

JAERI-Conf



JP9950125

99-001



クロスオーバー研究シンポジウム
「放射性物質の環境移行研究の新たな展開」報告集
1998年11月26日-27日、理化学研究所、和光市

1999年3月

(編) 松本史朗*・内田滋夫*・山澤弘実・天野 光

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

クロスオーバー研究シンポジウム「放射性物質の環境移行研究の新たな展開」報告集

1998年11月26日-27日、理化学研究所、和光市

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター環境安全研究部

(編) 松本 史朗*・内田 滋夫**・山澤 弘実・天野 光

(1999年1月25日受理)

本シンポジウムは、原子力基盤技術総合的研究推進委員会、放射線リスク評価・低減化研究交流委員会の主催、そして理化学研究所微生物制御研究室及び日本原子力研究所環境化学研究室の共催で開催された。

1991年に、放射線リスク評価・低減化研究交流委員会の下で「陸園における放射性核種の移行モデルとパラメータに関する研究」プロジェクトが始まった。このプロジェクトは、5つの研究所、すなわち、日本原子力研究所、気象研究所、放射線医学総合研究所、理化学研究所、動力炉・核燃料開発事業団、が参加した。これらの研究所との「クロスオーバー研究」により、5カ年で貴重な成果を上げることが出来た。そして、1996年から「陸域環境における放射性核種の移行に関する動的解析モデルの開発」という新しい研究プロジェクトがスタートした。本プロジェクトには、上記の5つの研究所に加えて、環境科学技術研究所が参加している。本シンポジウムは、このプロジェクト研究の成果を発表するとともに、この分野における多くの研究者との情報交換を行うことを目的としたものである。

このシンポジウムには約120名の参加者があった。シンポジウムでの議論は、このクロスオーバー研究プロジェクトを進める上で非常に有益なものであった。また、将来、この分野における多くの研究者との共同研究へと引き継がれて行くものと信じる。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

* 埼玉大学

** 放射線医学総合研究所

Proceedings of the Cross-Over Symposium
"New Approaches for Studies on Environmental Radioactivity"
November 26-27, 1998, RIKEN, Wako-shi, Japan

(Eds.) Shiro MATSUMOTO*, Shigeo UCHIDA**,
Hiromi YAMAZAWA and Hikaru AMANO

Department of Environmental Safety Research
Nuclear Safety Research Center
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 25, 1999)

This conference was organized by the Promotion Committee on Nuclear Cross-Over Research and the Specialist Committee on Assessment & Reduction of Radiation Risks, and co-organized by Microbial Toxicology Lab., RIKEN and Environmental Chemistry Lab., JAERI.

In 1991, a project on transfer models and parameters of radionuclides in terrestrial environment was started in the Specialist Committee on Assessment & Reduction of Radiation Risks. This project was finished successfully to have active cooperation of different organizations which were Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), Meteorological Research Institute (MRI), National Institute of Radiological Sciences (NIRS), the Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN) and Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC). Subsequently, we started a new project named "Development of dynamic models of transfer of radionuclides in the terrestrial environment" with adding a new member, Institute for Environmental Sciences (IES) from 1996. The results we obtained so far were presented in this conference.

About 120 specialists attended in this conference. We believe the discussions in this conference were of great help to the crossover research project and also will be expected to reach some agreements which could lead to fruitful cooperation among scientists concerned with all aspects of the radiological consequences of radionuclides in the terrestrial environment in the future.

Keywords: Cross-Over Research, Radioactivity, Dynamic Model, Transfer, Terrestrial Environment

* Saitama University

** National Institute of Radiological Sciences

目 次

1. 前書き	1
(シンポジウム実行委員会) 内田滋夫・松本史朗	
2. 環境試料中の ^{240}Pu / ^{239}Pu 比の測定とそれが意味するもの	4
村松康行	
3. 水田および畑作土に存在する ^{137}Cs の滞留半減時間	12
駒村美佐子・津村昭人・小平 潔	
4. 降水・降下塵中の ^{90}Sr および ^{137}Cs の観測データとその環境挙動研究への利用	24
五十嵐康人・青山道夫・宮尾 孝・広瀬勝己	
5. チェルノブイル事故炉周辺環境における長半減期放射性核種の分布と挙動	35
天野 光・松永 武・上野 隆・長尾誠也・柳瀬信之・渡辺美紀・半澤有希子	
6. チェルノブイル周辺のテクネチウム-99濃度と土壤-植物系における移行	49
田上恵子・内田滋夫	
7. 旧ソ連セミパラチンスク核実験場及びその周辺地域におけるPu同位体と ^{137}Cs の分布	59
山本政儀・星 正治・高田 純・塚谷恒雄・A. Kh. Sekerbaev・B. I. Busev	
8. 事故時トリチウム移行評価コードU F O T R I の現状と最近の応用	81
W. Raskob	
9. 東アジアの酸性物質の長距離輸送評価	97
市川陽一・速水 洋	
10. 広域拡散モデル -東アジアの硫黄酸化物の輸送-	109
千葉 長・佐藤純次	
11. 大気拡散モデルを用いたラドン濃度変動の解析	119
坂下哲哉・村上俊行・飯田孝夫・池辺幸正	
12. 放射性核種の地表面、地被物への沈着、付着と再移動に関する研究	135
栗田 進・栗原和夫	
13. 水循環モデルの開発とトリチウム拡散への応用	151
山澤弘実・永井晴康	
14. 環境中トリチウム移行モデル-E T D O S E-の開発	161
安藤麻里子・高橋知之・天野 光	
15. 土壤-植物系における核種移行に関する検討	170
森田重光・渡辺 均・片桐裕実・篠原邦彦	
16. 放射性核種の生育段階別経根吸収量の評価	178
安部静子	

17. 大気から植物・土壤への重水水蒸気沈着挙動	186
安藤麻里子・天野 光・一政満子・一政祐輔	
18. 環境研全天候型人工気象施設の概要	196
久松俊一	
19. 放射性核種の土壤から植物への移行に関する根圈土壤ファクター	202
有江 力・S. Gouthu・平田博明・安部静子・山口 勇	
20. 微生物によるウラン・プルトニウムの生体濃縮	213
坂口孝司	
21. 水田土壤における物質循環と微生物の働き	215
犬伏和之	
22. 水循環系の管理と物質循環	225
三野 徹	
23. 六ヶ所村の汽水湖尾駿沼における放射性核種等の挙動	241
近藤邦男・植田真司・川端一史・長谷川英尚・大桃洋一郎	
24. 潟沼におけるCs-137移行モデルの検討	246
武石 稔	
25. 河川による放射性核種の移行	258
松永 武	

Contents

1. Preface	1
Shigeo Uchida, Shiro Matsumoto (Symposium Organizing Committee)	
2. Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio and its significance in environmental studies	4
Yasuyuki Muramatsu	
3. Residence half-time of ^{137}Cs in the top-soils of Japanese paddy and upland fields	12
Misako Komamura, Akito Tsumura, Kiyoshi Kodaira	
4. Observation of the ^{90}Sr and ^{137}Cs deposition and its application to the research on environmental behavior of radionuclides	24
Yasuhiro Igarashi, Michio Aoyama, Takashi Miyao, Katsumi Hirose	
5. Distribution and migration of long lived radionuclides in the environment around the Chernobyl Nuclear Power Plant	35
Hikaru Amano, Takeshi Matsunaga, Takashi Ueno, Seiya Nagao, Nobuyuki Yanase, Miki Watanabe, Yukiko Hanzawa	
6. The concentrations of Chernobyl fallout technetium-99 in soils and plants and the transfer in a soil-to-plant system	49
Keiko Tagami, Shigeo Uchida	
7. Distribution of Pu isotopes and ^{137}Cs in and around the former Soviet Union's Semipalatinsk nuclear test site	59
Masayoshi Yamamoto, Masaharu Hoshi, Jun Takada, Tsuneo Tsukatani, Alexander Kh. Sekerbaev, Boris I. Busev	
8. The present status and recent applications of the accidental tritium assessment code UFOTRI	81
W. Raskob	
9. Evaluation of long-range transport of acidic substances in East Asia	97
Yoichi Ichikawa, Hiroshi Hayami	
10. Long range transport model - Long range transport of sulfate material over East Asia -	109
Masaru Chiba, Junji Sato	
11. Analyses of the variation of Rn-222 concentration using the atmospheric dispersion model ..	119
Tetsuya Sakashita, Toshiyuki Murakami, Takao Iida, Yukimasa Ikebe	
12. Studies on deposition, adhesion and resuspension of radioactive substances on the ground surface and ground cover	135
Susumu Kurita, Kazuo Kurihara	
13. Development of water circulation model and application to tritium diffusion	151
Hiromi Yamazawa, Haruyasu Nagai	

14. Development of an environmental tritium model; ETDOSE	161
Mariko Andoh, Tomoyuki Takahashi, Hikaru Amano	
15. Study on transfer behavior of radionuclides from soil to plant	170
Shigemitsu Morita, Hitoshi Watanabe, Hiromi Katagiri, Kunihiko Shinohara	
16. Evaluation of absorption of radionuclides via roots of plants at different growth stages	178
Shizuko Ambe	
17. Deposition of heavy water vapor from air to plant and soil	186
Mariko Andoh, Hikaru Amano, Mitsuko Ichimasa, Yusuke Ichimasa	
18. Artificial Climate Experiment Facility in Institute for Environmental Sciences	196
Shun'ichi Hisamatsu	
19. Plant uptake of radionuclides and rhizosphere factors	202
Tsutomu Arie, Satyanarayana Gouthu, Hiroaki Hirata, Shizuko Ambe, Isamu Yamaguchi	
20. Bioaccumulation of uranium and plutonium by microorganisms	213
Takashi Sakaguchi	
21. Cycles of Materials and roles of microorganisms in paddy soil	215
Kazuyuki Inubushi	
22. Management of water cycle system and biogeochemical cycle	225
Toru Mitsuno	
23. Behavior of radioactive and stable elements in the brackish Lake Obuchi in Rokkasho Village	241
Kunio Kondo, Shinji Ueda, Hitoshi Kawabata, Hidenao Hasegawa, Yoichiro Ohmomo	
24. Study on transfer model of ^{137}Cs in Lake Hinuma	246
Minoru Takeishi	
25. Migration of radionuclides through a river system	258
Takeshi Matsunaga	

1. 前書き

内田滋夫、松本史朗
シンポジウム実行委員会

原子力基盤総合的研究（クロスオーバー研究）（核種移行）においては、第1期（平成3年度－平成7年度）に、モデルやパラメータを改良し、局地における放射性核種挙動の予測精度の向上を図ってきた。さらに、第1期の結果を踏まえ、第2期（平成8年度－平成10年度）では、動的な移行を対象として研究を行ってきた。

一般に、平衡状態を想定して得られる環境中の核種濃度予測は、原子力施設が長期にわたり安定した運転条件下にある時の安全評価には、十分役立つ情報である。一方、緊急時には、放射性物質の環境への放出率が変化し、さらにその拡散、移行を支配する気象その他の環境条件も一定しない短期間に、周辺住民の避難等防護対策を実施する必要がある。このような状況では可能な限り現実的な影響予測が不可欠であり、したがって核種の濃度の時間的、空間的变化を推定する、いわゆる放射性物質の動的解析モデルが必用となる。また、この種のモデルは平衡状態を想定した安全評価の安全裕度を把握することにも応用できる。第2期における研究は、このような視点に立って設定された。日本原子力研究所、気象研究所、放射線医学総合研究所、理化学研究所、動力炉・核燃料開発事業団および環境科学技術研究所の六機関がそれぞれ分担課題を持って参加している。

参加研究機関が一つのキーコンセプトを介してそれぞれの得意な分野を分担するということが、クロスオーバー研究の利点である。本研究では、環境という複雑なシステムをできる限り多面的に考察する一方、大気－土壤－植物系における核種移行を、水循環をキーコンセプトとして解析する事に努めた。本シンポジウムの目的は、これまでの研究成果を発表するとともに、この分野における多くの研究者との情報交換を通じ、研究をさらに推進することにある。

このシンポジウムは、平成7年9月4－5日に水戸で開催された「クロスオーバー研究シンポジウム：汚染物質の環境挙動予測に関する局地規模詳細モデルならびにその移行パラメータ」に続くものである。前回でのシンポジウムでは取り上げることができなかった「水圏での挙動」「微生物の影響」について、今回セッションを設けており、本シンポジウムを通じて、クロスオーバー研究における新たな発展を期待したい。

最後に、本シンポジウムのホストをお願いした理化学研究所微生物制御研究室、並びに後援していただいた日本保健物理学会および日本原子力学会に心からお礼申し上げる。

以下に、シンポジウム実行委員会委員一覧および各セッションの座長一覧を付す。

クロスオーバー研究シンポジウム実行委員会委員一覧

委員長	松本 史朗	埼玉大学
副委員長	山口 勇	理化学研究所
"	内田 滋夫	放射線医学総合研究所
委 員	天野 光	日本原子力研究所
"	近藤 邦男	環境科学技術研究所
"	千葉 長	気象研究所
"	森田 重光	核燃料サイクル機構
"	有江 力	理化学研究所
"	山澤 弘実	日本原子力研究所

実行委員会事務局

内田 滋夫	放射線医学総合研究所
山澤 弘実	日本原子力研究所
有江 力	理化学研究所

座長一覧 (担当セッション順、敬称略)

A) 環境試料中の核種・元素分析およびデータ解析

A-1) グローバルフォールアウトデータ

樋口 英雄 日本分析センター

A-2) 事故による高濃度汚染地域における核種の分布と移行

百島 則幸 九州大学

特別講演 I

斎藤眞弘 京都大学

B) 環境移行モデル

B-1) 大気拡散モデル

吉川友章 広島大学

B-2) 大気-土壤-植物系移行モデル

飯嶋敏哲 原子力発電技術機構

C) 土壤-植物への移行

大桃洋一郎 環境科学技術研究所

話題提供

山崎慎一 東北大学

D) 有機物・微生物の影響

山口 勇 理化学研究所

特別講演 II

内田滋夫 放射線医学総合研究所

E) 陸水系における挙動

清水 誠 日本大学



2. 環境試料中の ^{240}Pu / ^{239}Pu 比の測定とそれが意味するもの

村松 康行 放射線医学総合研究所

環境試料中のプルトニウムの化学分離法及び同位体比の測定法についてICP-MSを用い検討した。この方法による溶液中のプルトニウムの検出下限値は 0.02 pg ml^{-1} (^{239}Pu : 0.05 mBq ml^{-1} , ^{240}Pu : 0.17 mBq ml^{-1}) であった。IAEAの比較標準試料を分析したところ、 $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度は保証値と良い一致を示した。比較標準試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比に関する報告値は殆どないが、今回それらに関する基礎的な情報を提供できた。また、アイリッシュ海、ムルロア環礁、マーシャル諸島の堆積物、チェルノブイリ等海外の土壤（又は堆積物）、並びに、日本で採取した土壤中（長崎で採取した試料も含む）のプルトニウム濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比に関する情報を得ることができた。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比は約0.04～0.4と広い範囲にあり、汚染源により大きく異なることが分かった。プルトニウム濃度だけでなく $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比を調べることにより放出源情報を得ることができ、また、環境挙動を解明する上でも有効な知見を提供してくれる。

Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio and its significance in environmental studies

Yasuyuki MURAMATSU

National Institute of Radiological Sciences

Analytical procedures for the determination of Pu concentrations and its isotopic ratios in environmental samples were developed by using ICP-MS. Detection limit of Pu by ICP-MS was about 0.02 pg ml^{-1} (0.05 mBq ml^{-1} for ^{239}Pu ; 0.17 mBq ml^{-1} for ^{240}Pu) in the sample solution. Analytical results of $^{239+240}\text{Pu}$ in IAEA standard reference materials indicated that the accuracy of this method was satisfactory. Data on the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios, which are rare in the literature, were also obtained for soil and sediment samples (including IAEA standard reference materials) from different areas such as Irish Sea, Mururoa Atoll, Marshall Islands, Chernobyl, Kyshtym, Nagasaki and some other places in Japan. The range of the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratios was about 0.04-0.4, and the ratios are depending on the origin of the materials. Analytical results for the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratios provide information about the source of the contamination and the transfer of plutonium in the environment.

Keyword

Plutonium, ICP-MS, Analysis, Atomic ratio, Environmental samples,

Standard reference materials

1. 序論

プルトニウムの環境中における濃度と動態を調べることは核燃料サイクルに係わる環境安全評価上大変重要と考えられる。現在環境中に存在するプルトニウムの多くが核実験により放出されたものであり、その総量は $^{239+240}\text{Pu}$ として 10^4 TBq と推定されている⁽¹⁾。核実験以外では、セラフィールド⁽²⁾⁽³⁾、キスティム⁽⁴⁾、切尔ノブイリ⁽⁵⁾などの施設より放出されており周辺環境が汚染されている。プルトニウムの同位体は質量数232～246まで知られている。その中でも環境汚染を考える上で重要なものは、 ^{238}Pu （半減期：87.7年）、 ^{239}Pu （半減期：24110年）、 ^{240}Pu （半減期：6580年）と ^{241}Pu （半減期：14.4年）である（Table- 1）。特に ^{239}Pu と ^{240}Pu は存在量が多いため特に注目されている。

Table 1 Plutonium isotopes and their half-lives and energies.

Nuclide	Half-life (year)	Energy (MeV) Alpha	Energy (MeV) Beta
Pu-236	2.85	5.768 (69%) 5.721 (31%)	
Pu-238	87.74	5.499 (72%) 5.459 (28%)	
Pu-239	24110	5.157 (73%) 5.144 (15%) 5.105 (11%)	
Pu-240	6580	5.168 (76%) 5.124 (24%)	
Pu-241	14.4	4.896 (0.002%)	0.021 (99.9%)
Pu-242	8.26×10^7	4.589 (81%) 5.443 (14%)	

プルトニウムの分析法として広く用いられているのは、 α スペクトロメトリー法であり信頼性は高いが、分析操作と測定に時間と手間がかかる。また、この方法では ^{239}Pu 以外にも ^{238}Pu 、 ^{241}Pu 等の同位体は測定できるが、 ^{240}Pu は ^{239}Pu とエネルギーが近いため分離測定は難しい。 ^{239}Pu と ^{240}Pu の同位体の測定はTIMSなどの質量分析法を用いることにより正確に求められる⁽⁶⁾⁽⁷⁾。しかしこの方法は機器が大変高価であり又分析や機器の操作を行う上でかなりの経験が必要である。本研究では、近年微量元素の分析の分野で利用が広まっているICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析法）を用いプルトニウムの同位体分析を検討した。ICP-MS法は通常安定元素の分析に用いられているが、検出感度に富んでいることから、長半減期核種の分析にも適している⁽⁸⁾。Kim et al. (1989)⁽⁹⁾、Crain et al. (1995)⁽¹⁰⁾ や Yamamoto et al. (1996)⁽¹¹⁾ はICP-MS法を用い環境試料中のプルトニウムの分析を行って良い成果をだしている。しかし、現在のところプルトニウムの分析にICP-MSを応用した例はそれ程多くなく、ICP-MSに適した化学分離法についてあまり述べられていない。ここでは、土壤試料を中心にPuの分離濃縮法を検討し、ICP-MSを用い ^{239}Pu と ^{240}Pu の分

析法を行い、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比を求めた。また、環境関連の比較標準物質中のプルトニウム同位体に関するデータは殆ど出されていないので、IAEAの比較標準物質中の分析を行った。さらに、様々な産地の試料の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の分析を実施し、プルトニウムの同位体比を求める重要性についても考察した。

2. 分析手法

プルトニウムの化学分離は以下の方法により検討した。まずサンプル量としては、プルトニウム濃度が比較的高い試料（ $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度で10Bq/kg以上）では2~10gの量を用い、ビーカに入れ8N硝酸（5倍量以上）を加え、スパイクとして既知量の ^{242}Pu （New Brunswick Laboratories, CRM 130）を添加した。また、プルトニウム濃度が低い試料（一般的な環境試料）は分析に供する量が10g~50gと多く必要なので、予め500°Cで加熱し、有機物を分解したものを用いた。硝酸による抽出はホットプレート上で4~6時間行った。それをあたたかいうちにガラス濾紙で濾過した。この抽出操作を2回ほど繰り返し、濾液を一つのビーカにまとめた。それを鉛状になるまでホットプレート上で加熱し、その後、硝酸に溶かし分離操作に移る。

試料溶液からのプルトニウムの分離は、イオン交換樹脂（Dowex 1x8）を用いる方法と、抽出クロマトグラフィー樹脂（TEVA）を用いる方法の2つを比較した。Dowex 1x8による分離では鉛状になった試料を8Nの硝酸を加えて溶かした。また、TEVAによる分離には2Nの硝酸に溶かした。どちらの樹脂を用いる場合でもPuの化学形を4価にそろえなければならない。そこで、 NaNO_2 , HONH_3Cl 並びに H_2O_2 の3種の試薬を用いて化学収率等を比較検討した。

化学形を4価に調整した後、試料溶液をイオン交換樹脂（Dowex 1x8）または抽出クロマトグラフィー（TEVA）に通した。Puは樹脂に保持される。同濃度の酸を流し洗った後に、溶離液として、Dowex 1x8の場合は5% NH_3I -1.0M塩酸溶液を用いた。また、TEVAの場合は0.1Mハイドロキノン溶液-9M塩酸溶液を用い溶離した。溶離液をホットプレート上で一旦ドライアップした。それを硝酸に溶かし、最終的には4%硝酸溶液とし、それを測定に供した。測定には四重極型ICP-MS（Yokogawa PMS-2000）を用い分析を行った。測定したピークは ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{238}U 及び必要に応じて、Feなどのマトリックス元素である。 ^{238}U を測定するのは、もしもUの分離が充分でないと UH^+ が ^{239}Pu のピークに影響を与える可能性があるためそれをチェックする目的である。内部標準としてはBiを添加したが、最終的な濃度計算は既知量加えた ^{242}Pu に対する ^{239}Pu と ^{240}Pu の比を用いる同位体希釈法を行った。また、測定値の信頼性はPuの同位体比のスタンダードであるNBS-947を測定し確認した。分析法の概要をFig.-1にまとめる。

なお、Puは核燃料物質であるためとえ極少量を使用する場合でも規制を受けるので、施設を整備し、装置の排気部分にはフィルターを付ける等の工夫をし使用許可を取った。分析に用いた試料は、比較標準試料としては、IAEA-135（アイリッシュ海の堆積物）、

IAEA Soil-6（オーストリーの土壤）、IAEA-367（マーシャル諸島の堆積物）、IAEA-368（ムルロア環礁の堆積物）、IAEA-134（アイリッシュ海の魚肉）などを用いた。その他、我が国の土壤（茨城、秋田、青森、長崎など）及び海外の土壤（チェルノブイリやキスティム）も分析対象にした。

Pu の分離・分析法

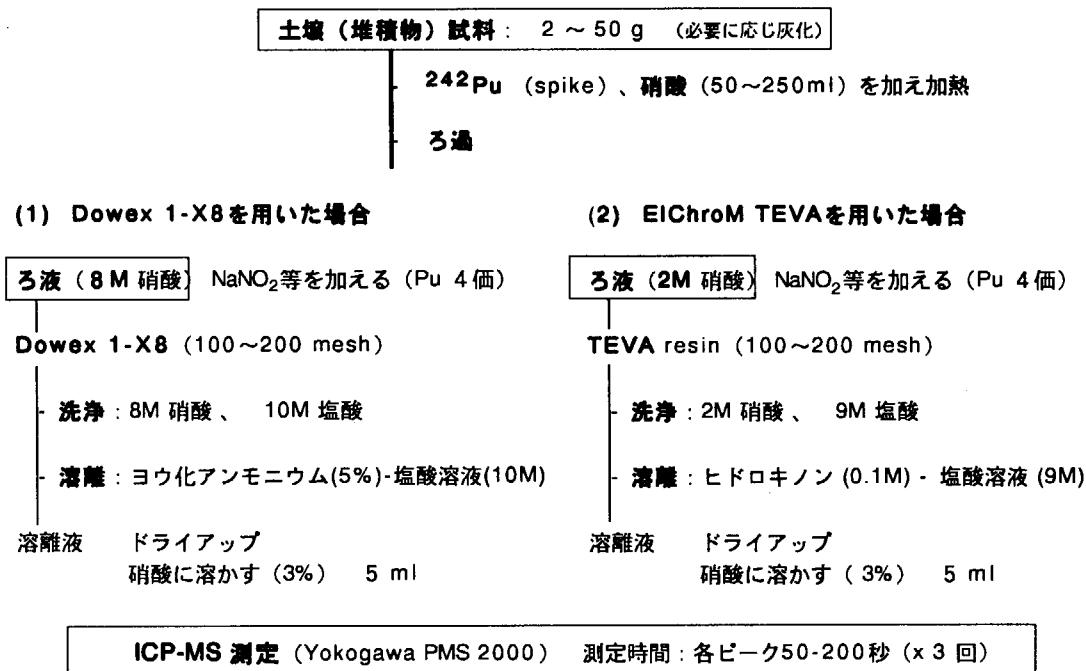


Fig.1 Analytical procedures of Pu by ICP-MS

3. 結果及び考察

3.1 分析法について

Puの化学形を4価に調整する目的で何種類かの試薬 (NaNO_2 , HONH_3Cl 並びに H_2O_2) を検討したところ亜硝酸ナトリウムを用いた場合がDowex 1x8とTEVAともに最も良い結果が得られた。 H_2O_2 を用いた場合が収率が悪く化学形を4価にするのに十分でない。

ICP-MSによる ^{239}Pu の測定では、質量数239のところに $^{238}\text{UH}^+$ が妨害を及ぼす可能性があるので除染係数を調べたところ、Dowex 1x8でもTEVAを用いた場合でもともにUの除染係数は $10^4 \sim 10^5$ 程度であった。また、多くのマトリックス元素において除染係数は $10^4 \sim 10^5$ 程度であり、ICP-MSの測定に適する範囲まで下げる事ができた。求めた除染係数の例をFig.2に示す。但し、除染係数は試料の種類によっても異なるので実際の分析にあたって予備的に調べることが望ましい。分離操作の回数は通常の試料では一回だけで十分であり、Uからの妨害は受けないことが確認できた。今回分析に供した土壤では、UについてはDowex 1x8のほうが良く、また、希土類元素や鉄ではTEVAのほうが良い傾向にあった。

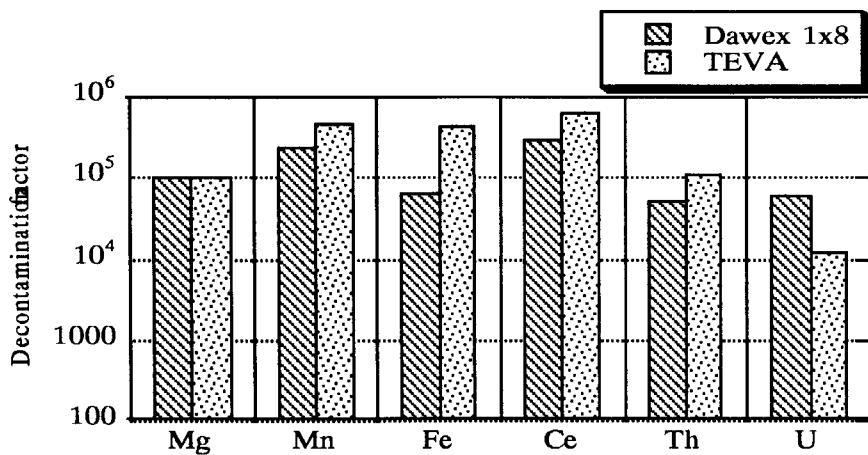


Figure 2 Decontamination factors of selected elements by Dowex 1x8 and TEVA.

本分析法による²³⁹Puの検出下限値は、試料溶液中の濃度として、0.05 mBq/ml（または0.02 ppt程度）であった（但し、検出下限は検出器の状態等によっても左右される）。実際の土壤では、試料20gを用いた場合、²³⁹Puでは0.1Bq/kg（乾燥）程度の濃度まで測定可能であった。²⁴⁰Puの検出下限値は、試料溶液中の濃度として0.17 mBq/ml、20gの試料を用いた場合は0.35Bq/kg（乾燥）であった。²⁴⁰Puと²³⁹Puの検出下限値に差があるのは、²⁴⁰Puの方が半減期が短いので放射能濃度としてみた検出限界は悪くなっている。

²³⁹Puの測定時のUから生じるのUH⁺の影響について調べたところ、溶液中のU濃度が1 ppb のとき²³⁹Puのピークへの影響は約 0.03 ppt に相当する値であった。これは、検出下限値とほぼ同程度であり、測定には影響しない。化学分離操作により測定溶液中のU濃度を1 ppb 以下にするのは通常の試料ではそれほど難しくはない。Table-2に検出限界、繰り返し誤差及びUH⁺の²³⁹Pu測定への影響について簡単にまとめる。

Table 2 Detection limit, RSD and influence of UH⁺ in the ICP-MS determination.

Detection limit (solution)	Weight basis: 0.02 ppt ²³⁹ Pu activity: 0.05mBq/kg ²⁴⁰ Pu activity: 0.17mBq/kg
Detection limit (soil sample 20g)	²³⁹ Pu activity: 0.1 Bq/kg ²⁴⁰ Pu activity: 0.35 Bq/kg
RSD (Relative Standard Deviation)	1~3% (3 determinations)
Influence of UH ⁺ on ²³⁹ Pu peak	UH ⁺ / U ⁺ ratio: 3 x 10 ⁻⁵ Influence of 1 ppb U: 0.03 ppt (pg/ml) ²³⁹ Pu

3.2 Pu濃度について

IAEAが作成した種々の比較標準試料を分析した結果より²³⁹Puと²⁴⁰Puの合計値を計算した。IAEAの推奨値も合計値 (²³⁹⁺²⁴⁰Pu) を用いている理由は、インターパリゾンに参

加した殆どの研究機関はアルファースペクトロメトリーで測定しており ^{239}Pu と ^{240}Pu のピークを分離できず合計で示している為である。本研究で得られたデータを以下に示す。（参考のためにIAEAの推奨値をカッコ内に記す。）IAEA-Soil-6: 1.0 Bq/kg (1.0 Bq/kg) ; IAEA-135: 211 Bq/kg (213 Bq/kg); IAEA-367: 39.5 Bq/kg (38 Bq/kg); IAEA-368: 29.8 Bq/kg (31 Bq/kg)であった。これらの結果から分かるように、IAEA推奨値と良い一致を示し、分析法の妥当性が確認できた。

アイリッシュ海の堆積物（IAEA-135）で見られた高い濃度は、セラフィールド再処理施設からの寄与が原因となっている。オーストリーの土壌（IAEA-Soil-6）の値は我が国の表層土壌の値（後述）と同程度であった。チェルノブイリ10km圏内の土壌では1000 Bq/kgを超える値が測定された（詳しいデータは只今まとめているところである）。

3.3 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比について

IAEAの比較標準試料について次の通りPuの同位体比（ $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比）に関するデータが得られた。アイリッシュ海の堆積物（IAEA-135）: 0.21、アイリッシュ海の魚（IAEA-134）: 0.20、マーシャル諸島の堆積物（IAEA-367）: 0.31、ムルロワ環礁の堆積物（IAEA-368）: 0.04、オーストリーの土壌（IAEA-Soil-6）: 0.19であった（詳しい結果は現在投稿中（12）である）。比較標準試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比に関するIAEAの推奨値は出されていないことから、これらの値は今後分析を行う上で一つの参考値として役立つと思われる。

プルトニウム濃度だけでなく同位体（特に $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比）も測定することにより、プルトニウムの汚染源の同定も可能になる。また、汚染源周辺でのそれらの比を求めることは、プルトニウムの環境移行を解析する上でも役立つであろう。

Krey (1976)⁽¹³⁾は世界各国から採取した60試料の土壌中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比を質量分析法を用いて測定し世界地図上にプロットしている。その結果を基に世界規模での平均値として、 0.176 ± 0.014 という値を出している。但し、この値はネバダ核実験場周辺の値を除いたものである。核実験場周辺では、0.1以下（最低値: 0.06）が見つかっており、グローバルなフォールアウトの影響ではなく、地球規模から見ると局所的な汚染と考えられる。また、南米の太平洋側でも何カ所かで0.12～0.15という少し低めの値が見つかっている。これらは、ムルロア環礁など南太平洋で行われた核実験の影響を反映している値と考えられる。その他世界中の多くの地域では0.17～0.19位の間の値が報告されており、広域のフォールアウトとして降下した $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は比較的均一であることがわかる。後で述べるが、核爆弾の種類により $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は大きく異なると推定される。世界的に見て比が同程度である理由は、大規模な核実験では生成された核種は成層圏に入り広域に広がるためと考えられる。

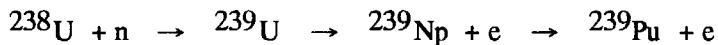
我々が測定した日本の表層土壌中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は約0.17程度（長崎の試料を除く）であり、Kreyが報告⁽¹³⁾しているグローバルフォールアウトの平均値と良い一致を示している。但し、長崎の西山地区で採取した土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子比は約0.04と非常に低い。これは、長崎に投下されたPu爆弾の組成を反映しているためと考えられる。つまり、Pu爆弾では

^{239}Pu が濃縮されているため $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比が小さい。爆心地の近くでは飛び散った爆弾の材料の影響が大きく、そのため小さな $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比になっていると推定される。

ムルロア環礁の堆積物 (IAEA-368) から得られた $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は約0.04であったが、これもPu爆弾の材料を反映していると考えられる。マーシャル諸島の堆積物 (IAEA-367) の値は約0.3であった。これは、ブラボー爆弾のフォールアウトの影響を受けた試料と見なされているが、比較的高い $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比が何に起因するのか今後考察してみたい。アイリッシュ海の堆積物 (IAEA-135) と魚 (IAEA-134) においては、0.21程度の値が得られた。この値はフォールアウトの値よりも少し大きい。セラフィールドの再処理施設で処理された使用済核燃料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比を反映していると考えられる。その他、チェルノブイリ事故で汚染された土壌試料も測定しているが、約0.4程度という高い値が得られている。また、ウラルのキスティムの土壌の分析結果は0.07程度と低い値であった。以上の分析値の一部については投稿中⁽¹²⁾であり、また、現在も分析を続けてデータも増やしている。詳しくは今後まとめると予定である。

分析結果からも分かるように、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は今回測定した試料だけでも、約0.04～0.4程度と大きな範囲にあった。これらの値は汚染源の値を反映しており、放出源やそこからの環境移行を調べる上で役に立つと考える。

原子炉内でのPuの生成は、 ^{238}U に中性子があたり以下に示す反応を経て ^{239}Pu が作られる。



また、 ^{239}Pu に中性子があたることで ^{240}Pu 、 ^{241}Pu と質量数が大きなPuができる。そのため、同一の炉で同じ組成の燃料を燃やした場合、燃焼度が高い方が $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は高い。また、Puの同位体の割合は原子炉の種類によっても異なる。Table-3に原子炉で生成するPuの同位体の組成を範囲で示す。

Table 3 Isotope composition of Pu from different reactors
(from GSF mensch+umwelt, 1989)

Nuclide	Weight percent	Activity percent ^a
Pu-236	$0 - 6 \times 10^{-6}$	$0 - 0.005$
Pu-238	0.02 - 3	3 - 84
Pu-239	45 - 98	5 - 90
Pu-240	2 - 30	7 - 11
Pu-241	0.04 - 16	(60 - 2700 ^b)
Pu-242	0 - 9	0 - 0.04

a: alpha activity, b: beta activity

これからも分かるように、重量比を見ると ^{239}Pu の割合が大きく、次ぎに ^{240}Pu 、 ^{241}Pu と続く。また、放射能（アルファー線）としては半減期に関係するので、 ^{238}Pu が大きいこと

になる（但し ^{239}Pu がかなり濃縮された場合はこの限りではない）。また、 ^{241}Pu はベータ線を出すため表には括弧付きで放射能の割合を載せてある。このように、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は、燃料の種類だけでなく、その燃焼度や炉の種類によっても異なる。そのことからも、原子炉や再処理施設の環境安全評価に関連して、環境中の濃度を測るだけでなくPuの同位体比も調べることは重要と考えられる。

4. 結言

環境試料中（主として土壤や堆積物）のPu同位体の測定をICP-MS法により検討した。その結果、 ^{239}Pu を濃度的には環境レベルまで十分測定できることが分かった。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比についてのデータも得られ、汚染源の解析などにも役立つことが示唆された。今後、再処理施設の本格的な稼働やMOX燃料の使用等に伴い、Puに関連した環境モニタリングや分析を行うための新たな展開が必要となってきている。今回示したICP-MS法を利用した分析法は、測定時間もはやく、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比も求められることから大変有効と考えられる。また、濃度のみでなく同位体比が求まり汚染源の情報も得るも可能であり、今後、環境安全研究やモニタリングやセーフガードに関連する分析への応用も期待できる。現在の科学技術庁のPu分析のマニュアルではアルファースペクトロメトリー法しか述べられていないが、さらにICP-MS法なども加え、また、分離法にも柔軟性を持たせる必要があろう。

$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ を解析することにより環境でのPuの移行を調べる上でも利用可能と考える。

参考文献

- (1) Pentreath, R.J.: *Appl. Radiat. Isot.*, 46, 1279-85, (1995).
- (2) Aston, S.R.; Stanners, D.A.: *Nature*, 289, 581-2, (1981).
- (3) Chamberlain, A.C.: *Sci. Tot. Env.*, 63, 139-60, (1987).
- (4) Aarkrog, A., Dahlgard, H., Nielsen, S.P., Trapeznikov, A.V., Molchanova, I.V., Pozolotina, V.N., Karavaeva, E.N., Yushkov, P.I. and Polikarpov, G.G.: *Sci. Total Environ.*, 201, 137-54, (1997).
- (5) Lux, D.; Kammerer, L.; Rühm, W.; Wirth, E.: *Sci. Total Environ.*, 173/174, 375-84, (1995).
- (6) McCarthy, W.; Nicholls, T.M.: *J. Environ. Radioactivity*, 12, 1-12, (1990).
- (7) Buesseler, K.O.; Halverson, J.E.: *J. Environ. Radioactivity*, 5, 425-44, (1987).
- (8) Igarashi, Y.; Kim, C.K.; Yakaku, Y.; Shiraishi, K.; Yamamoto, M.; Ikeda, N. *Analytical Sciences*, 6, 157-64 (1990).
- (9) Kim, C.K.; Oura, Y.; Takaku, Y.; Nitta, H.; Igarashi, Y.; Ikeda, N. *J. Radioanal. Nucl. Chem. letters*, 136, 353-62, (1989).
- (10) Crain, J.S.; Smith, L.L.; Yaeger, J.S.; Alvarado, J.A.: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 194, 133-9, (1995).
- (11) Yamamoto, M.; Tsumura, A.; Katayama, Y.; Tsukatani, T.: *Radiochimica Acta*, 72, 209-15, (1996).
- (12) Muramatsu, Y., Uchida, S., Yoshida, S., Keiko, T., Fujikawa, T.: *in preparation* (1999).
- (13) Krey, P.W.; Hardy, E.P.; Pachucki, C.; Rourke, F.; Coluzza, J.; Benson, W.K.: *IAEA-SM-199-39*, 671-78, (1976).



3. 水田および畑作土に存在する¹³⁷Csの滞留半減時間

駒村 美佐子、津村 昭人*、小平 潔**

農業環境技術研究所、*元農業環境技術研究所、**元足利工業大学

わが国の水田および畑作土中の¹³⁷Csの経年的な濃度変化を統計的に処理し、¹³⁷Csの作土内滞留半減時間および作土（top-soil）からその下層（sub-soil）への溶脱率を算定した。

主要14水田作土と10畑作土中のそれぞれの算定結果は、全国平均で両作土ともに、溶脱と放射能壊変の両方により減少する¹³⁷Csのみかけの滞留半減時間は17～18年で、さらに¹³⁷Csの放射性壊変を補正した溶脱のみにより減少する¹³⁷Csの真の滞留半減時間は41～42年となった。作土からその下層への¹³⁷Csの溶脱率は両作土とも1.6～1.7%/年であった。また、1996年における¹³⁷Csの作土とその下層の分布割合を推定した結果は平均で6:4となった。

Residence half-time of ¹³⁷Cs in the top-soils of Japanese paddy and upland fields

Misako KOMAMURA, Akito TSUMURA*, Kiyoshi KODAIRA**

National Institute of Agro-Environmental Sciences,

*ex-National Institute of Agro-Environmental Sciences,

**Prof. Em. Ashikaga Institute of Technology

A series of top-soil samples of 14 paddy fields and 10 upland fields in Japan, were annually collected during more than 30 years, to be examined in the contents of ¹³⁷Cs. The data, which were obtained by the use of a gamma spectrometric system, received some statistical treatments to distinguish the annual decline of ¹³⁷Cs contents from deviations. Then the authors calculated "residence half-time of ¹³⁷Cs" within top-soil, and "eluviation rate of ¹³⁷Cs" from top to the sub-layer of the soil.

The following nationwide results were obtained irrespective of paddy or upland fields: (1) The "apparent residence half-time" was estimated as 16～17 years. This one consists of both effects of eluviation and nuclear disintegration. (2) The "true residence half-time" was reported as 41～42 years. This one depends on the eluviation speed of ¹³⁷Cs exclusively, because the influence of nuclear disintegration has been compensated. (3) The eluviation rate of ¹³⁷Cs from top-soil down to the sub-soil was 1.6～1.7% per year. (4) The ratio of distribution of ¹³⁷Cs between top-soil and the sub-soil was estimated to be 6:4 as average at the date of 1996.

Keyword: ¹³⁷Cs, paddy soil, upland soil, residence half-time, eluviation rate

1. はじめに

水稻や小麦が¹³⁷Csや⁹⁰Srなどの放射性核種を経根的に吸収する深さは土壤の種類や管理形態などにより異なるが、主として表層から鉛直方向で約20cmまでの土壤を考えればよいとされ、これを作土（top-soil）という。それより深く位置する下層土（sub-soil）では農機具の刃先が届き難く水稻・小麦の根の活力も乏しいため、経根吸収を無視することができる。

一方これらの放射性核種が長年月にわたって作土からその下層へと溶脱を続けるなかでどれくらいの時間にわたって作土内に滞留するかを解明することは極めて重要である。

農業環境技術研究所（旧農業技術研究所）では、核爆発実験が開始されて間もない1958年から現在に至るまで全国の国公立農業試験場から定点観測地を選び、これらの圃場の作土とそこで生産された米・麦を対象に、その¹³⁷Csと⁹⁰Srの分析¹⁾を行っている。このような放射能調査を同一特定圃場群から分析をしている例は世界的にみても類がない。

本報告では、これらの分析値のうち水田作土および畑作土中の¹³⁷Csの経年的な濃度変化を統計的に処理して、作土内滞留半減時間および作土からその下層への溶脱率を求めた。

2. 研究方法

2. 1 土壤試料の採取と保存

上記国公立農業試験研究機関の特定圃場、水田14地点と畑10地点をFig.1に示した。水稻および小麦の収穫後に採取された水田・畑作土の送付を受け、風乾後乳鉢で粉碎して礫や植物根などを2mmの篩で取り除き、ポリエチレン瓶に入れ保存した。

2. 2 供試土壤の物理・化学諸性質

供試土壤の物理・化学的性質を水田土壤はTable 1に畑土壤はTable 2に示した。

2. 3 供試土壤中の¹³⁷Csの放射能測定の方法

科学技術庁の公定法²⁾に従って同軸型Ge半導体検出器（Canberra社製 GR1820, 相対効率1.8%, エネルギー分解能2.0keV）を備えたγ線スペクトロメトリー法によって

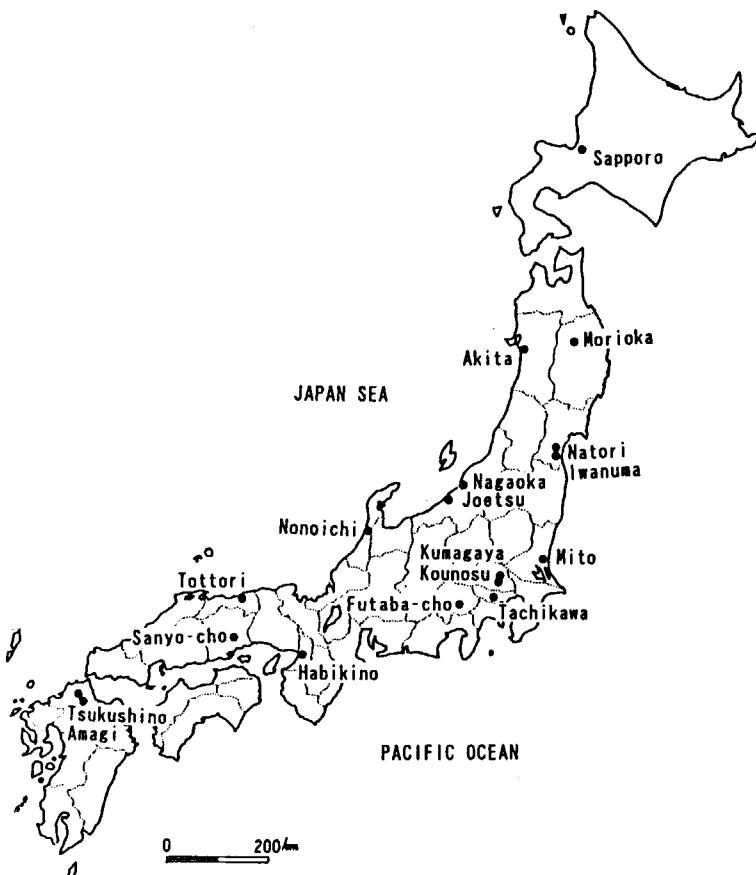


Fig.1 Sampling sites in Japan

Table 1 Soil properties of top-soils in paddy fields

Sampling sites	Soil group	Soil texture*	Depth (cm)	pH (H ₂ O)	Sand(2-0.02mm) contents(%)	Clay(<2μm) contents(%)	Humus contents(%)	CEC** (meq/100g)
Japan Sea side								
Sapporo, HOKKAIDO	Wet Andosols	LiC	0-10	6.22	41.3	26.7	3.89	28.9
Akita, AKITA	Gley soils	LiC	0-12	5.03	30.5	30.7	2.35	25.7
Joetsu, NIIGATA	Gley soils	LiC	0-12	5.59	26.0	39.5	4.13	30.8
Noniochi, ISHIKAWA	Gley Lowland soils	CL	0-14	5.80	39.6	23.3	1.79	16.4
Tottori, TOTTORI	Gley Lowland soils	LiC	0-14	5.57	35.4	29.1	2.88	19.2
Tsukushino, FUKUOKA	Gley Lowland soils	CL	0-10	6.56	61.9	17.0	2.18	16.4
Regional average			0-12	5.80	39.1	27.7	2.87	22.9
Pacific Ocean side								
Morioka, IWATE	Wet Andosols	LiC	0-12	6.42	40.4	31.6	11.71	55.8
Natori, MIYAGI	Gley Lowland soils	HC	0-12	5.73	21.9	47.6	2.74	43.4
Mito, IBARAKI	Andosols	LiC	0-13	6.45	48.1	28.1	7.29	36.4
Kounosu, SAITAMA	Gley Lowland soils	LiC	0-12	5.70	39.4	27.1	0.82	17.3
Tachikawa, TOKYO	Brown Lowland soils	LiC	0-15	5.46	35.5	31.9	4.61	33.2
Futaba-cho, YAMANASHI	Gley Lowland soils	SCL	0-12	5.66	71.6	15.1	0.95	10.3
Habikino, OSAKA	Gley Upland soils	CL	0-10	6.40	55.0	21.5	2.93	17.9
Sanyo-cho, OKAYAMA	Gley soils	CL	0-15	5.75	53.1	23.4	1.61	13.8
Regional average			0-13	5.95	45.6	28.3	4.08	28.5
Nationwide average			0-12	5.88	42.4	28.0	3.56	26.1

* LiC:light clay CL:clay loam HC:heavy clay SCL:sandy clay loam

** cation exchange capacity

Table 2 Soil properties of top-soils in upland fields

Sampling sites	Soil group	Soil texture*	Depth (cm)	pH (H ₂ O)	Sand(2-0.02mm) contents(%)	Clay(<2μm) contents(%)	Humus contents(%)	CEC** (meq/100g)
Japan Sea side								
Sapporo, HOKKAIDO	Wet Andosols	LiC	0-15	5.52	36.1	32.8	8.53	48.0
Nagaoka, NIIGATA	Gley soils	HC	0-15	5.59	10.5	51.6	4.47	40.0
Amagi, FUKUOKA	Gley Lowland soils	LiC	0-15	6.56	42.9	26.2	6.53	34.9
Regional average			0-15	5.89	29.8	36.9	6.51	41.0
Pacific Ocean side								
Morioka, IWATE	Wet Andosols	CL	0-15	6.02	47.1	20.2	10.71	45.0
Iwanuma, MIYAGI	Gley Lowland soils	HC	0-15	5.73	21.9	47.6	2.74	43.4
Mito, IBARAKI	Andosols	LiC	0-15	6.00	46.8	25.7	6.03	39.4
Kumagaya, SAITAMA	Gley Lowland soils	CL	0-15	5.00	48.4	20.6	0.99	16.3
Tachikawa, TOKYO	Brown Lowland soils	LiC	0-15	5.46	41.2	28.2	5.22	29.3
Futaba-cho, YAMANASHI	Gley Lowland soils	SCL	0-15	5.66	63.4	18.8	1.11	14.6
Sanyo-cho, OKAYAMA	Gley soils	CL	0-15	7.05	53.0	22.6	1.80	13.2
Regional average			0-15	5.85	46.0	26.2	4.09	28.7
Nationwide average			0-15	5.86	41.3	29.4	4.81	32.4

* LiC:light clay CL:clay loam HC:heavy clay SCL:sandy clay loam

** cation exchange capacity

^{137}Cs の放射能測定を行った。

3. 実験結果と考察

3. 1 水田・畑作土の ^{137}Cs 含量の経年推移

本調査が開始された1958年から1993年までの35年間における水田・畑作土の全 ^{137}Cs 含量の経年推移について、その数値の分布状況をFig. 2に示した。

水田・畑作土の ^{137}Cs 含量のピークはほとんどの地点で1965年頃に観測された。これらの時期は、1954年-1958年と1961年-1962年の期間に頻繁に行われた大気圏内大型核爆発実験の影響を強く受け、グローバルフォールアウトとして地上に最も多く蓄積した年に当たる。これらの実測値は、わが国におけるフォールアウト ^{137}Cs の最大降下累積蓄積量が1964年でほぼピークに近づいているという気象研究所の報告書³⁾にほぼ一致している。以降経年的に漸減した。

また1986年にチェルノブイリ原子炉爆発事故により多くの ^{137}Cs が地球上に放出されたが、その影響はFig. 2から読みとれない。

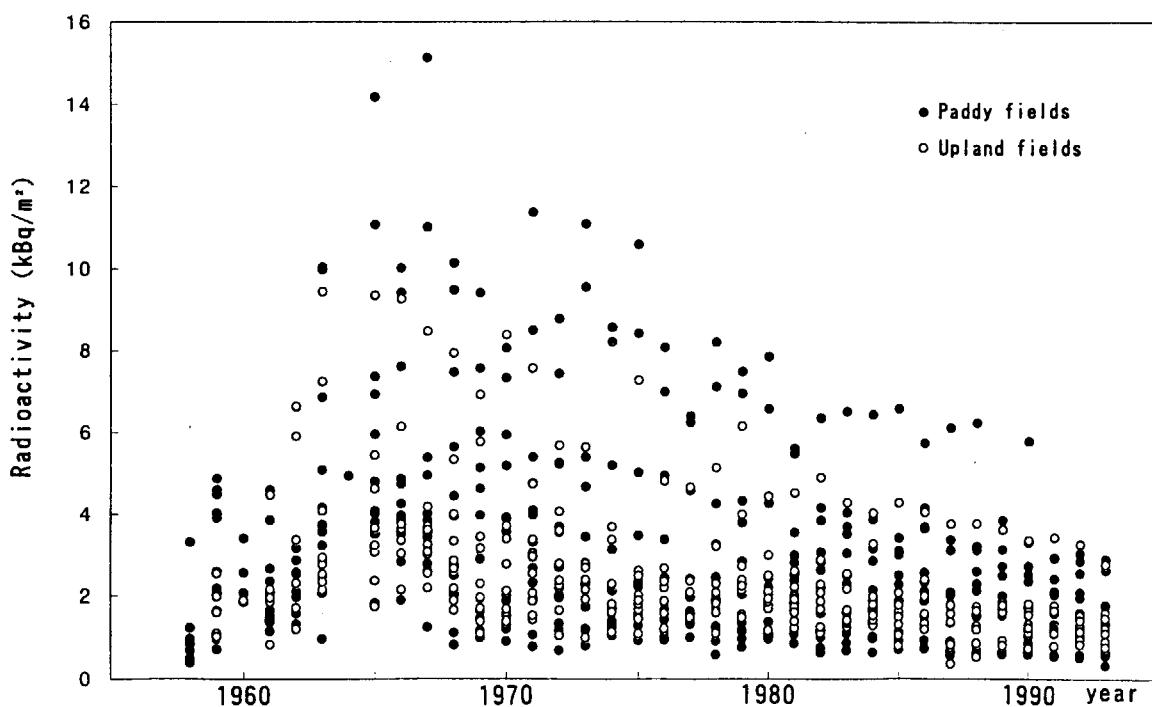
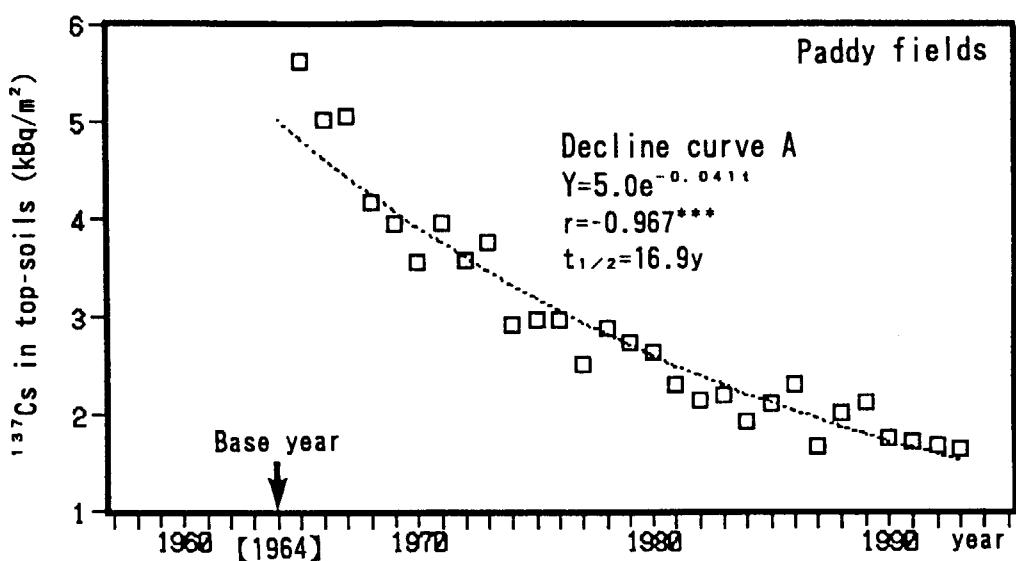


Fig. 2 ^{137}Cs contents of top-soils collected from 14 paddy fields and 10 upland fields in Japan

3. 2 水田・畑作土の ^{137}Cs 含量の減少曲線

Fig. 2の図形に示した通り、水田・畑作土中の ^{137}Cs 含量は観測初期の数年間は増加傾向を、しかし、1964年ころを転機としてそれ以後は減少傾向を示している。

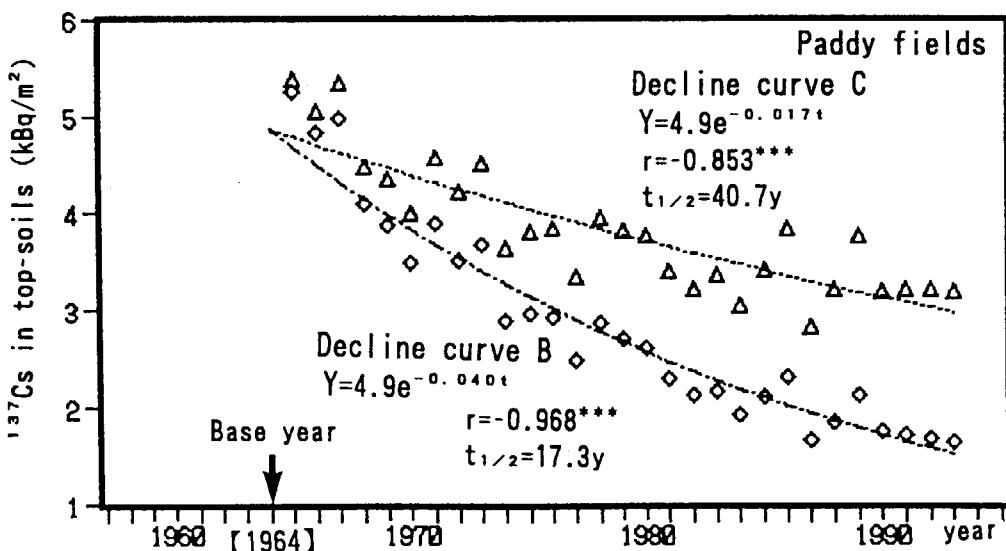
そこで、このピークに相当する1964年を「基準年」(base year)と定め、この年を基点とする「減少曲線」(decline curve)を描き、それによって事態の解明を進めたい。

**Fig.3 Decline curve A**

Comprehensive time course of the cumulative contents of ^{137}Cs in the top-soils of paddy fields

Each mean value of 14 fields is plotted without revision

***: $p < 0.001$

**Fig.4 Decline curve B**

Time course of the contents of ^{137}Cs which have been accumulated in the soils up to the base year 1964

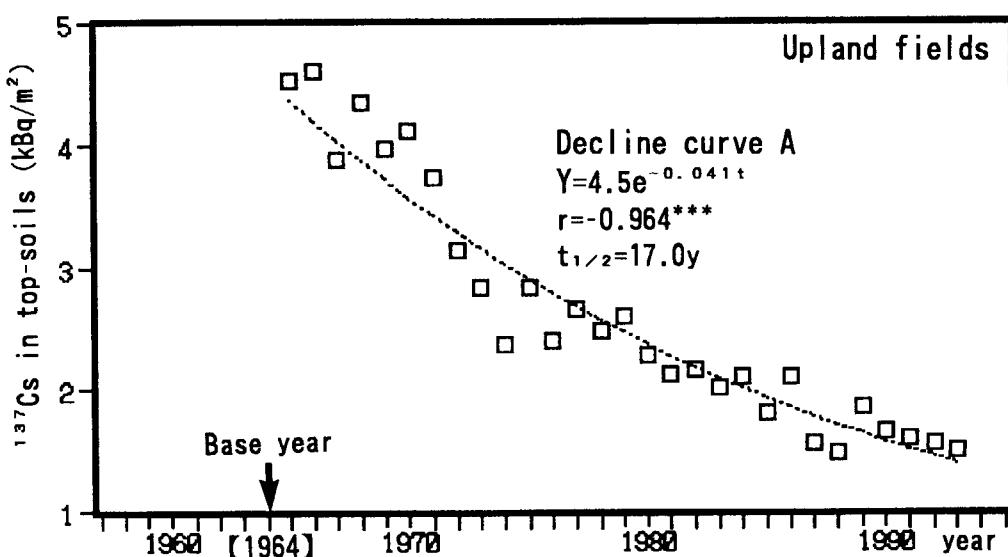
Each of the amounts of ^{137}Cs , newly-captured by soils after 1964, is subtracted from the corresponding point in the Curve A

***: $p < 0.001$

Decline curve C

Revised curve excluding radioactivity decay from the Curve B

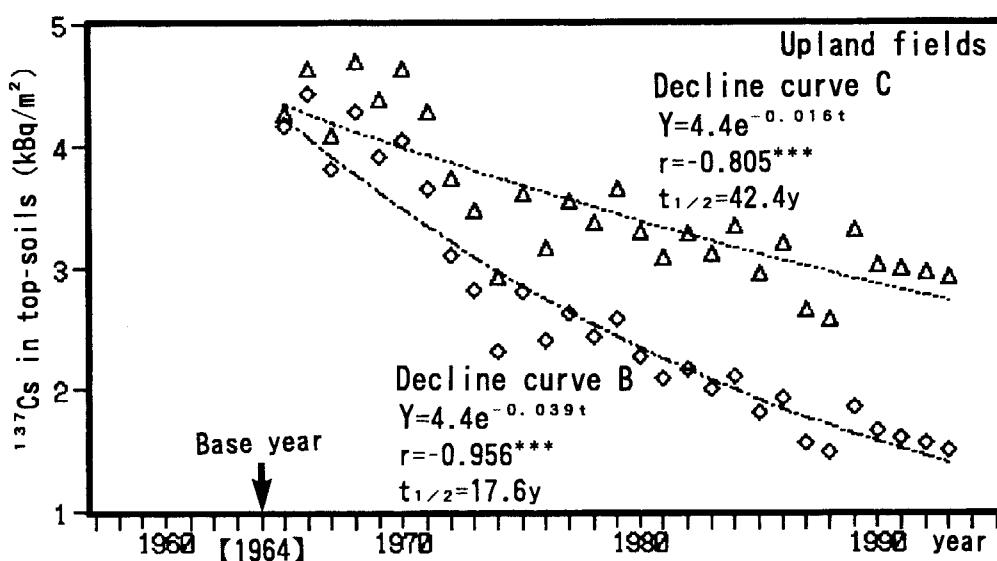
***: $p < 0.001$

**Fig.5 Decline curve A**

Comprehensive time course of the cumulative contents of ^{137}Cs in the top-soils of upland fields

Each mean value of 14 fields is plotted without revision

***: $p < 0.001$

**Fig.6 Decline curve B**

Time course of the contents of ^{137}Cs which have been accumulated in the soils up to the base year 1964

Each of the amounts of ^{137}Cs , newly-captured by soils after 1964, is subtracted from the corresponding point in the Curve A

***: $p < 0.001$

Decline curve C

Revised curve excluding radioactivity decay from the Curve B

***: $p < 0.001$

まず個々の観測地点ごとに1964年の基準年以降毎年の土壤試料の¹³⁷Cs実測値を目盛って、経年的な減少曲線を得た。その一例として全国平均図を水田作土はFig. 3に畑作土はFig. 5に示した。この種の減少曲線を実測図から回帰方程式に書き改めるため、つぎの一次反応式を導入した：

$$Y = X e^{-\lambda t} \quad (\text{数式 } 1)$$

ただしYは¹³⁷Cs含量

Xは基準年における¹³⁷Cs含量

tは基準年以降の経過年数

λ は年間に対する減少係数

をあらわす。

実際の計算作業としては対数変換によって

$$\ln Y = \ln X - \lambda t \quad (\text{数式 } 2)$$

の形として、その回帰式を求めてXおよび λ の値を得た。

その際Yの数値として¹³⁷Csの実測値を無修正のまゝ計算に使って描いたのが、水田作土はFig. 3、畑作土はFig. 5の減少曲線Aである。

物理的な意味として、この減少曲線Aは各年度ごとの水田作土中における¹³⁷Cs蓄積量の経年変化を示すものである。その内訳として基準年である1964年以前に大気中から降下し蓄積している量、およびそれ以後当該年までの間に新たに降下蓄積した量を主要な内容とするが、その一方で鉛直方向への流下・溶脱および放射性壊変による減衰などの損失結果を含むものである。このほかにも灌溉水による¹³⁷Csの参入があり、逆に地上での表面流去や水稻・小麦の経根吸収による土壤系外へ向けた¹³⁷Csの搬出などの目減りが考えられる。しかしそれらは合計しても全蓄積量に対して約1%以下と少ないので、本研究ではあえて無視し、曲線Aの物理的な意味の重点を次のように表現しておく。

すなわち減少曲線Aの各点は、降り始めから当該年次までの期間にわたる水田・畑作土中の¹³⁷Csの蓄積量の年次推移をあらわす。ところが¹³⁷Csは一方では上空から補給され、他方では下層土に向けて溶脱され、また放射性壊変によって減衰する。

そこで各年次ごとの¹³⁷Csの降下量を気象研究所の報告書³⁾から読みとり、曲線Aの各点についてさらに当該年次の¹³⁷Csの降下量の引き算を行った。それらの各点を結んで得た減少曲線をBと名付けて水田作土はFig. 4に畑作土はFig. 6に掲げた。

したがって減少曲線Bは、¹³⁷Csの上空からの補給を最早懸念することなく、溶脱と放射性壊変という2種類の目減りを示すものとなった。

最後に曲線Bの各点において¹³⁷Csの半減期を30.1年として放射性壊変による減衰を補正し、減少曲線Cを得たが、それは作土中¹³⁷Csの下層土への溶脱を経年的に示すものとなった。

3. 3 滞留半減時間と溶脱率

上記のような方法で算定した結果を、水田作土はTable 3に畑作土はTable 4に示した。減少曲線Bから算定したみかけの滞留半減時間（RHT-B）は全国平均で水田作土は17.3年、畑作土は17.6年となった。さらに、減少曲線Cから算定した真の滞留半減時間（RHT-C）は全国平均で水田作土は40.7年で畑作土は42.4年となった。作土からその下層への一年間当たりの溶脱率を算定した結果、全国平均で水田作土は1.7%畑作土は1.6%となった。

滞留半減時間（RHT-B）・（RHT-C）および溶脱率は、地点間差が認められた。その理由の一

Table 3 Residence half-time in top-soil and eluviation rate from top-soil to the sub-soil of ^{137}Cs in the paddy field

Sampling sites	n	Residence half-time (B) (RHT-B)		Residence half-time (C) and eluviation rate (RHT-C)	
		Regression equation	Correlation coefficient(r)	RHT-B (year)	Regression equation
Japan Sea side					
Sapporo, HOKKAIDO	27	$Y = 2.9e^{-0.066t}$	-0.879***	10.6	$Y = 2.9e^{-0.042t}$
Akita, AKITA	29	$Y = 6.5e^{-0.031t}$	-0.958***	22.2	$Y = 6.5e^{-0.008t}$
Joetsu, NIIGATA	26	$Y = 14.2e^{-0.059t}$	-0.936***	11.8	$Y = 14.2e^{-0.036t}$
Nonoichi, ISHIKAWA	21	$Y = 10.2e^{-0.026t}$	-0.853***	26.6	$Y = 10.2e^{-0.003t}$
Tottori, TOTTORI	20	$Y = 6.6e^{-0.031t}$	-0.952***	22.4	$Y = 6.6e^{-0.008t}$
Tsukushino, FUKUOKA	15	$Y = 4.2e^{-0.050t}$	-0.859***	13.7	$Y = 4.2e^{-0.027t}$
Averages of Individual data	138	$Y = 6.9e^{-0.048t}$	-0.496***	14.6	$Y = 6.9e^{-0.025t}$
Yearly data	29	$Y = 7.0e^{-0.043t}$	-0.972***	16.0	$Y = 7.0e^{-0.020t}$
Pacific Ocean side					
Morioka, IWATE	28	$Y = 4.0e^{-0.031t}$	-0.865***	22.1	$Y = 4.0e^{-0.008t}$
Natori, MIYAGI	20	$Y = 4.8e^{-0.032t}$	-0.917***	21.8	$Y = 4.8e^{-0.009t}$
Mito, IBARAKI	22	$Y = 3.0e^{-0.053t}$	-0.837***	13.1	$Y = 3.0e^{-0.030t}$
Kounosu, SAITAMA	17	$Y = 3.7e^{-0.040t}$	-0.791***	17.3	$Y = 3.7e^{-0.017t}$
Tachikawa, TOKYO	19	$Y = 4.2e^{-0.027t}$	-0.875***	25.3	$Y = 4.2e^{-0.004t}$
Futaba-cho, YAMANASHI	22	$Y = 3.3e^{-0.067t}$	-0.945***	10.3	$Y = 3.3e^{-0.044t}$
Habikino, OSAKA	28	$Y = 1.5e^{-0.034t}$	-0.825***	20.2	$Y = 1.5e^{-0.011t}$
Sanyo-cho, OKAYAMA	18	$Y = 2.9e^{-0.025t}$	-0.737***	27.4	$Y = 2.9e^{-0.002t}$
Averages of Individual data	174	$Y = 2.9e^{-0.033t}$	-0.498***	21.3	$Y = 2.9e^{-0.009t}$
Yearly data	29	$Y = 3.1e^{-0.034t}$	-0.937***	20.3	$Y = 3.1e^{-0.011t}$
Nation wide averages of All of the data					
All of the data	312	$Y = 4.4e^{-0.042t}$	-0.466***	16.5	$Y = 4.4e^{-0.019t}$
Yearly data	29	$Y = 4.9e^{-0.040t}$	-0.968***	17.3	$Y = 4.9e^{-0.017t}$

***: $p < 0.001$ **: $p < 0.01$ *: $p < 0.05$

n: Number of samples analyzed

Y: ^{137}Cs contents in paddy top-soil at the t year after 1964 (kBq/m²)

Table 4 Residence half-time in top-soil and eluviation rate from top-soil to the sub-soil of ^{137}Cs in the upland field

Sampling sites	n	Residence half-time (B)			Residence half-time (C) and eluviation rate (ER)		
		Regression equation	Correlation coefficient(r)	RHT-B (year)	Regression equation	Correlation coefficient(r)	RHT-C (year)
Japan Sea side							
Sapporo, HOKKAIDO	27	$Y = 3.7e^{-0.042t}$	-0.924***	16.5	$Y = 3.7e^{-0.019t}$	-0.736***	36.6
Nagaoka, NIIGATA	28	$Y = 8.9e^{-0.037t}$	-0.956***	18.6	$Y = 8.9e^{-0.014t}$	-0.780***	48.7
Amagi, FUKUOKA	15	$Y = 3.1e^{-0.029t}$	-0.886**	24.0	$Y = 3.1e^{-0.006t}$	-0.363	-
Averages of Individual data	70	$Y = 4.6e^{-0.032t}$	-0.475***	22.0	$Y = 4.6e^{-0.009t}$	-0.145	80.9
Yearly data	29	$Y = 5.1e^{-0.031t}$	-0.831***	22.7	$Y = 5.1e^{-0.008t}$	-0.347	91.9
Pacific Ocean side							
Morioka, IWATE	27	$Y = 3.8e^{-0.030t}$	-0.887***	23.1	$Y = 3.8e^{-0.007t}$	-0.411*	98.4
Iwanuma, MIYAGI	11	$Y = 5.2e^{-0.063t}$	-0.878***	11.1	$Y = 5.2e^{-0.040t}$	-0.758**	17.5
Mito, IBARAKI	21	$Y = 3.4e^{-0.066t}$	-0.887***	10.5	$Y = 3.4e^{-0.043t}$	-0.782**	16.1
Kumagaya, SAITAMA	27	$Y = 5.7e^{-0.075t}$	-0.953***	9.2	$Y = 5.7e^{-0.054t}$	-0.914***	12.9
Tachikawa, TOKYO	21	$Y = 4.1e^{-0.035t}$	-0.801***	19.9	$Y = 4.1e^{-0.012t}$	-0.416	58.2
Futaba-cho, YAMANASHI	15	$Y = 3.0e^{-0.037t}$	-0.908***	18.9	$Y = 3.0e^{-0.014t}$	-0.628*	50.8
Sanyo-cho, OKAYAMA	24	$Y = 2.8e^{-0.024t}$	-0.821***	28.5	$Y = 2.8e^{-0.001t}$	-0.074	-
Averages of Individual data	146	$Y = 3.7e^{-0.043t}$	-0.741***	16.3	$Y = 3.7e^{-0.020t}$	-0.454***	35.3
Yearly data	29	$Y = 3.8e^{-0.041t}$	-0.952***	16.9	$Y = 3.8e^{-0.018t}$	-0.808***	38.5
Nation wide averages of All of the data							
All of the data	216	$Y = 4.1e^{-0.041t}$	-0.631***	16.8	$Y = 4.1e^{-0.018t}$	-0.340***	37.7
Yearly data	29	$Y = 4.4e^{-0.039t}$	-0.956***	17.6	$Y = 4.4e^{-0.016t}$	-0.805***	42.4
***: $p < 0.001$ **: $p < 0.01$ *: $p < 0.05$							
n: Number of samples analyzed							
Y: ^{137}Cs contents in upland top-soil at the t year after 1964 (kBq/m ²)							

つに土壤の性質の違いが考えられるが、本研究で調べた土壤の各種性質 (Table 1, 2) と滞留半減時間 (RHT-B)・(RHT-C) および溶脱率との間には一定の関係は見られなかった。人工的に ^{137}Cs を土壤に添加し自然条件下でその溶脱量を検討した実験では、粘土含量の多い上越土壤（高田土壤）は粘土含量の少ない盛岡土壤より ^{137}Cs の保持力が強く溶脱されにくいという報告⁴⁾もあるが、本研究では盛岡土壤の方が溶脱されにくいという結果となり、土壤の性質と ^{137}Cs の滞留半減時間と溶脱率との関係は今後の検討課題である。また、地域別に日本海側と太平洋側で比較 (Table 3, 4) したところ、水田作土では前者の方が後者よりも短い傾向が認められた。しかし、畑作土では試料数が少ないことが影響して逆の傾向が認められた。しかし、水田作土にみられる差についての要因の一つとして降水量の違いが考えられるが、この点についてもさらに検討を重ねる必要がある。

本研究で得られた滞留半減時間 (RHT-B) とBunzlら⁵⁾が牧草地で同様にして得た滞留半減時間（層位5-10cmで約15年）を比較すれば、前者の方が後者よりもやゝ長い傾向が示された。また、滞留半減時間 (RHT-B) について、本研究と同じ水田作土（秋田）を用いた山本ら⁶⁾のコンパートメントモデルから得られた ^{137}Cs の値（みかけの滞留時間から推定）と比較したところ本研究の方がやゝ長いことが示された。これらの値はいずれもグローバルフォールアウトでの結果で、しかも降下後長い年数を経過した時の値である。 Chernobyl 起源の ^{137}Cs を対象に、降下直後から経時的に降下初期における鉛直方向への移動を見た結果⁷⁾によると、移動速度は、0.2-0.3cm/hと核爆発実験起源グローバルフォールアウトで得られた値0.4-1.0cm/yよりも著しく早いことが報告されている。

大気から降下する ^{137}Cs の化学形態は充分には解明されてゐるとは思われないが、酸化物や微細粒子との結合物と推定され、これらの ^{137}Cs 化合物は荷電を持つ割合が少く、地表に降下した ^{137}Cs は時間とともにイオン化し土壤に吸着される量が増加し、さらに時間経過を積むことによりこれらの一部は固定されて不動化し、溶脱量は少なくなると考えられる。トレーサ実験で土壤に添加された $^{137}\text{Cs}^+$ はほぼ100%吸着され、水や1M-酢酸アンモニウムで抽出されない難溶性画分が短期間（時間単位）に 50-70%占めるようになり、さらに長時間（年単位）経過すれば、土壤の粘土鉱物に取り込まれたと推定される固定態に変化し、水稻にも吸収されない安定な形態に変化する割合が多くなることが報告⁴⁾されている。 Chernobyl 起源 ^{137}Cs 、 Chernobyl 起源 ^{137}Cs およびグローバルフォールアウト起源 ^{137}Cs 間では土壤に負荷された時の化学形態が異なると考えられるため移動速度を議論する場合には、 ^{137}Cs の土壤中での存在形態を明らかにしておく必要があろう。

Fig. 4, 6の減少曲線Cにおいて、 ^{137}Cs の減少割合を、1964年から1979年までと 1980年から1993年までとを比較すれば、前者の方が後者よりも大きい傾向が認められる。すなわち、この減少曲線は、1964年から1979年までの ^{137}Cs の多量降下期における降下後の経過時間の短い時に認められる水の浸透とともに容易に移動する ^{137}Cs 画分と、1980年以降の ^{137}Cs の多量降下期から長期間の経過を有し移動し難い形態に変化した ^{137}Cs 画分の二つの要素から構成された複合曲線から成り立ってると思われる。しかし、減少曲線の基準年が1964年であり、 ^{137}Cs の存在形態はすでに難溶性に変化している部分もかなりあると 思われるため、溶脱の 難易に対する ^{137}Cs のこのような二面性についての議論はさらに検討する必要がある。

3. 4 ^{137}Cs の水田・畑作土とその下層土の分布割合

水田・畑土壤における ^{137}Cs の鉛直分布、すなわち、作土とその下層土の分布割合を把握しておくことは、米・麦の ^{137}Cs 汚染解析を行う上で重要である。減少曲線Cの回帰式が1996年時点における ^{137}Cs の作土とその下層土の分布割合を算定した結果を、水田と畠の採取地が同じ試験場構内の例（5地点）をFig. 7に示した。両者の分布割合は土壤により大きな違いが認められた。また、水田と畠とを比較すると、後者の方がやく作土に多く残っている傾向が認められた。しかし、全国平均（水田14・畠10地点）では、両土壤による差は認められず両者とも6（作土）：4（下層土）となり、作土層に多く存在することが示された。

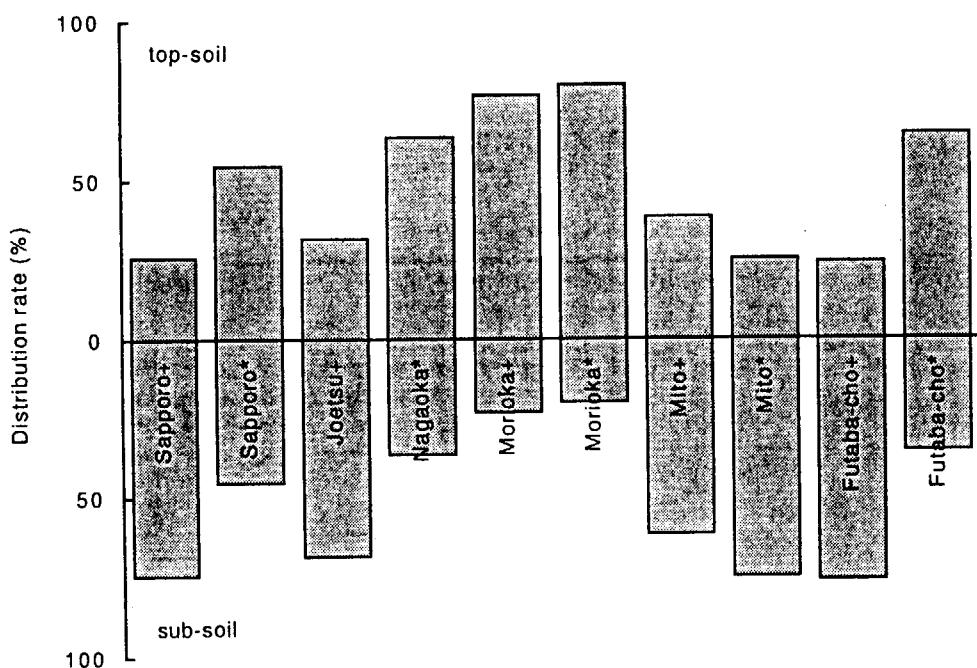


Fig. 7 Estimated distribution rate of ^{137}Cs in top-soil and the sub-soil of 10 fields at 1996
+: Paddy field *: Upland field

4.まとめ

水稻・小麦は主として作土（top-soil）中の ^{137}Cs を吸収する。水田・畠作土中の ^{137}Cs の経年的な濃度変化を統計的に処理して、 ^{137}Cs の作土内滞留半減時間および作土からその下層への溶脱率を求めた。

我が国の水田・畠作土中 ^{137}Cs の滞留半減時間は、溶脱と放射性壞変の両方により減少する ^{137}Cs のみかけの滞留半減時間は両作土とも平均16～17年で、放射性壞変を補正した溶脱のみにより減少する ^{137}Cs の真の滞留半減時間は平均で41～42年となった。作土からその下層への ^{137}Cs の溶脱率は平均年1.6～1.7%であった。また、1996年における ^{137}Cs の作土（top-soil）とその下層土（sub-soil）の分布割合を推定した結果、土壤の種類により著しく異なるが、平均で示せば両土壤とも6：4となった。

本研究を遂行するに当たり、農業環境技術研究所三輪哲久調査計画研究室長には統計処理に多大の御教示をいただいた。こゝに謝意を表します。さらに、分析用試料を長年月にわたって提供して下さった国公立農業試験場の関係者の方々に深謝いたします。

参考文献

- (1) 放射能調査研究成果発表会論文抄録集、第1回－第37回（1959-1995）、科学技術庁
- (2) ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー、放射能測定シリーズ、科学技術庁（1990）
- (3) 青山道夫、広瀬勝巳、五十嵐康人、宮尾 孝：気象研究所技術報告、第36号、気象研究所（1996）
- (4) 津村昭人、駒村美佐子、小林宏信：土壤および土壤-植物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関する研究、農業技術研究所報告、B36、57-113（1984）
- (5) Bunzel, K., Kofuji, H., Schimmack, M. : Residence time of global weapons testing fallout ^{237}Np in a grassland soil compared to $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs , *Health physics*, **68**, 89-93
- (6) Yamamoto, M., Sha, L., Kofuji, H., Tsumura, A., Komamura, M., Yuita, K. and Yamasaki, S. : Distribution and behavior of transuranium elements in paddy surface soil, Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters, Proceedings of Nuclear Cross-Over Research, 198-206, Promotion Committee on Nuclear Cross-Over Research, Japan (1996)
- (7) Schimmack, W., Bunzl, K. and Zelles, L. : Initial rates of migration of radionuclides from the Chernobyl fallout in undisturbed soils, *Geoderma*, **44**, 211-218 (1989)



4. 降水・降下塵中の⁹⁰Sr および¹³⁷Cs の観測データと その環境挙動研究への利用

五十嵐康人、青山道夫、宮尾孝、広瀬勝己
気象研究所 地球化学研究部

長期にわたる大気環境中の放射性核種の観測研究により明らかとなった放射性核種の挙動につき述べ、観測研究の果たすべき役割につき言及する。1990 年代の観測結果と、放射性降下物をもたらす各過程につき、減衰時間、放射性核種と相当する安定体との比 (r/s 比)、¹³⁷Cs /⁹⁰Sr 比につき考察、解析し、大気中の人工放射性核種の主要な起源はいわゆる再浮遊であることを明らかにした。また、再浮遊の起源として、新たに、地球化学的に重要な過程である黄砂現象など、大規模風送塵がその主たる担い手である可能性を提案した。また、最近見出された過剰な⁹⁰Sr の降下量の事例について、減衰時間、r/s 比、¹³⁷Cs /⁹⁰Sr 比につき検討し、異常の検知法について示唆を与えた。

Observation of the ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs Deposition and its Application to the Research on Environmental Behavior of Radionuclides

Yasuhito IGARASHI, Michio AOYAMA, Takashi MIYAO and Katsumi HIROSE
Geochemical Research Department, Meteorological Research Institute

Depositions of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs have been observed at Meteorological Research Institute (MRI) since 1957. After the Chernobyl accident neither atmospheric nuclear test was conducted nor the severe accident occurred, the present atmospheric ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs concentration level became extremely low. The argument has been focused on the significance of the resuspension in the radioactivity deposition. We analyzed the radioactivity deposition data from the viewpoint of decay time, ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr activity ratio and radioactivity to stable elements (r/s) ratio. It was concluded that most of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs deposited in the 1990s are from the resuspension. Also, the comparison of ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr activity ratio in the deposition and Japanese soil suggests a hypothesis that a large portion of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs may be transported by the aeolian dust from the Asian continent. We have observed an anomalous ⁹⁰Sr deposition at, Tsukuba, Japan during the fall of 1995. This anomalous deposition was confirmed by the re-analysis of the sample, the associated lowest ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr activity ratio and high r/s ratio, etc.

