を穿孔すると地下水が放射性廃棄物から放射性核種を浸出することが考えられる。放射性核種は河川へ、さらに続いて海洋へ移動することになる。このシナリオの変形されたものは、穿孔による放射性核種の地表面への直接放出であろう。火山の噴火あるいは隕石の衝突は上述の事象より起こる確率が低い。このクラスの事象は一般に地表面および空気中へ直接放射性物質を激しく放出させることになる。これらの4放出モードは、表3.1.1に示すようにさらに全部で30経路に分けられる。

### 3. 1. 3 計算方法

各々の特定経路の解析目標は、接近可能な環境へ放出される核種の1単位当り、時間tまでに与えられる集団ガン死亡率を推定することである。規格化された値が核種と経路の関数として決められた後に全経路での和を求めることになる。結果は一つの放出モードに対する標準化ERC(環境リスク預託)で、これは核種のみ関数である。このようにして、各々の新しい事象に対して“再解析”することなく、処分場から生物圏への放出に至る各種のシナリオに対する全ERCの予測にこれらの規格化されたERCを使うことができる。

経路計算モデルの作成には、処分場からの放射性核種の漏出機構の適用とこれらの放射

性核種の環境への分散をひきおこす過程の予測が含まれる。これらのモデルと方法は、3.2節および3.3節においてより詳細に論じることとする。一般に、経路方程式では、物質が処分場に定置された時から、将来の時間  $t$  までに被曝するすべての人に対するリスクを積分すると、不完全な環境リスク預託を与える。概念的には、不完全な環境リスク預託、 $ERC(t)$  は 3.1.1-2 式と同様にして、

$$ERC(t) = \int_0^t \int_0^\infty R' N(R', t) dR' dt \quad (3.1.3-1)$$

と定義される。ここで、 $R'$  はリスク預託率、 $N(R', t) dR'$  は時間  $t$  において  $R'$  と  $R' + dR'$  の間のリスク預託率を受ける人の数である。

### 3.2 ソースターム

ここでは、単純な移行モデルを用いて、処分場から接近可能な環境への放射性核種の移動を推定する。四つの放出モードに対するソースタームモデルの作成に当たっては異なるシナリオを適用する。放出モデルのあるものに対しては、環境への放出を決定するための幾つかの異なる数学モデルが可能である。本報告書においては、各放出モードに対して唯一の放出モデルを取り扱った。他の放出モデルに対する環境経路計算は本報告書において論じられた方法と同様にして取り扱われるであろう。ソースタームについてのさらに完全な議論はリスク評価報告書 (EPA 85 a) に含まれている。

#### 3.2.1 河川ソースターム

河川経路に対しては、放射性核種は定置後の最初の遅延期間  $t_{d,r}$  の間処分場に留まると仮定する。その後、処分場は破損し、放射性核種は処分場から移動し、最終的には河川に至ると仮定する。浸出しやすさ、処分場での水の流れ、放射性核種を含む化合物の溶解度、埋め込んだ廃棄物からの発熱、放出を引き起こす事象の種類など、処分場からの放射性核種の移動速度を決定する機構には異なるものが幾つかある。放出シナリオに対して特定の放出を得る方法はリスク評価報告書 (EPA 85 a) において論じられる。本報告書においては、浸出速度に支配される放射性核種移動モデルを用い、典型的な河川環境移動方程式を説明する。幾つかの他の放出モデルも考えられるが、この“浸出支配”モデルは、かなり簡単でありかつ閉じた形の環境経路方程式を導くので、選ばれた。

各河川経路に対する人の全摂取量は、河川中の放射性核種の全量 (すなわち濃度積分値) に比例すると考えられる。それゆえ、積分できるように、河川への放射性核種の時間依存流入速度を明らかにしなければならない。処分場が破損し、地下水が処分場を循環し放射性核種を周辺環境へ浸出し、最終的にはさらに時間  $t_{r,a,n}$  が経過した後、帯水層へ至ると仮定する。帯水層への各放射性核種の時間依存の流入速度  $Q'_{a,n,p}(t)$  を記述する放射性核

種に固有のソースターム方程式は

$$Q'_{anp}(t) = \lambda_{Ln} f_L Q_{on} \exp[-\lambda_{Dn} t - \lambda_{Ln}(t - t_{er} - t_{ran})] \quad (t > t_{er} + t_{ran})$$

$$Q'_{anp}(t) = 0 \quad (t \leq t_{er} + t_{ran}) \quad (3.2.1-1)$$

と表される (図 3.2.1 参照)。帯水層は、河川系と交わるまでの代表的な距離だけ地下を流れる。帯水層に流入する放射性核種は、遅延時間  $t_{arn}$  の後河川に到達すると仮定した。河川への放射性核種の放出速度に対する方程式は、単純には前に述べた帯水層に流入する放射能のソースターム (3.2.1-1 式) を帯水層への流入点から河川へ各放射性核種を移動させるのに必要な追加の時間  $t_{arn}$  だけ修正したものである。つまり、河川ソースターム  $Q'_{np}(t)$  は時間の関数として  $C_i / y$  (年) で表した放射性核種  $n$  の河川への流入速度である。浸出支配の場合の  $Q'_{np}(t)$  に対する方程式は、

$$Q'_{np}(t) = \lambda_{Ln} f_L Q_{on} \exp[-\lambda_{Dn} t - \lambda_{Ln}(t - t_{er} - t_{ran} - t_{arn})] \quad (t > t_{er} + t_{ran} + t_{arn})$$

$$Q'_{np}(t) = 0 \quad (t \leq t_{er} + t_{ran} + t_{arn}) \quad (3.2.1-2)$$

のようになる。図 3.2.2 は河川への放出速度を示している。

後の計算では、時間  $t$  までに河川へ流入した放射性核種の全量 (積分値)  $Q_{np}(t)$  を必要とする。この量は方程式

$$Q_{np}(t) = \int_0^t Q'_{np}(t'') dt'' \quad (3.2.1-3)$$

を用いて決定できる。3.2.1-2 式を 3.2.1-3 式に代入して積分すると

$$Q_{np}(t) = [f_L \lambda_{Ln} Q_{on} / (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln})] \times \{ \exp[-\lambda_{Dn} t_{Rn}] - \exp[\lambda_{Ln} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) t] \} \quad (t > t_{Rn})$$

$$Q_{np}(t) = 0 \quad (t \leq t_{Rn}) \quad (3.2.1-4)$$

が得られる。ここで、 $t_{Rn} = t_{er} + t_{ran} + t_{arn}$  である。ひとたび、河川へのソースタームが決められると、河川中での放射性核種の濃度を計算できる。これらの計算は 3.3.1 において述べる。

### 3.2.2 海洋ソースターム

海洋経路モデルに対しては、廃棄物処分施設からの放射性核種が河川系を経る移動によってのみ海洋に到達すると仮定する。また、次の仮定も行う。

- 1) 海洋までの河川移動時間は小さいので放射性核種の崩壊は無視できる。
- 2) 灌漑と堆積による除去による河川中の崩壊核種の減少は無視できる。(この仮定は、



灌漑と堆積が河川中での放射性核種の一部を除去するので、海洋へ到達する放射性核種の量について安全側の評価を可能にする。)

これらの仮定を考慮すると、海洋と河川では放出のソースタームは一致する。浸出支配の場合の海洋放出モードに対する放出速度および積分放出量はそれぞれ3.2.1-2式および3.2.1-4式によって与えられる。海洋中の放射性核種濃度の計算は3.3.2において述べる。

### 3.2.3 地表面ソースターム

河川および海洋放出モードに対しては、使用されたソースタームモデルが廃棄物処分場で漏洩が始まった後の生物圏への放射性核種の連続的な長期放出を予測する。地表面放出モードに対して仮定された事象は、処分場への井戸の掘削など、処分場から放射性核種を短期間に地表面へ直接もたらすようなものである。これらの事象では、処分場へ廃棄物を定置した後の時間 $t_L$ に地表面へ処分場の内容物の一部分 $f_{LS}$ を瞬時に放出させると仮定する。この放出は小さな区域で起こると仮定でき、地面から空気中への再浮遊およびその後の周辺地域への再分布の計算に対しては点源と考えることができる。地表面放出モードに対するERCの経路解析は3.3.3節において述べる。

### 3.2.4 火山/隕石相互作用ソースターム

激しい火山の爆発あるいは隕石の衝突は短期間に処分場から物質を解放する。この物質の一部分 $f_{LL}$ は直接地表面へ行き、残りは直接空気中へ放出される。地表面へ放出されたものは小さな区域に分布すると保守的に仮定され、環境におけるこの物質の再分布を取り扱うための方法論は地表面放出に対して用いられたものと一致する。空気中へ放出された物質は分散し、最終的には、対流圏に一様に分布する。空気中の物質は、全地球の面積に対する陸地面および水面の割合を用いて陸上の割合 $f_{AL}$ および水上の割合 $f_{AW}$ に分けられる。環境における放射性核種の分布を予測し、火山/隕石放出モードに対するERC経路を解析するために用いられた方法論は3.3.4節に述べる。

## 3.3 環境移行とリスクモデル

本節には、各経路に対する環境リスク預託(ERC)を算定するために使われる特定の数学モデルと各モデルに対する理論的根拠が含まれている。モデルを適用する際に用いたデータの出典は3.4節と3.5節において論ずる。

これらの解析において用いられたモデルは単純なものであるが、それらは一般的に適用できる環境基準を設定するのに適当であると信じている。あるパラメータには大きな不確実性が存在する。このためにさらに洗練されたモデルを適用するのは適切ではないであろう。可能な時には、現存のさらに詳細なモデルの評価の最終結果が使われる。

これらの環境経路モデルの作成に当たって、現実的仮定であると考えられるものをできるだけ使うこととした。保守的な仮定を使う時には、影響される経路モデルの議論において指摘することにする。一つの潜在的に保守的な仮定、すなわち、被曝集団に対するリスクを評価するための、1次のしきい値なしという仮定を使う環境リスク預託の算定は、すべての環境経路モデルに影響する。これらの計算を行うための手順は、そのあるものは極めて低い線量当量率である全被曝集団に対するリスクの計算を含む。それ以下では線量当量が致死ガンのリスクをもたらさないしきい値があるかもしれない程度までは、これらの計算は保守的である。しかしながら、1次のしきい値なしという理論は、しきい値の存在が証明されていないので、慎重な仮定である。これは主として放射線防護の分野においてすべての規制当局によって利用されている。

次節において議論される方程式は、30経路に対して接近可能な環境に放出された放射性核種の1単位当たりの規格化された集団環境リスク預託に対するものである。すなわち、すべての経路に対して、放出された放射能の1単位当たりの致死ガン（すなわち“標準化された”致死ガン）の可能性を算出する。これは、規格化された放射性核種の摂取量に内部経路（吸入もしくは摂取）に対する適当な内部致死ガンのリスク係数を掛け、また、外部経路（地表面からの照射による被曝あるいは空気サブマージョン）に対する適当な外部致死ガンのリスク係数を掛けることによって行われる。本報告書においては、内部および外部致死ガンリスク係数を $FCF_{np}$ （放射性核種 $n$ および経路 $p$ に対する致死ガン係数）によって示す。

一つの放出モード内の種々の経路に対するガン死亡率を加算して、特定放射性核種に対して接近可能な環境へ放出された1単位当たりの全致死ガン数を得ることができる。この過程に対する数式は、

$$FHE_n/Q_n = \sum_p [ \{RIE_{np}/Q_{np}\} (FCF_{np}) ] \quad (3.3.1-1)$$

と書くことができる。ここで、経路 $p$ に関する積分は放出モードに含まれるすべての経路について行われる。

### 3.3.1 河川への放出

#### 3.3.1.1 一般的考察

処分場から河川への放射性核種の放出量を決める方法は、3.2.1節において考察された。河川の放射性核種の濃度は、年平均放射性核種ソースターム（放出量）を平均河川流量によって割ることによって算定される。河川からの放射性核種は、飲料水と淡水魚の摂取、灌漑経路（食用作物、牛乳および牛肉を含む）、再浮遊放射性物質の吸入および地表面および空気からの直接放射線線量によって特定地域集団（地域住民）を被曝する。

これらの経路に対するERCの評価においては、堆積による河川からの放射性核種の除

去を考慮しなかった。ある種の放射性核種がゆっくり流れている河川および湖沼において堆積物に沈着し、また短期間の間には、堆積が河川水の濃度を下げることについては全く疑問がない。しかしながら、この計算で考察した長期間においては、大きな洪水（100年毎および1000年毎の洪水）が起こり、沈着した放射能の多くが堆積物から再浮遊して農地に分配されるかもしれない。このため、また、堆積とその後の洪水の際の再浮遊のモデリングに伴う困難のために、保守的な立場をとることとし、堆積による河川からの放射性核種の消失をモデルには入れなかった。また、すべての河川が汚染されており、河川の付近のすべての人々が放射線リスクを受けると保守的に仮定した。

### 3. 3. 1. 2 飲料水の摂取 [経路番号 (p) = 1]

集団に対する飲料水の供給は河川、湖沼あるいは地下水源から行われる。選ばれた帯水層は高レベル廃棄物処分場からの放射性核種の浸出により汚染されているかもしれないが、処分場は飲料に適する地下水の供給点から十分離れて立地されており、かなりの数の重要な集団に対する飲料に適する地下水の汚染は避けられていると考える。つまり、汚染された飲料水は河川若しくは湖沼からのみ来ると仮定している。この解析のために選ばれた長期間に対しては、湖沼と河川の水質は等しい。つまり、この解析では集団による河川水の摂取のみに限定して考えている。

個人に対する年間のリスク預託 ( $RIV'_{np}$ ) は、飲まれた河川水の量 ( $I_w \cdot f_{sw}$ )、飲料水中の放射性核種濃度 ( $Q'_{np} \cdot f_{wt}/R$ )、およびリスク換算係数 ( $FCF_{np}$ ) の積によって与えられる：

$$RIV'_{np} = Q'_{np} I_w FCF_{np} f_{sw} f_{wt} / R \quad (3.3.1.2-1)$$

年間集団リスク預託 ( $FHE'_{np}$ ) は、年間個人リスク預託と水を飲む人の数の積として表すことができる。すなわち

$$FHE'_{np} = RIV'_{np} P_R = Q'_{np} I_w FCF_{np} f_{sw} f_{wt} P_R / R \quad (3.3.1.2-2)$$

である。この式の中で時間依存項は  $Q'_{np}$  だけである。この式を時間に関して積分すると、

$$FHE_{np} = Q_{np} I_w FCF_{np} f_{np} f_{wt} P_R / R \quad (3.3.1.2-3)$$

が得られる。ここで、

$$\int_0^t FHE'_{np}(t'') dt'' = FHE_{np} \quad (3.3.1.2-4)$$

$$\int_0^t Q'_{np}(t'') dt'' = Q_{np} \quad (3.3.1.2-5)$$

である。

3. 3. 1. 2 - 3 式の両辺を河川への放出量の総和  $Q_{np}$  によって割ると、

$$FHE_{np}/Q_{np} = P_R I_w F C F_{np} f_{sw} f_{wt} / R \quad (3.3.1.2-6)$$

が得られる。

これらのパラメータ値を得た後、3.3.1.2-6式を用いて河川水の摂取による集団への規格化されたERCを算定する。パラメータ値は3.4節と3.5節において述べられている。このモデルには水処理プラントによって核種の除去するという項が含まれているが、修正係数 $f_{wt}$ はこれらの解析では使われなかった。これは保守的な仮定である。

### 3.3.1.3 淡水魚の摂取 (p = 2)

個人に対する年間のリスク預託は、食用になった魚の量 ( $I_f$ )、河川水中の放射性核種の濃度 ( $Q'_{np}/R$ )、水中濃度に対する魚の中の放射性核種の濃度を表す濃縮係数  $CF_{np}$ 、およびリスク換算係数 ( $FCF_{np}$ ) によって与えられる：

$$R I V'_{np} = Q'_{np} C F_{np} I_f F C F_{np} / R \quad (3.3.1.3-1)$$

ある放射性核種に対しては、魚の濃縮係数は、魚の筋肉（食用になる組織）中の放射能だけよりもむしろ魚全体の全放射能に基づくとしてもよい。放射性核種が食用にならない魚の部分に濃縮しがちな場合には、 $CF$ 係数は保守的に高い。

年間集団リスク預託は、年間個人リスク預託と魚を食べる人の数の積によって表される。

$$FHE'_{np} = R I V'_{np} P_{FF} = Q'_{np} C F_{np} I_f F C F_{np} P_{FF} / R \quad (3.3.1.3-2)$$

この式を、飲料水経路に対する手順と同様に、時間に関して積分すると、

$$FHE_{np} = Q_{np} C F_{np} I_f F C F_{np} P_{FF} / R \quad (3.3.1.3-3)$$

となる。ここで、 $FHE_{np}$ と $Q_{np}$ を得る方法は3.3.1.2-4式と3.3.1.2-5式に与えられている。3.3.1.3-3式の両辺を河川への積分放出量 $Q_{np}$ で割ると、

$$FHE_{np}/Q_{np} = C F_{np} P_{FF} I_f F C F_{np} / R \quad (3.3.1.3-4)$$

が得られる。

この集団の食用になる淡水魚はすべて河川から来ると仮定しているため、この式は河川からの淡水魚に対するものである。飲料水経路と同様に、この仮定のため湖沼からの魚の消費に対する経路は無視される。3.4節と3.5節のデータを用いて、3.3.1.3-4は淡水魚の摂取による集団へのERCを算定するのに使うことができる。

### 3.3.1.4 食物摂取

食用作物 (p = 3)、牛乳 (p = 4)、牛肉 (p = 5)

灌漑された土地で栽培された食物による個人への年間リスク預託は、河川水中の放射性核種の濃度 ( $Q'_{np}/R$ )、灌漑水量 ( $W$ )、地表への単位沈着量当たり個人による放射性核種の取り込み量を表す換算係数 ( $R I_{np}$ ) およびリスク換算係数 ( $FCF_{np}$ ) の積である：

$$R I V_{np} = Q'_{np} W \cdot R I_{np} F C F_{np} / R \quad (3.3.1.4-1)$$

年間集団リスク預託は年間個人リスク預託と灌漑された土地で栽培された特定食用作物で養われている人の数の積である。灌漑された食用作物を食べている集団の大きさは、単位面積当たりの食用作物によって養うことのできる人の数 ( $C P_p$ )、灌漑された土地の面積 ( $A$ )、特定作物に対して使われた灌漑された土地の割合を表す荷重係数 ( $f_p$ ) を掛けて決定できる：

$$P_{Fp} = C P_p A \cdot f_p \quad (3.3.1.4-2)$$

したがって、年間集団リスク預託は

$$F H E'_{np} = R I V'_{np} P_{Fp} = Q'_{np} W \cdot R I_{np} F C F_{np} C P_p A \cdot f_p / R \quad (3.3.1.4-3)$$

となる。この式を時間に関して積分すると、

$$F H E_{np} = Q_{np} W \cdot R I_{np} F C F_{np} C P_p A \cdot f_p / R \quad (3.3.1.4-4)$$

が得られる。

比 ( $W/R$ ) が各食物経路に対して必要である。

$$W \cdot A = f_R R \quad (3.3.1.4-5)$$

という関係が書ける。ここで、 $A$  は灌漑された土地の面積 ( $m^2$ ) である。この式を変形すると、3.3.1.4-4式に代入できる

$$W/A = f_R / R \quad (3.3.1.4-6)$$

が得られる。

$R I_{np}$  は、表面へ急に沈着した作物を標準人が摂取した時の放射性核種の量 (地表面に沈着した  $C_i / m^2$  当たりの摂取量、 $C_i$ ) である。 $R I_{np}$  の値は3.5節(表3.5.3)に示されている。

$R I_{np}$  の値を決定するために用いた数学モデルは米国NRCによって使われたもの (NRC77) およびAIRDOS-EPAコンピュータプログラムにおいてEPAによって使われたものと同様である。 $R I_{np}$  の値の決定に含まれる一つの重要な変更がEPAモデルに加えられた。土壌の根の領域からの放射性核種の消失は、植物の根系を経ての植物中への放射性核種の取り込みを計算する際に考慮した。土壌からの消失機構は長寿命放射性核種に対して重要となり得る。

$R I_{np}$  の値は植物の葉に直接沈着する成分と植物の根を経て土壌から取り込まれる成分からなる。それゆえ、この結果は噴霧灌漑を代表するものである。水路灌漑に伴うリスクは、作物表面への直接沈着が含まれているため、保守的に高くなるであろう。水路灌漑に対する唯一の移行機構は土壌からの作物による取り込みである。

3.3.1.4-4式の ( $W/R$ ) に ( $f_R/A$ ) を代入すると、灌漑面積  $A$  が相殺されて、作物の摂取による特定地域集団に対するERCに対する次の式が得られる：

$$F H E_{np} / Q_{np} = f_R f_p R I_{np} C P_p F C F_{np} \quad (3.3.1.4-7)$$

すべての灌漑された土地が食用作物を生産するために使われるという保守的な仮定をする。事実、一部分は食用以外の作物を栽培するために使われるであろう。逆に、ある食用作物は根を仮定している15cmの土壤根領域よりも下に伸ばし、そのため、この深さより深い土壤から放射能（放射性物質）を取り込むこともあろう。この場合には、15cmの土壤根領域に基づく $\lambda_{sn}$ を使用することは保守的ではない。

### 3.3.1.5 再浮遊物質の吸入 ( $p=6$ )

吸入による個人の年間リスク預託は灌漑により地表面に沈着した物質がその後空気中に再浮遊することによって起こる。この年間リスク預託は空気中濃度 ( $X_{Rn}$ )、個人の吸入量 ( $I_B$ ) およびリスク換算係数 ( $FCF_{np}$ ) の積である：

$$RIV'_{np} = X_{Rn} I_B FCF_{np} \quad (3.3.1.5-1)$$

年間集団リスク預託は年間個人リスク預託と放射性核種を含んでいる空気を吸入する人の数の積である：

$$FHE'_{np} = RIV'_{np} P_{Ap} \quad (3.3.1.5-2)$$

吸入する人の数は灌漑区域の人口密度と面積の積として得られる：

$$P_{An} = PD_p A \quad (3.3.1.5-3)$$

被曝を受ける集団は灌漑区域内の人に限定されているので、3.3.1.5-3式に対する暗黙の仮定は灌漑の間に沈着した放射性物質はその土地あるいは灌漑された土地の上部の空気中に残存するということである。実際には、空気中に再浮遊した放射性物質は希釈され、また、より広い面積に分布するけれども、われわれの方法では、灌漑区域を越えた空気中の放射性核種の分散を説明するより正確かつより複雑な方法とほぼ同じ数字の集団リスク預託を与えるはずである。3.3.1.5-1、3.3.1.5-2および3.3.1.5-3の諸式を結合することにより

$$FHE'_{np} = X_{Rn} I_B FCF_{np} P D_p A \quad (3.3.1.5-4)$$

が得られる。

地表面からの放射性核種の再浮遊により表面濃度  $\phi_n(t)$  で一様に汚染された区域の中心での空気中濃度  $X_{Rn}(t)$  はNelson (Ne78) によって

$$X_{Rn}(t) = RF \cdot \phi_n(t) \quad (3.3.1.5-5)$$

であることが示されている。ここで

$$RF = X_{Rn}(t) / \phi_n(t) = \lambda_R / v_{gn} \quad (3.3.1.5-6)$$

である。RFは土壤表面濃度に対する空気中濃度の比である。

3.3.1.5-6式は、地表面ソースタームの半径が空気中へ再浮遊する物質に対する枯渇距離に比べて大きければ当てはまる（すなわち、この近似は大きくて一様に汚染された区域にだけ当てはまる）。汚染区域での再浮遊による物質の再分布は重要でないと仮定している。これは汚染された区域のある点における再浮遊した空気中濃度のみが問題にして

いる点における土壌表面濃度に依存するということと等価である。

3.3.1.5-4式に3.3.1.5-5式を代入すると、

$$FHE'_{np} = RF \cdot \phi_n(t) I_B F C F_{np} P D_p A \quad (3.3.1.5-7)$$

が得られる。3.3.1.5-7式を時間に関して積分すると、吸入経路環境線量預託に対する次式が得られる：

$$FHE_{np} = RF \left[ \int_0^t \phi_n(t') dt' \right] I_B F C F_{np} P D_p A \quad (3.3.1.5-8)$$

時間の関数として土壌表面濃度に対するアルゴリズムを開発する手順を説明しなければならない。これらの高レベル廃棄物の計算は長期間に対するものであり、また、しばしば耕作されるであろう灌漑土壌に対するものであるから、地表面に最初に沈着した放射性核種は15cmの深さであると仮定される植物の根の領域に急速に混合されると仮定した。Bennett(B e 76)は空気中に再浮遊する放射性物質は一般に土壌の上部1cmのところから由来するので、土壌表面濃度(再浮遊しやすい物質)は土壌の上部1cm以内の放射性物質のインベントリーを表すべきであると指摘した。土壌の単位表面積当たりの15cm土壌根領域内の放射性核種のインベントリー $\phi_{in}(t)$ を予測するアルゴリズムを開発し、このインベントリーの15分の1が再浮遊しやすい放射性物質を表す、すなわち、 $\phi_n(t) = \phi_{in}(t)/15$ と仮定した。土壌の単位表面積当たりの土壌根領域インベントリー $\phi_{in}(t)$ は微分方程式

$$\phi'_{in}(t) = -(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) \phi_{in}(t) + (W/R) Q'_{np}(t) \quad (3.3.1.5-9)$$

を解くことによって算出される。ここで、 $\phi'_{in}(t)$ は放射性核種nの土壌根領域のインベントリーの時間的変化速度、 $\lambda_{Sn}$ は土壌根領域から土壌シンクへの除去定数で、その他の項は前の定義の通りである。

$-(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) \phi_{in}(t)$ の項は根の領域からの放射性核種nの除去速度を表し、 $(W/R) Q'_{np}(t)$ の項は灌漑による根の領域への放射性核種nの沈着速度を表す。

