

III 技術報告

連続式全アルファ・全ベータ線ダストモニタで観測される計数率変動と 主な寄与放射性核種

石川陽一*、木村幸由

* 元宮城県環境放射線監視センター

連続式全アルファ（ α ）・全ベータ（ β ）線ダストモニタのデータ解析の結果、ろ紙交換タイミングを反映して6時間毎に計数率に時間的規則性が認められた。ろ紙交換直後に α 計数率/ β 計数率比が高い値を示す場合があるが、原因のひとつとして気象条件や積雪に伴う計数不足の結果 α/β 比が高い値になることが挙げられた。宮城県環境放射線監視センター敷地内の屋外において、ハイボリュームエアサンプラと可搬型Ge半導体検出器で大気中Rn娘核種（ ^{214}Bi ）の γ 線計数率を連続的に約4時間測定したところ、経時的に値が増加して2-3時間くらいで大体一定値になり、連続式ダストモニタの全 α 又は全 β 計数率と同様の傾向が観測された。Tn娘核種はGe検出器によってはほとんど検出されなかった。文献値からもダストモニタに捕集される放射性核種は主にRn娘核種であると推定された。娘核種が外気中でRnと放射平衡にあるとの仮定の下に、計算によってそれらの時間的変動を計算してみた結果、約2-3時間程度で大体一定になる傾向が説明できた。

1 まえがき

原子力規制庁監視情報課が制定した「平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料）¹⁾」に基づいて、令和2（2020）年度に女川原子力発電所周辺2カ所のモニタリングステーション（飯子浜、鮫浦）に連続式全 α ・全 β 線ダストモニタを設置した（前報²⁾）。測定方式が全 α 及び全 β 線を測定するタイプであるため、適正な値が得られるか確認が必要と考えられた。通常の大気中には地殻中の天然のU系列とTh系列の壊変生成物である希ガスのRn（ ^{222}Rn :ラドン）とTn（ ^{220}Rn :トロン）の娘核種がかなり存在し³⁾⁻¹⁰⁾、場所、季節又は気象条件により、濃度や核種間の存在比が変動する³⁾⁻⁹⁾。そのため、ダストモニタによる原子力施設由来人工放射性核種の測定においてはそれらが著しい妨害因子となり、データ処理には困難が予想される。国が定めた測定法³⁾においては β/α 放射能比を用いる方法などが示されている。本報告では計数率の時間的変動の原因や計数率に対する主な寄与核種について検討を試みた。

2 方法

ダストモニタで測定された全 α 及び全 β 計数率の値や変動の傾向を把握するとともに、ほかの補足データも参考にしながらモニタによる測定値の変動原因や傾向を調べた。ダストモニタでは巻き取り式HE-40Tろ紙（アドバンテック東洋製セルロース・ガラス繊維ろ紙）を使って外気中のダストを約 $0.1\text{ m}^3/\text{min}$ の吸引速度で有効径 $50\text{ mm}\phi$ のろ紙上に捕集しながら、ZnS(Ag)シンチレーション検出器とプラスチックシンチレーション検出器でそれぞれ全 α 及び全 β 計数を連続的に測定し、6時間毎にろ紙を移動・交換して測定を繰り返している¹⁾。データ収集間隔は10分毎となっている。計数データはあらかじめ測定された計数効率を用いて放射能に換算される。天然放射性核種では通常全 β 放射能/全 α 放射能の比が大体一定になることを利用して³⁾、人工放射性核種の影響の有無を判別する方式になっている。放射能濃度についてはまだかなり検討の余地があるため、

本報告では出力値が確からしい計数率についてのみ調べることとし、濃度については検討を見送った。

一方で、当監視センターと鮫浦モニタリングステーション（MS）において、ハイボリューム（HV）エアサンプラと核種分析が可能な可搬型 Ge 半導体検出器¹¹⁾を用いて空气中的のダスト（大気浮遊塵）を捕集・測定することにより、連続式ダストモニタの結果との比較を試みた。

3 結果

3.1 連続式ダストモニタデータの解析

前述のように Rn、Tn やそれらの娘核種濃度は様々な原因で大きく変動するため、ダストモニタの計数率も常に変化している（図 1：4 カ月間）。ろ紙送りが 6 時間であるため α と β の計数率やそれらの比（ β/α ）も 6 時間毎の周期的変動をしている（図 2：1 週間）。図 3 は図 2 に示すデータの β/α 計数率比を示すが、かなりよい直線的関係が認められる。図 4 (a) と (b) はそれぞれ 2022 年 2 月 21 日の 5-13 時の α 、 β 計数率及びそれらの比を示すが、この間 6 時と 12 時にろ紙交換が行われている。交換直後の 6:10 と 12:10 にはろ紙が新しくなったため計数率が下がっているが、

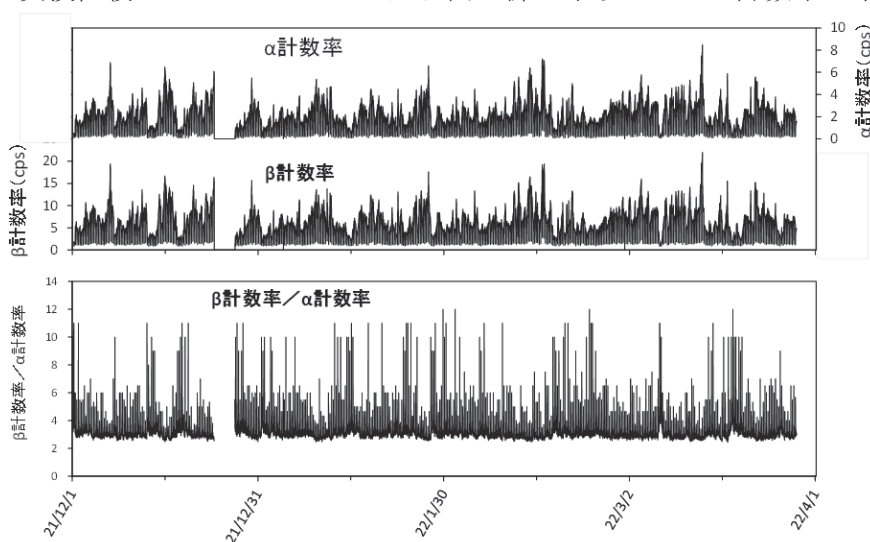


図 1 2021/12-2022/3 月（4 カ月間）におけるダストモニタの α 計数率、 β 計数率及びそれらの比の変動（鮫浦 MS）

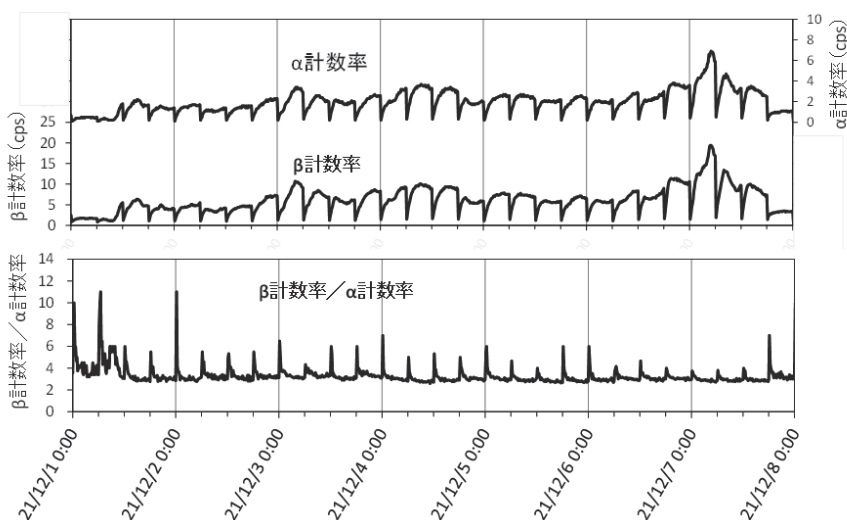


図 2 2021/12/1-7（1 週間）におけるダストモニタの α 計数率、 β 計数率及びそれらの比の変動（鮫浦 MS）

試料空気吸引とともに Rn 又は Tn 娘核種蓄積のため次第に高くなっていく。しかし、 β/α 計数率比はろ紙交換直後にその前に比べて 2-3 倍程度に高くなっている。これが娘核種間の存在割合の違いを示すのかあるいは計数不足に伴う誤差のせいなのか現時点では不明である。

計数率比に異常を生じさせる原因として、人工放射能の影響のほか、ろ紙が交換によって新しくなったこと又は気象的原因で計数不足になり誤差が増大したことも考えられる。図 5 は図 4 と同じ時間帯の NaI 検出器による γ 線量率と指標線量率（人為的影響の目安）の変動を示すが、特段の変化はなく人為的影響は認められない。図 6 は 2022 年 2 月の女川 MS における大気中 Rn 濃度及び石巻市における積雪量を示すが、2 月 21 日には女川の Rn 濃度が低くかつ石巻市で積雪が観測されており、鮫浦 MS においても同様の原因により地面からの Rn 放出が低下した可能性がある。以上のことから、気象条件や積雪によって分母にあたる α 線の計数が不足し、その結果 β/α 計数率比が異常高になった可能性もある。ろ紙交換直後の異常値の原因については新潟県も同様の報告をしている¹²⁾。しかし、ろ紙交換毎に周期的にこの比が上昇する原因については現在のところ不明である。

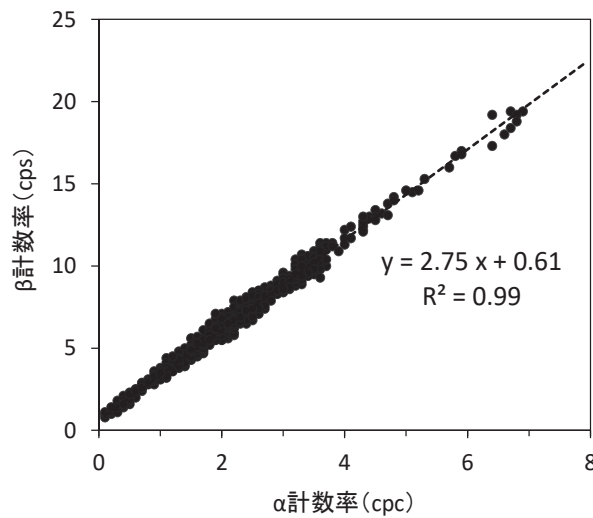


図 3 2021/12/1-7（1週間）におけるダストモニタの α 及び β 計数率間の相関（鮫浦 MS）

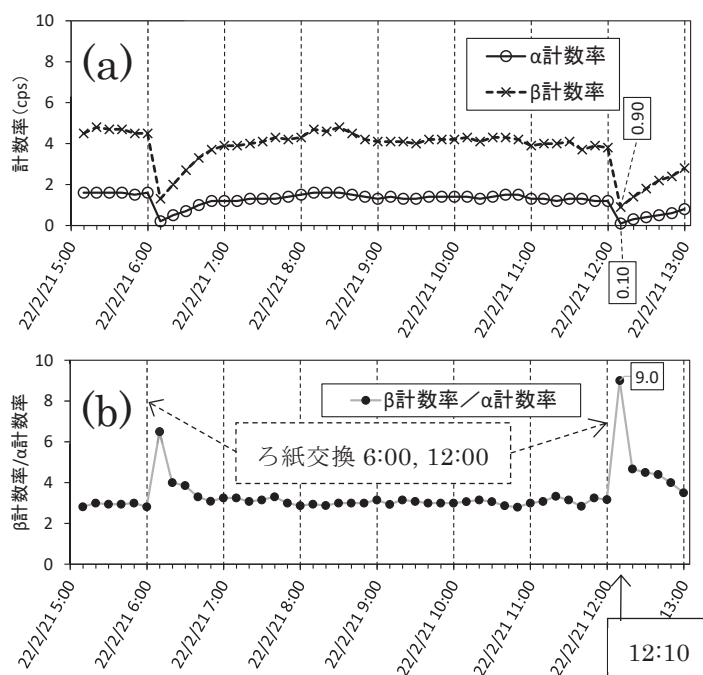


図 4 2022/2/21 5-13 時（8 時間）におけるダストモニタの (a) α 及び β 計数率並びに (b) それらの比の変動（鮫浦 MS）

異常値の対策として、あまり頻繁に発生するのでなければデータを確認の上で人為的に判断して欠測として処理するか、あるいは空気吸引量を上げるなどが考えられる。

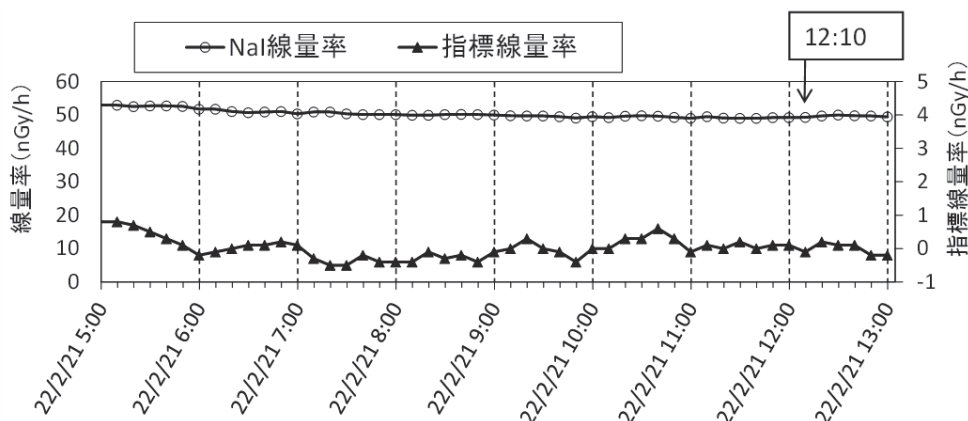


図5 2022/2/21 10-15時（5時間）におけるNaI検出器による γ 線量率と指標線量率の変動（鮫浦MS）

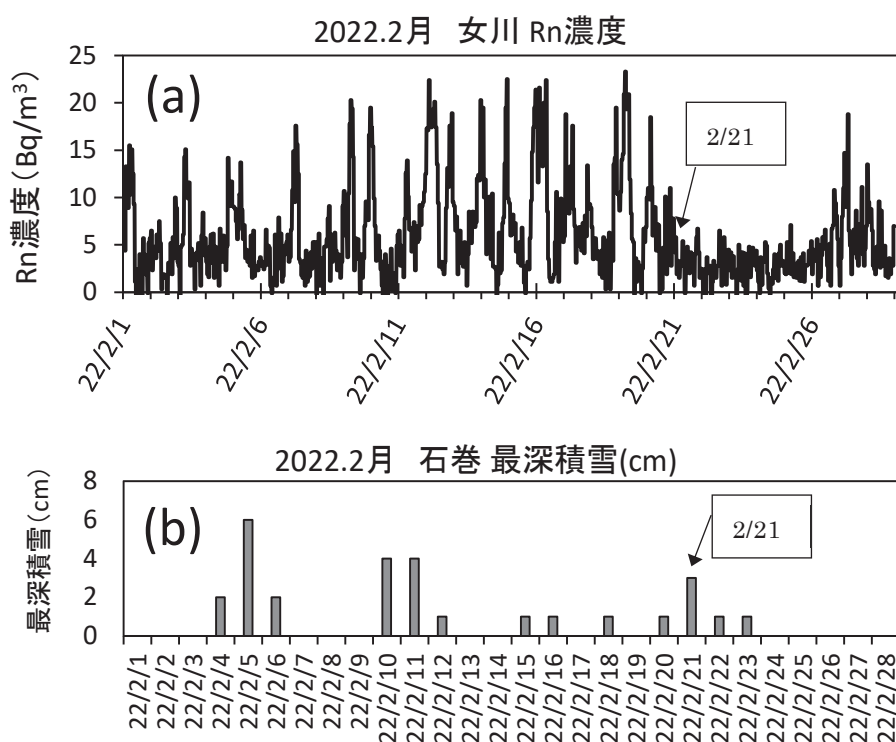


図6 2022年2月の(a)女川MSにおける大気中Rn濃度及び(b)石巻市（泉町）における積雪状況。最深積雪データは気象庁¹³⁾による。

3.2 HVエアサンプラとGe半導体検出器の組合せによる大気中Rn、Tn娘核種濃度の測定

3.2.1 監視センター屋内大気中のRn、Tn娘核種濃度

屋外での測定の前にはまずRnやTn濃度が高めと考えられる室内で予備実験を行い、濃度と時間的変動を測定した。⁹⁰Sr分析の際に稀に妨害の元になるRnとTnの娘核種を測定するためもあり、⁹⁰Yミルキング場所（第一化学分析室）と放射能測定場所（計測室：2 π ガスフロー式GMカウンター付近）でダストを採取し、Ge半導体検出器で20分間計数を測った。図7は2022/1/11-14のRnとTn

