

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 26 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360392

研究課題名(和文)環境放射能の大気輸送過程研究の新展開

研究課題名(英文)New development of study on atmospheric transport processes of environmental radioactivity

研究代表者

山澤 弘実(Yamazawa, Hiromi)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70345916

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 7,200,000円

研究成果の概要(和文)：降水中に含まれるラドン壊変核種の濃度を高い時間分解能での測定を実施し、その結果得られた降水強度の変化に追隨して変化する濃度変化の特徴を用いて、大気中放射性核種の降水による除去の速度を降水強度の関数として定式化した。この除去速度を用いた再現計算により、降水中濃度の時間変化をこれまでにない高い精度で再現できることを示した。

また、モニタリング設備で得られる線量率の時間変化及びガンマ線スペクトルの情報から降水で沈着した放射性核種の地面上濃度を推定する方法を開発した。

研究成果の概要(英文)：A series of measurements were carried out for concentrations of radon decay products in rain water with a high time resolution. Temporal variations in the measured concentration, which followed the variation in rain intensity, were analyzed to formulate the washout coefficient of air-borne radionuclides as a function of rain intensity. It was demonstrated that the temporal variations in concentration in rain water were reproduced with a very high accuracy by using the proposed formula. Methods for estimating surface concentrations of deposited radionuclides from temporal change in dose rate and from gamma-ray spectral information provided from monitoring installations were developed.

研究分野：環境放射能、環境影響評価

キーワード：放射性核種 ラドン壊変生成物 湿性沈着 洗浄係数 降水中濃度 空間線量率 地面上濃度推定

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所事故の環境影響は、主に放射性物質の大気放出率の時間経過が十分把握されていないこと、事故時のモニタリング情報が限られていること等により、事故当初から研究開始当初に至るまで、特に事故後では測定することができない大気中濃度を含めて、環境影響の時間経過が十分に把握されていなかった。

その最大の要因はプラントの情報から大気中への放出率が十分な精度で評価することができないことによる。一方、環境中のモニタリングデータから推定できる可能性があり、実際に研究代表者らが行ったヨウ素 131 およびセシウム 137 についての推定結果が当時唯一の包括的な放出率推定値として国際的に広く使用されたが、推定精度の改善の必要性があることが指摘されていた。誤差の主要因は、推定に用いた大気拡散モデルの計算精度、特に降水による沈着過程の計算精度に限界があることと、環境中の測定値の数（時間的および空間的密度）が必ずしも十分でないことと認識されていた。

2. 研究の目的

本研究で対象とする環境中での放射性核種の移行と、モニタリングにより測定されるγ線の発生源及び伝達過程の模式図を図1に示す。

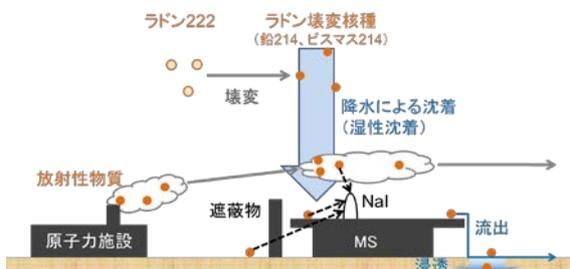


図1 本研究で対象とする現象の模式図

(1) ラドン壊変核種沈着の測定とモデル化

降水中には天然放射性核種で大気中に存在するラドン 222 の壊変で生じる核種である鉛 214 およびビスマス 214 が含まれている。これらの核種の濃度を連続測定することにより、湿性沈着モデル化で不可欠な放射性エアロゾル粒子の雲粒取り込みおよび雨水形成の時間定数を決定する。これにより、これまでファクター2 から 5 程度の大きな不確かさがあり、今回の福島事故評価でも誤差要因となった沈着に関するパラメータ（主に、雲水量および雨水量の関数としての大気からの除去速度、洗浄係数とも呼ばれる）の精度向上を行う。

