

モニタリングステーション測定値を用いた  
核種同定および放射能濃度推定法の開発

廣内 淳



# 目次

## 第1章 序論

1.1. エネルギー利用の変遷と原子力発電	1
1.2. 放射線による健康影響の評価と防護対策	4
1.2.1. 放射線による健康影響	4
1.2.2. 防護対策	5
1.3. 放射性物質のモニタリング	6
1.3.1. 平常時モニタリング	6
1.3.1.1. 土壌および建築物に含まれる自然放射性核種	8
1.3.1.2. 大気中ラドン壊変生成物	9
1.3.1.3. 降雨によるラドン壊変生成物の湿性沈着	9
1.3.2. 緊急時モニタリング	11
1.4. MS で測定される空間 $\gamma$ 線線量率および NaI 波高分布	13
1.5. 本研究の目的、意義	15
1.6. 本論文の構成	16

## 第2章 モニタリングステーション測定値の変動要因の解析

2.1. 諸言	17
2.2. 解析方法	17
2.2.1. 定義	17
2.2.2. 解析対象	19
2.3. 解析結果	21
2.3.1. 無降雨時と降雨時の線量率	21
2.3.2. 無降雨時と降雨時の NaI 波高分布	22
2.3.3. 福島原発事故後の線量率	24
2.3.4. 福島原発事故後の NaI 波高分布	29
2.4. 無降雨時の線量率および NaI 波高分布の MS 間の差異の検討	30
2.4.1. 土壌中放射能濃度の測定方法	30
2.4.2. 測定結果	31
2.4.3. 土壌中放射能濃度と無降雨時の線量率との関係	33
2.5. 大気中ラドン濃度の測定	33

2.5.1. 測定方法	34
2.5.2. 測定結果	35
2.5.3. 大気中ラドン濃度と線量率の関係	36
2.6. まとめ	37

### 第3章 線量率および NaI 波高分布を用いた降雨時の放射能濃度推定

3.1. 諸言	39
3.2. 線量率を用いた濃度推定法	40
3.2.1. 線量率計算モデルによる線量率計算	41
3.2.1.1. 線量率計算モデル	41
3.2.1.2. モデルによる線量率の再現性の検討	45
3.2.2. 降雨時の線量率の時間変化	48
3.2.3. 降雨後の線量率変動を用いた 地面上放射能濃度比 ( $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比) の決定法	51
3.2.4. 解析対象	52
3.2.5. 推定結果	55
3.3. 線量率を用いた流出・浸透特性の推定	59
3.3.1. 浸透特性の推定方法	59
3.3.2. 流出特性の推定方法	60
3.3.3. 浸透特性の推定結果	62
3.3.4. 流出特性の推定結果	63
3.3.5. 流出と浸透を考慮した地面上放射能濃度推定値	65
3.4. NaI 波高分布を用いた濃度推定法	67
3.4.1. エネルギー校正、エネルギー分解能校正	67
3.4.2. 濃度推定法の原理	69
3.4.3. 波高分布の計算	70
3.4.4. 解析対象	72
3.4.5. 推定結果	72
3.4.5.1. 波高分布の計算結果	72
3.4.5.2. 地面上放射能濃度の推定結果	75
3.5. まとめ	79

## 第4章 NaI 波高分布を用いた事故時の放射能濃度推定

4.1. 諸言	81
4.2. NaI 波高分布からの核種分別	82
4.2.1. 核種の選定	82
4.2.2. エネルギー範囲の設定	83
4.2.3. 放射能濃度推定時の制約条件	85
4.3. NaI 波高分布を用いた事故時の地面上放射能濃度の推定	85
4.3.1. ケース間の濃度推定値の比較	86
4.3.2. 濃度推定値の時間変化	87
4.3.2.1. 濃度推定値の時間変化の傾向	88
4.3.2.2. ラドン壊変生成物の共存による濃度推定値への影響	90
4.3.3. 実測値との比較	92
4.4. NaI 波高分布を用いた大気中—地面上放射能濃度の推定	94
4.4.1. 大気中—地面上放射能濃度の同時推定法	95
4.4.1.1. 推定下限値	96
4.4.1.2. 核種組成比の仮定	97
4.4.1.3. EGS5 による波高分布の計算	98
4.4.2. 推定結果	98
4.4.2.1. MS 間の濃度推定値の差異	101
4.4.2.2. 濃度推定値のばらつき	104
4.4.2.3. プルーム通過時以外の大気中放射能濃度推定値	107
4.4.2.4. 浸透の考慮が濃度推定値に与える影響	108
4.4.3. 実測値との比較	110
4.4.3.1. 地面上放射能濃度	110
4.4.3.2. 大気中放射能濃度	112
4.5. まとめ	113

## 第5章 結論

5.1. まとめ	115
5.2. 今後の展望、課題	117

参考文献	119
------	-----

論文目録	125
------	-----

謝辞	126
----	-----



# 第1章 序論

## 1.1. エネルギー利用の変遷と原子力発電

世界のエネルギー消費量は年々増加し、2012年には原油換算で125億トンに達した（資源エネルギー庁，2014）。世界の地域別の一次エネルギーの消費量の推移を図1-1に示す。1965年から2012年にかけて、エネルギー消費量が最も増加したのはアジアであり、2012年の世界の一次エネルギー消費量は1965年の約3倍であった。近年では、中東とアフリカでもエネルギー消費量の増加が顕著であり、これらの国によるエネルギー消費の増加に伴って、今後も世界全体のエネルギー消費量が増加し続けることが予想される（BP, 2014）。

世界のエネルギー消費量の増加をエネルギー源別に見ると、化石燃料（石炭、石油、および天然ガス）のみならず、原子力および新エネルギー（太陽光、風力、地熱など）の消費も増加している（図1-2）。化石燃料によるエネルギー消費量は2012年時点で全体の約8割と最も多かった。近年では、原子力と新エネルギーの消費量の伸び率が大きくなっている。これはエネルギー供給の多用化および低炭素社会を実現するために、原子力と新エネルギーの導入が進んだ結果である（IEA, 2013）。

1951年にアメリカで原子力発電が開始されて以来、世界各国で原子力発電の開発が積極的に進められてきた（日本原子力産業協会，2013）。世界の原子力発電設備容量の推移を図1-3に示す。1990年までは北米と欧州で原子力発電の増設が盛んであり、それ以降は伸びが低くなった。一方、アジアは着実に原子力発電の増設が行われている。

原子力発電は膨大なエネルギーを生み出す利点がある一方で、他の発電方法と比べて事故時の損害が甚大であるという欠点がある。現在までの原子力発電の事故の例として、1979年のスリーマイル島原子力発電所事故、1986年のチェルノブイリ原子力発電所事故、2011年の福島第一原子力発電所事故（以降、福島原発事故と表記）が挙げられる。これらの事故後、農作物および畜産物の摂取が禁じられるほど、土壌、作物、および水などが放射能に汚染された地域が存在した（UNSCEAR, 2000; 杉浦, 2011）。さらに人体への影響として、小児の甲状腺がんの有意な増加もチェルノブイリ事故後では確認された（長瀧ら, 2011; 長瀧, 2012）。

福島原発事故以降、諸外国の原子力開発政策は大きく2つのグループに分かれた。一つは原子力発電の運転基数を減少させている国である。このグループは、もともと原子力に関して慎重な姿勢を見せてきた国に多く、ドイツ、スイスなどが挙げられる。もう一つは、原子力の一層の安全性向上を図りつつ、エネルギー確保のために原子力を利用し続けようとする、または原子力を導入しようとする国である。このグループはもともと原子力利用を推進していた国（アメリカ、フランス、韓国、ロシアなど）と発展途上国（中国、インド、トルコなど）が挙げられる（村上, 2011; 日本原子力産業協会, 2014）。

日本では福島原発事故後、原子力発電の設備利用率は減少したものの、福島原発事故を踏まえ、防災対策の充実を図るために、放射性物質の監視を目的としたモニタリング施設（機関によりモニタリングステーションあるいはモニタリングポストと呼ばれる。以下ではモニタリングステーションあるいは略してMSと呼ぶ。）の増設が行われている。例として、静岡県浜岡原子力発電所周辺に設置されているMSの設置範囲は、福島原発事故以前までは原子力施設から半径10 km以内であったが、事故後は半径30 km以内へと拡大され、MS数は14から28へと増加した。MSでは空間γ線線量率（ここでは空気吸収線量率の意味）と波高分布が常時測定されている。それらの測定値は主に測定地域周辺の空間γ線線量率の大きさおよび事故時に測定時間までに公衆が受けた外部被ばくによる線量の評価のために活用されているものの、放射能濃度の評価に活用されていない。MSの増設に伴い、MSから得られた測定値を基に、線量評価以外にも事故時に放出される人工放射性物質に関する有用な情報（例えば、放射性物質を含んだプルームの動態、プルーム中の放射能濃度およびその核種組成比、測定地域周辺の汚染状況など）を今まで以上に取得できる可能性がある。本研究では、このMS増設に伴って増加する測定値から得られる情報を最大限に利用することに着目した。

次節以降では、始めに放射線による健康影響の評価と防護対策について述べ、防護対策に必要な平常時モニタリングと緊急時モニタリングの概要を示し、現段階で得られうる測定値の特徴についてまとめる。

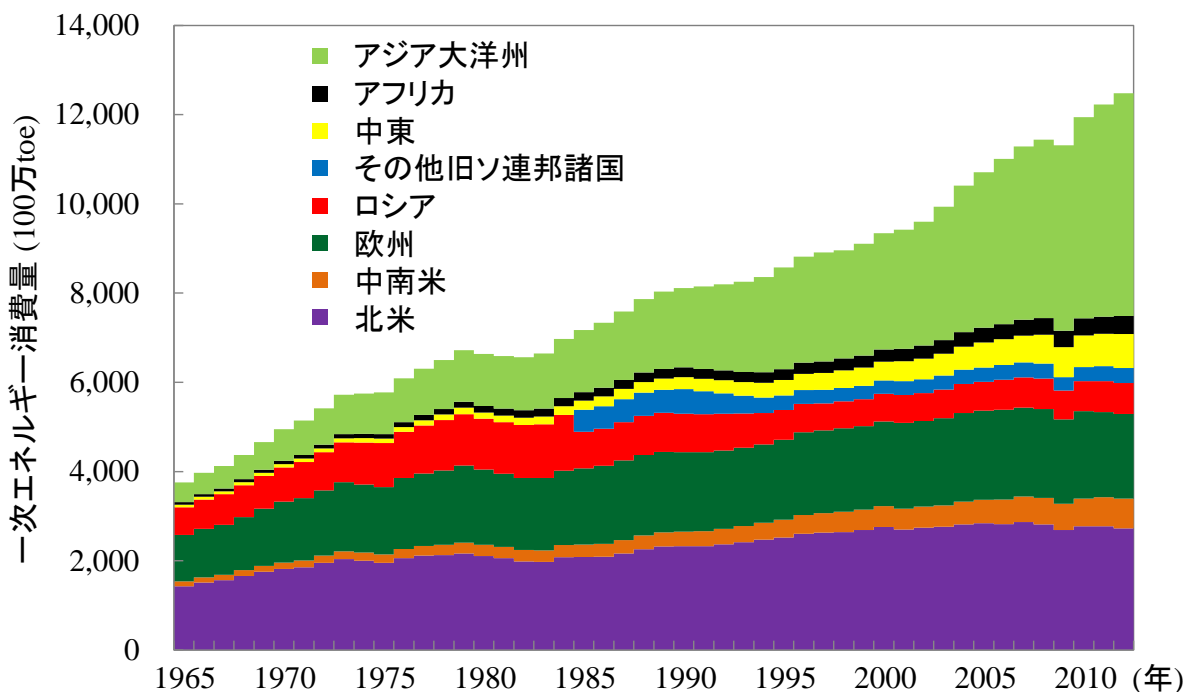


図 1-1 世界の地域別の一次エネルギー消費量の推移（資源エネルギー庁(2014)を基に作成）



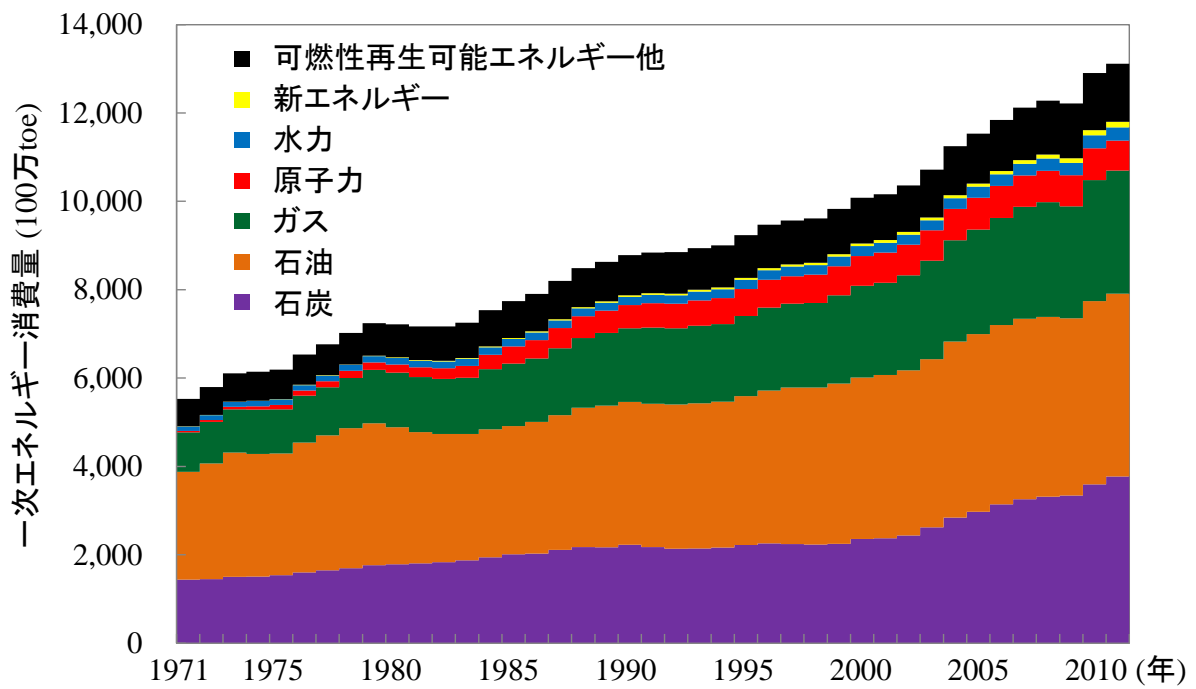


図 1-2 世界の一次エネルギー消費量のエネルギー源別の推移（資源エネルギー庁(2014)を基に作成）

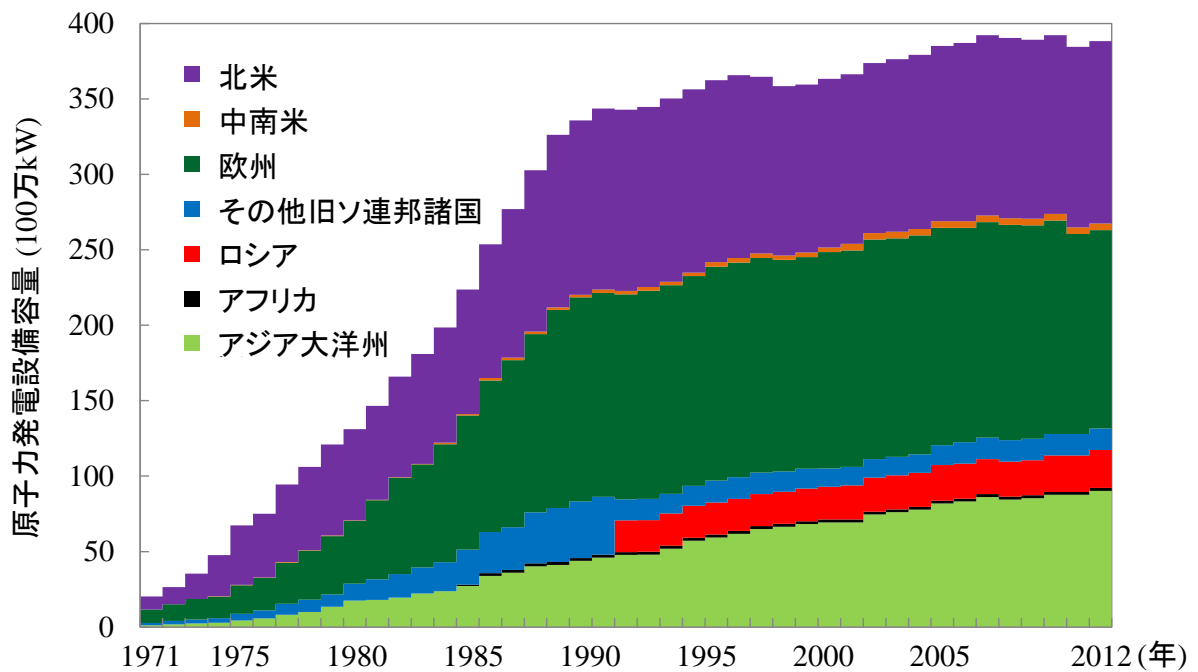


図 1-3 原子力発電設備容量（運転中）の推移（資源エネルギー庁(2014)を基に作成）

## 1.2. 放射線による健康影響の評価と防護対策

### 1.2.1. 放射線による健康影響

放射線による健康影響は線量と影響の発生頻度の関係から 2 つのグループに分けられる。一つはある線量（閾値）を超えると、症状が現れ始め、大線量では 100% 症状が現れるもので、「確定的影響」と呼ばれる。例として、白内障、皮膚損傷、脱毛などが挙げられる。確定的影響は閾値以下に線量を制限することによって、それらの発生を防ぐことができる。もう一つは閾値がないと仮定され、線量が増えると影響発現の確率が増加するもので、「確率的影響」と呼ばれる。例として、固形がん、白血病、遺伝的影響などが挙げられる。現段階での疫学調査では、実効線量 0~100 mSv の間ではがん死亡率に有意な増加傾向が見られていない (Preston et al., 2003)。2007 年のがん罹患率に関する報告では、がん死亡率の有意な増加が認められる最低線量は 150 mSv とされている (Preston et al., 2007)。

上で述べた放射線による健康影響を評価または予測するために線量が必要である。その線量は被ばく経路により 2 つに分けられる。一つは体外にある放射性物質から放出された放射線によって引き起こされる「外部被ばく」による線量（外部線量）である。外部被ばくは主に空気中で平均自由行程または飛程の長い放射線（ $\gamma$  線、X 線、および中性子線）によって引き起こされる。もう一つは体内に存在する放射性物質から放出された放射線によって引き起こされる「内部被ばく」による線量（内部線量）である。内部被ばくは飛程の長い放射線に加え、飛程の短い放射線（ $\alpha$  線と  $\beta$  線）によっても引き起こされる。放射線による健康影響を把握するためには、「外部線量」と「内部線量」をそれぞれ評価する必要がある。

外部線量の大きさは、周囲に存在する人工放射性物質の量・放出するエネルギー、周囲の核種の残存量を左右する地表面の性質（沈着物の浸透・流出のしやすさなど）、放射線の遮蔽効果の大きさに影響を与えるその土地周辺の構造物の立地状況、および被ばくする住民の生活行動に依存する (IAEA, 1996)。内部被ばくは人工放射性物質で汚染された食品、水の摂食、および人工放射性物質の吸引などによって引き起こされる。内部線量の大きさは、摂取した放射性物質の種類・化学形・量と摂取した者の新陳代謝に関連する年齢・性別等に依存する (ICRP, 1995)。

事故時には放射能濃度、空間  $\gamma$  線線量率などの測定値を基に実効線量が評価される。その実効線量と健康影響についての知見を基に、人体への放射線による影響を合理的に達成可能な限り低く抑えるために、次に述べる防護対策が実施される。

## 1.2.2. 防護対策

放射線防護の第一の目的は、放射線被ばくの原因となる有益な行為を不等に制限することなく、人を防護するための適切な標準を与えることである（ICRP, 1977）。ICRP（International Commission on Radiological Protection）は、線量を確定的影響の閾値よりも低く保つことによってその発生を防止し、確率的影響の誘発を減らすためのあらゆる合理的な手段を確実に取することを求めている（ICRP, 1991）。事故時の防護措置（介入）を実施するために、次の介入の原則がある。

- ・介入の正当化：講ずる防護措置は損害よりも便益の方が大きくななければならない。
- ・介入の最適化：正味の便益が最大となるように防護措置を調整しなければならない。

外部線量を低減させる措置として、屋内退避、避難、除染などが挙げられる。原子力施設から放射性物質が放出される前に、屋内退避または避難をすることができれば、早期死亡リスクを極端に減らせることができると報告されている（NRC, 1990）。それ故、これらの介入は被ばくがもたらされる前に迅速に行う必要がある。放射性プルームが対象地点に到達するかどうかを予測するためのシステムとして、緊急時環境線量情報予測システム（System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information; SPEEDI）がある。SPEEDIは、緊急時に周辺環境中の放射性物質の大気中濃度および線量などの環境への影響を、放出源情報、気象条件、および地形データを基に迅速に予測するシステムである（茅野ら, 1984）。除染は放射性物質あるいは放射性物質が付着したものを除去する、または遮蔽物で覆うなどをして、空間 $\gamma$ 線線量率を下げるための措置であり、特に $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ などの長半減期（>1年）核種の沈着量が比較的多い地域で行われる。除染することにより、長半減期核種から将来受ける外部線量を低減することが可能である。福島原発事故後では、空間 $\gamma$ 線線量率が $0.23\ \mu\text{Gy}\ \text{h}^{-1}$ 以上の地域を中心に除染が行われている（厚生労働省, 2013）。

内部線量を低減させる措置として、安定ヨウ素剤の配布、食物摂取制限などが挙げられる。安定ヨウ素剤の服用は、原子力施設から放射性物質が放出され、放射性プルームが通過する2h前に行われるとヨウ素による被ばく低減効果が最も高く、時間が経つにつれその低減効果が減少すると報告されている（Johnson, 1981）。そのため、安定ヨウ素剤の服用が遅れると、便益（ここでは被ばく低減効果）が小さくなり、不要な被ばくの増加につながる。食物摂取制限は国の食生活、年齢、および性別を考慮して各食物の基準値が決定され、基準値を超えた食物が市場に流通しないようにするための措置である。チェルノブイリ事故では放射性ヨウ素に汚染された食物とミルクの摂取によって小児の甲状腺がんが増加したと考えられている（Jacob et al., 1999）。

上記に示した防護措置を講ずるための基準（指標）を設けることによって、迅速に防護措置を実施できるようになり、不要な被ばくを最小限に抑え、確定的影響の防止と確率的影響

の低減が可能となる。緊急事態対応の目的を満足するために、意思決定に必要な実用上の判断レベルの基礎となる包括的判断基準が IAEA (International Atomic Energy Agency) によって提示されている (IAEA, 2011)。包括的判断基準は予測可能な線量または既に受けた線量によって設定されている。しかし、これらの値は緊急時に測定できない量であるため、緊急時に包括的判断基準を直接使うことはできない。そこで、運用上の判断基準 (①現場での状態を基にした観察値/指示値、②施設の異常状態を基にした緊急時活動レベル、③環境における測定を基にした運用上の介入レベル) が防護措置の必要性を決定するための指標として直接的に用いられることが提案されている (木村ら, 2010; Mckenna et al., 2013)。防護措置の実施を判断するために使用される環境における測定値の例として、空間  $\gamma$  線線量率と人工放射性核種の大気中放射能濃度および地面上放射能濃度などが挙げられる。

### 1.3. 放射性物質のモニタリング

前節で述べた防護対策を迅速かつ最適に講ずるために、日本では原子力施設周辺で空間  $\gamma$  線線量率、環境試料中 (土壌、大気、農畜水産食品、水など) の放射能濃度のモニタリングが常時行われている。運用上の判断基準の一つである「現場での状態を基にした観察値/指示値」は緊急時モニタリングの値が使用される。本節では、事故時以外で常時行われている「平常時モニタリング」と事故が発生した際に行われる「緊急時モニタリング」の目的・役割、測定項目、および測定値への変動または妨害要因を示す。

#### 1.3.1. 平常時モニタリング

環境放射線モニタリング指針 (原子力安全委員会, 2008) によると、平常時モニタリングの目的は、①原子力施設に起因する環境中の放射性物質または放射線による住民等の線量が、1年間の線量限度を下回っていることを確認し、その結果を住民等に公表すること、②原子力施設からの予期しない放射性物質や放射線の放出の早期検出、③周辺環境における放射性物質の蓄積状況の迅速かつ的確な把握である。そのために、空間  $\gamma$  線線量率の連続測定、積算線量の測定、および環境試料中の放射能濃度の測定が行われる。特に空間  $\gamma$  線線量率の連続測定は、原子力施設周辺に設置されている MS で常時実施されている。近年では空間  $\gamma$  線線量率のみならず、NaI(Tl)シンチレーション検出器 (以降、NaI 検出器と表記) で測定された波高分布も常時保存されるようになった。

平常時に測定される空間  $\gamma$  線線量率およびその変動幅は時間および場所毎に異なる

(Mizutani et al., 2011)。日本での平常時の空間 $\gamma$ 線線量率は約20~80 nGy h<sup>-1</sup>である(湊, 2006)。平常時の空間 $\gamma$ 線線量率を主に構成しているのは、自然放射性核種から放出される $\gamma$ 線、宇宙線、および大気核実験由来の人工放射性降下物(主に<sup>137</sup>Cs)から放出される $\gamma$ 線である。図1-4に示すように、<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Csの年間積算沈着量は1980年以降、チェルノブイリ事故時の1986年を除いて徐々に減少している。大気圏核実験由来の放射性核種による空間 $\gamma$ 線線量率は約0.5 nGy h<sup>-1</sup>であり、その寄与は平常時の空間 $\gamma$ 線線量率の1%程度である(Beck et al., 1972)。そのため、全国で観測される空間 $\gamma$ 線線量率の大部分が自然放射性核種からの $\gamma$ 線と宇宙線由来である。平常時の空間 $\gamma$ 線線量率に主に寄与する自然放射性核種を以下に示す。

1. 土壌および建築物に含まれる自然放射性核種 (<sup>40</sup>K、ウラン系列、トリウム系列等)
2. 大気中ラドン壊変生成物 (主に<sup>214</sup>Pbと<sup>214</sup>Bi)
3. 降雨によるラドン壊変生成物 (主に<sup>214</sup>Pbと<sup>214</sup>Bi) の湿性沈着

大気中ラドン壊変生成物濃度の変動および降雨によるラドン壊変生成物の湿性沈着は後述(1.3.1.2.目と1.3.1.3.目)のとおり、空間 $\gamma$ 線線量率の変動要因である。空間 $\gamma$ 線線量率を変動させる他の要因は降雨時または降雪時の水・雪による地上 $\gamma$ 線の遮蔽、大気圏内核実験フォールアウトの地表面沈着、測定地点付近の医療・産業用の放射線源の使用、原子力施設からの短期的な人工放射性核種の放出などである(Greenfield et al., 2003; Hiemstra et al., 2010)。次に上記で示した平常時の空間 $\gamma$ 線線量率に寄与する自然放射性核種について述べる。

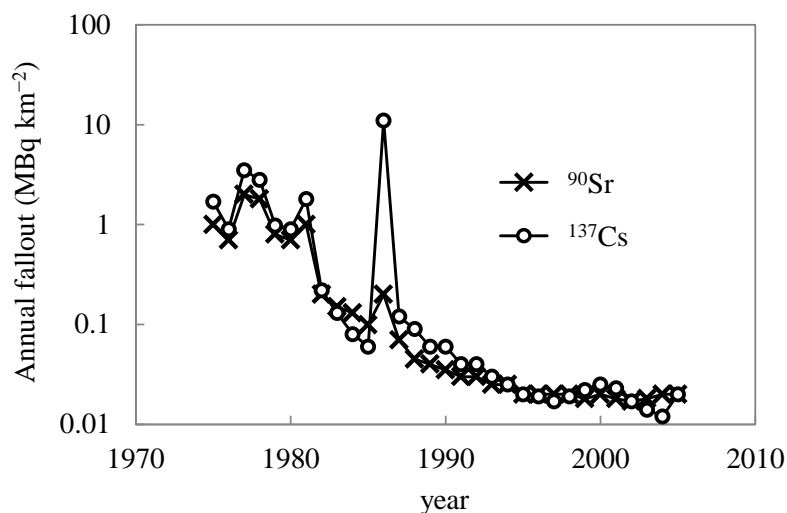


図1-4 日本での降下物中の<sup>90</sup>Srと<sup>137</sup>Cs年平均濃度(環境放射線モニタリング指針(2008)を基に作成)

### 1.3.1.1 土壌および建築物に含まれる自然放射性核種

図 1-5 に空間  $\gamma$  線線量率および自然放射性核種の土壌中放射能濃度の分布を示す。図 1-5 に示されるように、自然放射性核種の土壌中濃度が高い美濃地方と山陽地方で空間  $\gamma$  線線量率が高く、濃度が低い関東地方と東北地方で空間  $\gamma$  線線量率が低い。自然放射性核種の土壌中濃度はその土地の空間  $\gamma$  線線量率のベースラインを成していることが示されている。しかし同地域であっても、建築物に含まれる自然放射性核種からの空間  $\gamma$  線線量率への寄与、自然放射性核種の土壌中濃度の差異および建築物による  $\gamma$  線の遮蔽および散乱によって、MS 毎に観測される空間  $\gamma$  線線量率は異なると報告されている (Hirouchi et al., 2014a)。

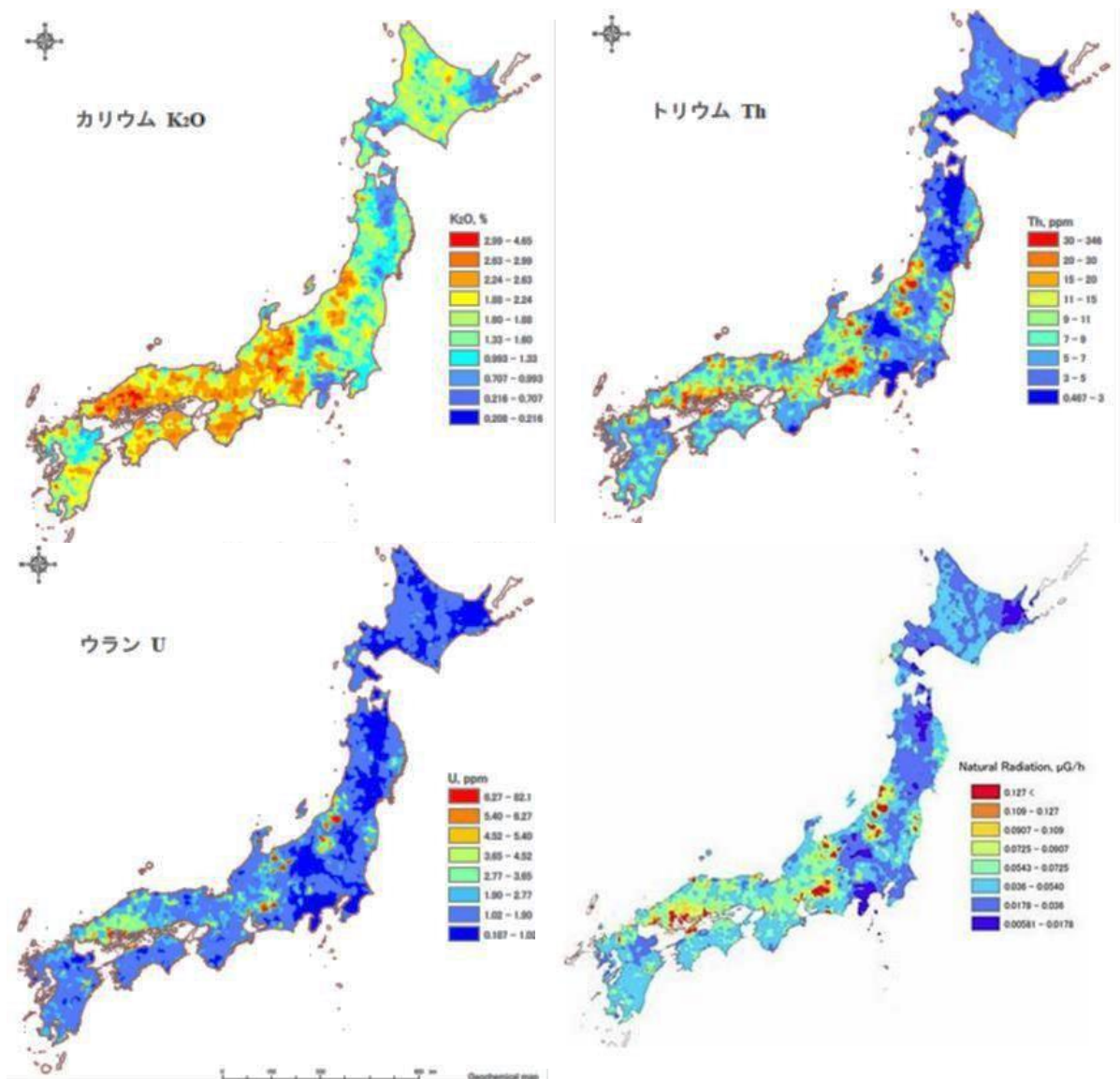


図 1-5 土壌中濃度分布 (左上:カリウム、右上:トリウム、左下:ウラン) と線量率分布 (右下)  
(引用: 日本の地球化学図, 2004; 掲載承諾済み)

### 1.3.1.2 大気中ラドン壊変生成物

図 1-6 に示されるように、空間  $\gamma$  線線量率は大気中  $^{222}\text{Rn}$ （以下、ラドン）濃度の変動とともに変動し、大気中ラドン濃度と空間  $\gamma$  線線量率に正の相関がみられる（Shimo et al., 2007）。これは大気中のラドンが壊変し、大気中に浮遊しているエアロゾルに付着したラドン壊変生成物（主に  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$ ）からの  $\gamma$  線を検出しているためである。大気中ラドン濃度の変動による空間  $\gamma$  線線量率の変動は数  $\text{nGy h}^{-1}$  程度であり、次に挙げる降雨時の線量率変動と比べて、比較的変動幅が小さい。

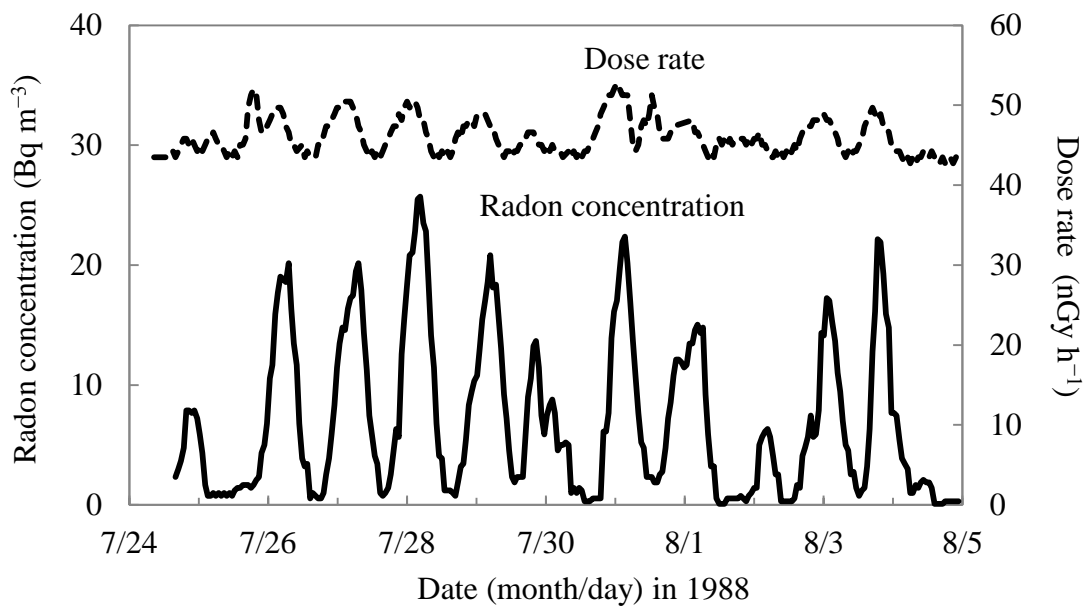


図 1-6 福井県おおい町名田庄 MS で測定された大気中  $^{222}\text{Rn}$  濃度と空間  $\gamma$  線線量率の時間変化 (Shimo et al. (2007)を基に作成)

### 1.3.1.3 降雨によるラドン壊変生成物の湿性沈着

降雨によるラドン壊変生成物の湿性沈着は、平常時の空間  $\gamma$  線線量率の主な変動要因である（Kataoka et al., 1982; Fujinami et al., 1985; Yamanishi et al., 2003; Yoshida et al., 2004）。この時の線量率上昇幅は  $100 \text{ nGy h}^{-1}$  以上になることもある（Inomata et al., 2007）。

図 1-7 にラドン壊変生成物の湿性沈着による空間  $\gamma$  線線量率上昇機構の模式図を示す。ラドンは地中または海水中の  $^{226}\text{Ra}$  の壊変によって常時生成され、一部が大気中へと放出される。ラドンは希ガスであるため、化学的に安定であり、大気中を輸送する過程で化学反応による変質、湿性・乾性沈着などによって大気中から除去される量が極めて少ない。さらにラドン

の半減期は約 3.8 d であるため、MS 上空には遠方から輸送されてきたラドンと付近の地表面から散逸し、鉛直輸送と混合によって上空へと輸送されたラドンが存在する。このラドンが壊変して生成された短寿命のラドン壊変生成物（主に  $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、および  $^{214}\text{Bi}$ ）は雨滴に取り込まれやすい。ラドン壊変生成物は雨滴が生成される過程で取り込まれるレインアウトと雨滴が降下する過程で取り込まれるウォッシュアウトにより、雨滴に付着し地表面に降下する。降雨によって地表面に沈着した  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  から放出される  $\gamma$  線によって、一時的に空間  $\gamma$  線線量率が上昇する。空間  $\gamma$  線線量率上昇に寄与するラドン壊変生成物の半減期、放射線、および主に放出する  $\gamma$  線のエネルギーとその放出率を表 1-1 に示す。半減期が 30 min 程度であるため、降雨時の空間  $\gamma$  線線量率は概ね降雨後 3 h で元の無降雨時の値に戻る。

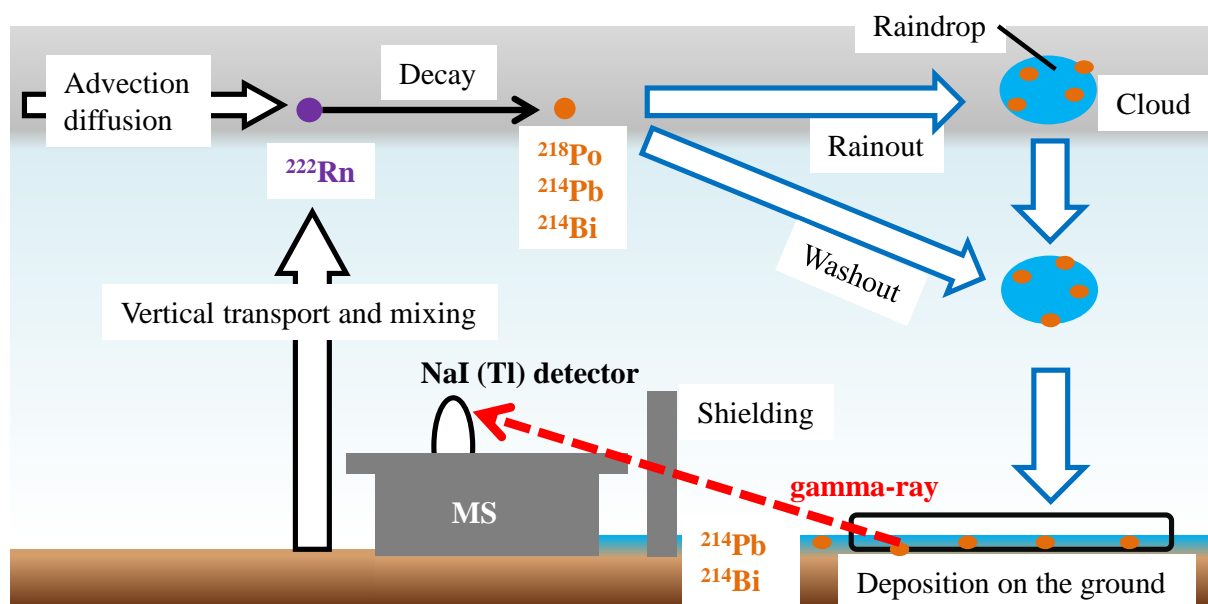


図 1-7 ラドン壊変生成物の湿性沈着による空間  $\gamma$  線線量率上昇過程の模式図

表 1-1 ラドン壊変生成物の半減期、放出放射線、および主な  $\gamma$  線エネルギーとその放出率

Radionuclide	Half-life (min)	Radiation	Gamma-ray energy in keV (emission probability)
$^{218}\text{Po}$	3.1	$\alpha$	-
$^{214}\text{Pb}$	26.8	$\beta^-$ , $\gamma$	295 (18%), 352 (34%)
$^{214}\text{Bi}$	19.9	$\beta^-$ , $\gamma$	609 (43%), 1120 (14%), 1764 (15%)



### 1.3.2. 緊急時モニタリング

緊急時のモニタリングの目的は、①避難、飲食物摂取制限などの放射線防護対策に必要な情報の収集と、②原子力施設に起因する放射性物質または放射線の周辺住民への影響を評価することである（環境モニタリング指針, 2008）。原子力施設が大気中に人工放射性物質を放出する事故が発生した際、放出された人工放射性物質は大気中で移流拡散し、広い範囲に沈着を引き起こす可能性がある。それ故、緊急時には環境モニタリング指針に従い、空間  $\gamma$  線線量率および環境試料中の放射性物質の濃度などが平常時モニタリングの測定場所のみならず、広い範囲にわたって測定される。福島原発事故後も、福島第一原発周辺のみならず、関東および甲信越地方等の広い範囲で、環境試料中の放射性物質の濃度の測定および車・航空機を用いた日本全土にわたる空間  $\gamma$  線線量率の測定（津田ら, 2013; Saito, 2014）などが行われた。

緊急時モニタリングは事故の段階により目的が異なるため、要求される測定精度と測定地点が異なる。事故初期時では、防護対策に関する判断を迅速に行うため、精度は重要視されない。そのため、放射能濃度の測定地点は決められた場所の数点でしか行われたい。福島原発事故では、特に放射性物質の放出量が多かった事故発生から 1 週間までの放射能濃度および線量率の測定値の数は他の期間と比べて少なかった。これは、地震と津波により測定体制の整備に時間がかかったことと、試料の測定に長い時間がかかることが複合したためであった。事故初期以降では、周辺住民を対象とした実際の線量の評価と環境中に放出された放射性物質の状況の把握に必要な情報収集が行われ、正確性が要求される。そのため、放射能濃度の測定地点は初期時に比べて広い範囲で行われ、測定は連続的に行われる。

防護対策を策定する上で、事故時に受けた内部・外部線量と将来受ける内部・外部線量を評価する必要がある。外部線量を評価するために、事故発生時には空間  $\gamma$  線線量率の測定、土壌中または地表面上の放射能濃度の測定、および住民の生活習慣に関する聞き込みが行われる。空間  $\gamma$  線線量率の測定値は、測定した瞬間または 10 min の平均空間  $\gamma$  線線量率がよく使われる。測定値はその土地周辺の空間  $\gamma$  線線量率の代表値として扱えるものの、空間  $\gamma$  線線量率が将来どのように変化するかを評価することはできない。つまり、測定された値が放射性プルームの通過によるものなのか、あるいは沈着した放射性物質によるものなのかを判断できなく、線量率が下がるのはいつなのかを特定できないため、外部線量を下げることの措置を実施すべきかを判断することができないことを意味している。一方、核種毎の土壌中または地表面上放射能濃度の測定値は、その核種が物理学的半減期のみによって減衰すると仮定することにより、その土地周辺で将来受けると予想される外部線量の評価に使用することができる。

内部線量を評価するために、食品中の放射能濃度測定、大気中放射能濃度の測定、および

体内中放射能濃度の直接測定が行われる。特に  $^{131}\text{I}$  の大気中放射能濃度は甲状腺被ばくを評価するために重要な核種の一つである。これら測定された濃度を基に、将来に渡って受ける内部線量（預託線量）が計算され、内部被ばくの評価に使われる。

事故初期段階の防護対策に関する判断は実測値だけでなく、SPEEDI 等を活用した住民の線量予測データを基に行われることになっていた。福島原発事故時でも、SPEEDI によって予測線量が計算され、この予測結果により、放射性プルームの大まかな輸送経路を予測することができた。しかし、予測線量の絶対値を把握するためには、放出源情報と緊急時モニタリング情報が必要であり、福島原発事故時ではこれらのデータを迅速に得ることができなかった。

福島原発事故時、広く展開されている MS で NaI(Tl)検出器を用いて空間  $\gamma$  線線量率と波高分布（以降、NaI 波高分布と表記）が測定されていた（ただし、福島第一原発周辺の大半の MS は津波および地震の影響で機能していなかった）。空間  $\gamma$  線線量率および NaI 波高分布の測定は環境試料中の放射性物質の濃度の測定に比べて容易であり、リアルタイムで空間  $\gamma$  線線量率および NaI 波高分布の時間変動を測定することが可能である。図 1-8 に緊急時の MS を含む測定地点での空間  $\gamma$  線線量率上昇および NaI 波高分布変化の過程を示す。緊急時に付与される  $\gamma$  線の起源を以下に示す。

1. 原子力施設内の放射性核種から放出される  $\gamma$  線（直達  $\gamma$  線およびスカイシャイン）。空間  $\gamma$  線線量率への寄与は線源と検出器間の距離の 2 乗に反比例するため、原子力施設から離れた場所での測定はこの  $\gamma$  線による影響をほとんど受けない。
2. 原子力施設から放出された放射性プルーム中の放射性物質から放出される  $\gamma$  線（クラウドシャイン）。放射性プルームが MS 近傍に存在する場合、この  $\gamma$  線による寄与が上昇する。
3. 地表面に沈着した放射性物質から放出される  $\gamma$  線（グランドシャイン）。長半減期の放射性核種が地表面へ沈着した場合、放射性核種は流出または除去されない限り、その場に長期間存在する。そのため、長期にわたって空間  $\gamma$  線線量率上昇を引き起こす。

上記以外にも、一度地面に沈着した放射性物質が風等により、再度大気中に浮遊し、浮遊物が MS 付近を通過することにより、 $\gamma$  線の寄与が上昇する可能性がある。さらに、放射性物質は地表面のみならず、測定点周辺に存在する樹木または葉に付着し、そこから放出される  $\gamma$  線を検出することも考えられる。

上記の 2 と 3 より、緊急時に測定された空間  $\gamma$  線線量率および NaI 波高分布は周囲の放射能濃度に依存しており、周囲の放射能濃度の情報を潜在的に有している。さらにこれらの測定値がリアルタイムで得られることを利用し、MS または緊急時に出勤する可搬型モニタリングポストの空間  $\gamma$  線線量率および NaI 波高分布を用いて、プルーム中および地面上の人工放射性核種濃度の推定が可能となれば、以下の点で有用である。

- ・ 土壌試料採取または In-situ 測定が行われておらず、空間  $\gamma$  線線量率または NaI 波高分布のみが測定された場所での人工放射性核種の地上と大気中放射能濃度の補完
- ・ 放射性プルームの大まかな輸送経路の把握
- ・ 公衆の被ばくの評価
- ・ 防護措置の実施を判断するために必要な情報（放射能濃度およびその核種組成比）の提供

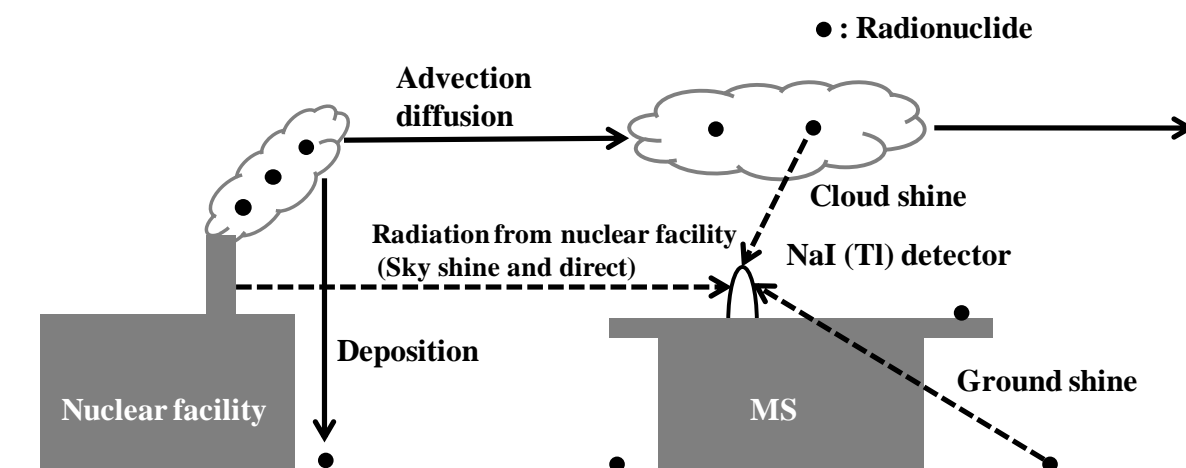


図 1-8 緊急時の空間  $\gamma$  線線量率上昇過程の模式図

#### 1.4. MS で測定される空間 $\gamma$ 線線量率および NaI 波高分布

前述のとおり、防護措置の必要性を判断するために、その土地周辺の空間  $\gamma$  線線量率、大気中放射能濃度、および地上放射能濃度が測定される。MS ではそのうちの一つである空間  $\gamma$  線線量率および NaI 波高分布が測定されている。しかしほとんどの場合、MS 測定値（空間  $\gamma$  線線量率と NaI 波高分布）は放射性物質が大気中に一様に存在または地表面一様に沈着した理想的な条件で測定されたものではなく、以下に示す局所的な状況を反映した測定値として得られる。

1. 大気中に浮遊する放射性物質、地表面に沈着した放射性物質、および樹木または建物壁面に付着した放射性物質の立体的な分布からの寄与
2. MS 周囲の建物および土地の起伏等による  $\gamma$  線の減弱
3. 沈着した放射性物質の流出・浸透による不均一な分布

本研究では、流出とは屋根上に沈着した放射性物質が雨水とともに屋根下に移動すること、または地表面に沈着した放射性物質が雨水とともに側溝または系外（ $\gamma$  線の影響範囲外）に移動することを意味し、浸透とは地表面に沈着した放射性物質が、地表面下（鉛直方向）にし

