3 β/α比を用いる評価方法以外の評価方法の検討

3.1 基準化計数を用いる評価方法

測定法の解説 F.3 に記載されている基準化計数を用いた方法についても試算した。この評価方法の 考え方と計算方法は解説 F.3 に詳細に記載されているので、ここでは計算過程等の記述を省略する。 この計算によって得られる値を、解説 F.3 では「推定の人工全β放射能濃度」としているので、以下 はそのとおりに記載する。2021 年度の測定値をもとに飯子浜局における推定の人工全β放射能濃度を 試算し、各時刻の年間最大値を求めたので、図 19 に示す。



図 19 基準化計数法による推定の人工全β放射能濃度の各時刻における年間最大値

ろ紙送り直後の1時間は、計数が安定しないためばらつきが大きくなる傾向にある。この傾向は解 説 F.3 に記載のとおりであった。この方法は本県でも採用可能ではあるが、計算方法は簡易である方 が、異常値があった場合の原因究明もしやすいと考え、「2.1 β/α比を用いる評価方法」を優先的に 検討していくこととした。

3.2 平常の変動幅を設定する評価方法

表2のほか、ダストモニタにより測定している一部自治体では、平常の変動幅を設定し、その超過 の有無によって監視する方法が行われている。測定法には、「平常の変動幅によるダストモニタの管 理」として以下のように記載されている。

施設寄与弁別前のダストモニタ測定値は、自然放射性物質による寄与を含んだものであり、施設寄 与がない場合でも変動する。これは、降雨や積雪、風の強さ、季節風の影響等の自然要因によって大 気中のラドン・トロン壊変生成物の濃度が変化すること等に起因する。このため、平常の変動幅を把 握し、これを超えた場合には機器に異常等がないか確認することが管理上有効である。また、必要に 応じて自然変動による超過頻度を検討し、確認開始設定値を設定することにも活用することができ る。

なお、平常の変動幅は、原子力施設の通常運転時かつ測定条件が適切に管理されている場合において、測定値の変動がおおむねある一定の幅の中に収まると考えられる幅のことである。

抜粋:測定法 p.48

放射能濃度の平常の変動幅の算出方法については、測定法 p. 49 に記載があるため、それを参考に以下の2通りの算出方法を試すこととした。

- ① 放射能濃度の算術平均値+3×放射能濃度の算術標準偏差
- ② 放射能濃度の幾何平均値+3×放射能濃度の幾何標準偏差

①は放射能濃度の頻度分布を正規分布とみなすことができる場合に用いる方法であり、②は放射能 濃度の頻度分布を対数正規分布とみなすことができる場合に用いる方法である。いずれも、放射能濃 度の頻度分布が正規分布または対数正規分布に従う場合には、標準偏差の3倍の範囲内に全測定値の 99.73%が含まれることから、平常の変動幅を超過する割合は(1-0.9973)/2 = 0.00135であるため、 1年間の1時間値のデータ数8,760個に対し約12回超過する計算となる。まず、①と②に関連して、 2021年度の飯子浜局における放射能濃度の頻度分布を確認した。その結果を図20に示すが、本県にお いても放射能濃度の頻度分布は対数正規分布に近いものとなっていた。



図 20 2021 年度の飯子浜局における方法 A と方法 B による放射能濃度の頻度分布

次に、①について放射能濃度の算術平均値と算術標準偏差から、②について幾何平均値と幾何標準 偏差から、それぞれ平常の変動幅を算出し、さらに平常の変動幅の超過数を調べた。その結果は表3 及び表4のとおりであるが、②の算出方法の方が、①の算出方法に比べて、方法Bの全β放射能濃度 は超過数が逆に多くなることが分かった。

