

# 福島第一原子力発電所 RO 濃縮水貯留タンクからの 制動放射について

梅田 健太郎\*・小林 悌 二\*\*

## Analysis of Bremsstrahlung from RO Concentrated Water Storage Tank in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Kentaro UMEMA and Teiji KOBAYASI

### Abstract

In the accident in Fukushima Daiichi nuclear power station of Tokyo Electric Power Co. (TEPCO) in 2011, the reactor cores were melted and dropped down to primary containment vessels (PCVs) and/or to reactor pressure vessels (RPVs). To cool the damaged cores, about 400m<sup>3</sup>/day of water is even now injected to PCVs and RPVs. Additionally, about the same amount of ground water inflow to the basement of reactor building and turbine building. The water is recirculated to remove radioactivity by Cs removal devices and salt by Reverse Osmosis (RO) desalination equipment. Approximately 400m<sup>3</sup> of contaminated surplus water is generated every day and has to be stored in storage tanks. The water is contaminated by many kinds of radionuclides. Especially, the level of radioactivity due to <sup>90</sup>Sr amounts to 40,000~500,000 Bq/cc. Possibilities of radiation exposure and accidental leakage of radioactivity to the environment are increasing.

TEPCO reported that, due to the Bremsstrahlung of origin of <sup>90</sup>Sr beta decay in the RO concentrated water storage tanks, the radiation dose at the site boundary on the plant area should be approximately 8mSv/year. The amount is beyond 1mSv/year of the public dose limit.

In this paper we analyze flux strength and energy spectra of electrons and of photons leaked from the RO storage tanks by using Monte Carlo simulation of Boltzmann transport equation for the electron energy loss process in the tank, and estimate and discuss the Bremsstrahlung radiation dose around the tank and at the site boundary. Discussion will be also given on physical situation of radiation leaked from the tank and its dose from some radionuclides other than <sup>90</sup>Sr.

### 1. はじめに

2011年3月11日に発生した東日本大震災で、東京電力福島第一原子力発電所1,2,3号機の炉心は熔融し、炉心が原子炉圧力容器の底部に流下した[1]。事故後も発生する崩壊熱を除去するため、現在も1日当たり約400m<sup>3</sup>の冷却水が原子炉建屋とタービン建屋に注入されている。また、1日当たり約400m<sup>3</sup>の地下水がこれらの箇所流れ込み、1日当たり約400m<sup>3</sup>の放射能汚染水が増加し続け、汚染水を貯蔵するタンク

クの数も増え続けている[2]。

RO (Reverse Osmosis) 濃縮水は、タービン建屋滞留水からセシウム吸着装置によりセシウムを除去し、淡水化装置 (RO 装置) で濃縮した後 (RO 装置出口側) の放射能汚染水である。RO 濃縮水には核分裂生成物である <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>125</sup>Sb, <sup>106</sup>Ru, <sup>90</sup>Sr, そして、放射化生成物である <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mn の放射性核種が含まれている。特に <sup>90</sup>Sr の放射能濃度は <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs や <sup>60</sup>Co, <sup>54</sup>Mn に比べて数万倍から数十万倍高い [3]。

平成 25 年 5 月、東京電力は RO 濃縮水貯留タンクに含まれる放射性核種の濃度から、制動放射を考慮した ORIGEN2 ライブラリ [4] を用いてガンマ線強度を求め、その線源強度から RO 濃縮水貯留タンクから

2014年10月21日受理

\* 共通教育センター 教授

\*\* (元) 新潟大学医学部 教授

の直接線およびスカイシャイン線による敷地境界線量を評価した。その結果、年間最大1 mSv（公衆に対する放射線線量限度）近くになり、タンク増設を考慮すると増設エリアに近接する敷地境界では年間最大7.8 mSvになると公表した [5]。

平成26年、今後予想されるRO濃縮水の保管計画に基づく敷地境界の年間線量の再評価の詳細が公表され、年間最大約8.04 mSvになることが予想された [6,7]。放射能汚染水が増加し続けているため、汚染水貯留タンクの増設が続き、放射性物質が環境に漏洩する潜在的な危険性、また、タンク周辺および貯留タンクエリアに近接する敷地境界の空間線量は増大する傾向にある。

$^{90}\text{Sr}$ は半減期28.79年でベータマイナス壊変して $^{90}\text{Y}$ に変化し、娘核種 $^{90}\text{Y}$ は半減期64.10時間でベータマイナス壊変し安定核種 $^{90}\text{Zr}$ になる。 $^{90}\text{Sr}$ のベータ壊変では、最大エネルギーが0.546 MeVである連続エネルギースペクトルをもつ電子（平均エネルギー0.196 MeV）が放出される。娘核種 $^{90}\text{Y}$ のベータ壊変では、最大エネルギーが2.280 MeVである連続エネルギースペクトルをもつ電子（平均エネルギー0.933 MeV）が放出される [8,9]。このため、これら高エネルギー電子がRO濃縮水内で起こす制動放射線による空間線量への影響は、電子の平均エネルギーが高い $^{90}\text{Y}$ の方が親核種 $^{90}\text{Sr}$ より大きいと予想される。 $^{90}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Y}$ の壊変過程でガンマ線はほとんど放出されず、電子の水中飛程は短く（エネルギー1 MeVの電子の飛程は0.44 g/cm<sup>2</sup>）、ベータ壊変で発生した電子の大部分はタンク内で吸収されると考えられ、一方、光子の飛程は同じエネルギーの電子の飛程に比べてはるかに長い（エネルギー1 MeVの光子の水中の質量減衰係数は0.071 cm<sup>2</sup>/g）。このため、RO濃縮水貯留タンクから漏出する放射線の敷地境界での空間線量に対する影響は、電子の制動放射で生成される光子によると予想される。