みこむことを意味する。項目 1～3 の局所的な状況を反映した結果は福島原発事故後に行われた歩行サーベイでも見られた。例として、芳原ら（2011）は軒下または側溝などの雨水が集中・蓄積しやすい場所では空間  $\gamma$  線線量率が高い傾向を示すことを報告した。MS 測定値は必ずしもその地域を代表するものではないため、MS 毎に樹木の有無、遮蔽環境、および周辺の流出・浸透特性を予め把握することは、防護措置の必要性を判断するために各 MS で得られた測定値をそのまま使用すべきかを判断する上で重要である。

1.3.2.節で述べたように MS 測定値は、原子力施設から放出された人工放射性核種の放射能濃度の情報を潜在的に有している。MS 測定値の一つである波高分布から人工放射性核種の放射能濃度を推定するために、現在までにいくつかの推定手法が考案された。平山ら(2013a, 2013b, 2014)、Minato（2012）は光子輸送計算モデルを用いて、仮想的な線源場での波高分布の計算を行い、その計算された波高分布と測定された波高分布を比較することによって、放射能濃度の推定を行った。放射性物質が広範囲に一樣に沈着した状況下での濃度推定値は In-situ 測定値とよく一致しており、これらの手法の妥当性が確認された。しかし、今までの研究では、検出器周囲の構造物を再現せずに、大気中または地表面上に一樣に放射性物質が分布する仮定の下で行われた。上述したように測定値は局所的な状況を反映したものであり、今までの研究で仮定した放射性物質の分布と相異なる。放射性物質の浸透、建物の存在などは検出器で測定される  $\gamma$  線に減弱と散乱の効果を付与し、無限平面仮定で推定した濃度の不確かさの要因となりうる。そのため、MS 測定値から大気中および地面上の人工放射性核種の濃度を推定するためには、MS 周囲の樹木の有無、幾何学的構造（建物、土地の起伏など）、および周辺の流出・浸透特性を予め把握する必要がある。

現段階では、1.3.2.項で述べた  $\gamma$  線の起源であるクラウドシャインとグランドシャインを分離して測定できず、大気中と地表面上に放射性物質が存在する場合の放射能濃度推定法が確立されていない。これを解決するために、大気中核種と地表面核種からの  $\gamma$  線を区別する検出器の開発（Casanovas et al., 2014）、および測定された波高分布から大気中核種と地表面上核種からの寄与を分離した推定法の開発が行われている（平山ら, 2014）。しかし、平山ら(2014)は光電ピークを明瞭に分別できる  $^{131}\text{I}$  のみの放射能濃度の推定であり、他の人工放射性核種（ $^{132}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  など）の濃度推定は行われていない。

## 1.5 本研究の目的、意義

本研究では、MS 測定値から緊急時に必要な情報を得る手法を開発することを目的とする。  
具体的には MS 測定値を用いた

① 核種同定手法と放射能濃度の推定手法の開発

② 大気中および地面上放射能濃度の同時推定手法の開発

を目的とする。1.4節で述べたように、現在までの研究では放射能濃度を推定する際に、放射性物質が無限平面上に一様に存在する仮定で行われており、これは実環境と相異している。

そこで本研究では上記の目的を達成するために、

- ・ MS 測定値を用いた周辺の流出・浸透特性の把握可能性の検討
- ・ MS 周辺の幾何学的構造および放射性物質の浸透・流出の考慮が放射能濃度推定値に与える影響の大きさの検討

を行った。

MS 毎に幾何学的構造および浸透・流出特性を把握し、評価するには多大な労力と時間を要するため、事故が発生してから把握するのは現実的ではない。そこで平常時の測定値からの幾何学的構造および浸透・流出特性の把握を試み、予めそれらを準備しておけるかを検討する。事故時に原子力施設から放出され、地表面に沈着した核種による  $\gamma$  線の増加と平常時の降雨による  $\gamma$  線の増加は地表面に沈着した放射性核種から放出される  $\gamma$  線が起因している点で同様である。沈着した放射性核種から放出された  $\gamma$  線の物質中の輸送過程が  $\gamma$  線のエネルギーに依存していることを除けば、事故時と平常時で幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽に違いはない。そのため、平常時の測定値を用いて幾何学的構造の考慮の有無による放射能濃度推定値への影響を予め把握可能と期待される。さらに雨水とともに放射性物質が流出または浸透する巨視的な挙動は水分移動が最大の決定要因であるため、核種に強く依存しないことが期待される。それ故、ラドン壊変生成物を対象とした解析によって、MS 周辺の流出・浸透特性を予め把握できる可能性がある。以上より本研究では、平常時の MS 測定値を用いて、流出・浸透特性の把握可能性を検討し、さらに MS 周辺の幾何学的構造および放射性物質の浸透・流出の考慮の有無が放射能濃度推定値に与える影響の大きさを検討する。

NaI 波高分布を用いて人工放射性核種の放射能濃度を核種別に推定する際の問題点として以下の項目が挙げられる。

(a) NaI 検出器のエネルギー分解能が低い

(b) 事故時に放出される放射性核種の種類が多い

(c) 放射性物質の存在位置（大気中、地面上、または樹木等）が不明

本研究では、これらの問題点を解決するために、事故時に NaI 波高分布から推定すべき核種を選定し、さらに大気中と地面上放射能濃度を同時に推定する手法を考案する。本手法を福

島原発事故後に静岡県内と茨城県内の MS で測定された NaI 波高分布に適用し、濃度の実測値と推定値を比較することで、本手法の妥当性を検証する。

本研究の目的が達成されることにより、原子力施設周辺に広く展開され、リアルタイムで得られる MS 測定値を用いて、防護対策を実施するために必要な情報をより迅速かつ多く提供でき、さらに線量評価および汚染状況の評価に有用な情報も提供できる。原子力防災の観点のみならず、大気輸送現象の解明におけるラドンのトレーサー利用可能性の向上も期待される。無降雨時の線量率変動および降雨時の空間  $\gamma$  線線量率上昇値の主因である  $^{222}\text{Rn}$  は化学的に安定であり、半減期が 3.8 d である。これらの特徴により、現在までに大気汚染物質などの大気輸送の動態解明にラドンをトレーサーとした長距離輸送モデルが開発されてきた (Hirao et al., 2008)。しかし、高高度の大気中ラドン濃度の実測は高コストかつ困難であるため、大気輸送モデルの高高度に対する性能の評価は不十分である (Minato, 2007)。MS 測定値から地表面上ラドン壊変生成物濃度、降水中ラドン壊変生成物濃度、および高高度の大気中ラドン濃度を推定することが可能となれば、全国の MS 測定値から上空のラドン輸送の情報を抽出できる可能性がある。

## 1.6 本論文の構成

第 1 章では、放射性物質の放出を伴う原子力事故時に評価すべき項目と放射性物質のモニタリングの現状を述べ、MS 測定値を用いて放射能濃度を推定する際の問題点を示した上で、本研究の目的と意義を述べた。

第 2 章では、ラドン壊変生成物濃度および人工放射性核種の放射能濃度推定に用いる MS 測定値を MS 間で比較することで、MS 測定値の MS 間の差異が周辺環境の差異に起因するのかを検証する。

第 3 章では、平常時に得られた MS 測定値を用いたラドン壊変生成物 ( $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$ ) の地面上放射能濃度推定手法を開発する。開発した手法を静岡県の MS 測定値に適用し、緊急時に必要な MS 周辺の流出・浸透特性を、平常時の測定値の解析から推定可能であるかを検討する。さらに幾何学的構造および放射性物質の流出・浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを評価する。

第 4 章では、福島原発事故後に測定された NaI 波高分布を用いて、人工放射性核種の放射能濃度を核種別に推定する手法の開発について論じる。開発した手法を静岡県と茨城県の MS で測定された NaI 波高分布に適用し、本手法の妥当性を検証する。

第 5 章では、本論文の各章から得られた結論をまとめ、今後の課題を示す。

## 第2章 モニタリングステーション測定値の変動要因の解析

### 2.1. 諸言

第1章で述べたように、MS測定値は周囲の自然放射性核種の土壤中放射能濃度および周囲の幾何学的構造などの局所的な影響を受ける。特に、降雨時と事故時のように放射性核種が新たに付与される場合、MS周囲の幾何学的構造の有無および流出・浸透特性によって、MS測定値の上昇幅はMS間で異なる。それ故、MS測定値から放射能濃度を推定する際、MS周囲の特徴（幾何学的構造による $\gamma$ 線の遮蔽および流出・浸透特性）を予め評価しておかなければ、放射能濃度推定値に不確かさが生じる。

本章ではラドン壊変生成物と人工放射性核種の放射能濃度推定に用いるMS測定値のMS間の差異が周辺環境の差異に起因するかを検証する。そのために以下の3ケースでMS測定値をMS間で比較する。①無降雨時、②降雨時、③福島原発事故の影響を受けた後。本章での解析結果を受け、次章以降で記述する空間 $\gamma$ 線線量率計算モデルおよび光子輸送計算モデルに組み込むべき因子を検討する。

### 2.2. 解析方法

#### 2.2.1. 定義

以下に本論文で扱う降雨事象と福島原発事故の影響を受けた後の事象に関する用語の定義を示す。

##### ・線量率

本論文では特に断らない限り、「線量率」はNaI波高分布にG関数（堤ら, 1991）を用いて計算された「空気吸収線量率（空間 $\gamma$ 線線量率）」を意味する。本研究では線量率の単位をnGy h<sup>-1</sup>に統一して使用する。

##### ・降雨イベント

降雨時の線量率上昇に起因する<sup>214</sup>Pbと<sup>214</sup>Biの半減期はそれぞれ26.8 min、19.9 minである。地表面に沈着した<sup>214</sup>Pbと<sup>214</sup>Biが99%以上壊変するまでに要する時間は約3hであるため、3h以上中断しない一連の降雨を一つの「降雨イベント」として扱う。一方、降雨時および降雨終了後3hを除いた時間を「無降雨時」とした（図2-1）。本研究では、感雨計の指示値に

より降雨の有無を判断した。感雨計の測定値が得られない地点では、雨量計による降水強度の指示値により降雨の有無を判断した。本論文で「降雨時」および「無降雨時」は特に断らない限り、福島原発事故以前を指す。

### ・線量率上昇値

図 2-2 に示すように、静岡県内の MS では無降雨時の月平均線量率は冬期に高く、夏期に低い傾向（両者の差は約  $2 \text{ nGy h}^{-1}$ ）を示す。これは土壌含水率（冬季に乾燥）および大気中ラドン壊変生成物濃度（冬季に高濃度）の変動によるものと考えられる。そのため、降雨による線量率の上昇値を評価する際、直前の線量率をバックグラウンドとして用いることが適切である。

そこで、降雨が始まる前 1 d の平均線量率を対応する降雨イベントの「バックグラウンド線量率」とした。この時、着目する降雨イベント以前の降雨時および降雨終了後 3 h を除いた。降雨イベント中の線量率とバックグラウンド線量率との差を「線量率上昇値」（図 2-1）とした。

福島原発事故後の線量率上昇値の定義も降雨時と同様に、解析期間中の線量率とバックグラウンド線量率との差であるとした。ここでのバックグラウンド線量率は福島原発事故の影響を受ける前の降雨時および降雨終了後 3 h を除いた線量率の平均値とした。平均する期間は放射性プルームが通過する前 1 d 以上とした。

### ・放射性プルームの通過期間

放射性プルームの通過による線量率上昇値から放射性プルームの通過期間を決定した。本研究では前 10 min の線量率と比べて、無降雨時の線量率の標準偏差（約  $1 \text{ nGy h}^{-1}$ ）を有意に超えた ( $> 10 \text{ nGy h}^{-1}$ ) 時を「プルーム通過開始時」とした。線量率の見かけの半減期が 1 d を超えた時を「プルーム通過終了時」とした。

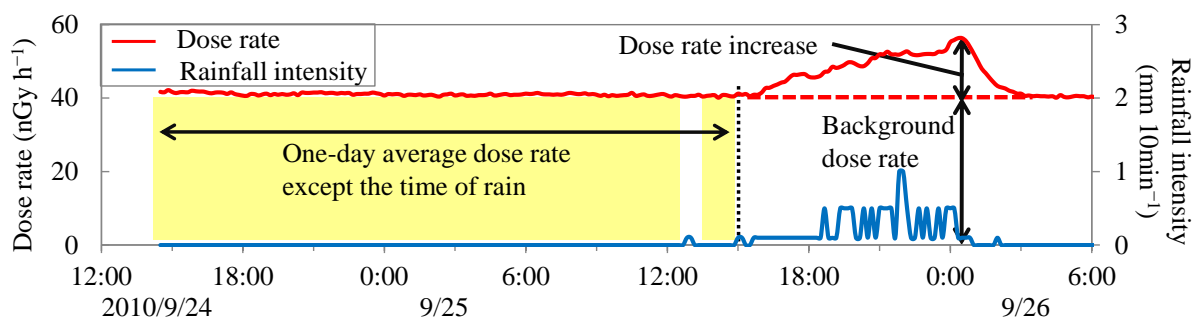


図 2-1 バックグラウンド線量率と線量率上昇値の定義



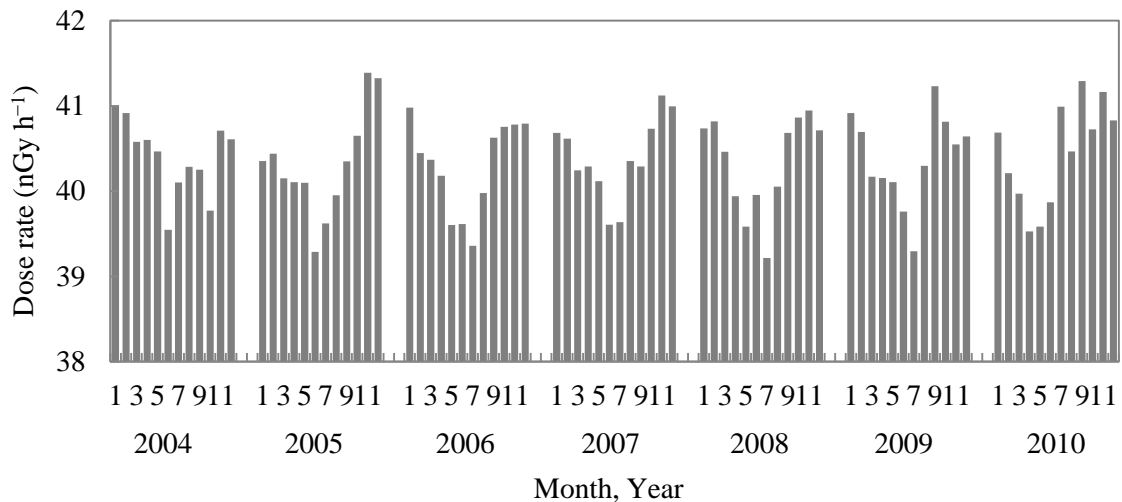


図 2-2 白砂 MS での無降雨時の線量率月平均値

## 2.2.2. 解析対象

本研究で対象とした測定値は静岡県内の 14 地点と茨城県内の 11 地点（図 2-3）で県が測定した線量率および NaI 波高分布である。線量率と NaI 波高分布は両者とも NaI 検出器によって測定された 10 min 値である。静岡県内の MS では、同場所で雨量計（分解能：0.5 mm）と感雨計（測定範囲：雨滴直径 0.5 mm 以上）を用いて測定された降水量も降雨イベントを定義するために用いた。静岡県の MS 測定値<sup>1</sup>の解析期間は、2004 年から 2011 年であり、無降雨時、降雨時、および福島原発事故後の MS 測定値をそれぞれ MS 間で比較した。静岡県内の対象とした MS は図 2-4 に示すように、高さ 3 m の建屋の上から 70 cm の位置に NaI 検出器が設置されている構造であった。

茨城県の MS 測定値の解析期間は、2011 年 3 月 14 日から同月 31 日であり、福島原発事故後の MS 測定値を MS 間で比較した。茨城県内の対象とした MS は、高さ 2.6 m の建屋の上から 90 cm の位置に NaI 検出器が設置されている構造であった。

各 MS の建屋の大きさ、検出器の高さより高い建物または土地（高さ 4 m 以上）の有無、および周囲の地表面形態の概要を表 2-1 にまとめた。表 2-1 から分かるように、本研究で対象とした MS の周囲の環境は MS 毎に異なっており、周囲が砂地で覆われている MS、周囲に高

<sup>1</sup> 2011 年 3 月までの線量率公表値は NaI 検出器で測定できない宇宙線の寄与として、一定値 27.8 nGy h<sup>-1</sup> が加えられていた。本研究では自然・人工放射性核種による線量率変動を対象としているため、宇宙線の寄与を含めないこととし、線量率公表値から 27.8 nGy h<sup>-1</sup> を差し引いた。静岡県内の 6 地点の MS（監視センター、大東、小笠、新神子、草笛、浜岡北小学校）で、2011 年 3 月までの線量率公表値は過大評価されていた（鈴木, 2011）。監視センター、新神子、および草笛で 13 %、大東で 10 %、小笠と浜岡北小学校で 7 % の過大評価である。本研究では過大評価された線量率公表値を補正して解析を行った。

さ 4 m 以上の建物が存在する MS などが存在した。第 1 章で述べたとおり、MS 間で流出・浸透特性の違いおよび構造物と土地の起伏による遮蔽効果の違いが測定値に現れることが期待でき、MS 測定値の MS 間の差異が周辺環境の差異に起因するかを検証することができる。



図 2-3 各県の解析対象とした MS の位置 (左 : 静岡県、右 : 茨城県)。緑線は市町村の境界線。

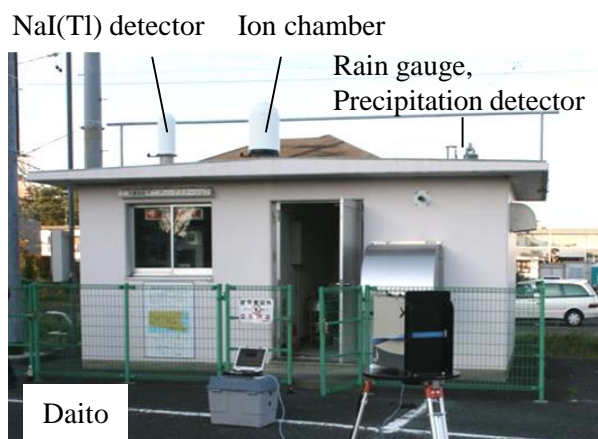


図 2-4 大東 MS の外観図

表 2-1 各 MS の屋根の大きさ、高い建物または土地の有無、および周辺の主な地表面形態。静岡県内の MS では 2004～2010 年の各 MS の無降雨時の線量率平均値と降雨時の線量率上昇値の平均値を同時に示す。線量率上昇値は各降雨イベントの最大値を用いた。

MS (Shizuoka)	MS roof size (m)	Buildings (Height > 4 m)	Surface type	Average dose rate (no rain) nGy h <sup>-1</sup>	Average dose rate increase due to rain nGy h <sup>-1</sup>
Sakurasanku	6.6×4.6	×	Asphalt	37.2 ± 0.8	11.4
Shinkango	6.8×4.8	×	Sand	37.6 ± 0.7	12.6
Center	4.7×3.6	○	Asphalt	38.2 ± 0.7	11.2
Daito	6.8×4.8	○	Asphalt	38.5 ± 0.8	11.2
Kusabue	6.8×4.8	○	Asphalt	38.8 ± 0.7	11.3
Hamaoka Elem. Sch.	6.8×4.8	×	Gravel	39.6 ± 0.7	12.2
Hiraba	4.0×3.0	×	Gravel	39.8 ± 0.7	12.3
Shirasuna	4.0×3.0	○ (Mound)	Sand	40.4 ± 0.7	12.8
Jitogata Elem. Sch.	6.8×4.8	×	Gravel	40.6 ± 0.7	10.5
Uenohara	4.0×3.0	×	Gravel	44.0 ± 0.8	12.6
Shirowa Elem. Sch.	6.8×4.8	×	Asphalt	44.5 ± 0.8	10.7
Sakuragaike	4.0×3.0	○	Asphalt	44.8 ± 0.7	11.8
Ogasa	6.8×4.8	○	Gravel	45.7 ± 0.8	10.0
Nakamachi	5.0×4.5	○	Asphalt	53.1 ± 0.7	9.2

MS (Ibaraki)	MS roof size (m)	Buildings (Height > 4 m)	Surface type
Kuji	4.4×3.3	○	Gravel
Isobe	4.4×3.6	○ (Mound)	Gravel
Ishigami	3.6×3.6	×	Gravel
Toyooka	3.6×3.6	×	Gravel
Oshinobe	3.6×3.6	×	Gravel
Muramatsu	3.6×3.6	×	Asphalt
Ajigaura	4.2×3.2	○	Gravel
Ohba	4.6×3.6	○	Asphalt
Ohnuki	3.6×3.4	×	Gravel
Hiroura	3.5×3.5	×	Gravel
Tsukuriya	3.5×3.5	×	Gravel

## 2.3. 解析結果

### 2.3.1. 無降雨時と降雨時の線量率

静岡県内の対象とした MS で 2004～2010 年に測定された無降雨時の線量率平均値と降雨による線量率上昇値の平均値を表 2-1 に示す。降雨による線量率上昇値は各降雨イベントの最大値を用いた。

無降雨時の線量率平均値の最大値は中町の  $53.1 \text{ nGy h}^{-1}$ 、最小値は佐倉三区の  $37.2 \text{ nGy h}^{-1}$  であり、観測点により約  $15 \text{ nGy h}^{-1}$  の差があった。MS 周辺に高いコンクリートの建物がある MS（中町と小笠）で線量率が高い傾向が見られた。次節で土壌中放射能濃度の測定値を用いて、無降雨時の線量率の MS 間の差異を検討する。

降雨時の線量率上昇値の平均値の最大値は白砂の  $12.8 \text{ nGy h}^{-1}$ 、最小値は中町の  $9.2 \text{ nGy h}^{-1}$  であり、観測地点により約  $3 \text{ nGy h}^{-1}$  の差があった。MS 周辺の土壌がアスファルト、コンクリートなどで舗装されている、または MS 周囲に高い建物がある MS（中町、小笠、監視センター、および佐倉三区）で線量率上昇値が小さく、MS 周辺の土壌が砂あるいは砂利であり、MS 周囲に建物が無く、開けた MS（白砂、新神子、および平場）で線量率上昇値が大きい傾向が見られた。線量率上昇値の MS 間の違いの要因として、幾何学的構造による遮蔽厚さの違い、および地表面形態毎の流出・浸透特性の違いによる放射性物質の残存割合または土壌による遮蔽厚さの違いが考えられる。また、MS 周囲に葉の付いた高い樹木で覆われている MS（上ノ原）で線量率上昇値が大きい傾向が見られた。

### 2.3.2. 無降雨時と降雨時の NaI 波高分布

静岡県内の対象とした MS で無降雨時と降雨時に測定された NaI 波高分布の例を図 2-5 に示す。図 2-6 に 2009 年の全エネルギー範囲（0～3000 keV）の計数率平均値と線量率平均値の比較を示す。計数率上昇値と線量率上昇値は 2009 年の各降雨イベントの最大計数率上昇値と最大線量率上昇値を用いた。

図 2-5 には、 $^{40}\text{K}$  (1461 keV)、 $^{208}\text{Tl}$  (2615 keV)、 $^{228}\text{Ac}$  (911 keV)、 $^{214}\text{Pb}$  (352 keV)、および  $^{214}\text{Bi}$  (609、1120、1765、および 2204 keV)の光電ピークが見られ、無降雨時の NaI 波高分布は主にこれらの核種によって構成されることが示されている。また、各光電ピークの半値幅は MS 間でわずかに異なっていることが確認された。これは、実測の波高分布をモデル計算で再現するためには、MS 毎にエネルギー分解能校正を行う必要があることを示している。降雨時には、湿性沈着に起因した  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピーク部の計数率の上昇が見られ、 $^{208}\text{Tl}$  の光電ピーク部の計数率の上昇は見られなかった。 $^{40}\text{K}$  の光電ピーク部に見られる計数率の上昇は、 $^{214}\text{Bi}$  から放出される高エネルギー $\gamma$ 線（1765 keV、2204 keV など）の散乱によるものである。図 2-6 より、無降雨時の全エネルギー範囲の計数率の MS 間の大小関係は無降雨時の線量率の MS 間の大小関係と同じ傾向を示し、降雨時の計数率上昇値の MS 間の大小関係は線量率上昇値の MS 間の大小関係と同じ傾向を示した。この結果を受け、以降では、線量率と波高分布の計数率の変動を示す場合、線量率のみを記述する。

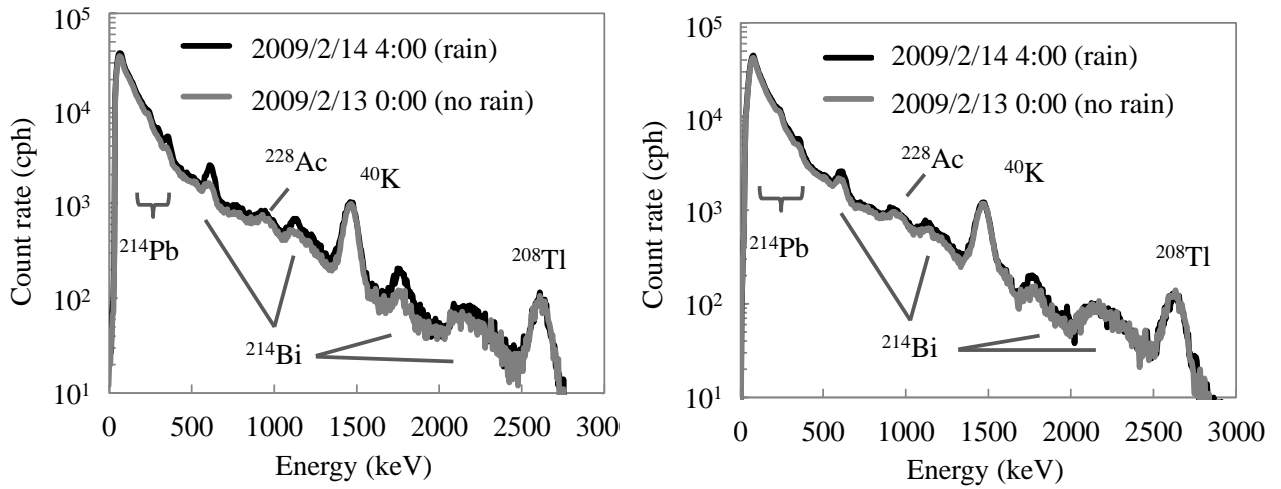


図 2-5 無降雨時と降雨時の波高分布実測値の例（左：白砂、右：中町）

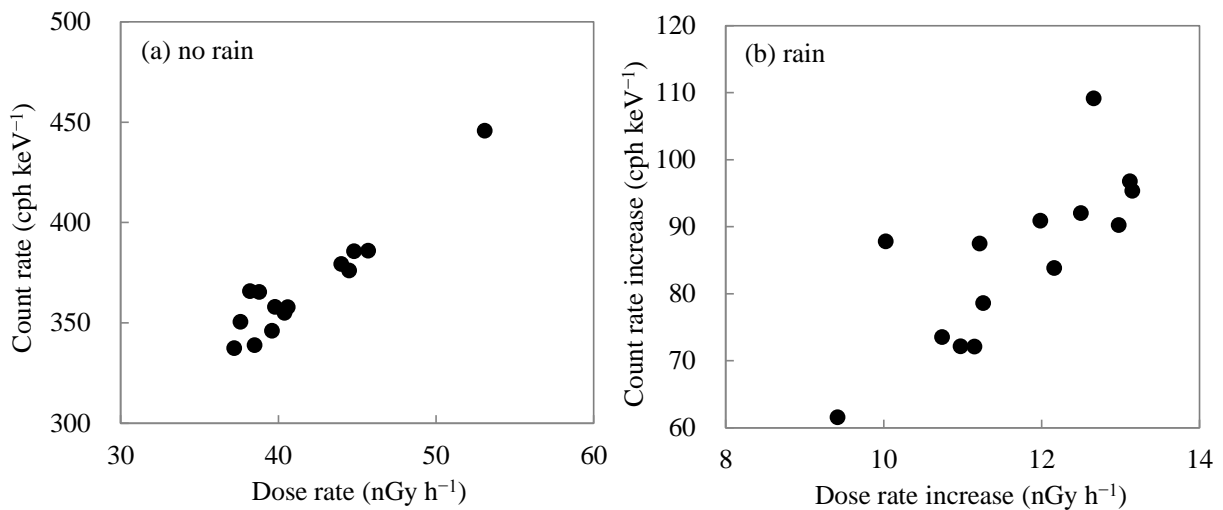


図 2-6 (a) 2009 年の無降雨時の線量率平均値と 0~3000 keV の計数率平均値の比較。(b) 2009 年の降雨時の線量率上昇値と計数率上昇値の平均値の比較。上昇値は各降雨イベントの最大値を用いた。

### 2.3.3. 福島原発事故後の線量率

福島原発事故後の測定値も降雨時と同様に周辺環境の MS 間の差異に起因するのかを検討するために、福島原発事故後に静岡県内の MS で測定された値を MS 間で比較した。静岡県内の MS で測定された 2011 年 3 月の線量率上昇値の時間変化を図 2-7 に示す。静岡県内の MS で図 2-7 に示されていない MS は更新中であり、測定値が得られなかった。静岡県内の MS では 3 月 22 日に線量率上昇値の鋭いピークが見られ、3 月 22 日 19 時以降で降雨時を除いた期間では、線量率上昇値は指数関数的に減少する傾向が見られた。3 月 23 日以降の線量率上昇値の見かけの半減期は約 5 d とラドン壊変生成物の半減期 ( $^{214}\text{Pb}$  は 26.8 min、 $^{214}\text{Bi}$  は 19.9 min) に比べて有意に長かった。大気拡散計算モデルを用いた計算では、22 日に御前崎市上空を放射性プルームが通過したことが確認された (Terada et al., 2012)。見かけの半減期と大気拡散計算モデルの結果から、22 日に沈着した核種はラドン壊変生成物に加え、福島原発事故起源の人工放射性核種が含まれていたと言える。

図 2-7 に示されるように、線量率上昇値は MS 毎に異なっている。ピーク時の上昇値は白砂および平場で約  $45 \text{ nGy h}^{-1}$  と高く、中町で約  $28 \text{ nGy h}^{-1}$  と低く、上昇幅の MS 間の大小は降雨時の上昇幅の MS 間の大小関係に類似していた。但し、他の MS から約 7 km 離れた大東での福島原発事故後の線量率上昇幅は中町と同程度であり、降雨時の傾向と一致しなかった。この要因の一つとして、次に述べるプルームと MS の位置関係の違いによる大気中放射能濃度の違いが挙げられる。

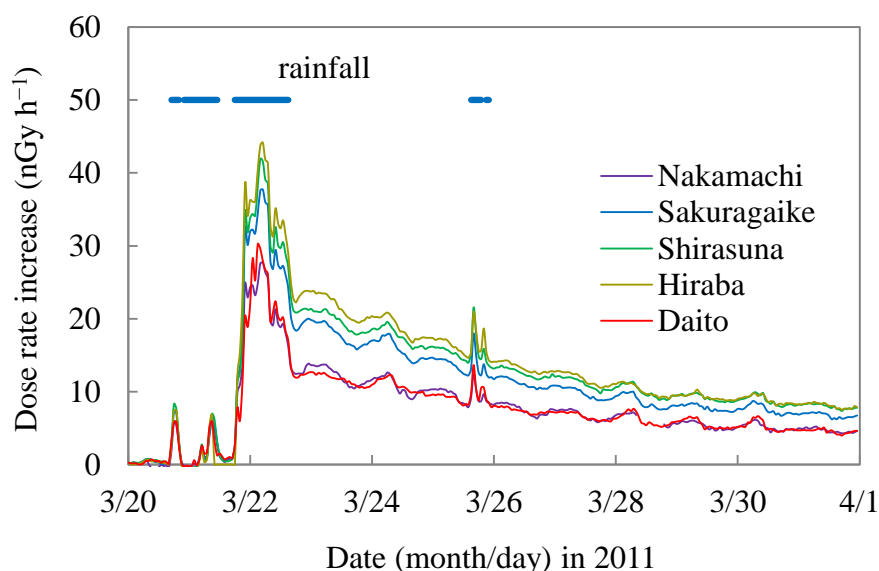


図 2-7 静岡県内の MS での線量率上昇値の時間変化。図の上部に示している実線は降雨の有無を表している ( $>0.5 \text{ mm h}^{-1}$ )。

茨城県内の MS で測定された 2011 年 3 月の線量率上昇値の時間変化を図 2-8 に示す。茨城県内の MS では 3 月 15、16、および 20~23 日に線量率上昇値の鋭いピークが見られ、それらの期間に茨城県上空を放射性プルームが通過したことが大気拡散計算モデルを用いた計算で確認された (Terada et al., 2012)。それ以外の期間では指数関数的な減少が見られ、見かけの半減期は約 5 d とラドン壊変生成物の半減期に比べて有意に長かった。見かけの半減期と大気拡散計算モデルの結果から、この線量率上昇は人工放射性核種の沈着によって引き起こされたと判断できる。

表 2-2 に各 MS のプルーム通過期間を、図 2-9 に各プルーム通過期間中の最大線量率上昇値を示す。3 月 22 と 23 日のプルーム通過時の線量率上昇値は直前の線量率上昇値と比べて小さかったため、プルーム通過終了時刻を求めることができなかった。本研究では表 2-2 に示したプルームを対象に、第 4 章で述べる NaI 波高分布から推定した大気中放射能濃度と実測値を比較する。

プルーム通過期間と最大線量率上昇値は MS 毎に異なっていた。例として、表 2-2 に示されたプルーム No. 1 は北から南の MS (北から、久慈、村松、大貫、造谷) へとプルーム通過開始時間が遅くなっている。プルーム No. 2 は阿字ヶ浦 MS よりも北側の MS (久慈、磯部、石神、豊岡、押延、村松) でプルーム通過が確認できた一方で、南側の MS (阿字ヶ浦、大場、大貫、広浦、造谷) でプルーム通過を確認できなかった。以上のことから、同じ時刻の MS 測定値から推定したプルーム中の放射能濃度を MS 間で比較したとしても、プルームと MS の位置関係の違いにより、推定値は MS 間で大きく異なる可能性を示している。

図 2-9 に示されるように、同じプルームを対象とした最大線量率上昇値の MS 間の差はファクター 2 (1/2~2 倍) 以上になる場合が存在した。平常時の降雨時では、線量率上昇値の大きさを決定する上空の大気中ラドン濃度と降水量は広い範囲で比較的一様であるため、線量率上昇値の MS 間の差がファクター 2 以上になることは少ないと考えられる。福島原発事故後に見られた線量率上昇値の MS 間の差は MS 周囲の幾何学的構造の違いによる遮蔽効果の違いに加えて、プルームと MS の位置関係およびプルーム通過時に沈着した放射性物質の量の差異に起因する可能性が挙げられる。通常、プルーム中の放射能濃度は中心に近いほど高く、端で小さい。そのため、プルームの端が上空を通過した MS では、プルームの中心が上空を通過した MS よりも線量率上昇値は低い。放射性物質の沈着量はその土地の風速および降水強度の他に、樹木、葉、建築物の壁面などの付着先の幾何学的分布にも依存する。今回対象とした MS の大半は周囲に建物が少なく、樹木が多く存在していた。事故当時に葉がどの程度存在していたかは不明であり、人工放射性物質による線量率上昇値の MS 間の差異が樹木 (葉、枝) の存在量の違いによるものなのかを今回の解析だけでは定量的に判断できない。

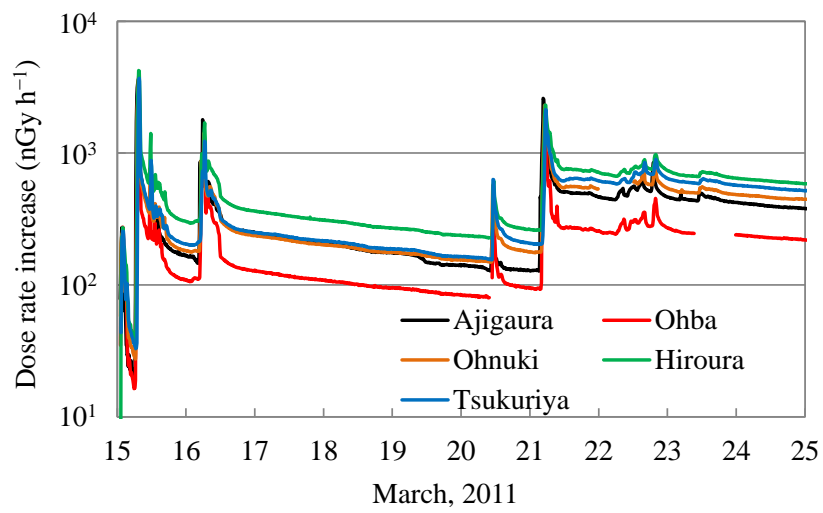
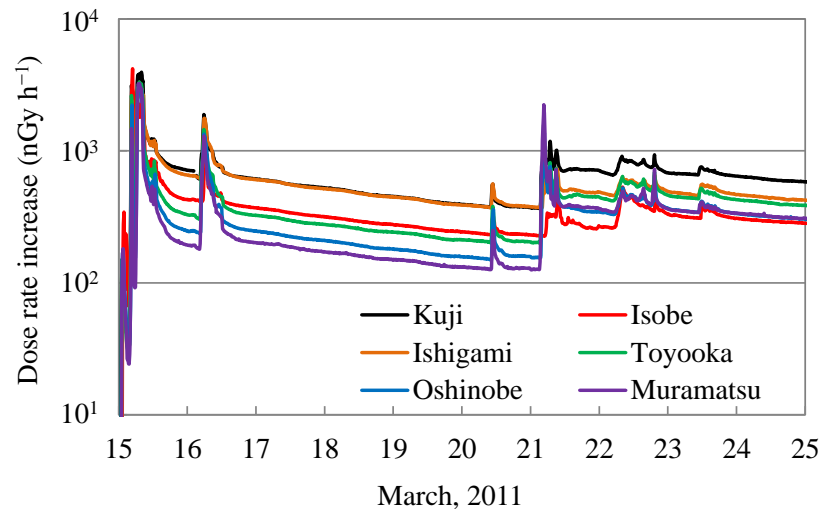


図 2-8 茨城県内の MS での線量率上昇値の時間変化



表 2-2 各プルームのプルーム通過開始時刻と終了時刻

Plume No.	Kuji		Isobe		Ishigami		Toyooka		Oshinobe		Muramatsu	
	Start	End	Start	End	Start	End	Start	End	Start	End	Start	End
1	3/15 0:50	3/15 2:20	3/15 1:20	3/15 2:00	3/15 1:00	3/15 2:50	3/15 0:50	3/15 2:40	3/15 1:00	3/15 2:40	3/15 1:00	3/15 2:50
2	3/15 4:00	3/15 5:20	3/15 3:50	3/15 5:40	3/15 4:20	3/15 5:20	3/15 4:00	3/15 5:10	3/15 4:30	3/15 5:10	3/15 4:20	3/15 5:20
3	3/15 6:00	3/15 8:50	3/15 6:00	3/15 9:10	3/15 6:00	3/15 9:40	3/15 6:00	3/15 9:30	3/15 6:10	3/15 9:40	3/15 6:00	3/15 9:30
4	3/15 11:20	3/15 11:50	3/15 11:20	3/15 11:50	3/15 11:30	3/15 11:50	3/15 11:30	3/15 11:50	3/15 11:40	3/15 12:00	3/15 11:40	3/15 12:00
5	3/15 12:20	3/15 13:00	3/15 12:10	3/15 13:10	3/15 12:30	3/15 12:30	3/15 12:20	3/15 13:00	3/15 12:30	3/15 13:10	3/15 12:30	3/15 12:40
6												
7	3/16 4:40	3/16 7:00	3/16 5:40	3/16 7:10	3/16 4:50	3/16 7:00	3/16 4:40	3/16 7:00	3/16 4:50	3/16 7:00	3/16 4:40	3/16 6:50
8			3/16 7:50	3/16 8:20								
9	3/20 10:30	3/20 11:30	3/20 10:30	3/20 11:30	3/20 10:30	3/20 11:50	3/20 10:30	3/20 11:40	3/20 10:30	3/20 12:00	3/20 10:30	3/20 11:50
10	3/21 3:30	3/21 5:10	3/21 5:30	3/21 6:00	3/21 4:20	3/21 5:30	3/21 3:30	3/21 5:50	3/21 3:40	3/21 5:50	3/21 3:40	3/21 5:50
11	3/21 6:40	3/21 7:40			3/21 6:50	3/21 8:10	3/21 6:40	3/21 7:20	3/21 6:40	3/21 7:50	3/21 6:30	3/21 7:10
12	3/21 8:30	3/21 9:50	3/21 9:10	3/21 10:20	3/21 8:50	3/21 10:20	3/21 8:30	3/21 9:40	3/21 8:50	3/21 9:50	3/21 8:40	3/21 9:40
13	3/22 6:30		3/22 6:20		3/22 6:40		3/22 6:30		3/22 6:50		3/22 6:40	
14	3/23 10:50		3/23 11:40		3/23 11:00		3/23 11:00		3/23 11:00		3/23 11:00	

Plume No.	Ajigaura		Ohba		Ohnuki		Hiroura		Tsukuriya	
	Start	End	Start	End	Start	End	Start	End	Start	End
1	3/15 1:00	3/15 2:50	3/15 1:10	3/15 2:40	3/15 1:10	3/15 2:20	3/15 1:20	3/15 2:50	3/15 1:20	3/15 3:00
2										
3	3/15 6:20	3/15 9:40	3/15 6:30	3/15 8:30	3/15 6:40	3/15 9:10	3/15 6:40	3/15 8:20	3/15 7:00	3/15 8:40
4	3/15 12:10	3/15 12:10	3/15 11:20	3/15 11:50	3/15 11:20	3/15 12:00	3/15 11:20	3/15 12:10	3/15 11:30	3/15 12:20
5	3/15 13:40	3/15 14:10	3/15 13:00	3/15 13:40	3/15 13:00	3/15 13:40	3/15 13:10	3/15 13:40	3/15 13:20	3/15 13:50
6			3/15 14:30	3/15 14:40	3/15 14:30	3/15 14:40	3/15 14:20	3/15 14:20	3/15 14:40	3/15 15:10
7	3/16 4:40	3/16 6:40	3/16 5:00	3/16 7:50	3/16 4:50	3/16 7:10	3/16 5:00	3/16 7:40	3/16 5:10	3/16 7:10
8	3/16 7:30	3/16 8:20							3/16 8:10	3/16 9:00
9	3/20 10:30	3/20 12:00	3/20 10:50	3/20 12:00	3/20 10:50	3/20 12:00	3/20 11:00	3/20 12:40	3/20 11:00	3/20 12:30
10	3/21 3:40	3/21 5:50	3/21 4:00	3/21 6:20	3/21 4:10	3/21 6:10	3/21 4:10	3/21 7:10	3/21 4:30	3/21 7:40
11	3/21 6:30	3/21 7:30	3/21 6:50	3/21 7:20						
12	3/21 9:00	3/21 9:40	3/21 9:10	3/21 9:50			3/21 9:30	3/21 9:50		
13	3/22 6:50		3/22 6:40		-		3/22 7:20		3/22 7:30	
14	3/23 11:00		-		3/23 11:10		3/23 11:30		3/23 11:30	

空白はプルーム通過の開始または終了を確認できなかった期間。-は欠測期間。

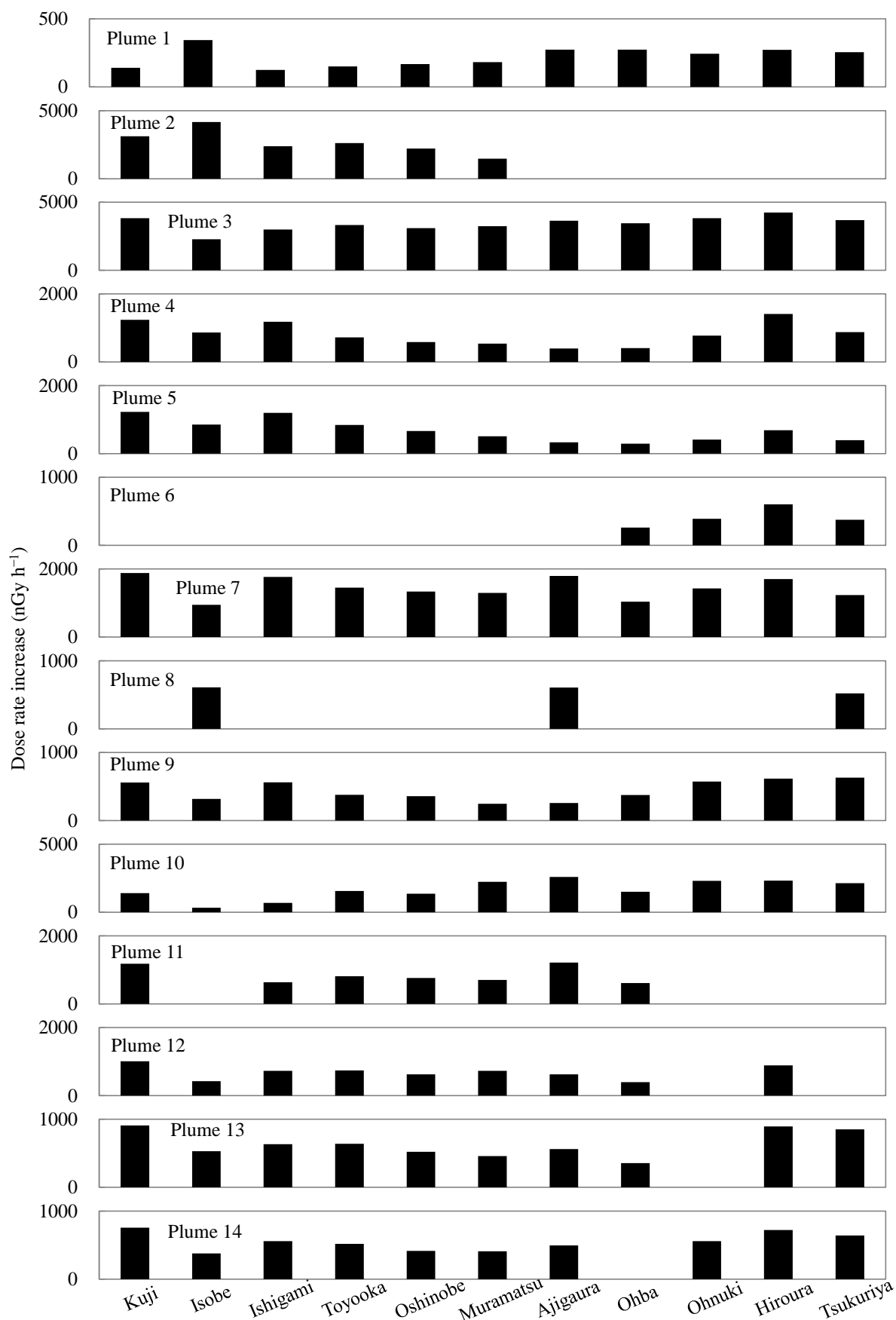


図 2-9 表 2-2 に示した各プルームの最大線量率上昇値

### 2.3.4. 福島原発事故後の NaI 波高分布

図 2-10, 11 に静岡県内および茨城県内の MS で福島原発事故の影響を受ける前と後に観測された NaI 波高分布の例を示す。静岡県内および茨城県内の MS で自然放射性核種に加え、福島原発事故起源と考えられる人工放射性核種による光電ピークが複数見られた。茨城県内の MS で確認できた人工放射性核種は、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{133}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{132}\text{Te}$ 、および  $^{133}\text{Xe}$  であった。一方、静岡県内の MS では  $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、および  $^{132}\text{Te}$  を確認できたが、 $^{133}\text{I}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、および  $^{133}\text{Xe}$  の光電ピーク部の有意な計数率の上昇は見られなかった。静岡県内の MS では、上記に示した人工放射性核種以外に、降雨時には  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピークの有意な計数率の上昇が確認された。

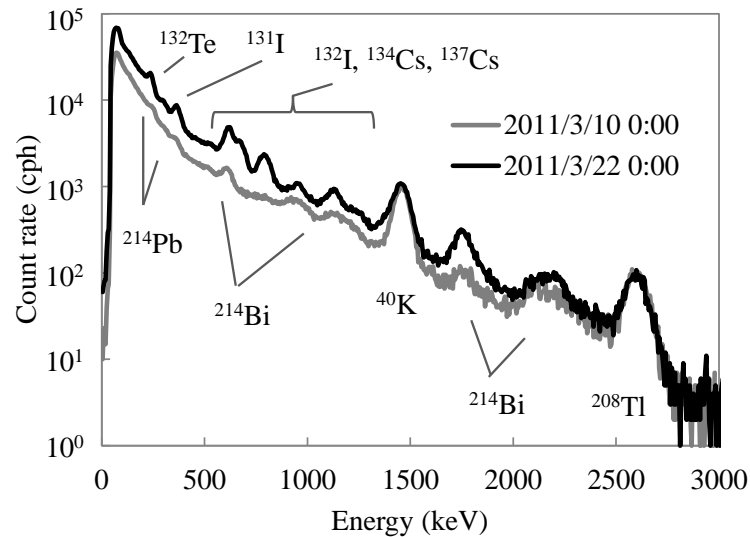


図 2-10 白砂（静岡県）での福島原発事故後の波高分布実測値の例

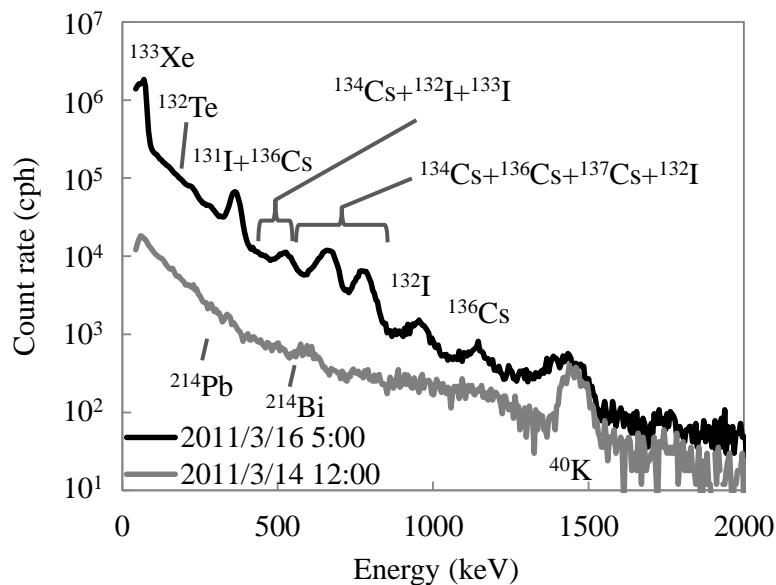


図 2-11 村松（茨城県）での福島原発事故後の波高分布実測値の例

## 2.4. 無降雨時の線量率および NaI 波高分布の MS 間の差異の検討

### 2.4.1. 土壌中放射能濃度の測定方法

前節で示した無降雨時の線量率の MS 間の差異を検討するために、MS 周辺の土壌中放射能濃度の測定を行った。土壌中放射能濃度は可搬型 HPGe 半導体検出器 (CANBERRA 製, Falcon 5000™) を用いた In-situ 測定により得た。Beck et al. (1972) が開発した HASL 解析法 (以下、HASL 法) に準拠した解析ソフトを用いて、核種が放出する  $\gamma$  線のエネルギー毎の計数率から土壌中放射能濃度を計算した。HASL 法を適用する条件は、検出器の実効中心が地表面から 1 m の位置に設置され、地表面が平らな無限平面であることである。