式 $\phi'_{in}(t)$ における基礎的な仮定は、再浮遊による地表面からの放射性核種の除去量 $\lambda_R \phi_{in}(t)/15$ が再浮遊物質の地表面への沈着量 $X_{Rn}(t) v_{Rn}$ によって相殺されるということである。つまり、これらの項は3.3.1.5-9式には現れていない。 $W/R$ を $f_R/A$ で置換して、微分方程式3.3.1.5-9を解くと、土壌根領域のインベントリーに対する式、

$$\begin{aligned} \phi_{in}(t) &= \left[ \lambda_{Ln} f_L Q_{on} f_R / \{A(\lambda_{Ln} - \lambda_{Sn})\} \right] \left[ \exp\{\lambda_{Sn} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t\} \right. \\ &\quad \left. - \exp[\lambda_{Ln} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) t] \right] \\ &\quad (t > t_{Rn}) \\ \phi_{in}(t) &= 0 \quad (t \leq t_{Rn}) \end{aligned} \quad (3.3.1.5-10)$$

が得られる。ここで、再び、 $t_{Rn} = t_{er} + t_{ran} + t_{arn}$ である。

3. 2. 1節において論じたように、この式は、EPAが考察しているいくつかの放出モデルの一つである浸出速度律速の放出モデルに基づいている。再浮遊を論ずるのに用いた方法はNelson(Ne78)の仮定に基づいている。しかしながら、再浮遊はNelsonの方法を用いるよりも直接的な方法で論じられる。両方の結果は同じになるはずである。 $\phi_n(t) = \phi_{in}(t)/15$ であることを認め、3.3.1.5-8式に3.3.1.5-10式を代入して積分し、その結果の式を使い、地表面からの再浮遊物質の吸入による特定地域集団へのERCを算定した。3.2.1-4式によって表された、接近可能な環境への積分ソースターム $Q_{np}$ を係数として外に出すと、再浮遊物質の吸入に対する河川へ放出される1単位当たりのERCに対する式は

$$FHE_{np}/Q_{np} = \{RF \cdot PD_p I_B FCF_{np} f_R / [15(\lambda_{Ln} - \lambda_{Sn})]\} \\ \times \{(\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) [e^{-\lambda_{Dn} t_{Rn}} - e^{-\lambda_{Sn} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t}]\} \\ / \{(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) [e^{-\lambda_{Dn} t_{Rn}} - e^{-\lambda_{Ln} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) t}]\} \\ - 1 \} \quad (t > t_{Rn}) \\ FHE_{np}/Q_{np} = 0 \quad (t \leq t_{Rn}) \quad (3.3.1.5-11)$$

となる。3.3.1.5-11式からは灌漑面積が相殺されていることに注意すること。

### 3. 3. 1. 6 外部リスク預託-地表汚染 (p=7)

地表に沈着した物質による外部放射線からの環境リスク預託の式の誘導は吸入経路に対する誘導に類似している。吸入経路の場合と同様、沈着した放射性核種は急速に15cmの土壌根領域に混合される。この式は

$$FHE_{np} = [PD_p \cdot A] \int_0^t \phi_{in}(t'') dt'' \cdot [FCF_{np} GC_{np} SOF] \quad (3.3.1.6-1)$$

である。ここで、 $FCF_{np}$ はCi-y/m<sup>2</sup>の全土壌表面濃度当たり引き起こされる致死ガンにおける地表面汚染に対する外部リスク換算係数で、SOFはごく普通の遮蔽と占有による外部線量の減少を説明する遮蔽因子である。外部リスク換算係数はすべての放射性物質が土壌表面に沈着すると仮定して誘導されているので、補正係数( $GC_{np}$ )は土壌遮蔽による外部リスク預託の減少を説明するアルゴリズムに含まれている。3.3.1.5-10式を用いて、積分された根の領域のインベントリーは

$$\int_0^t \phi_{in}(t'') dt'' = \{\lambda_{Ln} f_L Q_{on} f_R / [(\lambda_{Ln} - \lambda_{Sn}) A]\} \\ \times \{[e^{-\lambda_{Dn} t_{Rn}} - e^{-\lambda_{Sn} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t}]\} / (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) \\ + [e^{-\lambda_{Ln} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) t} - e^{-\lambda_{Dn} t_{Rn}}] / (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) \\ (t > t_{Rn}) \quad (3.3.1.6-2)$$



によって与えられる。

上式を3.3.1.6-1式に代入することによって、また3.2.1-4式を用いて接近可能な環境まで積分されたソースタームによって規格化することによって、土壤に沈着した放射性核種 $n$ からの直接被曝による特定地域集団へのERCに対する次の式を得る。

$$\begin{aligned}
 FHE_{np}/Q_{np} &= \{f_R P D_p F C F_{np} S O F \cdot G C_{np} / (\lambda_{Ln} - \lambda_{Sn})\} \\
 &\quad \times \{(\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) [e x p(-\lambda_{Dn} t_{Rn}) - e x p[\lambda_{Sn} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t]] \\
 &\quad / [(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) [e x p(-\lambda_{Dn} t_{Rn}) - e x p[\lambda_{Ln} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) t]]] \\
 &\quad - 1\} \quad (t > t_{Rn}) \\
 FHE_{np}/Q_{np} &= 0 \quad (t \leq t_{Rn}) \quad (3.3.1.6-3)
 \end{aligned}$$

### 3.3.1.7 外部リスク預託-空気サブマージョン

空気サブマージョンによる外部被曝からのERCを予測するための式を作成するための手順は土壤汚染による外部被曝に対するERCのそれに極めて類似した理論的根拠による。

3.3.1.6節に述べた手順との違いは、再浮遊を受ける物質が土壤の上部1cmにあること、再浮遊係数(RF)が再浮遊による積分空気濃度を予測するために3.3.1.6-1式に加えられること、およびリスク係数が $Ci-y/m^3$ の積分空気濃度当たりにもたらされる致死ガンの単位をもつこと、すなわち、

$$FHE_{np} = \{[RF \cdot P D_p \cdot A] / 15\} \int_0^t \phi_{Ln}(t'') dt'' [F C F_{np} S O F] \quad (3.1.7-1)$$

である。積分のために3.3.1.6-2式を3.3.1.7-1式に代入し、積分ソースタームで規格化すると、空気中の放射性核種 $n$ からの直接被曝による特定地域集団へのERCに対する次の式が得られる：

$$\begin{aligned}
 FHE_{np}/Q_{np} &= \{RF \cdot f_R P D_p F C F_{np} S O F / [15 (\lambda_{Ln} - \lambda_{Sn})]\} \\
 &\quad \times \{(\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) [e x p(-\lambda_{Dn} t_{Rn}) - e x p[\lambda_{Sn} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t]] \\
 &\quad / [(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) [e x p(-\lambda_{Dn} t_{Rn}) - e x p[\lambda_{Ln} t_{Rn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) t]]] \\
 &\quad - 1\} \quad (t > t_{Rn}) \\
 FHE_{np}/Q_{np} &= 0 \quad (t \leq t_{Rn}) \quad (3.3.1.7-2)
 \end{aligned}$$

## 3.3.2 海洋への放出

### 3.3.2.1 一般的考察

本節では、海洋中の高レベル廃棄物放射性核種への被曝の結果としての部分環境リスク預託の計算、特に地層処分場からの放射性核種が河川を経て海洋へ到達する浸出速度律速のソースタームについて述べる。これらの海洋経路計算に採用されたモデルを図3.3.1

に示す。このモデルは二つのコンパートメントを含んでいる。コンパートメント1は海洋の上部混合層であり、コンパートメント2は海洋の下層（残部）である。放射性核種  $n$  は河川から上層に入り、下層への輸送 ( $\gamma_1$ )、放射性崩壊 ( $\lambda_{Dn}$ ) および堆積 ( $SF_{1n}$ ) によってこの層を出る。放射性核種  $n$  は下層からの逆輸送 ( $\gamma_2$ ) によって上層へ戻る。放射性核種  $n$  は上層からの輸送 ( $\gamma_1$ ) と上層から下層へ移行する堆積物 ( $SF_{1n}$ ) によって下層へ入り、崩壊 ( $\lambda_{Dn}$ )、上層からの逆輸送 ( $\gamma_2$ ) および堆積 ( $SF_{2n}$ ) によって除去される。

このモデルを誘導するに当たっていくつかの基礎的な仮定をする。第一に、海洋への供給量は  $A_1 \exp(\omega_n t)$  の形であるとし、これは処分場から河川への供給量 (3.2.1-2式) に等しく、河川での移動中の崩壊、灌漑、あるいは堆積による供給量の減少は全くと仮定した。これらは保守的な仮定であり、河川系における種々の除去機構の影響を考慮することなく海洋への直接放出を評価できることになる。第二に、2コンパートメントモデルは、上部混合層から下部混合層への実際の移動が拡散支配であるので、単純である。このモデルにおいては、われわれは両層内では完全に混合していると仮定している。このため両層の間の境界においては濃度の不連続が生じる。第三に、魚貝の摂取だけが海洋経路による人への放射線の取り入れおよび被曝の無視できない経路であると考え、すべての食用の魚貝は上部コンパートメントから得られると仮定する。

環境リスクの預託の計算に含まれるステップは下記のようなものである。

(a) 時間の関数として海洋の上部（混合）層の放射性核種  $n$  の量  $q_{1n}$  および海水中の濃度を計算する。

(b) 時間の関数として上層の食用魚貝中の放射性核種  $n$  の濃度を計算する。

(c) 集団による魚貝の適当な摂取量を用い、全摂取放射性核種取り込み量を得る。

(d) 適当な摂取致死ガンリスク係数を使用し、魚貝の消費による集団へのリスク預託率を決定する。

(e) 海洋中の放射性核種の到着時間から所定の時間までの集団リスク預託率を積分し、環境リスク預託を得る。

### 3.3.2.2 海洋2コンパートメントモデル

上部コンパートメントの放射性核種  $n$  の濃度を計算するためには、上部コンパートメント中の  $n$  の量  $q_{1n}$  を時間の関数として予測し、上部コンパートメントの体積  $V_1$  によって割らなければならない。  $q_{1n}$  を得るためには、図3.3.1に描いたような各コンパートメント中の核種の収支に基づいた連立微分方程式を書かなければならない。これらの方程式は

$$d q_{1n} / d t = A_1 \exp(\omega_n t) + \gamma_2 q_{2n} - (\lambda_{Dn} + \gamma_1 + S F_{1n}) q_{1n} \quad (3.3.2.2-1)$$

および

$$d q_{2n} / d t = (S F_{1n} + \gamma_1) q_{1n} - (S F_{2n} + \lambda_{Dn} + \gamma_2) q_{2n} \quad (3.3.2.2-2)$$

で、その初期条件は、 $t = t_{Rn}$ において、 $q_{1n} = q_{2n} = 0$ である。

変数を変形した後、これらの連立微分方程式を逐次消去法のような方法によって解き、 $q_{1n}$ と $q_{2n}$ を得る。下部コンパートメントの放射能 $q_{2n}$ は海洋経路に対する解析においては使われないので、解析解は示さない。したがって、

$$\begin{aligned} q_{1n} = & [A_{2n} / (M_{2n} - M_{1n})] \{ [a_{1n} - M_{2n}] / (\omega_n - M_{1n}) \} \exp [M_{1n}(t - t_{Rn})] \\ & - [(a_{1n} - M_{1n}) / (\omega_n - M_{2n})] \exp [M_{2n}(t - t_{Rn})] \\ & + [(M_{2n} - M_{1n})(\omega_n - b_{2n}) / [(\omega_n - M_{2n})(\omega_n - M_{1n})]] \\ & \times \exp [\omega_n(t - t_{Rn})] \end{aligned} \quad (3.3.2.2-3)$$

が得られる。ここで、

$$\begin{aligned} A_{2n} &= \lambda_{Ln} f_L Q_{on} \exp(-\lambda_{Dn} t_{Rn}) \\ a_{1n} &= -(\lambda_{Dn} + S F_{1n} + \gamma_1) \\ b_{2n} &= -(\lambda_{Dn} + S F_{2n} + \gamma_2) \\ \omega_n &= -(\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln}) \\ B_{3n} &= -(a_{1n} + b_{2n}) \\ C_{3n} &= (a_{1n} \cdot b_{2n}) - [\gamma_1 \gamma_2 + \gamma_2 S F_{1n}] \\ M_{1n} &= [-B_{3n} + \sqrt{(B_{3n}^2 - 4 C_{3n})}] / 2 \\ M_{2n} &= [-B_{3n} - \sqrt{(B_{3n}^2 - 4 C_{3n})}] / 2 \end{aligned}$$

である。

3.3.2.2-3式は廃棄物処分場に放射性核種を定置した後の時間 $t$ における海洋の上部コンパートメント内で一様に混合した放射性核種 $n$ の量の予測に使うことができる。3.3.2.2-3式を $V_1$ で割るならば、海洋の上部コンパートメントにおける核種 $n$ の平均濃度を表す式が得られる。

### 3.3.2.3 海産食品の摂取

海産の魚 ( $p = 9$ )、海産の貝 ( $p = 10$ )

これらの経路に対してERCを計算するために使われた方程式は

$$FHE_{np} = [CF_{np} I_p P_p FCF_{np} / V_1] \int_{t_{Rn}}^t q_{1n} dt \quad (3.3.2.3-1)$$

である。ここで、 $q_{1n}$ は3.3.2.2-3式に示してある。時間 $t = t_{Rn}$ までは線量を受けることが全くないので、3.3.2.3-1式は $t_{Rn}$ と $t$ の間で積分される。積分と積分ソースタームによる標準化(3.2.1-4式)の後、海産食品の消費による被曝集団へのERCに対して次の式が得られる：

$$FRC_{np}/Q_{np} = [FCF_{np}CF_{np}I_{pp}/V_1] \\ \times \{(\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln})/[1 - \exp[-(\lambda_{Dn} + \lambda_{Ln})(t - t_{Rn})]]\} (COM_n) \quad (3.3.2.3-2)$$

ここで、

$$COM_n = [1/(M_{2n} - M_{1n})] \\ \times \{(a_{1n} - M_{2n})[\exp[M_{1n}(t - t_{Rn})] - 1]/[(\omega_n - M_{1n})M_{1n}] \\ - (a_{1n} - M_{1n})[\exp[M_{2n}(t - t_{Rn})] - 1]/[(\omega_n - M_{2n})M_{2n}] \\ + (M_{2n} - M_{1n})(\omega_n - b_{2n})[\exp[\omega_n(t - t_{Rn})] - 1]/[(\omega_n - M_{2n}) \\ (\omega_n - M_{1n})\omega_n]\} \quad (3.3.2.3-3)$$

である。

### 3. 3. 3 地表面への放出

#### 3. 3. 3. 1 一般論

3. 2節において述べたように、放射性物質は時間  $t = 0$  において処分場に定置され、資源探査のボーリングのような事象によって  $t = t_L$  において地表面にもたらされると仮定する。地表面への放出は小さな区域に短期間に起こるので陸地表面への発生源は瞬間的 point source であるとしてモデル化されると仮定する。放出された物質は土壌表面に集中しているよりは土壌の上部 15 cm 以内に一様に分布していると仮定する。この仮定の背後の考え方は Cline (C 184) の論文に基づいている。この論文では、耕作がない場合、生物による輸送、収縮膨張サイクル、物質流および拡散のような現象が土壌表面汚染の後の 25 年間の測定に対して期待される垂直方向の放射性核種のプロフィールを平坦にすることを示した。15 cm という垂直混合深さを選んだのは任意的なものであり、おそらく保守的である。Cline のデータは上述の現象による混合が 30 から 100 cm の土壌深さまで起っているかもしれないことを示している。15 cm の深さは一つには保守的にするために、今一つは河川放出モードに対して選ばれた土壌分布の仮定と両立するその他の便利さのためである。土壌の上部 15 cm 以内の線源物質の分布はすべての物質が地表面に無期限に止まると仮定するよりも保守的であるとはいえない。

土壌への最初の線源の沈着量が決められると、この線源の放射性物質の再浮遊を評価し、この物質がいかに環境中に分散するかを予測するために計算が行われる。河川放出モードに関しては、土壌の上部 1 cm にある放射性物質の再浮遊が起こると仮定される。再浮遊物質は汚染食用作物の消費、再浮遊物質の吸入および地面汚染と空気サブマージョンによる集団への被曝をもたらす。

### 3. 3. 3. 2 食物摂取

食用作物 (p = 13)、牛乳 (p = 14)、牛肉 (p = 15)

地表面放出モードに対して、食物中への放射性核種の取り込みおよびその後の人による放射能の摂取の予測には、地面の線源から空気中への再浮遊および地表面への沈着のモデル化を含む。地表面沈着量が決定されたとき、3.3.1.4節で述べた $R I_{np}$ 係数が人による放射性核種の摂取を定量的に決めるために用いられる。食物の摂取に対する環境リスク預託を決定するのに含まれるその他のステップは3.3.1.4節に述べたものと同様である。

空气中濃度を距離と時間の関数として計算するとき、17原子力発電所敷地の地表面レベルでの放出に対する年平均大気中分散係数に基づいたNelson (Ne78) の等方性分散を仮定した。この方程式は

$$X_{in}(r, t') = (X/Q')_{r_n} Q'(t')(r/r_n)^{-z} \quad (3.3.3.2-1)$$

である。ここで

$X_{in}(r, t')$  = 点  $r$  および時間  $t'$  における空气中濃度 ( $C i / m^3$ )

$(X/Q')_{r_n}$  = 既知の点  $r_n$  における大気分散係数 ( $sec / m^3$ )

$Q'(t')$  = 時間  $t'$  における地表から空気中へのソースターム

$z$  = データに合うように  $X(r, t')$  曲線を合わせるための“適合”べき指数

$t'$  = 処分場の物質が地表に到達した後の時間

$Q'(t')$  を地表に最初に存在する物質の項で表した方程式は

$$Q'(t') = \lambda_R(Q_{np}/15) \exp[-(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})t'] \quad (3.3.3.2-2)$$

である。しかし、この方程式は移動の間のプルームの減少を補正をしていない。プルームの減少の補正のためにソースターム  $Q'(t')$  の下方調節をする補正係数は

$$Q_D'(t')/Q'(t') = \exp[-(r/r_d)^{2-z}] \quad (3.3.3.2-3)$$

と表すことができる。ここで

$$r_d = [(2-z)r_n^{-z} / 2\pi v_{gn}(X/Q')_{r_n}]^{1/(2-z)} \quad (3.3.3.2-4)$$

である。3.3.3.2-2式と3.3.3.2-3式から

$$Q_D'(t') = \lambda_R(Q_{np}/15) \exp[-(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})t'] \times \exp[-(r/r_d)^{2-z}] \quad (3.3.3.2-5)$$

である。また、点線源から再浮遊した物質の分散による点  $r$  と時間  $t'$  における空气中濃度に対する方程式は、3.3.3.2-1式の  $Q'(t')$  に  $Q_D'(t')$  を代入して、

$$X_{in}(r, t') = (X/Q')_{r_n} (r/r_n)^{-z} \lambda_R(Q_{np}/15)$$

$$\times \exp [-(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t' - (r / r_d)^{2-z}] \quad (3.3.3.2-6)$$

となる。

次に、3.3.3.2-6式に乾燥沈着速度をかけることによって再浮遊点からの種々の距離における地表面への沈着量を推定する。全体的な地表面への時間  $t'$  までの全沈着量を表す式は、3.3.3.2-6式から次のようにして得られる：

$$DEP(\infty, t') = \int_{r=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{2\pi} \int_{t''=0}^{t'} X_{in}(r, t'') v_{gn} dt'' (r d\theta dr) \quad (3.3.3.2-7)$$

この積分は、時間  $t'$  までの地表面への全沈着量に対する式を与える：

$$DEP(\infty, t') = DEP(t') = [\lambda_R(Q_{np}/15) / (\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})] \times [1 - \exp [-(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t']] \quad (3.3.3.2-8)$$

食物経路の一つに対するERCを得るために、3.3.1.4節に述べたものと同様な方法を用いる。その方程式は

$$FHE_{np} = [DEP(t') / A_r] f_p R I_{np} (C P_p A_r) F C F_{np} \quad (3.3.3.2-9)$$

である。ここで、 $A_r$  は再浮遊した物質が沈着する土地の面積である。

面積の項を消去し、 $DEP(t')$  に対する3.3.3.2-8式を代入し、地表面へ最初に放出された放射性核種の量  $Q_{np}$  を規格化し、 $t' = t - t_L$  と定義しなおすと、3.3.3.2-9式は

$$FHE_{np} / Q_{np} = f_p R I_{np} C P_p F C F_{np} \lambda_R \times \{1 - \exp [-(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})(t - t_L)] / [15(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})]\} \quad (3.3.3.2-10)$$

となる。

すべての農地が食用作物を生産するのに使われると安全側の仮定をする。事実、一部は非食用作物を栽培するのに使われるであろう。逆に、その根が仮定された15cmの根の領域以下に伸びて、この深さ以下の土壌から放射能を吸収できるような食用作物もあるであろう。これらの場合には、15cmの土壌根領域に基づいた  $\lambda_{Sn}$  の使用は安全側ではない。

### 3.3.3.3 再浮遊物質の吸入 ( $p=12$ )

地表面放出モードに対する放射性核種の吸入によるERCの計算では、点源における初期再浮遊を考慮しなければならない。さらに、地表面への沈着と線源から離れた地表面からの再浮遊をモデル化しなければならない。3.3.1.1節において述べた理由から、線源から離れた分散の後地表面へ沈着した放射性核種は15cmの土壌根領域以内に一樣

に混合し、再浮遊は土壌の上部1 cm以内の放射性核種に対して起こると仮定する。これらの仮定は地表面放出モード（3. 3. 3. 1節参照）に対する線源の再浮遊を取り扱うために用いられる方法および河川放出モード（3. 3. 1. 5節）に対する灌漑地からの再浮遊を取り扱う方法とも矛盾しない。これらの仮定はすべての物質が地表面に無期限に残留すると仮定するよりもより現実的である。線源から離れた土地の一部での放射能（質量）収支を図3. 2に示すように描くことができる。

時間および位置の関数としての土壌表面濃度は、時間および位置の関数としての空気中濃度を得るために再浮遊係数を使うことができるように、推定することができる。図3.