RO濃縮水貯留タンクにおける制動放射により敷地境界の年間空間線量が1 mSvを超えることを公表した東京電力の資料5,6,7には計算手法の流れと最終結果は示されているが、どのような物理的な状況で公衆の線量限度を超過する結果に至っているかを理解するために必要なデータは含まれていない。RO濃縮水貯留タンクに含まれる放射性核種の大部分はベータ壊変核種であり、放出される電子はタンク内でほとんど吸収されると考えられる。このため、タンク内のベータ

壊変で放出される電子を線源として、タンクから離れた敷地境界における空間線量に及ぼす影響・危険性を理解・検討するには、タンク内での電子の挙動を現実的な物理モデルで解析し、タンク内および敷地境界に達する放射線に関する物理的な情報を得ることが必要である。東京電力は、タンク内の電子の減速過程の解析を行わず、その過程で生じる制動放射の効果を考慮した光子ライブラリを使用して求めた光子を線源として、光子の輸送計算を実施することにより評価を行っている。このため、タンク内の電子の具体的な物理的挙動に結びつかない。また、ORIGEN2において制動放射を考慮した光子ライブラリは二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)と水に関する2種類だけであり、ベータ壊変で放出される電子の物質内の挙動を現実の体系で直接シミュレーションすることにより制動放射の影響を評価する手法の検討は重要と考える。

本稿では、RO濃縮水貯留タンクに含まれるベータ壊変核種から放出される電子を線源とし、電子がタンク内を通過する過程で電子・光子を生成する現象を直接シミュレーションすることにし、解析はモンテカルロ法コードであるMCNPコード[10]を使用して行う。この計算手法により、増え続けるRO濃縮水貯留タンクから周辺に及ぼされる空間線量の検討に必要な基本情報であるタンク内、タンク壁、およびタンク周辺における電子・光子のフラックスとエネルギースペクトルを解析し、放射性核種の実測放射能濃度を参考とした標準放射能濃度に対するタンク周辺およびタンクエリアに近接する敷地境界での空間線量の定量評価を行う。併せて、タンク内に含まれる $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ 以外の放射性核種についても、タンク周辺の空間線量に及ぼす影響を評価する。

## 2. 計算方法

### 2.1 電磁カスケードモンテカルロ法

電荷をもった電子は、光子や中性子と異なり、物質を通過する過程で物質を構成する原子の原子核や軌道電子とクーロン散乱による弾性散乱を繰り返して進行方向が曲げられるとともに、軌道電子との非弾性散乱により原子を電離・励起して電子や光子を生成する。また、原子核との非弾性散乱で電子軌道が大きく変化することにより制動放射 [11] が起こり、光子が放出される。生成された光子は物質を通過する過程で光電効果、コンプトン散乱、電子対生成により電子・光子

を生成する。電子の物質中の進行をシミュレーションするには、電磁カスケード [12] と呼ばれるこのような物理過程をコンピュータ内で模擬する必要がある。本稿では、電磁カスケードをモンテカルロ法で模擬する MCNP コード [10, 13, 14] を使用し電子・光子の輸送過程をシミュレーションする。MCNP コードでは (1) 式に示すボルツマン輸送方程式を解いて電子・光子のフラックスを追う。変数およびシミュレーション方法の詳細については文献 10,13,14 に譲り、以下に、本稿で行ったエネルギースペクトル、空間線量評価の流れを簡単に述べる。

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} + \vec{\Omega} \cdot \nabla \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + \Sigma_t \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \iint dE' d\vec{\Omega}' \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}) \phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) + S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \quad (1)$$

$\phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  は時刻  $t$ 、位置  $\vec{r}$  における、エネルギー  $E$  をもち、単位ベクトル  $\vec{\Omega}$  の方向に放出される電子や光子の角度フラックスである。線源強度  $S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  は時刻  $t$ 、位置  $\vec{r}$  における、エネルギー  $E$  をもち、単位ベクトル  $\vec{\Omega}$  の方向に放出される放射線の線源項である。電子の輸送計算では、RO 濃縮水貯留タンク内においてベータ壊変で放出される電子のエネルギースペクトルを線源データ  $S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  として与えた。本稿ではタンク内に含まれるガンマ線放出核種からのタンク周辺における空間線量の寄与も評価したが、この場合は線源強度データとして放出ガンマ線のエネルギースペクトルを与えた。線源強度はタンク内で一様と仮定し、時間的に一定、空間的に等方と考え、空間線量の評価は定常固定線源問題として扱った。