本測定では HASL 法の適用条件に一致させるために、HPGe 検出器の実効中心を地表面から 1 m の位置にし、検出部を下向きに設置した (図 2-12)。地面はなるべく水平な場所を選択し、HPGe 検出器は結晶の底面と地表面が平行になるように設置した。各 MS の測定場所は MS 屋根上およびそれぞれの地表面形態上 (砂地、砂利、アスファルト、およびコンクリート) とした。測定値をその地表面形態の代表値として扱うために、測定場所は周囲に建物等の遮蔽物がなく、地表面形態が変わらない場所、または建物が密集しているところでは、建物の間または屋根の中央のように、なるべく検出器を中心に周囲の環境が対称性のある場所とした。測定は 2010 年 11 月～2011 年 2 月に行い、各測定時間は 30 min とした。

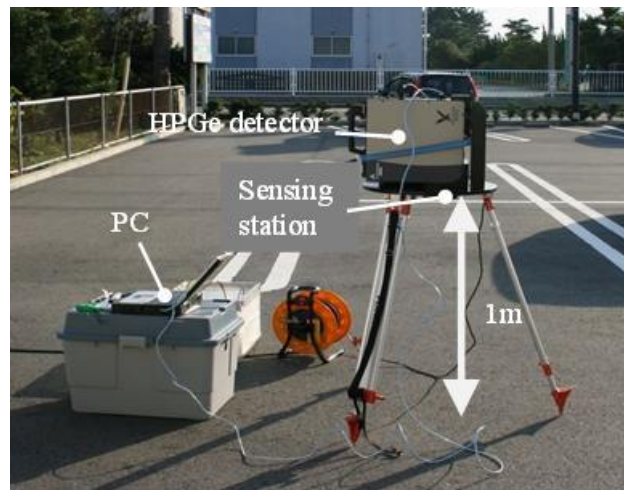


図 2-12 In-situ 測定風景

## 2.4.2. 測定結果

静岡県内の対象とした MS で In-situ 測定を行い、各地表面形態の土壤中放射能濃度を得た。In-situ 測定により得られた  $\gamma$  線スペクトルの例を図 2-13 に、測定結果の例を表 2-3 に、各 MS の各地表面形態の土壤中放射能濃度の測定結果を表 2-4 に示す。今回の計測時間で得られた各核種の ROI 中の正味の計数は約 100 であり、統計誤差は約 10% である。土壤中放射能濃度は正味のカウントを用いて計算されるため、約 10% の不確かさが生じる。表 2-3 に示されるように U 系列と Th 系列の土壤中放射能濃度は核種が放出する  $\gamma$  線毎に計算される。表 2-4 に示した U 系列と Th 系列の放射能濃度は、各系列で核種が放出する  $\gamma$  線毎の計数率による重み付き平均値である。

表 2-4 より、土壤中放射能濃度の MS 間の差は  $^{40}\text{K}$  では最大  $400 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、U 系列と Th 系列では最大  $20 \text{ Bq kg}^{-1}$  であった。MS 屋根中の放射能濃度の MS 間の差は  $^{40}\text{K}$  では最大  $60 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、U 系列と Th 系列では最大  $10 \text{ Bq kg}^{-1}$  であり、土壤中放射能濃度の差に比べて小さかった。

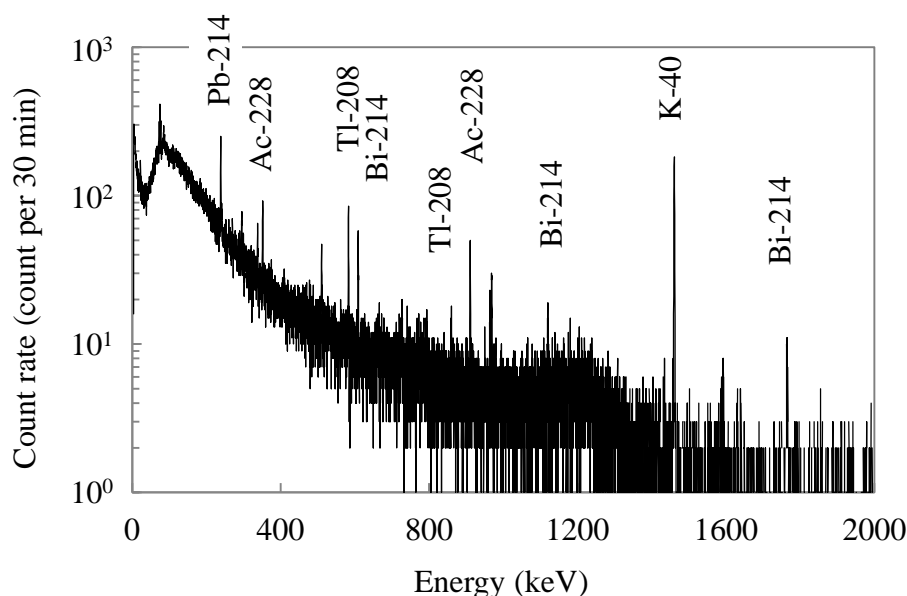


図 2-13 HPGe 検出器によって測定された  $\gamma$  線スペクトルの例 (MS : 草笛、地表面形態 : 裸地面、2011 年 2 月 3 日測定)

表 2-3 In-situ 測定結果の例 (MS : 草笛、地表面形態 : 裸地面、2011 年 2 月 3 日測定)

Nuclide	Decay series	Peak channel (ch)	Energy (keV)	Count rate (cpm)	Activity concentration (Bq kg <sup>-1</sup> )
<sup>214</sup> Pb	<sup>238</sup> U	1179.67	295.17	5.42	15.39
<sup>228</sup> Ac	<sup>232</sup> Th	1352.22	338.30	4.84	23.47
<sup>214</sup> Pb	<sup>238</sup> U	1407.06	351.90	7.39	11.45
<sup>228</sup> Ac	<sup>232</sup> Th	1850.74	463.00	1.42	19.83
<sup>208</sup> Tl	<sup>232</sup> Th	2331.28	583.17	8.20	6.66
<sup>214</sup> Bi	<sup>238</sup> U	2435.45	609.32	7.05	10.98
<sup>137</sup> Cs	Artificial	2645.31	661.64	3.28	9.22×10 <sup>7</sup> *
<sup>228</sup> Ac	<sup>232</sup> Th	3642.94	911.18	5.74	17.47
<sup>214</sup> Bi	<sup>238</sup> U	4478.04	1120.28	2.34	13.80
<sup>40</sup> K	<sup>40</sup> K	5842.65	1460.73	53.04	475.00
<sup>214</sup> Bi	<sup>238</sup> U	7069.41	1764.51	1.71	11.29

\* 単位は Bq km<sup>-2</sup>

表 2-4 各 MS、各地表面形態の土壤中放射能濃度

MS	Surface type	Activity concentration (Bq kg <sup>-1</sup> )			MS	Surface type	Activity concentration (Bq kg <sup>-1</sup> )		
		<sup>40</sup> K	Th-series	U-series			<sup>40</sup> K	Th-series	U-series
Center	roof	333	22.1	19.1	Ogasa	roof	374	24.0	19.9
	asphalt	371	26.6	18.6		gravel	427	26.9	19.8
	soil	453	21.0	15.3					
Daito	roof	330	20.4	19.6	Sakuragaikie	roof	389	22.1	17.7
	asphalt	171	8.2	8.2		asphalt	512	26.7	21.5
	soil	418	31.4	17.9		soil	501	23.6	15.2
Hamaokakita Elem. Sch.	roof	336	24.1	18.1	Sakurasanku	roof	358	19.7	18.1
	gravel	335	15.5	24.0		asphalt	196	9.5	7.2
	soil	448	23.6	18.2		soil	498	22.9	14.8
Hiraba	ground	475	22.1	18.2					
	roof	344	18.3	17.2	Shinkango	roof	355	24.2	22.0
	gravel	469	26.7	20.7		sand	446	22.7	19.3
soil	479	32.0	19.0	gravel		479	26.9	22.6	
Jitogata Elem. Sch.	roof	376	21.5	17.7	Shirasuna	roof	371	19.9	16.6
	soil	423	28.5	17.2		gravel	559	23.9	19.0
	gravel	320	11.8	19.0		sand	464	19.6	11.6
Kusabue	roof	357	19.7	19.8	Shirowa Elem. Sch.	roof	393	24.7	19.3
	gravel	490	28.0	21.5		asphalt	502	27.5	20.3
	pond soil	336	18.7	15.1		soil	373	22.6	17.3
	soil	475	23.5	15.7		concrete	449	27.2	20.4
Nakamachi	roof	387	29.9	21.1	Uenohara	roof	370	22.0	17.8
	asphalt	595	27.6	24.9		soil	457	24.6	18.6
	concrete	443	37.0	33.5		asphalt	523	23.5	19.4

### 2.4.3. 土壌中放射能濃度と無降雨時の線量率との関係

土壌中放射能濃度と無降雨時の線量率の関係を図 2-14 に示す。図の横軸の土壌中放射能濃度は表 2-1 で示した主な地表面形態の  $^{40}\text{K}$ 、U 系列、および Th 系列の土壌中放射能濃度の和である。図 2-14 より、無降雨時の線量率が他の MS と比較して低い佐倉三区および大東では土壌中放射能濃度は他の MS と比べて低く、無降雨時の線量率が他の MS と比較して高い中町および桜ヶ池では土壌中放射能濃度は他の MS と比べて高いことが分かる。無降雨時の線量率の MS 間の差異が、概ね MS 周囲の土壌中放射能濃度の差異により生じることが確かめられ、後で In-situ 測定値と線量率計算モデルを用いて MS 毎に無降雨時の線量率を再現する。

小笠では他の MS に比べて無降雨時の線量率が高いにもかかわらず、土壌中放射能濃度は他の MS と同等であった。小笠の周囲には高さ 11 m の建物が存在し、その建物中の放射性核種から放出される  $\gamma$  線の寄与があるため、無降雨時の線量率が他の MS よりも高くなったと考えられる。この点についても線量率計算モデルを用いて 3.2.1.2.目で後述する。

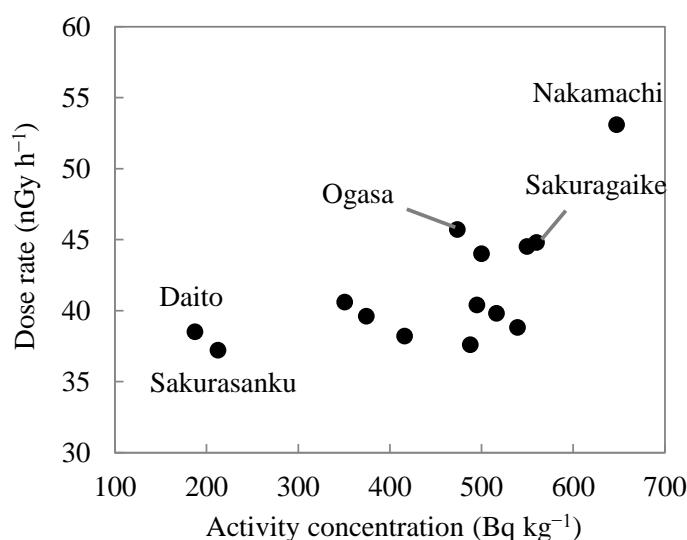


図 2-14 土壌中放射能濃度と無降雨時の線量率の関係。土壌中放射能濃度は表 2-1 で示した主な地表面形態の  $^{40}\text{K}$ 、U 系列、および Th 系列の土壌中放射能濃度の和である。

### 2.5. 大気中ラドン濃度の測定

第 1 章で述べたように、大気中ラドン壊変生成物は無降雨時の線量率の主な変動要因である。そのため、線量率上昇値を正確に評価するためには大気中ラドン壊変生成物濃度の測定が不可欠である。したがって、第 3 章で述べる線量率計算モデルを用いて線量率から推定される大気中ラドン壊変生成物濃度の検証の参照値とするために、本研究では親核種であるラドンの大気中放射能濃度を測定した。

### 2.5.1. 測定方法

測定地点は大東 MS とした。大東 MS の周辺は平坦な地形で、静岡県内の MS の中で丘陵や斜面等の局所的な地形の影響が小さい地点の一つである。

大気中ラドン濃度の測定には、Iida et al. (1996)によって開発された静電捕集型ラドンモニタ（以下、ERM）を用いた（図 2-15）。ERM は捕集電極面、光電子増倍管（PM）、プリアンプ（PA）、メインアンプ（LA）、およびシングルチャンネルアナライザ（SCA）で構成される。 $^{222}\text{Rn}$  の壊変生成物である  $^{218}\text{Po}$  は生成直後に 80~90%が正に帯電する性質を持っている。ERM はこの性質を用いて、負に印加（-3 kV）した電極面に、この  $^{218}\text{Po}$  イオンを捕獲し、この原子が電極面上で壊変する際に放出する  $\alpha$  線を検出する。 $\alpha$  線は ZnS シンチレータで検出することにより、ラドン濃度を得る。検出下限は  $0.3 \text{ Bq m}^{-3}$  程度で、数  $\text{Bq m}^{-3}$  の濃度を対象とする本研究の目的に適する。

サンプル空気は、屋外の地上 2 m に設置した吸気口から連続的に  $1 \text{ L min}^{-1}$  で採取し、メンブレンフィルター（ポア径： $0.8 \mu\text{m}$ 、 $\phi 47 \text{ mm}$ ）により壊変核種を除去後、捕集チャンバー（容積： $16.8 \text{ L}$ ）に導入した。 $^{218}\text{Po}$  イオンの捕集効率湿度に影響するため、サンプル空気の除湿が不可欠である。除湿系には電子冷却器および五酸化ニリンを用いて、露点温度が $-5\sim 0^\circ\text{C}$  になるように除湿した。また、ラドンの同位体であり、大気中に存在している  $^{220}\text{Rn}$  の半減期は  $55.6 \text{ s}$  であるため、サンプル空気内の  $^{220}\text{Rn}$  は放射壊変によってそのほとんどが経路内で消失すると考え、測定値への影響を無視した。

解析期間は 2010 年 12 月 8 日~2011 年 9 月である（2011 年 6 月~7 月はポンプが故障したため、解析対象から外した）。

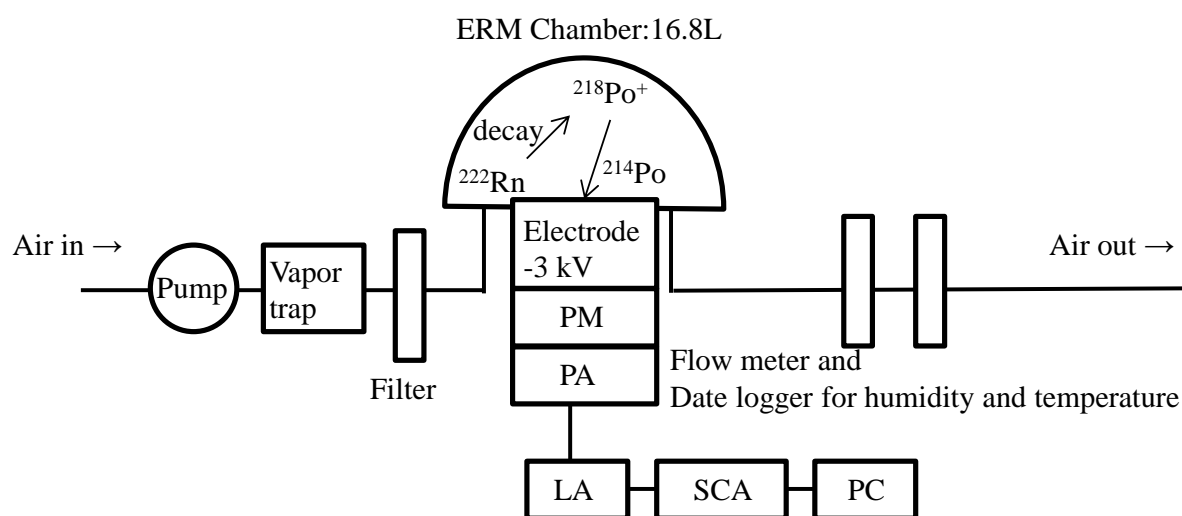


図 2-15 ERM の概略図



## 2.5.2. 測定結果

大東での地上 2 m のラドン濃度測定結果と無降雨時の線量率を図 2-16 に示す。測定された濃度は  $2\sim 30 \text{ Bq m}^{-3}$  の範囲で、明瞭な日変化を示す期間（2010 年 12 月中旬、2011 年 1 月上旬、2 月）、ほとんど日変化が見られない期間（2010 年 12 月下旬、2011 年 1 月中、下旬、8 月下旬、9 月下旬）、およびそれらの中間的な変動を示した期間が見られた。無降雨時の線量率も大気中ラドンと同様に明瞭な日変化を示す期間等がほぼ一致していた。2011 年 3 月 21 日まで、無降雨時の線量率は  $39\sim 41 \text{ nGy h}^{-1}$  の範囲で変動した。2011 年 3 月 21 日以降に線量率が高くなったのは、2.3.3. 項で述べたように福島原発事故起源の人工放射性核種を含んだブルームが MS 上空を通過し、さらに地表面に人工放射性核種が沈着したためである。2010 年 12 月から 2011 年 9 月までの期間の平均ラドン濃度は  $5.6 \text{ Bq m}^{-3}$  であり、ラドン濃度は冬期（12 月～2 月）に高く、夏期（8、9 月）に低い傾向であった。

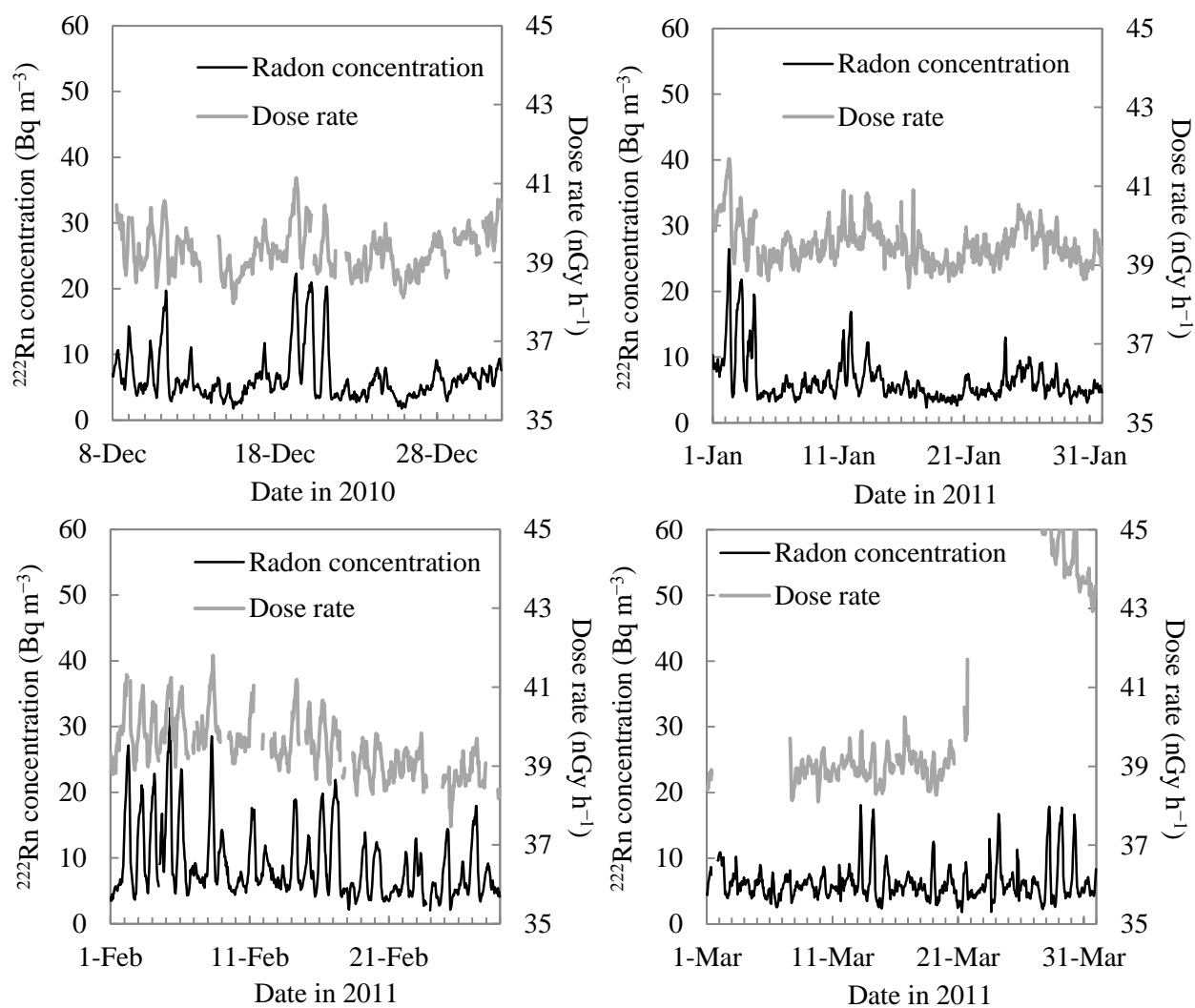


図 2-16 2010 年 12 月から 2011 年 5 月と 2011 年 8、9 月に測定された大気中  $^{222}\text{Rn}$  放射能濃度と線量率の時間変化。示した線量率は降雨時を含んでいない。（次ページに続く）

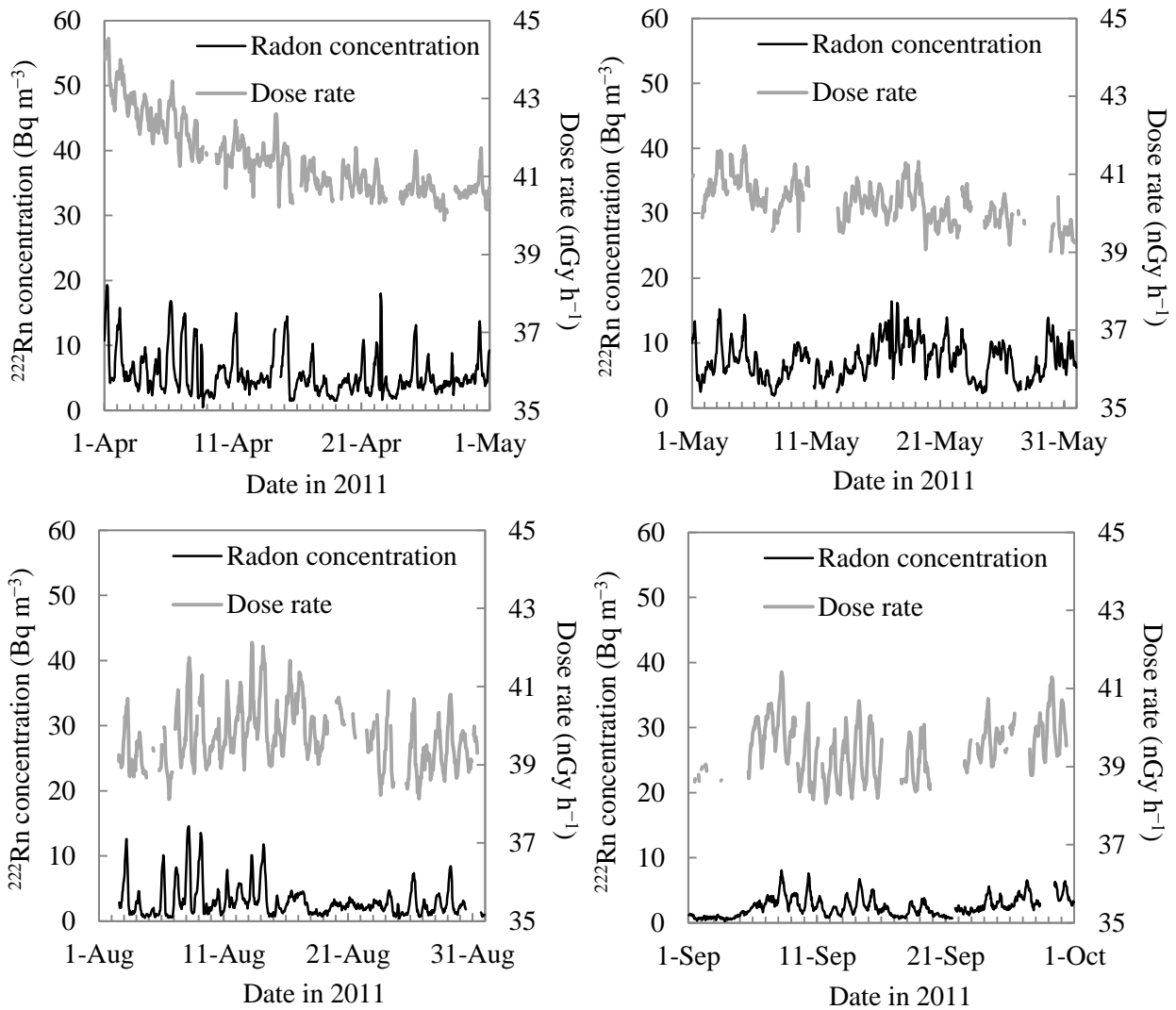


図 2-16 (続き)

### 2.5.3. 大気中ラドン濃度と線量率の関係

大東での大気中ラドン濃度と線量率の関係を降雨時と無降雨時に分けて検討した結果を図 2-17 に示す。検討期間は福島原発事故起源の人工放射性核種による線量率上昇と区別するため、2010 年 12 月～2011 年 2 月とした。

無降雨時のラドン濃度の測定値と線量率には、明瞭な線形関係が見られ、決定係数  $R^2$  は 0.54 であった。回帰直線の傾きは  $0.13 \text{ (nGy h}^{-1}\text{)} / \text{(Bq m}^{-3}\text{)}$  であった。この結果は無降雨時の線量率の日変動の原因の一つが、地表面付近のラドン壊変生成物濃度であることを示している。回帰直線の y 切片は、ラドン壊変生成物が大気中がない場合に、線量率が  $38.5 \text{ nGy h}^{-1}$  であることを示している。

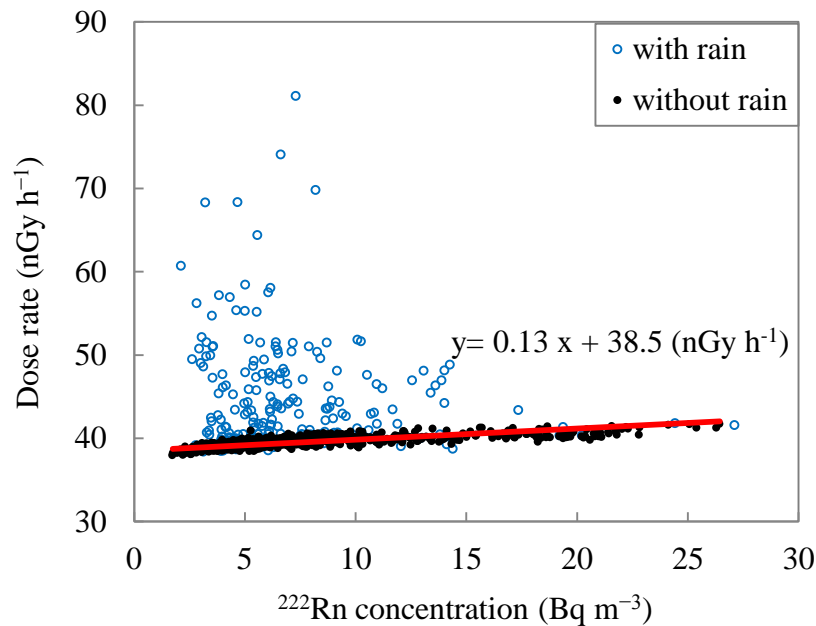


図 2-17 大東での線量率と大気中  $^{222}\text{Rn}$  放射能濃度の関係。回帰直線（赤線）は大気中  $^{222}\text{Rn}$  放射能濃度（x 軸）と無降雨時の線量率（y 軸）の関係を示している。

## 2.6. まとめ

ラドン壊変生成物と人工放射性核種の放射能濃度の推定に用いる MS 測定値の MS 間の差異が周辺環境の差異に起因するかを検証するために、無降雨時、降雨時、および福島原発事故後の MS 測定値を MS 間で比較した。

静岡県内の MS では、無降雨時の線量率は地点間で最大  $15 \text{ nGy h}^{-1}$  の差が見られた。In-stiu 測定によって得られた各 MS 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 MS 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。

大東での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  $25 \text{ Bq m}^{-3}$  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  $3.3 \text{ nGy h}^{-1}$  であった。

静岡県内の MS では、降雨時の線量率上昇値の平均値は約  $10 \text{ nGy h}^{-1}$  であり、地点間で最大  $3 \text{ nGy h}^{-1}$  の差が見られた。MS 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、または MS 周囲に高い構造物が存在する MS で線量率上昇値が小さく、地表面形態が砂地であり、MS 周囲に構造物が無い開けた MS で線量率上昇値が大きく、さらに

MS 周辺に高い樹木で覆われている MS 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 MS 間の差異が周辺環境の差異に起因していることを確認した。以上に見られた傾向から、MS 周囲の幾何学的構造、および樹木の有無が MS 測定値を用いた濃度推定値に影響を与えることが分かる。また、各地表面形態の占有割合の MS 間の違いにより線量率上昇値が MS 間で異なった要因として、放射性物質の流出・浸透の可能性を指摘した。

福島原発事故後の測定値も降雨時と同様に周辺環境に対応した MS 間の差異が生じるかを検討するために、静岡県内の MS で福島原発事故後に測定された値を MS 間で比較した。隣接する MS では、周辺の土壌が砂地であり、MS 周囲に構造物が無い開けた MS で福島原発事故後の線量率上昇値が大きい傾向が見られ、降雨時の MS 間の大小関係と類似していた。この結果は、平常時の降雨時の MS 測定値を用いて、事故時の MS 周辺の幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽、および流出・浸透特性を予め把握できる可能性を示している。

茨城県内の MS で福島原発事故後に測定された値を MS 間で比較すると、茨城県内の MS は静岡県内の MS と比較して開けた場所に設置されているにもかかわらず、最大線量率上昇値の MS 間の差はファクター2 以上になる場合が確認された。その MS 間の差は MS 周囲の幾何学的構造の違いによる  $\gamma$  線の遮蔽の違いに加え、プルームの位置およびプルーム通過時に沈着した放射性物質の量の違いに起因している可能性を指摘した。

## 第3章 線量率および NaI 波高分布を用いた降雨時の放射能濃度推定

### 3.1. 諸言

第2章での解析の結果、自然放射性核種の土壤中放射能濃度、MS 周辺の幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽の違い、および流出・浸透特性の MS 間の違いによって、測定される線量率、降雨時の上昇幅、および NaI 波高分布の形状は MS 毎に異なることが示された。MS 測定値から放射能濃度を推定する際の問題点として、MS 周囲の幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽および流出・浸透特性を予め評価しておく必要性が挙げられた。しかし、幾何学的構造および流出・浸透特性を全ての MS で把握するには多大な労力と時間が必要であり、さらにそれらの考慮が濃度推定値に与える影響の大きさの評価を事故時に行うのは現実的ではない。第1章で述べたように、事故時と平常時で周囲の幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽に大きな違いは無く、放射性物質の浸透・流出の巨視的な挙動は水分移動が最大の決定要因であるため、放射性物質に強く依存しないと期待される。さらに第2章で示したように、平常時と事故時の MS 測定値の MS 間の差異は類似していたため、平常時の測定値またはその値を用いて推定した放射能濃度からその土地周辺の幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽および流出・浸透特性を把握することができれば、その情報を事故時にも適用できる可能性がある。

本章では降雨時に MS で得られる線量率と NaI 波高分布を利用した降雨時の地面上放射能濃度推定法の考案および流出・浸透特性の推定を目的とし、さらに濃度推定値に影響を与える因子のうち、幾何学的構造および流出・浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを検討する。降雨時の線量率上昇値に寄与する核種は  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  のみであるものの、線量率はそれら核種の寄与の合算値であるため、本来は核種別に放射能濃度を推定することが困難である。それ故、今まで線量率を用いた放射能濃度推定を行った例はなく、本研究が初めての試みである。

本章で推定する  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  は  $^{222}\text{Rn}$  の壊変生成物である。 $^{222}\text{Rn}$  は希ガスであり、半減期が約 3.82 d であり、土壤中および海中に存在する  $^{226}\text{Ra}$  の壊変により、常時生成されている。希ガスであるため、大気輸送中に化学反応を起こさず、除去されることがなく、壊変のみで  $^{222}\text{Rn}$  は除去される。以上の特徴を持つことから、 $^{222}\text{Rn}$  は大気輸送現象を解明するためのトレーサーとして利用されている (Hirao et al., 2008)。 $^{222}\text{Rn}$  の子孫核種である  $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、および  $^{214}\text{Bi}$  は降雨によって除去される。これらの特徴から、 $^{222}\text{Rn}$  とその子孫核種は湿性沈着過程の解明のためのトレーサーとしても使用されている (Kataoka et al., 1982; Fujinami et al., 1985; Minato, 2007)。それらの核種をトレーサーとして利用し、長距離大気輸送および湿性沈着過程を解明するためには、各核種の大気中、雨水中、または地面上放射能濃度が不可欠である。MS 測定値から、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度を推定することができれば、こ

れら過程の解明に必要な情報を提供することができる。

以下に本論文で扱う言葉の定義を示す。

・沈着量、降下量

大気中に存在する放射性物質が地表面、屋根面等の水平面に移動した量。単位を単位面積当たりの放射能として表す。

・残存量

沈着後に、流出等による除去過程を経て、単位面積あたりに残っている放射能。

残存量＝沈着量－流出等によって除去された単位面積当たりの放射能。

・流出

屋根上に沈着した放射性物質が雨水とともに屋根下に移動すること、または地表面に沈着した放射性物質が雨水とともに側溝または系外（ $\gamma$ 線の影響範囲外）に移動すること

・浸透

地表面に沈着した放射性物質が、水平方向に移動せずに、地表面下（鉛直方向）にしみこむこと

・地面上放射能濃度

浸透を考慮しない場合は単位地表面積あたりの放射能。浸透を考慮した場合は、深さ 0 から無限大まで積分した単位面積土壌柱に存在する放射能。

### 3.2. 線量率を用いた濃度推定法

線量率はサーベイメーターのみで測定でき、波高分布に比べて測定が簡便であり、測定にかかる費用が少ない利点がある。それ故、福島原発事故後では、線量率のみが測定されたモニタリング地点が多く存在した。NaI 波高分布は必ずしも保存されているわけではなく、静岡県内の MS では、2008 年までは線量率しか保存されていなかった。それ故、線量率から事故時に必要な流出・浸透特性を予め把握できるかを検討することは意義のあることである。

本節では、降雨時の線量率上昇に寄与する核種はラドン壊変生成物である  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  のみであることと、それらの核種の半減期が比較的短く ( $^{214}\text{Pb}$ : 26.8 min、 $^{214}\text{Bi}$ : 19.9 min)、 $^{214}\text{Pb}$  は  $^{214}\text{Bi}$  の親核種であることに着目して、線量率の時間変化から地面上放射能濃度を核種別に

推定できるかを検討する。さらに MS 周辺の流出・浸透特性を降雨時の線量率変動を用いて  
 予め把握できるかを検討する。

### 3.2.1. 線量率計算モデルによる線量率計算

本研究では線量率からラドン壊変生成物の地面上放射能濃度を推定する際に、線量率計算  
 モデルを使用する。本項では、線量率計算モデルの原理とモデルで考慮した項目を述べる。  
 作成したモデルの計算精度を検証するため、無降雨時の線量率およびその変動の再現性の検  
 討を行う。

#### 3.2.1.1. 線量率計算モデル

線量率計算モデルでは、点減衰核積分法に基づき、各体積または面積要素中の核種からの  
 線量率への寄与を積分することによって線量率を計算する。点減衰核積分法では、検出器か  
 ら  $r$  (m) 離れた位置  $j$  に存在する線源からの線量率への寄与  $dD_j$  は線源—検出器間に存在する  
 空気および物質中での  $\gamma$  線の減衰とビルドアップを考慮して次式で表される。

$$dD_j = \sum_i Q_{i,j} \frac{K}{4\pi r^2} \cdot E_{eff,i} \cdot \mu_{en}(E_{ave,i}) \cdot \exp(-\mu(E_{ave,i}) \cdot r) \cdot B_a \cdot A \cdot S \quad (3-1)$$

$Q_{i,j}$  : 核種  $i$  の位置  $j$  の放射能 (Bq)

$E_{eff,i}$  : 核種  $i$  の  $\gamma$  線実効エネルギー (MeV)

$E_{ave,i}$  : 核種  $i$  の  $\gamma$  線平均エネルギー (MeV)

$K$  : 線量率換算定数 (=0.446 nGy MeV<sup>-1</sup> Bq<sup>-1</sup> h<sup>-1</sup> m<sup>3</sup>)

$\mu_{en}(E)$  : 空気の  $\gamma$  線エネルギー ( $E$ ) に対する線エネルギー吸収係数 (m<sup>-1</sup>)

$\mu(E)$  : 空気の  $\gamma$  線エネルギー ( $E$ ) に対する線減弱係数 (m<sup>-1</sup>)

$B_a$  : 線減弱係数 ( $\mu(E)$ )、空気層 ( $r$ )、線源の地上高さ ( $h$ ) における空気中の  
 Build up 係数

$A$  : 検出効率の角度依存性を補正する項

$S$  : 地面、建物等の遮蔽、Build up 係数を考慮する項

次に各変数の詳細を記述する。

#### • $\gamma$ 線実効エネルギー $E_{eff}$ 、平均エネルギー $E_{ave}$

放射性核種は複数の  $\gamma$  線を放出する。そのため線量率を計算する際、各々の  $\gamma$  線について

線量率を計算し、それらを合算する必要がある。しかしこの手法では長時間の計算を要する。本研究では計算の簡略化のため、SPEEDIにも採用されている実効エネルギー $E_{eff}$ 、平均エネルギー $E_{ave}$ を採用し、複数の $\gamma$ 線を縮約されたエネルギーを持つ1本の $\gamma$ 線エネルギーとして扱うこととした。実効エネルギー $E_{eff}$ と平均エネルギー $E_{ave}$ は次式で表される。

$$E_{eff} = \sum_k^N E_k f_k, \quad E_{ave} = \frac{\sum_k^N E_k f_k}{\sum_k^N f_k} \quad (3-2)$$

$E_k$  :  $k$  番目の $\gamma$ 線エネルギー (MeV)

$f_k$  :  $E_k$  の $\gamma$ 線放出率 (1壊変あたりに $E_k$ の $\gamma$ 線を放出する本数)

実効エネルギーは1壊変あたりに放出される $\gamma$ 線のエネルギーの期待値を表しており、平均エネルギーは放出される $\gamma$ 線1本あたりのエネルギーの平均値を表している。

自然放射性核種の実効エネルギーと平均エネルギーを表3-1に示す。土壤中放射能濃度を用いて平常時の線量率を計算する際に使用した自然放射性核種は表3-1に示した8個である。線量率を計算する際に核種間で最も異なる因子は実効エネルギーである。表3-1に示していない自然放射性核種 ( $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  等) は実効エネルギーが小さく、これらを加えた線量率計算を行ったとしても変化は0.1%以下であったため、本研究では実効エネルギーの小さい自然放射性核種を計算しないこととした。

表 3-1 実効エネルギー $E_{eff}$ と平均エネルギー $E_{ave}$

Nuclide	$E_{eff}$ (MeV)	$E_{ave}$ (MeV)
$^{40}\text{K}$	0.16	1.46
$^{228}\text{Ac}$	0.68	0.74
$^{212}\text{Pb}$	0.11	0.24
$^{212}\text{Bi}$	0.10	0.80
$^{208}\text{Tl}$	1.21	1.47
$^{226}\text{Ra}$	0.01	0.19
$^{214}\text{Pb}$	0.21	0.33
$^{214}\text{Bi}$	1.25	1.13

・ 空気中の Build up 係数  $B_a$ 、線エネルギー吸収係数  $\mu_{en}$ 、線減弱係数  $\mu$

地表面近くの線源では散乱線が減少するため、次式のように地上からの高さが4 m未満の線源と、4 m以上の線源で Build up 係数を算出する近似式を変えた(日高ら, 1987)。表3-2に空気中の Build up 係数の算出に使用した係数を示す(日高ら, 1987)。空気の線エネルギー吸収係数  $\mu_{en}$  および線減弱係数  $\mu$  はエネルギーに依存する。本研究では、表3-2に示した核種毎の線エネルギー吸収係数、線減弱係数を使用した。



$h \geq 4$  m の場合

$$B_a = 1.0 + a(h, E_{ave}) \cdot \mu(E_{ave}) \cdot r \cdot \exp(b(h, E_{ave}) \cdot \mu(E_{ave}) \cdot r)$$

$$a = \frac{a_1(E_{ave}) \cdot h^{a_2(E)}}{1.0 + a_3(E_{ave}) \cdot h^{a_2(E)}} \quad (3-3)$$

$$b = b_1(E_{ave}) + b_2(E_{ave}) \cdot \ln(h) + \frac{b_3(E_{ave})}{h}$$

$h < 4$  m の場合

$$B_a = 1.0 + a_0(E_{ave}) \cdot \mu(E_{ave}) \cdot r \cdot \exp(b_0(E_{ave}) \cdot \mu(E_{ave}) \cdot r) \quad (3-4)$$

表 3-2 線エネルギー吸収係数  $\mu_{en}$ 、線減弱係数  $\mu$ 、およびビルドアップ係数の式で用いる係数

Nuclide	$\mu_{en} \text{ (m}^{-1}\text{)}$	$\mu \text{ (m}^{-1}\text{)}$	$a_1$	$a_2$	$a_3$	$b_1$	$b_2$	$b_3$	$a_0$	$b_0$
<sup>40</sup> K	0.0033	0.0062	0.453	0.458	0.358	-0.203	0.037	0.749	0.478	-0.036
<sup>228</sup> Ac	0.0037	0.0085	0.516	0.397	0.273	-0.154	0.038	1.225	0.608	0.114
<sup>212</sup> Pb	0.0037	0.0128	0.789	0.205	0.000	-0.019	0.030	0.812	1.012	0.162
<sup>212</sup> Bi	0.0037	0.0085	0.516	0.397	0.273	-0.154	0.038	1.225	0.608	0.114
<sup>208</sup> Tl	0.0033	0.0062	0.453	0.458	0.358	-0.203	0.037	0.749	0.478	-0.036
<sup>226</sup> Ra	0.0034	0.0147	0.841	0.214	0.000	-0.001	0.029	0.816	1.130	0.164
<sup>214</sup> Pb	0.0037	0.0128	0.747	0.198	0.000	-0.036	0.031	0.809	0.916	0.160
<sup>214</sup> Bi	0.0036	0.0077	0.505	0.392	0.303	-0.172	0.039	1.262	0.615	0.029

• 検出効率の角度依存性 A

静岡県の MS に設置されている NaI 検出器は検出器とともに設置されている光電子増倍管および周囲を覆っている Al カバーによる遮蔽により、検出効率に角度依存性がある。本研究ではメーカーにより提供された検出効率の鉛直方向の角度依存性 (図 3-1) をモデルに組み込んだ。

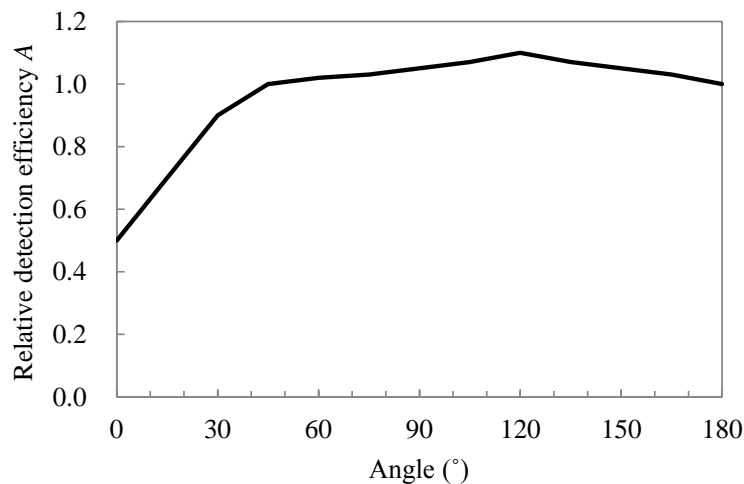


図 3-1 NaI 検出器の角度依存性 A。角度 0°は検出器直下である。

・物質中の線減弱係数  $\mu_i$ 、Build up 係数  $B_i$

$\gamma$  線経路上に複数の物体が存在する場合、 $\gamma$  線経路上の物体による Build up の積として、式(3-1)の  $S$  を次式で計算した。線減弱係数も Build up 係数と同様に、式(3-1)の指数関数内の線減弱係数と距離の積を全ての物体について和をとる（指数関数により計算される減弱率の積として計算された値の積をとる）ことによって計算した。

$$S = \prod_i^N (\exp(-\mu_i \cdot r_i) \cdot B_i) \quad (3-5)$$

$\mu_i$  : 物質  $i$  の線減弱係数

$r_i$  : 物質  $i$  中を  $\gamma$  線が通過する距離

$B_i$  : 物質  $i$  の Build up 係数

本研究では物質を土類（草地、砂地、または砂利）とコンクリート（コンクリートまたはアスファルト）に分けて計算を行った。各物質の線減弱係数は各核種の  $S_i$  での光子減弱係数（村上ら, 1982）から算出した(表 3-3)。土類とコンクリートの密度はそれぞれ  $1.6 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$ 、 $2.4 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$  とした。

物質中の Build up 係数は藤原(2010)が光子輸送計算モデル EGS5（Hirayama et al., 2005）を用いて算出した質量厚さごとの Build up 係数を用いた。Build up 係数と質量厚さ  $d$  ( $10^{-3} \text{ kg m}^{-2}$ ) の関係式を次式に示す。

$$B = 9.1d^2 + 5.4d + 1 \quad (3-6)$$

表 3-3 光子減弱係数と各物質の線減弱係数

Nuclide	Mass attenuation coefficient ( $\text{m}^2 \text{ kg}^{-1}$ )	Linear attenuation coefficient ( $\text{m}^{-1}$ )	
		Soil	Concrete
$^{40}\text{K}$	0.0055	8.8	13.2
$^{228}\text{Ac}$	0.0070	11.2	16.8
$^{212}\text{Pb}$	0.0110	17.6	26.4
$^{212}\text{Bi}$	0.0070	11.2	16.8
$^{208}\text{Tl}$	0.0052	8.3	12.5
$^{226}\text{Ra}$	0.0180	28.8	43.2
$^{214}\text{Pb}$	0.0100	16.0	24.0
$^{214}\text{Bi}$	0.0060	9.6	14.4

### 3.2.1.2. モデルによる線量率の再現性の検討

モデルの精度を検討するため、①無降雨時の線量率の再現性の検討と、②無降雨時の線量率変動の再現性の検討を行った。線量率を計算する際、現地調査に基づいた MS 周囲（検出器から半径 30 m 程度）の幾何学的構造をモデルに入力した。MS 周囲の建物を考慮する際、建物の中の詳細（部屋の仕切り、窓、家具など）は考慮せずに、窓を含む外壁全てがコンクリートであり、空洞の建物として建築物を模擬した。土壌、建材、および大気中に存在する核種は直方体の体積要素の中心に存在するとして、 $\gamma$  線放出源を設定した。水平方向の計算範囲および分割の大きさをそれぞれ 500 m 四方、0.1 m 四方とし、土壌深さ方向の計算範囲および分割幅を最も低い地表面からそれぞれ 1 m、0.01 m とし、高さ方向の計算範囲および分割の大きさをそれぞれ 1000 m、1 m とした。

#### ・無降雨時の線量率の再現性の検討

無降雨時の線量率を計算する際、地表面形態毎に In-situ 測定で得られた土壌中放射能濃度を入力した。建物の壁中および MS 以外の建物の屋根中の放射能濃度を得ることができなかったため、それらの放射能濃度は材質が類似している MS 屋根中の放射能濃度と同じであると仮定した。

表 3-4 と図 3-2(a)に各 MS の無降雨時の線量率の計算値と 2004～2010 年の無降雨時の線量率測定値の平均値を示す。全体として実測値に見られる無降雨時の線量率の MS 間の大小関係をモデルにより再現できている。線量率の計算値と実測値の差は最大で 15%であった。MS 屋根からの線量率の寄与は表 2-1 に示した屋根の寸法が大きく、表 2-4 に示した屋根中の放射能濃度実測値が大きい MS（白羽小学校、小笠、中町など）で高い。地面からの線量率の寄与は表 2-4 に示した土壌中放射能濃度が高く、周囲に遮蔽物が少ない場所（平場、白砂、桜ヶ池）で高い。小笠の土壌中放射能濃度が他の MS と同等であるにもかかわらず、無降雨時の線量率が他の MS よりも高い（図 2-14）原因として、周囲の建物からの線量率の寄与が大きいことが表 3-4 に示したモデル計算結果により示された。

計算結果と実測値との関係について、周辺環境の調査結果を考慮して検討する。図 3-2(a)より、中町と小笠の計算値は実測値と比べて約 10%大きい。この 2 地点の MS に類似する特徴は検出器から半径 5 m 以内に高さ 6 m 以上の建物が存在することである。表 3-4 の壁からの線量率の寄与を見ると、他の MS よりも中町と小笠では約 3 倍高く計算されていることが示されている。本研究では建物壁中の放射能濃度を測定できなかったため、壁中の放射能濃度は MS 屋根中の放射能濃度と同じであると仮定して、線量率の寄与を計算した。中町と小笠の計算値が実測値よりも高くなった原因の一つとして、建物の壁中の放射能濃度を実際の放射能濃度よりも過大評価したことが考えられる。

上記2地点以外のMSでは、計算値は実測値よりも小さく計算される傾向である(図3-2(a))。NaI 検出器で測定される線量率を構成しているのは、土壌中および建物中の放射性物質から放出される $\gamma$ 線と大気中に存在するラドン壊変生成物(主に $^{214}\text{Pb}$ と $^{214}\text{Bi}$ )から放出される $\gamma$ 線である。計算値が実測値よりも小さく計算された原因の一つとして、大気中ラドン壊変生成物からの線量率寄与(約 $1\text{ nGy h}^{-1}$ )を考慮していないことが考えられる。