3. 2に描かれた放射能収支を問題にする微分方程式は、

$$d \phi_{in} / d t' = X_{in} v_{gn} + X_{rn} v_{gn} - \lambda_R (\phi_{in} / 15) - \lambda_{Dn} \phi_{in} - \lambda_{Sn} \phi_{in} \quad (3. 3. 3. 3-1)$$

である。ここで $\phi_n = \phi_{in} / 15$ 、 $X_{in}$ は最初の点線源からの再浮遊およびその後の分散による放射性核種nの空気中濃度、 $X_{rn}$ は注目場所における放射性核種nの空気中濃度である。平衡に達した後は、地表への連続的な沈着および地表からの再浮遊による放射性物質の再分布が全くないと仮定されるならば、3. 3. 3. 3-1式の $X_{rn} v_{gn}$ と $\lambda_R \phi_{in} / 15$ を等しいと置くことができ、

$$d \phi_{in} / d t' = X_{in} v_{gn} - (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) \phi_{in} \quad (3. 3. 3. 3-2)$$

と書くことができる。

$X_{in}$ に対する式は3. 3. 3. 2節において述べた（3. 3. 3. 2-6式）。 $X_{in}$ に対する式が3. 3. 3. 3-2式において使われ、積分係数 $\exp(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t'$ が使われるならば、この式を解いて、場所と時間の関数としての全土壌根領域インベントリーに対する次式が得られる：

$$\begin{aligned} \phi_{in}(r, t') = & v_{gn} (Q_{np} / 15) (X / Q') \frac{(r / r_n)^{-z}}{r_n} \exp[-(r / r_d)^{2-z}] \\ & \times \{ \exp[-(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t'] - \exp[-(\lambda_R + \lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) t'] \} \end{aligned} \quad (3. 3. 3. 3-3)$$

3. 3. 1. 5節に述べたように、再浮遊による空気中濃度は土壌表面濃度（ $\phi_n = \phi_{in} / 15$ ）に再浮遊係数を使うことによって計算できると仮定することによって、

$$X_{rn} = RF \cdot \phi_{in}(r, t') / 15 \quad (3. 3. 3. 3-4)$$

を得る。次に、特定の場所と時間における全空気中濃度は

$$X_n(r, t') = X_{in}(r, t') + X_{rn}(r, t') \quad (3. 3. 3. 3-5)$$

である。また、3. 3. 3. 2-6式、3. 3. 3. 3-3式および3. 3. 3. 3-4式を用いて、

$$\begin{aligned} X_n(r, t') = & \lambda_R Q_{np} (X / Q') \frac{(r / r_n)^{-z}}{r_n} \exp[-(r / r_d)^{2-z} - \lambda_{Tn} t'] \\ & \times [0.0622 + 0.0044 \exp(\lambda_R t')] \end{aligned} \quad (3. 3. 3. 3-6)$$

が得られる。ここで、 $\lambda_{rn} = \lambda_r + \lambda_{dn} + \lambda_{sn}$ である。

3.3.3.3-6式は再浮遊物質の吸入によるERCを計算するのに使うための空气中濃度の表現を与えている。ERCの計算ために与えるべき関係は

$$FHE_{np} = \int_0^{t'} \int_0^A X_n(r, t'') I_B F C F_{np} P D_p d A_r d t'' \quad (3.3.3.3-7)$$

である。

この式は3.3.1.5節において吸入経路に対して誘導したものと類似である。3.3.3.3-6式からの $X_n(r, t')$ に対する式および $dA_r = r d\theta dr$ の関係を用い、 $r = 0$ から $r = \infty$ までと $\theta = 0$ から $\theta = 2\pi$ までの積分（人々が被曝する全面積にわたる積分）を行い、結果を地表面へ放出された放射性核種の量 $Q_{np}$ によって規格化することによって、

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= (PD_p)(RF)(I_B)(FCF_{np}) \\ &\times \{ (0.0622/\lambda_{rn}) [1 - \exp(-\lambda_{rn} t')] \} \\ &+ [0.0044/(\lambda_{dn} + \lambda_{sn})] [1 - \exp[-(\lambda_{dn} + \lambda_{sn}) t']] \} \end{aligned} \quad (3.3.3.3-8)$$

を得る。

$t'$  を  $t - t_L$  と置くと、ERCに対する式は

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= (PD_p)(RF)(I_B)(FCF_{np}) \\ &\times \{ (0.0622/\lambda_{rn}) [1 - \exp[-\lambda_{rn}(t - t_L)]] \} \\ &+ [0.0044/(\lambda_{dn} + \lambda_{sn})] [1 - \exp[-(\lambda_{dn} + \lambda_{sn})(t - t_L)]] \} \end{aligned} \quad (3.3.3.3-9)$$

と書くことができる。

### 3.3.3.4 外部リスク預託-土壤汚染 (p=16)

ERCの計算に適用されるべき式は

$$FHE_{np} = \int_0^{t'} \int_0^A \phi_{in}(r, t'') F C F_{np} S O F \cdot G C_{np} P D_p d A d t'' \quad (3.3.3.4-1)$$

である。

3.3.3.3節において導いた $\phi_{in}(r, t')$ の式(3.3.3.3-3式)、 $dA_r = r d\theta dr$ の関係および積分境界 $0 \leq r \leq \infty$ と $0 \leq \theta \leq 2\pi$ を用い、結果を地表面への初期放出量 $Q_{np}$ によって規格化し、また、 $t'$  を  $t - t_L$  と置くと3.3.3.4-1式は

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= (PD_p F C F_{np} S O F \cdot G C_{np} / 15) \\ &\times \{ [1 - \exp[-(\lambda_{dn} + \lambda_{sn})(t - t_L)]] / (\lambda_{dn} + \lambda_{sn}) \\ &+ [\exp[-\lambda_{rn}(t - t_L)] - 1] / \lambda_{rn} \} \end{aligned}$$



(3.3.3.4-2)

となる。ここで、 $\lambda_{rn}$ は3.3.3.3節に定義されている。

### 3.3.3.5 外部リスク預託-空気サブマージョン (p=11)

ERCを計算する式は

$$FHE_{np} = \int_0^{t'} \int_0^A X_n(r, t'') FCF_{np} SOF \cdot PD_p dA dt''$$

(3.3.3.5-1)

である。

$X_n(r, t')$ の式、 $dA = r d\theta Dr$ の関係および積分境界 $0 \leq r \leq \infty$ と $0 \leq \theta \leq 2\pi$ を用い、結果をソースターム $Q_{np}$ によって規格化し、 $t'$ を $t - t_L$ と置くと、3.3.3.5-1式は

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= (PD_p FCF_{np} SOF \cdot RF) \\ &\times \{ (0.0622/\lambda_{rn}) [1 - \exp[-\lambda_{rn}(t - t_L)]] \\ &+ [0.0044/(\lambda_{dn} + \lambda_{sn})] [1 - \exp[-(\lambda_{dn} + \lambda_{sn})(t - t_L)]] \} \end{aligned}$$

(3.3.3.5-2)

となる。

## 3.3.4 火山/隕石相互作用による放出

### 3.3.4.1 一般論

火山もしくは隕石が廃棄物処分場と相互作用し、物質を空気中および火山もしくは隕石のまわりの小さな区域の地表面へ直接分布するものと仮定する。空気中へ放出された放射性核種は、それが地上の吸入帯にあるか海洋上の空気中にあるか、また、それが地上に沈着するか海洋中に沈着するかによってさまざまに人に影響するであろう。われわれは、空気中へ放出されたインベントリーを、地球の海洋と陸地の表面積を用いて二つの部分に分割することによって説明する。空気中物質をこのように分割することは環境線量預託の解析に対する数式の導出における計算に便利だからである。放出された放射性核種の各 $C_i$ は地表面へ直接放出された量( $f_{LL}$ )、陸地の空気中へ放出された量( $f_{AL}$ )および海洋上の空気中へ放出された量( $f_{AW}$ )に分割される。陸地の空気中物質は地上に留まり、水上の空気中物質は水上に留まっていると仮定する。

### 3.3.4.2 陸地面への直接放出

#### 3.3.4.2.1 一般論

陸地面へ直接放出される放射性核種は放出点のまわりの小さな区域に分布するものと保守的に仮定される。発生源での垂直分布と再浮遊、環境への分散、その結果として影響を

受ける集団へのERCを決定するのに使われる方法は、地表面経路に対して導出されたもの(3.3.3節)と同じである。陸地面への直接放出に使われた式を次の節に列記する。

### 3.3.4.2.2 食物摂取

$$\begin{aligned} & \text{食用作物 (p=25)、牛乳 (p=26)、牛肉 (p=27)} \\ FHE_{np}/Q_{np} &= f_p R I_{np} C P_p F C F_{np} f_{LL} \lambda_R \\ & \times \{1 - \exp[-\lambda_{\tau n}(t - t_v)]\} / 15 \lambda_{\tau n} \quad (3.3.4.2.2-1) \end{aligned}$$

ここで、 $f_{LL}$ は環境に放出された放射性核種のうち直接陸地へゆく割合、 $t_v$ は処分場へ放射性物質が定置されてから物質が環境へ放出されるまでの時間である。

### 3.3.4.2.3 再浮遊物質の吸入 (p=24)

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= P D_p R F \cdot I_B F C F_{np} f_{LL} \\ & \times \{(0.0622/\lambda_{\tau n})[1 - \exp[-\lambda_{\tau n}(t - t_v)]] \\ & + [0.0044/(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})][1 - \exp[-(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})(t - t_v)]]\} \\ & \quad (3.3.4.2.3-1) \end{aligned}$$

### 3.3.4.2.4 外部リスク預託-土壤汚染 (p=28)

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= (P D_p F C F_{np} S O F \cdot f_{LL} G C_{np} / 15) \\ & \times \{[1 - \exp[-(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})(t - t_v)]] / (\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn}) \\ & + [\exp[-\lambda_{\tau n}(t - t_v)] - 1] / \lambda_{\tau n}\} \quad (3.3.4.2.4-1) \end{aligned}$$

### 3.3.4.2.5 外部リスク預託-空気サブマージョン (p=23)

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} &= S O F \cdot F C F_{np} P D_p R F \cdot f_{LL} \\ & \times \{(0.0622/\lambda_{\tau n})[1 - \exp[-\lambda_{\tau n}(t - t_v)]] \\ & + [0.0044/(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})][1 - \exp[-(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn})(t - t_v)]]\} \\ & \quad (3.3.4.2.5-1) \end{aligned}$$

### 3.3.4.3 陸地の空気中への放出

陸地の空気中へ放出された放射性核種は、地球の陸地表面積に対流圏の平均高さを掛けることによって決定される体積中に一様に分布するものと仮定される。このようにして分布する物質について、種々の経路に対するERCを計算するのに使われる空気中と土壤の間の放射性核種の移動を予測するための、図3.3.3に描かれたような、2コンパートメントモデルが確立されている。図3.3.3の上部コンパートメントは地球の陸地上の対流圏体積で、下部コンパートメントは利用できる土地の層すなわち上部境界としての土壤表面を含み、土壤の根の領域部すなわち耕作層を含む土地の層である。火山もしくは隕

石の相互作用が処分場から放射能を放出すると、放射性核種はただちに上部コンパートメントに入るものと仮定されている。t' = 0での初期投入後には系に入る放射性核種は全くない。

放射性核種は放射性崩壊 ( $\lambda_{Dn}$ ) と空気中から土壌中への移行 ( $v_{gn}A_L/V_L$ ) によって上部コンパートメントを出て、再浮遊 ( $\lambda_R$ ) によって上部コンパートメントに入る。再浮遊の計算を支配する仮定は3.3.1節および3.3.3節において論じたものと同じである。

放射性核種が地面に沈着するときには、それらは土壌根領域 (15 cm 垂直深さ) に急速に混合し、土壌の上部 1 cm の放射性核種だけが再浮遊することになると仮定する。放射性核種は空気中からの沈着 ( $v_{gn}A_L/V_L$ ) によって下部コンパートメントに入り、利用できない土壌層への移行 ( $\lambda_{sn}$ )、放射性崩壊 ( $\lambda_{Dn}$ ) および土壌層の上部 1 cm から空気中への再浮遊 ( $\lambda_R$ ) によって下部コンパートメントから出る。この2コンパートメント系に対して書かれる崩壊核種の収支式は次節において論じられる。

### 3.3.4.3.2 陸地上の空気：2コンパートメントモデル

上部 (空気中) コンパートメントにおける放射性核種 n の濃度は、上部コンパートメントの n の量  $Q_{Ln}(t')$  を時間の関数として予測し、上部空気コンパートメントの体積  $V_L$  で割ることによって得られる。同様に、下部コンパートメントに対する放射性核種 n の土壌根領域のインベントリー  $\phi_{rn}(t')$  は、下部コンパートメントの n の量  $Q_{sn}(t')$  を時間の関数として予測し、下部コンパートメントの表面積  $A_L$  で割ることによって得られる。 $Q_{Ln}(t')$  と  $Q_{sn}(t')$  は図3.3.3に示した核種の収支に基づいて連立微分方程式を書き、これを解いて得られる。これらの方程式は、

$$dQ_{Ln}/dt = -\lambda_{Dn}Q_{Ln} - (v_{gn}A_L/V_L)Q_{Ln} + \lambda_R Q_{sn} / 15 \quad (3.3.4.3.2-1)$$

および

$$dQ_{sn}/dt = (v_{gn}A_L/V_L)Q_{Ln} - \lambda_{Dn}Q_{sn} - \lambda_{sn}Q_{sn} - \lambda_R Q_{sn} / 15 \quad (3.3.4.3.2-2)$$

であり、われわれのモデルの初期条件は、t' = 0において

$$Q_{Ln}(0) = f_{AL}Q_{np}$$

および

$$Q_{sn}(0) = 0$$

である。変数変換の後、これらの連立方程式を解くと  $Q_{Ln}$  と  $Q_{sn}$  が得られる：

$$Q_{Ln}(t') = [f_{AL}Q_{np} / (M_{6n} - M_{5n})] \times [(M_{6n} - a_{5n}) \exp(M_{5n}t') + (a_{5n} - M_{5n}) \exp(M_{6n}t')] \quad (3.3.4.3.2-3)$$

$$Q_{5n}(t') = \{15 f_{AL} Q_{np} (M_{5n} - a_{5n})(M_{6n} - a_{5n}) / [\lambda_R (M_{6n} - M_{5n})]\} \\ \times [\exp(M_{5n} t') - \exp(M_{6n} t')] \quad (3.3.4.3.2-4)$$

ここで

$$a_{5n} = -(\lambda_{Dn} + v_{gn} / h_a) \\ b_{6n} = -(\lambda_{Dn} + \lambda_{Sn} + \lambda_R / 15) \\ B_{4n} = -(a_{5n} + b_{6n}) \\ C_{4n} = a_{5n} b_{6n} - v_{gn} \lambda_R / 15 h_a \\ M_{5n} = -[B_{4n} + \sqrt{(B_{4n}^2 - 4 C_{4n})}] / 2 \\ M_{6n} = -[B_{4n} - \sqrt{(B_{4n}^2 - 4 C_{4n})}] / 2$$

である。ここで、3.3.4.3.2-3式と3.3.4.3.2-4式を用いると、放射性核種の空気中および土壌濃度が時間の関数として計算できる。

上部コンパートメントの空気中濃度を時間の関数として算出するために、3.3.4.3.2-3式を上部コンパートメントの体積 ( $V_L = A_L h_A$ ) で割ると、

$$X_n(t') = \{f_{AL} Q_{np} / [A_L h_A (M_{6n} - M_{5n})]\} [(M_{6n} - a_{5n}) \exp(M_{5n} t') \\ + (a_{5n} - M_{5n}) \exp(M_{6n} t')] \quad (3.3.4.3.2-5)$$

が得られる。

下部コンパートメントに対する土壌根領域インベントリーは3.3.4.3.2-4式を下部コンパートメントの表面積  $A_L$  で割ることによって、

$$\phi_{1n}(t') = \{15 f_{AL} Q_{np} (M_{5n} - a_{5n})(M_{6n} - a_{5n}) / [\lambda_R (M_{6n} - M_{5n}) A_L]\} \\ \times [\exp(M_{5n} t') - \exp(M_{6n} t')] \quad (3.3.4.3.2-6)$$

となる。

上に導かれた式は以下に論じるERC経路モデルに対して使われる。

### 3.3.4.3.3 食物摂取

食用作物 ( $p=19$ )、牛乳 ( $p=20$ )、牛肉 ( $p=21$ )

3.3.1節および3.3.3節において論じたものと類似の方法が、食物摂取によるERCの計算において使用される。陸地表面上の空気中に最初に放出された放射性物質による地表面への沈着が(再浮遊を無視して)計算され、 $R I_{np}$ の値とともに使用される。 $R I_{np}$ は再浮遊を考慮しないで決定されているので、地面への放射性核種のフラックスを  $t' = 0$  で最初に空気中へ放出される放射性核種に対して時間の関数として計算しなければならない。図3.3.3を参照すると、時間の関数としての地面への核種  $n$  のフラックス  $F'_n(t')$  は

$$F'_n(t') = Q_{Ln}(t') v_{gn} / V_L \quad (3.3.4.3.3-1)$$

として算出できる。ここで、これら3経路に対して  $Q_{Ln}(t')$  は3.3.4.3.2-3式を用い、 $\lambda_R = 0$  として決定される。 $\lambda_R = 0$  とすることは最初に空気中に分散される物質に

のみ基づき、再浮遊を無視した $Q_{Ln}(t')$ を与えることになる。物質が最初空气中に放出されたとき( $t' = 0$ )から $t'$ まで単位面積あたりに沈着した放射性核種 $n$ の量を得るために、以下のような積分を行う：

$$F_n(t') = \int_0^{t'} F_n'(t'') dt'' = \int_0^{t'} [f_{AL} Q_{np} / (M_{6n} - M_{5n})] \times [(M_{6n} - a_{5n}) \exp(M_{5n} t'') + (a_{5n} - M_{5n}) \exp(M_{6n} t'')] \times (v_{gn} / V_L) dt'' \quad (3.3.4.3.3-2)$$

積分後、結果は

$$F_n(t') = f_{AL} Q_{np} v_{gn} / [(M_{6n} - M_{5n}) V_L] \times \{ [(M_{6n} - a_{5n}) / M_{5n}] [\exp(M_{5n} t') - 1] + [(a_{5n} - M_{5n}) / M_{6n}] [\exp(M_{6n} t') - 1] \} \quad (3.3.4.3.3-3)$$

となる。この式は $m^2$ あたりに沈着した $Ci$ の単位を有する。これらの経路に対する $ERC$ は3.3.1.4節において使われたものと類似の方法によって誘導され、次式を用いて計算できる：

$$FHE_{np} = F_n(t') f_p R I_{np} FCF_{np} CP_p A_L \quad (3.3.4.3.3-4)$$

$F_n(t')$ に3.3.4.3.3-3式を代入し、初期全放出量 $Q_{np}$ で規格化し、 $V_L = A_L h_A$ を代入し、 $t' = t - t_v$ を代入すると

$$FHE_{np} / Q_{np} = (f_{AL} v_{gn} FCF_{np} R I_{np} f_p CP_p / h_A) \times \{ [(M_{6n} - a_{5n}) / [M_{5n}(M_{6n} - M_{5n})]] [\exp[M_{5n}(t - t_v)] - 1] + [(a_{5n} - M_{5n}) / [M_{6n}(M_{6n} - M_{5n})]] [\exp[M_{6n}(t - t_v)] - 1] \} \quad (3.3.4.3.3-5)$$

が得られる。あるいは、 $COML_n$ を

$$COML_n = (M_{6n} - a_{5n}) / [M_{5n}(M_{6n} - M_{5n})] [\exp[M_{5n}(t - t_v)] - 1] + (a_{5n} - M_{5n}) / [M_{6n}(M_{6n} - M_{5n})] [\exp[M_{6n}(t - t_v)] - 1] \quad (3.3.4.3.3-6)$$

のように定義すると、

$$FHE_{np} / Q_{np} = f_{AL} v_{gn} FCF_{np} R I_{np} f_p CP_p COML_n / h_A \quad (3.3.4.3.3-7)$$

となる。

全農地が食用作物を生産するのに使われるという保守的な仮定をしている。実際には一部は非食用作物を栽培するのに使われるであろう。逆に、根が仮定した15cmの根の領域以下にまで伸び、この深さ以下の土壌から放射能を吸収する食用作物もあるであろう。これらの場合に対しては、15cmの土壌根領域に基づいた $\lambda_{sn}$ を用いることは保守的ではない。

### 3. 3. 4. 3. 4 分散され再浮遊した物質の吸収 (p = 17)

分散され再浮遊した物質の吸入によるERCの考察においては3. 3. 1. 5節において誘導されたものと類似の式が使われる。すなわち、それは

$$FHE_{np} = \left[ \int_0^{t'} X_n(t'') dt'' \right] I_B FCF_{np} PD_p A_L \quad (3.3.4.3.4-1)$$

である。

$X_n(t')$ に対する式は3. 3. 4. 3. 2-5式であるので、これを3. 3. 4. 3. 4-1式に代入することができる。積分を行った後、 $t' = 0$ における放射性核種nの放出によって規格化し、 $t' = t - t_v$ と置くと

$$FHE_{np}/Q_{np} = [f_{AL} I_B FCF_{np} PD_p / h_A] COML_n \quad (3.3.4.3.4-2)$$

が得られる。

### 3. 3. 4. 3. 5 外部リスク預託-地面汚染 (p = 22)

汚染された地面に対するERCの式の誘導に用いるべき式は

$$FHE_{np} = \left[ \int_0^{t'} \phi_{in}(t'') dt'' \right] FCF_{np} PD_p A_L SOF \cdot GC_{np} \quad (3.3.4.3.5-1)$$

である。

3. 3. 4. 3. 2-6式は $\phi_{in}(t')$ を表すために使われる。 $FHE_{np}$ の式を積分し、処分場からの初期放出量 $Q_{np}$ によって規格化し、 $t' = t - t_v$ と置くと、ERCの式は

$$\begin{aligned} FHE_{np}/Q_{np} = & \{ 1.5 f_{AL} FCF_{np} SOF \cdot GC_{np} PD_p (M_{5n} - a_{5n})(M_{6n} - a_{5n}) \\ & / [\lambda_R (M_{6n} - M_{5n})] \} \times \{ [ \exp [M_{5n}(t - t_v)] - 1 ] / M_{5n} \\ & - \exp [M_{6n}(t - t_v)] - 1 ] / M_{6n} \} \end{aligned} \quad (3.3.4.3.5-2)$$

となる。

### 3. 3. 4. 3. 6 外部リスク預託-空気サブマージョン (p = 18)

空気サブマージョン外部リスク預託に対して、ERCの式は

$$FHE_{np} = \left[ \int_0^{t'} X_n(t'') dt'' \right] FCF_{np} PD_p A_L SOF \quad (3.3.4.3.6-1)$$

と書かれる。

3. 3. 4. 3. 2-5式は $X_n(t')$ に代入できる。 $FHE_{np}$ に対する式を積分し、処分場からの初期放出量 $Q_{np}$ で規格化し、 $t' = t - t_v$ と置き換えるとERCの式は

$$FHE_{np}/Q_{np} = f_{AL} FCF_{np} PD_p SOF \cdot COML_n / h_A \quad (3.3.4.3.6-2)$$

となる。

### 3. 3. 4. 4 海洋上の空気中への放出

#### 3. 3. 4. 4. 1 一般論

海洋上の空気中へ放出される放射性核種は地球の海洋面積に対流圏の平均高さを掛けることによって決定される体積中に一様に分布するものと仮定する。このように分布する物質に対しては、空気中と二つの海洋コンパートメント間の放射性核種の移動を記述するために、図3. 3. 4に示すようなコンパートメントモデルが一般に承認されている。このモデルを使って、空気中および二つの海洋コンパートメントの各々における放射性核種の濃度が時間の関数として決定できる。これらの濃度が本節において考察される経路に対するERCの評価において使用される。

図3. 3. 4における上部コンパートメント（コンパートメント1）は地球の海洋上の対流圏体積である。中央コンパートメント（コンパートメント2）は海洋の上部コンパートメントであり、下部コンパートメント（コンパートメント3）は海洋の下部コンパートメントである。

火山もしくは隕石の相互作用が処分場から放射能を放出する瞬間に、放射性核種が空気（コンパートメント1）中に入り、その後それ以外の放射能は全く入らないと仮定する。放射性核種は放射性崩壊（ $\lambda_{Dn}$ ）と海洋への沈着（ $v_{gn}A_w/V_{Aw}$ ）によって空気中から出る。放射性核種は空気からの沈着（ $v_{gn}A_w/V_{Aw}$ ）とコンパートメント3（ $\gamma_2$ ）からの移行によってコンパートメント2に入る。放射性核種は放射性崩壊（ $\lambda_{Dn}$ ）と拡散移行（ $\gamma_1$ ）と上部海洋コンパートメントからの堆積移行（ $SF_{1n}$ ）によってコンパートメント3に入り、放射性崩壊（ $\lambda_{Dn}$ ）、海底への堆積（ $SF_{2n}$ ）および上部海洋コンパートメントへの移行（ $\gamma_2$ ）によってこのコンパートメントを出る。この3コンパートメントにおける放射性核種インベントリーに対して解かれる微分方程式は次節において論じられる。

#### 3. 3. 4. 4. 2 水上の空気：3コンパートメントモデル

海洋上の空気に対して考えられるERC経路は海洋と魚貝の消費である。すべての食用の魚貝が海洋上層において水揚げされるという仮定がなされるので、中間コンパートメント（海洋上層）の各核種の量 $Q_{1n}(t')$ を得ることが必要である。この量を中間コンパートメントの体積 $V_1$ で割ると食用の魚貝が生産される領域の濃度が与えられる。図3. 3. 4のコンパートメント間の放射性核種の移行を記述し、3コンパートメント中の放射性核種の量を得るために使われる微分方程式は

$$dQ_{An}/dt' = -(\lambda_{Dn} + v_{wn}A_w/V_{Aw})Q_{An} \quad (3.3.4.4.2-1)$$

$$dQ_{1n}/dt' = \gamma_2 Q_{2n} + (v_{wn}A_w/V_{Aw})Q_{An} - (SF_{1n} + \lambda_{Dn} + \gamma_1)Q_{1n} \quad (3.3.4.4.2-2)$$

および

$$dQ_{2n}/dt' = (\gamma_1 + SF_{1n})Q_{1n} - (\lambda_{Dn} + SF_{2n} + \gamma_2)Q_{2n} \quad (3.3.4.4.2-3)$$

である。このモデルに対する初期条件は

$$Q_{An} = f_{Aw} Q_{np}$$

と

$$Q_{1n} = Q_{2n} = 0 \quad (t' = 0)$$

である。これらの微分方程式を解くために使われる方法は、3.3.4.4.2-1式を直接積分し、次に連立方程式である3.3.4.4.2-2式と3.3.4.4.2-3式の解に $Q_{An}$ の式を使うことである。 $Q_{An}$ と $Q_{1n}$ に対する式は

$$Q_{An}(t') = f_{Aw} Q_{np} \exp[-(\lambda_{Dn} + \lambda_{wn}) t'] \quad (3.3.4.4.2-4)$$

$$Q_{1n}(t') = [A_{2n} / (M_{2n} - M_{1n})] \{ [(a_{1n} - M_{2n}) / (\omega_n - M_{1n})] \exp(M_{1n} t') \\ - [(a_{1n} - M_{1n}) / (\omega_n - M_{2n})] \exp(M_{2n} t') \\ + [(M_{2n} - M_{1n})(\omega_n - b_{2n}) / [(\omega_n - M_{2n})(\omega_n - M_{1n})]] \exp(\omega_n t') \} \\ (3.3.4.4.2-5)$$

である。ここで

$$A_{2n} = v_{wn} f_{Aw} Q_{np} / h_A$$

$$\omega_n = -(\lambda_{Dn} + \lambda_{wn})$$

である。また、 $a_{1n}$ 、 $b_{2n}$ 、 $B_{3n}$ 、 $C_{3n}$ 、 $M_{1n}$ および $M_{2n}$ は3.3.2.2節において定義されている。この解析において $Q_{2n}(t')$ は必要でないので、 $Q_{2n}(t')$ の式は示していない。

時間の関数としての海洋の上部コンパートメント中の放射性核種の濃度は3.3.4.4.2-5式を上部海洋コンパートメントの体積 $V_1$ によって割ることによって算出でき、これは

$$X_{1n}(t') = \{ A_{2n} / [(M_{2n} - M_{1n}) V_1] \} \\ \times \{ [(a_{1n} - M_{2n}) / (\omega_n - M_{1n})] \exp(M_{1n} t') \\ - [(a_{1n} - M_{1n}) / (\omega_n - M_{2n})] \exp(M_{2n} t') \\ + [(M_{2n} - M_{1n})(\omega_n - b_{2n}) / [(\omega_n - M_{2n})(\omega_n - M_{1n})]] \\ \times \exp(\omega_n t') \} \quad (3.3.4.4.2-6)$$

を与える。

### 3.3.4.4.3 海産食品の摂取

海洋の魚 ( $p = 29$ )、海洋の貝 ( $p = 30$ )

これらの経路に対するERCを計算するために使われる式は

$$FHE_{np} = (CF_{np} I_p P_p FCF_{np} / V_1) \int_0^{t'} Q_{1n}(t'') dt'' \quad (3.3.4.4.3-1)$$

である。ここで、 $Q_{1n}$ は3.3.4.4.2-5式によって記述される。積分を行い、全放出量 $Q_{np}$ によって規格化し、 $t' = t - t_v$ を代入し



$$FHE_{np}/Q_{np} = [CF_{np} I_p P_p FCF_{np} v_{wn} f_{AW} / (h_A V_1)] COMO_n \quad (3.3.4.4.3-2)$$