タンク内部およびタンクから漏出した放射線輸送をシミュレーションし、注目する線量評価地点での  $\phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  を求めることにより電子・光子のフラックス、エネルギースペクトルが求まる。求めた光子のフラックスに線量率変換係数 [15] を乗じて評価地点での空間線量率（実効線量率） $[\mu\text{Sv/h}]$  を求める。本稿では、フラックスを評価するための粒子検出手法であるディテクタータリー（detector tally）として、リングディテクター（ring detector）、ポイントディテクター（point detector）、サーフェスタリー（surface tally）、セルタリー（cell tally）を使用した [10]。

## 2.2 放射能濃度と線源スペクトル

RO 濃縮水貯留タンクから漏出する放射線による空間線量を評価するにあたり、各放射性核種の放射能濃度は東京電力の資料 3,5,6 を参考に表 1 のように仮定した。ボルツマン輸送方程式は線源強度に対して線形であり、エネルギースペクトルが同じ場合には空間線量は線源強度に比例する。表 1 に示す放射能濃度と異なる場合でも、本稿の計算結果から比例計算で空間線量を見積もることができる。

各放射性核種から放出されるベータ壊変電子のエネルギースペクトルあるいはガンマ線のエネルギー強度は文献 9 のデータベースから編集した。

## 2.3 計算体系

東京電力の資料 2, 16 よると RO 濃縮水貯留タンクにはいくつかの種類があるが、本解析では、RO 濃縮水貯留タンクの典型的な形状で設置数も多い、通称 1,000 t フランジタンク（タンク重量 77.3 t、タンク断面積  $113 \text{ m}^2$ 、容量 1,200 t）と呼ばれる鋼製の円筒タンクを想定した。1,000 t フランジタンクは直径が約 12 m、高さが約 11 m である。この円筒タンクを直径 12 m、高さ 11 m の円筒でモデル化し、タンク壁は鉄製（密度  $7.9 \text{ g/cm}^3$ ）として、厚さはタンク重量から見積もり一様に 1.5 cm とした。モデル化されたタンク容量は  $1.244 \times 10^3 \text{ m}^3$  となる。解析は計算効率を考えて体系がより単純な球状モデルでも行った。球状モ

表 1 RO 濃縮水中の放射能濃度

核種	半減期	濃度 [Bq/cc]
$^{134}\text{Cs}$	2.065 y	$1.0 \times 10^1$
$^{137}\text{Cs}$	30.17 y	$1.0 \times 10^1$
( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ )	2.552 m	$1.0 \times 10^1$
$^{60}\text{Co}$	5.271 y	$1.0 \times 10^0$
$^{54}\text{Mn}$	312.1 d	$1.0 \times 10^0$
$^{125}\text{Sb}$	2.759 y	$1.0 \times 10^1$
$^{106}\text{Ru}$	373.6 d	$1.0 \times 10^2$
( $^{106}\text{Rh}$ )	29.80 s	$1.0 \times 10^2$
$^{90}\text{Sr}$	28.79 y	$1.0 \times 10^5$
( $^{90}\text{Y}$ )	64.10 h	$1.0 \times 10^5$

( ) は娘核種を示す

デルの場合は、円筒モデルのタンク容量を保存する半径 6.672 m の球とし、タンク壁の厚さは 1.5 cm とした。

### 3. 計算結果と考察

#### 3.1 $^{90}\text{Y}$ の制動放射

表 1 に示すように、 $^{90}\text{Y}$  は RO 濃縮水貯留タンクの放射濃度のほとんどを占め、また、ベータ壊変で放出される電子の平均エネルギーは約 1 MeV と高エネルギーであることから、 $^{90}\text{Y}$  のベータ壊変による制動放射がタンク周辺の空間線量に最も寄与すると考えられる。

図 1 および図 2 はそれぞれ、タンク 1 基全体に 1 Bq の  $^{90}\text{Y}$  がタンク内に一様に存在するとして、円筒モデルで求めたタンク内、タンク壁、タンク外部周辺 (タンク中央を中心とするタンク全体を囲む半径 9 m の球を定義し、球内からタンク部分を除いた大気領域) の各領域で平均した電子および光子の平均フラックスのエネルギースペクトルである。

図 1 において、黒線はベータ壊変で放出される電子の線源強度 (右側目盛)、赤線および青線はそれぞれ、放出された電子がタンク内を通過する過程で生じた電子を含むタンク内およびタンク壁での電子のエネルギースペクトルである (左側目盛)。タンク内およびタンク壁の電子のエネルギースペクトルはベータ壊変の線源強度のスペクトルに似た分布を示しているが、線源強度分布に比べ次第に低エネルギー側に強度が移行している。タンク壁に到達した電子のフラックス強度はタンク内に比べ約 2 桁減少している。解析では、発生電子のほとんどがタンク内で吸収され、タンク壁からは漏出しない結果が得られた。図 1 に緑色で示すタンク周辺領域の電子のフラックス (左側目盛) はタンクから漏出した光子と空気分子との反応で生じた電子のフラックスと考えられる。

図 2 において赤線および青線は、電子がタンク内を通過する過程で生じた光子のタンク内およびタンク壁におけるエネルギースペクトルである。グラフは両対数グラフであるが、タンク内においてはベータ壊変の最大エネルギー 2.280 MeV 点から低エネルギー側約 0.04 MeV 付近までは単調に増加し、そこを境に単調に減少している。タンク壁においては約 0.1 MeV 付近まで単調に増加し、それを境に単調に減少しているが、0.007 MeV 付近に鉄の特性 X 線に対応するピークが存在している。