表3-4と図3-2(a)で示されるように、佐倉三区と大東の計算値は実測値と比べて約15%小さく、大気中ラドン壊変生成物からの線量率寄与 $1\text{ nGy h}^{-1}$ を考慮しても、約12%小さい。表3-4のMS屋根からの線量率の寄与を見ると、この2地点のMSでは、MS屋根の大きさがほぼ同じ他のMS(新神子、草笛、浜岡北小学校、地頭方小学校、白羽小学校、および小笠)と比較して約10%小さい。さらに地面からの寄与も他のMSと比べて約30%小さい。MS屋根の大きさは有限であり、In-situ測定によるMS屋根中の放射能濃度の測定値は周囲の土壌中放射能濃度に左右された可能性がある。表2-4で示したように、佐倉三区と大東でのアスファルト中放射能濃度はMS屋根中放射能濃度の半分程度であった。MS屋根より外側からの寄与が仮定(MS屋根が無限に広がっていること)よりも小さくなり、In-situ測定で得たMS屋根中の放射能濃度が本来の濃度よりも小さく評価された可能性がある。実際の放射能濃度よりも小さい屋根中の放射能濃度を用いたため、佐倉三区と大東でのモデル計算値は実測値よりも小さく計算されたと考えられる。

全てのMSで大気中ラドン壊変生成物からの寄与( $1\text{ nGy h}^{-1}$ )を考慮し、佐倉三区と大東ではMS屋根の大きさがほぼ同じである他のMSの屋根からの線量率寄与の平均値( $26.7\text{ nGy h}^{-1}$ )を仮に用いた場合のモデル計算値と実測値の比較を図3-2(b)に示す。中町と小笠を除いた線量率の計算値と実測値の相対差の平均は、大気中ラドン壊変生成物からの寄与とMS屋根からの寄与を考慮することで、6%から3%に減少した。

以上より、線量率の計算値と実測値の差は建物の壁中の放射能濃度、大気中ラドン壊変生成物濃度、および屋根中の放射能濃度により生じたと考えるのが合理的である。本モデルを使用して計算した線量率と実測値との差異はIn-situ測定範囲の広さによる評価値のばらつきおよびIn-situ測定による放射能濃度の統計誤差(約10%)の範囲内であった(中町と小笠除く)。それ故、本研究では本モデルによる線量率計算値は十分な精度で実測値を再現できるとし、以降の解析で用いることとした。

表 3-4 各 MS の無降雨時の線量率の計算値と実測値の比較。実測値は 2004～2010 年の無降雨時の平均線量率。

MS	Calculated dose rate (nGy h <sup>-1</sup> )					Observed dose rate (nGy h <sup>-1</sup> )
	MS roof	Ground	The other building roofs	Building wall	Total	
Sakurasanku	23.4	6.0	0.0	2.4	31.8	37.2
Shinkango	27.4	9.6	0.0	2.2	39.1	37.6
Center	23.5	10.9	0.5	4.0	38.8	38.2
Daito	24.5	4.8	1.2	3.6	34.1	38.5
Kusabue	25.5	9.1	0.7	3.4	38.7	38.8
Hamaokakita Elem. Sch.	25.7	9.1	0.0	2.5	37.2	39.6
Hiraba	18.9	17.9	0.5	1.9	39.3	39.8
Shirasuna	20.7	12.7	2.6	2.3	38.3	40.4
Jitogata Elem. Sch.	26.1	8.4	0.1	2.2	36.8	40.6
Uenohara	20.4	11.7	2.7	4.0	38.8	44.0
Shirowas Elem. Sch.	28.0	10.0	1.0	3.9	42.9	44.5
Sakuragaika	20.6	19.2	1.2	2.8	43.7	44.8
Ogasa	27.5	9.6	0.9	10.9	48.8	45.7
Nakamachi	28.4	12.1	6.4	14.0	60.9	53.1

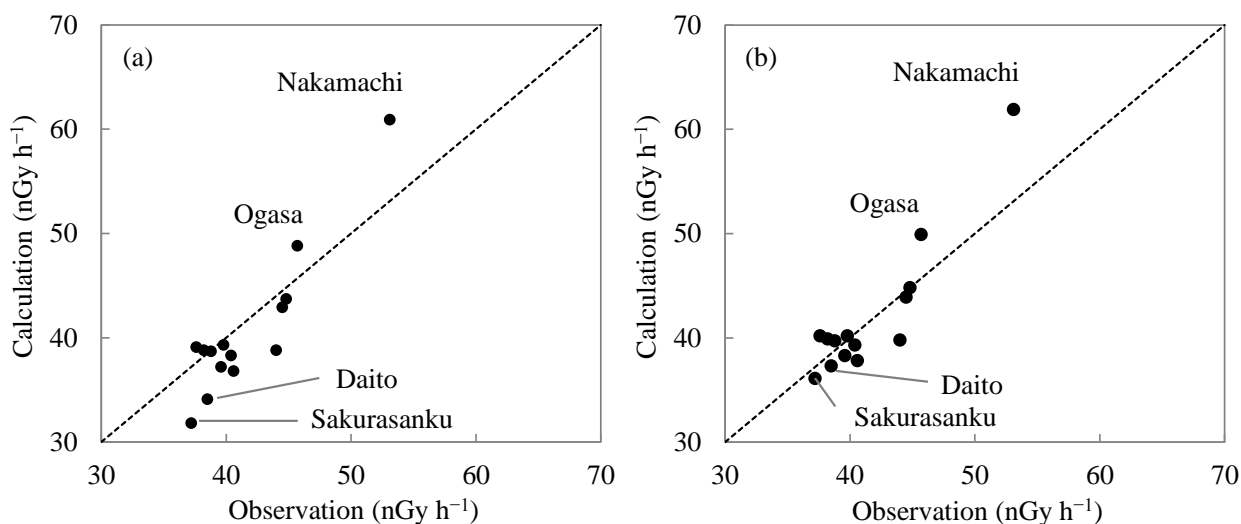


図 3-2 線量率の実測値と計算値の比較。実測値は 2004～2010 年の無降雨時の平均線量率。(a) 大気中ラドン濃度の寄与を入れず、In-situ 測定値をそのまま使用した場合。(b) 全 MS で大気中ラドン濃度の寄与 (1 nGy h<sup>-1</sup>) を考慮し、佐倉三区と大東では他の MS の屋根からの線量率寄与の平均値 (26.7 nGy h<sup>-1</sup>) を使用した場合。(Hirouchi et al.(2014a)を基に作成)

#### ・ 無降雨時の線量率変動の再現性の検討

2.5.節より無降雨時の線量率変動の原因が大気中ラドン壊変生成物濃度の変動であることが示された。大気中ラドン濃度を測定した大東で、大気中ラドン濃度の変動による無降雨時の線量率変動について、モデルの再現性の検討を行う。

線量率計算モデルを用いて、大気中に $^{222}\text{Rn}$ が $1\text{ Bq m}^{-3}$ 存在する時の線量率上昇値を求めた。 $^{222}\text{Rn}$ の子孫核種である $^{214}\text{Pb}$ と $^{214}\text{Bi}$ は地表面または壁面等への付着が起り、 $^{214}\text{Pb}$ と $^{214}\text{Bi}$ の地表近くの大気中放射能濃度は $^{222}\text{Rn}$ よりも低くなる。本研究ではUNSCEAR(1993)で報告されている、屋外での $^{222}\text{Rn}$ の大気中放射能濃度( $C_R$ )と子孫核種の大気中放射能濃度( $C_P$ )の比( $C_P/C_R$ )0.8を用いて、 $^{214}\text{Pb}$ と $^{214}\text{Bi}$ が大気中に均一に $0.8\text{ Bq m}^{-3}$ 存在する時の線量率上昇値を求めた結果、 $0.13\text{ (nGy h}^{-1}\text{)/(Bq m}^{-3}\text{)}$ であり、図2-17で示したラドン濃度と線量率測定値の回帰直線の傾き $0.13\text{ (nGy h}^{-1}\text{)/(Bq m}^{-3}\text{)}$ と一致する値が得られた。この結果からも、本モデルによる線量率計算値は十分な精度で実測値を再現できることが示された。

### 3.2.2. 降雨時の線量率の時間変化

図3-3に降雨前から降雨後までの線量率の時間変化の例を示す。降雨前は概ね $40\pm 1\text{ nGy h}^{-1}$ で線量率は変動している。降雨開始とともに線量率には降雨前の変動幅よりも大きな上昇が見られ、降雨終了後の線量率には指数関数的な減少が見られる。降雨時の線量率上昇の大きさを決める因子は、地面に沈着したラドン壊変生成物の地面上放射能濃度および地面上に蓄積または地表面下に浸透した雨水による遮蔽である。ラドン壊変生成物の地面上放射能濃度は壊変と他領域への流出によって減少し、降雨による付与と他領域からの流入によって増加する。

降雨時の線量率上昇を引き起こす $\gamma$ 線は $^{214}\text{Pb}$ と $^{214}\text{Bi}$ から放出されたものが主である。 $^{214}\text{Pb}$ の親核種である $^{218}\text{Po}$ の半減期は約3minと短く、雨滴が地面に到達した時点での降水中 $^{218}\text{Po}$ 放射能濃度は降水中 $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 放射能濃度の1%未満であると報告されている(Hornig et al., 2004)。そこで本研究では、 $^{218}\text{Po}$ を考慮しないこととした。

以上より、降雨時の地面上ラドン壊変生成物の放射能濃度の時間変化は以下の式で表される。

$$\frac{dC_{Pb}}{dt} = -\lambda_{Pb}C_{Pb} - \psi C_{Pb} + \alpha_{Pb} + RA_{Pb} \quad (3-7)$$

$$\frac{dC_{Bi}}{dt} = -\lambda_{Bi}C_{Bi} + \lambda_{Bi}C_{Pb} - \psi C_{Bi} + \alpha_{Bi} + RA_{Bi} \quad (3-8)$$

$C$  : 地面上放射能濃度

$\lambda$  : 壊変定数

$\psi$  : 他領域への流出速度

$\alpha$  : 他領域からの単位時間単位面積あたりに流入する放射能

$R$  : 降水強度

A : 降水中放射能濃度

添え字 Pb と Bi はそれぞれ  $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$  を表している。

式(3-7)と(3-8)の未知数は  $C$ 、 $\psi$ 、 $\alpha$ 、および  $A$  であり、これらの式と降雨時の線量率変動のみでは四個の未知数を一意に決定することは出来ない。降水中ラドン壊変生成物濃度は降水強度に依存すると報告されている (Fujinami, 1996) もの、その詳細は把握されていない。さらに、上空の大気中ラドン濃度にも依存しているため、降水中ラドン壊変生成物濃度を直接測定する以外に把握する方法はない。そこで本研究では、式(3-7)と(3-8)から降水中放射能濃度が寄与する項を除くために、降雨後の線量率変動を使用することにした。

地面上放射能濃度  $C$  以外の未知数である、ラドン壊変生成物の流出・流入による降雨後の線量率変動への影響の大きさを検討する。図 3-4 に各 MS の降雨後の線量率上昇値の時間変化の例を示す。ここで、線量率上昇値は MS 毎に異なるため、各 MS の降雨終了直後の線量率上昇値を 1 に規格化した。流出特性が異なると考えられる地表面形態の異なる MS の測定値を比較したにもかかわらず、降雨後の線量率上昇値の時間変化は MS によらずほぼ同じ変動を示した。これは少なくとも降雨後では地面に蓄積したラドン壊変生成物の流出・流入による線量率変動が、ラドン壊変生成物の壊変による減少よりも小さいことを示している。そこで、式(3-7)と(3-8)の  $\psi$  と  $\alpha$  をそれぞれ 0 と仮定した。

濃度推定値の誤差要因となり得る、地面上に蓄積または地表面下に浸透した雨水による  $\gamma$  線の遮蔽効果の大きさを評価する。雨水が付与されることにより水の遮蔽厚さが厚くなれば、土壌中自然放射性核種からの線量率への寄与が小さくなる。全解析対象の降雨前と降雨後の線量率の差は最大で  $1 \text{ nGy h}^{-1}$  であった。これは大気中ラドン濃度の変動による線量率変動と区別できないため、本研究では雨水による遮蔽効果の増加を無視した。

以上より、降雨後の線量率変動から地面上ラドン壊変生成物濃度を推定する際に、以下の仮定を用いた。

- ・降雨後、地面上ラドン壊変生成物は流入および流出しない
- ・雨水による遮蔽はない

以上の仮定より、降雨後の地面上ラドン壊変生成物濃度の時間変化は以下の式で示されるように壊変式のみで表される。

$$\frac{dC_{Pb}}{dt} = -\lambda_{Pb} C_{Pb} \quad (3-9)$$

$$\frac{dC_{Bi}}{dt} = -\lambda_{Bi} C_{Bi} + \lambda_{Bi} C_{Pb} \quad (3-10)$$

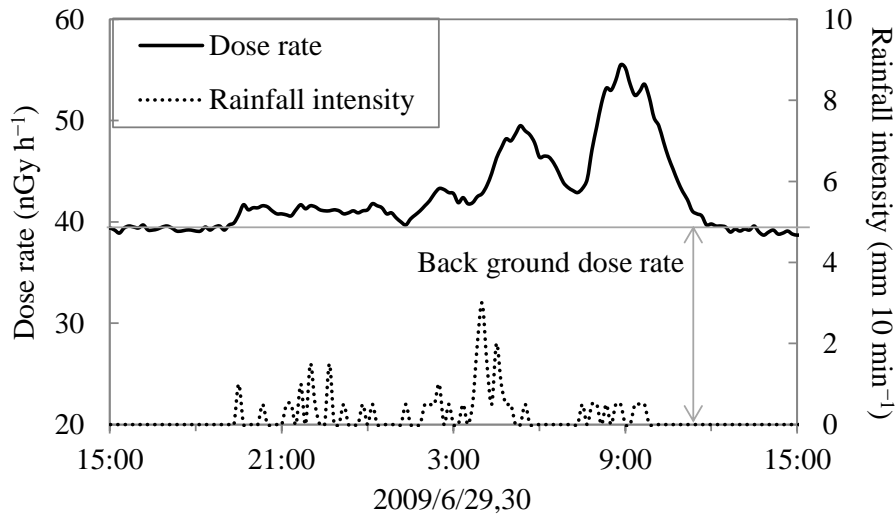


図 3-3 白砂で測定された線量率と降水強度の時系列の例

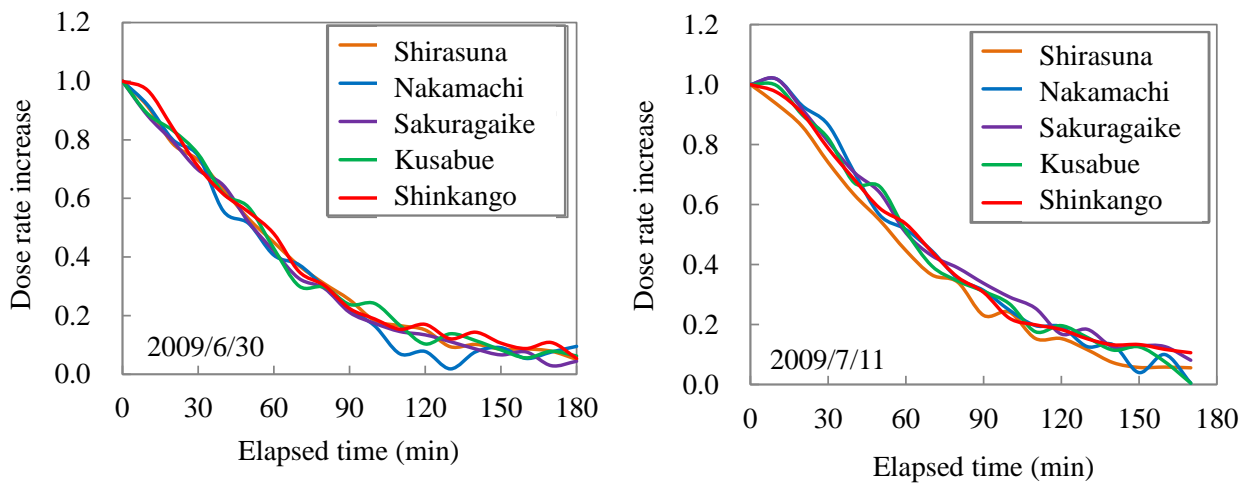


図 3-4 降雨後に測定された線量率上昇値の時間変化の例。線量率上昇値は降雨終了直後の値で規格化されている。

ラドン壊変生成物による線量率上昇値  $dD$  は以下の式で表される。

$$dD = \Gamma_{Pb} C_{Pb} + \Gamma_{Bi} C_{Bi} \quad (3-11)$$

$\Gamma$  : 単位地面上放射能濃度あたりの線量率上昇値

線量率計算モデルを用いて MS 毎に  $\Gamma$  を求める際に、幾何学的構造をモデルに入力し、降雨によって付与されるラドン壊変生成物は流出・浸透することなしに雨が蓄積する面（地表面と屋根面）に一様に沈着するとし、建物壁面および葉への付着はないと仮定した。

表 3-5 に各 MS の  $\Gamma$  をまとめた。MS 屋根上の  $\Gamma$  の MS 間の差異は MS 屋根の寸法によるものである。地面上の  $\Gamma$  は MS 屋根の寸法が小さく、MS 周囲に高い建物が少ない MS (桜ヶ池、平場、白砂) で大きい傾向であった。 $\Gamma$  は中町で最も小さく、新神子、白砂、および平場で大きく、表 2-1 で示した降雨時の線量率上昇値の大小関係を大まかに再現した。



式(3-9)と(3-10)の微分方程式を解き、式(3-11)に代入すると、降雨後の線量率上昇値は以下の式で表される。

$$dD = C_{0,Pb} \exp(-\lambda_{Pb}t) \Gamma_{Pb} + \left( \left( \frac{C_{0,Pb}\lambda_{Bi}}{\lambda_{Pb} - \lambda_{Bi}} + C_{0,Bi} \right) \exp(-\lambda_{Bi}t) - \left( \frac{C_{0,Pb}\lambda_{Bi}}{\lambda_{Pb} - \lambda_{Bi}} \right) \exp(-\lambda_{Pb}t) \right) \Gamma_{Bi} \quad (3-12)$$

$C_0$  : 降雨終了直後の地面上放射能濃度

$t$  : 降雨終了直後からの経過時間

表 3-5 単位地面上放射能濃度あたりの線量率上昇値  $\Gamma$  (Hirouchi et al. (2014a)を基に作成)

MS	$^{214}\text{Pb}$ (nGy h <sup>-1</sup> )/(kBq m <sup>-2</sup> )			$^{214}\text{Bi}$ (nGy h <sup>-1</sup> )/(kBq m <sup>-2</sup> )		
	MS roof	Ground	Total	MS roof	Ground	Total
Nakamachi	0.20	0.09	0.29	1.18	0.66	1.83
Sakurasanku	0.21	0.11	0.32	1.24	0.74	1.98
Center	0.19	0.13	0.32	1.14	0.88	2.02
Hamaokakita Elem. Sch.	0.22	0.10	0.32	1.32	0.68	2.00
Jitogata Elem. Sch.	0.23	0.10	0.33	1.34	0.67	2.01
Kusabue	0.23	0.10	0.33	1.34	0.71	2.05
Uenohara	0.16	0.17	0.33	0.94	1.16	2.10
Daito	0.22	0.12	0.34	1.32	0.79	2.12
Ogasa	0.22	0.10	0.33	1.32	0.72	2.05
Sakuragaika	0.15	0.18	0.33	0.91	1.25	2.16
Hiraba	0.16	0.18	0.35	0.96	1.25	2.21
Shirasuna	0.17	0.19	0.35	0.98	1.26	2.24
Shirowa Elem. Sch	0.22	0.12	0.34	1.31	0.83	2.13
Shinkango	0.22	0.16	0.38	1.32	0.94	2.26

### 3.2.3. 降雨後の線量率変動を用いた地面上放射能濃度比 ( $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比) の決定法

式(3-12)の未知数は  $C_{0,Pb}$  と  $C_{0,Bi}$  である。本来であれば、線量率から二個の未知数を一意に決定できない。本研究では、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  が同じ壊変系列であることと、降雨後の線量率上昇値の時間変化は降雨直後の  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の放射能濃度比に依存することを利用して、降雨後の線量率上昇値の時間変化から  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比を推定する手法を考案した。線量率上昇値の初期値を 1 とし、初期の  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比を変化させて式(3-12)を用いて計算した線量率上昇値の時間変化を図 3-5 に示す。 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の初期値が 1.5 の場合、線量率上昇値は  $^{214}\text{Bi}$

放射能濃度の時間変化に関係した指数関数的な減少を示した。 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の初期値が 0.7 の場合、最初の 10 min はわずかに線量率上昇値が増加し、その後、指数関数的な減少を示した。初期の増加は線量率上昇値への寄与が小さい  $^{214}\text{Pb}$  が壊変し、線量率上昇値への寄与が大きい  $^{214}\text{Bi}$  が生成したことに起因する。

降雨後の線量率の減衰傾向は  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比に依存し、線量率の大きさは地面上放射能濃度に依存するため、降雨終了後の線量率減衰傾向を式(3-12)の計算値で再現することにより、地面上ラドン壊変生成物濃度を核種別に一意に決定できる。本研究では地面上ラドン壊変生成物濃度  $C$  を決定するために、次式で表される線量率上昇値の実測値と計算値の差の二乗和  $\Delta$  が最小となる値を求めた。

$$\Delta = \frac{\sum_{i=1}^N (dD_{obs.} - dD_{cal.})^2}{N} \quad (3-13)$$

$N$  : 使用する実測値の数

添え字 *obs.* は実測値、*cal.* は式(3-12)の計算値  $dD$  である。

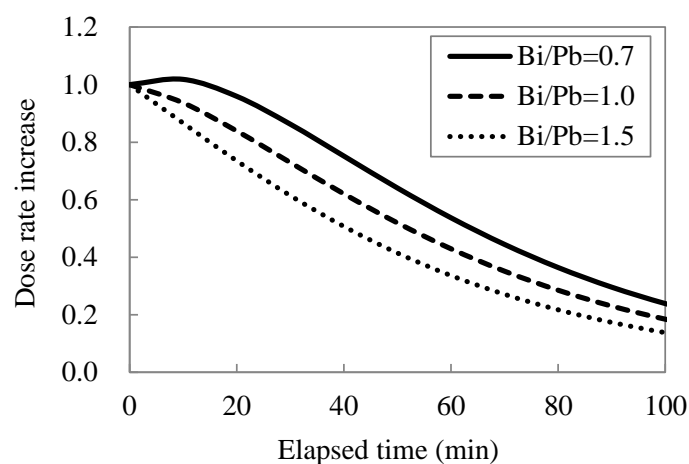


図 3-5 線量率上昇値の時間変化の  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比依存性 (引用 : Hirouchi et al., 2014a)

### 3.2.4. 解析対象

降雨後の線量率上昇値からラドン壊変生成物濃度を推定するために使用した測定値は、2004～2010年に浜岡原発周辺のMSで測定された降雨終了後の10 minごとの線量率上昇値である。本研究では  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の降下量がMS間で同じと見なせる降雨イベントを選択し、幾何学的構造を考慮し、放射性物質の流出・浸透を考慮せずに推定した濃度のMS間の一致度を検討する。そのために、MSと降雨イベントを選択するための基準を設けた。

## ・MS の選定

降雨時のラドン壊変生成物の沈着量は主に上空の大気中ラドン濃度、降水強度、および積算降水量に依存する (Fujinami, 1996; Minato, 2007)。MS 間の距離が遠くなると、これらの値が MS 間で異なり、同降雨イベントでもラドン壊変生成物の沈着量が MS 間で異なる可能性がある。その可能性を検討するために、降雨時の線量率上昇値の MS 間の比較 (図 3-6) と、降雨時の線量率上昇値の実測値とモデルで計算した線量率上昇値の比較を行った (図 3-7)。全 MS で沈着量が同じと仮定した場合に、線量率上昇値の計算値と実測値がどの程度一致するかを確認するために、モデル計算値は降雨時の線量率実測値の平均値と一致するように、全 MS に共通して  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地上放射能濃度をそれぞれ  $4.8 \text{ kBq m}^{-2}$  として求めた値である。

図 3-6(a)に示されるように、MS 間の距離が近い白砂と中町 (距離: 約 1 km) では、線量率上昇値は概ね比例関係であり、決定係数  $R^2$  は 0.944 であった。一方、MS 間の距離が遠い白砂と大東 (距離: 約 7 km) では、図 3-6(b)に示されるように、線量率上昇値は概ね比例関係にあるものの、決定係数  $R^2$  は 0.812 と低かった。散布図のばらつきは、上空の大気中ラドン濃度、降水強度、および積算降水量の MS 間の違いに起因していると考えられる。この結果から、MS 間の距離が遠いほど、同降雨イベントでもラドン壊変生成物の沈着量が異なるイベントが多くなることが推察される。

図 3-7 より、浜岡原発から 3 km 以上離れた MS (大東、小笠、浜岡北小学校、地頭方小学校、および白羽小学校) と上ノ原では、線量率上昇値の実測値とモデル計算値が 10% 以上異なることが示されている。降雨時の線量率上昇値はラドン壊変生成物の沈着量と MS 周囲の遮蔽物の有無に依存する。後者は線量率計算モデルで再現しているため、線量率上昇値の実測値と計算値が一致しなかった主な理由ではないと考えられる。浜岡原発から半径 3 km 以上離れた MS では上述したように、上空での大気中ラドン濃度、降水強度、および積算降水量が MS 間で異なるイベントが多くなり、ラドン壊変生成物の沈着量が MS 間で異なったため、線量率上昇値の実測値と計算値の一致度が悪いと考えられる。

モデルでは放射性物質は地表面または屋根上に沈着すると仮定し、樹木への付着を考慮していない。上ノ原は他の MS と比べて、MS 周囲に葉の多い樹木が多く存在し、その樹木にラドン壊変生成物が付着する可能性がある。実際には上方の樹木に放射性物質が付着しているのに対して、モデル計算では放射性物質が地表面に沈着し、MS 建屋によって  $\gamma$  線が遮蔽されて線量率への寄与が小さく計算される。それ故、上ノ原では樹木への放射性物質の付着を考慮していなかったため、線量率上昇値の実測値と計算値の一致度が悪いと考えられる。

以上のことから、大東、小笠、浜岡北小学校、地頭方小学校、白羽小学校、および上ノ原は解析対象から外し、本研究では浜岡原発から半径 3 km 以内に存在する 7 つの MS (中町、

監視センター、草笛、桜ヶ池、平場、白砂、および新神子) を解析対象とした。佐倉三区は2007年からMSの位置を変更し、それ以前のMS周辺の幾何学的構造が不明であるため、解析対象から外した。

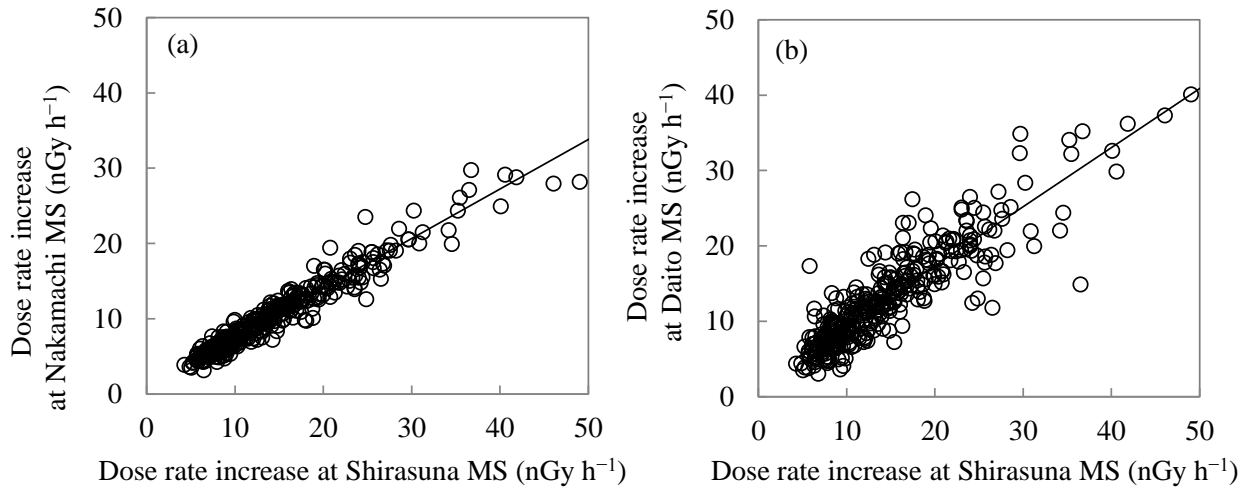


図 3-6 線量率上昇値の MS 間の比較。(a) 白砂と中町、(b) 白砂と大東。(引用 : Hirouchi et al., 2014b)

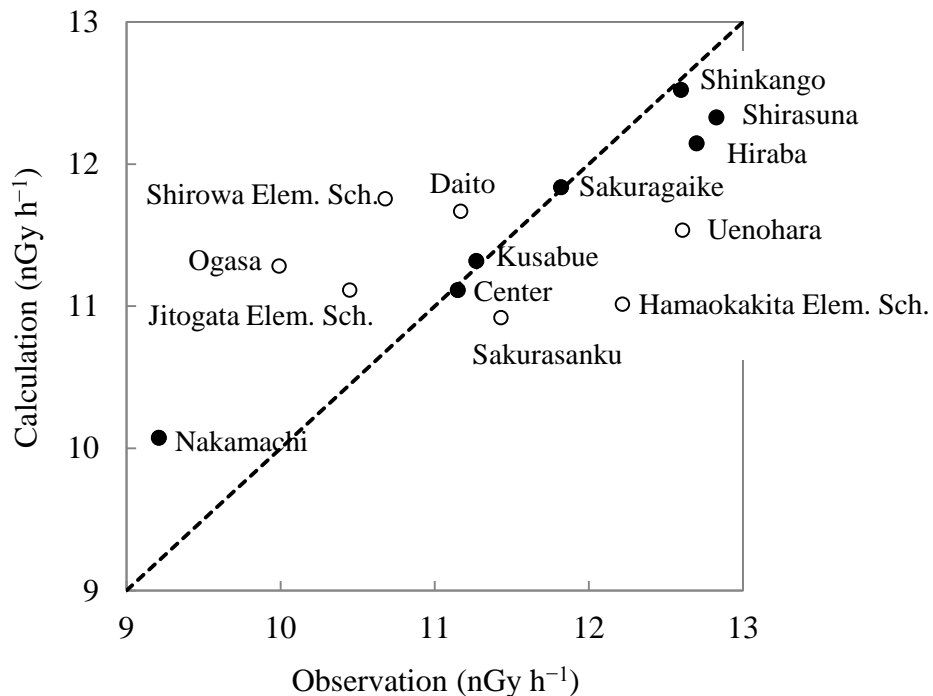


図 3-7 降雨時の線量率上昇値の実測値と計算値の比較。実測値は2004～2010年の降雨イベントの最大線量率上昇値の平均値。黒丸は解析対象MS、白丸は解析対象外のMS。

### ・降雨イベントの選定条件

全ての MS で以下に示した 4 条件を全て満たす降雨イベントを解析対象とした。

#### 1. 線量率上昇値

無降雨時での線量率は 2.5 節で示したように大気中ラドン濃度の変動により約  $1 \text{ nGy h}^{-1}$  変動する。大気中ラドン濃度の変動による濃度推定値の誤差を相対的に小さくするため、本研究では降雨終了直後の線量率上昇値が  $5 \text{ nGy h}^{-1}$  以上の降雨イベントを対象とした。

#### 2. 降水強度

降水中のラドン壊変生成物濃度は降水強度に依存すると報告されている (Minato, 1983; Hayakawa, 1985; Fujinami et al., 1985; Fujinami, 1996; Horng et al., 2004)。降水強度の差によるラドン壊変生成物の沈着量の MS 間の差が小さいイベントを選択するため、降水強度の MS 間の差の絶対値が各  $10 \text{ min}$  で  $0.5 \text{ mm (10 min)}^{-1}$  以内の降雨イベントを選択した。

#### 3. 積算降水量

2. と同じ理由で、積算降水量の MS 間の差の絶対値が  $10 \text{ mm}$  以内の降雨イベントを選択した。

#### 4. 線量率上昇値の再現性

大気中ラドン濃度の変動と降雨後の放射性物質の系外への流出または系外からの流入などから生じる線量率変動の不確かさによる濃度推定値の誤差を減らすため、式 (3-13) の  $\Delta$  が  $0.1 \text{ (nGy h}^{-1})^2$  未満である降雨イベントを対象とした。

2004~2010 年の降雨イベントの内、以上の 4 条件を全ての MS で満たすものは 81 イベントであった。

### 3.2.5. 推定結果

各年の降雨終了直後の地面上  $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$  濃度推定値の平均値を表 3-6 に、全ての降雨イベントの濃度推定値の平均値および  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の幾何平均値を図 3-8 に示す。図 3-8 の横軸は、放射性核種が地表面形態によらず地表面上に一様に存在している条件下で線量率計算モデルを用いて計算した全線量率上昇値に対する屋根面を含む舗装面からの線量率の寄与割合である。寄与割合が大きい MS ほど、舗装面割合が多い MS を意味する。降雨終了直後の

地面上放射能濃度推定値は $^{214}\text{Bi}$ よりも $^{214}\text{Pb}$ の方が小さかった(81 イベント中 78 イベント)。表 3-6 より、年平均地面上濃度推定値の MS 間の最大の差異は $^{214}\text{Pb}$ では 20 %、 $^{214}\text{Bi}$ では約 15 %であり、さらにどの年も白砂と平場の濃度推定値が大きく、中町の濃度推定値が一番小さい傾向である。図 3-8(b)を見ると、 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比は未舗装面(砂地、砂利など)割合が多い MS で高く、舗装面(アスファルト、コンクリート、屋根面など)割合が多い MS で低い傾向である。

本研究では解析対象として MS 間で $^{214}\text{Pb}$ と $^{214}\text{Bi}$ の沈着量が同じと見なせる降雨イベントを選択した。それにもかかわらず、図 3-8 (a)で示されるように、全降雨イベントの放射能濃度推定値の平均値の MS 間の差は $^{214}\text{Pb}$ では 8%以内であり、一方 $^{214}\text{Bi}$ では約 15%と比較的大きく、さらに舗装面割合が多い MS ほど濃度推定値が小さい傾向が見られる。

舗装面およびラバーで覆われている MS 屋根面に降下した雨水は未舗装面と比べて流出しやすいため、降雨終了後のラドン壊変生成物の残存量は未舗装面よりも MS 屋根面および舗装面で少なくなると考えられる。解析対象として MS 間で降下量が同じと見なせる降雨イベントを選択したものの、放射性物質の流出により MS 間で残存量が等しくなるとは限らない。それ故、図 3-8(a)で示されるように、 $^{214}\text{Bi}$ の地面上放射能濃度推定値が舗装面割合の多い MS ほど小さく推定されたことは、放射性物質を含んだ雨水の流出により放射性物質の残存量が MS 間で異なったことを反映した結果であると考えられる。

しかし、 $^{214}\text{Pb}$ の地面上放射能濃度推定値は $^{214}\text{Bi}$ に見られた舗装面割合が多い MS ほど濃度推定値が小さい傾向が見られない。放射性物質が浸透した場合、土壌による $\gamma$ 線の遮蔽により、線量率への寄与がより小さくなる。減弱は $\gamma$ 線エネルギーの大きさによって異なり、エネルギーが低いほど、減弱が相対的に大きい。放射性物質の浸透を考慮して地面上放射能濃度を推定した場合、未舗装面割合が多い MS ほど、考慮しない場合と比べて濃度推定値はより大きく計算され、考慮の有無による濃度推定値の差は $\gamma$ 線エネルギーが低いほど大きい。それ故、浸透と流出の競合により、図 3-8(a)のように $^{214}\text{Pb}$ の地面上放射能濃度推定値は MS 間によらずほぼ一定になったと考えられる。図 3-8(b)で示された $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比が未舗装面割合の多い MS ほど大きく推定された要因の一つとして、放射性物質の浸透を考慮していないためであると考えられる。

表 3-6 降雨終了直後の地面上放射能濃度推定値の年平均値 ( $\text{kBq m}^{-2}$ )

$^{214}\text{Pb}$	Shirasuna	Hiraba	Shinkango	Sakuragaike	Kusabue	Center	Nakamachi
2004	2.6	3.0	2.8	3.1	2.9	2.8	3.2
2005	2.7	2.9	2.5	2.9	2.6	3.0	2.9
2006	3.6	3.6	3.3	3.3	3.6	3.4	3.2
2007	2.8	3.1	3.0	2.9	2.9	3.4	2.9
2008	3.0	3.3	3.0	3.2	2.8	3.3	2.8
2009	3.6	4.1	3.8	4.0	3.7	3.8	3.5
2010	4.3	5.0	4.8	4.7	4.6	4.5	4.2
2004-2010	3.3	3.6	3.4	3.5	3.4	3.5	3.3

$^{214}\text{Bi}$	Shirasuna	Hiraba	Shinkango	Sakuragaike	Kusabue	Center	Nakamachi
2004	5.7	5.1	4.8	5.1	5.3	5.2	4.8
2005	4.5	4.5	4.2	4.2	4.4	4.3	3.9
2006	5.5	5.6	5.3	5.0	5.2	5.0	4.5
2007	5.4	5.5	5.5	4.9	5.0	5.3	4.6
2008	4.6	4.4	4.1	4.4	4.2	4.4	4.1
2009	5.3	5.3	5.2	5.2	5.1	4.9	4.8
2010	6.6	6.9	6.6	6.4	6.3	6.1	5.7
2004-2010	5.4	5.3	5.1	5.1	5.1	5.0	4.6

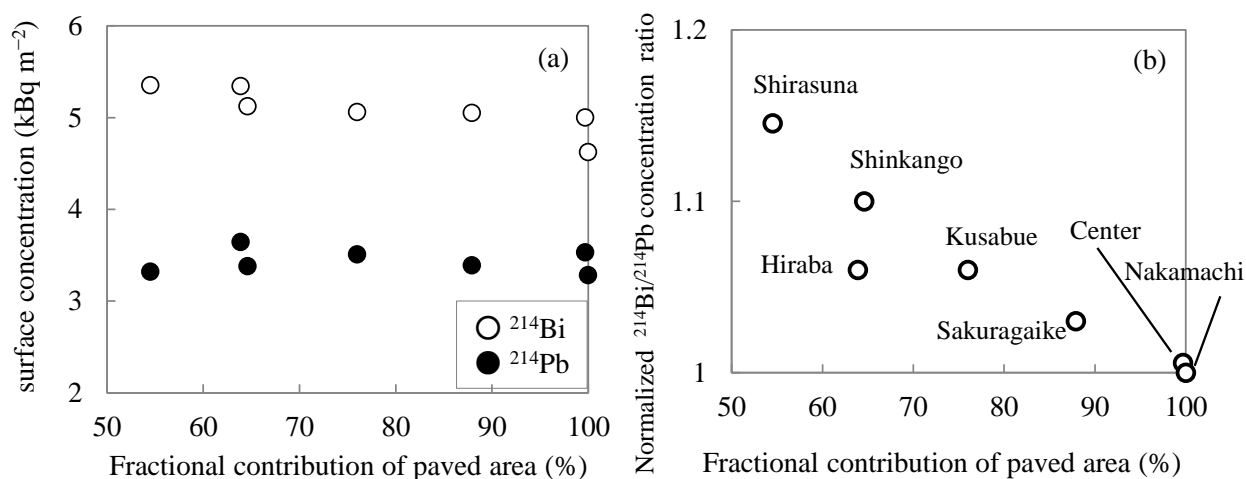


図 3-8 (a): 全降雨イベントの地面上放射能濃度推定値の平均値と全線量率に対する舗装面上からの寄与率との関係。(b):  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比と舗装面上からの線量率への寄与率の関係。 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比は中町(横軸の値が 100%の MS)の値で規格化されている。(引用: Hirouchi et al., 2014a, b)

・地面上ラドン壊変生成物濃度推定値の誤差検討

降雨後の線量率上昇値の変動から推定した地面上ラドン壊変生成物の放射能濃度および $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比の誤差を検討する。本研究の定義より、線量率上昇値は降雨時の線量率とバックグラウンド線量率の差である。降雨イベント毎に求めたバックグラウンド線量率の標準偏差は最大で $0.5 \text{ nGy h}^{-1}$ であったため、線量率上昇値の不確かさは約 $0.5 \text{ nGy h}^{-1}$ である。

ここで、推定した地面上放射能濃度の比 $R$  ( $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ )が一定の場合の地面上濃度推定値の誤差を検討する。濃度比 $R$ と式(3-11)から線量率上昇値は

$$dD = C_{Pb}(\Gamma_{Pb} + R\Gamma_{Bi}) \quad (3-14)$$

と表わすことができる。誤差伝播より地面上濃度の誤差 $\delta C$ は次の式で表される。

$$\delta C_{Pb} = \frac{\delta dD}{\Gamma_{Pb} + R\Gamma_{Bi}} = \frac{0.5}{\Gamma_{Pb} + R\Gamma_{Bi}}, \quad \delta C_{Bi} = R\delta C_{Pb} = \frac{0.5R}{\Gamma_{Pb} + R\Gamma_{Bi}} \quad (3-15)$$

式(3-15)より誤差が大きくなるのは $\Gamma$ が小さいMSであり、本研究では $\Gamma$ が最も小さい中町で誤差が最大となることが分かる。推定された降雨終了直後の $R$  (0.7~3.0)と中町の $\Gamma$ を用いて地面上放射能濃度の誤差を求めた結果、 $\delta C_{Pb}$ の最大値は $0.3 \text{ kBq m}^{-2}$ 、 $\delta C_{Bi}$ の最大値は $0.3 \text{ kBq m}^{-2}$ であった。

本手法による $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比の推定精度を検討するために、線量率上昇値の計算値と推定値の比較を行った(図3-9)。図3-9(a)では、線量率上昇値は降雨終了後10~20 minで緩やかな減少を示した。図3-9(b)では、線量率上昇値は緩やかな減少を示さず、指数関数に従った減少を示した。 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比に依存した線量率上昇値の時間変化は全てのMSで共通であり、線量率変動の特徴を本手法を使用することで良好に再現できていることが示されている。図3-9より、 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比が0.1異なると、降雨終了後から20 minまでの線量率の再現性が悪いことが示され、本手法により $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 濃度比は0.1の違いを区別して推定できることが示された。



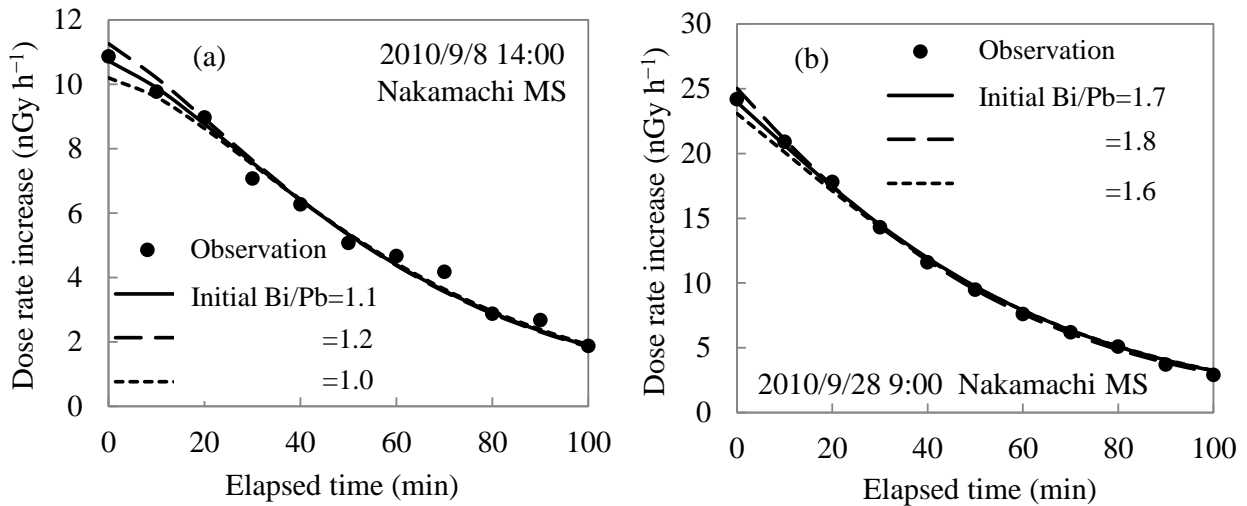


図 3-9 降雨後の線量率上昇値の時間変化の例 (Hirouchi et al., (2014a)を基に作成)

### 3.3. 線量率を用いた流出・浸透特性の推定

前項では、放射性物質の沈着量が MS 間で等しいと考えられる降雨イベントを選択したにもかかわらず、降雨後の線量率変動から推定した地面上濃度推定値および  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比は MS 間で異なっており、この原因として放射性物質の流出および浸透の可能性が挙げられた。本節ではこの MS 間の濃度推定値の差異を利用して、各 MS の流出・浸透特性の推定可能性の検討を行う。さらに、流出・浸透の考慮による濃度推定値への影響の大きさを検討する。

濃度推定では、地表面タイプを次の 3 つに分類して扱った。①砂地、砂利などで覆われた未舗装面、②アスファルト、コンクリートなどで覆われた舗装面、③ MS 屋根面。未舗装面上に沈着した放射性物質は他の面と比較して流出しにくい、地表面下に雨水とともに浸透する可能性がある。舗装面と MS 屋根面では放射性物質が浸透せずに、雨水とともに流出する可能性がある。静岡県内の MS の屋根は全てラバーコーティングされ舗装面よりも凹凸が少なく、わずかに傾いているため、雨水が流れやすく、舗装面と異なった流出特性を示すと考えられる。以上より本研究では、未舗装面に沈着した放射性物質は流出せずに浸透のみが生じるとし、舗装面および MS 屋根面に沈着した放射性物質は浸透せずに流出のみが生じると仮定した。

#### 3.3.1. 浸透特性の推定方法

浸透した核種から放出される  $\gamma$  線は土壌物質による散乱および吸収の結果、直接線の減弱

の効果を受けるため、地表面に存在する場合に比べて光電ピーク部の計数率は減少し、その相対的な減少幅は低エネルギー側ほど大きい。それ故、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  が地表面上に存在すると仮定した場合よりも、同じ深さに  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  が浸透したと仮定した場合で計算した  $\Gamma_{\text{Bi}}/\Gamma_{\text{Pb}}$  比は大きく計算される。これは沈着量が MS 間で近い値を持つと考えられる降雨イベントを選択して解析したにもかかわらず、浸透が起きやすい未舗装面が多い MS ほど放射性物質の浸透を考慮しないで推定した  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比が大きく計算される可能性を示す。このことは、推定した  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の MS 間の差異を用いることによって、MS 周辺の浸透特性（ここでは、浸透深さ）を推定できる可能性を示している。そこで、本研究では未舗装面が無い MS（中町）で推定された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比を実際に沈着した  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比と同じであると仮定し、その値と各 MS で推定された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の差異を浸透深さの尺度として用いた。

放射性物質が浸透した場合の放射能濃度の分布には、指数関数的な分布、ガウス分布、それらを複合した分布などさまざまな分布が適用される。チェルノブイリ事故後の人工放射性核種の放射能濃度の深度分布はおおよそ指数関数に従っていることが報告されている（Likar et al., 2001; Belivermis, 2012）。本研究では濃度分布の違いによる濃度推定値の差異の大きさを検討するために、未舗装面に沈着した放射性物質の放射能濃度は以下の式で表した指数分布と単一ピークの二つの分布を仮定し、それぞれの分布で濃度推定を行った。

$$\text{指数分布} \quad C = \frac{\rho C_0}{\beta} \exp\left(-\frac{\rho}{\beta} z\right) \quad (3-16)$$

$$\text{単一ピーク} \quad C = C_0 \cdot \delta\left(z - \frac{d_i}{\rho}\right) \quad (3-17)$$

$\rho$  : 土壌密度

$z$  : 深さ

$C_0$  : 単位体積当たりの放射能

$\delta$  はデルタ関数である。二つの濃度分布を深さ 0 から無限大まで積分した場合に単位面積土壌柱に存在する放射能が  $C_0$  となるように設定した。ここでそれぞれの分布での浸透深さを  $\beta$  と  $d_i$  と定義し、それらを浸透特性として導出する。 $\beta$  は放射性核種の深度分布特性を決定する上でよく使われ、「重量緩衝深度」または「 $\beta$  値」と呼ばれる。浸透深さ  $\beta$  および  $d_i$  を決定する際、図 3-8(b)に示された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比を最も良く再現できる値を各 MS で決定した。

### 3.3.2. 流出特性の推定方法

放射性物質の流出により、地表面形態毎に地面上放射能濃度が変わりうる。MS 屋根面に沈着した放射性物質が流出した場合、その放射性物質は屋根下に蓄積する。そこに沈着した核

種からの  $\gamma$  線は MS 建屋を通過して検出器に到達するため、その核種からの寄与はコンクリートによる減弱により無視できるほど小さい。舗装面と未舗装面の境界には障害物（側溝など）が多いため、多くの場合、流出する他の面からの未舗装面への流入は少量である。そこで、流出した放射性物質全てはその場から無くなるとした。

本研究では、流出特性を放射性物質が流出しにくい未舗装面での地面上放射能濃度と MS 屋根面および舗装面上の地面上放射能濃度の比  $R_r$  (MS 屋根面/未舗装面)、 $R_p$  (舗装面/未舗装面) として定義する ( $R$  を残存割合と記述する)。ここで、未舗装面上の放射能濃度は前目の手法で推定した浸透特性を考慮し、地表面から無限深さまで積分した値を用いた。

測定される線量率上昇値は各地表面形態の線量率上昇値の和として、以下の式で表される。

$$dD = \sum_{i=^{90}\text{Pb},^{210}\text{Bi}} (R_r f_{r,i} + R_p f_{p,i} + f_{u,i}) C_{D,i} \Gamma_i \quad (3-18)$$

ここで  $f$  は、放射性核種が地表面形態によらず地表面上に一様に存在している条件下で線量率計算モデルを用いて計算した全線量率上昇値に対する各地表面形態からの線量率寄与割合である ( $f_r + f_p + f_u = 1$ )。添え字  $r$ 、 $p$ 、および  $u$  はそれぞれ MS 屋根面、舗装面、および未舗装面を表している。各 MS の  $f$  を表 3-7 に示す。 $C_D$  は未舗装面での単位面積土壌柱に存在する放射能である。未舗装面では放射性物質は流出しないと仮定しているため、 $C_D$  は単位面積当たりに沈着した放射能を表している。