(2) 線量率・ガンマ線波高分布からの沈着核種濃度推定法の開発

モニタリングポスト等モニタリング設備（以下、MP）の周りのガンマ線伝達に影響を

与える地表面形状や流出等の周辺特性が既知であれば、沈着核種の地表面濃度の推定は比較的容易であるが、個々の MP での周辺特性把握は多大な時間を要する。本研究では降水に伴うラドン壊変核種沈着による線量率変動から、周辺特性が反映された沈着核種濃度と線量率の関係を個々の MP について決定するために必要な MP 周辺環境の把握方法を検討し、MP の線量率および波高分布から核種毎の沈着量および降水中濃度の評価を可能とすることを旨とする。

3. 研究の方法

降水を自動的に採取して NaI (Tl) 検出器により壊変核種の降水中濃度を測定するための既存の測定器に、鉛によるバックグラウンド γ 線遮蔽の強化と、測定精度向上のための検出器大型化の改良を施し、15 分毎の高い時間分解能での濃度測定を 2013 年 12 月～2014 年 12 月の期間に実施した。その結果、濃度が低いことにより測定精度が悪い理由で解析対象外とした事例を除いて、合計で 37 個の降水事例について濃度データを取得し、さらにその中から東アジア域長距離を対象とした大気拡散シミュレーション計算等の解析により上空ラドン濃度の変化が小さいと考えられる事例（5 個）を後述する沈着過程モデル化のための詳細解析対象として選択した。さらに、過去の測定データの再解析を進め、2004 年 12 月～2006 年 12 月に測定された 81 事例から同様の基準で 6 事例を選択し、詳細解析の対象とした。

モデル化においては、ラドン壊変核種が気相、雲粒相および落下雨滴相として存在するとし、各相の存在量の時間変化を記述するモデルを構築し、相間での移行速度を上記の測定データから定式化することを試みた。その際に、ラドン壊変核種の雲粒相から落下雨滴相への移行速度（大気からの除去速度に相当）は、雲水の降水への水の質量の移行速度（降水強度に相当）に強く依存すると考えられるため、降水強度の簡単な関数となることを想定した。

(2) 線量率・ガンマ線波高分布からの沈着核種濃度推定法の開発

①濃度推定においては、空間線量率およびガンマ線波高分布が常時測定されている原子力施設周辺の既存 MP の測定結果を利用することとし、主に静岡県内の MP データを主対象として線量率変動および MP 間差異の要因検討を行った。これらの検討では、大気中ラドン濃度の連続測定及び可搬型高純度ゲルマニウム検出器による天然放射性核種濃度分布の現地測定を行った。

②降水により沈着したラドン壊変核種の地面上濃度を推定する方法として、線量率データしか得られていない場合を想定した線量率の時間変化から鉛 214 とビスマス 214 の地

面上放射能濃度を核種別に推定する手法と、ガンマ線波高分布の上記核種の光電ピーク部の計数率実測値と詳細な光子輸送計算で計算した計数率を比較することで波高分布測定値から放射能濃度を核種別に推定する手法を考案した。

③MP 周囲に沈着した核種の一部は雨水の流出に伴って流出し、他の一部は土壤中に浸透することにより、濃度推定に影響を与えるため、流出および浸透特性の把握方法の検討と、MP 測定値から放射能濃度を推定する際に MP 周囲の幾何学的構造および流出・浸透特性の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさの検討を行った。

4. 研究成果

(1) ラドン壊変核種沈着の測定とモデル化 降水除去過程

測定された降水中濃度は、上空ラドン濃度に依存することから降水事象毎のばらつきが大きいものの、降水初期および降水強度が弱い範囲で降水強度に正の相関を持つことが示された(図2)。これは、これまで降水強度への負の依存性(希釈効果)があったことに反しており、高い時分解能での測定により新たに見出された特徴である。本研究の結果では、降水強度が強い場合あるいは降水継続時間が長い場合は、降水強度との相関が明瞭に見られないか、これまでと同様に負の相関があることも指摘され、これまでの研究で行われてきた濃度と降水強度の関係を単純な相関関係で把握することが必ずしも適切でないことが指摘された。