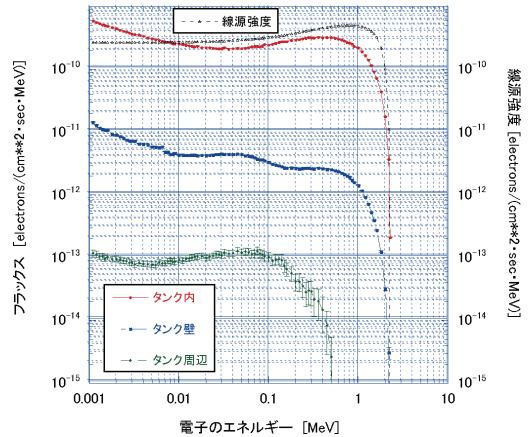


図 1 タンク 1 基内に 1 Bq の  $^{90}\text{Y}$  があるとして求めたタンク内の電子の線源強度、およびタンク内、タンク壁、タンク周辺の電子のエネルギースペクトル (本文参照)

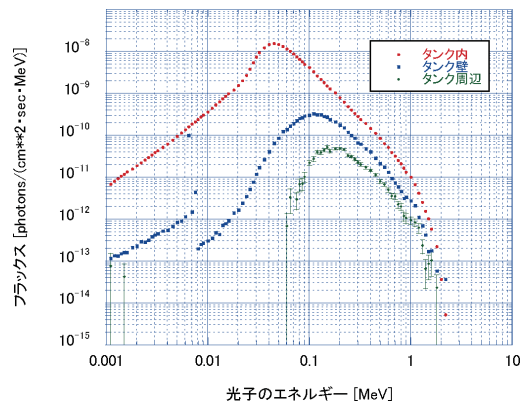


図 2 タンク 1 基内に 1 Bq の  $^{90}\text{Y}$  があるとして求めたタンク内、タンク壁、タンク周辺の光子のエネルギースペクトル

電子の運動エネルギーを  $E$  とすると、電子が物質中を通過する過程で制動放射によりエネルギー  $\varepsilon \sim \varepsilon + d\varepsilon$  の光子を放出する確率  $\phi_{\text{rad}}(E, \varepsilon)$  は、一般に  $g(E, \varepsilon)d\varepsilon/\varepsilon$  に比例する。ここで、 $g(E, \varepsilon)$  は  $E$  および  $\varepsilon$  にゆるく依存する関数である。このことは、電子の運動エネルギー  $E$  に対し、エネルギー  $\varepsilon$  の低い光子が多数発生することを示している。したがって、エネルギースペクトルの強度は低いエネルギーの光子ほど強くなる [11, 12]。一方、光子の質量減衰係数は光子のエネルギーが低いほど大きい [12]。このため図 2 に

示す分布になると考えられる。また、鉄の質量減衰係数は 0.1 MeV 付近から水に比べて急激に増大する。このため、タンク壁でのスペクトルのピーク位置はタンク内に比べて高エネルギー側に位置すると考えられる。図 2 における緑線はタンク壁から漏出した光子のエネルギースペクトルである。漏出した光子のエネルギーはおよそ 0.1 MeV~1 MeV の範囲にあり、電子の減速過程で原子が電離・励起して生じる光子のエネルギーより一桁以上高く、制動放射で生じる光子の高エネルギー側に対応する。この漏出した光子がタンク周辺、敷地境界の空間線量に影響を及ぼすことになる。

タンク 1 基内に 1 Bq の  $^{90}\text{Y}$  があるとき 1 壊変で放出される電子の平均エネルギーは 0.933 MeV であるが、解析では、タンク内でそのうちのほぼ 100% が吸収され、タンク壁で吸収されるエネルギーが 0.00036 MeV (約 0.04%)、タンクから漏出するエネルギーはほとんどが光子によるものであり、タンク上面および側面からの漏出量の合計は 0.00018 MeV、ベータ壊変で放出されるエネルギーの約 0.002%、5 万分の 1 程度と見積もられた。

### 3.2 タンク表面付近での空間線量率

RO 濃縮水に含まれる各放射性核種から放出される放射線によるタンク周辺部での空間線量の影響を、表 1 に与えた放射能濃度に基づき、タンクを球でモデル化した体系で評価した。表 2 はサーフェスタリーを用いて得られたタンク壁表面、表面から 1 m における空間線量率である。FSD (Fractional Standard Deviation,

相対誤差) の大部分は 0.002 から 0.01 前後であるが、ベータ壊変で放出される電子の平均エネルギーが 0.196 MeV の  $^{90}\text{Sr}$  については 0.1 である。

タンク壁表面周辺における空間線量は  $^{90}\text{Y}$  からの寄与が大部分を占めるが、核分裂生成物  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{106}\text{Rh}$  に仮定した濃度によるタンク壁表面の線量率は  $^{90}\text{Y}$  の約 10% であった。これらの濃度が 10 倍程度増えると  $^{90}\text{Y}$  と同程度の寄与になる。また、核分裂生成物  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、放射化生成物  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{54}\text{Mn}$  のガンマ線による寄与はタンク内に含まれる放射濃度が仮定した濃度より 100 倍になると  $^{90}\text{Y}$  からの寄与と同程度になる。したがって、RO 濃縮水に含まれる放射性核種の濃度を常に警戒する必要がある。