ここでは、 $R$  と  $C_D$  を各降雨イベントで決定するために、式 (3-18) を用いて各 MS で計算した線量率上昇値と実測値の差の二乗和が最小となる値を求めた。

$$\Delta = \sum_j (dD_{cal,j} - dD_{obs,j})^2 \quad (3-19)$$

$j$  は MS を表している。本研究では降下量が MS 間で同じと見なせる降雨イベントを選択したため、MS 間で  $C_D$  は等しいとした。さらに、MS 屋根の形状と物質は同じであり、舗装面は平坦な MS を選択したため、 $R$  も MS 間で等しいとした。

表 3-7 各 MS での全線量率上昇値に対する各地表面形態からの寄与割合 (引用: Hirouchi et al., 2014b)

MS	$f_r$	$f_p$	$f_u$
Nakamachi	0.69	0.31	0.00
Sakuragaike	0.46	0.42	0.12
Kusabue	0.65	0.11	0.24
Hiraba	0.47	0.17	0.36
Shinkango	0.58	0.07	0.35
Shirasuna	0.54	0.00	0.46

### 3.3.3. 浸透特性の推定結果

MS 毎に浸透を考慮した場合の  $\Gamma_{Bi}/\Gamma_{Pb}$  比を図 3-10 に示す。比は浸透深さ  $0 \text{ g cm}^{-2}$  の時の値で規格化されている。ある深さを超えると、未舗装面からの線量率への寄与率が無視できるほど小さくなり、線量率の寄与は舗装面および MS 屋根面に沈着した核種のみとなる。そのため、図 3-10 で示されるようにある深さで  $\Gamma_{Bi}/\Gamma_{Pb}$  比は最大値をとり、その後は浸透深さが深くなるにつれて 1 に近づく。この比は白砂、新神子などの MS 周囲に未舗装面割合が多い（表 3-7 の  $f_u$  が大きい）MS で大きく、桜ヶ池、草笛などの MS 周囲に舗装面割合が多い（表 3-7 の  $f_p$  と  $f_r$  の和が大きい）MS で小さく計算された。 $\Gamma_{Bi}/\Gamma_{Pb}$  比の最大値は濃度分布間で異なっていたが、MS 間の  $\Gamma_{Bi}/\Gamma_{Pb}$  比の大小関係は濃度分布間で同じであった。

新神子と白砂は MS 周囲に高さ約 3 m の土手（未舗装面）が存在していた。一方、他の MS 周囲は平坦な土地である。土手上に沈着し、浸透した放射性核種から放出される  $\gamma$  線は、浸透深さが同じであっても低い土地と比べて、土壤中を通る長さが長くなる。それ故、浸透による  $\Gamma_{Bi}/\Gamma_{Pb}$  比は他の MS よりも大きくなる。図 3-10 より、未舗装面割合が類似している（表 3-7 の  $f_u$  が類似している）平場と新神子を比較すると、土手がある新神子の方が  $\Gamma_{Bi}/\Gamma_{Pb}$  比が大きく計算されている。さらに図 3-8(b)で示された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の平場と新神子間の違いを MS 周囲の土手の有無によって説明できることが示されている。

中町で推定された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比を 1 とした時の各 MS で推定された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比（図 3-8(b)）と一致する浸透深さを決定した。 $\beta$  は桜ヶ池で  $2.5\sim 5.0 \text{ g cm}^{-2}$ 、草笛で  $2.5\sim 5.0 \text{ g cm}^{-2}$ 、平場で  $2.5\sim 5.0 \text{ g cm}^{-2}$ 、新神子で  $2.0\sim 4.0 \text{ g cm}^{-2}$ 、白砂で  $3.0\sim 5.0 \text{ g cm}^{-2}$  であり、 $d_i$  は桜ヶ池で  $1.3\sim 1.6 \text{ g cm}^{-2}$ 、草笛で  $1.5\sim 3.2 \text{ g cm}^{-2}$ 、平場で  $1.3\sim 1.6 \text{ g cm}^{-2}$ 、新神子で  $0.8\sim 1.0 \text{ g cm}^{-2}$ 、白砂で  $1.6\sim 3.2 \text{ g cm}^{-2}$  の値が得られた。不確かさは推定された  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  濃度比の誤差によるものである。どの MS も  $\beta$  は約  $3 \text{ g cm}^{-2}$ 、 $d_i$  は約  $1.6 \text{ g cm}^{-2}$  の値が得られた。

Belivermis ら（2012）は、浸透特性はその土地の土壌特性、例えば土壌の種類、土地利用、および pH に依存すると報告している。推定された浸透深さの不確かさは大きいものの、浸透深さが MS によらずほぼ一定であったことは MS 周囲の土壌構造が主に共通して砂質であったことによると考えられる。

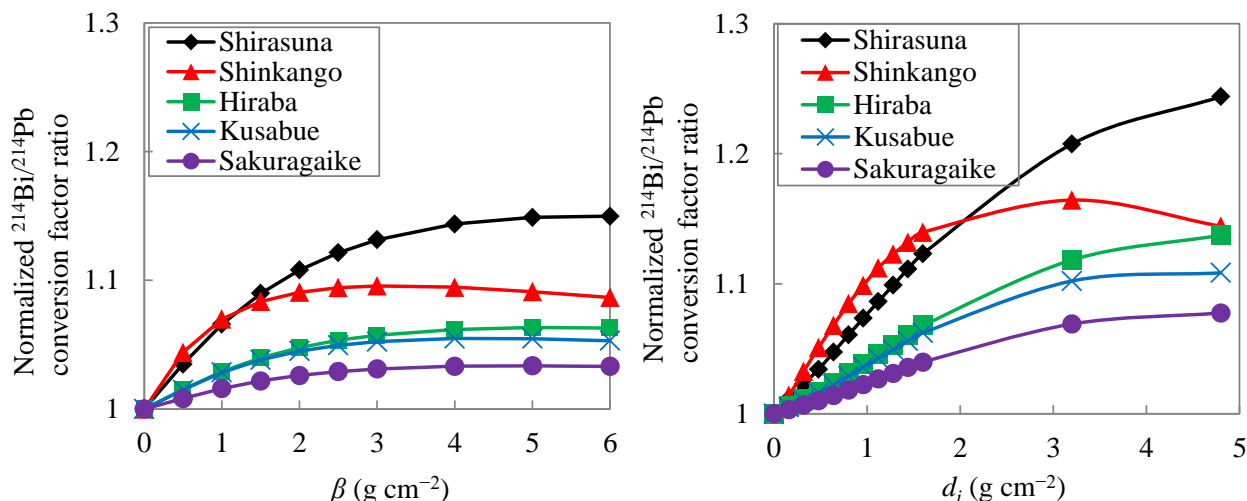


図 3-10 線量率換算係数  $\Gamma$  の  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  比 (左: 指数分布、右: 単一ピーク)。 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  比は浸透深さ 0 の時で規格化されている。(引用: Hirouchi et al., 2014b)

### 3.3.4. 流出特性の推定結果

推定した残存割合  $R$  の全降雨イベントの平均値とその標準偏差は屋根面で  $R_r=0.63\pm 0.18$ 、舗装面で  $R_p=0.76\pm 0.09$  であり、それぞれの標準偏差は数 10%であった。MS 屋根面は舗装面よりも凹凸が少なく、雨水が流出しやすい構造になっているため、表面の流出のしやすさを反映し、舗装面よりも屋根面で推定した残存割合が小さい (81 イベント中 69 イベント) と考えられる。表面形態の他に降水強度および積算降水量は流出特性に影響を与えると考えられる。図 3-11~13 に各降水事象の  $R_r$  と  $R_p$  の平均値とその標準偏差を示す。推定した  $R_r$  と  $R_p$  の標準偏差が大きく、本解析では  $R_r$  と  $R_p$  の積算降水量および降水強度に対する依存性の有無の判断は出来ない。

推定した残存割合を用いて線量率実測値をどの程度再現できるかを 2010 年 7 月 3 日の降雨イベントを対象に検討した。この降雨イベントは積算降水量が 18.5 mm、最大降水強度が 3 mm (10 min)<sup>-1</sup> であり、全解析対象の平均積算降水量 (15.5 mm) と平均最大降水強度 (2 mm (10 min)<sup>-1</sup>) に近く、本研究で対象とした 81 イベントの典型例と見なせる。残存割合は推定値の平均値 ( $R_r=0.63$ ,  $R_p=0.76$ ) を用い、沈着量は推定値として得られた  $C_{D,pb}=1.6 \text{ kBq m}^{-2}$ 、 $C_{D,Bi}=2.0 \text{ kBq m}^{-2}$  とし、全 MS で等しいとして線量率上昇値を計算した。

計算した線量率上昇値と実測値の比較を図 3-14 に示す。計算値と実測値の差は全 MS で 1 nGy h<sup>-1</sup> 以内であった。これは大気中ラドン濃度の変動による線量率変動と同等であり、推定した残存割合を用いて計算した線量率上昇値は実測値を合理的に再現できることを示している。

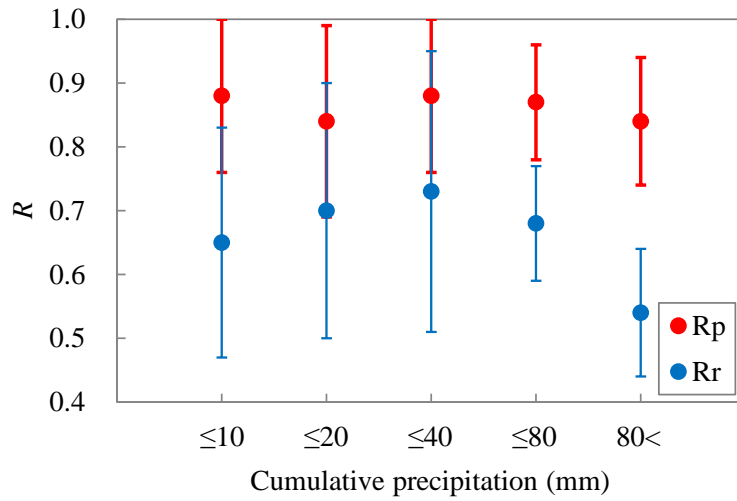


図 3-11 各積算降水量の  $R_r$  と  $R_p$  の平均値とその標準偏差

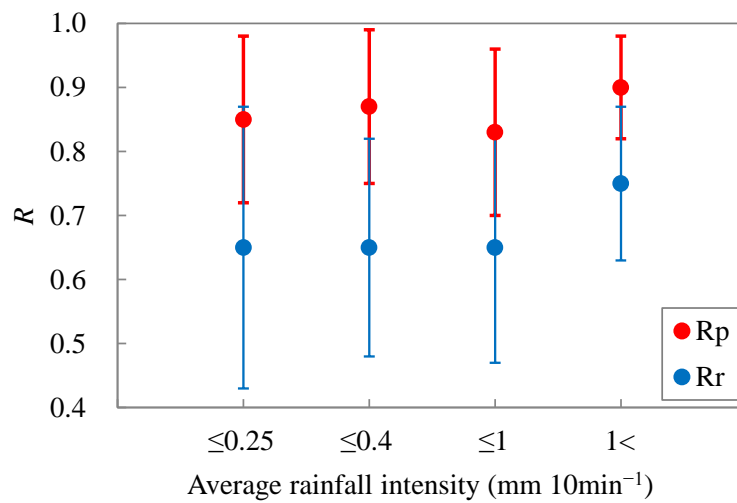


図 3-12 各平均降水強度の  $R_r$  と  $R_p$  の平均値とその標準偏差

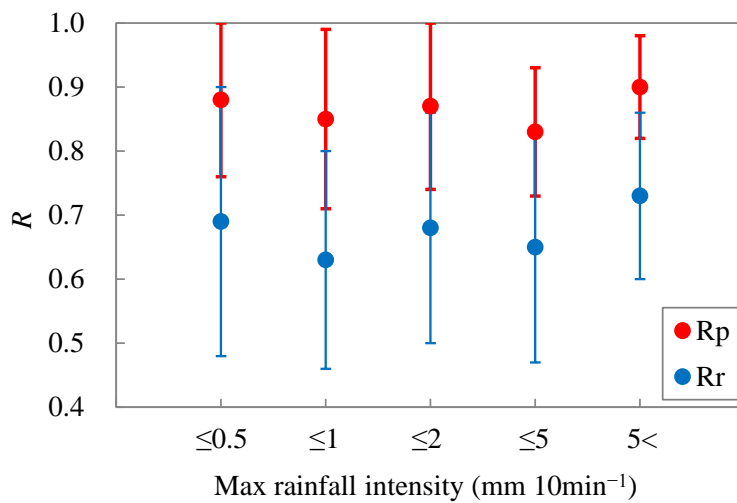


図 3-13 各最大降水強度の  $R_r$  と  $R_p$  の平均値とその標準偏差

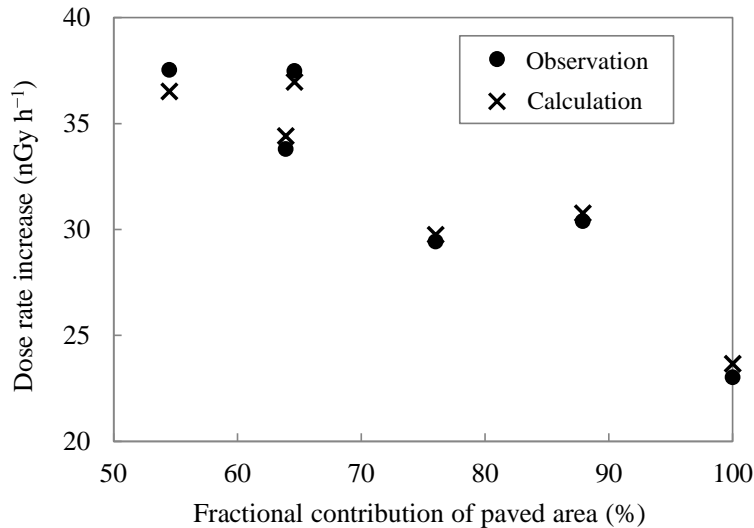


図 3-14 2010/7/3 の線量率上昇値の実測値と計算値の比較（引用：Hirouchi et al., 2014b）

### 3.3.5. 流出と浸透を考慮した地面上放射能濃度推定値

流出と浸透を考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを検討するために、次の 3 ケースで濃度推定を行った。

ケース 1：流出と浸透を考慮しない（図 3-8(a)と同じ）

ケース 2：浸透のみ考慮

ケース 3：流出と浸透の両方を考慮

以上 3 ケースの地面上放射能濃度推定値の結果を図 3-15 に示す。ケース 2 の地面上放射能濃度は地表面から無限深さまで積分した値（単位面積土壌柱に存在する放射能）である。ケース 3 の地面上放射能濃度は未舗装面上の単位面積当たりの放射能  $C_D$  である。ケース 2 および 3 の地面上放射能濃度を計算する際、浸透深さを 3.3.3.項で推定した平均的な  $\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$ 、 $d_i=1.6 \text{ g cm}^{-2}$  とした。ケース 3 の地面上放射能濃度を計算する際、残存割合を 3.3.4.項で推定した平均的な  $R_r=0.63$ 、 $R_p=0.76$  とした。図 3-15 に示された誤差棒は流出・浸透特性の推定で示された  $\beta$ 、 $d_i$ 、 $R_r$ 、および  $R_p$  の誤差に起因する。

図 3-15 の上段と下段を比較すると、指数分布と単一ピーク分布を仮定した時の地面上放射能濃度推定値の差は最大で 5% であり、分布の違いによる濃度推定値の差異はばらつきと比べて小さいことが示された。そのため以降では、浸透による濃度の深度分布を一般的に使われている指数分布と仮定した時（図 3-15 の下段）の推定値について記述する。

ケース 3 では  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  両方の地面上放射能濃度推定値の不確かさは約 25% であるものの、濃度推定値は舗装面割合に依存していないように見える。ケース 2 では地面上放射能濃度はケース 3 と比較して約 35% 低く見積もられている。地面上放射能濃度推定値のケース 2

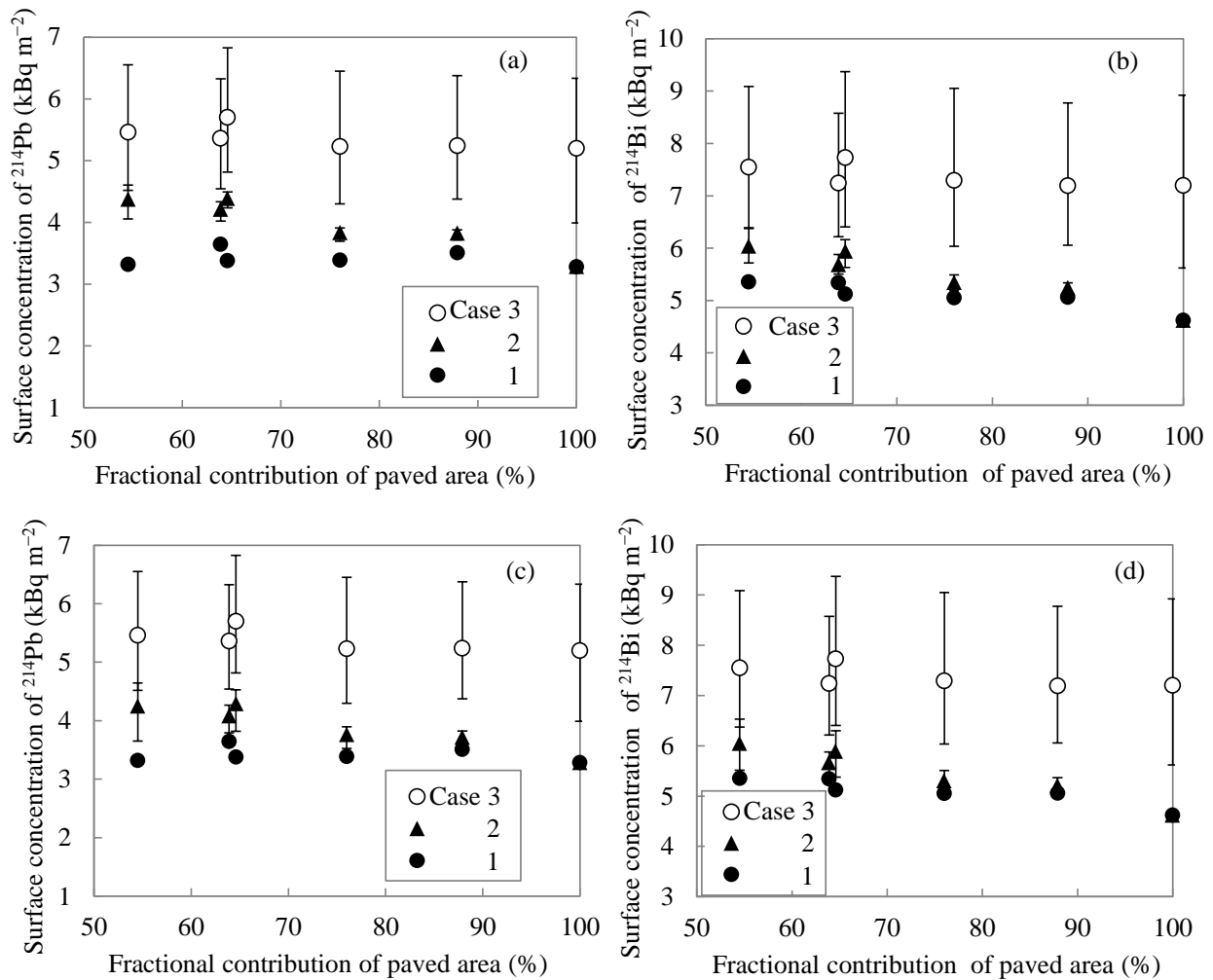


図 3-15 地面上放射能濃度と舗装面からの線量率への寄与率との関係。(a) :  $^{214}\text{Pb}$  単一ピーク、(b) :  $^{214}\text{Bi}$  単一ピーク、(c) :  $^{214}\text{Pb}$  指数分布、(d) :  $^{214}\text{Bi}$  指数分布。Case 1 は浸透と流出の両方を考慮していない場合、Case 2 は浸透のみ考慮した場合、Case 3 は浸透と流出の両方を考慮した場合。(引用 : Hirouchi et al., 2014b)

と 3 の差は舗装面割合が低い MS ほど小さい。これは舗装面および屋根面に沈着した放射性物質は未舗装面に沈着した放射性物質に比べて雨水が流出しやすいと仮定したことを反映した結果である。ケース 1 ではケース 3 と比較して約 40% 低く見積もられている。3.2.5.項で述べたように、ケース 1 で推定した  $^{214}\text{Pb}$  の地面上放射能濃度は舗装面割合に依存していないように見える一方で、 $^{214}\text{Bi}$  の濃度は舗装面割合の多い MS ほど小さく推定された。ケース 2 と 3 およびケース 1 と 3 間の濃度推定値の差から、線量率上昇値を用いて濃度推定を行う際、流出過程は浸透過程よりも濃度推定値に大きな影響を与えることが示されている。

ケース 1 と 2 の放射能濃度推定値を比較すると、放射性物質の浸透を考慮することによる濃度推定値への影響の大きさは舗装面割合が少ない MS ほど大きいことが示されている。ケ



ース 2 と 3 の放射能濃度推定値を比較すると、流出を考慮することによる濃度推定値への影響の大きさは舗装面割合が多い MS ほど大きいことが示されている。流出と浸透考慮による濃度推定値への影響が競合したため、ケース 1 で推定した  $^{214}\text{Pb}$  濃度推定値は MS によらず一定に見えたことが本解析で示された。一方、 $^{214}\text{Bi}$  は  $^{214}\text{Pb}$  よりも放出する  $\gamma$  線のエネルギーが高いため、浸透による濃度推定値への影響は  $^{214}\text{Pb}$  よりも小さい。それ故、 $^{214}\text{Bi}$  では浸透による濃度推定値への影響が流出による影響よりも相対的に小さいため、ケース 1 で推定した  $^{214}\text{Bi}$  濃度推定値は舗装面割合が多い MS ほど小さく推定されたことが本解析で示された。

### 3.4. NaI 波高分布を用いた濃度推定法

2.3.2 項で示されたように、降雨時では  $^{40}\text{K}$  と  $^{208}\text{Tl}$  の光電ピーク部の計数率は無降雨時と同等の値をとり、 $^{214}\text{Bi}$  (609 keV など) と  $^{214}\text{Pb}$  (352 keV など) の光電ピーク部の計数率は無降雨時に比べて大きい。線量率とは異なり、各光電ピーク部の計数率の上昇値から時間変化を必要とせずに  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度を核種別に推定できる可能性がある。

測定される NaI 波高分布は線量率と同様に、線源—検出器間に存在する建物、空気等による遮蔽および散乱を受けた後に検出器に入射した  $\gamma$  線で構成される。図 2-5 で示されたように、降雨時では  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピーク部の計数率の上昇値は MS 間で異なる。このことは、NaI 波高分布から降雨時の  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度を求めるためには、検出器周囲の建物および空気等による  $\gamma$  線の遮蔽と散乱による波高分布への影響の大きさを把握する必要があることを示している。

本節では、降雨時に増加した  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピーク部の計数率を利用して、地面上放射能濃度を核種別に推定する。その際に、MS 周囲の幾何学的構造および放射性物質の浸透の考慮の有無により濃度推定値がどの程度変わり得るかを検討する。

#### 3.4.1. エネルギー校正、エネルギー分解能校正

2.3.2. 項で述べたように、各光電ピークの半値幅は MS 間で異なるため、本研究では Casanovas et al., (2012) の論文を参考に、MS 毎に NaI 検出器のエネルギー校正とエネルギー分解能校正を行った。

エネルギー校正とエネルギー分解能校正に用いた光電ピークは  $^{214}\text{Pb}$  (242 keV と 352 keV)、 $^{214}\text{Bi}$  (609 keV と 1764 keV)、 $^{40}\text{K}$  (1462 keV)、および  $^{208}\text{Tl}$  (2615 keV) である。各光電ピークのピークチャンネルおよび半値幅 (Full Width at Half Maximum; FWHM) は以下の式で表されるガ

ウス分布  $G(E)$  を実測値にフィッティングすることによって決定した。

$$G(E) = \frac{A}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(E - E')^2}{2\sigma^2}\right) \quad (3-20)$$

$E'$  : ピークエネルギー

$\sigma$  : 標準偏差

$\frac{A}{\sqrt{2\pi\sigma^2}}$  はピーク部の計数率を示す。ここで、 $\sigma$  と FWHM の関係は以下の式で表される。

$$\sigma = \frac{FWHM}{2\sqrt{2\ln 2}} \quad (3-21)$$

エネルギー校正およびエネルギー分解能校正結果の例をそれぞれ図 3-16、17 に示す。図 3-16 で示されるように、エネルギーとチャンネルは概ね線形関係であり、一次関数で表した場合の決定係数  $R^2$  は 0.9999 であった。他の MS でも決定係数  $R^2$  は 0.9998 以上であり、本研究ではチャンネルとエネルギーの関係は一次関数で表記することとした。図 3-17 で示されるように、エネルギーと FWHM の関係を概ね二次関数で表現でき、二次関数で表した場合の決定係数  $R^2$  は 0.9981 であった。他の MS でも決定係数  $R^2$  は 0.9822 以上であり、本研究ではエネルギーと FWHM の関係は二次関数で表記することとした。

エネルギー校正値と分解能校正値が季節または降雨の有無により変化するかを確かめる。白砂 MS で測定された月ごとの平均波高分布を用いて、各光電ピークに対応するピークチャンネルおよび FWHM をそれぞれ図 3-18、19 に示す。各光電ピークに対応するピークチャンネルおよび FWHM の季節変動または降雨の有無による有意な変動は見られなかった。それ故、本研究では 2009 年 1 年間の平均波高分布を用いて、エネルギー校正およびエネルギー分解能校正したものを使用することとした。

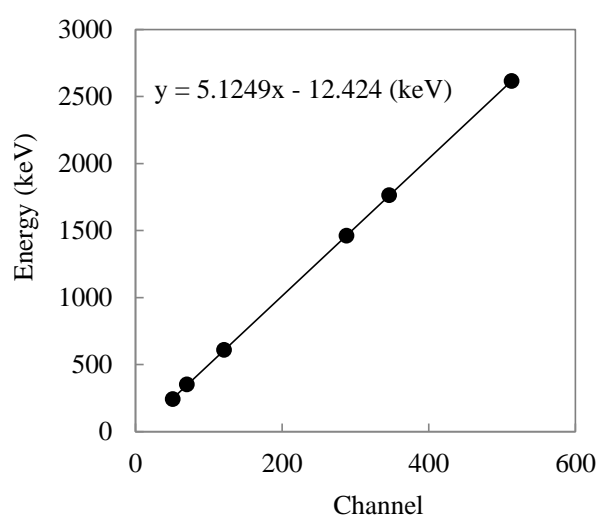


図 3-16 エネルギー校正の結果例  
(MS:白砂)

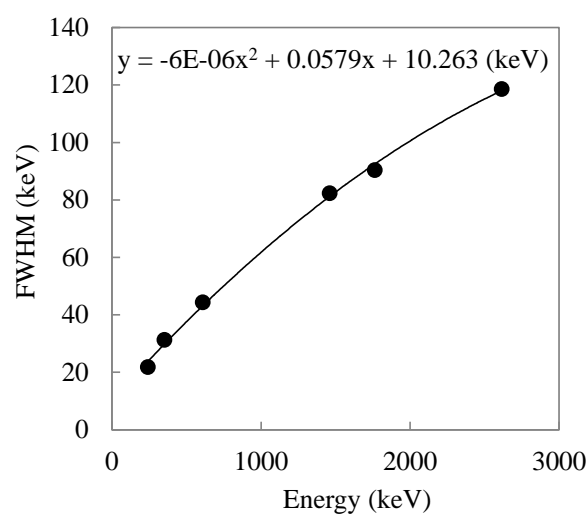


図 3-17 エネルギー分解能校正の結果例  
(MS:白砂)

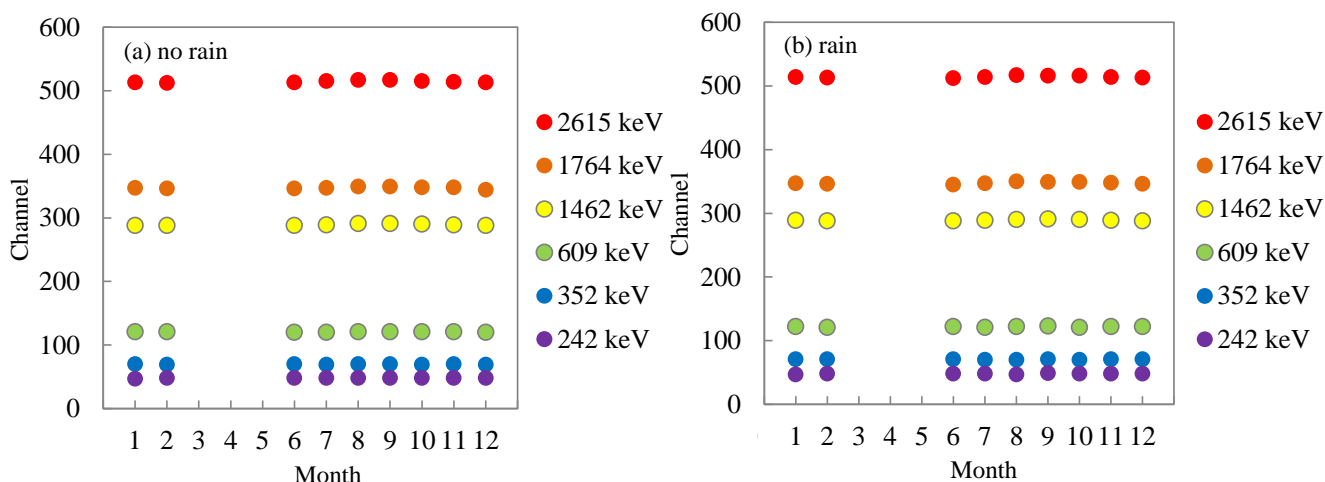


図 3-18 各月の各光電ピークに対応するピークチャンネル。(a) 無降雨時、(b) 降雨時。

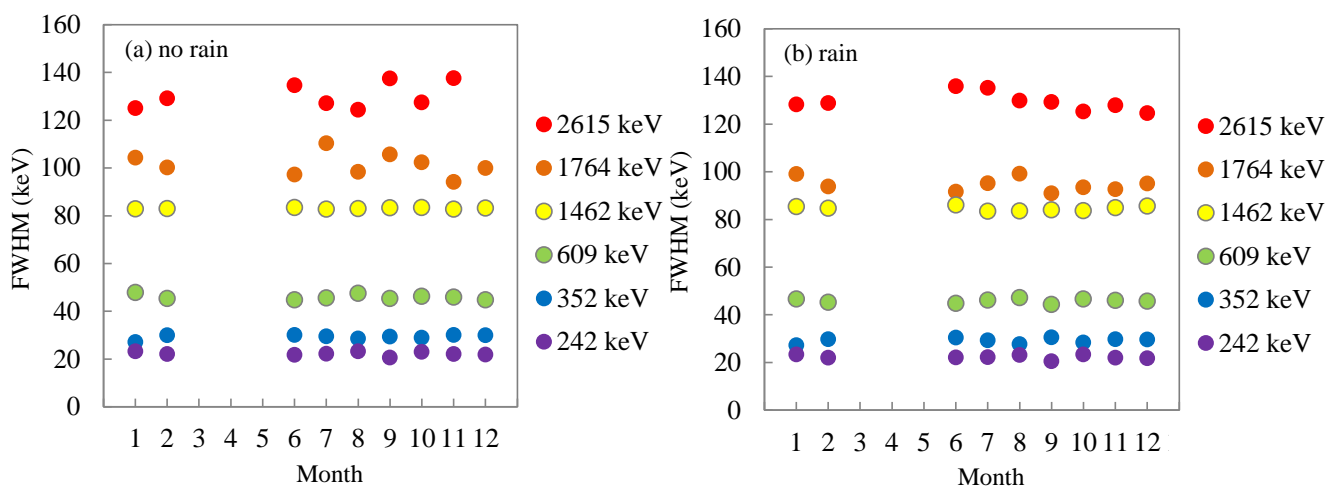


図 3-19 各月の各光電ピークに対応する FWHM。(a) 無降雨時、(b) 降雨時。

### 3.4.2. 濃度推定法の原理

本研究では、実測の光電ピーク部の計数率と光子輸送計算モデルで計算した計数率を比較することによって濃度を求めた。降雨時にエネルギー区間  $j$  で上昇した計数率  $A_j$  は  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の非散乱線と散乱線のみで構成され、以下の式で表される。

$$A_j = \Gamma_{Pb,j} C_{Pb} + \Gamma_{Bi,j} C_{Bi} \quad (3-22)$$

ここで、 $C$  は地面上放射能濃度、 $\Gamma$  は単位地面上放射能濃度あたりのエネルギー区間  $j$  での計数率である。 $\Gamma$  を本研究では光子輸送計算モデルを用いて計算した。計算の詳細は 3.4.3. 項で述べる。

濃度推定するために使用した  $\gamma$  線エネルギーは  $^{214}\text{Pb}$  の 352 keV と  $^{214}\text{Bi}$  の 609 keV である。

これらは放出される  $\gamma$  線エネルギーの中で最も放出率が大きく、計数誤差が最も小さくなると期待できる。エネルギー幅を各  $\gamma$  線エネルギーに対応する FWHM の 2 倍とし、それぞれのエネルギー区間を  $^{214}\text{Pb}$  で 335~370 keV、 $^{214}\text{Bi}$  で 580~640 keV とした。以降、エネルギー区間を BIN と表記する。

$^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度  $C$  は最小二乗法を用いて決定した。つまり、次式で表される各 BIN 中の計数率の相対差の二乗和  $\Delta$  が最小となるように、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度をそれぞれ決定した。

$$\Delta = \sum_j \left( \frac{A_{cal,j} - A_{obs,j}}{A_{obs,j}} \right)^2 \quad (3-23)$$

### 3.4.3. 波高分布の計算

各核種の単位地面上放射能濃度あたりの波高分布は Hirayama et al. (2005) が開発した電子カスケードモンテカルロコード EGS5 を用いて計算した。EGS5 では計算体系内での  $\gamma$  線の減弱および散乱を確率的に移動する過程を追跡し、さらに検出器内で光子が落としたエネルギーを計算し、波高分布を計算する。本研究のように、広い範囲に存在する線源から放出する  $\gamma$  線を扱う体系では、検出器に到達する  $\gamma$  線の数が少ないため、十分な精度を得るためには多大な計算時間が必要である。そこで本研究では計算時間を削減するために、Namito et al. (2013) が考案した、線源と検出器を入れ替える手法を用いて波高分布の計算を行った。この手法は元々の検出器の位置から、 $\gamma$  線を放出させ、元々の線源の位置に入射した  $\gamma$  線スペクトルを計算し、そのスペクトルを用いて検出器内での応答を計算するものである。この手法を用いることで、従来の手法と比べて短い時間でより精度の高い計算結果を得られる利点がある。

MS 周辺の幾何学的構造および放射性物質の浸透・流出を考慮することによる波高分布への影響を把握するため、次の 4 ケースで波高分布を計算した。各ケースの計算は EGS5 計算による計数誤差が 1% 以下になるように行った。

#### ケース 1：無限平面

計算体系は厚さ 1 km の空気層、厚さ 1 m の土壌層、および検出器のみで構成されるとした。空気は NTP 状態 (20°C、1 気圧) を想定し、その密度は  $1.2 \times 10^{-3} \text{ g cm}^{-3}$  とした。土壌の密度は  $1.6 \text{ g cm}^{-3}$  とし、土壌の構成物質は  $\text{SiO}_2$  のみとした。検出器は静岡県 MS と同じ 3"φ×3" の NaI 検出器であり、検出器の位置は地表面から 3.7 m である。図 3-20 に計算体系の水平方向の大きさを変えた場合の  $^{214}\text{Bi}$  の BIN 中の計数率を示す。水平広さが 500 m 四方を超えると、

計数率の変化が1%以内であり、それ以遠からの $\gamma$ 線の寄与がほとんどないことを示している。そこで、本研究では水平広さを無限平面と見なせる500 m四方とした。放射性核種の分布は地面上に一様に分布するとし、流出と浸透を考慮していない。

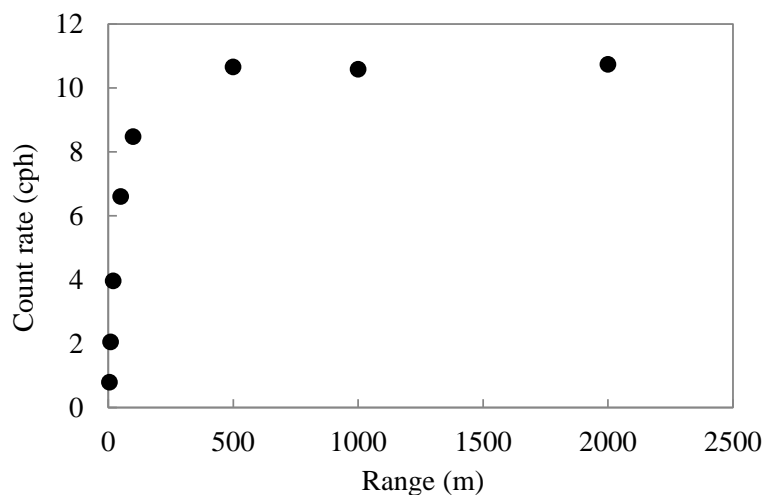


図 3-20 計算体系広さ毎の  $^{214}\text{Bi}$  の BIN 中 (580~640keV) の計数率。計算体系の水平面の形は正方形であり、横軸は1辺の長さを表している。

### ケース 2：幾何学的構造考慮

ケース 1 の計算体系に検出器周囲(検出器から半径 30 m 程度)の幾何学的構造を考慮した。本研究で考慮した構造は MS 建屋、周囲の建物、地表面形態の種類(未舗装面または舗装面)、および土地の起伏である。検出器周囲を覆っている Al カバーと光電子増倍管は、形状を把握できていないため、考慮していない。MS 建屋および周囲の建物は線量率計算モデルで考慮したときと同様に建物内部の構造を考慮せずに空洞(空気)であるとし、窓を含む外壁が全てコンクリートで構成されているとした。舗装面とコンクリートの密度は  $2.4 \text{ g cm}^{-3}$ 、その組成は  $\text{CaO}:\text{SiO}_2=7:3$  とした。放射性核種の分布は水平面(建物の屋根面と地表面)に一様に分布するとし、流出・浸透および建物壁面等への付着を考慮していない。

### ケース 3：幾何学的構造と放射性物質の浸透の考慮

本来、未舗装面に沈着した放射性物質は雨水とともに地中へ浸透する可能性がある。ケース 3 では放射性物質の浸透を模擬した計算を行った。計算体系はケース 2 と同様である。放射性核種の分布は、舗装面では放射性物質の浸透および流出が起きないとし、水平面に一様に分布するとした。未舗装面では放射性物質が浸透するとし、濃度の深度分布は式 (3-16) で表される指数関数であるとした。ただし、放射性物質の流出を考慮していない。

#### ケース 4：幾何学的構造と放射性物質の流出の考慮

線量率の解析で示されたように、観測された線量率と波高分布は放射性核種の流出による影響を受けていると考えられる。ケース 4 では放射性物質の流出を模擬した計算を行った。計算体系はケース 2 と同様である。ここでは、放射性物質の浸透が起きないとし、どの地表形態でも放射性物質は水平面に一様に分布するとした。ここでは、地表面形態を MS 屋根面と地表面の 2 種類に分けて、各表面での地面上放射能濃度を変えることで、放射性物質の流出を模擬した波高分布の計算を行った。

#### 3.4.4. 解析対象

静岡県内の MS で 2009 年に測定された 1 h 値の波高分布を用いた。線量率の解析と同様に以下の 2 条件を満たす降雨イベントを解析対象とした。①大気中ラドン濃度の変動による推定値の誤差が相対的に小さくなるように、線量率上昇値が  $5 \text{ nGy h}^{-1}$  を超える降雨イベント、②MS 間で沈着量が同じと見なせるように、MS 間の降水強度の差は  $1.0 \text{ mm h}^{-1}$  未満かつ積算降水量の差が  $10 \text{ mm}$  未満の降雨イベント。以上の 2 条件を満たすものは全部で 8 イベントであった。対象とした MS は互いに隣接しており、周囲に樹木の少ない MS（中町、桜ヶ池、平場、新神子、および白砂）を選択した。以上の条件により選択した降雨イベントで、BIN 中の計数率の最小値は約 5000 カウントであり、計数誤差による濃度推定値の誤差は約 1.5% である。

#### 3.4.5. 推定結果

##### 3.4.5.1. 波高分布の計算結果

MS 周囲の幾何学的構造、放射性物質の浸透、および流出を考慮することによる波高分布計算値への影響の大きさを示す。図 3-21 に白砂での各ケースで計算した  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の波高分布を示す。表 3-8 に光電ピーク部と散乱部（ $120\sim 180 \text{ keV}$ ）の計数率計算値とその比（散乱部/光電ピーク部）を示す。ここで、散乱部とは光電ピークを含まず、散乱線のみで構成されるエネルギー範囲である。本研究では、散乱線の寄与が最も大きい  $120\sim 180 \text{ keV}$  を散乱部と定義した。ケース 3 では、浸透深さを  $\beta=1, 2, 3 \text{ g cm}^{-2}$  として波高分布を計算した。ケース 4 では、地表面の地面上放射能濃度を  $1 \text{ Bq m}^{-2}$ 、屋根面の地面上放射能濃度を  $0.1, 1, 2 \text{ Bq m}^{-2}$  とした時の波高分布を計算した。

表 3-8 に示したケース 1 と 2 の波高分布計算値を比較すると、光電ピーク部の計数率の差は 10%程度である。一方、ケース 2 で計算した散乱部の計数率はケース 1 と比べて約 20%小さい。ケース 2 で MS 屋根上に存在する核種は、ケース 1 では地面上に存在するとしているため、検出器—線源間の距離はケース 2 の方が短い。その結果、空気中で散乱する  $\gamma$  線はケース 2 の方が少ないため、散乱部の計数率が小さい。

表 3-8 のケース 3 の光電ピーク部の計数率を見ると、 $\beta$  が大きいほど小さく、散乱部と光電ピーク部の計数率比（散乱部/光電ピーク部）を見ると、 $\beta$  が大きいほど大きい。 $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$  時の光電ピーク部の計数率はケース 2 と比べて、 $^{214}\text{Pb}$  で約 40%、 $^{214}\text{Bi}$  で約 35%小さい。図 3-21 で示されるように、散乱部の計数率のケース 2 と 3 の差異は光電ピーク部の計数率の差異に比べて小さい。これらの波高分布のケース 2 と 3 間の差異のエネルギー依存性は次の 2 つの原因によって生じている。一つは、減弱係数のエネルギー依存性である。減弱係数はエネルギーが高いほど小さいため、高エネルギー  $\gamma$  線を放出する核種ほど、光電ピーク部の計数率のケース間の差異が小さい。もう一つは、土壌によって散乱された  $\gamma$  線である。ケース 3 では土壌で散乱する  $\gamma$  線がケース 2 と比べて多いため、低エネルギー側ほど計数率がより大きい。その結果、 $\beta$  が大きいほど、散乱部と光電ピーク部の計数率比は大きい。

表 3-8 で示したケース 4 の屋根面の地面上放射能濃度を  $2 \text{ Bq m}^{-2}$  にした時とケース 2 の計数率を比較すると、ケース 4 の方が光電ピーク部で約 40%大きく、散乱部で約 15%大きい。表 3-8 で示したケース 4 の屋根面の地面上放射能濃度を  $0.1 \text{ Bq m}^{-2}$  にした時とケース 2 の計数率を比較すると、ケース 4 の方が光電ピーク部で約 40%小さく、散乱部で約 15%小さい。散乱部と光電ピーク部の計数率比はケース 4 の屋根面の地面上放射能濃度を  $0.1 \text{ Bq m}^{-2}$  とした時とケース 3 の  $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$  時で良く一致していることが分かる。この結果は、観測された波高分布から浸透と流出の影響を分別して評価できないことを意味している。そこで、本研究では流出等による地表面形態毎の残存量の違いを考慮せずに、浸透のみを考慮した結果について示す。

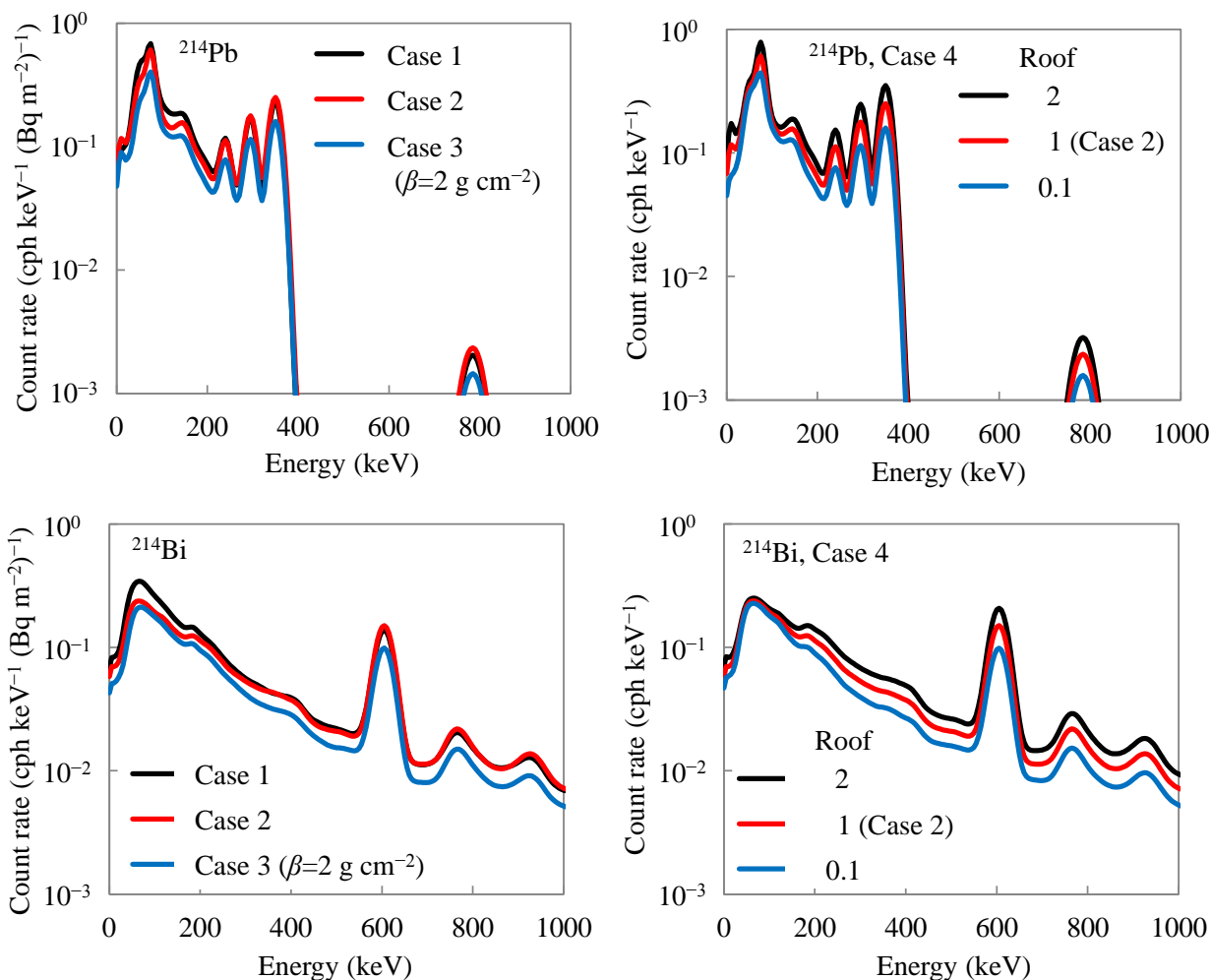


図 3-21 白砂での波高分布計算結果（上段： $^{214}\text{Pb}$ 、下段： $^{214}\text{Bi}$ ）。右段はケース 4 の結果であり、凡例の数字は屋根面の地面上放射能濃度 ( $\text{Bq m}^{-2}$ ) である。ケース 4 の地表面の地面上放射能濃度は全て  $1 \text{ Bq m}^{-2}$  である。

表 3-8 白砂での各ケースの①散乱部と②光電ピーク部の計数率計算値とその比。ケース 4 の下の数字は屋根面の地面上放射能濃度 ( $\text{Bq m}^{-2}$ ) である。ケース 4 の地表面の地面上放射能濃度は全て  $1 \text{ Bq m}^{-2}$  である。

$^{214}\text{Pb}$	Case 1	Case 2	Case 3			Case 4		
			$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$	0.1	1	2
①120-180 keV	1.95	1.63	1.43	1.29	1.20	1.33	1.63	1.95
②335-370 keV	1.25	1.38	1.03	0.88	0.77	0.88	1.38	1.93
① / ②	1.56	1.18	1.40	1.47	1.55	1.51	1.18	1.01
$^{214}\text{Bi}$	Case 1	Case 2	Case 3			Case 4		
			$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$	0.1	1	2
①120-180 keV	2.06	1.67	1.53	1.46	1.37	1.46	1.67	1.90
②580-640 keV	1.16	1.25	0.96	0.83	0.74	0.83	1.25	1.73
① / ②	1.77	1.33	1.60	1.76	1.86	1.77	1.33	1.10



### 3.4.5.2. 地面上放射能濃度の推定結果

全降雨イベントの放射能濃度推定値の平均値を図 3-22 に示す。ケース 3 では、後述(表 3-9)のように波高分布の再現性が最もよかった浸透深さ  $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$  とした時の濃度推定値を示している。

#### ・幾何学的構造の考慮による濃度推定値への影響

MS 間で沈着量が同じと見なせる降雨イベントを解析対象として選択したため、濃度推定値は MS によらず一定と期待される。しかし、ケース 1 での濃度推定値は中町のみ他の MS と比較して約 40% 小さく推定された。中町を除く他の MS 間の濃度推定値の差は 20% 未満であった。図 3-22 に示されたケース 1 での濃度推定値の MS 間の差異の傾向は図 3-23 に示した光電ピーク部の計数率計算値のケース 2 とケース 1 の比 (ケース 2/ケース 1) にも見られた。

ケース 1 での濃度推定値の MS 間の差異を検討するため、ケース 2 で計算した単位放射能濃度あたりの光電ピーク部の計数率の MS 間の差異について議論する。図 3-23 より、中町ではケース 2 の光電ピーク部の計数率はケース 1 と比べて  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  両方とも約 30% 小さく計算され、他の MS ではケース間の光電ピーク部の計数率の差は 10% 未満であることが示されている。このケース間の計数率の差は主に次の 2 点によるものである。