Keywords : ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs deposition, Half residence time, Resuspension, ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr activity ratio, r/s ratio, Anomalous ⁹⁰Sr deposition

1. 緒言

気象研究所では、40年間にわたり大気圏での放射性核種の濃度変動の実態とその変動要因を明らかにすべく、重要な核種について観測を継続している¹⁻¹¹⁾。ここでは過去を振り返り、ながら、1990年代につくば市の気象研究所で観測された⁹⁰Srおよび¹³⁷Cs降下量を中心に述べる。⁹⁰Srおよび¹³⁷Csは主に大気圏内核実験や大規模事故により環境中に放出されたものであり、1990年代では大気中に検出されるこれらの核種は、一旦地表に降下したものが再浮遊しているものと考えられる。最近では人工放射性核種の降下量は検出限界程度のレベルで推移しており、単純なモニタリングは陳腐化したように思われる。しかし、単に規制レベルを超えるのか否かを眺めるのではなく、観測値を数値化して（超微量分析に取り組む）その変動要因を考えることにより、依然として明らかになる現象がある。現状の観測は、地球環境という閉鎖系に添加された放射能の行き方や何処（いずこ）、ということを数十年という時間スケールで調べていることに他ならない。1990年代に入ると、人工放射性核種の降下は主として再浮遊を起源とするが、ここでは、なぜ再浮遊が主要と言え得るのか、また再浮遊を支える地球化学的な現象は何かについて論じる^{7,8)}。

さらに最近見出された過剰な⁹⁰Srの降下量の事例につき述べ、観測研究、すなわち、ベースラインデータが事故などの検出にどのように活用できるかについて考察する。

2. 研究方法

2. 1 試料および分析法

試料採取法、分析法の概略を述べる^{7,8,12)}。毎月、気象研観測露場に設置したプラスチック製大型水盤（4m²）に捕集された降下物を採取し、蒸発濃縮して減容し、最終的にプラスチック容器に充填する。Ge半導体検出器により数日～数週間測定し、¹³⁷Csを定量する。次に、試料中の有機物を硝酸などで分解し、溶液化しその一部を分取し、ICP-AES、ICP-MSを用いて、安定な元素を分析する。残りの溶液中の⁹⁰Srを、安定Srを担体として、シュウ酸塩沈殿法、発煙硝酸沈殿法など6種類の沈殿分離を組み合わせた放射化学分離により精製し、最終的には、Srを炭酸ストロンチウムとして回収、固定し、放射能測定用の試料とする。数週間放置して⁹⁰Srと⁹⁰Yとが放射平衡に達した後に、低バックグラウンド2πガスフロー検出器でのβ線を測定して定量する。

人工放射能の降下量は検出限界近くの水準となっているので、分析に於ける品質管理の必要性が一層増している。そこで、当研究部で保管してきた、日本各地14地点で1963-1979年に実際に捕集された降下物を有効に活用し—合併・混合して標準試料（reference material）を調製し、推奨値を得るために関係各機関に依頼し相互比較を実施した。この作業の結果、気象研の⁹⁰Sr、¹³⁷Cs分析データは、各機関の分析値の平均に近く、現在の分析法が信頼できることが証明でき、また将来とも一定程度担保できた¹²⁾。品質管理方法としては、この標準試料の分析をγ線測定、⁹⁰Sr分析のいずれについても繰り返し行っている。

3. 結果

3. 1 降下量の時間変動

図1に気象研観測露場で得られた、1957年よりの月間の⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs 降下量を示す。1980年に気象研究所は、東京都杉並区高円寺より、茨城県つくば市に移転した。放射性降下物の量は緯度に大きく依存するが、東京とつくばの距離はおよそ 60 km であるので、この観測記録は一応連続したものとみなせる。大気圏内核実験は1980年の中国核実験を最後に行なわれておらず、人工放射性核種の降下量は1985年に最低となった。1986年のチェルノブイリ事故により一時的に降下量は増大したがその後は急激に低下して、1990年以後、1985年に記録したレベル以下の状態で推移している。また、両核種について1990年以後、降下量の減少は見られず、ある一定の水準を維持している(図2)。1994年以後の年間降下量は成層圏滞留半減期から予想される量を大きく上回っており、再浮遊が降下する放射能の主たる成分である。こうした再浮遊は、¹⁰Be のような年代測定に有用な天然の長半減期放射性核種にもみられる。一方、1995年9月に⁹⁰Srの降下量の増大を認めた¹³⁾。

3. 2 放射性降下物をもたらす過程

放射能は、直接に対流圏を経由する過程、成層圏を経由する過程との2つで圧倒的に地表にもたらされる。しかし、これらの成分が減少するにしたがい、3番目の過程—地表に降下した放射性核種が土壤粒子とともに再浮遊する成分が重要となる。なお、海洋表層には放射能が残留しているが、Na イオンの降下量からすると海塩粒子によるその輸送は無視し得る。さて、実際の降下量はこれら3つの過程でもたらされる量の和である。そこで、各成分の特徴を減衰時間、放射性核種と相当する安定体との比(r/s 比), ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 比につき考察し、再浮遊過程について検討した^{7,8)}。さらに1995年9月の⁹⁰Srの異常事例についても同じ視点から解析した¹³⁾。通常に実施されているモニタリングでは、あくまでも監視対象とする核種の時間変動のみを考えるのがもっぱらであるが、安定同位体との比や放射能比を得て活用することにより、降下量を支える主たる過程をより明確にすることができます。

3. 3 再浮遊の寄与は？ 降下量の減衰による考察

エーロゾルの対流圏での滞留半減期は1箇月程度で¹⁴⁾、核実験、事故などで放出された放射能の対流圏フォールアウトは、翌年には1/1000以下となり無視できる。成層圏フォールアウトの滞留半減期は約1年であり¹⁵⁾、年間降下量につき着目して解析できる。¹³⁷Cs の年間降下量変動についてこの考えをあてはめ、1980年10月の中国による最後の大気圏内核実験以後の数年間に注目すると、1982年以後の降下量(D)のカーブフィットにより、滞留半減期は約1.1年となった。チェルノブイリ事故で放出された¹³⁷Cs の一部は成層圏に輸送されたと考えられるので、仮に全量が成層圏由来とすれば、その減少は1.1年の減衰時間に従うはずである。だが、対流圏降下が無視できる1987年より1.1年の減衰曲線をのばしても、1990年代

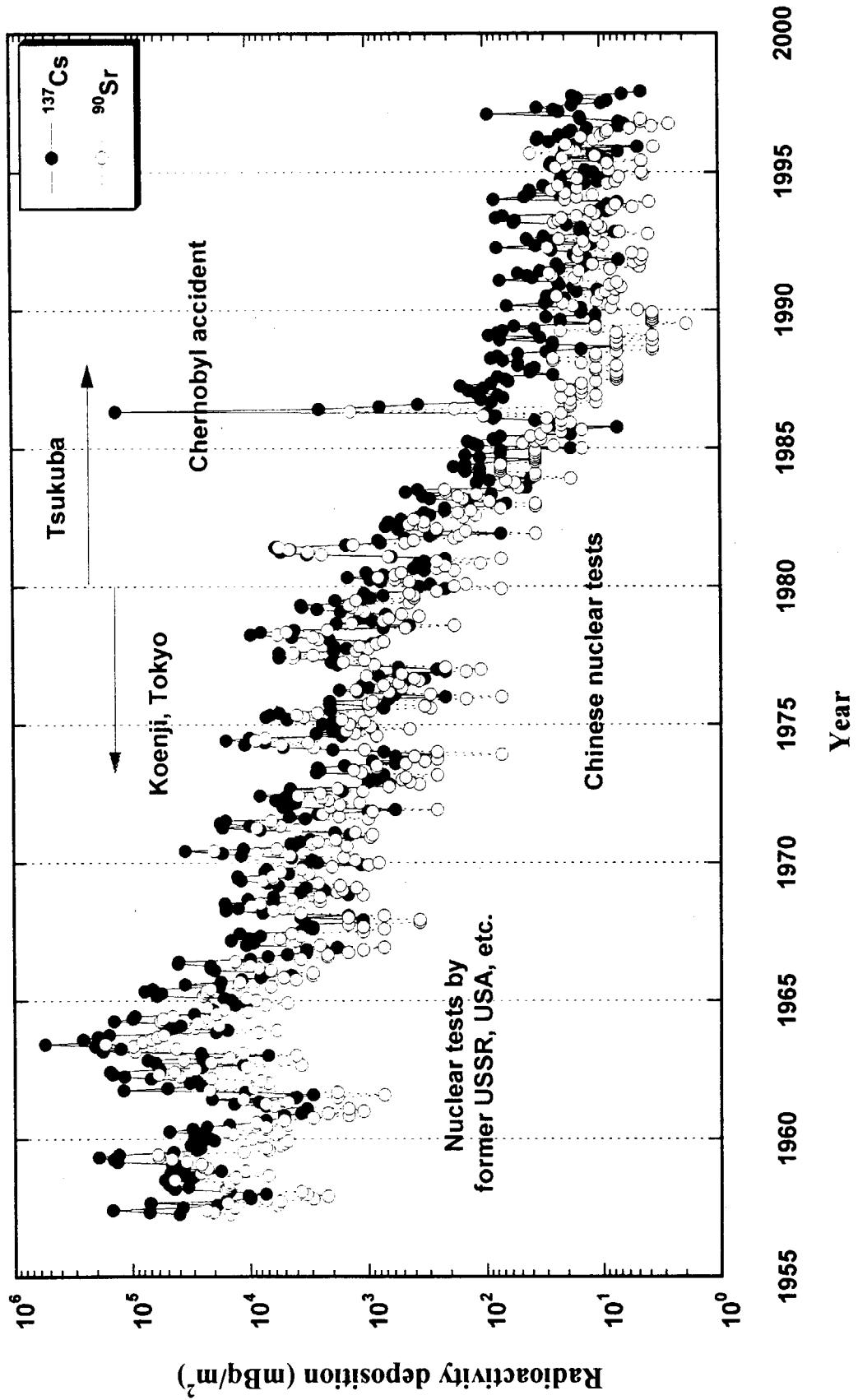


図 1 Temporal variation in the monthly ^{90}Sr and ^{137}Cs depositions observed at MRI since 1957

の予測 ^{137}Cs 降下量は、実際よりも明らかに少ない。実際の降下量はほぼ横ばいである。どうしても、再浮遊 (R) を考慮する必要が生ずる。問題はその量の見積もり方だが、値がほぼ一定となった 1990~92 年の降下量の平均値を再浮遊量 (R) と仮定して、1987~89 年の降下量 (D) について考えると、

$$D_{87+1} = S_{87+1} + R = D_{87} \times \exp \{(-\ln 2/S_T) \times t\} + R$$

(添え字は年をあらわし、t は経過時間を、 S_T は成層圏での滞留半減期である。) となり、成層圏滞留半減期として約 0.89 年が得られた (図 3)。同様に 1982~85 年の降下量について滞留半減期は約 0.84 年となり、チェルノブイリ事故の前後で成層圏滞留半減期の値が一致することから、結果的に最初の仮定は正しかったと言え得る。従って、再浮遊過程による降下量への寄与は、少なくとも 1980 年代初期から無視できない程度になり、その量はおよそ 1990 年代の年間降下量と考えて差し支えないことがわかった。しかし、再浮遊量は、1960 年代の放射性降下物に比べると 1000 分の 1 以下に過ぎない。また、1990 年代のその後の ^{137}Cs 降下量変動を見ても、劇的な変化はなかったと言え、再浮遊量の見積もりは 1 次の近似としては問題ないと考えられる。

3. 4 r/s 比による考察

現在の放射性降下物は成層圏に由来しないことを、さらに、特殊な同位体比とも呼ぶべき放射能と安定同位体の比 (r/s 比) により確認した。核反応で生成した放射性核種には、相当する安定同位体はほとんど付随しないと思われる。また、大気圏内の核爆発では周囲の物質が巻上げられるが、やはり量的には少ないとと思われる。一方、再浮遊では、放射性核種は、土壤粒子に付着しており安定な元素により希釈されている。従って、定性的には、r/s 比は成層圏フォールアウトで大で、再浮遊では小である。もし、春季の降下量の増大が成層圏フォールアウトに由来するのであれば、r/s 比は増大すると考えられる。しかし、1990 年代の降下物について求められた r/s 比は ^{90}Sr では、20 から 110 mBq/mg、 ^{137}Cs については 2 から 20 mBq/ μg 程度の範囲で変動するが、春季の降下量極大に対応した r/s 比の増大はまったく見られなかつた。従って、現在降下している放射能のほとんどは成層圏由来ではなく、土壤よりの舞い上がり起源であることが確認できた。また、r/s 比と降下量の間には明確な相関関係は認められない。

3. 5 再浮遊の起源は？ 核種比による考察

図 4 に 1990~95 年の月間降下物での $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比と土壤での比を示す^{8,16-18)}。同比は降下物試料では 1~5 程度の範囲で変動している。1960~70 年代の放射性降下物中での同比は約 1.6 であり、両核種の物理半減期はともに約 30 年なので、当時の組成が保持される環境下では、この比は現在でもほぼ変わらない。しかし、日本のような湿潤で温暖な地域では、地表に降下した核種は降水により徐々に地下方向に溶脱・移行する。移行速度は核種の属する元素の化学的性質と土壤の性質に依存する。 ^{90}Sr の方が早く溶脱し、 ^{137}Cs の方が長く地表面近くに残留する。

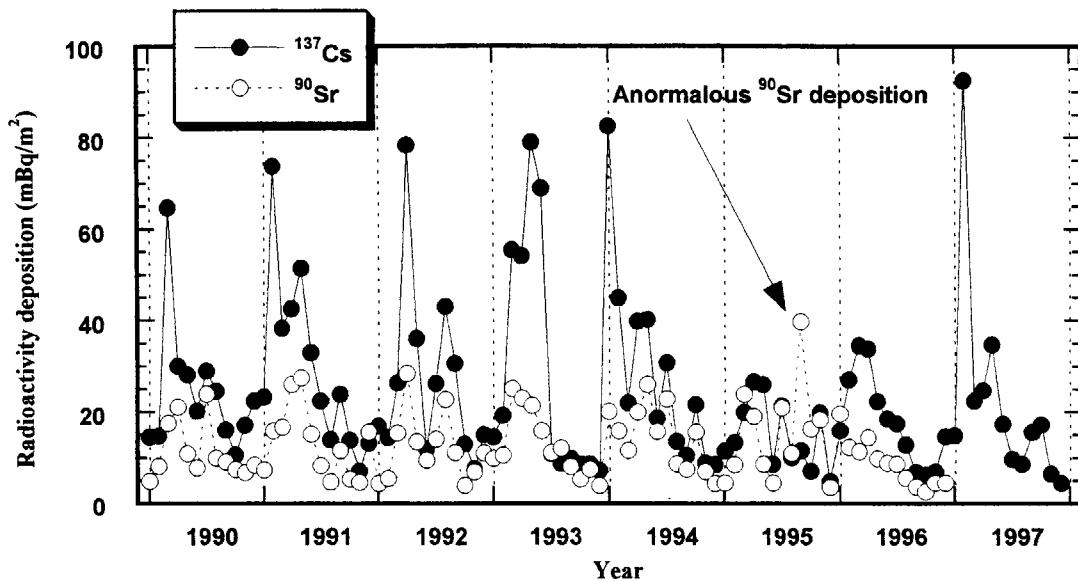


図2 Temporal variation in the monthly radioactivity deposition at MRI, Tsukuba during 1990 to 1997

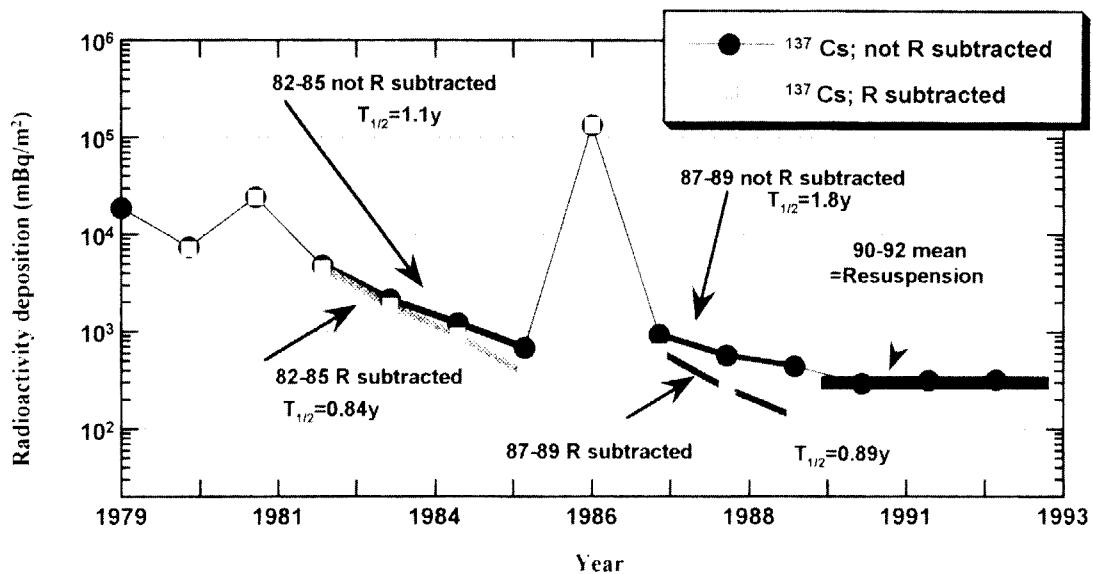


図3 Deconvolution of ¹³⁷Cs deposition into stratospheric and resuspension components by decay time analysis

したがって、日本の表層土での $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比は1.6よりも大きくなり、図4にも見られるように10を超える場合もある。泥が舞い上がって降ってくるイメージから、冬季にときおりまじかで砂塵嵐を見る私たちは、再浮遊の主な起源として近傍の畑などを想像する。もしそうだとすれば、降下物中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比は常に1.6より大で、かつ、日本の土壤での比に近いはずであるが、事実はそうならない。あらためて表土粒子の発塵について考えると、風の強い乾燥した季節に盛んになると思われる。しかし、 ^{90}Sr , ^{137}Cs の降下量と月間降水量を比較しても両者間には逆相関ではなく、表土が乾燥しても必ずしも降下量が大とはならない。従って、ローカルな再浮遊とは別な再浮遊を想定する必要がある。

そこで、物質輸送の観点から注目されている大陸黄砂が人工放射能の再浮遊としてむしろ重要である、という仮説が提示できる^{7,8)}。黄砂（より一般的には風送塵と呼ぶ。）は春季に頻繁に、また秋季にも観認される現象で、日本列島における1m²あたりの年間降下量は数g以上になる¹⁹⁾。最近の観測により、黄砂粒子は、春季・秋季には常時上空に飛来していると考えられるようになった。太平洋の深海堆積物は黄砂由来と考えられている。また、黄砂の発生源の一つとされるタクラマカン砂漠には、核実験場のロップノールがあり、局所的な汚染が残留していたり、降水量が小さいので $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比1.6が保持されてもおかしくはない。仮説が事実であれば、これらの核種は反対に風送塵の地球化学的トレーサーとして活用できる可能性が出てくる。

3. 6 1995年9月の ^{90}Sr の異常事例とその考察

この月の降下量は40 mBq/m²で、1990年から1994年に観測されたいずれの値よりも大きく、年間降下量の約4分の1に相当し、 ^{137}Cs 降下量をも上回っていた¹³⁾。前にも述べたように、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 降下量比は1960年代のグローバルフォールアウト最盛時に1.6であり、この比が1以下となることはまずあり得ない。とりあえず分析の失敗を想定して、分離した試料をGe半導体検出器により測定して妨害核種を調べたが、妨害となりそうな核種は検出できなかった。次に、発煙硝酸法による沈殿分離ほかの化学分離を再度行い分析結果を比較したが、最初の分析値と2回目の分析値は誤差範囲内で一致した。また、2回目の分析では、 ^{90}Y 放射能の成長を調べたが、計算値と一致する結果が得られた。図3に示すように、この月の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 降下量比は1以下であった。また、r/s比（放射能/相当する安定体量）は約180と1991年から1993年に記録された範囲よりかなり大きかった（図5）。この確認作業により、1995年9月の ^{90}Sr 降下量は通常より大きいことを認めた。当初の ^{137}Cs 測定で得られた γ 線スペクトルについても再度検討したが、 γ 線放出核種については特別に異常を認めなかつた。これらの事から、この月の降下量の増大は ^{90}Sr に限定されると判断した。

そこで、 ^{90}Sr 降下量の過剰分につき見積もりを行った（図6）。過剰分は全降下量から再浮遊寄り分を差し引けばよい。二通りの方法を検討した。すなわち、1995年6, 7, 8, 11月における $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 降下量比が1であったことから、 ^{90}Sr 降下量から直接の ^{137}Cs 降下量を差し引くか、あるいは、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 降下量比を、1960年代のグローバルフォールアウト時の1.6と仮

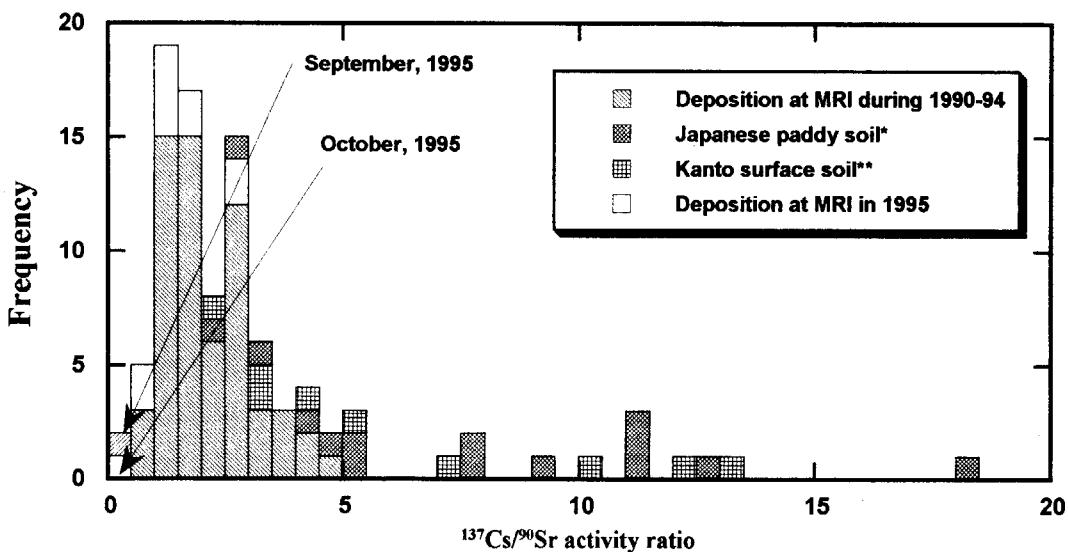


図 4 Frequency plot of $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ activity ratio in the 1990-95 depositions, Japanese paddy soils and Kanto surface soils
 *Komamura, 1995, **Radioactivity survey data 92, 93

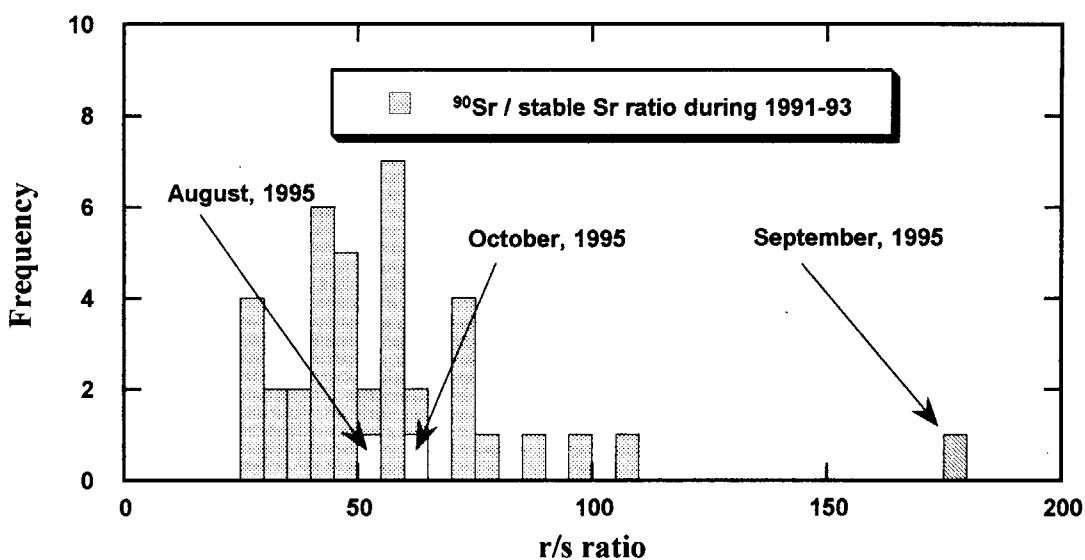


図 5 Frequency plot of $^{90}\text{Sr} / \text{stable Sr}$ ratio (r/s ratio) in the 1991-93 deposition samples and August, September and October 1995 samples

定して計算した。 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 降下量比を 1 として計算した場合には、10 月にもこの異常は認められ、この過剰分の滞留半減期はおよそ 20 日と思われた。同比を 1.6 と仮定した場合、11 月にも過剰の降下があったことが示唆され、過剰分の滞留半減期はより長くおよそ 1 箇月と思われた。この滞留半減期は対流圏でのエアロゾルのものとほぼ等しく、過剰の ^{90}Sr はかなり広域に拡散していたと推測できる。きわめて大雑把な推定であるが、つくば市における過剰降下量約 50 k Bq/km² が北半球 30-40° 帯全域に広がったと仮定すると、約 1.8 TB q (約 50 Ci) の ^{90}Sr が降下したことになる。

次に考えるべきなのは、どのような発生源があり得るかである。r/s 比は、約 180 とかなり大きいので、再浮遊が原因でないことは明らかである。可能性としては、 Chernobyl などでのかなり大規模な放出、国内での放出、核物質を搭載した人工衛星などを挙げることができる。しかし、原子力施設からの ^{90}Sr のみの選択的な放出は考えにくい。報道関係などにも確認したが、放出源となりそうな事故の報告はこの期間については、国内外ともになかった。人工衛星の再突入が最もあり得そうに思えたが、アメリカ NASA などへの問い合わせの結果では、該当する期間の核物質を搭載した人工衛星などの再突入はないとの回答だった²⁰⁾。また、アメリカでも ^{90}Sr の大気中濃度の観測は実施されていない模様で、異常値の確認を行うことができなかつた。さらに続けての分析によると、翌 1996 年の春には ^{90}Sr の降下量の増大は認められなかつた(図 2)。従って、人工衛星による放出ではないと考えられる。これらの情報を総合して成層圏内ではなく、対流圏内、おそらくは地表から何らかの ^{90}Sr の事故放出があつたと推定した。

Aarkrog よれば²¹⁾、旧ソ連では、遠隔地の灯台の電源として 10 PB q レベルの ^{90}Sr 電池を使用していたとのことであり、環境汚染の潜在的 possibility が想定できるという。汚染は生じなかつたが、1987 年サハリンの東岸で 13 PBq の ^{90}Sr 線源を輸送していたヘリコプターが墜落する事故があつたとのことである。放出源を示唆する情報のひとつであろう。

気象による解析を今回も加えていないので、放出源の特定は困難であった。しかし、今回の観測データの時間分解能は 1 箇月であるから、単純に流跡線解析を加えただけでは、放出位置の特定は困難であろう。高精度、高分解能のモデルを用いること可能であろうか。純 α 及び β 放出核種を γ 線測定によるモニターでは捉えることができないことは明らかで、今回検知されたような事象の発生も想定できることから、放射性核種の環境監視に純 α 及び β 放出核種の観測を加えることが望ましい。最後に、この過剰 ^{90}Sr による汚染はまったく健康に影響を及ぼすレベルではないことを明記する。

4. 結語

今後とも観測を継続してデータの蓄積をはかり、降下量や大気中濃度の変動要因、特に再浮遊の発生地域についてモデル研究と連携をすすめながら、研究を進める。長期にわたる観測値は、環境での核種の動態、すなわち素過程を反映しており、動的モデルの構築に重要な

ヒントを与えるものと考えている。また同時にここで示したように異常の検知の観点からも重要である。

5. 参考文献

- 1) Aoyama, M., Hirose, K. and Sugimura, Y. (1987). Deposition of gamma-emitting nuclides in Japan after the reactor-IV accident at Chernobyl. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 116, 291-306.
- 2) Aoyama, M. (1988). Evidence of stratospheric fallout of caesium isotopes from the Chernobyl accident. *Geophys. Res. Lett.*, 15, 327-330.
- 3) Aoyama, M., Hirose, K. and Sugimura, Y. (1991). The temporal variation of stratospheric fallout derived from the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioactivity*, 13, 103-115.
- 4) Hirose, K. and Sugimura, Y. (1984). Plutonium in the surface air in Japan. *Health Phys.*, 46, 1281- 1285.
- 5) Hirose, K., Aoyama, M., Katsuragi, Y. and Sugimura, Y. (1987). Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: A simple model. *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 65, 259-277.
- 6) Hirose, K., Aoyama, M. and Sugimura, Y. (1990). Short and long term effects of Chernobyl radioactivity on deposition and air concentrations in Japan. IAEA-SM-306/129 Vol.1, 141-149, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- 7) Igarashi, Y., Otsuji-Hatori, M. and Hirose, K. (1996). Recent Deposition of ^{90}Sr and ^{137}Cs Observed in Tsukuba. *J. Environ. Radioactivity*, 31, 157-169.
- 8) Igarashi, Y., Miyao, T., Aoyama, M. and Hirose, K. (1996) Consideration on the source of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in Tsukuba, Proceedings of 1996 SERNIA Symposium on Environmental Radioactive Nuclides Impact in Asia, Sep. 1996, Taipei, ROC-Taiwan.
- 9) Katsuragi, Y. (1983). A study of ^{90}Sr fallout in Japan. *Pap. Met. Geophys.*, 33, 277-291.
- 10) Katsuragi, Y. and Aoyama, M. (1986) Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983. *Pap. Met. Geophys.*, 37, 15-36.
- 11) Katsuragi, Y., Hirose, K. and Sugimura, Y. (1982). A Study of plutonium fallout in Japan. *Pap. Met. Geophys.*, 33, 85-93.
- 12) Otsuji-Hatori, M., Igarashi, Y. and Hirose, K. (1996) Preparation of a Reference Fallout Material for Activity Measurements., *J. Environ. Radioactivity*, 31, 143-155.
- 13) Igarashi, Y., Aoyama, M., Miyao, T., Hirose, K. and Tomita, M., Anomalous ^{90}Sr deposition during fall, 1995 at MRI, Tsukuba, Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.* in press.
- 14) Rangarajan, C. (1992). A study of the mean residence time of the natural radioactive aerosols in the planetary boundary layer, *J. Environ. Radioactivity*, 15, 193-206.

- 15) Krey, P. W. and Krajewsky, B. (1970) J. Geophys Res., 75, 2901- 2908.
- 16) 駒村美佐子. (1995) 私信, 農業環境技術研究所.
- 17) NIRS (1992). Radioactivity Survey Data in Japan No.96, NIRS-RSD-96, National Institute of Radiological Sciences, Chiba.
- 18) NIRS (1993). Radioactivity Survey Data in Japan No.100, NIRS-RSD-100, National Institute of Radiological Sciences, Chiba.
- 19) 名古屋大学水圏科学研究所 (1991) : 大気水圏の科学・黄砂. 古今書院.
- 20) Aarkrog, A. (1995) Global radioecological impact of nuclear activities in the former Soviet Union, IAEA-SM-339/174, pp. 13 - 32.
- 21) Johnson N. L. (1997) Private communication, Lyndon B. Johnson Space Center, National Aeronautics and Space Administration, U.S.A.

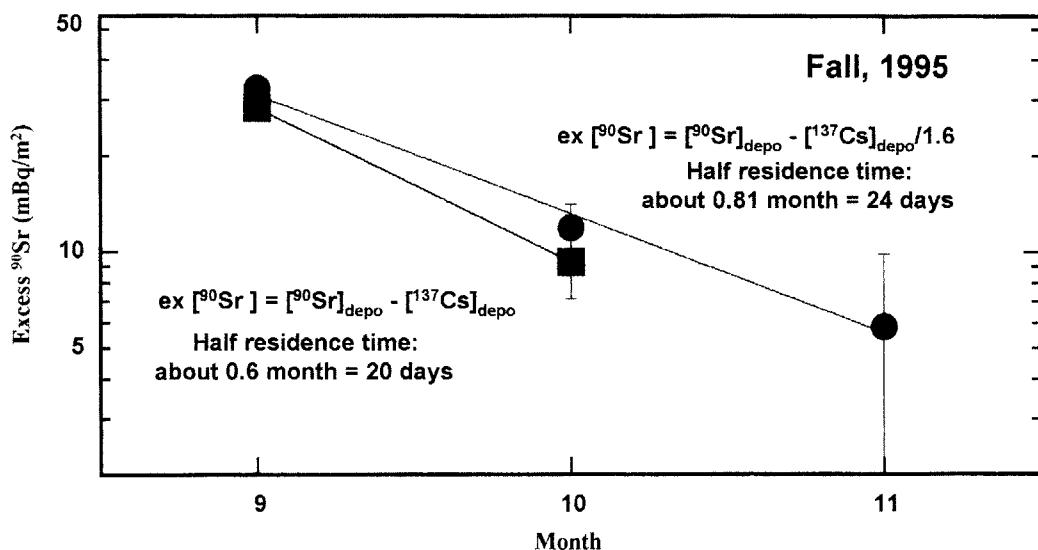


図6 Estimation of the excess ${}^{90}\text{Sr}$ deposition in 1995 and its atmospheric half residence time assuming the ${}^{137}\text{Cs}/{}^{90}\text{Sr}$ ratio of 1.6 and unity



JP9950129

JAERI-Conf 99-001

5. チェルノブイル事故炉周辺環境における長半減期放射性核種の分布と挙動

天野 光、松永 武、上野 隆、長尾誠也、柳瀬信之、渡辺美紀、半澤有希子
日本原子力研究所 環境安全研究部

チェルノブイル事故炉周辺の住民排除区域（30km圏）内の自然環境において Cs-137、Sr-90、超ウラン元素等の長半減期放射性核種の分布と挙動を調べている。研究項目は i) 核種濃度分布の特徴把握、ii) 核種の物理的、化学的存在形態、iii) 核種の移行挙動の特徴把握、iv) 核種の植物特に野菜への取込み、v) 地表における核種の拡散、濃度の将来予測、等である。本報告では、これらのうち、30km 圏における地表面土壤中長半減期放射性核種の分布の特徴、土壤の種類による差異、河川移行の可能性、植物（野菜）による核種の取込みの特徴等について報告する。

Distribution and Migration of Long Lived Radionuclides in the Environment around the Chernobyl Nuclear Power Plant

Hikaru AMANO, Takeshi MATSUNAGA, Takashi UENO, Seiya NAGAO,
Yanase NOBUYUKI, Miki WATANABE and Yukiko HANZAWA
Department of Environmental Safety Research, Japan Atomic Energy Research
Institute

Characteristics of the distribution and migration of long lived radionuclides in the environment around the Chernobyl Nuclear Power Plant (30km exclusion zone) has been investigated. Research items are, (i) Distribution of long lived radionuclides in the surface environment, (ii) Speciation of long lived radionuclides in the surface environment, (iii) Characteristics of the migration in the surface environment, (iv) Characteristics of the uptake into the vegetables, (v) Prediction of future radioecological situation in the environment, respectively.

Keyword : Chernobyl, 30km zone, Long lived radionuclides, Distribution, Migration, Plant uptake

1. 緒言

原研では、汚染環境下における放射線影響の評価・解析のため、チェルノブイル国際研究センター／研究工業機構プリピヤチ(CHECIR/RIAP、現 ウクライナ国 チェルノブイル国際研究科学技術センター／30km 圏環境モニタリングセンター CHECIR/RADEC)と研究協定を締結し、総合テーマ名「環境放射線影響に関する評価・解析及び評価システムの検証に関する研究」として 1992 年 6 月より研究に着手した。1995 年 4 月の協定改正後 3 つのテーマについて研究を行

いるが、本報告ではそのうちのチェルノブイル事故炉周辺環境における長半減期放射性核種（以下 核種と略称）の動態に関する研究（研究テーマ3）について報告する。

2. 研究概要

放射性核種の環境中における挙動に関して、核種の存在形態や環境に存在する種々の有機物が挙動に影響を及ぼすことが知られている¹⁻⁶⁾。また、原子力施設の事故により地表に沈着した核種は、地表に留まっていることが報告されているが⁷⁾、植物や野菜により取り込まれたり⁸⁾、風により再浮遊⁹⁾、雨や河川により移動^{10, 11)}することが知られている。本研究の目的は原子力事故後に地表面環境に放出され蓄積する核種について、その長期にわたる移行挙動の実態を明らかにすることである。ウクライナ国におけるチェルノブイル事故炉周辺30km圏内（住民排除区域）が研究対象である。研究項目は i) 核種濃度分布の特徴把握、ii) 核種の物理的、化学的存在形態、iii) 核種の移行挙動の特徴把握、iv) 核種の植物特に野菜への取込み v) 地表における核種の拡散や濃度の将来予測、等である。

30km 圏は、原子炉の爆発により、核種のホットパーティクル（核燃料起因微細粒子）としての存在割合が高く、超ウラン元素や Cs-137、Sr-90 等が高濃度に存在している。これまで、チェルノブイル周辺での試料採取・前処理等野外実験手法の確立、超ウラン元素の分析法の確立、土壤・河川中放射性核種の濃度分布の特徴把握、選択的抽出法による表層有機物及び土壤中や河川水中の放射性核種の分画による存在形態、植物取込み等に関し研究を行ってきた。本報告では、原研がこれらチェルノブイル事故炉周辺 30km 圏内において行っている、長半減期核種の分布と挙動に関する研究の概要について、特に、30km 圏における地表面土壤中長半減期放射性核種の分布の特徴、土壤の種類による差異、河川移行の可能性、植物（野菜）による核種の取込みの特徴等について報告する。

3. 実験手法

3.1 表層土壤のコア試料の採取と分析

チェルノブイル事故炉周辺 30km 圏（住民排除区域）において、各種土壤を採取した。プリピヤチ川の支流であるサハン川流域の森林砂質土壤(SL)（事故炉から西方約 6km）から 1995 年 9 月にコア試料を採取した。コア試料は AoL、AoF、AoH の表層有機物 3 層及び表層土壤層を 0-1、1-2、2-3、3-4、4-5、5-10、10-15、15-20cm の各層に分割した。有機物 3 層は風乾ののちミルにて粉碎混合した。また表層土壤層各層は風乾ののちよく攪拌した。ピート土壤については、1996 年 9 月に、事故炉から南南東約 5km の地点でコア試料を採取した。

核種の物理的存在形態は、薄く拡げた土壤等の CR-39 フィルムを用いた α トラック法及び電子顕微鏡観察により行った。

3.2 化学的分画手法

Fig.1 及び Fig.2 に本研究で用いた化学的分画手法を示す¹²⁾。Fig.3 に放射能の系統的分析手法¹³⁾を示す。また土壤からの溶出水や河川水を限外ろ過手法を用いて、分子量分画を行った手法を Fig.4 に示す¹⁴⁾。

3.3 植物栽培実験

放射性核種で汚染された土壌を用いて、野菜の栽培実験を行った。用いた土壌は砂質土壌及びピート質土壌で、それぞれについて濃度の異なる土壌で実験を行った。用いた野菜は、小松菜、人参、二十日大根、法蓮草である。本報告では、小松菜と人参についての結果を報告する。実験は、 Chernobyl 現地の旧プリピヤチ市で、グリーンハウスを用いて行った。大型のライシメーターに、現地で採取した土壌を根等を取り除き、良く攪拌し、30cm 厚に敷き詰めた後、小松菜、人参、二十日大根、法蓮草の種をまいた。毎日一定量の水やりをし、数カ月後、野菜を収穫した。

4. 実験結果

4.1 住民排除区域（30km 圏）における地表土壌中長半減期放射性核種の特徴

Table1 に分析上の問題点として現地土壌中長半減期放射性核種濃度の分析結果を示す。放射能強度の異なる 2 つの土壌をそれぞれ 3 分画したものである。放射能の強い土壌のうちの 2 つの試料については、ほぼ同じ分析結果であるが、1 つは大きく異なっている。この原因は、燃料微細粒子(HP)の存在である。HP を含む試料の分析にあたっては、こうしたことにも十分注意する必要がある。

地表土壌中核種の物理的存在形態については、 α トラック法により HP の存在が確認でき、電子顕微鏡観察により、HP の現在の大きさは数 μm 程度であることが判明した。事故直後では、HP の大きさは数百 μm に達していることが報告されているが、今回そのような大きな HP は見い出されず、HP の風化により、サイズが小さくなっていることが示された。

Fig.5 には土壌中の長半減期放射性核種濃度比について、今回採取した試料とグローバルフォールアウト起因のものとの比較を示す。事故起因のものは、核実験によるグローバルフォールアウト起因のものと大きく異なっており、こうした性質を利用して、環境試料中の放射性核種の源を探ることができる。

土壌中長半減期放射性核種の深さ分布に関して、Fig.6 に原子炉より西方 6km 地点のサハム川近傍の松林土壌(SL)の砂質土についての長半減期放射性核種の深さ分布の測定結果を示す¹³⁾。深さ 5cm まではどの核種も同様な深さ分布を示している。有機物層である AoH 層で最大濃度を示しているが、これは事故当時この層が森林を含め地表面を覆っていたせいであると解釈される。5cm 以深についてはその深さ分布は異なり、透過性の大きな順に Sr-90 > Am-241 > Pu 同位体 > Cs-137 であるが、注意すべきは土壌の質によっては、この透過性は核種により大きく異なるという点である。例えば、ピート土壌では Cs-137 の透過性は非常に大きく、透過性は Cs-137 > Sr-90 > Am-241、Pu 同位体である。

表層土壤中長半減期放射性核種の存在形態に関して、Table2にFig.1の化学的分画手法を用いて行った分画結果を示す¹²⁾。測定試料はチェルノブイル原子炉より南方20kmのノボシヨルキ村で採取した草原土壤(NV)の0-1cm層である。Fig.7に原子炉より西方6km地点のサハン川近傍の松林土壤(SL)の0-1cm層についての結果を示す¹⁴⁾。どちらの試料においても、Sr-90については半分以上が移動性成分として存在しており、Sr-90の移動しやすさを示している。今回定量できた核種のうちSr-90以外の核種は半分以上が不溶性成分であり、特にCs-137において顕著である。Pu同位体及びAm-241は腐植物質であるフミン酸及びフルボ酸成分が存在し、Pu同位体についてはフミン酸成分が、またAm-241についてはフルボ酸成分が存在割合が多い。移動性成分はSr-90以外の核種についても数%(ノボシヨルキ村NV土壤)から数十%(サハンSL土壤のAm-241)存在しており、これらの成分がFig.6に見られる放射性核種の土壤中深さ分布の通り、土壤のより深い部分に寄与しているものと考えられる。また、Table3にFig.2の分画手法を用いてサハン川近傍の松林土壤(SL, AoH層及び0-1cm層)について行った分画結果を示す。この分画はヒューミン及び不溶性成分についてさらに詳しく調べるためのものである。Table3からわることは以下の通りである。Pu同位体については、非晶質の鉄酸化物、結合性フルボ酸及びマンガン酸化物成分が多く存在する。Cs-137については残査(ホットパーティクル)、粘土鉱物、及びヒューミンの成分が多く存在する。AoH層についてのAm-241の結果は、結合性のフルボ酸、及び粘土鉱物の成分が多いことを示している。また0-1cm層のSr-90については、既に述べたが移動性の成分が支配的である。

4.2 土壤からの溶出水及び河川水の限外ろ過及び有機物特性

Fig.8にFig.4の手法を用いて行ったサハン川流域土壤層の溶出水の分子量分画を行った結果を示す¹⁴⁾。この図からわることは以下の通りである。

- (i) DOC(溶存有機炭素)は主として分子量1万以下の成分が支配的であるが、1万以上の成分も多少は存在する。
- (ii) 超ウラン元素は分子量1万以上の成分が支配的である。超ウラン元素はフルボ酸等の腐植物質と結合し溶存していると思われる。
- (iii) Cs-137及びSr-90は、分子量1万以下の成分が支配的であるが、分子量1万以上の成分も存在しており、特にSr-90についてその割合が多い。

サハン川の河川水について、同様に分子量分画を行った結果は、土壤抽出水の結果とほぼ同様であった¹⁷⁾。

河川水中有机物の特性に関して、ゲル透過クロマトグラフィーや3次元励起蛍光マトリックススペクトル測定による結果は、河川水中溶存有机物は、流域土壤からの溶存フルボ酸成分が多いことを示している^{15, 16)}。

4.3 植物栽培実験の結果

放射性核種で汚染された土壤を用いて、日本の野菜の栽培実験を行った。用いた土壤は砂質土壤及びピート性土壤で、それぞれについて濃度の異なる土壤で実験を行った。用いた野菜は、小松菜、人参、二十日大根、法蓮草である。本報告では、小松菜と人参

についての Cs-137 の結果を報告する。Fig.9 に Cs-137 の土壤中濃度と作物（こまつな葉及び人参の根）への移行係数との関係を示す。ここで本研究における移行係数は以下の式であらわすものとする。

$$\text{移行係数} = \frac{\text{植物中放射性核種濃度(Bq/g-wet)}}{\text{土壤中放射性核種濃度(Bq/g-dry)}}$$

安田は、土壤中核種濃度と植物への移行係数との関連について解析し、移行係数の濃度依存性が土壤特性の空間的ばらつきに起因して見かけ上生じる可能性について検討している¹⁸⁾。濃度の異なる同質、均質な汚染土壤を用いて行った植物栽培実験で得られた結果からは、移行係数の明瞭な濃度依存性はみられない。

5. まとめ

以上これまで分かったことをまとめると、以下の通りである。

- 1) 土壤中 HP のサイズの変化 (HP の風化) が生じており、10 年経過後では、大きな HP は見当たらず、数ミクロン規模となっている。
- 2) 未搅乱土壤中の放射能の深さ分布と土質による違いが明かとなった。
- 3) 土壤中存在形態が Sr-90、Cs-137、超ウラン元素(Pu,Am)につきそれぞれ異なることが明かとなった。
- 4) 深さ方向の移行に関する知見として、移行成分の存在形態が明かとなった。
- 5) 大気中濃度の将来予測を行った。
- 6) HP を含んだ土壤からのこまつな、人参への移行係数が求められた。
- 7) 土壤から河川への溶存形態での移行に関して、高分子有機コロイドが重要な役割を果たしていると思われる。

本研究におけるこれからの課題としては、

- 1) ホットパーティクルの風化と核種移行との関連。
- 2) 事故後長期経過してからの核種の再浮遊の予測と再浮遊係数。
- 3) 植物への移行に及ぼす土壤中核種の存在形態の影響。
- 4) 植物の調理による除洗効果。
- 5) 土壤中深さ方向移行の解析と将来予測。
- 6) 土壤から河川への Run off の解析と将来予測。
- 7) 腐植物質の核種移行に果たす役割。
- 8) 高分子コロイドの核種移行に果たす役割。

等、これら研究課題の解明が重要であり、さらにこれらの知見に基づいて、地表環境における長半減期放射性核種の総合的移行モデルを構築し、将来の汚染レベルや、その広がりを予測し、被ばく線量評価及び環境回復に寄与することが重要であろう。また既に 50 基以上の原子力発電所を有する我が国にとってみれば、チェルノブイル周辺の地表汚染をテストケースとした本研究は我が国の緊急時対応プログラムに役立つ。

謝辞

本研究は、ウクライナ国チェルノブイル国際科学研究所との協力研究の成果である。本協力研究が順調に進捗するのに協力し努力を惜しまなかつた方々に深く謝意を表します。特に（財）放射線計測協会の小沼義一氏は、本研究での放射化学分析の主要な部分を担当された。ここに記して謝意を表します。また、大気中濃度の解析を担当された、理化研究所特別研究員、羽田野祐子さんに感謝致します。

参考文献

- (1) Bulman R. A. and Cooper J. R. (eds): *Speciation of fission and activation products in the environment*. Proc. of the Speciation-85 Seminar organized by the CEC. Elsevier Applied Science Publishers, London and New York (1985).
- (2) Gunten H. R. and Benes P.: Speciation of radionuclides in the environment. *Radiochim. Acta* **69**, 1-29 (1995).
- (3) Griffith et al. (eds): Humic Research, Its Application to Sustainable Agriculture, the Environment, Health and Industry. Proc. of the 7th International Meeting of the International Humic Substances Society (IHSS). St. Augustine (1994).
- (4) Jones K. C. and Beck A. J. (eds): Organic Substances in Soil and Water. A Collection of Papers Presented at the International Conference on Organic Substances in Soil and Water, Lancaster, UK, Sep. 1992. *The Science of the Total Environment* **152**, No.1 (1994).
- (5) Choppin: Humics and radionuclide migration. *Radiochim. Acta* **44/45**, 23-28 (1988).
- (6) Sparkes S. P., Sanders T. W. and Long S. E.: A Literature survey of the organic speciation of radionuclides. AERE R 12487 Harwell Laboratory(1987).
- (7) For example : Askbrant,S., Melin,J., Sandells,J., Vallejo,R., Hinton,T., Cremers,A., Vandecasteele,C., Lewyckyj,N., Ivanov,Y.A., Firsakova,S.K., Arkhipov,N.P. and Alexakhin,R.M., Mobility of radionuclides in undisturbed and cultivated soils in Ukraine, Belarus and Russia six years after the Chernobyl fallout. *J. Environ. Radioactivity*, **11**, 287-312 (1996)
- (8) G. Rauret and S. Firsakova (Ed.), The transfer of radionuclides through the terrestrial environment to agricultural products, including the evacuation of agrochemical practices, Final report of International scientific collaboration on the consequences of the Chernobyl accident (1991-95),the European Commission, Luxembourg(1996)
- (9) Hatano, Y., Hatano, N., Amano, H., Ueno, T., Sukhoruchkin, A. K. and Kazakov, S. V.: Aerosol migration near Chernobyl : Long-term data and modeling, *Atmospheric Environment*, **32**, 2587 (1988).
- (10) Matsunaga T., Amano H., and Yanase, N.:Discharge of dissolved and particulate Cs-137 in the Kuji River, Japan. *Appl. Geochem.*, **6**, 159 (1991).
- (11) Matsunaga T.,Ueno T., Amano H.,Onuma, Y. Watanabe, M., Nagao, S. Kovalyov, A. V., Tkachenko, Yu. V., Sukhoruchkin, A. K. and Kazakov, S. V.: Migration behavior of the released radionuclides in the river system in the exclusion zone of the Chernobyl Nuclear Power Plant, IAEA-TECDOC-964, 172-177 (1997).

- (12) Amano H., Watanabe M., Onuma Y., Ueno T., Matsunaga T., and Kuchma N. D.: Speciation of Cs, Sr and transuranic elements in natural organic substances of surface soil layers. in '*The role of humic substances in the ecosystems and in environmental protection*', Proc. 8th Meeting of the Int. Humic Substances Society, Poland (1997).
- (13) 天野光、渡辺美紀、半澤有希子、松永武、上野隆、長尾誠也、小沼義一： Chernobyl周辺環境中長半減期放射性核種の動態、「環境中微量物質動態」専門研究会報告書KURRI-KR-18、pp201-212 (1997)
- (14) Amano H., Matsunaga T., Nagao, S., Hanzawa M., Watanabe M., Ueno T. Onuma Y.: The transfer capability of long lived Chernobyl radionuclides from surface soils to river water in dissolved forms, to be published in *Organic Geochemistry* (1999).
- (15) Suzuki, Y., Nagao, S., Matsunaga, T., Amano, H., Kovalev, A. V., and Tkatchenko, Y. V.: Three-Dimentional Excitation Emission Matrix Spectra of Humic Substances in Natural Waters. in '*The role of humic substances in the ecosystems and in environmental protection*' Proc. 8th Meeting of the Int. Humic Substances Society, Poland, pp 623-628 (1997).
- (16) Nagao, S., Matsunaga, T., Suzuki, Y., Amano, H., Kovalev, A. V., and Tkatchenko, Y. V.: Fluorescence Characteristics of Molecular Size Fractions of Humic Substances in River Waters from Chernobyl, Ukraine. in '*The role of humic substances in the ecosystems and in environmental protection*' Proc. 8th Meeting of the Int. Humic Substances Society, Poland, pp 617-622 (1997).
- (17) 松永武、長尾誠也、上野隆、天野光、小沼義一、Y. Tkachenko : Chernobyl近傍河川水中放射性核種に対する限外ろ過分別実験-河川水中放射性核種と溶存有機物との結合の検討、第13回日本腐植物質研究会講演要旨集、p6 (1997).
- (18) 保田浩志：移行係数（土壤-植物）の見かけの濃度依存性、クロスオーバーシンポジウム「汚染物質の環境挙動予測に関する局地規模詳細モデルならびにその移行パラメータ」論文集、pp105-114 (1995).

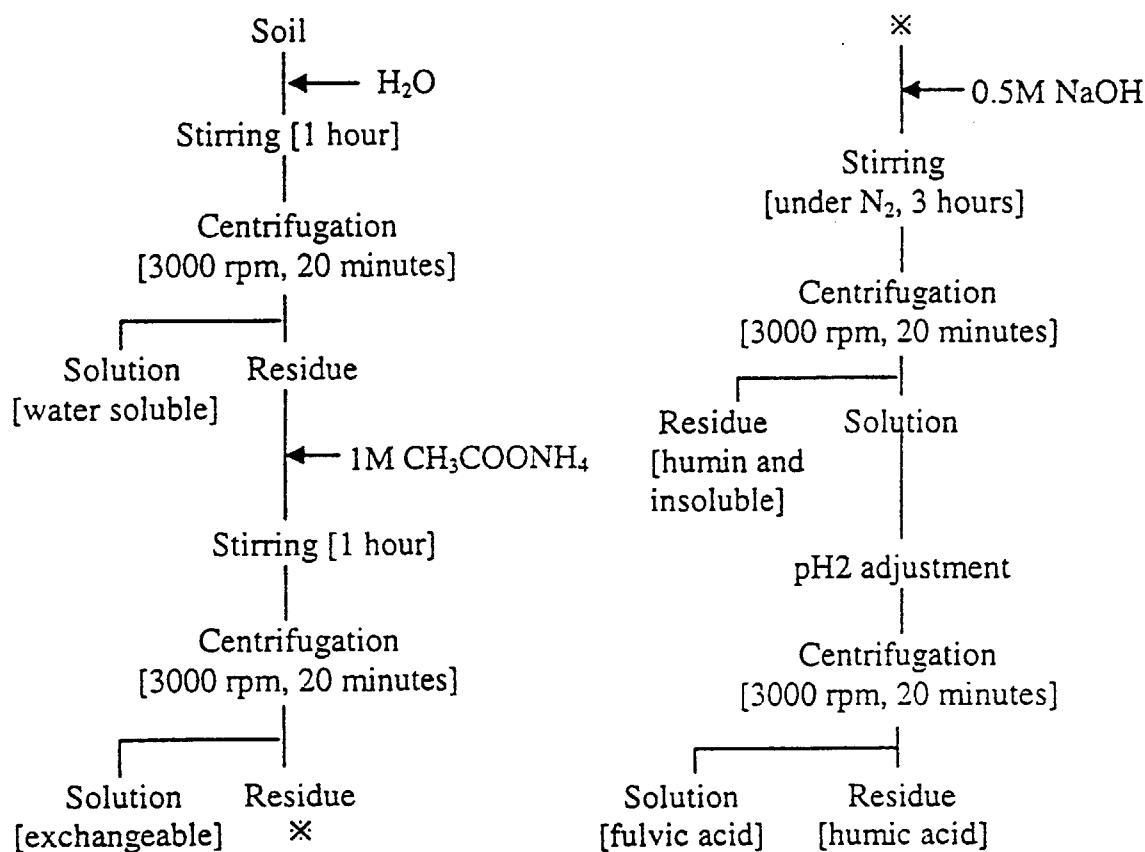


Fig. 1. Speciation procedure A : extraction of soil solution and organic matter.

Table 1. Determination of Pu in same soil at Chernobyl (No.1 and No.2).

	239+240Pu(Bq/g)	error	238Pu(Bq/g)	error
N01-1	1.4E-02	1.9E-03	6.4E-03	1.0E-03
N01-2	1.6E-02	2.0E-03	6.5E-03	9.7E-04
N01-3	1.6E-02	2.7E-03	7.3E-03	1.5E-03
N02-1	5.3E-01	5.4E-02	2.3E-01	2.4E-02
N02-2	4.9E-01	5.5E-02	1.9E-01	2.3E-02
N02-3	8.8E-01	9.5E-02	4.3E-01	4.8E-02

	Amount(g)	Ignition loss(%)
N01-1	1.17E+00	9.0E-02
N01-2	1.12E+00	6.0E-02
N01-3	1.18E+00	9.0E-02
N02-1	1.04E+00	8.0E-01
N02-2	1.03E+00	7.9E-01
N02-3	1.03E+00	8.7E-01

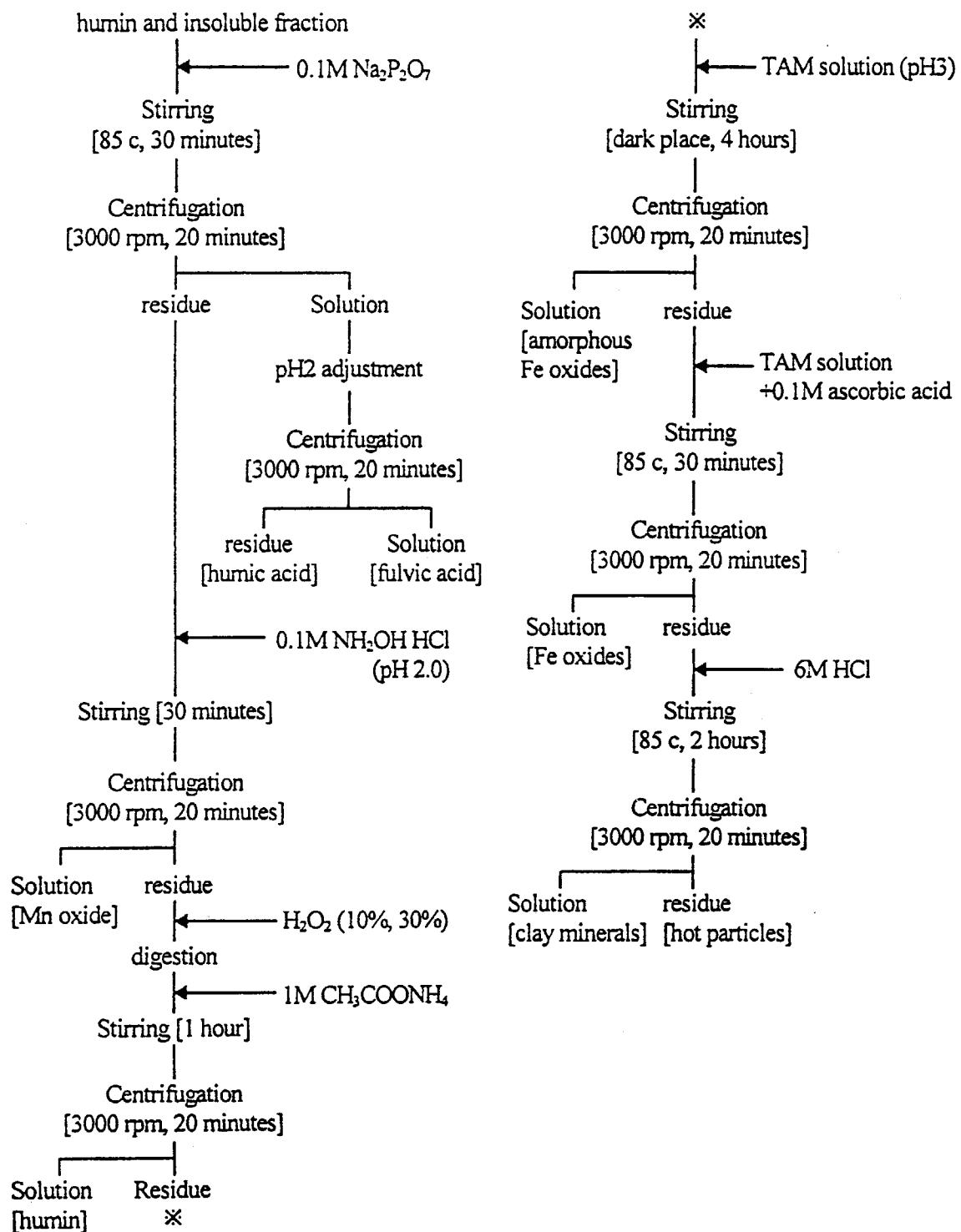


Fig. 2. Speciation procedure B : further extraction of the humin and insoluble fraction of procedure A.

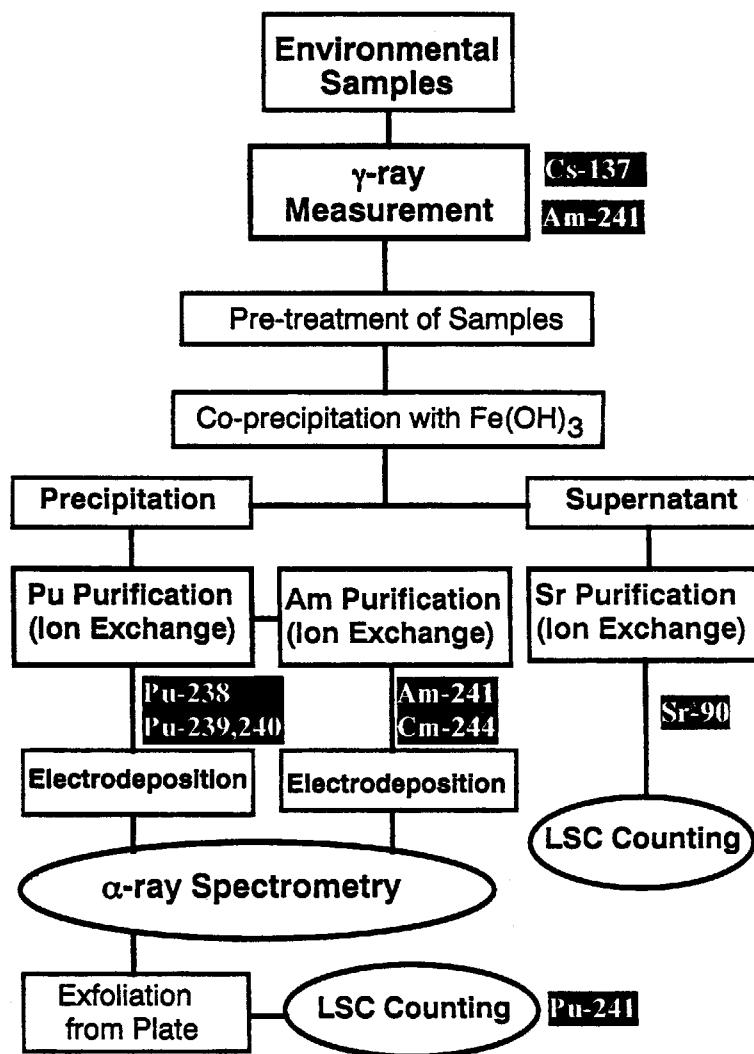


Fig. 3. Radiochemical analytical procedure for radionuclides in environmental samples.

Table 2. Speciation of radionuclides in grassland soil at Novosyolki village (speciation A).

percentage(%)	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴¹ Am	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs
water soluble	2.0	1.7	1.2	0.5	5.2	0.9
exchangeable[pH7]	1.9	2.4	2.9	0.9	32.8	7.0
exchangeable[pH4.5]	1.7	1.5	1.6	4.1	15.6	1.8
fulvic acid	3.8	4.0	3.6	9.4	2.6	0.5
humic acid	27.8	30.1	29.3	16.4	0.4	3.2
humin and insoluble	62.7	60.3	61.4	69.2	43.4	86.6
total	100	100	100	100	100	100

Table 3. Speciation of radionuclides in surface organic matters at Sahan forest (speciation A and B).

Percent (%)	$^{239+240}\text{Pu}$			^{241}Am			^{137}Cs		
	AoL	AoF	AoH	AoL	AoF	AoH	AoL	AoF	AoH
water soluble	2.6	0.8	0.7	n.d.	0.6	0.8	2.3	1.1	0.3
exchangeable (pH7)	1.6	1.5	1.0	4.6	2.0	1.9	8.3	3.9	5.0
exchangeable (pH4.5)	3.5	0.9	1.2	3.6	2.3	3.6	2.8	2.2	2.1
fulvic acid (free)	5.8	4.6	2.3	7.6	3.8	2.8	2.6	1.7	0.8
humic acid (free)	4.0	5.6	3.9	14.9	1.4	1.3	0.4	0.3	0.2
fulvic acid (bound)	4.5	8.2	31.1	21.4	23.0	41.7	1.5	0.9	0.4
humic acid (bound)	0.5	0.9	3.3	0.1	1.9	2.1	0.4	0.3	0.2
Mn oxides	18.7	13.3	14.4	1.6	7.8	5.0	2.3	1.5	0.6
humin	28.6	10.0	0.1	n.d.	2.3	n.d.	49.5	37.9	14.2
amorphous Fe oxides	8.1	45.0	35.8	n.d.	5.8	n.d.	8.4	4.2	2.7
Fe oxides	1.6	2.1	3.2	5.8	n.d.	1.5	1.0	1.7	2.4
clay minerals	15.9	4.5	1.4	34.3	44.6	35.6	0.3	19.6	27.6
residue	4.6	2.7	1.6	6.2	4.5	3.7	20.3	24.8	43.4
total	100	100	100	100	100	100	100	100	100

n.d. : not detected

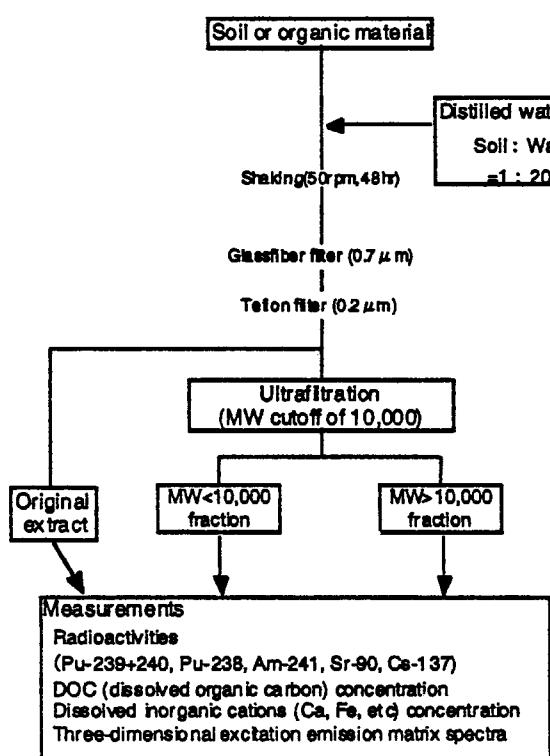


Fig. 4. Fractionation procedure of water extracted from soil and organic materials.

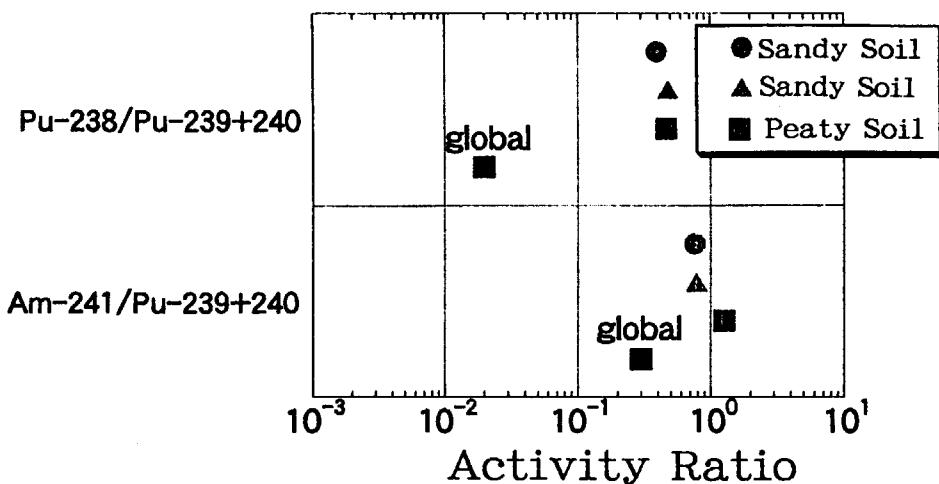


Fig. 5. Activity ratio of global fallout and Chernobyl soils.

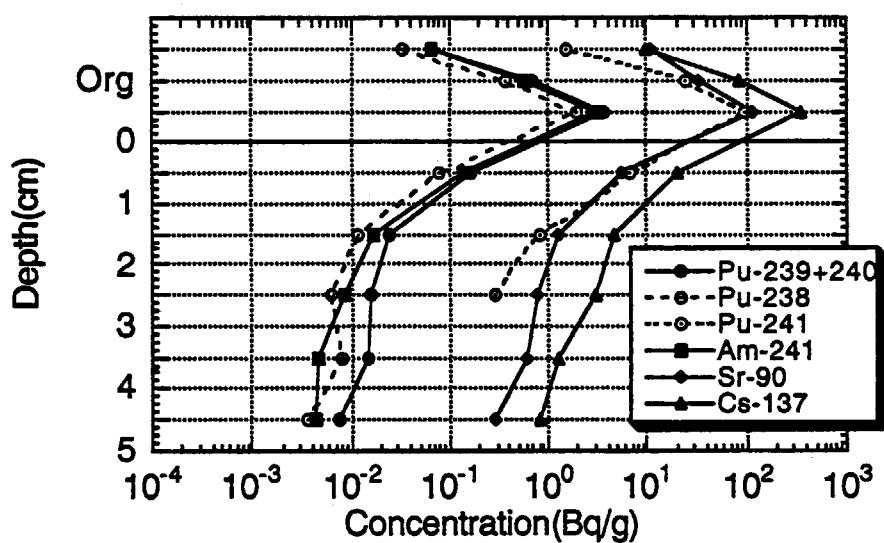


Fig. 6. Depth profile of radionuclides in surface soil at a forest near River Sahan.

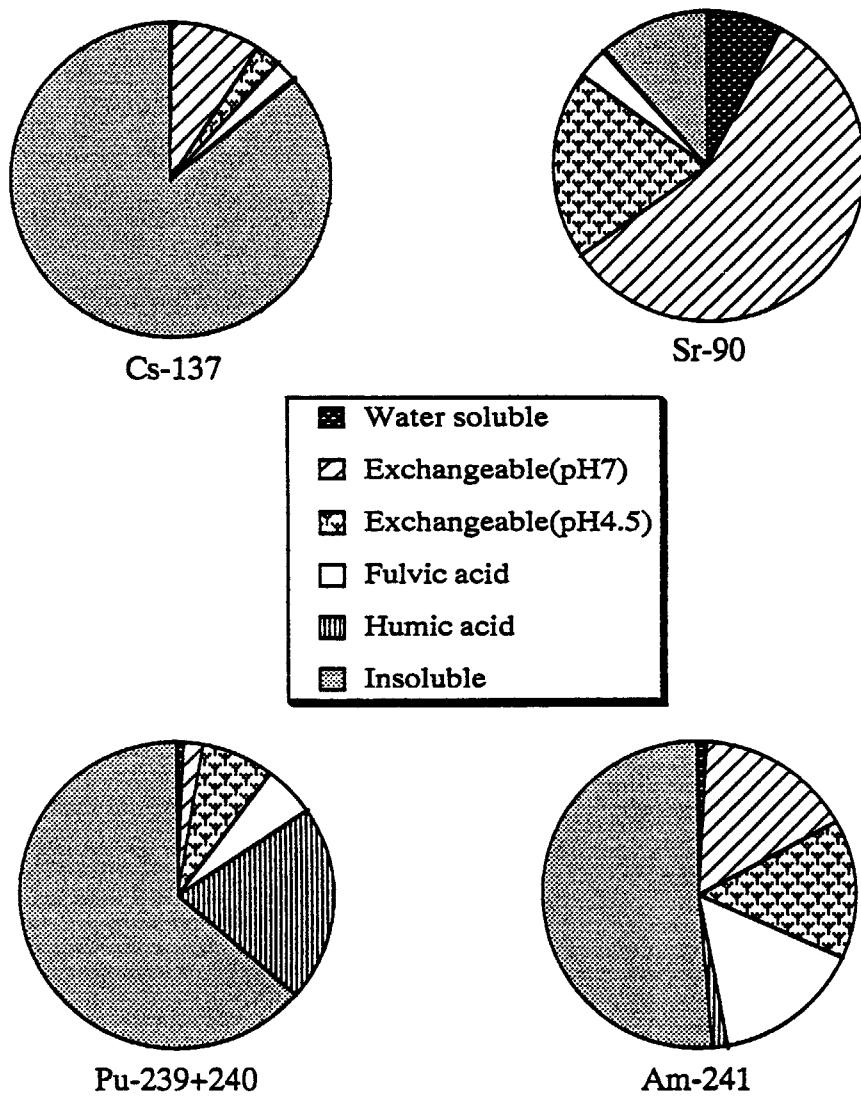


Fig. 7. Speciation of radionuclides in 0-1 cm horizon in surface soil at a forest near River Sahan.

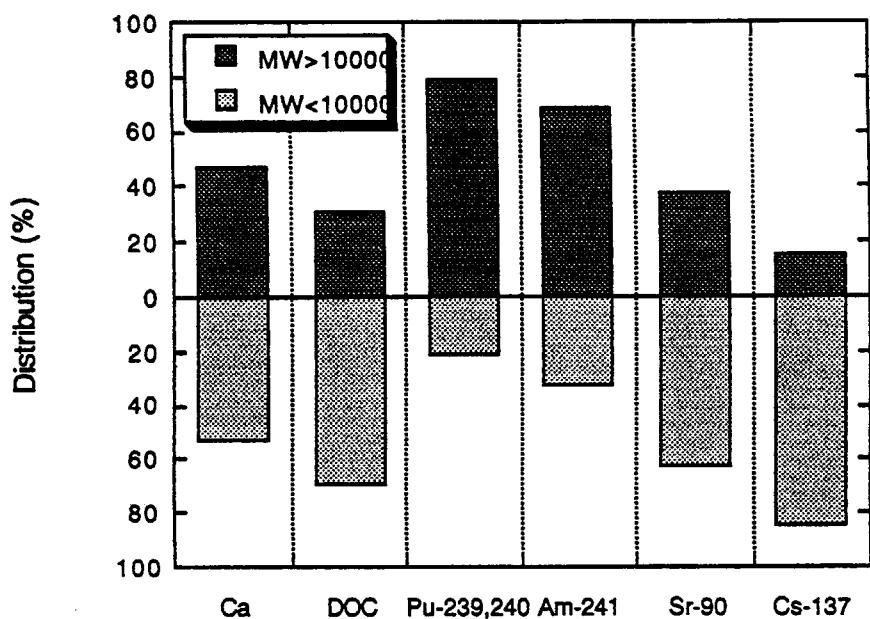


Fig. 8. Distribution of species between MW>10,000 and MW<10,000 in water leachate from a forest soil near River Sahan.

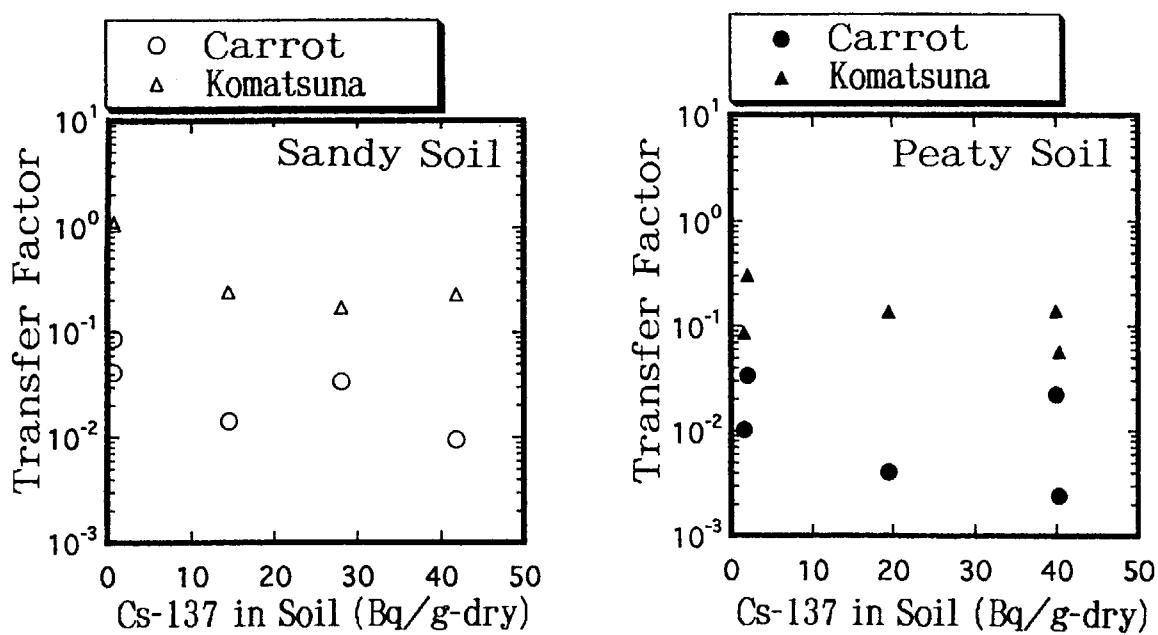


Fig. 9. Cs-137 concentration in sandy and peaty soils, and transfer factors in vegetables (Carrot and Komatsuna).



6. チエルノブイル周辺のテクネチウム-99濃度と土壤-植物系における移行

田上 恵子、 内田 滋夫

放射線医学総合研究所 第4研究グループ

長半減期核種の⁹⁹Tcの実環境試料中の濃度は極めて低く分析が困難なため、移行係数等の環境移行パラメータはトレーサー実験により求められてきた。しかし、Tcは環境条件により存在形態が異なるため、実環境下でデータを取得する必要がある。そこで、チエルノブイル原発周辺に着目し、30km圏内の森林から採取した土壤及び植物試料中の⁹⁹Tcを化学分離後、ICP-MSにより定量した。その結果、土壤中の⁹⁹Tc濃度は、有機質土層で1.1-9.8Bq/kg-dry、無機質土層で0.13-0.83Bq/kg-dryであり、植物試料の⁹⁹Tc濃度は0.19-2.3Bq/kg-dryであった。以上の値より移行係数を求めるとき、有機質土層ベースでは0.09-0.41、無機質土層ベースでは0.5-3.4となつた。IAEAでは種々の葉菜類への移行係数として12-2600を期待値として挙げているが、今回得られた値は上述の期待値よりもかなり小さいものであった。

The Concentrations of Chernobyl Fallout Technetium-99 in Soils and Plants and the Transfer in a Soil-to-Plant System

Keiko TAGAMI and Shigeo UCHIDA

Environmental and Toxicological Sciences Research Group, NIRS

Technetium-99 is a pure beta emitter with a long half-life of 2.1×10^5 y. The most stable form of Tc under natural surface water conditions is TcO_4^- . In the chemical form, Tc has high mobility in the terrestrial environment, so that it is one of the most important radionuclides for dose assessment. At present, there are almost no data on ⁹⁹Tc contamination of environmental samples and consequently, limited information on the ⁹⁹Tc activity released by the Chernobyl accident is available.

In this study, ⁹⁹Tc contents in soil and plant samples collected in three forest sites in 1994 and 1995 around the Chernobyl area were determined to obtain transfer factors (Tf) of Tc in soil-to-plant system under the natural environment. After the chemical separations, ⁹⁹Tc was measured by ICP-MS. The concentrations of ⁹⁹Tc in the soils were 1.1 - 9.8 Bq/kg-dry for organic layers and 0.13 - 0.83 Bq/kg-dry for mineral layers. For plant samples, the concentrations were 0.19 - 2.3 Bq/kg-dry. The calculated Tf (dry weight basis) based on the ⁹⁹Tc contents of the organic layers and the mineral layers ranged 0.09 - 0.41 and 0.5 - 3.4, respectively. The Tf's were lower than the expected values of 12 - 2600 for vegetables reported by IAEA.

Keyword: Technetium-99, Environmental Behaviour, Chernobyl Accident, Soil, Plant, Transfer Factor

1. はじめに

テクネチウムは質量数88から113までの同位体があるが、そのすべてが放射性である。中でも純 β 放出体である ^{99}Tc は、 ^{238}U や ^{239}Pu からの核分裂収率が約6%と比較的大きく、物理学的半減期が長い(2.1×10^5 y)ため、原子力の平和利用により年々蓄積することになる。そのため、放射線影響や環境安全の観点から、 ^{99}Tc の環境中での挙動が注目されている。

現在、陸上環境中に存在する ^{99}Tc のほとんどは、過去の大気圏内核実験に由来し、近年医療用の使用が増加している $^{99\text{m}}\text{Tc}$ からの寄与は、無視できる程度である。原子力発電所などで生成した ^{99}Tc の一部は、主に核燃料再処理施設から放出限度内の濃度で液体として海洋環境中に放出されている¹⁾。海に放出された ^{99}Tc に関しては、その起源が明らかであるため、海洋トレーサーとして利用されている²⁾。一方で、特に、セラフィールドでは1994年から稼働しているEnhanced Actinide Removal Plantにより、アイリッシュ海に放出された ^{99}Tc 量が、放出限度内の濃度ではあるが、近年上昇し、魚介類への移行が問題となっている。

陸上環境においては、 ^{99}Tc の濃度及び挙動についてこれまでほとんど報告されていない。しかし、環境中に放出されたTcが、種々の環境媒体を経て人体へ移行する重要な経路の一つに、土壤-植物を介した食物摂取により移行する経路が挙げられる。すなわち、人体への移行量を評価する上で、 ^{99}Tc の土壤中での移動速度や土壤から植物への移行量の予測が重要となる。しかし、 ^{99}Tc の環境中濃度が極低レベルであるため、実際の環境試料を用いて移行パラメータが求められた例はほとんどない。したがって、Tcの移行パラメータはトレーサー実験による値が用いられている^{3), 4)}。

筆者らは、実際の環境中における ^{99}Tc の土壤-植物系における移行はどの程度であるのかを明らかにするために、チェルノブイル原発周辺の試料に着目した。チェルノブイル原発周辺の試料中の ^{99}Tc 濃度レベルの報告例はないが、非汚染地域の濃度レベル、すなわち、グローバルフォールアウトのレベルより濃度が高いことが予想される⁵⁾。そのため、チェルノブイル原発周辺の試料では、土壤、植物とも ^{99}Tc 濃度が測定できる可能性がある。本研究の目的は、土壤、植物中の ^{99}Tc 定量を行い、得られたデータを基に、実際の環境中の土壤-植物系における ^{99}Tc の移行挙動について検討することである。

2. テクネチウムの移行挙動データについて

2. 1 土壤中における挙動

化学的には、Tcは-1価から+7価の価数をとり、種々の化学形で存在することが知られている。そのうち最も安定であるのは+7価と+4価である。生物活動の活発な地表面近傍での環境水中は酸化的雰囲気であるが、このような酸化的雰囲気の水溶液中においてTcは可溶性が高く安定な+7価の過テクネチウム酸イオン(TcO_4^-)であると考えられる⁶⁾。環境中に放出され土壤に到達するTcは、主として TcO_4^- であると予想されるが、土壤粒子表面がマイナスにチャージしていることから、陰イオンとして存在するTcは土壤にほとんど吸着されず、土壤溶液中に存在する、すなわち、土壤中を移動しやすいと考えられる。土壤中での移動の

しやすさのパラメータとして、よく K_d が用いられている。日本土壤の例としては Uchida らが日本の129の土壤試料を用いて、 K_d を求めている⁷⁾。結果を、水田、畑等の土壤の用途別に、Fig. 1に示す。土壤の用途に関わらず Tc の K_d が小さかったことから、 Tc はこれらの土壤中において、移動しやすいといえる。但し、実験の雰囲気が酸化的であり、この条件下においては Tc の可溶性が高いことが知られているため、例えば水田土壤のように還元的雰囲気になりやすい土壤に対しては、 K_d が高くなる可能性があることを追記している。実環境条件下で Tc の土壤中挙動をさらに詳しく検討する必要がある。

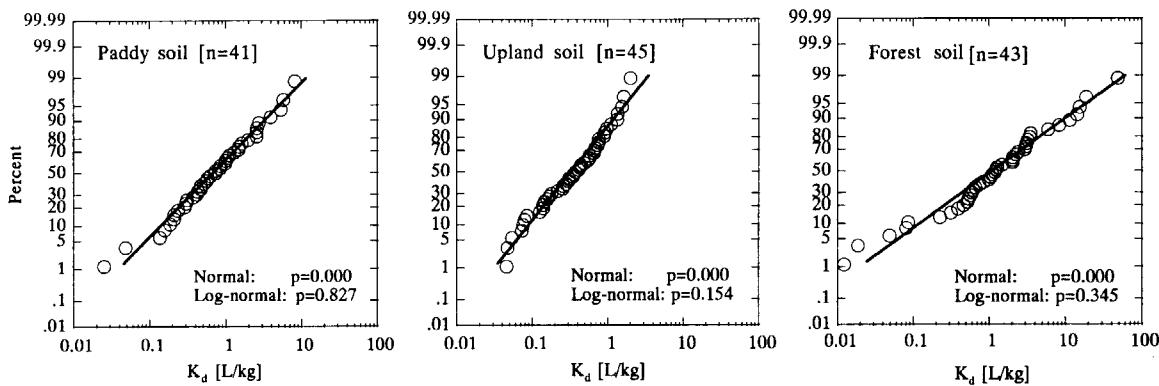


Fig. 1 Probability distributions of Tc - K_d s. (Uchida et al., 1997)

2. 2 土壤一植物系における移行

一般に、土壤溶液中に可溶性無機イオン形で存在する元素は、植物に吸収されやすいと考えられている。 Tc が土壤溶液中で TcO_4^- として存在するならば、経根吸収により植物へ移行しやすいと考えられる。高い移行係数は、すなわち、食物摂取により人体へ移行する Tc 量が多い可能性を示している。

上述のような理由から、 Tc の土壤から作物への移行に関する研究が欧米を中心に精力的に行われてきた。これらのデータは、土壤から作物への移行量予測のためのパラメータである移行係数 (Tf) としてまとめられている（例えば、Coughtrey et al.³⁾, Table 1; IAEA⁸⁾, Fig. 2）。しかし、これまでに報告されている移行係数は大きな幅を有しており、その理由を解明するための研究も行われてきた。その1つに、 Tc の吸収を阻害する物質の影響を検討した研究^{9, 10)} が、また、 Tc の土壤への収着を指摘した報告もある。その例としては、Sheppard ら¹¹⁾の研究が挙げられる。実験では、ライシメータを用い、Peat ($^{99}\text{Tc}/\text{g dry peat} = 0 - 0.1$) と Sand ($^{99}\text{Tc}/\text{g dry sand} = 0 - 0.05$) の2種類の土壤からフダンソウへの移行係数を求めた。その結果、Sand のほうが Peat よりも移行係数が4桁高いことがわかった。これは、Peat に TcO_4^- が収着され、植物へ利用される量が Sand に比べて少なくなり、そのため移行係数に差が生じたためであると報告されている。

Table 1 Reported and calculated transfer factors of Tc in terrestrial plants.