を得る。ここで、

$$\begin{aligned} COMO_n = & [1 / (M_{2n} - M_{1n})] \\ & \times \{ [(a_{1n} - M_{2n}) \exp [M_{1n}(t - t_v)] - 1] / [(\omega_{sn} - M_{1n}) M_{1n}] \\ & - [(a_{1n} - M_{1n}) \exp [M_{2n}(t - t_v)] - 1] / [(\omega_{sn} - M_{2n}) M_{2n}] \} \\ & + [(M_{2n} - M_{1n})(\omega_{sn} - b_{2n}) \exp [\omega_{sn}(t - t_v)] - 1] \\ & / [(\omega_{sn} - M_{2n})(\omega_{sn} - M_{1n}) \omega_{sn}] \} \end{aligned} \quad (3.3.4.4.3-3)$$

である。

### 3.3.5 C-14の環境リスク預託に対する計算

3.3.1節から3.3.4節に述べた経路は炭素-14以外のすべての核種に対する全経路のERCの計算に使われる。これらの解析において考慮された他の放射性核種とは異なり、安定炭素は人の身体と人の食事の中の元素組成のかなりの部分を構成している。微量の放射性核種に適用される種々の環境経路と植物、動物および人の内部の移行経路は、対応する安定元素が多量に存在し、飽和効果が重要であるような放射性核種たとえばC-14には必ずしも適用されない(Mo79)。CO<sub>2</sub>としてのC-14の大気中への放出はKillough(Ki77)によって導出された炭素循環の拡散型モデルを用いて評価できる。このモデルは高温がCO<sub>2</sub>へ酸化させて炭素放出を起こさせると仮定される火山/隕石放出モードに対する放出に使うための正しい計算法であることが明らかであるように思われる。われわれの知る限りでは、CO<sub>2</sub>以外の化学形で水中、地表面あるいは空気中に放出されるC-14に対するERCの計算を明確に取り扱うモデルはない。われわれは種々のもっともらしいモデルと仮定を用いて予備的計算を行った。われわれの文献レビューでは水中および地表面に放出されたC-14の化学形はよく知られていないことを示している。また、長い積分期間にわたるC-14の他の化学形のCO<sub>2</sub>への酸化の速度も、これらの放出モードに対して知られていない。これらの不確実性をすべて考慮して、これがおそらく水中と陸上への放出モードに対するERCの保守的な評価へ導くものと考え、われわれは最も慎重な経路がすべての4放出モードに対してKilloughのCO<sub>2</sub>モデルを用いることであると結論した。

C-14に対する環境リスク預託は全身環境線量預託(EDC)を計算し、致死ガンリスク換算係数を掛けることによって得られる。大気中に放出されるC-14の1Ci当たりの全身環境線量預託の値はKilloughモデル(Ki77)を用い、Fowlerによって計算された(Fo79)。しかしながら、我々は摂取経路が計算の便宜のため100%の寄与をすると仮定する。環境線量預託を評価するために、立体しない定規を1Ci当たりの全身

に対する世界的E D C対放出後時間のFowler曲線に適合させた。この立体しない定規法は、処分場へのC-14定置後時間に対する、全世界全身E D Cに対する次式を与える：

10 ≤ t - t<sub>v</sub> < 100年に対して

$$DTB_{14} = \exp [1.920 + 0.651[\ln(t - t_v) - 2.303] - 0.04485[\ln(t - t_v) - 2.303]^2 + 0.01109[\ln(t - t_v) - 2.303]^3] \quad (3.3.5-5)$$

100 ≤ t - t<sub>v</sub> < 1,000年に対して

$$DTB_{14} = \exp [3.316 + 0.6208[\ln(t - t_v) - 4.605] + 0.03172[\ln(t - t_v) - 4.605]^2 - 0.01056[\ln(t - t_v) - 4.605]^3] \quad (3.3.5-6)$$

1,000 ≤ t - t<sub>v</sub> < 7,000年に対して

$$DTB_{14} = \exp [4.785 + 0.5988[\ln(t - t_v) - 6.908] - 0.04126[\ln(t - t_v) - 6.908]^2 + 0.004198[\ln(t - t_v) - 6.908]^3] \quad (3.3.5-7)$$

7,000 ≤ t - t<sub>v</sub> < 10,000年に対して

$$DTB_{14} = \exp [5.825 + 0.4859[\ln(t - t_v) - 8.8537] - 0.01675[\ln(t - t_v) - 8.8537]^2 - 0.1544[\ln(t - t_v) - 8.8537]^3] \quad (3.3.5-8)$$

10,000 ≤ t - t<sub>v</sub> < 40,000年に対して

$$DTB_{14} = \exp [5.989 + 0.4153[\ln(t - t_v) - 9.2103] - 0.1817[\ln(t - t_v) - 9.2103]^2 + 0.02385[\ln(t - t_v) - 9.2103]^3] \quad (3.3.5-9)$$

40,000 ≤ t - t<sub>v</sub> < 100,000年に対して

$$DTB_{14} = \exp [6.279 + 0.04890[\ln(t - t_v) - 10.597] - 0.08246[\ln(t - t_v) - 10.597]^2 + 0.04059[\ln(t - t_v) - 10.597]^3] \quad (3.3.5-10)$$

t - t<sub>v</sub> ≥ 100,000年に対して

$$DTB_{14} = 537.0 \quad (3.3.5-11)$$

環境リスク預託は3.3.5-5式から3.3.5-11式までに得られたように、全身環境線量預託に、Fowler (F o 7 9) によって与えられたような全身マン-レム当たりの1.46E-4という致死ガンリスク係数を掛けることによって得られる。この式は

$$FHE_{np}/Q_{np} = CARCAN \cdot DTB_{14} \quad (3.3.5-12)$$

である。この式は放出モード内の全経路に対する全環境リスク預託を示しており、各経路に別々に適用されるものではない。3.3.5-12式は、f<sub>LL</sub>、f<sub>AL</sub>およびf<sub>AW</sub>を掛けることができ、陸地への直接放出、陸上の空気中への放出、水上の空気中への放出に対す

る火山／隕石放出モードに対するC-14が算定される。

われわれの解析が基礎としているC-14の線量評価とリスクの情報は、全身環境線量当量預託と単位全身線量当量換算係数当たりの致死ガンリスクを算定する。Fowlerの解析を改訂すべきであるならば、われわれの最新のRADRISKデータ（Fowlerが解析を行った時には入手できなかった）を用い、有効環境線量当量換算係数当たりの致死ガンリスクを用いるべきであろう。われわれのより新しいデータを用いるならば接近可能な環境へ放出されたC-14の1Ci当たりの致死ガンのリスクは約1.5倍だけ増加したであろう。しかしながら、40CFR191（EPA85c）の表1を作成する際に計算された放射性核種の放出限度の端数処理のために、C-14の放出限度は変わらないであろう。

### 3.4 致死ガンのリスク換算係数

致死ガンのリスク換算係数は3.3節に述べられた経路方程式のそれぞれに適用される。ある場合には、娘核種に対するリスク換算係数が環境での移行の際の娘核種の内部蓄積を考慮するための近似法として、親核種の換算係数に加えられる。リスク換算係数を得て、また、環境での移行の際の内部蓄積を考慮するために使われた方法を本節で述べる。

#### 3.4.1 致死ガンリスク換算係数

30経路のそれぞれに対して、放射性核種の吸入もしくは摂取によって内部被曝が起こるか地表面汚染もしくは空気サブマージョンによって外部被曝が起こり、3.3節において誘導した方程式に使うためには、致死ガンのリスク換算係数が必要となる。線量とリスク換算係数を計算するためにEPAが使ったコンピュータコードはRADRISKである（Du84, Su81, Du80）。RADRISKによってある与えられた放射性核種の年間の単位の摂取量に起因する放射線量とリスクあるいは空気中もしくは地表面の放射性核種の単位濃度に対する外部被曝に起因するリスクが算出される。線量およびリスクモデルは共に線形であるので、単位の線量およびリスクの結果は特定の線源と関連した被曝を反映するように概算することができる。

内部被曝は、放射性物質が吸入されたり摂取されるとき起こる。RADRISKコードは吸入もしくは摂取された放射性核種による体内の特定の基準器官に対する種々の時間で摂取される線量率を評価するための現代の線量評価モデルの要件を満たしている。RADRISKの線量評価法は、最初、国際放射線防護委員会ICRP（ICRP79）と米国放射線防護委員会NRPB（Ad78）によって推奨されたモデルに基づくINREMIコードの方法から採用された。ある場合には、入力パラメータ値は職業的被曝グループよりもむしろ全体として米国民のより代表的なグループに合わせられた（Su81）。主要な質的相違はRADRISKでは高および低LETの放射線に対する特定器官への線量率を個別に算出するのに対して、INREMIでは特定器官への預託線量当量を算出すると

いうことである。

汚染空気の中にいるか汚染地面に立っている個人の諸器官に対する線量率はKocher (K o 8 1 c) のD O S F A C T E R計算コードによって算出される。これらの計算は放射性核種濃度が空気中あるいは地表面で一様であると仮定している。光子のみが体内を十分に透過し内部器官に有意の線量を与えるので、外部被曝経路に対しては光子放射線からの線量だけが考慮される。

R A D R I S K計算コードを用いて得られた致死ガンリスク換算係数は一般にB E I R 3に与えられた致死ガンリスクデータに基づいている (N A S 8 0)。本報告書において用いた線量応答関数は低および高L E Tリスク評価値の両者に対して線形である。白血病および骨ガンによる死亡数の予測のためにE P Aは絶対リスクモデル、2年の最小潜伏期間および25年の発現期間を用いている。他のガンによる死亡数の評価のためにはE P Aは絶対および相対リスク予測モデルを用いている。これらのガンに対して、われわれは10年の最小潜伏期間および放射線誘発ガンの寿命期間の発現を仮定する。高L E Tリスク評価値に対しては、高L E T (アルファ粒子)放射線によるリスクを、高L E Tリスク係数が低L E T値の20倍である骨ガン以外の同じ組織に対する低L E Tに対するものの8倍であると考ええる。

われわれの方法論の重要な特徴は、放射線障害の時間依存を説明し、放射線被曝によるリスク評価における死亡リスクの計算のために実際の生命表を使うことである。生命表はある与えられた集団のあらゆる死亡原因からの年齢特異的な死亡率を示すデータを含んでいる。この情報は現実の集団の実際の死亡率について得られたデータから引き出される；本研究では1969-1971年の間の米国民の死亡データを用いている。

低レベル放射線被曝によるリスクの研究での生命表の使用は、放射線リスクに固有の時間遅れのために、重要である。放射線被曝を受けた後、ガンが臨床上観察されるまでに数年の潜伏期間が存在する。潜伏期間に続いて、一定期間におけるガンの発生の確率が特定期間に対して一定である (プラトーと呼ばれる) と仮定する。潜伏期間とプラトー期間の長さはガンの種類による。

放射線被曝の間あるいは後の潜在的なガン患者は、放射線被曝の増加以外の原因による死のリスクに継続的にさらされるといふ長年の人生を経過することになる。つまり、ある個人はさまざまな原因の死によって集団から除かれ、放射線によって誘発されるガンの犠牲者とはならない。

仮定的コーホート (統計因子を共有する集団) の各構成員はある放射性核種のある放射能にさらされていると仮定する。この解析ではコーホートの各構成員は年間1 p C iの核種を吸入するか摂取し、あるいは空気中の1 p C i / c cか地表面の1 p C i / c m<sup>2</sup>の一定の外部濃度にさらされている。R A D R I S Kに使われるモデルは線形であるので、これらの結果は他の被曝条件を評価するために概算される。このコーホートは最初の集団

が10万人であり、そのすべては同時に生きて生まれる。このシナリオでは、放射線被曝は出生時に始まり、各個人の全生涯にわたって続くと仮定している。

コーホートの構成員の一人として110年以上も生きるものはいない。0から110年の期間は九つの年齢区間に分けられ、年齢区間の中間点での特定器官への線量率はその年齢区間の年線量の推定値として使われる。ある器官に対して、放射線誘発ガンによる死亡の増加確率は放射線リスク係数を用いて各年に対して評価され、またその年およびそれ以前の数年の間の線量を評価する。死亡率の増加が保険統計の生命表とともに使われ、各器官に対する毎年の放射線誘発死亡数の増加を予測する。各器官毎のコーホートに対する死亡増加数は110年にわたって1年毎の死亡を合計することによって得られる。コーホートの死亡の全増加数は各器官毎の全死亡数をすべての器官に対して合計することによって得られる。

死亡数の増加の推定を与える他に、生命表の方法は放射線誘発ガンの死により失われる全生存年数、死亡率の増加あたりに失われる平均生存年数、および集団の平均余命を推定するのに使われる。Ra-226の吸入に対するRADRISK計算コードからの出力の例を表3.4.1に示す。

コーホートの慢性被曝に対するリスク推定値は、また、1970年の米国民と同じ年齢特異的死亡率をもつ定常集団にも適用される。つまり、定常集団はコーホート内のあらゆる年齢グループを重ね合わせることによってつくられ、各年齢グループはすべての年齢グループの和に等しい全集団をもつ定常集団の部分に対応する。つまり、一定の線量率でのコーホートの生涯被曝に対して算出された過剰の致死ガンは同じ大きさの集団線量を受けた定常集団に対して算出されたものと数値的に等しいであろう。この等価性は本報告書に述べる環境経路解析に対するリスク係数を誘導するのに使われた。さらに詳細な議論は文献(Du84, Du80, Su81)を参照されたい。

われわれの高レベル廃棄物の環境経路計算においては、RADRISKデータを用いて致死ガンのリスク預託係数を計算し、線量預託あるいは線量率なしに、吸入および摂取の経路に対する生涯放射性核種摂取からおよび空気サブマージョンおよび地表面経路に対する生涯外部被曝から直接致死ガンリスクに換算した。例として、吸入リスク預託係数の誘導を次節において述べることにする。

RADRISK計算コードからの出力のまとめの表(表3.4.1の例)、縦列8、全(体細胞)を用いると、同時に生まれその生涯にわたって継続的に $1\text{ pCi}/\text{y}$ を吸入する10万人のコーホートにおける早発性致死ガンの全数が得られる。コーホートを構成する個人の平均寿命は70.756年である。つまり縦列8に与えられた死亡数はコーホートによる集団的な生涯摂取の結果である：

$$\begin{aligned} & (10^5\text{人})(1\text{ pCi}/\text{y}-\text{人})(70.756\text{y})(10^{-12}\text{Ci}/\text{pCi}) \\ & = 7.076 \times 10^{-6}\text{Ci} \end{aligned}$$

したがって、一定の生涯摂取率に対して致死ガンリスク預託係数は式

$$FCF_{pp} = (\text{表3.4.1の8欄}) / (7.076 \times 10^{-6} \text{Ci吸入}) \quad (3.4.1-1)$$

を用いて算出することができる。なお、 $FCF_{pp}$ は1Ciの吸入当たりの死亡数である。この式はコーホートに対して用いられたのと同じ年齢分布および年齢特異的死亡率をもつ安定な集団（すなわち毎年同数の人が生まれ、死ぬ集団）に適用できる。この式を用いて誘導された係数は放射能の急性の摂取に対する個人の致死ガンリスクの計算には適用できない。

AMAD=1.0ミクロンで呼吸浄化値クラスWのRa-226に対しては、10万人のコーホートにおける早発性致死ガンの全数は $1.65 \times 10^{-2}$ （表3.4.1, 8欄）である。したがって、3.4.1-1式を用い、致死ガンリスク換算係数は2,332人/Ci吸入と算出される。

この例は吸入経路に対する致死ガンリスク換算係数を誘導するための方法を示している。摂取、空気サブマージョンおよび地表面被曝経路に対する係数を得るのに使われる手順は上に示したものと極めて類似している。

### 3.4.2 環境移動の際の娘核種の蓄積の解析

環境移動の際の娘核種の蓄積は3.3節に述べた30経路方程式においては厳密には論じなかった。核種に対する崩壊図を調べると、一般に、核種は（a）安定な娘核種をもつか、（b）親核種に比べて極めて短寿命の娘核種をもつか、（c）長寿命の第1および第2の娘核種に対して中程度の寿命の娘核種をもつかである。次の方法は環境移動の際に娘核種を取り扱う近似的な方法として使われる。

場合（a）に対しては、環境における親核種のあるすべての場所において娘核種は親核種と永年平衡になっていると仮定した。明らかに、娘核種が環境では親核種とは異なった振る舞いをするので、これは単純化した仮定である。娘核種が線量評価において重要な場合には、娘核種のリスク係数が親核種のリスク係数に加えられた。場合（b）の例は、Zr-93である。Zr-93は $1.53 \times 10^6$ 年の半減期と $8.46 \times 10^{-2}$ の致死ガン/Ciの摂取致死ガンリスク係数をもつ。Zr-93の唯一の放射性娘核種はNb-93mであり、これは14.6年の半減期と $4.21 \times 10^{-2}$ の摂取致死ガンリスク係数を有する。これは明らかにNb-93mが環境において親核種のZr-93と永年平衡にある場合であり、われわれはこのリスク係数を加算して $1.27 \times 10^{-1}$ 致死ガン/Ci-摂取というZr-93の報告されたリスク係数を得た。その根拠は摂取されたZr-93の1Ci毎にNb-93の1Ciが存在し、また、摂取されるからである。

場合（c）においては、接近可能な環境において親核種の残留期間に長寿命の娘核種の顕著な蓄積が起こるかどうかを決定するための簡単な計算を行った。接近可能な環境とは

その物質が人に利用される環境の部分である。例えば、土壌根領域にある放射性核種は接近可能な環境にあるが、根の領域以下に移動した放射性核種は接近可能な環境を離れたことになる。土壌根領域が接近可能な環境における放射性核種の最長保持時間の一つをもつ環境媒体であると信じているので、カテゴリー(c)における放射性核種の土壌中での平均寿命を計算した。平均寿命は15cmの土壌根領域に対する浸出速度定数 $\lambda_{sn}$ の逆数と仮定した。標準Bateman方程式(Ev55)を用いて、親核種の平均寿命の間に蓄積しうる重要娘核種の最大放射能を評価し、この放射能を親核種の元の放射能と比較した。最大放射能が元の親核種の放射能の1%を越える娘核種に対しては、内部蓄積率と元の親核種の放射能の積を親核種のリスク係数に加算した。元の親核種の放射能の1%以下の蓄積の場合の娘核種の寄与は無視した。親核種と最初の中程度ないし長寿命の娘核種の間崩壊連鎖における短寿命娘核種は(b)の場合と同様永年平衡にあると仮定される。

### 3.4.3 環境経路計算に対するリスク係数の応用

吸入および摂取の経路に対して2カテゴリーの致死ガンリスク係数を計算し、それぞれ吸入1、吸入2、摂取1、摂取2と命名した。カテゴリー1の係数は放射性核種が接近可能な環境にかなり不溶性の化学形で存在するであろうと信じたときに使った。クラスYのリスク係数はすべての核種に対する吸入1の分類に対して用い、クラスWのリスク係数は吸入2の分類に対して用いた。しかしながら、ある放射性核種に対しては、クラスDあるいはクラスDとクラスWの吸入リスク係数だけを使い得る。これらの場合には、最も溶けにくい浄化クラスに対する係数を適用した。例えば、吸入リスク係数がクラスDとクラスWに対しては利用できるが、クラスYに対しては利用できないならば、クラスWの係数が吸入1と吸入2の両方の分類にリストされた。摂取1と摂取2の分類に対しては、吸入1と吸入2の分類に対して使われたのと同じ消化管から血液への吸収割合 $f_1$ を用いて得られたリスク係数が使われた。

火山/隕石放出モードに対しては、吸入1と摂取1のリスク係数が使われ、他の3放出モード(河川への放出、海洋への放出、および地表面への放出)に対しては、吸入2と摂取2のリスク係数を使った。このような取り扱いをしたのは、われわれが火山/隕石の放出モードで放出された放射性核種が、他の3放出モードで放出される放射性核種よりもより溶けにくい化学形であろうと信じるからである。

われわれの解析において用いたリスク係数は表4.2に示す。

### 3.4.4 $Np-237$ に対するリスク換算係数

$Np-237$ については特記する必要がある。ICRP報告30(ICRP80)においては、消化管からの吸収に対する値 $f_1$ は $10^{-2}$ である。これはICRP報告2(ICRP60)に勧告された前の値 $10^{-4}$ に対して100倍の増加である。Cohenによれば、

この $f_1$ の増加とBEIRⅢに引用された肝臓に対する高いガンリスク係数によって $Np-237$ が高レベル放射性廃棄物の処分による健康影響の評価において懸念される主要な核種となった(Co82)。ICRP30では、 $10^{-3}$ という $f_1$ 値が食品中に含まれる微量の元素あるいはネプツニウムに対してより適当であると指摘されている。ICRP30の刊行物に引き続いて出版された情報(Th82a, Th82b)は、 $10^{-3}$ が低い環境レベルに対してネプツニウムの $f_1$ に対して最も適切な値であることを示している。本報告書においてEPAによって用いられた $Np-237$ に対する内部線量換算係数は、 $10^{-3}$ という $f_1$ に基づいている。最新の情報に基づいてEPAは、これが最良の値であると信じている。EPAはICRP委員会2がアクチニドに対する $f_1$ の最も適切な値を勧告するためのタスクグループを持っており、また、NCRPがネプツニウムに対するタスクグループをつくったことを知っている。それが利用できるようになれば、EPAは高レベル放射性廃棄物の処分に関わる将来の解析においてこれらの両委員会の勧告を考慮することになる。

### 3.5 パラメータ値についての考察

これらの計算に用いられたパラメータのあるものは30経路方程式のいくつかに見出される。このため、われわれは、経路ERC方程式を述べている節とは別の節においてパラメータ値について考察することとした。多くのパラメータに対して、その値の範囲が文献に見出されるであろう。本節に掲載するパラメータ値は、3.6節にまとめられている致死ガンのリスク計算に対して使われ、より詳細には地層処分場からの集団リスクについてのEPAの解析(EPA85a)において考察されている。

パラメータ $\lambda_{L_n}$ は放射性核種が廃棄物から処分場の地下水へ浸出する速度で、すべての核種に対して同じであると仮定した。 $1.0E-2y^{-1}$ から $1.0E-6y^{-1}$ の値の範囲がArther D. Little社によって与えられた情報(Li77b)に基づいて、EPAの解析(EPA85a)において検討されている。放出1Ci当たりの致死ガンを計算する際に使われた値は $1.0E-4y^{-1}$ である。

パラメータ $t_{L_n}$ は、処分場に定置後、処分場からの浸出が始まるまでの時間で、通常廃棄物キャニスターの破損するまでの時間に相当する。100年と5000年の間のキャニスター寿命が地層処分場に関するEPAの解析において考察されている(Sm82, EPA85a)。われわれは全核種に対して $t_{L_n}$ が同一であると仮定する。

パラメータ $t_{R_n}$ は放射性核種が処分場から帯水層まで移動するのに要する時間である。この時間は地層処分場に関するEPAの解析において論じられている状況に依存して変わるが、通常、数年のオーダーである。

パラメータ $t_{A_n}$ は物質が帯水層から河川へ移動するのに要する時間である。 $t_{A_n}$ に対して選ばれた値は $760R_n$ 年である。ここで、 $R_n$ は考慮される核種に対する遅延係数で



ある。 $R_n$ は考慮される放射性核種と状況により1と10,000の間で変わる。 $R_n$ の値はA. D. Little報告(L i 7 7 c)とEPAのリスク評価報告(E P A 8 5 a)において述べられている。

パラメータ $t_{Rn}$ は、処分場へ定置後、放射性核種 $n$ が河川あるいは海洋に入るまでの時間で、 $t_{er}$ 、 $t_{ran}$ および $t_{arn}$ の和である。これらの計算に対しては、 $t_{Rn}$ は0に等しいとされる。われわれは環境へ放出される1Ci当たりの健康への影響を計算しているのだから、これは許される。処分場からの放射性核種の全放出量を計算する時には、 $t_{er}$ 、 $t_{ran}$ および $t_{arn}$ については0でない適当な値を選ばなければならない。

パラメータ $Q_{0n}$ は時間 $t=0$ における処分場内の核種 $n$ の初期放射能である。 $Q_{0n}$ の値は種々のシナリオに対して一定のままであり、リスク評価報告書(E P A 8 5 a)に述べられている。

パラメータ $\lambda_{Dn}$ は核種 $n$ の放射性崩壊定数である。 $\lambda_{Dn}$ の値はLederer(L e 6 7)とKocher(K o 8 1 a)の半減期の情報を用いて計算される(表3. 5. 1参照)。パラメータ $f_{LL}$ 、 $f_{AL}$ および $f_{AW}$ は火山/隕石の事象による全放出量のうち、地表、陸地上の空气中および水上の空气中へ放出される割合である。これらのパラメータに対して $f_{LL}=0.500$ 、 $f_{AL}=0.150$ および $f_{AW}=0.350$ の値が使われる。

パラメータ $P_R$ は河川からの水を飲む人の数であり、 $R$ は河川の流量である。 $P_R/R$ 比は幾つかの式に必要であり、また、一般的評価の目的に対してサイト特有のデータを得ることなく決定することができる。1977年UNSCEAR報告(UN77)の付属書類Dからのデータを用いると、世界の河川の年間流量は $3E+16\ell$ /年である。世界人口を $10^{10}$ 人の一定と仮定すると $P_R/R$ の比は $3.3E-7$ 人・年/ $\ell$ となる。 $P_R/P$ の比に対するこの値は米国内の種々の河川流域に対して見出される値の範囲内である。この値は1975年の河川流量と人口推定値に基づくと、低部コロラド水資源審議会領域に対する $5.73E-7$ の高い $P_R/R$ から太平洋北西水資源審議会領域に対する $2.39E-8$ の低い $P_R/R$ 比までにわたっている。

パラメータ $I_w$ は飲料水および飲物の1人当たりの年間消費量である。基準の大人が水と飲物を飲む量は $1.65\ell$ /日(ICRP75)であるので、 $I_w$ 値は $603\ell$ /年となる。地球の河川水のうち世界人口に飲まれる割合は約 $2E-4$ である。