表3 2021 年度の飯子浜局における①の算出方法による平常の変動幅及び超過数

1	方法A		方法B	
	2α 放射能濃度(Bq/m ³)	全 β 放射能濃度(Bq/m ³)	2α 放射能濃度(Bq/m ³)	全 β 放射能濃度(Bq/m ³)
算術平均値	0.34	0.86	1.24	3.37
算術標準偏差	0.29	0.74	0.98	2.47
平常の変動幅	1.21	3.09	4.18	10.79
平常の変動幅の超過数(回)	161	157	146	143

2	方法A		方法B	
	全α放射能濃度(Bq/m ³)	全 β 放射能濃度(Bq/m ³)	全α放射能濃度(Bq/m ³)	全 β 放射能濃度(Bq/m ³)
幾何平均値	0.25	0.61	0.90	2.57
幾何標準偏差	2.38	2.46	2.42	2.25
平常の変動幅	7.39	8.00	8.16	9.31
平常の変動幅の超過数(回)	0	2	5	214

表4 2021年度の飯子浜局における②の算出方法による平常の変動幅及び超過数

測定法においては、平常の変動幅を設定する方法は、機器に異常等がないか確認し、ダストモニタ を管理するための方法として記載されている。方法Aの場合は、②の算出方法を採用することによっ て、①の算出方法に比べて平常の変動幅の超過数が抑えられるため、ダストモニタの管理上有用であ ると考えられる。しかし、方法Bによって放射能濃度を算出する場合は、①の算出方法よりも②の算 出方法の方が超過数が多くなることがあるため、ダストモニタの管理に用いる場合は注意が必要と考 えられる。

Ⅲ 緊急時の放射能濃度算出方法と全α放射能濃度及び全β放射能濃度の試算

これまで、平常時用の濃度算出方法について検討してきたが、測定法には緊急時の放射能濃度算出 方法も記載されている。詳細は測定法 p. 143「第3章 大気モニタによる連続測定」に記載されている が、緊急時には、2018年度に本県が緊急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)¹⁰に基づいて導入した大気モニタと同様に、直近10分間の全β放射能濃度の平均濃度を評価する こととされている。以下に、測定法 p. 147に記載されている放射能濃度算出方法の内容を掲載する。

<u>各正</u>	各正 10 分の時点の放射能濃度				
放射會	放射能濃度 (Bq/m ³)				
_	現在の正 10 分の時点の計数率(s ⁻¹)- 前の正 10 分の時点の計数率(s ⁻¹)				
	機器効率 × 10分間の積算流量 (m ³)				
ただ	ただし、測定開始時又はろ紙送り後の最初の 10 分の時点の放射能濃度を評価する場合は、				
前の正	10分の計数率を0(s ⁻¹)とする。				
計数率	率の求め方に関する補足事項				
本社	測定法では、集じんしながらの測定を基本としており、計数率は計数率計により測定				
する	ことを基本とする。				

抜粋:測定法 p.147

しかし、先述のとおり、本県のダストモニタには計数率計が搭載されていないため、直前の10分間の積算計数から計数率及び放射能濃度を算出することとした。(以下「方法 D」という)

この方法の概要を図 21 に、そして 2021 年度の飯子浜局における測定値をもとにして方法 D によ り算出した放射能濃度の推移を図 22 に、2021 年度中の全 α 放射能濃度と全 β 放射能濃度の相関図を 図 23 に示す。図 23 を見ると、図 4 及び図 5 に比べると算出される放射能濃度の範囲が広くなって いることが分かる。これは、10 分毎に計数率を算出しているために、算出される計数率のばらつき が大きくなるためと考えられる。

今後の参考として記すが、図 23 の相関図をもとにして、施設起因全β放射能濃度推定値を算出 し、確認開始設定値 5 Bq/m³の超過数を調べたところ、2021 年度の飯子浜局においては 306 回の超 過となった。





図 21 放射能濃度算出方法(方法 D)

図 22 2021 年度の飯子浜局における方法 D による放射能濃度計算結果(時系列図)



図 23 2021 年度の飯子浜局における方法 D による放射能濃度計算結果(相関図)