(Coughtrey *et al.*, 1983)

Form of administration ¹	Plant	Plant organ ²	Transfer factor
Soil ^a	Wheat	Shoots (d)	340 - 150
Soil ^a	Wheat	Shoots (w)	38 - 85
Soil ^b	Wheat seedling	Shoots (w)	18-166, 32-213, 56-253, 127-268, 209-326, 40-124, 86-191, 48-130, 158-269, 107-200, 54-143
Soil ^b	Tumbleweed	Shoots (d)	357-421, 104-112, 158-190, 130- 220, 54-114
Soil (two types)	Cheatgrass	Shoots (d)	294-362, 178-248

Note) 1 ^a=increasing Tc content; ^b=varying soil types.

2 (d) = dry weight calculations; (w) = wet weight calculations.

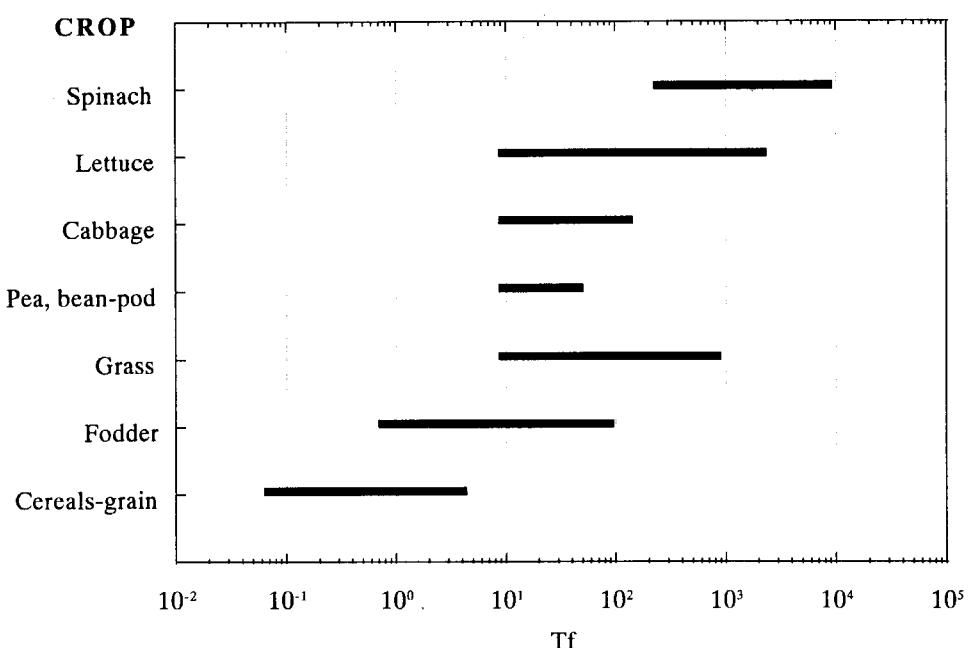


Fig. 2 Soil-to-plant transfer factors (95% conf. range) based on Bq per dry weight crop/Bq per dry weight soil.

(IAEA, 1994)

さらに、Tcの土壤への収着は、瞬間的な反応ではなく、徐々に進行することも報告されている。土壤へのTcの収着が徐々に進行するのであれば、当然植物への移行もその影響を受けることになる。Tcの植物への移行量の経時変化に関する実験については、Vandecasteeleら¹²⁾が行っている。ライシメータに牧草を植えた後、⁹⁹TcO₄⁻を噴霧により2回土壤に添加した。適当な大きさに生育後、牧草を地上数cmを残して採取し、採取した部分の放射能濃度を測定した。サンプリングは十数回行われている。その結果をFig. 3に示した。植物によるTcの移行係数は時間と共に指數関数的に減少している。最初は上述のトレーサー実験のように高い値が得られたが、3年程度経過した時点において、初期値の1/100程度にまで低下している。これをVandecasteeleらはaging効果に因るものと解釈している。すなわち、Tcが土壤中で植物に吸収されにくい存在形態に変化したと考えられる。土壤中においてTcの化学形が変化することはいくつか報告がある。例えば、以前筆者らは、土壤にTcO₄⁻を添加し、選択的抽出法を用いてTcの存在フラクションが時間とともにどのように変化するのかを調べた¹³⁾。その結果、特に還元状態が発達する環境において、Tcが価数の低い化学形に変化したり、有機物結合やFe・Mn酸化物への収着により、時間と共に土壤溶液中から土壤の固相に収着していくことを報告した。このような存在形態の変化に伴い、Tcは不溶化し、植物に吸収されにくい形になっていくものと考えられる。

実際の環境中の⁹⁹Tcの移行挙動についてGreenは興味深い報告を行っている¹⁴⁾。彼等がセラフィールドから放出された放射性核種が沈着した海底土を使用して干拓された農地を対象に、移行係数を求めた結果をTable 2示す。使用した汚染土壤が底質土であるため、一般の陸上環境由来における移行係数と単純に比較することは困難であるが、この実験の重要な点は、実験室のようにコントロールされた環境条件と違い、実環境条件下で移行係数が求められたことである。NRPBモデルの⁹⁹Tcの移行係数（生重）は5を使用しているが、この値に比して干拓地におけるTcの移行係数が小さかったことを報告している。

以上の結果から、Tcの移行係数を求めるにあたって、環境中に放出されたTcが土壤に到達してからのagingの程度、物理化学的形態等を十分考慮する必要がある。

3. チェルノブイル周辺森林の土壤及び植物中の⁹⁹Tc分析

チェルノブイル原発事故で放出された⁹⁹Tcの環境レベルはほとんど明らかになっていない。また、原発周辺の試料中の⁹⁹Tc濃度レベルの報告例はほとんどない。筆者等は以前、チェルノブイル周辺で採取された牧草及び土壤を用いて作成された標準物質IAEA-373及びIAEA-375を分析した結果、IAEA-373で0.86Bq/kg-dry、IAEA-375で0.25Bq/kg-dryであった⁵⁾。土壤試料に関しては、筆者らがこれまでに測定してきた日本の水田土壤中の⁹⁹Tc濃度レベル、6-110mBq/kg-dry¹⁵⁾程度と比較すると、IAEA-375中⁹⁹Tc濃度は2-40倍である。このことから、チェルノブイル原発近傍では、グローバルフォールアウトレベルよりも十分濃度が高いことが明らかとなった。そのため、⁹⁹Tc濃度レベルが低く定量が困難な現状において、チェルノブイル原発周辺の土壤、植物とも⁹⁹Tc濃度測定が可能であると考えられる。そこで、チェルノブイル30km圏内の3ヵ所の森林の土壤試料及び植物試料中の⁹⁹Tc濃度測定を試みた。

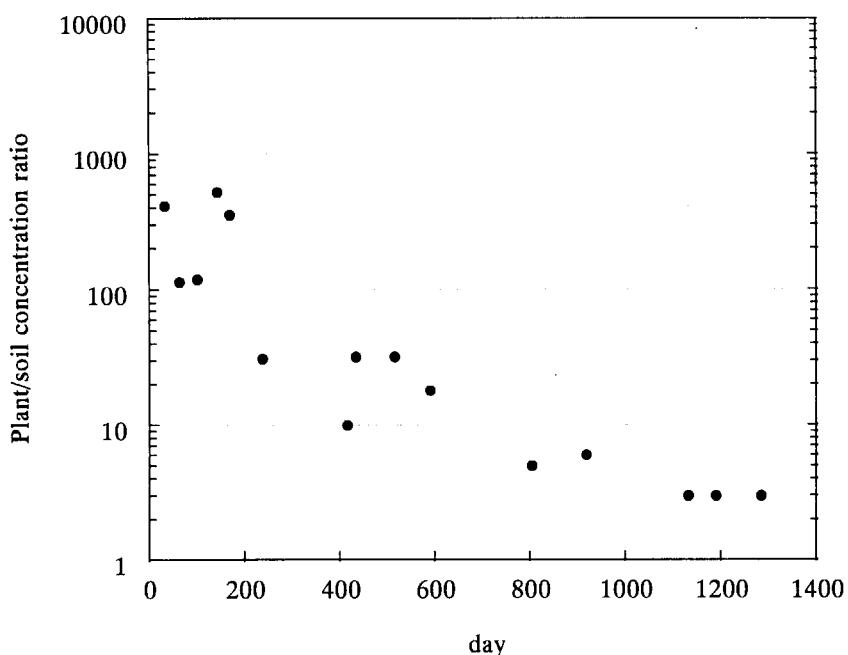


Fig. 3 Evolution of the grass-to-soil Tc concentration ratio after two successive surface contaminations.

(Vandecasteele et.al., 1989)

Table 2 Comparison of measured transfer factors with current NRPB model values (Brown & Simmonds 1995) for ^{99}Tc (fresh mass plant:dry mass soil).

(Green et al., 1996)

Crop	Mean ($\times 10^{-1}$)	Range ($\times 10^{-1}$)	Model ($\times 10^{-1}$)
Green vegetables ^a	1.0	0.52 - 3.8	50
Leafy green vegetables	1.2	0.52 - 2.7	-
Legumes	0.73	0.48 - 0.93	-
Onions	0.99	0.15 - 3.8	-
Root vegetables	2.1	1.1 - 3.2	50
Potatos	0.64	0.26 - 1.1	50
Cereals	Not measured		50

Note) a: Includes leafy green vegetables, legumes and onions groups.

3. 1 実験材料及び方法

土壤試料は30km圏内の森林3地点、A (6km)、B (26km) 及びC (28.5km) で1994年及び1995年に採取された表層土壌（有機質土層：L層+Of層+Oh層、無機質土層：Ah層+B層）である。植物試料は上記森林3地点で同時期に採取されたシダ類及びベリー類の葉である。土壌、植物試料は採取後、恒量に達するまで乾燥し、粉碎した。試料中の¹³⁷Cs等をGe半導体検出装置（Seiko EG&G）で測定後、⁹⁹Tc分析に供した。回収率を求めるためのトレーサーには^{95m}Tcを用いた。また、試薬は超高純度硝酸（多摩化学、AA-100）を使用した。分析は以下の通りである。④土壤試料：450°Cで8時間灰化後、燃焼装置によりTcを揮散・捕集し、硝酸を加えて約0.1NHNO₃に調整した。⑤植物試料：灰化後硝酸抽出によりTcを溶出し、濾過を行った。溶液は約0.1NHNO₃に調整した。⑥a、bで得られた溶液中のTcをTEVAレジン（Eichrom）により分離・濃縮した。約5mLの8NNHNO₃に回収されたTcは、約70°Cで乾固したあと、2%HNO₃溶液中に溶解した。得られた溶液中のTc回収率をNaIウェル型シンチレーションカウンター（アロカ、ARC-380）により求め、⁹⁹Tc測定はICP-MS（横河アナリティカルシステムズ、PMS-2000）により行った。ICP-MSの検出下限値は0.03 mBq/mLであった。

3. 2 結果及び考察

3. 2. 1 土壌試料中の⁹⁹Tc

土壤試料中の⁹⁹Tc及び¹³⁷Cs分析の結果をTable 3に示す。尚、1994年と1995年の定量値の平均として示してある。それぞれの⁹⁹Tc濃度は、有機質土層で1.1 - 9.8 Bq/kg-dryであり、無機質土層で0.13 - 0.8 Bq/kg-dryであった。分析全体の^{95m}Tcによる回収率は62-93%であった。有機質土層中の⁹⁹Tc濃度は、筆者らがこれまでに測定してきた日本の水田土壌中の⁹⁹Tc濃度レベルと比較すると、数十倍以上である。今回得られたデータは、IAEA-375分析の結果と同様、チェルノブイル事故により⁹⁹Tcが放出されたことを示している。また、チェルノブイル原発からの距離と⁹⁹Tc濃度の関係について、遠ざかるほど濃度が低くなっていたことがわかる¹⁶⁾。これまで⁹⁹Tc濃度データについてはほとんど得られていないため、今後、さらにデータの蓄積を計り、原発からの距離と沈着量との関係を検討する必要がある。¹³⁷Csに関しては、多くのデータがあり、その関係がかなり詳細に得られている。今回用いた土壤試料中の¹³⁷Cs濃度（1986年4月26日）は、有機質土層中で15 - 195 kBq/kg-dryであり、無機質土層で0.64 - 8.8 Bq/kg-dryであった。

得られた結果から、土壌中の⁹⁹Tcの鉛直方向への移行に関し、チェルノブイル事故で放出されてから8~9年が経過した時点で、まだ相当量の⁹⁹Tcが有機物層中に保持されているものの、次第に下層に移行しつつあるといえる。移行速度の比較として、土壌中を移動しにくいと言われている¹³⁷Csを対象として放射能濃度比⁹⁹Tc/¹³⁷Csを求めたところ、上層の有機質土層よりも下層で値が大きくなる傾向があった。すなわち、⁹⁹Tcの方が¹³⁷Csよりも下方への移行速度が速いことを示している。今回の分析はおおまかに⁹⁹Tc濃度を把握することが目的であったため、測定で得られたデータは土壌を2層に分割したもののみであり、土壌中移行の詳細については言及することができない。¹³⁷Csに関しては、少量の試料で十分測定が可能である

Table 3 Concentrations of ^{99}Tc and ^{137}Cs in Bq/kg on a dry weight basis and activity ratios of ^{99}Tc to ^{137}Cs on 26 April 1986, in soil samples collected in the 30-km zone around Chernobyl.

Sampling site		^{137}Cs (1986.4.26)				^{99}Tc		Activity Ratio $^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$
		Bq/kg-dry		Bq/kg-dry				
A (6km)	Organic Layer	1.9E+5	+/-	5.5E+3	9.8E+0	+/-	3.3E-1	5.0E-05
	Mineral Layer	8.8E+3	+/-	1.1E+2	8.3E-1	+/-	1.8E-2	9.5E-05
B (26km)	Organic Layer	2.0E+4	+/-	6.3E+2	2.1E+0	+/-	6.5E-2	1.1E-04
	Mineral Layer	1.4E+3	+/-	2.1E+1	3.6E-1	+/-	6.0E-3	2.6E-04
C (28.5km)	Organic Layer	1.5E+4	+/-	2.3E+1	1.1E+0	+/-	2.4E-2	7.5E-05
	Mineral Layer	6.4E+2	+/-	1.7E+1	1.3E-1	+/-	2.5E-3	2.1E-04
IAEA-375 (ca.180km)		5.9E+3		2.5E-1		+/-	2.0E-2	4.2E-05

Table 4 Concentrations of ^{99}Tc and ^{137}Cs in Bq/kg on a dry weight basis and activity ratios of ^{99}Tc to ^{137}Cs on 26 April 1986, in plant samples collected in the 30-km zone around Chernobyl.

Sampling site		^{137}Cs (1986.4.26)				^{99}Tc		Activity Ratio $^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$
		Bq/kg-dry		Bq/kg-dry				
A (6km)	Berry	1.4E+4	+/-	7.3E+1	1.6E+0	+/-	1.6E-1	1.1E-04
	Fern	5.0E+5	+/-	4.5E+2	2.3E+0	+/-	2.6E-1	4.6E-06
B (26km)	Berry	9.0E+3	+/-	9.5E+1	not detected			4.7E-06
	Fern	4.0E+4	+/-	1.2E+2	1.9E-1	+/-	2.9E-2	
C (28.5km)	Berry	1.3E+3	+/-	3.0E+1	4.5E-1	+/-	9.0E-2	3.6E-04
IAEA-373 (ca. 50km), Grass		1.4E+4		8.6E-1		+/-	7.3E-1	6.3E-05

Table 5 Measured transfer factors for ^{99}Tc in the 30-km zone around Chernobyl.

		Organic Layer			Mineral Layer		
A (6km)	Berry	1.6E-1	+/-	1.7E-2	1.9E+0	+/-	2.0E-1
	Fern	2.4E-1	+/-	2.8E-2	2.8E+0	+/-	3.2E-1
B (26km)	Fern	9.3E-2	+/-	1.4E-2	5.3E-1	+/-	7.9E-2
	Berry	4.1E-1	+/-	8.2E-2	3.4E+0	+/-	6.7E-1

ため、それぞれの層をさらに細分化して、鉛直方向の移動に関する貴重なデータが得られている。 ^{99}Tc に関しても、ドイツの放射線防護局の協力により、より土層を細分化した試料を入手する事ができた。現在、それらの試料中の ^{99}Tc 濃度を分析中であり、それらのデータが得られれば、森林内での ^{99}Tc の移動に関する情報が得られると思われる。

3. 2. 2 植物試料中の ^{99}Tc

植物試料の分析結果をTable 4に示す。植物試料のTcの回収率は65-88%であり、 ^{99}Tc 濃度は0.19 - 2.3 Bq/kg-dryであった。試料数が少ないことも相俟っているが、植物種による ^{99}Tc の濃度差は今回の分析では明らかではなかった。一方、 ^{137}Cs に関しては、シダ類はCsを選択的に吸収することが知られており、この植物の性質を反映して、同じ地域でもベリー類よりもシダ類で高い値が得られている。そのため、植物中の $^{99}\text{Tc}/^{137}\text{Cs}$ はベリー類よりもシダ類で2桁ほど低い値となっている。

3. 3 チェルノブイル原発周辺森林内での ^{99}Tc の移行係数（土壤-植物）について

移行係数を求めるにあたっては、単に土壤表層の濃度、例えば深さ20cm以内の放射性物質の平均的な濃度を用いることが多いが、実際には植物の根圏を対象にしたほうがより現実的である。特に、今回の様に土壤中の濃度が深さによりかなり異なる場合では結果に大きく影響する。今回得られた値を元に移行係数を計算すると有機質土層ベースでは0.09 - 0.41、無機質土層ベースでは0.5 - 3.4となり、1桁異なった(Table 5)。植物の根圏がどの土層に位置していたのかについてはさらに研究を進める必要がある。しかし、IAEAでは葉菜類への移行係数として12-2600を期待値として挙げており、どちらの層をベースにした場合でも、今回得られた値は上述よりも1~5桁程度低く、かなり小さいものであった。Tcの移行係数が、実験室レベルと比較して小さいことから、環境中の様々なファクターによりTcの植物への移行が阻害されていることが考えられる。今後はこれらのファクターについても検討を加える必要がある。

4. まとめ

本報告では、Tcの移行係数に関するこれまでのデータを調べ、実環境との違いから来る問題点を示し、チェルノブイルを実環境のフィールドとして移行挙動について検討を行った。その結果、限られた分析数ではあるが、チェルノブイル周辺森林内の土壤-植物（シダ類及びベリー類）のTcの移行係数として0.09 - 3.4が得られ、実験室レベルの移行係数のデータよりもかなり小さいことがわかった。したがって、実環境中の移行係数はこれまでに報告されている値よりも小さいことが予想される。

実際の環境中の ^{99}Tc 移行挙動を明らかにするために、今後の課題として、土壤中の鉛直方向の ^{99}Tc 分布、Tcの植物移行に影響するファクター等の検討が挙げられる。そのために、チェルノブイル原発周辺の汚染地域において、土壤の層別、植物の種類等の ^{99}Tc のデータを蓄積していく必要がある。

引用文献

- (1) Luykx, F.: Technetium discharges into the environment. In *Technetium in the Environment* (Desmet, G. and Myttenaere, C. eds.), pp. 21-27, Elsevier Appl. Sci. Pub., New York (1986).
- (2) Aarkrog, A., Carlsson, L., Chen, Q. J., Dahlgaard, H., Holm, E., Huynh-ngoc, L., Jensen, L. H., Nielsen, S. P. and Nies, H.: Origin of technetium-99 and its use as a marine tracer, *Nature* **335**, 338-340 (1988).
- (3) Coughtrey, P. J., Jackson, D. and Thorne, M. C.: *Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems, A Critical Review of Data*, Vol. 3, AA Balkema, Rotterdam, pp. 210-228 (1983).
- (4) Frissel, M. J. and van Bergeijk, K. E.: Mean transfer values derived by simple statistical regression analysis, sixth report of IUR working group on soil-to plant transfer factors, RIVM, Bilthoven (1989).
- (5) Uchida, S. and Tagami, K.: Possibility of the use of IAEA reference materials (IAEA-373 and 375) as low-level ^{99}Tc references. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, in press.
- (6) Lieser, K. H. and Bauscher, C.: Technetium in the hydrosphere and in the geosphere 1. Chemistry of technetium and iron in natural waters and influence of redox potential on the sorption of technetium. *Radiochim. Acta* **42**, 205-213 (1987).
- (7) Uchida, S. and Tagami, K.: Sorption of technetium onto 129 surface soils collected in Japan. Sixth international conference on the chemistry and migration behaviour of actinides and fission products in the geosphere, Sendai, 1997. 10.
- (8) IAEA: Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments. Technical Report Series 364, pp. 20 (1994).
- (9) Cataldo, D.A., Wildung, R.E. and Garland T.R.: Technetium accumulation, fate, and behavior in plants. In: Environmental chemistry and cycling processes. CONF-760429. 538-549 (1978).
- (10) Echevarria, G., Vong, P.C. and Morel, J.L.: Effect of NO_3^- on the fate of $^{99}\text{TcO}_4^-$ in the soil-plant system. *J. Environ. Radioactiv.* **38**, 163-171 (1998).
- (11) Sheppard, M.I., Reid, J.K.A., Thibault, D.H., Chen, J.D. and Vandergraaf, T.T.: Technetium uptake by and yield of Swiss chard grown on peat and sand. IAEA-SM-257/80P. 358-364 (1981).
- (12) Vandecasteele, C.M., Dehut, J.P., Van Laer, S., Deprins, D. and Myttenaere, C.: Long-term availability of Tc deposited on soil after accidental releases. *Health. Phys.* **57**, 247-254 (1989).
- (13) Tagami, K. and Uchida, S.: Aging Effect on Technetium Behaviour in Soil under Aerobic and Anaerobic Conditions. *Toxicol. Environ. Chem.* **56**, 235-247 (1996).
- (14) Green, N., Wilkins, B. T., Hammond, D. J. and Davidson, M. F.: Transfer of radionuclides to crops in an area of land reclaimed from the sea. *J. Environ. Radioact.* **31**, 171-187 (1996).
- (15) Tagami, K. and Uchida, S.: Concentration of global fallout ^{99}Tc in rice paddy soils collected in Japan. *Environ. Pollut.* **95**, 151-154 (1997).
- (16) Uchida, S., Tagami, K., Wirth, E. and Ruehm, W.: Concentration levels of ^{99}Tc in forest soils collected within the 30-km zone around the Chernobyl reactor. *Environ. Pollut.* (in press).



JP9950131

JAERI-Conf 99-001

7. 旧ソ連セミパラチンスク核実験場及びその周辺地域における Pu 同位体と¹³⁷Cs の分布

山本政儀¹, 星 正治², 高田 純², 塚谷恒雄³, A. Kh. Sekerbaev⁴, B. I. Busev⁴

¹金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

²広島大学原爆放射能医学研究所国際情報センター

³京都大学経済研究所

⁴カザフスタン放射線医学環境研究所

旧ソ連セミパラチンスク核実験場及びその周辺地域の残留放射能の濃度レベル、分布、移行等の知見を得るために、土壤中の半減期の長い¹³⁷Cs 及び Pu 同位体を測定した。特に Pu の分析・測定では、²³⁹, ²⁴⁰Pu 濃度測定に加えて、逐次分析法を用いての存在特性、さらに ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比測定からの汚染源の識別を検討した。結果として、核実験場内及びその周辺地域の土壤中¹³⁷Cs 濃度は、国内の Global fallout (3000~7000 Bq/m²) と同等かやや低いレベルで、一方²³⁹, ²⁴⁰Pu は国内レベル (40~120 Bq/m²) の数～数百倍の高レベルで検出され、非常に不均一に分布していることが分かった。¹³⁷Cs や ²³⁹, ²⁴⁰Pu は 30 cm 深さまで見い出せる地点もあるが、大部分は表層下 5 cm ないし 10 cm 深さまでに存在している。土壤中 Pu の大部分 (60~70%) は鉱酸で抽出不可能な状態で存在していることが明らかになった。さらに ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu 同位体比の測定から、この地域のほとんどの Pu が未核分裂原爆級 Pu であることが分かった。

Distribution of Pu Isotopes and ¹³⁷Cs in and around the Former Soviet Union's Semipalatinsk Nuclear Test Site

Masayoshi YAMAMOTO¹, Masaharu HOSHI², Jun TAKADA², Tsuneo TSUKATANI³,

Alexander Kh. SEKERBAEV and Boris I. BUSEV⁴

¹Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Ishikawa, Japan

²International Radiation Information Center, Research Institute for Radiation
Medicine, Hiroshima University, Hiroshima, Japan

³Kyoto Institute of Economic Research, Kyoto University, Kyoto, Japan

⁴Kazakh Scientific Research Institute for Radiation Medicine and Ecology,
Semipalatinsk, The Kazakhstan Republic

This paper is a report on our survey of residual radioactivity, Pu isotopes and
¹³⁷Cs, within and without the territory of the Semipalatinsk nuclear test site.

Soil samples within the test site were collected at approximately 30 sites along the roads connecting Kurchatov City, ground zero for the first USSR nuclear test, Balapan, Degelen Mountain and Salzhal settlement. Furthermore, outside the test site, the soil was sampled at about 20 sites, including some settlements (Mostik, Dolon, Tchagan, etc.), forest and pasture areas, along the roads from Semipalatinsk City to Kurchatov City and north Korosteli settlement. The contamination levels of long-lived radionuclides, ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ as well as $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio in the soil were determined by non-destructive γ -spectrometric method and radiochemical separation followed by α -spectrometric and/or ICP-MS methods, respectively. The results showed that although ^{137}Cs was within typical environmental levels except for an areas near ground zero and Balapan, $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ was elevated levels contaminated with weapons-grade plutonium in all area we visited. From the stepwise leaching of Pu from the soil, 50-80 % of total $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ in most samples was found to be tightly incorporated into the soil components which might have been melted at time of detonation.

Keyword

Nuclear Test Site, Semipalatinsk, Residual Radioactivity, Soil, ^{137}Cs , $^{239}, ^{240}\text{Pu}$, $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Atomic Ratio

1. 序論

陸上環境に放出された放射性物質の最大のリザーバーである大地、すなわち土壤が環境－人体連鎖の過程における物質循環と深い関わりがあることが早くから認識され、核種移行挙動が種々の fallout 核種を用いて研究されてきた。このような一連の研究の中で、現在なおも注目されていることは、長寿命でしかも毒性の高い超ウラン元素 (Np, Pu, Am) が時間的経過と共にどのような挙動をするかである。特にその関心は、表層土壤に蓄積したこれら超ウラン元素が時間の経過と共にその存在状態がどのように変化していくのか、また水循環との絡みでどのような化学種が地中移動や植物の経根吸収に最も関与するのかなどに集中している。土壤中での超ウラン元素の移行挙動は、放出された元素の物理・化学的特性と土壤の物理・化学・生物学的特性その後の土壤中での続成作用などに大きく依存する。このような複雑な土壤環境での超ウラン元素の移行挙動を予測・評価するためには、室内トレーサー実験からのアプローチと共に種々の汚染源からの環境での定量性ある存在特性（状態）研究も含むフィールド研究が重要となる。しかし、現在このような研究は Global fallout のみで汚染された通常の環境ではレベルが低く、かなり困難になりつつある。研究が行いやすい高濃度汚染地域の 1 つとして、核実験場が挙げられる。

我々は、5 年前から旧ソ連セミパラチンスク核実験場の周辺居住地域における電離放射線の人の健康に対する影響、特に長期の低線量被曝の人体影響を研究するために、その地域の被曝線量

評価および土壤の残留放射能レベルを調査している。カザフスタン共和国の北東に位置するセイパラチンスク核実験場(約 18500 km², 日本の四国の広さに匹敵)では, 1949 年 8 月 29 日に最初の核実験を行って以来大気(87回), 地上(26回), 地下(346回)併せて 450回以上の核実験が実施されてきた(1989年10月に閉鎖)^{1, 2}。実験場内外には global fallout レベルを遙かに上回る地点が点在していると予想されるが, 公開されているデータは少なく, 不明な点が多い^{3, 4}。ここでは, このような乾燥した特殊な地域での残留放射能レベル, 特に半減期の長い¹³⁷Cs と Pu 同位体の汚染レベルとその存在特性を報告し, すでにデータのあるglobal fallout, 核燃料再処理工場(Sellafield, UK) さらにデータが蓄積しつつあるチェルノブイリ原発事故由来 Pu の土壤中での存在特性との比較検討資料としたい。

2. 試料

測定試料はすべて土壤を対象とし, 直径 4.7 cm のステンレスパイプを用いて, 1 地点当たり 10 cm 深さの表層土壤 3 ~ 5 ケとほぼその中央で 30 cm 深さのコアー土壤 1ヶを採取した。10 cm 深さの表層土壤は分割することなくそのまま, 一方 30 cm 深さのコアー試料は表層から 0~5, 5~10, 10~20, 20~30 cm (または 0~5, 5~10, 10~15, 15~20, 20~30 cm) に分割した。風乾した後, 口径 2 mm のふるいで分け取った後, 分析に供した。以下に示す試料を用いた。

(1) 核実験場内の土壤 (Fig. 1, Appendix I)

1995 年 NNC(National Nuclear Center, Kazakhstan) の協力のもとで, Kurchatov から最初の核実験が実施された爆心地に通じる道沿い及び爆心地付近, さらに Kurchatov から南の地下核実験場(Balapan, Mt. Degelen) に至る道沿い等で土壤を採取した。また, 核実験場近郊の南東に位置している居住地域, Sarzhal でも採取した。

(国際学術研究 “中央アジア・カザフスタンの環境と経済の再生計画”, 代表: 京都大・経済研, 塚谷恒雄 教授, 1993 ~ 1995 年)

(2) 核実験場周辺の土壤 (Fig. 2, Appendix I)

1995 年から 1996 年にかけて, カザフスタン放射能医学環境研究所との共同研究として, 被曝線量が比較的高いと報告されている核実験場近郊の Mostik, Dolon, Tchagan などの地区, 被曝が少ないと言われている Semipalatinsk 市および市の北のアルタイ(Altai) 地方に至る Korosteli などの集落およびその道沿いで実験場内と同様な方法で土壤採取を行った。

(国際学術研究 “ミハラチンスク核実験場周辺の被曝線量評価と疾病調査”, 代表: 広島大・原医研, 星 正治 教授, 1995 ~ 1996 年)

3. 分析・測定法

3.1. 非破壊γ線スペクトロメトリ

まず土壤試料を内径 6 cm, 深さ 2 cm の一定プラスチック容器(土壤試料: 50~80g)に入れ, 2~3 週間保存した後, 通常の Ge 半導体検出器を用い, 1~2 日間測定を行った。標準試料として, NBL(New Brunswick Laboratory)が売り出している U 標準試料の既知濃度を特級 NaCl 試薬に均一に混ぜた物および特級 KOH 試薬を用いた。この測定によって, γ線を放出する核分裂放射性核種¹³⁷Cs や天然放射性核種などを定量した。また, planar 型の Ge 検出器から成る低エネル

ギー光子スペクトロメーター (LEPS) によって ^{210}Pb や ^{238}U (^{234}Th) の測定も実施した。

3.2 Pu 濃度及び同位体の測定

Global fallout Pu で汚染された土壤については、硝酸等の鉱酸を用いた加熱リーチングで、Pu がほぼ定量的に抽出されることはよく知られている。しかし、核実験場サイトの Pu については、アメリカのネバタ核実験場及びその周辺の Pu についてすでに報告^{12, 13, 15}されているように、難溶性、更に融解した原爆構成物質やケイ酸土壤粒子にトラップされた成分の存在もあり、Pu の抽出には注意を払う必要がある。そこで、10 cm 深さの表層土壤については、逐次抽出・完全分解法、(1) c. $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow$ (2) 10M $\text{HNO}_3 + 0.1\text{M HF} \rightarrow$ (3) アルカリ (NaOH) 融解 (または $\text{HNO}_3 + \text{HF} + \text{KCIO}_4$ 分解) を試み、Pu の存在特性の知見が得られるようにした。一方、コアー試料については逐次抽出を行わずに、すべて全分解を実施した。その後イオン交換樹脂カラム法を用いた方法で Pu を分離・精製し、電着後 α 線スペクトロメトリーにより ^{238}Pu および $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ を定量した。また一部の試料について、同様に Pu を分離・精製し、高分解能誘導結合プラズマ質量分析計 (HR ICP-MS) を用いて、 ^{239}Pu と ^{240}Pu の同位体比を測定した^{5, 6, 7}。

4. 結果と考察

4.1 ^{137}Cs および $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量

核実験場内およびその周辺で採取した表層 (0~10cm) およびコアー試料 (0~30cm) についての ^{137}Cs 蓄積量 (Bq/m^2) を Fig. 3 に示す。 ^{137}Cs 蓄積量は試料採取日での値である。核実験場内の ^{137}Cs 蓄積量¹⁰は、最初の核実験を行った爆心地付近の F6 ($10^4 \sim 10^5 \text{ Bq}/\text{m}^2$) や F5 ($\approx 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$) で高い値を示し、Kurchatov 方向への距離とともに指数関数的に漸減している。他の地点では顕著に高い値を示す地域はないが、 $2 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{m}^2 \sim$ 最大で $10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$ 範囲であった。同一地点で採取した試料間で、たとえば F5 で $2.5 \times 10^3 \sim 2.1 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$ 、A4 で $5.3 \times 10^2 \sim 5.6 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{m}^2$ のように ^{137}Cs 蓄積量にかなりのばらつきが見い出され、非常に不均一であることが強く示唆される。1953 年の最初の水爆の影響を強く受けた Salzhal 集落 (図中の S 点) では、平均 $5 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{m}^2$ 程度であるが、中には S5 のように $1 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$ の高いホットスポット的な地点が点在している。このような傾向は核実験場外の ^{137}Cs 蓄積量についても同様である。核実験からの局地的 Fallout を強く受けて被曝線量も高いと報告されている Mostik, Dolon, Tchagan 集落では、($1 \sim 5$) $\times 10^3 \text{ Bq}/\text{m}^2$ であった。森林の W8 地点は ($5 \sim 7$) $\times 10^3 \text{ Bq}/\text{m}^2$ と高い。また、Semipalatinsk から Altai 地方に通じる道沿いの森や放牧地で採取した土壤の蓄積量もそのほとんどが ($1 \sim 3$) $\times 10^3 \text{ Bq}/\text{m}^2$ で、当初の予想に反してかなり低いことが分かった。日本では、降水の多い日本海側 (2000~2500 mm/y) で $6000 \sim 7000 \text{ Bq}/\text{m}^2$ 、降水の少ない太平洋側 (約1000 mm/y) で $3000 \sim 4000 \text{ Bq}/\text{m}^2$ の Global fallout ^{137}Cs 蓄積量が報告されている^{8, 9}。全体として、 ^{137}Cs 蓄積量は爆心地付近の F6, F5 を除いて、スポット的に $10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$ の高い地点もあるが、日本の Globull fallout ^{137}Cs 蓄積量と同等か、やや低レベルであることが分かった。

この核実験場では、種々さまざまなタイプと規模の異なる核実験が大気中と地表で実施された。さらに、地上への噴出を伴ういくつかの地下核実験も行われた。大気中での爆発では、爆発の高

さと火球の大きさが初期フォールアウトの規模をほぼ決定する。火球が地表面に触れる場合には、土やその他の物質が蒸発し、大量の土や破片が吸い上げられる。これらの物質が放射能を浴びた核分裂片や爆弾の破片と混ざり合い、種々の粒子を作り、上昇と横方向に広がる。やがて重力によって地表に落下し始めるが、その早さや距離は、粒子の大きさと風速によって変わる。さらに降雨の有無によっても大きく変化し、これが局地的フォールアウト (Close-in fallout) をつくる。一方、火球が地表に達しないような高さで爆発した場合には、局地的フォールアウトははるかに少ないか、まったく生じないとと言われている。このようなことを考慮すると、実験場やその周辺の ^{137}Cs 蓄積量の分布は不均一であることが当然であり、レベルが予想に反して低いのは、

$^{137}\text{Te} \rightarrow ^{137}\text{I} \rightarrow ^{137}\text{Xe}$ ($T_{1/2} = 3.84\text{ m}$) $\rightarrow ^{137}\text{Cs}$ の一連の decay-chain を経て生成する ^{137}Cs が、局地的フォールアウトを形成して降下する前に ^{137}Cs の先行核、揮発性の Te や I、さらに希ガスの Xe の大部分が成層圏に散逸したためではないかと考えられる。

次に各地点で ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg) の最も高い値を示した試料について Pu を測定した結果をそれぞれ Tables 1, 2 に示す。表には $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度、蓄積量以外に $^{238}\text{Pu}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 及び $^{239}, ^{240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比、さらに $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比 (atomic ratio) も併せて示してある。また Fig. 4 には、コアー試料から求めた蓄積量も含めて、日本での Global fallout $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量との比較を示した。Fig. 4 から分かるように、核実験場内や Salzhai 集落の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量は ^{137}Cs 蓄積量と大きく異なって、ほとんどの地点で日本で見い出せる $40\sim120\text{ Bq/m}^2$ 範囲の蓄積量を数～数100倍上回っている。爆心地付近の F6 ($3.3 \times 10^5\text{ Bq/m}^2$)、さらにその遠方の F5, F4, F3 ($(1\sim4) \times 10^4\text{ Bq/m}^2$) が極めて高い。Salzhai 集落は 10^3 Bq/m^2 の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量がある。近郊の集落 Dolon や Semipalatinsk 市に至る道沿いでの森林 (W 地点) で数 100～1000 Bq/m² の蓄積量が見られるが、Semipalatinsk 市や Altai 方面ではやや低い傾向にある。これらの地点の $^{238}\text{Pu}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 放射能比は実験場内外で 0.02～0.04 であり、Global fallout Pu で見い出せる比と大差ない。水爆の影響を強く受けた Salzhai 集落でこの比の低い値が多く見られる。一方、 $^{239}, ^{240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は、ほとんどの地点で現在見い出される Global fallout 値 0.02 より高く、 ^{137}Cs に比べて $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ が過剰に降下していることが分かる。

4.2 ^{137}Cs 及び $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布

コアー土壤試料についての ^{137}Cs 及び $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布を Appendix II に示す。土壤は一般に、森林の場合には砂地であったが、一部の牧草地を除く他のほとんどの地点はステンレスパイプでさえ打ち込むことが困難な硬い裸地であった。表からわかるように、実験場内では ^{137}Cs , $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ とともに 20 cm 深さで見い出される地点もあるが、表層下 5 cm までに大部分が蓄積している。一方、実験場外の居住地域等においては測定した 30 cm 深さまで見い出される地点もあり、 ^{137}Cs や $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度は必ずしも指數関数的に減少していない。Tsyb ら³が Dolon で採取した土壤コアー試料において、 ^{90}Sr , ^{137}Cs 及び $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度が 10～15 cm 深さにピークを示す深度分を報告している。居住地域周辺では表層の高い局地的フォールアウト核種濃度を低減させるために、深部土壤との混合を実施した地域もあると聞いており、深部まで ^{137}Cs や $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ が見い出されたのはおそらくこの人為的攪拌に起因するものと考えられる。

そのような地点においては、さらに深い層まで ^{137}Cs や $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ が見い出せる可能性がある。

4.3 Pu の存在特性

核実験場内外の土壤中 Pu の存在特性についての知見を得るために Pu の逐次分析を表層下 10 cm 深さまでの試料を用いて実施した。その結果を Fig. 5 に示す。すべての地点の土壤中 Pu は通常の H_2O_2 を含む HNO_3 加熱リーチング法では完全に抽出されない。10M HNO_3 + 0.1M HF 抽出フラクションの Pu は、爆心地から Kurchatov へ通じる道沿いで採取した土壤で相対的に多く存在しているが、他の地点(W1 を除いて)では少ない。最後の残渣中に残る Pu は、核実験場内では 60~80 % と非常に多い。実験場外の残渣中 Pu は、場所によってかなりばらつき、W5 地点で 97 %, W2, W8 地点で 80 ~ 85 %, 遠方の N1 ~ N5 地点で 20 ~ 40 % であった。Global fallout Pu による汚染土壤については、 $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ リーチング法でほぼ定量的に Pu が抽出されることを考え併せると、今回のこの $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ 抽出 Pu 成分はおそらく Global fallout Pu + 核実験由来の局地的フォールアウト Pu の微粒子成分ではないかと考えられる。10M HNO_3 + 0.1M HF リーチング法は一般に難溶性 Pu 酸化物を含むおそれのある試料によく適用されてきた方法である⁷。この成分が相対的に多く見い出せる F5 ~ F1 地点は 1949 年 8 月の旧ソ連の第 1 回の核実験からの局地的フォールアウトの影響を強く受けた地域である。残渣中の Pu は、蒸発した土壤や原爆構成物などの様々な大きさの凝集粒子に取り込まれた Pu であると考えられる。このような知見は、この地域の土壤中 Pu の長期動態を予測・評価する上で特に重要であると考える。なお、 ^{137}Cs については現在検討中である。

4.4. Pu 汚染源の識別

核実験場内外の土壤中には、上記してきたように核実験からの局地的 fallout と Global fallout 由来の ^{137}Cs や $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ が混在して存在している。Global fallout 由来の成分を識別し、局地的 fallout 由来の ^{137}Cs や $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度、あるいは蓄積量を正確に把握することは、特に住民の被曝線量を再構築する上で極めて重要である。また、それぞれの汚染源からの Pu の土壤中での移行挙動を評価する上でも必要である。この識別の 1 つの方法として Pu 同位体の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を用いる方法がある^{12, 13, 15}。この $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は汚染源によって、Table 3 に示すように変化する⁶。試料及びセミパラチンスク核実験の原爆級 Pu の代表的な $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が分かれれば、Global fallout 値 0.18 を使用して、下記の式より Pu を識別することが可能である。

$$\frac{(\text{Pu})_w}{(\text{Pu})_g} = Y = \frac{(R_g - R_s)(1 + 3.73 R_w)}{(R_s - R_w)(1 + 3.73 R_g)}$$

$$(\text{Pu})_g + (\text{Pu})_w = (\text{Pu})_s$$

$$(\text{Pu})_g = \frac{1}{1 + Y} (\text{Pu})_s$$

(Pu)_S : 試料中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量 (Bq/m²)

(Pu)_G : 試料中の Global fallout 由来の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量 (Bq/m²)

(Pu)_W : 試料中のセミパラチンスク核実験からの局地的 fallout 由來の
 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 蓄積量 (Bq/m²)

R_S : 試料中 Pu の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

R_G : Global fallout Pu の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比 = 0.18

R_W : セミパラチンスク核実験からの局地的 fallout Pu の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

Y : Global fallout に対しての局地的 fallout $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の寄与比

上記パラメーターの中で、R_S は試料の測定を通じて得ることができる。また、R_G は Global fallout Pu のみで汚染されている土壤中 Pu の測定から得ることができ、ほぼ 0.18 で一定であることが知られている。最も評価の困難なパラメーターは R_W である。タイプの異なる種々の規模の核実験が数多く実施されているので、核実験毎に Pu 同位体比が異なり、試料採取地点では種々の放射線雲の流跡線が混在していると考えられる。それ故、セミパラチンスク全域でこの比を一定と考えることはできないであろう。R_W 値は試料採取地点(地域)毎に決定する必要があると考えられる。上記の式によって (Pu)_G が評価できること、さらに下記式によって ^{137}Cs を識別することも可能となる。

$$(^{137}\text{Cs})_W = (^{137}\text{Cs})_S - (^{137}\text{Cs}/\text{Pu})_G \cdot (Pu)_G$$

(^{137}Cs)_S : 試料中の ^{137}Cs 蓄積量 (Bq/m²)

(^{137}Cs)_W : 局地的 fallout 由來の ^{137}Cs 蓄積量 (Bq/m²)

($^{137}\text{Cs}/\text{Pu}$)_G : Global fallout 由來の現在の土壤中の $^{137}\text{Cs}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 放射能比

($^{137}\text{Cs}/\text{Pu}$)_G 値は、地域や土壤特性によって多少変化すると考えられるが、30 cm 程度までの深さの両核種の蓄積量の比で見ると、現在 50 前後である。

$^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度を測定した試料について $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比 (atomic ratio) を測定した結果 (Tables 1, 2) を 1 つにまとめて Fig. 7 に示す。図から分かるように、Kurchatov や Salzhal を含む実験場内では、Global fallout 値 0.18 に比べて 0.025~0.072 のかなり低い値を示す。また、実験場外においても、W1 地点で 0.100, SP1 地点で 0.125 のやや高い値を示す地点もあるが、他の地点は 0.024~0.083 の低い値を示す。このような低い比が得られることは、原爆材料そのものの Pu が飛散していることを強く示唆する。今回の値は Table 3 に示すアメリカのネバダ核実験場やロッキー・フラットでの原爆級 Pu, さらに長崎や Thule 試料についての Pu 同位体比とよく似ている。表中に示す 1st Exp Site 及び Balapan は最初の原爆実験 (1949 年 8 月) が行われた場所、及び平和利用の目的で行った地下核実験 (1965 年 1 月) で作られた大きな湖 (atomic lake) の堤防頂上付近で採取した土壤についての我々の測定結果である。この試料について、他の Pu 同位体も測定した結果をまとめて Table 4 に示す⁶。セミパラチンスク核実験場内外で見い出される低い $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の Pu が未核分裂の原爆級 Pu であるかどうか

かについては、中性子を吸収して組成変化(フラクショネーション)した Pu, さらに ^{238}U の中性子捕獲で生成した Pu 同位体の寄与もあると考えられるが、今のところその大部分は、原爆級 Pu そのものではないかと考えている。ちなみにここで見い出された $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の最も低い値 0.025 がセミパラチンスク核実験の代表的な値と仮定すると、試料で 0.03~0.05 範囲を示す地点では 95~77 % が局地的 fallout Pu に由来することになる。この値を用いて、局地的 fallout ^{137}Cs の寄与を見積もるとかなりの地点で負の ^{137}Cs (局地的 fallout ^{137}Cs 寄与なし) 値が得られ、前述したように R_w 値についてはそれぞれの地点で、より正確に評価する必要があることが分かった。現在表層及び深度別試料を用いて、鉱酸で抽出可能と不可能な Pu 成分について $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を測定しており、鉱酸で抽出不可能な Pu の同位体比がそれぞれの地点の R_w を反映しているのではないかと考えている。

5. おわりに

現在測定が継続中であるが、限られた試料分析から主な結果として以下のことが明らかになった。(1) 全体として、核実験場内及びその周辺の土壤試料の ^{137}Cs レベルは国内の Global fallout (3000-7000 Bq/m²) と同等かやや低いレベルで、一方 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ は国内レベル (40-120 Bq/m²) の数倍から数 100 倍の高いレベルで検出された。(2) 実験場内 ^{137}Cs 及び $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ は殆どが表層下 5 cm までに存在し、非常に不均一(hot particle の存在)であり、Pu については大部分が鉱酸で抽出不可能な形態で存在している。実験場の外側では、場所によりかなり異なるが、測定した 30 cm 深さまで検出される地点があった。(3) Pu 汚染源の由来を検討するために $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を測定した結果、実験場内のその比は 0.025~0.072、実験場外では 0.024~0.125 で、Global fallout のみで汚染された地域の 0.18 よりもかなり低く、原爆材料そのものの未核分裂原爆級 Pu で汚染されていることが明らかになった。今後、この局地的 fallout に由来する Pu の識別ができるだけ正確に評価し、 ^{137}Cs の評価も実施して、それぞれの汚染源からの両核種の土壤中の挙動、さらにこの地域の残留放射能からの線量再構築を試みる予定である。

最後に、試料採取で協力いただいたカザフスタンの NNC およびカザフスタン放射線医学環境研究所の研究スタッフ、さらに国内の京都大学、広島大学、奈良教育大学および金沢大学の研究スタッフの方々、Pu 同位体測定に協力いただいた農業環境技術研究所の津村昭人氏、原稿とりまとめに協力いただいた当施設の中本美智代氏に感謝致します。

参考文献

- 1) Dubasov, U. V., Zelentsov, S. A., Krasilov, G. A., Logachyov, V. A., Matushchenko, A. M., Smagulov, S. G., Tsaturov, B. S., Tsirkov, G. A., Chernyshov, A. K.: Chronological list of the atmospheric nuclear tests at the Semipalatinsk Test Site and their radiological characteristics. In: *Scientific Research Institute for Regional Medicaland Ecological Problem, Herald of the Research Program " Semipalatinsk Test Site-Altai" N4,1994, Scientific and Practical Journal, Digest of the InternationalPanel Meet "NATO/SCOPE-RADTEST"* (J. N. Shoikhet, ed.), Barnaul, September 5-10, 1994.
- 2) Bocharov, V. S., Zelentsoz, S. A., Mikhailov, V. N.: At. Energ. 67, 210 (1989).
- 3) Tsyb, A. F., Stepanenko, V. F., et. al.: Radiologiya Meditsinskaya, 35, 3 (1990).
- 4) Logachev, V.: Features of an evaluation of the radiation dose received by the population after atmospheric nuclear testing at the Semipalatinsk. In: *Assessing the Radiological Impact of Past Nuclear Activitiesand Events*. TECDC-755, IAEA, Vienna 1994.
- 5) Yamamoto, M., Tsukatani, T., Katayama, Y.: Health Phys., 71, 142 (1996).
- 6) Yamamoto, M., Tsumura, A., Katayama, Y., Tsukatani, T.: Radiochim. Acta, 72, 209 (1996).
- 7) Procedures Manual Series for Environmental Radioactivity Measurements: *Manual for plutonium assay in environmental materials in Japan*, Japan Chemical Analysis Center, Chiba, Japan 1977.
- 8) Yamamoto, M., Komura, K., Sakanoue, M.: J. Radiat. Res., 24, 237 (1983).
- 9) Yamamoto, M., Sha, L., Kofuji, H., et. al. In: Proceedings of *International Workshop on Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters*, Nuclear Cross-Over Research, Tokyo, Japan, Feb. 5-6, 1996, pp.198-206.
- 10) Yamamoto, M., Tsumura, A., Tsukatani, T.: Radiochim. Acta, 81, 21 (1998).
- 11) Komura, K., Sakanoue, M., Yamamoto, M.: Health Phys., 46, 1213 (1984).
- 12) Hardy, E.: USAEC Report HASL-306, New York, NY (1976).
- 13) Krey, P. W., Hardy, E. P.: USAEC Report HASL-235, New York, NY (1970).
- 14) Kim, C. K.: Docter Thesis, University of Tsukuba, Japan (1990).
- 15) Hardy, E. P., Krey, P. W., Volchov, H. L.: USAEC Report HASL-257, New York, NY(1972), pp. I-95-118.

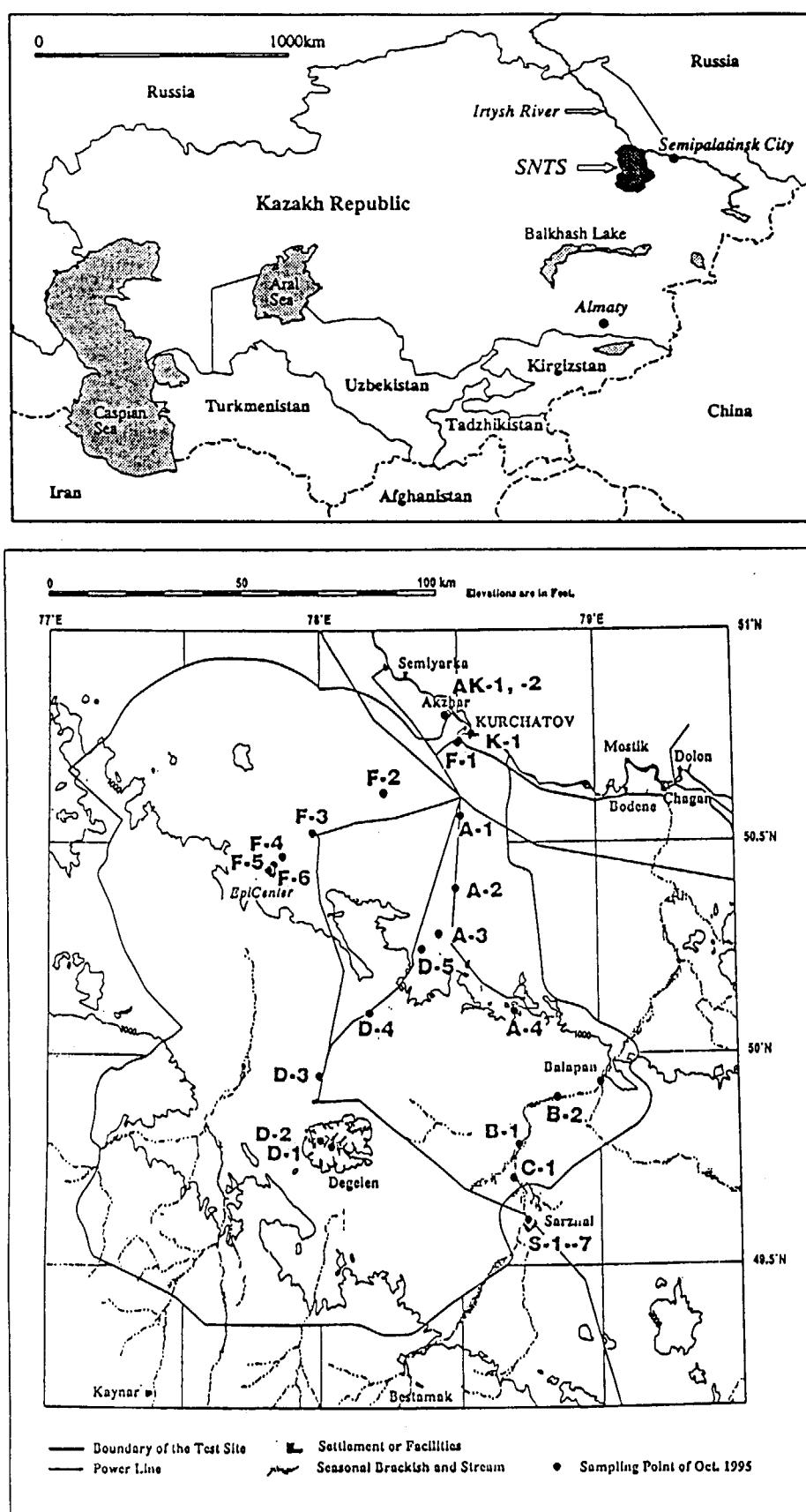


Fig. 1. Location map of the former Soviet Union's Semipalatinsk nuclear test site, with sampling site of soil.

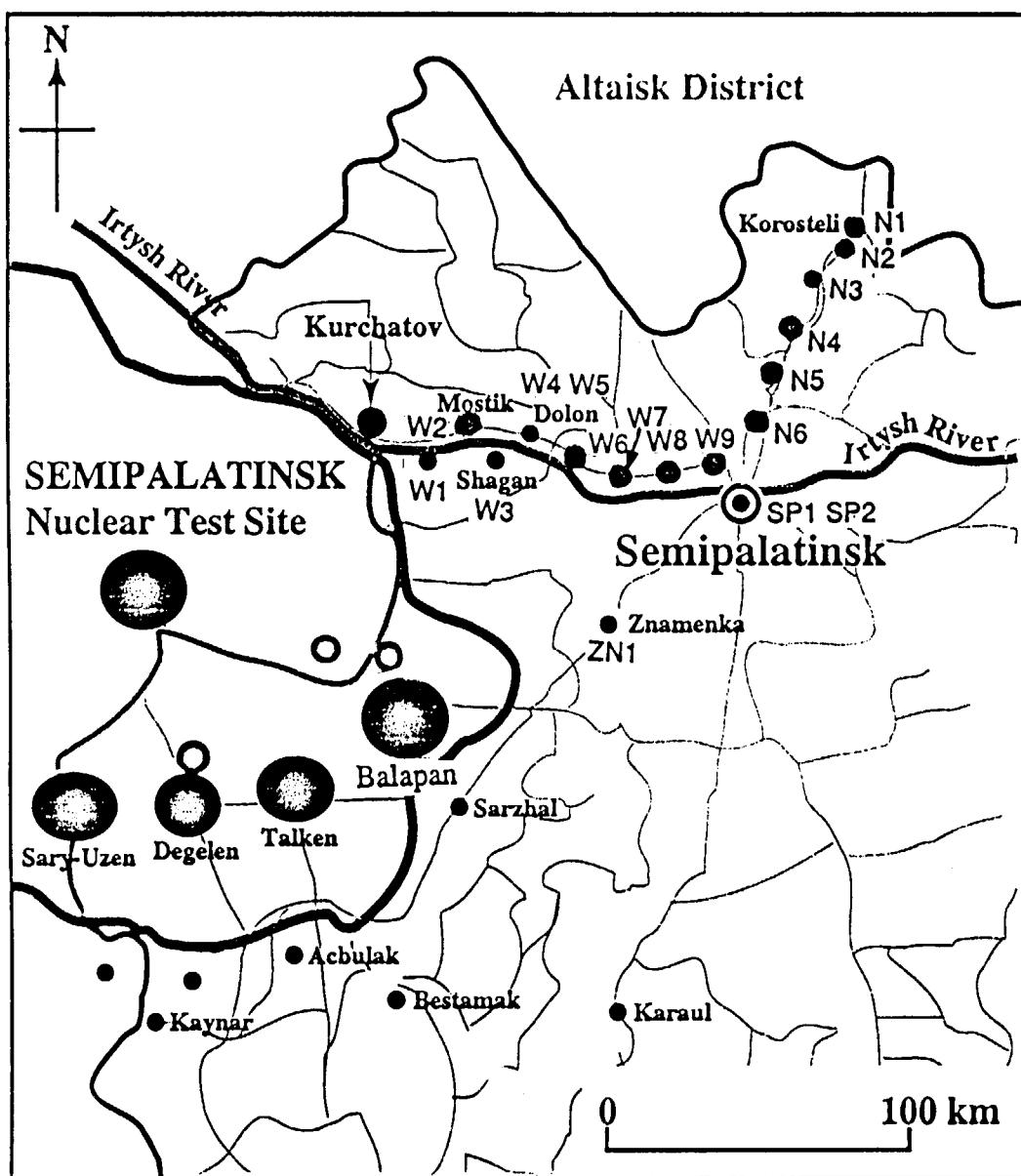


Fig. 2. Location map outside the nuclear test site, with sampling site of soil.

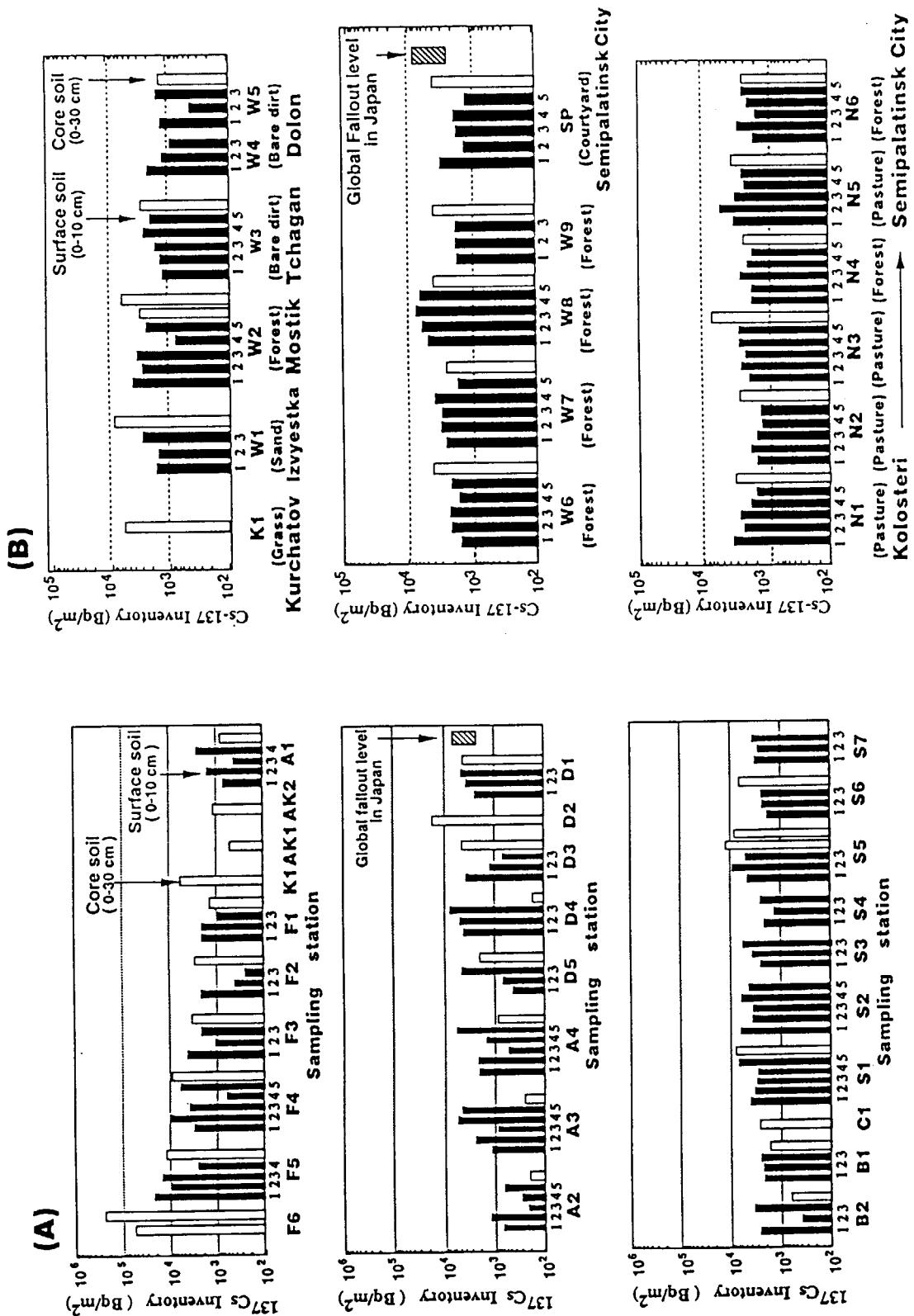


Fig. 3. Accumulated levels (Bq/m^2) of ^{137}Cs for surface soil (0-10 cm depth) and core soil (0-30 cm depth) from several sites in (A) and around (B) the territory of the Semipalatinsk nuclear test site.

Table 1. Concentrations and inventories of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$, activity ratios of $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, and atomic ratios of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in soil within the territory of the test site

Sample No.	Activity (Bq/kg dry)		Inventory (Bq/m ³)		Activity ratio	Atomic ratio
	$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs	$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs		
F5-1*	826 ± 21 ^b	226 ± 2 ^b	7.75x10 ⁴	2.12x10 ⁴	3.65 ± 0.10 ^b	0.024 ± 0.002 ^b
F4-2	465 ± 17	102 ± 1	4.13x10 ⁴	9.08x10 ³	4.55 ± 0.17	0.023 ± 0.001
F3-1	79.0 ± 1.8	29.2 ± 0.6	1.04x10 ⁴	3.97x10 ³	2.71 ± 0.08	0.027 ± 0.001
F2-1	19.2 ± 0.6	23.6 ± 0.4	1.64x10 ³	2.02x10 ³	0.81 ± 0.03	0.023 ± 0.002
F1-1	4.86 ± 0.18	25.3 ± 1.6	3.86x10 ²	2.01x10 ³	0.19 ± 0.01	0.025 ± 0.002
A1-4	12.4 ± 0.7	17.0 ± 0.3	1.69x10 ³	2.31x10 ³	0.73 ± 0.04	0.013 ± 0.002
A2-2	6.07 ± 0.20	10.4 ± 0.3	7.06x10 ²	1.21x10 ³	0.58 ± 0.03	0.012 ± 0.002
A3-4	61.0 ± 2.2	47.5 ± 0.5	6.13x10 ³	4.77x10 ³	1.28 ± 0.05	0.012 ± 0.002
A4-5	62.3 ± 2.1	43.7 ± 0.7	8.04x10 ³	5.64x10 ³	1.43 ± 0.05	0.014 ± 0.002
D5-3	25.4 ± 0.6	53.6 ± 0.9	2.02x10 ³	4.26x10 ³	0.47 ± 0.01	0.023 ± 0.002
D4-3	20.1 ± 0.7	78.2 ± 3.0	1.90x10 ³	7.40x10 ³	0.26 ± 0.01	0.030 ± 0.001
D3-1	10.9 ± 0.3	31.3 ± 0.6	1.20x10 ³	3.42x10 ³	0.35 ± 0.01	0.016 ± 0.002
D1-3	6.51 ± 0.22	85.3 ± 1.5	3.54x10 ²	4.64x10 ³	0.08 ± 0.01	0.037 ± 0.002
B2-3	8.35 ± 0.22	34.1 ± 0.6	8.49x10 ²	3.47x10 ³	0.24 ± 0.01	0.025 ± 0.003
B1-2	5.16 ± 0.20	24.5 ± 0.4	5.01x10 ²	2.37x10 ³	0.21 ± 0.01	0.016 ± 0.002
S1-5	10.8 ± 0.4	52.1 ± 0.6	1.51x10 ³	7.31x10 ³	0.21 ± 0.01	0.005 ± 0.001
S2-1	6.76 ± 0.37	53.0 ± 0.8	7.53x10 ²	5.91x10 ³	0.13 ± 0.01	0.009 ± 0.001
S3-3	18.1 ± 0.7	70.7 ± 0.8	1.75x10 ³	6.86x10 ³	0.26 ± 0.01	0.013 ± 0.001
S4-1	4.29 ± 0.20	28.6 ± 0.7	3.23x10 ²	2.16x10 ³	0.15 ± 0.01	0.008 ± 0.001
S5-1	11.0 ± 0.4	36.5 ± 0.8	1.42x10 ³	4.71x10 ³	0.30 ± 0.01	0.007 ± 0.001
S6-1	2.30 ± 0.09	22.9 ± 0.6	2.63x10 ²	2.62x10 ³	0.10 ± 0.01	0.011 ± 0.001
S7-3	6.46 ± 0.22	29.3 ± 0.5	7.39x10 ²	3.35x10 ³	0.22 ± 0.01	0.011 ± 0.001

* Sample number of one surface sample (0-10 cm depth) at each site which showed the highest concentration of (as Bq/kg) of ^{137}Cs .

^b One sigma standard deviation from counting statistics

^c One standard deviation of replicate measurements (n=6) in the final solution taken from one sample.

Table 2. Concentrations and inventories of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$, activity ratios of $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, and atomic ratios of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in soil around the territory of the test site

Location	Site No.	Lab. ID	Activity (Bq/kg dry)		Inventory (Bq/m ²)		Activity ratio		Atomic ratio $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
			$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs	$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	
W1-3*	SP04	2.02 ± 0.05 ^b	21.8 ± 0.9 ^b	2.69x10 ²	2.91x10 ³	0.092 ± 0.004 ^b	0.019 ± 0.004 ^b	0.100 ± 0.016 ^c	
W2-1	SP01	7.03 ± 0.20	35.1 ± 0.7	9.30x10 ²	4.64x10 ³	0.200 ± 0.007	0.029 ± 0.003	0.054 ± 0.004	
W3-4	SP05	0.41 ± 0.02	17.0 ± 0.5	6.66x10 ¹	2.76x10 ³	0.024 ± 0.001	0.025 ± 0.003	0.083 ± 0.006	
W5-3	SP03	26.0 ± 0.9	19.7 ± 0.5	2.13x10 ³	1.61x10 ³	1.323 ± 0.058	0.034 ± 0.004	0.024 ± 0.002	
W6-5	SP10	3.85 ± 0.10	20.9 ± 0.4	4.17x10 ²	2.26x10 ³	0.184 ± 0.006	0.021 ± 0.003	0.050 ± 0.004	
W7-4	SP11	1.43 ± 0.06	25.3 ± 1.3	2.22x10 ²	3.93x10 ³	0.056 ± 0.004	0.033 ± 0.003		
W8-2	SP12	27.3 ± 1.0	41.6 ± 1.2	3.90x10 ³	5.93x10 ³	0.657 ± 0.030	0.036 ± 0.002	0.024 ± 0.002	
W9-5	SP13	2.42 ± 1.70	15.6 ± 0.5	2.80x10 ²	1.80x10 ³	0.156 ± 0.110	0.037 ± 0.005		
ZN1	SP07	0.23 ± 0.01	3.41 ± 0.02	3.08x10 ¹	4.57x10 ²	0.067 ± 0.003	0.022 ± 0.004	0.034 ± 0.005	
SP1-1	SP08	0.25 ± 0.02	13.2 ± 0.5	5.63x10 ¹	2.97x10 ³	0.019 ± 0.002	0.025 ± 0.004		
SP2-4	SP19	0.42 ± 0.02	15.2 ± 0.4	4.94x10 ¹	1.77x10 ³	0.028 ± 0.001	0.047 ± 0.006	0.125 ± 0.012	
N1-1	SP20	1.38 ± 1.76	23.4 ± 0.4	2.00x10 ²	3.38x10 ³	0.059 ± 0.075	0.030 ± 0.005		
N2-2	SP21	0.54 ± 0.03	12.0 ± 0.5	7.22x10 ¹	1.62x10 ³	0.045 ± 0.003	0.024 ± 0.002		
N3-2	SP22	0.22 ± 0.01	16.4 ± 0.4	3.12x10 ¹	2.32x10 ³	0.013 ± 0.001	0.040 ± 0.013		
N4-3	SP24	1.18 ± 0.05	22.2 ± 0.8	1.38x10 ²	2.60x10 ³	0.053 ± 0.003	0.024 ± 0.005		
N5-2	SP25	2.15 ± 0.05	41.6 ± 1.0	2.94x10 ²	5.67x10 ³	0.052 ± 0.002	0.035 ± 0.004	0.077 ± 0.007	
N6-1	SP26	1.02 ± 0.04	15.4 ± 0.4	1.04x10 ²	1.57x10 ³	0.066 ± 0.003	0.043 ± 0.007		

* Sample number of one surface sample (0-10 cm in depth) at each site which showed the highest concentration of (as Bq/kg) of ^{137}Cs .

^b One sigma standard deviation from counting statistics.

^c One standard deviation of replicate measurements (n=6) in final solution taken from one sample.

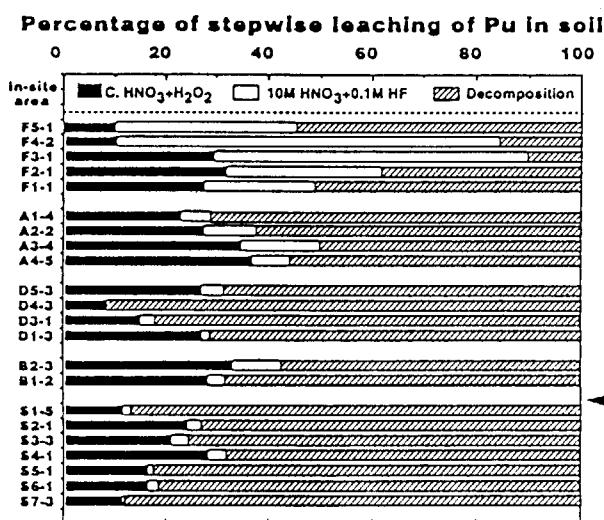
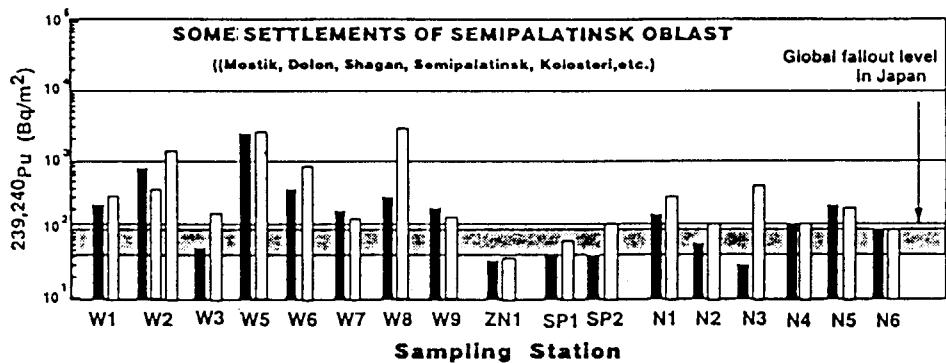
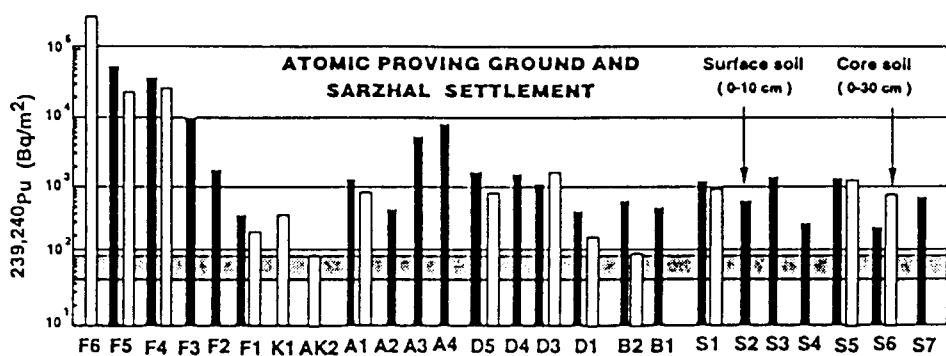
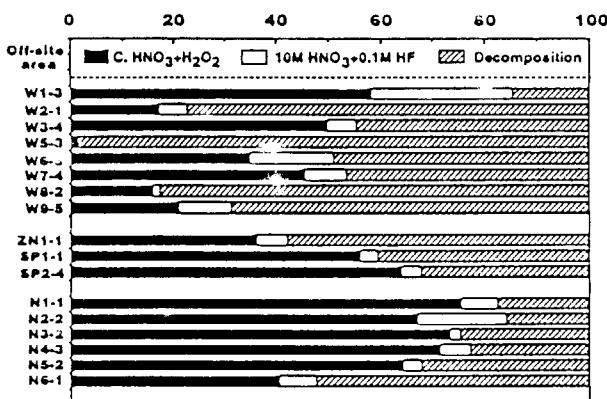
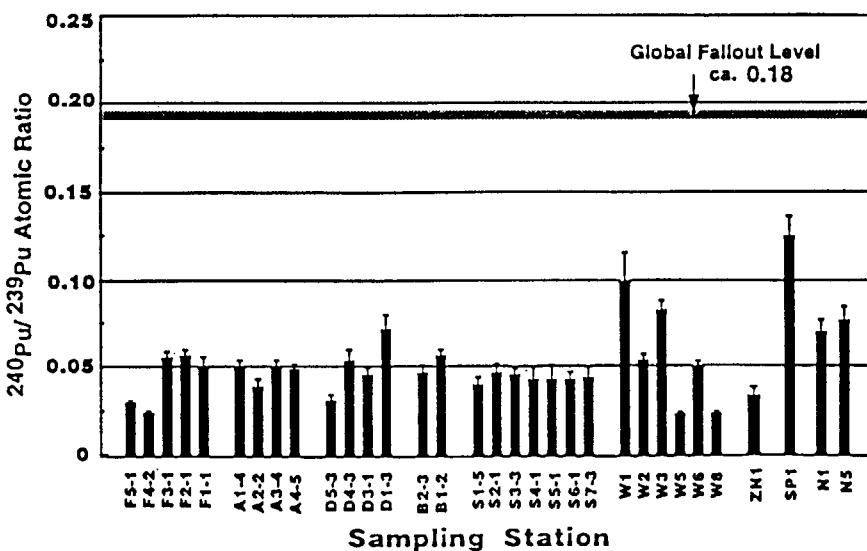


Fig. 4.
Accumulated levels (Bq/m^2)
of $^{239,240}\text{Pu}$ in soil.

Fig. 5.
Stepwise leaching of
 $^{239,240}\text{Pu}$ in soil.



Fig. 6. Atomic ratio of $^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$ in soil around the test siteTable 3. Comparison of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratios in samples from various Pu sources

Sample	Atom ratio $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	Remarks
Ist Exp Site (This work)	0.036 ± 0.001	Surface soil sampled near the hypocenter of the first Soviet nuclear explosion on August 29, 1949
Bolapan (This work)	0.067 ± 0.001	Surface soil sampled around the top of the bank of crater (Shagan River Site) which was formed by the underground nuclear explosion on January 15, 1965
Nevada Test Site soil	0.054–0.063 (Ave. 0.05)	USA: Nuclear Test Site [12]
Rocky Flat Plant	0.051	Weapons-grade Pu fabricated at the Rocky Flat Plant [13]
Bikini soil	0.338 ± 0.051	Bikini Atoll: Thermonuclear atomic bomb (Bravo: March 1, 1954) [11]
Bontenchiku	0.318 ± 0.023	Hemp-palm leaves: Fishing gear used by the Fifth Fukuryo-Maru (Lucky Dragon: March 1, 1954) [11]
Nagasaki soil	0.042 ± 0.014	Nishiyama area in Nagasaki: Pu atomic bomb (August 9, 1945) [11]
Thule sediment	0.058 ± 0.008	Greenland: Weapons-grade Pu due to accidental crash (January 1968) of a B-52 bomber [11]
Irish Sea sediment	0.19–0.22 (Ave. 0.20)	Surface sediment from 24 intertidal sites around Irish Sea: Release of Pu into the Irish Sea from Sellafield Nuclear Fuel Reprocessing Plant, UK [14]
M. Kanmuri soil	0.18 ± 0.03	Surface soil (May 1978); Global fallout Pu [11]

Table 4. Pu isotopic composition in soil from the 1st Exp Site (ground zero) and Balapan

Isotope	Activity (Bq/g)	Activity relative to $^{239}, ^{240}\text{Pu}$	Atom relative to ^{239}Pu
Ist Exp Site			
^{238}Pu	0.404 ± 0.028	0.0145 ± 0.001	$(5.91 \pm 0.44) \times 10^{-3}$
^{239}Pu	24.6 ± 0.8	0.88 ± 0.03	1.0
^{240}Pu	3.35 ± 0.27	0.12 ± 0.01	0.036 ± 0.001
$^{239}, ^{240}\text{Pu}$	27.9 ± 0.4	1.0	
^{241}Pu	4.83 ± 0.14	0.173 ± 0.005	$(1.16 \pm 0.05) \times 10^{-4}$
^{242}Pu	$(7.5 \pm 0.6) \times 10^{-3}$	$(2.7 \pm 0.2) \times 10^{-4}$	$(4.8 \pm 0.4) \times 10^{-5}$
Bolapan			
^{238}Pu	3.96 ± 0.08	0.447 ± 0.006	$(2.01 \pm 0.04) \times 10^{-3}$
^{239}Pu	7.08 ± 0.13	0.80 ± 0.01	1.0
^{240}Pu	1.77 ± 0.05	0.20 ± 0.01	0.067 ± 0.001
$^{239}, ^{240}\text{Pu}$	8.85 ± 0.12	1.0	
^{241}Pu	10.8 ± 0.3	1.22 ± 0.03	$(8.99 \pm 0.26) \times 10^{-4}$
^{242}Pu	$(1.3 \pm 0.2) \times 10^{-4}$	$(1.5 \pm 0.3) \times 10^{-5}$	$(2.9 \pm 0.5) \times 10^{-6}$

All are as of the date of sampling (October 7, 1994 for the 1st Exp Site soil and October 8, 1994 for the Bolapan soil).

Appendix I. Geographical position (by GPS) of sampling site

Site No.	Sampling date	Position (By GPS)	Remarks	No. of surface soil (0-10 cm)*	No. of core soil (0-30 cm)*
F6	Oct. 26	50° 25'47" N 77° 49'24"E	Bare dirt, ca. 1 km SE from GZ**, vegetation cover ca.50%		2
F5	Oct. 26	50° 26'32" N 77° 49'45"E	Bare dirt, ca.1.5 km NE from GZ, vegetation cover ca.50%	4	1
F4	Oct. 26	50° 28'04" N 77° 51'40"E	Bare dirt, ca. 5 km NE from GZ, vegetation cover ca.50%	5	1
F3	Oct. 26	50° 31'27" N 77° 58'17"E	Bare dirt, ca.15 km NE from GZ, vegetation cover ca.50%	3	1
F2	Oct. 26	50° 37'03" N 78° 13'41"E	Bare dirt, ca.36 km NE from GZ km, vegetation cover ca.50%	3	1
F1	Oct. 26	50° 44'01" N 78° 29'48"E	Bare dirt, near gate of main road from Kurchatov headquarters to GZ, ca. 59 km NE from GZ, vegetation cover ca.20%.	3	1
K1	Oct. 26	50° 47'52" N 78° 27'09"E	Kurchatov, ca. 60 km NE from GZ, courtyard of building, vegetation cover 10-20%		1
AK1	Oct. 26	50° 47'59" N 78° 27'40"E	Akzhар (ca. 60 km from GZ), in the middle of town over dirt road, courtyard of a certain house, vegetation cover 10-20%		1
AK2	Oct. 26	50° 47'51" N 78° 27'16"E	Akzhар, edge of town in pasture, vegetation cover 30%		1
A1	Oct. 22	50° 33'50" N 78° 30'19"E	Bare dirt, ca. 50 km E from GZ, vegetation cover ca.50%	5	1
A2	Oct. 22	50° 23'34" N 78° 29'03"E	Bare dirt, ca.20 km S from A1 along road, vegetation cover ca.50%	5	1
A3	Oct. 22	50° 17'06" N 78° 25'24"E	Bare dirt, ca.40 km S from A1 along road, vegetation cover ca.50%	5	1
A4	Oct. 22	50° 06'15" N 78° 41'46"E	Bare dirt, ca.80 km from A1 along road, vegetation cover ca.50%	5	1
D5	Oct. 25	50° 15'56" N 78° 21'43"E	Bare dirt, ca. 45 km from GZ, vegetation cover ca.50%	3	1
D4	Oct. 25	50° 05'53" N 78° 10'20"E	Bare dirt, ca. 45 km from GZ, vegetation cover ca.50%	3	1
D3	Oct. 25	49° 56'56" N 77° 59'34"E	Bare dirt, ca. 55 km S from GZ, vegetation cover ca.50%	3	1
D2	Oct. 25	49° 47'53" N 77° 59'49"E	Mt. Degelen, in coppice, ca. 72 km S from GZ		1
D1	Oct. 25	49° 46'59" N 78° 02'08"E	Mt. Degelen, about 75 km S from GZ, vegetation cover ca. 100%	3	1
B2	Oct. 23	49° 53'54" N 78° 50'53"E	Bare dirt, ca.95 km from GZ, vegetation cover ca. 50%	3	1
B1	Oct. 23	49° 47'16" N 78° 42'22"E	Bare dirt, ca.96 km SE from GZ, vegetation cover ca. 50%	3	1
C1	Oct. 24	49° 42'30" N 78° 41'11"E	In pasture, ca.100 km SE from GZ, vegetation cover ca. 50%		1
S1	Oct. 23	49° 36'05" N 78° 44'21"E	Sarzhal (110-115 km SE from GZ), in th middle of town, by the side of a certain house	5	1
S2	Oct. 23	49° 35'56" N 78° 44'02"E	Sarzhal, in th middle of town, by the side of a certain house	5	
S3	Oct. 23	49° 35'46" N 78° 44'15"E	Sarzhal, in th middle of town, by the gate of a certain house	3	
S4	Oct. 23	49° 35'36" N 78° 44'07"E	Sarzhal, in th middle of town, courtyard of a certain house	3	
S5	Oct. 23	49° 35'30" N 78° 44'12"E	Sarzhal, ca. 0.2 km south of town in pasture (ca.50% cover)	3	1
S6	Oct. 23	49° 36'02" N 78° 45'14"E	Sarzhal, ca. 0.3 km east of town in pasture (ca. 80% cover)	3	2
S7	Oct. 23	49° 36'35" N 78° 44'14"E	Sarzhal, ca. 0.3 km north of town in pasture (ca. 50% cover)	3	

* Area per one soil sample collected =17.34 cm².

** GZ = ground zero (50° 26' 11" N, 77° 48' 39" E) for the first nuclear explosion site where we were escorted.

Site No.	Lab. ID	Sampling date	Position (GPS)	Remarks	Dose rate* (μ Sv/h)	No. of surface soil (0-10 cm)**	No. of core soil (0-30 cm)**
W1	SP04	10/3/96	50° 36'08" N 78° 51'45"E	Izvyestka, near Pechika, sand	0.06	3	1
W2	SP01	10/3/96	50° 42'01" N 79° 07'40"E	Moslik, in forest	0.06	5	2
W3	SP05	10/3/96	50° 36'08" N 79° 12'48"E	Tchagan, near railway station, vegetation cover ca. 0%	0.08	5	1
W4	SP02	10/3/96	50° 39'37" N 79° 19'06"E	Doron, bare dirt near Charch	0.09	5	
W5	SP03	10/3/96	50° 39'40" N 79° 19'27"E	Doron, on side of river in pasture, vegetation cover ca. 50%	0.06	5	1
W6	SP10	9/24/97	50° 44'39" N 79° 18'45"E	In forest, on side of the road connecting Doron and Semipalatinsk City	0.06	5	1
W7	SP11	9/24/97	50° 49'27" N 79° 25'36"E	In forest, on side of the road connecting Doron and Semipalatinsk City	5	1	
W8	SP12	9/24/97	50° 44'28" N 79° 38'31"E	In forest, on side of the road connecting Doron and Semipalatinsk City	5	1	
W9	SP13	9/24/97	50° 38'53" N 79° 53'36"E	In forest, on side of the road connecting Doron and Semipalatinsk City	0.05	5	1
ZN1	SP07	10/3/96	50° 04'23" N. 79° 35'13"E	Znamenka, in the middle of town, courtyard of a certain house		3	1
SP1	SP08	10/3/96	50° 24'30" N 80° 15'35"E	Semipalatinsk City, courtyard of a certain house	0.10	5	1
SP2	SP19	9/24/97	50° 23'02" N 80° 17'01"E	Semipalatinsk City, in field, vegetation cover ca.50%		5	2
N1	SP20	9/24/97	51° 03'04" N 81° 00'24"E	Kolosteri, in pasture, vegetation cover ca.50%	0.07	5	1
N2	SP21	9/24/97	51° 02'05" N 80° 58'57"E	Kolosteri, in pasture, vegetation cover ca.50%		5	1
N3	SP22	9/24/97	50° 43'01" N 80° 56'37"E	In pasture, on side of the road connecting Kolosteri and Semipalatinsk City		5	1
N4	SP24	9/24/97	50° 43'25" N 80° 54'11"E	In forest, on side of the road connecting Kolosteri and Semipalatinsk City		5	1
N5	SP23	9/24/97	50° 38'22" N 80° 34'37"E	In pasture, on side of the road connecting Kolosteri and Semipalatinsk City	0.06	5	1
N6	SP26	9/24/97	50° 28'40" N 80° 17'39"E	In forest, on side of the road connecting Kolosteri and Semipalatinsk City		5	1

*: Exposure dose rate (portable type survey meter, PDR-101: CsI detector, Aloka Co., Ltd, Tokyo) in the air at about 1 m level above ground where soil sample was collected.