パラメータ $P_{FF}$ は河川からの淡水魚を食べる人口であり、 $I_f$ は1人当たりの年間の淡水魚消費量である。人口淡水魚消費量( $P_{FF}I_f$ )対河川流量( $R$ )の比が計算に必要である。UNSCEARによる世界の淡水魚消費量は人口が $3.8E9$ 人の現在レベルから増加するとともに比例して増加するであろう。したがって $10^{10}$ 人の最終人口に対しては $10^{10}$ 人kg/年の年間淡水魚消費量となるであろう。世界の河川の平均流量を考えると、人口淡水魚消費量対河川流量の比は $10^{10}/3E16=3.3E-7$ 人kg/ $\ell$ となる。

パラメータ $CF_{np}$ は核種 $n$ および経路 $p$ に対する魚貝の生物濃縮係数である。淡水魚、

海洋の魚貝に対する $CF_{fp}$ に対して使われた一次文献はUCRL-50564, Rev. 1 (Th72)である。これから採用した生物濃縮係数に対する値は表3.5.2に示す。

パラメータ $RI_{fp}$ は3.3節に述べた陸生の食物経路係数に対する記号である。これらの係数に使われた値は表3.5.3に列記されている。これらの係数を誘導するために用いられる方法論はAIRDOS-EPAコンピュータコード(Mo79)に使われたものに類似している。

種々の食用作物に使われる土地の割合は $f_p$ である。河川経路に対して灌漑水は土地に対して放射性核種の注入源となるので、灌漑された農地のみが関係のある土地となる。われわれは灌漑される土地の50%が食用作物の栽培に使われ、25%が乳牛の飼育に使われると仮定している。河川以外の放出モードに対しては、放射性核種は空気中の分散を経て土壌表面に到達するので、 $f_p$ の値には米国の農業に使われる地表面を含めなければならない。米国の地表面の45%が1974年には農業に使われていることがわかった(Wo79)。河川以外の放出モードに対する $f_p$ を得るために、河川放出モードに使われた $f_p$ 値の45%を用いた。つまり、河川以外の放出モードに対しては、食用作物の栽培に対して土地の23%が使われていると仮定した。すべての放出モードに対して農地のうちの一部が食用以外の作物に対して使われるであろうから、乳牛の飼育に対する11%、肉牛の飼育に対する11%が $f_p$ に対して選ばれた値の上限である。

灌漑に使われた河川流量の割合 $f_R$ は0.1とした。この数値は全地表水流のうち米国の灌漑に対して使われる平均値であり、USGS刊行物765(Mv77)から採用された。他の出版物からのデータは、米国の平均に対して0.1を選んだことを全般的に支持している(WRC78, WIC70)。 $f_R$ の値は、米国の種々の地域に対して0(オハイオとテネシーの地域)からほとんど1(コロラド低地地域)まで変わる。

パラメータ $CP_p$ は単位面積の土地によって得られる栽培作物 $p$ によって養うことのできる人口である。この量は作物が栽培される土地の農業生産量( $kg/m^2 \cdot \text{年}$ )を作物を消費する個人の年間消費量( $kg/\text{年} \cdot \text{人}$ )で割ることによって得られる。 $CP_p$ の値は二つの文献(Sh82, Ba84)中の情報から得られ、人と乳牛、肉牛によって消費される作物の種類を考慮に入れて引き出された。この解析において、 $CP_p$ 値は食用作物に対して $4.79E-3 \text{人}/m^2$ 、牛乳に対して $1.56E-3 \text{人}/m^2$ 、牛肉に対して $7.85E-5 \text{人}/m^2$ である。

パラメータ $P_p$ は経路 $p$ に対する人口密度である。 $PD_p$ に対して使われた値は世界の平均人口密度の $6.67E-5 \text{人}/m^2$ で、 $10^{10}$ 人という世界人口を $1.5E14 m^2$ という地球の陸地面積で割ることによって得られた(Wo79)。この値は米国各地の人口密度の範囲内にある(Wo79)。

パラメータ $RF$ は地表面から空気中へ再浮遊する物質に対する再浮遊係数である。これは空気中濃度に対する土壌濃度の比 $X_n(t')/\phi_n(t')$ として定義され、 $\lambda_R/v_{gn}$ に等

しい。ここで $\lambda_R$ は土壌から空気中への放射性核種の再浮遊の速度定数、 $v_{gn}$ は空気中から土壌表面への沈着速度である。本解析に対して選ばれた $\lambda_R$ の値は風化された物質の代表となるべき $10^{-11} \text{ s}^{-1}$ である (Ne 78)。また、 $v_{gn}$ に使われた値は $10^{-2} \text{ m/s}$ である。RFの値は $10^{-9} \text{ m}^{-1}$ で、この値は Bennettによって示された長期の平均値とよく一致する。事実、 $\lambda_R$ とRFは時間の関数であるが、時間依存の関係は知られておらず、計算の時間範囲に対しては平均値を代表させるために一定値が使われた。 $\lambda_R$ に対して選ばれた値は乾燥地の再浮遊に対して適切であり、それゆえ、灌漑された湿地からの再浮遊による線量 (河川放出モード) は保守的に高いかもしれない。

パラメータ  $I_B$  は標準的な人の呼吸速度である。ICRP 報告 23 (ICRP 75) の情報に基づいて  $8400 \text{ m}^3/\text{年}$  という値がこのパラメータに対して選ばれてきた。

パラメータ SOF はごく普通の遮蔽と占有による外部線量の減少を説明する係数である。1.0 という保守的な値が河川放出モード以外のすべての放出モードに対して選ばれた。河川放出モードに対しては外部線量を受ける地域は灌漑された農地である。人が灌漑された土地のまわりで過ごす時間の割合を考えた後で、われわれは河川放出モードに対する SOF に対し 0.33 の値を指定することにした。

利用できる土壌から利用できない土壌までの核種の移行に対する速度定数は  $\lambda_{sn}$  である。 $\lambda_{sn}$  の値は核種に依存し、Baes によって述べられた方法 (Ba 79a) とデータ (Ba 84) を用いて決定される。本解析の  $\lambda_{sn}$  に用いた値は表 3.5.4 に与えられている。Baes は除去機構として水による浸出による土壌根領域からの放射性核種の消失をモデル化しているが、土の侵食とそれによる放射性核種の消失はモデル化していない。長期間に対しては侵食が重要な除去機構となろう。

土壌へ沈着する放射性核種に対して使われるリスク換算係数は物質が表面に残るという仮定を用いて誘導された。これらの計算に含まれる長期間にわたっては、放射性核種は土壌中下方へ垂直に移動するであろう。これらの核種から放出される  $\gamma$  線は部分的に土壌によって遮蔽されるので、単位の沈着量当たりの線量当量は表面線量換算係数によって与えられるものよりも小さい。われわれは放射能が土壌根領域内で垂直に一様に分布すると仮定して核種毎に補正係数を導いた (3.3.16 節の議論を参照のこと)。これらの補正係数は表 3.5.5 に示す。

パラメータ  $f_{wt}$  は飲料水処理プラントを通過し、飲料水中に残留する放射性核種の割合である。われわれは保守的に全放射性核種に対して 1.0 の値を仮定した。しかしながら、文献値は本解析において考察した放射性核種に対して 0.2 から 1.0 の範囲にある (Fl 71, De 75, NRC 78)。

パラメータ  $f_{sw}$  は地表水によって供給される飲料水の割合である。米国の平均値はメリーランド州の 0.90 からアイダホ州の 0.08 まで変わり、米国の平均は  $\sim 0.65$  である (Mu 77)。この計算においては米国の平均値を用いた。

海洋モデルにおいて用いられた移行速度係数は $\gamma_1$ と $\gamma_2$ である。下部海洋コンパートメントから上部海洋コンパートメントへの水の移動に対する移行速度係数は $\gamma_2$ で、本解析に用いられたその値は $6.25 \times 10^{-4} \text{ y}^{-1}$  (Ma 73) である。上部海洋コンパートメントから下部海洋コンパートメントへの水の移動に対しては、移行速度係数は $\gamma_1$ で、この解析に用いられた値は $3.3 \times 10^{-2} \text{ y}^{-1}$  である。

パラメータ $S F_{1n}$ と $S F_{2n}$ はそれぞれ核種 $n$ に対する海洋の上層と下層からの堆積速度係数である。堆積の取り扱いはINFC Eのワーキンググループの報告(INFC E 78)からとった。われわれが用いたこれら二つのパラメータ値は表3.5.6に示す。

海洋の上部コンパートメント体積( $V_1$ )に対する人口海産物消費量( $P_p I_p$ )の比がこれらの計算において必要である。 $P_p$ は海産物を食べる人口で $I_p$ は経路 $p$ (魚の摂取に対して $p=9$ 、貝の摂取に対して $p=10$ )に対する1人当たりの年間海産物消費量である。 $V_1$ は食用魚が捕獲されると仮定されている海洋の上部コンパートメントの体積である。この一般的な解析に対しては平均人口消費量の予測値は $6 \text{ kg/年} \cdot 10^{10} \text{ 人} = 6 \times 10^{10} \text{ kg} \cdot \text{人/年}$ で、海洋の貝に対しては $1 \text{ kg/年} \cdot 10^{10} \text{ 人} = 1 \times 10^{10} \text{ kg} \cdot \text{人/年}$ である(UN 77)。海洋の上部コンパートメントの体積は世界の海洋の表面積 $3.6 \times 10^{14} \text{ m}^2$ に海洋の上部コンパートメントの仮定深さ75mを掛けることによって得られる。得られた結果は $2.7 \times 10^{16} \text{ m}^3$ すなわち $2.7 \times 10^9 \text{ l}$ である。つまり $P_p I_p / V_1$ の比は海産の魚に対して $2.2 \times 10^{-9} \text{ kg} \cdot \text{人/l} \cdot \text{年}$ である。

$t_L$ と $t_V$ はそれぞれ処分場に定置後放射性物質が地表面および火山/隕石経路で地表面あるいは地表面の空気中へ送り出されるまでの時間である。 $t_L$ と $t_V$ の値は種々のシナリオで変わり、種々のシナリオに対するこれらのパラメータに対して選ばれた値の議論はリスク評価報告書(EPA 85a)に含まれている。しかしながら、利用できる環境に放出された $1 \text{ Ci}$ 当たりの致死ガンを計算している本解析に対しては、 $t_L$ および $t_V$ を0に等しいとした。

対流圏の平均高さは $h_A$ である。対流圏の高さは25,000ft(7,600m)から60,000ft(18,000m)の範囲である(Wo 79)。われわれの計算では平均値13,000mを採用した。

空気から海洋への沈着速度は $v_{wn}$ である。本解析では、全核種に対して $2 \text{ cm/s}$ の値を用いたが、これは“Meteorology and Atomic Energy (気象学と原子力)、1968”(AEC 68)に含まれている一般的な沈着速度から得られたものである。

空気から海洋への沈着の速度定数は $\lambda_{wn}$ で、これは $v_{wn} / h_A$ に等しい。本解析に対して算出された値は $48.7 \text{ y}^{-1}$ である。

### 3.6 1 キュリー の 放出 当たり の 健康 へ の 影響

#### 3.6.1 接近可能な環境への1キュリー の 放出 当たり の 致死ガン

本節では、EPAの環境移行経路解析で考察されるすべての核種に対して、接近可能な環境への1 Ciの放出当たりの初めの1万年間の致死ガンを記載した。これらの致死ガンの推定値は3.2節および3.3節に示した方法とアルゴリズムおよび3.4節と3.5節で論じたパラメータを用いて算出した。これらの致死ガンの推定値は高レベルおよび超ウラン放射性廃棄物処分のためのEPAの環境基準、40 CFR 191 (EPA 85c)の表1の放射性核種の放出限度を作成するのに使われた。四つの放出モードの各々および各放出核種に対する致死ガンの推定値は表3.6.1に示されている。表3.6.2、3.6.3および3.6.4は、河川、海洋および土壌表面の放出モードに対する1 Ci当たりの致死ガンに対する種々の環境経路の寄与を示した。積分時間として1万年を用いた。1 Ci当たりの致死ガンは廃棄物浸出速度( $\lambda_{ln}$ )の値には極めて僅かしか依存しないけれども、廃棄物浸出速度としては $10^{-4}$ /年を用いた。

表3.6.1から3.6.5に掲載した致死ガンの推定値に対して適用した線量応答関数は低および高-LETの放射線の両者に対して線形である。低-LET放射線に対して、EPAはBEIR-III (NAS 80)に論じられている二つの1次の応答関数をもっともらしいと考えている。それらは1次モデルおよび1次-2次モデルで、1次モデルの方がより保守的である。われわれの計算における低および高LET放射線に対する1次モデルの使用はEPAの科学諮問委員会の高レベル放射性廃棄物処分部会によって徹底的に再検討され、容認されている(EPA 84a)。

### 3.6.2 接近可能な環境への1キュリーの放出当たりの致死ガンと(すべての世代に対する)重大な遺伝的影響の比較

40 CFRに対するキュリー放出限度は致死ガンのリスクに基づいている。接近可能な環境へ放出された各種の放射性核種の1キュリーあたりの致死ガンの推定値を、四つの放出モードに対して、表3.6.1にまとめて示した。

さらに接近可能な環境への1キュリーの放出当たりのすべての将来の世代に対する重大な遺伝的影響の推定値を計算した。重大な遺伝的影響の推定値を算出する仕組みは遺伝的影響のリスク係数が致死ガンのリスク係数( $FCF_{pp}$ )の代わりに使用される他は本報告書において致死ガンに対して述べたものと同様である。遺伝的影響のリスク係数はBEIR-3 (NAS 80)からの遺伝的リスク推定値を用い、また30歳までに受けた線量を用いて得られた。BEIR-3の推定値は“間接的な”推定値であり、遺伝的欠陥の標準的な罹患率およびこのリスクを倍加すると考えられる線量を用いて計算した。EPAによって用いられたNASの推定値は、50レムの下限值および250レムの上限値からなる倍加線量範囲に基づいている。範囲を一つの推定値として表すために、遺伝的リスクの算出の目的でUNSCEARによって最初に推奨された方法である範囲の幾何平均値を用いた。高線量率、低LET放射線に対するリスクでは3倍の増加を用いた。すべての高L

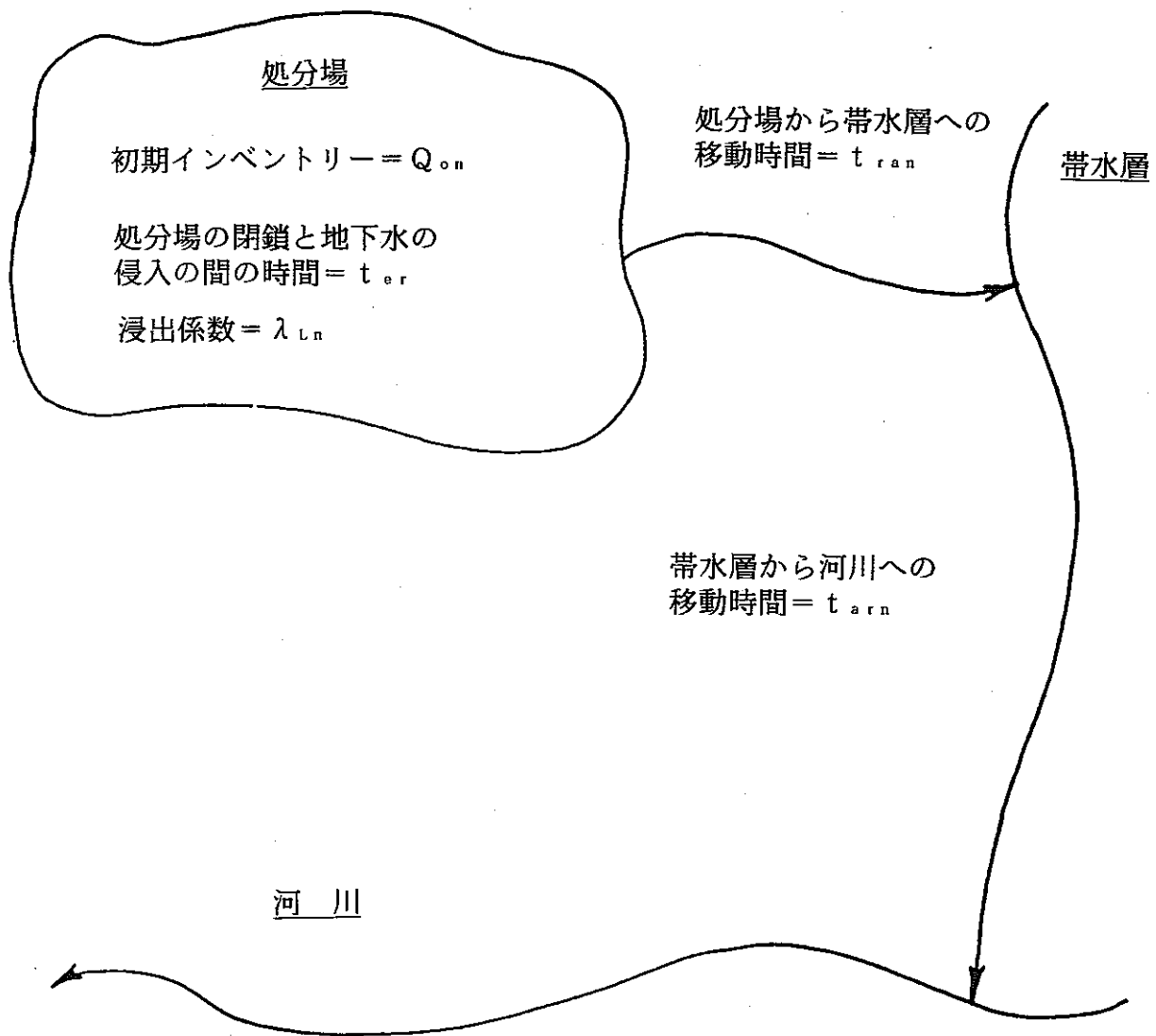
ET放射線に対しては遺伝的リスクを推定するために20というRBEを使用した。

相対的変異リスクの計算に用いた両性に対する平均変異率の発現において、BEIR-3委員会は女性における誘導変異率は男性のその約40%であった。Dobson等による最近の研究(D083a, D083b, D084a, D084b)はこの仮定が不当であり、人の卵母細胞は人の精原細胞のそれに等価なリスクを有するべきであることを示唆している。BEIR-3の仮定の代わりにDobsonの研究の結果を使う事はわれわれの遺伝的リスク推定値を1.43倍増加することになる。

表3.6.5に致死ガンおよびあらゆる世代に対する重大な遺伝的影響についてのわれわれの推定値を列記したので、読者はこれら二つの健康への影響の相対的大きさを比較することができる。表3.6.5を精密に調べると、遺伝的影響は $^{126}\text{Sn}$ 、 $^{135}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ および $^{232}\text{Th}$ に対しては致死ガンの約50%であり、また $^{59}\text{Ni}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{227}\text{Ac}$ 、 $^{229}\text{Th}$ 、 $^{230}\text{Th}$ および $^{231}\text{Pa}$ に対しては25ないし50%である。 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{237}\text{Np}$ およびすべてのPu、Am、Cm同位体に対しては遺伝的影響は致死ガンの15および25%の間にある。他の放射性核種に対しては、遺伝的影響は致死ガンの推定値の15%以下である。40CFR191に対するわれわれのキューリー放出限度は、遺伝的および他の影響は致死ガンとともに結果に顕著には影響しないと信ずるが故に、致死ガンの考察にのみ基づいている。

表3. 1. 1 放出モードと環境経路

放出モード	この放出モードに含まれる経路	経路番号
河川への放出	飲料水の摂取	1
	淡水魚の摂取	2
	食用作物の摂取	3
	牛乳の摂取	4
	牛肉の摂取	5
	再浮遊物質の吸入	6
	外部線量-土地の汚染	7
	外部線量-空気サブマージョン	8
海洋への放出	海産魚の摂取	9
	海産貝類の摂取	10
地表面への直接放出	食用作物の摂取	13
	牛乳の摂取	14
	牛肉の摂取	15
	再浮遊物質の吸入	12
	外部線量-土地の汚染	16
	外部線量-空気サブマージョン	11
火山/隕石の相互作用による放出		
陸地上への直接放出	食用作物の摂取	25
	牛乳の摂取	26
	牛肉の摂取	27
	再浮遊物質の吸入	24
	外部線量-土地の汚染	28
	外部線量-空気サブマージョン	23
陸地上の空気中への放出	食用作物の摂取	19
	牛乳の摂取	20
	牛肉の摂取	21
	分散物質および再浮遊物質の吸入	17
	外部線量-土地の汚染	22
	外部-空気サブマージョン	18
海洋上の空気中への放出	海産魚の摂取	29
	海産貝類の摂取	30



(注:  $t_{Rn} = t_{er} + t_{ran} + t_{arn}$  = 処分場の閉鎖から河川への放射性核種の流入までの時間)