の娘核種濃度の変動を示す。Rn 娘核種 ^{214}Bi (HL=19.9 min) の濃度は第一化学分析室（採取は1回のみ）に少し多かったが、計測室内では少なかった。計測室内は常時エアクリーナーで除塵しているためその効果によるものと考えられる。Tn 娘核種 ^{212}Pb (HL=10.6 h) 濃度は計測室内で一夜（17時間）連続吸引した試料③にのみ有意に検出されたが、Rn 娘核種よりも一桁程度低かった。 ^{212}Pb の半減期が長い蓄積しにくかったためと考えられる。なお、本論からは外れるが、 ^{90}Sr 分析の際、 ^{90}Y 試料のマイラー膜に ^{212}Pb が付着するとわずかであっても妨害計数となるので要注意である。その点、Rn 娘核種 (^{214}Pb 、 ^{214}Bi) は半減期が短く、数時間で減衰するのであまり問題にはならない。

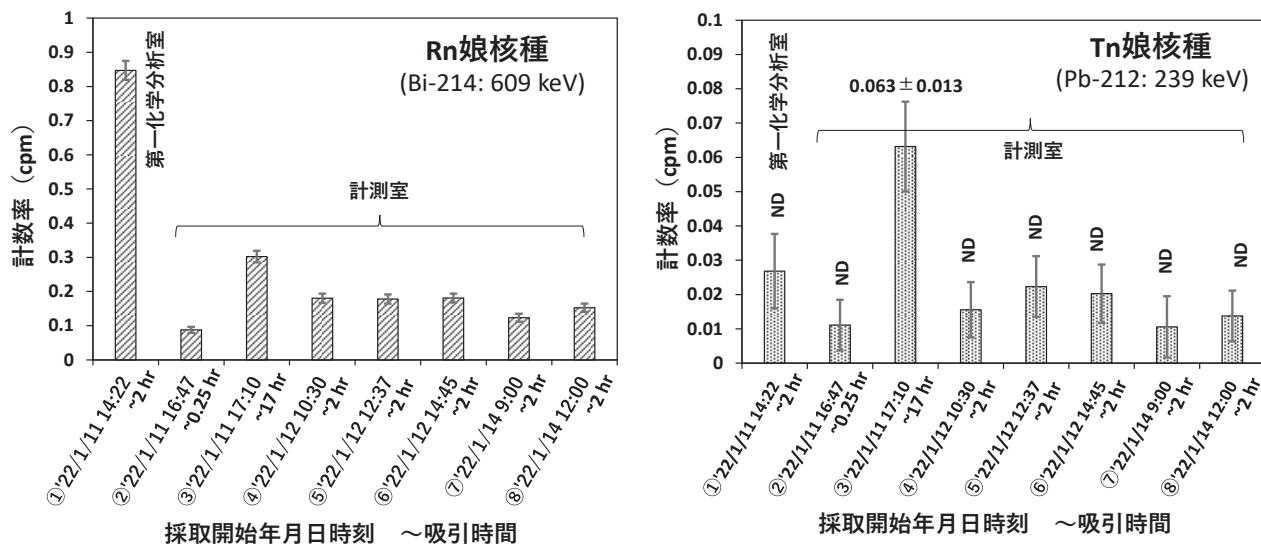


図7 可搬型 Ge 半導体検出器で測定した 2022/1/11-14 の監視セ室内の Rn と Tn 娘核種濃度の変動。測定時間は全て 20 分間。ND は検出下限値未満 (Not Detected)。

3.2.2 監視センター屋外大気中の Rn、Tn 娘核種濃度

図8は当センター敷地屋外で Rn、Tn 娘核種計数率を連続的に測定するための組み立て装置の模式図を示す。Ge 検出器と HV エアサンプラ（流量率 500 L/min）のろ紙（ADVANTEC 東洋製 GB-100R 型ガラス繊維ろ紙）周囲を鉛ブロックで簡易に遮蔽し、ろ紙側に空気を通す容器をかぶせて空気を吸引しながら測定を行った。MS のダストモニタの流量率は 100 L/min で、今回使用した HV エアサンプラより低い、絶対値で比較するのではなく計数率の時間的変動を見る目的なので支障はなく、連続吸引しながら Rn、Tn 娘核種の蓄積による計数率上昇が観測できればよい。表1は2021年12月24日に測定した Rn、Tn 娘核種の計数データを示す。測定順に記載してある。1 BG は吸引前のバックグラウンド測定を示し、2 dust から 6 dust がろ紙を吸引しながらの測定である（2 dust の 12:00-12:27 が 1 回目の測定）。図9は表1の値をグラフ化したものである。 ^{212}Pb は 3σ 未満で有意に検出されなかったが、 ^{214}Bi 計数率は吸引開始後上昇して約3時間（4 dust）で大体一定値となり、4時間後でもほぼ同じ値であった。このような傾向は MS でのダストモニタに

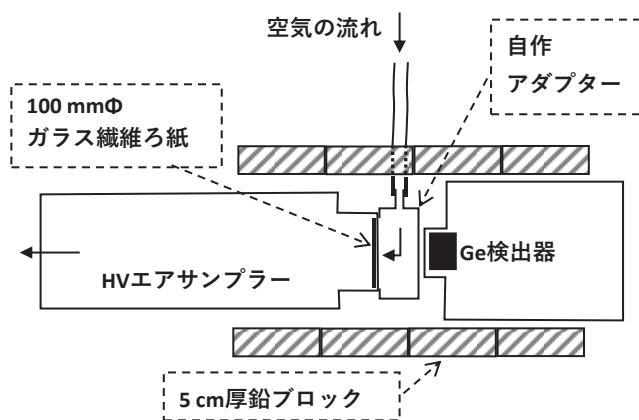


図8 HV エアサンプラ、Ge 半導体検出器及び鉛ブロック簡易遮蔽による大気中連続測定装置

おけるろ紙交換の間（6時間）の α 又は β 計数率上昇（図 4（a））と同様であった。 ^{212}Pb 計数率が ^{214}Bi よりも一桁程度以下であったことは、屋外大気中で Tn 濃度が Rn より約一桁程度以下^{9),10)} という文献値と矛盾しない。

表 1 2021 年 12 月 24 日に HV エアサンプラと Ge 半導体検出器で測定した敷地屋外における Rn と Tn 娘核種計数率

測定順	測定時間 *	カウント数**		カウント数**	
		^{214}Bi , 609 keV	σ_{609}	^{212}Pb , 239 keV	σ_{239}
1 BG	11:07-11:34	77.0	± 13.7	30.2	± 21.8
2 dust	12:00-12:27	120.0	± 16.7	31.7	± 21.4
3 dust	13:00-13:27	320.0	± 22.6	31.8	± 22.3
4 dust	14:00-14:27	413.7	± 25.1	25.5	± 22.5
5 dust	15:00-15:27	411.7	± 24.7	47.8	± 23.5
6 dust	16:00-16:27	432.0	± 25.0	43.0	± 23.4

* 測定時間は ^{214}Bi の親核種である ^{214}Pb の半減期26.8 min (1608 sec)とした。

** σ は計数誤差の標準偏差

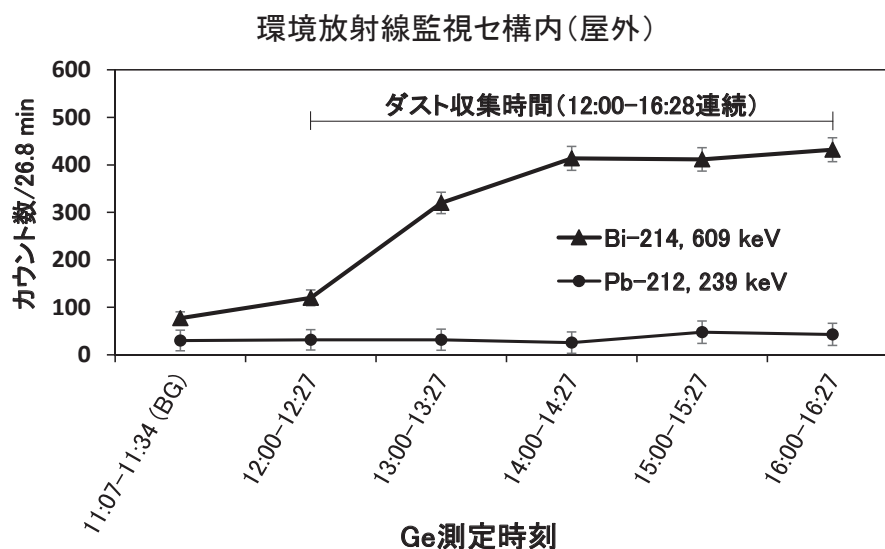


図 9 2021 年 12 月 24 日に HV エアサンプラと Ge 半導体検出器で測定した敷地屋外における Rn と Tn 娘核種計数率の変動（誤差棒は計数の標準偏差）

3. 2. 3 MS 屋外大気中の Rn、Tn 娘核種濃度測定の前備実験

図 10 は 2022 年 1 月 4 日に鮫浦 MS で行った簡易鉛遮蔽、可搬型 Ge 半導体検出器及び HV エアサンプラによる Rn、Tn 娘核種の測定風景を示す。この日は小雪がちらついていたが風は弱かった。MS フェンス内側に積雪はなかったが、周辺地面には薄く積雪があった。流量率 500 L/min で吸引し、110mm ϕ ろ紙にダストを採取した（空気採取量 9.9 m³）。ろ紙を圧縮し、U8 容器に充填して簡易遮蔽付き Ge 検出器で直ちに計数を測定した。

表 2 はダスト採取時間、バックグラウンド測定時間及びダスト測定時間と Rn、Tn 娘核種の計数データを示す。図 11 は表 2 の値をグラフ化した結果を示す。ダスト試料の ^{214}Bi 計数は BG に比べて明瞭に多かった。しかし、ダスト中の ^{212}Pb は BG と同程度であり、有意な量は検出されなかった。今回の測定は今後のダストモニタとの並行測定の前備実験であるが、地中からの Rn 散逸率が低めと思われる少量の積雪の日においても有意な量の ^{214}Bi が観測されたことから、今後に期待が持てる結果となった。

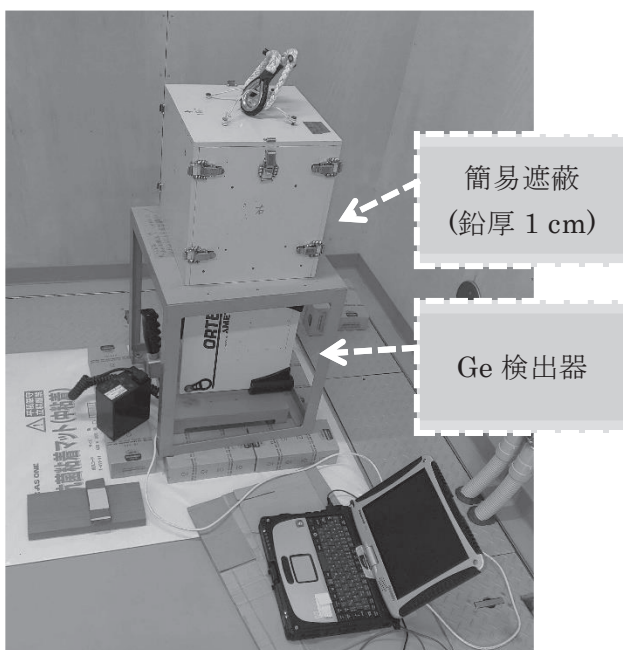
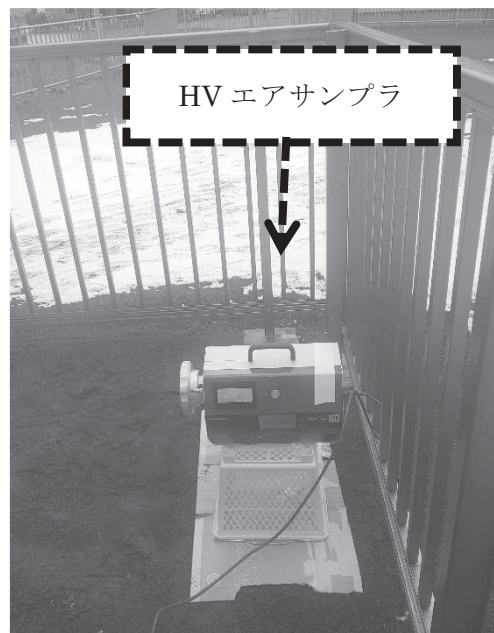


図 10 2022 年 1 月 4 日における簡易鉛遮蔽、可搬型 Ge 半導体検出器及び HV エアサンプラによる
 鮫浦 MS 屋外におけるダスト中 Rn と Tn 娘核種測定風景。

ダスト採取；鮫浦 MS 屋外、Ge 測定；MS 屋内、天候：小雪がちらつき、風：弱。
 MS フェンス内側に積雪はなかったが、周辺地面には薄く積雪があった。

表 2 2022 年 1 月 4 日に可搬型 Ge 半導体検出器で測定した鮫浦 MS 屋外に
 におけるダストと検出器バックグラウンドの Rn と Tn 娘核種計数