**: Area of soil collected (17.34 cm²)

Appendix II. Depth profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs and their activity ratios in soil

Site	Depth (cm)	Concentration		Inventory		Activity ratio	
		$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg dry)	^{137}Cs (Bq/kg dry)	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/m ²)	^{137}Cs (Bq/m ²)	$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
F6	0-5	5017 ± 63	941 ± 4	332268	62311		
	5-10	14.5 ± 0.2	4.86 ± 0.28	1093	366		
	10-20	0.42 ± 0.02	0.70 ± 0.07	50	84		
	Total			3.33x10 ⁴	6.28x10 ⁴	5.31	0.028
F5	0-5	439 ± 7	175 ± 2	27880	11100		
	5-10	6.78 ± 0.21	4.09 ± 0.14	343	207		
	10-20	0.04 ± 0.004	0.30 ± 0.04	5	38		
	20-27	0.01 ± 0.004	n.d.	1			
	Total			2.82x10 ⁴	1.13x10 ⁴	2.49	0.026
F4	0-5	515 ± 10	138 ± 1	30154	8103		
	5-10	3.54 ± 0.14	3.30 ± 0.20	243	227		
	10-20	0.03 ± 0.003	n.d.	5			
	20-25	n.d.	n.d.				
	Total			3.04x10 ⁴	8.33x10 ³	3.65	0.023
F1	0-5	1.79 ± 0.03	12.8 ± 0.4	105	752		
	5-10	1.02 ± 0.06	4.49 ± 0.25	57	252		
	10-20	0.12 ± 0.01	0.42 ± 0.04	21	74		
	20-30	n.d.	n.d.				
	Total			1.84x10 ²	1.08x10 ³	0.17	0.023
K1	0-5	1.02 ± 0.02	20.6 ± 0.7	60	1217		
	5-10	1.23 ± 0.04	22.0 ± 0.7	74	1331		
	10-20	2.20 ± 0.04	17.7 ± 0.5	335	2702		
	20-25	0.05 ± 0.006	n.d.	5			
	Total			4.75x10 ²	5.25x10 ³	0.09	0.032
AK2	0-5	1.78 ± 0.05	15.7 ± 0.4	110	972		
	5-10	0.04 ± 0.004	n.d.	2			
	10-20	n.d.	n.d.				
	Total			1.12x10 ²	9.72x10 ²	0.12	0.035
A1	0-5	9.56 ± 0.08	21.4 ± 0.6	658	1476		
	5-10	4.02 ± 0.04	7.98 ± 0.33	272	540		
	10-20	0.08 ± 0.006	n.d.	13			
	20-30	n.d.	n.d.				
	Total			9.43x10 ²	2.02x10 ³	0.47	0.012
D5	0-5	10.1 ± 0.2	28.6 ± 0.6	673	1914		
	5-10	7.63 ± 0.26	2.80 ± 0.15	515	189		
	10-20	0.04 ± 0.003	n.d.	6			
	Total			1.19x10 ³	2.10x10 ³	0.57	0.020

Appendix II. (Cont'd)

Site	Depth (cm)	Concentration		Inventory		Activity ratio	
		$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg dry)	^{137}Cs (Bq/kg dry)	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/m ³)	^{137}Cs (Bq/m ³)	$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
D3	0-5	31.1 ± 0.6	76.3 ± 2.3	1537	3768		
	5-10	5.25 ± 0.13	6.34 ± 0.43	316	382		
	10-20	n.d.	n.d.				
	Total			1.85×10^3	4.15×10^3	0.45	0.036
D1	0-5	10.3 ± 0.2	177 ± 2	207	3576		
	5-10	0.51 ± 0.05	n.d.	15			
	10-20	0.04 ± 0.003	n.d.	4			
	Total			2.26×10^2	3.58×10^3	0.06	0.026
B2	0-5	2.19 ± 0.06	10.2 ± 0.5	139	643		
	5-10	0.04 ± 0.005	n.d.	1			
	10-20	n.d.	n.d.				
	Total			1.40×10^2	6.43×10^2	0.22	0.026
C1	0-5	14.5 ± 0.2	48.7 ± 0.8	773	2603		
	5-10	1.86 ± 0.06	1.95 ± 0.11	58	60		
	10-20	0.03 ± 0.005	n.d.	5			
	Total			8.36×10^2	2.66×10^3	0.31	0.014
S1	0-5	8.56 ± 0.36	54.8 ± 1.2	419	2683		
	5-10	7.98 ± 0.25	53.2 ± 1.2	474	3157		
	10-20	1.82 ± 0.05	13.4 ± 0.5	220	1619		
	20-30	n.d.	n.d.				
S5	Total			1.11×10^3	7.46×10^3	0.15	0.005
	0-5	25.6 ± 1.0	123 ± 2	1453	6991		
	5-10	5.79 ± 0.28	14.3 ± 0.5	337	834		
	10-20	0.05 ± 0.01	1.69 ± 0.07	8	254		
S6	20-25	n.d.	n.d.				
	Total			1.80×10^3	8.08×10^3	0.22	0.007
	0-5	14.9 ± 0.5	112 ± 2	718	5392		
	5-10	3.74 ± 0.12	26.6 ± 1.0	184	1309		
S6	10-20	0.04 ± 0.01	1.05 ± 0.08	6	148		
	20-28	n.d.	n.d.				
	Total			9.08×10^2	6.85×10^3	0.13	0.013

The error shows one standard deviation of counting statistics.

n.d.: not detected.

Appendix II. (Cont'd)

Site	Depth (cm)	Concentration		Inventory		Activity ratio	
		$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg dry)	^{137}Cs (Bq/kg dry)	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/m ²)	^{137}Cs (Bq/m ²)	$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
W1 (SP04)	0-5	1.15 ± 0.04	18.4 ± 0.7	96.5	1546.2	0.062	
	5-10	0.40 ± 0.03	17.2 ± 0.7	34.0	1453.2	0.023	
	10-15	0.60 ± 0.05	16.7 ± 0.7	42.3	1172.0	0.036	
	15-20	0.68 ± 0.04	16.6 ± 0.5	52.8	1284.6	0.041	
	20-25	0.69 ± 0.04	18.3 ± 0.5	59.3	1585.5	0.037	
	25-30	0.45 ± 0.03	19.2 ± 0.6	37.9	1613.7	0.023	
	Total			3.23×10^2	8.66×10^3	0.037	0.030
W2 (SP01-1)	0-2	6.11 ± 0.20	65.5 ± 1.4	209.3	2243.5	0.093	
	2-7	2.43 ± 0.11	17.8 ± 0.6	163.5	1195.3	0.137	
	7-12	0.034 ± 0.011	n.d.	2.3			
	Total			3.75×10^2	3.44×10^3	0.11	0.019
(SP01-2)	0-5	33.6 ± 1.2	139 ± 2	1329.6	5501.8	0.242	
	5-10	2.93 ± 0.07	5.77 ± 0.35	181.0	356.5	0.508	
	10-15	0.222 ± 0.024	n.d.	13.4			
	Total			1.52×10^3	5.86×10^3	0.26	0.020
W3 (SP05)	0-5	1.11 ± 0.04	21.0 ± 0.6	98.9	1874.9	0.053	
	5-10	0.82 ± 0.03	7.75 ± 0.52	82.4	780.1	0.106	
	10-15	0.044 ± 0.008	0.39 ± 0.08	4.0	35.1	0.113	
	15-20	0.017 ± 0.003	n.d.	1.6			
	Total			1.87×10^2	2.69×10^3	0.069	0.025
W5 (SP03)	0-2	0.62 ± 0.04	4.59 ± 0.3	16.3	120.0	0.136	
	2-7	16.2 ± 0.4	14.1 ± 0.7	1047.5	911.1	1.150	
	7-12	0.19 ± 0.013	2.88 ± 0.2	16.1	251.3	0.064	
	12-17	13.7 ± 0.4	2.42 ± 0.18	1143.2	201.2	5.681	
	17-22	0.024 ± 0.004	n.d.	2.1			
	Total			2.23×10^3	1.48×10^3	1.50	0.039
W6 (SP10)	0-5	14.2 ± 0.3	60.6 ± 0.8	901.2	3838.9	0.235	
	5-10	0.50 ± 0.02	2.64 ± 0.17	35.1	187.4	0.187	
	10-15	0.072 ± 0.012	0.58 ± 0.11	5.9	47.8	0.124	
	15-20	0.045 ± 0.008	n.d.	3.7			
	Total			9.46×10^2	4.07×10^3	0.23	0.023
W7 (SP11)	0-5	2.05 ± 0.07	30.8 ± 1.3	144.2	2160.4	0.067	
	5-10	0.17 ± 0.03	3.16 ± 0.11	13.1	244.0	0.054	
	10-15	n.d.	0.43 ± 0.08		33.4		
	Total			1.57×10^2	2.44×10^3	0.065	0.030
W8 (SP12)	0-5	26.3 ± 0.8	39.3 ± 0.6	1897.2	2830.9	0.670	
	5-10	1.70 ± 0.07	10.0 ± 0.3	133.3	784.9	0.170	
	15-20	0.038 ± 0.005	1.03 ± 0.07	3.0	80.98	0.037	
	20-25	0.021 ± 0.003	0.19 ± 0.05	1.6	14.7	0.110	
	Total			2.04×10^2	3.71×10^3	0.55	0.022

Appendix II. (Cont'd)

Site	Depth (cm)	Concentration		Inventory		Activity ratio	
		$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs	$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs	$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
		(Bq/kg dry)	(Bq/kg dry)	(Bq/m ²)	(Bq/m ²)		
W9 (SP13)	0-5	1.90 ± 0.06	53.5 ± 1.1	133.4	3756.9	0.036	
	5-10	0.12 ± 0.01	1.60 ± 0.28	8.9	119.0	0.075	
	10-15	0.023 ± 0.003	n.d.	1.9			
	Total			1.44x10 ²	3.88x10 ³	0.037	0.038
ZN1 (SP07)	0-5	0.32 ± 0.02	6.02 ± 0.10	22.9	424.6	0.054	
	5-10	0.052 ± 0.006	1.22 ± 0.03	4.2	97.6	0.043	
	10-15	0.036 ± 0.005	0.86 ± 0.04	3.0	71.9	0.042	
	15-20	0.083 ± 0.008	1.08 ± 0.04	6.3	81.3	0.077	
	20-25	0.11 ± 0.01	1.68 ± 0.07	8.4	133.0	0.063	
	25-30	0.061 ± 0.008	1.08 ± 0.07	3.7	65.0	0.056	
SP1 (SP08)	Total			4.83x10 ¹	8.73x10 ²	0.055	0.021
	0-5	0.23 ± 0.02	10.2 ± 0.2	15.3	686.6	0.022	
	5-10	0.32 ± 0.02	7.72 ± 0.31	26.0	622.4	0.042	
	10-15	0.34 ± 0.02	7.12 ± 0.42	25.0	531.3	0.047	
	15-20	0.26 ± 0.02	3.60 ± 0.27	17.1	236.4	0.073	
	20-25	0.03 ± 0.006	0.65 ± 0.06	1.4	31.0	0.046	
	25-30	0.013 ± 0.004	0.35 ± 0.07	0.94	25.3	0.037	
SP2 (SP19-1)	Total			8.58x10 ¹	2.13x10 ³	0.040	0.022
	0-5	0.51 ± 0.04	18.0 ± 0.5	27.6	980.6	0.028	
	5-10	0.33 ± 0.02	4.45 ± 0.09	21.2	289.4	0.073	
	10-15	0.24 ± 0.02	6.71 ± 0.21	14.9	420.0	0.035	
	15-20	0.61 ± 0.03	21.1 ± 0.5	37.2	1286.9	0.029	
	20-30	0.053 ± 0.008	1.14 ± 0.06	7.0	151.9	0.046	
(SP19-2)	Total			1.08x10 ²	3.13x10 ³	0.034	0.026
	0-5	0.48 ± 0.01	16.3 ± 0.3	27.3	928.3	0.029	
	5-10	0.38 ± 0.03	9.15 ± 0.33	23.4	582.0	0.040	
	10-15	0.80 ± 0.02	6.40 ± 0.23	52.0	414.8	0.125	
	15-20	0.31 ± 0.01	6.21 ± 0.20	20.7	411.3	0.050	
	20-25	0.21 ± 0.01	3.74 ± 0.08	13.4	251.7	0.053	
	25-30	0.015 ± 0.003	n.d.	1.1			
N1 (SP20)	Total			1.38x10 ²	2.59x10 ³	0.053	0.031
	0-5	5.83 ± 0.14	67.2 ± 1.1	340.6	3930.0	0.087	
	5-10	0.39 ± 0.02	7.23 ± 0.20	23.0	424.6	0.054	
	10-15	0.034 ± 0.005	1.23 ± 0.07	1.8	66.7	0.027	
	Total			3.65x10 ²	4.42x10 ³	0.083	0.024
N2 (SP21)	N2	0.80 ± 0.03	25.7 ± 0.9	47.4	1587.2	0.030	
	5-10	0.63 ± 0.03	8.12 ± 0.64	42.1	544.0	0.077	
	10-15	0.59 ± 0.03	7.92 ± 0.60	37.9	507.7	0.075	
	15-20	0.22 ± 0.01	3.36 ± 0.29	16.7	251.0	0.067	
	Total			1.44x10 ²	2.89x10 ³	0.050	0.026

Appendix II. (Cont'd)

Site	Depth (cm)	Concentration		Inventory		Activity ratio	
		$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg dry)	^{137}Cs (Bq/kg dry)	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/m ²)	^{137}Cs (Bq/m ²)	$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
N3 (SP22)	0-5	3.36 ± 0.09	60.9 ± 0.9	213.9	3880.2	0.055	
	5-10	2.40 ± 0.06	61.5 ± 1.5	141.9	3633.7	0.039	
	10-15	0.80 ± 0.03	20.1 ± 1.1	51.7	1298.2	0.040	
	15-20	0.086 ± 0.007	3.37 ± 0.33	6.4	249.7	0.026	
	Total			4.13×10^2	9.06×10^3	0.046	0.029
N4 (SP24)	0-5	1.58 ± 0.05	33.6 ± 0.3	109.6	2326.1	0.047	
	5-10	0.096 ± 0.015	0.60 ± 0.06	8.1	50.1	0.161	
	10-15	0.069 ± 0.007	0.41 ± 0.05	5.7	33.3	0.171	
	15-20	0.026 ± 0.005	0.40 ± 0.06	2.1	32.4	0.066	
	Total			1.26×10^2	2.44×10^3	0.051	0.030
N5 (SP25)	0-5	3.28 ± 0.08	49.1 ± 1.0	227.4	3407.2	0.067	
	5-10	0.11 ± 0.01	1.62 ± 0.16	8.3	123.3	0.067	
	10-15	0.01 ± 0.003	n.d.	0.7	30.3	0.024	
	15-20	n.d.	n.d.				
	Total			2.36×10^2	3.56×10^3	0.066	0.026
N6 (SP26)	0-5	2.08 ± 0.06	49.0 ± 1.8	95.2	2238.0	0.043	
	5-10	0.037 ± 0.005	0.60 ± 0.07	2.9	47.0	0.062	
	10-15	0.015 ± 0.007	n.d.	1.1			
	15-20	n.d.	n.d.				
	Total			9.92×10^2	2.29×10^3	0.043	0.034

Error shows one sigma standard deviation from counting statistics.

n.d.: not detected.



JP9950132

JAERI-Conf 99-001

8. The present status and recent applications of the accidental tritium assessment code UFOTRI

W. Raskob *

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
Postfach 3640, D-76021 Karlsruhe, Germany

* D.T.I. Dr. Trippé Ingenieurgesellschaft mbH, Karlsruhe, Germany

Abstract:

The computer program UFOTRI can be used for assessing the impact of accidental released tritium in the two chemical forms tritiated water vapour and tritium gas. By applying UFOTRI to potential European sites for ITER, it could be demonstrated that the main goal, the non-evacuation criteria, is fulfilled for the present release limits. Contributions in international studies together with the re-evaluation of experimental data showed that the plant sub-model as well as the soil sub-model are areas for further improvement.

Keywords: UFOTRI, ITER, SEAPP, tritium, modelling, dose assessment, experiment, comparison study

1. INTRODUCTION

To estimate the spectrum of consequences after accidental releases of tritium from nuclear installations, processes such as dispersion, deposition, reemission, conversion of tritium gas (HT) into tritiated water vapour (HTO) and conversion of HTO into organically bound tritium (OBT), had to be considered time-dependently. To that purpose, an atmospheric dispersion module has been developed which allows for reemission after HT/HTO deposition and which considers all relevant transfer processes in the environment (soil, plant and animal) up to approximately 100 hours after the release event (during which atmospheric transport plays the dominant role). It was coupled to a first order compartment module, which describes dynamically the longer-term behaviour of the two different chemical forms of tritium in the food chains. The physical and mathematical basis of the new model called UFOTRI is described in detail in ^{(1),(2)}.

UFOTRI was applied in the BIOMOVS II (Biological Model Validation Study phase II) study with the aim to test and validate environmental tritium models. Based on the experiences gained within this study and during the applications of UFOTRI, two areas have been identified where model improvement seems to be necessary. This comprises the OBT build up during the night and the reemission of HTO from soil directly after deposition. However, further experimental work seems to be necessary to better understand at least the OBT formation process.

UFOTRI has been widely applied in fusion related safety studies. Among others assessments have been carried out within the SEAPP (Safety and Environmental Aspects of Fusion Power) and in the frame of the ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) project. The SEAPP study described the potential design of future fusion power reactors. Within the ITER programme, probabilistic dose assessments for accidental

atmospheric releases of various ITER source terms which contain tritium and/or activation products were performed for the - at this time - potential European ITER sites Greifswald, Germany, and Cadarache, France.

2. MODEL DESCRIPTION

The present version is based on the Gaussian trajectory model MUSEMET⁽³⁾. The importance of the reemission process necessitates two level modelling of the atmospheric dispersion. Primarily, MUSEMET calculates the dispersion after a single release event and the subsequent deposition on soil and plants. In a second step, the reemission of tritium after deposition from soil (evaporation) and plants (transpiration) is taken into account by an area source model specially developed for that purpose and combined with the original model. Hereby the area source is simulated by a single source point in the centre of the area, with a given initial widening of the plume⁽⁴⁾.

All processes which may modify the total balance of the available HT or HTO such as the conversion of tritium gas into tritiated water (HT into HTO), the transport of tritium into deeper soil layers, the uptake of tritium by the plant root system, and the conversion of HTO into OBT are taken into account in the atmospheric dispersion module, together with the foodchain pathways such as the production of milk, milk products and beef.

2.1 Plant/atmosphere exchange processes

The exchange reaction of the plant with the atmospheric tritium takes place via the water circulation in the leaves. The mechanisms of the plant/atmosphere exchange are described according to 'big leaf' approach^{(5), (6)}. There the aerodynamic, boundary layer and stomata resistance determine the sensible and latent heat fluxes at the earth's surface. To determine the HTO exchange between the atmosphere and the vegetation, the model of Belot⁽⁷⁾ has been used in UFOTRI. There the temperature, the inorganic content of plant matter and the transfer resistances determine the uptake of tritium in the vegetation as well as the loss of tritium from the vegetation.

$$C = X \frac{\alpha}{\rho} (1 - e^{-kt}) \quad (1)$$

with

$$k = \frac{\rho}{\alpha \mu r_G} \quad (2)$$

where C is the tritium concentration in tissue water in pBq g⁻¹, X is the concentration of tritium in air in pBq ml⁻¹, k is the time constant until equilibrium, μ is the water content per unit area of leaf in g cm⁻², r_G is the total resistance in cm s⁻¹, t is the time in s, ρ is the weight of water vapour in saturated air in g ml⁻¹, and α is the H/T isotope ratio (set to 1.1).

The loss from the vegetation can be determined by using the same time constant k:

$$\delta C = C_0 e^{-kt} \quad (3)$$

The dominating factor however, controlling the flux of tritium is the total resistance r_G which can be subdivided into its three components atmospheric resistance r_{av} , boundary layer resistance r_{bv} and stomata resistance r_s :

$$r_G = r_{av} + r_{bv} + r_s \quad (4)$$

The aerodynamic resistance r_{av} characterises the transfer from the free atmosphere to the surroundings of the leaf, whereas the boundary layer resistance r_{bv} describes the mass transfer through the quasi laminar air layer directly connected to the surface⁽⁸⁾:

$$r_{av} = \frac{u(z)}{u_x^2} \quad (5)$$

and

$$r_{bv} = \frac{1}{u_x} B^{-1} \quad (6)$$

where $u(z)$ is the wind speed in m/s in a given height (10m),: u_x is the friction velocity, and B is the Stanton number. Since r_{av} and r_{bv} depend on the atmospheric stability and the surface properties, the commonly used Dyer-Businger equations are used in calculating u_x ⁽⁸⁾.

The stomata resistance r_{st} describes the transfer of tritiated water vapour via the leaf surface into the plant. As this transfer depends on the environmental conditions, correction functions according to⁽⁵⁾ have been introduced:

$$r_{st} = r_{st,min} \left(1 + \frac{c}{I_p} \right) \frac{1}{f_l f_w f_t} \quad (7)$$

with the weighting function humidity $f_l = 1 - b_v \Delta e$,

$$\text{the weighting function for the temperature } f_t = \left(\frac{T - T_e}{T_0 - T_e} \right) \cdot \left(\frac{T_h - T}{T_h - T_0} \right)^{b_t}$$

$$\text{with } B_t = \left(\frac{T_h - T_0}{T_0 - T_e} \right)$$

and the weighting function for soil water content which is a linear function ranging from 1 (if the water content > 5% above wilting point) down to 0.07, if the water content is less than the wilting point. In this set of equations, $r_{st,min}$ is the minimum stomata resistance, Δe is the vapour pressure deficit, b_v is a plant specific constant, T is the actual temperature, T_0 is the optimal temperature for photosynthesis, T_h is the upper limit of photosynthesis and T_e is the lower limit for photosynthesis.

At night, when the stomata are closed, r_s will be replaced by epidermal resistance which is a factor of 15 higher than the minimum stomata resistance.

Because vegetation occurs always as a plant population (fields, forests, etc.), an effective stomata resistance (now canopy resistance r_c) has to be calculated, by dividing the stomata resistance of a single plant by the leaf area index L, which describes the area of all leaves of the vegetation normalised to one square meter.

$$r_c = \frac{r_{st}}{L} \quad (8)$$

UFOTRI considers four different plant species, namely nutriment plants (leafy vegetables, potatoes and winter wheat) and pasture grass.

2.2 Soil/atmosphere exchange processes and transport in soil

The deposition process of HT and HTO to the soil is expressed in the form of a deposition velocity. The HT deposition rate $v_{d,HT}$ depends on the type of soil and on the free pore space in the first soil layer (5 cm).

$$v_{d,HT} = \frac{D_{eff}}{z_{ref}} \quad (9)$$

with

$$D_{eff} = 0.7 \cdot D_0 \cdot \left(\frac{T_a}{273} \right)^{1.75} \cdot \frac{\Theta_s - \Theta}{tort}$$

where D_{eff} is the effective diffusion coefficient, D_0 is the diffusion coefficient of HT in air ($0.634 \text{ E-}04 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$), z_{ref} is the reference depth in m ($r = 23 \text{ mm}$), Θ_s is the maximum water content, Θ is the actual water content and tort is the soil torture factor.

Once deposited, HT is transformed into HTO very quickly as a result of micro-organism activity. Only the transformed part of HT remains in the soil.

The dry deposition rate of HTO to soil $v_{d,HTO}$ is calculated dependent on the status of soil and atmospheric turbulence. It will be expressed as the inverse of the atmospheric- and soil- exchange resistances.

$$v_{d,HTO} = \frac{1}{r_{av} + r_{bv} + r_{soil}} \quad (10)$$

with the soil resistance r_{soil}

$$r_{soil} = \frac{z}{D_{eff}}$$

$\frac{1}{}$

The effective diffusivity D_{eff} can be expressed as:

$$D_{eff} = D_0 \times \left(\frac{T_a}{273} \right)^{1.75} \times \frac{1}{\left(\frac{\Theta_s - \Theta}{\Theta} \right)} \times tort$$

where D_0 is the diffusion coefficient of HTO in water ($0.23 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$). The depth of the dry layer is assumed to be variable and depends on the soil water content:

$$z = \frac{z_0}{\Theta}$$

where z_0 is the initial depth of the dry soil layer (4 mm).

In addition, based on comparison with experimental data, a residual resistance r_{sm} has been added to prevent the appearance of a zero surface resistance⁽⁹⁾. This leads to the following equation for the soil resistance:

$$r_{soil} = \frac{z}{D_{eff}} + r_{sm} \quad (11)$$

The process of wet deposition of HTO to soil is considered in the model as washout from the whole plume. The washout coefficients depend on the intensity of precipitation. They are very small for HT, i.e. wet deposition is neglected.

The reemission processes from soil are modelled by coupling the reemission of HTO to the evaporation of water from soil. There, only the water content in the top five centimetres of soil is taken into account⁽¹⁰⁾. To describe the water flux and thus the coupled flux of tritium, Monteith's bulk resistance formula for the actual transpiration is used⁽⁸⁾.

$$\lambda E_a = \frac{\delta I_a + \varsigma c_p (e_s - e_a) / r_{av}}{\delta + \gamma (1 + r_x / r_{AV})} \quad (12)$$

where λ is the latent heat of evaporation in J kg^{-1} , c_p is the specific heat of air at constant pressure in $\text{J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$, E_a is the actual evapotranspiration, I_a is the incoming solar radiation in W m^{-2} , e_s is the actual saturation vapour pressure of air in N m^{-2} , e_a is the actual vapour pressure of air in N m^{-2} , δ is the gradient of the vapour pressure curve at ambient temperature in $\text{J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$, γ is the psychrometer constant in $\text{J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$, r_{AV} is the sum of the atmospheric and the boundary resistance and r_x is the resistance of the surface.

Derived for vegetated surfaces, it can be also used for the soil by replacing the incoming solar radiation with the fraction reaching the soil $I_{a,s} = I_a \cdot e^{-0.398L}$ and the surface resistance r_x with that of the soil resistance r_s ⁽¹¹⁾. The water vapour flux finally is linked with the specific tritium content in the upper soil to obtain the reemission of HTO.

Even if the reemission of tritium from vegetation is expressed by equation 3, the transpiration of plants has to be taken into account for the replacement of the transpiring plant water by soil water. This uptake of HTO by the plant root system compensates the transpiration loss. Again, Monteith's bulk resistance formula for the actual transpiration is used; now by replacing the incoming solar radiation with the fraction reaching the canopy $I_{a,L} = I_a \cdot (1 - e^{-0.398L})$ and the surface resistance r_x with that of the canopy resistance r_c .

As often used in UFOTRI, the movement of tritium in soil is coupled to the movement of water. The water movement $v_{a,b}$ from layer a to layer b is calculated by using a simplified version of Darcy's law⁽¹²⁾:

$$V_{1,2} = K_{1,2} \cdot \frac{S_1 - S_2}{(\Delta z_1 + \Delta z_2) / 2} - 1 \quad (13)$$

where Δz_1 and Δz_2 are the thickness of layer one and two, respectively, S_1 and S_2 are the pressure head of layer one and layer two, respectively and $K_{1,2}$ is the mean conductivity of the two layers.

To solve the above equation, the hydraulic conductivity K and the pressure head S of the soil have to be calculated.

$$S = 15 \cdot 10^5 \Psi^{a+b\Psi+c\Psi''} \quad (14)$$

with the relative water content of the soil layer $\Psi = \frac{(\Theta_s - \Theta)}{(\Theta_s - \Theta_w)}$

and the conductivity function $K = \frac{\alpha}{S^m + \beta}$ (15)

where Θ_s is the maximum water content, Θ_w is the water content at wilting point, Θ is the actual water content, and a , b , c , n , α , m and β are soil specific constants.

The tritium movement in soil is simply coupled to the water movement. Diffusion of tritium however, is not considered explicitly.

2.3 Exchangeable/non-exchangeable tritium

Plants exposed to a tritium atmosphere contain tritium not only in the plant water (HTO), but tritium atoms are also incorporated in the organic matter of the plant (OBT). A photosynthesis sub model calculates the hourly built-up of organic material. The photosynthesis rate is based on the amount of CO_2 assimilation within a time step. A commonly used approach including respiration can be found in⁽¹³⁾ :

$$P_{pot} = \frac{P_m \cdot \varepsilon H}{P_m + \varepsilon H} - R \quad (16)$$

where P_{pot} is the potential CO_2 assimilation rate in $\text{g CO}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, P_m is the maximum CO_2 assimilation rate in $\text{CO}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, H is the absorbed photosynthetically active radiation in W m^{-2} , ε is the initial light use efficiency in $\text{g CO}_2 \text{ W}^{-1} \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and R is the respiration rate in $\text{g CO}_2 \text{ m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Integrating this equation over the whole canopy which means over the present leaf area index L , the following equation for the total canopy assimilation P_c can be derived:

$$P_c = \frac{P_m}{k} \cdot \ln \left(\frac{P_m \cdot \varepsilon k I_{n0}}{P_m + \varepsilon k I_{abs}} \right) - R \quad (17)$$

with

$$I_{abs} = I_{n0} \cdot k e^{-kL}$$

where: I_{abs} is the radiation flux absorbed by the canopy, I_{n0} is the incoming photosynthetically active radiation, L is the leaf area in m^2/m^2 , ranging from zero to the total leaf area index and k is the extinction coefficient (0.69).

To express P_m , an approach has been adopted⁽¹⁴⁾, taking into account for the dependency on the temperature also.

$$P_m = \frac{0.158 \cdot C_0 \cdot 10^9 \cdot T \cdot \exp\left(-\frac{\Delta H_1}{RT}\right)}{1 + \exp\left(-\frac{\Delta H_2}{RT}\right) \cdot \exp\left(\frac{\Delta S}{R}\right)} \quad (18)$$

where ΔH_1 , ΔH_2 are the activation and denaturation energies for the electron transport, respectively, in cal, C_0 is the value for the formation of organic matter in $mg\ CO_2\ m^{-2}\ h^{-1}$, R is the gas constant in cal/Kelvin per mol, ΔS is the entropy change on denaturation of the electron transport system in cal/Kelvin per mol and T is the air/leaf temperature in Kelvin

The total respiration R can be split up into two fractions.

$$R = C1_p \cdot P_c + C2_m \cdot W_d \quad (19)$$

where $C1_p\ P_c$ is the photorespiration, dependent on the photosynthesis rate, $C2_m\ W_d$ is the maintenance respiration, dependent on the plant weight and $C1_p$ and $C2_m$ are constants.

Applying equations 17 to 19, and taking into account the conversion factor CO_2 to dry matter as well as the weighting functions for the responses of the stomata to the environmental conditions, the actual photosynthesis rate can be expressed as:

$$P_{act} = P_c \cdot COA \cdot 1/f(sr) \quad (20)$$

where COA is the conversion factor CO_2 to dry matter and $f(sr)$ is the weighting function for the stomata opening which is identical to those used for calculating the actual stomata resistance (radiation, temperature, humidity and soil water content).

The specific concentration of the built-up HTO is connected to the actual specific tritium concentration in the water compartment of the plant. Until now the OBT transfer model is only physically based for the hours with solar insolation. During the night it is assumed, that the transfer rate is a quarter of the daily mean.

2.4 Foodchain compartments

For all crops, in particular grass, leafy vegetables, winter wheat and potatoes, the above mentioned dynamic transfer rates are applied starting with the beginning of the release. In addition, in the atmospheric part of UFOTRI, all exchange processes cow/atmosphere, cow/plant and cow/soil, which are important for the ingestion pathways via milk, beef and dairy products, are also considered. The transfer rates are in general the same as for the long term ingestion module of UFOTRI (see below), which were derived on the basis of a constant daily rate, but now converted to an hourly value.

2.5 Long term ingestion module of UFOTRI

In this part of the model, the long term behaviour of tritium in the environment and the assessment of the long term doses of the population from the consumption of tritium contaminated foodstuffs are described. To that purpose, the model calculates the time integrated tritium concentrations in vegetables, meat and milk products. To describe the transport processes mathematically, the areas in the environment where tritium may appear are divided into different compartments. The transfer rates which quantify the transfer processes are averaged values valid for longer periods and calculated by assuming equilibrium conditions. The exchange processes between the individual compartments are treated by first order differential equations which describe linear dependencies of tritium concentrations or concentration differences⁽¹⁵⁾.

3. Areas for model improvements

Within the BIOMASS exercise it was demonstrated that the present tritium models differ mostly in assessing the concentration in the foodstuffs and the reemission of HTO from soil⁽¹⁶⁾. From the recent applications of UFOTRI it was also obvious, that the contamination of the agricultural products may be one of the important tasks in defending the ITER source terms⁽¹⁷⁾. Therefore, experimental work has been carried out at FZK in the years 1995 and 1996 to get a better understanding of the reemission from bare soil and the formation and translocation of OBT in wheat plants.

3.1 Plant experiments

3.1.1 Experimental design

Winter wheat (*Triticum aestivum L.*, cv. Contra) was cultivated on a small field (3m x 3m) in 1995 and 1996 within the area of the Forschungszentrum Karlsruhe (FZK) from sowing in October to harvest in July of the next year. The plants were provided with fertiliser as required and additionally with water in extremely dry periods because the soil (sandy soil) had a low water capacity. Before exposure to HTO, the plot was covered with a layer of Parabraunerde (3-4 cm) which was removed after the exposure. This procedure was necessary to reduce the influence of HTO reemission from soil. The exposure box was made of plexiglas (ground area 30 x 30 cm, height 100 cm). Inside were sensors for temperature and relative humidity and a fan to prevent gradient build-up and to minimise the boundary layer resistance of leaves. All necessary environmental data to operate tritium models were either measured directly at the field or taken from the meteorological tower of the centre.

Winter wheat plants on the experimental field were exposed to HTO vapour between the 12th and the 28th day after the beginning of anthesis which is in the period of grain filling. Experiments were performed at different times of the day under conditions of sunrise, morning, afternoon, sunset and night. At high light intensity (morning and afternoon), the temperature in the box was up to 10°C higher than outside. The difference was very low under conditions of low light intensity and during the night indicating that the influence of the heating unit for vaporisation of HTO was low.

3.1.2 Results

Besides the uptake of tritiated water during daytime and night-time conditions, the formation and translocation of OBT was measured intensively. Detailed records on the OBT formation allowed to compare measurements with model calculations. To evaluate the data, a special model named Plant-OBT was developed for describing all the relevant transfer processes in detail which are both dependent and independent on solar insolation. Especially the consideration of light independent processes was a considerable improvement of the existing tritium models⁽¹⁸⁾. As this work was also aimed to improve the present OBT modelling in UFOTRI, comparison calculations have been performed for both the Plant-OBT and the UFOTRI model. In its newest version UFOTRI is modified in its photosynthesis submodule, in particular the daytime/night-time factor of 1.75 was deleted for the improved photosynthesis option. In addition, a reduction in the OBT production rate was introduced at those times when water stress due to solar insolation occurs. This modified version was applied for the comparison calculations, however, the changes will be made only official, if further experimental data support the revision.

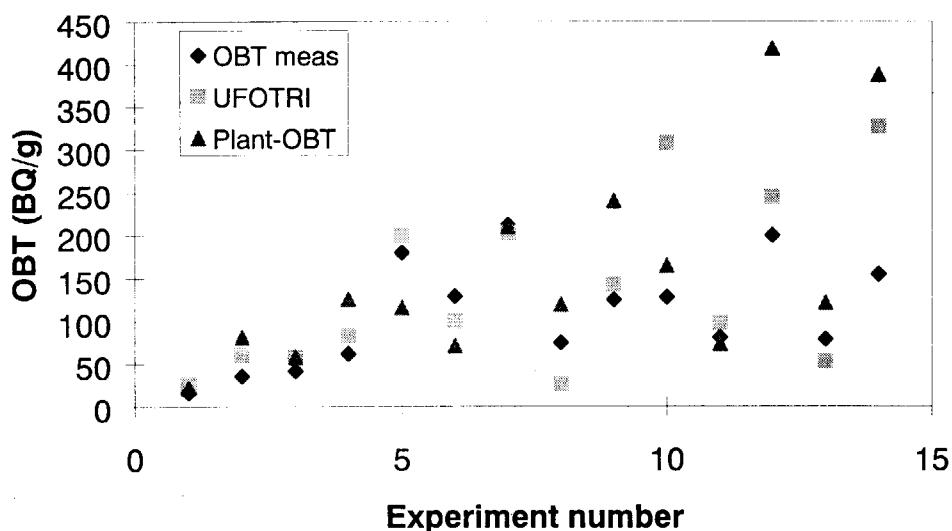


Figure 1: Comparison of the measured and calculated OBT at harvest time

Comparing the measurements with both the Plant-OBT model and UFOTRI it becomes obvious that both computer codes overestimate the OBT formation in most cases. However, the general agreement between model and experiment was within a range of two. Only in few cases, this difference was exceeded. Another effect could not be predicted by both computer programs. Within the measurements, in particular during the night-time, OBT was formed rapidly at exposure time and within the first hour after the end of exposure. In the following hours, however, the OBT formation rate was nearly zero even if the TWT concentration in the plants remained nearly constant. There was no explanation found and the assumption of a linear production rate at night, which simply depends on the specific TWT concentration in the plant, could not be verified. Even if the final OBT results - at harvest time - could be reproduced sufficiently, further work seems to be necessary at least to improve the understanding of the process. Without the understanding, it might be not appropriate to apply the same approach to other nutrient plants.

3.2 Reemission from soil

As described in⁽¹⁹⁾, two HTO deposition/reemission experiments were performed at FZK in 1995 by scientists from the Zentrum für Strahlenschutz und Radiobiologie (ZSR) of Hannover. One took place at 09.00 a.m. (sunrise) whereas the other was conducted at 07.00 p.m. (sunset). After a deposition phase of one hour, the reemission from the bare soil was observed over a period of 12 hours. In both cases, the wind speed was very low and the daytime period can be characterised as a typical mid summer day.

Comparing the measurements with calculations from UFOTRI by using the default parameter values, differences can be easily identified. The high reemission rate in the first hour found in both experiments could not be reproduced by UFOTRI. The further course of the concentration pattern of the sunrise experiment was at least partially covered by the model. At the end of the experiment, the measured and predicted concentration differed by a factor of about 2. This relative good agreement was never reached for the sunset experiment. The initial as well as the following reemission rates were drastically underestimated by UFOTRI. The main reason for this discrepancy seemed to be the steep concentration profile in the top soil which might be not well represented in UFOTRI. This steep concentration profile in the top soil of the HTO is different from that following a deposition of HT-gas⁽²⁰⁾. But most of the data which were used to test the reemission part of UFOTRI were taken from the HT-release experiments.

As described before, the reemission rate from soil is linked to the water vapour evaporation. But as the gradient of tritium and water vapour differ in general shortly after deposition of tritium, scaling parameters were introduced in the tritium reemission formula of UFOTRI.

$$F_{re} = \frac{E_a}{\Theta} \cdot C_1 \exp\left(-\frac{t}{T}\right) + k_b \exp\left(-\frac{t}{T}\right) \quad (21)$$

where F_{re} is the reemission rate per time step, E_a the actual evaporated water per time step, Θ is the actual water content, and C_1 , k_b , and T are scaling constants. K_b is assumed to be constant and determines the reemission rate at night. The time function t/T is introduced to simulate the movement of the tritium into deeper parts of the upper soil layer and the constant C_1 determines the basic relationship between the flux of water and HTO. Changing the basic values ($C_1 = 500$, $k_b = 1$ and $T = 50$) to the new ones ($C_1 = 1200$, $k_b = 23$ and $T = 5$) resulted in a rather good agreement with the observations (see Figure 2). However, the initial high reemission rate can not be fully simulated by the model. Nevertheless, the agreement between the data and the simulations is sufficient to that extent, that further investigations about the dose relevance can be performed.

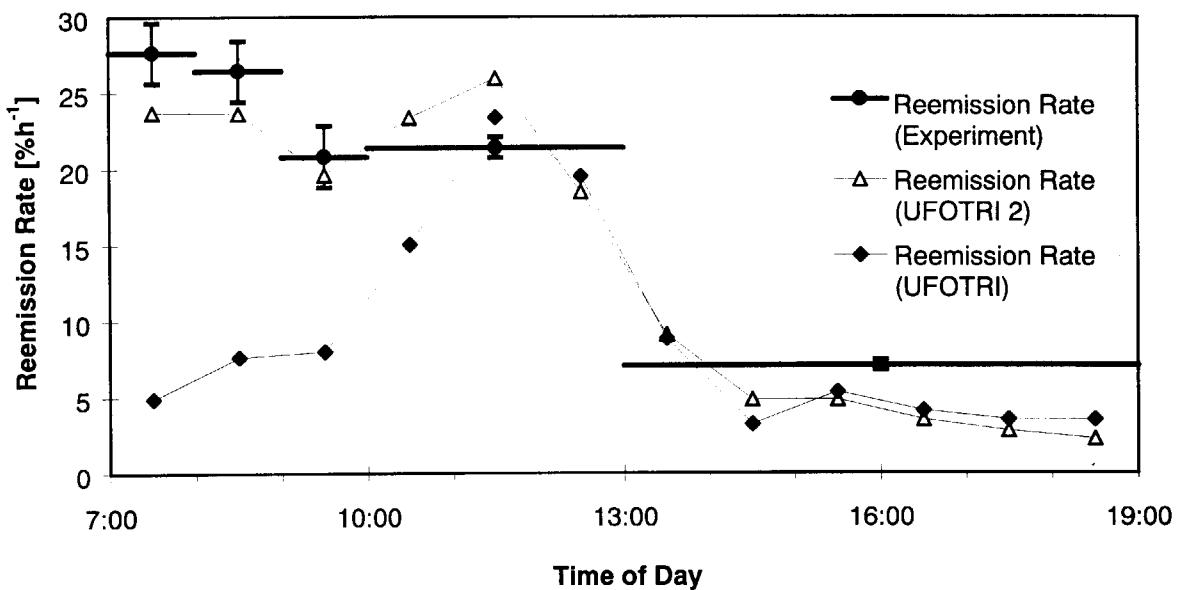
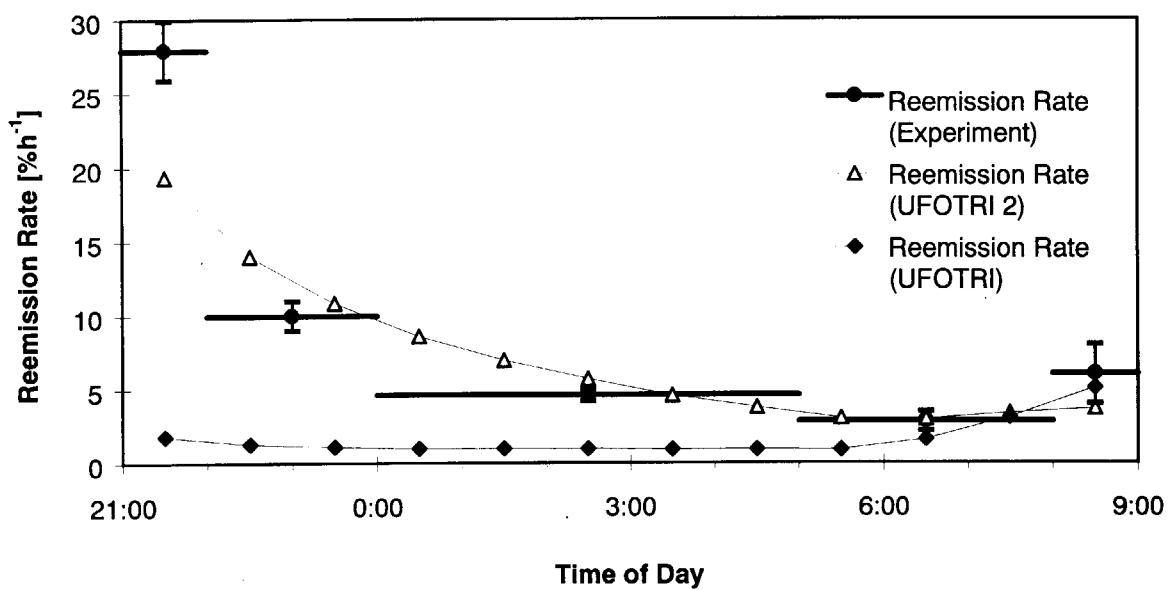
A: Sunrise Experiment**B: Sunset Experiment**

Figure 2: Time courses of reemission rates measured in the field and modelled with the original (UFOTRI) and the modified default values (UFOTRI 2) after 1-hour HTO depositions at sunrise (A) and at sunset (B). Vertical bars indicate the total experimental error (Figure according to Ref. 19)

The question arises now if the reemission pathway is important with respect to the dose. Most of the dose assessments, in particular for licensing purposes, are explicitly directed to the release of HTO only and to obtain the dose for a person who is living close to the fence

at the most contaminated point. As the measured reemission rates are strictly valid only for bare soil, dose assessments by using the new values can be only performed for a dose without the ingestion pathways. However it can be speculated which influence might have the new reemission model also in case of the total dose.

To answer the question if the reemission pathway is important with respect to the dose, the contribution of the resuspension exposure pathway IHR has been investigated by applying the old and the new reemission approach for an accidental release of HTO from a ground level source (10 m release height). The same weather conditions as for the two experiments were used. The wind direction was set to a constant value as no measurements were available for this period. The dose from IH and IHR was calculated for a period of 12 hours exposure. The difference between the old and the new model approach is not very high for the sunrise experiment but much more obvious for the sunset data. One reason for the relative high contribution of the reemission process can be found in the fact that the wind direction was hold constant for the 12 hours.

	old approach		new approach
	IH (%)	IHR (%)	IHR(%)
sunrise	96.7	3.3	94.5
sunset	94.1	5.9	78.9
			21.1

Table 1: Contribution in % to the inhalation dose after 12 hours exposure

When thinking about the transferability of these results to other conditions such as the reemission from vegetated surfaces or after rain, it is necessary to estimate the dose relevance of the reemission process in general. The inhalation dose to the most exposed individual (MEI), however, will be reduced in real assessments due to changing wind directions within the reemission phase. Coming to the ingesting pathways, the contribution to the ingestion dose of that tritium taken up by roots from the soil can be estimated to be about 20% to 30% for the MEI at 1 km distance, assuming an accidental release of HTO near ground level⁽²¹⁾. These numbers were obtained by using the default reemission rates of UFOTRI. When applying the higher ones, and speculating that they are also valid for vegetated surfaces, one can assume, that the root uptake from soil is diminished. Together with a reduced - or at least an equivalent - contribution from the inhalation pathways, the overall dose will be lower due to the lower ingestion dose. However it is not possible in the present stage to quantify the reduction in the contribution from soil and thus in the resulting dose, but it appears to be necessary to investigate this in future. To this purpose, further reemission experiments have been carried out by ZSR to investigate the influence of vegetation cover on the reemission rate. However the evaluation of these experiments is still ongoing.

4. Application

4.1 ITER

4.1.1 Objective of the application

One of the most recent applications of UFOTRI was to perform site independent dose assessments within the ITER programme, to derive the release limits associated with proposed dose limits⁽¹⁷⁾. Since a specific site for ITER has still to be defined, generic calculations have to be compared with site specific ones to complete the environmental data base. To this purpose, probabilistic dose assessments for accidental atmospheric releases of various ITER source terms which contain tritium and/or activation products were performed for the - at this time - potential European ITER sites Greifswald, Germany, and Cadarache, France. No country specific rules were applied and the input parameters were adapted as far as possible to those used within former studies to achieve a better comparability with site independent dose assessments performed in the frame of ITER. The calculations were based on source terms which, at the first time, contain a combination of tritium and activation products. This allowed a better judgement of the contribution to the total dose of the individual fusion relevant materials. The computer program UFOTRI was applied for the tritium fraction whereas calculations for the released activation products were performed with the version NL/95 of the program system COSYMA⁽²²⁾ (subsystem NL), including extended data sets for activation products.

Probabilistic dose assessments, based on hourly meteorological data, have been performed. 144 different weather conditions - together with their probability of occurrence - have been selected therefrom to be representative for the vegetation period of the year under consideration. Mostly potential individual doses and, if appropriate, also the need to initiate protective measures have been investigated for three types of accidents, all of them placed in the event sequence categories IV ('extremely unlikely events') and V ('hypothetical sequences'). For details see Ref. 23, 24 and 17. Source terms of up to 100 g of HTO, 3000 g of HT (both elevated) and of up to 2000 g of activation products (elevated) have been considered for the CAT IV releases. The CAT V scenario comprised more than 4 kg of activation products and 42 g of HTO, both released at ground level.

Two different types of doses have been obtained. The individual early dose results from the first week exposure and a 70 years integration time but without ingestion, whereas the individual EDE is based on a chronic exposure, 70 years integration and includes also the ingestion pathways.

4.1.2 RESULTS

One of the key points for ITER is the non-evacuation criteria. This means that under no release condition evacuation has to be initiated. To this purpose the early dose as defined before should not exceed 50 mSv at the fence of the fusion installation. This value was selected to represent an average value which can be applied within all potential ITER home countries.

The assessments showed that early doses from all CAT-IV release scenarios do not exceed the lower reference level of 50 mSv for evacuation at 1 km distance, when compared with the 95% percentile of the probabilistic calculations. Independent from the selection of Cadarache or Greifswald as site, the new release limits fit with the proposed dose limits.

However, the dose values for Cadarache are slightly higher than for Greifswald. The dust composition steel showed the highest values for both the early dose (13 mSv) and the EDE (910 mSv) when compared to the maximum percentile. The highest early dose for the 95% percentile resulted from HTO releases (5 mSv), followed by steel (1.2 mSv) and the other two dust compositions copper (0.8 mSv) and tungsten (0.5 mSv). The early dose from the other CAT-IV scenarios is lower and reaches only up to 0.7 mSv for the 95% percentile. CAT-V releases, which are stated to be hypothetical, should be compared to the 50% percentile or the mean value of the probabilistic calculations. Early dose values of several mSv at 1 km distance were obtained when looking at the lower percentiles. The dust released as pure steel shows up to 7 mSv for the mean and up to 3 mSv for the 50% percentile of the early dose distribution. Even if recommended to use average weather conditions, a look at the upper percentiles is also interesting. In particular the 50 mSv intervention level for evacuation is almost reached at the site of Cadarache (48 mSv), up to one half of this value is found for Greifswald (26 mSv) when comparing with the 95% percentiles.

At present, release limits to avoid evacuation are key criteria for ITER. However, other protective actions such as sheltering, relocation and food banning may become important in future. None of the source terms caused evacuation beyond the proposed site boundary of 1 km. Also shelter areas were rather small and were only obtained for the CAT-V source term (up to 1.4 km² as maximum). Only banning of agricultural products was found to be important. Dependent on the scenario, banning affects initially areas of several hundreds of square kilometres and can be as large as 10000 km² and more for CAT-IV (up to 11000 km² for the wet bypass) and CAT-V (up to 18000 km²) releases - when considering the 95% percentile of the concentration distribution. Most of these large areas are attributed to tritium and the fact that there exists no special intervention level for food banning for tritium. Therefore, the value of 1250 Bq/kg fresh weight was selected as this value is appropriate for Cs and other long living radionuclides. However, the radiological significance of tritium is much lower than for Cs, thus an overestimation of the ban areas cannot be precluded. It seems to be necessary to evaluate specific ban criteria for the use of tritium. Nevertheless, also when releasing the CAT-IV limits on dust (steel), initial ban areas of several thousands of square kilometres - for Cadarache (up to 2000 km² for the 95% fractile) - have been estimated.

4.2 SEAFP

One of the aims of the SEAFP study was to quantify the environmental impact from future fusion power reactors, in particular to demonstrate its potential in safety and environmental aspects⁽²⁵⁾. Two power plant designs were studied:

1. PM-1, using an advanced vanadium alloy structure, a lithium oxide pebble bed tritium synthesiser and pressurised helium coolant.
2. PM-2, a near-term concept with ferrous structural materials, tritium synthesis in liquid lithium/led, and pressurised water as the primary circuit coolant.

When identifying the potential accident sequences, no active safety countermeasures were considered. Mobilisation of the inventories, their transport to the external environment and finally their consequences to the public were assessed. As for the SEAFP study, the computer systems UFOTRI and COSYMA were applied for tritium and activation products, respectively. Differing from the ITER applications, the definition of the source terms within SEAFP took full credit of the transport and depletion processes inside the power plant. This led to rather small releases into the environment, even if several kilogram of activation

products and up to one kilogram of tritium was mobilised initially. Also the accident sequence lasted up to several weeks which is again in contrast to the one hour duration of the ITER scenarios. A further difference was the selection of only one deterministic weather sequence which was identified as worst case for HTO releases.

The early dose for both concepts are far below the conditions where evacuation should be initiated. In no case, one mSv was exceeded. Also the EDE was found to be rather low, highest values amounted to about 40 mSv. Within all calculation, the advanced plant concept PM-1 showed lower doses than PM-2.

5. Summary

The UFOTRI is widely accepted in fusion related studies as a reference tool for assessing the impact of accidental released tritium. By coupling it to the European assessment system COSYMA it was possible to perform dose assessments for combined releases of tritium and activation products. By applying these tools to potential European sites for ITER, it could be demonstrated that the main goal, the non-evacuation criteria, is fulfilled also for specific sites in Europe. However the banning of agricultural products was identified as one potential countermeasure which might be initiated after a major fusion accident. However there exists no specific ban criteria for tritium, thus these calculations are of preliminary nature.

The assessment of food countermeasures also highlighted one of the areas where UFOTRI is still under development. Plant exposure experiments performed at FZK together with the development of a specific Plant-OBT model suggest an improved modelling of the formation and translocation of OBT in cereals. In addition, the soil model is under revision and may be also improved in the next version of UFOTRI.

6. References

- 1) Raskob, W., UFOTRI: Program for Assessing the Off-Site Consequences from Accidental Tritium Releases. KfK-report 4605, Kernforschungszentrum Karlsruhe, June 1990
- 2) Raskob, W., UFOTRI: Description of the New Version of the Tritium Model UFOTRI, including user guide. KfK-report 5194, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1994)
- 3) Straka, J., Geiß, H. and Vogt, K.J. Diffusion of Waste Air Puffs and Plumes under Changing Weather Conditions. Contr. Atm. Phys., Vol. 54, pp. 207 - 221 (1981)
- 4) Turner, D.B., Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates. Public Health Service Publication No. 999-AP-26 (1970)
- 5) Jarvis, P.G., The Interpretation of the Variation in Leaf Water Potential and Stomatal Conductance Found in Canopies in the Field. Phil. Trans. R. Soc. London, Vol. B 273, pp. 593-610 (1976)
- 6) Deardorff, J.W., Efficient Prediction of Ground Surface Temperature and Moisture, with Inclusion of Layer of Vegetation. Journal of Geophysical Research, Vol. 93, No. 4, pp. 1889-1903 (1978)
- 7) Belot, Y., Gauthiers, D., Camus, H. and Caput, C., Prediction of the Flux of Tritiated Water from Air to Plant Leaves. Health Physics, Vol. 38, pp. 575-583 (1979)
- 8) Brutsaert, W.H., Evaporation into the Atmosphere. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland (1982)

- 9) Plate, J.(ed.),: WEIHERBACH-PROJEKT: "Prognosemodell für die Gewässerbelastung durch Stofftransport aus einem kleinen ländlichen Einzugsgebiet". Schlußbericht zur 1. Phase des BMFT-Verbundprojektes. Heft 41, Mitteilungen des Instituts für Hydrologie und Wasserwirtschaft (IHW) der Universität Karlsruhe, in German (1992).
- 10) Garland, J. A., The absorption and evaporation of tritiated water vapor by soil and grassland, Water, Air and Soil Pollution. 13, 317 -333 (1980)
- 11) Ritchie, J.T., Model for Predicting Evaporation from a Row Crop with Incomplete Cover, Water Resources Research, Vol. 8, No.5, pp. 1204-1213 (1972)
- 12) Walley, W.J., and Hussein, D.E.D.A., Development and Testing of a General Purpose Soil-Moisture-Plant Model. Hydrological Sciences Journal, Vol. 27, No. 1, pp. 1-17 (1982)
- 13) Sellers P J, Canopy reflectance, photosynthesis and transpiration, Int. J. Remote Sensing 6,1335-1372 (1985)
- 14) Weir, A. H., A winter wheat crop simulation model without water or nutrient limitations. Journal of Agricultural Science, Camb., Vol. 102, pp. 371 - 382 (1982)
- 15) Shaw, P.V., Haywood, S.M., A Dynamic Model for Predicting the Movement of Tritium in the Environment. Radiation Protection Dosimetry, Vol. 16, No.1-2, pp. 59-62 (1986)
- 16) Barry, P.J. (Editor), Tritium in the Food Chain: Intercomparison of model predictions of contamination in soil, crops and beef after a short term exposure due to tritiated water vapour. Technical Report No. 8, Published on Behalf of the BIOMOVS II Steering Committee by the Swedish Radiation Protection Institute, Stockholm, Sweden (1996)
- 17) Raskob, W. and Hasemann, I., Dose Assessment for Greifswald and Cadarache with updated source terms from ITER NSSR-2. Report FZKA-6101, Forschungszentrum Karlsruhe (1998)
- 18) Raskob, W., Diabate, S. and Strack, S., A New Approach for Modelling the Formation and Translocation of Organically Bound Tritium in Accident Consequence Assessment Codes. In: Proc. of the International Symposium on Ionising Radiation: 'Protection of the Natural Environment'. Stockholm, 20.5.96 - 24.5.96, pp.: 400 - 408, 1997
- 19) Täschner, M., Bunnenberg, C. and Raskob, W., Measurements and Modelling of Tritium Reemission Rates After HTO Deposition at Sunrise and at Sunset, Journal of Environmental Radioactivity, Special Issue: Environmental Tritium, Vol. 36, No. 2-3, pp. 219-236, 1997
- 20) Dunstall, T.G. and Ogram, G.L., Diffusion and Biological Oxidation as Component Processing Regulating the Deposition of Tritiated Hydrogen to Soils, Ontario Hydro Research Division, Canada, Report No. 90-235-k (1978)
- 21) Raskob, W. and Barry, P., Importance and Variability in Processes Relevant to Environmental Tritium Dose Assessment Models, Journal of Environmental Radioactivity, Special Issue: Environmental Tritium, Vol. 36, No. 2-3, pp. 237-253 (1997)
- 22) Commission of the European Communities, "COSYMA: A New Program Package for Accident Consequence Assessment. A Joint Report of KfK and NRPB", Commission of the European Communities. Report EUR-13028 EN (1991)
- 23) Piet, S.J., Analysis and Harvesting of NSSR-1 Dose Release Calculations, Internal ITER report: S 81 MD 85 97-01-03 W 0.1 (1997)
- 24) ITER Non-Site Specific Safety Report (NSSR-2), Draft working version, ITER, January 1998
- 25) Raeder, J. et al., Safety and Environmental Aspects of Fusion Power, European Commission Report No. EUR XII-217/95 (1995)

9. 東アジアの酸性物質の長距離輸送評価

市川 陽一, 速水 洋
 (財) 電力中央研究所 大気科学部

電力中央研究所では、1980年代末に東アジアを対象に、大気汚染物質の輸送解析の研究を開始した。大気中で起こる様々な物理、化学現象を簡略化した硫黄酸化物の輸送モデルを作り、当所の酸性沈着観測網のデータをもとに妥当性を検討した。その結果、日本全国21地点のほとんどの地点で乾性沈着量、湿性沈着量とも計算値と観測値はファクター2以内で一致すること、日本の硫黄の年間沈着量について、輸送モデルは観測値の80%以上を予測できることを確認した。さらに、上記のように予測精度を確認した輸送モデルを用い、日本に沈着する硫黄化合物がどこから運ばれてきたかという発生源寄与も見積もった。評価結果は、日本人為起源による寄与が40%，火山の寄与が20%，大陸の寄与が40%であった。最近、内外の多くの機関が同様の研究成果を発表しているが、発生源寄与について、必ずしも同じ様な結果になっていない。そこで、輸送モデルの整合性を評価することが重要な課題になってきた。整合性評価について、当所が関わっている国際的なプロジェクトについて紹介する。

Evaluation of Long-Range Transport of Acidic Substances in East Asia

Yoichi ICHIKAWA and Hiroshi HAYAMI
 Atmospheric Science Department, CRIEPI

At the end of the 1980's, the Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI) began an analysis of the transport of air pollutants in East Asia. A transport model of sulfur oxides, in which various physical and chemical phenomena in the atmosphere were simplified, was developed, and the validity of the model was studied using the data obtained from the acidic deposition monitoring network. The results indicated that the calculated and measured amounts of dry and wet deposition at most of the 21 locations throughout Japan agreed within a factor of 2. Furthermore, the transport model was able to predict the annual amount of sulfur deposition in Japan at 80% or higher of the observed value. Also, using the transport model whose prediction accuracy has been thus confirmed, the source of sulfur compounds deposited in Japan was estimated. The result indicated the contributions from Japanese anthropogenic, volcanic and Asian continental sources to be 40%, 20% and 40%, respectively. Recently, many institutions in both Japan and abroad presented similar research results, but the results do not necessarily agree regarding the source contributions. Under these circumstances, re-evaluation

of the compatibility of various transport models has become necessary. This paper introduces an international project, in which CRIEPI participates, regarding the compatibility of these models.

Keyword: Acid Rain, Acidic Deposition, Long-Range Transport, Model Intercomparison, East Asia

1. はじめに

大気汚染物質の長距離輸送の問題は、既に17世紀の本¹⁾に、イギリスから流れていった煙によってフランスのぶどうが被害を受けて困っているという記述が見られる。このような国境を越える大気汚染、つまり越境大気汚染問題が本格的に議論されたのは、1972年に開催された国連人間環境会議である。欧米の越境大気汚染について、初めは懐疑的な目で見る国もあったが、その後、協力、共同して、大気汚染物質の観測や長距離輸送の評価を行うようになった。そして、欧洲では2度にわたる硫黄削減の議定書締結（1985年、1994年）、窒素酸化物に関する安定化の議定書締結（1988年）および新しい議定書の準備により、北米ではカナダの硫黄削減プログラム（1985年）、アメリカの大気浄化法の改正（1990年）により、大気汚染物質の排出量の抑制、削減が着実に進んでいる。一方、大気汚染物質の排出量が年々増加し、今後、排出量の伸び率が経済成長により一層増すと予測された地域がアジアである。この1、2年にアジア各国を襲った経済危機により、大気汚染物質の排出量の伸びが鈍るという見方ができるが、いずれ景気が回復すればまた増加するだろうし、逆に経済的な悪化が環境設備の導入を遅らせ、排出源対策を阻む可能性がある。また、アジア全体の2/3の二酸化硫黄を排出している中国だけは、いまなお高い国内総生産の成長率を保っている。こうしたことから、アジア地域、特にわが国を中心に考えれば、東アジア地域の大気汚染物質の輸送問題に多くの人が高い関心を示している。

東アジアの広域的な環境問題について、環境庁が提唱した政府間の国際的な取り組みである「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク」が、2000年の正式稼働に向けて、1998年4月から試行稼働を始めた。欧米の例に倣えば、観測と並行して長距離輸送評価が必要になる。輸送評価に関する国際的なプロジェクトは存在するが、まだまだ大学や国立、民間の研究機関が独自に取り組んでいるのが現状といえる。電力中央研究所では、1980年代末に東アジアを対象に大気汚染物質の輸送解析の研究を開始した。大気中で起こる様々な物理、化学現象を簡略化した硫黄酸化物の輸送モデルをつくり、電力中央研究所の酸性沈着観測網のデータをもとにモデルの妥当性を確認した。さらに、大気汚染物質がどこからどこへ運ばれるかという発生源寄与、つまり越境大気汚染の解析も行った。最近、内外の多くの機関が発生源寄与の算定結果を発表しているが、必ずしも同じ様な結果が得られていない。そろそろ輸送モデルの整合性について議論する時期にきている。本報告では、筆者らが進めてきた長距離輸送モデルの開発と当所が係わっている輸送モデルに関する国際的なプロジェクトについて述べる。

2. 長距離輸送モデルの開発と検証

電力中央研究所の長距離輸送モデルは、トラジェクトリー型とトラジェクトリーとオイラーのハイブリッド型である。各モデルの方程式系やパラメータの値、計算に必要な排出量分布は参考

文献^{2), 3)}を見て頂くことにして、ここでは概要を記述する。対象地域は日本、中国、台湾、朝鮮半島、ロシア極東地域で、物質は硫黄を対象とした。トラジェクトリー型モデルは、空気塊の軌跡に沿って物質の発生、変質、除去を考える。モデルで考慮している物理、化学過程は、二酸化硫黄の硫酸イオンへの変質、二酸化硫黄と硫酸イオンの乾性とウォッシュアウトによる除去、雲水への取り込み、雲中の硫酸イオンの降水中への取り込みによる除去である。これらの諸過程が濃度に線形に比例して生じると考えると、大気中の二酸化硫黄と粒子状硫酸イオン濃度、雲中の硫酸イオン濃度の解析解が得られる。濃度は水平方向には正規分布、鉛直方向には一様分布を仮定している。つまり、鉛直方向には一層のモデルである。評価点を含むボックスで物質収支をとることにより、降水中の硫酸イオンの濃度が計算できる。トラジェクトリーは、空間的、時間的に変化する風の場を追跡して求める。領域全体の風の場は、これまで、観測データを客観解析により内挿、外挿して求めてきた。改訂版では、気象庁広域モデル（RSM）や欧州中期天気予報センター（ECMWF）の格子点値（GPV）データが利用できるようになっている。トラジェクトリーは、850hPa 等圧面上を 1 ~ 6 時間ごとに 10 日間追跡される。降水量は、日単位に気象庁気象官署データと世界気象データから得た。

一層のトラジェクトリー型モデルでは、評価点近くに大きな発生源がある場合は、地表濃度を適切に予測できないことがある。地表濃度を精度よく予測するには、モデルに排出量や濃度の鉛直分布を考慮する必要がある。オイラー型モデルは濃度の鉛直分布を予測でき、よい結果をもたらす可能性をもつ。ところが、東アジア全域へのオイラー型モデルの適用は、排煙上昇を考慮した詳細な排出量データを得ることができないなどの理由で難しい。そこで、Fig.1 に示すハイブリッド型モデルを提案した^{3), 4)}。このモデルでは、遠方の発生源から排出される物質はトラジェクトリー型モデルで扱い、評価点の近くの発生源から排出される物質についてだけ、オイラー型モデルを適用している。これは、遠方で排出された物質は、長距離輸送される間によく混合し、鉛直方向に濃度が一様になるという仮定にもとづいている。この仮定は、電力中央研究所が九州北西海域で実施した航空機観測により裏付けされた^{3), 5)}。ハイブリッド型モデルのオイラー部分の物理、化学過程は、輸送、拡散が 3 次元であることを除いて、トラジェクトリー型モデルと同じである。

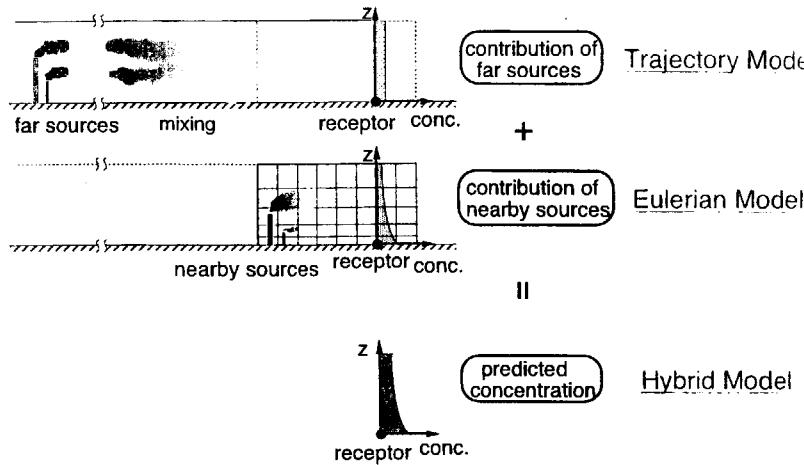


Fig.1 Conceptual schematic of the hybrid model.

人為起源の排出量データは、電力中央研究所が1990年を対象に推定したものである。トラジェクトリー型モデルは約80km 格子の東アジア域データ、ハイブリッド型モデルのオイラー部分は、水平方向、鉛直方向とも3倍密な空間分解能をもつ日本域データを用いる。東アジア全域から排出される二酸化硫黄は年間約2500万tで、そのうちの80%を中国が占める。日本の排出量は約100万tである。日本からは人為起源の他に火山からも二酸化硫黄が排出される。火山からの排出量は1980年代末には年間約150万tであった。計算には火山起源の二酸化硫黄も含めた。

開発した長距離輸送モデルの妥当性を確認するために、電力中央研究所の酸性降下物観測網⁶⁾のデータと比較した。観測地点は北海道常呂町から九州奄美に至る日本全国21地点である。21地点の内訳は、日本を地理的、気候的要因によって分割した地域の代表地点（15地点）、島嶼地点（5地点）、筆者らの研究所がある東京都狛江市である。瀬戸内はほとんどが工業地帯で、その地域を代表する観測地点（高松市）と首都圏に含まれる狛江市以外は、局地的な大気汚染の影響を受けない、長距離輸送の評価にふさわしい場所といえる。

Fig. 2は硫黄の乾性沈着量の年間値について、輸送モデルによる予測と観測を比較した結果である。乾性沈着量は地表濃度に沈着速度を乗じて算定した。●がハイブリッド型モデル、■がトラジェクトリー型モデルの結果で、同一の観測値（観測地点）に対してペアで示されている。図には予測値と観測値が1対1に対応する線とファクター2の線を記載した。両モデルの結果は似ているように見えるが、ハイブリッド型モデルの方が少しある。観測値の最も高い地点は高松市、次に高い地点は狛江市である。狛江市に対して、ハイブリッド型モデルは、トラジェクトリー型モデルの過小評価を大きく改善した。しかし、高松市に対しては、あまり改善が見られない。輸送モデルの比較計算の結果、高松市に対する過小評価はオイラー型モデル（アイオワ大のSTEM-II）や多層のトラジェクトリー型モデル（RAINS-ASIA プロジェクトで用いられているBAT モデル）でも同様であった^{7, 8)}。どのようなモデルを用いてもうまく予測できないということは、長距離輸送モデルの空間分解能（水平方向に10~100km）では考慮できない局所的な気象や汚染源が原因と思われる。Fig. 3は硫黄の年間湿性沈着量の計算値と観測値を比較した結果である。トラジェクトリー型モデル、ハイブリッド型モデルとともに予測精度はよい。

Table 1は長距離輸送モデルで予測した日本に沈着する硫黄の量と観測結果の比較をしている。ハイブリッド型モデルの方がトラジェクトリー型モデルより観測値との一致はよい。硫黄換算の総沈着量は、ハイブリッド型モデルの予測値が43万t/年、観測値が53万t/年で、モデルは観測値の80%以上を予測できた。乾性沈着量は地表近くの濃度に強く依存するが、湿性沈着量は濃度の鉛直分布にあまり影響を受けない。そのため、濃度の鉛直分布を考慮しないトラジェクトリー型モデルと考慮できるハイブリッド型モデルの間であまり差が見られない。

Table 1 Comparison of sulfur depositions predicted by long-range transport models with observations.

(Units are in 10^6 t/y)

	Trajectory model	Hybrid model	Observation
Dry deposition	0.11	0.16	0.21
Wet deposition	0.25	0.27	0.32
Total	0.36	0.43	0.53

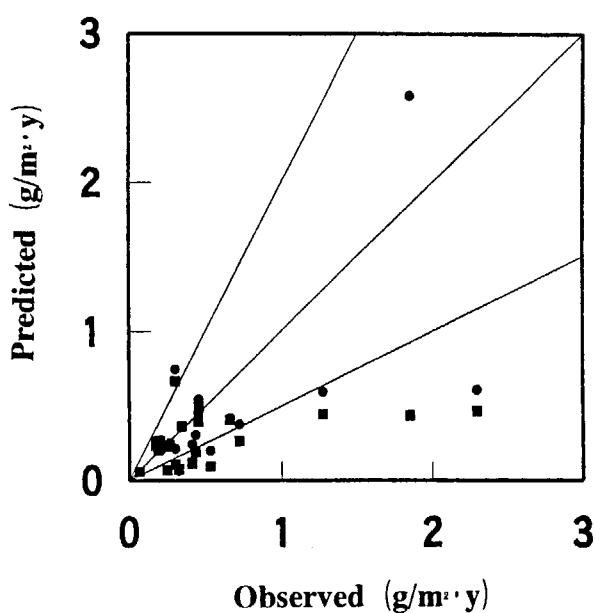


Fig.2 Comparison of dry depositions of sulfur predicted by long-range transport models with observation.
 ●: Hybrid model, ■: Trajectory model

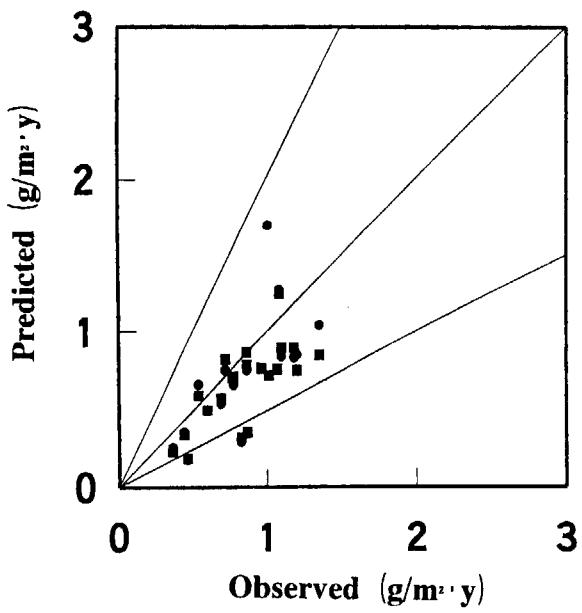


Fig.3 Comparison of wet depositions of sulfur predicted by long-range transport models with observation.
 ●: Hybrid model, ■: Trajectory model

3. 発生源寄与の評価

ある地域で発生した大気汚染物質がどこに沈着するかという発生・沈着の関係は、環境対策を考える上で役に立つ。発生・沈着の関係により、ある地域の酸性沈着量を効率的に減らすには、まず、どの地域の排出量を削減すべきかを知ることができる。欧洲では、発生国・地域と沈着国・地域のマトリクスがごく当たり前に作成され、硫黄酸化物や窒素化合物の発生源対策に貢献している。欧洲のマトリクスの紹介は既報⁹⁾があるので参考にして頂きたい。

さて、アジアで発生・沈着の関係を議論するには、国、人によっては少なからぬ抵抗があるようだ。わが国の雨に含まれる硫酸イオンの起源が1992年に初めて報告された¹⁰⁾ときには、内外からそのような解析の意味を質す声が聞かれた。その後、多くの人が発生・沈着の関係や越境大気汚染の評価をするようになり、少なくとも国内における抵抗感はなくなった気がする。一般に、輸送モデルによる計算だけでなく、酸性降下物の観測や大気汚染物質の衛星画像解析の結果は、大陸から朝鮮半島を経てわが国に至る物質輸送を指摘している。しかし、中国環境科学出版社が発行した「中国酸雨研究」には、吉林省の夏季の酸性雨は大阪方面からの気流に由来し、山東半島や遼東半島も夏季には日本、韓国の影響を受けている¹¹⁾という記事が掲載されている。ここで重要なのは、汚染物質が国境を越えて来る、来ない、行く、行かないを議論するのではなく、如何にすれば環境対策を適切に無駄なく進めることができるかである。そのための発生・沈着の関係評価である。

Table 2はわが国の酸性降下物の発生源寄与を見積もった結果^{3, 12~16)}である。Koreaは朝鮮半島、Othersは台湾、モンゴル、ロシアである。電力中央研究所(CRIEPI)は硫黄の湿性沈着量

Table 2 Comparison of source contributions to acidic deposition in Japan (%).

Organization	Substances	Period	Source					References
			Japan	Volcano	China	Korea	Others	
CRIEPI	S(wet)	1988.10-89.9	29	20	38	13	0	(12)
	S	1988.10-89.9	40	18	25	16	1	(3)
Osaka Pref. Univ.	S	1990	37	28	25	10	0	(13)
	N	1990	76	—	13	11	0	(13)
Yamanashi Univ.	sulfate	1988	47	11	32	10	0	(14)
World Bank	S	1990	38	45	10	7	0	(15)
CAS	S	1989	94		3	2	1	(16)

CRIEPI: Central Research Institute of Electric Power Industry, CAS: Chinese Academy of Sciences

と全沈着量の評価を行っている。湿性と乾性を加えた硫黄の全沈着量に対して、日本人為起源の寄与が約40%，火山の寄与が約20%，大陸の寄与が約40%となっている。湿性沈着量の方が大陸の寄与が高くなっているのは、汚染物質が雨に取り込まれるのに時間がかかり、その分だけ遠くの発生源の影響を受けやすくなるためである。大阪府立大学は窒素（硝酸イオン）について評価している。窒素酸化物は硫黄酸化物より速く酸化し、大気から除去されやすいため輸送距離が短い。窒素の方が硫黄より国内の寄与が高いのはそのためである。山梨大学の評価は硫酸塩に対するものなので、大気中の二酸化硫黄の沈着を考慮すれば国内の寄与は増加する。世界銀行の火山には、他の機関が発生源に含めていないインドネシアやフィリピンの火山が含まれるが、それを考えても高い値になっている。中国科学院（CAS）大気物理研究所の予測結果は、大陸の寄与が5%とかなり低い。Table 2 の他にも豊橋技術科学大学¹⁷⁾ や気象研究所¹⁸⁾ で越境大気汚染の定量的な評価が行われている。

Table 2 からわかるように、わが国に沈着する硫黄のうち大陸から運ばれてくる割合は5%～約40%と予測者によって大きな開きがある。この差は日本から見ると大きいのだが、中国から見るとたいしたことがないのかも知れない。Table 2 から日本に沈着する硫黄のうち中国の寄与は、電力中央研究所の予測が25%，中国科学院の予測が3%である。Table 1 の観測値は日本に年間53万tの硫黄が沈着することを示している。すなわち、電力中央研究所の予測では13万t，中国科学院の予測では約2万tの沈着量になる。これらの値は、中国の二酸化硫黄（硫黄換算）の発生量は1000万t以上（1990年で1100万t，1995年で1500万t）であるから、中国で発生した硫黄の量と比べると1%程度あるいはそれ以下の話になってしまう。韓国の延世大学校経済学部長の申義淳教授は、北東アジアの大気問題に関する多面訓育と協力研究に関するシンポジウムで、世界銀行が予測した発生・沈着の関係と電力中央研究所および中国科学院の結果の違いをとりあげ、「北東アジアにおける酸性沈着を解析する諸モデル間で総沈着量については大きな差は見られないものの、発生・沈着の関係についてはかなりの差が見られる。（中略）研究者の間で差ができる理由を明らかにしなければ、いずれか一方の主張のみを引用してしまう危険性がある。」と述べている¹⁹⁾。これは非常に的を射た指摘である。長距離輸送モデルを開発し、その妥当性を観測データをもとに検証した。ところが、妥当性を確認したモデルを用いて発生・沈着の関係を評価

しても、モデルによって結果が異なる。この原因を確かめるには、これまでのように各研究者が個別に輸送評価をしていたのではだめである。そろそろ、各研究者が協力、共同してモデルの整合性について評価を始めるとよい時期にきている。

4. 輸送モデルの整合性評価プロジェクト

モデルの整合性を評価する第一歩は比較計算をして見ることである。電力中央研究所は、これまで米国のアイオワ大学や台湾電力公司の支援を受けた台湾大学のグループと長距離輸送モデルの比較計算を目的とした共同研究を実施した。アイオワ大学との共同研究は1993年12月～96年3月に実施され、その成果は幾つかの報告書^{5, 8)}にまとめられている。台湾大学のグループとの共同研究は1995年7月～98年6月に実施され、98年12月21日に台北で公開セミナー「東亞地区酸沈降検討会」が開催されて成果を公表することになっている。これらの共同研究で実施したモデルの比較計算により、輸送モデルが一般にどの程度の予測精度をもつか、予測結果に違いが現れる原因は何か、それぞれのモデルで改良すべき点は何かなど、有益な知見が得られた。以下に具体的例をあげる。

- ・長距離輸送モデルは観測値とファクター2程度で一致すれば性能がよいと言える。
- ・局地的な汚染を受けていると思われる観測地点に対しては、どのようなモデルを用いても過小予測になる。
- ・湿性沈着係数や二酸化硫黄から粒子状硫酸塩への変換速度の違いが、発生・沈着の関係評価に差をもたらしている可能性がある。
- ・地点によっては用いる気象データセット（観測データ、格子点値データ、気象モデルの予測結果）の違いが酸性沈着量の予測に影響を与える。
- ・鉛直方向に多層のモデルでは、鉛直方向の乱流拡散を適切に扱わないと地表濃度を過小予測する傾向がある。鉛直分布の計算結果の検討が必要である。
- ・時間、空間的に雲を適切に存在させることにより、予測精度の向上がはかれる。

さらに、電力中央研究所はもう一步踏み込み、1997年10月～2000年3月の予定で、アジアの長距離輸送モデルの整合性を評価することを国際応用システム解析研究所（IIASA）に委託した。IIASAはオーストリア・ラクセンブルグにある非政府、多国籍の独立した科学研究機関である。1998年7月27日と28日にIIASAで「アジアの大気汚染物質の輸送に関する国際ワークショップ」が開催され、輸送解析に関する情報交換の後、モデルの整合性を評価するために必要な作業について議論された。会議録²⁰⁾は1998年末にIIASAから発行される。Fig. 4にワークショップ参加者の写真を示す。参加者は、日本、中国、台湾、韓国、欧米から20人弱であった。このワークショップで合意されたことは、モデルの相互比較計算の必要性である。この結論を受けて、アイオワ大学のCarmichael教授と電力中央研究所の速水が幹事役となって、「Long range transport and deposition of sulfur in Asia A model intercomparison study」のプロジェクトを企画することになった。その案の概要を以下に示す。

- ・輸送モデルの計算は参加者のボランティアで行う。
- ・輸送モデルの優劣を競うのではなく、相互理解が目的である。
- ・気象、排出量、乾性沈着速度に関する共通入力データセットが幹事役から提供される。

- ・当面のタスクは Blind Test, Fixed Parameter Test, Source-Receptor Test, Tuning Test からなる。
- ・Blind Test では共通入力データセットを使って計算を行う。比較対象の観測値は伏せる。
- ・Blind Test は必ず行う。
- ・公式情報とデータセットの提供は、1999年2月にアイオワ大学 Carmichael 教授の Web 上で公示される。
 - ・Blind Test と Fixed Parameter Test は1999年5月1日, Source-Receptor Test と Tuning Test は7月1日までに行う。
 - ・参加者は輸送モデルに関する情報と計算結果を報告する。比較結果は公表するが、モデルはコード番号で示す。
 - ・IIASA は「第2回アジアの大気汚染物質の輸送に関する国際ワークショップ」（1999年夏にオーストリア・ラクセンブルグで開催）を成果発表の場として提供する。

この案内は、北京で1998年11月3日～5日に開催された第6回大気科学と大気質への応用国際会議 ASAAQ と11月6日、7日に開催されたレインズ・アジア Phase-II ワークショップ（世界銀行、アジア開発銀行主催）の席上で紹介された。多くの研究者が案内のパンフレットに目を通し興味を示した。本企画のように、比較計算を国際的に公募することは、酸性物質の輸送の分野では初めての試みである。多くの機関からの参加を期待している。

繰り返しになるが、本プロジェクトの目的はお互いのモデルを理解し、結果に違いが現れる原因を探ることであって、モデルの優劣を競うことではない。実際、それぞれのモデルは、モデル固有の領域、座標系、空間分解能、パラメータ化、排出量や気象データ等の下でなりたっているわけで、比較計算をする場合はそれらの部分的な変更をともなう。公平に優劣を競うことなどできないのである。



Fig. 4 Participants of the workshop on transport of air pollutants in Asia, held at IIASA, in Laxenburg, Austria during July 27-28, 1998.

