1．基本情報

区分	市街地	担当者名	古米弘明、尾崎則篤、和田桂子
タイトル（英文）	Watershed wash-off of atmospherically deposited radionuclides: a review of normalized entrainment coefficients		
タイトル（和文）	大気降下由来の放射性元素の流域からの流出：正規化同調係数（normalized entrainment coefficients）についてのレビュー		
キーワード	Wash-off, Runoff, Radionuclide, Watershed, Review, Normalized entrainment coefficients		
著者	L. Garcia-Sanchez, A.V. Konoplev		
文献	Journal of Environmental Radioactivity, 100, 774-778, 2009		

（1）対象地域

チェルノブイリ原子力発電所の立ち入り禁止区域内（within the exclusion zone around the Chernobyl plant）

（2）重要な図表

液体/個体の正規化同調係数（Liquid/solid normalized entrainment coefficients ）（K_1*, K_s*)は(1)、(2)式で表現される。

$$K_1^* = \frac{\overline{[M]}_{wat}}{\overline{[M]}_{soil}} \quad (/\mathrm{m}) \qquad (1)$$

$$K_s^* = \frac{\overline{[M]}_{sm}}{\overline{[M]}_{soil}} \quad \left(\mathrm{m^2/g}\right) \qquad (2)$$

$[M]_{soil}$ (Bq/m²) は物質 M の土壌の初期汚染濃度の平均値、$[M]_{wat}$(Bq/L)は物質 M の溶存態の河川水中での平均濃度（流出 M 量(Bq)/流出水量(L)）、$[M]_{sm}$(Bq/g)は物質 M の SS 中の平均濃度（流出 M 量(Bq)/流出 SS 量(g)）

よって D=$[M]_{soil}$ (Bq/m²)が与えられると、

$$\overline{[M]}_{wat} = DK_1^* \quad \left(\mathrm{Bq/m^3}\right) \qquad (3)$$

$$\overline{[M]}_{sm} = DK_s^* \quad (\mathrm{Bq/g}) \qquad (4)$$

となり、流量 Q_{wat}(m³/s)、SS 流出量 Q_{sm}(g/s)によって、河口部分における物質 M の溶存態・懸濁態の総流出量は

$$\Phi_1 = Q_{wat} D K_1^* \quad (\mathrm{Bq/s}) \tag{5}$$

$$\Phi_1 = Q_{sm} D K_s^* \quad (\mathrm{Bq/s}) \tag{6}$$

と計算できる。

Table.1 は既存文献における K_1*, K_s*の値である。

Table 1
Reported values of normalized entrainment coefficients for liquid and solid wash-off.

Process	Parameter	Nuclide	Range	Unit	References
Liquid wash-off	K_l^*	^{144}Ce	2.00×10^{-6}–6.00×10^{-6}	(/mm)	Konoplev et al. (1992)
Liquid wash-off	K_l^*	^{134}Cs	3.00×10^{-6}–3.50×10^{-5}	(/mm)	Konoplev et al. (1992)
Liquid wash-off	K_l^*	^{137}Cs	1.90×10^{-6}–1.20×10^{-4}	(/mm)	Borzilov et al. (1988), Bulgakov et al. (1991, 1999), and Konoplev et al. (1992)
Liquid wash-off	K_l^*	^{103}Ru	7.00×10^{-6}–1.60×10^{-5}	(/mm)	Konoplev et al. (1992)
Liquid wash-off	K_l^*	^{90}Sr	1.93×10^{-6}–1.80×10^{-4}	(/mm)	Borzilov et al. (1988), Bulgakov et al. (1991, 1999), Konoplev et al. (1992), and Pisarev et al. (1972)
Solid wash-off	K_s^*	^{137}Cs	1.60×10^{-5}–6.70×10^{-4}	(m^2/g)	Borzilov et al. (1988) and Bulgakov et al. (1991)
Solid wash-off	K_s^*	^{90}Sr	6.50×10^{-6}–3.10×10^{-4}	(m^2/g)	Borzilov et al. (1988) and Bulgakov et al. (1991)

表層土壌汚染が雨水流出水との間で平衡状態にあるとき K_1*は(7)式で表現できる（Bulgakov et al., 1999)。

$$K_1^* = \frac{\beta}{h(\theta + \rho K_d)} \tag{7}$$

ここで h は流出土壌深さ(m)、β は全放射能物質の対象物質割合(-)、θ は土壌水分含有量(m^3/m^3)、ρ は土壌密度(kg/m^3)、K_d は雨水流出時の分配係数(m3/kg)を表す。

ただし、対象物質のうち α_{ex} (–)が溶存態(exchangeable と記載あり)として流出することを考えると、

$$K_1^* = \frac{\beta}{h\left(\theta + \frac{\rho K_d^{ex}}{\alpha_{ex}}\right)} \tag{8}$$

と表せる。ここで K_d^{ex} は対象物質の溶存態の分配係数(m^3/kg)。

ρ（土壌密度(kg/m^3)）と h（流出土壌深さ(m) ）は一定と考えられ、また θ（土壌水分含有量(m^3/m^3)）は ρK_d に比べて非常に小さい値なので無視することが出来るため、異なる条件（(1),(2)）下における K_1*の比は(9)式のように表せる。

$$\frac{K_l^*(2)}{K_l^*(1)} \simeq \frac{\alpha_{ex}(2)}{\alpha_{ex}(1)} \frac{K_d^{ex}(1)}{K_d^{ex}(2)} \qquad (9)$$