$^{106}\text{Ru}$  の娘核種である  $^{106}\text{Rh}$  のベータ壊変ではガンマ線も放出されるが、放出される電子の平均エネルギーは 1.411 MeV と高く、その制動放射による空間線量への影響に注意する必要がある。 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{106}\text{Ru}$  核種もベータ壊変で電子を放出するが、いずれの核種も電子の平均エネルギーは 0.1 MeV 程度、あるいはそれ未満であり、放射能濃度も小さい。平均エネルギー 0.196 MeV、放射能濃度  $1.0 \times 10^5$  Bq/cc の  $^{90}\text{Sr}$  の結果を考慮すると、これらの核種のベータ壊変による制動放射の影響は小さいと考えられる。なお、 $^{106}\text{Rh}$  の親核種  $^{106}\text{Ru}$  については、ベータ壊変で放出される電子の平均エネルギーが 0.01 MeV と低く、光子も放出されない。このため、空間線量への寄与は無視できると考えられ、表 2 に含めていない。

各放射性核種からの空間線量への寄与は、計算効率が良い球体系で評価したが、 $^{90}\text{Y}$  について、RO 濃縮水貯留タンクを実形状に近い円筒形状で評価すると、円筒中央位置の円筒表面付近における空間線量率は 9.5~11  $\mu\text{Sv/h}$  となり、結果は球体系とほぼ同じ値である。タンク内に含まれる放射性核種による空間線量への影響の比較は球体系モデルで可能であるといえる。

東京電力の資料 17,18 によるとタンクエリアの雰囲気線量率 (原子力発電所敷地内に存在する RO 濃縮水貯留タンク以外の線源からの空間線量率) は 20~40  $\mu\text{Sv/h}$  であり、 $^{90}\text{Y}$  の放射能濃度が  $1.0 \times 10^5$  Bq/cc の場合のタンク表面の線量率の実測値は約 50  $\mu\text{Sv/h}$  前後、雰囲気線量率を考慮した解析評価値は約 40  $\mu\text{Sv/h}$  と報告されている。本シミュレーションで得られたタンク表面線量率約 10  $\mu\text{Sv/h}$  に雰囲気線量率を加えた

表 2 タンク壁表面付近の空間線量率

核種	線源	表面	1 m
$^{134}\text{Cs}$	$\gamma$	$1.0 \times 10^{+0}$	$6.3 \times 10^{-1}$
$^{137\text{m}}\text{Ba}$	$\gamma$	$3.5 \times 10^{-1}$	$2.2 \times 10^{-1}$
$^{60}\text{Co}$	$\gamma$	$2.1 \times 10^{-1}$	$1.3 \times 10^{-1}$
$^{54}\text{Mn}$	$\gamma$	$5.9 \times 10^{-2}$	$3.7 \times 10^{-2}$
$^{125}\text{Sb}$	$\gamma$	$2.2 \times 10^{-1}$	$1.4 \times 10^{-1}$
$^{106}\text{Rh}$	$\gamma$	$1.1 \times 10^{+0}$	$7.1 \times 10^{-1}$
	$\beta$	$3.5 \times 10^{-2}$	$2.2 \times 10^{-2}$
$^{90}\text{Sr}$	$\beta$	$6.2 \times 10^{-2}$	$4.1 \times 10^{-2}$
$^{90}\text{Y}$	$\beta$	$1.1 \times 10^{+1}$	$7.2 \times 10^{+0}$

単位 [ $\mu\text{Sv/h}$ ]

値は、文献18に示されている制動放射を含む光子の線源強度のもとで行われた光子の輸送計算の解析評価値にほぼ一致している。

### 3.3 コンクリート敷地面に格子状に配置された周辺タンクからの影響

コンクリート敷地面にRO濃縮水貯留タンクが1基建ち、その中に $^{90}\text{Y}$ が単位体積当たり $1.0 \times 10^5 \text{ Bq/cc}$ の濃度で含まれている場合を考えて、コンクリート面から高さ1m、タンク表面から距離0.5m、1mの位置における空間線量率をリングディテクターで評価すると、FSDが0.05未満の精度でそれぞれ8.6、7.2  $\mu\text{Sv/h}$ と見積もられた。

次に、このような貯留タンクが多数配置されている場合を考える。東京電力の資料16, 17によるとRO濃縮水貯留タンクは図3のように、タンク中心間の距離が14m間隔の正方格子状に配置されている。タンク1基が周りのタンクに囲まれている配置において周辺タンクから受ける光子の反射の影響を、正方格子状タンク配置のもとで解析した。タンクが単独で1基ある場合に比べて、前述の位置における空間線量率は約5%の増加をみる。周辺タンクからの反射の影響は小さいが、周辺タンクから漏出する放射線が直接加算される位置においては、当然であるがタンクに囲まれた位置における空間線量率は高くなる。例えば、4基のタンクに囲まれた場合、タンク表面から約1m離れた高さ1mの位置における空間線量率は約30  $\mu\text{Sv/h}$ になると概算される。前述のタンクエリアの雰囲気線量率20~40  $\mu\text{Sv/h}$ を考慮するとさらにこの倍近くになる可能性がある。