5. 共有モデルの開発に向けて

長距離輸送モデルを用いて、国・地域間の発生・沈着の関係が評価される。各国はその結果をもとに環境対策に取り組むことになる。アジアの環境対策を合理的、効率的に進めるには、発生・沈着の関係について関係諸国の合意、納得が得られないといけない。そのためには、信頼できる輸送モデルを共有することが重要である。

世界銀行が進める RAINS-ASIA²¹⁾は、アジア地域で輸送モデルの共有化をはかるプロジェクトと言える。もちろん、RAINS-ASIA は、エネルギー消費のシナリオ作成から始まって、硫黄酸化物の排出、輸送、沈着、生態系影響に至る一連の評価を行うモデルで、輸送モデルだけを扱うのではない。本プロジェクトは欧州を対象とした RAINS のアジア版で、1989年にタイのアジア工科大学で開催された「アジアの酸性雨と原因物質に関する国際シンポジウム」に端を発する。フェイズⅠは1992年に始まり1995年に終了したが、現在、1997年12月から1999年7月までの予定でフェイズⅡが進められている。RAINS-ASIA モデルの普及と訓練が、アジア開発銀行の支援により中国、タイ、インドネシア、インドで行われており、その経験をもとにしたモデル改善に関する意見が1998年11月6日、7日に北京で開催されたワークショップで出された。大気輸送については、大規模固定煙源の扱いに融通性をもたせて欲しい、空間的に細かい解像度で狭い領域を扱えるようにして欲しいという要望が出された。これは局地的な大気汚染を意識した発言であって、越境大気汚染の解析ということはあまり考えていないようだ。特に、中国のように広い国では、越境というと省の境を越えるという認識ではないかと思われる。

国連開発計画(UNDP)は1998年4月14日～16日に北京で「北東アジアの越境大気汚染のモデル化に関する専門家会議」を開催した。その中で北東アジア地域で輸送モデルを共有することの可能性について議論があった。この会議の参加者は、国連が委託した欧米の環境、エネルギー関連の国際研究機関専門家と中国、韓国、北朝鮮(欠席)、モンゴル、日本の専門家である。どのようなモデルを開発すべきか、そのためには何をなすべきかいろいろ議論はあったが、具体的な結論はでていない。

このようにアジア地域で長距離輸送モデルを共有しようという動きはないわけではないが、欧州のように一つのモデルで発生・沈着の関係評価を行い、それをもとに排出量削減を決めるにはほど遠い。ここで、共有モデルの開発に向けて注意すべき点を考えてみる。

(1) 誰が開発するか？

既にアジアを対象に多くの輸送モデルが開発されている。筆者は、日本の7機関²⁰⁾、世界の14機関(日本の7機関を含む)⁷⁾のモデルについて、モデルの種類、気象、排出量データ、物理、化学過程、予測内容についてまとめた。中国科学院大気物理研究所の浦博士の資料では、中国の研究者が発表した9つのオイラー型モデルについて、モデル領域、空間分解能、気象場の与え方、気相化学、液相化学、エアロゾルの組み込み、乾性と湿性沈着のモデル化、対象物質を比較している。同様の作業は上述の国連開発計画の専門家会議でも行われた。このようなサマリースタディーをして調べた多くのモデルの中から、一つを選択して用いることはなかなか難しい。人は自分のモデルに執着があるだろうし、それぞれのモデルには長所、短所がある。やはり、新たに開発するのがよいだろう。そして、関係諸国の納得を得るには、その任に国際的な中立機関がつくるのがよいだろう。もちろん、これまでモデル開発に携わってきた専門家の意見を聞くことは大切

である。

(2) どの範囲を対象とするか？

RAINS-ASIA ではアジア全域を対象にしているが、日本から考えれば東アジアで十分である。一つのモデルで内陸や島国、温帯や熱帯といった様々な地域の複雑な気象、地理的特徴を網羅して扱うには無理がある。大気現象の扱いやすさからすれば東アジア程度の領域が適切である。しかし、モデル領域の端の国からすればさらに風上が気になる。例えば、モンゴルはカザフスタンを含めて欲しいと言うかも知れない。モデル化の難しさは別にしてアジア全域を一気に解析するか、もう少し小さな領域に分けて解析するかは、共有モデル開発の参加国・地域によって決まるものだろう。

(3) モデルのレベルはどの程度にするか？

共有モデルは発生・沈着の関係評価に用いることが目的であるから、エピソード解析のように空間、時間的に密な予測をする必要はない。そのため、大気中で起こる物理、化学現象を比較的簡単に扱って、年間の沈着量をある程度の精度で予測できればよいだろう。また、計算に用いる気象データやパラメータ推定に用いる諸データは、日常的に入手可能なものでないといけない。

(4) 検証をどうするか？

沈着量の予測値と発生・沈着の関係についてモデルの妥当性を確認しておく必要がある。沈着量の予測値は対象領域全体をカバーする観測データセットと比較し、それらとファクター2程度で一致すればよいだろう。これまで、国内の観測値との比較によるモデルの検証は行われてきたが、東アジアあるいはアジア全域での検証は十分でない。発生・沈着の関係については、既存の評価と大きな違いが現れるようなら、その原因について検討する必要がある。その際、モデル間の比較計算がいろいろなことを教えてくれる。

(5) 誰が使うか？

モデルの使用者に目的が伝わらないと、発展途上国では、特定煙源や狭い地域の環境影響評価に目が向けられる傾向がある。地域の環境問題にはそれにふさわしい気象、大気拡散モデルを選択すべきで、越境大気汚染の解析と混同してはいけない。共有モデルの管理、運営は国際的な中立機関に任せるのがよい。ただし、その際、共有モデル自身およびその管理、運営には透明性が要求されるだろう。各国の政策決定者や科学者が自由にモデルを使用できる環境は整えておくべきである。そのためには、ソースプログラムの公開や実行を Web 上で行えるようなシステムをあわせて準備する必要がある。

(6) 何が問題になるか？

アジアでは自国内の環境問題がまだまだ重要で、国際的に大気汚染物質の輸送評価をして、環境対策に取り組もうという雰囲気に乏しい。国連や日本政府の努力は認めるが、欧州のレベルに達する道のりは遠い。機が熟すには時間がかかるだろう。輸送モデル自身についても、その開発、維持に莫大な労力がかかる点が心配される。例えば、データの更新である。気象データは比較的日常的に得られるが、排出量データはそういう訳にはいかない。綿密な調査が少なくとも5年ごとに必要になる。窒素化合物の問題もある。硫黄酸化物については、アジア地域でもモデル開発がかなり進んだが、反応系が複雑で様々な物質が絡む窒素化合物についてはこれからだ。さらに、RAINS-ASIA や Sida-SEI (スウェーデン国際開発協力庁とストックホルム研究所)²²⁾ のブ

プロジェクトのように、輸送モデルとエネルギー・排出量予測と生態系影響を結合することも重要なである。

6. おわりに

大気汚染物質の長距離輸送評価は、(1)輸送モデルの開発、(2)輸送モデルの妥当性の確認、(3)発生源寄与の評価、(4)輸送モデルの整合性評価、(5)輸送モデルの共有化、国際的な合意、(6)環境対策への反映といった手順で行われる。アジアでは(4)の段階に入りつつある。本報告では、(1)～(3)について電力中央研究所の輸送モデルの成果を述べた。また、輸送モデルの整合性評価の国際プロジェクトを紹介した。さらに、アジア地域で輸送モデルを共有するにあたって、どういう方向性をとればよいか、どういう点に注意すべきか、筆者が今、考えているところを示した。多くの人の意見を頂きたい。

参考文献

- (1) Evelyn, J.: "Fumifugium: or, The inconvenience of the aer, and smoake of London dissipated. Together with some remedies humbly proposed by J.E. Esq; To His sacred Majestie, and to the parliament now assembled.", Printed by W. Godbid, London (1772, 原作は1661).
- (2) 市川陽一, 藤田慎一, 池田有光: 東アジア地域を対象としたトラジェクトリー型モデルによる硫酸イオンの湿性沈着の解析, 土木学会論文集, 497/II-28, 127-136 (1994).
- (3) Ichikawa, Y., H. Hayami and S. Fujita: A long-range transport model for East Asia to estimate sulfur deposition in Japan, *J. Applied Meteorology*, 37, 1364-1374 (1998).
- (4) Hayami, H. and Y. Ichikawa: Development of hybrid LRT model to estimate sulfur deposition in Japan, *Water, Air, and Soil Pollution*, 85, 2015-2020 (1995).
- (5) 市川陽一, 速水洋: 東アジアを対象とした硫黄酸化物の長距離輸送モデルの評価, 環境衛生工学研究, 12, 5-14 (1998).
- (6) Fujita, S.: Atmospheric concentration and wet deposition in Japan, "Acidic deposition in Japan", CRIEPI Report ET91005, 24-36, CRIEPI (1992).
- (7) 市川陽一: 北東アジアにおける酸性物質の長距離輸送, 水利科学, 242, 51-67 (1988).
- (8) Phadnis, M.J., G.R. Carmichael, Y. Ichikawa and H. Hayami: Evaluation of long-range transport models for acidic deposition in East Asia, *J. Applied Meteorology*, 37, 1127-1142 (1998).
- (9) 市川陽一: 入門講座「酸性物質の長距離輸送」, 大気環境学会誌, 33, A9-A18 (1998).
- (10) 日本経済新聞: 日本の酸性雨どこから来た (1992.11.10).
- (11) 王文興, 張婉華, 周沢興, 吳京澤, 許英録, 南熙国: 図們地区酸雨来源研究, 「中国酸雨研究」, 中国環境科学出版社, 38-45 (1997).
- (12) Ichikawa, Y. and S. Fujita: An analysis of wet deposition of sulfate using a trajectory model for East Asia, *Water, Air, and Soil Pollution*, 85, 1927-1932 (1995).
- (13) 池田有光, 東野晴行: 東アジア地域を対象とした酸性降下物の沈着量推定 (II) - 発生源寄与を中心とした検討-, 大気環境学会誌, 32, 175-186 (1997).

- (14)片谷教孝：日本の酸性降下物に対する大陸発生源の寄与率の推定，第38回大気環境学会年会
講演要旨集，537（1997）。
- (15)Carmichael, G.R. and Arndt, R.L.: Long-range transport and deposition of sulfur in Asia,
"RAINS-ASIA: An assessment model for acid rain in Asia", Report on the World Bank sponsored
project "Acid rain and emission reduction in Asia" (1995).
- (16)Huang, M., Z. Wang, D. He, H. Xu and L. Zhou: Modeling studies on sulfur deposition
and transport in East Asia, *Water, Air, and Soil Pollution*, 85, 1921-1926 (1995).
- (17)Kitada, T. and M. Nishizawa: Modeling study of the long range transport of acidic pollutants
over East Asia and the west Pacific ocean – Sensitivity of acid deposition to scavenging model
parameters and emission source distribution –, *J. Global Environment Engineering*, 4, 1-29 (1
998).
- (18)気象研究所応用気象研究部：硫黄酸化物の長距離輸送モデルと東アジア地域への適用，気象
研究所技術報告第34号，気象研究所（1995）。
- (19)申義淳：Research and regional cooperation for the Northeast Asian acid rain problem, Workshop
and symposium for the multi-disciplinary and cooperative researches on the atmospheric in
North-East Asia, in Korean (1997).
- (20)IIASA: "Proceedings of the workshop on transport of air pollutants in Asia", International Institute
for Applied Systems Analysis (1998).
- (21)Downing, R.J., R. Ramankutty and J. J. Shah: "RAINS-ASIA An assessment model for acid
deposition in Asia", The World Bank (1997).
- (22)Sida and SEI: "Regional air pollution in Asia, Executive summary", Swedish International
Development Cooperation Agency, Stockholm Environment Institute (1998).

10. 広域拡散モデル
 -東アジアの硫黄酸化物の輸送-
 千葉 長 佐藤純次
 気象庁 気象研究所 環境・応用気象研究部

気象研究所では東アジア地域における酸性沈着を評価するために、気象及び輸送の二つのサブモデルから構成される長距離輸送モデルを開発している。輸送の計算に必要な気象場を予測するために、気象庁の現業用数値予報モデルを改良し、必要な気象変数を予測した。輸送サブモデルにはラグランジュ粒子法を採用し、拡散にはランダム・ウォーク法を用いた。また乾性沈着、降水による湿性沈着及び汚染質の変質過程を含んでいる。

1985 年の東アジア地域における硫黄酸化物の輸送過程の数値シミュレーションを実施し、年間の沈着を評価した。本邦における国外の発生源に起因する湿性沈着は約 $0.05\text{gS}/\text{m}^2/\text{年}$ であり、この値は本邦で測定されたサルフェートの湿性沈着量の約 $1/10$ であった。北九州地域の沈着量は韓国、台湾及び中国南東地域から輸送された硫黄酸化物の影響が大きく、一方、新潟における沈着量は中国の発生源からの寄与が大きいことが示された。

Long Range Transport Model
 --- Long Range Transport of Sulfate material over East Asia ----

A long-range transport model has been developed in MRI(Meteorological Research Agency), which is composed two sub system. One is a meteorological forecasting model which is based on the operational model used JMA (Japan Meteorological Agency). Other one is a transport model based on the Lagrangian particle method with random-walk deplacement as a diffusion process. Physical processes in the transport model are dry deposition, below-cloud scavenging and chemical transformation.

A numerical simulation of the transport of surfer oxides in East Asia was done for the case of 1985, then annual deposition over the surface was evaluated. Amount of the wet deposition over Japan from neighboring countories is $0.05\text{gS}/\text{m}^2/\text{year}$, and the dry deposition is $0.02 - 0.17\text{gS}/\text{m}^2/\text{year}$. These values are almost 10 times lower than the value observed in Japan. Therefore, it is inferred that the contribution from foreign emissions is low on the order of several percent.

Kita-Kyushu is influensed from South-Korea, Taiwan and south-easten China. On the other hand, at Niigata dominant source area is China.

Keyword : Long-range transport, Acid rain, Sulfer oxide, wet and dry depositon, scavenging, Lagrangian particle, randum-walk.

1. はじめに

東アジア地域は急速な工業化の進展に伴って膨大なエネルギーが消費されている。年間に24万トンを越える硫黄酸化物が大気中に排出されており、酸性沈着が深刻な問題となりつつある。しかしながら、東アジア地域では酸性雨の国際的な観測網が未だ展開されていないので、越境汚染による酸性沈着量を推測する事は困難であり、現状では数値モデルによってこれを推測する以外に方法がない。

このような背景から本研究の目的は長距離輸送モデルを開発し、これを東アジア地域に適用し、越境汚染による酸性沈着量を推測することである。沈着過程を取り入れた多くの輸送モデルが開発されているが（例えばVenkatram, 1982; Liu と Stewart, 1982; Shin 他 1992）、これらのモデルは観測された気象データを用いたものである。一方、Kimura 他 (1988)は気象庁の全球数値予報モデルを用いて気象を予測し、輸送モデルにより Chernobyl 原子力発電所からの放射性物質の輸送過程を再現している。Rolph et al.(1993)は米国国立気象センターのネスティングした格子モデルを用い、また欧州酸性沈着モデル (EURAD : Molders 他, 1994) は MM4 (メソスケールモデル、バージョン4) により気象場を再現している。

東アジア地域は多くの領域が海洋に占められており、利用可能な観測気象データが無い。この理由により、本研究でも観測気象データの代わりに数値モデルにより気象変数を予測した。

2. モデルの概要

酸性化物質の輸送過程において起こっていると考えられる事象をまとめたものが Fig. 1 に示されている。工場や火山などから排出される SO₂ は大気中において光化学反応を通して SO₄²⁻ となり、また風に乗って流れていく。途中、地表面での吸着によって大気中から除かれる乾性沈着、大気中の雲や雨に取り込まれ大気中から除かれる湿性沈着等によって地面に降下している。

この研究で開発した長距離輸送モデルは二つのサブモデルで構成されており、その内訳は気象場を予測する気象サブモデル及び移流・拡散、沈着及び SO₂ から SO₄²⁻ の変質過程を含んだ輸送サブモデルである。以下に各サブモデルについて概説する。

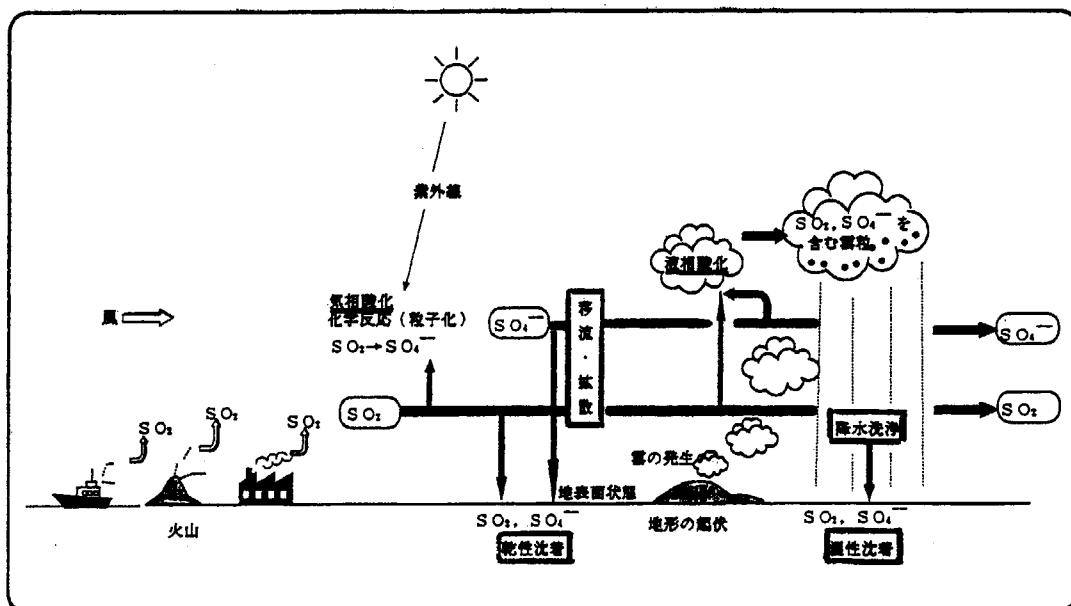


Fig1 Transport processes of SO_x

2.1. 気象サブモデル

気象サブモデルは物質の輸送、除去過程、変質過程の評価を行うために必要な風、温度、雨などの気象要素の時空間的分布を計算するものである。アジア地域を対象としているので限られた領域について計算するモデルとなっている。ここで計算領域は北緯60度の平面上にポーラ

ーステレオ投影された地形に対して東西方向に 73 の格子、南北方向に 55 格子を有している。モデル領域と地形及び鉛直の座標の配置を Fig 2 に示す。

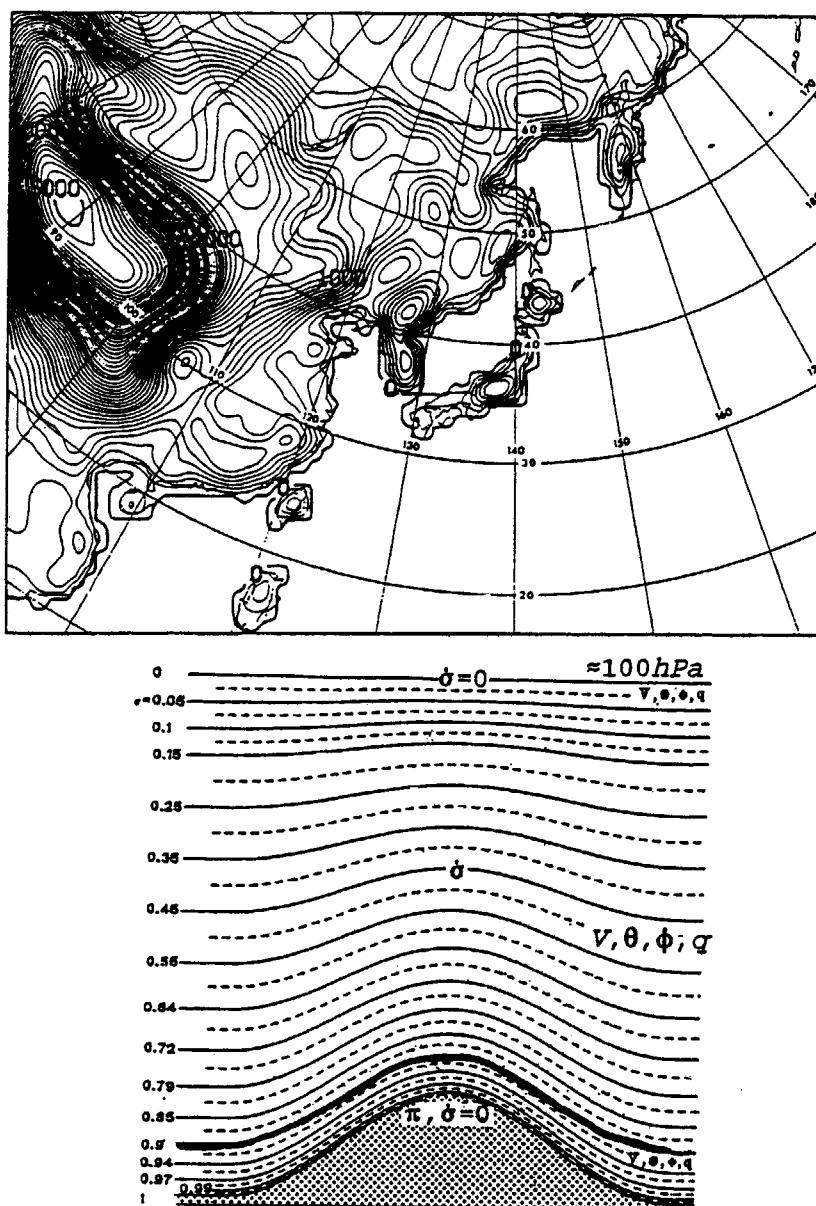


Fig 2 a) Domein of model and Topography
b) Descritization of vertical co-ordinate and array of variables

モデルは運動量、質量、比湿、温度についてのプリミティブ方程式でフラックス形式で表示している。それぞれに対応して、運動方程式、質量保存の方程式、水蒸気の質量保存の方程式、熱力学方程式が与えられている。このほかに水蒸気が凝結する過程、大気と地表面の顯熱、潜熱、運動量の交換過程、太陽放射や、赤外放射に伴う加熱冷却過程、大気乱流による鉛直の輸送過程などが含まれている。気象サブモデルの計算を始めるに当たって必要な初期値と境界値は気象庁の全球客観解析値 (GANL) を用いている。

2.2. 輸送サブモデル

輸送の計算を行う方法には大きく二つの方法がある。一つは物質の大気中における濃度を直

接取り扱う方法で一般にオイラー法と呼ばれている。この方法は複雑な化学反応過程を取り入れやすいという特徴を持っており、オゾンや温室効果ガスなどの輸送、反応計算に用いられている。急激な濃度変化のあるような状況のシミュレーションには不向きなところがあり、また発生源を特定することはできない。一方物質を非常に小さな粒子とみなして空気の運動とともに流す方法があり一般にラグランジュ粒子法と呼ばれている。この方法は物質の発生から現在までの時間的な経路に関する情報をすべて知ることが出来る特徴を持っている。このため、発生源の特定や、特定地点にたいするほかの地点の影響評価等を行う場合に優れた方法である。しかしながら複雑な化学反応の取り入れなどが難しく、また濃度の評価を行うためには相当量の粒子を放出させねばならず計算量が膨大になるなどの欠点を有している(Fig3)。

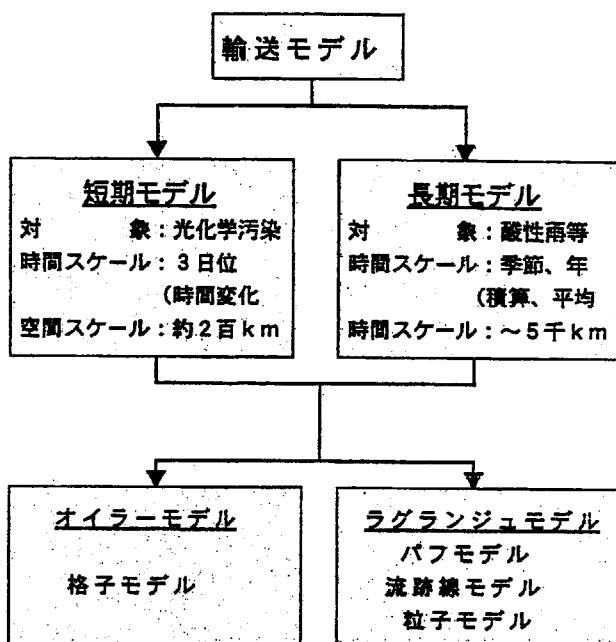


Fig3 Schematic chart of transport model

本研究においては日本において観測される酸性化物質のなかで、近隣諸国起源のものが占める割合の推定を行うことが目標の一つとなっており、ラグランジュ粒子法にもとづいた輸送の開発を行っている。大気中の微少な乱れによる拡散はランダムウォーク法によって行っている。乾性沈着、湿性沈着によって大気中からの除去及び光化学反応による変質の評価を行っているがそれぞれは以下のようになっている。

乾性沈着は粒子の位置が前もって決めた高度、 $H_{dep} = 0.99\sigma$ より低高度にある時一定に沈着速度によって地面に吸着されるとしている。Stewart 他 (1983)は海や湖沼の水面上では $5e-3 \text{ m/s}$ 、都市域では $2e-3 \text{ m/s}$ 、農地、森林牧草地では $2e-3 \text{ m/s}$ としている。一方、Waleck 他(1986)は Wesely 他 (1985)が行った渦相関法によるサルフェートの沈着速度の測定を用いて副境界層と地表面抵抗を推測し、パラメタライズし、 SO_2 、 SO_4 及び NO_3 の乾性沈着速度は地表面状態によって変化することを示した。これらのことから、本研究では SO_2 と SO_4^{2-} の乾性沈着速度は表1に示すように、地面と水面の2種類の地表面状態で変化する単純な仮定をした。

Table 1 Dry deposition velocity used in model

Vd (cm/sec)

Species	Land	Water
SO_2	0.51	0.32
SO_4^{2-}	0.21	0.02

この研究で用いている気象サブモデルでは雲の表現が出来ないので、湿性沈着過程には降水によ

る沈着のみを考慮した。湿性沈着は毎時間計算し、 0.1mm/hour 以上の降水がある場合に降水時間に比例する形で表現した。

降水による湿性沈着率に関しては多くの研究がなされているが（例えば Eliassen, 1982 や Fisher, 1985 など）、しかし、それらの値には $1\text{e-}5/\text{s}$ から $1\text{e-}3/\text{s}$ まで非常に大きな較差がある。したがって、ここでは 0.1mm/h 以上の降水に対して SO_2 については $3\text{e-}5/\text{s}$ 、 SO_4 については $1\text{e-}4/\text{s}$ を仮定した。

化学的変質モデルでは SO_2 から SO_4 への気相酸化反応だけの変質を考慮した。今までに研究された文献によるとこの変換率には大きな較差がある。例えば、Cox (1974) は都市域の煙流中で NO_x と炭化水素の光化学酸化率及びオゾンとオレフィンの熱的酸化率は $0.01\sim 0.1/\text{h}$ であると推測している。Eliassen と Saltbones (1975) は $0.007/\text{h}$ を提唱し、Alkezweeny と Powell (1977) は大気中における航空機観測から $0.1\sim 0.12/\text{h}$ を得ている。このモデルでは $0.01/\text{h}$ を仮定した。Nguyen 他 (1974) によれば南極域や南太平洋等の汚染されていない大気における SO_2 に対する SO_4^{2-} の存在比は SO_2 の供給が無ければ概ね 0.9 であるので、モデルにおける変換の上限を 90% と制限を付けた。

3. モデルの東アジア地域への適用

3.1. 硫黄酸化物の発生源

アフガニスタン及びパキスタンより東のアジア 25 カ国における硫黄酸化物の人为的発生源は 1975、1980、1985 及び 1987 年について燃料消費量を基礎にして計算されており（加藤 他, 1991； Kato と Akimoto, 1992）、中国とインドについては省、州毎に分割されている。さらにこの発生源データは Akimoto と Narita (1992) によって $1^\circ \times 1^\circ$ の格子に変換されている。この研究では加藤 他 (1991) による 1985 年についての硫黄酸化物の発生源データを用い、各国別、省、州別のデータを都市の人口、工業地域の活性度を考慮し、重みを付けて 80 の点源に置き換えた。越境汚染の状況を調べる目的であるため、シミュレーションには日本とデータの無いロシアの発生源を除いた 66 の点源を採用した。火山や他の自然起源の発生源も除いてある。Fig4 は Kato et al. (1991) にもとづいて作成した各地域の Sox の発生量分布である。

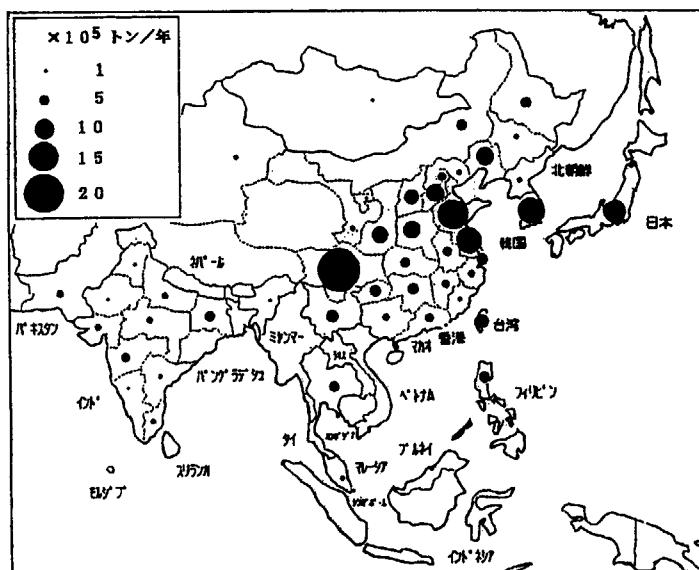


Fig4 Distribution of Sox emission

3.2. シミュレーションとその結果

シミュレーションは 1985 年について 1 年間実施した。わが国の沈着量に及ぼす国外の発生源からの寄与率を調べるために、わが国の発生源は除いた。

シミュレーションの結果と比較する観測データとして環境庁がおこなっている酸性雨調査地点とそれに最も近いモデルの格子点を選び沈着量の評価を行った (Fig 5 参照)。

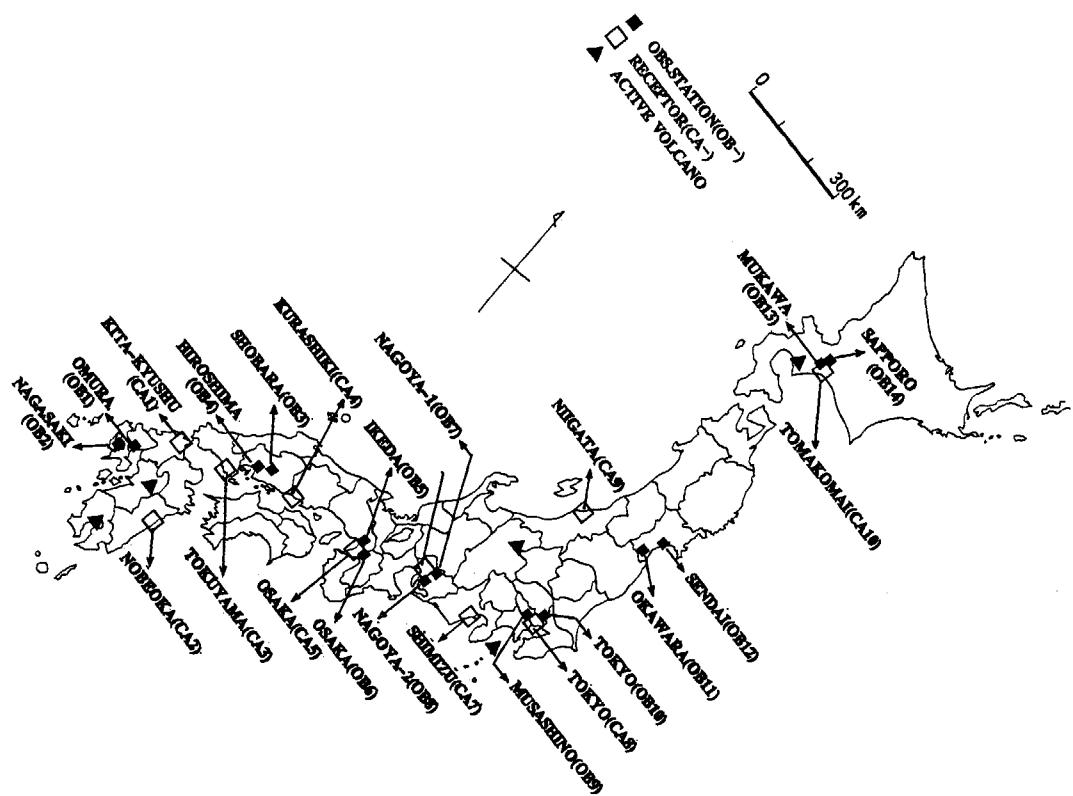


Fig5 Distribution of observation point and selected point of model
OB: observation point , CA: selected point of model.

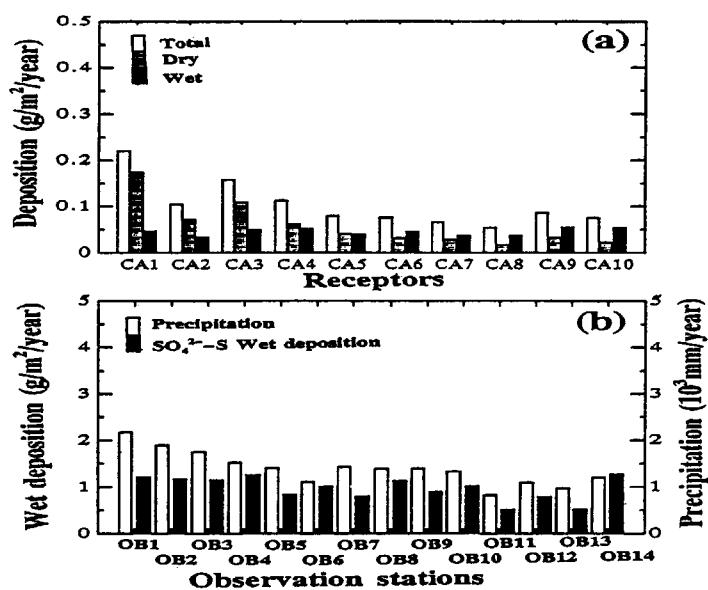


Fig6 Annual deposition amount of (SO₂+SO₄²⁻)
a) model result, b) Observation from April 1085 to March 1986.

実測のSO₄-2の湿性沈着量は7対の14点であり、それぞれ市街地と郊外における測定点が対になっている。計算による硫黄酸化物の乾性及び湿性沈着量を硫黄に換算してFig6(a)に示した。乾性沈着量の年間積算値はわが国の東に位置するリセプターに従い小さくなつて行く傾向が見られるが、湿性沈着量にはこのような傾向は見られない。同様に実測のSO₄-2の湿性沈着量をFig6(b)に示した。

年間の降水量はわが国から東に行くに従い減少しているが、湿性沈着量には乾性沈着量や降水量のような地域に依存するような傾向は見られない。測定点がほぼリセプターと一致しているかまたは近接している大阪、名古屋、東京及び札幌についてSO₄-2の湿性沈着量の計算値と測定値を比較してみると、これらの地域におけるSO₄-2の湿性沈着量の計算値は平均的に約0.05gS/m²/年位であり、地域的な較差は見られない。これに対して実測のSO₄-2の湿性沈着量はおおよそ0.6~1.3gS/m²/年である。もしモデル計算が正しいとすれば両者の差が国内の発生源による寄与として推察される。しかし、モデルには不確定な火山等の自然の発生源は考慮していないが、実測値にはこれらの影響が実際に含まれているので、両者の差が国内の発生源による寄与であると断定することはできない。

ラグランジュモデルは発生源とリセプターの関係を決定するのには有効であり、総沈着量が最も大きい北九州地域における沈着量に寄与している発生源を調べてみたのがFig7である。

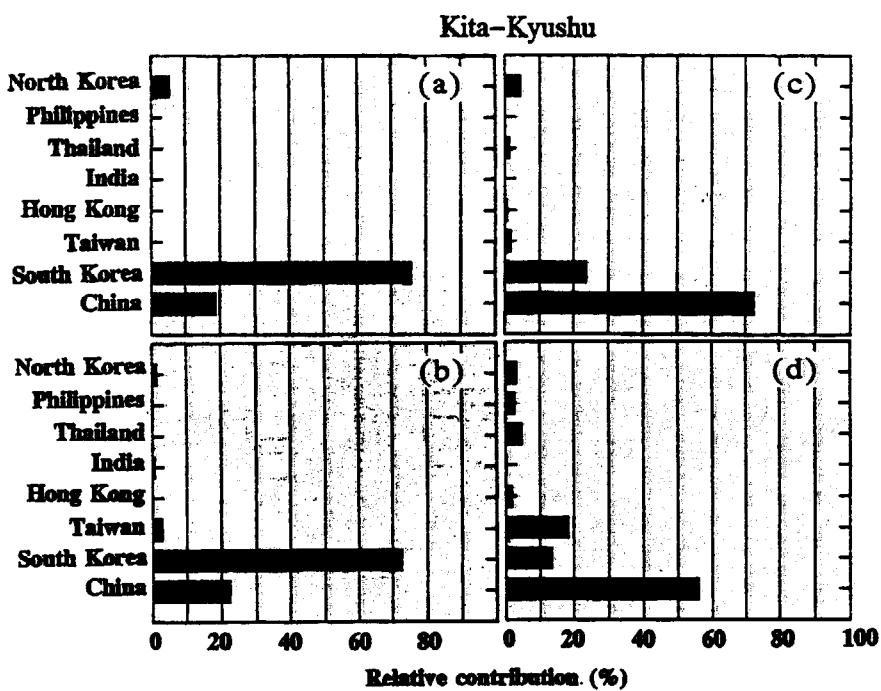


Fig7 Relative contribution of each source region to Kita-Kyushu
 (a) dry deposition in January (c) wet deposition in January
 (b) dry deposition in July (d) wet deposition in July

東アジア地域では冬季と夏季では気圧配置が非常に異なり、冬季には高気圧が東アジア大陸に位置し、強い北西風が卓越する。したがってこのような気象条件では韓国の発生源の寄与が乾性沈着に対して大きい。冬季の湿性沈着についても韓国の釜山や大邱からの寄与が大きい他には中国からの寄与もある。

一方、夏季には強い高気圧が太平洋に位置し、通常は日本では弱い南風が卓越する。しかし、1985年7月の初旬には低気圧がゆっくりと日本海を通り、北西風が続いた。従って乾性沈着に対して

は韓国の釜山や大邱からの寄与が大きい。夏季における湿性沈着に寄与する発生源は釜山、大邱（韓国）、台北、高雄（台湾）、長沙、南京、上海（中国）等である。また、非常に僅かではあるがウタラジット（タイ）の寄与も見られる。

一方、日本の中部に位置し、日本海に面した新潟地域における沈着量に対する各国の発生源からの寄与も調べた。新潟地域の沈着量は冬季に東アジア大陸の発生源に大きく影響される事は容易に想像される。Fig8 は新潟地域における沈着に対する各発生源の寄与率を示したものである。この地域に影響を与える発生源は韓国の影響が大きい北九州の場合とは全く異なり、7月の乾性沈着以外は中国の影響が大きい。7月の乾性沈着には韓国（釜山、大邱、大田）における発生源の影響が大きく、他に台湾（高雄）、中国の南東地域（南京、無錫）からの寄与がある。

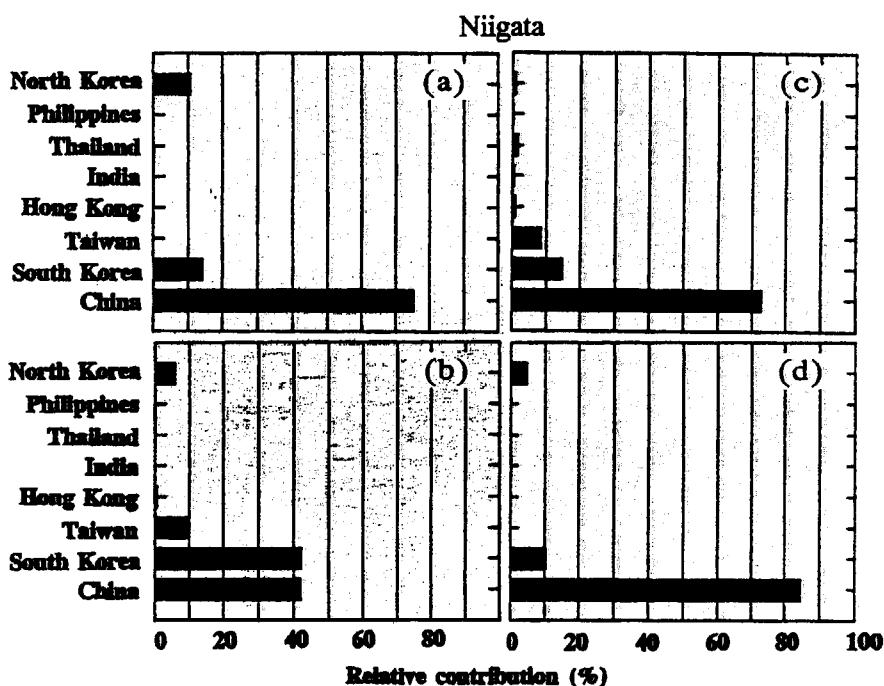


Fig8 Relative contribution of each source region to Niigata

- (a) dry deposition in January (c) wet deposition in January
 (b) dry deposition in July (d) wet deposition in July

4. 結 論

東アジア地域における酸性沈着を評価するための長距離輸送数値モデルを開発し、大陸の発生源からの越境汚染によるわが国に対する影響を調べるシミュレーションを行った。結果は大陸の硫黄酸化物発生源によるわが国への湿性沈着量は約 $0.05\text{gS/m}^2/\text{年}$ であり、乾性沈着量は $0.02 \sim 0.17\text{gS/m}^2/\text{年}$ であった。この値はわが国で測定されたサルフェートの湿性沈着量の $1/10$ 程度の量である。大陸の発生源からの影響が比較的低いことを示している。北九州地域の沈着量には韓国、台湾及び中国の南東地域の発生源が影響を与えており、一方、新潟地域の沈着量には主に中国の発生源が影響していることが分かった。

長距離輸送過程において、大気の運動に伴う移動は物質によって変わることはないとかんがえられる。大気中からの除去過程、地表面からの飛散過程等は物質の大きさ、物理的化学的性質等によって大きく変わることが想定され、このような物理化学的性質を十分に考慮した扱いをしなければ、物質の広域の分布に関する誤った解釈を導きかねない。対象とする物質の性質を正し

くモデル化することが評価の重要な点となる。

謝 辞

この研究は環境庁地球環境研究総合推進費による「東アジア地域の酸性、酸化性物質の動態解明に関する研究」の一部として実施されたものである。

参考文献

- Akimoto, H. and H. Narita, 1994: Distribution of SO₂ NO_x and CO₂ emissions from fuel combustion and industrial activities in Asia with 1° × 1° resolution. *Atmos. Environ.*, 28, 213-225.
- Alkezweeny, A. J. and D. C. Powell, 1977: Estimation of transformation rate of SO₂ to SO₄ from atmospheric concentration data. *Atmos. Environ.*, 11, 179-182.
- Blackadar, A. K., 1962: The vertical distribution of wind and turbulent exchange in a neutral atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 67, 3095-3102.
- Cox, R. A., 1975: Particle formation from homogeneous reactions of sulfur dioxide and nitrogen dioxide. *Tellus*, 26, 235-240.
- Diehl, S. R., D. T. Smith and M. Syder, 1982: Random-walk simulation of gradient-transfer process applies to dispersion of stack emission from coal-fired power plant. *J. Appl. Met.*, 21, 69-83.
- Eliassen, A. and J. Saltbones, 1975: Decay and transformation rates of SO₂, as estimated from emission data, trajectory and measured air concentrations. *Atmos. Environ.*, 9, 425-429.
- Eliassen, A., Φ. Hov, I. S. A. Isaksen, J. Saltbones and F. Stordal, 1982: A Lagrangian long range transport model with atmospheric boundary layer chemistry. *J. Appl. Met.*, 21, 1465-1661.
- Kato, N. Y. Ogawa, T. Koide, T. Sakamoto, S. Sakamoto and Research Group on the Energy Consumption in Asia and global Environment, 1991: Analysis of the structure of energy consumption and the dynamics of emission of atmospheric species related to the global environmental change (SO_x, NO_x, and CO₂) in Asia. NISTEP report No. 21, 4th policy-oriented Research Group, the National Institute of Science and Technology Policy (NISTEP), Science and Technology Agency of Japan.
- Kato, N. and H. Akimoto, 1992: Anthropogenic emissions of SO₂ and NO_x in Asia: Emission inventories. *Atmos. Environ.*, 26A, 2997-3017.
- Kimura, F. and T. Yoshikawa, 1988: Numerical simulation of global scale dispersion of radioactive pollutants from the accident at the Chernobyl nuclear power plant. *J. Met. Soc. Japan*, 66, 489-495.
- Liu, M. K. and D. A. Stewart, 1982: A mathematical model for the analysis of acid deposition. *J. Appl. Met.*, 21, 859-873.
- Louis, J. R., 1979: A parametric model of vertical eddy flux in atmosphere. *Boundary-Layer Met.*, 17, 187-202.
- Mellor G. L. and T. Yamada, 1974: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layer. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1791-1806.
- M*lders, N., H. Hass, H. J. Jakobs, M. Laube and A. Ebel, 1994: Some effects of different cloud parameterization in a mesoscale model and chemistry transport model. *J. Appl. Met.*, 33, 527-545.
- Nguyen, B. C., B. Bonsang and G. Lambert, 1974: The atmospheric concentration of sulfur dioxide and sulfate aerosol over antarctic subantarctic areas and oceans. *Tellus*, 26, 243-249.
- Rolph, G. D., R. R. Draxler and R. G. Pena, 1993: The use of model derived and observed precipitation in long-term sulfur concentration and dispersion modeling. *Atmos. Environ.*, 27A, 2017-2037.
- Shin, Woo-Chul and G. R. Carmichael, 1992: Analysis of wet deposition in the eastern United

States. Atmos. Environ., 26A, 465-484.

Stewart, D. A., R. E. Morris, M. K. Liu and D. Henderson, 1983: Evaluation of an episodic regional transport model for a multi-day sulfate episode. Atmos. Environ., 17, 1457-1473.

Venkatram, A. B., B. E. Ley and S. Y. Wong, 1982: A statistical model to estimate long-term concentration of pollutants associated with long-range transport. Atmos. Environ., 16, 249-257.

Waleck, C. J. R., R. A. Brost and J. S. Chang, 1986: SO₂, sulfate and HNO₃ deposition velocities computed using regional landuse and meteorological data. Atmos. Environ., 20, 949-964.

Wesely, W. L., D. R. Cok and R. L. Hart, 1985: Measurement and parameterization of particulate sulfur dry deposition over grass. J. Geophys. Res., 90, D1, 2131-2143.



11. 大気拡散モデルを用いたラドン濃度変動の解析

坂下哲哉

放射線医学総合研究所 第4研究グループ

村上俊行

新日本製鉄(株)

飯田孝夫、池辺幸正

名古屋大学 工学部

大気拡散モデルを用いてラドン濃度変動の解析を試みた。ラドン散逸場所からの距離と大気中ラドン濃度との関係をモデル計算した結果、一事例ではあるが、日変動への寄与を示さなくなるラドン散逸地点が、観測点から40km前後に位置することが示された。観測値と計算値とを比較した結果、モデルにより、移動性高気圧通過時のラドン濃度変動、および冬季の北西の季節風が吹く時の金沢における濃度変動がよく再現された。また、低気圧によるラドン輸送の推定計算からは、低気圧の気流にともなう北上・東進の様子を捉えることができた。しかし、冬季低気圧通過時の高濃度発生については、モデル計算によりその変動を再現することができなかつた。この不一致には、複数の要因が考えられたため、詳しい今後の解析が望まれる。

Analyses of the Variation of Rn-222 Concentration using the Atmospheric Dispersion Model

Tetsuya Sakashita

The 4th Research Group, National Institute of Radiological Sciences

Toshiyuki Murakami

Nippon Steel Co., Ltd.

Takao Iida, Yukimasa Ikebe

School of Engineering, Nagoya University

Analyses of the variation of ^{222}Rn concentration have been carried out by the atmospheric dispersion model. The relation between the origin of radon and the concentration at the observation point was investigated. As the results, it suggested that ^{222}Rn emanated within 40-kilometer circle around the observation point mainly contributed to diurnal variation at that point. The variation of ^{222}Rn concentration during the passage of migratory high at Nagoya and when a northwesterly seasonal wind was blowing in Kanazawa were simulated relatively well. In addition, the transport of ^{222}Rn by the low-pressure system, which it was moving northward and to the east, was visualized as an imagination. However, the high

concentration during the passage of low-pressure system in winter could not be reproduced by our model. Although the some factors of it were considered, it needs to investigate the more detail analyses in the future.

Keyword: Origin of ^{222}Rn , Transport of ^{222}Rn , High- and low-pressure, seasonal wind, diurnal variation

1. 緒言

1988年の UNSCEAR 1988 report¹⁾において、自然放射線により被曝する線量の約半分が ^{222}Rn (以下ラドン)、 ^{220}Rn (トロン)、及びその娘核種の吸入によりもたらされることが報告された。以来、ラドンが重要な被ばく源として保健物理の研究者に対してよく知られている。しかし、ラドンは、大気の動きを知るためのトレーサとして気象分野の研究者にもよく知られた天然放射性核種である。初期においては、低層大気中での大気の鉛直混合を明らかにするためのトレーサとして注目された²⁾。また、観測値と流跡線解析とから、陸地起源の空気塊について、その輸送過程の解析にもラドンが適用された³⁾。最近では、大気の大循環モデルの指標トレーサとして再び気象分野の研究者の注目を集めている^{4) 5)}。

しかし、ラドンが陸地を中心として至るところから散逸しているため、観測値を構成しているラドンの起源を確定することは難しい。また、上空における低濃度のラドンを測定することにも、航空機を利用する点や高精度な測定器の必要性などの点から実用上の問題を抱えている。こうした理由から、現在でもラドンの動態を完全に把握できたとはいえない状況にある。すなわち、トレーサとして不利な点が存在する。そのため、モデル計算によるラドン濃度変動の解析を行いラドン動態をさらに把握していくことが重要である。そこで、本研究では、大気拡散モデルを用いてラドン濃度変動を再現し、その結果からラドンの動態を探ることを試みる。

酸性雨やチェルノブイリ事故¹⁾、さらにインドネシアの森林火災を通して、国境を越えた汚染が問題視されるようになった。この問題の解決のためには、放出源を無くすだけでなく、放出による影響評価を実施することが重要である。この影響評価のために、大気拡散モデルがしばしば適用されることが予想できるが、このモデルの検証にラドンが適用され、モデルの発展に資することが期待される。そのためにも、ラドンの動態を把握しておく必要がある。

2章では、用いた大気拡散モデルについて概説する。3章1節では、ラドン散逸場所からの距離と大気中ラドン濃度との関係を、3章2節では観測値と計算値との比較に関して4事例について述べ、4章で結論と今後の課題についてまとめる。

2. 計算モデル

2. 1 計算領域

地表付近における大気中ラドンの濃度変動を再現するために、計算領域として局地域と広域との2計算領域を用いる。局地域計算の領域では、地表付近の大気安定状態の日変化によって発生する、ラドン濃度の日変動を再現することを目標とする。水平方向 $200\text{km} \times 200\text{km}$ 、鉛直方向 1km の領域である。また、広域計算の領域では、気流にのって観測点に到達する遠方で散逸したラドンによる濃度変動を再現することを目標とする。水平方向 $4000\text{km} \times 4000\text{km}$ 、鉛直方向に 4km

の領域である。両領域を水平方向に 50×50 、鉛直方向に 20 に分割した。適用したモデルの関係上、局地域での地形表現にはブロック地形を、広域での地形表現には地形準拠座標系を用いている。この両領域を Figs. 1 に示す。

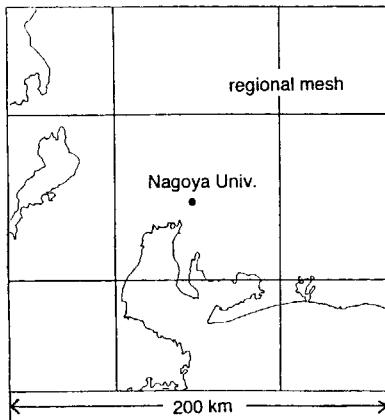


Fig. 1 Local computational area.

(a) Local area

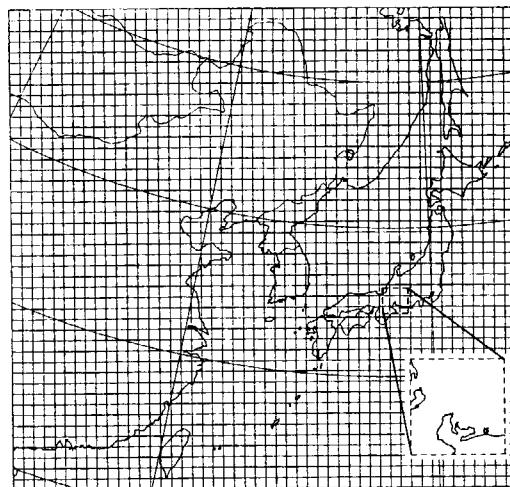


Fig. 1 Regional computational area.

(b) Regional area

Figs. 1{a-b} Computational areas

2. 2 計算手法

計算手法及びパラメータを Table 1 にまとめた。

Table 1 Methods and parameters for the simulation

計算手法及び パラメータ	局地域計算	広域計算
計算領域	$200\text{km} \times 200\text{km} \times 1\text{km}$ (1cell: $4\text{km} \times 4\text{km} \times 50\text{m}$)	$4000\text{km} \times 4000\text{km} \times 4\text{km}$ (1cell: $80\text{km} \times 80\text{km} \times 200\text{m}$)
地形表現	ブロック地形	地形準拠座標 マップファクタ
気流計算	連続の式を束縛条件とした変分 モデル (石川: 1983) ⁶⁾	左に同じ (石川: 1992) ⁷⁾
拡散計算	粒子拡散法 ・ Diehl(1982)のランダムウォー ク法 ⁸⁾	差分法 ・ 前川(1987)の修正 EXQUISITE 法 ⁹⁾
拡散係数	Yamada(1983)の 2 次オーダーの 乱流クロージャモデル ¹⁰⁾ 上限: $60\text{m}^2/\text{s}$ 下限: $0.5\text{m}^2/\text{s}$	昼夜を区別した 仮想的な鉛直分布 昼夜 1000m < 0.5 0.5 200-800m 30.0 3.0 地表 ドンの分子拡散係数
ラドンの散逸率	・ 3.1 の解析: 陸地から $1\text{Rn atom cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ・ 3.2 の解析: 地域分布 ・ 海洋からの散逸を無視	・ 陸地から $1\text{Rn atom cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ・ 海洋からの散逸を無視
境界条件	ドンの流入なし ドンの流出あり	左に同じ
計算時間ステップ	150 秒	300 秒

3. 計算結果及び考察

3. 1 ラドン散逸場所からの距離と大気中ラドン濃度との関係

ラドン散逸場所と観測点との距離が、どの程度、大気中濃度（地上 1 m）に関係するのかについて検討する。計算方法を以下に示す。

Fig. 2 に示すようにラドンの散逸領域を、名古屋大学～半径 10km 以内、10～20km、20～30km、…、80～90km とドーナツ型に区切り、各領域から散逸するラドンに区域毎のマーキングを施す。そして、1990 年 12 月 11 日から 1991 年 1 月 3 日にかけて、実際の気象条件の下、粒子拡散シミュレーションを行った。この期間には、北～北西の風が支配的で太平洋側からの風がほとんどない、季節風が強く比較的遠くで発生したラドンの影響を受ける等の特徴がある。

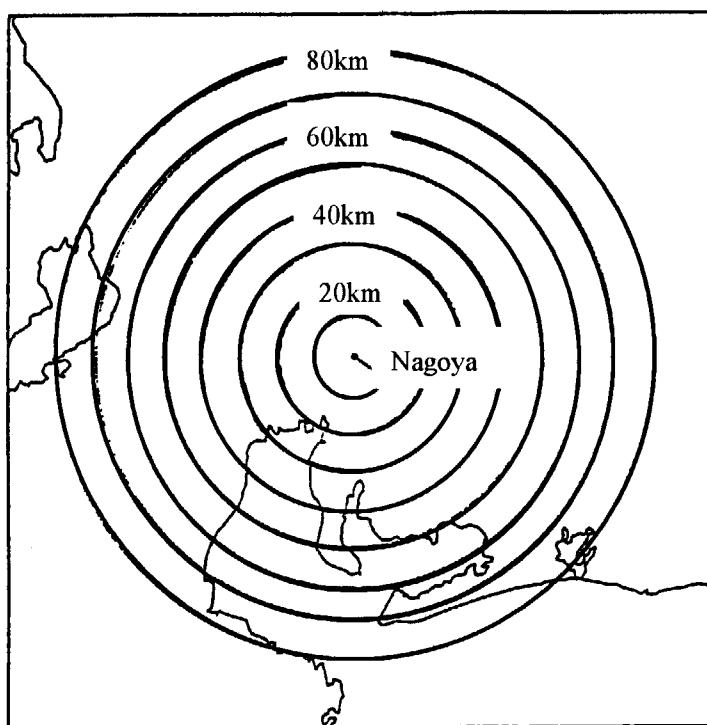


Fig. 2 ^{222}Rn source area divided into some rings

計算結果を Fig. 3 に示す。また、半径 90km 以内から到達するラドンを 100 とした時の各領域からの寄与を Fig. 4 に示す。Fig. 3 より、各領域からの寄与の絶対値が、日変動とともに増減している様子がわかる。また Fig. 4 より、期間平均した結果からは、半径 20km 以内からの寄与が 3/4、半径 40km 以内とすると約 9 割近くの寄与になる。以上の計算結果から、観測点のごく近傍で散逸したラドンの寄与が観測点での濃度変動にかなり寄与していることが予想できる。

次に、日変動に寄与しているラドンの散逸領域について簡単な考察を行う。ここで、日変動を 1 日の平均値との比から検討する。この関係は、(1 日の平均濃度に対する比) = (注目する時間のラドン濃度) / (前後 1 2 時間の移動平均濃度) として、

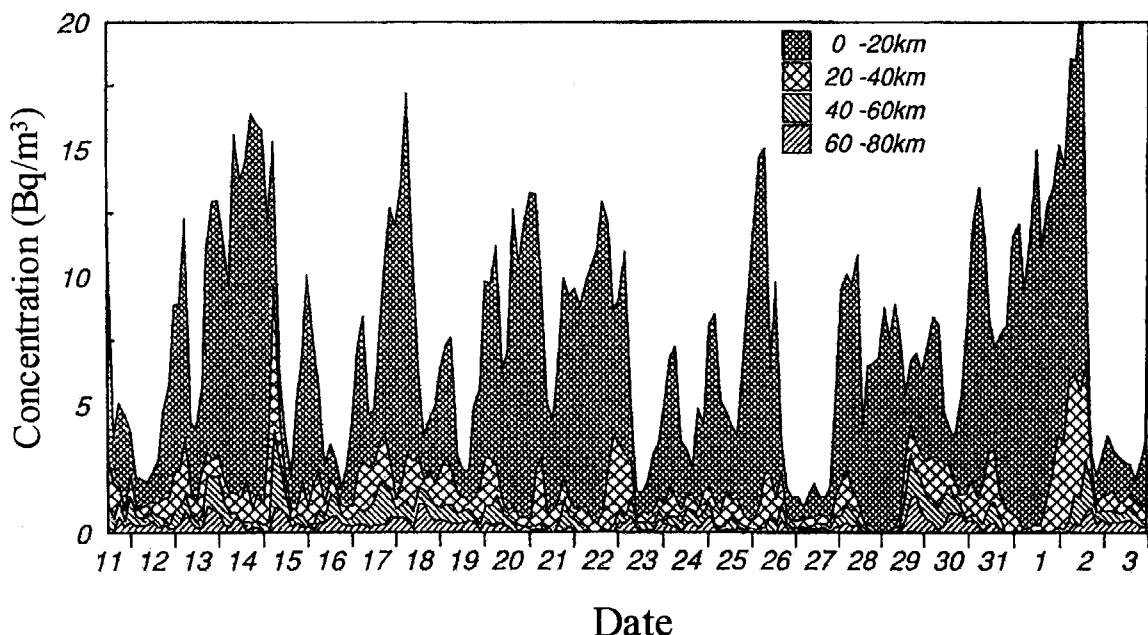


Fig. 3 Variations of ^{222}Rn concentration emanated from each area

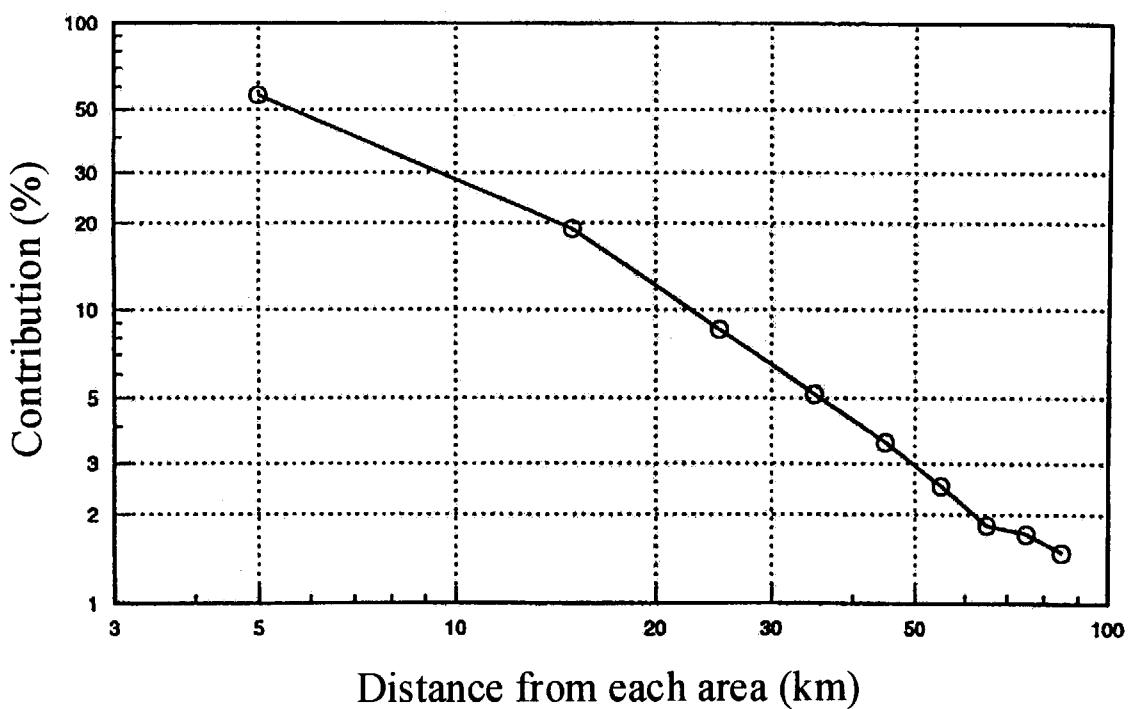


Fig. 4 Contribution to the ^{222}Rn concentration at the objective point

$$Ratio = \frac{C(t)}{\frac{1}{24} \int_{t-12}^{t+12} C(t) dt} \quad (1)$$

によって表現できる。ここで、 $C(t)$ はラドン濃度 (Bq m^{-3})、 t は時刻を表わす。式(1)により求めた結果を Fig. 5 に示す。

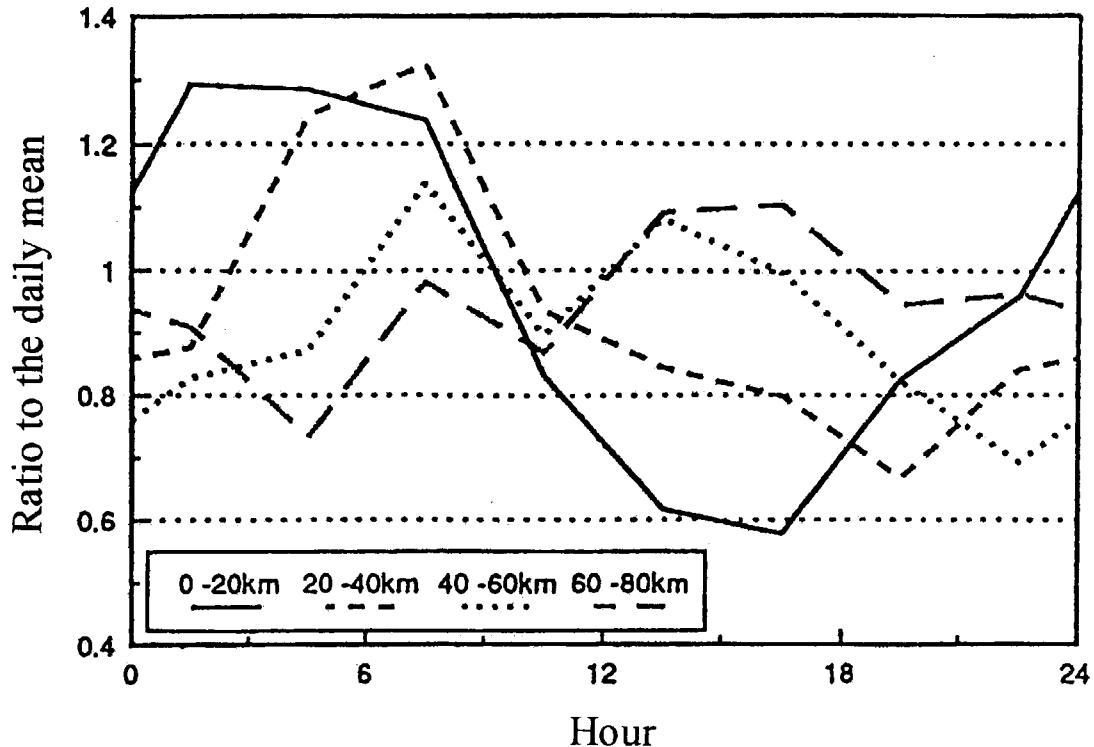
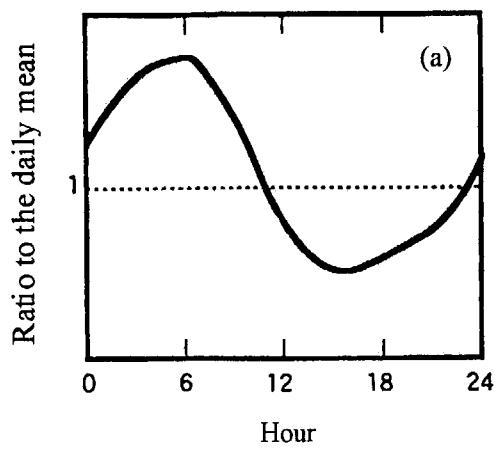


Fig. 5 Ratio of concentration each hour to the daily mean

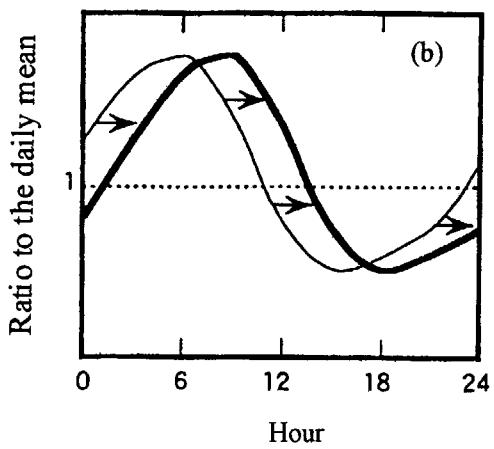
Fig. 5 から、観測点近くで散逸したラドンにより明確な日変動が示されるが、散逸場所が遠くなるに従って日変動が不明瞭になっていくことがわかる。特に、40km 以遠になると朝方高濃度で、昼間に低濃度になる典型的な日変動が見られない。

日変動が見られなくなる距離は、風速や大気の安定度等により変化すると考えられる。一般に、以下に述べるように、観測点から離れた場所で散逸したラドンによる日変動パターンが、距離とともに変化するものと考えられる。この定性的な概念図を Figs. 6{a-c}に示す。例えば、風向・風速が一定で北風 3 m/s とすると、この時、観測点のごく近傍で散逸したラドンは、観測点での大気と同様の影響を受けると考えられるので、典型的な日変動を示すと予想できる (Fig. 6a)。次に、観測点から 30 km ほど離れた場所で散逸したラドンは、風速が 3 m/s であるため、観測点に到達するまでに約 3 時間が必要である。ラドンが散逸した時刻の大気状態のまま観測点に到達したのであれば、拡散の影響で変動幅が異なるものの、3 時間分日変動がずれた形で観測点で観測されるはずである (Fig. 6b)。しかし、実際には、到達するまでの 3 時間の間には大気の状態が変化し、例えば太陽が昇る朝 7 時前後を境にして大気の安定状態が、急速に不安定

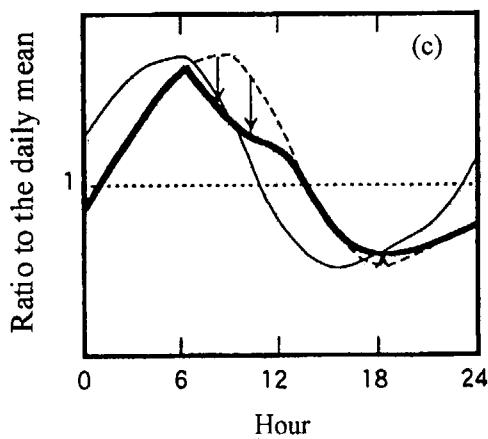
になる。その結果、それまで安定な状態で輸送されてきた気塊は、突然、拡散の影響を受けて、地表付近のラドン濃度が減少する (Fig. 6c)。以上の考察から、一日の最低濃度が観測される時刻 (15 時ごろ) に散逸したラドンが、最高濃度が観測される時刻 (6 時ごろ) に観測点に到達する場合が、ほぼ日変動を示さなくなる場合であると予想できる。すなわち、風速 1 m/s で 54 km、2 m/s で 108 km、・・・が日変動を示さなくなる距離である。しかし、実際に近い地形・気象条件を考慮したモデル計算からは、その距離が約 40 km であると推定された。これは、実際の現象が、水平移流や大気の安定状態の変化などが複雑に絡み合ったものであることを示唆している。そのため、上述の定性的な解釈よりも、日変動を示すかどうかの境界が、実際にはより観測点に近いことが推測できる。



Diurnal variation of ^{222}Rn emanated close to the observation site



Diurnal variation of ^{222}Rn emanated 30 km away from the observation site and with the same concentration as it left from the origin



Diurnal variation of ^{222}Rn transported through the various atmospheric conditions

Figs. 6{a-c} Concept of the diurnal variation by ^{222}Rn emanated from near observation site

3. 2 観測値と計算値との比較

(a) 移動性高気圧通過時の比較（事例 1）

観測値と計算値との比較例として、移動性高気圧通過時の例を示す。名古屋では、例年 11 月頃、移動性高気圧と低気圧とが交互に上空を通過する。移動性高気圧が数日にわたって名古屋を覆う時、名古屋の地表付近には逆転層がしばしば発生し、安定な大気状態が生まれる。この時、同時に高濃度のラドン濃度が観測される。この時期の観測値と計算値とを比較した結果を、各種気象パラメータの変化と合わせて、Fig. 7 に示す。期間は、1990 年 11 月 14~17 日である。

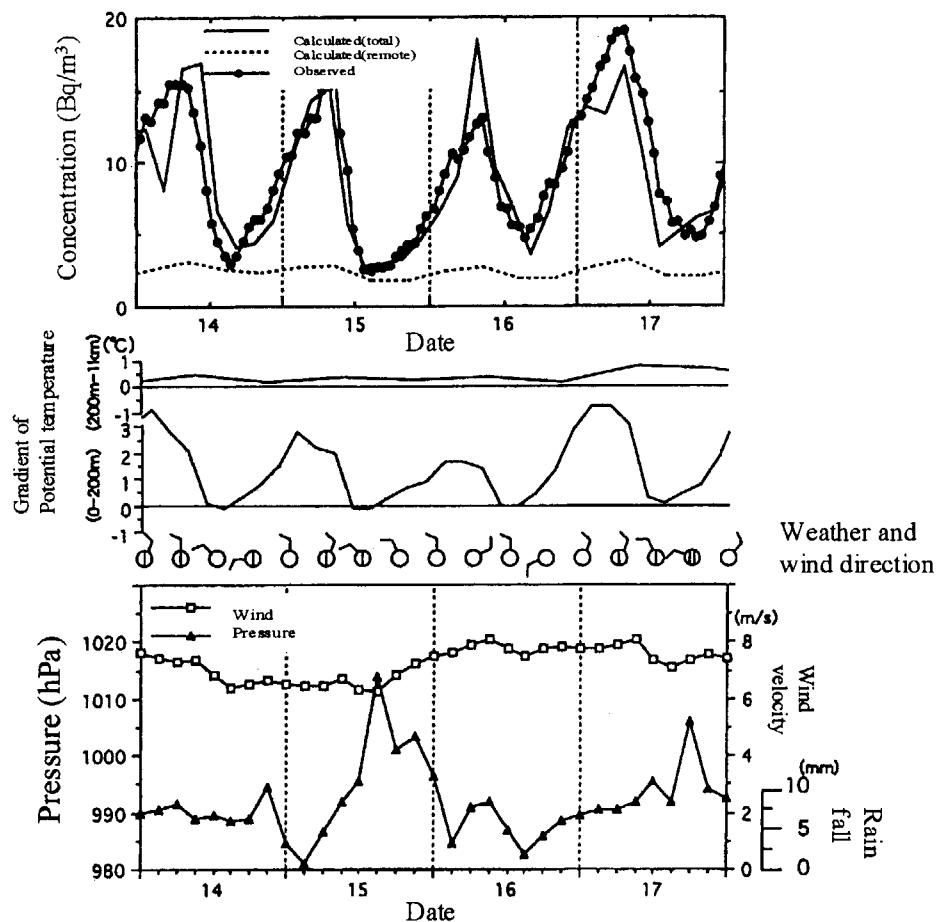


Fig. 7 Comparison of observed and calculated concentration with some meteorological parameters

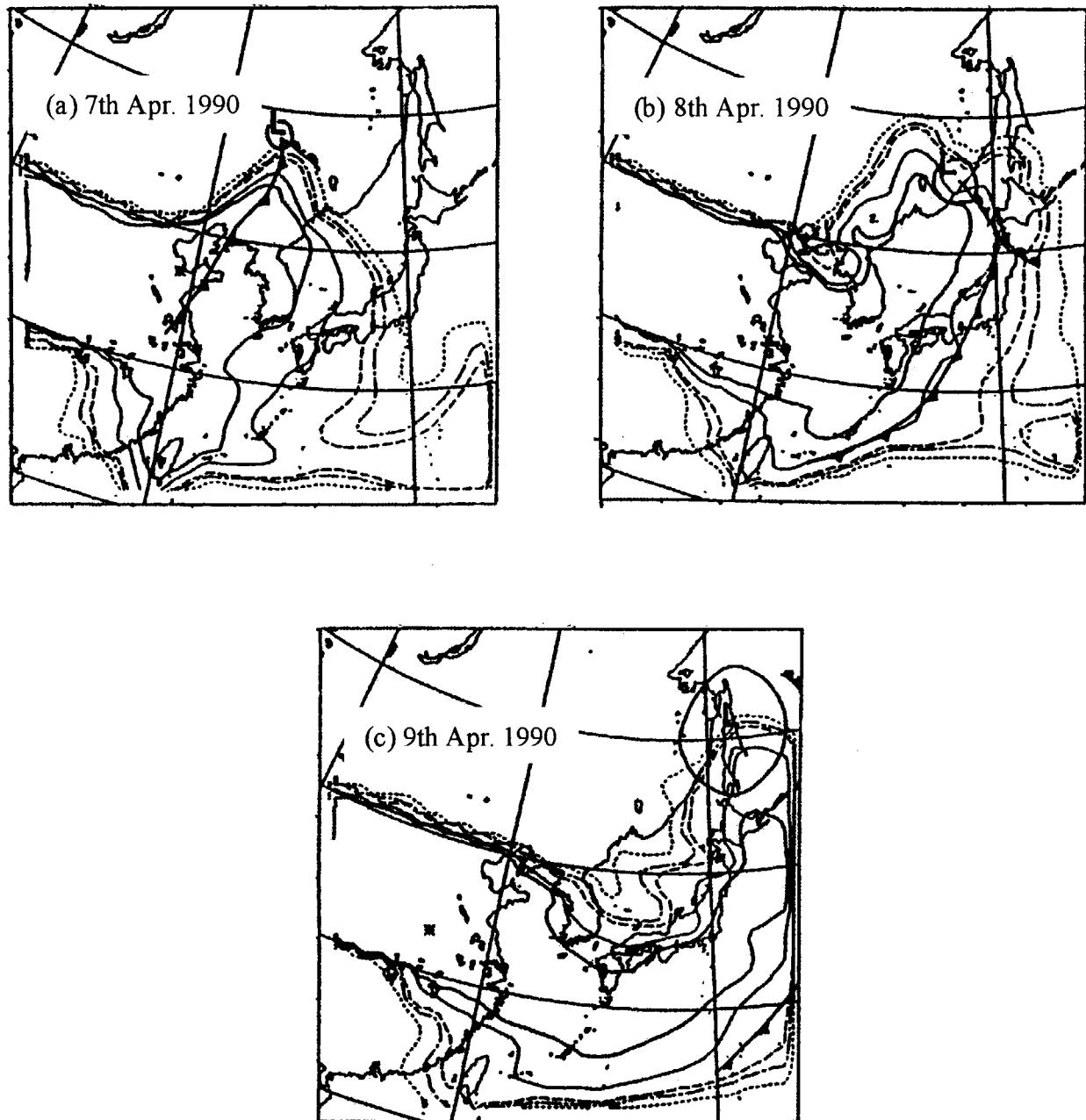
Fig. 7 より、モデルの計算結果が観測値の変動を比較的よく再現していることがわかる。この結果から、この期間に関しては、きれいな日変動を示した温位勾配の変化等を、モデルがうまく取り込み、拡散現象を比較的よく再現できたものと考えられる。

(b) 低気圧による輸送（事例 2）

ラドンの観測値と流跡線解析とを合わせた解析から、低気圧に伴うラドンの輸送が指摘されている^{11) 12)}。また、国立環境研究所の研究成果¹³⁾として、東アジア域において酸性雨の輸送

がコンピュータ上で視覚化された。ここでは、低気圧によるラドン輸送の推定計算を行う。1990年4月7日から9日にかけて日本の北側を温暖・寒冷前線を伴いながら低気圧が東進した。この低気圧により、中国中部地域で散逸したラドンがどのようにモデル上で輸送されるかについて検討する。

計算結果をラドン濃度の等値線図として Figs. 8{a-c}に示す。



Figs. 8{a-c} Transport of ^{222}Rn by the low pressure system

Figs. 8 より、低気圧の東進に伴い、ラドンが北上するとともに東へ輸送されていく様子がわか

る。本研究のモデルにより、低気圧による気流の変化にともなった輸送の様子を捉えることができた。しかし、前線付近などの複雑な気象現象が発生している場所でのラドンの輸送についてはまだ未知な部分が多く残っている。今後の研究が必要である。

(c) 冬季低気圧通過時の高濃度発生（事例 3）

11月の高濃度は、日変動のピークとして観測されるが、12、1月の冬季に低気圧が通過する際には、全体として濃度が増加する変動が観測される。この期間について、モデル計算を行った結果と観測値とを比較し、この高濃度の要因について簡単な考察を行った。

対象とする低気圧の移動の様子を、Fig. 9 に示す。また、その際に観測されたラドン濃度とモデル計算結果とを Fig. 10 に示す。

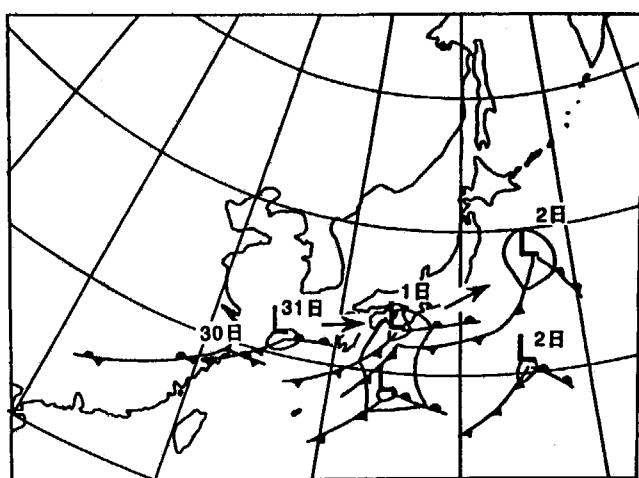


Fig. 9 Position of the low pressure with cold and warm fronts (30th Dec. 90 to 2nd Jan. 91)

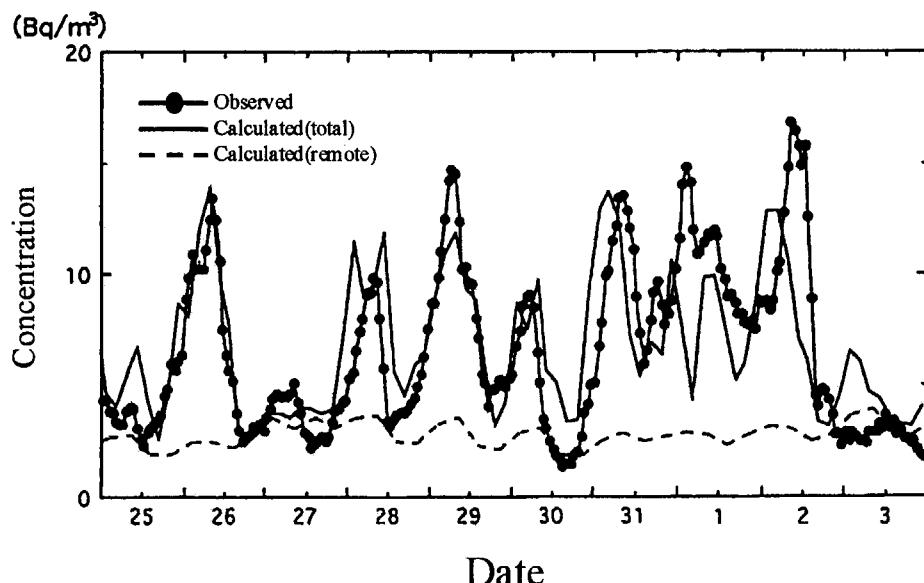


Fig. 10 Comparison of observed and calculated ^{222}Rn concentration

Fig. 9 および Fig. 10 より、低気圧通過時にラドン濃度が全体的に増加している事と、モデル計算の結果がその変動を再現できていないことがわかる。この不一致の原因について検討する。原因としては、①散逸率の増加、②大陸で散逸したラドンによる寄与、③風の影響、④大気の安定性、⑤西日本を起源とするラドンの寄与が考えられる。以下、各影響について述べる。

①散逸率の増加

低気圧の通過に伴い、大気圧が減少する。大気圧が減少することにより、地中に圧力によって封印されていたラドンが大気中に散逸することが、実験により確認されている¹⁴⁾。この時期にも、低気圧の通過に伴い気圧が低下した (Fig. 11)。

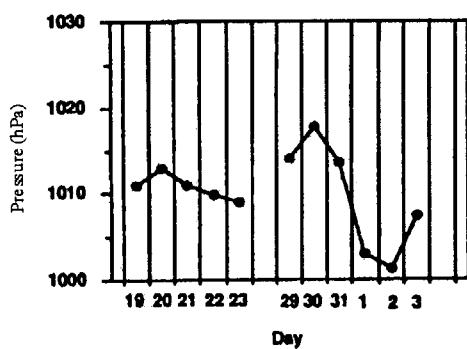


Fig. 11 Change of the atmospheric pressure in Nagoya

Schery らは、Sandy loam について気圧の変化とラドン散逸率の変化との関係を、

$$J = J_0 - k_1(p - \bar{p}) - k_2 \frac{dp}{dt} \quad (2)$$

により表現した¹⁴⁾。ここで、 J は散逸率 ($\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$)、 J_0 は平均散逸率 ($\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$)、 k_1, k_2 は定数でそれぞれ 2.738×10^{-2} ($\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{kPa}^{-1}$)、814 ($\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{kPa}^{-1}$)、 p, \bar{p} は気圧と平均気圧 (hPa) である。ここで、31 日から 1 日にかけての気圧の変化が 1015 から 1005hPa とし、平均気圧が 1010hPa であったと仮定すると、式 (2) から推定される散逸率の変化量は、23 $\text{mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ である。計算で仮定した広域用の散逸率が 21 $\text{m Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であることを考慮すると、散逸率が最大 2 倍程度になる可能性がある。ゆえに散逸率の増加により大気中ラドン濃度が増加する可能性があるが、この経験式が砂地を対象としたものであることや、31 日から 1 日にかけて約 8mm 程度の降水があったことを考慮すると、気圧の変化が散逸率を少なからず上昇させる可能性はあるが、2 倍までには増加させないと予想できる。

②大陸で散逸したラドンによる寄与

大陸からの寄与があるかどうかについて簡単な検討を行う。広域計算用のラドン散逸領域を、Fig. 12 に示すように 6 つの領域に分割する。また、各領域からの寄与を Fig. 13 に示す。Fig. 13 から、31 日から 1 日にかけて低気圧の接近に伴い、中国中南部で散逸したラドンが到達していることが読み取れるが、全体としては大陸で散逸したラドンによる寄与が最低値をこの時期に示

している。また、中国中南部の寄与により高濃度が発生したと仮定すると、3日も高濃度でなければならぬ、この仮定は矛盾する。以上より、この時期の高濃度が大陸で散逸したラドンにより発生したとは考えにくい。