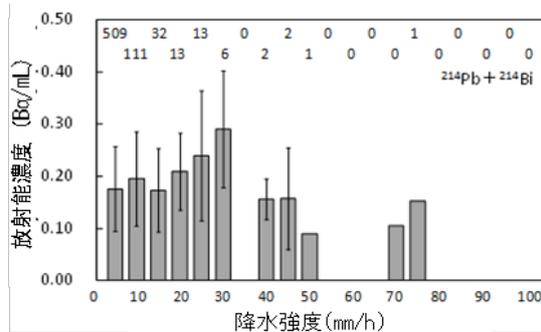


図2 測定された降水中ラドン壊変核種放射能濃度と降水強度の関係

沈着過程のモデル化では、ラドン壊変核種核種の雲粒相から落下雨滴相への除去速度が降水強度のべき乗で表されると仮定して、測定された降水中濃度の時間変化の再現性が最良となる関数形を決定した。その結果、詳細解析対象事例について、べき数が0.8~1.2と評価された。図3にこの洗浄係数を用いたモデルによる降水中濃度時間変化の計算結果の例を示す。この計算結果は、実測値をこれまでになく極めて良好に再現することを示しており、他の事例でも同様の結果が得られた。このモデルを用いた沈着過程の解

析結果により、除去効率が降水強度と正の相関あることにより、降水初期には降水強度の変動と連動した濃度の時間変化が生じること、ある程度降水が継続した後では雲粒相のラドン壊変核種が減少して降水強度の増加により除去効率が増加しても降水中濃度が増加しないこと、さらに、降水強度が特に強い場合は降水により除去される核種の量がラドンからの壊変量とほぼ等しくなり、降水強度が強いほど濃度が低くなる(希釈効果)が生じることが示された。

本研究で得られたこれらの成果は、大気中放射性物質の降水による沈着過程に関するこれまでの矛盾点に対して、野外測定とモデルを用いた詳細解析により明快な解釈を新たに与え、加えて沈着過程評価の高精度化を実現したものである。

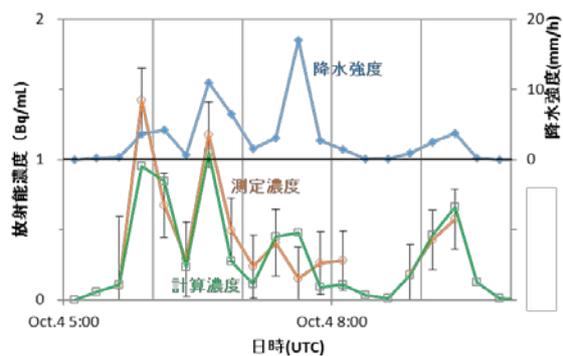


図3 降水中ラドン壊変核種放射能濃度の測定値とモデル計算値の比較

(2) 線量率・ガンマ線波高分布からの沈着核種濃度推定法の開発

① 線量率変動およびMP間差異の要因検討

静岡県内のMPでは、無降雨時の線量率は地点間で最大15 nGy h⁻¹の差が見られた。現場測定によって得られた各MPの土壤中放射能濃度と無降雨時のMS測定値の対応関係を検討した結果、無降雨時のMP測定値のMS間の差異は、周囲に高い建物が存在しない場合、概ね周囲の土壤中放射能濃度の差異によって生じることを確認した。

大気中ラドン濃度の測定により、無降雨時の線量率と大気中ラドン濃度に強い正の相関が見られ、無降雨時の線量率変動の主な原因は大気中ラドン濃度の変動であることが示された。本研究の測定では、大気中ラドン濃度の最大値は25 Bq m⁻³であり、その時のラドン壊変生成物からの線量率寄与は約3.3 nGy h⁻¹であった(図4)。