### 3.4 近接する敷地境界での空間線量

東京電力の資料6, 7によると、増え続ける汚染水貯留タンクのため、RO貯留タンクから漏出する光子の直接線、あるいは、スカイシャイン線によりタンクエリアに近接する敷地境界での年間の空間線量率が8 mSvを越すことが報告されている。この結果は、制動放射を考慮したORIGEN2の光子ライブラリから求めたガンマ線強度を線源データとし、MCNPコードを用いたガンマ線の輸送計算で求められた。

本計算ではベータ壊変で放出される電子を線源に指定し、タンク内での電子・光子の輸送過程を直接シミュレーションすることにより、タンクから漏出した光子の直接線、およびスカイシャイン線による敷地境界で

の空間線量を評価した。敷地境界の空間線量率の解析は計算を2段階に分けて行なう。まず、円筒状にモデル化した体系でタンク表面周辺まで電子・光子を結合した輸送計算を行い、タンク表面から漏出する光子の面線源を求め(Surface Source Write機能を使用[10])、続いて、その面線源を線源(Surface Source Read機能を使用[10])としてタンクから離れた敷地境界までの光子の輸送計算を行った。スカイシャイン線の評価は、コンクリート面上タンク底面の中央を中心とする、半径1kmの半球の大気領域を設定して行った。ただし、現地に見られる評価地点とタンク設置エリア(以下、タンクエリア)との高低差は考慮していない。

解析対象は、東京電力の資料6, 7に報告されている境界地と線源エリアとの距離に近いG3タンクエリアとした。文献6, 7の図面から判断すると、図3に示すように、G3タンクエリアのタンク配置は6×7の格子状の配置になっており40基のタンクが設置されている。近接する敷地境界はG3西と称されている面から約70~80mの位置にあり、5~6基のタンクに直接面している。G3タンクエリアおよびタンク1基を線源とするこの距離までの空間線量を評価した。そして、中心のタンク1基と周辺タンク群からの寄与の関係を検討した。

文献7によると、G3タンクエリア40基のタンクに貯蔵されているRO濃縮水の量は $4.9 \times 10^{10} \text{ cm}^3$ である。解析は、 $^{90}\text{Y}$ の放射能濃度を $1.0 \times 10^5 \text{ Bq/cc}$ とし、G3タンク群全体を1つの円筒でモデル化した体系で行った。図4にタンクからの距離とその距離における高さ1mにおける空間線量率の計算結果を示す。

G3西に面する距離70, 80mの敷地境界における高さ1mにおける空間線量率はそれぞれ0.14, 0.10  $\mu\text{Sv/h}$ と見積もられた。1年間(8,760時間)の空間線量に単純換算すると1.2 mSv, 0.91 mSvとなり、

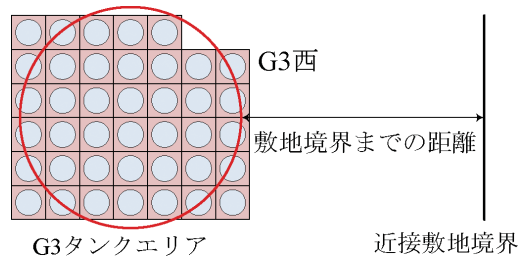


図3 G3タンクエリアのタンク配置と近接する敷地境界の模式図

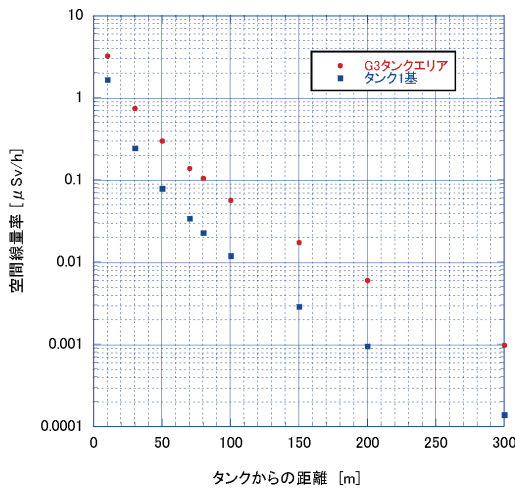


図4 G3 タンクエリアおよびタンク1基からの空間線量率距離依存

$^{90}\text{Y}$  の放射能濃度が  $1.0 \times 10^5 \text{ Bq/cc}$  の場合には、年間線量が  $1 \text{ mSv}$  を超える可能性があるとして評価された。

東京電力の資料 6, 7 には、G3 タンクエリアの  $^{90}\text{Y}$  の放射能濃度あるいは年間線量への換算法は明示されていないが、 $^{90}\text{Y}$  の放射能濃度として、敷地境界線量評価資料 5 に記載されている代表的な  $3.0 \times 10^5 \text{ Bq/cc}$  を想定すると、G3 西に近接する敷地境界の年間空間線量の報告値  $2.3 \text{ mSv}$  に近い値となる。

図 4 に示す G3 タンクエリアとタンク 1 基からの空間線量の距離依存の傾向を見ると、タンク面に近い  $10 \text{ m}$  程度の距離では線量評価点に近接するタンクからの寄与が大きく、距離が離れるに従い線量評価点に直接面する複数のタンクからの寄与が増大してくる傾向が現れている。タンクからの距離が  $50 \sim 100 \text{ m}$  の範囲ではタンク 1 基の空間線量率に線量評価点が直接望むタンクの数に乗じた値に近い。近接する敷地境界における空間線量はタンクからの直接線の寄与が大きいことを示している