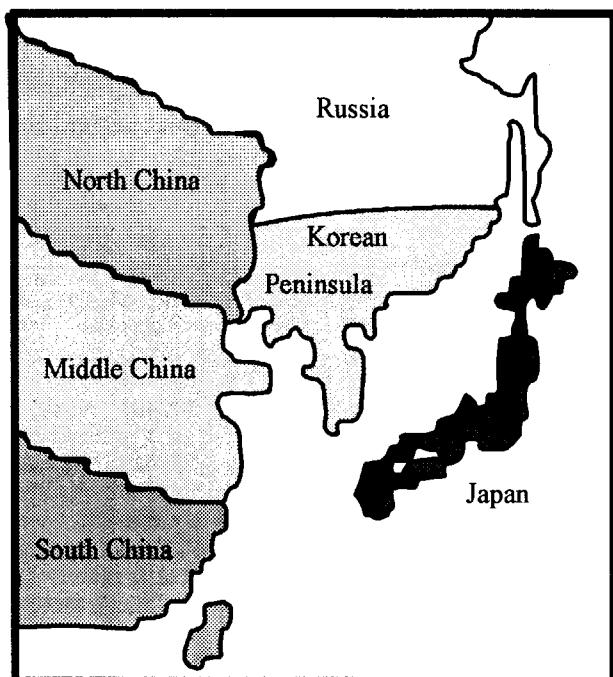


Fig. 12 Six separated areas on ^{222}Rn emanation

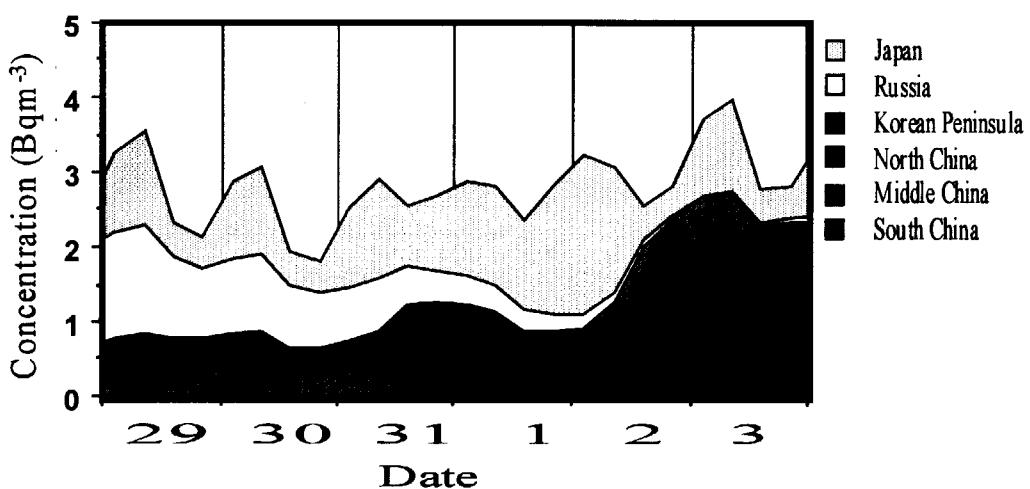


Fig. 13 Contribution of ^{222}Rn originated far from the Nagoya area

③風の影響

31日から2日にかけて、名古屋の風速は2から4 m/s程度で比較的穏やかな天候であった。この影響については⑤で再検討する。

④大気の安定性

穏やかな風の状況であったことから分かるように、この時期低気圧が通過しているのにもかか

わらず、大気が安定した状況にあった。事実、大気の安定度を知るために、名古屋の温位の鉛直分布をとると1日を最大として全体的に安定な状況にあったことが分かる（Fig. 14）。

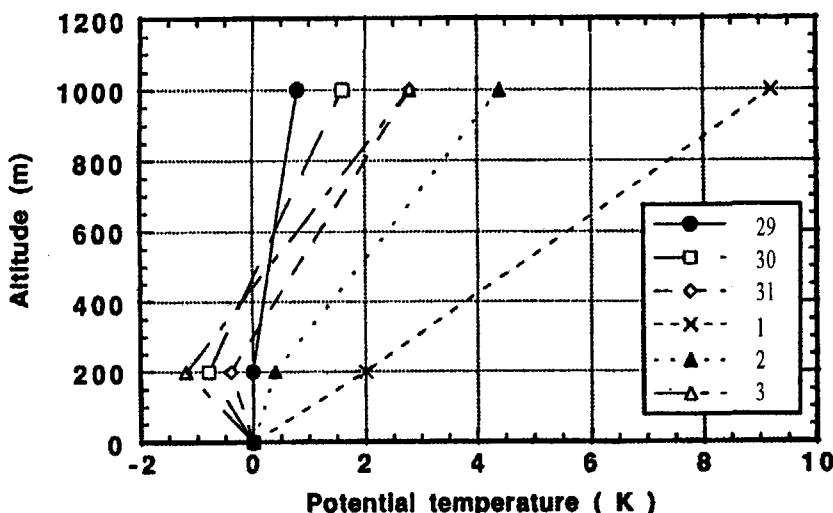
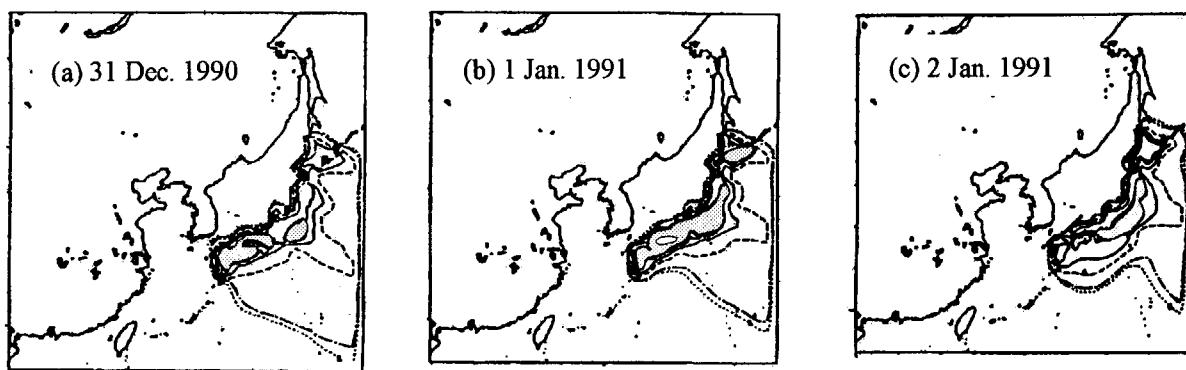


Fig. 14 Vertical profiles of relative potential temperature at Nagoya

⑤西日本を起源とするラドンの寄与

西日本からの寄与を調べるために、広域計算用のラドン散逸領域を分割した内のひとつであるJapan領域から散逸したラドンの計算結果を、等値線図としてFig. 15に示す。1 Bqm⁻³以上の領域を塗りつぶして示す。



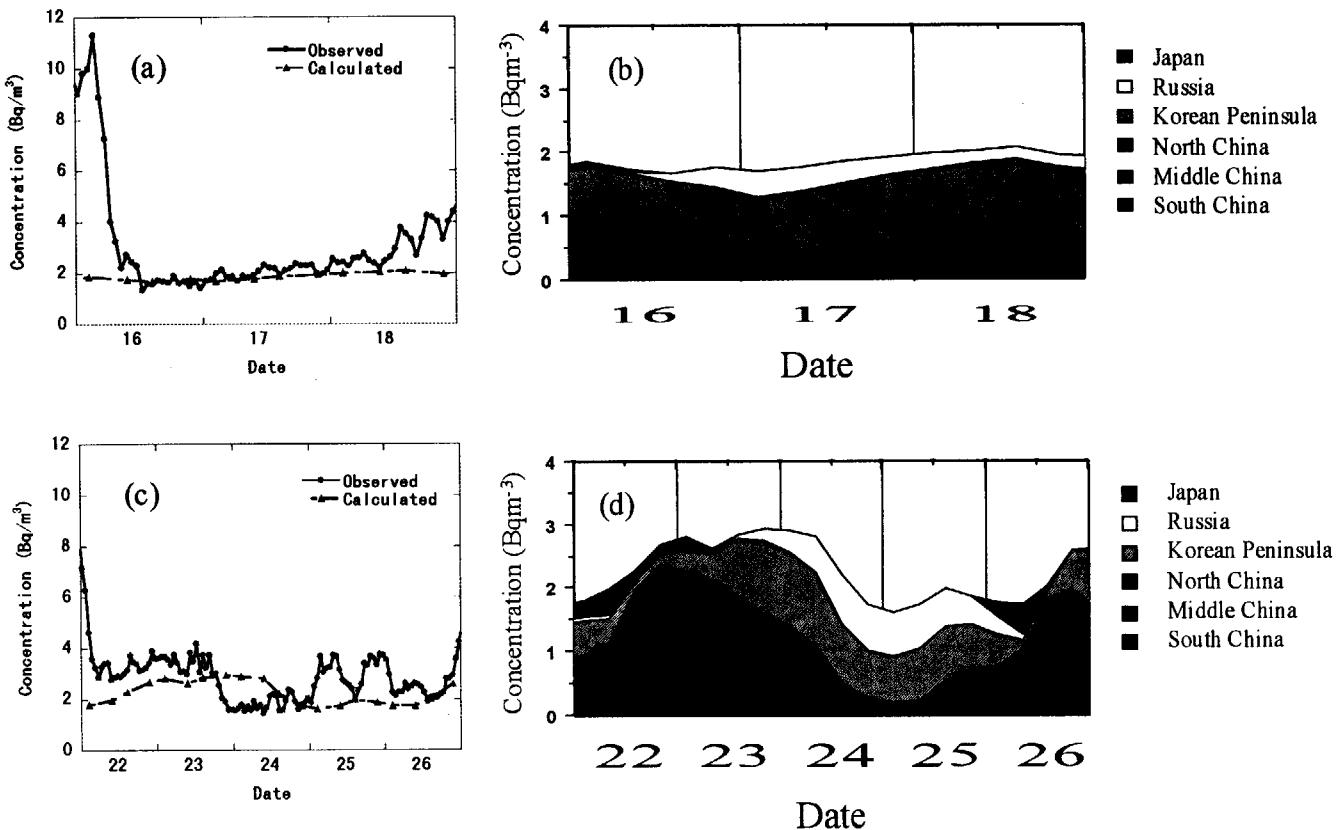
Figs. 15{a-c} Contour map of ^{222}Rn concentration at ground level by Japan source

Figs. 15より、低気圧の通過中に、西日本において最初ラドン濃度が高くなり、それが全体におよび、最後に高濃度地域が東日本のみになる状況が読み取れる。広域用の計算モデルが、拡散係数として単純化した値を用いているため、この結果は、主に気流の影響だと考えられる。

以上5つの内容をまとめて考察すると、冬季低気圧通過時の高濃度が、観測点近傍のみだけでなく、低気圧に伴う弱風・安定状態により、地表付近に溜まった西日本のラドンが輸送された結果発生した可能性があることが示唆される。この点について、詳細な研究が望まれる。

(d) 金沢での比較例（事例 4）

冬季の北西の季節風が吹く期間について、金沢で測定された大気中ラドン濃度と計算結果とを比較する。Figs. 16 に比較した結果を示す。



Figs. 16{a-d} Comparison of observed and calculated ^{222}Rn concentration in Kanazawa and Contribution of ^{222}Rn originated far from Kanazawa

比較した期間は、西高東低の気圧配置で季節風が強かった 1990 年 12 月 16~18 日と 22~26 日である。両期間とも、金沢でのラドン濃度が顕著な日変動を示しておらず、日本海から空気塊が到達していることが分かる。また、モデル計算により、金沢でのラドン濃度及びその変動が比較的よく再現できた。さらに、前者の期間においては、大陸の北部から散逸したラドンの寄与が予想されるのに対して、後者の期間では時折、中国中部地域で散逸したラドンが到達した可能性が読み取れる。季節風が吹く際の濃度の微少変動が、その変動を構成するラドンの起源の影響を受けていると予想することも可能であるが、多くの事例や複数点での観測を行い今後の研究の発展に期待するところである。

4. 結言

大気拡散モデルを用いてラドン濃度変動の解析を試みた。ラドン散逸場所からの距離と大気中ラドン濃度との関係をモデル計算した結果、一事例ではあるが、日変動への寄与を示さなくなる

ラドン発生地点が、観測点から 40 km 前後に位置することが示された。しかし、距離は概念的な考察からも分かるように、固定した値ではなく、気象条件等により変化する値である。

観測値と計算値とを比較した結果、モデルにより、移動性高気圧通過時のラドン濃度変動、および冬季の北西の季節風が吹く時の金沢における濃度変動がよく再現された。金沢のデータに関しては、さらに多くの事例を解析することにより、有用な情報が得られる可能性がある。また、低気圧によるラドン輸送の推定計算からは、低気圧の気流にともなう北上・東進の様子を捉えることができた。しかし、冬季低気圧通過時の高濃度発生については、モデル計算によりその変動を再現することができなかった。この不一致について、複数の要因を検討した結果、冬季低気圧通過時の高濃度が、観測点近傍のみだけでなく、低気圧に伴う弱風・安定状態により、地表付近に溜まった西日本のラドンが輸送された結果、発生した可能性があることが示唆された。この点について、詳細な研究が望まれる。

最後に、本研究を進めるにあたりラドン濃度測定データを提供して頂いた金沢大学の低レベル放射能実験施設の小村和久博士、大気拡散モデルについてご指導頂いた日本原子力研究所環境安全研究部の茅野政道博士、山澤弘実博士に心から御礼を申し上げます。

参考文献

- (1) UNSCEAR, Radon-222 and its short-lived decay products, United Nations, New York, Annex A, 1988.
- (2) Gogolak, C. V. and H. L. Beck, Diurnal variations of radon daughter concentrations in the lower atmosphere, in Natural radiation Environment III, vol. 1, edited by T. F. Gesell and W. M. Lowder, pp. 259-280, National Technical Information Service, U. S. Department of Commerce, Springfield, Va., 1978.
- (3) Bonsang, B. and G. Lambert, Nonmethane hydrocarbons in an oceanic atmosphere, *J. Atmos. Chem.*, **2**, 257-271, 1985.
- (4) Brost, R. A., and R. B. Chatfield, Transport of radon in a three-dimensional, subhemispheric model, *J. Geophys. Res.*, **94**, 5095-5119, 1989.
- (5) Jacob, D. J., M. J. Prather, et al., Evaluation and intercomparison of global atmospheric transport models using ^{222}Rn and other short-lived tracers, *J. Geophys. Res.*, **102**, 5953-5970, 1997.
- (6) 石川裕彦 : 変分法を応用した 3 次元風速場計算コード (WIND04) , JAERI-M 83-113 (1983).
- (7) Ishikawa, H., H. Yamazawa, M. Chino, T. Sakashita, Y. Ikebe, and K. Suzuki, A simulation study on long-range transport of radon-222 over eastern asia, Proc. Intern. Conf. Radiation Effects and Protection, March 18-20, Mito, 1992.
- (8) Diehl, S. R.: Random-walk simulation of gradient transfer processes applied to dispersion of stack emission from coal-fired power plants, *J. Appl. Meteor.*, **21**, 69-83, 1982.
- (9) 前川勇:多次元伝熱流動計算における数値拡散(II), 日本原子力学会誌, **29**, pp.823-833 (1987).
- (10) Yamada, T., Simulation of nocturnal drainage flows by a q2l turbulence closure model, *J. Atmos. Sci.*, **40**, 91-106, 1983.

- (11) Dorr, H., B. Kromer, I. Levin, K. O. Munnich, and H. J. Volpp, CO₂ and Radon 222 as tracers for atmospheric transport, *J. Geophys. Res.*, **88**, 1309-1313, 1983.
- (12) Polian, G., G. Lambert, B. Arduoin, and A. Jegou, Long-range transport of continental radon in sub-antarctic and Antarctic areas, *Tellus*, **38B**, 178-189, 1986.
- (13) 村野 健太郎ら：アジア大陸からの越境大気汚染を捉える, 環境研ニュース, **15**巻5号, 1996.
- (14) Schery, S. D., et al.: Factors affecting exhalation of radon from a gravelly Sandy Loam, *J. Geophys. Res.*, **89**, pp.7299-7309 (1984).



12. 放射性核種の地表面、地被物への沈着、付着と再移動に関する研究

栗田 進 栗原和夫
気象庁 気象研究所 環境・応用気象研究部

原子力施設から大気中に放出された放射性核種の人体への影響を評価する場合に、緊急避難時においては大気境界層内の濃度分布を算出し、大気中に浮遊する放射性粒子による被曝線量を評価することができる。一方、チェルノブイリ原子力発電所事故の後、いったん地表面に沈着した放射性核種の大気中への再飛散の重要性が指摘されている¹⁻⁴⁾。しかしながら、地表面へ沈着した後の状況把握と対策は現在のところ環境中の線量の実測をもとに判断するしかない。

本研究では、地表面へ沈着した放射性核種が再び地表面から大気中へと再飛散する過程を、地表面状態に応じて土・草・樹木から大気中へと再飛散するものとして扱い、それぞれの再飛散率を求める。

土壤に関しては、Shaoら⁵⁾の土壤浸食の理論を利用したモデルの開発を行った。草に関しては風洞実験により再飛散率の摩擦速度依存性を求め、同時に野外実験により再飛散率が摩擦速度以外の気象条件、たとえば気温・湿度・日射といったものに大きく影響されて日変化をしていること等が得られた。

Studies on deposition, adhesion and resuspension of radioactive substances on the ground surface and ground cover

Susumu KURITA, Kazuo KURIHARA
Atmospheric Environment and Applied Meteorology Research Department,
Meteorological Research Institute, Japan Meteorological agency

After the Chernobyl' nuclear power plant accident, resuspension of radioactive nuclei into the atmosphere is recognized as the one of the important processes that must be considered in the estimation of inhalation doses to humans¹⁻⁴⁾. In this study, resuspensions of particles from soil and grass have been studied. The resuspension of particles from bare soil was modeled by using Shao's method⁵⁾. The resuspension of particles from grass was studied by a wind tunnel and a field experiment. Dependencies of the resuspension rate on time and on friction velocity were obtained clearly. And it was also found that the other meteorological parameters, such as temperature, relative humidity, solar radiation and condensation, affected the resuspension rate in the field.

Keyword: Chernobyl' nuclear power plant accident, Atmospheric Diffusion Model, Resuspension of Particles, Resuspension from Soil, Resuspension from Grass.

1. 土壤からの粒子の飛散

1. 1 モデルの概要

これまでの放射性核種の輸送モデルでは、大気中に放出された核種の大気中での振る舞いのみを問題と

していた。しかし、強い風により土埃が舞うことからも推測できるように、核種が一旦地表面に沈着した後、再び大気中へ浮遊したり、土壤に含まれた核種が浮遊して、大気中の放射性物質の濃度を増大させることも考慮しなければならない課題である。これらの評価・予測のために、地表面上の核種の再浮遊をシミュレートできるモデルを開発し、野外実験などのデータを用いて検証を行った。

風による粒子の地表面付近の運動には、大きな重い粒子が地表面上を転がるクリーピング、中程度の大きさの粒子が跳躍を繰り返しながら移動するサルテーションなどがある。小さな軽い粒子は、通常、風だけでは移動せず、大中の粒子が地表面に衝突したときの衝撃により飛び出す。これをサルテーション・ボンバードメントと呼んでいる。また空気中に飛び出した小粒子は空気中を風に流されてゆく（浮遊：サスペンション）。

Shao ら⁵⁾はサルテーションとサルテーション・ボンバードメントによる砂の移動と塵の大気中への浮遊の定式化を行っている。これを参考にして粒子の飛散モデルを開発した。以下にその重要な概念について述べ、Shao ら⁶⁾による風洞実験を再現することによりモデルの精度を示す。

1. 2 モデルの基本構造

1) 大粒子と小粒子の判別

モデルではまず、大気中に浮遊しない大粒子と、浮遊する小粒子に分ける。大粒子は浮遊せず、摩擦速度（境界層内で地表面から大気に与えられる摩擦の大きさを表すパラメータ）が限界摩擦速度を越えるような強い風が吹いた時に、クリーピングとサルテーションにより地表面付近でのみ輸送される。一方、小粒子は風だけでは動かない。これは粒径が小さくなると、風による動かす力に対する付着力の割合が大きくなり、急激に限界摩擦速度が大きくなるためである。小粒子は大粒子が着地した時の衝撃で弾き跳ばされるサルテーション・ボンバードメントの機構により空気中に放出され、浮遊する。空気中の小粒子は、風と乱流により輸送され、また重力により自由落下する。

浮遊する粒子（小粒子）と浮遊しない粒子（大粒子）とは、粒子の落下速度と乱流による上方への鉛直輸送のバランスによってきまる。

粒子の落下速度は Malcolm and Raupach⁷⁾ に従い

$$w_t = \{(4(\rho_p/\rho)gd)/(3C_{DS}(R_{et}))\}^{1/2}$$

ρ_p : 粒子密度 ρ : 空気密度 g : 重力定数 d : 粒径 C_{DS} : 摩擦係数

R_{et} : レイノルズ数 ($= w_t d / \nu$) ν : 空気の動粘性係数

で決める。これは近似的に

$$d < 30 \mu m \quad w_t \propto d^2 \quad (C_{DS} = 24 / R_{et})$$

$$d > 1000 \mu m \quad w_t \propto d^{1/2} \quad (C_{DS} = \text{一定} \approx 0.48)$$

となるような値を持つ。

また乱流による鉛直輸送速度は、 κu_* 、 κ : カルマン定数 (=0.4) u_* : 摩擦速度で表される。

これらを用い、浮遊する粒子と浮遊しない粒子の判別を

$$w_t(d_t) = 0.5 \kappa u_*$$

となる d_t に対し、粒径 d を用いて、

$$d < d_t \quad \text{小粒子 (浮遊する)}$$

$d > d_1$ 大粒子（浮遊しない）

として決定する。

2) 限界摩擦速度

地表面上の粒子は、風がある程度以上ないと動き出さない。この風の強さは摩擦速度の大きさによって示され、これを限界摩擦速度 (u_{*1}) と呼ぶ。Greeley and Iversen⁸⁾による実験結果 (Fig. 1) によれば、限界摩擦速度はある値で最小値をとり、それ以上でもそれ以下でも u_{*1} の値は大きくなる。

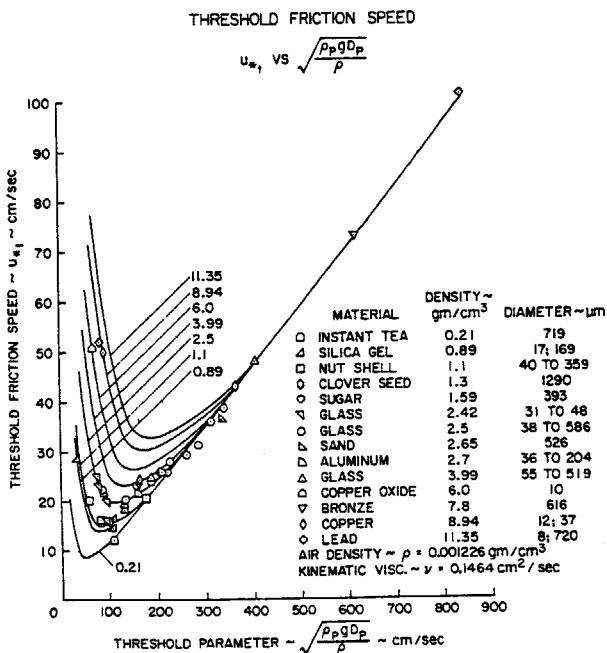


Fig. 1 Dependencies of threshold friction speed on threshold parameter (Greeley and Iversen⁸⁾)

限界摩擦速度の数式による表現は、Bagnold⁹⁾によって粒径や粒子密度とを変数として次の様な関係が実験結果より示されている。

$$A = u_{*1} (\rho / \rho_p g d)^{1/2}$$

Aも実験的に求められていて、レイノルズ数 $R_{*1} = u_{*1} d / \nu$ を用い、

$0.03 < R_{*1} < 0.3$ のとき

$$A = 0.2 (1 + 0.006 / \rho_p g d^{2.5})^{1/2} / (1 + 2.5 R_{*1})^{1/2}$$

$0.3 < R_{*1} < 10$

$$A = 0.129 (1 + 0.006 / \rho_p g d^{2.5})^{1/2} / (1.928 R_{*1}^{0.092} - 1)^{1/2}$$

$10 < R_{*1}$

$$A = 0.120 (1 + 0.006 / \rho_p g d^{2.5})^{1/2} \{ (1 - 0.858 \exp [-0.0617 (R_{*1} - 10)]) \}$$

となる。

3) 大粒子のサルテーション

大粒子のサルテーションによる地表面付近での水平輸送量は、粒子の水平フラックス Q (kg/ms) により

表す。これは単位面積当たりの粒子の水平フラックス密度 q ($\text{kg}/\text{m}^2 \text{s}$) を鉛直方向に積分した量で、

$$Q = \int q(z) dz$$

である。Qの計算は Owen¹⁰⁾ や Shao⁶⁾ の実験より得られた次の式を用いる。

$$\begin{aligned} Q(d) &= 0 & (u_* < u_{*1}) \\ &= (C_s \rho u_*^3/g) [1 - (u_{*1}(d)/u_*)^2] & (u_* > u_{*1}) \end{aligned}$$

Owen¹⁰⁾ によれば

$$C_s = 0.25 + w_t(d)/3u_*$$

である。

4) 小粒子のサルテーション・ボンバードメント

サルテーション・ボンバードメントによる小粒子の大気中への輸送量は、地表面での粒子の鉛直フラックス F ($\text{kg}/\text{m}^2 \text{s}$) で与えられる。

小粒子の粒径を d_a とし、大粒子が地表面に着地し、小粒子が飛び散る時の、運動量、エネルギーの収支から、 F は

$$F(d_a, d) = (\gamma c_b m_d g/c \psi) Q(d)$$

と決まる。ここで、

m_d : 小粒子の質量

ψ : 小粒子の付着エネルギー

c_b : エネルギーの交換効率

γ : $(U_0 + U_1)/2 u_*$ (≈ 2.5)

小粒子の地表面への付着エネルギー ψ の値は必ずしも明らかでないが、限界摩擦速度 u_{*1} を用いて、以下のように見積もる。 ψ は平均摩擦力

$$(\pi d_a^2/4) \rho [u_{*1}(d_a)^2]$$

と長さの代表スケールから c_b を係数として

$$\psi = c_b (\pi/4) \rho u_{*1} (d_a)^2 d_a^3$$

であると考えられる。これを代入して

$$F(d_a, d) = 2/3 (\rho_n/\rho) (\beta \gamma g / [u_{*1}(d_a)]^2) Q(d)$$

β はこれまで現れた係数をまとめて表した係数で、

$$\beta(d_a, d) = \beta_1(d) \beta_2(d_a)$$

として、実験データ⁶⁾より求める。

$$\beta_1(d) = a \ln(d) + b \quad a=0.125 \times 10^{-4}, b=0.328 \times 10^{-4}$$

$$\beta_2(d_a) = \exp(ad_a + b) \quad a=-140.7, b=0.37$$

5) 様々な粒径の粒子を含む場合

これまで単一な粒径の場合について述べたが、実際の土壤は様々な粒径の粒子を含んでいる。この場合は、各粒径の粒子ごとに粒径分布関数 $p(d)$ を用いて Q を積分する。モデルでは地表面の粒子の粒径をいくつかの値で代表させ、各粒径粒子の効果の総和により計算を行う。

6) モデルの全体構造

予測変数は

大粒子：地表面上での単位面積当たりの重量

小粒子：地表面上での単位面積当たりの重量及び

空気中での混合比（単位重量の空気当たりの粒子重量）

である。風、気温、地表面温度などは外部気象モデル等から与える。

大気中に浮遊する小粒子は風により流されてゆくが、この移流過程はオイラー法で、上流差分を用いて計算する。この時、その重力落下は、先に述べた自由落下速度 w_f で落下するとして計算する。

地表面付近の接地層では、乱流により大気中の小粒子が地表面に沈着するが、沈着量は Louis¹¹⁾ の方法により計算する。

地表面から浮遊した小粒子の鉛直乱流輸送は、Mellor と Yamada¹²⁾ のレベル2モデルを用いて計算する。この乱流輸送モデルは、各格子点での気温、風等から鉛直拡散係数を診断的に求めるものである。

小粒子の大気中での水平方向の拡散は2次の差分で計算し、その拡散係数には実験で求められた値⁶⁾ の 2 m/s を用いている。

これまでに述べられた方法では、サルテーションとサルテーション・ボンバードメントの計算には摩擦速度の値が必要であったが、その計算には Louis¹¹⁾ の方法を用いている。

以上の計算は、3次元格子点上で行う。その格子点の構造は、水平(X, Y) 方向は等間隔、鉛直(z) 方向には、不等間隔(鉛直格子点は、地表面及び大気中に置く)に設定している。

このモデルは、時間積分をすることにより、各時間の変動を求めることができる。時間積分は、リープフロッグ法と時間フィルターを組み合わせて計算を行っている。

1. 3 数値モデルによる Shao ら⁶⁾ の風洞実験の再現

Shao ら⁶⁾ は土壤粒子の飛散について調べるために、風洞実験を行った。風洞の床の風上側に砂(Sand:大粒子に対応)と、風下側に塵(Dust:小粒子・粒径 $2\mu\text{m}$)を Fig. 2 のように撒き、風を起こして風下側におかれた集塵装置(Dust collector)で砂と塵を集めてその量を一定時間間隔で計測する。風速 U_b はピト一管を用いて、0.28m の高さで計測した。摩擦速度 u_* は、 $u_*/U_b = 0.042$ 、より近似的に求められる。

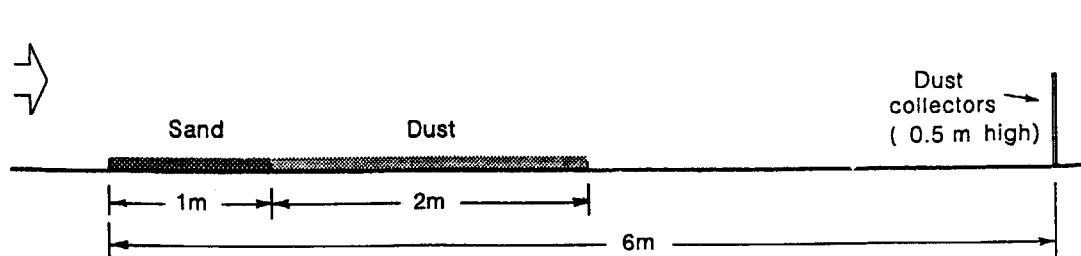


Fig. 2 Wind tunnel experiment by Shao et al.⁶⁾

Shao ら⁶⁾ は砂の粒径を変え、風速を変化させて計測を行った。砂の粒径が $210-530\mu\text{m}$ の場合の鉛直方向に積分した水平フラックスは、Fig. 3 のように時間と共に増大し、定常に達する。図には、風速 U_b が 9.8

と12.9m/s の場合を示した。風速が9.8m/s の場合は、最初に塵のフラックスが増大し、後から砂のフラックスが増えるのに対し、12.9m/s では早い時期から砂のフラックスも大きくなっている。

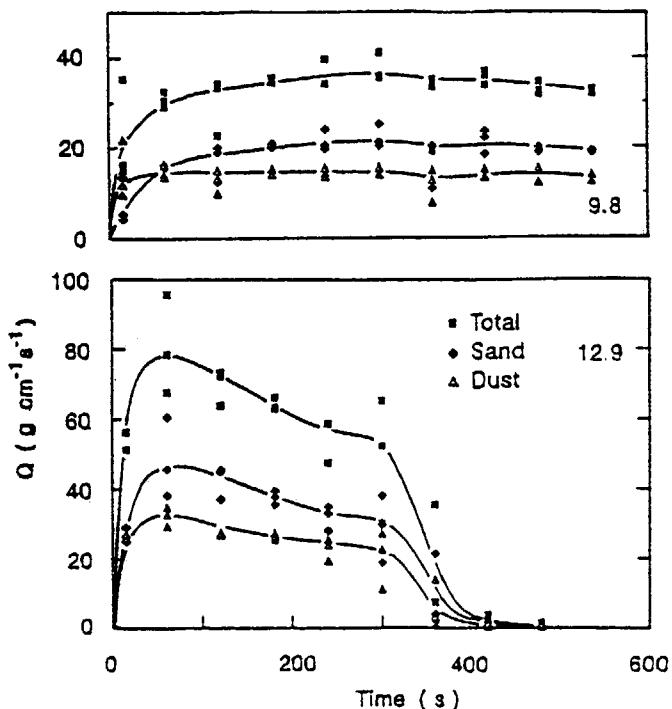


Fig. 3 Time dependencies of horizontal flux (experiment).

風速 U_r と水平フラックス Q の関係は Fig. 4 の点線のようになり、 Q_s (砂)、 Q_d (塵) の値とも、おおよそ、 $Q_s, Q_d \propto U_r^3 \propto u^3$ の関係があることがわかる。

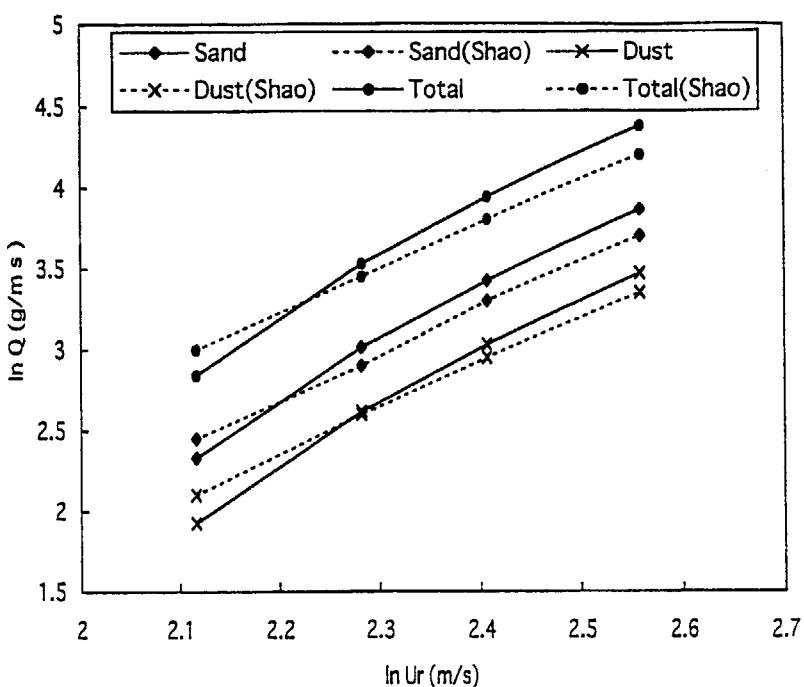


Fig. 4 Dependencies of horizontal flux on wind speed. (broken line : experiment, solid line : model)

これに対し、数値モデルでこの風洞実験の再現を試みた。モデルは水平格子間隔を20cm、鉛直方向の層を、5, 10, 20cm、その上では10cm 間隔とした。格子点数は40x10とし、2次元で計算した。風速は50cm 以上の高さで一定の値を与え、それ以下では接地境界層過程により計算を行った。

初期条件として、地表面に1m 幅で300-500 μm の粒子を2cm 厚に、その風下側に2m 幅で2 μm の粒子を2cm 厚に置いた。この状態から時間積分を行い、粒子の分布と水平フラックスの時間変化を求めた。水平フラックスの計算は、砂（大粒子）については摩擦速度から計算し、塵（小粒子）については大気中の単位体積あたりの粒子量 n を用いて

$$Q_t = \int n(z) U(z) dz$$

から計算した。

この時の水平フラックスの時間変化を $U=9.8, 12.9\text{m/s}$ の場合について Fig. 5に示す。9.8m/s の風速の場合は、Fig. 3と同じように最初に塵のフラックスが増大し、その後砂が増大するのに対し、12.9m/s の風速では早い段階から砂のフラックスが大きく、実験結果とも良く合っていることがわかる。

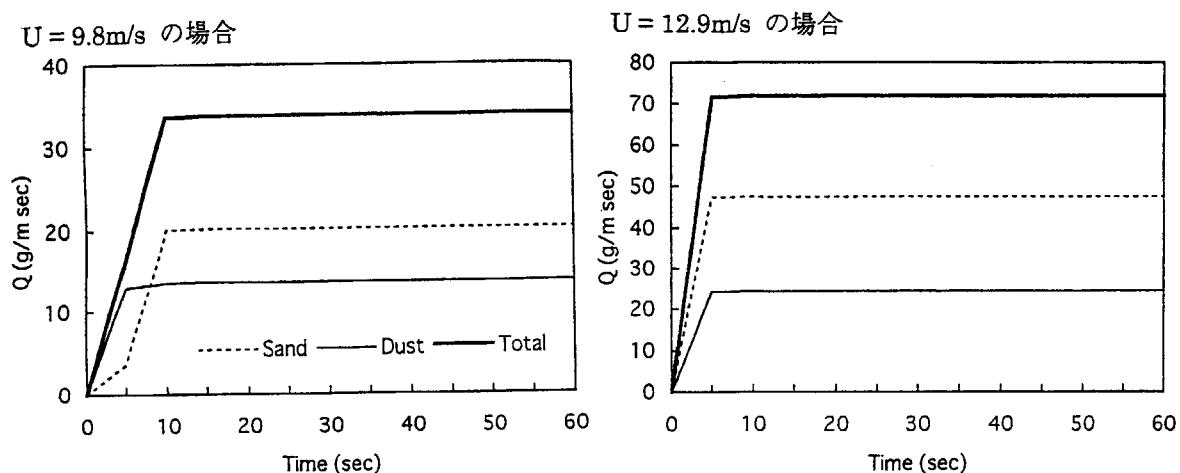


Fig. 5 Time dependencies of horizontal flux (model)

風速を変えたシミュレーションから求めた風速と水平フラックスとの関係を Fig. 4の実線で示す。点線（風洞実験）と実線（シミュレーション）ではやや違いも見えるが、よく一致しており満足すべき結果を得ることができた。

1. 4 砂地における野外実験とその再現計算

平坦裸地での粒子の浮遊を対象とした数値モデルによる再現計算に役立てるためのデータセットの作成を目的として野外トレーサー実験を行った。実験は通常の土壤地と砂地という異なる2種の地表面上で行った。共に冬の季節風の強い時を念頭に置いたが、この年の季節風は弱く、風向が定まらず、風速も小さい状況での実験になった。各々の実験について数値モデルによるシミュレーションを行い、数値モデルの検証を行った。

1) 砂地での野外実験

砂地での観測は再浮遊を中心にして行った。観測は地表面にトレーサー（リコポジウム）を0.6m×2.0mの広さに撒き、その風下側5m離れた地点で、高さ10cm, 50cmで空気をポンプで引いてインパクターでトレーサーを捕集し、そのフィルター上のトレーサーをカウントした。同時に風等の観測を行った。その結果求まった粒子濃度、各観測時の風速、及び風の時間変動から目で見た風の乱れの強さをTable 1に示す。風の乱れの強さは、風向によって異なり、地表面の凹凸の大きい方角からの風は乱れが大きかった。Table 1を見ると、乱れが大きく、風速の大きいほど大気中のトレーサー濃度が大きい、即ち地表面からの浮遊量が大きいことがわかる。この特性は後述の限界摩擦速度の考え方と一致する。また高さが高いほど粒子濃度は小さい。ケース1は高い位置で濃度が大きいがこれは例外的な場合と考えられる。

Table 1 Particle density in the atmosphere by the experiment (model results in the parentheses.)

	粒子濃度 ($\times 10^{-8}$ kg/m ³)		風速 (m/s)	風の乱れ
	高さ 10cm	50cm		
1	2.66	4.53	3.1	大
2	3.06	0.268	2.8	大
3	16.43 (5.4)	2.97 (1.4)	3.0	大
4	0.376 (0.12)	0.062 (0.031)	2.8	小
5	0.768 (1.9)	0.232 (0.46)	3.0	小

2) 砂地での野外実験の再現

浮遊についてのシミュレーションは、第3、4、5回の測定に対して行った。風速は表に示した平均風速を与える、時間積分中で一定としている。風の乱れの大きさに応じて境界層のパラメータである粗度を変えた。計算値は各回の下段に括弧を付して示してある。計算された粒子濃度を見ると、計算結果は測定値に比べ、ほぼ同じ程度のオーダーの範囲で一致している。また風速が大きい場合には、飛散も大きく、風の乱れが大きい方が、飛散が大きいなど、飛散の特性をよく表しており、また実測における傾向とも一致しており、数値モデルが粒子の飛散について予測が十分可能であることが証明された。

1. 5 土壤からの粒子の飛散のまとめ

平坦裸地における放射性核種の地表面への沈着と再浮遊を計算できる数値モデルの基本設計を、Shao ら⁵⁾による土壤侵食の定式化を参考にしながら行った。また数値モデルの検証に必要な基礎データを得るために、野外実験を行った。今回開発したモデルを用いてシミュレーションを行い、野外実験等のデータを用いて、再現実験を行った。その結果、実験により得られたデータをある程度の精度で再現することができた。これにより、このモデルが実際の状況においても、風による平坦裸地からの飛散の効果も含めて、大気中の粒子の濃度を予測することが可能であることを示すことが出来た。

2. 草からの粒子の再飛散

陸地の多くの部分は植物が生えている。従って植物に付着した放射性核種がどの程度大気中に再飛散するかを把握することは重要である。

植物に付着した放射性核種や微粒子の再飛散に関するこれまでの研究をあげると、野外実験では Chadwick and Chamberlain¹³⁾、 Chamberlain¹⁴⁾、 Aylor¹⁵⁾、 Taylor et al.¹⁶⁾、 Garland¹⁷⁾、 風洞実験では Garland¹⁸⁾、 Nicholson¹⁹⁾、 Giess²⁰⁾がある。しかしながらいずれも、個々の結果を示すのみであり、そのメカニズムの解明や、統一的に表現するモデルの構築には至っていない。

本研究では植物の生物学的性質は別にして、粒子の再飛散に関する基本的な特徴と植物のキヤノピーとしての特性や気象要素との関係を調べた。実験では気象研究所の大型風洞による詳細な再飛散実験と、野外における自然の環境下での再飛散実験を行った。どちらの実験にも同じ草と粒子を使用し、これらの結果を比較することにより、再飛散の基本的な特徴の把握を計った。草はリュウノヒゲ（ジャノヒゲ、*Ophiopogon japonicus* Ker-Gawl.）で、粒子としてはリコポジウム（石松子、ヒカゲノカズラ *Lycopodium clavatum* L. の胞子）を使用し、飛散粒子はサンプラーのフィルター上に取り、顕微鏡により計数をった。リコポジウムは直径 3.0 – 3.4 ミクロンで、比重は 1、吸湿性は無いとされる。

2. 1 風洞実験による草からの粒子の再飛散率の測定

風洞実験は気象研究所の大型風洞を用いて行った。実験装置の概要を Fig. 6 に示す。草は風洞の後流側にプランター 4 列を長さ 6 m にわたり配置し、粒子は内側の 2 列の後半の 3 m 分に 3.4 g を篩で散布した。散布は夕方に行い一晩落ち着かせた後、翌朝から飛散を行った。飛散粒子は後方に設置したサンプラーで高さ分布を求めた。横方向の分布はあらかじめ行ったテストで求め以後はこれを用いた。風上にもサンプラーを置きバックグラウンド汚染が無いことを確認した。

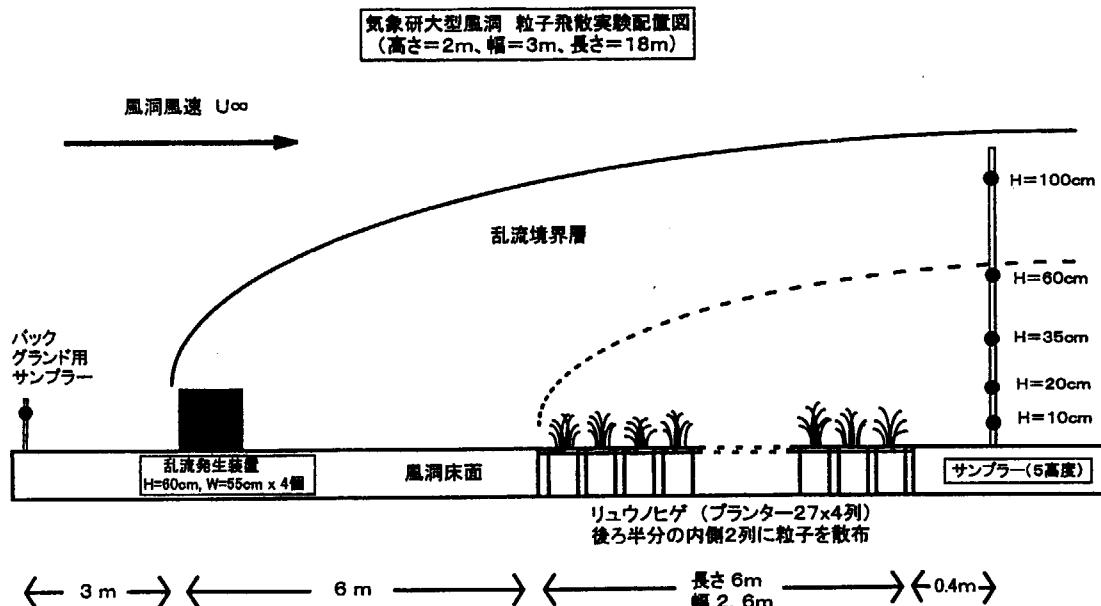


Fig. 6 Schematic diagram of wind tunnel experiment.

また風洞の風上側には乱流発生用のボックスを配置した。風洞における風は層流であり、これを野外における乱流に合わせる必要がある。この装置により草が受ける風のスペクトルを出来るだけ野外に近くする（低周波を増やす）事と、草の受ける乱流場を一様にし、粒子の飛散に関わる摩擦速度を一定にする事ができた。この効果を Fig. 7-9に示す。Fig. 7に示すように、この方法により 1 桁近く低周波側にずらすことが出来た。Fig. 8は層流では場所により風速プロファイルが大きく異なり、摩擦速度も定義できない状態であるが、この装置によりプロファイルが一定である事を示す。

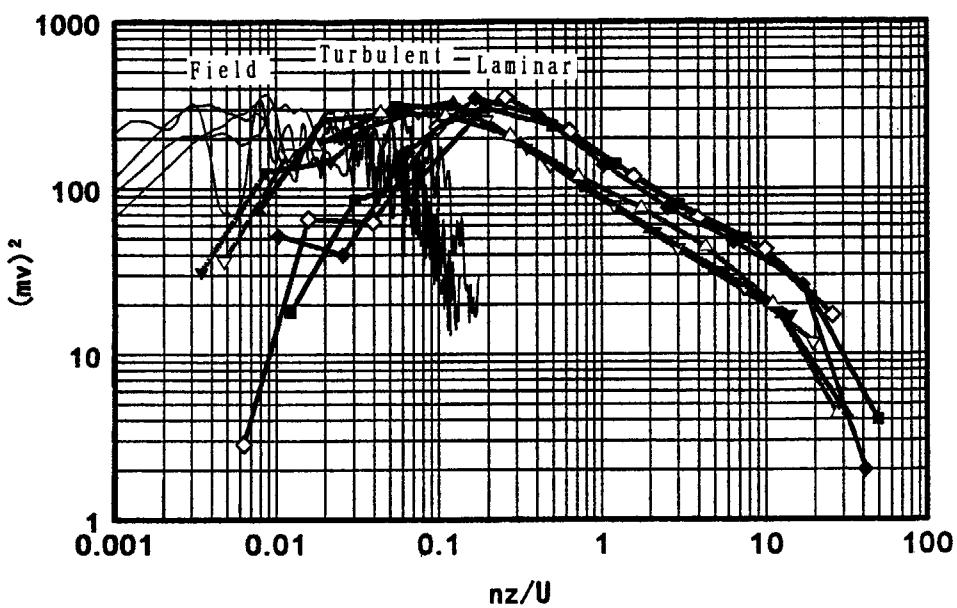


Fig. 7 Wind Spectra over the grass in field and in the wind tunnel with laminar and turbulent cases.

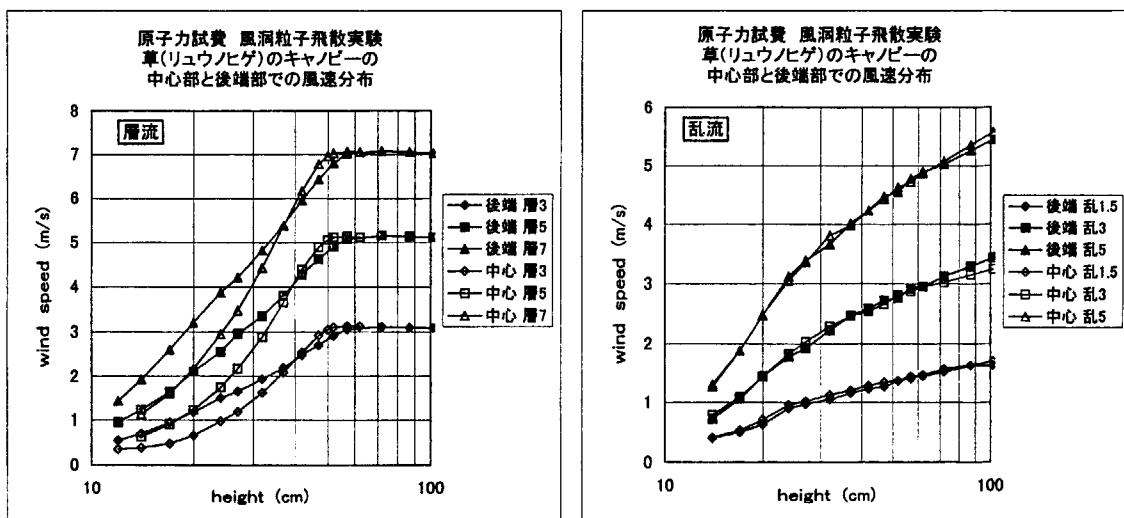


Fig. 8 Wind profile over grass at two sites. left: laminar case, right: turbulent case.

Fig. 9はこの時の摩擦速度、 Z_0 、 d (zero-plane displacement)が良く決められた事を示す。

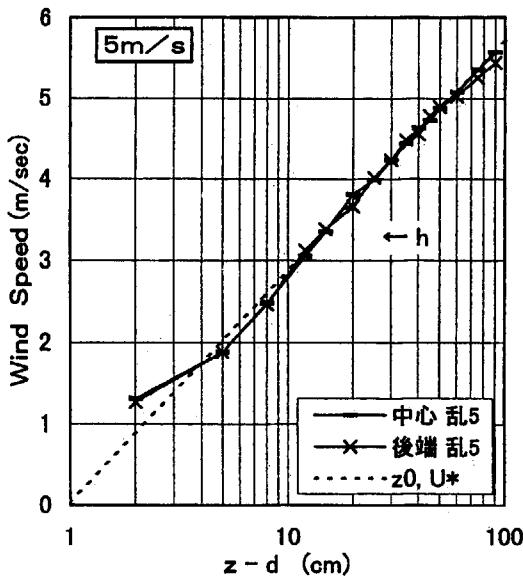


Fig. 9 Example of determining friction velocity in the case of turbulent wind.

測定は3風速(風洞中心設定風速で1.5, 3, 5 m/sec)を行い、サンプリングは0.5-0.5-1-1-2-2時間のシリーズで行った。測定結果をFig. 10に示す。この左図からは、いずれの風速でも再飛散率が初期には急速に減少し、その後は時間の逆数に比例してゆっくりと減少する事が得られた。右図からは再飛散率の摩擦速度依存性が得られた。これによると弱い風速では再飛散率が摩擦速度の4乗に比例して増加し、より強い風速では飽和する傾向が見られる。これは強い風速では飛散した粒子が多く残っている粒子が少なくなる事によると思われる。ただし、強い風速に関しては、初期のサンプリング時間が長すぎて再飛散率が平均化されて見かけ上飽和している様に見えているものと考えられる。より正確に求めるために、現在サンプリング時間をより細かくし、設定風速を増やした実験を実施中である。

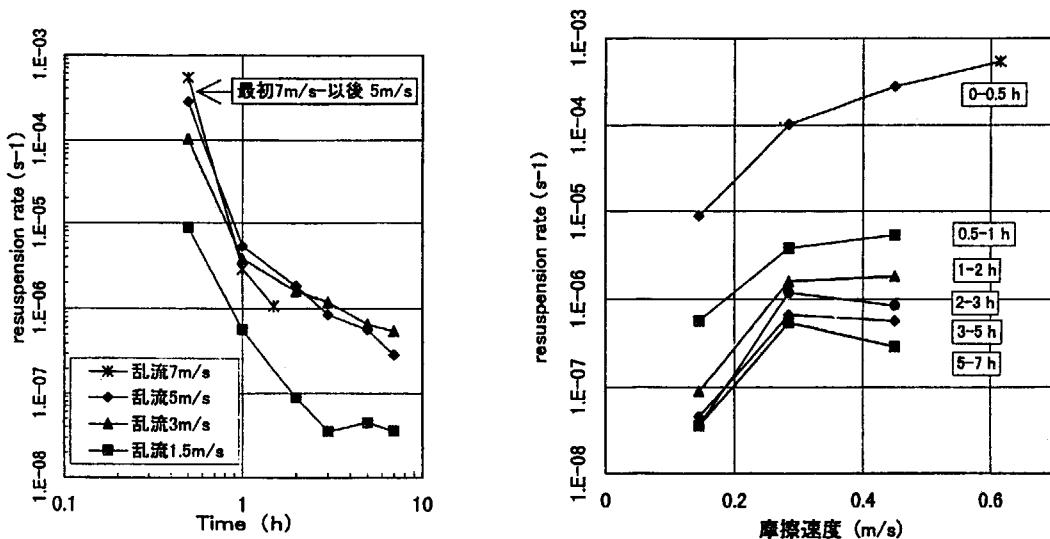


Fig. 10 Results of wind tunnel experiments. left: Time dependencies of resuspension rate, right: Friction velocity dependencies.

2. 2 野外実験

草に付着した粒子が自然環境の中で大気中に再飛散する場合、風洞実験で得られたように単に時間と摩擦速度の関数として決まるのか、あるいは他の気象要素に依存するのかを調べるために、野外での飛散実験を行った。場所は茨城県守谷町の前川製作所の構内を利用した。ここは広い敷地があり風が十分に通り易い環境にある。実験は1997年の12月4～6日（ラン1）と9～12日（ラン2）の2回行った。この時期行ったのは、粒子のリコボジウムを他の植物の花粉や胞子と見分けるため、これらの無い時期を選んだ。実験直前のサンプリングでバックグラウンドが無いことを確認した。

（1）実験の設定

Fig. 11に実験の概念図を示す。リュウノヒゲを植えたプランター（風洞実験で使用したものと同じに設定）を直径7mの円内に敷き詰めた。その中側の直径6mの範囲には別の場所で粒子を付着させたプランターを置いた。これは野外では風があるため粒子を散布により付着させるのが困難なためである。付着量は設置終了後サンプルのプランターを選び葉面に付着した粒子を水で洗い集め、計数して求めた。

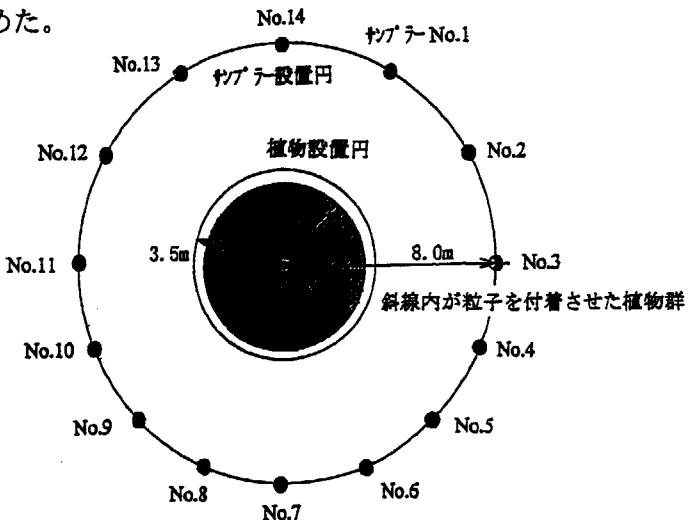


Fig. 11 Schematic diagram of field experiment. Grasses were placed in shaded area.

サンプラーは直径16mの円周（草と同心円）上に14台設置した（北風を中心に考え南側を多めにした）。これとは別に2高度のサンプリングを行い、高さ方向の分布を測定した。但し、サンプル数が少ないため全体から共通の値を求めた。

実験期間には気象要素の測定を行った。草の中心位置に超音波風速温度計を測定部が草のすぐ上になるように設定し、摩擦速度と、顯熱輸送の測定を行った。但し草の範囲が限られているので正確とは言えないが、測定領域の高さ（草上）：風上距離の比は1：17.5であり、近似的には使えると考える。また草中心から21m離れた所に4mのポールを設置し、風速分布、温湿度、日射量を測定した。

サンプリング時間は、日中は1～2.5時間、夜間は夕方から朝までを行った。サンプリング回数は総合計で日中が17回、夜間が5回である。

飛散量の計算は、サンプリング濃度と風速分布及び鉛直分布を用いて行い、これを単位時間当たりにしたものと前記の葉面付着量で割り、再飛散率とした。

(2) 結果

Fig. 12に実験結果を示す。一番上が再飛散率の時間経過で、きれいな日変化を示していることが分かる。その下が超音波による風速と摩擦速度の時間経過を示す。これも日変化を示している。他に温度、湿度、全天日射量、顕熱フラックスを示すが、これらも日変化を示している。

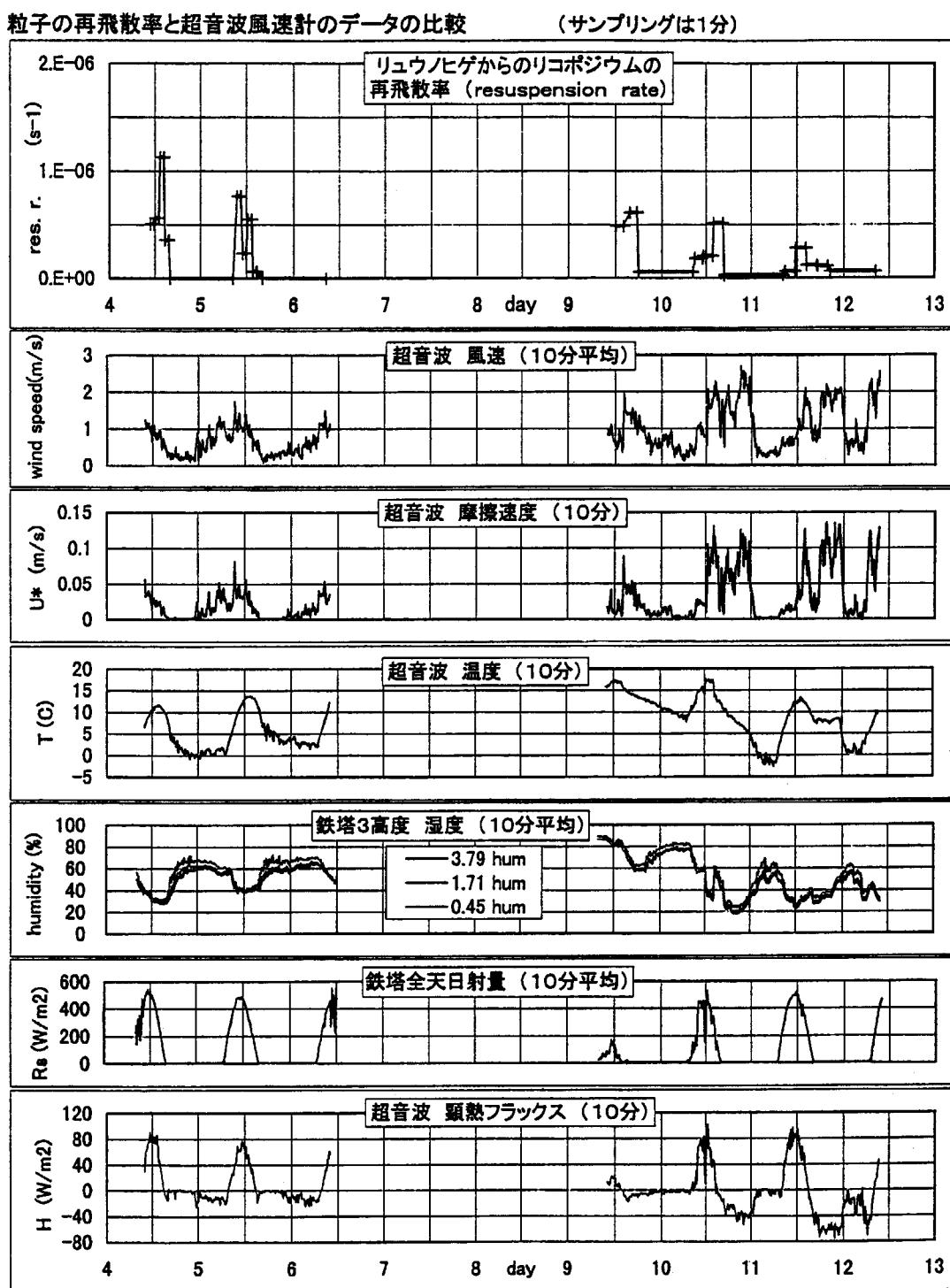


Fig. 12 Results of the field experiments.

再飛散率とこれらの関係を Fig. 13に示す。ここで有効摩擦速度 (U^{*eff}) とは、風洞では一定の風速で実験できるため摩擦速度が一定として定義できるが、野外では長時間のサンプリング時間の間に風向、風速が絶えず大きく変動し、一定の摩擦速度は得られない。通常はこのような場合その間の単なる平均をとれば良いのだが、再飛散の場合風洞の実験結果で分かるように摩擦速度の4乗に比例するため、強い風速の影響が大きくなる。そこで次のような有効摩擦速度 (U^{*eff}) を定義し、そのサンプリング期間の摩擦速度の指標とした。

$$U^{*eff} = (\int U^*(t)^4 dt / T)^{1/4},$$

$U^*(t)$ は1分毎の摩擦速度、積分はサンプリング期間、Tはサンプリング時間。

左下の図は再飛散率と有効摩擦速度をすべてのサンプリング毎にプロットしたもので、左上図はこれを散布図にしたものである。これから分かるように、大まかには有効摩擦速度の大きい時に再飛散率も大きい関係にあるが、細かく見ると大きな有効摩擦速度の時にも再飛散率が非常に小さい場合もある。そこで再飛散率と顕熱フラックスとの関係を中心の上下に、湿度との関係を右上に、温度との関係を右下にそれぞれ示した。摩擦速度以外は単なる平均値を使用した。これを見ると、これらの図で見ても再飛散率との関係があるように見られる。先ほどの有効摩擦速度が大きいのに再飛散率が小さい場合を見ると、顕熱フラックスがマイナスで最大の場合に相当し、温度もかなり低い状況であった事が分かる。これは夜間の冷却が強かった事を示し、水蒸気の葉面への露結があったことを示唆する。現に早朝には葉面に霜が降りていることが確認されている。逆に顕熱フラックスがプラスに大きいときは再飛散率が大きく、日射により葉面が急速に乾き、粒子の飛散が起きやすくなっていたと考えられる。唯一顕熱フラックスが大きいときに再飛散率が小さい場合があるが、この時は有効摩擦速度が小さい場合に相当する。次に白抜き印は粒子を散布したその日の日中のデータを示す。これらは散布した状態のままであり、飛散しやすい状況にあったが、これも日射が強く顕熱フラックスが大きいときに再飛散率が大きい傾向がみられる。このように再飛散率には有効摩擦速度と他の気象要素、特に日射・凝結・温度が影響しあっていることが認められる。

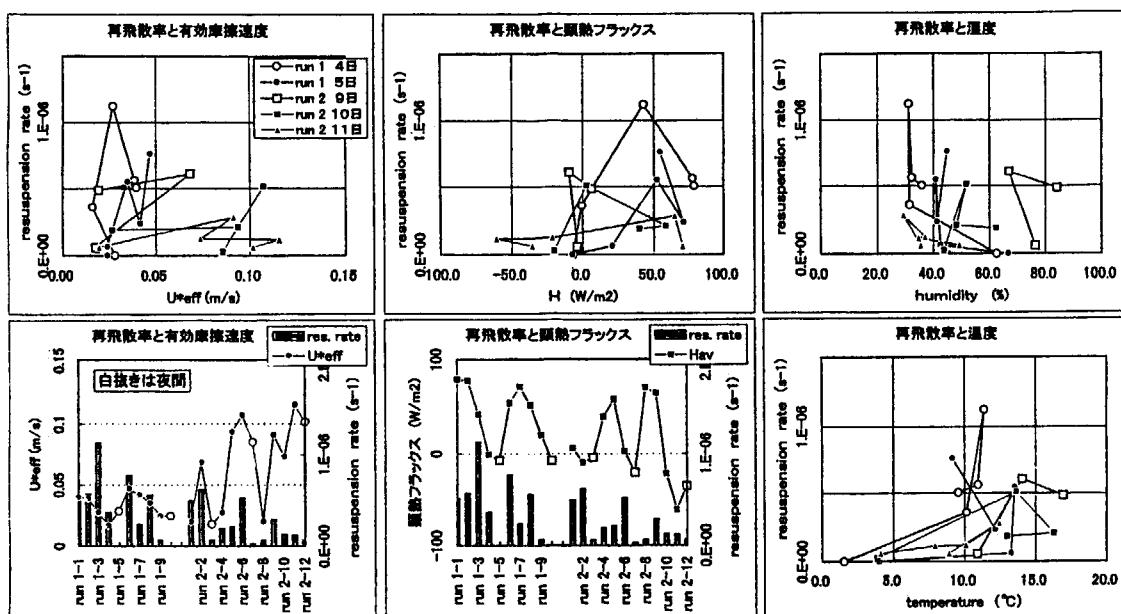


Fig. 13 Resuspension rate with effective friction velocity, sensible heat flux, relative humidity and temperature.

Fig. 14に風洞実験と野外実験の結果を一緒に示した。左の時間変化図からは、野外実験の結果も、日変化はしているが、大きくは風洞実験の延長にあり、時間の逆数に比例する傾向が見られる。右図の摩擦速度との関係では、野外実験の方が再飛散率が大きい値を示している。この原因としては2つ考えられる。1つは、野外実験と風洞実験の方法の差による系統的誤差によるもの。例えば摩擦速度の決定法、サンプラーの配置、鉛直拡散の決定法が考えられる。もう1つは風洞内は中立と考えられるが、かなり冷えた状態にあり、土面からの水分の蒸発と日射が無い状況を考えると、葉面の湿度環境は野外実験での顯熱フラックスの無い場合からマイナスの状況に近いのではないかという事が考えられ、右図でこれらはかなり近い値になっている事が分かる。

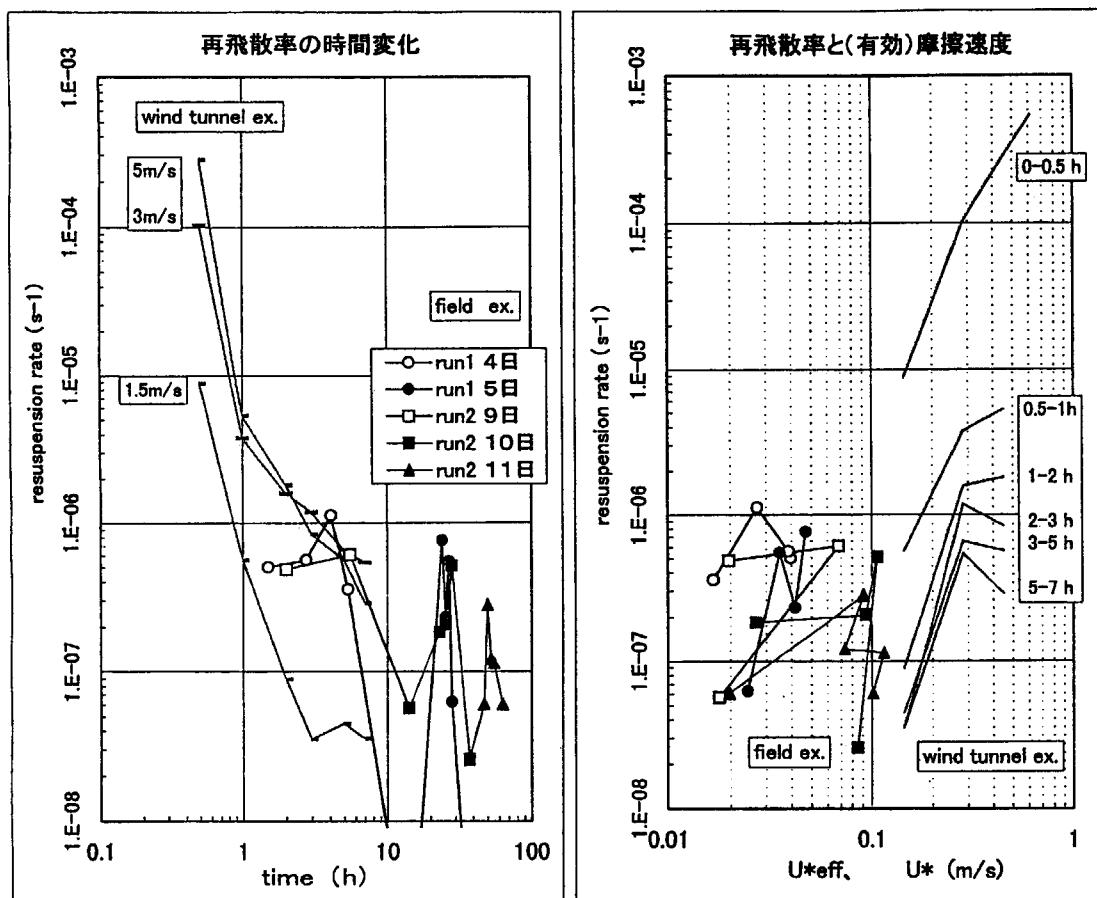


Fig. 14 Results of the wind tunnel and filed experiment

2. 3 草からの飛散のまとめ

風洞実験と野外観測から草からの粒子の飛散に関わる基本的性質が分かった。ここには示さなかったが、草のキャノピーとしての特徴も調べており、この特徴が再飛散率の摩擦速度依存性とが深く結びついているものと考えられ、この解析を現在すすめている。また樹木を使用した同様な実験を準備しており、これも草の場合と同様にキャノピーとして表現し、再飛散率をモデルの中に表現する事を計画している。

参考文献

- (1) Nicholson,K.W., 1994, *J. Aerosol Sci.*, **25**,743-744.
- (2) Garger,E.K., 1994: Air concentrations of radio nuclides in the vicinity of Chernobyl and the effects of resuspension, *J. Aerosol Sci.*, **25**, 745-753.
- (3) Hollander,W., 1994: Resuspension factors of ^{137}Cs in Hannover after the Chernobyl accident, *J. Aerosol Sci.*, **25**, 789-792.
- (4) Garger,E.K., F.O.Hoffman and K.M.Thiessen, 1997: Uncertainty of the long-term resuspension factor, *Atmos. Environ.*, **31**, 1647-1656.
- (5) Shao,Y., M.R.Raupach and J.F.Leys, 1996: A model for predicting Aeolian sand drift and dust entrainment on scales from paddock region, *Aust. J.Soil Res.*, **34**, 309-42.
- (6) Shao,Y., M.R.Raupach and P.A.Findlater, 1993: Effect of saltation bombardment on the entrainment of dust by wind. *J. Geophys. Res.*, **98**, 12719-12726.
- (7) Malcom,L.P. and M.R.Raupach, 1991:Measurements in an settling tube of the terminal velocity distribution of soil material, *J. Geophys. Res.*, **96**, 15275-15286.
- (8) Greeley,R. and J.D.Iversen, 1985: *Wind as a geological process on earth. Venus and Titan*, Cambridge University Press(Cambridge).
- (9) Bagnold,R.A., 1941:*The physics of sand and desert dunes.*, Chapman and Hall(London).
- (10) Owen,J.E., 1964:Saltation of uniform grains in air, *J. Fluid Mech.*, **20**, 225-242.
- (11) Louis,J.F., M.Tiedtke and J.F.Geleyn, 1981:*A short history of the operational PBL-parameterization at ECMWF.* Workshop on Planetary Boundary Layer Parameterization 25-27 Nov. 1981. 59-71.
- (12) Mellor,G.L. and T.Yamada, 1974: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layers, *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1791-1806.
- (13) Chadwick,R.C. and A.C.Chamberlain, 1970: Field loss of radio nuclides from grass., *Atmos. Environ.*, **4**, 51-56.
- (14) Chamberlain,A.C., 1970: Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation, *Atmos. Environ.*, **4**, 57-78.
- (15) Aylor,D.E., 1976: Resuspension of particles from plant surfaces by wind., *Atmosphere-surface exchange of particulate and gaseous pollutants*, ERDA
- (16) Taylor Jr.,F.G., P.D.Parr and F.Ball, 1980: Interception and retention of simulated cooling tower drift by vegetation., *Atmos. Environ.*, **14**, 19-25.
- (17) Garland, 1979: Resuspension of particulate matter from grass and soil, AERE-R9452, HMSO, London.
- (18) Garland,J.A., 1983: Some recent studies of the resuspension of deposit material from soil and grass, *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, volume 2.
- (19) Nicholson,K.W., 1993: Wind tunnel experiments on the resuspension of particulate material, *Atmos. Environ.*, **27A**, 181-188
- (20) Giess,P., A.J.H.Goddard, G.Shaw and D.Allen, 1994: Resuspension of monodisperse particles from short grass swards: A wind tunnel study., *J. Aerosol Sci.*, **25**, 843-857.



13. 水循環モデルの開発とトリチウム拡散への応用

山澤 弘実、永井 晴康

日本原子力研究所 環境安全研究部

植物を含む地表面での熱、水及びその他の物質の循環を動的に表すモデルの開発を実施し、現在までに物質循環の媒体としての空気及び水の動きを記述するモデル完成した。大気部分は、空気の運動方程式、熱保存式、乱流クロージャモデル等から構成される。土壌部分は、液体水、水蒸気および熱の保存式から構成される。大気と土壌は、熱および水収支式により結合されている。植生は、現在のところ容量の無い物体として取り扱われているが、葉面水滴の形成と蒸発、気孔からの蒸散、日射・放射の遮断は考慮されている。

このモデルは地表面の物理過程の枠組みを提供するものであり、直ちに特定の物質循環評価に用いるには不完全であるが、応用例に示した一般的な気象データからの地表面水・熱収支の解析や、大気モデルの地表面サブモデルとしての利用等、現時点でもその有用性は高い。また、HTO拡散評価の例で示したとおり、特定の物質の輸送過程サブモデルを組み込むための土台としての活用が考えられる。

キーワード：水循環、大気－土壌－植生複合系、トリチウム拡散、数値モデル

Development of Water Circulation Model and Application to Tritium Diffusion

Hiromi YAMAZAWA and Haruyasu NAGAI

Department of Environmental Safety Research, Japan Atomic Energy Research Institute

A numerical model of the ground surface with vegetation is being developed to dynamically model circulation of heat, water and other materials. At present, coding has been done for the movement of air and water, which are media of material transfer. The atmospheric part of the model consists of momentum equations, a conservation equation for heat and a turbulence closure model. The soil part consists of conservation equations for liquid water, water vapor and heat. The both parts are connected with the ground surface heat and water budget equations. Although the vegetation has no heat capacity, the model considers formation and evaporation of liquid water on leaves, transpiration from stomata and shielding of solar and atmospheric radiations.

Since this model describes the physical processes at the ground surface, it is not directly applicable to assessment for circulation of certain material. However, the model can be applied to ground surface heat and water budget analyses, and to atmospheric models as a surface sub-model. As shown in the application to an HTO transfer simulation, the model can also be used as a framework which a material transfer sub-model is built in.

Keyword: Water Circulation, Atmosphere-Soil-Vegetation System, Tritium Diffusion, Numerical Model.