採取または測定時間 *	カウント数**		カウント数**	
	^{214}Bi , 609 keV	σ_{609}	^{212}Pb , 239 keV	σ_{239}
ダスト採取 14:00-14:20	—	—	—	—
BG測定 13:55-14:15	211.3	± 23.8	151.8	± 38.3
ダスト測定 14:25-14:45	443.3	± 29.3	132.7	± 37.8

*採取または測定時間: 20 min

** σ は計数誤差の標準偏差

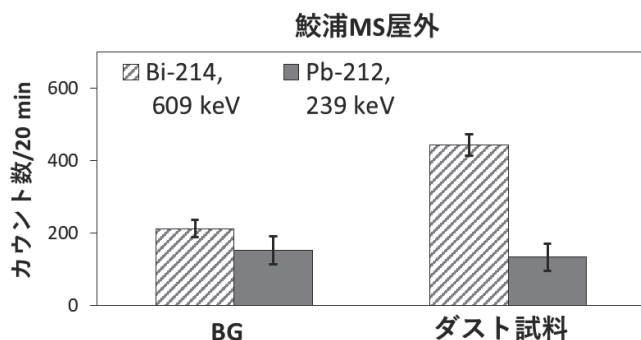


図 11 2022 年 1 月 4 日に可搬型 Ge 半導体検出器で測定した鮫浦 MS 屋外におけるダストと検出器バックグラウンドの Rn と Tn 娘核種計数率（誤差棒は計数の標準偏差）

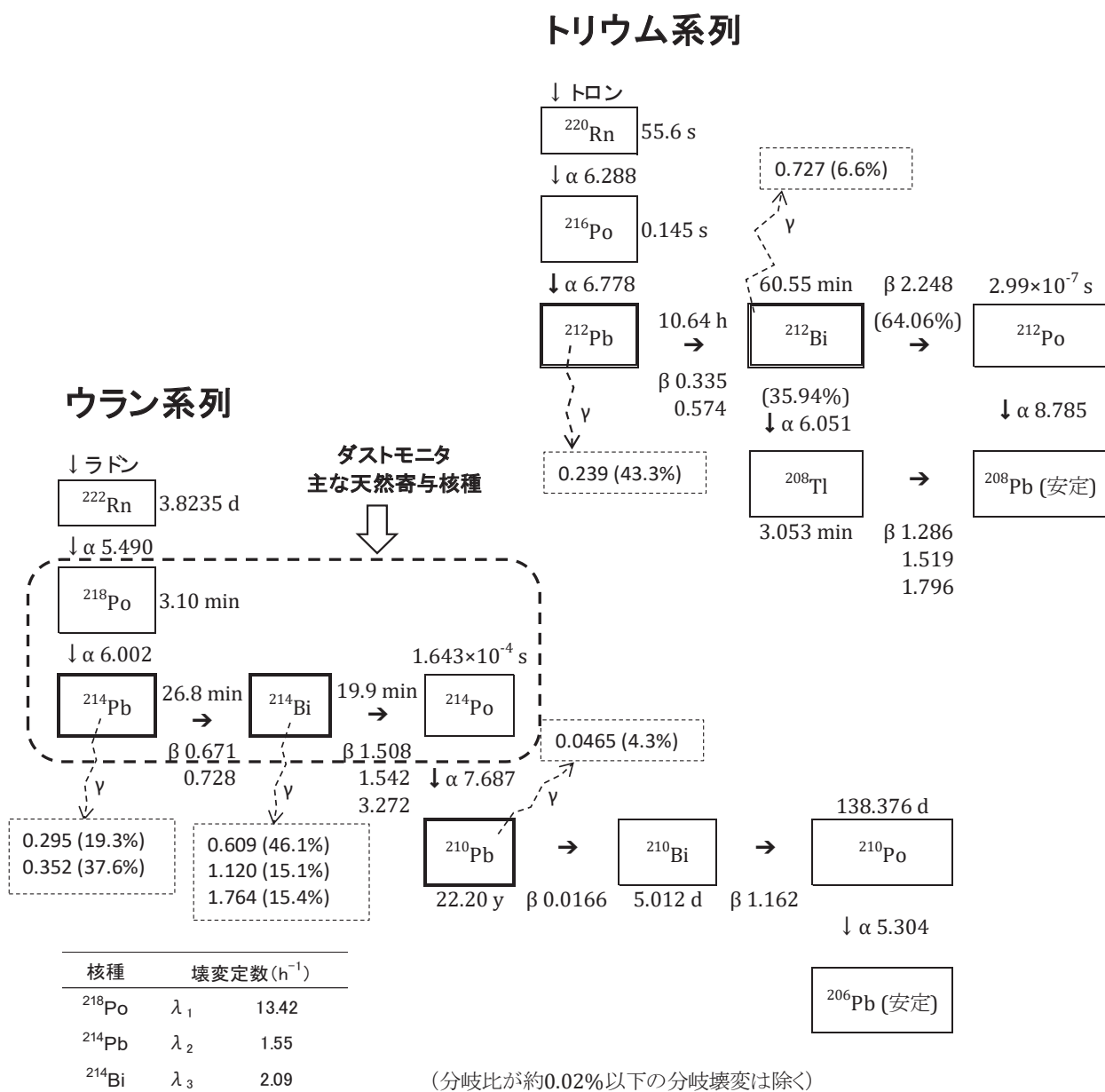


図 12 Rn と Tn 以降の U 及び Th 壊変系列核種（データは文献¹⁴⁾による）。下向矢印は α 壊変、右向矢印は β 壊変を表す。 α 、 β 、 γ の文字の脇の数値は MeV 単位のエネルギーを表し、カッコ内は γ 線の分岐比。 ^{218}Po 、 ^{214}Pb 及び ^{214}Bi の壊変定数も示す。

4 考察

4.1 屋外大気中の Rn と娘核種濃度の文献値

ダストモニタの全 α 、全 β 計数率データの解釈に当たって、計数値にどのような核種が寄与しているかを知ることは重要である。図 12 に Rn と Tn 以降の壊変系列を示す。空気中の娘核種濃度の概略値について下と山崎⁶⁾は、短寿命 Rn 娘核種 ($^{218}\text{Po}\sim^{214}\text{Po}$) と比べて Tn のそれらは約 1 桁程度低く、かつ Rn 長寿命核種 ($^{210}\text{Pb}\sim^{210}\text{Po}$) 濃度は Rn に比べて 1/1000 程度であると述べている。表 3 は女川を含め、主に国内の Rn とその娘核種濃度の文献値^{4), 8), 15)-21)}の例を示すが、大体の傾向は下と山崎が述べているとおりであった。比較のため海外のリスボン付近の値¹⁶⁾も表に示したが、大体国内と同様の傾向を示した。山崎ら⁸⁾は名古屋での測定において Rn 濃度が約 5 Bq/m^3 程度、また $^{222}\text{Rn} : ^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Pb} : ^{214}\text{Bi}$ の割合をそれぞれ $1.00 : 0.80 : 0.78 : 0.72$ と述べていることから、概して Rn から ^{214}Bi までの娘核種は放射平衡に近いと考えられる。以上のことから、ダストモニタに対する寄与は主に Rn 短寿命娘核種によると考えられる。実際、前述の Ge 検出器による測定において Tn 娘核種はほとんど検出されなかった。

表 3 国内外の Rn とその娘核種濃度の文献値

核種	場所	時期(年/月/日)	核種濃度 (mBq/m ³)	備考	文献
^{222}Rn	女川	'09/8/20-25	4-40	最小-最大	長山ら 15)
^{222}Rn	名古屋	'91/8-'92/6	5.2 (約3-約7)	平均(最小-最大)	山崎ら 8)
^{222}Rn	リスボン付近	'86-'89	~0.1, 2-10	海洋性気団, 大陸性気団	Carvalho 16)
^{218}Po	名古屋	'91/8-'92/6	~4.2	$^{222}\text{Rn}\times 0.80$	山崎ら 8) *
^{214}Pb	名古屋	'91/8-'92/6	~4.1	$^{222}\text{Rn}\times 0.78$	山崎ら 8) *
^{214}Bi	名古屋	'91/8-'92/6	~3.7	$^{222}\text{Rn}\times 0.72$	山崎ら 8) *
^{210}Pb	女川	'09/8	0.71 ± 0.05	平均 $\pm\sigma$	宮城県原セ 17)
^{210}Pb	つくば	'87/11 - '92/5	0.2-0.8	最小-最大	Sato et al. 18)
^{210}Pb	つくば	'88-'90	0.35, 0.45	夏, 冬	Doi et al. 19)
^{210}Pb	東通	'16/1-'20/3	約0.7 (0.2-1.3)	平均(最小-最大)	檜山ら 20)
^{210}Pb	六ヶ所	'01/6-'02/6	約0.2-約2	最小-最大	木村ら 4)
^{210}Pb	リスボン付近	'86-'89	0.181 ± 0.111	平均 $\pm\sigma$	Carvalho 16)
^{210}Bi	リスボン付近	'86-'89	0.094 ± 0.073	平均 $\pm\sigma$	Carvalho 16)
^{210}Po	リスボン付近	'86-'89	0.031-0.038	最小-最大	Carvalho 16)
^{210}Po	六ヶ所	'01/6-'01/12	約0.02-約0.11	最小-最大	木村ら 4)
^{210}Po	能美	'05/11/17 - '06/3/31	約0.005-約0.1	最小-最大	Yamaguchi et.al. 21)

* 名古屋における ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の値は ^{222}Rn 濃度にそれぞれの割合 0.80、0.78、0.72 を乗じて便宜的に得られた値である。

4.2 屋外大気中 Rn 娘核種濃度の時間的変動の放射化学的説明

前述したダストモニタの α 、 β 計数率や Ge 検出器によるダスト測定結果から、ダストの連続採取・測定においてフィルター交換後の測定開始直後は計数が低く、次の交換までの 6 時間の間に次第に上昇していく傾向が観察された。次にこの現象の放射化学的説明を試みる。

前節の議論も踏まえ、ダストモニタに捕集される前に屋外で既に ^{222}Rn (3.8 d)、 ^{218}Po (3.10 min)、 ^{214}Pb (26.8 min) 及び ^{214}Bi (19.9 min) が放射平衡にあり、放射能が同じと仮定する。 ^{214}Po は半減期が 1.643×10^{-4} s と極めて短く、直ちに ^{214}Bi と放射平衡になるため以下では計算を省略した。Rn 短寿命娘核種は Rn に比べれば半減期がかなり短く、空気中を浮遊している間に多くがエアロゾルに付着し⁶⁾、条件にもよるが⁷⁾ ある程度の時間が経った後には放射平衡に近い状態

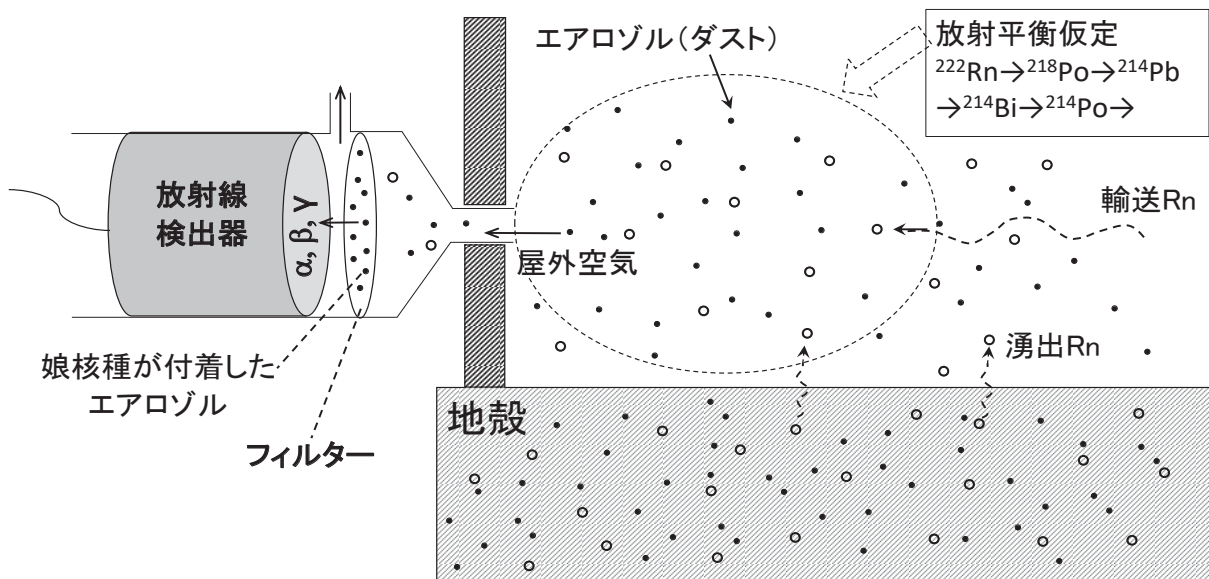


図 13 屋外空気と捕集フィルターにおける Rn と娘核種の分布模式図

にあると考えられる。図 13 にその模式図を示す。 ^{218}Po 、 ^{214}Pb 及び ^{214}Bi をそれぞれ番号 1-3 で表すと、ダストモニタのフィルターに捕集されたこれらの核種の原子核数 X_i ($i=1-3$) は時間の関数で、下記の連立微分方程式で表される。これらは下と山崎⁶⁾による捕集中のフィルター上の娘核種の時間変化を表す式と同形である。ここで k_i は捕集される核種の数を表し、時間的に一定値とする。捕集時に放射平衡にあると仮定しているため、 k_i に壊変定数 λ_i を乗じて放射能に換算した値は核種間で同じである。

$$\frac{dX_1}{dt} = k_1 - \lambda_1 X_1 \quad (1)$$

$$\frac{dX_2}{dt} = k_2 - \lambda_2 X_2 + \lambda_1 X_1 \quad (2)$$

$$\frac{dX_3}{dt} = k_3 - \lambda_3 X_3 + \lambda_2 X_2 \quad (3)$$

(1) は ^{218}Po についての式で、第 1 項の k_1 は捕集される割合を表し、第 2 項の $-\lambda_1 X_1$ は壊変定数 ($\ln 2 /$ 半減期) による減衰を表す。(2) は ^{214}Pb についての式で、捕集割合 k_2 と壊変定数による減衰のほか、 ^{218}Po からの生成項 $\lambda_1 X_1$ を含む。(3) は同様の ^{214}Bi についての式である。これらを解いた結果が次の (4)-(6) 式である。

$$X_1 = \frac{k_1}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (4)$$

$$X_2 = \frac{k_2 + k_1}{\lambda_2} - \frac{k_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \left(\frac{k_1}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{k_2 + k_1}{\lambda_2} \right) e^{-\lambda_2 t} \quad (5)$$

$$X_3 = \frac{k_3 + k_2 + k_1}{\lambda_3} - \frac{\lambda_2 k_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \left(\frac{k_1}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{k_2 + k_1}{\lambda_2} \right) e^{-\lambda_2 t} - \left\{ \frac{k_3 + k_2 + k_1}{\lambda_3} - \frac{\lambda_2 k_1}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \left(\frac{k_1}{\lambda_2 - \lambda_1} - \frac{k_2 + k_1}{\lambda_2} \right) \right\} e^{-\lambda_3 t} \quad (6)$$