#### 4. ま と め

福島第一原子力発電所では、熔融し原子炉圧力容器下に落下した燃料デブリを冷却するため、毎日約  $400 \text{ m}^3$  の冷却水が原子炉建屋に注水され循環している。しかし、ほぼ同量の地下水が原子炉建屋に流入し、放射能に汚染した冷却水が毎日約  $400 \text{ m}^3$  貯留タンク

に貯め込まれている。このため、発電所敷地内には汚染水を貯蔵するタンクが増え続けている。

損傷した原子炉建屋内には膨大な放射性物質が存在している [19]。例えば  $^{137}\text{Cs}$  は、炉心損傷時に大気中に放出された放射エネルギーは炉心に存在した量の約  $1.4\%$  で、現在約  $61.6\%$  が損傷した炉内に、約  $35.4\%$  が汚染水処理装置に吸着されて存在していると報告されている [20]。循環冷却水には多種の放射性核種が含まれるが、セシウムはセシウム吸着装置により除去され、続いて、RO 装置で濃縮後 RO 濃縮水貯留タンクに貯留されている。RO 濃縮水には  $40,000 \sim 500,000 \text{ Bq/cc}$  の  $^{90}\text{Sr}$  が含まれている。

$^{90}\text{Sr}$  はベータ壊変して  $^{90}\text{Y}$  に変り、 $^{90}\text{Y}$  もベータ壊変し安定核種  $^{90}\text{Zr}$  になる。この壊変過程では電子が放出され、ガンマ線はほとんど放出されない。電子の飛行は短く、タンク内でほとんど吸収されるため、タンクから漏出する放射線は、同じエネルギーでは電子に比べて飛行が長い光子であると考えられる。

東京電力は RO 濃縮水に含まれる放射性核種の放射能濃度から制動放射を考慮した ORIGEN2 ライブラリを用いてガンマ線強度を評価し、光子の輸送計算を行いタンク周辺に近接する空間線量を評価した。今後増加する RO 濃縮水の貯蔵量を見積もり、空間線量を評価した結果、年間線量が一般公衆の線量限度である  $1 \text{ mSv}$  を超え  $8 \text{ mSv}$  に達することが予想された。

RO 濃縮水に含まれる放射能の大部分はベータ壊変核種である  $^{90}\text{Sr}$  およびその娘核種  $^{90}\text{Y}$  である。ベータ壊変で放出される電子はタンク内でほとんど吸収されると考えられ、タンクから遠く離れた敷地境界の空間線量までにも影響を及ぼす過程は、タンク内での電子の挙動を解析し、タンク内および敷地境界に達する放射線情報を明らかにすることにより理解できる。タンク内で生じる制動放射の効果を考慮した光子ライブラリから光子を線源とする光子の輸送計算の解析の場合は、肝心の光子源となる電子がタンク内で具体的にどのように挙動した結果であるかということと結びつけることができない。RO 濃縮水貯留タンクの増加とともに、多量の放射能の漏洩またタンク周辺の被ばく線量の増加という危険性が増し、その危険性を検討するためには RO 濃縮水貯留タンクを線源領域とする電子および光子の振る舞いに関する基礎的な物理データが必要となる。また、現在利用できる制動放射を考慮した ORIGEN2 光子ライブラリは二酸化ウランと水の 2 つの物質に限られる。このため、物質内の電子の通過

を直接シミュレーションし制動放射を評価する解析手法を検討しておくことが望まれる。

本稿では、RO濃縮水貯留タンク内においてベータ壊変により発生する電子、およびその電子がRO濃縮水を通過する過程で発生する電子および光子の輸送過程を、モンテカルロ法コードであるMCNPを使用してシミュレーションし、タンク内、タンク壁、および、タンクから漏出する電子・光子のフラックス、エネルギースペクトル、および、エネルギー吸収・漏出割合を評価した。

RO濃縮水に含まれる放射性核種の中でタンク周辺の空間線量に大きく寄与する核種は、放射能濃度が圧倒的に大きい $^{90}\text{Sr}$ 核種のベータ壊変で生成される娘核種 $^{90}\text{Y}$ であった。1 Bqの $^{90}\text{Y}$ のベータ壊変で平均エネルギー0.933 MeVの電子が放出されるが、発生エネルギーのほぼ100%がタンク内で、約0.04% (0.00036 MeV)がタンク壁で吸収され、タンク壁から漏出するエネルギーは光子によるものであり、発生量の5万分の1程度(0.000018 MeV)であった。漏出する光子のエネルギー範囲は0.1 MeV~1 MeVであった。

タンクから漏出するエネルギーの割合は非常に小さいが、含まれる放射能濃度が非常に高いため、タンク周辺の空間線量への影響を評価しなければならない結果となっていることに注意する必要がある。