静岡県内の比較的近接して設置されているMPでは、降雨時の線量率上昇値の平均値は約10 nGy h⁻¹であり、地点間で最大3 nGy h⁻¹の差が見られた。周辺の地表面形態がアスファルト、コンクリートなどで舗装されているか周囲に高い構造物が存在する地点で線量率上昇値が小さいこと、地表面形態が砂地であり、周囲に構造物が無い開けた地点で線量率上昇値が大きいこと、さらにMPが高い樹

木で覆われている地点では線量率上昇値が大きい傾向が見られ、線量率上昇値の MP 間の差異が周辺環境の差異に起因していることを明らかにした。

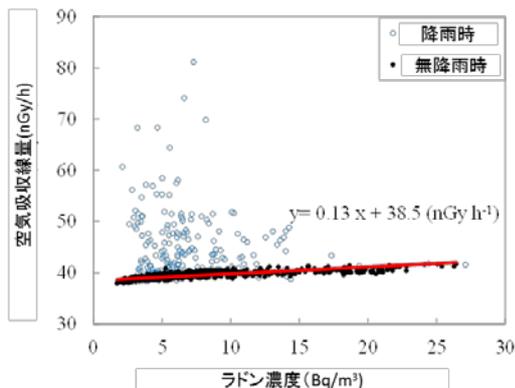


図4 線量率と大気中ラドン濃度の関係

② 地面上濃度推定法の開発

ラドン壊変核種の降水による沈着で生じる線量率変動から鉛 214 およびビスマス 214 の濃度を個々に求める方法として、降水終了後の減衰傾向が両核種の濃度比により異なることを利用する方法を考案した。この方法では、地表面を構成する面要素上の各核種の線量率寄与を減衰及びビルドアップを考慮したガンマ線伝達式により計算し、それを全ての面要素について積算する方法（点減衰核積分法）を用いて、降水終了後の線量率変化を計算した場合、図5に示すようにビスマス 214 の寄与が相対的に大きい場合は単純な減衰傾向を示すのに対して、鉛 214 の寄与が相対的に大きい場合は肩を持つ減衰傾向となるため、実測を最も良く再現する核種比を決定でき、ガンマ線波高分布が得られていない地点でも各種別濃度推定が可能であることが示された。

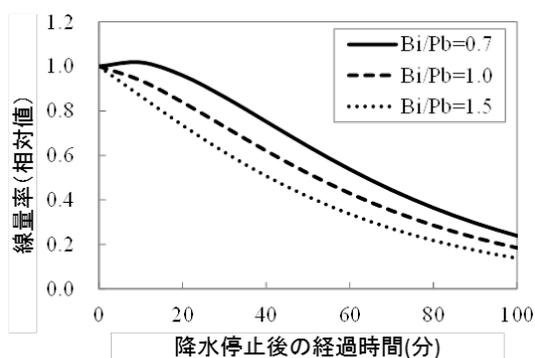


図5 降水に伴う線量率増加分が降水停止後に減衰する傾向が降水停止時の核種比に依存することを示す計算結果

ガンマ線波高分布が測定されている場合を対象とした地面上濃度推定では、対象核種の主要光電ピークの計数率の実測値と計算値の差が最少となる濃度を最少とする濃度を推定する方法とし、光子輸送計算による単位濃度当たりの計数率を予め計算し、その計算では線源と検出器を入れ替える方法で短

い時間でより精度の高い計算結果を得られることを確認した。

③ 流出および浸透特性の把握方法の検討

降雨後の線量率上昇値の減衰傾向から推定したラドン壊変生成物の地面上放射能濃度の MP 間の差異を利用して、各 MP の流出・浸透特性（流出割合及び残存割合）を合理的に推定可能か検討した。推定した流出特性は雨水の流出のしやすい凹凸の少ない地表面で小さく、さらに対象とした MP 周囲の土壤が砂質で類似していたことにより、浸透特性は MP 間で大きな違いが見られないことから、本手法で推定した流出・浸透特性は MP 周辺環境と矛盾しないと結論づけられた。