フィルターに捕集される娘核種の空气中濃度を仮に 1 Bq/m^3 としてこれを λ_i で割り算して k_i の値を求め、更に(4)-(6)式に λ_i を乗じて放射能に換算し、捕集開始後6時間までの放射能の変化を計算した結果を図14に示す。 ^{218}Po は半減期が短いためすぐに平衡に達するが、 ^{214}Pb と ^{214}Bi は大体2~3時間で平衡になっている。このことはダストモニタの測定結果(図4 a)及びGe検出器の測定結果(図9)の変動傾向と類似している。図12に示したとおり、Rn娘核種は ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{214}Po の順に系列的に壊変し、 α 線は ^{218}Po と ^{214}Po から、 β 線と γ 線は ^{214}Pb と ^{214}Bi から放出される。測定する放射線が β 線又は α 線であっても時間的変動傾向は γ 線の場合と同様になるはずであり、前節の娘核種濃度の文献値のレベルも考慮すれば、平常時の全 α 線・ β 線ダストモニタの計数率変化は主に ^{218}Po から ^{214}Po までのRn娘核種の寄与によるものと推定される。

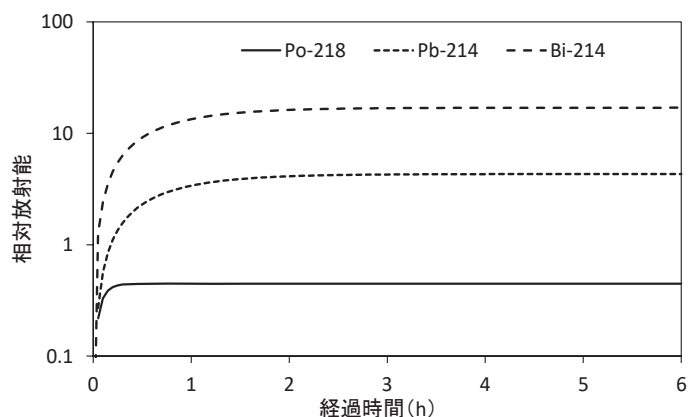


図14 ダストモニタにおける Rn 娘核種 ^{218}Po 、 ^{214}Pb 及び ^{214}Bi の濃度変化計算値

5 まとめと今後の方向性

連続式 α 線・ β 線ダストモニタのデータ解析の結果、ろ紙交換タイミングを反映して6時間毎の計数率に時間的規則性が認められた。ろ紙交換直後に β 計数率/ α 計数率の比が高い値を示す場合があるが、原因の一つは気象条件や積雪によっては分母にあたる α 線の計数が不足し、その結果 β/α 比が高くなるためと推定された。装置の運用に当たっては対策が必要である。

監視センター敷地内の屋外においてHVエアサンプラと可搬型Ge検出器で大気中Rn娘核種(^{214}Bi)を連続的に約4時間測定したところ、経時的に計数が増加していき、測定開始後約2-3時間程度で大体一定になるという連続式ダストモニタと同様の傾向が観測された。文献値を調べたところ、フィルターに捕集される主な核種はRn短寿命娘核種によると考えられた。一方、外気中のそれらの核種がRnと放射平衡にあるとの仮定の下に、計算でそれらの時間的変動傾向をシミュレーションしてみたところ、測定開始後約2-3時間程度で大体一定になる現象が説明できた。今後は、MS屋外においてもGe検出器とHVエアサンプラを用いて連続式ダストモニタとの並行測定を行えば、更に検証ができるものと考えられる。その際には可能ならばRnとTn及びそれらの娘核種測定装置による観測ができればより望ましい。また、本来の測定対象である人工放射性核種の検出感度や測定精度の検証も必要と考えられるが、それらについては今後メーカー側で検討すべきと考えられる。

参考文献

- 1) 原子力規制庁監視情報課，平常時モニタリングについて（原子力災害対策指針補足参考資料），平成30(2018)年4月4日，令和3年（2021）12月21日一部改訂。
- 2) 木村幸由，木村昭裕，中村朋之，佐藤健一，ダストモニタの導入及び可搬型モニタリングポストの更新について，宮城県環境放射線監視センター年報第6巻，15-20（2020）。
- 3) 原子力規制委員会，放射能測定法シリーズ No. 36，大気中放射性物質測定法，令和4（2022）年6月。
- 4) 木村秀樹，高橋秀昭，齋藤 稔，大気浮遊じん中全 α 及び全 β 放射能の起源の推定，保健物理，43，60-68（2008）。

- 5) 下 道国, 池辺幸正, 自然環境における ^{222}Rn , ^{220}Rn およびそれらの短半減期娘核種の濃度, 保健物理, 14, 251-259 (1979).
- 6) 下 道國, 山崎敬三, ラドンエアロゾル, エアロゾル研究, 4, 26-35 (1989).
- 7) 児島 紘, 阿部史朗, 家屋内外ラドン娘核種の挙動, 保健物理, 26, 215-223 (1991).
- 8) 山崎 直, 飯田孝夫, 下道國, 池辺幸正, 屋外ラドンおよびラドン娘核種濃度の連続測定, 保健物理, 30, 149-154 (1995).
- 9) 服部隆利, 電力中央研究所研究報告, 大気中の ^{222}Rn 濃度と ^{212}Pb 濃度の相関解析による発生起源別の ^{222}Rn の季節変動評価, 平成 10 (1998)年 4 月.
- 10) Abe, T., Yamaguchi, Y., Tanaka, K., Nakano, Y., Komura, K., Highly time-resolved measurements of airborne radionuclides by extremely low background γ -ray spectrometry, J. Nucl. Radiochem. Sci., 8, 5-9 (2007).
- 11) 石川陽一, 新井康史, 可搬型ゲルマニウム検出器の導入と若干の測定事例, 宮城県原子力センター一年報第 30 巻, 35-41, 2012.
- 12) 新潟県, 柏崎刈羽原子力発電所周辺 環境放射線監視調査結果速報, 第 1 四半期 (4 月~6 月), p. 42-44, 平成 23(2011)年 9 月.
- 13) 気象庁, 各種データ・資料, 過去の気象データダウンロード,
<https://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php>
- 14) 日本アイソトープ協会, アイソトープ手帳, 第 11 版, 2011, 東京.
- 15) 長山美穂, 島影裕徳, 木村昭裕, 伊藤節男, 石川陽一, 三浦英美, 非降水時の空間ガンマ線線量率とラドン濃度の関係, 宮城県原子力センター一年報第 27 巻, 10-13 (2009).
- 16) Carvalho, Origins and concentrations of ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po in the surface air at Lisbon, Portugal, at the Atlantic edge of the European continental landmass, Portugal, Atmosph. Environ., 29, 1809-1819 (1995).
- 17) 宮城県原子力センター一年報第 27 巻 p. 67 (2010), 浮遊じんの核種分析結果(1).
- 18) Sato, J., Doi, T., Segawa, T., Sugawara, S., Seasonal variation of atmospheric concentrations of ^{210}Pb and ^7Be at Tsukuba, Japan, with a possible observation of ^{210}Pb originating from the 1991 eruption of Pinatubo volcano, Philippines, Geochemical Journal, 123-129 (1994).
- 19) Doi, T., Sato, S., Sato, J., Atmospheric concentration of ^{210}Pb in East Asia and its contribution to Japanese Islands by long-range transport, Radioisotopes, 115-130 (2007).
- 20) 檜山宝孝, 安積 潔, 吹越恵里子, 木村芳伸, 神 俊雄, 青森県東通原子力発電所周辺地域における ^7Be , ^{210}Pb の大気浮遊じん中濃度及び降下量の季節変動, 保健物理, 55, 239-249 (2020).
- 21) Yamaguchi, Y., Abe, T., Murata, Y., Mikandan N, M., Tanaka, K., Komura, K., High resolution measurements of temporal variations of airborne ^{210}Po , ^{210}Pb , and ^7Be at Ishikawa Prefecture, facing the Sea of Japan, J. Nucl. Radiochem. Sci., 8, 149-153 (2007).

NaI(Tl)検出器による空間ガンマ線量率の人工増分 (指標線量率) 評価の検討

石川陽一*、木村幸由、木村昭裕**

*元宮城県環境放射線監視センター、**現宮城県原子力安全対策課

宮城県では1981年から22行×22列レスポンスマトリクス(RM)法を用いたNaI(Tl)スペクトル解析による空間 γ 線量率人工増分(指標線量率)評価方法を利用してきた。殆どの場合、降水に含まれる ^{222}Rn 娘核種の影響を除去できるが、稀にうまくいかない場合があった。その原因として、過去データを用いた重回帰法による天然放射性核種寄与推定の際に気象条件によっては適切なデータが不足することが考えられたが、過去データの取り直しによって改善できた。高分解能49行×49列RM法による線束密度スペクトルの理論値との比較から、降水時には ^{222}Rn 娘核種が平面的に分布して相対的に散乱線が少なくなり、 γ 線平均エネルギーが上昇することがわかった。

1 22行×22列RM法による空間ガンマ線量率人工増分(指標線量率)の監視

宮城県では1981年の女川原子力発電所(「女川原発」と略す)周辺環境放射線監視の当初から、NaI(Tl)検出器の γ 線スペクトル解析による人工 γ 線寄与評価を試みとして行ってきた^{1),2)}。スペクトル解析には湊ら^{3),4)}が開発した22行×22列のレスポンスマトリクス(応答行列:以下「RM」と略す)法を用いている。宮城県では、あらかじめスペクトル解析による天然核種寄与(U系列、Th系列、K-40)線量率成分と全線量率(RM法)の過去データを重回帰法によって処理して偏回帰係数を求めておき、人工放射線寄与も含む可能性のある目的の時間帯の全線量率から天然核種寄与(バックグラウンド線量率:以下「BG線量率」と略す)を差し引き、正味の人工増分を算出している^{1),2)}。その後、幾つかの検証を経て⁵⁾、指標線量率として2002年度(平成14年度)から環境放射線監視データ評価の参考として積極的に活用してきた⁶⁾。通常、10分毎のリアルタイム処理によってこの評価を行い、設定レベルを超過した場合には通報される仕組みになっている。その後、扱いやすいソフトウェアがキャンベラ社(現ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ株式会社)から供給されるようになったため、他県でも人工増分検出などに活用されている⁷⁾。本県ではこれまでに女川原発からの施設影響を検出したことはないが、それ以外の人工増分を検出した複数の例がある^{8),9)}。福島第一原子力発電所事故後には $^{134,137}\text{Cs}$ や ^{131}I などの人工放射性核種が放出されたが、しばらくの日数が経過して地表に沈着・安定後、重回帰法ではそれらもBG線量率として差し引かれるため、新たな短期の人工増分検出には有効である。更にそれらの人工核種寄与を個別に評価するには、湊により更に高分解能の49×49¹⁰⁾又は60×60^{11),12)}行列のRM法が開発されている。

人工 γ (x)線成分のみを感度よく検知する本システムのような仕組みがない場合は、全線量率の上昇や定性的なスペクトル観察、その他の情報から総合的に判断せざるを得ない。その判断は晴天時には比較的容易であるが、降水に伴って ^{222}Rn 娘核種が地表に降下し、線量率が上昇している期間にもしも人工放射線影響が追加された場合には判断がかなり難しくなる。我が国は降水が多いためかなり頻繁に線量率が上昇し、全10分値データの最大数%程度が目安レベル(平常時平均値+3

表1 最近の主な指標線量率変動事例 (2016-2020)

時期	発生日	MS場所	設定値 (nGy/h)	観測値 (nGy/h)	改善後 (nGy/h)	改善方法
H28.3四半期 (2016年)	10/25	女川	2	1.9		
		小屋取	2	2.3		
H30.1四半期 (2018年)	4/14-15	女川	2.7	2		
		小屋取	3.8	2		
		寄磯	3.5	3		
	5/17-19	女川	2.7	2		
		小屋取	3.8	2		
		寄磯	3.5	3		
H30.2四半期 (2018年)	8/5	女川	2.7	-5.5	2.7	降水時・5/21 の偏回帰係数 使用
		小屋取	3.8	8.5	2.5	
		寄磯	3.5	2		
H30.3四半期 (2018年)	12/6	女川	2.7	2.5		降水時・9/23 の偏回帰係数 使用
		小屋取	3.8	2.5		
		寄磯	3.5	3		
		塚浜	3.3	3.3		
		寺間	3.2	3.7	3.0	
		江島	2.6	4.9	2.5	
		前網	4.0	3.9		
H30.4四半期 (2019年)	1/26	小屋取	3.8	3.5		
		寄磯	3.5	3		
R1.3四半期 (2019年)	10/25	女川	2.7	2		
		飯子浜	4.0	1.5		
		小屋取	3.8	2		
		寄磯	3.5	2.5		
		鮫浦	4.0	3		
		谷川	4.0	4.2		
		荻浜	4.0	1		
R1.4四半期 (2020年)	2/23	女川	2.7	2.5		
		飯子浜	4.0	2.8		
		小屋取	3.8	2		
		寄磯	3.5	1.5		
		鮫浦	4.0	3.3		
		谷川	4.0	2.5		
		荻浜	4.0	1.7		

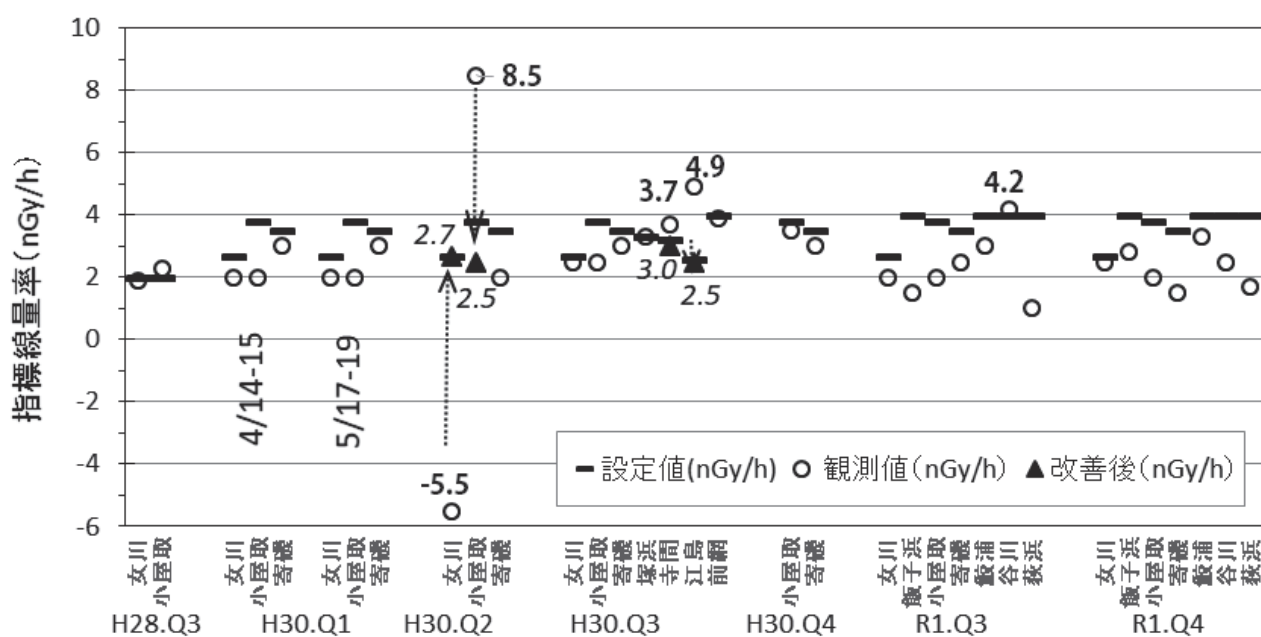


図1 指標線量率の設定値、観測値及び改善後*の値 (2016-2020)