図3. 2. 1 処分場から河川への放射性核種の移行に対する概念図



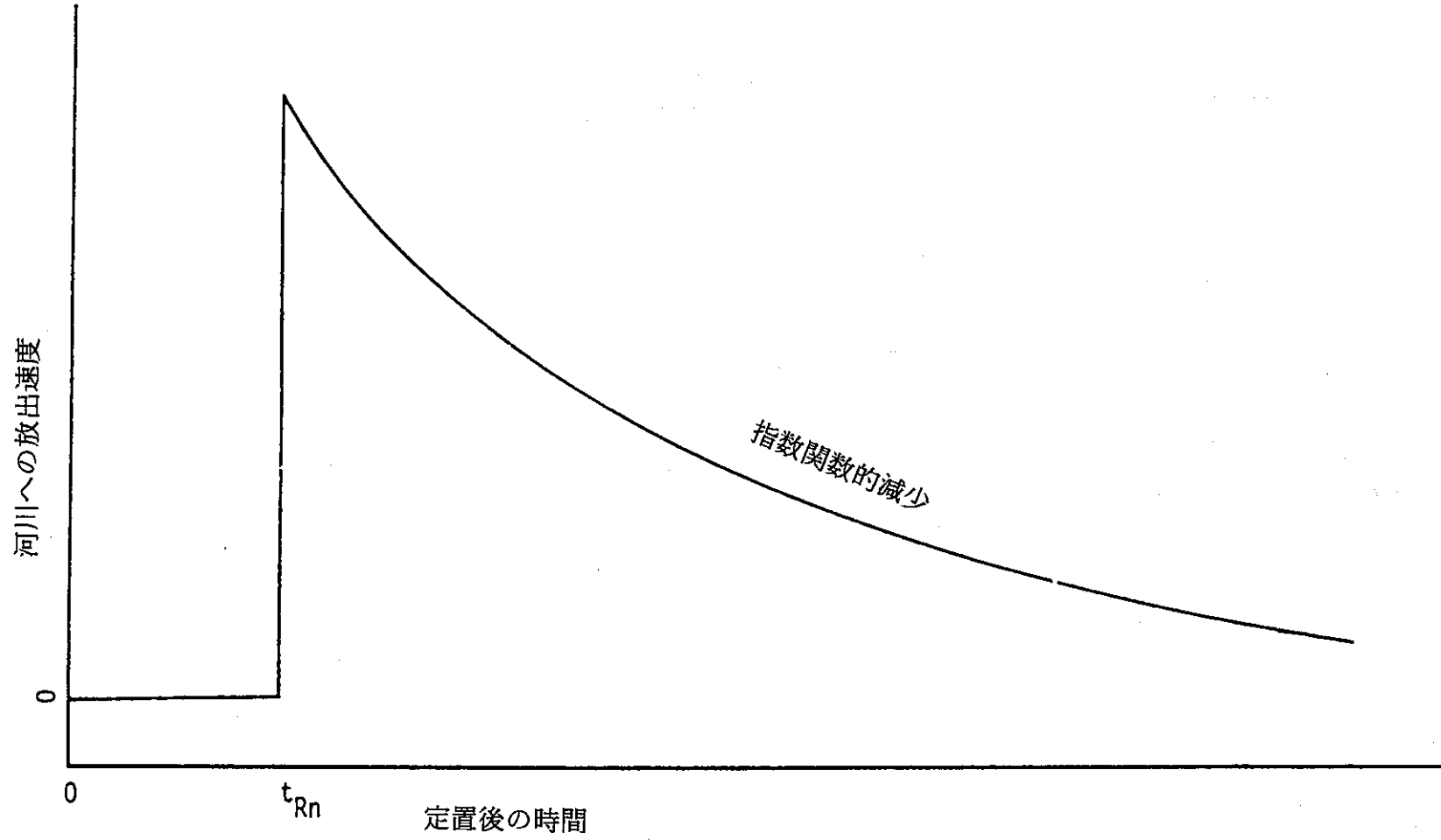


図3. 2. 2 処分場への放射性廃棄物の定置後の時間の関数としての河川への放出速度

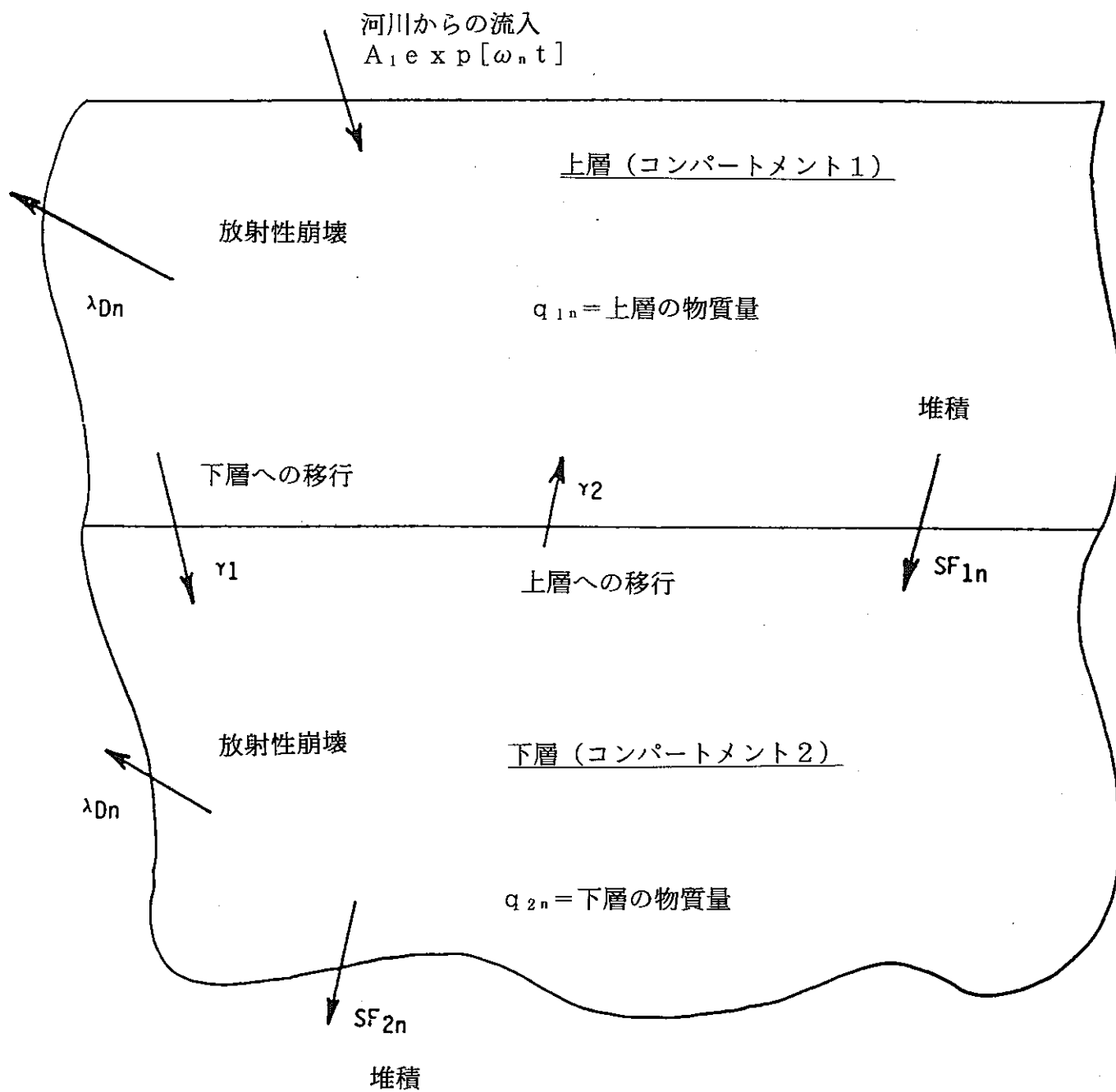


図 3. 3. 1 海洋放出モードに対するコンパートメントモデル

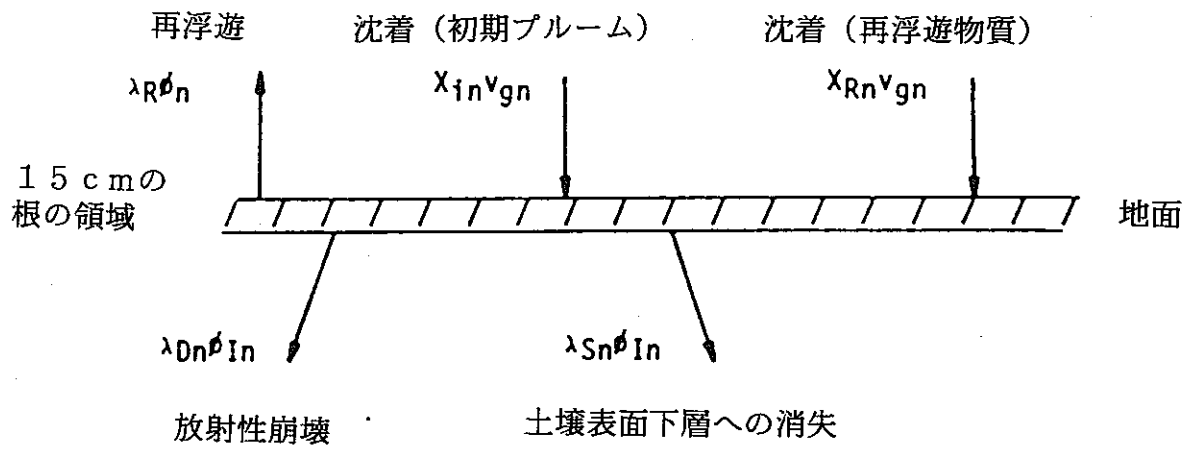


図3. 3. 2 線源から離れた土壌要素に対する放射能 (質量) 収支

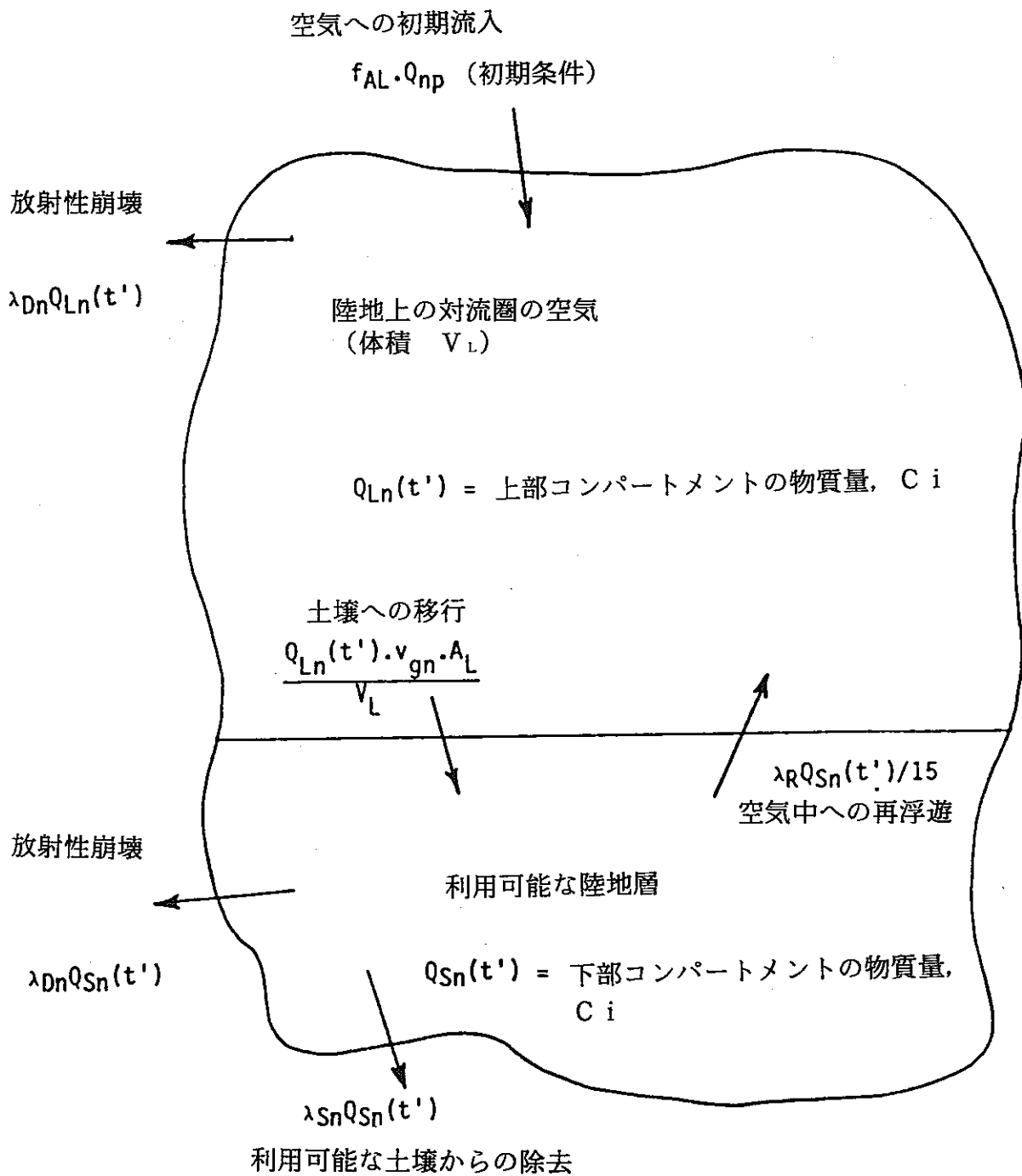


図3. 3. 3 陸地、火山/隕石放出モードに対するコンパートメントモデル

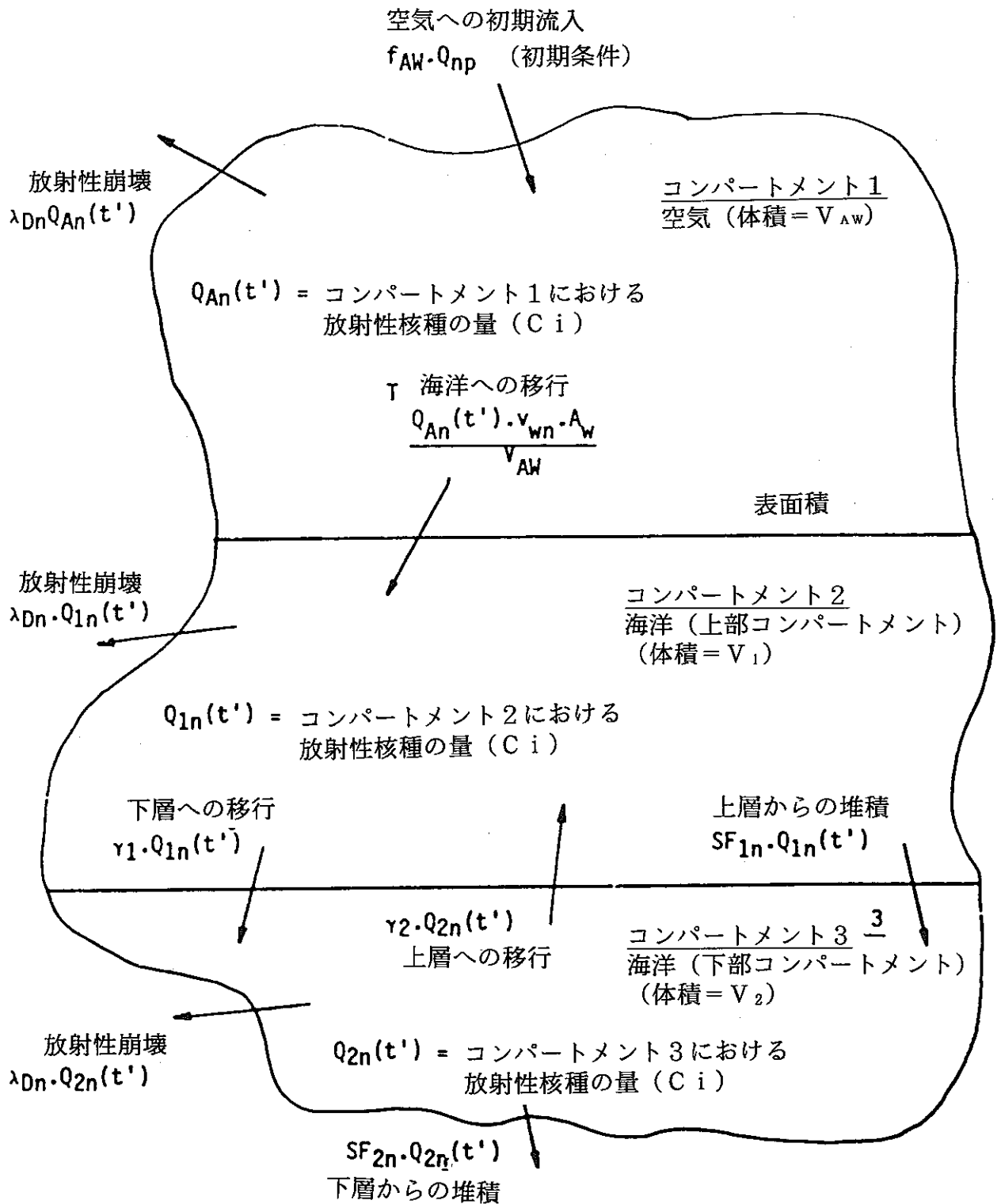


図3. 3. 4 海洋上の空气中、火山/隕石放出に対するコンパートメントモデル

表3. 4. 1 Ra-226の吸入に対するRADRISKコンピュータコードからのまとめ

Ra-226の生涯吸入による全コーホート(1.0E+5人)のガン  
 1.0pCi/yの吸入に対する  
 AMAD=1.00、呼吸浄化クラス=W、F1=0.2000E+00

[12-28-83]

ガン	成人 潜伏 期間 (年)	成人 安定 期間 (年)	リスク	LET	成人死亡率 (死亡数/ mrad/y)	70年線量 当量率 (mrem/y)	コーホート における 早発死亡数	平均寿命 損失(年)	全寿命 損失(年)	平均余命 減少(年)	70年 線量率 (mrad/y)	リスク当量係数
白血病	2	25	ABS	低	2.17E+00	6.83E-05	1.47E-05	2.64E+01	3.88E-04	3.88E-09	2.75E-03	8.39E-04
骨	5	30	ABS	低	1.74E+01	1.34E-04	2.44E-04	2.72E+01	6.64E-03	6.64E-08		
甲状腺	2	45	ABS	低	4.47E-02	9.75E-05	4.48E-07	2.44E+01	1.10E-05	1.10E-10	3.06E-02	2.06E-02
胸部	15	110	ABS	低	8.94E-01	1.52E-03	1.41E-04	2.45E+01	3.46E-03	3.46E-08		
肺	10	110	ABS	低	9.25E-01	2.68E-06	4.14E-07	2.59E+01	1.07E-05	1.07E-10	6.09E-04	2.35E-04
胃	15	110	ABS	低	7.40E+00	3.03E-05	4.57E-05	2.75E+01	1.26E-03	1.26E-08		
腹部	15	110	ABS	低	1.49E+00	3.41E-06	6.16E-07	1.99E+01	1.22E-05	1.22E-10	6.10E-04	2.31E-04
肝臓	15	110	ABS	低	1.19E+01	3.03E-05	5.90E-05	2.10E+01	1.24E-03	1.24E-08		
脾臓	15	110	ABS	低	2.03E+00	7.01E-06	2.53E-06	2.24E+01	5.66E-05	5.66E-10	9.59E-02	3.84E-02
泌尿器	15	110	ABS	低	1.63E+01	4.80E-03	1.58E-02	2.30E+01	3.64E-01	3.64E-06		
その他	15	110	ABS	低	9.61E-01	2.14E-06	2.68E-07	2.02E+01	5.42E-06	5.42E-11	6.08E-04	2.30E-04
				高	7.69E+00	3.03E-05	3.81E-05	2.10E+01	8.02E-04	8.02E-09		
				高	4.47E-01	1.29E-05	9.38E-07	2.12E+01	1.99E-05	1.99E-10	6.95E-04	2.71E-04
				高	3.57E+00	3.41E-05	2.01E-05	2.11E+01	4.24E-04	4.24E-09		
				高	9.77E-01	2.40E-06	2.90E-07	1.99E+01	5.79E-04	5.79E-11	4.28E-04	1.59E-04
				高	7.81E+00	2.13E-05	2.67E-05	2.09E+01	5.57E-04	5.57E-09		
				高	6.72E-01	3.33E-06	2.74E-07	1.99E+01	5.44E-06	5.44E-11	6.09E-04	2.23E-04
				高	5.16E+00	3.03E-05	2.56E-05	2.10E+01	5.39E-04	5.39E-09		
				高	2.84E-01	4.63E-06	1.82E-07	2.05E+01	3.74E-06	3.74E-11	7.94E-04	3.05E-04
				高	2.27E+00	3.94E-05	1.48E-05	2.11E+01	3.13E-04	3.13E-09		
				高	1.30E+00	3.33E-06	5.31E-07	1.99E+01	1.06E-05	1.06E-10	6.09E-04	2.32E-04
				高	1.04E+01	3.03E-05	5.18E-05	2.10E+01	1.09E-03	1.09E-08		
合計(体)							1.65E-02	2.31E+01	3.80E-01	3.80E-06	2.08E-02	8.31E-03

30年の遺伝的線量預託(mrad)

LET	睾丸	卵巣	平均
低	5.59E-05	7.44E-05	6.51E-05
高	8.52E-04	8.52E-04	8.52E-04

表 3. 4. 2 致死ガンリスク換算係数

核種	吸入1 (致死ガン数/1 Ciの吸入もしくは摂取)	吸入2	摂取1	摂取2	空気サブマージョン (致死ガン数/ Ci-y/m <sup>3</sup> )	地表汚染 (致死ガン数/ Ci-y/m <sup>2</sup> )
C-14	3.05E-3	3.05E-3	4.32E-1	4.32E-1	0	0
Ni-59	4.76E-1	4.76E-1	3.76E-2	3.76E-2	4.10E-2	8.87E-3
Sr-90	4.52E+2	5.19E+1	2.29E+0	2.85E+1	0	0
Zr-93	2.72E+1	6.60E+0	1.27E-1	1.27E-1	1.23E-1	1.89E-2
Tc-99	6.12E+0	6.12E+0	5.37E-1	5.37E-1	5.97E-4	1.41E-5
Sn-126	5.72E+1	5.72E+1	2.04E+0	2.04E+0	2.54E+3	5.11E+1
I-129	1.61E+1	1.61E+1	2.41E+1	2.41E+1	7.57E+0	3.98E-1
Cs-135	1.27E+0	1.27E+0	1.82E+0	1.82E+0	0	0
Cs-137	8.49E+0	8.49E+0	1.24E+1	1.24E+1	7.18E+2	1.43E+1
Sm-151	5.27E+0	5.27E+0	3.46E-2	3.46E-2	8.15E-4	9.43E-5
Pb-210	2.27E+4	2.99E+3	4.13E+2	4.13E+2	1.34E+0	6.09E-2
Ra-226	4.38E+4	5.33E+3	4.91E+2	4.91E+2	2.35E+3	4.20E+1
Ra-228	7.98E+4	1.58E+4	9.71E+1	9.71E+1	3.43E+3	5.88E+1
Ac-227	6.97E+4	3.74E+4	2.85E+2	2.85E+2	4.81E+2	1.05E+1
Th-229	6.45E+4	2.82E+4	8.55E+1	8.55E+1	3.30E+2	7.46E+0
Th-230	6.89E+4	2.05E+4	5.13E+2	5.13E+2	2.35E+3	4.20E+1

\*本表の致死ガンリスクの換算係数は記載核種と接近可能な環境にその核種が存在する間に増加し得る娘核種のリスク係数の和である。

表3. 4. 2 致死ガンリスク換算係数 (続き)

核種	吸入1	吸入2	摂取1	摂取2	空気サブマージョン (致死ガン数/ $C i - y / m^3$ )	地表汚染 (致死ガン数/ $C i - y / m^2$ )
	(致死ガン数/1 Ci の吸入もしくは摂取)					
Th-232	1.05E+5	2.94E+4	1.17E+2	1.17E+2	3.43E+3	5.88E+1
Pa-231	1.03E+5	6.19E+4	4.67E+2	4.67E+2	5.17E+2	1.14E+1
U-233	2.42E+4	3.70E+3	5.21E+0	5.07E+1	1.68E+1	3.84E-1
U-234	2.07E+4	2.26E+3	9.38E-1	4.61E+1	1.63E-1	1.63E-2
U-235	2.03E+4	2.72E+3	5.86E+0	5.02E+1	2.01E+2	4.60E+0
U-236	1.96E+4	2.14E+3	8.86E-1	4.35E+1	1.27E-1	1.48E-2
U-238	1.86E+4	2.04E+3	1.99E+0	4.84E+1	2.36E+1	5.17E-1
Np-237	2.89E+4	2.46E+4	1.86E+2	1.86E+2	2.83E+2	6.39E+0
Pu-238	3.13E+4	2.49E+4	1.86E+2	1.86E+2	8.80E-2	1.68E-2
Pu-239	3.09E+4	2.65E+4	2.04E+1	2.00E+2	9.06E-2	7.64E-3
Pu-240	3.09E+4	2.65E+4	2.04E+1	1.99E+2	8.63E-2	1.61E-2
Pu-241	1.19E+3	1.23E+3	9.57E+0	9.57E+0	5.98E-1	1.87E-2
Pu-242	2.94E+4	2.52E+4	1.94E+1	1.90E+2	7.36E-2	1.34E-2
Am-241	3.27E+4	2.75E+4	2.07E+2	2.07E+2	1.99E+1	6.24E-1
Am-243	3.19E+4	2.73E+4	2.06E+2	2.06E+2	2.55E+2	5.95E+0
Cm-245	6.54E+4	5.58E+4	4.21E+2	4.21E+2	1.02E+2	2.58E+0
Cm-246	3.26E+4	2.78E+4	2.10E+2	2.10E+2	6.81E-2	1.41E-2



表 3. 5. 1 放射性核種の崩壊定数

核種	<u>n</u>	<u><math>\lambda_{Dn}(\text{yr}^{-1})</math></u>
C-14	1	1.21 E-4
Ni-59	2	8.66 E-6
Sr-90	3	2.47 E-2
Zr-93	4	4.62 E-7
Tc-99	5	3.27 E-6
Sn-126	6	6.93 E-6
I-129	7	4.08 E-8
Cs-135	8	2.31 E-7
Cs-137	9	2.31 E-2
Sm-151	10	7.97 E-3
Pb-210	11	3.11 E-2
Ra-226	12	4.33 E-4
Ra-228	13	1.21 E-1
Ac-227	14	3.18 E-2
Th-229	15	9.44 E-5
Th-230	16	9.00 E-6
Th-232	17	4.93 E-11
Pa-231	18	2.12 E-5
U-233	19	4.35 E-6
U-234	20	2.81 E-6
U-235	21	9.85 E-10
U-236	22	2.96 E-8
U-238	23	1.55 E-10
Np-237	24	3.24 E-7
Pu-238	25	8.06 E-3
Pu-239	26	2.84 E-5
Pu-240	27	1.05 E-4
Pu-241	28	4.81 E-2
Pu-242	29	1.83 E-6
Am-241	30	1.51 E-3
Am-243	31	8.72 E-5
Cm-245	32	8.15 E-5
Cm-246	33	1.46 E-4

表3. 5. 2 淡水魚と海産食品の生物蓄積係数

核種	n	CF <sub>np</sub> (Ci/kg per Ci/liter)		
		淡水魚	海洋の魚	海洋の貝
C-14	1	NA	NA	NA
Ni-59	2	1.00E+2	1.00E+2	2.50E+2
Sr-90	3	1.10E+1 (Ho79)	2.00E+0	2.00E+1
Zr-93	4	3.33E+0	2.00E+2	8.00E+1
Tc-99	5	4.30E+1 (B182a)	1.00E+1	5.00E+1
Sn-126	6	3.00E+3	3.00E+3	1.00E+3
I-129	7	3.30E+1 (Ho79)	1.00E+1	5.00E+1
Cs-135	8	1.30E+3 (Ho79)	4.00E+1	2.50E+1
Cs-137	9	1.30E+3 (Ho79)	4.00E+1	2.50E+1
Sm-151	10	2.50E+1	2.50E+1	1.00E+3
Pb-210	11	1.00E+2	3.00E+2	1.00E+3
Ra-226	12	5.00E+1	5.00E+1	1.00E+2
Ra-228	13	5.00E+1	5.00E+1	1.00E+2
Ac-227	14	2.50E+1	2.50E+1	1.00E+3
Th-229	15	3.00E+1	1.00E+3 (Ng84)	2.00E+3
Th-230	16	3.0E+1	1.00E+3 (Ng84)	2.00E+3
Th-232	17	3.00E+1	1.00E+3 (Ng84)	2.00E+3
Pa-231	18	1.10E+1	1.00E+1	1.00E+1
U-233	19	1.00E+1	1.00E+1	1.00E+1
U-234	20	1.00E+1	1.00E+1	1.00E+1
U-235	21	1.00E+1	1.00E+1	1.00E+1
U-236	22	1.00E+1	1.00E+1	1.00E+1
U-238	23	1.00E+1	1.00E+1	1.00E+1
Np-237	24	5.00E+2 (Sc83)	1.00E+2 (Sc83)	1.00E+2 (Sc83)
Pu-238	25	8.00E+0 (R183)	3.00E+0	2.00E+2
Pu-239	26	8.00E+0 (R183)	3.00E+0	2.00E+2
Pu-240	27	8.00E+0 (R183)	3.00E+0	2.00E+2
Pu-241	28	8.00E+0 (R183)	3.00E+0	2.00E+2
Pu-242	29	8.00E+0 (R183)	3.00E+0	2.00E+2
Am-241	30	8.10E+1 (R183)	2.50E+1	1.00E+3
Am-243	31	8.10E+1 (R183)	2.50E+1	1.00E+3
Cm-245	32	2.50E+1	2.50E+1	1.00E+3
Cm-246	33	2.50E+1	2.50E+1	1.00E+3