濃度推定値を流出・浸透特性の考慮の有無で比較し、放射性物質の流出および浸透の考慮が線量率を用いて推定した放射能濃度に与える影響の大きさを評価した結果、近接した複数の MP の測定結果を用いることにより流出・浸透特性の把握が可能であることが見いだされ、本研究の対象とした MP では、濃度推定値は流出を考慮しなければ最大で約 40%、浸透を考慮しなければ最大で約 30% 小さく計算されることを示した。また、波高分布から濃度を推定する方法においては、周囲に高い建物が近接して存在する場合（市街地の特徴が強い場合）は、光子輸送計算での建物の考慮しない場合比べて地面上濃度が半分程度に過小に推定されること、その過小評価の程度は周囲の建物の密度が高いほど強いことが示された。

以上の成果は、線量率のみが得られている場合及び波高分布も得られている場合のいずれにおいても降水により沈着した天然放射性核種の地面上濃度を合理的に推定できる方法を提示し、その推定の誤差要因を定量的に評価したものであり、原子力事故時の人工放射性核種の濃度推定にも応用できるものである。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計4件)

- ① Jun Moriizumi, Daisuke Kondo, Yuya Kojima, Heng Liu, Shigekazu Hirao, Hiroshi Yamazawa, $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ radioactivity ratio in rainwater for residence time estimation of cloud droplets and raindrops, Radiat. Prot. Dosimetry (2015), doi:10.1093/rpd/ncv220.
- ② H. Liu, D. Kondo, M. Matsuda, S. Hirao, J. Moriizumi, H. Yamazawa, On the characteristics of the wet deposition process using radon as tracer gas, Radiat. Prot. Dosimetry, 160(1-3), 83-86, (2014), doi:10.1093/rpd/ncu093.
- ③ J. Hirouchi, S. Hirao, J. Moriizumi, H.

Yamazawa, A. Suzuki, Estimation of Surface Concentration of Radon Decay Products from Gamma Dose Rate Change, Progress in Nucl. Sci. Technol., 4, 871-874, (2014).

- ④ Jun Hirouchi, Shigekazu Hirao, Jun Moriizumia, Hiromi Yamazawa, Atsuo Suzuki, Estimation of infiltration and surface run-off characteristics of radionuclides from gamma dose rate change after rain, J. Nucl. Sci. Technol., 51(1), 48-55, (2014), doi: 10.1080/00223131.2014.847808

[学会発表] (計19件)

- ① H. Yamazawa, S. Hirao, Achievements and limitations of dynamical modeling of environmental radioactivity behavior, 9th Int. Symp. Natural Radiation Environment, 弘前プリンスホテル (青森県・弘前市)、2014年9月23日 (基調講演)
- ② H. Yamazawa, S. Hirao, Atmospheric dispersion of radioactive materials discharged from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, 12th Int. Conf. Radiation Shielding, 奈良春日野国際フォーラム (奈良県・奈良市)、2013年9月3日. (招待講演)
- ③ 廣内 淳、平尾茂一、森泉 純、山澤弘実、鈴木敦雄、降雨後の空間ガンマ線線量率変動の解析による放射性核種流出の推定、日本原子力学会、2012年3月19日 福井大 (福井県・福井市)
- ④ 山澤弘実、事故大気放出による環境影響の迅速把握方法の検討、日本原子力学会、2013年3月26日、近畿大 (大阪府・東大阪市)

[図書] (計1件)

- ① 山澤弘実, 他 41 名著 (中島映至他編), 原発事故環境汚染—福島第一原発事故の地球科学的側面, 第7章モニタリングシステムの整備, 第8章放射性物質の拡散モデリング, 東京大学出版会, pp. 164-187, (2014).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山澤 弘実 (YAMAZAWA, Hiromi)
名古屋大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：70345916

(2) 研究分担者

森泉 純 (MORIIZUMI, Jun)
名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：90303677

平尾 茂一 (HIRAO, Shigekazu)
名古屋大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：30596060

(3) 研究協力者

廣内 淳 (HIROUCHI, Jun)
劉 珩 (LIU, Heng)
近藤 大佑 (KONDO, Daisuke)