* 改善方法：降水時を含む偏回帰係数使用

σ : 「調査レベル」¹³⁾と称している) を超え、特に大陸性気団の影響を受けやすい冬季には時々大幅な上昇も観測される。その点、本県で利用している指標線量率評価システムでは降水影響が自動的に差し引かれ、人工増分(通常はゼロ付近)のみが表示されるので非常にわかりやすい。

2 22行×22列RM法指標線量率における異常値の出現と当面の対策

重回帰処理をする過去データの期間内に降水が少なかった場合、その後の天然核種寄与が大きい降水時にはうまくBG線量率を差し引きできず、人工寄与がないにもかかわらず稀に指標線量率が数nGy/h程度増加、あるいは逆に減少する場合がある¹⁴⁾。本システムにもこのような限界があるため、実際の運用としてはスペクトル観察や気象条件、放出源情報などと合わせて総合的に判断している¹⁵⁾。その対策ができて改良できるならば指標線量率算出システムは更に使いやすいものとなるが、現時点ではまだ検討中である。本稿では当システムでうまく処理できなかった場合を例示して整理するとともに、当面の対処法を示す。

表1は公表された会議資料^{16),17)}から作成した最近の指標線量率変動事例である(図から読み取り)。指標線量率は稀に上限設定値¹³⁾を超過する。超過は、過去データに降水が少ないか、または降水中ラドン娘核種濃度が少なかった場合に起きやすいが、重回帰する過去データとして別の期間の降水時データを含めてやり直すと概ね改善される。

図1は表1をグラフ化したものである。特に平成30(2018)年第2四半期の8月5日に大幅に設定値を超えていた値が改善されている。将来は後述するスペクトル解析・処理法や測定方法の見直しなどによっても根源的な改善の可能性はあるが、当面、重回帰に用いる過去データを適切に選ぶことができれば指標線量率の大幅な超過は避けられると考えられる。木村ら¹⁴⁾は定型的に直近過去27日間のデータから重回帰するのでなく、RM線量率:U系列直線線量率の間の相関係数2乗を指標として、それが0.8以下の場合には新たなRM線量率:U系列線量率間の偏回帰係数(β_1)を採用しない方法を提案した。今後、このような手法の進展が望まれる。

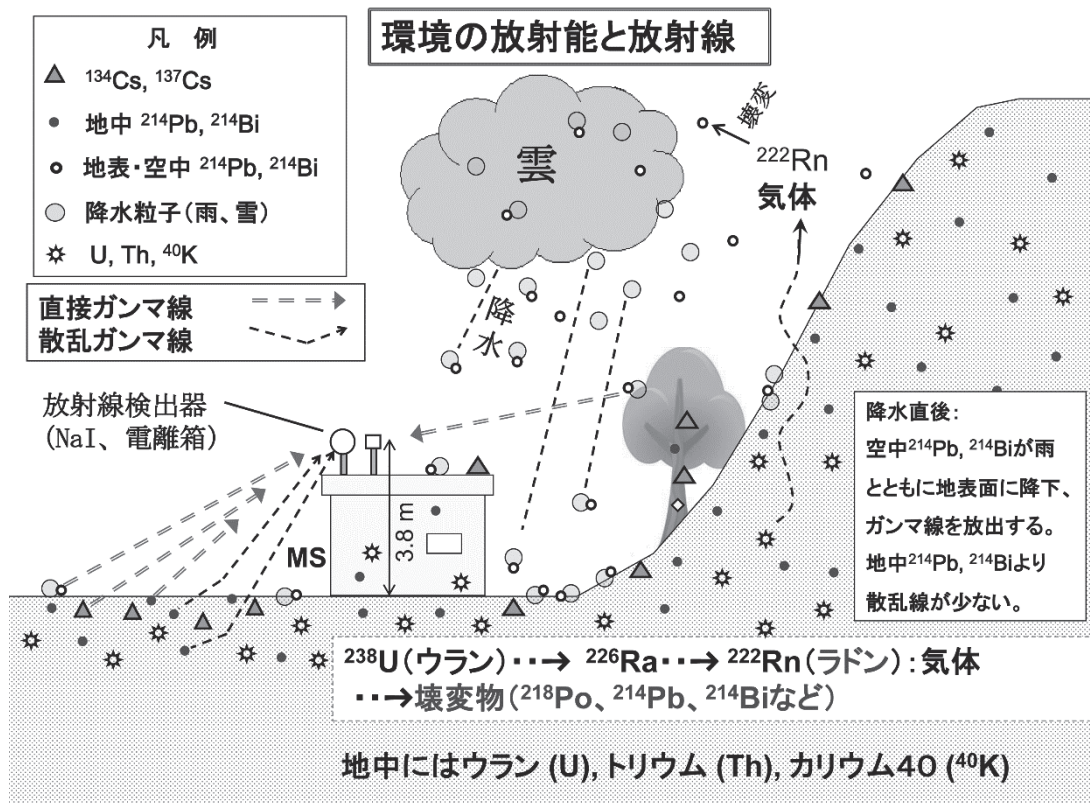


図2 2011年福島第一原子力発電所事故後の放射線環境
MS: モニタリングステーション

3 環境における線源分布と γ 線束密度スペクトル

図2は福島第一原子力発電所事故後の放射性Csも含む放射線環境の模式図である。U系列、Th系列及びK-40（以下、UThKと略すことがある）の天然放射性核種のほか、事故由来の若干の放射性Csも地表付近に存在している。図3は土壌中の放射性核種の分布と γ 線の入射方向及び散乱の様子を模式的に表したものである。モデルを簡素化すれば体積分布と平面分布に分けられる。土壌・岩石に含まれるUThKは体積分布、降水によって大気圏から一時的に降下・分布するRn娘核種（RaB: ^{214}Pb 、RaC: ^{214}Bi ）や原子力事故などによってもたらされる ^{137}Cs などのフォールアウト核種はあまり時間が経たないうちは平面分布とみなすことができる。図4は平坦地形の土壌中にUThKが均一に単位濃度で分布すると仮定した場合の、地上1 mにおける半無限体積線源による各々の核種の線束密度スペクトルを表す（湊¹⁰）によるモンテカルロシミュレーション計算）。図3のように、体積分布では平面分布より散乱線が多く発生するため、相対的に低エネルギー側に散乱線成分が多くなる。また、天然核種が任意の濃度で混合された場合にはこれらが加算された形となる。 ^{214}Pb と ^{214}Bi が多く含まれる降水直後にはそれらが平面分布するため、晴天時に比べてスペクトル全体では相対的に散乱線が少なくなると予想される。

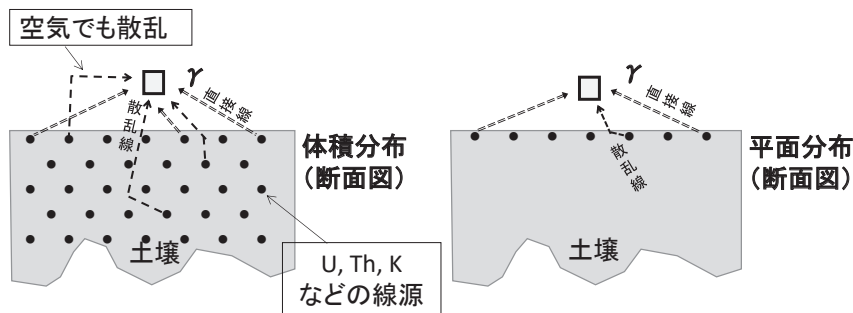


図3 土壌中 γ 線放出核種の分布と γ 線の入射方向及び散乱の模式図

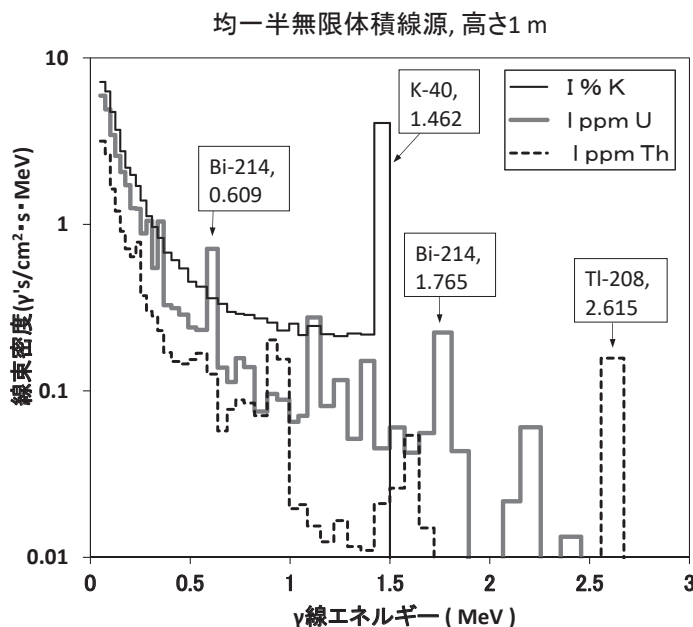


図4 単位濃度の天然放射性核種を含む半無限体積線源による線束密度スペクトル（地上1 m）。線束密度は湊によるモンテカルロシミュレーション結果（著者による掲載許可済み）^{10),18)}。

4 高分解能49行×49列RM法による線束密度とガンマ線平均エネルギー

指標線量率の異常値出現には降水中に含まれるRn娘核種の量や検出器への γ 線入射エネルギーが関係していると推察できることから、以下に高分解能RM法によるスペクトル解析結果を述べる。

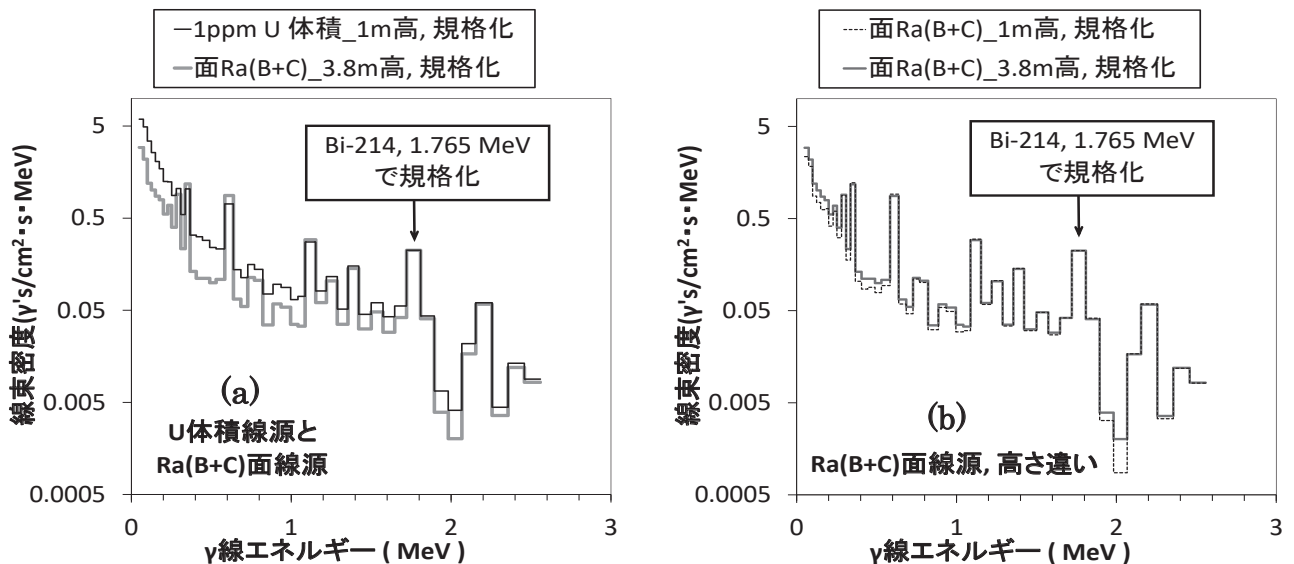


図5 (a) U体積線源1 m高とRa(B+C)面線源3.8 m高の比較及び(b)Ra(B+C)面線源の高さ違いの比較. 3.8 mはMS屋上の検出器までの高さ. ^{214}Bi 1.765 MeV線束密度が同じになるように規格化後. 線束密度は湊によるモンテカルロシミュレーション計算結果¹⁸⁾.