1. 検出器周囲の遮蔽物による  $\gamma$  線の減弱
2. ケース 2 で MS 屋根上に存在する線源と検出器間の距離がケース 1 の地表面に存在する線源と検出器間の距離と比較して短いこと

空気の半価層 (放射線の量が半分になる物質の厚さ) は約 100 m であり、MS 屋根の大きさの MS 間の違いは空気の半価層に比べて十分に小さく、 $\gamma$  線の空気による減弱の観点でみると MS 屋根の大きさは MS 間で類似している。それ故、項目 2 は対象とした全 MS に対して、光電ピーク部の計数率に同程度の影響を与えると考えられる。それ故、図 3-22 で示されたケース 1 での濃度推定値の MS 間の差の主な原因は、MS 周囲の遮蔽物による  $\gamma$  線の減弱を考慮していないことによるものと考察される。この結果は特に中町のように MS 周囲に高い遮蔽物が多い測定点で、周囲の幾何学的構造を考慮することが重要であることを示している。

#### ・放射性物質の浸透の考慮による濃度推定値への影響

図 3-22 より、ケース 2 の濃度推定値の MS 間の差は 10% 以内であり、ケース 3 で推定した濃度推定値はケース 2 よりも 0~30% 大きく推定され、ケース 2 と 3 の濃度推定値の差は舗装面割合が多い MS ほど小さい。ケース 3 の方がより現実に即した計算条件を仮定しているものの、解析対象条件 (MS 間で沈着量が同じ) との整合性を見てみると、ケース 3 はケース 2 よりも整合性の低い結果が得られた。

この点について議論するため、波高分布の計算値と実測値の比較を行う。推定した地面上放射能濃度と EGS5 により、波高分布を再構築した。その再構築した波高分布と実測の波高分布の比較を図 3-24 に示す。波高分布の計算値と実測値の一致度を定量的に示すための指標として、式(3-23)の  $\Delta$  を用いた。ここで使用したエネルギー区間は波高分布がケース間で顕著に異なった 60~300 keV である。 $\Delta$  の結果を表 3-9 に示す。

波高分布の計算値と実測値の差異の傾向は図 3-24 と表 3-9 から MS により大きく 2 つのグループに分けられる。一つはケース 2 の波高分布の低エネルギー部分 (<200 keV) の計算値と実測値が良く一致している MS (中町) であり、もう一つはケース 2 の波高分布計算値の低エネルギー部分で実測値よりも過小に計算されている MS (中町以外の MS) である。ここでは中町 MS 以外の MS の代表として、ケース 2 の計算値と実測値の差が最も大きかった白砂について記述する。

図 3-24(a)より白砂ではケース 2 の低エネルギー側の計数率は実測値よりも約 15%低い。ケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ ) の低エネルギー側の計数率と実測値の差は 5%以内であり、表 3-9 に示した  $\Delta$  からも実測値と良い一致を示したと言える。ケース 2 と 3 の波高分布の違いから、このケース 2 の低エネルギー側の計数率の過小計算は主に放射性物質の浸透を考慮していないことに起因すると考えられる。中町 MS 周囲の土壤は全て舗装面で覆われており、放射性物質の浸透が他の MS よりも起きにくい。その結果、図 3-24(b)で示されるようにケース 2 での低エネルギー側の計数率と実測値の差は 5%以内であり、表 3-9 に示した  $\Delta$  が小さく、ケース 2 でも良い一致を示したと解釈される。以上の結果は白砂などの未舗装面が存在する MS では、放射性物質の浸透を考慮しなければ、濃度推定値を用いて計算した波高分布は実測の波高分布よりも低くなることを示している。

#### ・放射性物質の流出の考慮による濃度推定値への影響

ケース 3 で推定した濃度が MS 間で異なったことについて議論する。線量率の場合と同様に、検出器周囲の幾何学的構造、および放射性物質の浸透を考慮した場合には、舗装面が多い MS ほど濃度推定値がより小さく推定され、MS 間の差は約 20%であった。これは雨水の流出とともに放射性物質が流出し、MS 間で残存量が異なったことに起因するものと考えられる。3.3.4.項の線量率を用いて求めた流出による地面形態毎の残存割合  $R$  を考慮した場合、図 3-22 の紫で示されるように濃度推定値の MS 間の差は 10%以内であり、ほぼ一定の値を示した。この結果より、観測される NaI 波高分布からケース 3 で推定した濃度は流出によって生じた地表面形態毎の残存量の違いを反映した値であることが示された。線量率を用いて流出を考慮せずに推定した濃度 (図 3-15 のケース 2) と図 3-22 のケース 3 の濃度推定値は舗装面が多い MS ほど小さい傾向が類似していたことから、線量率の解析と同様に、濃度推定値の MS 間の差異を利用することで、流出特性を推定できる可能性が示唆される。

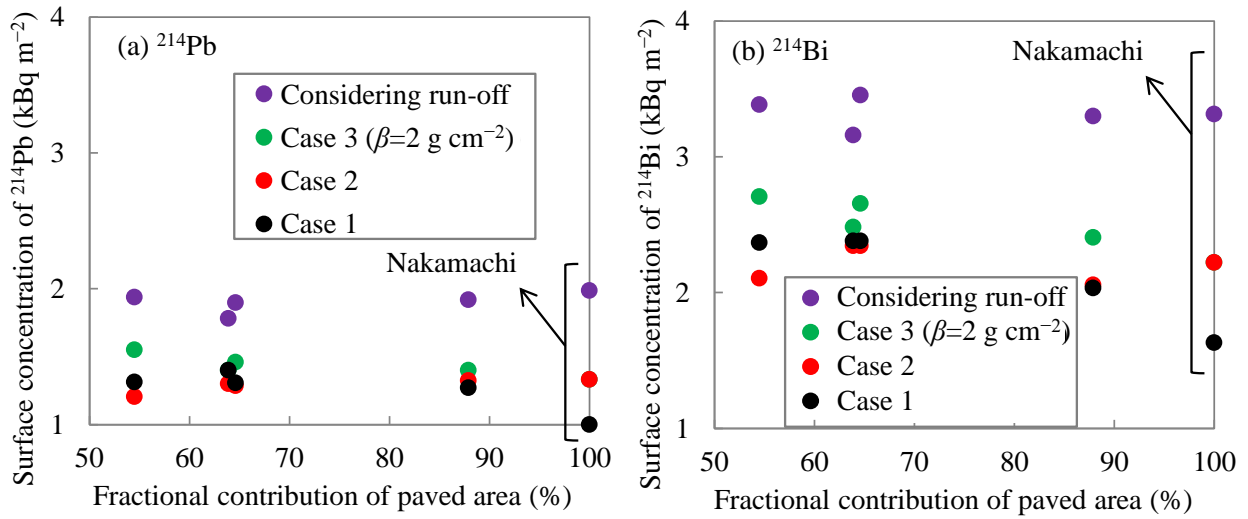


図 3-22 地面上放射能濃度と舗装面からの線量率への寄与率との関係。(a)  $^{214}\text{Pb}$ 、(b)  $^{214}\text{Bi}$ 。Case 1 は無限平面、Case 2 は幾何学的構造を考慮、Case 3 は幾何学的構造と浸透を考慮した場合。紫色の点は Case 3 に加えて、流出を考慮した場合。

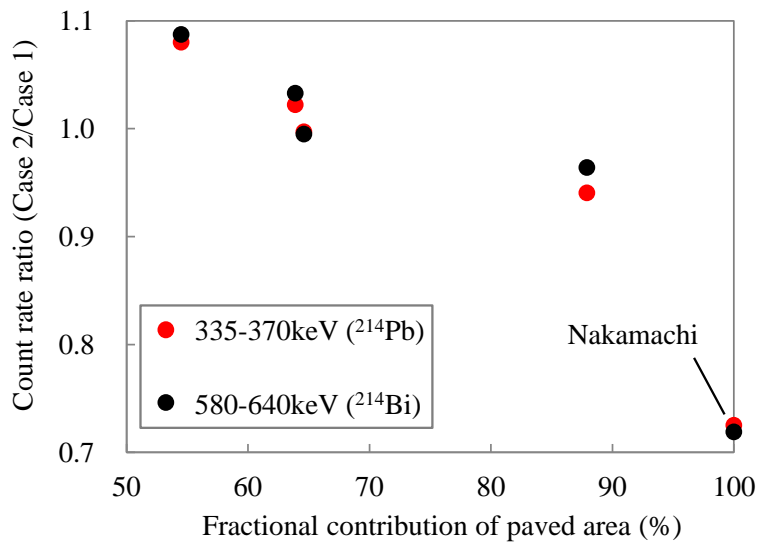


図 3-23 光電ピーク部の計数率計算値のケース 2 とケース 1 の比 (ケース 2/ケース 1)

表 3-9 白砂と中町での、2009 年 1 月 22 日 0 時の波高分布実測値と計算値の差  $\Delta$  (60~300 keV)

Nakamachi	Shirasuna			
	Case 2	Case 3		
		$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$
0.040	0.481	0.086	0.017	0.176

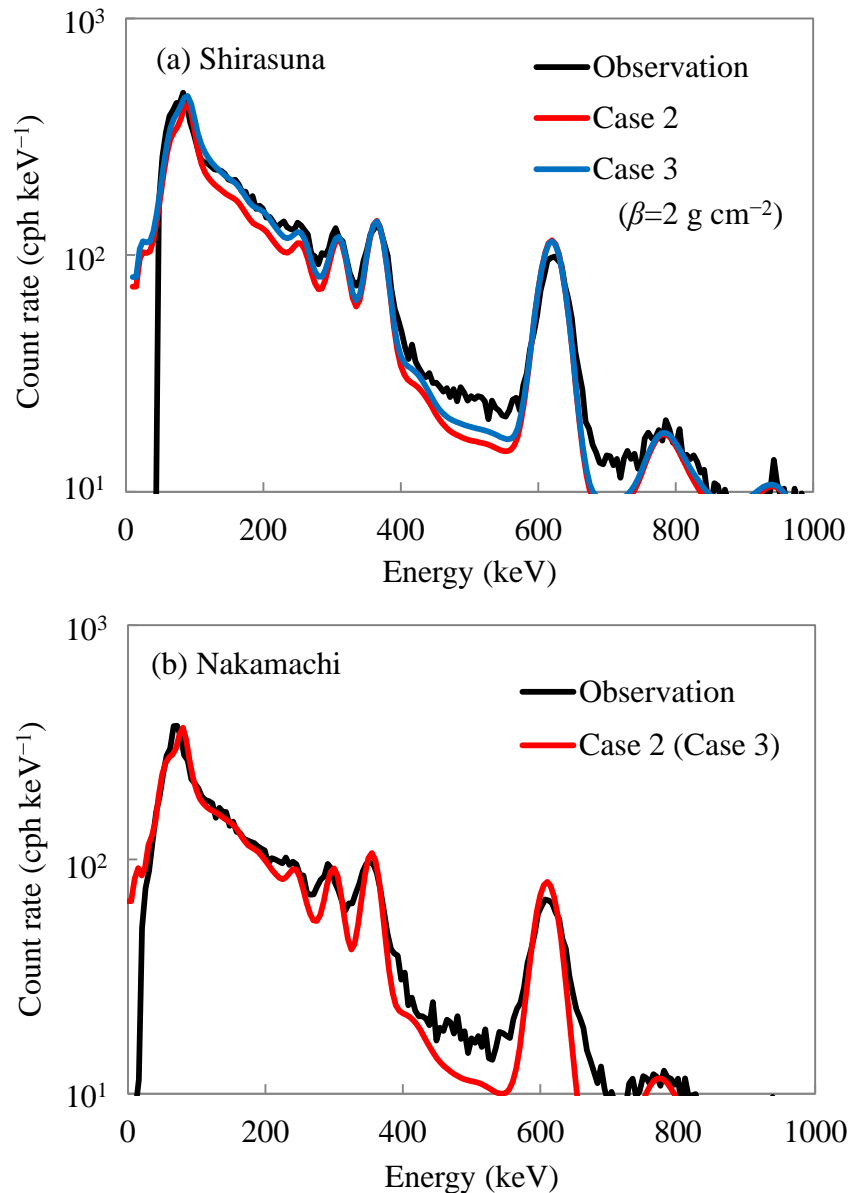


図 3-24 波高分布実測値と計算値の比較 ((a) : 白砂、(b) : 中町)。2009 年 1 月 22 日 0 時。

### 3.5. まとめ

MS 測定値を用いて放射能濃度推定を行う際の問題点として、MS 周囲の幾何学的構造による  $\gamma$  線の遮蔽および流出・浸透特性を予め評価しておく必要性が挙げられた。そこで本章では、平常時の線量率と NaI 波高分布それぞれを用いて、

①MS 周囲の流出特性（残存割合）および浸透特性（浸透深さ）の把握可能性の検討

②MS 測定値から放射能濃度を推定する際に MS 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。

始めに、MS 測定値から降雨時または降雨後のラドン壊変生成物 ( $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ ) の地面上放射能濃度を推定する手法を考案した。降雨後の線量率上昇値の時間変化は  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の壊変式で表されることに着目して、線量率の時間変化から  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度を核種別に推定する手法を考案した。また、NaI 波高分布の  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピーク部の計数率実測値と EGS5 で計算した計数率を比較することで、NaI 波高分布から放射能濃度を核種別に推定する手法を考案した。

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 MS 間の差異を利用して、各 MS の流出・浸透特性を合理的に推定可能かを検討した。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 MS 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 MS 間で大きな違いが見られなく、本手法で推定した流出・浸透特性は MS 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。その結果、本研究の対象とした MS 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。

NaI 波高分布を用いた濃度推定において、幾何学的構造および浸透特性の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを検討した。幾何学的構造を考慮することにより、建物による  $\gamma$  線の遮蔽により光電ピーク部の計数率は無限平面仮定時よりも小さく計算され、本研究の対象とした MS では幾何学的構造を考慮しなければ、濃度推定値は最大で約 30% 小さく計算されることを示した。NaI 波高分布を用いて濃度推定した場合、推定した濃度と EGS5 を用いて再構築した波高分布と実測の波高分布の一致度は濃度推定値が合理的であるかの指標となる。周囲に未舗装面が存在する MS では浸透を考慮しなければ、200 keV 以下の光電ピークを含まないエネルギー範囲で再構築した波高分布が低くなることが明らかとなった。この点を利用して、200 keV 以下の計数率の実測値と計算値を一致させることによって、浸透特性を MS 毎に決定する手法を考案した。NaI 波高分布を用いて推定した  $\beta$  値を線量率を用いて推定した  $\beta$

値と比較した結果、異なった推定原理であるにもかかわらずほぼ同じ値であり、両者ともに合理的に  $\beta$  値を評価できたと結論づけられた。また、NaI 波高分布のみからでは、浸透特性と流出特性を区別して評価できないことを指摘した。これに対応するための一つの方法として、線量率の解析手法と同様に濃度推定値の MS 間の差異を利用できることを示した。

本章で示した同様の手法を静岡県以外の MS に適用することにより、平常時の MS 測定値を用いて、各 MS の流出・浸透特性を評価することができ、さらに幾何学的構造および流出・浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを予め評価可能であることを示した。

## 第4章 NaI 波高分布を用いた事故時の放射能濃度推定

### 4.1. 諸言

2011年3月11日の福島原発事故以降、周囲の放射能汚染の状況、福島第一原子力発電所から放出された放射性プルームの輸送過程、原子炉の状況などを把握するための研究が行われている (Saito, 2014; Chino et al., 2011; Endo et al., 2012)。放射性プルームの輸送過程および原子炉の状況を把握するためには大気中放射能濃度、炉内圧力などの測定値が必要であるが、福島原発事故初期時の放出量と沈着量が最も多かったと考えられる3月15日の測定値が少なかった。特に、甲状腺等価線量の評価に必要な  $^{131}\text{I}$  等の核種の大気中放射能濃度の測定がほとんど行われなかった。一方、NaI 波高分布は事故直後に非常用発電が作動していた MS で連続的に測定されており、3月15日およびそれ以前のプルーム通過を確認できる測定値が得られた。この NaI 波高分布から放射能濃度を推定することができれば、福島第一原子力発電所から放出された放射能の量をより詳細に逆推定することができ、3月15日までに受けたと予想される甲状腺等価線量を再構築できる可能性がある。

しかし、NaI 検出器はエネルギー分解能が低いこと、事故時に放出される放射性核種の数が多いこと、放射性物質の存在位置（大気中、地面上、樹木、または建物壁面）が不明であること、および測定地点周辺の構造物による遮蔽と流出・浸透特性が不明であることが問題点として挙げられ、NaI 波高分布を用いた人工放射性核種の放射能濃度推定の実証例が少ない。第3章では、平常時の測定値を用いて、測定地点周辺の構造物による遮蔽および放射性物質の流出・浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを予め評価できることを示した。平山ら (2013b) は NaI 検出器よりもエネルギー分解能の約2倍高い LaBr<sub>3</sub> 検出器で測定した波高分布から放射性核種毎に放射能濃度を推定することが可能であることを指摘した。また、 $^{131}\text{I}$  は他核種とエネルギーが重複しないことから、NaI 波高分布から  $^{131}\text{I}$  のみの放射能濃度を推定可能であることを指摘した (平山ら, 2014)。Minato et al. (2013) はレスポンスマトリックス法を用いて、東京都で NaI 検出器を用いて測定した波高分布から核種別に放射能濃度を推定したものの、実測値との比較が行われていない。NaI 波高分布から複数の人工放射性核種の放射能濃度を核種別に推定する手法の妥当性は確かめられていない。

本研究では、MS に設置されている NaI 検出器で測定された波高分布から核種別に放射能濃度を推定するために、推定核種の選定法、エネルギー範囲の設定法、および放射性物質の存在位置（本研究では大気または地面）の決定法を検討する。4.2節では、本推定手法を全ての原子力事象に適用することを目的として、推定核種の選定およびエネルギー範囲の設定を行う。放射性物質の存在位置の決定法 (4.4節) では、低エネルギー側の波高分布が放射性物質の存在位置により異なることを利用し、NaI 波高分布から大気中放射能濃度と地面上放射能

濃度を同時に推定する手法を考案する。

2.3.3.項で示したように、静岡県内の MS では福島原発事故の影響を受けた後のほとんどの期間で人工放射性核種は地面上のみに存在すると見なせる。そこで 4.3.節では人工放射性核種が地面上のみに存在する場合に、4.2.節で選定する核種及びエネルギー範囲を用いて、NaI 波高分布からどの程度核種を分別して放射能濃度を推定できるかを静岡県の MS 測定値を対象に検討する。また、2.3.3.項で示したように、茨城県内の MS では複数回のプルーム通過が確認され、人工放射性核種が大気中と地面上の両方に存在する期間が確認された。そこで 4.4.節では人工放射性核種が大気中と地面上の両方に存在する場合に、NaI 波高分布からどの程度物質の位置を分別して放射能濃度を推定できるかを茨城県の MS 測定値を対象に検討する。さらに本推定手法の妥当性を評価するために、推定した放射能濃度と実測値を比較する。

## 4.2. NaI 波高分布からの核種弁別

### 4.2.1. 核種の選定

HPGe 半導体検出器のように分解能の高い検出器であれば、事故時に放出されたほとんどの核種を弁別して放射能濃度を推定することが可能である。しかし、NaI 検出器は分解能が低く、多くの核種が存在する場合には  $\gamma$  線エネルギーが重複するため、核種を弁別して推定することは困難である。そこで、本研究では以下に述べるように、推定すべき放射性核種を選定して、放射能濃度を推定することとした。

本研究では、事故時の放射線影響の観点から人工放射性核種を選定する。 $\gamma$  線を放出する核種のうち、ヨウ素とセシウムの放射性同位体は最も重要な人工放射性核種である。それらの核種は外部線量だけでなく、吸入および経口摂取による内部線量も大きい。さらに、ヨウ素とセシウムは揮発性が高いため、過去の原発事故でも放出量が大きかった元素である (Katherine, 1984; Muramatsu et al, 2000; Carbol et al., 2003)。希ガスも外部線量への寄与が大きく、揮発性が高いため、重要な元素の一つである。

上記で選定した元素のうち、外部線量への寄与が大きく ( $\gamma$  線実効エネルギーが高く)、半減期が半日以上の核種を選択した。 $^{132}\text{I}$  は半減期が 2.3 h であるが、親核種の  $^{132}\text{Te}$  の半減期が 3.2 d であり、 $^{132}\text{I}$  と  $^{132}\text{Te}$  が放射平衡になれば、それらの放射能濃度は半減期 3.2 d で減衰する。そのため、 $^{132}\text{I}$  を解析対象に加え、その親核種であり、外部線量への寄与が大きい  $^{132}\text{Te}$  も解析対象に加えた。以上の検討から、本研究では  $^{133}\text{Xe}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{133}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{132}\text{Te}$  の 8 個の人工放射性核種を解析対象核種として選定した。

降雨時には、人工放射性核種のみならず、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の湿性沈着により、計数率が増加す



る。図 2-10 より、静岡県内の MS では  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  からの計数率の寄与が人工放射性核種からの寄与と同等であることが示され、ラドン壊変生成物による計数率への寄与を無視できないことを示している。それ故、上記に示した 8 個の人工放射性核種に加え、降雨時に湿性沈着する  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  も解析対象核種（以下、対象核種）として選定した。

#### 4.2.2. エネルギー範囲の設定

NaI 波高分布から放射能濃度を推定する手法は、3.4.節で述べた手法と同様で、光電ピーク部の計数率の実測値と計算値が最も一致する濃度を核種別に求める方法である。しかし 3.4.節と比べて、推定する核種が多いため、エネルギー範囲 (BIN) の設定の仕方により、濃度推定値が大きな不確かさを持つ可能性がある。それ故、適切に BIN を設定する必要がある。

対象核種の主要な  $\gamma$  線エネルギーとその放出率を表 4-1 にまとめた。10 個の核種を核種別に濃度推定するためには最低 10 個の BIN が必要である。BIN を設定する上で、濃度推定値の誤差を低減するために、次の方針を設定した。

1. 選択した BIN に含まれる光電ピークは可能な限り単一とする。
2. 放出率の大きな  $\gamma$  線を選択する。
3. BIN は散乱部（光電ピークの寄与がなく、散乱線のみで構成されるエネルギー範囲）を含まないように設定する。

BIN 中に複数の核種からの光電ピークが含まれる場合、求めるべき核種以外の核種からの誤差の影響を受け、求めるべき核種の濃度推定値の誤差が大きくなる。核種の競合による誤差を減らすために項目 1 に留意した。放出率の大きさは測定される計数率の大小を決定する。濃度推定値は計数率の計数誤差にも依存するため、計数誤差を小さくするため、項目 2 に留意した。3.4.節で述べたように、放射性物質の存在位置により特に低エネルギー側の波高分布を再現できない可能性がある。波高分布の再現精度による濃度推定値への不確かさを低減するために、項目 3 に留意した。

以上から、本研究で設定した BIN およびその BIN 中に含まれる核種を表 4-2 に示す。ある核種の放射能濃度推定値は放出率の最も大きい  $\gamma$  線を含む BIN または共存する核種数が少ない BIN 中の計数率に主に支配される。表 4-2 の核種欄の先頭に示した核種は主にその BIN を用いて推定される核種である。各 BIN の中心エネルギーは主にその BIN を用いて推定される核種の  $\gamma$  線エネルギーとした。各 BIN のエネルギー幅は中心エネルギーに対応する FWHM の 2 倍とした。

ここで、 $^{214}\text{Pb}$  の放射能濃度を推定する BIN を設定しなかった理由を述べる。NaI 検出器はエネルギー分解能が低いため、 $^{214}\text{Pb}$  が放出する  $\gamma$  線エネルギー (241 keV、295 keV、352 keV)

と  $^{132}\text{Te}$  (228 keV) および  $^{131}\text{I}$  (284 keV、364 keV) を弁別することは不可能である。この問題に対処するために、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  は放射平衡であると仮定し、 $^{214}\text{Pb}$  の放射能濃度を光電ピーク部の計数率から直接求めないこととした。この仮定により、推定する核種数が 9 個に減り、設定すべき BIN 数も 9 個に減ったため、NaI 波高分布から対象核種全ての放射能濃度を核種別に推定することが可能となった。

表 4-1 対象核種の主な  $\gamma$  線エネルギーとその放出率。静岡県内と茨城県内の MS で福島原発事故後に測定された NaI 波高分布で光電ピークを確認できた核種を○、確認できなかった核種を×、3月15～21日まで確認でき、それ以降に確認できなかった核種を△で示す。

Radionuclide	Energy in keV (emission probability in percent)	Shizuoka	Ibaraki
$^{131}\text{I}$	284(6), 364(81), 637(7)	○	○
$^{132}\text{I}$	506(5), 522(16), 630(13), 668(99), 670(5), 672(4), 727(5), 773(76), 812(6), 955(18), 1130(3), 1399(7)	○	○
$^{133}\text{I}$	529(87)	×	△
$^{134}\text{Cs}$	563(8), 569(15), 605(98), 796(85), 802(8), 1365(3)	○	○
$^{136}\text{Cs}$	340(42), 819(100), 1048(80), 1235 (20)	×	○
$^{137}\text{Cs}$	662(85)	○	○
$^{132}\text{Te}$	228(88)	○	○
$^{133}\text{Xe}$	81(38)	×	○
$^{214}\text{Pb}$	241(7), 295(18), 352(34)	○	×
$^{214}\text{Bi}$	609(43), 768(5), 934(3), 1120(14), 1238(6), 1377(4),1408(2), 1764(15)	○	×

表 4-2 設定した BIN のエネルギー範囲と含まれる核種。核種欄の先頭に示した核種は主にその BIN を用いて推定される核種である。

BIN No.	Energy range (keV)	Radionuclide
1	65-95	$^{133}\text{Xe}$
2	210-250	$^{132}\text{Te}$ , $^{214}\text{Pb}$
3	340-390	$^{131}\text{I}$ , $^{136}\text{Cs}$ , $^{214}\text{Pb}$
4	500-560	$^{133}\text{I}$ , $^{132}\text{I}$
5	630-700	$^{137}\text{Cs}$ , $^{131}\text{I}$ , $^{132}\text{I}$
6	760-840	$^{134}\text{Cs}$ , $^{132}\text{I}$ , $^{136}\text{Cs}$ , $^{214}\text{Bi}$
7	900-1000	$^{132}\text{I}$ , $^{214}\text{Bi}$
8	1000-1100	$^{136}\text{Cs}$
9	1700-1840	$^{214}\text{Bi}$

### 4.2.3. 放射能濃度推定時の制約条件

各 BIN の計数率  $A$  は各核種からの非散乱線と散乱線で構成され、以下の行列式で表される。

$$\begin{pmatrix} A_1 \\ \vdots \\ A_9 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \Gamma_{Xe,1} & \cdots & \Gamma_{Bi,1} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \Gamma_{Xe,9} & \cdots & \Gamma_{Bi,9} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{Xe} \\ \vdots \\ C_{Bi} \end{pmatrix} \quad (4-1)$$

ここで、 $C$  は放射能濃度、 $\Gamma$  は単位放射能濃度あたりの BIN 中の計数率である。添え字の数字は BIN No. である。3.4.2.項で記した濃度推定法と同様に、式(4-1)を用いて計算した各 BIN の計数率と実測値の差の二乗和が最小となる放射能濃度を核種別に決定した。しかし対象核種が多いため、濃度推定値が負の値となる可能性がある。そこで、放射能濃度を推定する際の制約条件として、対象核種全ての濃度推定値は 0 以上とした。

### 4.3. NaI 波高分布を用いた事故時の地面上放射能濃度の推定

4.2.節で選定した核種および設定した BIN を用いて、人工放射性核種が地面上のみに存在する場合に、NaI 波高分布からどの程度核種を分別して放射能濃度を推定できるかを検討する。2.3.3.項で示したように、静岡県内の MS では 3 月 22 日に放射性核種を含むプルームの通過および放射性物質の沈着により線量率が上昇し、その後の降雨時以外の期間では線量率が指数関数的な減少を示し、プルーム通過による有意な上昇は見られなく、ほとんどの期間は人工放射性核種が地面上のみに存在すると見なせた。そこで白砂で 2011 年 3 月 1 日～4 月 15 日に 1 h ごとに測定された NaI 波高分布に本手法を適用する。降雨時を除く 3 月 1 日～21 日に測定された波高分布はバックグラウンド波高分布として使用した。他の静岡県内の MS はこの期間中に更新中、または更新によりバックグラウンド波高分布を十分長い時間得られず、さらにエネルギー校正値とエネルギー分解能校正値が更新前後で変更されていたため、解析対象から外した。

2.3.4.項と表 4-1 で示したように、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{132}\text{Te}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、および  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピークが見られ、 $^{133}\text{Xe}$ 、 $^{133}\text{I}$ 、および  $^{136}\text{Cs}$  の光電ピークが見られない。それ故、 $^{133}\text{Xe}$ 、 $^{133}\text{I}$ 、および  $^{136}\text{Cs}$  の放射能濃度を白砂で測定された NaI 波高分布から評価できない。

白砂で測定された線量率変動 (図 2-7) をみると、大気中ラドン壊変生成物濃度の日変動が見えるほど、人工放射性核種からの寄与が小さい。白砂の NaI 波高分布に本推定手法を用いることで、ラドン壊変生成物からの寄与の妨害が人工放射性核種の放射能濃度推定値に与える影響の大きさを評価できると考えられ、さらにその評価値を本手法の推定下限の指標として使用できると考えられる。

## ・波高分布の計算

静岡県御前崎市と福島第一原発の直線距離は約 400 km である。大気拡散モデルの結果から、福島第一原発から放出された放射性プルームは静岡県に到達するまでに大気中で拡散しており、数 km にわたって濃度は一様と考えられる (Terada et al., 2012) ため、本研究では沈着した放射性核種は水平面に一様に分布しているとした。ここでは、平常時の MS 測定値から推定した浸透深さ  $\beta$  を事故時にも適用可能かを検討するため、EGS5 を用いた波高分布の計算条件は 3.4.3.項で示したケース 2 (幾何学的構造考慮) とケース 3 (幾何学的構造と核種の浸透考慮) で行うこととした。

### 4.3.1. ケース間の濃度推定値の比較

ケース間の濃度推定値の結果を表 4-3 に示す。表 4-3 に示された推定誤差は EGS5 の計数誤差 (1%未満)、BIN 中の計数率の計数誤差、各 BIN のバックグラウンドカウントの計数誤差 (1%未満)、および核種の共存による誤差から求められた。核種の共存による誤差は同じ BIN に存在する求めるべき核種以外からの誤差の伝搬によって計算される。例えば、 $^{137}\text{Cs}$  を考えると、BIN No.5 に寄与する  $\gamma$  線は  $^{137}\text{Cs}$  からの非散乱線の他に、 $^{131}\text{I}$  と  $^{132}\text{I}$  からの非散乱線および  $^{132}\text{I}$  と  $^{134}\text{Cs}$  からの散乱線である。それ故、 $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度推定値の誤差の大きさは  $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、および  $^{134}\text{Cs}$  の放射能濃度推定値の誤差の大きさ、特に BIN No.5 に最も寄与していた  $^{132}\text{I}$  の放射能濃度推定値の誤差の大きさに依存する。表 4-3 から、一番多くの核種の影響を受ける  $^{137}\text{Cs}$  の誤差が最も大きいことがわかる。

表 4-3 のケース 3 の濃度推定値を見ると、浸透深さが深いほど濃度推定値はより大きく、 $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$  の時の濃度推定値とケース 2 の差は約 30%であった。3.4.5.1.目で述べたように、核種の浸透を考慮すると、散乱部と光電ピーク部の計数率比 (散乱部/光電ピーク部) が大きくなるため、浸透考慮の有無によって濃度推定値の核種組成比が変わり得る。表 4-3 で示したケース 2 と 3 の濃度推定値の比を見ると、低エネルギー側の (BIN No.が小さい) 核種ほどケース間の比は大きく計算されており、濃度推定値の核種組成比のケース間の差は約 15%であることが示されている。

表 4-3 2011 年 3 月 23 日に推定した地面上放射能濃度 (Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

BIN No.	Nuclide	Surface radioactivity concentration (Bq m <sup>-2</sup> )				Concentration ratio
		Case 2	Case 3			Case 2/Case 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ )
			$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$	
2	<sup>132</sup> Te	(1.3±0.1)×10 <sup>3</sup>	(1.5±0.1)×10 <sup>3</sup>	(1.6±0.1)×10 <sup>3</sup>	(1.8±0.1)×10 <sup>3</sup>	0.77
3	<sup>131</sup> I	(7.1±0.4)×10 <sup>2</sup>	(8.7±0.5)×10 <sup>2</sup>	(1.0±0.1)×10 <sup>3</sup>	(1.1±0.1)×10 <sup>3</sup>	0.71
5	<sup>137</sup> Cs	(2.5±0.7)×10 <sup>2</sup>	(4.4±1.2)×10 <sup>2</sup>	(3.5±1.0)×10 <sup>2</sup>	(6.1±1.7)×10 <sup>2</sup>	0.72
6	<sup>134</sup> Cs	(5.2±0.5)×10 <sup>2</sup>	(6.9±0.7)×10 <sup>2</sup>	(7.3±0.7)×10 <sup>2</sup>	(9.2±0.9)×10 <sup>2</sup>	0.71
7	<sup>132</sup> I	(1.3±0.1)×10 <sup>3</sup>	(1.5±0.1)×10 <sup>3</sup>	(2.0±0.1)×10 <sup>3</sup>	(2.1±0.1)×10 <sup>3</sup>	0.63

#### 4.3.2. 濃度推定値の時間変化

ケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ ) で推定した濃度の時間変化を図 4-1 に示す。他のケースは表 4-3 で示したように濃度の絶対値は異なるものの、以下で述べる時間変化の傾向は類似していた。ラドン壊変生成物の濃度推定値は降雨時に 0 より大きく、それ以外の期間では 0 であった。<sup>131</sup>I、<sup>132</sup>I、および <sup>132</sup>Te の放射能濃度推定値は 3 月 22 日に最大値をとり、その後は指数関数的な減少傾向を示した。この最大値は放射性プルームの通過に起因するものである。上記の特徴に加えて、本推定手法の特性および限界が現れていると思われる推定結果の特徴は以下のとおりである。それらは、①ラドン壊変生成物の影響によると思われる降雨時の <sup>131</sup>I と <sup>132</sup>Te の濃度推定値に見られる不連続と <sup>132</sup>I 濃度推定値に見られる日変動、②4 月以降の <sup>132</sup>Te と <sup>132</sup>I 濃度推定値のばらつき、および③3 月中の <sup>137</sup>Cs 濃度推定値のばらつきである。

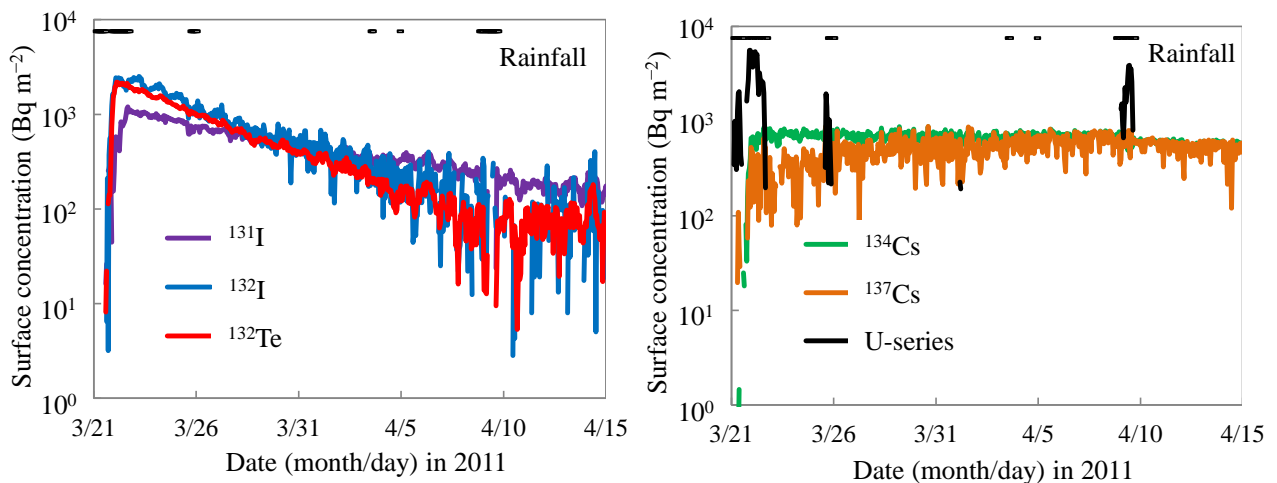


図 4-1 ケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ ) で推定した地面上放射能濃度の時間変化。U-series は <sup>214</sup>Pb と <sup>214</sup>Bi を示している。図の上部に示している実線は降雨の有無を表している ( $>0.5 \text{ mm h}^{-1}$ )。(Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

#### 4.3.2.1. 濃度推定値の時間変化の傾向

##### ・ $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、および $^{132}\text{Te}$ の濃度推定値の時間変化

降雨時を除いた3月26日～4月8日までの濃度推定値を用いて計算した $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、および $^{132}\text{Te}$ の見かけの半減期を表4-4に示す。全ての核種において、見かけの半減期はケース3で物理学的半減期と最も良い一致を示し、ケース2での一致度は最も低かった。これはケース3で推定した濃度が最も合理的であったことを示している。ケース間で見かけの半減期に差が生じた原因を次に考察する。

図4-2に3月22日18時の波高分布の計算値と実測値の比較を示す。波高分布計算値は推定された各核種の濃度推定値を用いてEGS5により求めたものである。図4-2より、ケース3の波高分布計算値は全エネルギーにわたって再現性が良かった。一方、ケース2の波高分布計算値は特に低エネルギー側(<300 keV)で過小に計算されていた。この一致度を定量的に示すための指標として、式(3-23)の $\Delta$ を用い、エネルギー区間を波高分布がケース間で異なった60～300 keVとして計算した $\Delta$ の結果を表4-5に示す。表4-5から、ケース3の $\beta$ を $2\text{ g cm}^{-2}$ とした時が実測値と最も良く一致していることが分かる。この $\beta$ は第3章で述べた平常時の波高分布を用いて推定した $\beta$ と同じ値である。この結果は平常時の波高分布を用いて予め浸透特性( $\beta$ )を把握でき、それを事故時にも使用できることを示している。また表4-5から、ケース2で再現性が最も悪いことが分かる。ケース2と3の波高分布の違いから、ケース2での低エネルギー側の計数率の過小計算は主に浸透を無視したことによるものであると考えられる。

ケース2のように低エネルギー側の計数率を過小計算した場合、光電ピーク部の計数率における他核種の散乱線による寄与を正しく評価できない。その結果、他核種の散乱線の寄与の計算値を除いたBIN中の計数率には、推定すべき核種の非散乱線からの寄与に加え、他核種の散乱線による寄与も実際には含まれることになる。特に、他核種の中に長半減期の放射性核種が含まれる場合、濃度推定値の時間変化は本来の物理学的半減期よりも長く計算される。表4-4で示されるように、 $^{132}\text{Te}$ の見かけの半減期が物理学的半減期よりも長いのは、それよりも長い半減期を持つ核種( $^{131}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、および $^{137}\text{Cs}$ )からの散乱線の寄与を除くことができなかつたためであると考えられる。ケース3( $\beta=2\text{ g cm}^{-2}$ )のように波高分布の計算値と実測値が良く一致している場合、BIN中の計数率における他核種からの散乱線による計数率と推定すべき核種からの非散乱線による計数率を正しく評価できたため、濃度推定値は物理学的半減期に従った減少傾向を示したと考えられる。

表 4-4 地面上放射能濃度推定値の時間変化から計算した各核種の見かけの半減期 (d) (Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

Nuclide	Apparent half-life (d)				Physical half-life (d)
	Case 2	Case 3			
		$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$	
$^{131}\text{I}$	8.4	8.1	8.0	8.1	8.0
$^{132}\text{I}$	3.6	3.6	3.6	3.6	3.2*
$^{132}\text{Te}$	4.5	4.0	3.6	3.3	3.2

\* $^{132}\text{I}$ と $^{132}\text{Te}$ は放射平衡であると仮定した時の半減期

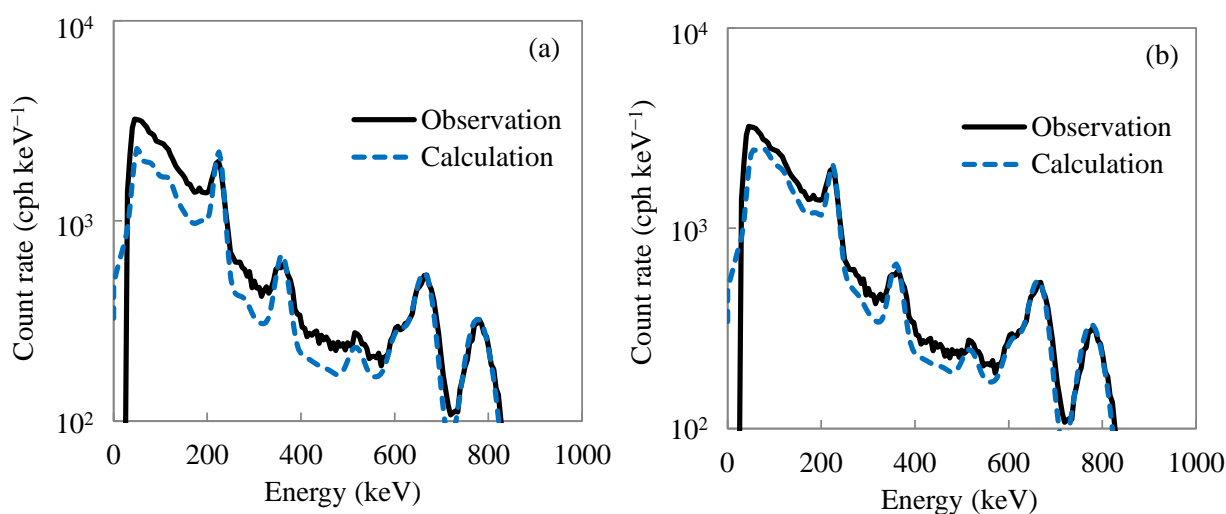


図 4-2 2011 年 3 月 22 日 18 時の波高分布の実測値と計算値の比較。(a) ケース 2、(b) ケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ )。(Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

表 4-5 各ケースで計算した NaI 波高分布の実測値と計算値の差  $\Delta$  (Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

Case 2	Case 3		
	$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$
1.175	0.143	0.052	0.053

・ $^{137}\text{Cs}$ の濃度推定値のばらつき

図 4-1 で示されるように、 $^{137}\text{Cs}$ の濃度推定値のばらつきは4月中よりも3月中で大きい。

$^{137}\text{Cs}$ の濃度推定値のばらつきの原因を次に考察する。

図 4-3 に 3 月 23 日と 4 月 1 日の BIN No. 5 (630~700 keV) への各核種からの計数率への寄

与率を示す。この寄与率はケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ ) で推定した放射能濃度を用いて計算した。図 4-3 に示されるように、3 月 23 日では主に BIN No. 5 を用いて推定される  $^{137}\text{Cs}$  からの計数率への寄与率は 10%のみであり、 $^{132}\text{I}$  からの寄与率は 84%であった。一方、4 月 1 日では  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{132}\text{I}$  からの寄与率はほぼ等しかった。この結果から、 $^{137}\text{Cs}$  推定濃度が 3 月中に大きくばらついた主な原因は、高い放射能濃度を示し、BIN No. 5 の計数率への寄与が最も大きかった  $^{132}\text{I}$  の共存によるものであると考察される。

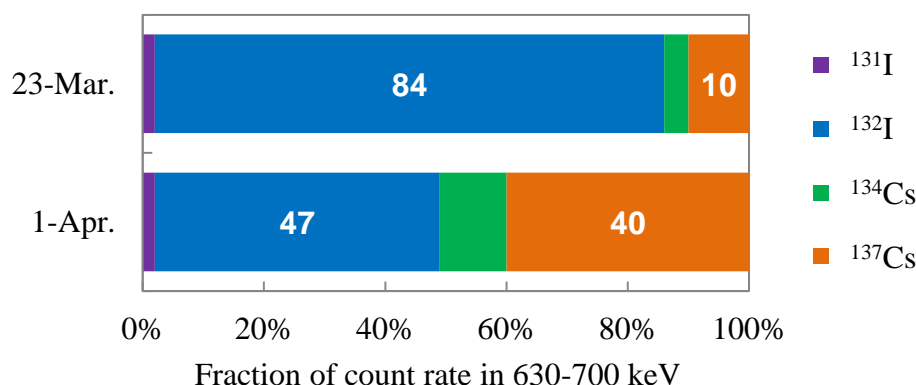


図 4-3 ケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ ) で計算した各核種からの 630~700 keV の計数率への寄与割合 (Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

#### 4.3.2.2. ラドン壊変生成物の共存による濃度推定値への影響

2.3.4.項で示したように、静岡県内の MS では人工放射性核種による計数率への寄与が自然放射性核種（主に  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$ ）の湿性沈着による計数率への寄与と同等であった。それ故、自然放射性核種の濃度変化は人工放射性核種の濃度推定値の誤差要因となり得る。ここでは、ラドン壊変生成物の濃度変化による人工放射性核種の濃度推定値への影響について言及する。

##### ・降雨時の $^{131}\text{I}$ と $^{132}\text{Te}$ の濃度推定値の不連続

3 月 26 日および 4 月 9 日の降雨時の  $^{131}\text{I}$  と  $^{132}\text{Te}$  の濃度推定値は前後と比較して低く推定され、指数関数に近い形で減少する傾向から外れている（図 4-1）。降雨時の過小計算の主な原因は、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  が放射平衡であると仮定したことによるものと考えられる。前章で推定された  $^{214}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$  濃度比は約 0.3~1.4 であり、放射平衡を仮定して得た  $^{214}\text{Pb}$  濃度推定値は 0.3~1.4 倍程度の誤差を持つ。そのため、 $^{214}\text{Pb}$  の放出する  $\gamma$  線エネルギーと重複する  $^{131}\text{I}$  と  $^{132}\text{Te}$  の濃度推定値は降雨時に合理的でなかったと考えられる。



・<sup>132</sup>Iの濃度推定値の日変動

図4-1に示した<sup>132</sup>I濃度推定値には明け方に最大値をとり、日中に最小値をとる日変動が見られた。この日変動は2.5節に示したこの地域で測定された大気中ラドン濃度の日変動と類似している。本研究では、バックグラウンド波高分布として降雨時を除く3月1～20日までの波高分布の平均値を使用し、日変動の影響を考慮していない。<sup>214</sup>Biは対象核種の中で最もエネルギーの高いγ線を放出するため、今回対象としているエネルギー範囲(65～1840 keV)にわたって計数率はラドン壊変生成物濃度の日変動の影響を受ける。平常時の計数率の変動よりも福島原発事故後に測定された計数率が有意に上昇したBINの中で、γ線エネルギーが最も高いBIN No. 7で推定される<sup>132</sup>Iの濃度推定値に日変動が見られ、<sup>132</sup>Iの濃度推定値から求められたBIN No. 1～6の計数率はラドン壊変生成物による各BINの計数率の日変動を再現したため、他核種の濃度推定値には日変動が見られなかったと考えられる。

・4月以降の<sup>132</sup>Teと<sup>132</sup>Iの濃度推定値のばらつき

大気中ラドン壊変生成物によるバックグラウンド波高分布の振動幅から本手法の推定下限を決定できる可能性がある。表4-6に各BINのバックグラウンド計数率の標準偏差と標準偏差に対応する対象核種の放射能濃度を示す。表4-6に示した濃度はバックグラウンド波高分布が振動する条件下での推定下限の指標として使うことができ、その指標はBINのバックグラウンド計数率の標準偏差とBIN中に含まれるγ線の放出率に依存する。<sup>132</sup>Iと<sup>132</sup>Teの濃度推定値は指標を下回る4月以降に相対的にばらつきが大きくなった(図4-1)。

表4-6 各BINのバックグラウンド計数率の標準偏差とその標準偏差に対応する核種の地面上放射能濃度(Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

BIN No.	Standard deviation (cph keV <sup>-1</sup> )	Radionuclide	Surface concentration (Bq m <sup>-2</sup> )
1	22.9	<sup>133</sup> Xe	1*
2	42.3	<sup>132</sup> Te	101
3	25.6	<sup>131</sup> I	89
4	9.7	<sup>133</sup> I	31
5	8.1	<sup>137</sup> Cs	71
6	5.8	<sup>134</sup> Cs	51
7	6.2	<sup>132</sup> I	418
8	4.7	<sup>136</sup> Cs	130
9	1.8	<sup>214</sup> Bi	263

\*単位は Bq m<sup>-3</sup>

### 4.3.3. 実測値との比較

推定手法の妥当性を検証するため、濃度推定値と二種類の実測値（静岡県環境放射線監視センター提供）との比較を行う。その一つは3月22～31日までに監視センターで行われた1日毎の降下量測定値である。降下量の測定は午前9時から翌日午前9時までに開口部0.5 m<sup>2</sup>の水盤上に降下物を収集し、その後乾燥させた試料をHPGe検出器を用いて測定されたものである。ここでは推定値と比較するために、日々の降下量に放射壊変を考慮して積算したものの（積算値）を比較対象とする。もう一つは4月15日に監視センターの裸地面上でHPGe検出器を用いてIn-situ測定されたものである。測定された計数率から地面上放射能濃度への換算は放射性物質が全て無限平面上に存在すると仮定して求められた値（In-situ測定値）である。しかし、In-situ測定値は実際の環境場に即した仮定ではないため、真の値とは異なる。得られた実測値は<sup>131</sup>IでIn-situ測定値、<sup>132</sup>Iと<sup>132</sup>Teで積算値、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csで積算値およびIn-situ測定値である。

推定値と実測値の比較を図4-4と表4-7に示す。 $\beta=0, 1, 2, 3 \text{ g cm}^{-2}$ の条件下で推定した濃度と実測値を比較した。図4-4と表4-7に示した<sup>134</sup>Csおよび<sup>137</sup>Csの推定値と積算値を比較すると、波高分布の再現性が最も良かった $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ （表4-5）と仮定した場合、3月中は約30%以内で一致し、4月15日では数%以内で一致している。表4-7で示した4月15日の推定値とIn-situ測定値を比較すると、 $\beta=0 \text{ g cm}^{-2}$ と仮定した場合に数%以内で一致しており、In-situ測定値を求める際に使用した仮定と対応した結果が得られた。

<sup>131</sup>Iの推定値とIn-situ測定値を比較すると、図4-4で示した $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ と仮定した場合の推定値はIn-situ測定値よりも約30%大きく、表4-7で示されるように $\beta=0 \text{ g cm}^{-2}$ と仮定した場合に数%以内で一致している。図4-4で示されるように、推定値とIn-situ測定値の時間変化が平行（半減期が同じ）であることはBIN No. 3中の計数率に他核種からの非散乱線の混入が無いことを示し、NaI波高分布から推定した<sup>131</sup>Iの放射能濃度は時間変化の点において矛盾がない。