Ⅳ ダストモニタによる測定値の特徴を把握するための調査

1 大気中ラドン濃度との相関

2021 年度の予備調査と図9の結果から、放射能濃度の日変動に大気中ラドン子孫核種の日変動が 影響している可能性が考えられる。女川局ではラドンモニタ(セイコー・イージーアンドジー株式会 社製 Alpha GUARD PQ2000PRO)により、大気中ラドン濃度を測定している。このデータを用い て、飯子浜局と鮫浦局の放射能濃度の変動を評価できるか検討した。2021 年度の女川局のラドン濃 度と飯子浜局のダストモニタにおける方法 A と方法 B の放射能濃度の相関を図 24 に示す。



図 24 2021 年度の女川局のラドン濃度と飯子浜局のダストモニタにおける放射能濃度との相関

調査の結果、女川局のラドン濃度と飯子浜局のダストモニタにおける方法Aと方法Bで算出され た放射能濃度には良い相関は認められなかった。女川局と飯子浜局が離れた場所に設置されてお り、両局の大気中ラドン濃度が異なる可能性が高いこと、過去に報告⁹⁾されているとおり局舎周辺の 地形等が異なるとラドン子孫核種の成長の程度が異なることが原因と考えられる。

この他、放射能濃度の測定値に影響を与える要因として、大気安定度も考えられるが、大気安定度は飯子浜局や鮫浦局では測定していないことから、検討を省略した。

2 放射能濃度の季節変動等

一般的に、冬期は大陸由来の気団が日本に到達することから大気中のラドン濃度とその子孫核種の 濃度が上昇することが知られている^{11,12)}。本県においても、過去の調査で冬期は降雨中に含まれるラ ドン子孫核種の量も多くなることが明らかになっている¹³⁾。

そこで、放射能濃度の季節変動があるかを調べるために、図 25 のとおり方法 A 及び方法 B で算出 した 2021 年度の飯子浜局における放射能濃度について時系列図を作成するとともに、図 26 のとおり 放射能濃度の月平均値を求めた。さらに、図 27 のとおり施設寄与全β放射能濃度推定値についても、 時系列図を作成した。



図 25 2021 年度の飯子浜局における全α放射能濃度と全β放射能濃度の時系列図



図 26 2021 年度の飯子浜局における全 α 放射能濃度と全 β 放射能濃度の月平均値の推移



図 27 飯子浜局における施設寄与全β放射能濃度推定値の時系列図

まず、図 25 で放射能濃度の最大値に注目すると、冬期よりも夏期の方が大きく上昇していること が分かる。この原因は、夏期は夜間から朝方にかけては大気が安定するために、地中から湧出したラ ドンが地表面に滞留し、地表面付近で大気中のラドン濃度が上昇していること¹⁴⁾が関係していると 考えられる。このことが、図 27 のとおり施設起因全β放射能濃度推定値が夏季に大きく上昇するこ との原因になっている可能性が考えられる。一方で、図 26 の放射能濃度の時系列図を見ると、夏期に 比べて冬期は放射能濃度が若干高めの値で推移していることが分かる。これらの季節変動は、ダスト モニタによる測定値の特徴を理解する上で重要な事項であるため、今後も注視していきたい。

3 放射能濃度計算に用いる各種パラメータ

3.1 捕集効率と線源効率

放射能濃度計算に用いる各種パラメータの概要については、II2.2 に記載のとおりである。このうち 捕集効率と線源効率については、β/α比の考察に関係する事項であるので、さらに検討を行った。

まず、ダストモニタの測定には主にラドン子孫核種が関係していることから、参考のため、ウラン系 列のうち Rn-222 以降の壊変系列を測定法から引用して図 28 に示す。