湊が開発した49行×49列RM法を用いると自然放射性核種や放射性Csの個別の分離評価が容易になる。元の γ 線スペクトルから線束密度スペクトルを求めれば、各々のエネルギー帯ごとの線量率や γ 線エネルギー、全エネルギー帯の平均エネルギーなどを計算できる。図5は湊¹⁸⁾による体積及び面分布線源に対するモンテカルロ理論計算結果を示す。低エネルギー側の散乱線束密度を比較するため、散乱線が少ない ^{214}Bi の1.76 MeV γ 線束密度で規格化してある。図5(a)から、U体積線源の地上1 mとRa(B+C)面線源の地上3.8 mを比べると、低エネルギー側線束密度は体積線源より面線源の方が低い。これは図3からの予測通りである。また、図5(b)は同じRa(B+C)面線源であっても標準高さ1 mよりMS屋上の3.8 m (図2のNaI(Tl)検出器高さ)の方がやや線束密度が高く、散乱線が多いことがわかる。ただし、これらの計算にMS局舎による影響は含まれていない。

図6は降水時に実際に観測された線束スペクトルを示し、指標線量率に大きな変動が観測された日(2018/8/5)の女川における(a)降雨時と晴天時及び(b)それらの差分(降雨時-晴天時)の線束密度を比較した結果である。ただし、これらの図では1.764keVの γ 線束密度の規格化をしていない。同じ日であっても、晴天時に比べて降雨時には著しく ^{214}Bi などの線束密度が高いことがわかる。差分(降雨時-晴天時)は地表に平面的に分布する雨のみのスペクトルであり、実際には雨に含まれていたRa(B+C)すなわち $^{214}\text{Pb}+^{214}\text{Bi}$ の線束スペクトルを表す。ただし、平面的といっても周辺の地形が必ずしも平坦ではないため、地形や周囲の樹木などの影響を受けたスペクトルである。また、差分スペクトルでは降雨の影響をあまり受けない ^{40}K とTh系列の ^{208}Tl の線束密度は差引後にほとんど残っていないため表示されていない。

図7はこのようにして得られた雨のみの線束スペクトルを湊¹⁸⁾によるシミュレーション計算結果と比較したものである。比較の目的は低エネルギー散乱線の程度を比較することにあるので、1.764 MeVの γ 線束密度で規格化後の0-1 MeVまでの範囲を示す。図7(a)は体積線源(1 m高)と面線源(3.8 m高)の比較を、また図7(b)は2018/8/5の雨のみの差分スペクトルを示す。この雨のみのスペクトルの形状は体積線源よりは面線源の方に極めてよく似ている。ほかの地点や日時においても同様に比較したところほぼ同じ傾向を示した。以上のことから、降水時には晴天時に比べると低エネルギー側の散乱線が相対的に少なく、そのため γ 線スペクトルは全体的に高エネルギー側に変化

していることがわかる。

指標線量率算出に使っている RM モデルでは ^{214}Pb と ^{214}Bi の体積分布が仮定されているため、降水時には RM 処理の際に自然核種寄与の見積もりに違いが出ているはずである。ただし、本県で採用している重回帰分析法では降水時の RM 法の結果も含めて処理しているため、前述のように通常は自然核種寄与見積もりがほぼうまくいっている。重回帰に用いる過去 BG データに降水時データが少ない場合、稀にその寄与評価がうまくいかず、指標線量率に大きめの食い違いが生じるものと考えられる。

線束密度スペクトルから γ 線の平均エネルギーを計算することができるが、図 8 と図 9 はその結果を示す。図 8 は 2021 年 11 月 22 日に指標線量率がプラスに変動した際の、降水量と平均エネ

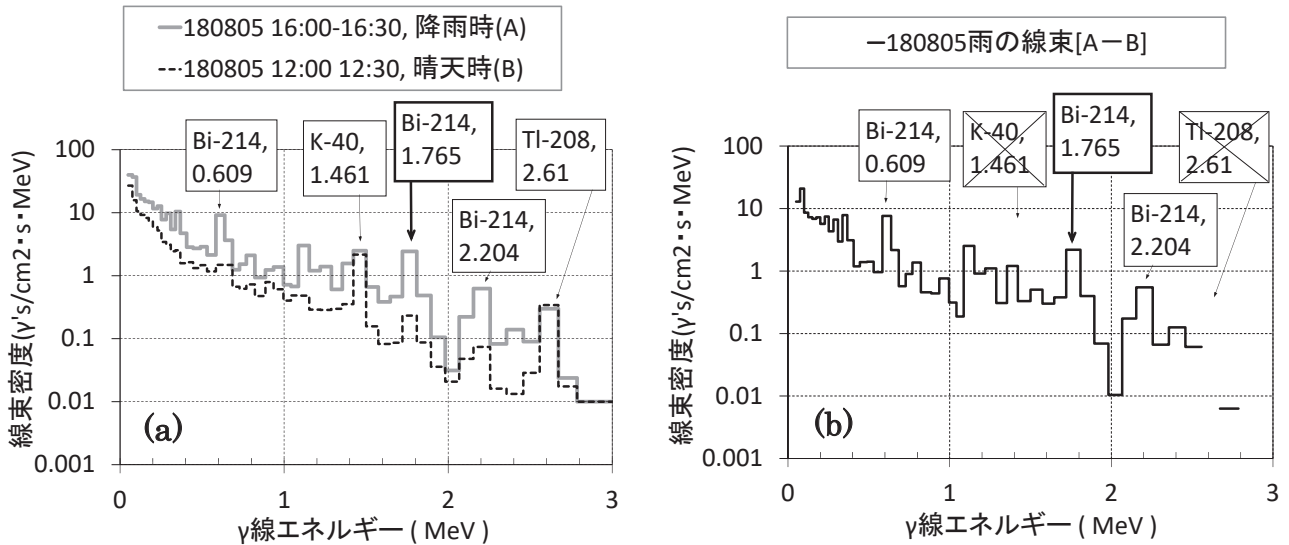


図 6 指標線量率に大きな変動が観測された日 (2018/8/5) の女川における (a) 降水時と晴天時及び (b) それらの差である雨の線束スペクトルの比較。

^{214}Bi の 1.765 MeV 線束による規格化は行っていない。

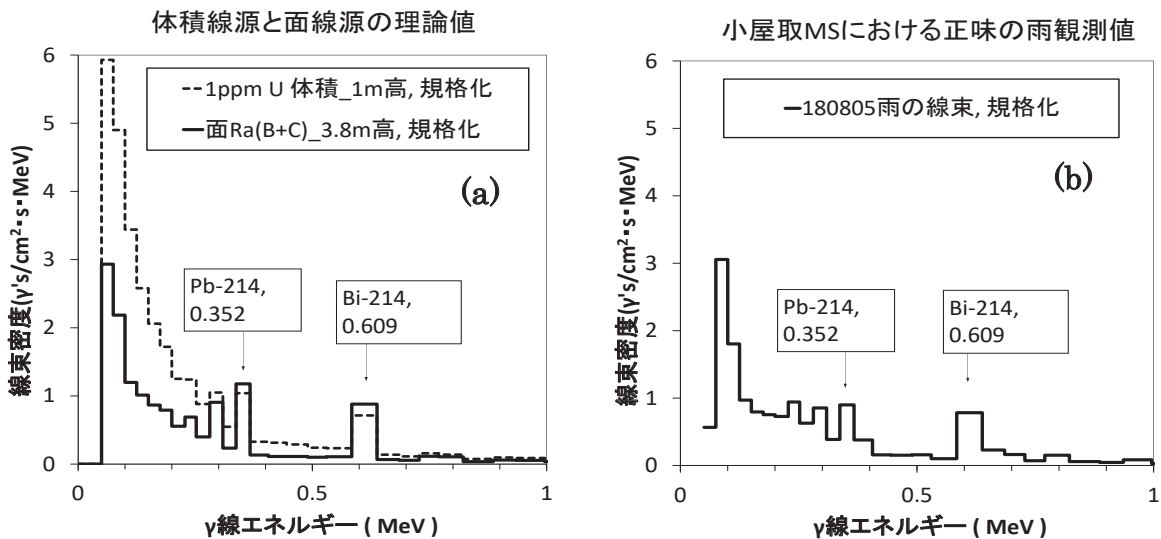


図 7 (a) 体積線源と面線源の線束密度理論値と (b) 小屋取 MS において 2018/8/5 に観測された実際の雨の線束密度 (雨天時と晴天時の差) の比較。これらの 3 つのスペクトルにおいて ^{214}Bi の 1.765 MeV 線束密度が同じになるように規格化後。理論値は湊によるモンテカルロシミュレーションの結果¹⁸⁾。

ルギーの比較結果である。本来は降水があっても指標線量率算出がうまくいってればゼロ付近を示すはずであるが、最大で約 3 nGy/h 程度上昇しており、その際に平均エネルギーも大体似た変動傾向を示している。ただし、この例では統計学的理由と過去経験から設定された指標線量率上限設定値²⁰⁾ 3.8 (表 1) 未満となっており、日常監視上は支障がなかった。図 9 は晴天時や雨天時の異なる天候及び異なる場所における線束スペクトルから計算した平均エネルギーを比較した結果である。例えば女川 MS と小屋取 MS における全エネルギー (0-3 MeV) では晴天時に約 0.4 MeV/線束であった値が、雨天時には約 0.5 MeV/線束くらいまで上昇した。

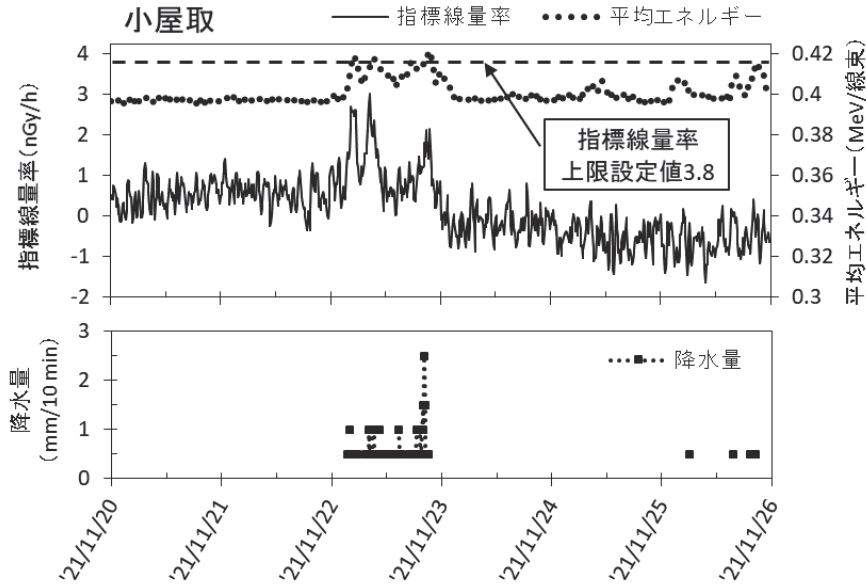


図 8 線束スペクトルから計算した平均エネルギー、指標線量率及び降水量の比較

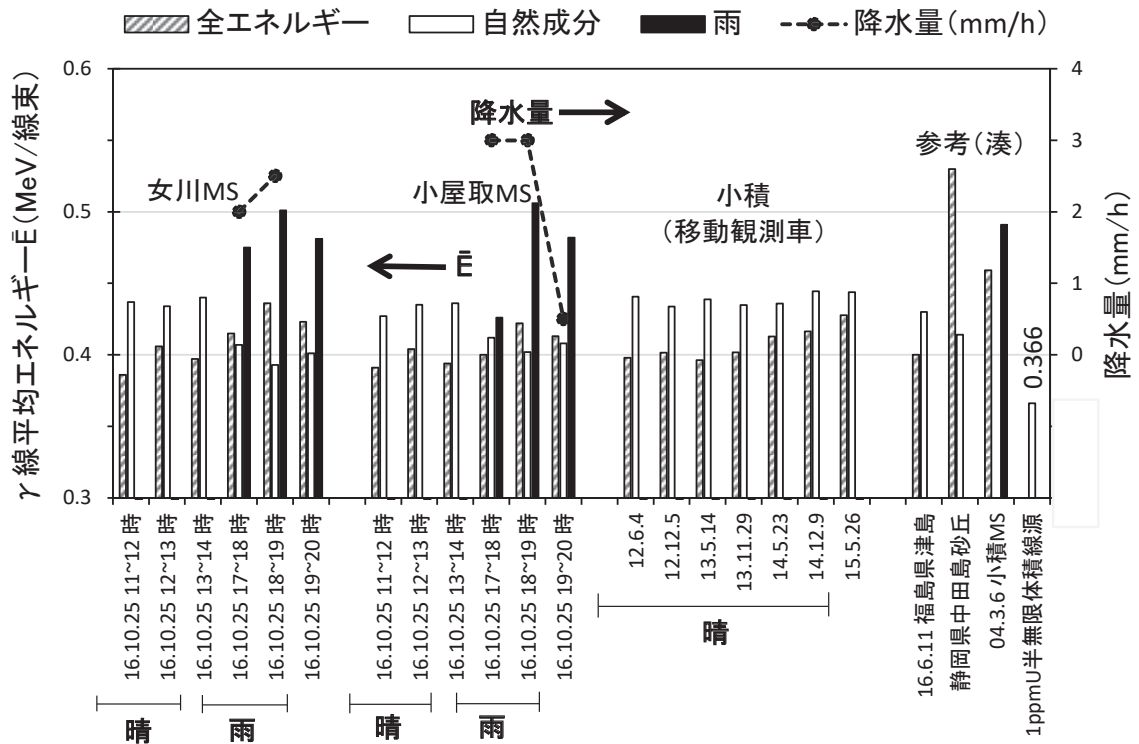


図 9 線束スペクトルから計算した平均エネルギーの比較
参考：放地研 湊¹⁹⁾ 計算

5 指標線量率による評価の改善に有効と考えられるその他の手法

線質（エネルギー）が異なる降水時と晴天時のスペクトルが混合された一般の場合、モデルで完全に計算することは不可能と考えられ、前述のように重回帰のやり方を工夫するか、あるいは高分解能の測定や解析などの別な方法を考える必要がある。

RM 法において、三菱電機²¹⁾は 300 行×300 列の高分解能応答関数法を開発して放射能分析用 NaI (Tl) 装置のデータ処理に適用し、装置も市販されている。その後、行列の分解能は更に高くなっているとの情報もある。ただし、環境放射線解析用ソフトウェアや装置はまだ市販されていないようである。ほかに、Ikuta ら²²⁾のように野外の検出器としてエネルギー分解能に優れた Ge 半導体検出器を用いる試みもあるが、非常に高価であるため多数の MS に設置するとなると予算的に困難となる。比較的安価かつエネルギー分解能のよい SrI₂²³⁾、LaBr₃ 及び CeBr₃ などのシンチレータ²⁴⁾を用いて、適切なソフトウェアを開発すればより正確な人工増分評価ができる可能性があるが、今後の課題である。

6 まとめ

22 行×22 列レスポンスマトリクス (RM) 法を用いた NaI (Tl) スペクトル解析による空間 γ 線量率人工増分 (指標線量率) 評価方法によって、殆どの場合には降水に含まれる ²²²Rn 娘核種 (²¹⁴Pb と ²¹⁴Bi) の影響を除去できるが、稀にうまくいかない場合があった。その原因は、過去データを用いた重回帰法による天然放射性核種寄与推定の際、気象条件によっては適切なデータが不足することが考えられたが、過去データの取り直しによって改善できた。今後はこのような手法を更に検討し、オンライン処理によっても適切な過去データが選択され、異常な指標線量率が出現しないような方策が望まれる。高分解能 49 行×49 列 RM 法によって求めた実際の雨の線束密度スペクトルをモンテカルロ法による理論値と比較した結果、降水時には ²²²Rn 娘核種が平面的に分布することによって相対的に散乱線が少なくなり、全体としては γ 線の平均エネルギーが上昇することがわかった。今後、更にこのような高分解能 RM を活用することにより、より有効な環境放射線監視システムが構築されることが期待される。

謝 辞

放射線地学研究所の湊 進博士には 49 行×49 列レスポンスマトリクス法による解析ソフトウェアと種々のデータを提供していただいたほか、貴重なご助言も多数いただきました。特に面分布の Ra (B+C) に基づく線束密度スペクトルを追加計算していただきました。ここに厚く感謝致します。

参考文献

- 1) 中村栄一, 女川原子力発電所周辺環境放射線監視テレメータ・システム, 日本原子力学会誌, 25, 179-185 (1983).
- 2) 菊地秀夫, 環境放射線テレメータシステム, 宮城県原子力センター年報, 1, 1-7 (1982).
- 3) 湊 進, 環境 γ 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).
- 4) Minato, S. & Kawano, M., Evaluation of Exposure due to Terrestrial Gamma-Radiation by Response Matrix Method, J. Nuc. Sci. Tec., 7, 401-406 (1970).
- 5) 今野達矢, 木立 博, 石川陽一, 加賀谷秀樹, レスポンスマトリクス法を活用した人工放射線寄与線量率の測定に関する検討, 宮城県原子力センター年報, 19, 46-52 (2001).
- 6) 宮城県原子力安全対策室, 原子力だよりみやぎ, 85, 平成 15 年 (2003) 4 月号.
<https://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/o-gensiryokudayori-backnumber.html>.