図4-4で示されるように、<sup>132</sup>Iと<sup>132</sup>Teの濃度推定値の時間変化は大まかに積算値と一致しているが、積算値よりも約10～30%大きい。推定値と積算値の時間変化がほぼ平行であるため、<sup>131</sup>Iの同様の議論で、<sup>132</sup>Iと<sup>132</sup>Teの放射能濃度推定値は時間変化の点において矛盾がない。しかし過大評価の理由は分かっておらず、一つの要因として、4.3.2.2.目で議論したラドン壊変生成物の共存が考えられる。

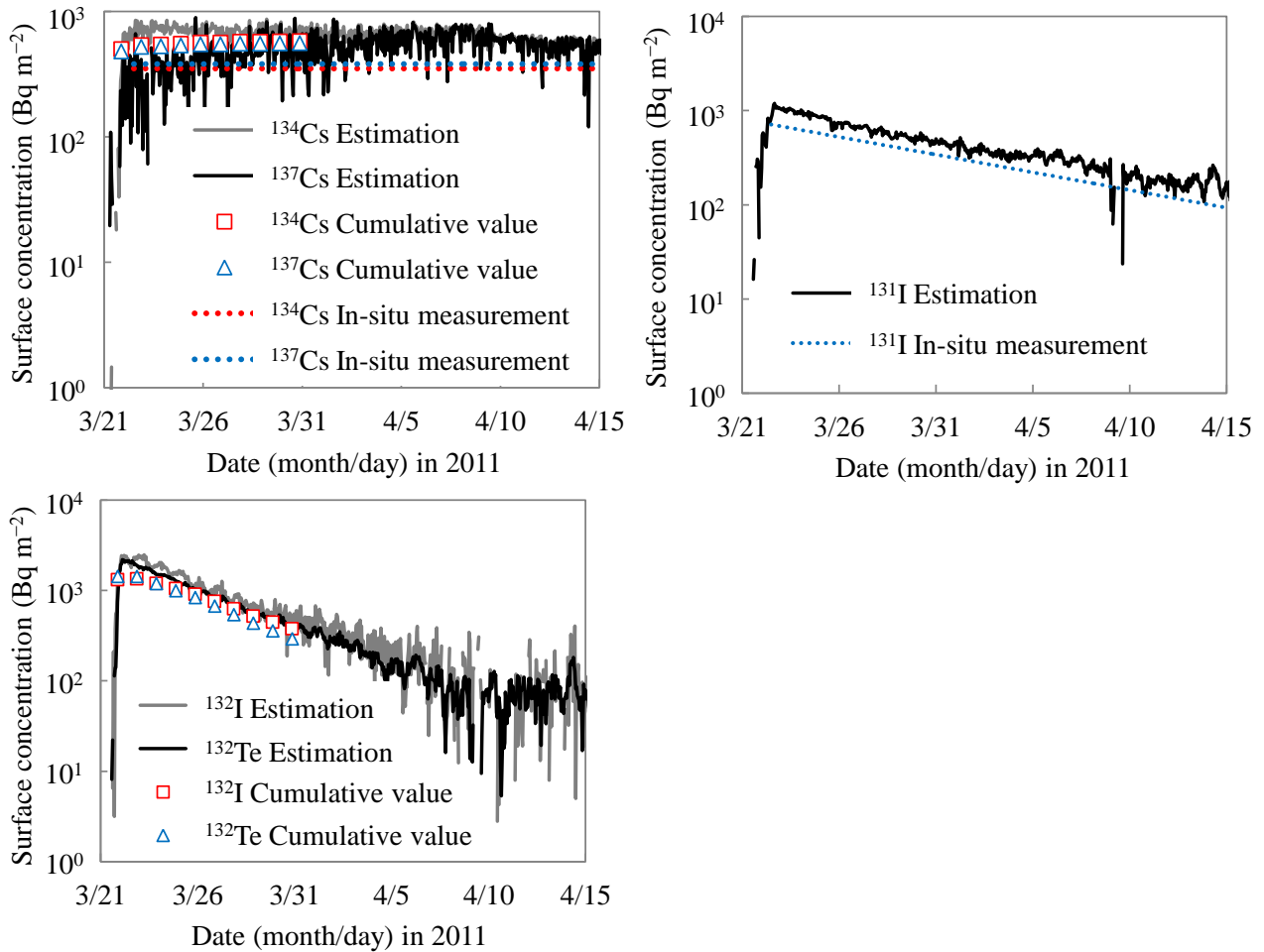


図 4-4 ケース 3 ( $\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$ ) で推定した地面上放射能濃度と実測値の比較。実測値は In-situ 測定値と積算値である。点線は In-situ 測定時点の 4 月 15 日から壊変のみで減衰すると仮定して、外挿したものである。(Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

表 4-7 4 月 15 日時点の地面上放射能濃度。推定値は 4 月 15 日の 1 d の平均値と標準偏差を示している。In-situ 測定値の誤差は計数誤差によるものである。(Hirouchi et al. (2014c)を基に作成)

Nuclide	Estimated concentration ( $\text{Bq m}^{-2}$ )				Reference concentration ( $\text{Bq m}^{-2}$ )	
	$\beta=0 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=1 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=2 \text{ g cm}^{-2}$	$\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$	In-situ measurement	Cumulative value
$^{131}\text{I}$	$97 \pm 29$	$116 \pm 38$	$124 \pm 43$	$146 \pm 37$	$93 \pm 5$	-
$^{134}\text{Cs}$	$366 \pm 19$	$494 \pm 26$	$554 \pm 36$	$621 \pm 31$	$350 \pm 11$	582
$^{137}\text{Cs}$	$365 \pm 35$	$504 \pm 51$	$552 \pm 65$	$644 \pm 54$	$381 \pm 13$	559

#### 4.4. NaI 波高分布を用いた大気中—地面上放射能濃度の推定

人工放射性核種が大気中と地面上の両方に存在する場合に、NaI 波高分布からどの程度放射性物質の位置を分別して放射能濃度を推定できるかを検討する。茨城県内の MS では図 2-11 と表 4-1 で示したように希ガスの  $^{133}\text{Xe}$  を含め、対象とした人工放射性核種全ての光電ピークが確認できた。希ガスの  $^{133}\text{Xe}$  の光電ピークが確認できたことは、地面上のみならず大気中にも放射性物質が存在していることを示している。本研究では、茨城県内の 11 地点の MS（久慈、磯部、石神、豊岡、村松、押延、阿字ヶ浦、大貫、大場、造谷、広浦）で 2011 年 3 月 14 日～3 月 31 日に測定された波高分布の 10 min 値を対象とし、濃度推定を行う。2011 年 3 月 14 日は降雨がなく、その期間に測定された波高分布に人工放射性核種による計数率の増加が見られなかったため、その日の波高分布平均値をバックグラウンド波高分布として使用した。

前節で議論したのは、放射性物質の全てが地面上に存在すると仮定した場合である。現在までに行われた波高分布からの放射能濃度の推定もまた、放射性物質が全て地面上または大気中に存在すると仮定して行われた（平山ら, 2013a, 2013b）。平山ら（2013b）は実環境で放射性物質が地面上と大気中の両方に存在する場合に、放射性物質が地面上または大気中のどちらかにしか存在しないと仮定して推定した濃度を用いて EGS5 により再構築した波高分布が実測の波高分布と一致しなかったため、その濃度推定値は合理的でない指摘した。そこで、平山ら（2014）はプルーム通過前後に測定された波高分布を利用して大気中の放射性物質からの寄与と地面上の放射性物質からの寄与を分ける手法を考案し、大気中と地面上の  $^{131}\text{I}$  の放射能濃度の推定を行った。しかし、この手法の欠点として、プルーム通過後の設定の違いにより、濃度推定値が大きくばらつくことが挙げられた。

2.3.3.項で示したように、特に 3 月 22 日と 23 日はプルーム通過前の線量率とプルーム通過中の線量率の差が小さく、プルーム通過終了時刻を決定できなかった。そこで、本研究では観測された時刻までの波高分布を用いて、大気中と地面上の放射能濃度を同時に推定できるように焦点を置いた。

本研究で着目した点は低エネルギー側の計数率である。低エネルギー側の計数率は主に検出器に到達するまでに散乱した  $\gamma$  線の数に依存する。図 4-5 に  $^{134}\text{Cs}$  が①大気中に一様に存在する場合、②地面上に一様に存在する場合、③放射能濃度の深度分布が指数関数であり、その  $\beta$  値が  $2 \text{ g cm}^{-2}$  の場合の波高分布計算値を示す。波高分布計算値は光電ピークの 800 keV の計数率が一致するように全て規格化されている。図 4-5 で示されるように、光電ピーク部の計数率が同じであっても、放射性物質が全て大気中に存在する場合の方が、全て地面上に存在する場合と比べて、低エネルギー側 (<500 keV) の計数率が高い。これは放射性物質が大気中に存在する方が、地面上に存在する場合と比べて、線源と検出器間の空気の厚さが厚いことによって引き起こされている。空気の厚さが厚いことにより、 $\gamma$  線の空気中での散乱

が増加するため、低エネルギー側と光電ピーク部の計数率の比（低エネルギー側/光電ピーク部）が大きい。波高分布の光電ピーク部の計数率のみならず、低エネルギー側の計数率を一致させるように放射性物質を大気と地面に分配することによって、波高分布から大気中と地面上の放射能濃度を同時に推定できる可能性が示されている。

浸透を考慮した場合も、 $\gamma$ 線の土壤中での散乱が増加するため、放射性物質が大気中に存在する場合と同様に低エネルギー側の計数率がより大きい。現状では、低エネルギー側と光電ピーク部の計数率の比の増加が、放射性物質が大気中に存在することによって引き起こされるのか、放射性物質が浸透することによって引き起こされるのかを区別できない。そこで本研究では、放射性物質の浸透を考慮することが大気中と地面上放射能濃度推定値にどの程度の影響を与えるかの検討を行う。

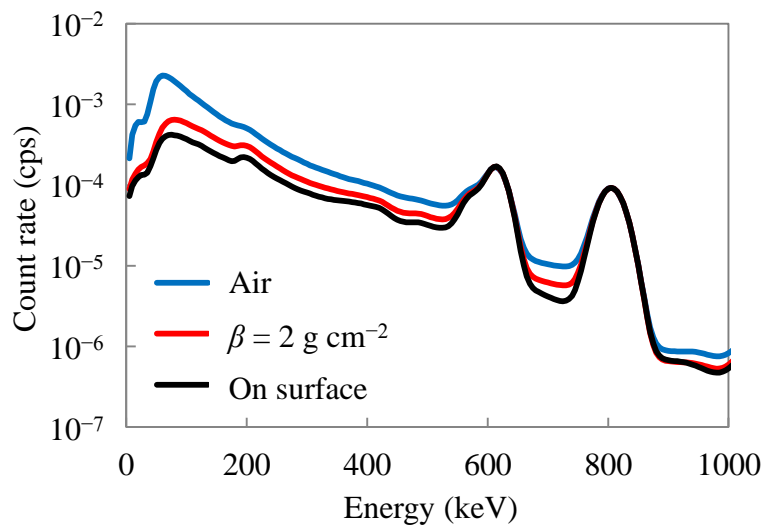


図 4-5 放射性物質の存在位置に対する  $^{134}\text{Cs}$  の波高分布計算値の依存性。波高分布計算値は 800 keV の計数率が一致するように規格化されている。

#### 4.4.1. 大気中—地面上放射能濃度の同時推定法

3.4.2.項で述べたように、あるエネルギー範囲の計数率  $A$  は以下の式で表される。

$$A = \sum_i (\Gamma_{air,i} C_{air,i} + \Gamma_{surface,i} C_{surface,i}) \quad (4-2)$$

$C_{air}$  は大気中放射能濃度、 $C_{surface}$  は地面上放射能濃度である。NaI 波高分布から大気中放射能濃度と地面上放射能濃度を求めるうえで、未知数は各核種の大気中および地面上放射能濃度であり、これらの放射能濃度を求めるために必要な BIN 数は推定する核種数の 2 倍である。しかし、NaI 検出器のエネルギー分解能が低く、散乱線の情報を持っているエネルギー区間

は限られているため、設定できる BIN 数は限られている。そこで本研究では、大気中放射能濃度と地面上放射能濃度の関係を単純な比例関係であるとした。

$$C_{air} = FC_{surface} \quad (4-3)$$

本来、乾性・湿性沈着速度は元素および粒子の形状によって異なる (Bruno, 2007) が、本研究では乾性・湿性沈着速度は核種によらないと仮定し、 $F$  は核種によらずに一定とした。但し、 $^{133}\text{Xe}$  は希ガスであるため、地面上に沈着することはないため、 $^{133}\text{Xe}$  の地面上放射能濃度は常時 0 であるとした。 $F$  が核種によらず一定であるという仮定は、大気中放射能濃度の核種組成比と地面上放射能濃度の核種組成比が等しいことを意味する。この仮定より、放射能濃度を求めるために必要な BIN 数は推定する核種数+1 で良い。

$F$  が大きいほど大気中に存在する放射性物質からの寄与が大きくなり、低エネルギー側と光電ピーク部の計数率の比 (低エネルギー側/光電ピーク部) は大きく計算される。従って、実測値の低エネルギー側の計数率と光電ピーク部の計数率の比が計算値と一致するように放射性物質を大気中と地面上に分配することによって  $F$  を一意に決定できることが期待される。

$F$  の推定値が特定の核種の推定誤差に依存しないようにするため、 $F$  を決定するエネルギー区間は推定核種の光電ピークが一つも含まないことが望ましい。そこで本研究では  $F$  を推定するために、推定核種の光電ピークを含まない BIN (120~180 keV) を一つ設けた。新たに設定した BIN は  $^{133}\text{Xe}$  を推定する BIN (65~95 keV) よりも高エネルギーであり、 $F$  は  $^{133}\text{Xe}$  の大気中放射能濃度に依存しない。このことは式(4-2)と式(4-3)を用いて、

$$A = \sum_{i=I, Cs, Te} (\Gamma_{air,i} F + \Gamma_{surfacei}) C_{surfacei} \quad (100 \text{ keV 以上の計数率}) \quad (4-4)$$

$$A = \sum_{i=I, Cs, Te} (\Gamma_{air,i} F + \Gamma_{surfacei}) C_{surfacei} + \Gamma_{air, Xe} C_{air, Xe} \quad (100 \text{ keV 以下の計数率}) \quad (4-5)$$

と表される。これらの式は 100 keV 以上の波高分布より、 $^{133}\text{Xe}$  以外の核種の放射能濃度と  $F$  を求めることができ、100 keV 以下の波高分布では  $^{133}\text{Xe}$  以外の核種からの計数率への寄与を除くことによって、 $^{133}\text{Xe}$  の大気中放射能濃度を求めることが可能であることを示している。式(3-23)に示した最小二乗法を用いて、全ての BIN の計数率が最も一致する各核種の放射能濃度および  $F$  を求めた。

#### 4.4.1.1. 推定下限値

本研究で考案した推定手法による  $F$  の推定下限値を検討する。 $F$  は 120~180 keV の計数率を用いて推定され、このエネルギー区間の計数率の誤差が  $F$  の推定下限値を決定する。放射能がある地面上放射能濃度で存在する時の 120~180 keV の計数率を  $A_{surface}$  とすると、その時

の計数誤差は  $\sigma_{surface} = \sqrt{A_{surface}}$  と表される。本研究では  $3\sigma_{surface}$  以上の変化があった場合に、大気中に放射能が存在することによって計数率が増加したとして  $F$  を推定する。

表 4-8 に各核種の地面上放射能濃度が  $0.1 \text{ kBq m}^{-2}$ 、 $1 \text{ kBq m}^{-2}$  である時の  $3\sigma_{surface}$  および  $3\sigma_{surface}$  に対応する各核種の大気中放射能濃度と  $F$  を示す。表中の Total は全ての核種が同じ濃度で存在する条件で求めた値である。求めた値は、それぞれの地面上放射能濃度で存在する時の各核種の大気中放射能濃度および  $F$  の推定下限値を示す。核種が単一で存在する場合は、 $0.1 \text{ kBq m}^{-2}$  での  $F$  は  $0.1 \text{ m}^{-1}$  程度、 $1 \text{ kBq m}^{-2}$  での  $F$  は  $0.04 \text{ m}^{-1}$  程度であり、全ての核種が同じ地面上放射能濃度で存在する場合は、 $0.1 \text{ kBq m}^{-2}$  での  $F$  は  $0.043 \text{ m}^{-1}$ 、 $1 \text{ kBq m}^{-2}$  での  $F$  は  $0.014 \text{ m}^{-1}$  であった。

表 4-8 120~180 keV 中の計数率の誤差とその誤差に対応する大気中放射能濃度 ( $\text{Bq m}^{-3}$ ) および地面上放射能濃度と大気中放射能濃度の比  $F (\text{m}^{-1})$ 。地面上放射能濃度を  $0.1 \text{ kBq m}^{-2}$  と  $1 \text{ kBq m}^{-2}$  にした場合。

	$3 \times \sigma_{Surface} \text{ (cps)}$		Air concentration ( $\text{Bq m}^{-3}$ )		$F (\text{m}^{-1})$	
	$0.1 \text{ kBq m}^{-2}$	$1 \text{ kBq m}^{-2}$	$0.1 \text{ kBq m}^{-2}$	$1 \text{ kBq m}^{-2}$	$0.1 \text{ kBq m}^{-2}$	$1 \text{ kBq m}^{-2}$
$^{131}\text{I}$	0.053	0.168	16.6	52.6	0.166	0.053
$^{132}\text{I}$	0.074	0.236	8.1	25.6	0.081	0.026
$^{133}\text{I}$	0.048	0.151	14.7	46.4	0.147	0.046
$^{134}\text{Cs}$	0.068	0.214	9.3	29.3	0.093	0.029
$^{136}\text{Cs}$	0.081	0.256	9.0	28.4	0.090	0.028
$^{137}\text{Cs}$	0.042	0.133	15.2	48.0	0.152	0.048
$^{132}\text{Te}$	0.051	0.162	20.2	63.8	0.202	0.064
Total	0.162	0.511	4.3	13.7	0.043	0.014

#### 4.4.1.2. 核種組成比の仮定

通過するプルーム中の放射能濃度の核種組成比は、プルーム毎に異なる可能性がある。その結果、プルーム通過 2 回目以降では、プルーム通過直前の地面上放射能濃度の核種組成比と大気中放射能濃度の核種組成比が異なる可能性があり、大気中放射能濃度と地面上放射能濃度の核種組成比が等しいという仮定と相異なる。プルーム通過 2 回目以降に測定された波高分布に寄与する核種は、それ以前のプルーム通過時に沈着した核種と新たに通過したプルーム中の核種またはそのプルーム通過時に沈着した核種である。プルーム通過前に存在する核種からの寄与を除去するために、プルーム通過直前に推定した地面上放射能濃度を波高分布が測定された時点で壊変補正し、その濃度を用いて EGS5 により波高分布を再構築し、測

定された波高分布から再構築した波高分布を除去した。プルーム通過前に存在する核種からの寄与を除いた波高分布を用いて、大気中と地面上放射能濃度の同時推定を行う。再構築を行う期間は、表 2-2 に示したプルーム通過期間中であり、それ以外の期間では波高分布の再構築を行わない。

#### 4.4.1.3. EGS5 による波高分布の計算

本研究では、 $\Gamma$  を求める際の計算系は検出器周囲に構造物のない空間（水平広さ 500 m 四方の空気層 1 km と土壌層 1 m）とした。検出器は茨城 MS に設置されている 2"φ×2"NaI 検出器とし、検出器の位置は地表面から 3.5 m とした。本研究で対象とした茨城県内の MS は福島第一原子力発電所から約 100 km の位置であり、福島第一原発から放出された放射性物質は十分に拡散していると考えられるため、 $\Gamma_{air}$  を求める際には、放射性物質は高さ 1 km まで一様に存在すると仮定した。 $\Gamma_{surface}$  を求める際、計算体系内で放射性物質は一様に沈着し、放射性物質が全て地表面上に存在する、または地表面下の放射能濃度の深度分布が式 (3-16) の指数関数で表されるとした。

#### 4.4.2. 推定結果

ここでは、地面上に沈着した放射性物質は浸透せずに全て地表面上に存在する仮定で解析を行い、全 MS に共通した放射能濃度推定値の時間変化を議論する。例として、村松での地面上放射能濃度、大気中放射能濃度、および  $F$  の推定結果を図 4-6 に示す。得られた  $F$  は表 2-2 で示したプルーム通過中の可能性が高い期間（3 月 15、16、20、21、22 日）で大きく、それ以外の期間では、ほぼ一定の値を示した。3 月 21 日のプルーム通過を境に、プルーム通過がない期間の  $F$  はより大きく計算された。

地面上放射能濃度推定値はプルーム通過中に高く、それ以外の期間では、各核種の物理学的半減期に従って指数関数的に減少する傾向が得られた。地面上放射能濃度推定値の時間変化から、3 月 17～19 日と 3 月 25～31 日の各核種の見かけの半減期を導出した（表 4-9）。全ての MS で、見かけの半減期は 3 月 17～19 日より 3 月 25～31 日で長い。 $^{131}\text{I}$  と  $^{136}\text{Cs}$  の見かけの半減期は 3 月 17～19 日より 3 月 25～31 日で物理学的半減期に近い値を示し、 $^{132}\text{I}$  と  $^{132}\text{Te}$  の見かけの半減期は 3 月 25～31 日より 3 月 17～19 日で物理学的半減期に近い値を示した。本来、放射性物質が地面に沈着して 1 d 以上経過すれば、 $^{132}\text{I}$  と  $^{132}\text{Te}$  は放射平衡に達し、それらの放射能濃度は等しくなる。しかし、全ての MS で、全体を通して  $^{132}\text{Te}$  の地面上



放射能濃度は<sup>132</sup>Iよりも大きく推定され、見かけの半減期は<sup>132</sup>Teの方が半日程度長く計算された。

推定結果にはさらに以下の特徴が見られた。①図 4-6 には示していないが、濃度推定値が MS 間で異なっていた。②図 4-6 に示されるように、3 月 15～21 日までの<sup>134</sup>Cs、<sup>136</sup>Cs、および<sup>137</sup>Csの地面上および大気中放射能濃度推定値のばらつきが大きく、21 日以降では小さい。このばらつきの傾向は他の MS にも見られた。③図 4-6(b)に示されるように、表 2-2 に示されたプルーム通過期間以外（3 月 17 日～19 日、3 月 25 日～31 日）も大気中放射能濃度推定値は 0 よりも大きく、この傾向は他の MS でも見られた（例外：久慈）。以上の特徴は推定手法の特性と限界を反映したもので、以下に詳細を記す。

表 4-9 地面上放射能濃度推定値の時間変化を用いて計算した見かけの半減期 (d)

	Kuji		Isobe		Ishigami		Toyooka		Oshinobe		Muramatsu	
	1	2	1	2	1	2	1	2	1	2	1	2
<sup>131</sup> I	6.2	7.6	6.9	7.5	5.4	7.1	5.9	6.9	5.5	6.9	5.8	6.4
<sup>132</sup> I	3.1	4.4	3.1	4.1	3.0	4.3	3.0	4.3	3.0	4.4	2.9	3.9
<sup>133</sup> I	1.4	-	1.4	-	1.2	-	1.3	-	1.0	-	1.2	-
<sup>136</sup> Cs	6.2	13.6	6.6	15.1	4.9	13.6	6.0	13.1	4.9	13.3	6.2	12.2
<sup>132</sup> Te	3.4	4.6	3.7	5.2	2.7	4.5	3.6	5.1	3.6	5.1	3.7	4.6

	Ajigaura		Ohba		Ohnuki		Hiroura		Tsukuriya		Physical half-life
	1	2	1	2	1	2	1	2	1	2	
<sup>131</sup> I	3.9	6.2	5.9	7.4	6.2	8.2	5.9	9.1	6.0	9.8	8.0
<sup>132</sup> I	2.4	3.7	2.9	4.4	3.0	4.4	3.0	4.4	3.0	5.0	3.2*
<sup>133</sup> I	1.2	-	1.3	-	1.4	-	1.3	-	1.3	-	0.9
<sup>136</sup> Cs	3.8	10.2	4.8	15.8	4.5	13.9	4.7	19.3	6.0	19.3	13.2
<sup>132</sup> Te	2.6	3.9	3.7	4.8	3.6	5.6	3.5	6.9	3.6	7.2	3.2

MS 名の下に表している数字は期間を示す（1：3 月 17～19 日、2：3 月 25～31 日）。

\*<sup>132</sup>I と <sup>132</sup>Te は放射平衡であると仮定した時の半減期

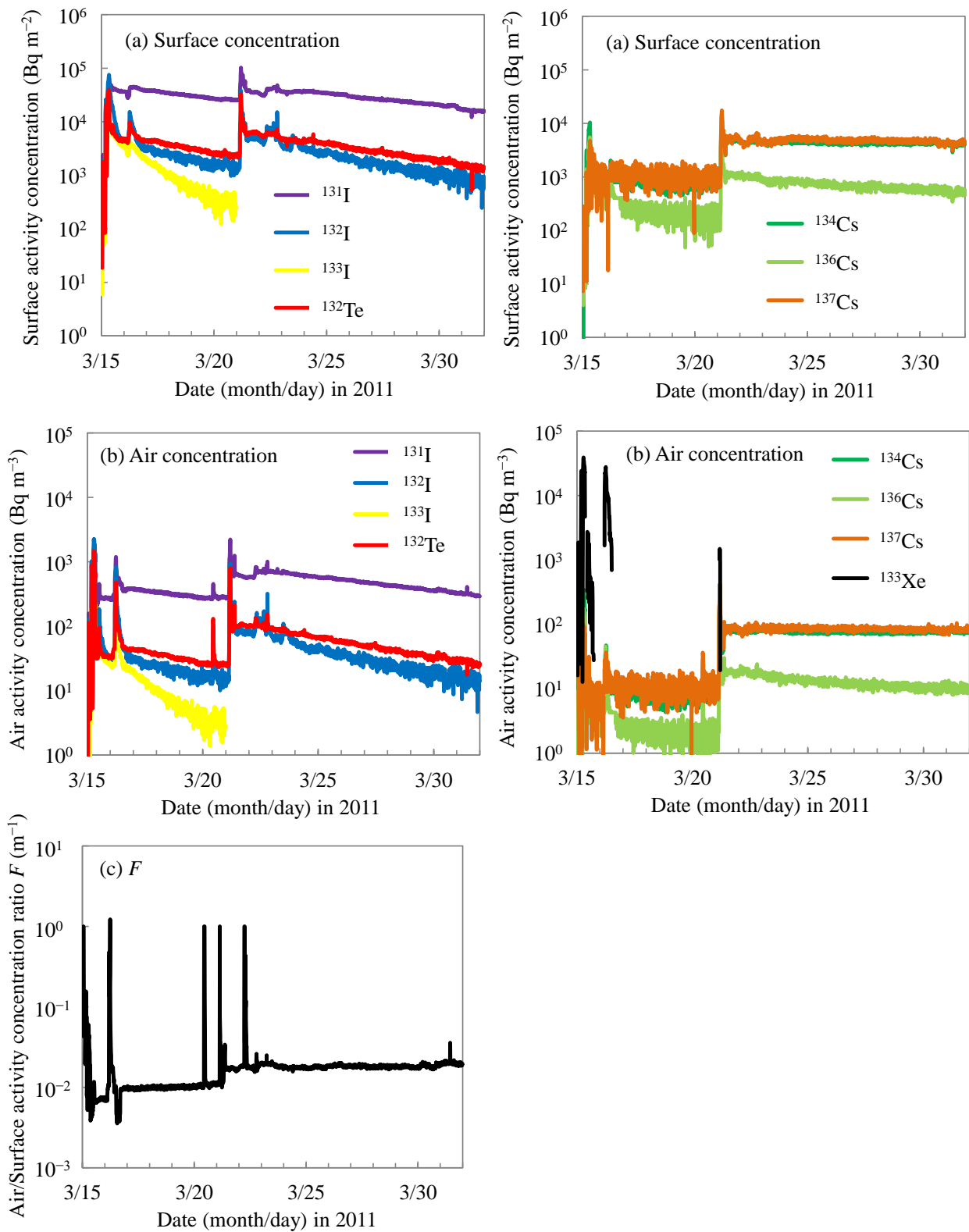


図 4-6 村松での推定値の時間変化。(a)地面上放射能濃度、(b)大気中放射能濃度、(c)地面上放射能濃度と大気中放射能濃度の比  $F$ 。

#### 4.4.2.1. MS 間の濃度推定値の差異

地面上放射能濃度推定値と大気中放射能濃度推定値の MS 間の比較を図 4-7 に示す。示した値は村松で推定した放射能濃度との比（他 MS/村松 MS）である。2.3.3.項で、MS によってプルーム通過の時間帯が異なっていることを指摘した。大気中放射能濃度推定値を MS 間で比較するために、プルームの中心濃度を捉えていると考えられるプルーム通過中に推定された最大値を比較対象とした。今回解析対象としたプルームは①3月15日1～3時、②3月15日4～6時、③3月15日6～10時、④3月16日4～12時、⑤3月20日10～12時、⑥3月21日3～7時である。ここで示した番号は、以降「プルーム No.」として使用する。地面上放射能濃度推定値の MS 間の比較はプルーム通過のない3月18日0時（図 4-7 では期間 8 として表記）と3月31日0時（図 4-7 では期間 9 として表記）で行った。

##### ・大気中放射能濃度推定値の MS 間の差異

大気中放射能濃度を見ると（図 4-7 のプルーム No. 1～6）、村松との大気中放射能濃度の比は概ね 0.1～10 であった。プルーム毎に濃度比を見ると、核種間で濃度比は近い値であり、その濃度比の幾何標準偏差は約 1.5 であった。2.3.3.項で述べたように、3月15日4～6時には阿字ヶ浦から南の MS（阿字ヶ浦、大場、大貫、広浦、および造谷）ではプルームの通過が確認されず、それらの MS では、図 4-7 に示したプルーム No. 2 の大気中放射能濃度推定値は 0 であり、プルーム通過が確認されなかったことと対応していた。

同じプルーム中の放射能濃度を測定した場合、プルームの位置により放射能濃度は異なるものの、放射能濃度の核種組成比は同じであることが期待される。図 4-7 の石神のプルーム No.6 で放射能濃度比が 0.1 であったことは、プルームの位置の違いにより、測定した大気中放射能濃度が村松と石神間で異なったことを反映した結果であると考えられる。核種間で放射能濃度推定値の村松との比が近いほど、村松と他の MS で推定した放射能濃度の核種組成比の一致度が高いことを示す。各プルームで放射能濃度推定値の村松との比が核種間で近い（濃度比の幾何標準偏差が小さい）ことから、同じプルームの測定値を解析した点において、本手法は妥当な結果を示した。しかし、 $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度推定値の村松との比は他核種の比と異なる事象が多く、この点については後述する（4.4.2.2.目）。

##### ・地面上放射能濃度推定値の MS 間の差異

地面上放射能濃度を見ると（図 4-7 の期間 8 と 9）、村松との地面上放射能濃度推定値の比は概ね 0.5～10 であった。期間毎に濃度比を見ると、核種間で濃度比は近い値であり、その濃度比の幾何標準偏差は約 1.2 であった。第 3 章で述べたように静岡県内の MS では、周囲の幾何学的構造の違いによる MS 間の差異は最大で 30%であった。茨城県内の MS では、静岡県

の中町のように周囲に高い建物が多く存在する MS はなく、周囲の幾何学的構造による MS 間の差異は 30% よりも小さいと予想される。久慈、磯部、および石神では 3 月 18 日の地面上放射能濃度推定値は村松の 5 倍以上であった（図 4-7 の期間 8）ものの、それ以前に通過したプルームの大気中放射能濃度推定値の村松との比は 0.5～2 程度（図 4-7 のプルーム No. 1～4）であり、大気中放射能濃度推定値が大きい MS で地面上放射能濃度推定値が大きい傾向は見られなかった。それ故、地面上放射能濃度推定値の MS 間のファクター 5（平均値の 1/5～5 倍）程度の比較的大きな差異の主な原因は MS 周囲の幾何学的構造を考慮していないことと、MS 上空を通過したプルームの大気中放射能濃度の MS 間の差異ではないと考えられる。

地面上放射能濃度推定値の差異を東海村内の MS（石神、豊岡、押延、および村松）の推定値を用いて検討する。村松以外の東海村内の MS と村松とのプルーム No. 1～4 の大気中放射能濃度推定値の比は 0.5～2 程度であった。しかし、図 4-7 の期間 8 に示した 3 月 18 日の地面上放射能濃度推定値を比較すると、村松で推定された値よりも石神では約 7 倍、豊岡と押延では約 2 倍大きく推定された。特に他の MS と比べて大きく推定された石神では、検出器を覆うように高い樹木が存在することが現地調査により確認された。樹木は桜が主体であり、事故当時（3 月）は葉が無いと考えられるものの、地面に沈着した放射性物質に加え、枝に付着した放射性物質からの寄与により、石神では地面上放射能濃度が他の MS よりも高く推定されたと考えられる。

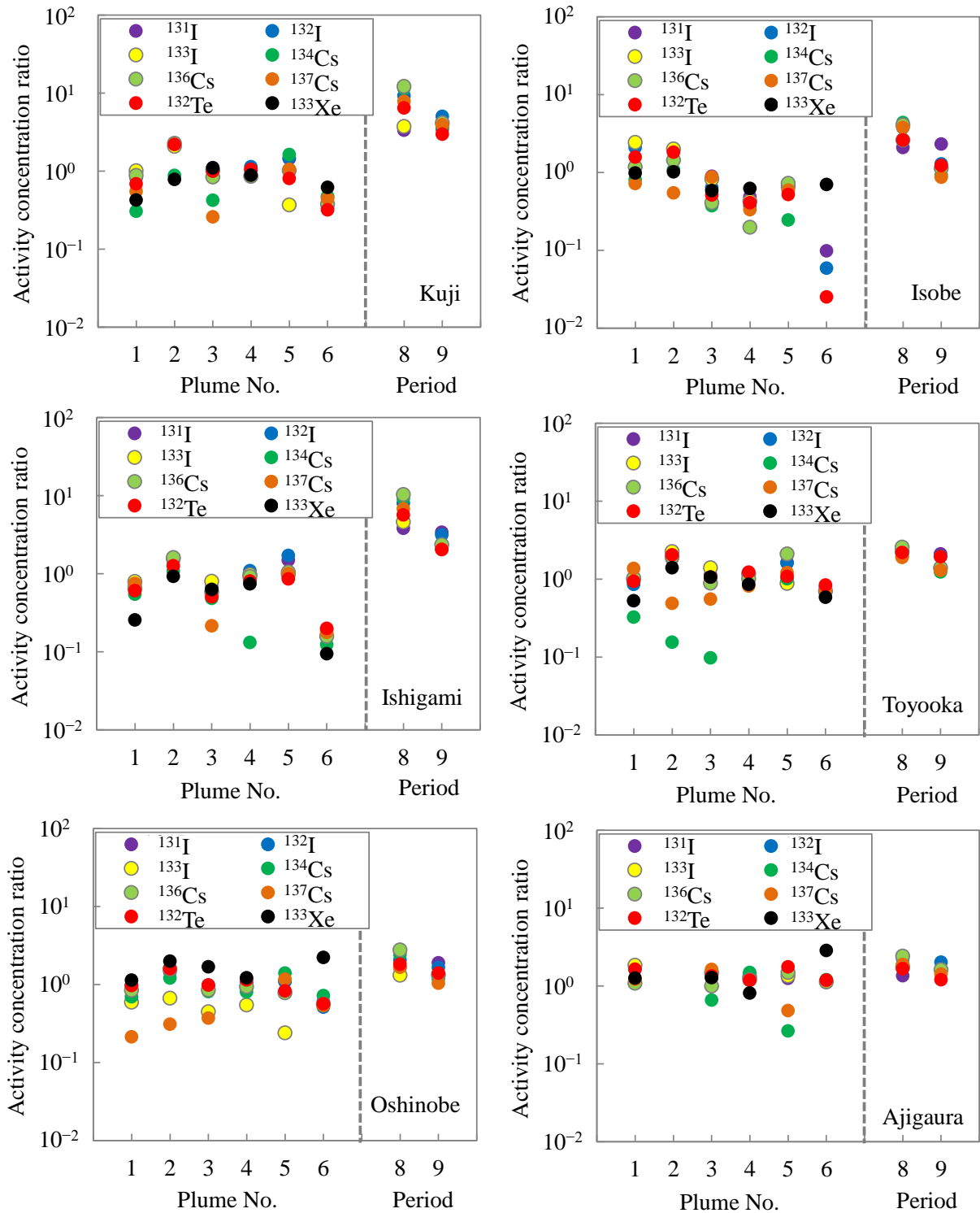


図 4-7 放射能濃度推定値の村松との比（他 MS/村松 MS）。プルーム No.1～6 は大気中放射能濃度推定値の比であり、それぞれの期間は①3月15日1～3時、②3月15日4～6時、③3月15日6～10時、④3月16日4～12時、⑤3月20日10～12時、⑥3月21日3～7時である。期間8と9は地面上放射能濃度の比であり、それぞれ3月18日と3月31日である。

(次ページに続く)

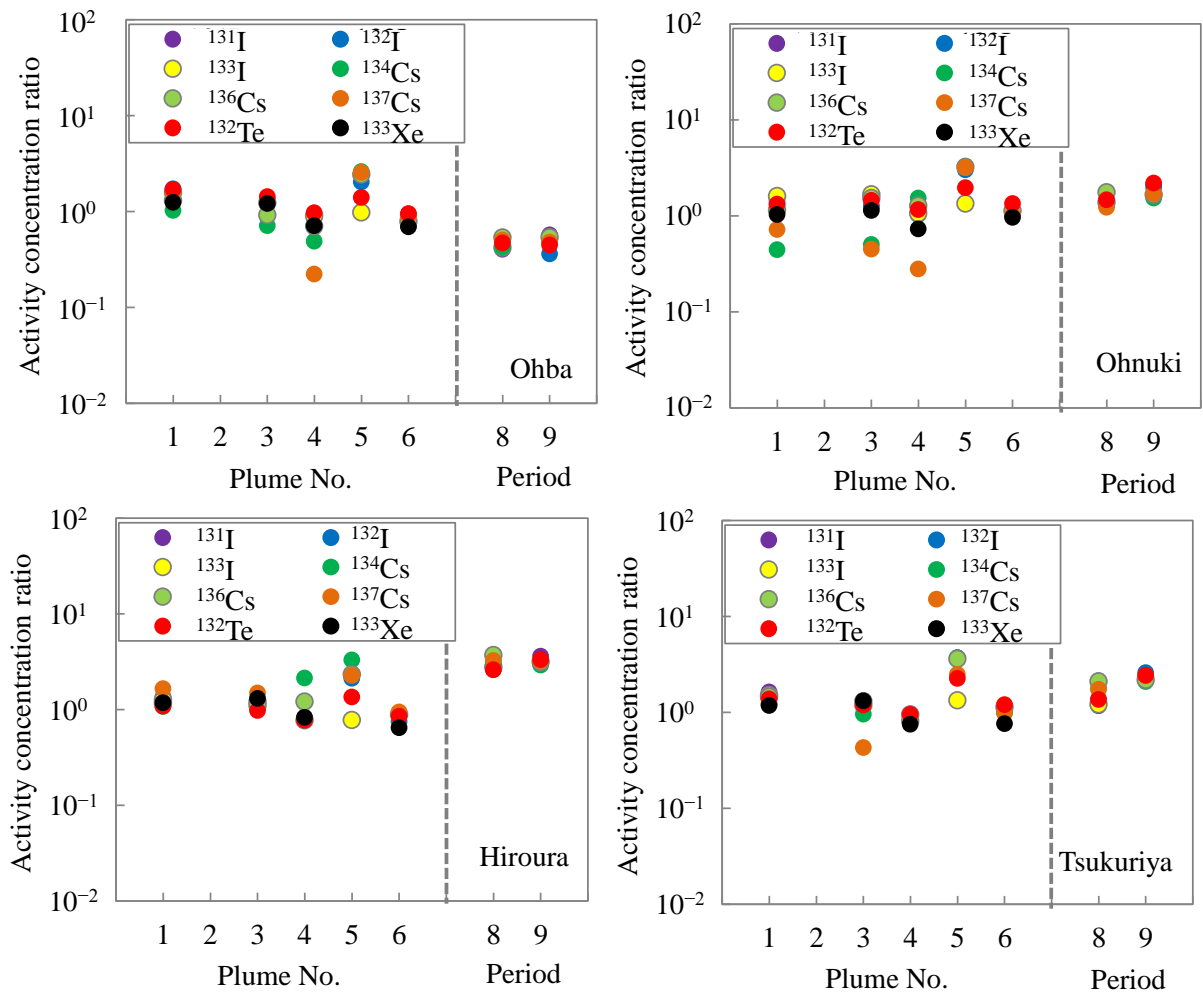


図 4-7 (続き)

#### 4.4.2.2. 濃度推定値のばらつき

図 4-6 で示された 3 月 15~21 日までの <sup>134</sup>Cs、<sup>136</sup>Cs、および <sup>137</sup>Cs の放射能濃度推定値の比較的大きな変動と、前目の大気中放射能濃度推定値の MS 間の差異で示されたセシウムのみ放射能濃度推定値の核種組成比が MS 間で他核種よりも大きく異なっていたことの原因を検討する。そのために、推定した放射能濃度を用いて各 BIN 中の全計数率に対する各核種からの計数率の割合を求めた (表 4-10)。さらに EGS5 の計数誤差、BIN 中の計数率の計数誤差、各 BIN のバックグラウンドカウントの計数誤差、および核種の共存による誤差を用いて濃度推定値の誤差を求めた (表 4-11)。解析期間は、ばらつきが大きい期間として、3 月 15 日 2 時、20 時、および 18 日 0 時を、ばらつきの小さい期間として 3 月 31 日 0 時を対象とした。

表 4-10 に示されるように、放射能濃度推定値のばらつきの大きい期間 (3 月 15、18 日) では、セシウムの濃度推定値を主に決定する BIN No. 5 への <sup>137</sup>Cs からの計数率への寄与割合、

BIN No. 6 への  $^{134}\text{Cs}$  からの寄与割合、および BIN No. 8 への  $^{136}\text{Cs}$  からの寄与割合が小さく、10%未満になる期間が存在した。それらの BIN への寄与が最も大きい核種は  $^{132}\text{I}$  であり、その寄与が 90%を超える期間が存在した。 $^{132}\text{I}$  の競合のため、表 4-11 に示されるように 3 月 15 日 2 時、20 時、および 3 月 18 日 0 時では  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、および  $^{137}\text{Cs}$  の濃度推定値の誤差が大きかったと考えられる。表 4-10 に示されるように、ばらつきの小さい期間（3 月 31 日）では  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、および  $^{137}\text{Cs}$  の濃度を主に決定する BIN に寄与するそれらの核種からの割合が 50%以上であり、表 4-11 に示した推定誤差は 3%程度であった。表 4-10 に示されるように、セシウム以外の他核種は濃度を主に決定する BIN への寄与が大きく、表 4-11 に示した誤差が概ね 5%以下であり、核種の共存による誤差がセシウムと比べて小さいことが示された。セシウムの放射能濃度推定値が大きくばらついた原因として、4.3.2.1.目で示した静岡県の MS 測定値の解析と同様に、各 BIN の計数率への寄与が最も大きかった  $^{132}\text{I}$  の共存によるものであることが示された。

表 4-10 各核種からの BIN 中の計数率への寄与割合(%) (村松)。網掛け部はおもにその BIN を用いて推定される核種からの寄与割合である。 (次ページに続く)

BIN No.	2011/3/15 2:00							
	$^{131}\text{I}$	$^{132}\text{I}$	$^{133}\text{I}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{136}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{132}\text{Te}$	$^{133}\text{Xe}$
1	12	27	2	3	1	1	8	<b>45</b>
2	13	42	3	5	2	1	<b>34</b>	0
3	<b>57</b>	34	3	4	2	1	0	0
4	2	66	<b>21</b>	7	2	1	0	0
5	4	86	0	2	1	<b>6</b>	0	0
6	0	75	0	<b>17</b>	7	0	0	0
7	0	<b>94</b>	2	1	3	0	0	0
8	0	61	2	3	<b>34</b>	0	0	0

BIN No.	2011/3/15 20:00							
	$^{131}\text{I}$	$^{132}\text{I}$	$^{133}\text{I}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{136}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{132}\text{Te}$	$^{133}\text{Xe}$
1	65	16	6	3	1	1	8	<b>0</b>
2	39	20	5	2	1	1	<b>31</b>	0
3	<b>92</b>	6	1	1	0	0	0	0
4	5	39	<b>50</b>	4	1	1	0	0
5	23	69	1	2	1	<b>5</b>	0	0
6	0	74	1	<b>17</b>	7	0	0	0
7	0	<b>90</b>	6	1	3	0	0	0
8	0	53	6	2	<b>38</b>	0	0	0

表 4-10 (続き)

2011/3/18 0:00								
BIN No.	<sup>131</sup> I	<sup>132</sup> I	<sup>133</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>136</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>132</sup> Te	<sup>133</sup> Xe
1	72	12	2	3	1	2	8	<b>0</b>
2	47	14	2	3	1	2	<b>31</b>	0
3	<b>95</b>	3	0	1	0	0	0	0
4	10	47	<b>29</b>	9	2	3	0	0
5	30	52	0	2	1	<b>14</b>	0	0
6	0	63	0	<b>27</b>	9	0	0	0
7	0	<b>91</b>	3	2	5	0	0	0
8	0	46	3	4	<b>47</b>	0	0	0

2011/3/31 0:00								
BIN No.	<sup>131</sup> I	<sup>132</sup> I	<sup>133</sup> I	<sup>134</sup> Cs	<sup>136</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>132</sup> Te	<sup>133</sup> Xe
1	48	8	0	25	4	10	4	<b>0</b>
2	36	7	0	26	4	11	<b>16</b>	0
3	<b>83</b>	2	0	9	1	4	0	0
4	6	17	<b>0</b>	57	7	13	0	0
5	14	17	0	12	3	<b>55</b>	0	0
6	0	11	0	<b>77</b>	12	0	0	0
7	0	<b>58</b>	0	17	25	0	0	0
8	0	10	0	14	<b>76</b>	0	0	0

表 4-11 放射能濃度推定値の誤差 (村松)

Nuclide	3/15 2:00	3/15 20:00	3/18 0:00	3/31 0:00
<sup>131</sup> I	2.5%	1.2%	1.2%	1.1%
<sup>132</sup> I	3.9%	5.9%	9.5%	5.1%
<sup>133</sup> I	7.5%	6.2%	14.1%	0.0%
<sup>134</sup> Cs	222.0%	61.1%	37.8%	1.4%
<sup>136</sup> Cs	20.7%	28.7%	49.2%	3.7%
<sup>137</sup> Cs	453.2%	25.3%	18.1%	1.6%
<sup>132</sup> Te	2.9%	4.3%	4.3%	1.8%
<sup>133</sup> Xe	1.4%			



#### 4.4.2.3. プルーム通過時以外の大気中放射能濃度推定値

本来、プルームが通過していない時、大気中に存在する放射性物質は主に地面等から再浮遊した放射性物質である。再浮遊による大気中放射能濃度は地面上放射能濃度と再浮遊係数の積で概算できる。再浮遊係数は約  $10^{-6} \text{ m}^{-1}$  と報告されており (IAEA, 2000)、表 4-8 に示した  $F$  の下限値と比べて 4 桁以上小さい。それ故、本手法では再浮遊により大気中に存在する放射性物質からの  $\gamma$  線の寄与と地面上の放射性物質からの寄与を 120~180 keV の計数率から分離できないため、プルーム通過がないときの大気中放射能濃度推定値は計算上 0 となる。

図 4-6(b)に示されたプルーム通過時以外に大気中放射能濃度が推定された原因を検討するため、波高分布の計算値と実測値の比較を行う。図 4-8 にプルームが通過していない時間帯での波高分布の計算値と実測値の比較を示す。計算値は放射性物質が全て地表面上に存在すると仮定して濃度推定を行い、その濃度推定値を用いて EGS5 により再構築した波高分布である。プルームが通過していない時間帯で大気中放射能濃度推定値が 0 であった久慈では波高分布の計算値と実測値は良く一致している (図 4-8(b))。一方、大気中放射能濃度推定値が 0 より大きかった村松では、低エネルギー側の波高分布の計算値は実測値よりも過小に計算された (図 4-8(a))。村松と久慈以外の MS は村松と同様に低エネルギー側の波高分布の計算値は実測値よりも過小に計算されていた。これらの MS では、濃度推定において、低エネルギー側の計数率の過小評価分が誤って大気中存在する放射性物質からの寄与として計算され、大気中放射能濃度推定値が 0 より大きくなった。

本研究で大気中と地面上の放射性物質の存在比の推定に利用した散乱部と光電ピーク部の計数率の比 (散乱部/光電ピーク部) は、大気と地面の存在比の他に、地表面下への浸透、樹木等への付着による検出器と線源間の距離の変化等によっても変化する。前述のとおり、散乱部と光電ピーク部の計数率の比は放射性物質の浸透により大きく、検出器と線源間の距離が近くなることにより小さくなる。以上より、放射性物質の浸透、樹木等への付着などを考慮せずに同時推定した場合、その地面上放射能濃度を用いて再構築した波高分布の低エネルギー側の計数率が実測値よりも小さくなり得るため、プルームの通過が無い時間帯で大気中放射能濃度推定値が 0 より大きくなり得ることが示された。