1. モデル開発の背景と基本方針

大気中に放出されたトリチウムガスは、地中の微生物の酸化作用または極僅かに大気中の光化学反応によって HTO に変換される。その後の自然環境中でのトリチウムの挙動は、水の挙動と類似したものとなる。従って、トリチウムの環境中挙動をモデル化するためには、大気－植生－土壌の複合系（地表面複合系）での水挙動のモデルが必要となる。また、その他の核種、物理量（熱、運動量等）、大気汚染物質、温室効果ガス等の複合系内での挙動についても、その全体像把握のためには物理量・物質の複合系内での挙動の詳細なモデル化が必要となっている。

複合系での水の動きは極めて複雑である。まず自然環境下では水は個体、液体、気体の三相で存在する。また、降水量、風速等の気象学的要因、植物の種類、成長段階、活動度等の生物学的要因、土壌の種類、状態等の地質学的要因が水の動きを支配している。さらに、多くの水の動きは相変化を伴うため、そのエネルギー源として日射や大気放射が重要な役割を果たし、熱の動きも無視できない。これらの要因が小さな時間・空間スケールで変動することと、相互に依存性を持つことも問題をさらに複雑にしている。

地表面環境での核種移行を含む物質循環解明のための実験的アプローチ、特に屋外実験・測定は、この複雑さの影響を強く受ける。得られたデータ（現象）を解析する上で重要なのは、その現象を既知の部分と未知の部分に分けることと、普遍性のある部分とその対象（土壌・植物）に特異な部分に分けることである。モデルによって再現できる部分、すなわち既知の部分については、多くの労力を要する実験的アプローチの必要性は低く、それは未知の部分へ振り向けられるべきである。現象の因果関係を頭の中で思索するには、地表面環境はあまりに複雑である。筆者らは、既知の部分が多く、普遍性の高い地表面複合系の物理機構のモデル化と、それを用いた数値実験が、研究手法として極めて有効であると考える。

本研究では、複合系での物理機構について、できる限り詳細なモデルの枠組みを構築し、素過程については基礎的な実験と理論による知見を組み込むことにより、野外での総合的な実験と対置できる本来の意味での数値実験が可能なモデルを目指す¹⁾。この目的で、大気－植生－土壌複合系内の水、熱、運動量、及び他の関連物理量の挙動を表す数値モデル SOLVEG の開発を進めてきた²⁾。モデルで用いる方程式は、物理的または関連分野で確立されたものとして認知されているものののみを採用することとし、不確実な係数やモデルパラメータを可能な限り排除することを基本方針とした。

2. モデル内容

モデルの全体像を Fig. 1 に、モデルで扱う地表面近くの水の動きを Fig. 2 に示す。大気部分は既に開発した大気力学モデル PHYSIC³⁾を用いる。従って、SOLVEG は大気力学モデルの地表面サブモデルとしての役割を果たすとともに、後述するように単体としても使用できる。対象とする空間スケールは、土壌中では表面下数 10cm から 1m 程度の不飽和土壌、大気中では植生層または接地層の範囲（10 m のオーダー）である。PHYSIC は、大気境界層（1 km のオーダー）または対流圏（10 km のオーダー）を対象とする。モデルは、大気中は 3 次元、地表面以下は鉛直 1 次元の運動量、熱、水蒸気、液体水等の保存（移流・拡散）方程式群と、境界面でのフラックスの連続関係を表す収支式群から構成される。1 次元の部分は、3 次元の大気部分の底面にタ

イルを敷き詰めるように（2次元的に）配置され、モデル全体としては3次元となる。現在は地表面部分を中心にモデル検証を進めており、その中では大気部分は便宜上鉛直1次元として扱っている。モデル方程式は差分法によって解く。時間増分は格子間隔によって異なるが、通常は数秒から10秒程度である。時間スケールは、日変化から経年変化までを対象とする。

2. 1 植生層および接地層大気

以下の物理量の空間分布及びその時間変化を評価するモデルである。

植生層大気の風速成分、乱流場、温度、比湿、液体水分量（霧水量）

葉面温度、葉面液体水分量

これらに関連する植生内の素過程として以下を考慮する。

水循環

気孔からの蒸散(土壤からの水の吸い上げ)

葉面水滴からの蒸発及び凝結による葉面水滴形成(水蒸気交換)

葉面による降水の遮断、葉面水滴の滴下(液体水フラックス)

霧の発生・消散、霧水の葉面及び降水による捕捉

水滴からの蒸発

熱循環

葉面-植生層内大気間の顕熱・潜熱交換

葉面による日射及び長波放射の吸収、反射、射出、及び透過(放射伝達)

大気中の液体水（霧水及び雨水）の日射及び長波放射に対する影響

大気の乱流拡散及び移流による顕熱、及び水蒸気（潜熱）フラックス輸送

大気中水分の相変化に伴う潜熱の吸収・解放

運動量

葉面の空気力学的抵抗及び乱流生成

大気の乱流拡散及び移流による運動量、乱流運動エネルギーの輸送

以上の素過程の他に、地表面-大気間の顕熱、水蒸気及び運動量交換、地表面による日射及び長波放射の吸収、反射及び射出(長波放射のみ)を考慮する。また、植生層内外では、顕熱、水蒸気、液体水及び放射のフラックスの連続性を満たすものとする。

2. 2 土壌

以下の物理量の空間分布及び時間変化を評価するモデルである。

土壌の温度（地温）

土壌の体積含水率（液体水）

土壌中空気の比湿

これらに関連する土壌中の物理過程として以下を考慮する。

土壌中の熱伝導及び水分（液相及び気相）輸送と相変化

根による水分の吸い上げ(蒸散)

地表面での日射及び長波放射の吸収、反射、射出(長波放射のみ)

大気-地表面間の顯熱交換及び水蒸気交換(結露を含む)

地表面への降水

根及び幹を通した熱輸送は微少なため無視する。地表面には土壤の飽和含水率を越えた水分(過剰水分)が存在することができるが、地表面での流出(水平方向のフラックス)は現在のところ無いものと仮定する。ただし都市域等の特殊な場合は過剰水分の全部または一部は消失すると仮定するのが現実的であろう。これは排水溝による排水等の過程を表す。また、現在のところ本モデルには積雪またはその他の固体相の水は含まれていない。

2. 3 大気

大気部分は、大気力学モデル PHYSIC をベースとするが、最終的には、さらに雲および降水をモデル内部で直接計算できるようにモデルの開発を進めている⁴⁾。PHYSIC では、大気の運動方程式、熱保存式、乱流クロージャーモデル、放射等により、風速、温位、乱流拡散係数、大気放射、日射等を計算する。詳細は省略する。

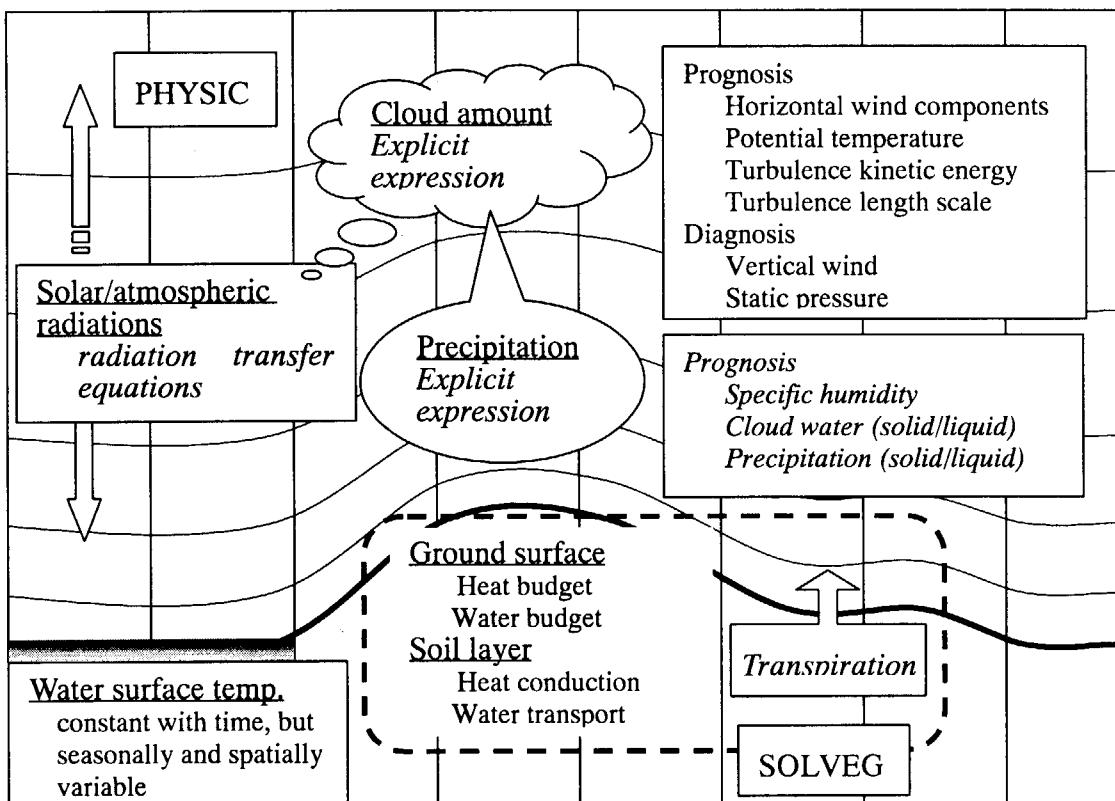


Fig. 1 モデルの全体像。斜体文字は現在作成中の部分。

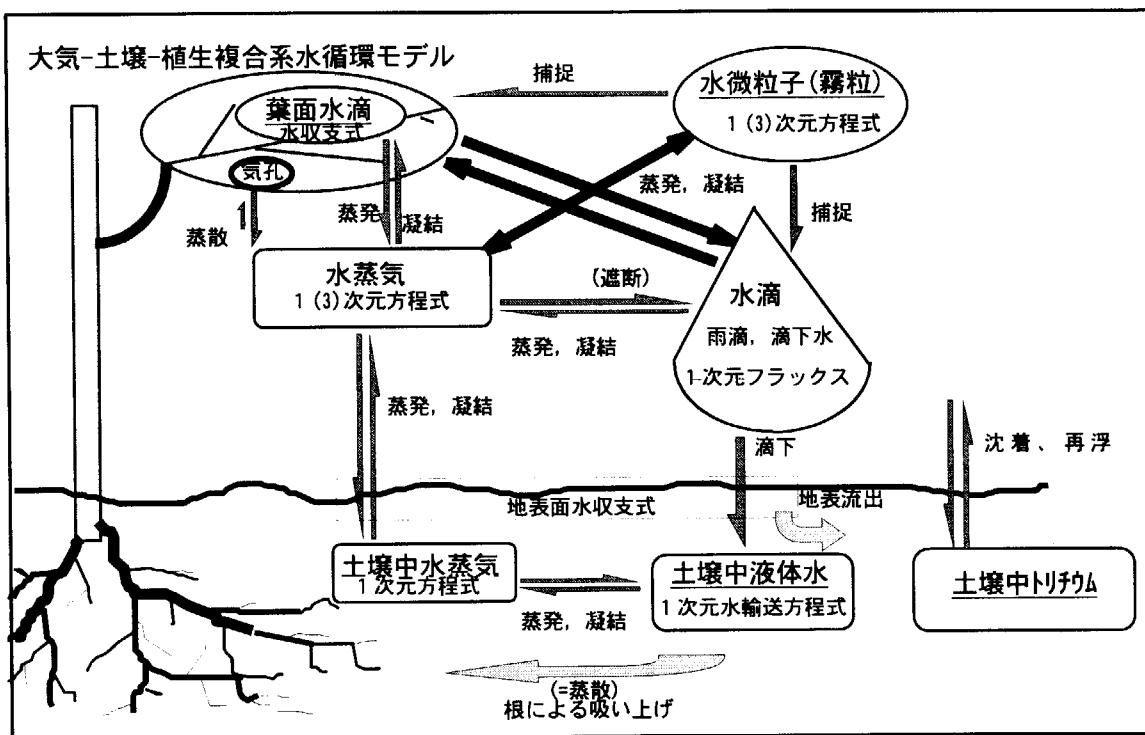


Fig. 2 水循環モデル SOLVEG の模式図

3. モデルの制約

モデルをある対象に適用する際には、外的な気象条件を除けば、以下の情報が必要である。モデルには予め標準的な値または関数形が設定されており、土壤特性については土壤種類の指定のみで計算が可能であるが、特定の対象を詳細に計算する場合には別途実験により決定しなければならない。

- (1) 土壤特性（熱伝導率、飽和含水率、不飽和透水係数曲線等）：米国農務省分類の 12 種の土壤については係数が与えられている⁵⁾。土壤中の水分輸送仮定を詳細に扱う場合には、新たに係数および関数形を設定する必要がある。
- (2) 土壤の蒸発抵抗：ローム、砂及び細砂に対して得られた関数形を上記 12 種の土壤に当てはめて用いている⁶⁾。土壤が湿潤か乾燥の極端な場合には影響しない係数であるが、土壤の乾燥過程を問題とする場合は、実験による関数形決定等の考慮が必要である。
- (3) 植生の幾何学的特徴（葉面積密度分布）及び気孔抵抗：前者については、個々の対象毎に設定する必要がある。後者については日射及び土壤水分量の関数として設定されている。これらは降水や日射の遮断、蒸散等に影響するが、熱収支では放射収支量、水収支では降水量及び土壤水分量により総量が決められるため、これらパラメータの不確実さの影響は巨視的にはそれほど大きないと考えられる。

4. 適用例

4. 1 地上気象データからの水・熱収支解析

SOLVEG の大気側の入力として、PHYSIC からの情報の代わりに通常の地上気象観測で得られる風速、気温、湿度、日射量（大気放射量）、降水量を入力として、裸地面からの顯熱、潜熱（蒸発散量）、地下浸透量等の水・熱収支年間評価を行った。用いたデータは、IAEA 主催の BIOMASS プロジェクトのシナリオ 2 で用いられているもので、ドイツでの 1 時間毎の実測データである。計算では、地下 1 m に地下水が存在する砂質ローム裸地土壤を対象とし、平衡状態を初期条件とした。

Fig.3 に水・熱収支の特徴的な変化を示す。図の期間の前 1 週間には、ほとんど降水がなく表層土壤が乾燥し、図の最初の 2 日間は蒸発量が極めて小さい。この段階では、乾燥による蒸発抵抗の増大と、不飽和透水係数の減少による深層からの補給の減少が表面からの蒸発の律速段階になっている。3 日目に 3 mm 程度の降水があったが、1)日射量が小さいこと、2)風が弱いこと、および 3)土壤の湿潤度が十分に回復していないことにより、蒸発は小さいままである。その後、5 日目の強い降水を含めて連続した降水があり、蒸発量も大きくなっている。特に、5 および 6 日目には、強い風により蒸発が促進され、その潜熱を補うために日中であっても下向きの顯熱フラックスが見られる。また、7 日目には、表層からの蒸発を補うために、深層からの顯著な水分補給が見られる。

以上のように、本モデルによる計算結果は定性的には合理的である。また、土壤中の体積含水率や温度を予報的に扱い、その履歴および深さ方向の分布の影響を考慮できる点で、本モデルは従来の Penman 法等の診断的アプローチより優れている。モデルの定量的な再現性については、水および熱フラックスの測定を含めた観測データを用いて現在検証中である。

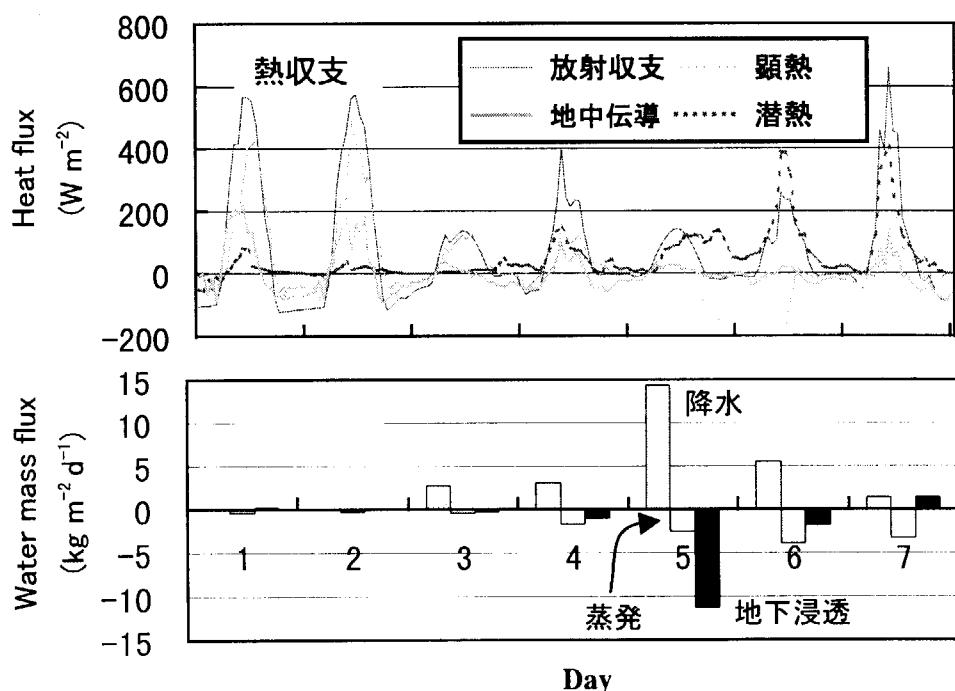


Fig. 3 地上気象データを用いた地表面での水・熱収支の計算例（9月 4 日からの 1 週間）
水収支は、地表から 5 mm までの層についてであり、収支の不釣合いはその層内の
増減分に相当する。

4. 2 HTO の土壤中拡散と地表面からの蒸発のモデル化

水循環モデルを土壤中 HTO 拡散に適用した。対象は前節と同じ裸地面である。HTO は化学的には水と同じであるため、他の核種と異なり、比較的単純にモデル化できる。モデルで用いた土壤中の水および HTO の支配方程式の構成は以下のとおりである。

液体水鉛直 1 次元輸送方程式

水蒸気鉛直 1 次元拡散方程式

HTO 鉛直 1 次元移流拡散方程式（土壤液体水中 HTO：液相）

HTO 鉛直 1 次元拡散方程式（土壤空気中 HTO：気相）

土壤水中 HTO については液体水の移動に伴う移流および分散と分子拡散を考慮した。土壤空気中の HTO は分子拡散のみを考慮した。また、土壤中での気相－液相交換を考慮した。

これらの中で取り扱いが難しいのは、1) 半乾燥土壤からの蒸発および 2) 大気との交換である。単位体積土壤中での液体水からの水の蒸発 \hat{E}_b [kg m⁻³s⁻¹] および HTO の蒸発 \hat{e}_b [Bq m⁻³s⁻¹] は、次の式で評価する。

$$\hat{E}_b = \frac{\rho_a}{r_b} [q_{sat}(T_s) - q_s]$$

$$\hat{e}_b = \frac{\rho_a}{r_b} \left[\frac{q_{sat}(T_s)\chi_w}{\rho_w} - \frac{\chi_s}{\rho_a} \right]$$

ここで、 ρ_a は空気の密度、 ρ_w は水の密度、 T_s は土壤温度、 χ_w は土壤水中 HTO 濃度[Bq m⁻³water]、 χ_s は土壤空気 HTO 濃度[Bq m⁻³air] である。すなわち、土壤液体に接する空気の比湿はその温度での飽和比湿 $q_{sat}(T_s)$ であり、土壤中比湿 q_s との差が蒸発の駆動力となっている。蒸発の抵抗 r_b は、体積含水率の関数であり、基礎的な実験に基づく文献値を採用した。抵抗は、土壤水が十分にある場合には小さい値となり、土壤空気が飽和に近い状態を保つのに十分な量の水蒸気が蒸発する。一方、土壤が乾燥してくると、土壤中の水分が小さな空隙内にしか存在せず、抵抗が大きくなる。そのため、土壤空気は未飽和状態となる。このような状態は、降水が無い期間の表層土壤に見られる。HTO についても同様の取り扱いであるが、水の蒸発とは独立である。従って、水と HTO の動きは必ずしも同一ではない。

地表面での大気との交換は、液体で地表面まで運ばれてそこで蒸発するフラックスと地表面下から気体で拡散するフラックスの和が、大気に向かうフラックスと等しいという連続の条件を用いて表す。ここで蒸発と記述した部分は、その逆方向の動きである凝結も含み、蒸気の動きは比湿（水蒸気または HTO 分圧）の勾配に依存する。

4. 3 HTO 移行の計算結果

IAEA 主催の BIOMASS プロジェクトのシナリオ 2 に対して、上記のモデルを適用した。同シナリオの概要は以下のとおりである。

- ①砂質ローム土壤裸地面の地下 1m に 1×10^7 Bq/m³ の HTO 汚染地下水が存在する。地下水位および汚染濃度は変化しない。また、大気の HTO 汚染はないとする。
- ②不飽和透水係数等の土壤特性に関する関数形、HTO の分子拡散係数 (1×10^{-9} m²/s) 、

分散係数 (0.05 m) は既知である (与えられている)。

③初期には、地下 1m までの土壤水分は平衡状態で、HTO 汚染がない。

④地上気象観測データが与えられている (4. 1 節参照)。

シナリオでは、地中 HTO 濃度分布、水および HTO の地表面からの蒸発量について最初の 1 年間分の計算が要求されたが、ここでは濃度分布が平衡状態に達するまでの様子を見るために、30 年分の計算を行った。気象データは、1 年分を周期的に用いた。

Fig.4 に 30 年分の濃度の時間変化を示す。図中の破線は、シナリオの条件を簡単化し理論的に求めた地表での平衡濃度である。地表の濃度は、最初の 5 年間は大きな変化を示すが、10 年程度ではほぼ平衡状態に達し、ほぼ理論値と一致する。しかし、降水および蒸発の影響を強く受けるため、約 1 衍程度の変動を示す。また、全層にわたって大きな濃度勾配が維持される。

降水時および降水後の乾燥に向かう期間の濃度変動に着目する。Fig.5 に計算開始から 3 年目の 4 月から 5 月に相当する期間の土壤中の液体水フラックスおよび HTO 濃度の時間変化を示す。図の 100 から 120 日目にかけてと、125 から 145 日にかけては無降水であり、降水によって湿润になった表層土壤が徐々に乾燥した期間である。その期間、特に後者の最後の部分では、土壤の乾燥にともない地下からの水分補給が極めて小さくなっている。それに対応し、表層の HTO 濃度が顕著に減少している。これは、水蒸気は地表面で蒸発・凝結の両方起こり得るが、HTO は蒸発のみが起こっているためであり、巨視的には HTO-H₂O 交換として捉えられる現象である。一方、降水が有った場合には、短期的には希釈により濃度が減少するが、その後、土壤の湿润化にともなう水分移動の増加により、長期的には濃度は増加傾向にある。

以上の結果は、地下に汚染源が有り、深さ方向に大きな濃度勾配が存在する場合には、降水による水分の地下浸透は、短期的には希釈と下向きの移流により地表濃度を低下させるが、長期的には水分移動の増加にともなう分散と上向き移流の増大を引き起こし、全体で見れば表層の高濃度化と蒸発量の増加の要因となっている。

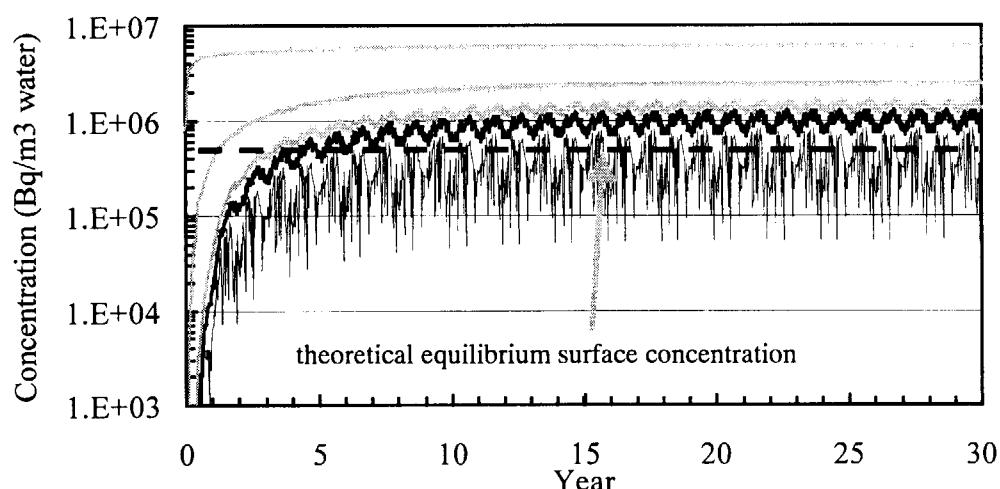


Fig.4 BIOMASS シナリオに基づく土壤水中トリチウム濃度の 30 年間の変動の予測結果。

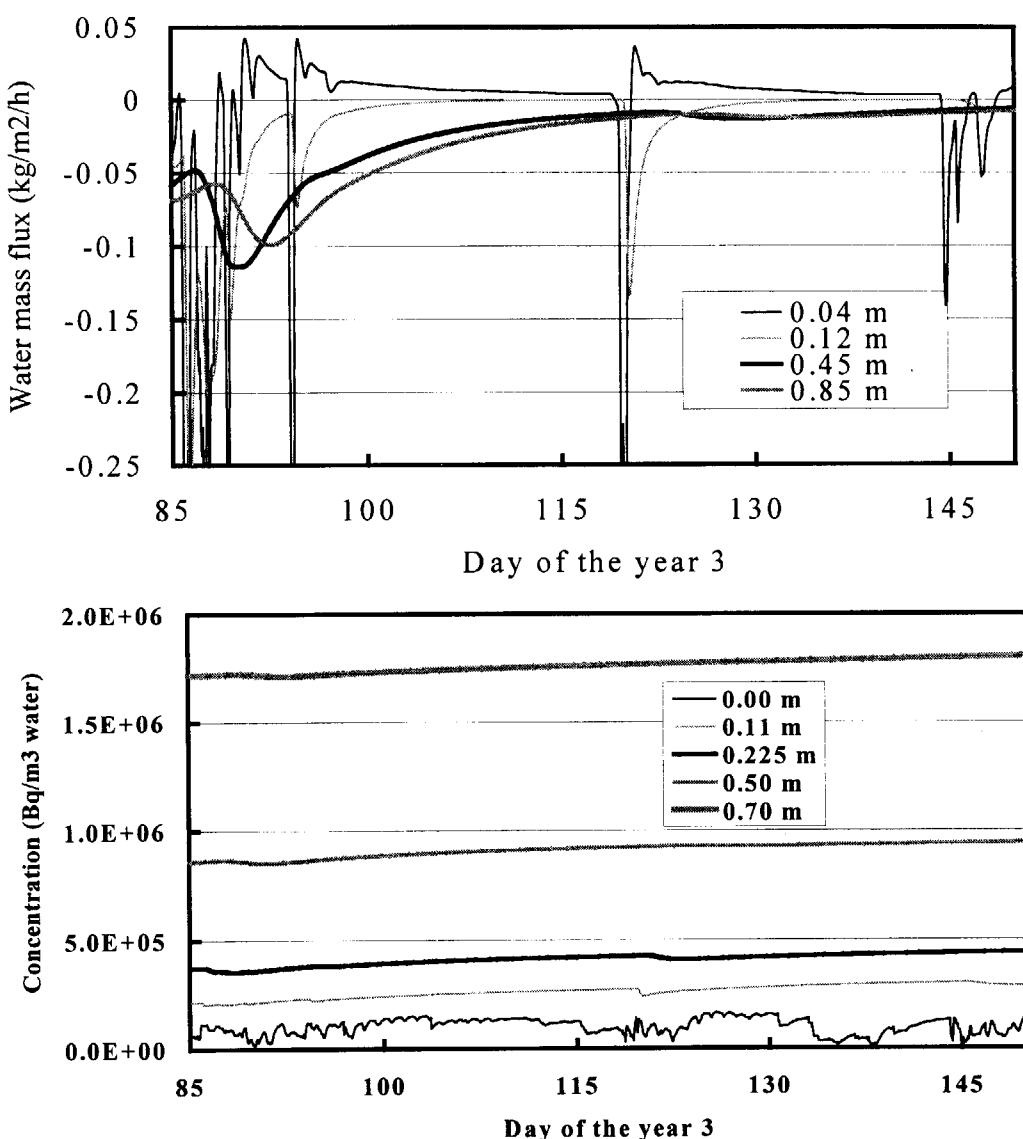


Fig.5 BIOMASS シナリオに基づく土壤水鉛直フラックス（上図）と HTO 濃度（下図）の変動。土壤水鉛直フラックスは正が上向きで下層からの水分補給を意味する。

5. 結言

本研究で開発中のモデルは、複合系での核種移行媒体挙動の物理機構についての詳細な枠組みである。モデル開発では、現象の観察・実験による定式化（素過程モデル）、素過程モデルと普遍的な保存関係を組み合わせた総合的数値モデルの構築の2段階が必要であるが、本研究では後者に力点を置いたものである。適用例で示したとおり、比較的単純な問題設定に対しても、全体のプロセスを組み上げて計算したところ、HTO拡散と土壤の湿潤状態の関係について当所予想しなかった興味深い結果が得られた。また、この適用例の場合、HTOの液相での輸送と気相での輸送の相対的重要性の評価、蒸発抵抗の濃度分布およびHTO蒸発量への影響評価等を行う予定である。

移流計算、拡散計算および全体の保存関係の維持が正しく行われているかについては、解析解との比較により容易に確認することが可能であり、本モデルでも新たな部分を追加する度に行っている。そのため、一旦このようなモデルを構築すると、上記のような各プロセスおよびパラメータの重要性の評価や、実験的に得られた素過程モデルが最終結果にどのように影響するのかを知ることが比較的容易に可能である。逆に、モデル計算による実験の最適化も可能であろう。

参考文献

- (1)山澤弘実、天野 光：大気-土壤-植生複合系での水及び放射性物質移行に関する研究（原子力基盤クロスオーバー研究の現状と今後の展開）、原子力工業、42, No.8, 49-53 (1996).
- (2)山澤弘実、永井晴康：大気-裸地土壤 1 次元モデル開発、JAERI-Data/Code 97-041, (1997).
- (3)山澤弘実：高精度拡散評価モデル P H Y S I C, JAERI-M 92-102, (1992).
- (4)古野朗子、山澤弘実：湿潤大気力学モデルの開発、JAERI-Code/Data 98-, (in press).
- (5)Pielke, R. A.: "Mesoscale meteorological modeling", pp.391-398, Academic Press, (1984).
- (6)Kondo, J. and N. Saigusa: Modelling the evaporation from bare soil with a formula for vaporization in the soil pores, *J. Meteor. Soc. Japan*, **72**, 413-421, (1994).



14. 環境中トリチウム移行モデル-ETDOSE-の開発

安藤麻里子 高橋知之 天野 光

日本原子力研究所 環境安全研究部

原子力施設から大気中に放出されるトリチウムの環境中移行挙動をパソコンで評価する簡易コード ETDOSE を開発中である。ETDOSE は HT 及び HTO の大気中拡散、地表への沈着、HT であれば地表に棲息している微生物による HTO への酸化、土壤から大気への再放出、HTO としての大気及び根からの植物中への取り込み、植物中での HTO から OBT への転換等がモデル化され、それぞれの環境媒体中濃度及び公衆の被ばく線量が評価できる。このコードの概要及び、コードの検証として国際原子力機関 (IAEA) の主催による国際モデル検証プログラム BIOMASS (BIOsphere Modelling and ASSEssment method) の定常大気放出時の環境中濃度予測シナリオについて解析を行った結果を報告する。

DEVELOPMENT OF AN ENVIRONMENTAL TRITIUM MODEL; ETDOSE

ANDOH Mariko, TAKAHASHI Tomoyuki and AMANO Hikaru

Department of Environmental Safety Research, JAERI

ETDOSE is a simple computer code to calculate atmospheric distribution patterns of tritium for an acute and a chronic release of HT and HTO. This code calculates tritium concentrations in air, soil, plant free water and OBT, and estimates dose impact by inhalation of air and ingestion of food. Participation in IAEA's model validation program BIOMASS has been done using this code for BIOMASS Scenario 1. This paper shows the outline of ETDOSE and preliminary results of model comparison in BIOMASS program.

Keyword : Tritium, Environmental transfer model, ETDOSE, Model comparison, BIOMASS

1. はじめに

核融合開発の進展に伴い、燃料として用いられるトリチウムの安全評価の必要性が高まっている。トリチウムは水素の同位体であり、水の構成元素として広く環境中に分布する。また、水素化合物である有機物等に容易に組み込まれ、食物連鎖を通じて人体に摂取されることになる。トリチウムはガス(HT)と水(HTO)、有機態(OBT)のそれぞれの化学形で体内に摂取された時の被ばく線量換算係数が異なる。このため、トリチウムの挙動をモデル化するためには、このようなトリチウムの特徴、化学形の変化による挙動や被ばくの様子の違いを加味しなければならない。筆者等は使用者がパソコンで容易にトリチウムによる線量評価を行うことが可能なコードとしてETDOSE (Environmental Tritium model for DOSE estimation) の開発を進めている。最終的には平常運転時及び事故放出時の両方に対応できるコードの作成を計画しているが、現在、平常運転時の濃度及び被ばく線量を評価する部分について整備を進めている。Fig. 1 に ETDOSE で扱っている環境中トリチウムの移行経路について示す。核融合研究や原子力利用により大気中に放出されるトリチウムの化学形は HT と HTO が大部分である。放出されたトリチウムは土壤への沈着、HT 放出であれば土壤表面での微生物による HT から HTO への転換、地表面からの再放出、植物による吸収と光合成による OBT の生成など化学形を変化させながら地表環境中を移行する。

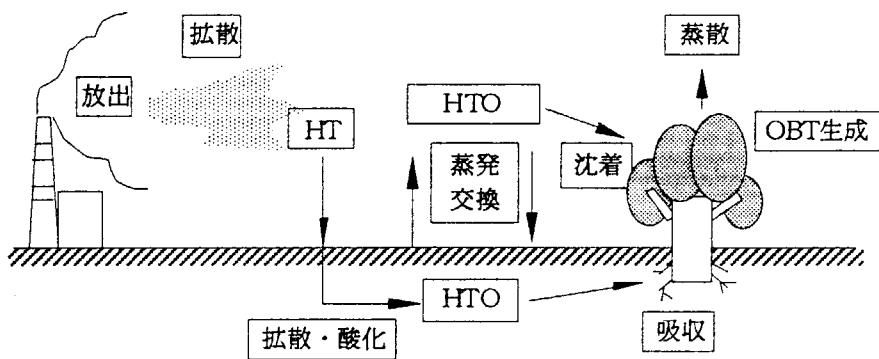


Fig. 1 環境中トリチウム移行の概念図

2. コードの概要

2-1 評価項目

ETDOSE は環境媒体中トリチウム濃度と被ばく線量を評価することができる。それについて以下に示す。

環境媒体中トリチウム濃度：

- ・任意の高さの大気中 HT 及び HTO 濃度(Bq/m^3)
- ・任意の高さの大気水分中 HTO 濃度($\text{Bq}/\text{kg-H}_2\text{O}$)
- ・土壤水分中 HTO 濃度 ($\text{Bq}/\text{kg-H}_2\text{O}$)
- ・植物における自由水中 HTO 濃度 ($\text{Bq}/\text{kg-H}_2\text{O}$)
- ・植物における有機結合型トリチウム(OBT)濃度 ($\text{Bq}/\text{kg-H}_2\text{O}$ 等量)
- ・土壤深部への HTO フラックス ($\text{Bq}/\text{m}^2/\text{y}$)

被ばく線量：

- ・吸入による被ばく線量（大気中 HT 及び HTO）
- ・植物の摂取による被ばく線量（植物自由水中 HTO、植物中 OBT）

2-2 大気モデル

ETDOSE では大気拡散モデルとしてガウスプルームモデルを使用しているが、計算方法による評価結果の違いを比較するために、現在 3 つの方法を選択できるようになっている。一つは水平方向の濃度分布を考慮し、正規分布で表わすモデルでここではこれを便宜的に「ガウスプルームモデル」と呼ぶ。このガウスプルームモデルについては計算者が任意に決めたサイズのメッシュ毎に濃度を計算する等間隔メッシュ法で計算している。他の二つは、水平方向の濃度分布がある角度内で均一化されると仮定している。このモデルをここでは「長期平均モデル」と名付ける。長期平均モデルについては、等間隔メッシュ法と数値積分法の二つの計算方法を選択できるようになっている。以下にそれぞれのモデルについて式を示す。

- 1) ガウスプルームモデル：鉛直方向、水平方向の両方に正規分布

$$X(x, y, z) = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \exp\left(\frac{-y^2}{2\sigma_y^2}\right) \left[\exp\frac{-(z-h)^2}{2\sigma_z^2} + \exp\frac{-(z+h)^2}{2\sigma_z^2} \right] \quad (1)$$

ここで、

$X(x, y, z)$	： 地点(x, y, z)におけるトリチウムの濃度 [Bq/m ³]
Q	： トリチウムの放出速度 [Bq/s]
u	： 平均風速 [m/s]
σ_y, σ_z	： 水平及び垂直方向の濃度分布の広がりのパラメータ [m]
h	： 実効放出高さ [m]
x, y, z	： それぞれ、プルームの風下距離、風下方向を水平に横切る座標上のプルーム 中心線からの距離、及び地表面からの垂直距離 [m]

- 2) 長期平均モデル：鉛直方向に正規分布、水平方向にある角度内で一様分布

プルームの水平方向の濃度分布が全方向に均一化されると仮定すると、(1)式は次のように簡略化される。

$$X(x, y, z) = \frac{Q}{2\pi\sqrt{2\pi}\sigma_z u} \left[\exp\frac{-(z-h)^2}{2\sigma_z^2} + \exp\frac{-(z+h)^2}{2\sigma_z^2} \right] \quad (2)$$

トリチウムについて大気中濃度を求める場合、放出源から観測点へ直達するプルームのみでなく、いったん地表面に沈着した後再放出されたトリチウムについても計算に加えなければならない。HT ガスの場合土壤に沈着した後、土壤微生物の作用で HTO へ酸化される過程を考慮する必要がある。そこで、ETDOSE では、HT、HTO どちらの放出の場合にも、再放出される化学形は HTO であると仮定している。また、土壤に沈着したトリチウムは全量再放出されると仮定している。土壤に沈着するトリチウムは土壤表面の大気中トリチウム濃度に沈着速度をかけることで求められる。観測点での HTO 濃度は、HTO 放出の場合、放出源から直達した HTO に加えて風上側

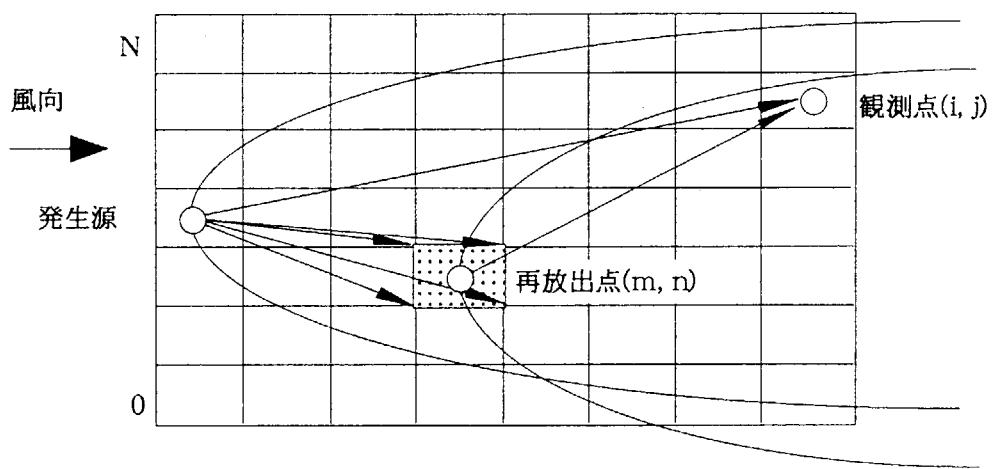
の全ての地表に沈着後再放出された HTO の寄与を加えることで計算される。HT 放出の場合は、すべて風上側で再放出された HTO に起因する。再放出を考慮した観測点での大気水分中トリチウム濃度は以下の式で表される。また、等間隔メッシュ法及び、数値計算法の概念図をそれぞれ Fig. 2, Fig. 3 に示す。

a) 等間隔メッシュ法

$$C_{aw}^s(i,j) = X_{aw}^s(i,j) + \sum_{n=0}^{N} \sum_{m=0}^{m=i} \alpha v s A(m,n) T(i-m, j-n + N/2) \quad (3)$$

- $C_{aw}^s(i,j)$: 観測点での大気水分中トリチウム濃度 [Bq/m³]
- $X_{aw}^s(i,j)$: 観測点での直達プルームによる HTO 濃度 [Bq/m³]
- $A(i,j)$: 各メッシュの土壤表面の平均トリチウム濃度 [Bq/m³]
- $T(i,j)$: HTO が 1Bq/s の放出速度で土壤から放出した時の観測点での HTO 濃度
[(Bq/m³)/(Bq/s)]
- α : 再放出率 (= 1)
- v : HT または HTO の地表面への沈着速度 (m/s)
- s : メッシュの面積 (m²)

ここで、X, A, T はガウスプルームモデル、長期平均モデルでそれぞれ式(1)、式(2)を用いて求められる。



観測点におけるHTO濃度 =
風上側空間要素からの再放出の寄与の総和 + 発生源からの直接寄与(HTO放出の場合)

Fig.2 等間隔メッシュ法による再放出の解析の概念図

b) 数値積分法

$$C_{aw}^s = X_{aw}^s + \int_0^l f(x, h, Q) v g(l-x, z, 1) 2 \min(x, l-x) \tan \frac{\theta}{2} dx \quad (4)$$

$$\min(x, l-x) : x \leq l/2 : \min(x, l-x) = x$$

$$x > l/2 : \min(x, l-x) = l-x$$

$$f(x, h, Q) = \frac{Q}{2\pi x \sqrt{2\pi} \sigma_z u} 2 \exp \frac{-h^2}{2\sigma_z^2}$$

$$g(l-x, z, 1) = \frac{1}{2\pi(l-x) \sqrt{2\pi} \sigma_z u} 2 \exp \frac{-z^2}{2\sigma_z^2}$$

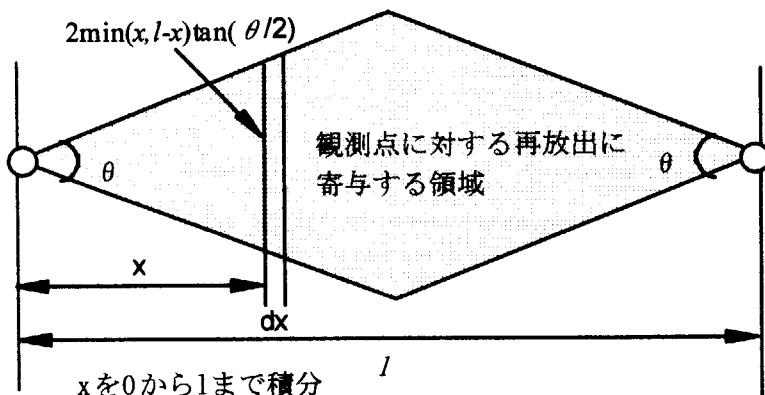


Fig. 3 数値積分法による再放出の解析の概念図

2-3 その他の環境媒体中濃度の評価モデル

観測点及び、観測点地表面の大気水分中トリチウム濃度より、土壤水分中HTO濃度、植物自由水中HTO濃度、植物有機結合型トリチウム濃度が計算できる。それぞれの評価モデルを以下に示す。

1) 土壤水分中HTO濃度 (Bq/kg-H₂O)

$$C_{sw} = a C_{aw}^0 \quad (5)$$

a: 平衡状態における液相中 HTO/H₂O の気相中 HTO/H₂O に対する比 (= 1.1) (-)

C_{aw}^0 : 地表面における大気水分中 HTO 濃度 (Bq/kg-H₂O)

2) 植物自由水中HTO濃度 (Bq/kg-H₂O)

$$C_{pw} = a E C_{aw}^p + (1 - E) C_{sw} \quad (6)$$

E: 相対湿度 (-)

C_{aw}^p : 葉面高さにおける大気水分中 HTO 濃度 (Bq/kg-H₂O)

3) 植物中有機結合型トリチウム(OBT)濃度 (Bq/kg-H₂O 等量)

$$C_{OBT} = R_{OBT} C_{pw} \quad (7)$$

R_{OBT}: 植物における OBT/HTO の比 (-)

2-4 被ばく線量評価モデル

被ばく線量は大気中の HT 及び HTO の吸入と植物の食物摂取を考慮している。以下にそれぞれのモデル式を示す。

1) 吸入による内部被ばく線量評価モデル

$$\text{HT の吸入による被ばく線量 (Sv/y)}: D_{INH, HT} = DF_{INH, HT} R_B C_{a, HT}^s \quad (8)$$

$$\text{HTO の吸入による被ばく線量 (Sv/y)}: D_{INH, HTO} = DF_{INH, HTO} R_B C_{a, HTO}^s \quad (9)$$

DF_{INH,HT}: HT の吸入に関する線量係数 (Sv/Bq)

$DF_{INH,HTO}$: HTO の吸入に関する線量係数 (Sv/Bq)

R_B : 呼吸率 (m^3/y)

$C_{a,HT}^S$: 評価点高さにおける大気中 HT 濃度 (Bq/m^3)

$C_{a,HTO}^S$: 評価点高さにおける大気中 HTO 濃度 (Bq/m^3)

2) 植物の摂取による内部被ばく線量評価モデル

植物自由水中 HTO の摂取による被ばく線量 (Sv/y): $D_{ING,HT} = DF_{ING,HTO} F_{R,pw} R_{P,pw} Q C_p$ (10)

植物中 OBT の摂取による被ばく線量 (Sv/y): $D_{ING,OBT} = DF_{ING,OBT} F_{R,OBT} R_{P,OBT} Q C_{OBT}$ (11)

$DF_{ING,HTO}$: HTO の経口摂取に関する線量係数 (Sv/Bq)

$DF_{ING,OBT}$: OBT の経口摂取に関する線量係数 (Sv/Bq)

$F_{t,pw}$: 植物摂取時における植物自由水中 HTO の残存率 (-)

$F_{R,OBT}$: 植物摂取時における植物中 OBT の残存率 (-)

$R_{P,pw}$: 植物中自由水存在比 ($kg\text{-H}_2O/kg\text{-wet}$)

$R_{P,OBT}$: 植物中有機結合型水素存在比 ($kg\text{-H}_2O$ 等量/ $kg\text{-wet}$)

Q : 評価対象植物の年間摂取量 ($kg\text{-wet}/y$)

3. BIOMASS によるコード検証

ETDOSE の検証として国際原子力機関(IAEA)の主催による国際モデル検証プログラム BIOMASS (BIOsphere Modelling and ASSEssment methods) の中のトリチウムワーキンググループに参加し、その定常大気放出時の環境中濃度予測シナリオについて解析を行った。BIOMASS は 2001 年までの予定で現在進行中であり、シナリオの改良が続けられている段階であるが、途中経過を報告する。

3-1 トリチウムシナリオの概要

トリチウムワーキンググループでは、モデルによる推定値同士を比較するシナリオが 2 つ、モデルによる推定値と実測値を比較するシナリオが 2 つ提出されている。今後、モデルによる推定値と実測値を比較するシナリオについてはさらに 1 つ加わる予定がある。筆者等がモデル検証に用いたシナリオ 1 は、HT または HTO の大気中への定常放出のシナリオである。このシナリオについて ETDOSE を用いて解析した。なお、シナリオ 2 は地下水汚染のシナリオである。シナリオ 3 はカナダのチョークリバー研究所のモニタリングデータを基にした大気放出、シナリオ 4 はロシアのトリチウム製造用原子炉周辺のモニタリングデータを基にした大気放出のシナリオである。ここでは、シナリオ 1 について詳しく述べる。

シナリオ 1 は HT または HTO の連続放出を仮定している。実効放出高さ 60m のスタックから放出率 $1g\text{-tritium}/y$ で HT または HTO が放出された場合の風下方向での環境媒体中濃度を計算することが課題である。他の入力情報として、平均絶対湿度、平均相対湿度、風向、放出角度、気象条件、HT 及び HTO の沈着速度、降雨量、降雨除去係数等が与えられている。評価項目は、大気水分中 HTO 濃度 (1.5m 高さ)、土壤水分中 HTO 濃度、植物自由水中 HTO 濃度及び OBT 濃度、土壤深部への HTO フラックス、地下水 HTO 濃度である。このうち地下水 HTO 濃度については ETDOSE の範囲を超えていたため解析はしていない。

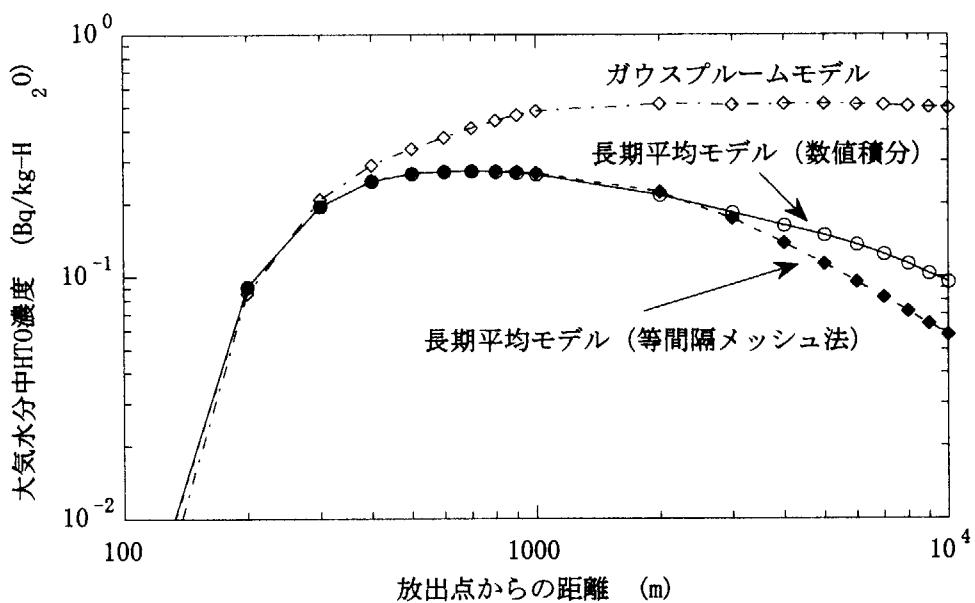


Fig. 4 各モデルによる評価結果の比較
(HT 放出-大気水分中 HTO 濃度)

3-2 評価結果と考察

BIOMASS シナリオ 1 について、ETDOSE の各計算方法で解析した結果を Fig. 4 に示す。各モデルにより特に後半の濃度に差が出ることが分かる。ガウスブルームモデルは濃度が y 軸方向に正規分布をしており、風下の中点の濃度が最も高くなるモデルであるため、長期平均モデルよりも濃度が高くなり、スタックから距離が離れるほど、その差は広がっている。

Fig. 5, Fig. 6 に他の BIOMASS 参加機関と比較した結果を示す。ETDOSE は長期平均モデルの等間隔メッシュ法により解析を行った。Fig. 5 が HTO 放出時の大気水分中 HTO 濃度であり、Fig. 6 が HT 放出時の大気水分中 HTO 濃度である。HTO 放出時の大気水分中 HTO 濃度については各機関の結果がよく一致していることがわかる。これに対し HT 放出時の大気水分中 HTO 濃度は結果がばらついている。これは、HTO 放出時の濃度のほとんどが直達のブルームの寄与によるものであり、HT 放出時は再放出のみの寄与であるためである。すなわち直達のブルームの計算値はガウスブルームモデルを直接用いており、各機関の差はほとんど生じないのでに対し、再放出の計算には各機関がそれぞれ異なった方法を用いているため、一桁以上のばらつきが生じたと考えられる。現在、各機関のモデルについての情報を集め、これらのばらつきの原因について考察を行っている。Fig. 5, Fig. 6において、Jaeri と表示されているのが ETDOSE の結果であり、HT 放出の結果では他の機関より低い値となっている。これについて、再放出期間に関する仮定の差異が原因であることが考えられる。現在の ETDOSE では土壤に沈着したトリチウムは同時期に大気中へ再放出されると仮定している。これを再放出が平均的に起きると仮定する場合の観測点での大気中濃度を解析するためのコード拡張を進めている。Fig. 7 に再放出期間に関する仮定の差異の概念図を、Fig. 8 に再放出期間を変えた場合の再放出に寄与する領域の違いを示す。両方の仮定において、同じ場所でのトリチウムの沈着量と再放出量は年間の収支でみると等しい。し

Scenario 1.3: HTO Release - HTO Concentration in Air Humidity

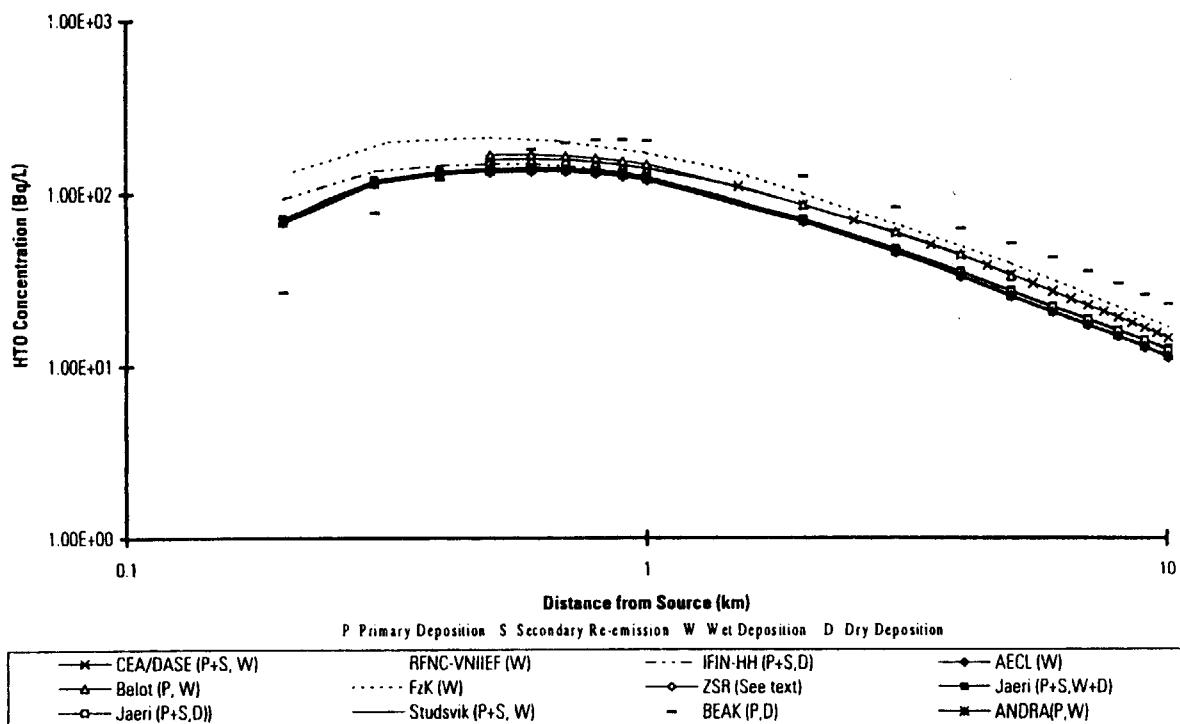


Fig. 5 各機関における評価結果 (HTO 放出-大気水分中 HTO 濃度)

Scenario 1.3: HT Release - HTO Concentration in Air Humidity

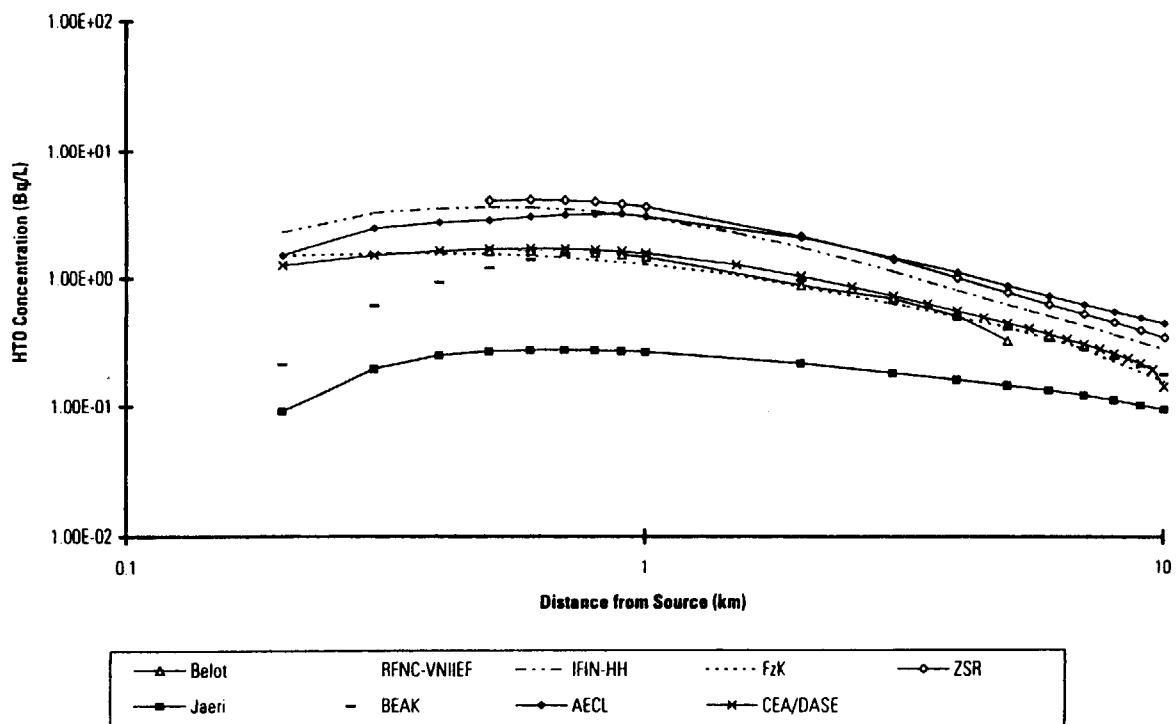
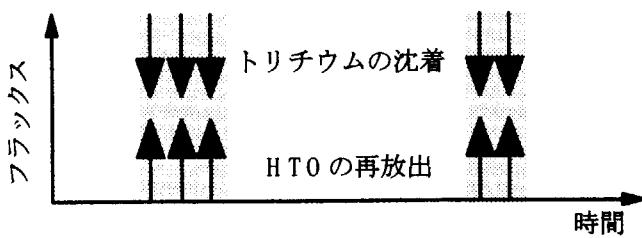


Fig. 6 各機関における評価結果 (HT 放出-大気水分中 HTO 濃度)

かし、再放出に寄与する領域が、再放出が平均的に起きると仮定した場合にはより広くなるため、単位面積あたり当たりの寄与は少なくなるとしても、全体として観測点に到達する HTO の量が大きくなる可能性がある。実環境での地面からの再放出は、沈着時及び直後では高く、その後低下していくという、両者の中間を示すことになると考えられるため、両方の方法を用いて評価結果を比較検討する予定である。

再放出がトリチウムの沈着時のみ起きるとした場合



再放出が平均的に起きるとした場合

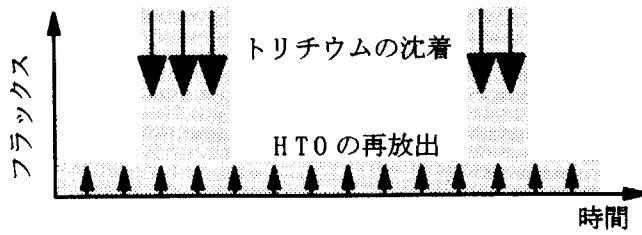


Fig. 7 再放出期間に関する仮定の差異の概念図

4. 今後の課題

トリチウムの環境中挙動と被ばく線量を計算できる簡易コードとして ETDOSE の開発を行っている。
以下に今後の課題を示す。

1) BIOMASS によるコード検証

ETDOSE に平均的再放出に対応した評価モデルを組み込み、再放出がトリチウムの沈着時に起きたとした場合との結果の差異を評価する。また、各参加機関のモデルについての情報をを集め、評価モデルの違いが結果にどのような影響を及ぼすかについてさらに検討する。

2) コードの公開

簡易に線量評価が可能なコードにするために、入力方法を簡便化、わかりやすいマニュアルの作成を予定している。

再放出がトリチウムの沈着時のみ起きるとした場合

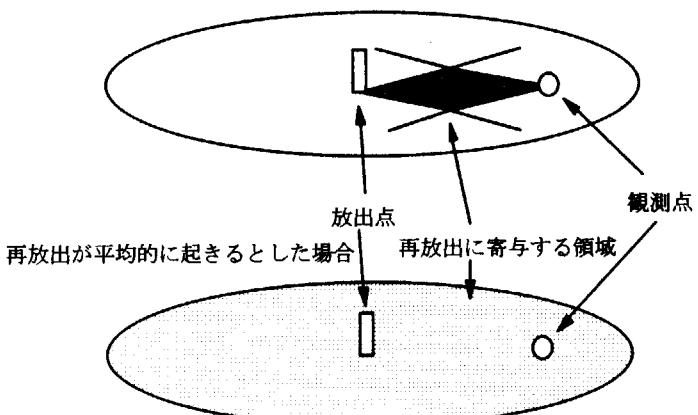


Fig. 8 再放出に寄与する領域



JP9950137

JAERI-Conf 99-001

15. 土壤—植物系における核種移行に関する検討

森田 重光、渡辺 均、片桐 裕実、篠原 邦彦
核燃料サイクル開発機構 安全管理部 環境監視課

テクネチウム-99、ヨウ素-129、ネプツニウム-237等の核種は、半減期が極めて長いことから、環境中における分布状況及び移行挙動を評価する必要がある。

しかし、これら核種の環境中における濃度レベルは極めて低いため、フィールドデータを基に移行挙動を解析することは困難であった。

そこで、質量分析法による長半減期核種の高感度定量法を開発し、土壤及び植物環境中における濃度レベルを調査するとともに、フィールドデータを基に、土壤—植物系における移行挙動について解析した。

その結果、多くの長半減期核種は土壤表層部に保持されており、核種によっては土壤—植物系の移行係数がトレーサ試験の結果より小さくなることがわかった。

また、移行係数等のパラメータは時間の経過等の要因により変化することがわかった。

Study on Transfer Behavior of Radionuclides from Soil to Plants

Shigemitsu MORITA, Hitoshi WATANABE,
Hiromi KATAGIRI and Kunihiko SHINOHARA

Environmental Protection Section, Environment and Safety Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC)

ABSTRACT

Technetium-99 (Tc-99), Iodine-129 (I-129) and Neptunium-237 (Np-237) are important radionuclides for environmental assessment around nuclear fuel cycle facilities, because these have long half-life and relatively high mobility in the environment. Therefore, We have studied on determination method, distribution and behavior of such a long-lived radionuclides in surface soil environment.

A new analytical technique using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS) and Microwave Induced Plasma Mass Spectrometry (MIP-MS) were applied to the determination of long-lived radionuclides in environmental samples. The sensitivity of ICP-MS method was 10 to 100,000 times higher, and the counting time was 100 to 100,000 times shorter than the conventional radioanalytical methods.

The depth profiles showed that more than 90% of Tc-99, I-129, Np-237 and Pu-239,240 were retained in the surface layer, up to 10cm in depth, which contained much amount of organic

materials. The result suggests that content of organic materials in soil is related to adsorption of these nuclides on to soil.

Keyword: Long-lived Radionuclides, Mass Spectrometry, Aging effect, Adsorption to Soil, Transfer Factor

1. はじめに

局地的な環境条件（気象、地形、地質、植生等）に対応した環境影響評価モデルの開発に当たっては、まず、放射性核種が各種環境媒体を経て生体へ至る挙動について把握する必要がある。

しかし、Tc-99, I-129, Np-237等の長半減期核種の土壤環境及び植物環境中における移行挙動は、これら核種の環境中における濃度レベルが極めて低いことから、これまでトレーサ試験の結果を基に解析が行われてきた。

本研究ではこれらの状況を踏まえた上で、長半減期核種の高感度定量技術の開発を進め、フィールドデータを取得するとともに、トレーサ実験を合わせて実施し、フィールドデータ及びトレーサ試験結果の両者を比較することにより、環境影響評価モデルにおいて利用可能なパラメータを整備しつつある。

本論文では、これまでにクロスオーバー研究を通して得られた知見の一部を報告する。

2. 検討内容

2.1 高感度定量法の開発

これまで、ICP-MSを用いた高感度定量法を開発し、Tc-99, Np-237等のフィールドデータを取得してきた。

しかし、I-129についてはプラズマガスであるアルゴンの不純物がバックグラウンドピークを形成してしまうため、ICP-MSで測定することは困難であった。

そこで、プラズマガスに窒素を用いるマイクロ波導入プラズマ質量分析装置(MIP-MS)による定量法について検討した。検討項目を以下に示す。

- 測定条件の検討；ppqからpptレベルの核種を精度良く定量するための測定条件について検討した。
- 妨害元素の除去；質量分析をする際に妨害となるマトリクス元素、同重体元素等の除去法について検討した。
- 実試料の定量；実試料を、今回開発したMIP-MS法と従来法である中性子放射化分析法により定量し、その結果を比較した。

2.2 濃度レベルの把握

日本各地で採取した表層土壤中の長半減期放射性核種を定量し、濃度水準を調査した。

また、深度50cmまでコア状に土壤を採取し、Tc-99, I-129, Pu-239,240, Np-237等の鉛直分布を調査した。

2.3 土壌性状と核種濃度との相関解析

表層土壤粒子への核種の保持機構を解明するため、土壤の物理的性状（粒径分布、含水率等）及び化学的性状（陽・陰イオン交換容量、活性鉄・アルミニウム濃度、重金属濃度、総炭素・窒素濃度等）を分析し、核種濃度との相関を解析した。

2.4 トレーサ試験

表層土壤粒子への核種の結合形態を6分画に抽出分離し、核種の保持機構の解明を試みた。

また、多くの核種は酸性領域で溶出率が高くなるものと考えられることから、東海村で採取した実雨水及び模擬酸性雨水を用いて土壤からの溶出挙動を比較した。

2.5 移行パラメータの取得

Tc-99は、その構造が植物の必須元素であるカリウムと類似しているため、植物体内へ摂取されやすいと言われている。実際、トレーサ実験の結果を基に移行係数を算出すると 2.5×10^{-1} から50という値が得られることが報告されている。

そこで、実環境試料を分析し、実フィールドにおける移行係数を試算した。

3. 結果と考察

3.1 長半減期核種の高感度測定法の開発

3.1.1 測定条件に関する検討

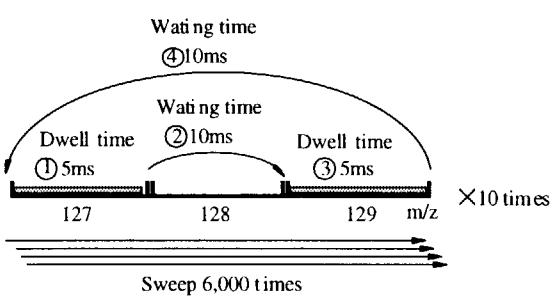
検出感度は分解能や検出器電圧等、機器の諸パラメータによって変化する。模擬試料溶液(I-127:200ppm, I-129:1.4mBq/ml)を用い、パラメータを調整した結果、測定条件はTable 1に示すとおりに決定した。

なお、この条件下におけるI-129の検出下限値を試算したところ0.05mBq/mlであった。

しかし、I-127の濃度を約50~200ppmに変化させた模擬試料を測定した結果、質量数129の領域に一定の割合で影響があることがわかった。よって、実試料を定量する場合は、まず、測定溶液中のI-127濃度を定量し、その濃度と同量のI-127を含む標準溶液系で検量線を作成する（マトリックスをマッチングさせる）必要があることが判明した。Fig. 1にI-129検量線へのI-127の影響を示す。

Table 1 Operating conditions of MIP-MS

Microwave power (kW)	1.3
Detector power (kV)	-3.5
Mass range (m/z)	127, 129
Dwell time (ms)	5
Waiting time (ms)	10
Sweep times (times)	6000



3.1.2 分離・精製法

ヨウ素は揮発性が高いため、環境試料から酸やアルカリで直接抽出することは困難である。また、テフロン分解容器を用いた分解抽出の場合、処理量は多くても数グラムであるため、環境試料中のI-129を検出することはできない。

様々な前処理法及び分離・精製法について検討した結果、電気炉で揮発させた後に活性炭で捕集し、最終的に水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)に溶解させることにより、マトリクスを効率良く除去でき、かつ、I-129を回収できることがわかった。

Fig. 2に開発した分析スキームを示す。

なお、本定量法の分析回収率は約60~80%、検出下限値は約 1.5×10^4 Bq/g,dry、繰り返し測定精度は10%以下であり、有効な測定法であると考えられる。

3.1.3 実試料の測定

実土壤試料について、MIP-MS法及び中性子放射化分析法により定量を行った。

まず、測定溶液中のI-127の濃度を測定した結果、中性子放射化分析法で92ppmであったのに対し、MIP-MS法では93ppmとほぼ同等な値であった。

よって、I-127濃度を93ppmに調製したI-129標準溶液系により検量線を作成し、実試料を定量した。

その結果、MIP-MS法による定量結果は 2.4×10^4 Bq/g,dryであり、中性子放射化分析法による定量結果である 2.3×10^4 Bq/g,dryと良く一致した。結果をTable 2に示す。

3.2 濃度レベルの把握

表層土壤中の長半減期核種濃度の測定結果をTable 3に示す。我が国における濃度水準は、Tc-99で 10^1 Bq/kg,dry程度、Np-237で 10^3 Bq/kg,dry程度、Pu-239,240で 10^1 ~数Bq/kg,dry程度であることがわかった。また、

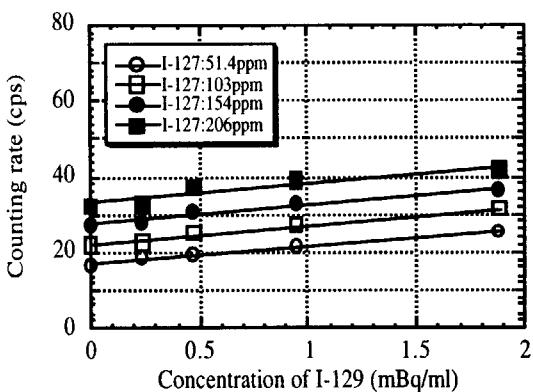


Fig. 1 Calibration curves of I-129
(Matrix effects of I-127)

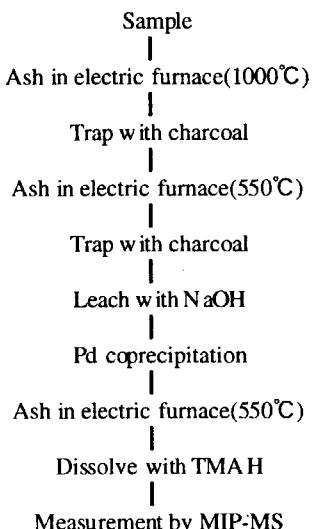


Fig. 2 Scheme of analysis method for I-129

Table 2 Comparison analysis of I-127,129
in soil samples

sample No.	Method	I-127 (ppm)	I-129 ($\times 10^{-4}$ Bq/g)
Sample-1	MIP-MS	93	2.4
	NA A	92	2.3
Sample-2	MIP-MS	88	1.9
	NA A	82	1.9

Table 3 Concentration levels of radionuclides
in surface soils

Nu clides	Sample number	Range of concentration (Bq/kg,dry)
Tc-99	22	$8.1 \times 10^{-2} \sim 5.8 \times 10^{-1}$
I-129	10	$2.0 \times 10^{-3} \sim 2.0 \times 10^{-1}$
Np-237	22	$2.0 \times 10^{-4} \sim 1.4 \times 10^{-2}$
Pu-239,240	68	$7.2 \times 10^{-2} \sim 4.4$

太平洋側よりも日本海側の方が濃度が高い傾向が認められた。

コア状土壤試料の測定結果をFig. 3に示す。いずれの核種とも有機質に富んだ表層下10cmまでの層に全体の90%以上が保持されているという結果が得られた。

Tc-99は一般に酸化的雰囲気では TcO_4^- という化学形をとるため、水分とともに移行し、鉛直方向の移行速度は速いと考えられていたが、実環境中における結果はこの理論に反するものであった。その原因としては、以下の機構が考えられる。

- 表層に含まれる有機物との錯体形成
- 有機酸による不動形への変換
- 微生物による選択摂取、または、還元

3.3 土壤の性状と核種濃度との相関解析

Tc-99及びNp-237について、土壤の物理・化学的性状と核種濃度との相関について調査した結果、両核種とも有機炭素濃度との間に高い相関関係が認められた。この結果から、Tc-99及びNp-237の土壤表層への保持には表層土壤中に存在する有機物が関与していることが示唆された。

3.4 トレーサ試験

3.4.1 結合形態解析

褐色森林土にTc-95mを添加し、1日から120日間静置した後、Fig. 4に示す溶媒で「水溶態」、「吸着態」、「特異吸着態」、「鉄・マンガン酸化物結合態」、「有機態」、「結晶構造態」の6分画に分離し、Tcの土壤粒子への結合形態を解析した。

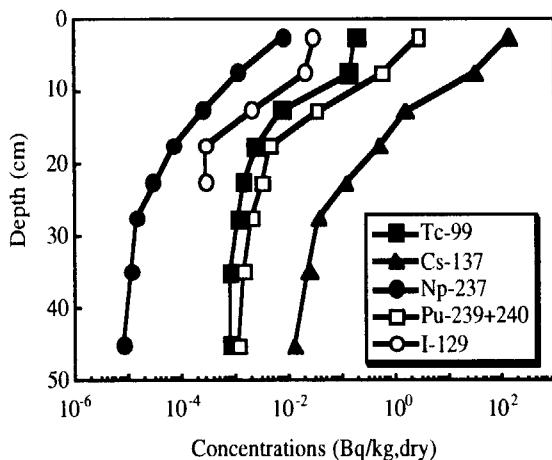
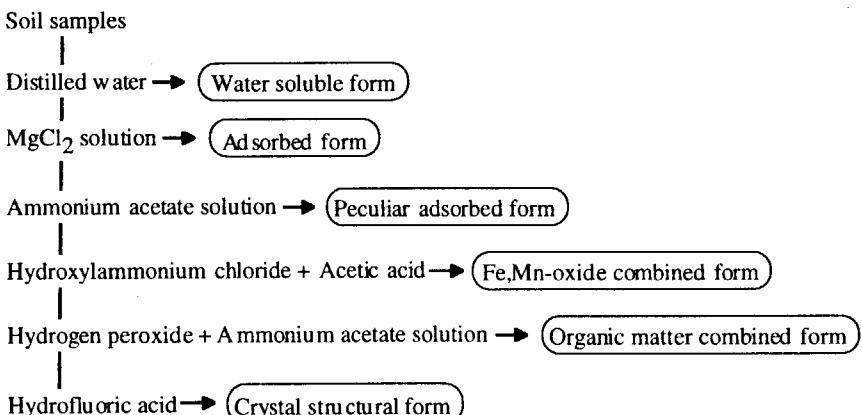


Fig. 3 Depth profiles of long-lived radionuclides

Fig. 4 Scheme of separation method for combined form to soil

その結果、Fig. 5に示すように、Tc-95mを添加した直後は水溶態や吸着態といった移行しやすい成分が多いが、静置時間（エーティング時間）が長くなるに従い、鉄・マンガン酸化物結合態や有機態といった移行しにくい成分が増加していくことがわかった。

よって、事故時環境評価モデルで使用する分配係数や移行係数等のパラメータは、核種が地表面に沈着してから降雨があるまでの期間や降雨量等を考慮に入れて変化させる必要があるものと考えられる。

3.4.2 溶出挙動解析

褐色森林土にTc-95m及びCs-137を添加し、1日から120日間静置した後、東海村で採取した実雨水($\text{pH}=5.5$)及び模擬酸性雨水(10^{-4}M HNO_3)を添加し、土壤粒子に保持されている割合を調べた。

その結果、Fig. 6に示すように、Cs-137の場合はエーティング時間に係らず土壤粒子に保持される割合が高いが、Tc-95mの場合はエーティング時間が長くなるに伴い、土壤粒子に保持される割合が高くなってくるという結果が得られた。

また、実雨水と模擬酸性雨水とでは、いずれの核種も20%程度酸性雨水の方が溶出率が高い傾向が認められた。

3.5 移行パラメータの取得

3.5.1 移行係数の試算

土壤試料と植物試料を同一地点で同時に採取し、それぞれの試料中のTc-99, Np-237, Pu-239,240濃度を定量した。その結果、土壤試料中の濃度は定量できたものの、植物試料中の濃度はPu-239,240以外は検出下限値以下であった。

そこで、Tc-99及びNp-237については、土壤試料中の濃度と植物試料の検出下限値から、また、Pu-239,240については土壤及び植物試料中濃度から移行係数を算出した。結果をTable 4に示す。Np-237及びPu-239,240については過去に報告されているトレーサ実験の結果(Table 5)と同等であったが、Tc-99の場合は既報告値の1/100から1/25,000程度であった。

これまでに実施してきたトレーサ実験結果から、Tc-99は有機物と錯体を形成したり、4価に還元されることにより雨水等では溶出しにくくなるという結果が得られている。従って、実際の環境中では、植物が吸収できる化学形態（可給態）である水溶態や吸着態の割合がエーティング効果により少なくなることにより、トレーサ実験の結果を基に算出した移行係数より

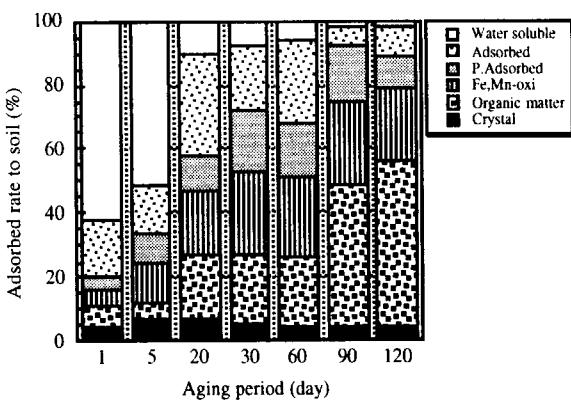


Fig. 5 Variation of combined form of Tc-95m depending on aging period

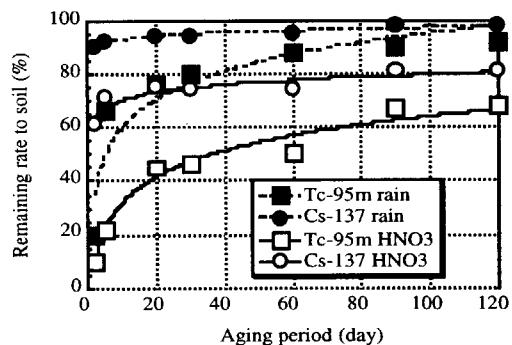


Fig. 6 Variation of remaining rate of Tc-95m depending on aging period and eluate

もフィールドデータを基に算出した移行係数の方が小さくなるものと考えられる。

Table 4 Transfer factors of radionuclides from soil to agricultural products

Laboratory	Transfer factor (-)		
	Tc-99	Np-237	Pu-239,240
US NRC*1	2.5×10^{-1}	2.5×10^{-3}	—
US DOE*2	5.0×10^{-1}	2.5×10^{-3}	2.2×10^{-4}
IAEA*3	5.0	4.0×10^{-2}	5.0×10^{-4}

*1:US NRC Regulatory Guide

*2:US DOE/TIC-11468,31

*3:IAEA Safety Series No.57

Table 5 Transfer factors of leafy vegetables

	Transfer factor (-)		
	Tc-99	Np-237	Pu-239,240
Agricultural soils (Bq/kg,dry)	2.0×10^{-1}	4.0×10^{-3}	1.7×10^{-1}
Leafy vegetables (Bq/kg,raw)	4.0×10^{-4}	8.0×10^{-6}	2.0×10^{-5}
Transfer factors (-)	2.0×10^{-3}	2.0×10^{-3}	1.2×10^{-4}

3.5.2 移行係数の変動要因

移行係数には核種の土壤粒子への結合強度（分配係数）が関与しているものと考えられるため、分配係数に影響を及ぼす要因の一つである土壤pHと分配係数及び移行係数との関連について、フィールドデータを基に調査した。

その結果、Pu-239,240の場合はFig. 7に示すように、土壤のpHが上昇すると分配係数も上昇し、反対に移行係数は減少するという結果が得られた。

今後、移行係数に影響を及ぼす要因について解析を進める予定である。

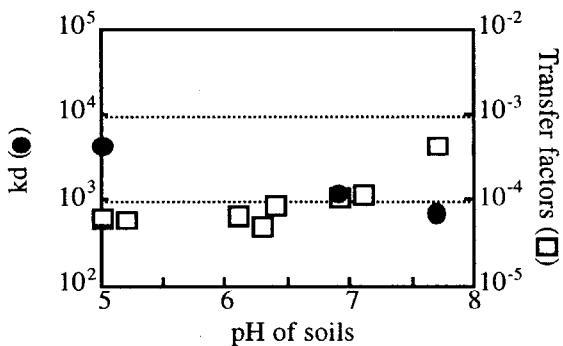


Fig. 7 Relation between soils pH and kd, Tf

4. まとめ

- 1) 質量分析法を用いた長半減期核種の高感度定量法を開発することにより、フィールドデータを基にした核種の移行挙動解析が可能となった。
- 2) フィールドデータ及びトレーサ試験結果を基にした移行挙動解析により、核種によっては植物が吸収できる形態（可給態）の割合が経時的に変化することがわかった。
- 3) トレーサ試験結果を基に算出したパラメータとフィールドデータを基に算出したパラメータとを比較すると、事故時評価等、比較的短期間を対象とする環境影響評価の場合には、トレーサ試験の結果を基に算出した移行パラメータを用いた方が実際の挙動をより正確に再現できるものと考えられる。また、汚染地域の再利用や埋設処分に係る環境影響評価等、比較的長期間を対象とする環境影響評価の場合には、むしろフィールドデータを基に算出した移行パラメータを利用した方が良いものと考えられる。

参考文献

- (1) U.S. Nuclear Regulatory Commission, *Regulatory Guide 1.109*
- (2) 森田、清水、篠原: 誘導結合プラズマ質量分析装置を用いた環境試料中長半減期放射性核種の定量、*動燃技報*、81、104-107 (1992)
- (3) S.Morita, C.K.Kim et al. : Determination of Technetium-99 in Environmental Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, *Appl. Radiat. Isot.*, 42, 6, 531-534 (1991)
- (4) S.Sumiya, S.Morita et al. : Determination of Technetium-99 and Neptunium-237 in Environmental Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 177, 1 (1994)
- (5) S.Morita, S.Sumiya et al. : Determination of Technetium-99 in Environmental Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, *Radiochimica Acta*, 63 (1993)



16. 放射性核種の生育段階別経根吸収量の評価

安部静子

理化学研究所 無機化学物理研究室

人間の生産活動に伴い環境中に放出された放射性元素および有害元素の人体への危険性の評価の一環として、マルチトレーサー法を用いて、植物による微量元素の吸収を長年にわたり研究をしてきた。その一つに、植物による微量元素のモデルのパラメーターである選択吸収係数の培養液濃度依存性の研究がある。コマツナを用いて得られた選択吸収係数は実験によりばらつきが見られ、この原因を明らかにするために、生育段階別の選択吸収係数を調べた。これと平行して生育段階のことなるコマツナを用いて放射性核種の土壤からの移行係数を葉と根について別々に求めた。さらにトレーサーの土壤からの溶出率の経時変化を求め、移行係数の時間変化との関連を調べた。酸性雨の問題に関連して、土壤の酸性度が植物の微量元素吸収にどのような影響を及ぼすかを、ダイズおよびトマトについて成長段階を追って調べた。

Evaluation of Absorption of Radionuclides via Roots of Plants at Different Growth Stages

Shizuko Ambe

The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

For the environmental risk assessment of radionuclides and toxic elements which were released by nuclear power plants and factories, the absorption of trace elements by plants has been studied by a multitracer technique. The selective absorption coefficient, which is a parameter of an uptake model of radionuclides by plants, was determined for various radionuclides. The selective absorption coefficients of some elements varied greatly in experimental runs. Therefore, the selective absorption coefficients of radionuclides by komatsuna at different growth stages were determined. Moreover, the soil-to-plant transfer of radionuclides in komatsuna at different growth stages was studied. Extraction of the radionuclides from the soil was carried out in order to study the correlation between the transfer factor and the aging effect of the radionuclides in soil. The effect of soil acidity on the absorption of radionuclides in soybean and tomato was studied using the plants at different growth stages.

Keyword: Komatsuna, Soybean, Tomato, Root absorption, Growth stage, Selective absorption coefficient, Transfer factor, Multitracer

1. はじめに

人間の生産活動にともない環境中に放出された放射性元素および有害元素の人体への危険性の評価の一環として、マルチトレーサー法を用いて、植物による微量元素の吸収を長年にわたり研究をしてきた。¹⁻¹⁴⁾ 理研リングサイクロトロンを用いて金などを高エネルギーのビームで照射すると金の中に種々の放射性核種が生成する。我々はこれらを個々の元素に分離せずに、金だけをのぞいてすべての核種をトレーサーとして用いる技術を開発した。¹⁵⁾ これらのトレーサーをマルチトレーサーと命名した。マルチトレーサーを用いると多くの元素の挙動を同時に得ることができる利点がある。この方法は個体差の大きい植物試料にとってきわめて有用である。

ここでは放射性核種の経根吸収を生育段階別にマルチトレーサー法により調べた結果を報告する。植物による放射性核種吸収モデルのパラメーターである選択吸収係数の培養液濃度依存性の研究¹¹⁾において、コマツナによる種々の元素の選択吸収係数は実験によりばらつきが見られ、この原因を明らかにするために、照度や生育段階の違いが選択吸収係数へ及ぼす影響を調べた。これと平行して生育段階のことなるコマツナを用いて放射性核種の土壤からの移行係数⁸⁾を葉と根について別々に求めた。さらにトレーサーの土壤からの溶出率の経時変化を求め、移行係数の時間変化との関連を調べた。酸性雨の問題と関連して、酸性土壤が植物の放射性核種の吸収にどのような影響を及ぼすかを、ダイズおよびトマトについて成長段階を追って調べた。¹⁴⁾

2. 実験

2. 1 マルチトレーサー溶液の調製

理研リングサイクロトロンで加速した高エネルギーの炭素、窒素、酸素のイオンビームで金、銀を照射した後、放射化学的方法で金、銀のターゲット物質を取り除いた。得られた溶液には種々の元素の放射性核種が無担体の状態で存在する。またこの溶液はどのような実験にも応用がきくよう塩類が含まれないように分離法が工夫されている。¹⁵⁾ 植物の実験には最終的に pH 5 のマルチトレーサー水溶液を調製した。

2. 2 選択吸収係数を求める実験

播種より 17, 24, 30 日間育成したコマツナをマルチトレーサーを含む培養液（標準の培養液を 50% に希釀したもの）で一日間 23°C で照度約 20000lx の光で 12 時間照射しながら育成した。一日後葉と根に分けて、根は放射能のない培養液で 3 回洗浄した。これらを 65°C で一日間乾燥した後、プラスチック容器につめてガンマ線測定の試料とした。

2. 3 移行係数を求める実験

コマツナの種子をマルチトレーサーを混合した土壤に播種した後、照度約 20000lx の光で一日 16 時間照射しながら 23°C で 14, 20, 26, 34 日育成してた。

2. 4 土壤からマルチトレーサーの溶出

McLaren と Crawford の方法に従い¹⁶⁾ 1g のマルチトレーサーを混合した土壤に 10 cm³ の 0.05 mol dm⁻³ CaCl₂ 溶液を加え室温で一日しんとうした。しんとう後遠心分離を行い、一定量の上澄み液をプラスチック容器に採取し、乾燥した後、ガンマ線測定の試料とした。

2. 5 放射性核種取り込みにたいする土壤 pH の影響

マルチトレーサーを混合した土壤の酸性度を pH4 と pH6 に調節した。これにダイズあるいはト

マトの種子を播種した後、照度約 20000lx の光で一日 12 時間照射しながら 26°C で、ダイズでは 15, 30, 45, 60 日、トマトでは 30, 45 日育成した。育成後葉、茎、根、果実に分けて、乾燥した試料をガンマ線測定に用いた。

2. 6 ガンマ線測定と解析

各試料は HPGe 半導体検出器で測定を行った。解析は BOB76 コードをもちいて FACOM M1800 コンピューターあるいは SPECanal' 94 コードを用いて NEC PC-98 で行った。

3. 結果と考察

3. 1 選択吸収係数¹¹⁾

選択吸収係数は保田により提案された経根吸収のモデルのパラメーターであり次のように定義される。^{17, 18)}

$$A = STC_0$$

A: 植物がマルチトレーサー培養液で生育期間中に吸収したトレーサーの量、S: 選択吸収係数、T: 蒸散量、 C_0 : マルチトレーサー培養液中のトレーサーの初濃度である。例として Rb および Sr の葉と根における選択吸収係数と培養液濃度の関係を両対数で表したものを見ると、培養液の濃度が高くなると選択吸収係数がほぼ直線的に減少していることがわかる。他のアルカリ及びアルカリ土類元素についても同様の傾向が見られ、ほぼ直線でフィットさせることができた。これは選択吸収係数がモデルのパラメーターとして、移行係数を推定するのに役立つことを示す。アルカリ及びアルカリ土類元素以外の Reまでの多くの元素について調べたが、多くの場合培養液の濃度が高くなると選択吸収係数は減少するが、数式で表すことは困難であった。特に必須元素である Mn、Zn については、実験を繰り返すほどばらつきが大きくなる傾向を示した。

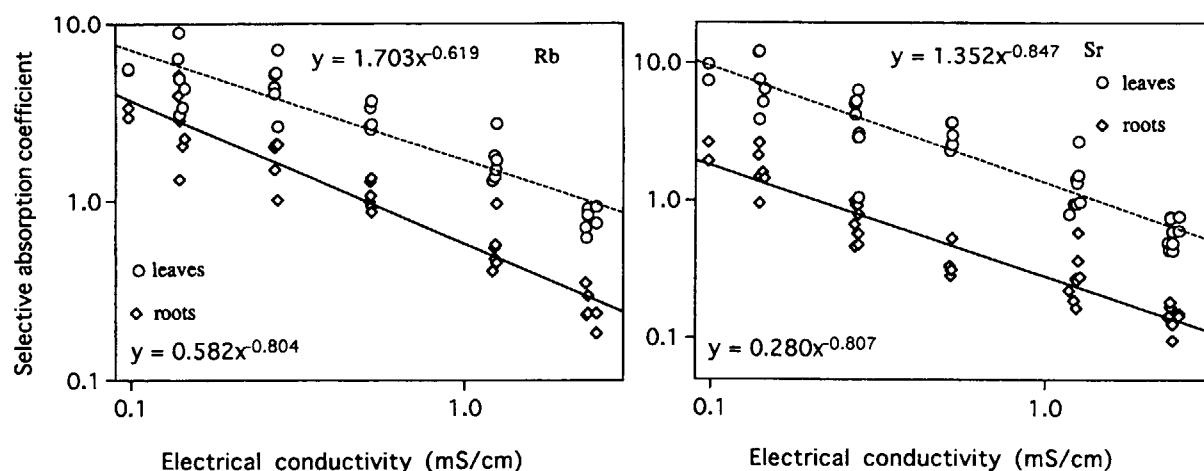


Fig. 1. Logarithmic plots of the selective absorption coefficients of Rb and Sr for leaves and roots as a function of logarithm of the electrical conductivity of nutrient solutions.

この原因としてはコマツナの成長や照度が実験ごとに多少の違いがあるためと考えられる。そこで成長の異なるコマツナを用いて成長段階による選択吸収係数の変化を調べた。その結果を図2に示す。図のエラーバーは6個の試料の標準偏差である。17日と24日育成したコマツナの葉ではすべての元素の選択吸収係数に差は見られないが、30日育成したコマツナの葉におけるMn、Znの選択吸収係数は17日と24日育成したコマツナの葉の選択吸収係数より小さい。コマツナは約30日で成熟することと考えあわせると、Mn、Znの選択吸収係数は植物の活力に依存しているといえる。Be、Co、Se、Rb、Sr、Tcの選択吸収係数は誤差の範囲で生育段階にはよらずほぼ同じである。根におけるMnの選択吸収係数は30日育成したコマツナにおいて若干小さいが、他の元素の選択吸収係数は誤差の範囲で生育段階にはよらずほぼ同じである。

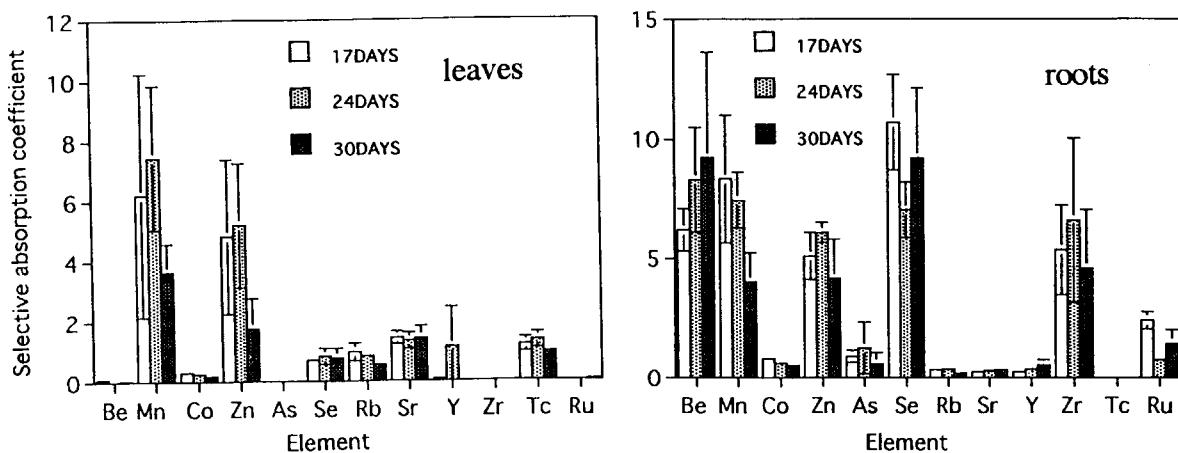


Fig. 2. Effect of growth stages of komatsuna plants on the selective absorption coefficients for leaves and roots 17, 24, and 30 days after sowing.