- 7) 黒崎裕人, 霜鳥達夫, 藤巻廣司, 山崎興樹, 指標線量率によるモニタリングポスト近傍に持ち込まれた人工放射線源の検知, 新潟県放射線監視センター年報, 7, 19-22 (2009).
- 8) 佐藤健一, 菊地秀夫, 中村栄一, チェルノブイル原子力発電所事故の環境ガンマ線ダイナミックスpekトルにおよぼす影響, 宮城県原子力センター年報, 5, 39-45 (1986).
- 9) 佐藤健一, 加茂泰彦, 加賀谷秀樹, 環境放射線監視システムによる人工放射線の検出例, 宮城県原子力センター年報, 9, 67-68 (1980).
- 10) 湊 進, SCS-0108, 環境ガンマ線解析用 49×49 応答行列の紹介 (2015), 放射線地学研究所 (放地研) ホームページ, 放地研基本文献, 応答行列 (49×49).
URL: <http://www1.s3.starcat.ne.jp/reslnote/> .
- 11) 湊 進, SCS0073, 60×60 行列応答行列法による福島原発放射能の評価 (2011).
URL: 文献 10) に同じ.
- 12) Minato, S., Application of a 60 × 60 Response Matrix for a NaI(Tl) Scintillator to Fallout from the Fukushima Reactor Accident, Radiation Emergency Medicine (REM), Hirosaki Univ. 1, 108-112 (2012).
- 13) 第 160 回女川原子力発電所環境調査測定技術会, 資料 1-1, 令和 3 年度第 4 四半期, p. 4,
<https://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/o-kyogikaigijyutukaikentokai.html>,
- 14) 木村昭裕, 石幡 茜, 木村幸由, 伊藤節男, 高橋正人, 安藤孝志, 人工放射性核種の影響がない状況下での指標線量率の特異な変動事例について, 宮城県環境放射線監視センター年報, 5, 23-26 (2019).
- 15) 第 160 回女川原子力発電所環境調査測定技術会, 資料 1-2, 令和 3 年度第 4 四半期, 資料, p. 34.
- 16) 宮城県, 協議会・技術会・監視検討会会議資料・議事録. URL: 文献 13) に同じ.
- 17) 女川原子力発電所周辺の環境放射能及び温排水調査結果.
<https://www.pref.miyagi.jp/soshiki/gentai/kankyo-onhaisui.html>
- 18) 湊 進, 放地研ホームページ, 放地研データ集, 放射線地学関連データ. 土壌一様体積 γ (β) 線場, 降水平面 γ 線場. URL: 文献 10) に同じ.
- 19) 湊 進, 私信.
- 20) 宮城県, 令和 3 年度環境放射能監視検討会 (令和 4 年 2 月 18 日開催), 資料 2, 指標線量率の設定値について, URL: 文献 13) に同じ.
- 21) 西沢博志, 渡辺幸信, アンフォールディング法を用いた NaI シンチレーターによる放射能分析装置, Isotope News, 741, 40-44 (2016).
- 22) Ikuta, M., Ezumi, S., Suzuki, T., Enomoto, M., Long-Term Continuous In-Situ Measurement of Gamma Rays Using Ge Semiconductor Detector, Jpn. J. Health Phys (保健物理), 45, 177-185 (2010).
- 23) 株式会社アドフューテック, ホームページ, SrI₂:Eu ヨウ化ストロンチウムシンチレータ.
https://adfutec.com/pdf/Catalog_130701_SrI2SpM.pdf
- 24) Kessler, P., Behnke, B., Dabrowski, R., Dombrowski, H., Röttger, A., Neumaier, S., Novel spectrometers for environmental dose rate monitoring, J. Environ. Radioactivity, 187, 115-121 (2018).

再建したモニタリングステーションの 指標線量率設定値の変更について

木村幸由、高橋稜、面川和信¹、中村朋之²、佐藤健一³

本県では2019年度から再建したモニタリングステーション4局(飯子浜局、鮫浦局、谷川局、荻浜局)(以下「再建 MS」という。)での測定を開始しているが、再建 MS における指標線量率については、データの蓄積がなかったため、暫定的に4.0nGy/hを設定値としていた。今回、再建 MS において蓄積した2年以上のデータをもとに、指標線量率の設定値を見直した。

I はじめに

本県では、女川原子力発電所からの予期せぬ放射性物質の放出の有無を監視するため、NaI(Tl)シンチレーション検出器により測定されたガンマ線スペクトルを解析することにより指標線量率を算出している。指標線量率とは、図1に示すように空間ガンマ線スペクトル(以下「スペクトル」という。)をレスポンスマトリクス法¹⁾で処理して得られる全線量率(RM線量率)から天然放射性核種及び東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故後に沈着した放射性セシウム寄与分の線量率(BG線量率)を差し引いて得られる値で、人工放射性核種寄与分のガンマ線の影響を示す指標である^{2、3)}。本県においては、指標線量率の設定値を超過した場合には、直ちに担当者の携帯電話へ自動通報され、スペクトルの確認を行うなどの詳細調査を実施することになっている。

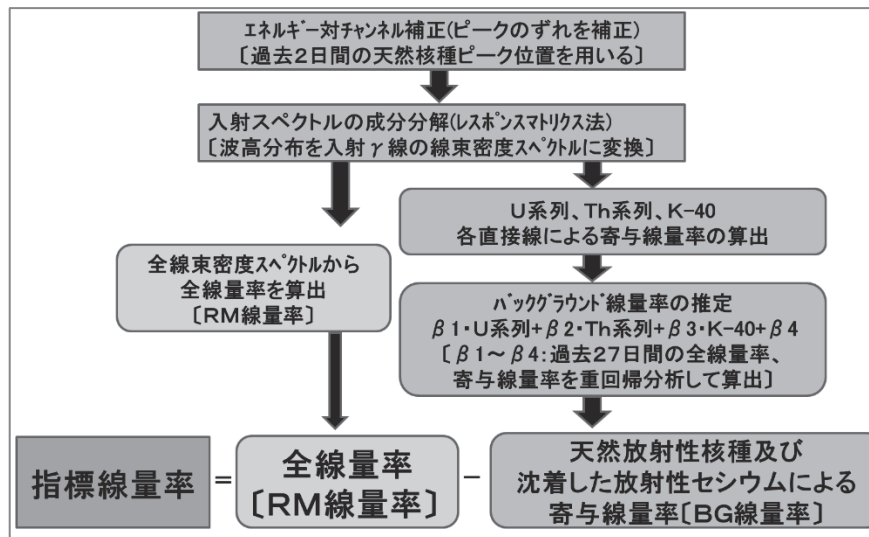


図1 指標線量率の算出方法

- 1 現 宮城県保健福祉部仙台保健福祉事務所 (塩釜保健所)
- 2 現 宮城県環境生活部循環型社会推進課
- 3 現 宮城県保健福祉部仙南保健福祉事務所 (仙南保健所)

本県では、従来、女川原子力発電所周辺のモニタリングステーション 11 局（県設置 7 局、東北電力株式会社設置 4 局）において、大地や局舎建屋からの自然放射線の影響を少なくし、上方の人工放射性物質に対する感度を高めるため^{4、5}、NaI(Tl)シンチレーション検出器の下方立体角 2π を鉛で遮へいしていた。このときの指標線量率の設定値は、人工放射線照射試験を実施した結果を踏まえ 2.0 nGy/h に設定していた。

しかし、福島第一原子力発電所事故後は、同事故により地面に沈着した Cs-134、Cs-137 の寄与を含めた全線量率の評価が困難となったため、被災しなかった県設置の女川局、小屋取局及び寄磯局並びに東北電力株式会社設置 4 局について、2016 年 6 月に鉛遮へいを取り外した。その際、指標線量率の標準偏差が鉛遮へいを取り外す前の約 2 倍となったことを受けて、指標線量率設定値も 2 倍とし、暫定的に指標線量率の設定値を 4.0 nGy/h としていた⁶。

それ以降の測定により、図 2～4 の 3 局の指標線量率の頻度分布図（2021 年 4 月 1 日～2022 年 1 月 31 日）で示すとおり、指標線量率はモニタリングステーションによって頻度分布が異なることが判明した。そこで 2018 年度からは、指標線量率の設定値は局別に設定することとした。指標線量率の設定値の算出方法は、NaI(Tl)シンチレーション検出器の下方鉛遮へいを取り外す前の設定値 2.0nGy/h が、各局の指標線量率の標準偏差の平均値 0.27nGy/h の約 7.4 倍であったことを踏まえ、表 1 のとおり局別に指標線量率の標準偏差の 7.4 倍を算出し、その値を新たな設定値とした⁶。

ここまでの指標線量率の設定値の推移を表 2 に示す。

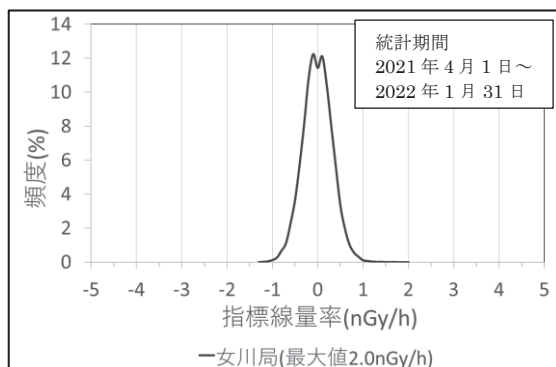


図 2 指標線量率の頻度分布図(女川局)

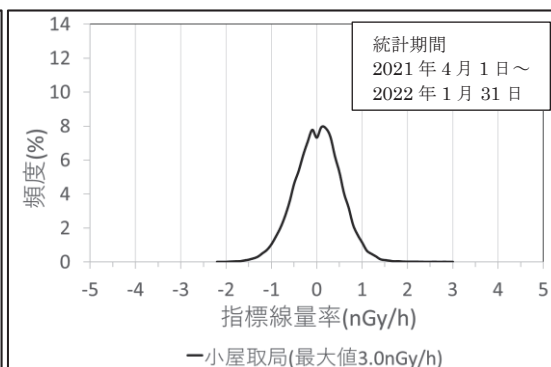


図 3 指標線量率の頻度分布図(小屋取局)

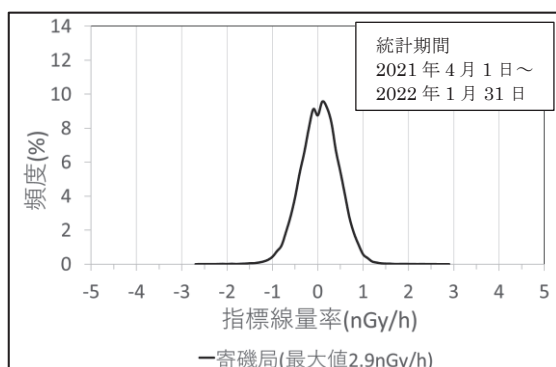


図 4 指標線量率の頻度分布図(寄磯局)

表1 鉛遮へいを取り外した後の指標線量率の標準偏差と指標線量率の設定値

	県設置			東北電力株式会社設置			
	女川	小屋取	寄磯	塚浜	寺間	江島	前網
標準偏差 (2017年度)	0.36	0.52	0.47	0.45	0.43	0.35	0.71
	↓×7.4						
設定値 (2018年度以降)	2.7	3.8	3.5	3.3	3.2	2.6	5.3 4.0※

※ 前網局においては、暫定設定値4.0nGy/hを継続した。 単位:nGy/h

表2 指標線量率の設定値の推移

設定期間	指標線量率の設定値
2001年度～2015年度	2.0 nGy/h
2016年度～2017年度	4.0 nGy/h
2018年度以降	局別に設定。指標線量率の標準偏差の7.4倍

一方で、本県では2019年度から再建MSでの測定を開始しているが、当該局における指標線量率については、過去のデータの蓄積がなかったため、2019年度からは暫定的に4.0nGy/hを設定値としていた⁷⁾。今回、再建MSにおいて蓄積した2年以上のデータをもとに、指標線量率の設定値を見直した。

II 再建MSの指標線量率設定値の算出

まず、再建MSにおける指標線量率の標準偏差と設定値超過数をとりまとめた。その結果を表3に示す。設定値を超過した時は、いずれも降水を伴っており、スペクトルに異常は認められなかった。

表3 再建MSにおける指標線量率の標準偏差と設定値超過数

宮城県		飯子浜	鮫浦	谷川	荻浜
指標線量率設定値 (nGy/h)		4.0			
2019年度	標準偏差 (nGy/h)	0.41	0.49	0.52	0.56
	設定値超過数 (回)	0	0	1	0
2020年度	標準偏差 (nGy/h)	0.45	0.50	0.53	0.54
	設定値超過数 (回)	0	4	0	8

次に、再建 MS の新たな指標線量率の設定値を試算した。2018 年度からの指標線量率設定値を算出したときと同様に、直近 1 年間の標準偏差を 7.4 倍した。試算結果は表 4 のとおりである。いずれも現在の設定値 4.0nGy/h と同じか少し下回る値となった。

表 4 再建 MS の新たな指標線量率の設定値

宮城県	飯子浜	鮫浦	谷川	荻浜
2020年度標準偏差 (nGy/h)	0.45	0.50	0.53	0.54
	× 7.4			
計算値	3.3	3.7	3.9	4.0
現在の設定値	4.0	4.0	4.0	4.0
数値の差分 (計算値－現在の設定値)	-0.7	-0.3	-0.1	0

さらに、2019 年度と 2020 年度における設定値の超過数を試算した。試算結果は表 5 及び表 6 のとおりである。2020 年度については鮫浦局で設定値の超過数が 4 から 7 に増えた。

表 5 新たな指標線量率の設定値の超過数 (2019 年度)

宮城県	飯子浜	鮫浦	谷川	荻浜
暫定の設定値	4.0	4.0	4.0	4.0
超過数	0	0	1	0
	↓			
試算した設定値	3.3	3.7	3.9	4.0
超過数	0	0	1	0

表 6 新たな指標線量率の設定値の超過数 (2020 年度)

宮城県	飯子浜	鮫浦	谷川	荻浜
暫定の設定値	4.0	4.0	4.0	4.0
超過数	0	4	0	8
	↓			
試算した設定値	3.3	3.7	3.9	4.0
超過数	0	7	0	8

Ⅲ 結果

今回、再建 MS における新たな指標線量率の設定値を検討した。その結果を踏まえ、2022 年度からは表 7 のとおりの設定値で監視を行うことと定めた。

なお、東北電力株式会社が設置したモニタリングステーションにおける指標線量率の設定値は、従前のおり表 8 のとおりとした。

表 7 2022 年度以降の指標線量率の設定値

宮城県	女川	飯子浜	小屋取	寄磯	鮫浦	谷川	荻浜
変更前 (nGy/h)	2.7	4.0	3.8	3.5	4.0	4.0	4.0
↓							
変更後 (nGy/h)	2.7	<u>3.3</u>	3.8	3.5	<u>3.7</u>	<u>3.9</u>	<u>4.0</u>