図 28 ウラン系列の壊変系列(Rn-222以降) 抜粋:測定法 p.110

このうち、ダストモニタの測定に特に寄与すると考えられるのが、Po-218、Pb-214、Bi-214、Po-214 である(図 28 破線内)。Rn-222 の半減期はいずれの子孫核種の半減期よりも長いので、独立し た系の中では放射平衡に達し、それぞれの放射能濃度が等しくなる。この場合、 α 線放出核種が 2 種類、 β 線放出核種が 2 種類、つまり「 α 線放出核種: β 線放出核種 = 1:1」であるため、 β/α 比 が1になる。

しかし、図4、図5の相関図を見ると、β/α比(近似直線の傾き)が2.5程度となっており、1 からは離れた値となっている。ただし、ラドン子孫核種の成長具合によって大気中における各ラド ン子孫核種の濃度の割合が変わることや、ダストモニタの校正に用いている線源がAm-241とCl-36 であって、ラドン子孫核種とはエネルギーが異なることを踏まえれば、必ずしも1にならなければ ならないというものではない。

この原因を考察するにあたって、ろ紙の表面捕集効率と線源効率が重要となる。

大気中放射性物質のモニタリングに関する技術参考資料(2003年文部科学省作成)に記載されて いるとおり、HE-40Tは表面捕集効率が低く、特に粒子径 0.1 µm 以下の捕集効率が必ずしも十分 でないことが指摘されている。このため、0.1 µm 以下の粒子が支配的な環境において大気浮遊じ んを採取する場合には、注意が必要である。

一方で、Rn-222から生まれた直後の Po-218 はフリー原子であるが、時間の経過とともに付着原子になる。その娘核種 Pb-214 は、生まれたときから大部分が付着原子である。このようにフリー成

分の割合が核種で違うことが報告されている¹⁵⁾。

上記のことから、以下の図 29 のような事象が起こっていることが考えられる。大気中放射性物 質が HE-40T に捕集される際、HE-40T の表面捕集効率が低いため、放射性物質がろ紙の内部にまで 入り込む。こうすると、試料に含まれる放射性物質から放出された放射線の一部が、ろ紙を通過す る間に吸収されて、検出器に届かなくなる事象(自己吸収)が起こっている可能性が高いと考えら れる。一方で、 β 線の自己吸収は α 線ほど顕著ではない。また、機器校正は α 線放出核種(Am-214) や β 線放出核種(C1-36)が表面に塗布された標準線源を用いて行うために自己吸収がほとんどない 条件での校正となることから、 α 線が自己吸収された分だけ、全 α 放射能濃度が過小評価され、 β/α 比が1よりも高い値となっていると考えられる。



図 29 α線自己吸収のイメージ(検出器は試料の上側)

このため、全α放射能濃度を評価するにあたって、本来であれば、表面捕集効率、自己吸収を考 慮すべきところであるが、その場合は集じん中の面速度や粒径分布も考慮しなければならず、測定 値を補正することは非常に困難である。

表面捕集効率を上げるために面速度約 85 cm/s(100 L/min として計算)から低下させることも検討したが、測定法の検出下限値の基準を満たすためには、容易に流量率を低下させることはできないと判断した。

HE-40Tよりも表面捕集効率が良いメンブレンフィルタを用いることも検討した。製造業者にメン ブレンフィルタの使用の可否を確認したところ、本県が導入したダストモニタではHE-40T以外のろ 紙の使用を想定していないためメンブレンフィルタの使用は不可であるとの回答があり、メンブレ ンフィルタを用いることは断念した。

もし、少しでも実態に近いと思われる β/α 比とするためには、捕集効率ではなく、自己吸収を前 提として線源効率を、JIS Z 4316「放射性ダストモニタ」に記載されている 0.5 ではなく、JIS Z 4504:2008「放射性表面汚染の測定方法- β 線放出核種(最大エネルギー0.15 MeV 以上)及び α 線放 出核種」を準用し、 α 線の線源効率は 0.25、 β 線の線源効率は 0.5 とする方法が考えられる。