本稿では、報告されている放射能濃度の測定結果に基づき標準的な放射能濃度を仮定し、各放射性核種のタンク周辺空間線量に及ぼされる影響を評価した。 $^{90}\text{Y}$ の放射能濃度を $1.0 \times 10^5$  Bq/ccとして解析したタンク表面の空間線量率は約 $10 \mu\text{Sv/h}$ であった。この値は、制動放射の寄与を線源強度に含めた光子の輸送計算の評価結果である東京電力の報告値に近い。また、タンク表面から1 m離れた高さ1 mにおける空間線量率は約 $7 \mu\text{Sv/h}$ と評価された。タンクエリア内の四方がタンクに囲まれた位置では約 $30 \mu\text{Sv/h}$ に達する高い線量となると予想された。

本解析には、タンクエリアの領域においてベータ壊変で発生した電子を線源とする電子・光子電磁カスケード現象をシミュレーションする手法を用い、タンクから漏出する面線源を求め、続いて、面線源を線源とする光子の輸送計算を行うことにより敷地境界の空間線量を評価した。その結果、 $^{90}\text{Y}$ の放射能濃度を $1.0 \times 10^5$  Bq/ccとしたタンクエリアG3西に面する距離70, 80 mの敷地境界での年間空間線量は1.2 mSv、

0.91 mSvと見積もられた。この値は東京電力の報告値の約半分であるが、タンク内の $^{90}\text{Y}$ の放射能濃度を実測されている値 $3.0 \times 10^5$  Bq/ccで評価すると東京電力の報告値と同程度になる。本計算手法でもRO濃縮水貯留タンクに近接する敷地境界では年間線量が公衆の線量限度である1 mSvを超える勢いであることが確認された。今後ますますタンクの増設が続くと敷地境界での年間線量は増加し続けることになる。

さらに、RO濃縮水貯留タンクに含まれる $^{90}\text{Y}$ 以外の核種 $^{134}\text{Cs}$ と $^{106}\text{Rh}$ については、本稿で仮定した放射能濃度での空間線量への影響は $^{90}\text{Y}$ の約10%と見積もられたが、タンク内の濃度が仮定値の10倍になると $^{90}\text{Y}$ と同程度の影響を与えることになる。このため、タンク内のこれらの核種の濃度を常に監視する必要がある。

解析結果と、これまで報告されている測定値、報告値との比較から示されるように、本解析手法により得られた結果は重要な基礎データとなることが期待できる。

## 参考文献

- [1] 東京電力株式会社：「福島第一原子力発電所1~3号機の炉心・格納容器の状態の推定と未解明問題に関する検討 第2回進捗報告」(平成26年8月6日)
- [2] H. Yamagata, "Updated Status of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station~Regulation, Overview, Actions~", Nuclear Regulation Division for BWR Nuclear Regulation Authority (NRA), Japan, September 2013, 東京電力株式会社：「福島第一原子力発電所における汚染水対策について」(2013年9月27日)
- [3] 東京電力株式会社：「RO濃縮水用モバイル型ストロンチウム除去装置について」(平成26年2月27日)
- [4] Allen G. Croff, "ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials", Nuclear Technology, vol.62, September 1983
- [5] 東京電力株式会社：「地下貯水槽からのRO濃縮水移送に伴うタンク類からの直接線・スカイシャイン線による敷地境界線量の見直しについて」(平成25年5月17日)
- [6] 東京電力株式会社：「福島第一原子力発電所敷地境界における実効線量について」(平成26年1月31日)
- [7] Tokyo Electric Power Company, "Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Modification for the Dose



- Evaluation at the Site Boundary”, December 13, 2013
- [ 8 ] Richard B. Firestone, Virginia S. Shirley ed., “Table of Isotopes, 8th ed.”, John Wiley & Sons, Inc, 1996.
- [ 9 ] ICRP, ICRP PUBLICATION 107, “Nuclear Decay Data for Dosimetric Calculations”, ELSEVIER (2008)
- [10] LA-UR-03-1987 “MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version5, Volume I: Overview and Theory”, Los Alamos, April 24, 2003.
- [11] W. Heitler, “The Quantum Theory of Radiation” 3rd ed., Oxford University Press, 1954
- [12] 中村尚司：「放射線物理と加速器安全の工学 第2版」, 地人書館 (2001)
- [13] 「モンテカルロ計算ハンドブック」日本原子力学会 (2006年9月), 梅田健太郎, 小林悌二：「除染・遮蔽による空間線量低減効果のモンテカルロ法による解析」, 東北工業大学紀要 I: 理工学編, 第33号 (2013年3月)
- [14] David P. Gierga, “Electron Photon Calculations using MCNP”, Master Thesis, Massachusetts Institute of Technology, 1998
- [15] 「放射線遮蔽計算のための線量換算係数」日本原子力学会 (2010年)
- [16] 東京電力株式会社：「汚染水貯留タンクの保全について」(平成25年5月16日), 東京電力株式会社：「資料2 東京電力福島第一原子力発電所汚染水対策の対応」(平成25年10月9日)
- [17] 東京電力株式会社：「汚染水貯留タンクからの漏えいについて」(平成25年10月15日)
- [18] 東京電力株式会社：「特定原子力施設監視・評価検討会 (第18回) の参考3「前回会合後に外部専門家から出されたご意見」に対する回答」(平成26年3月31日)
- [19] 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也：「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」, JAEA-Data/Code 2012-018 (September 2012)
- [20] 宮本泰明, 石川真澄：「放射性廃棄物処理・処分に関する研究の現状と課題」, 日本原子力学会誌, Vol. 56, No. 8 (2014)