表 8 東北電力株式会社が設置したモニタリングステーションにおける
指標線量率の設定値

東北電力	塚浜	寺間	江島	前網
設定値 (nGy/h)	3.3	3.2	2.6	4.0

今後も指標線量率算出方法の改良に向けた検討を行い、その検討結果により、適切な監視に繋げていく。

Ⅳ 参考文献

- 1) 湊 進、名古屋工業技術試験所報告、27、p.384-397(1978)
- 2) 今野達矢ほか、宮城県原子力センター年報、第 19 巻、p.46-52(2001)
- 3) 木立博ほか、宮城県原子力センター年報、第 20 巻、p.18-32(2002)
- 4) 文部科学省、放射能測定法シリーズ 17
- 5) 森内茂、スペクトル加重関数方式による環境 γ 線線量測定器に関する研究、JAERI-M 7066、1977
- 6) 石幡茜ほか、宮城県環境放射線監視センター年報、第 2 巻、p.20-26(2016)
- 7) 木村幸由ほか、宮城県環境放射線監視センター年報、第 3 巻、p.15-19(2017)

空間ガンマ線量率の調査レベルの設定について

木村幸由、高橋稜、面川和信¹、中村朋之²、佐藤健一³

当センターでは、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故（以下「福島第一原発事故」という。）の影響により空間ガンマ線量率のバックグラウンドレベルが上昇したことを受け、調査レベルの設定方法を暫定的に変更し、女川原子力発電所からの予期せぬ放射性物質の放出の有無を監視してきたところである。2015年度の調査レベル設定方法見直しから5年が経過したことから、改めて設定方法について検討した。

I はじめに

平常時モニタリングにおいて、平常の変動幅と測定値を比較することは、多数の測定データをふるい分け、原子力施設由来の予期せぬ放射性物質を検出するために有効であり、有意な測定値が得られた場合の平常の変動幅は、「過去の測定値の平均値±標準偏差の3倍」とされている^{1、2}。本県では福島第一原発事故前まで、この概念をもとに「前2年度平均値+前2年度標準偏差の3倍」を調査レベルと設定することにより、女川原子力発電所からの予期せぬ放射性物質の放出の有無の監視ができると考えてきた。

しかし、福島第一原発事故で放出された放射性セシウム(Cs-137及びCs-134(以下「Cs」という。))が影響して空間ガンマ線量率のバックグラウンドが上昇し、その後物理的半減期やウェザリングによって減衰しているため、従来の調査レベル設定方法では、適切な監視ができない状況となった。そのため、表1のように調査レベルの設定方法を適宜見直してきた。直近では、2015年度に調査レベルの設定方法を見直し、2016年度からは「前年度平均値+前年度標準偏差の3倍」を調査レベルとして設定している³。それから5年が経過し、図1～3で示すように線量率の減衰は続いているものの、減衰の程度がさらに緩やかになってきた。

表1 調査レベルの設定方法の推移

	設定頻度	設定方法
～2010年度	年度毎	前2年度平均値+前2年度標準偏差の3倍
2011、2012年度	月毎	前月平均値+2008、2009年度標準偏差の2倍
2013、2014年度	四半期毎	前四半期平均値+前四半期標準偏差の2倍
2015年度	四半期毎	前2四半期平均値+前2四半期標準偏差の3倍
2016年度	年度毎	前年度平均値+前年度標準偏差の3倍

1 現 宮城県保健福祉部仙台保健福祉事務所（塩釜保健所）

2 現 宮城県環境生活部循環型社会推進課

3 現 宮城県保健福祉部仙南保健福祉事務所（仙南保健所）

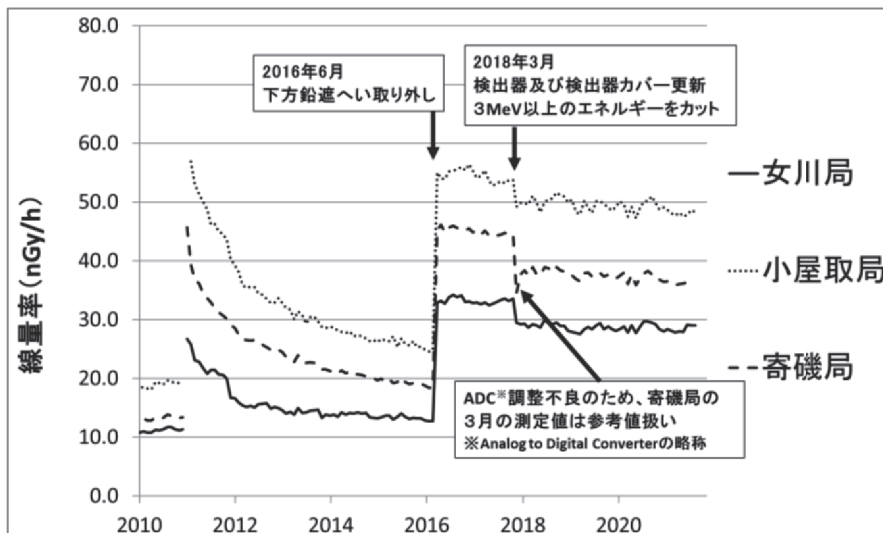


図1 NaI 検出器による空間ガンマ線量率（月間最頻値）の推移

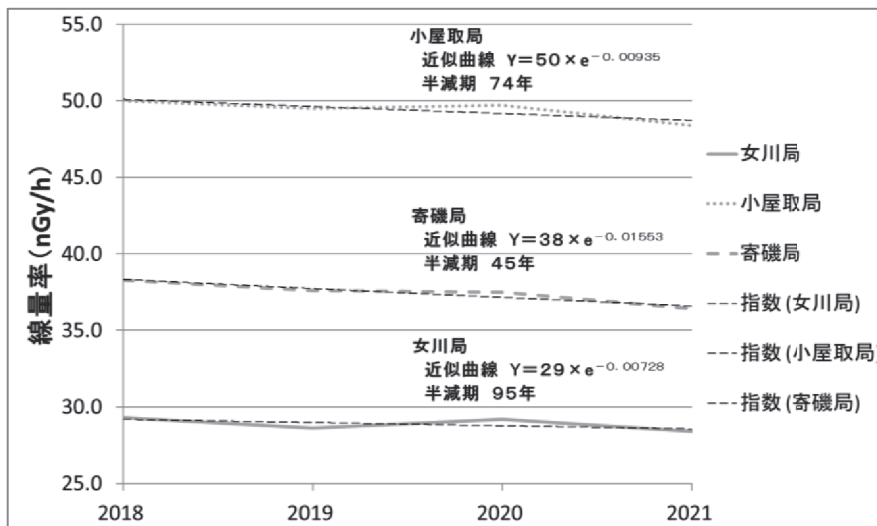


図2 NaI 検出器による空間ガンマ線量率（年間最頻値）の推移と見かけ上の半減期

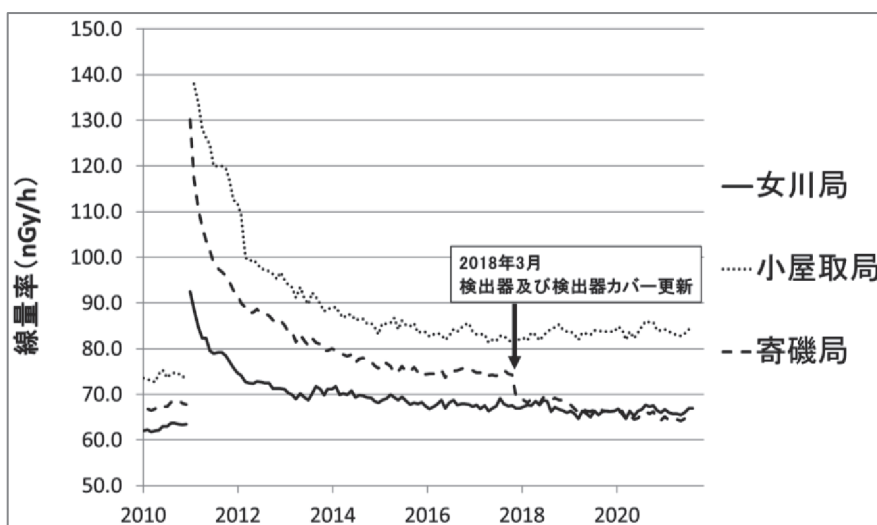


図3 電離箱検出器による空間ガンマ線量率（月間最頻値）の推移

参考に、図4と表2に放射線地学研究所の湊がCs寄与評価用に開発した49行×49列応答行列⁴⁾を用いたスペクトル解析ソフトにより、2021年10月から12月のスペクトルを解析し、空間ガンマ線量率における各放射性核種の寄与線量率を計算した結果を示す。図4と表2を見ると分かるように、各局において未だCsの寄与が認められる。このことから、図1～3に示したようなCsに起因する空間ガンマ線量率の減衰は今後も続くと思われる。このことを踏まえた上で、今回調査レベル設定方法の見直しを行った。

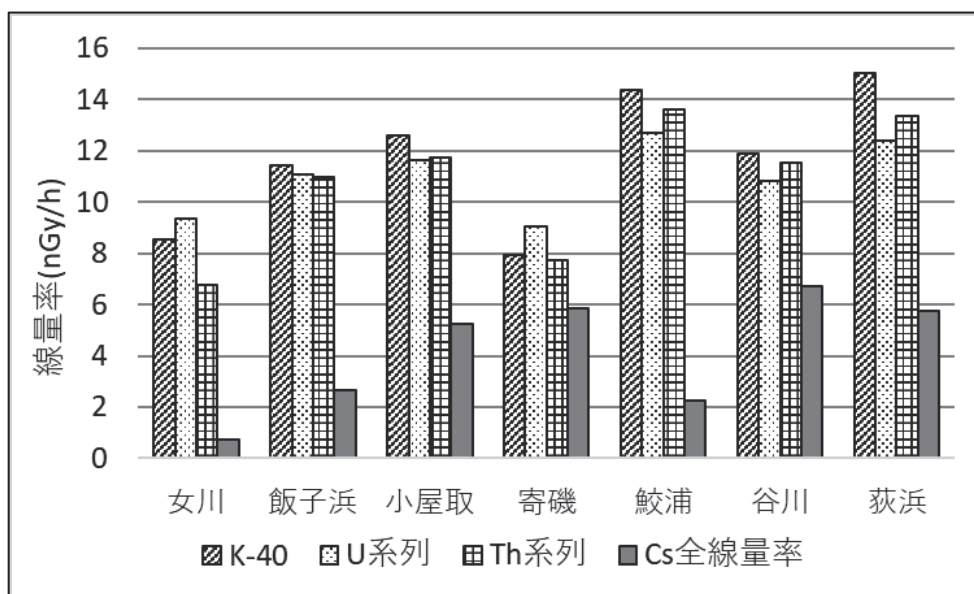


図4 各放射性核種の寄与線量率(2021年10月から12月までの平均値)

表2 空間ガンマ線量率に対するCs寄与率(2021年10月から12月までの平均値)

	女川	飯子浜	小屋取	寄磯	鮫浦	谷川	荻浜
Cs寄与率(%)	2.9	7.3	12.7	19.2	5.3	16.4	12.4

II 調査レベルの設定方法の検討について

まず、空間ガンマ線量率の調査レベル及び超過割合について、現在の算出方法である「前年度平均値+前年度標準偏差の3倍」と、福島第一原子力発電所事故前の「前2年度平均値+前2年度標準偏差の3倍」を試算し、比較することとした。検討に用いたデータの期間は表3～4のとおりである。超過割合は、試算期間中の正常値数に対する調査レベルの超過数の割合を集計したものである。

なお、検討にあたっては2018年度からのデータが必要であるため、データがそろっている女川局、小屋取局及び寄磯局を試算対象とし、データがそろっていない飯子浜局、鮫浦局、谷川局及び荻浜局は試算対象外とした。

表3 2020年度の調査レベル超過数の試算に用いたデータ

2020年度	前年度平均値+前年度標準偏差の3倍	前2年度平均値+前2年度標準偏差の3倍
調査レベル設定値の試算	2019年4月～2020年3月	2018年4月～2020年3月
	↓	
調査レベル超過数の試算	2020年4月～2021年3月	

表4 2021年度（4月～12月）の調査レベル超過数の試算に用いたデータ

2021年度(4月～12月)	前年度平均値+前年度標準偏差の3倍	前2年度平均値+前2年度標準偏差の3倍
調査レベル設定値の試算	2020年4月～2021年3月	2019年4月～2021年3月
	↓	
調査レベル超過数の試算	2021年4月～2020年12月	

調査レベル設定値と超過割合の試算結果、調査レベルの算出方法の違いによる設定値と超過割合の差を試算した結果を表5に示す。

2020年度及び2021年度の4月から12月までについて、前2年度のデータを用いて調査レベルを算出すると、調査レベルの設定値が前年度のデータを用いて算出した場合よりも全ての局において高い値となり、それに伴い調査レベルの超過割合が低くなることが判明した。これは、Csに起因する空間ガンマ線量率の減衰が続いているためと思われる。

表5 調査レベルの試算結果、調査レベルの超過割合

		2020年度			2021年度(4月～12月)		
		①	②	①-②	①	②	①-②
女川	設定値(nGy/h)	37.6	36.4	1.2	36.1	35.7	0.4
	超過割合(%)	1.3	1.9	-0.6	2.7	3.1	-0.4
小屋取	設定値(nGy/h)	58.3	57.3	1.0	57.0	56.5	0.5
	超過割合(%)	1.1	1.4	-0.3	1.8	2.1	-0.3
寄磯	設定値(nGy/h)	45.9	45.0	0.9	44.4	43.6	0.8
	超過割合(%)	1.1	1.4	-0.3	1.8	2.2	-0.5

①: 前2年度平均値+前2年度標準偏差の3倍

②: 前年度平均値+前年度標準偏差の3倍

このことから、前2年度のデータを用いた調査レベルの算出方法は、現時点において監視上は適切ではなく、当面の間は現在と同様に「前年度平均値+前年度標準偏差の3倍」により調査レベルを算出することが適当であると考えられる。

Ⅲ まとめ

今回の検討により、当面の間は現在と同様に「前年度平均値+前年度標準偏差の3倍」により調査レベルを算出することが適当であることが判明した。

なお、調査レベルの設定頻度は今後も年度毎とする。

今後も線量率の減衰の程度を注視し、適切な調査レベル設定を行うこととする。

Ⅳ 参考文献

- 1) 原子力安全委員会、環境放射線モニタリング指針(2010年4月一部改訂)
- 2) 原子力規制庁、原子力災害対策指針補足参考資料「平常時モニタリングについて」(2021年12月21日改訂)
- 3) 石幡茜ほか、宮城県環境放射線監視センター年報、第2巻、p.20-26(2016)
- 4) 湊 進、環境 γ 線解析用49×49応答行列の紹介(2015)、
放射線地学研究所ホームページ <http://www1.s3.starcat.ne.jp/reslnote/>