仮に、 α 線の線源効率を 0.25、 β 線の線源効率を 0.5 とした場合であるが、算出される全 α 放射 能濃度が、図4及び図5で示した値の2倍となるため、 β/α 比(近似曲線の傾き)が2分の1とな る。ただし、以下の理由から、施設寄与全β放射能濃度推定値には影響を与えることはない。

まず、Ⅱ2.1の式(1)を再掲する。

 $\beta e = \beta o - (\alpha o \times r+i)$ (1)

ここで、

 β e:施設起因全 β 放射能濃度推定値(Bq/m3)

βο: 全β放射能濃度の実測値(Bq/m3)

αο: 全α放射能濃度の実測値(Bq/m3)

i:近似曲線の切片(Bq/m3)

ここで、 α 線の線源効率を 0.5 から 0.25 にすると、 2α 放射能濃度が 2 倍になる一方で、 β/α 比(近似曲線の傾き)が 2 分の 1 となる。

 $\beta = \beta \circ - ((\alpha \circ \times 2) \times (r/2) + i) = \beta \circ - (\alpha \circ \times r + i)$

このように、 α 線の線源効率を 0.5 から 0.25 に変更しても、式(1)と同じ式で、施設寄与全 β 放射能濃度推定値を求めることとなる。したがって、施設寄与全 β 放射能濃度推定値の評価結果は、 II 2.4 の結果から変わらない。

α線の線源効率と機器効率に関しては、α線の平均飛程およびフィルタ内の自己吸収を考慮に入 れて、フィルタの有効面(捕集面)全体についてシミュレーション計算を行った結果が11.60%だった という報告¹⁶⁾がある。当該報告を参考にすれば、本県のダストモニタの機器効率は0.5であるた め、α線の線源効率は0.25として、線源効率と機器効率を合わせて0.125とすることが適切と考え られる。他自治体等や専門機関等から情報収集するなどして適切な値を選択したい。

3.2 バックグラウンド計数率

バックグラウンド計数率については、製造業者が求めた値を用いている。さらに、ろ紙送り時間及 びろ紙交換時に係るデータの取り扱いをII2.2のとおり定めた。今後の参考のため、飯子浜局の方法 A を例として、これらを考慮しなかった場合の全α放射能濃度と全β放射能濃度の相関図を図 30、図 31 に示す。

バックグラウンドの要因は、図 32 に示すように①機器本体に含まれる放射性物質に由来するバック グラウンド、②ろ紙に含まれる放射性物質に由来するバックグラウンド、③外部環境等に由来するバ ックグラウンドが考えられる。今後、全α放射能濃度と全β放射能濃度の相関が、図 30 や図 31 のよ うに悪くなることがあった場合は、原因を調査する際にバックグラウンド計数率も調査の対象にした 方が良いと考える。



図 30 バックグラウンド計数率とろ紙送り時間及びろ紙交換時を考慮しなかった場合の 全 α 放射能濃度と全 β 放射能濃度の相関図



図 31 ろ紙送り時間及びろ紙交換時を考慮しなかった場合の全α放射能濃度と全β放射能濃度の 相関図 ※図 30 からバックグラウンド計数率のみを考慮した場合の相関図



図 32 バックグラウンドの要因のイメージ

V 今後の検討課題

1 平常時の放射能濃度の算出方法

放射能濃度の算出方法については、測定法の記載内容、試運転期間中の測定値、放射性物質が飛来した場合の応答性に関するシミュレーションを踏まえてさらなる検討を行う必要がある。

2 施設寄与全β放射能濃度推定値の設定値を超過した場合の対応

大気中放射性物質濃度の連続測定結果における施設寄与(施設寄与である可能性を否定できない場合 を含む)を弁別するために、測定法 p. 43 を参考に対応フローチャートを検討する。併せて、ろ紙を回収 してゲルマニウム半導体検出器で詳細に核種分析を行う場合に備えて、ろ紙の前処理方法と、ろ紙自体 のバックグラウンドを調査する。