NA : 適用されず

表 3. 5. 3 放射性核種の摂取係数

核種	RI <sub>np</sub> (沈着したCi/m <sup>2</sup> 当たりの摂取Ci数)		
	食用作物	牛乳	肉
C-14	NA	NA	NA
Ni-59	4.38E+0	3.22E-1	2.48E-1
Sr-90	2.57E+0	1.07E+0	8.20E-2
Zr-93	4.21E+0	8.18E-2	2.10E+1
Tc-99	1.57E+0	4.00E+0	1.31E+0
Sn-126	1.10E+0	3.04E-1	9.36E+0
I-129	1.17E+1	1.03E+1	2.78E+0
Cs-135	1.40E+1	8.04E+0	8.84E+0
Cs-137	8.51E-1	1.74E+0	1.91E+0
Sm-151	5.47E-1	4.54E-3	4.37E-1
Pb-210	4.98E-1	5.75E-2	2.66E-2
Ra-226	6.62E-1	1.26E-1	6.26E-2
Ra-228	3.95E-1	9.81E-2	4.53E-2
Ac-227	3.95E-1	4.36E-3	2.10E-3
Th-229	7.33E-1	1.49E-3	6.87E-4
Th-230	2.77E+0	3.87E-3	1.79E-3
Th-232	6.73E+0	8.51E-3	3.93E-3
Pa-231	6.92E-1	1.43E-3	1.10E-3
U-233	1.19E+0	1.57E-1	2.01E-2
U-234	1.19E+0	1.57E-1	2.01E-2
U-235	1.19E+0	1.57E-1	2.01E-2
U-236	1.19E+0	1.57E-1	2.01E-2
U-238	1.19E+0	1.57E-1	2.01E-2
Np-237	5.42E-1	2.52E-3	1.94E-2
Pu-238	3.92E-1	2.17E-5	1.67E-4
Pu-239	4.77E-1	2.37E-5	1.83E-4
Pu-240	4.53E-1	2.32E-5	1.79E-4
Pu-241	3.90E-1	2.17E-5	1.67E-4
Pu-242	4.89E-1	2.40E-5	1.85E-4
Am-241	4.35E-1	9.45E-5	3.18E-4
Am-243	4.87E-1	1.03E-4	3.48E-4
Cm-245	4.10E-1	4.67E-3	3.14E-4
Cm-246	4.08E-1	4.63E-3	3.12E-4

NA : 適用されず

表 3. 5. 4 土壤中の放射性核種の浸出係数

元素	浸出係数( $\lambda_{sn}$ ) ( $y^{-1}$ )
C	NA
Ni	5.40E-3
Sr	2.31E-2
Zr	2.70E-4
Tc	4.90E-1
Sn	3.24E-3
I	1.57E-3
Cs	8.10E-4
Sm (希土類)	1.25E-3
Pb	9.00E-4
Ra	1.80E-3
Ac	5.40E-4
Th	5.40E-6
Pa	3.24E-4
U	1.80E-3
Np	2.69E-2
Pu	1.80E-4
Am	1.16E-3
Cm	4.05E-4

NA : 適用できず

表3. 5. 5 地表放射性核種の補正係数 ( $G C_{np}$ )

核種	$G C_{np}$ (無次元)
C-14	$\beta$ 放射体
Ni-59	8.8E-5
Sr-90	$\beta$ 放射体
Zr-93	1.3E-3
Tc-99	$\beta$ 放射体
Sn-126	2.2E-1
I-129	1.0E-2
Cs-135	$\beta$ 放射体
Cs-137	2.4E-1
Sm-151	$\beta$ 放射体
Pb-210	2.3E-2
Ra-226	2.4E-1
Ra-228	1.8E-1
Ac-227	1.5E-1
Th-229	9.7E-2
Th-230	2.4E-1
Th-232	1.8E-1
Pa-231	1.3E-1
U-233	7.5E-2
U-234	2.9E-2
U-235	7.3E-2
U-236	2.5E-4
U-238	4.3E-2
Np-237	9.2E-2
Pu-238	3.8E-4
Pu-239	4.1E-4
Pu-240	4.0E-4
Pu-241	1.2E-2
Pu-242	4.0E-4
Am-241	1.2E-2
Am-243	6.9E-2
Cm-245	3.3E-2
Cm-246	4.0E-4

表 3. 5. 6 海洋堆積係数 ( $SF_{1n}$  および  $SF_{2n}$ ) の値

元素	堆積係数 ( $y^{-1}$ )	
	$SF_{1n}$	$SF_{2n}$
C	0	0
Ni	5.33E-6	1.02E-7
Sr	2.67E-7	5.10E-9
Zr	2.67E-4	5.10E-6
Tc	0	0
Sn	0	0
I	0	0
Cs	2.67E-6	5.10E-8
Sm (希土類)	4.00E-5	7.64E-7
Pb	2.67E-4	5.10E-6
Ra	1.33E-6	2.55E-8
Ac	6.67E-5	1.27E-6
Th	2.00E-3	3.82E-5
Pa	2.67E-4	5.10E-6
U	4.00E-5	7.64E-7
Np	1.33E-7	2.55E-9
Pu	2.67E-4	5.10E-6
Am	1.33E-4	2.55E-6
Cm	4.00E-5	7.64E-7

表3. 6. 1 種々の放出モードに対する接近可能な環境に放出されたCi当たりの致死ガン

核種	河川へ 放出の	海洋へ の放出	地表へ の放出	激しい相互 作用による 放出*
C - 14	5.83E-02	5.83E-02	5.83E-02	5.83E-02
Ni- 59	4.61E-05	1.70E-06	6.79E-07	2.89E-05
Sr- 90	2.25E-02	6.14E-06	3.76E-05	1.16E-03
Zr- 93	1.51E-04	8.59E-06	2.26E-05	1.22E-04
Tc- 99	3.65E-04	3.17E-06	5.65E-08	1.99E-04
Sn-126	1.05E-02	2.07E-03	1.38E-03	2.73E-02
I -129	8.07E-02	1.43E-04	3.96E-03	5.57E-02
Cs-135	7.73E-03	2.61E-05	5.75E-04	4.91E-03
Cs-137	1.07E-02	2.28E-05	2.19E-05	3.39E-03
Sm-151	9.38E-06	4.01E-07	6.71E-08	4.72E-05
Pb-210	1.18E-01	6.80E-03	1.52E-04	4.31E-02
Ra-226	1.63E-01	5.40E-03	5.62E-03	7.20E-02
Ra-228	2.41E-02	1.07E-04	1.57E-05	2.78E-02
Ac-227	6.67E-02	1.94E-03	1.24E-04	3.82E-02
Th-229	3.49E-02	2.71E-02	1.90E-02	5.06E-02
Th-230	5.38E-01	1.87E-01	3.86E-01	1.26E+00
Th-232	3.40E-01	4.32E-02	3.76E-01	3.73E-01
Pa-231	1.48E-01	1.67E-03	2.36E-02	1.28E-01
U -232	2.15E-02	1.90E-04	7.51E-04	7.75E-03
U -234	1.96E-02	1.73E-04	6.54E-04	5.94E-03
U -235	2.17E-02	1.89E-04	8.42E-04	8.27E-03
U -236	1.85E-02	1.64E-04	6.18E-04	5.62E-03
U -238	2.06E-02	1.83E-04	6.90E-04	5.67E-03
Np-237	7.95E-02	7.03E-03	1.21E-04	2.83E-02
Pu-238	4.23E-02	4.06E-04	3.10E-04	2.07E-02
Pu-239	4.97E-02	2.19E-03	6.23E-03	1.20E-02
Pu-240	4.84E-02	1.91E-03	5.22E-03	1.15E-02
Pu-241	2.17E-03	9.24E-06	2.50E-06	9.36E-04
Pu-242	4.79E-02	2.18E-03	6.34E-03	1.09E-02
Am-241	5.42E-02	3.74E-03	1.05E-03	2.54E-02
Am-243	5.72E-02	1.09E-02	2.45E-03	3.40E-02
Cm-245	1.01E-01	2.29E-02	8.08E-03	6.09E-02
Cm-246	4.99E-02	1.01E-02	3.54E-03	2.89E-02

\*例えば、隕石もしくは火山噴火と処分場の相互作用。

表3. 6. 2 河川放出に対する接近可能な環境へ放出された1 Ci当たりの致死ガン

核種	全体	飲料水 摂取 (p = 1)	淡水魚 摂取 (p = 2)	地表作物 摂取 (p = 3)	牛乳摂取 (p = 4)	牛肉摂取 (p = 5)	再浮遊物 質の吸入 (p = 6)	外部線量- 地表汚染 (p = 7)	外部線量- 空気サブ マージョン (p = 8)
C - 14	5.83E-02	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
Ni- 59	4.61E-05	4.91E-06	1.25E-06	3.94E-05	4.72E-07	1.83E-08	3.25E-10	3.17E-10	1.11E-15
Sr- 90	2.25E-02	3.72E-03	1.04E-04	1.75E-02	1.19E-03	4.59E-06	4.05E-09	0.00E+00	0.00E+00
Zr- 93	1.51E-04	1.66E-05	1.41E-07	1.28E-04	4.05E-07	5.23E-06	6.58E-08	1.45E-07	4.86E-14
Tc- 99	3.65E-04	7.02E-05	7.70E-06	2.02E-04	8.38E-05	1.38E-06	4.67E-11	0.00E+00	1.80E-19
Sn-126	1.05E-02	2.67E-04	2.04E-03	5.37E-04	2.42E-05	3.75E-05	6.47E-08	7.55E-03	1.14E-10
I -129	8.07E-02	3.15E-03	2.65E-04	6.75E-02	9.68E-03	1.31E-04	3.68E-08	5.41E-06	6.86E-13
Cs-135	7.73E-03	2.38E-04	7.89E-04	6.10E-03	5.71E-04	3.16E-05	5.38E-09	0.00E+00	0.00E+00
Cs-137	1.07E-02	1.62E-03	5.37E-03	2.53E-03	8.42E-04	4.65E-05	1.33E-09	3.19E-04	4.45E-12
Sm-151	9.38E-06	4.52E-06	2.88E-07	4.53E-06	6.13E-09	2.97E-08	2.14E-09	0.00E+00	1.31E-17
Pb-210	1.18E-01	5.40E-02	1.38E-02	4.93E-02	9.26E-04	2.16E-05	3.45E-07	9.60E-08	6.13E-15
Ra-226	1.63E-01	6.41E-02	8.18E-03	7.78E-02	2.41E-03	6.03E-05	8.91E-06	1.00E-02	1.56E-10
Ra-228	2.41E-02	1.27E-02	1.62E-03	9.19E-03	3.71E-04	8.63E-06	5.61E-07	2.23E-04	4.83E-12
Ac-227	6.67E-02	3.72E-02	2.37E-03	2.70E-02	4.85E-05	1.17E-06	4.29E-06	1.07E-04	2.18E-12
Th-229	3.49E-02	1.12E-02	8.55E-04	1.50E-02	4.97E-06	1.15E-07	4.85E-04	7.39E-03	2.25E-10
Th-230	5.38E-01	6.70E-02	5.13E-03	3.40E-01	7.74E-05	1.80E-06	4.29E-04	1.25E-01	1.95E-09
Th-232	3.40E-01	1.53E-02	1.17E-03	1.89E-01	3.88E-05	9.02E-07	6.27E-04	1.34E-01	2.90E-09
Pa-231	1.48E-01	6.10E-02	1.71E-03	7.74E-02	2.60E-05	1.01E-06	5.33E-04	7.58E-03	1.76E-10
U -233	2.15E-02	6.62E-03	1.69E-04	1.44E-02	3.10E-04	2.00E-06	7.41E-06	3.43E-05	1.33E-12
U -234	1.96E-02	6.02E-03	1.54E-04	1.31E-02	2.82E-04	1.82E-06	4.53E-06	5.63E-07	1.29E-14
U -235	2.17E-02	6.56E-03	1.57E-04	1.43E-02	3.07E-04	1.98E-06	5.46E-06	4.00E-04	1.60E-11
U -236	1.85E-02	5.68E-03	1.45E-04	1.24E-02	2.66E-04	1.72E-06	4.29E-06	4.41E-09	1.01E-14
U -238	2.06E-02	6.32E-03	1.61E-04	1.38E-02	2.96E-04	1.91E-06	4.09E-06	2.65E-05	1.88E-12
Np-237	7.95E-02	2.43E-02	3.10E-02	2.41E-02	1.83E-05	7.08E-06	3.40E-06	4.83E-05	1.55E-12
Pu-238	4.23E-02	2.43E-02	4.96E-04	1.75E-02	1.57E-07	6.10E-08	1.14E-05	1.74E-09	1.60E-15
Pu-239	4.97E-02	2.61E-02	5.33E-04	2.28E-02	1.85E-07	7.18E-08	3.14E-04	2.21E-08	4.26E-14
Pu-240	4.84E-02	2.60E-02	5.31E-04	2.16E-02	1.80E-07	6.99E-08	2.75E-04	3.97E-08	3.55E-14
Pu-241	2.17E-03	1.25E-03	2.55E-05	8.94E-04	8.10E-09	3.14E-09	8.73E-08	9.46E-09	1.68E-15
Pu-242	4.79E-02	2.48E-02	5.07E-04	2.23E-02	1.78E-07	6.90E-08	3.13E-04	3.95E-08	3.62E-14
Am-241	5.42E-02	2.70E-02	5.59E-03	2.16E-02	7.63E-07	1.29E-07	3.85E-05	6.22E-06	1.10E-12
Am-243	5.72E-02	2.69E-02	5.56E-03	2.40E-02	8.28E-07	1.41E-07	7.92E-05	7.08E-04	2.93E-11
Cm-245	1.01E-01	5.50E-02	3.51E-03	4.13E-02	7.67E-05	2.59E-07	3.85E-04	3.49E-04	2.79E-11
Cm-246	4.99E-02	2.74E-02	1.75E-03	2.05E-02	3.79E-05	1.29E-07	1.75E-04	2.11E-08	1.70E-14



表3. 6. 3 海洋放出に対する接近可能な環境へ放出された1 Ci当たりの致死ガン

核種	全体	海洋の魚の 摂取(p = 9)	海洋の貝の 摂取(p = 10)
C - 14	5.83E-02	N/A	N/A
Ni- 59	1.70E-06	1.20E-06	5.00E-07
Sr- 90	6.14E-06	2.30E-06	3.84E-06
Zr- 93	8.59E-06	8.05E-06	5.37E-07
Tc- 99	3.17E-06	1.73E-06	1.44E-06
Sn-126	2.07E-03	1.96E-03	1.09E-04
I -129	1.43E-04	7.82E-05	6.51E-05
Cs-135	2.61E-05	2.36E-05	2.46E-06
Cs-137	2.28E-05	2.07E-05	2.15E-06
Sm-151	4.01E-07	5.23E-08	3.49E-07
Pb-210	6.80E-03	4.42E-03	2.46E-03
Ra-226	5.40E-03	4.05E-03	1.35E-03
Ra-228	1.07E-04	8.02E-05	2.67E-05
Ac-227	1.94E-03	2.53E-04	1.69E-03
Th-229	2.71E-02	2.03E-02	6.76E-03
Th-230	1.87E-01	1.40E-01	4.67E-02
Th-232	4.32E-02	3.24E-02	1.08E-02
Pa-231	1.67E-03	1.43E-03	2.38E-04
U -233	1.90E-04	1.63E-04	2.71E-05
U -234	1.73E-04	1.48E-04	2.47E-05
U -235	1.89E-04	1.62E-04	2.70E-05
U -236	1.64E-04	1.41E-04	2.34E-05
U -238	1.83E-04	1.57E-04	2.61E-05
Np-237	7.03E-03	6.03E-03	1.00E-03
Pu-238	4.06E-04	3.35E-05	3.73E-04
Pu-239	2.19E-03	1.81E-04	2.01E-03
Pu-240	1.91E-03	1.57E-04	1.75E-03
Pu-241	9.24E-06	7.63E-07	8.48E-06
Pu-242	2.18E-03	1.80E-04	2.00E-03
Am-241	3.74E-03	4.88E-04	3.25E-03
Am-243	1.09E-02	1.42E-03	9.44E-03
Cm-245	2.29E-02	2.98E-03	1.99E-02
Cm-246	1.01E-02	1.31E-03	8.75E-03

表3. 6. 4 地表放出に対する接近可能な環境へ放出された1 Ci当たりの致死ガン

核種	全体	地表作物 摂取 (p = 1 3)	牛乳摂取 (p = 1 4)	牛肉摂取 (p = 1 5)	再浮遊物 質の吸入 (p = 1 2)	外部線量- 地表汚染 (p = 1 6)	外部線量- 空気サブ マージョン (p = 1 1)
C - 14	5.83E-02	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A	N/A
Ni- 59	6.79E-07	6.68E-07	7.65E-09	2.96E-10	3.11E-09	3.54E-11	3.19E-14
Sr- 90	3.76E-05	3.53E-05	2.29E-06	8.83E-09	4.02E-08	0.00E+00	0.00E+00
Zr- 93	2.26E-05	2.11E-05	6.39E-08	8.25E-07	4.47E-07	1.91E-07	9.92E-13
Tc- 99	5.65E-08	3.99E-08	1.58E-08	2.61E-10	4.66E-10	0.00E+00	5.41E-18
Sn-126	1.38E-03	1.46E-05	6.30E-07	9.76E-07	6.03E-07	1.37E-03	3.19E-09
I -129	3.96E-03	3.47E-03	4.76E-04	6.47E-06	3.23E-07	1.89E-06	1.81E-11
Cs-135	5.75E-04	5.25E-04	4.70E-05	2.60E-06	4.32E-08	0.00E+00	0.00E+00
Cs-137	2.19E-05	1.01E-05	3.22E-06	1.78E-07	1.31E-08	8.33E-06	1.32E-10
Sm-151	6.71E-08	4.61E-08	5.96E-11	2.89E-10	2.07E-08	0.00E+00	3.81E-16
Pb-210	1.52E-04	1.46E-04	2.63E-06	6.11E-08	3.41E-06	1.86E-09	1.82E-13
Ra-226	5.62E-03	2.96E-03	8.78E-05	2.19E-06	7.88E-05	2.49E-03	4.13E-09
Ra-228	1.57E-05	8.44E-06	3.26E-07	7.58E-09	5.59E-06	1.34E-06	1.44E-10
Ac-227	1.24E-04	7.94E-05	1.36E-07	3.31E-09	4.24E-05	2.06E-06	6.49E-11
Th-229	1.90E-02	3.44E-03	1.09E-06	2.53E-08	2.77E-03	1.27E-02	3.85E-09
Th-230	3.86E-01	9.63E-02	2.10E-05	4.88E-07	2.56E-03	2.87E-01	3.49E-08
Th-232	3.76E-01	5.46E-02	1.08E-05	2.50E-07	3.76E-03	3.18E-01	5.23E-08
Pa-231	2.36E-02	1.13E-02	3.65E-06	1.41E-07	3.69E-03	8.53E-03	3.66E-09
U -233	7.51E-04	6.61E-04	1.36E-05	8.75E-08	6.59E-05	1.06E-05	3.56E-11
U -234	6.54E-04	6.01E-04	1.24E-05	7.96E-08	4.03E-05	1.74E-07	3.46E-13
U -235	8.42E-04	6.56E-04	1.35E-05	8.68E-08	4.85E-05	1.24E-04	4.27E-10
U -236	6.18E-04	5.68E-04	1.17E-05	7.52E-08	3.82E-05	1.37E-09	2.70E-13
U -238	6.90E-04	6.32E-04	1.30E-05	8.37E-08	3.64E-05	8.21E-06	5.01E-11
Np-237	1.21E-04	8.57E-05	6.21E-08	2.40E-08	3.36E-05	1.12E-06	4.61E-11
Pu-238	3.10E-04	2.00E-04	1.73E-09	6.68E-10	1.10E-04	1.30E-10	4.63E-14
Pu-239	6.23E-03	4.20E-03	3.25E-08	1.26E-08	2.03E-03	3.21E-08	8.25E-13
Pu-240	5.22E-03	3.47E-03	2.77E-08	1.08E-08	1.75E-03	4.71E-08	6.78E-13
Pu-241	2.50E-06	1.64E-06	1.42E-11	5.49E-12	8.66E-07	1.13E-10	5.01E-14
Pu-242	6.34E-03	4.30E-03	3.29E-08	1.28E-08	2.04E-03	6.23E-08	7.09E-13
Am-241	1.05E-03	7.00E-04	2.37E-08	4.01E-09	3.46E-04	1.32E-06	2.98E-11
Am-243	2.45E-03	1.49E-03	4.91E-08	8.35E-09	6.63E-04	2.96E-04	7.37E-10
Cm-245	8.08E-03	5.04E-03	8.93E-06	3.02E-08	2.73E-03	3.07E-04	5.94E-10
Cm-246	3.54E-03	2.29E-03	4.06E-06	1.38E-08	1.24E-03	1.64E-08	3.62E-13

表3. 6. 5 種々の放出モードに対する接近可能な環境への1 Ciの  
放出当たりの致死ガンと遺伝的影響の比較

核種	河川への放出		海洋への放出		地表への放出		激しい相互作用 による放出*	
	致死ガン	遺伝的影響	致死ガン	遺伝的影響	致死ガン	遺伝的影響	致死ガン	遺伝的影響
C - 14	5.83E-02	3.03E-02	5.83E-02	3.03E-02	5.83E-02	3.03E-02	5.83E-02	3.03E-02
Ni- 59	4.61E-05	1.55E-05	1.70E-06	5.74E-07	6.79E-07	2.29E-07	2.89E-05	9.73E-06
Sr- 90	2.25E-02	4.40E-04	6.14E-06	1.20E-07	3.76E-05	7.34E-07	1.16E-03	8.40E-06
Zr- 93	1.51E-04	9.36E-06	7.59E-06	5.31E-07	2.26E-05	1.44E-06	1.22E-04	7.23E-06
Tc- 99	3.65E-04	1.74E-05	3.17E-06	1.51E-07	5.65E-08	2.66E-09	1.99E-04	9.37E-06
Sn-126	1.05E-02	4.22E-03	2.77E-03	6.57E-04	1.38E-03	6.01E-04	2.73E-02	1.17E-02
I -129	8.07E-02	1.82E-04	1.43E-04	3.19E-07	3.96E-03	9.79E-06	5.57E-02	1.34E-04
Cs-135	7.73E-03	3.19E-03	2.61E-05	1.07E-05	5.75E-04	2.37E-04	4.91E-03	2.02E-03
Cs-137	1.07E-02	4.13E-03	2.28E-05	8.77E-06	2.19E-05	8.83E-06	3.39E-03	1.36E-03
Sm-151	9.38E-06	1.24E-09	4.01E-07	5.28E-11	6.71E-08	6.45E-12	4.72E-06	4.59E-10
Pb-210	1.18E-01	1.91E-02	6.80E-03	1.11E-03	1.52E-04	2.42E-05	4.31E-02	6.01E-03
Ra-226	1.63E-01	3.54E-02	5.40E-03	1.10E-03	5.62E-03	1.69E-03	7.20E-02	1.26E-02
Ra-228	2.41E-02	1.11E-02	1.07E-04	4.91E-05	1.57E-05	4.70E-06	2.78E-02	3.08E-03
Ac-227	6.67E-02	1.57E-02	1.94E-03	4.53E-04	1.24E-04	2.61E-05	3.82E-02	5.13E-03
Th-229	3.49E-02	8.31E-03	2.71E-02	5.09E-03	1.90E-02	6.13E-03	5.06E-02	7.26E-03
Th-230	5.38E-01	1.35E-01	1.87E-01	3.64E-02	3.86E-01	1.42E-01	1.26E+00	4.32E-01
Th-232	3.40E-01	1.36E-01	4.32E-02	1.65E-02	3.76E-01	1.57E-01	3.73E-01	1.37E-01
Pa-231	1.48E-01	2.33E-02	1.67E-03	2.38E-04	2.36E-02	5.57E-03	1.28E-01	2.38E-02
U -233	2.15E-02	2.03E-03	1.90E-04	1.77E-05	7.51E-04	6.79E-05	7.75E-03	1.81E-04
U -234	1.96E-02	1.66E-03	1.73E-04	1.46E-05	6.54E-04	5.19E-05	5.94E-03	9.10E-06
U -235	2.17E-02	2.06E-03	1.89E-04	1.68E-05	8.42E-04	1.11E-04	8.27E-03	7.47E-04
U -236	1.85E-02	1.57E-03	1.64E-04	1.39E-05	6.18E-04	4.91E-05	5.62E-03	8.08E-06
U -238	2.06E-02	1.50E-03	1.83E-04	1.32E-05	6.90E-04	5.02E-05	5.67E-03	4.98E-05
Np-237	7.95E-02	1.29E-02	7.03E-03	1.14E-03	1.21E-04	1.93E-05	2.83E-02	3.63E-03
Pu-238	4.23E-02	7.23E-03	4.06E-04	6.94E-05	3.10E-04	5.12E-05	2.07E-02	2.42E-03
Pu-239	4.97E-02	8.05E-03	2.19E-03	3.54E-04	6.23E-03	9.76E-04	1.20E-02	7.08E-04
Pu-240	4.84E-02	7.85E-03	1.91E-03	3.10E-04	5.22E-03	8.21E-04	1.15E-02	6.73E-04
Pu-241	2.17E-03	3.20E-04	9.24E-06	1.36E-06	2.50E-06	3.61E-07	9.36E-04	1.06E-04
Pu-242	4.79E-02	7.71E-03	2.18E-03	3.52E-04	6.34E-03	9.92E-04	1.09E-02	6.50E-04
Am-241	5.42E-02	8.89E-03	3.74E-03	6.13E-04	1.05E-03	1.67E-04	2.54E-02	3.06E-03
Am-243	5.72E-02	9.45E-03	1.09E-02	1.75E-03	2.45E-03	4.62E-04	3.40E-02	5.04E-03
Cm-245	1.01E-01	1.64E-02	2.29E-02	3.69E-03	8.08E-03	1.35E-03	6.09E-02	7.56E-03
Cm-246	4.99E-02	8.08E-03	1.01E-02	1.63E-03	3.54E-03	5.55E-04	2.89E-02	3.54E-03

\*例えば、隕石あるいは火山噴火と処分場との相互作用。

## 参考文献

- Ad78 Adams H., Hunt B.W., and Reisland T.A., 1978, "Annual Limits of Intake of Radionuclides for Workers", NRPB-R82, National Radiological Protection Board, (Harwell, Didcot, England).
- AEC68 U.S. Atomic Energy Commission, 1968, Meteorology and Atomic Energy, 1968 (Edited by D. H. Slade), USAEC Rep. TID-24190, (Springfield, VA: NTIS).
- AEC73 U.S. Atomic Energy Commission, 1973, "Draft Environmental Statement Concerning Proposed Rule Making Action: Numerical Guides for Design Objectives and Limiting Conditions for Operation to Meet the Criterion 'As-Low-As-Practicable' for Radioactive Material in Light-Water-Cooled Nuclear Power Reactor Effluents", (Springfield, VA: NTIS).
- Ba79a Baes C.F. III, 1979, "The Soil Loss Constant  $\lambda_s$  Due to Leaching from Soils", in: A Statistical Analysis of Selected Parameters for Predicting Food Chain Transport and Internal Doses of Radionuclides (Edited by F. O. Hoffman and C. F. Baes III) USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-282, pp. 85-92, USNRC (Springfield, VA: NTIS).
- Ba79b Baes C.F. III, 1979, "Productivity of Agricultural Crops and Forage,  $Y_v$ ", in: A Statistical Analysis of Selected Parameters for Predicting Food Chain Transport and Internal Doses of Radionuclides (Edited by F.O. Hoffman and C.F. Baes III) USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-282, pp. 15-29, USNRC (Springfield, VA: NTIS).
- Ba83a Personal Communication, C.F. Baes, III - Oak Ridge National Laboratory to J.M. Smith - U.S. Environmental Protection Agency, July 8, 1983.
- Ba83b Baes C.F. III and Sharp R.D., 1983, "A Proposal for Estimation of Soil Leaching and Leaching Constants for Use in Assessment Models", Journal of Environmental Quality, Vol. 12, No. 1, January-March 1983, pp. 17-28.
- Ba84 Baes C.F. III, Sharp R.D., Sjoreen A.L. and Shor R.W., 1984, "A Review and Analysis of Parameters for Assessing Transport of Environmentally Released Radionuclides through Agriculture", USDOE Rep. ORNL-5786, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Be76 Bennett B.G., 1976, "Transuranic Element Pathways to Man" in: Transuranic Nuclides in the Environment, IAEA Rep. IAEA-SM-199/40, pp. 367-381, IAEA (Vienna, Austria).