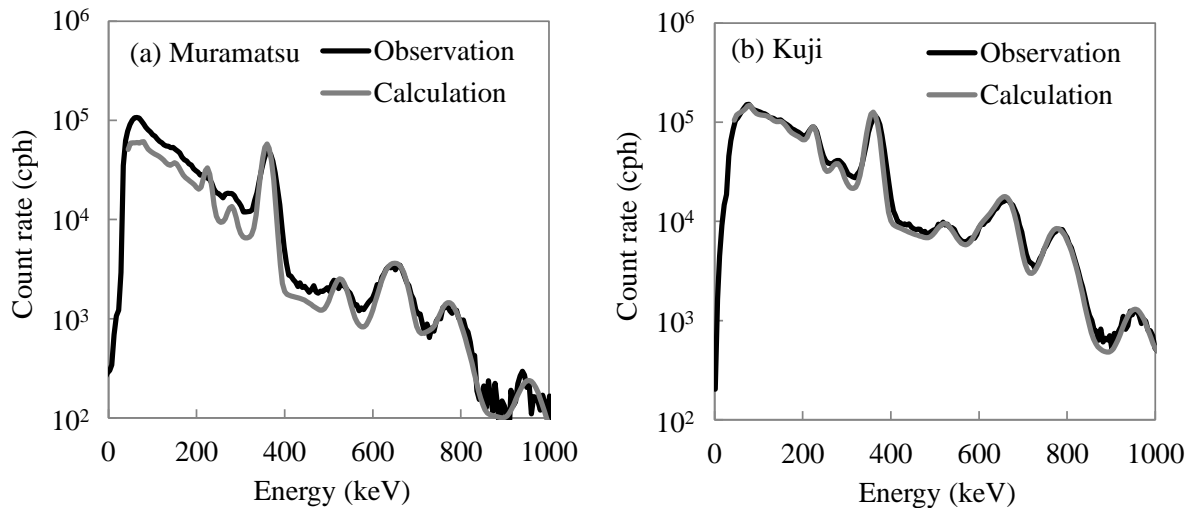


図 4-8 3 月 18 日 0 時の波高分布実測値と計算値の比較。(a) 村松、(b) 久慈。計算では、放射性物質が全て地表面上に存在する場合を仮定した。

#### 4.4.2.4. 浸透の考慮が濃度推定値に与える影響

前目で、プルームの通過が無い時間帯で大気中放射能濃度推定値が 0 より大きくなった要因の一つとして、放射性物質の浸透を考慮していないことが挙げられた。しかし現状では、低エネルギー側の計数率と光電ピーク部の計数率の比の増加が、放射性物質の一部が大気中に存在することによって引き起こされるのか、放射性物質が浸透することによって引き起こされるのかを区別できない。そこで本目では、放射性物質の浸透を考慮した場合に大気中と地面上放射能濃度推定値にどの程度の影響を与えるかの検討を行うために、濃度推定値を浸透の考慮の有無で比較した。

地表面下の放射能濃度の深さ分布を式 (3-16) で表される指数関数で表し、浸透深さ  $\beta$  を核種と時間によらず一定とし、1、2、3  $\text{g cm}^{-2}$  の 3 通りで濃度推定を行った。表 4-12 に 3 月 18 日 0 時の波高分布の計算値と実測値の一致度を表す、60~300 keV までの計数率の計算値と実測値の相対差の二乗和  $A$  を示す。計算値は放射性物質が全て地表面下に存在すると仮定して濃度推定を行い、その濃度推定値を用いて EGS5 により再構築した波高分布である。村松では  $\beta$  が大きいほど、土壌中での  $\gamma$  線の散乱が増加し、低エネルギー側の計数率が実測値に近づくため、 $A$  が小さい。

図 4-9 に  $\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$  の条件で村松を対象に推定した地面上および大気中濃度推定値の時間変化を示す。地面上放射能濃度推定値の時間変化は図 4-6(a)と類似した時間変化を示した。浸透の考慮の有無により異なった項目は核種組成比であり、浸透を考慮した場合に 3 月 17~20

日までの  $^{132}\text{I}$  と  $^{132}\text{Te}$  の地面上放射能濃度推定値はほぼ同じ値で同じ指数関数的な減少傾向を示した。 $^{132}\text{Te}$  は  $^{132}\text{I}$  の親核種であり、地面に沈着して 1 d 以上経過すれば放射平衡に達する。浸透を考慮した場合に、 $^{132}\text{Te}$  と  $^{132}\text{I}$  の濃度推定値が 3 月 17~20 日ではほぼ同じ値であったことは、放射平衡の観点でより合理的な推定であったことを示している。

大気中放射能濃度推定値は表 2-2 で示したプルームの通過のない時間帯の内、3 月 15 日午後、3 月 16 日午後~3 月 20 日 10 時、および 3 月 20 日午後の期間で 0 であり、それ以外の期間では 0 より大きく推定された。3 月 22 日以降では、図 4-6(b)とは異なり、指数関数的な減少傾向は見られない。3 月 22 日以降のプルームの通過が無い時間帯で、大気中放射能濃度推定値が 0 より大きくなった要因は、前述 (4.4.2.3 目) と同様に放射性物質が地面にしか存在しないとして推定した地面上放射能濃度 ( $\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$ ) を用いて計算した波高分布の低エネルギー側の計数率が実測値よりも小さかったためである。図には示していないが、 $\beta$  をより大きくした場合、ここでは  $\beta=4 \text{ g cm}^{-2}$  とした場合に 3 月 22 日以降のプルームの通過が無い時間帯で大気中放射能濃度は 0 と推定された。

表 4-13 に 3 月 15 日 2 時 (プルーム通過時) と 3 月 18 日 0 時 (プルーム通過無し時) の地面上および大気中放射能濃度推定値を示す。浸透を考慮した場合、地面上放射能濃度推定値はプルーム通過の有無によらずに約 3 倍大きく、大気中放射能濃度推定値は、プルーム通過時 (3 月 15 日) では約 10% 小さく、プルーム通過が無い時 (3 月 18 日) では推定値は 0 となった。プルーム通過時は大気中核種からの計数率への寄与が地面上核種からの寄与に比べて大きいため、浸透の考慮による大気中放射能濃度推定値の影響が小さかった。

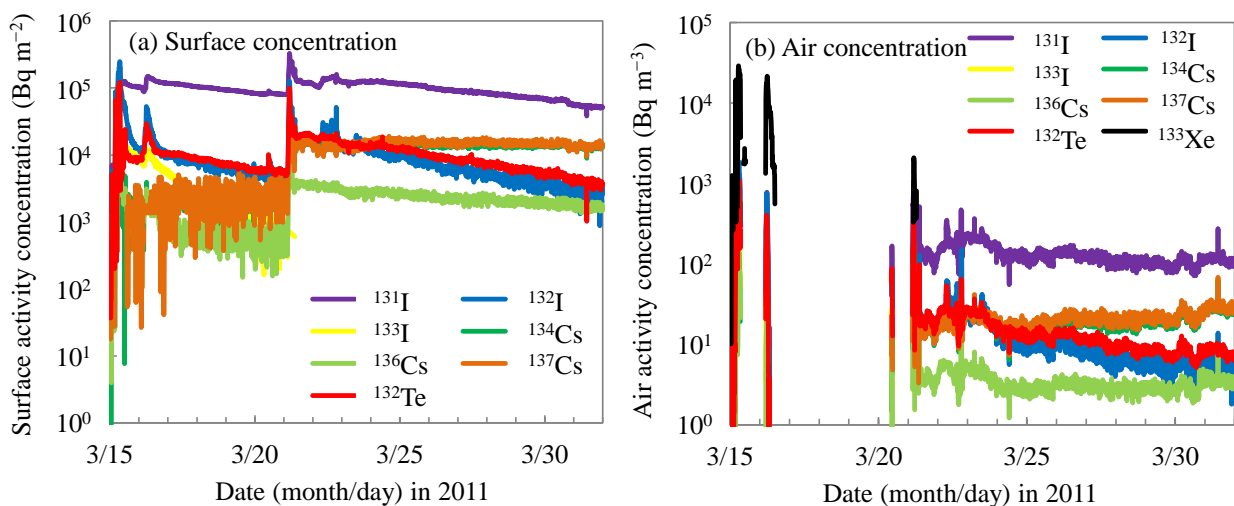


図 4-9 村松での  $\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$  時の放射能濃度推定値の時間変化。(a)地面上放射能濃度、(b)大気中放射能濃度。

表 4-12 村松での 3 月 18 日 0 時の NaI 波高分布の実測値と計算値の差  $\Delta$  (60~300 keV)

$\beta$ (g cm <sup>-2</sup> )	$\Delta$
0	5.4
1	3.8
2	0.6
3	0.3

表 4-13 村松での浸透考慮の有無による地面上および大気中放射能濃度推定値の比較

	3/15 2:00		3/18 0:00	
	$\beta=0$ g cm <sup>-2</sup>	$\beta=3$ g cm <sup>-2</sup>	$\beta=0$ g cm <sup>-2</sup>	$\beta=3$ g cm <sup>-2</sup>
Surface activity concentration (kBq m <sup>-2</sup> )				
<sup>131</sup> I	1.9	5.3	34.0	100.0
<sup>132</sup> I	1.6	4.5	2.7	8.7
<sup>133</sup> I	0.4	1.0	1.0	2.5
<sup>134</sup> Cs	0.2	0.5	0.7	1.6
<sup>136</sup> Cs	0.1	0.2	0.2	0.5
<sup>137</sup> Cs	0.2	0.1	0.9	1.6
<sup>132</sup> Te	1.4	3.7	3.6	8.6
Air activity concentration (Bq m <sup>-3</sup> )				
<sup>131</sup> I	160	150	340	0
<sup>132</sup> I	130	120	27	0
<sup>133</sup> I	33	27	10	0
<sup>134</sup> Cs	20	14	7	0
<sup>136</sup> Cs	7	6	2	0
<sup>137</sup> Cs	16	3	9	0
<sup>132</sup> Te	110	100	36	0
<sup>133</sup> Xe	1900	1200	0	0

#### 4.4.3. 実測値との比較

##### 4.4.3.1. 地面上放射能濃度

地面上放射能濃度の推定精度を評価するために、茨城県環境放射線監視センターによって行われた土壤中放射能濃度の測定結果(茨城県, 2011)と推定値を比較する。監視センターは、

2011年8月4日～9月14日に内径5 cmの採土器を用いて、深さ0～5 cmの土壌を採取し、HPGe検出器を用いて採取した土壌の土壌中放射能濃度を測定した。ここで比較対象とした核種は測定された $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の2核種である。本来比較対象とすべきMS周辺の測定値がないため、同じ市町村で測定された放射能濃度を比較対象とし、測定値はMS周辺の土壌中放射能濃度と異なる可能性がある。

放射壊変を考慮し、2011年4月1日に換算した各核種の放射能濃度実測値および推定値を表4-14にまとめた。推定値は各MSで4月1日での60～300 keVの波高分布の再現性が最も良い $\beta$ を使用した時の地面上放射能濃度である。磯部、阿字ヶ浦、大場、および大貫では地面上放射能濃度推定値と実測値は良い一致を示した。久慈の推定値は実測値より約30%小さく、東海村のMSの推定値は実測値よりも約3倍大きく、広浦と造谷の推定値は実測値よりも約2倍大きい。本手法で推定した地面上放射能濃度は平均して実測値よりも約2倍大きいものの、推定値と実測値の比は地点間でばらつきが大きかった。大気中放射能濃度と同様に、測定場所により地面上放射能濃度の絶対値は異なるものの、核種組成比は比較的近傍であれば、同じであることが期待される。実測値では $^{134}\text{Cs}$ の方が $^{137}\text{Cs}$ よりも高いが、推定値ではほとんどのMSで $^{137}\text{Cs}$ の方が高い。実測値と推定値で核種組成比が異なった理由は分かっておらず、一つの要因として、4.4.2.2.目で議論した核種の共存による濃度推定値の誤差が考えられる。

表 4-14 地面上放射能濃度の実測値と推定値の比較。値は放射壊変を考慮し、2011年4月1日に換算したものである。推定値は波高分布の再現性が最も良い $\beta$ を用いて計算した地面上放射能濃度である。

Sampling point	Observation (kBq m <sup>-2</sup> )		MS	Estimation (kBq m <sup>-2</sup> )		Estimation / Observation	
	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs		<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
Hitachi city	24.5	22.3	Kuji	15.4	17.8	0.6	0.8
Hirachiohta city	9.3	8.7	Isobe	8.9	9.2	1.0	1.1
			Ishigami	14.2	15.1	2.7	3.0
			Toyooka	15.3	17.7	2.9	3.5
Tokai village	5.2	5.1	Oshinobe	11.9	11.6	2.3	2.3
			Muramatsu	12.8	13.7	2.5	2.7
			Ajigaura	12.2	11.0	1.1	1.0
Hitachinaka city	11.3	11.0	Ajigaura	12.2	11.0	1.1	1.0
Mito city	7.8	7.0	Ohba	7.3	7.5	0.9	1.1
Oarai town	23.6	21.0	Ohnuki	20.8	23.8	0.9	1.1
Ibaraki town	11.8	11.0	Hiroura	20.0	24.0	1.7	2.2
Hokota city	11.3	11.0	Tsukuriya	27.2	32.4	2.4	2.9

#### 4.4.3.2. 大気中放射能濃度

大気中放射能濃度の推定精度を評価するために、日本原子力研究開発機構の原子力科学研究所敷地内で測定された大気中放射能濃度(Ohkura et al., 2012)と推定値を比較した。Ohkura et al. (2012)は、空気を流量  $50 \text{ L min}^{-1}$  で 20 min 捕集し、HPGe 検出器で HE-40TA フィルター（粒子状核種用）と活性炭フィルターCHC-50（揮発性核種用）で捕集された放射性物質を測定することで、大気中放射能濃度を求めた。比較では、粒子状と揮発性の合算値を大気中放射能濃度の実測値として用いた。比較対象とした MS は大気中放射能濃度が測定された地点と最も近い村松である（直線距離約 1 km）。

大気中濃度を実測値と比較する際、2.3.3.項で述べたように、プルームの通過開始時間およびプルームの通過終了時間が測定地点間で異なるため、プルームの中心濃度を捉えていると考えられるプルーム通過中に推定された最大値と測定値の最大値を比較した。今回対象としたプルームは 4.4.2.1.目で述べたプルーム No. 1～6（①3月15日1～3時、②3月15日4～6時、③3月15日6～10時、④3月16日4～12時、⑤3月20日10～12時、⑥3月21日3～7時）である。各プルームの大気中放射能濃度の実測値と推定値の比（推定値/実測値）を図 4-10 に示す。推定値は(a) 放射性物質が大気中のみに存在すると仮定した場合と、(b) 放射性物質が大気中と地表面下の両方に存在すると仮定した場合（浸透考慮有り、 $\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$ ）である。

図 4-10(a)に示した従来の手法（放射性物質が大気中のみに存在すると仮定）で推定した大気中放射能濃度と実測値の比は、プルーム No. 1～3 では、 $^{136}\text{Cs}$  以外の核種で 0.8～2 の間であり、プルーム No. 4～6 では、1～9 の間である。図 4-10(b) に示した本研究で考案した同時推定手法（放射性物質が大気中と地表面下の両方に存在すると仮定）で推定した大気中放射能濃度推定値と実測値の比は、プルーム No. 1～3 では、 $^{136}\text{Cs}$  以外の核種で 0.3～1.2 の間であり、プルーム No. 4～6 では、0.4～3 の間である。プルーム毎の濃度比の幾何標準偏差は両方の条件下で、プルーム No. 1～3 では、 $^{136}\text{Cs}$  を除いた場合に約 1.2、プルーム No. 4～6 では約 1.7 であった。 $^{136}\text{Cs}$  がプルーム No. 1 と 3 で実測値よりも大きく推定され、プルーム No. 2 と 4 で推定値が 0 であった原因は分かっておらず、一つの要因として、4.4.2.2.目で述べた核種の競合による推定誤差が考えられる。

プルーム No. 1～3（3月15日）のように放射性プルームが初めて通過する場合、地面上に存在する放射性物質からの寄与がほとんどない。そのため、放射性物質が全て大気中に存在すると仮定して推定した大気中放射能濃度の方が実測値とより整合性の高い結果が得られた。プルーム No. 4～6 のように放射性プルームが複数回通過した後の場合、それ以前のプルーム

の通過時に沈着した放射性物質が存在する。放射性物質が全て大気中に存在すると仮定すると、実際には地面に存在する放射性物質を全て大気中に存在すると見なして濃度推定を行うため、図 4-10(a)に示されるように大気中放射能濃度は実測値よりも高く推定される。一方、放射性物質が大気中と地表面下の両方に存在すると仮定すると、実測の 120~180 keV の計数率を再現するように、放射性物質を大気中と地表面下に分配するため、大気中放射能濃度は放射性物質が全て大気中に存在するという仮定を用いた時よりも小さく推定される。村松を対象とした実測値と推定値の比較において、複数回のプルーム通過が確認された後の場合、放射性物質が大気中と地表面下の両方に存在すると仮定して推定した大気中放射能濃度の方が実測値とより整合性の高い結果が得られた。

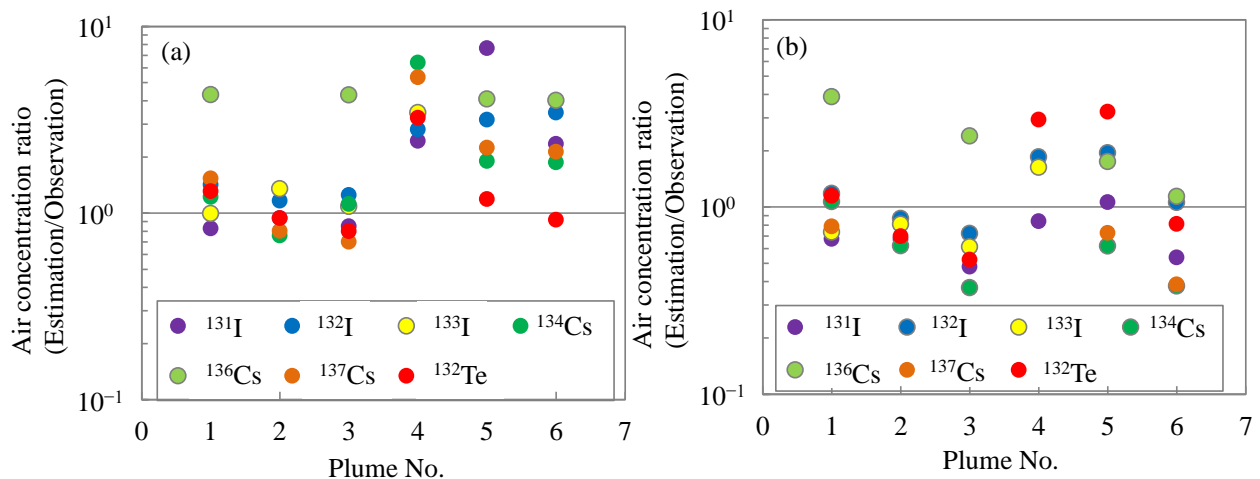


図 4-10 大気中放射能濃度の実測値と推定値（村松）の比（推定値/実測値）。横軸はプルーム No.であり、それぞれの期間は①3月15日1~3時、②3月15日4~6時、③3月15日6~10時、④3月16日4~12時、⑤3月20日10~12時、⑥3月21日3~7時である。(a) 放射性物質が全て大気中に存在する場合、(b) 放射性物質が大気と地面に存在する場合 ( $\beta=3 \text{ g cm}^{-2}$ )。

#### 4.5. まとめ

事故時に MS で測定された NaI 波高分布を用いて、人工放射性核種の放射能濃度を核種別に推定する際の問題点として、NaI 検出器のエネルギー分解能の低さ、放出される核種の多さ、および放射性物質の存在位置が不明であることが挙げられた。本章では、これらの問題点を解決するために、推定核種の選定法、エネルギー範囲の設定法、および放射性物質の存在位置（本研究では大気または地面）の決定法を検討し、事故時に MS で測定された NaI 波高分布を用いて、人工放射性核種の放射能濃度を核種別に推定する手法を開発した。本推定

手法を福島原発事故後に静岡県内と茨城県内の MS で測定された NaI 波高分布に適用し、本推定手法の妥当性、推定限度、および特徴を評価した。

本研究では、内部・外部被ばくを引き起こすヨウ素とセシウムの放射性核種およびその親核種（テルル、キセノン）を推定核種として選定した。さらにラドン壊変生成物は降雨時に人工放射性核種と同程度の線量率への寄与となり得るので、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  も推定核種として選定した。放射能濃度を推定するためのエネルギー範囲（BIN）を設定する際、推定誤差を低減するため、①選択した BIN に含まれる光電ピークは可能な限り単一とし、②放出率の大きな  $\gamma$  線を選択、③BIN は散乱部を含まないように設定した。NaI 波高分布からの放射能濃度推定は、各 BIN の光電ピーク部の計数率の実測値と EGS5 で計算した計数率を比較することで、核種別に放射能濃度を推定する手法を考案した。

静岡県内の MS では福島原発事故の影響を受けた後のほとんどの期間で人工放射性核種は地面上のみに存在すると見なせることから、同測定値を対象に NaI 波高分布を用いた地面上放射能濃度の推定精度を検討した。① $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上濃度は降雨時のみに値が 0 より大きく推定され、② $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、および  $^{132}\text{Te}$  の地面上濃度推定値の時間変化は概ね物理学的半減期に従った減少傾向を示し、推定値と実測値との差は約 30%であり、③ $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の推定値と実測値との差は約 30%であり、本手法で推定した濃度は合理的であると判断された。今回のように人工放射性核種からの計数率への寄与がラドン壊変生成物からの寄与と同等の場合、ラドン壊変生成物の濃度変動が人工放射性核種の濃度推定値に誤差を生じさせることを指摘した。特に  $^{132}\text{I}$  の濃度推定値は大気中ラドン壊変生成物濃度に応じて変動することが明らかとなり、 $^{132}\text{I}$  からの誤差が伝搬される  $^{137}\text{Cs}$  の濃度推定値はファクター3 程度ばらつくことが示された。

茨城県内の MS を対象とした濃度推定では、放射性物質が大気中と地面上の両方に存在する場合に、NaI 波高分布を用いた大気中および地面上放射能濃度の推定精度を検討した。本研究では 200 keV 以下の光電ピークを含まないエネルギー範囲の波高分布が放射性物質の存在位置により異なることに着目し、NaI 波高分布から大気中放射能濃度と地面上放射能濃度を同時に推定する手法を考案した。地面上放射能濃度推定値と実測値の差はファクター2 程度であり、大気中放射能濃度ではファクター3 程度であり、本手法により事故初期時の防護対策の実施を判断するために有用な情報を提供できることを示した。但し、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、および  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度推定値は他核種の共存（特に  $^{132}\text{I}$ ）によって、100%以上のばらつきが生じうることを確認した。また、本研究では大気中に存在する人工放射性核種（希ガス除く）は同じ割合で地面に沈着すると仮定しており、沈着核種からの寄与により推定精度が低下したと考えられ、核種の特性的違いによる沈着過程の検討により、推定精度が向上すると考えられる。



## 第5章 結論

### 5.1. まとめ

本研究では MS 測定値から事故時の大気中放射能濃度および地面上放射能濃度を推定する手法を開発することを目的とした。事故時に測定された MS 測定値から放射能濃度を推定する上での問題点として、MS 周囲の幾何学的構造による  $\gamma$  線の減弱、流出・浸透による放射性物質の不均一な分布、大気中、地面上、樹木等に存在する放射性物質の割合が不明であること、事故時に放出される核種の多さ、および NaI 検出器の分解能の低さが挙げられた。これらの問題点を解決し、目的を達成するために、①平常時の線量率と NaI 波高分布それぞれを用いて流出特性（残存割合）および浸透特性（ $\beta$  値：濃度の深度分布を指数関数で表し、地表面濃度の  $e^{-1}$  になる深さ）の把握可能性の検討、さらに幾何学的構造および流出・浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを予め評価可能かの検討、②事故時に推定すべき核種の選定法、エネルギー範囲の設定法、および放射性物質の存在位置の決定法の検討を行った。

#### ①平常時の測定値を用いた MS の流出・浸透特性の評価

測定される線量率は各核種からの線量率寄与の合計値であるため、線量率から核種を分別して放射能濃度を推定することは困難である。本研究では降雨後の線量率上昇値の変化をラドン壊変生成物である  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の壊変式で表記できることに着目して、線量率から  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の地面上放射能濃度を核種別に推定する手法を考案した。その手法を  $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の降下量が MS 間で同じと見なせる降雨後の線量率変動に適用し、推定した地面上放射能濃度の MS 間の差異を利用して、流出・浸透特性の推定可能性を検討した。対象とした MS 周囲の土壤が砂質で類似していたことにより推定した  $\beta$  値の MS 間の差は小さく、雨水の流れやすい凹凸の少ない面で残存割合は小さく評価されたことから、本手法で推定した浸透・流出特性は MS 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が濃度推定値に与える影響の大きさを評価した結果、本研究の対象とした MS 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。

NaI 波高分布から放射能濃度を推定する際、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  の光電ピーク部の計数率実測値と光子輸送計算モデル EGS5 で計算した計数率を比較することで、核種別に濃度を推定する手法を考案した。平常時に測定される NaI 波高分布を用いて、各 MS の浸透特性の推定可能性を検討し、幾何学的構造および浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを検討した。幾何学的構造を考慮することで、建物による  $\gamma$  線の遮蔽により光電ピーク部の計数率は無限平面仮定時よりも小さく計算され、本研究の対象とした MS では幾何学的構造を考慮しなけ

れば、濃度推定値は最大で約 30%小さく計算されることを示した。NaI 波高分布を用いて濃度推定する場合、推定した濃度と EGS5 により再構築した波高分布と実測の波高分布の一致度は濃度推定値が合理的であるかの指標となる。周囲に未舗装面が存在する MS では浸透を考慮しなければ、200 keV 以下の光電ピーク部を含まないエネルギー範囲で再構築した波高分布が低くなることが明らかとなった。この点を利用して 200 keV 以下の計数率の実測値と計算値を一致させることで、MS 毎に  $\beta$  値を決定する手法を考案した。NaI 波高分布を用いて推定した  $\beta$  値と線量率を用いて推定した  $\beta$  値は異なった推定原理にもかかわらずほぼ同じ値であり、両者ともに合理的に  $\beta$  値を評価できたと結論づけられた。また、NaI 波高分布のみからでは、浸透特性と流出特性を区別して評価できないことが示され、これに対応するための一つの方法として、濃度推定値の MS 間の差異を利用できることを示した。

## ②事故時の放射能濃度推定

事故時に測定された NaI 波高分布から放射能濃度を核種別に推定するために、本研究では内部・外部被ばくを引き起こし、線量率への寄与が大きいヨウ素、セシウム、テルル、キセノンの放射性核種を、推定する人工放射性核種として選定した。さらにラドン壊変生成物は降雨時に人工放射性核種と同程度の線量率への寄与となり得るので、 $^{214}\text{Pb}$  と  $^{214}\text{Bi}$  も推定核種として選定した。放射能濃度を推定するためのエネルギー範囲 (BIN) に含まれる光電ピークを可能な限り一つにし、散乱線のみで構成されるエネルギー範囲を含まないように BIN を設定することで、推定誤差を低減できることを示した。

静岡県内の MS では、福島原発事故後の影響を受けた後のほとんどの期間で人工放射性核種は地面上のみに存在すると見なせることから、同測定値を対象に NaI 波高分布を用いた地面上放射能濃度の推定精度を検討した。1)ラドン壊変生成物の地面上放射能濃度推定値は降雨時に有意な値が推定され、無降雨時に 0 であり、2)推定した  $^{131}\text{I}$ 、 $^{132}\text{I}$ 、および  $^{132}\text{Te}$  の地面上放射能濃度の時間変化は概ね物理学的半減期に従った減少傾向を示し、推定値と実測値との差は約 30%であり、3)  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の推定値と実測値との差は約 30%であり、本手法で推定した濃度は合理的であると判断された。人工放射性核種の計数率への寄与がラドン壊変生成物の寄与と同等の場合、ラドン壊変生成物の濃度変動が人工放射性核種の濃度推定値に誤差を生じさせることが明らかとなった。特に  $^{132}\text{I}$  濃度推定値は大気中ラドン壊変生成物濃度の日変動に応じて変動することが明らかとなり、 $^{132}\text{I}$  からの誤差が伝搬される  $^{137}\text{Cs}$  の濃度推定値はファクター3 程度ばらつくことが明らかとなった。

茨城県内の MS では、プルーム通過による計数率の上昇が複数回見られたことから、同測定値を対象に NaI 波高分布を用いた大気中および地面上放射能濃度の推定精度を検討した。本研究では、200 keV 以下の光電ピーク部を含まないエネルギー範囲と光電ピーク部の計数率の比が放射性物質の存在位置により異なることに着目して、NaI 波高分布から大気中および

地面上放射能濃度を同時に推定する手法を考案した。地面上放射能濃度推定値と実測値の差はファクター2程度であり、大気中放射能濃度ではファクター3程度であり、本手法により事故初期時の防護対策の実施を判断するために有用な情報を提供できることを示した。本手法はその期間までに測定された値のみを使って、大気中および地面上放射能濃度を推定することができ、平山ら（2014）が考案した手法（プルーム通過前後の波高分布を用いて、大気中放射能濃度と地面上放射能濃度を分別して推定する）よりも迅速に大気中放射能濃度を推定できる利点がある。しかし、NaI 波高分布を用いた手法の欠点として、核種の共存による濃度推定値の誤差が大きく、特に  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、および  $^{137}\text{Cs}$  は  $^{132}\text{I}$  の放射能濃度に依存して、100%以上のばらつきが生じることが明らかとなった。また、本研究では大気中に存在する人工放射性核種（希ガス除く）は同じ割合で地面に沈着すると仮定しており、沈着核種からの寄与により推定精度が低下したと考えられ、核種の特性的違いによる沈着過程の検討により、推定精度の向上が期待できることを指摘した。

本研究では、まず、本来は現地測定により求めなければならなかった流出・浸透特性を全ての MS で得られる平常時の MS 測定値を用いて評価できることを示すとともに、幾何学的構造および流出・浸透の考慮が濃度推定値に与える影響の大きさを予め評価できることを示した。次に、事故時に MS で測定された NaI 波高分布を用いて大気中および地面上放射能濃度を同時に推定する手法を開発した。本研究の成果は、全国に展開されている MS の測定値を用いた放射能濃度推定法の基礎となり、防護対策に対して実効性のある事故時に放出された放射性プルーム中と地面上放射能濃度およびその核種組成比を多数の地点についてより迅速に提供できることを示した。さらに、福島原発からの放出率の逆推定に必要な大気中放射能濃度を提供でき、福島原発事故初期時の被ばく線量再構築に貢献できると考えられる。

## 5.2. 今後の展望、課題

本論文では、低エネルギー側の波高分布の変動が、浸透または放射性物質の大気中と地面上の存在比の違いによるものと見なしており、流出によって生じた地表面形態毎の残存割合の違いおよび樹木への付着による波高分布への影響を考慮していない。実際の環境下では、浸透・流出、大気中と地面上の両方の存在、および樹木等への付着などが同時に起きており、それらの影響が組み合わさった波高分布が形成される。本来であれば、全ての影響を考慮した濃度推定をするべきであるが、今回のように浸透のみを考慮した濃度推定では、真の値と推定値が異なる可能性がある。それ故、より精度の良い濃度推定を行うには、各過程（浸透、流出、および樹木等への付着）による濃度推定値への影響を予め詳細に把握する必要がある。

その影響を把握するために各過程の導出に適した MS を選択（例えば、今回のように放射性物質の浸透を把握する場合、MS 周囲に樹木がなく、未舗装面の占有率の異なる MS を選択）し、近傍の MS 間で測定値または濃度推定値を比較することで、それらの影響の大きさを把握することが望まれる。

EGS5 の計算において、本研究では検出器周囲の Al カバー、光電子増倍管などを考慮していない。さらに検出器応答を計算する際、 $\gamma$  線は検出器に等方入射すると仮定した。Al カバー等を考慮せずに計算した場合、実際よりも  $\gamma$  線の散乱を過小に見積もり、Al カバー等の考慮の有無により、光電ピーク部と散乱部の計数率の比が異なる可能性がある。核種が地表面に存在する場合、検出器に入射する  $\gamma$  線の数検出器の底面からよりも側面からの方が多いため、 $\gamma$  線が入射する角度によって、計数率の大きさおよび光電ピーク部と散乱部の計数率の比が異なるため、等方入射を仮定して検出器応答を計算した場合、本来の波高分布と異なる可能性がある。本論文では議論しなかったが、光電ピーク部とコンプトンエッジ間のエネルギー範囲で、実測の波高分布よりも EGS5 を用いて再構築した波高分布は小さかった（例として、図 3-24）。この原因として、EGS5 の計算で考慮していなかった上記 2 つが考えられ、これらを考慮した場合の濃度推定値への影響を把握することが望まれる。

本手法で推定した放射能濃度の誤差を求めた結果、特に  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{136}\text{Cs}$ 、および  $^{137}\text{Cs}$  の濃度推定値の誤差が大きいことを示した。これは、NaI 検出器のエネルギー分解能が低いことが原因の一つとして挙げられ、精度の良い推定を行うためには、NaI 検出器よりもエネルギー分解能が高い検出器（ $\text{LaBr}_3$  検出器、 $\text{CeBr}_3$  検出器、HPGe 半導体検出器など）で測定した波高分布を使用することが望まれる。同じブルームであれば、核種組成比が大きく異なることが期待できるため、ある 1 地点で HPGe 半導体検出器を設置し、その測定値から得られた核種組成比を他の MS で測定された NaI 波高分布に適用して濃度推定を行う手法もより精度の高い推定につながると考えられる。

本研究の成果は事故時の放射能濃度推定以外に、長距離大気輸送動態研究分野への波及効果も期待できる。ラドンを用いた大気輸送および湿性沈着過程の解明のために、高高度の大気中ラドン濃度と降水中ラドン壊変生成物濃度が必須である。NaI 波高分布を用いることによって、降雨時の地面上放射能濃度を推定することができ、その推定値と降水強度の時間変化を用いて、降水中ラドン壊変生成物濃度を求めることができる。全国で展開されている MS で測定された NaI 波高分布を用いて推定した降水中ラドン壊変生成物濃度と大気輸送計算モデルを用いて計算した大気中ラドン濃度を用いることによって、より詳細な大気輸送および湿性沈着過程の解明が期待できる。

## 参考文献

- BP p.l.c. (public limited company). Statistical review of world energy.  
<http://www.bp.com/statisticalreview> (2014).
- Beck, H.L., DeCampo, J. and Gogolak, C. In situ Ge (Li) and NaI (Tl) gamma-ray spectrometry. Report HASL-258, U.S. Atomic Energy Commission, New York, NY10014 (1972).
- Belivermis M. Vertical distributions of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in soil samples from Istanbul and its Environs, Turkey. *Radiat. Prot. Dosim.* 151(3), 511-521 (2012).
- Bruno S. A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmos. Environ.* 41(13), 2683–2698 (2007).
- Carbol P., Solatic D., Erdmann N., Nylen T. and Betti M. deposition and distribution of Chernobyl fallout fission products and actinides in a Russian soil profile. *J. Environ. Radioact.* 68, 27-46 (2003).
- Casanovas R., Morant J. J. and Salvado M. Energy and resolution calibration of NaI(Tl) and LaBr<sub>3</sub>(Ce) scintillators and validation of an EGS5 Monte Carlo user code for efficiency calculations. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 675, 78-83 (2012).
- Casanovas R., Morant J. J., and Salvado M. Development and calibration of a real-time airborne radioactivity monitor using direct gamma-ray spectrometry with two scintillation detectors. *Appl. Radiat. Isot.* 89, 102-108 (2014).
- Chino M., Nakayama H., Nagai H., Terada H., Katata G. and Yamazawa H. Preliminary estimation of release amounts of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere. *J. Nucl. Sci. Technol.* 48, 1129-1134 (2011).
- Endo T., Sato S., Yamamoto A. Estimation of average burnup of damaged fuels loaded in Fukushima Dai-ichi reactors by using the  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  ratio method. *Proceedings of the 2011 Symposium on Nuclear Data*, 45-51 (2012).
- Fujinami N. Observation study of the scavenging of radon daughters by precipitation from the atmosphere. *Environ. Int.* 22(1), S181-S185 (1996).
- Fujinami N., Esaka S. and Minato S. Influence of the precipitation rate on the seasonal variation in the specific radioactivity of short-lived  $^{222}\text{Rn}$  daughters in precipitation. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.* 95, 111-118 (1985).
- Greenfield M.B., Domondon A.T., Tsuchiya S. and Tomiyama M. Monitoring precipitation rates using  $\gamma$  rays from adsorbed radon progeny as tracers. *J. Appl. Phys.* 93, 9, 5733-5741 (2003).
- Haba H., Kanaya J., Mukai H., Kambara T. and Kase M. One-year monitoring of airborne radionuclides in Wako, Japan, after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident in

2011. *Geochem. J.* 46, 271-278 (2012).
- Hayakawa H. Radon-concentration-in-cloud and rainfall-rate dependency of short-lived radon daughters in rainwater. *J. Nucl. Sci. Technol.* 22(4), 292-300 (1985).
- Hiemstra P.H., Pebesma E.J., Heuvelink G.B.M. and Twenhofel C.J.W. Using rainfall radar data to improve interpolated maps of dose rate in the Netherlands. *Sci. Total Environ.* 409, 123-133, (2010).
- Hirao S., Yamazawa H., Moriizumi J., Yoshioka K. and Iida T. Development and verification of long-range atmospheric radon-222 transport model. *J. Nucl. Sci. Technol. Suppl.* 6, 166-172 (2008).
- Hornig M. C. and Jiang S. H. In situ measurements of gamma-ray intensity from radon progeny in rainwater. *Radiat. Meas.* 38, 23-30 (2004).
- IAEA (International Atomic Energy Agency). Criteria for use in preparedness and response for a nuclear or radiological emergency (2011).
- IAEA (International Atomic Energy Agency). Generic procedures for assessment and response during radiological emergency (1996).
- IAEA (International Atomic Energy Agency). Planning for off-site response to radiation accidents in nuclear facilities (1996).
- ICRP (International Commission on Radiological Protection). 1990 Recommendations of the international commission on radiological protection, ICRP Publication 60. *Annals of the ICRP* 21 (1-3), 1991.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection). Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 4 inhalation dose coefficients, ICRP Publication 71. *Annals of the ICRP* 25 (3-4), 1995.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection). Recommendations of the international commission on radiological protection, ICRP Publication 26. *Annals of the ICRP* 1 (3), 1977.
- IEA (International Energy Agency). Energy Balances of OECD Countries (2013).
- Iida T., Ikebe Y., Suzuki K., Ueno K., Wang Z. and Jin Y. Continuous measurements of outdoor radon concentrations at various locations in east Asia. *Environ. Int.* 22(1), s139-s147 (1996).
- Inomata Y., Chiba M., Igarashi Y., Aoyama M. and Hirose K. Seasonal and spatial variations of enhanced gamma ray dose rates derived from <sup>222</sup>Rn progeny during precipitation in Japan. *Atmos. Environ.* 41, 8043-8057 (2007).
- Jacob P., Kenigsberg Y., Zvonova I., Goulko G., Buglova E., Heidenreich W. F., Golovneva A., Bratilova A. A., Drozdovitch V., Kruk J., Pochtennaja G. T., Balonov M., Demidchik E. P., and Paretzke H. G. Childhood exposure due to the Chernobyl accident and thyroid cancer risk in

- contaminated areas of Belarus and Russia. *J. Cancer*, 80(9), 1461-1469 (1999).
- Johnson J. R. Radioiodine dosimetry, *J. Radioanal.Chem.* 65, 223-238 (1981).
- Kataoka T., Ikebe Y., Shimo M., Iida T., Ishida K. and Minato S. Influence of short-lived radon-222 daughters present in atmosphere on natural environmental gamma-radiation field. *J. Nucl. Sci. Technol.* 19, 831-836 (1982).
- Katherine R. L. Radioactivity in the environment: Sources, distribution and surveillance. Harwood Academic Publishers. New York (ISBN 3-7186-0203-2) (1984).
- Likar A., Omahen G., Lipoglavsek M. and Vidmar T. A theoretical description of diffusion and migration of <sup>137</sup>Cs in soil. *J. Environ. Radioact.* 57, 191-201 (2001).
- McKenna T., Kutkov V., Vilar Welter P., Dodd B. and Buglova E. Default operational intervention levels (OILs) for severe nuclear power plant or spent fuel pool emergencies. *Health Phys.* 104(5), 459-470 (2013).
- Minato S. A simple rainout model for radon daughters. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 8(1), 1-3 (2007).
- Minato S. Application of a 60×60 response matrix for a NaI(Tl) scintillator to fallout from the Fukushima reactor accident. *Radiat. Emergency Med.* 1(1-2), 108-112 (2012).
- Minato S. Diagonal elements fitting technique to improve response matrixes for environmental gamma ray spectrum unfolding. *Radioisotopes*, 50, 463-471 (2001).
- Minato S. Estimation of radon-222 concentrations in rainclouds from radioactivity of rainwater observed at ground level. *J. Radioanal. Chem.* 78(1), 199-207 (1983).
- Mizutani T., Onuma T., Sugai M., Watanabe H., Morisawa M., Takeyasu M., and Sumiya S. Measurement of environmental gamma-ray dose rate around the Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories. *Prog. J. Nucl. Sci. Technol.* 1, 380-383 (2011).
- Muramatsu Y., Ruhm W., Yoshida S., Tagami K., Uchida S. and Wirth E. Concentrations of <sup>239</sup>Pu and <sup>240</sup>Pu and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30 km zone. *Environ. Sci. Technol.* 34, 2913-2917 (2000).
- NRC (Nuclear Regulatory Commission). Severe accident risks: An assessment for five US nuclear power plants. NUREG-1150, Volume 1, Final Summary Report (1990).
- Namito Y., Nakamura H., Toyoda A., Iijima K., Iwase H., Ban S. and Hirayama H. Transformation of a system consisting of plane isotropic source and unit sphere detector into a system consisting of point isotropic source and plane detector in Monte Carlo radiation transport calculation. *J. Nucl. Sci. Technol.* 49(2), 167-172 (2012).
- Ohkura T., Oishi T., Taki M., Shibanuma Y., Kikuchi M., Akino H., Kikuta Y., Kawasaki M., Saegusa J., Tsutsumi M., Ogose H., Tamura S. and Sawahata T. Emergency monitoring of environmental radiation and atmospheric radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following

- the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, JAEA-Data/Code 2012-010, 2012.
- Preston D. L., Ron E., Tokuoka S., Funamoto S., Nishi N., Soda M., Mabuchi K., and Kodama K. Solid cancer incidence in atomic bomb survivors: 1958-1998. *Radiat. Res.* 168(1), 1-64 (2007).
- Preston D. L., Shimizu Y., Pierce D. A., Suyama A., and Mabuchi K. Studies of mortality of atomic bomb survivors. Report 13: Solid cancer and noncancer disease mortality: 1950-1997, *Radiat. Res.* 160, 381-407 (2003).
- Saito K. Mapping and modelling of radionuclide distribution on the ground due to the Fukushima accident. *Radiat. Prot. Dosim.* 160(4), 283-287 (2014).
- Shimo M., Yamasaki K., Tsujimoto T., Okamoto K., Yoshimoto T., Kojima H. and Mizuma M. The influence of the concentration of atmospheric radon decay products on the environmental radiation dose rate. *Japan Health Physics Society*, 42 (2), 156-165 (2007).
- Terada H., Katata G., Chino M. and Nagai H. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *J. Environ. Radioact.* 112, 141-154 (2012).
- UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation). Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Publication, New York (1993).
- UNSCEAR. Report to the General Assembly: Sources and effects of ionizing radiation, II, Annex J. United Nations. New York. 453-551 (2000).
- Yamanishi H. and Miyake H. Separation of natural background by using correlation of time-series data on radiation monitoring. *J. Nucl. Sci. Technol.* 40, 44-48 (2003).
- Yoshida H., Aika M., Iki A., Ibuki Y. and Goto R. Fluctuation factors of ambient dose rates in the vicinity of Hamaoka nuclear power plant. *Radioisot.* 53, 405-413, (2004).
- 茨城県. 茨城県内全域における「土壌の放射能濃度マップ」.  
[http://www.pref.ibaraki.jp/important/20110311eq/20110922\\_01/](http://www.pref.ibaraki.jp/important/20110311eq/20110922_01/) (2011).
- 木村 仁宜, 佐藤 宗平, 石川 淳, 本間 俊充. 原子力緊急事態に対する準備と対応に関する国際動向調査及び防災指針における課題の検討, *JAEA-REVIEW*, 日本原子力研究開発機構 (2010).
- 原子力安全委員会. 環境放射線モニタリング指針(2008).
- 厚生労働省. 除染等業務に従事する労働者の放射線障害防止のためのガイドライン,  
<http://www.mhlw.go.jp/new-info/kobetu/roudou/gyousei/anzen/dl/120118-01.pdf> (2013).
- 資源エネルギー庁. 平成 24 年度エネルギーに関する年次報告 (2014).
- 杉浦 紳之. チェルノブイリ事故後の環境影響, *日本原子力学会誌* 53(6), 419-425 (2011).
- 鈴木 敦雄 : Private communication (2011).



- 地質調査総合センター. 日本の地球化学図(2004).
- 茅野 政道, 石川 裕彦, 甲斐 倫明, 本間 俊充, 日高 昭秀, 今井 和彦, 飯嶋 敏哲, 森内 茂, 浅井 清, 中村 康弘, 奥田 基, 堀上 邦彦. SPEEDI: 緊急時環境線量情報予測システム, JAERI-M 84-050, 日本原子力研究所 (1984).
- 津田 修一, 吉田 忠義, 中原 由紀夫, 佐藤 哲郎, 関 暁之, 松田 規宏, 安藤 真樹, 武宮 博, 谷垣 実, 高宮 幸一, 佐藤 信浩, 奥村 良, 小林 康浩, 吉永 尚生, 吉野 泰史, 内堀 幸夫, 石川 剛弘, 岩岡 和輝, 斎藤 公明. 走行サーベイシステム KURAMA-II を用いた測定の基盤整備と実測への適用, JAEA-Technology 2013-037 (2013).
- 堤 正博, 斎藤 公明, 森内 茂. 実効線量当量単位に対応した NaI(Tl)シンチレーション検出器 G(E)関数 (スペクトル線量変換演算子) の決定. JAERI-M 91-204 (1991).
- 長瀧 重信, 山下 俊一. チェルノブイリ事故の医学的影響, 日本原子力学会誌 53(6), 412-418 (2011).
- 長瀧 重信. チェルノブイリ原発事故:初期の混乱から国際機関のまとめの報告まで WHO, IAEA などの 10 年, 20 年のまとめ, 及び 25 年目の UNSCEAR 2008, 日本原子力学会誌 54(1), 36-40 (2012).
- 日本原子力産業協会. 世界の原子力発電開発の動向 (2014).
- 日本原子力産業協会. 世界の原子力発電開発の動向 2013 年版 (2013).
- 日高 昭秀, 甲斐 倫明. 放射性雲からの $\gamma$ 線体外被曝線量計算における核種放出光子エネルギーの扱い, 日本原子力学会誌, 29(11), 1023-1029 (1987).
- 平山 英夫, 佐波 俊哉, 波戸 芳仁. モンテカルロコード egs5 を用いた地表に広く分布した放射性物質による地表 1m でのガンマ線スペクトルの評価, 日本原子力学会和文論文誌, 12(3), 222-230 (2013a).
- 平山 英夫, 松村 宏, 波戸 芳仁, 佐波 俊哉. LaBr<sub>3</sub>シンチレーション検出器の波高分布測定値と egs5 によるプルーム中放射性核種の検出器応答を用いたプルーム中放射性核種濃度の推定, 日本原子力学会和文論文誌, 12(4), 304-310 (2013b).
- 平山 英夫, 川崎 将亜, 松村 宏, 大倉 毅史, 波戸 芳仁, 佐波 俊哉, 滝 光成, 大石 哲也, 吉澤 道夫. モニタリングポストでの波高分布の時系列変化とプルーム中放射性核種に対する検出器応答を用いた I-131 濃度の推定, 日本原子力学会和文論文誌, 13(3), 119-126 (2014).
- 藤原 健史. 名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻修士論文 (2010).
- 芳原 新也, 稲垣 昌代, 小島 清, 山西 弘城, 若林 源一郎, 杉山 亘, 伊藤 哲夫. 福島第一原発事故に起因する放射性物質による生活環境における土壌汚染に関する調査. 日本原子力学会和文論文誌, 10(3), 145-148 (2011).
- 湊 進. 環境 $\gamma$ 線解析用 3"×3"NaI(Tl)シンチレータのレスポンス行列. 名古屋工業技術試験所

報告, 27, 384-397 (1978).

湊 進. 日本における地表 $\gamma$ 線の線量率分布, 地学雑誌, 115(1), 87-95 (2006).

村上 朋子. 福島第一事故後の諸外国の原子力開発政策, 日本原子力学会誌 53(7), 489-490 (2011).

村上 悠紀雄, 團野 皓文, 小林 昌敏. 放射線データブック, 地人書館, 333 (1982).

文部科学省 原子力安全課防災環境対策室. ゲルマニウム半導体検出器を用いた in-situ 測定法, 放射能測定法シリーズ 33 (2008).

## 本論文を構成する発表論文

1. Jun Hirouchi, Shigekazu Hirao, Jun Moriizumi, Hiromi Yamazawa, and Atsuo Suzuki, "Estimation of surface concentration of radon decay products from gamma dose rate change after rain", *Progress in Nuclear Science and Technology* 4, 871-874 (2014a).
2. Jun Hirouchi, Shigekazu Hirao, Jun Moriizumi, Hiromi Yamazawa, and Atsuo Suzuki, "Estimation of infiltration and surface run-off characteristics of radionuclides from gamma dose rate change after rain", *Journal of Nuclear Science and Technology* 51(1), 48-55 (2014b).
3. Jun Hirouchi, Hiromi Yamazawa, Shigekazu Hirao, Jun Moriizumi, "Estimation of surface anthropogenic radioactivity concentrations from NaI(Tl) pulse-height distribution observed at monitoring station", *Radiation Protection Dosimetry* (DOI: 10.1093/rpd/ncu305) (2014c).

## 謝辞

本研究は多くの方々のご指導およびご鞭撻の下で完成となりました。感謝の意を込めて謝辞を記します。

本研究を進めるにあたり、名古屋大学大学院工学研究科 山澤 弘実 教授、森泉 純 准教授、平尾 茂一 助教にはご多忙な中、終始ご指導ご鞭撻を賜りました。著者が学部 4 年から博士後期課程 3 年までの 6 年間にわたり、研究者としての考え方、筋道の立て方、第三者への伝え方など多くのことを学ばせて頂きました。心より感謝の意を表します。

本論文のとりまとめにあたり、名古屋大学大学院工学研究科 藤田 隆明 教授、同研究科 瓜谷 章 教授、および名古屋大学大学院医学系研究科 山本 誠一 教授には、討論を通じて有益なご助言および異なった視点からのご指摘を頂きました。ここに深く感謝いたします。

静岡県環境放射線監視センターおよび茨城県環境放射線監視センターより、線量率、NaI 波高分布、および福島原発事故後の In-situ 測定値と降下量測定値を提供して頂きました。キャンベラジャパン株式会社 鈴木 敦雄 氏および茨城県環境放射線監視センター 桑原 雄宇 氏には、データ提供および現地調査の際にご助力いただきました。

本研究で NaI 波高分布を計算する際に EGS5 を使用させていただきました。高エネルギー加速器研究機構 平山 英夫 氏には、EGS5 の使用方法および条件設定等に関して、多くのご助言を頂きました。

山澤研究室でともに研究生活を送り、支えていただいた皆様に感謝いたします。

大学および大学院で勉強をする機会を与えてくださった両親、家族に感謝いたします。

最後に、ご指導およびご助力を頂いた皆様に心より感謝の意を表して、本論文の結びと致します。

廣内 淳