α_{ex}はソースターム（炉心損傷事故における核分裂生成物の種類、化学形、放出量の総称。出典：緊急被ばく医療研修のホームページ: http://www.remnet.jp/lecture/words2003/03118.html）と土壌中での形態変化に応じて変化する。チェルノブリ事故当時、^{137}Cs の場合チェルノブイリではα_{ex}は 0.25、Bryansk 地域では Cumbria 地域では 0.90 であった(Hilton et al., 1992)。

K_d は対象物質の土壌への親和性の大きさを表し、これは対象物質と競合する物質の陽イオン双方のK_d^{ex}（溶存態の分配係数(m³/kg)）の比の大きさ(K_C)と対応している。チェルノブイリ原子力発電所近くの立ち入り禁止区域での値は K_C(Sr/Ca)＝2.1±0.9、K_C(Cs/K)＝20±4(Konoplev and Bulgakov, 1995b)であった。

K_s*は同じように(10)式のように推定できる。

$$K_s^* \simeq \frac{\beta e}{h\rho} \qquad (10)$$

ここで e (–) は表層土壌中の対象物質濃度と、流出水中の SS 中に対象物質濃度の比である。

Entrainment coefficients (K_l*, K_s*)と輸送関数(Transfer function: consist in hypotheses postulating invariance and predictability of a system's responses to stimulations (e.g. Jury and Roth, 1990))の数学的な比較が著者らによって行われた。(11)式は輸送関数による放射能物質の流出量推定式である。

$$S\int_0^t D(\tau)f(t-\tau)\mathrm{d}\tau \quad (\mathrm{Bq/s}) \qquad (11)$$

ここで fは時刻 t における流出関数（時刻 τ に放射能の地表へ降下量 $D(\tau)$ (Bq/m²/s)）であり、S(m²)は汚染地域の面積を表す。

ここで時刻 t_1 から t_2 における累積流出量 F(Bq)は(12)式で表せる。$\Phi_1(t)$は(11)式を表しており、exp(λt)は放射能物質の減衰を無視するための式(流出関数 fに放射能物質の減衰式が含まれている？)である。

$$F = \int_{t_1}^{t_2} \Phi_1(t)\exp(\lambda t)\mathrm{d}t \qquad (12)$$

放射能の降下が時刻 0 のみに起き（(11)式で τ ＝0 の定数として)、流出関数 f_l が連続関数である時、f_l(t)exp(λ t)も連続関数であり、t_1 と t_2 の間には(13)式＝(14)式となるような t^*が存在する。

$$F = \int_{t_1}^{t_2} SD_0 f_l(t)\exp(\lambda t)\mathrm{d}t \qquad (13)$$

$$= SD_0(t_2 - t_1)f_l\left(t^*\right)\exp\left(\lambda t^*\right) \qquad (14)$$

ここで流量 Q_{wat}(m³/s)と対象放射能物質の溶存態の河川水中での濃度$[M]_{wat}$(Bq/L)を用いて、時刻 t_1 から t_2 における累積流出量 F(Bq)は(15)式で表せる。(15)式に(3)式を代入すると(16)式が得られる。ここで t_e は t_1 と t_2 の間に存在し、時刻 t_e から時刻 $t_e+\Delta t$ 間の流出水量を V_{wat} とする。

$$F = \int_{t_1}^{t_2} Q_{wat}(t)\overline{[M]}_{wat}(t)\exp(\lambda t)dt \qquad (15)$$

$$= \sum_{t_e} V_{wat}(t_e)K_1^*(t_e)\overline{[M]}_{soil}(t_e)\exp(\lambda t_e) \qquad (16)$$

時刻 t における表層土壌中の放射能物質濃度は、放射能物質の減衰を考慮して$[M]_{soil}$ (Bq/m²)＝$D_0\exp(-\lambda t)$と近似できると考えられるので、(17)式が得られる。

$$F \simeq D_0 \sum_{t_e} V_{wat}(t_e)K_1^*(t_e) \qquad (17)$$

(14)式＝(17)式として、

$$f_1(t^*) \simeq \frac{\exp(-\lambda t^*)}{S(t_2-t_1)} \sum_{t_e} V_{wat}(t_e)K_1^*(t_e) \qquad (18)$$

の関係式を得る。

ここで注意すべきは輸送関数は事故後長期間後の放射能の流出を表すモデルであり、(18)式にも示されている通り、Entrainment coefficient (K_1*)による流出量の累積値を経過時間(t_2-t_1)で除す（平均流出量の算出）ことによって求められているために、1 つ 1 つの降雨の特徴が大きな意味を持つ短期間での流出量の算定には向いていないと著者らは指摘している。

2. 提言につながる情報

（1）モニタリングへの活用

特になし

（2）流出挙動・経路

土壌中の放射能物質の雨水による流出減少が扱われていた。Entrainment coefficients (K_1*, K_s*)という係数が放射能物質の雨水流出を定量的に評価するためのものとして挙げられていたが、これらの係数は場所、降雨による変動が大きく、実際の現場での適用は慎重に必要がある。

（3）除染の際の留意点

特になし

（4）担当者のコメント

放射性元素の流出は長期的に考える必要がある場合と、短期的に考える必要がある場合があり、それぞれの場合で必要な計算式が異なる。この論文においては長期的に考える場合の計算式と、短期的に考える場合の計算式の数学的な比較が行われており、放射性元素流出計算へどの計算式を使用するのが適切かどうか慎重に検討する必要があることが示唆されている。