- Be81 Begovich C.L., Eckerman K.F., Schlatter E.C., Ohr S.Y. and Chester R.O., 1981, "DARTAB: A Program to Combine Airborne Radionuclide Environmental Exposure Data with Dosimetric and Health Effects Data to Generate Tabulations of Predicted Health Impacts", USDOE Rep. ORNL-5692, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- B177 Blanchard R.L., Kolde H.E. and Montgomery D.M., 1977, "Facility Data and Analysis Program -- Criteria for the Estimation of Radiation Dose", USEPA Draft Rep. - Unpublished, (Cincinnati, OH: USEPA).
- B182a Blaylock B.G., Frank M.L. and DeAngelis D.L., 1982, "Bioaccumulation of Tc-95m in Fish and Snails", Health Physics, Vol. 42, No. 3, March 1982, pp. 257-266.
- B182b Blaylock B.G., 1982, "Radionuclide Data Bases Available for Bioaccumulation Factors for Freshwater Biota", Nuclear Safety, Vol. 23, No. 4, July-August 1982, pp. 427-438.
- Bo71 Booth R.S., Kaye S.V. and Rohwer P.S., 1971, "A Systems Analysis Methodology for Predicting Dose to Man from a Radioactively Contaminated Terrestrial Environment" in: Proceedings of the Third National Symposium on Radioecology. (Edited by D.J. Nelson) Oak Ridge, TN, 10-12 May 1971, USAEC Rep. CONF - 710501-P2, pp. 877-893, USAEC (Springfield, VA: NTIS).
- Bu48 Burlington R.S., 1948, Handbook of Mathematical Tables and Formula, (Sandusky, OH: Handbook Publishers, Inc.)
- C184 Cline J.F. and Cadwell L.L., 1984, "Movement of Radiostrontium in the Soil Profile in an Arid Climate", Health Physics, Vol. 46, No. 5, May 1984, pp. 1136-1138.
- Co67 Cowser K.E., Kaye S. V., Rohwer P.S., Snyder W.S. and Struxness E.G., 1967, "Dose-Estimation Studies Related to Proposed Construction of an Atlantic-Pacific Interoceanic Canal with Nuclear Explosives: Phase I", USAEC Rep. ORNL-4101, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Co82 Cohen B.L., 1982, "Effects of ICRP Publication 30 and the 1980 BEIR Report on Hazard Assessments of High-Level Waste", Health Physics, Vol. 42, No. 2, February 1982, pp. 133-143.
- CRC73 The Chemical Rubber Company, 1973, CRC Handbook of Environmental Control (Edited by R.G. Bond and C.P. Straub), (Cleveland, OH: CRC Press).
- CRC75 The Chemical Rubber Company, 1975, Handbook of Chemistry and Physics (Edited by R.C. Weast), (Cleveland, OH: CRC Press).

- De75 Denham D.H. and Soldat J.K., 1975, "A Study of Selected Parameters Affecting the Radiation Dose from Radionuclides in Drinking Water Downstream of the Hanford Project", Health Physics, Vol. 28, No. 2, February 1975, pp. 139-144.
- Do83a Dobson R.L. and Felton J.S., 1983, "Female Germ Cell Loss from Radiation and Chemical Exposures," Amer. J. Ind. Med., Vol. 4, pp. 175-190.
- Do83b Dobson R.L., Straume J., Felton J.S. and Kwan T.C., 1983, "Mechanism of Radiation and Chemical Oocyte Killing in Mice and Possible Implications for Genetic Risk Estimation [Abstract]", Environ. Mutagen., Vol. 5, pp. 498-499.
- Do84a Dobson R.L. and Straume T., 1984, "Mutagenesis in Primordial Mouse Oocytes Could Be Masked by Cell Killing: Monte Carlo Analysis [Abstract]", Environ. Mutagen., Vol. 6, p. 393.
- Do84b Dobson R.L., Kwan T.C. and Straume T., 1984, "Tritium Effects on Germ Cells and Fertility", in Radiation Protection European Seminar on the Risks from Tritium Exposure, EUR9065en, pp. 285-298, Commission of the European Communities.
- Du77 Dura V. P., Simmons G.L., Julian S.K. and Meyer S.P., 1977, "Costs and Effectiveness of Protective Actions for Six Generic Land Types Contaminated with a Radionuclide Deposition," Report for USEPA Contract 68-01-3549, Science Applications, Inc. Rep. SAI-77-539-LJ/F, (LaJolla, CA).
- Du80 Dunning D.E., Leggett R.W. and Yalcintas M.G., 1980, "A Combined Methodology for Estimating Dose Rates and Health Effects from Exposure to Radioactive Pollutants", USDOE Rep. ORNL/TM-7105, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Du84 Dunning D.E., Jr., Leggett R.W. and Sullivan R.E., 1984, "Assessment of Health Risk from Radiation Exposures", Health Physics, to be published.
- ENV85 EnviroSphere Company, A Division of Ebasco Services Incorporated, 1985, "Revised Uncertainty Analysis of the EPA River Mode Pathways Model Used as the Basis for 40 CFR 191 Release Limits", (New York, NY: EnviroSphere Company).
- EPA84a U.S. Environmental Protection Agency, 1984, "Report on the Review of Proposed Environmental Standards for the Management and Disposal of Spent Nuclear Fuel, High-Level and Transuranic Radioactive Waste (40CFR191), High-Level Radioactive Waste Subcommittee, Science Advisory Board, (Washington, DC: USEPA).
- EPA84b U.S. Environmental Protection Agency, 1984, "Radionuclides: Background Information Document for Final Rules", Volume 1, USEPA Rep. EPA 520/1-84-022-1, (Washington, DC: USEPA).

- EPA85a U.S. Environmental Protection Agency, 1985, "Risk Assessment of Disposal of High-Level Radioactive Wastes in Geologic Repositories", USEPA Rep. EPA 520/1-85-028, (Washington, DC: USEPA).
- EPA85b U.S. Environmental Protection Agency, 1985, "Background Information Document, Final Rules for High-Level and Transuranic Radioactive Wastes", USEPA Rep. EPA 520/1-85-023, (Washington, DC: USEPA).
- EPA85c U.S. Environmental Protection Agency, 1985, "Environmental Radiation Protection Standards for Management and Disposal of Spent Nuclear Fuel, High-Level and Transuranic Radioactive Wastes", 40CFR191, Federal Register, Vol. 50, No. 182, pp. 38066-38089 (September 19, 1985).
- Ev55 Evans R.D., 1955, The Atomic Nucleus, (New York, NY: McGraw Hill Book Company, Inc.).
- F171 Fletcher J.F. and Dotson W.L., 1971, "HERMES -- A Digital Computer Code for Estimating Regional Radiological Effects from the Nuclear Power Industry", USAEC Rep. HEDL-TME-71-168, Hanford Engineering Development Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Fo76 Fowler T.W., Clark R.L., Gruhlke J.M. and Russell J.L., 1976, "Public Health Considerations of Carbon-14 Discharges from the Light-Water-Cooled Nuclear Power Reactor Industry", USEPA Technical Note ORP/TAD-76-3, (Washington, DC: USEPA).
- Fo79 Fowler T.W. and Nelson C.B., 1979, "Health Impact Assessment of Carbon-14 Emissions from Normal Operations of Uranium Fuel Cycle Facilities", USEPA Rep. EPA 520/5-80-004, (Montgomery, AL: USEPA).
- Ho77 Hoenes G.R. and Soldat J.K., 1977, "Age-Specific Radiation Dose Commitment Factors for a One-Year Chronic Intake", USNRC Rep. NUREG-0172, Battelle Pacific Northwest Laboratories, (Springfield, VA: NTIS).
- Ho79 Hoffman F.O., 1979, "Bioaccumulation Factors for Freshwater Fish,  $B_{fp}$ ", in: A Statistical Analysis of Selected Parameters for Predicting Food Chain Transport and Internal Doses of Radionuclides (Edited by F.O. Hoffman and C.F. Baes III) USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-282, pp. 96-108, USNRC (Springfield, VA: NTIS).
- Ho80 Hoffman F.O., Huckabee J.W., Lucas D.M., Garten C.T. Jr., Scott T.G., Walker R.L., Gouge P.S. and Holmes C.V., 1980, "Sampling of Technetium-99 in Vegetation and Soils in the Vicinity of Operating Gaseous Diffusion Facilities", ORNL/TM-7386, Oak Ridge National Laboratory, (Oak Ridge, TN: USEPA).

- Ho82a Hoffman F.O., Garten C.T. Jr., Huckabee J.W., and Lucas D.M., 1982, "Interception and Retention of Technetium by Vegetation and Soil", Journal of Environmental Quality, Vol. 11, no. 1, January-March 1982, pp. 134-141.
- Ho82b Hoffman F.O., Gardner R.H. and Eckerman K.F., 1982, "Variability in Dose Estimates Associated with the Food Chain Transport and Ingestion of Selected Radionuclides", USNRC Rep. NUREG/CR-2612, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- ICRP60 International Commission on Radiological Protection, 1960, ICRP Publication 2, Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation (1959), (Elmsford, NY: Pergamon Press).
- ICRP75 International Commission on Radiological Protection, 1975, ICRP Publication 23: Report of the Task Group on Reference Man, (Elmsford, NY: Pergamon Press).
- ICRP77 International Commission on Radiological Protection, 1977, ICRP Publication 26: Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, (Elmsford, NY: Pergamon Press).
- ICRP79 International Commission on Radiological Protection, 1979, "Limits for Intakes of Radionuclides by Workers", ICRP Publication 30, Part 1, Annals of the ICRP, Vol. 2 (3/4), Elmsford, NY: Pergamon Press).
- ICRP80 International Commission on Radiological Protection, 1980, ICRP Publication 30 (with supplements), Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, (Elmsford, NY: Pergamon Press).
- INFCE78 International Nuclear Fuel Cycle Evaluation, February 13, 1978, "Collective Dose Commitments from the Disposal of High-Level Radioactive Wastes," INFCE/WG.7/7, Section 35.
- Ki76 Killough G.G. and McKay L.R., 1976, "A Methodology for Calculating Radiation Doses from Radioactivity Released to the Environment", USERDA Rep. ORNL-4992, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Ki77 Killough G.G., 1977, "A Diffusion - Type Model of the Global Carbon Cycle for the Estimation of Dose to the World Population from Releases of Carbon-14 to the Atmosphere," USERDA Rep. ORNL-5269, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Ki78a Killough G.G., Dunning D.E. Jr., Bernard S.R. and Pleasant J.C., 1978, "Estimates of Internal Dose Equivalent to 22 Target Organs for Radionuclides Occurring in Routine Releases from Nuclear Fuel-Cycle Facilities", USNRC Rep. NUREG/CR-0150, ORNL/NUREG/TM-190, (Springfield, VA: NTIS).



- Ki78b Killough G.G., Dunning D.E., Jr. and Pleasant J.C., 1978, "INREM II: A Computer Implementation of Recent Models for Estimating the Dose Equivalent to Organs of Man from an Inhaled or Ingested Radionuclide", USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-84, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Ko81a Kocher D.C., 1981, "Radioactive Decay Data Tables -- A Handbook of Decay Data for Application to Radiation Dosimetry and Radiological Assessments", USDOE Rep. DOE/TIC-11026, Technical Information Center, U.S. Department of Energy, (Springfield, VA: NTIS).
- Ko81b Kocher D.C., 1981, "A Dynamic Model of the Global Iodine Cycle and Estimation of Dose to the World Population from Releases of Iodine-129 to the Environment", Environment International, Vol. 5, 1981, pp. 15-31.
- Ko81c Kocher D.C., 1980, "Dose-Rate Conversion Factors for External Exposure to Photon and Electron Radiation from Radionuclides Occurring in Routine Releases from Nuclear Fuel-Cycle Facilities", Health Physics, Vol. 38, No. 4, April 1980, pp. 543-621.
- Ko83a Personal Communication, D.C. Kocher - Oak Ridge National Laboratory to J.M. Smith - U.S. Environmental Protection Agency, March 9, 1983.
- Ko83b Personal Communication, D.C. Kocher - Oak Ridge National Laboratory to J.M. Smith - U.S. Environmental Protection Agency, April 20, 1983.
- Ko85 Kocher D.C. and Sjoreen A.L., 1985, "Dose-Rate Conversion Factors for External Exposure to Photon Emitters in Soil", Health Physics, Vol. 48, No. 2, February 1985, pp. 193-205.
- Le67 Lederer C.M., Hollander J.M. and Perlman I., 1967, Table of Isotopes, (New York, NY: John Wiley and Sons, Inc.).
- Li77a Little A.D. Inc., 1977, "Technical Support of Standards for High-Level Radioactive Waste Management: Volume A-Source Term Characterization", USEPA Rep. EPA 520/4-79-007A, (Washington, DC: USEPA).
- Li77b Little A.D. Inc., 1977, "Technical Support of Standards for High-Level Radioactive Waste Management: Volume B-Engineering Controls", USEPA Rep. EPA 520/4-79-007B, (Washington, DC: USEPA).
- Li77c Little A.D. Inc., 1977, "Technical Support of Standards for High-Level Radioactive Waste Management: Volume C-Migration Pathways", USEPA Rep. EPA 520/4-79-007C, (Washington, DC: USEPA).

- Li80 Little A.D. Inc., 1980, "Technical Support of Standards for High-Level Radioactive Waste Management: Volume D-Release Mechanisms", USEPA Rep. EPA 520/4-79-007D, (Washington, DC: USEPA).
- Ma73 Machta L., 1973, "Prediction of CO<sub>2</sub> in the Atmosphere", in Carbon and the Biosphere (Edited by G.M. Woodwell and E.V. Pecan) Upton, NY, 16-18 May 1972, USAEC Rep. CONF-720510, pp. 21-31, (Springfield, VA: NTIS).
- Mi79 Miller C.W., 1979, "The Interception Fraction", in: A Statistical Analysis of Selected Parameters for Predicting Food Chain Transport and Internal Doses of Radionuclides (Edited by F.O. Hoffman and C.F. Baes III) USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-282, pp. 31-42, USNRC (Springfield, VA: NTIS).
- Mo79 Moore R.E., Baes C.F. III, McDowell-Boyer L.M., Watson A.P., Hoffman F.O., Pleasant J.C. and Miller C.W., 1979, "AIRDOS - EPA: A Computerized Methodology for Estimating Environmental Concentrations and Dose to Man from Airborne Releases of Radionuclides", USEPA Rep. EPA 520/1-79-009, Oak Ridge National Laboratory, (Washington, DC: USEPA).
- Mu77 Murray C.R. and Reeves E.B., 1977, "Estimated Use of Water in the United States in 1975", USGS Rep. Circular 765, USDOI, (Arlington, VA: USGS).
- NAS80 The Effects on Populations of Exposure to Low Levels of Ionizing Radiation: 1980, Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiations, Division of Medical Sciences, Assembly of Life Sciences, National Research Council, National Academy of Sciences, (Washington, DC: National Academy Press).
- Ne78 Nelson C.B., Davis R. and Fowler T.W., 1978, "A Model to Assess Population Inhalation Exposure from a Transuranium Element Contaminated Land Area", in: Selected Topics: Transuranium Elements in the General Environment", USEPA Technical Note ORP/CSD-78-1, pp. 213-280, (Washington, DC: USEPA).
- Ne84 Personal Communication, C.B. Nelson -- U.S. Environmental Protection Agency to J.M. Smith -- U.S. Environmental Protection Agency, December 19, 1984.
- Ng77 Ng Y.C., Colsher C.S., Quinn D.J. and Thompson S.E., 1977, "Transfer Coefficients for the Prediction of the Dose to Man Via the Forage - Cow - Milk Pathway from Radionuclides Released to the Biosphere", USDOE Rep. UCRL-51939, Lawrence Livermore Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).

- Ng82a Ng Y.C., Colsher C.S. and Thompson S.E., 1982, "Transfer Coefficients for Assessing the Dose from Radionuclides in Meat and Eggs", USNRC Rep. NUREG/CR-2976, Lawrence Livermore National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Ng82b Ng Y.C., Colsher C.S. and Thompson S.E., 1982, "Soil - to - Plant Concentration Factors for Radiological Assessments", USNRC Rep. NUREG/CR-2975, Lawrence Livermore National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Ng82c Ng Y.C., 1982, "A Review of Transfer Factors for Assessing the Dose from Radionuclides in Agricultural Products", Nuclear Safety, Vol. 23, No. 1, January-February 1982, pp. 57-71.
- Ng84 Personal Communication, Y.C. Ng - Lawrence Livermore National Laboratory to J.M. Smith -- U.S. Environmental Protection Agency, January 9, 1984.
- NRC77 U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1977, "Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I", USNRC Regulatory Guide 1.109, revision 1, (Washington, DC: USNRC).
- NRC78 U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1978, "Liquid Pathway Generic Study", USNRC Rep. NUREG-0440, (Springfield, VA: NTIS).
- ORNL78 Personal Communication, G.G. Killough - Oak Ridge National Laboratory to C.B. Nelson - U.S. Environmental Protection Agency, November 1978.
- Pe83 Peterson, H.T., 1983, "Terrestrial and Aquatic Food Chain Pathways", in: Radiological Assessment: A Textbook on Environmental Dose Analysis (Edited by J.E. Till and H.R. Meyer) USNRC Rep. NUREG/CR-3332, pp. 5-1 through 5-156, (Springfield, VA: NTIS).
- Ri83 Rish W.R., Schaffer S.A. and Mauro J.J., 1983, "Uncertainty and Sensitivity Analysis of the Exposure Pathways Model Used as the Basis for Draft 40 CFR191", November 1983, Supplementary Report to National Waste Terminal Storage Technical Support Team - USDOE, (New York, NY: EnviroSphere Company, A Division of Ebasco Services Incorporated).
- Ru79 Rupp E.M., 1979, "Annual Dietary Intake and Respiration Rates,  $U_{ap}$ ", in: A Statistical Analysis of Selected Parameters for Predicting Food Chain Transport and Internal Doses of Radionuclides (Edited by F.O. Hoffman and C.F. Baes III) USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-282, pp. 109-132, USNRC (Springfield, VA: NTIS).

- Ru83 Runkle G.E., 1983, "Calculation of Health Effects per Curie Release for Comparison with the EPA Standard", in: Technical Assistance for Regulatory Development: Review and Evaluation of the Draft EPA Standard 40CFR191 for Disposal of High-Level Waste, USNRC Rep. NUREG/CR-3235, Vol. 6 USNRC (Springfield, VA: NTIS).
- Ru84 Ruckelshaus W.D., 1984, "Risk in a Free Society", EPA Journal, Vol. 10, No. 3, April 1984, pp. 12-15.
- Sc83 Personal Communication, S.A. Schaffer, Envirosphere Company - A Division of Ebasco Services Incorporated to J.M. Smith - U.S. Environmental Protection Agency, September 21, 1983.
- Sh79 Shor R.W. and Fields D.E., 1979, "Animal Feed Consumption Rate,  $Q_F$ ", in: A Statistical Analysis of Selected Parameters for Predicting Food Chain Transport and Internal Doses of Radionuclides (Edited by F.O. Hoffman and C.F. Baes III) USNRC Rep. ORNL/NUREG/TM-282, pp. 51-58, USNRC (Springfield, VA: NTIS).
- Sh82 Shor R.W., Baes C.F. III and Sharp R.D., 1982, "Agricultural Production in the United States by County: A Compilation of Information from the 1974 Census of Agriculture for Use in Terrestrial Food - Chain Transport and Assessment Models", USDOE Rep. ORNL-5768, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Sm82 Smith C.B., Egan D.J., Williams W.A., Gruhlke J.M., Hung C.Y. and Serini B.L., 1982, "Population Risks from Disposal of High-Level Radioactive Wastes in Geologic Repositories", USEPA Rep. EPA 520/3-80-006, (Washington, DC: USEPA).
- Su81 Sullivan R.E., Nelson H.S., Ellett W.H., Dunning D.E., Jr., Leggett R.W., Yalcintas M.G. and Eckerman K.F., 1981, "Estimates of Health Risk from Exposure to Radioactive Pollutants", USDOE Rep. ORNL/TM-7745, Oak Ridge National Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Th72 Thompson S.E., Burton C.A., Quinn D.J. and Ng Y.C., 1972, "Concentration Factors of Chemical Elements in Edible Aquatic Organisms", USAEC Rep. UCRL-50564/Rev. 1, Lawrence Livermore Laboratory, (Springfield, VA: NTIS).
- Th82a Thompson R.C., 1982, "Neptunium - The Neglected Actinide: A Review of the Biological and Environmental Literature", Radiation Research, Vol. 90, No. 1, April 1982, pp. 1-32.
- Th82b Thompson R.C., 1982, "Neptunium - The Neglected Actinide: Corrections and Extensions," Radiation Research, Vol. 92, December 1982, pp. 620-621.

- UN58 United Nations, 1958, Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Official Records: Thirteenth Session, Supplement No. 17 (A/3838), (New York, NY: United Nations).
- UN77 United Nations, 1977, Sources and Effects of Ionizing Radiation: UNSCEAR 1977 Report, United Nations Publication Sales No. E.77.IX.1, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, (New York, NY: United Nations).
- USDA82 U.S. Department of Agriculture, 1982, Agricultural Statistics: 1982, (Washington, D.C.: USGPO).
- USDC70 U.S. Department of Commerce, 1970, Statistical Abstract of the United States: 1970, 91st. edition, Bureau of the Census, (Washington, D.C.: USGPO).
- USDC83 U.S. Department of Commerce, 1983, Statistical Abstract of the United States: 1984, 104th. edition, Bureau of the Census, (Washington, D.C.: USGPO).
- We73 Wetzel R.C. and Rich P.H., 1973, "Carbon in Freshwater Systems", in: Carbon and the Biosphere (Edited by G.M. Woodwell and E.V. Pecan) Upton, NY, 16-18 May 1972, USAEC Rep. CONF - 720510, pp. 241-263, (Springfield, VA: NTIS).
- WIC70 Water Information Center, 1970, The Water Encyclopedia (Edited by D.K. Todd), (Port Washington, NY: WIC).
- Wo79 Newspaper Enterprise Association, Inc., 1978, The World Almanac and Book of Facts 1979, (New York, NY).
- WRC78 U.S. Water Resources Council, 1978, The Nation's Water Resources: 1975-2000, Volume 1: Summary, (Springfield, VA: NTIS).

## ま と め

放射性廃棄物処分の安全評価に関し、生物圏での核種移行に影響する因子について、従来の核種移行モデルに加えて今後検討する必要があるものと考えられる核種の岩石への収着に対する人工および天然の有機酸の影響について検討した。

1) 浅地層中に放射性廃棄物を処分した後、固化体から溶出した核種が、環境を汚染している恐れのある人工の有機物質たとえばEDTA等の除洗剤と相互作用した場合、それが核種の移行挙動に与える影響について検討した。はじめに花崗岩粉末に対するSrの分配係数の時間依存、Sr濃度依存、pH依存など、核種の収着に関する基礎的特性を測定した。続いて、EDTAがこれらの収着特性に与える影響を調べるため、Srの分配係数のEDTA濃度依存の実験を行った。Sr濃度より十分低い濃度から高い濃度の範囲において、EDTAはSrの収着係数に明確な影響を与えなかった。

2) 地表に近い地層中には動植物の活動の結果生成した高分子有機酸であるフミン酸やフルボ酸が存在する。これらの有機酸はアルカリ土類金属イオンや重金属イオンと錯体を形成する。有機酸は著しく分子量が大きく、また、それがもっている多価イオンを介して鉱物や粘土鉱物に収着される性質があるため、核種移行挙動は有機酸の挙動に影響される可能性がある。特にフミン酸の影響について検討するため、花崗岩粉末、フミン酸、Srイオンからなる系で、花崗岩に対するSrの分配係数の時間依存、pH依存、Sr濃度依存、フミン酸濃度依存について測定を行った。花崗岩に対するSrイオンの見かけの収着係数に与えるフミン酸の影響はpH7以上の領域で見られた。また、実験を行った広い範囲のSrイオン濃度、すなわち、1~1000ppmのSr濃度においてフミン酸が収着係数に影響を与えることが見出された。

さらに、放射性廃棄物の地層処分後の安全性を確保するために米国環境保護庁(EPA)が行った集団線量の評価のための環境影響評価モデルが生物圏での核種移行等環境リスク評価に極めて参考になる文献であることに鑑み、これを抄訳して本報告書に加えた。