3 測定結果の報告方法

ダストモニタによる測定結果を公表する際にどのような報告内容とすべきかを、他県の事例を参考に 検討する。

4 ダストモニタの測定に関する線源効率の検討

Ⅳ3.1に記載したとおり、線源効率の検討が必要である。

5 ダストモニタによる測定結果の分析と確認開始設定値の検討

測定法 p. 44 にダストモニタによる測定値の評価に用いる確認開始設定値を求める際は、過去 3~5 年間程度の1時間測定値を使用することが記載されている。本県においては、全α放射能濃度と全β 放射能濃度による監視は初の試みであるため、本県におけるダストモニタの測定値を蓄積し、測定値 の特徴を十分に理解した上で、確認開始設定値を求める必要がある。ただし、測定値の蓄積には年数 を要するため、確認開始設定値には、当面の間は上限値である 5 Bq/m³を用いるのが適当と考える。

VI まとめ

2021 年度の測定結果をもとに、監視手法の検討と測定値の変動に関する定性分析を行った。まだ、 検討すべき課題があるため、さらなる検討を重ねて、本県におけるダストモニタによる監視手法を構 築したい。

VII 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)、2018 年4月4日制定(2021年12月21日 一部改訂)、

URL: https://www.nra.go.jp/activity/monitoring/heijouji.html

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、p.15-20、2020、 URL: https://www.pref.miyagi.jp/soshiki/kankyoho/intro.html

- 3)石川陽一、木村幸由、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、宮城県環境放射線監視センター年報、第7巻、p.19-30、2021、URL: 2)に同じ
- 4) 原子力規制庁、放射能測定法シリーズ No. 36 大気中放射性物質測定法、2022 年 6 月制定、 URL: https://www.kankyo-hoshano.go.jp/library/series/
- 5)株式会社日立製作所、可搬型ダストモニタ完成図書、図書番号 CA-102-19、2021 年 2 月 5 日作成
- 6) 文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室、大気中放射性物質のモニタリング に関する技術参考資料、2003 年 7 月制定
- 7)日本産業規格 JIS Z 4316 : 2013「放射性ダストモニタ」
- 8)日本産業規格 JIS Z 4504 : 2008「放射性表面汚染の測定方法-β線放出核種(最大エネルギー
 0.15 MeV 以上)及びα線放出核種」
- 9) 石川陽一、木村昭裕、高橋正人、三浦英美、牡鹿半島における大気中ラドン濃度とγ線線量率の関係、宮城県原子力センター年報、第26巻、p.5-12、2008、URL: 2) に同じ
- 10)原子力規制庁監視情報課、緊急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)、2014年1月29日制定(2021年12月21日 一部改訂)、

URL: https://www.nra.go.jp/activity/monitoring/monitoring6-1.html

- 11) 藤波直人、江阪忍、舞鶴市における大気中のラドン娘核種濃度の季節変動、保健物理、 42(1)、 p. 53-62、2007
- 12) 吉岡勝廣、飯田孝夫、大気中ラドン濃度の周期性長期変動の主要な影響因子―海洋と陸地の違い
 ―、保健物理、42(1)、 p. 53-62、2007
- 13) 今野達矢、石川陽一、大庭和彦、降水中のラドン娘核種濃度と空間γ線線量率の関係、宮城県原子 カセンター年報、第17巻、p.15-32、1998、URL: 2) に同じ
- 14) 木立博、今野達矢、石川陽一、加賀谷秀樹、牡鹿半島における空間ガンマ線線量率とラドン濃度の 関係について、宮城県原子力センター年報、第19巻、p.5-9、2001、URL: 2) に同じ
- 15) 下道國、山崎敬三、ラドンエアロゾル、エアロゾル研究、Vol.4 No.1、1989
- 16) 黒澤龍平、床次眞司、αとβ線計数法によるラドン娘核種濃度測定法に関する研究、
 保健物理、26、p. 319-330、1991