3. 2 移行係数の生育段階依存性⁸⁾

14, 20, 26, 34日育成したコマツナの葉における移行係数を図3に示す。エラーバーは5つの試料の標準偏差である。Rbの移行係数は生育期間とともに1.9から1.3に、Tcは50から17に、Csは0.016から0.0065に減少している。Na(1.3)、Co(0.03)、Se(0.06)、Sr(0.28)の移行係数はほぼ一定で時間変化は示さない。Mnは逆に、誤差は大きいが、移行係数が0.11から0.25に増大している。Znの移行係数は14日育成したコマツナの葉において最も大きく(0.52)、20, 26, 34日の葉では誤差の範囲でほぼ同じである。経過時間とともにTcの移行係数に減少が見られたが、これはTcが多量に吸収されて土壤中の濃度が減少したためである。根においては、葉において見られたような移行係数の生育段階依存性は認められない。

図4に34日育成したコマツナの葉と根の移行係数の関係を示す。Mn, Zn, Rb, Srは勾配1の直線に乗っていることがわかる。すなわち、葉と根における移行係数が等しいことを示している。Na, Co, Se, Csの葉における移行係数の根の移行係数に対する比は1よりも小さく、これらは根により保持されやすいことをしめす。Tcではこの比が10ときわめて大きく、Tcが根から葉へ速やかに移行する事を示している。

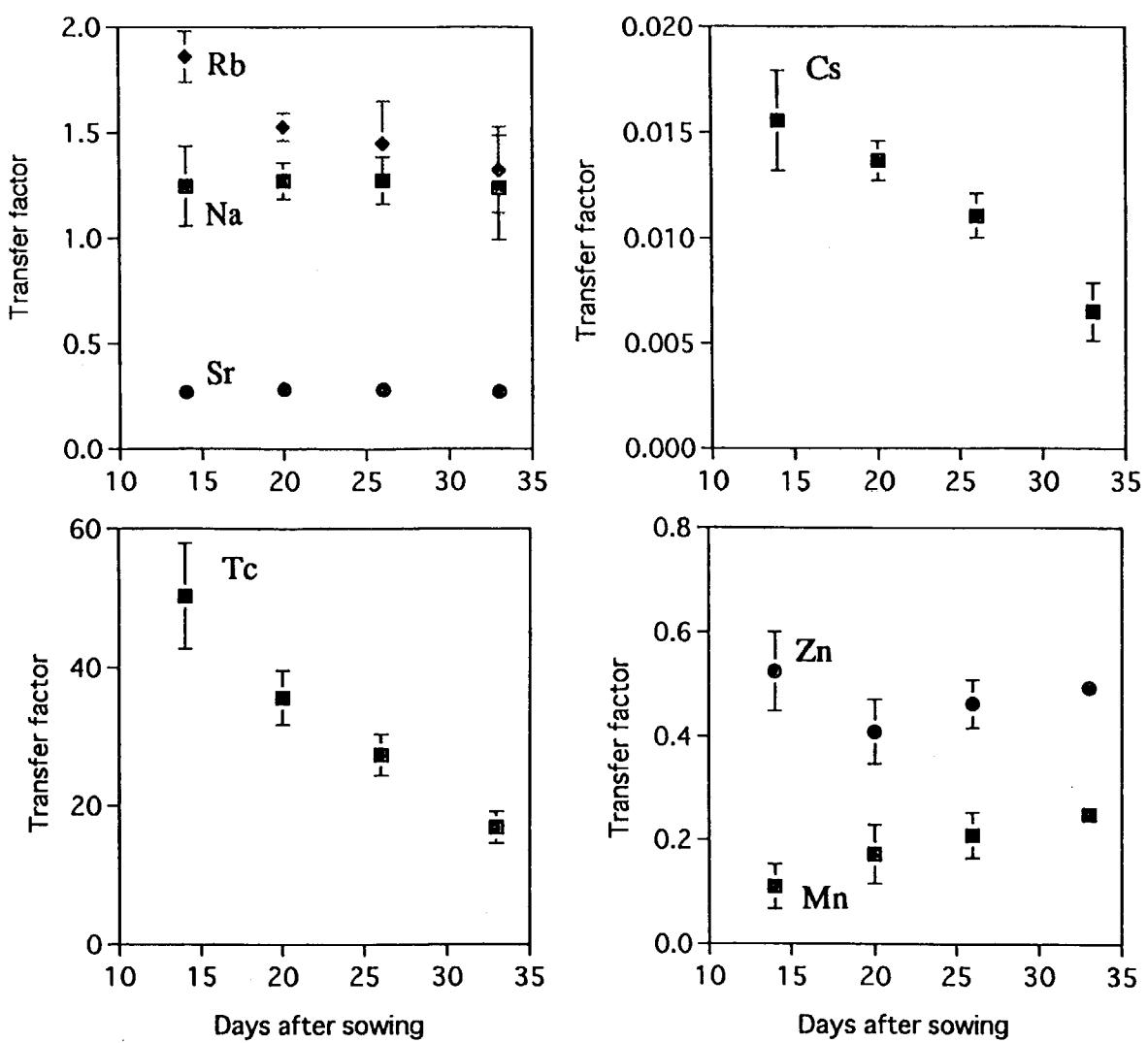


Fig. 3. Time dependence of the transfer factors of radionuclides obtained for komatsuna leaves. If error bars are not shown, then standard deviation are within symbols.

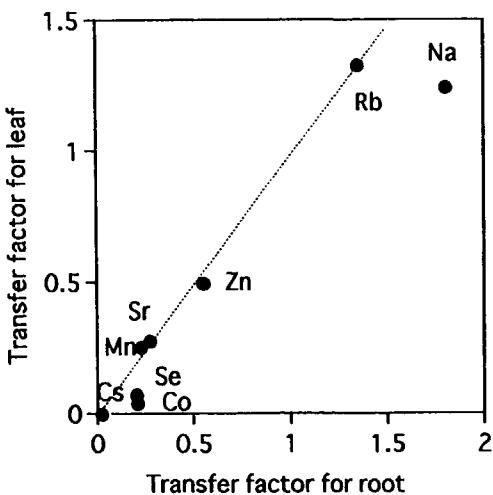


Fig. 4. Correlation between the transfer factors for leaves and roots of 33 day-cultured komatsuna.

3. 3 土壤からマルチトレーサーの溶出⁸⁾

図5にマルチトレーサーを土壤に混合してから2, 9, 15, 22, 37日後の0.05 mol dm⁻³ CaCl₂溶液による種々の元素の土壤から溶出された割合を示す。Znは2日では比較的高い溶出率を示したが、9日以降ほぼ一定の値に低下した。Rhは約2週間後に一定になった。他の元素は37日間中ほぼ一定の溶出率を示し経時変化はみられなかった。これより観測された移行係数の生育段階による変化は、トレーサーの土壤中における経時変化によるものではなく、植物自体によるものと考えられる。

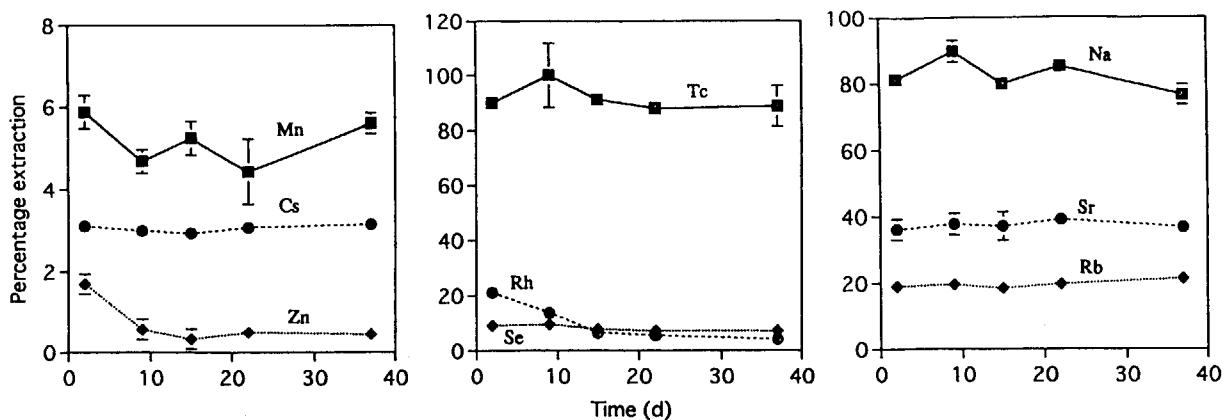


Fig. 5. Percentage extraction of radionuclides from soil as a function of time. If error bars are not shown, then standard deviations are within symbols.

3. 4 ダイズおよびトマトの放射性核種の吸収にたいする土壤 pH の影響¹⁴⁾

酸性土壤(pH4)と通常の土壤(pH6)で15, 30, 45, 60日栽培したダイズの放射性核種の葉、茎、根、果実における濃度の比較を図6に示す。果実は15, 30日ではまだできていないが、45, 60日では収穫することができた。Zn, Rb, Srの果実への取り込みは酸性土壤からのほうが高い。Seでは逆に通常土壤からの果実のほうが高い濃度を示す。葉におけるZn, Rbの濃度は15, 30日までは通常土壤からのほうが高いが、45, 60日と生育期間が長くなるにしたがい酸性土壤からの取り込みが大きくなる。逆に、オキシアニオンとして存在するSeではpH6の土壤からの方が取り込みが大きい。

陽イオンとなる元素の土壤への吸着は低pH領域では小さいが、pHが高くなるにしたがい吸着率は増大する。ところが、オキシアニオンは低pH領域で高い吸着率を示すが、pHが高くなるにしたがい吸着率は小さくなる。以上の結果は、植物による放射性核種の吸収は、これら元素の土壤への吸着と密接に関連していることを示している。

ダイズの生育は酸性土壤と通常の土壤で差は認められなかったが、トマトは酸性土壤での生育がわるく、従って放射性核種の吸収量も少なく、放射性核種の吸収にたいする土壤 pH の影響を調べることはできなかった。

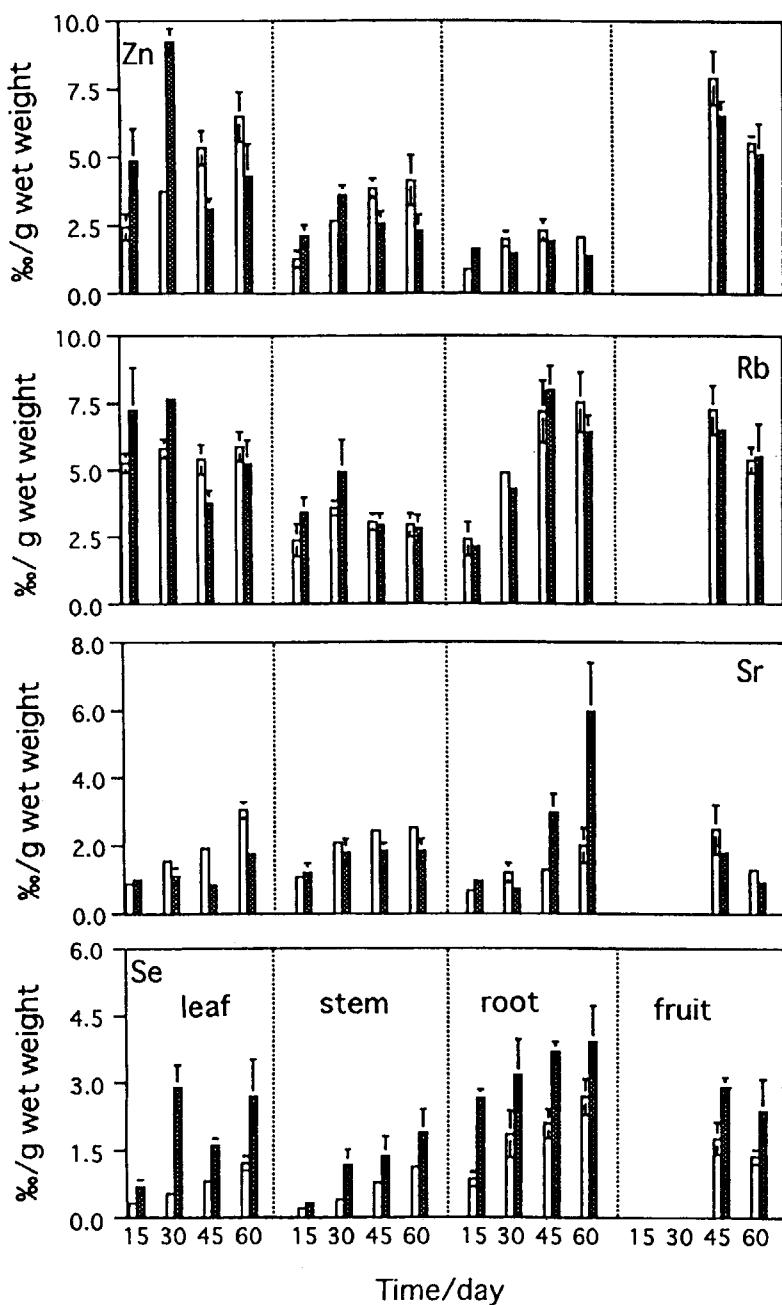


Fig. 6. The effect of soil acidity on the uptake of radionuclides by soybean plants.

4. さいごに

マルチトレーサー法により、植物による多くの放射性核種の生育段階別経根吸収を調べた。一日間水耕したコマツナでは Mn, Zn などの必須元素の吸収は生育段階に依存するが、他の多くの元素は実験の誤差の範囲で依存性は認められなかった。約一ヶ月にわたり土壤で育成したコマツナの葉では Rb, Cs の移行係数は生育期間とともに減少したが、Mn の移行係数は逆にわずかではあるが増加が観測された。Na, Co, Zn, Se, Sr の移行係数は生育期間によらずほぼ一定であった。ダイズの Zn, Rb, Sr の濃度は栽培期間が長くなるに従い酸性土壌(pH4)からのほうが通常の土壌(pH6)に比べ高くなかった。Se では逆に通常土壌からのほうが高い濃度を示した。植物による放射性核種の吸収は、これら元素の土壤への吸着と密接に関連していることが明らかになった。

参考文献

- (1) Ambe, S., Ohkubo, Y., Kobayashi, Y., Iwamoto, M., Maeda, H., and M. Yanokura: Multitracer study on transport and distribution of metal ions in plants, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **195**, 305-313, (1995).
- (2) Shinonaga, T., Ambe, S., Enomoto, S., Maeda, H., Iwamoto, M., Watanabe, T., and I. Yamaguchi: Multitracer study of various elements in atmosphere-plant system, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **212**, 163-172, (1996).
- (3) Ban-nai, T., Muramatsu, Y., Yoshida, S., Uchida, S., Shibata, S., Ambe, S., Ambe, F., and A. Suzuki: Multitracer studies on the accumulation of radionuclides in mushrooms, *J. Radiat. Res.*, **38**, 213-218, (1997).
- (4) Gouthu, S., Arie, T., Ambe, S., and I. Yamaguchi: Screening of plant species for comparative uptake abilities of radioactive Co, Rb, Sr, and Cs from soil, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **222**, 247-251, (1997).
- (5) Shinonaga, T. and S. Ambe: Multitracer study on absorption of radionuclides in atmosphere-plant model system, *Water, Air, and Soil Pollut.*, **101**, 93-103, (1998).
- (6) Shinonaga, T., Ambe, S., and I. Yamaguchi: Uptake rate of trace elements by soybean plants, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **236**, 133-137, (1998).
- (7) Ozaki, T., Enomoto, S., Minai, Y., Ambe, S., Ambe, F., and Y. Makide: Influence of aluminum on the uptake of various cations from a solution into carrots. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **235**, 285-289, (1998).
- (8) Ambe, S., Ozaki, T., Enomoto, S., and T. Shinonaga: Multitracer study on the soil-to-plant transfer of radionuclides in komatsuna at different growth stages, *Environ. Technol.*, in press.
- (9) Shinonaga, T., Pröhl, G., Müller, H. and S. Ambe: Experimentally determined mobility of trace elements in soybean plants, *Sci. Total Environ.* in press.
- (10) Shinonaga, T., Ambe, S. and I. Yamguchi: Uptake and distribution of trace elements in maturing soybean, *Biological Trace Element Research*, in press.
- (11) Ambe, S., Shinonaga, T., Ozaki, T., Enomoto, S., Yasuda, H., and S. Uchida: Ion competition effects on the selective absorption of radionuclides by komatsuna (*Brassica rapa var. perviridis*), *Environ. Exp. Botany*, in press.
- (12) Gouthu, S., Weginwar, R., Arie, T., Ambe, S., Ozaki, T., Enomoto, S., Ambe, F., and I. Yamaguchi: Subcellular distribution and translocation of radionuclides in plants, *Environ. Toxicol. Chem.*, in press.
- (13) Shinonaga, T. and S. Ambe: Trace elements in reproductive organs and other organs of trumpet lily, submitted to *Environ. Exp. Botany*.
- (14) Wang, H.F., Ambe, S., Takematsu, N., and F. Ambe: Impact of soil acidity on the uptake of trace elements by soybean and tomato, in preparation.
- (15) Ambe, S., Chen, S.Y., Ohkubo, Y., Kobayashi, Y., Maeda, H., Iwamoto, M., Yanokura, M., Takematsu, N., and F. Ambe: "Multitracer" A new tracer technique --- Its principle, features, and application, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **195**, 297-303, (1995).
- (16) McLaren, R.G. and D.V. Crawford: Studies on soil copper. I. The fractionation of copper in soils, *J. Soil Sci.*, **24**, 172-181, (1973).
- (17) Yasuda, H. and Y. Inoue: Behavior of zinc in soil-plant system (II) ---Estimation of transfer factor---, *Hokenbutsuri*, **29**, 295-303, (1992).
- (18) Yasuda, H.: Electrical conductivity used for evaluation of competing ion effects on radionuclide uptake by plant roots. *Environ. Technol.*, **16**, 197-200, (1995).



17. 大気から植物・土壤への重水水蒸気沈着挙動

安藤麻里子、天野光、一政満子、一政祐輔*

日本原子力研究所 環境安全研究部

*茨城大学 理学部

トリチウムの環境中での移行挙動を調べ、被ばく線量評価のためのデータを蓄積する目的で、安定同位体である重水素を用いた屋外ビニールハウス内での放出実験を行った。実験では、葉菜、根菜、果実、稻など数種類の植物と含水率を変化させた土壤に対し重水水蒸気を曝露し、時間経過に対する重水濃度の変化を調べた。また、放出終了後の濃度低下についても調べた。これらの結果より、大気中濃度と植物自由水中重水濃度との関係式を示し、そのパラメータを各植物に対して求め、昼と夜、植物の種類、各部位で比較することができた。植物の葉の自由水中重水濃度は、種類や昼夜による違いはあるものの放出開始後速やかに上昇した。特に稻については葉と穂の両方とも重水の取り込み速度が大きい。曝露終了後の濃度低下について、葉の濃度低下は穂よりも大きく、穂の重水濃度は曝露終了70時間後でもバックグラウンドレベルまで低下しなかった。

DEPOSITION OF HEAVY WATER VAPOR FROM AIR TO PLANT AND SOIL

ANDOH Mariko, AMANO Hikaru, ICHIMASA Michiko*, ICHIMASA Yusuke*

Department of Environmental Safety Research, JAERI

* Ibaraki University

When tritium is released into the atmosphere, plants play an important role in processes of tritium transfer in the environment. However, available data is limited because the uptake of tritium into a plant is affected by many factors such as plant growth, humidity, solar radiation, stomatal condition - all of which vary in daily and seasonal cycles. Deuterium, a stable isotope of tritium, was released as a tracer of tritium in the form of D₂O vapor in a greenhouse to study the transfer of tritium from air to plants and soils. The deposition rate of D₂O from the air to plant leaves was measured in a daytime and in a nighttime, and the results were compared. After D₂O release stopped, decline of D₂O concentrations in plant free water was measured.

Keyword : Tritium, Deuterium, Release experiment, Deposition, Plant, Soil

1. はじめに

現在開発中である核融合炉では極めて多量のトリチウムガスが燃料として使用される。核融合関連施設の通常運転時及び事故時にトリチウムが放出された場合、人体への移行経路の一つとして、植物に取り込まれたトリチウムが食物連鎖を通じて人体に移行する過程が考えられる。また、森林、草原などの植物層に取り込まれたトリチウムが施設周辺環境に滞留するなど、トリチウムの環境中移行に植物の関与は大きい。そのため、植物へのトリチウムの移行挙動について正しく評価することが、核融合開発の環境安全評価のために必要である。しかし、植物の関与するプロセスは重要な因子でありながら、日変動、季節変動の大きいことや植物体中での転流や有機体への転換など複雑であり、利用可能なデータの少ない部分である。トリチウムは主に HTO の形で環境中を循環しているが、植物はこの HTO を経根吸収により取り込む他に大気から葉表面を通じての交換で摂取しており、蒸散により葉から大気への水の流れがあるにも係わらず、交換による摂取の割合は大きいことが知られている。そのため、植物による HTO の葉からの取り込みについて、様々な環境条件のもとでデータを取得していくことが必要である。トリチウムを使用した室内実験はこれまでに行われているが、実際の環境中での移行挙動を調べるために、トリチウムを実環境中で放出することは日本では不可能であるため、その安定同位体である重水を代わりに用いて、屋外での実験を試みた。ここでは、この重水水蒸気放出実験のなかで植物及び土壤への重水水蒸気の沈着挙動及び、放出終了後の重水濃度の低下について調べた結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 重水放出実験の概要

実験は茨城大学構内に設置したビニールハウス内で 1995 年から 1997 年の間に 3 回行われた。それぞれの実験の条件を Table 1 に示す。初年度は約 12.8 m^3 、2 年目からは倍の 24.6 m^3 のビニールハウスを設置し、初年度は 24 時間、2 年目からは 48 時間連続的に放出した。重水水蒸気はビニールハウスにつなげられた小箱内に重水を入れた超音波加湿器を置き、生成された蒸気を水分を除去した外部空気と混合してビニールハウス内に送り込むことにより放出された。内部の空気はファンを用いて攪拌し、空気中重水濃度が均等になるように努めた。2 年目以降は真夏の実験であるため、ビニールハウス内の気温の上昇を防ぐために空調機を設置した。ハウス内の気温は最低で 17°C 、最高で 30°C であった。また、同様の理由でビニールハウスの屋根部分に寒冷しやをかけ、日射量を制限した。そのため、日射量は最高で 75000 Lx 程度となり、夏の平常の日射量よりも低くなくなった。

2.2 植物試料

植物試料としては人体への食物摂取としての被ばく経路を考慮して葉菜、根菜、果実、穀物の代表としてそれぞれコマツナ、二十日大根、ミニトマト、ミカン、稻を使用した。⁹⁵ 年の実験ではコマツナとミカンを夜間と日中の 2 回、2 時間、大気中濃度がほぼ一定のとき、各々ハウス内に持ち込み、時間経過に対する重水の葉への取り込み量を測定した。⁹⁶ 年の実験では、コマ

	第1回目 1995年秋	第2回目 1996年夏	第3回目 1997年夏
ヒートルバウムの大きさ	12.8 m ³	24.6 m ³	24.6 m ³
重水放出期間	1995/11/3 17:30から 11/4 17:30 24時間	1996/8/24 8:30から 8/26 8:30 48時間	1997/8/23 10:15から 8/25 10:15 48時間
放出量	D ₂ O (20%) 1.3 リットル	D ₂ O (20%) 4.5 リットル	D ₂ O (20%) 17.9 リットル
空気中重水濃度	3.6×10 ⁴ ppm 星平均：11/3 19:30-21:30 32394ppm 夜平均：11/4 12:30-14:30 25621ppm	2.2×10 ⁴ ppm 星平均：8/24 11:30-19:30 21706 ppm 8/25 9:30-19:30 24447 ppm 夜平均：8/24 19:30-7:30 18681 ppm	1.2×10 ⁴ ppm 星平均：8/24 10:15-19:15 11000 ppm 夜平均：8/23 19:15-7:15 12000 ppm
ハウス内気温	13.1～27.9°C	17～30°C	20.6～27.9°C
日照条件	11/4 13:00～15:00 の平均： 103 μ mol/s/m ² (20～690)	温度過上昇を防ぐため寒冷しやを使用 8/25 13:00～15:00 の平均： 222 μ mol/s/m ² (79～460) (~74720Lx)	温度過上昇を防ぐため寒冷しやを使用 8/24 13:00～15:00 の平均： 283 μ mol/s/m ² (41～620) (~39000Lx)
温度調整	ヒーター	エアコン(2台)：星は25°C、夜は23°Cに設定	エアコン(4台)：星は25°C、夜は23°Cに設定
サンブル	植物：コマツナ、ミカン	植物：コマツナ, 二十日大根, ミニトマト, 稲	植物：稻 東海周辺砂、及び森林土壤 含水量を変えて2種類ずつ
暴露時間	夜間と屋間の2回、2時間 計3回	夜間1回と屋間2回の 放出開始3時間後から放出終了まで、45時間	稻：夜間と屋間の2回

Table 1 重水放出実験の条件

ツナ、トマト、ラディッシュ、水稻を使用した。昼と夜の2回、大気中濃度がほぼ一定のときに、鉢植えの植物をビニールハウス内に持ち込み、重水水蒸気に曝露し、植物の葉、実などを定期的に採取した。¹⁹⁹⁶年の実験では水稻については昼間の実験しかできなかったため、¹⁹⁹⁷年の実験で再度水稻を使用し、昼夜2回の曝露実験を行った。鉢植えの植物の土壤は¹⁹⁹⁵年のコマツナ以外はビニールで覆い、土壤から植物への取り込みがないようにした。水稻は覆いをしなかったが、水稻の水は暴露終了時点で3000ppm程度であり、濃度の上昇は僅かであった。採取した試料は自由水を電子レンジで集め、白金触媒を使用したTCD付ガスクロマトグラフで重水濃度を測定した¹⁾。重水の存在形態としてはD₂OとHDOが考えられるが、ここではすべてD₂Oに換算した値を示す。

2.3 土壤試料

土壤試料としては、東海村周辺で採取した森林土壤及び砂をφ2mmの篩いにかけ、そのまま試料としたものと、水を加えることで含水量を変化させたものを使用した。直径4.8cm、深さ7cmのポリプロピレン容器に詰めて、ビニールハウス内の重水濃度がほぼ一定になった所でハウス内に持ち込み、重水水蒸気に曝露した。初期含水率は森林土壤で44%(%-水分量/土壤湿重量)と29%、砂で13%と6%の4種類であった。その後、定期的に採取し、深さごとに分割して水分を集め、植物の自由水と同様にガスクロマトグラフで重水濃度を測定した。

3. 結果と考察

3.1 植物葉自由水中D₂O濃度の経時変化

(1) 1995年の実験における植物D₂O濃度の経時変化

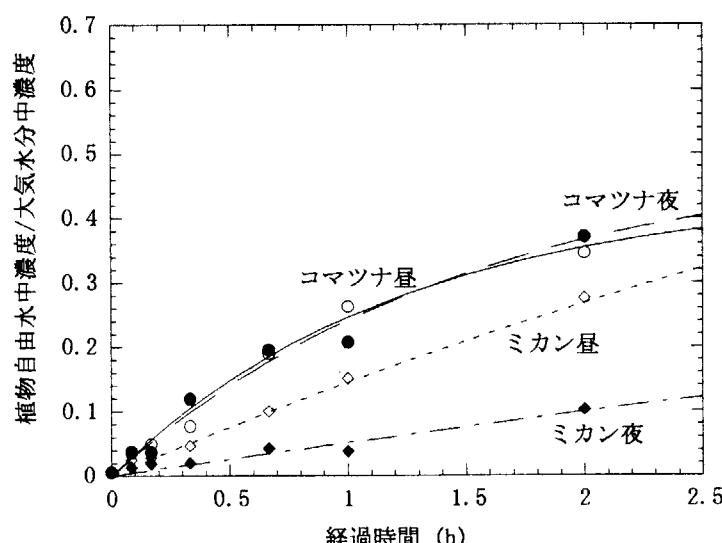


Fig.1 植物葉自由水中濃度／大気水分中重水濃度の経時変化
(1995年実験結果)

植物の葉による重水の取り込みは次式で近似した。

$$C_p/C_a = R(1 - e^{-kt}) \quad (1)$$

ここで、C_pは葉の自由水中重水濃度(ppm)、C_aは大気水分中重水濃度(ppm)、Rは平衡時の植物葉自由水中濃度と大気水分中重水濃度の比(-)、kは速度定数(h⁻¹)、tは曝露開始後の経過時間(h)である。植物中重水濃度を決める固有のパラメータである速度定数kについて、各植物及び昼と夜で比較した。

Fig. 1に1995年の実験時の植物

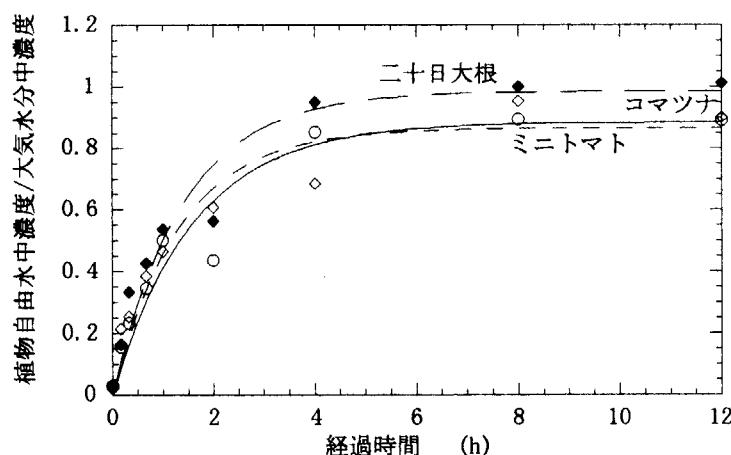


Fig. 2 植物葉自由水中重水濃度／大気水分中重水濃度の経時変化
1996年 昼間放出 (8/24)

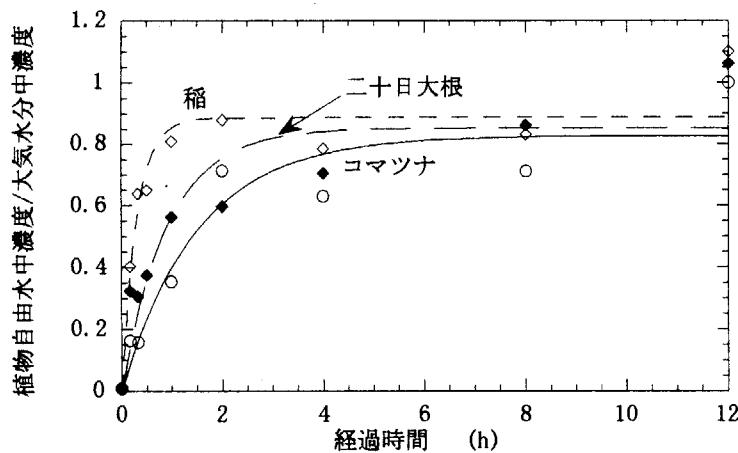


Fig. 3 植物葉自由水中重水濃度／大気水分中重水濃度の経時変化
1996年 昼間放出 (8/23)

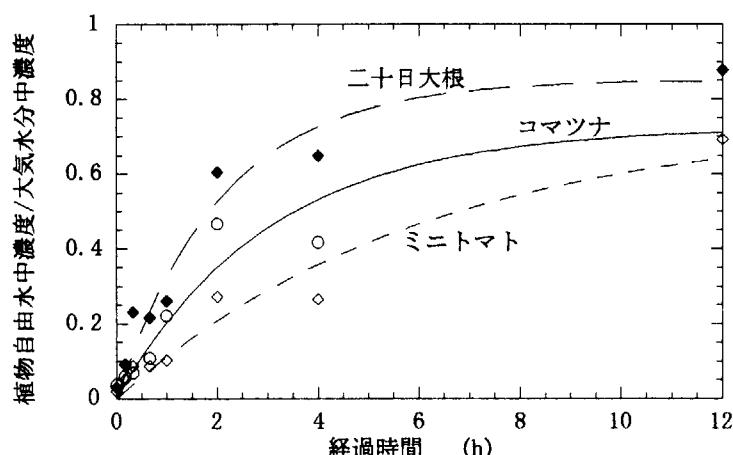


Fig. 4 植物葉自由水中重水濃度／大気水分中重水濃度の経時変化
1996年 夜間放出 (8/24)

葉自由水中重水濃度／大気水分中重水濃度の経時変化を示す。1995年はコマツナとミカンを植物試料として用いた。図中の点は測定値であり、線はそれぞれ式(1)で近似した結果である。1995年の実験では2時間のみの曝露であったため、平衡濃度には達しなかった。葉中濃度の変化は植物の種類で異なり、それは植物の葉の構造によると考えられる。葉表面にワックスがあり堅い葉をもつミカンでは取り込み速度が小さく、比較して柔らかい葉を持つコマツナは取り込み速度が速い。またコマツナは夜間でも取り込み速度が高く、夜と昼の差はわずかであった。

(2) 1996年の実験における植物中D₂O濃度の経時変化。

1996年は2日間の放出であったため、昼の実験を二回行った。Fig. 2, Fig. 3は1996年の昼の実験の結果を、Fig. 4は夜の実験の結果を示す。それぞれ、曝露開始から12時間後までの植物葉自由水中重水濃度と大気水分中重水濃度の比の経時変化を示す。1995年の結果と同様、点は測定値で線は式(1)で近似した結果である。1996年には植物試料としてコマツ

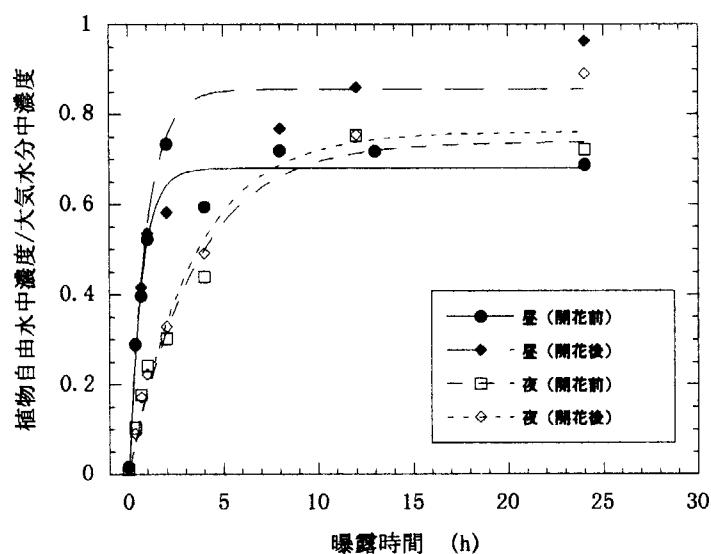


Fig. 5 稲の葉による重水水蒸気の取り込み。

夜と昼、開花前と開花後の差 (1997年放出実験結果)

夜に行なった。稻は成長段階の異なるものを2つ用意した。一つは、開花前の稻で、実験中にちょうど開花し始めた。もう一つは開花後2週間経過した稻であった。Fig. 5に1997年の実験結果を示す。稻の場合でも、昼と夜の取り込み速度に差があり、夜の方が遅くなっている。成長段階の違いによる差異は、初期の取り込み速度についてはほとんど見られなかった。

ナ、二十日大根、ミニトマト、稻を使用したが、それぞれの重水水蒸気取り込み速度に差異が見られた。日の取り込みについては、稻の取り込みが最も大きく、二十日大根の葉、コマツナ、ミニトマトの葉の順になった。また、夜間は昼間に比べ、濃度の上昇が遅い。

(3) 1997年の実験における植物中 D_2O の経時変化

1996年時には稻の実験は昼間しかできなかつたが、取り込み速度が他の植物よりも大きいため、97年にもう1度、稻を用いた実験を昼と

Table 2 時定数 k 、平衡時の植物葉自由水中濃度／大気水分中濃度比 R 及び
平衡に達するまでの時間

			時定数 k (h^{-1})	平衡時の植物/大気比 R	平衡時の95%に達する時間
昼間	ミカン	'95年	0.16±0.08	0.98±0.40	19
	コマツナ	'96年 8/24	0.62±0.12	0.88±0.06	4.8
	コマツナ	'96年 8/25	0.66±0.21	0.83±0.08	4.5
	二十日大根	'96年 8/24	0.71±0.13	0.98±0.06	4.2
	二十日大根	'96年 8/25	1.08±0.33	0.85±0.08	2.8
	ミニトマト	'96年 8/24	0.75±0.13	0.86±0.05	4.0
	稻	'96年 8/25	3.30±0.68	0.88±0.04	0.9
	稻	'97年	1.04±0.08	0.86±0.03	2.9
夜間	ミカン	'95年	0.06±0.31	0.88±4.3	50
	コマツナ	'96年	0.33±0.08	0.72±0.07	9.1
	二十日大根	'96年	0.47±0.09	0.85±0.07	6.4
	ミニトマト	'96年	0.16±0.03	0.75±0.06	19
	稻	'97年	0.29±0.03	0.76±0.03	10

(4) 植物種類及び昼夜での比較

3年間の実験で得られたデータを式(1)にあてはめて求めた時定数 k の値、平衡時の植物葉自由水中濃度と大気水分中濃度の比及び、平衡濃度の95%に達する時間をTable 2に示す。それぞれの植物毎に比較すると、日の取り込みでは、96年の稻の時定数が 3.30 ± 0.68 で最も取り込みが速く、次いで、二十日大根、ミニトマト、コマツナ、ミカンの順であった。時定数の値についてはこれまで、豆の葉について $0.58 \pm 0.38 \text{ h}^{-1}$ (Garland and Cox, 1982)²⁾、また、トマトの葉について、古い葉で $0.104 \pm 0.067 \text{ h}^{-1}$ 、新しい葉で $0.024 \pm 0.023 \text{ h}^{-1}$ (F.S.Spencer, 1984)³⁾という値が報告されている。ミニトマトについては Spencer の古い葉についての結果に近い値となった。それぞれの葉について、平衡に達するまでの時間は、昼間では稻で 0.9-2.9 時間、コマツナで 4.5-4.8 時間と稻の方が短時間で平衡に達したのに比較して、夜間では稻で 10 時間、コマツナで 9.1 時間とコマツナの方が短くなっている。稻の方が、コマツナより昼夜の差が大きいことが分かる。トリチウムが事故時に放出された場合、植物の葉自由水中の濃度により、光合成による葉の表面での有機物生成量が決ることとなる。有機態に変換されたトリチウムは長く葉に残留するため、葉自由水へのトリチウムの取り込み速度は植物体中のトリチウム残存量を予測する上で重要である。

3.2 植物可食部への重水の移行

野菜の食物摂取による被ばく線量評価には可食部の濃度が必要である。特にミニトマトの実や二十日大根の根の様に生で食用とすることが多い植物は、自由水中の濃度も重要となる。Fig. 6 に可食部中の自由水中重水濃度の経時変化を示す。今回の実験の結果では、二十日大根の根とミニトマトの実について、バックグラウンドレベルよりは上昇したもののが濃度の増加は僅かであった。ばらつきはあるものの、葉の濃度が大気中濃度の 0.8 程度まで増加したのに比較して、0.03-0.2

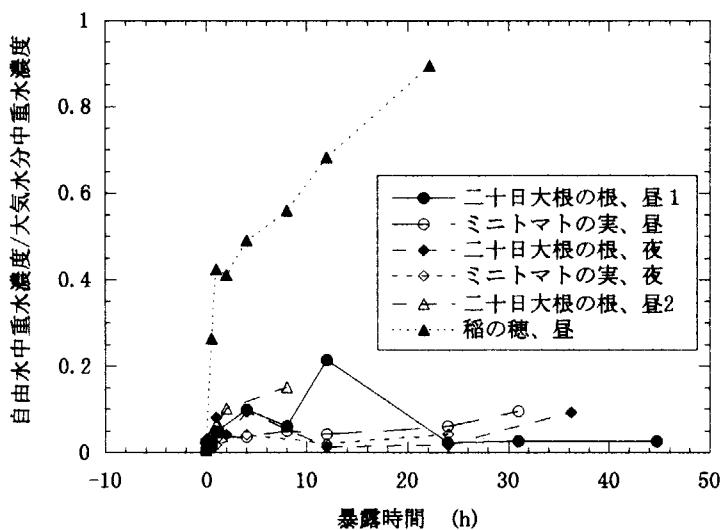


Fig. 6 ミニトマトの実、二十日大根の根、稻の穂の自由水中重水濃度 (1996年実験結果)

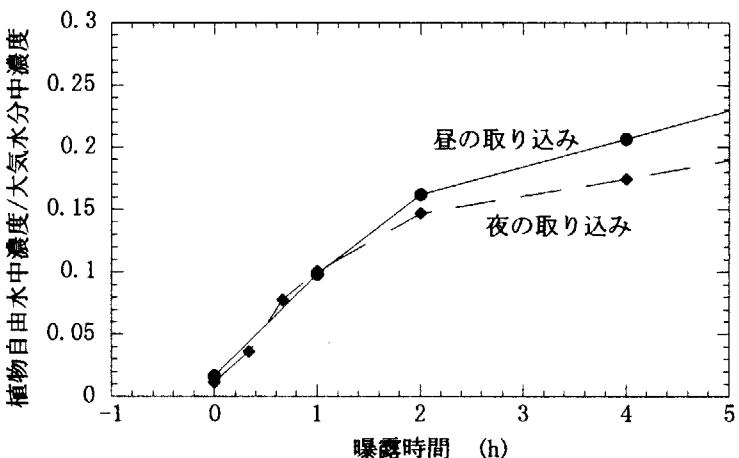


Fig. 7 稻の穂による重水水蒸気の取り込み。夜と日の差 (1997年実験結果)

程度の増加にとどまった。しかし、稲の穂については、濃度が曝露直後から上昇し、大きな取り込み速度を持つ。これは、穂の表面で直接大気中水分との交換があり、その糊殻の部分の濃度が高い可能性がある。今回の実験の稲の穂の部分は玄米がまだ乳液状であり、玄米の部分と糊殻を分離することはできなかつたため、実際の可食物である米の部分にどれだけ移行しているかは測定できなかつた。Fig. 7 に稲の穂の重水濃度の曝露開始初期の変化について示す。葉については昼夜の差が大きく見られたが、穂についてはほとんど差がなかつた。

3.3 放出終了後の植物中重水濃度の減衰

Fig. 8, Fig. 9 に稲の葉と穂について、曝露終了後の濃度の経時変化を示す。Fig. 8 が昼に曝露を終了した結果で、Fig. 9 は夜に終了した結果である。それぞれの値は、次の式に近似した。

$$C_p = \alpha + \beta e^{-\lambda t} \quad (2)$$

ここで、 α は植物自由水中重水のバックグラウンド濃度、 β は植物自由水中重水の曝露終了時濃度から α を引いた値、 λ は時定数である。それぞれのデータに対する近似式及び、重水濃度が初期濃度の半分になる時間 $T_{1/2}$ を図に示す。図より、葉の濃度は昼、夜共に急激に低下していることがわかる。半減期で比較すると昼の方が夜よりも濃度の低下が速い。開花前と開花後ではほとんど差はなかつた。穂は葉と比較して濃度の低下が遅く、今回測定した 70 時間程度の間には、バックグラウンドレベルまでは低下しなかつた。穂の部分への水分の移行については今後さらに調べる必要がある。

3.4 土壤水分中濃度の経時変化

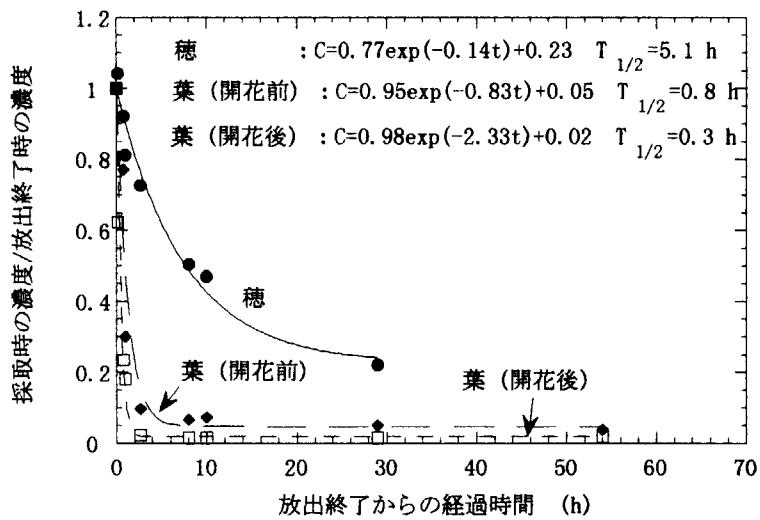


Fig. 8 放出終了後の重水濃度の低下（昼）

稲の葉と穂

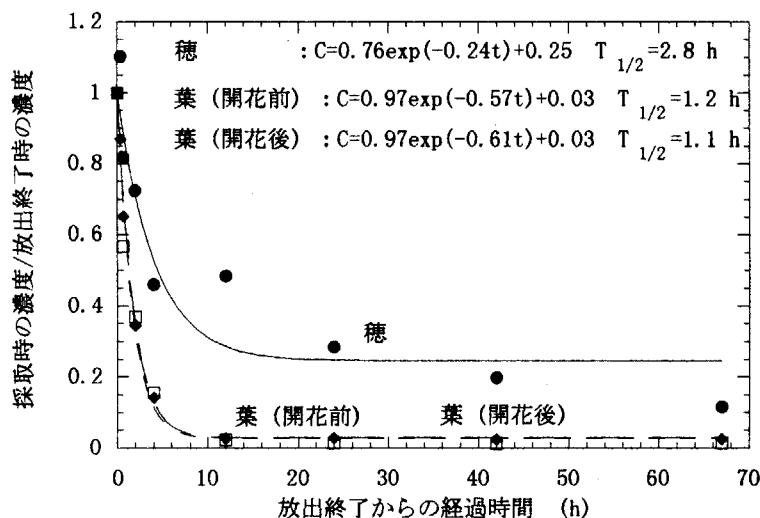


Fig. 9 放出終了後の重水濃度の低下（夜）

稲の葉と穂

Fig.10 に深さ 0-4cm の土壤水分中平均重水濃度の経時変化を示す。図中、砂 1 は砂をそのまま試料したもので、初期の湿重量当たりの含水率は 6%、砂 2 は砂に水を加えたもので含水率は 13%、土 1 は森林土壤そのまま使用したもので含水率は 29%、土 2 は森林土壤に水を加えたもので含水率は 44% であった。それぞれの重水濃度を比較すると、曝露中は含水率の差異による違いは僅かであった。砂 1、砂 2 については、途中、表層の水分量が低下し、測定のための水分の捕集が困難となった。十分水分の存在した森林土壤については曝露終了後の濃度低下の様子も含水率の差異による違いはほとんどなかった。Fig. 11 に土壤表層 0-4cm の単位面積当たりの重水沈着量の経時変化を示す。

また、Fig.12 に土壤各層毎の水分中重水濃度の経時変化を示す。これらの結果より、土壤への沈着量は、含水率が高い土壤ほど高いことがわかる。また、重水の沈着は土壤の極表層に限られ、今回の 30 時間の曝露ではほとんど表層 2cm までしか濃度の上昇がみられず、曝露停止後は表面の層から大きく低下していくことがわかる。

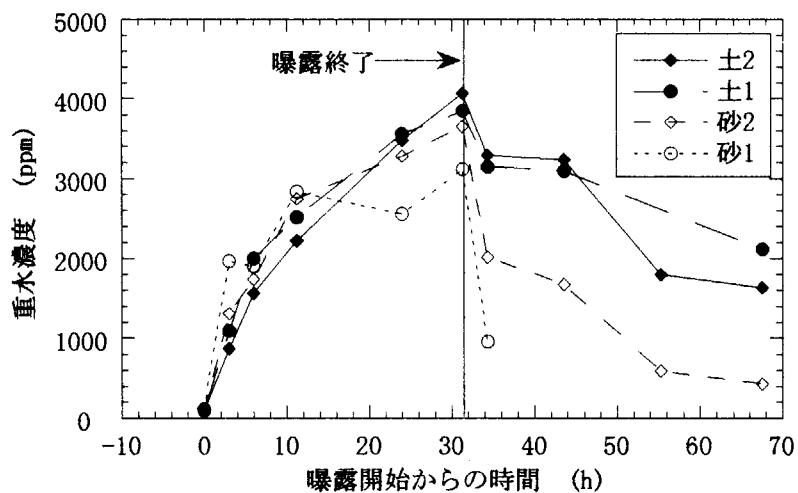
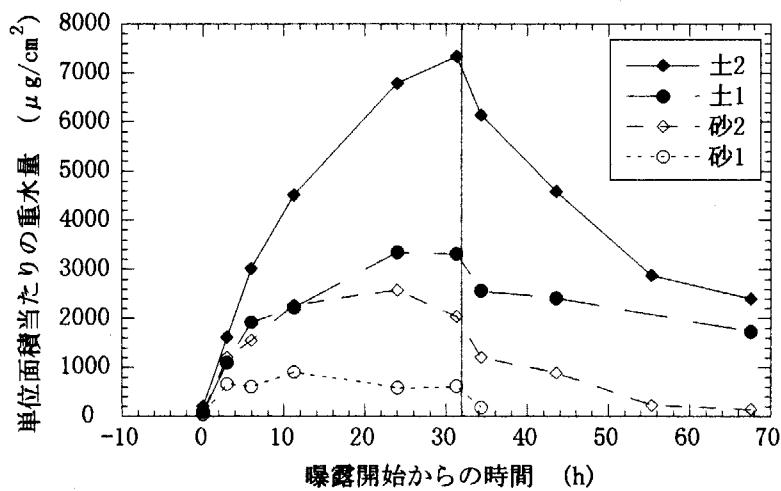
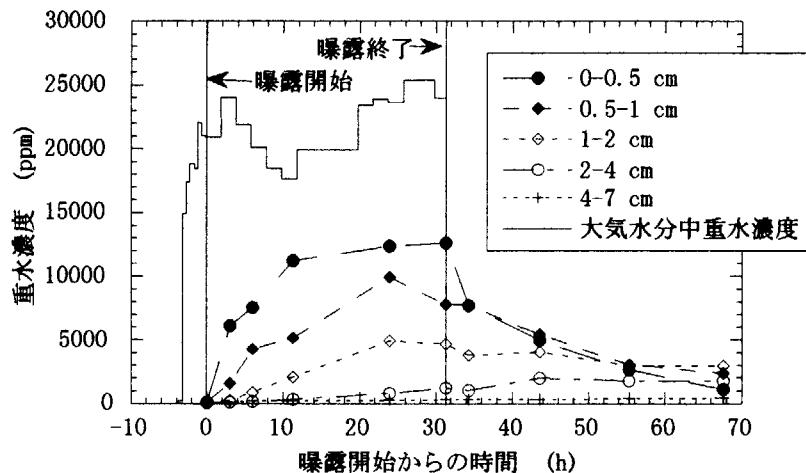


Fig. 10 土壤水分中平均重水濃度の経時変化

Fig. 11 土壤単位面積当たりの重水沈着量の経時変化
(土壤表面 0-4 cm)Fig. 12 土壤各層毎の水分中重水濃度の経時変化
(土 1 : 含水率 29%)

4. まとめ

トリチウムが環境に放出された場合の模擬実験として、重水を野外に設置したビニールハウス内で放出する実験を行い、植物及び土壤への重水の沈着及び放出挙動を調べた。以下に得られた知見をまとめる。

植物自由水中重水濃度について：

- ・重水水蒸気の放出実験のデータにおいて、植物の葉については濃度変化を一次元動力学モデルにあてはめることができ、その時定数を各植物毎に求めることができた。
- ・昼と夜の取り込み速度の違いは、コマツナではなく、ミカン、ミニトマト、稻で大きかった。
- ・ミニトマトの実の濃度増加は小さく、短時間の曝露では、ほとんど実には移行しないことが分かった。
- ・稻については、葉と穂の両方とも他の植物より重水の取り込み速度が大きかった。放出終了後の濃度低下について、葉の濃度低下は穂よりも大きく、今回測定した 70 時間程度の間には、穂の濃度はバックグラウンド濃度まで低下しなかった。

土壤への沈着について：

- ・含水率による濃度の違いはあまりみられなかった。土壤単位面積当たりの重水沈着量で比較すると、含水量が高い土ほど、沈着量が大きい結果となった。
- ・土壤への沈着は、今回の 30 時間程度の曝露では表層 2cm の深さに限られた。

謝辞

本研究を行うにあたり、茨城県農業総合センターの須賀立夫氏に有益な御助言を頂いたことを記し、感謝致します。

参考文献

- (1) Morishita, T. and Noda, S.: Measurement and tracer technique for heavy water by use of gaschromatograph, *Radioisotopes* 31, 619-627, (1982)
- (2) J.A.Garland and L.C.Cox: Uptake of Tritiated Water Vapor by Bean Leaves, *Water Air Soil Pollut.* 17, 207-212, (1982)
- (3) F.S.Spencer: Tritiated Water Uptake Kinetics in Tissue-Free Water and Organically-Bound Fractions of Tomato Plants, Ontario Hydro Research Division, OH-84-69-K, (March 1984)



18. 環境研全天候型人工気象施設の概要

(財)環境研 久松俊一

(財)環境科学技術研究所では、放射性同位元素等の環境中挙動に及ぼす気象の影響を研究するため、全天候型人工気象施設を建設中である。施設には 1 機の大型人工気象室を設けるが、それは降雪、降水、霧発生の各装置を備えており、日本全国の気象条件をほとんど全て模擬することが可能である。ここでは、本施設の概要を説明し、そこで行うことを考えている研究の一端を紹介する。

Artificial Climate Experiment Facility in Institute for Environmental Sciences

Shun'ichi HISAMATSU

Department of Radioecology, Institute for Environmental Sciences

The Institute for Environmental Sciences is now constructing the artificial climate experiment facility (ACEF) to research the effect of climate on movement of elements in the various environments. The ACEF will have one large, and five small artificial climate experiment chambers. The large chamber is designed to simulate climate conditions in all Japan. It will equip systems to simulate sunshine, rainfall (including acid rain), snowfall and fog (including acid fog). 'Yamase' condition will also be reproduced in it. Yamase is a Japanese term describing the characteristic weather condition occurring mainly on the Pacific Ocean side at the northern Japan. While the small chamber will not have rainfall, snowfall and fog systems, radioisotopes will be used in the two small chambers which will be set up in a radioisotopes facility. We describe here the outline of the ACEF and the preliminary research programs being undertaken using both kinds of chambers

Keywords

Artificial climate chamber, Climate effect, Radioisotopes, Environmental transfer, Yamase

1. 全天候施設の概要

環境科学技術研究所（環境研）では、全天候型人工気象施設(全天候施設)を建設中である。全天候施設は、平成 8 年度から建設が開始され、当初は平成 11 年度末に完成の予定であった。しかしながら、諸般の事情により建設期間が延長され、平成 12 年度末の完成予定となっている。現在は建家が完成し、実験設備機器類の整備に当たっている。工程の概要を Table

Table 1 Construction plan of artificial climate experiment facilities

	Financial year					
	1995	1996	1997	1998	1999	2000
Designing	↔					
Construction of building		↔	→			
Radioisotope laboratories		↔	→			
Small chambers			↔	↔		
General laboratories		↔	→			
Small chambers				↔	↔	
Large chamber			↔	→		

1に、建家の概要図を Fig. 1 に示した。全天候施設には 1 機の大型人工気象室と 5 機の小型人工気象チャンバーが備えられており、気象の影響を検討する各種の実験に対応できる。

大型人工気象室は国内の気象を全て再現することを目指しており、日照、降雨、降雪装置等を備えた奥行き 11m、幅 12m、高さ 13m の気象室である。内部の概要を Fig. 2 に、主な性能を Table 2 に示した。日照装置はメタルハライドランプとハロゲンランプを組み合わせてあり、太陽光に近いスペクトル分布が得られる、Fig. 3 に日射装置のスペクトルを基準太陽スペクトルと共に示した。降雨に関しては、通常の雨のほかに酸性雨降雨装置があり、pH3までの酸性雨を降らせることが可能である。降雪装置にはボックス法を採用した(Fig. 4)。これは、空気と水を混合してノズルから噴射し、これをナイロンネットを張った箱の中に吹き込み、ネット上に氷の微細結晶を成長させ、搔き落として降雪とする方式である。この方法は、氷を削って作られる雪や単に空気・水混合物を噴射して作られる雪に比較して自然の雪に近く、また、過飽和水蒸気を用いる降雪装置に比較して降雪量を確保しやすい。

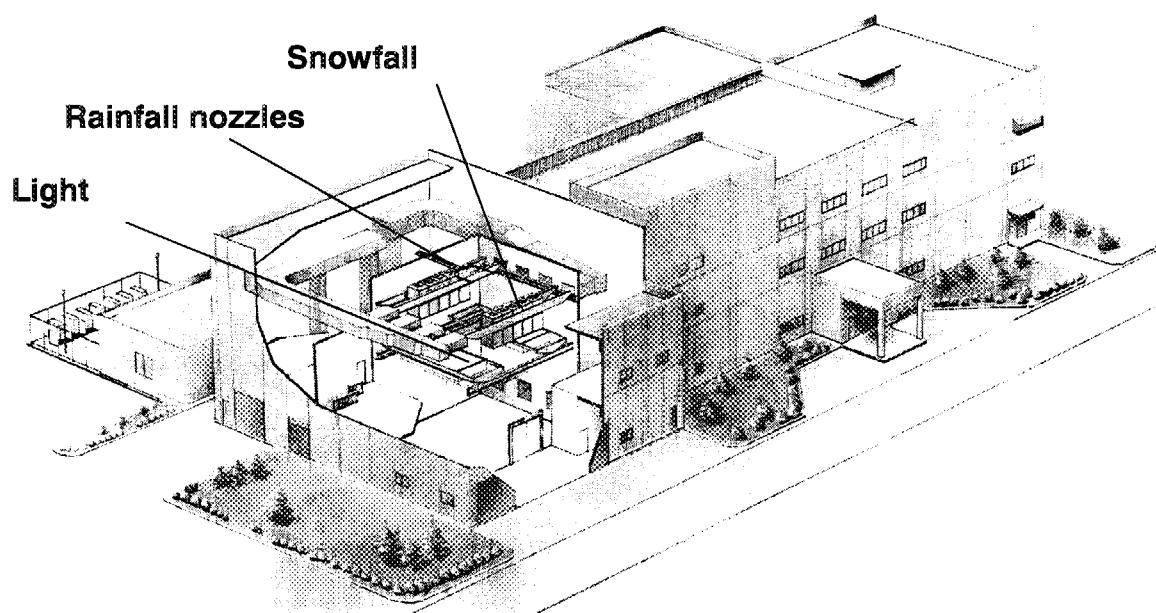


Fig. 1 Artificial climate experiment facilities in Institute for Environmental Sciences

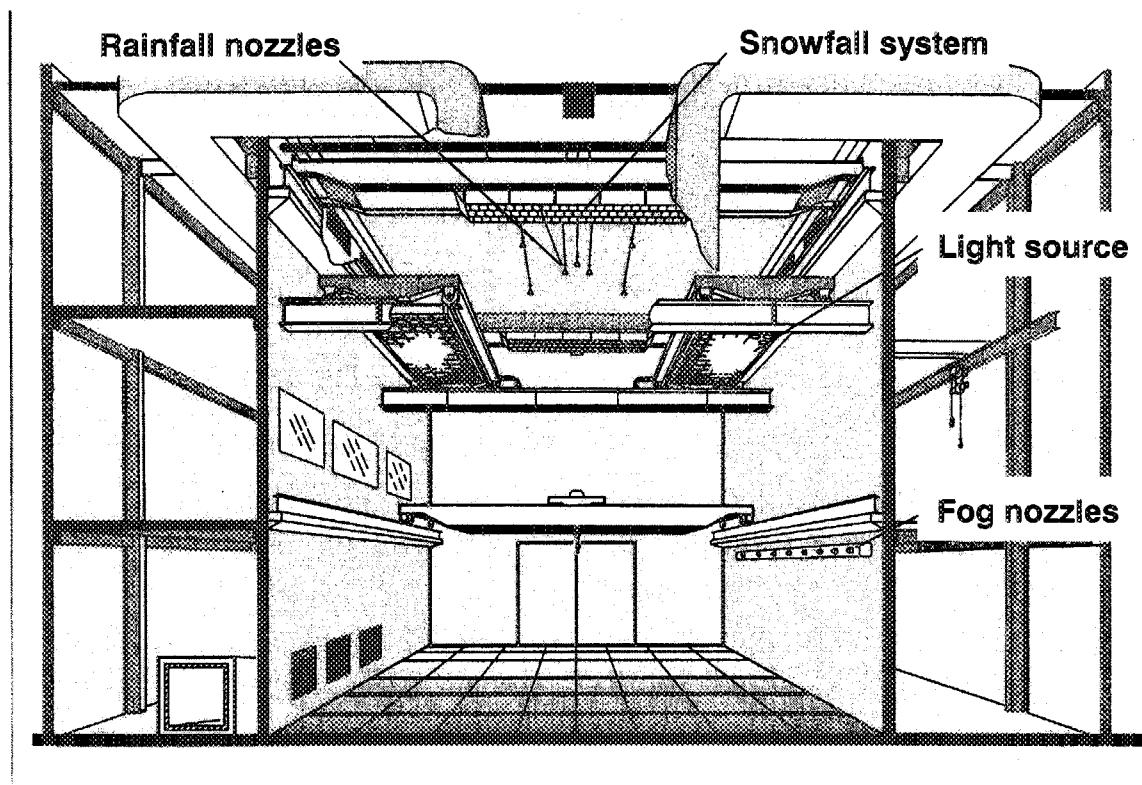


Fig. 2 Large artificial climate experimental

Table 2 Control range for various parameters in a large artificial climate experiment chamber

Parameters	Control range	Note
Temperature(°C)	-25~50	
Humidity (%RH)	20~90	
Light intensity (lx)	15,000~50,000	
Rainfall (mm h ⁻¹)	10~100	
Acid rain (mm h ⁻¹)	10~20	~pH3
Snowfall (mm d ⁻¹)	50~250	Apparent density=0.1~0.4 g cm ⁻³ Flake size=1~5mm
Fog (g m ⁻³)	~2	Particle size=5~100μm
Acid fog (g m ⁻³)	~2	~pH3, Particle size=5~100μm
Wind velocity (m s ⁻¹)	≤0.5	

更に、当研究所の位置する青森県及び東北地方北部太平洋沿岸には「やませ」と呼ばれる特殊な気象条件がある。これは、春から夏にかけて冷たい北東風が吹き、それと共に霧が発生する現象である。低温と日照不足をもたらすため農業に多大な影響を与えるが、大型人工気象室ではやませを再現するために霧の発生装置を備えており、加えて、pH3までの酸性霧の発生も可能である。また、エアロゾル発生装置を備え、各種の粒子発生が可能である。

全天候施設には、大型人工気象室のほかに5台の小型人工気象チャンバーを設置するが、その内の2台はRI取り扱い施設内に置き、RIを用いた実験が可能である。これらのチャン

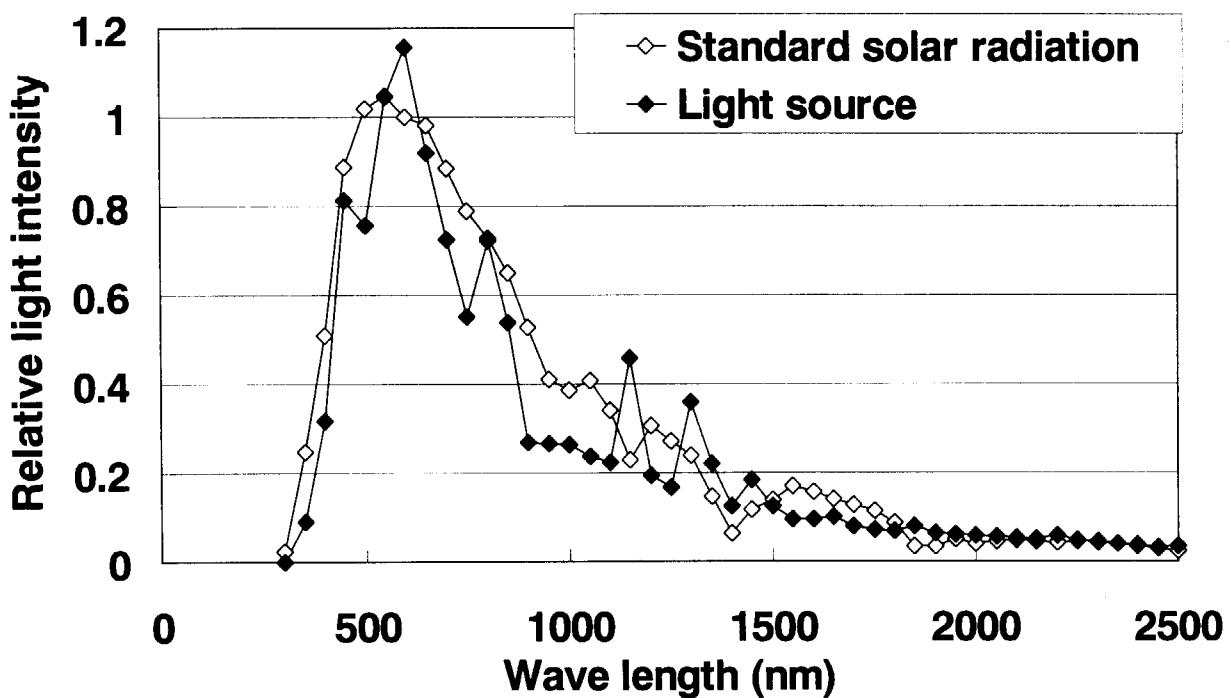


Fig. 3 Spectrum of light source in a large artificial climate experiment chamber

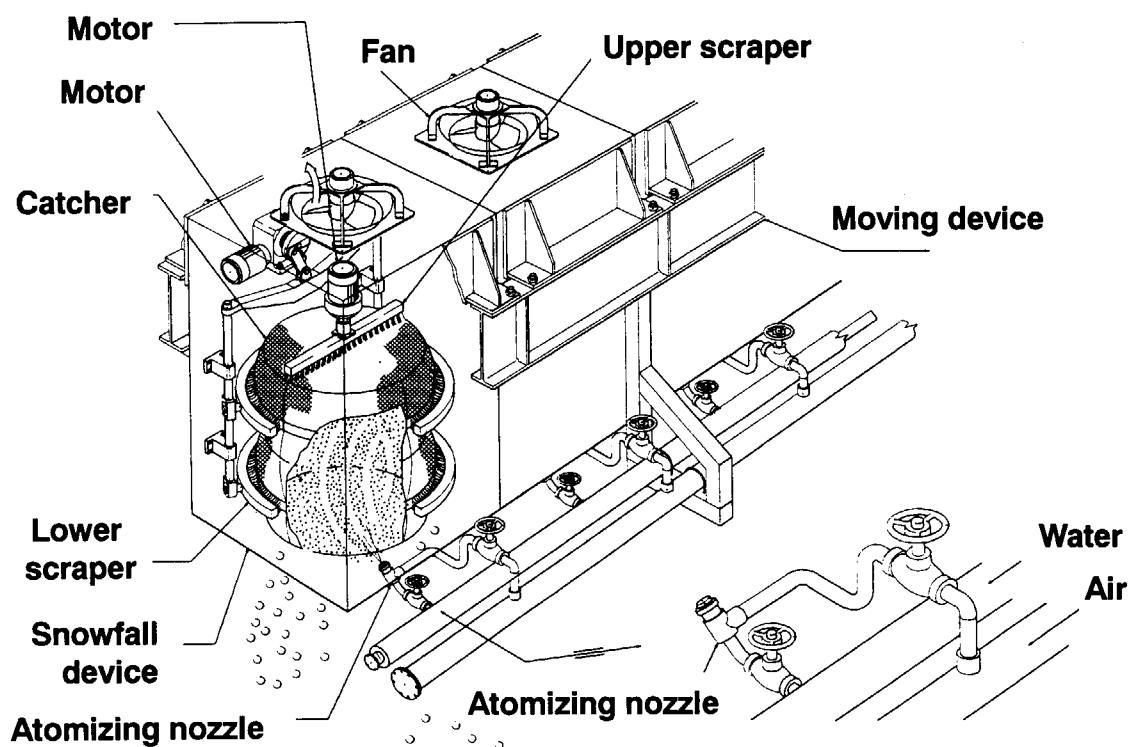


Fig. 4 Snowfall system of large artificial climate experiment

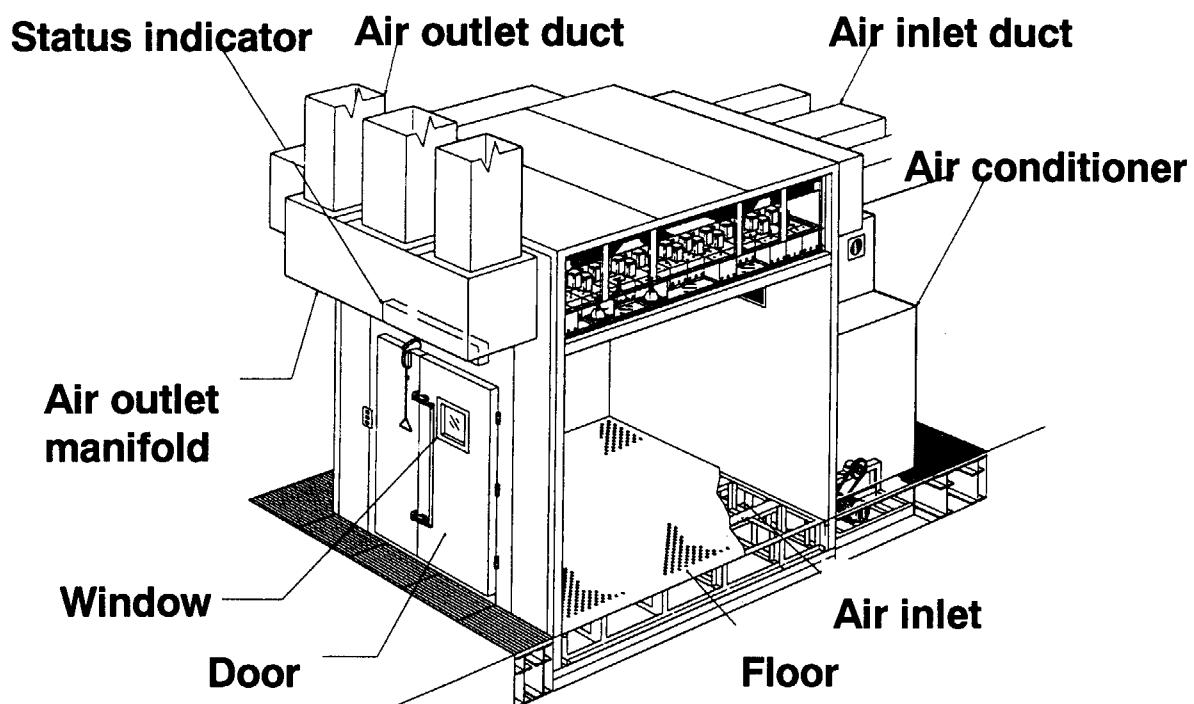


Fig. 5 Small artificial climate experiment chamber

Table 3 Control range for temperature in small artificial climate experiment chambers

	General experiment chambers			Radioisotope experiment chambers	
	A	B	C	D	E
Temperature(°C)	-5~50	-10~50	-40~50	-5~50	-40~50

2. 全天候施設における実験の予備的計画

以下に全天候施設における実験として予備的に計画されているテーマを列挙した。

やませ関連

農作物の元素代謝に与えるやませの影響

大気から植物・土壌への元素移行に及ぼすやませの影響

果樹の元素代謝に与えるやませの影響

雪関連

Rn エマネーションに及ぼす雪の影響

降雪による大地 γ 線の遮蔽効果

重水沈着に及ぼす雪の影響

トリチウム関連

大気から植物への重水の沈着

大気中重水の霧による沈着

土壌による HT の酸化に及ぼす気象の影響

大気から農作物への HT、有機 T 化合物の移行

農業関連

種々の気象条件が農作物による元素の TF や代謝に与える影響

細胞レベルでの土壌植物間の元素移行

気象条件が土壌中の可給態に与える影響

環境修復関連

植物を用いた環境修復

有害物質の土壌植物間移行の低減化



19. 放射性核種の土壤から植物への 移行に関する根圏土壤ファクター

有江 力¹、Satyanarayana Gouthu¹、平田博明²、安部静子¹、山口 勇¹

¹理化学研究所、²日産化学工業

根圏土壤の様々なファクター、すなわち土壤中の利用可能核種量、pH、有機炭素、陽イオン交換容量、交換性陽イオン (Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+)、リン酸吸収係数、粒径組成（粗砂、細砂、シルト、粘土）、土性、根圏微生物等について、土壤から植物への放射性核種の移行に及ぼす影響をマルチトレーサーを用いて検討した。

Plant Uptake of Radionuclides and Rhizosphere Factors

Tsutomu ARIE¹, Satyanarayana GOUTHU¹, Hiroaki HIRATA², Shizuko AMBE¹ and Isamu YAMAGUCHI¹

¹The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN)

²Nissan Chemical Co.

Influence of soil factors such as nuclide availability, pH, organic carbon, cation exchange capacity (CEC), exchangeable cations (Ca^{2+} , Mg^{2+} , and K^+), phosphate absorption coefficient (PAC), physical composition of soil (coarse sand, fine sand, silt, and clay), soil texture, and rhizosphere microbes on uptake of radionuclides by plants are studied.

Keywords: Bioremediation, Cesium, *Fusarium* spp., Microorganisms, Multitracer, Rhizosphere, Soil factors, Uptake radionuclide by plant.

Addresses:

¹ 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198, Japan (埼玉県和光市広沢2-1)

² 3-7-1 Kanda-Nishiki-Cho, Chiyoda, Tokyo 101-0054, Japan (東京都千代田区神田錦町3-7-1)

1. はじめに

近年、地球環境の汚染の人間や生物に及ぼす悪影響に対する懸念が広がり、汚染の実態の解析、汚染の防止や除去などの研究に対する要望が増加している。汚染物質としては工業生産や産業廃棄物由来の化合物、放射性核種、重金属等が挙げられているが、これらは環境から人体に呼吸等に伴って直接取り込まれる場合と、食物連鎖に入り込んで経口で摂取される場合とがある。

放射性核種は平常時でも超微量ではあるが原子炉等から放出され、事故等の非常時には環境を汚染する危険性が予想されている。この場合も、直接人体に及ぼす一次的な悪影響と食用植物や畜産物経由の二次的な悪影響を想定しなくてはならない。我々は、この二次的な影響に注目して、食用植物の安全性確保および食糧生産の場である汚染圃場のリメディエーションによる早期回復を試みるための基礎的知見を得ることが重要と考え、土壤中の放射性核種の植物への移行動態の解析を行っている。

我々は、すでにキュウリやトマト等の栽培食用植物種が花卉類や野生植物に比べて土壤中に存在する放射性核種をより多く取り込むことを報告した。^{8, 9, 10)} また、ダイズに取り込まれた核種の植物器官への移行の経時変化および細胞内器官での動向について解析し、^{12, 21)} 可食部である種子への移行割合が核種により異なることを示した。¹²⁾

一方、土壤中に残留する環境汚染物質のバイオリメディエーションの可能性を探る研究が最近盛んに行われている。PCB、PCP、PCNB等の化合物を代謝・分解する微生物についての報告は多い^{15, 20, 23, 24)}が、放射性核種の場合は、分解によるリメディエーションが不可能なため、新たな手法の構築が必要となる。Gouthuら (1997) は、キュウリやトマトが、土壤からより多くの核種を取り込み、生重も短期間で大きくなるため、核種で汚染された土壤に栽培してその地上部を収穫する事により、土壤の浄化と核種の濃縮が可能であることを示唆している。⁹ このようなファイトリメディエーションの試みは、すでに米国を中心にスタートしている。^{5, 6, 7, 22)}

植物の生育環境は、気候、気象の変化、地形、土壤等の物理化学的な要因だけでなく、植物を取り巻く、空気中・葉面・根圏の微生物による植物-微生物複合系により構成されている。植物を環境汚染物質のリメディエーションに用いるためには植物による物質取り込みに影響を及ぼす複合系中の諸要因についての基礎的知見を蓄積する必要がある。

本稿では、様々な核種の動態を同時に調査するのに適しているマルチトレーサーを、異なるタイプの土壤に施用し、植物への移行動態と根圏土壤の物理化学的ファクターとの関連を調査した結果を示すとともに、複数の植物根圏微生物を分離し、それらが植物への核種移行に及ぼす影響について解析した。

2. 材料および方法

2. 1. 供試土壤およびその性状調査

関東地方周辺の異なる環境よりサンプリングした土壤を供試した。環境の差は、地域的な距離のみならず、耕地・未耕地等の土地利用の差も念頭に置いた。供試土壤の一覧をTable 1に示す。

土壤中の利用可能核種量 (available fraction) は、McLaren and Crawford (1973) に従い、以下のように測定した。¹⁶⁾ すなわち、マルチトレーサーを含んだ土壤 (2 g) に0.05% 塩化カルシウム溶液20 mlを加え、20 ℃で20 時間、レシプロシェーカー (150 spm) で振とう、溶出した。その後、遠

心分離（1000 xg、10 分間）で取得した上清中に含まれる核種の割合を利用可能な核種量とした。

土壤の物理化学性は、有機炭素（organic carbon）、陽イオン交換用量（cation exchange capacity: CEC）、交換性陽イオン（exchangeable cations; Ca^{2+} , Mg^{2+} , and K^+ ）、リン酸吸収係数（phosphate absorption coefficient）、pH、粒径組成（physical composition）、土性（soil texture）を対象とし、解析はパリノ・サーヴェイ株式会社（群馬県藤岡市）に依頼した。

Table 1 List of soil samples used in this study.

Soil no.	Location of sampling site	Land use	Soil texture ²⁾
1	Takasaki, Gunma	Agriculture	SLC
2	Yoshii, Gunma	Agriculture	SL
3	Tomioka, Gunma	Agriculture	SLC
4	Fukaya, Saitama	Agriculture	LiC
5	Tomisato, Chiba	Agriculture	LiC
6	Karuizawa, Nagano	Forest	SL
7	Tsumagoi, Gunma	Agriculture	SL
8	Tsumagoi, Gunma	Agriculture	CL
9	Wako, Saitama	Forest	LiC
10	(Kureha-soil) ¹⁾	Commercial	LiC

¹⁾Commercially available horticulture soil (Kureha-engei-baido; Kuraha Chemical Industry, Tokyo, Japan).

²⁾SLC: sandy clay loam; SL: loamy sand; LiC: light clay
CL: clay loam. Determined by Palyne Survey Co., Fujioka, Gunma, Japan.

2. 2. マルチトレーサー

マルチトレーサーは、多種類の放射性核種の混合物を意味し、これを用いることで、一度の試験で同時に複数の核種の挙動を解析できる利点を持つ。理化学研究所リングサイクロトロンで加速された135 MeV/nucleon ^{14}N 重イオンビームを、金あるいは銀ディスクターゲットに照射し、核破碎により様々な核種を生成する。このディスクを王水あるいは HNO_3 に溶解、溶液中の金あるいは銀をエチルアセテート抽出や析出等の方法で除去、残存するマルチトレーサーを乾固、最終的にマルチトレーサー水溶液を調整した。¹⁾ 本研究で主に使用した金をターゲットとしたマルチトレーサーに含まれる核種元素は、Be、Na、K、Ca、Sc、V、Cr、Mn、Fe、Co、Zn、Ga、As、Se、Br、Rb、Sr、Y、Zr、Nb、Mo、Tc、Ru、Rh、Ag、In、Sn、Te、I、Ba、Ce、Pm、Eu、Gd、Tb、Er、Tm、Yb、Lu、Hf、Re、Os、Ir、Pt、Hgである。

2. 3. セシウム

市販の放射性セシウム (^{137}Cs ; cesium chloride in 1 M HCl, Amersham, Buckinghamshire, UK) を用いた。0.5 μl の37 MBq/ml ^{137}Cs 溶液をマルチトレーサー溶液21 mlに混合して実験に供試した。以下、本文中のマルチトレーサーはこの混合液を意味する。

2. 4. 植物

キュウリ (*Cucumis sativus* L., cv. Suyo)、トマト (*Lycopersicon esculentum* Mill., cv. Momotaro)、ダイズ (*Glycine max* Merr., cv. Okuharawase)、イネ (*Oryza sativa* L. cv. Koshihikari) を供試した。

各植物は、ポット (180 ml) に詰めた供試土壤に播種、25°C (夜間) ~ 30°C (昼間)、12 hr 明

期 (15,000~17,000 lux) – 12 hr 暗期にコントロールされたRI実験温室中で育苗、発芽後にマルチトレーサー溶液1 ml / potを灌注処理し、その後生育させた。植物は約40日生育させた後に、地上部、根などの部分別に収穫、65 °Cで乾燥・粉碎した上で、プラスチックシャーレ（直径35 mm; 3001, Falcon, Lincoln Park, NJ, USA）のカバーユニットと、天地を逆にしたベースユニットの間に挟み込み、スコッチテープを用いて密封し、測定に供試した。なお、1実験区に3ポット、6株以上のサンプルを使用した。

2. 5. 放射性核種移行割合の調査

各試料について、ハイパー ピュアゲルマニウム半導体検出器を用いてガンマ線の測定を行った。マルチトレーサー構成各核種のスペクトルのピーク面積をSPECanal'94プログラムを用いて測定した。このピーク面積を標準サンプル (100%) の面積と比較することで、移行割合を求めた。なお、マルチトレーサーに含まれる元素のうち、解析の対象としたのは、⁵⁴Mn、⁸⁸Co、⁶⁵Zn、⁸⁸Rb、⁸⁵Sr、¹³⁷Csである。

2. 6. 根圏微生物

根圏微生物としては、マルチトレーサーを施用しない供試土壌で、2. 4. に記述した方法で栽培した植物の根圏土壌および根面から段階希釈法により糸状菌、細菌、放線菌を分離した。段階希釈法の詳細については、松尾ら (1980)¹⁷⁾に従った。分離後の微生物は、ポテトデキストロース寒天 (PDA) 培地上で維持した。土壌への施用の際はポテトデキストロース液体 (PDB) 培地にPDA培地から菌体を移植して25 °C、120 rpmで振とう培養して微生物懸濁液を調整した。

2. 7. 根圏微生物の及ぼす影響調査

植物を播種後、微生物懸濁液を土壌に灌注処理し、その後マルチトレーサー溶液を処理した。移行は上記と同様に調査した。また、供試した土壌微生物の産生物質が推測される場合は、その類縁化合物水溶液を微生物培養液と同様に土壌に灌注処理した。

3. 結 果

3. 1. 移行量の土壌依存性

供試した土壌サンプルにより、それぞれに栽培した植物（キュウリ）の放射性核種の取り込み量に差が見られた。すなわち、浅間山東麓の針葉樹林由来の土壌（土壌サンプル6）で⁸⁸Rb、⁸⁵Sr、¹³⁷Csなどの取り込みが他の土壌と比較して著しく多かった（Table 2）。また、この針葉樹林と近接した圃場由来の土壌（土壌サンプル7）における取り込みは、樹林下の土壌に比較すると減少したが、他の土壌との比較ではなお大きかった。この他、埼玉県和光市の広葉樹林由来の土壌（土壌サンプル9）でも取り込みは多かった（Table 2）。これらの結果より、土壌サンプル6および7に共通する土壌因子、また非耕作条件で取り込みが多くなると考えられた。

Table 2 Plant uptake from different soil types.

Soil no	Uptake (%)					
	⁵⁴ Mn	⁵⁸ Co	⁶⁵ Zn	⁸³ Rb	⁸⁵ Sr	¹³⁷ Cs
1	4.29	0.69	5.70	4.95	5.05	0.10
2	8.75	0.10	4.68	2.66	4.21	0.07
3	7.33	0.03	1.93	1.65	3.15	0.06
4	1.24	0.02	2.93	0.83	1.60	0.02
5	1.24	0.03	3.31	2.69	1.22	0.03
6	15.08	1.44	9.37	59.90	20.09	9.31
7	2.10	0.08	2.59	19.10	7.02	2.72
8	3.09	0.04	2.01	19.84	2.88	0.81
9	3.48	0.20	3.97	24.62	2.40	1.56
10	2.50	0.09	3.63	6.57	1.24	0.46

Cucumber (cv. Suyo), n=5.

3. 2. 移行量に影響を及ぼす土壤因子

供試土壤の物理化学的性状を解析したところ、取り込み量と正の高い相関を示すファクターとして、土壤中の利用可能核種量、土壤の構成における細砂の割合が、負の相関を示すものとして陽イオン交換容量、土壤の構成における粘土の割合、土壤pH等が見いだされた (Table 3; Fig. 1)。土壤中の有機炭素量は大きな影響を与えていないように考えられた (Table 3; Fig. 1)。

Table 3 Correlation coefficients of a linear correlation analysis between plant uptake and available nuclide fraction and soil properties.

Nuclide	AV	pH	OC	Exchangeable cation				Physical composition			
				CEC	Ca	Mg	K	PAC	F-sand	Silt	Clay
⁵⁴ Mn	0.74	-0.49	-0.23	-0.60	-0.56	-0.60	-0.14	-0.51	0.69	-0.47	-0.58
⁵⁸ Co	0.72	-0.51	-0.05	-0.44	-0.48	-0.50	-0.38	-0.30	0.54	-0.26	-0.46
⁶⁵ Zn	0.44	-0.52	-0.05	-0.35	-0.38	-0.40	-0.14	-0.25	0.43	-0.18	-0.35
⁸³ Rb	0.80	-0.37	0.36	-0.24	-0.45	-0.58	-0.51	0.03	0.47	-0.22	-0.50
⁸⁵ Sr	0.68	-0.52	-0.07	-0.58	-0.57	-0.59	-0.42	-0.41	0.73	-0.44	-0.68
¹³⁷ Cs	0.88	-0.38	0.14	-0.39	-0.45	-0.52	-0.43	-0.17	0.56	-0.27	-0.55

Abbreviations, AV: available fraction (sum of nuclide amount in soil solution and weekly bound to soil particles by inorganic specific sites); OC: organic carbon; CEC: cation exchange capacity; PAC: phosphate absorption coefficient; F-sand: fine sand.

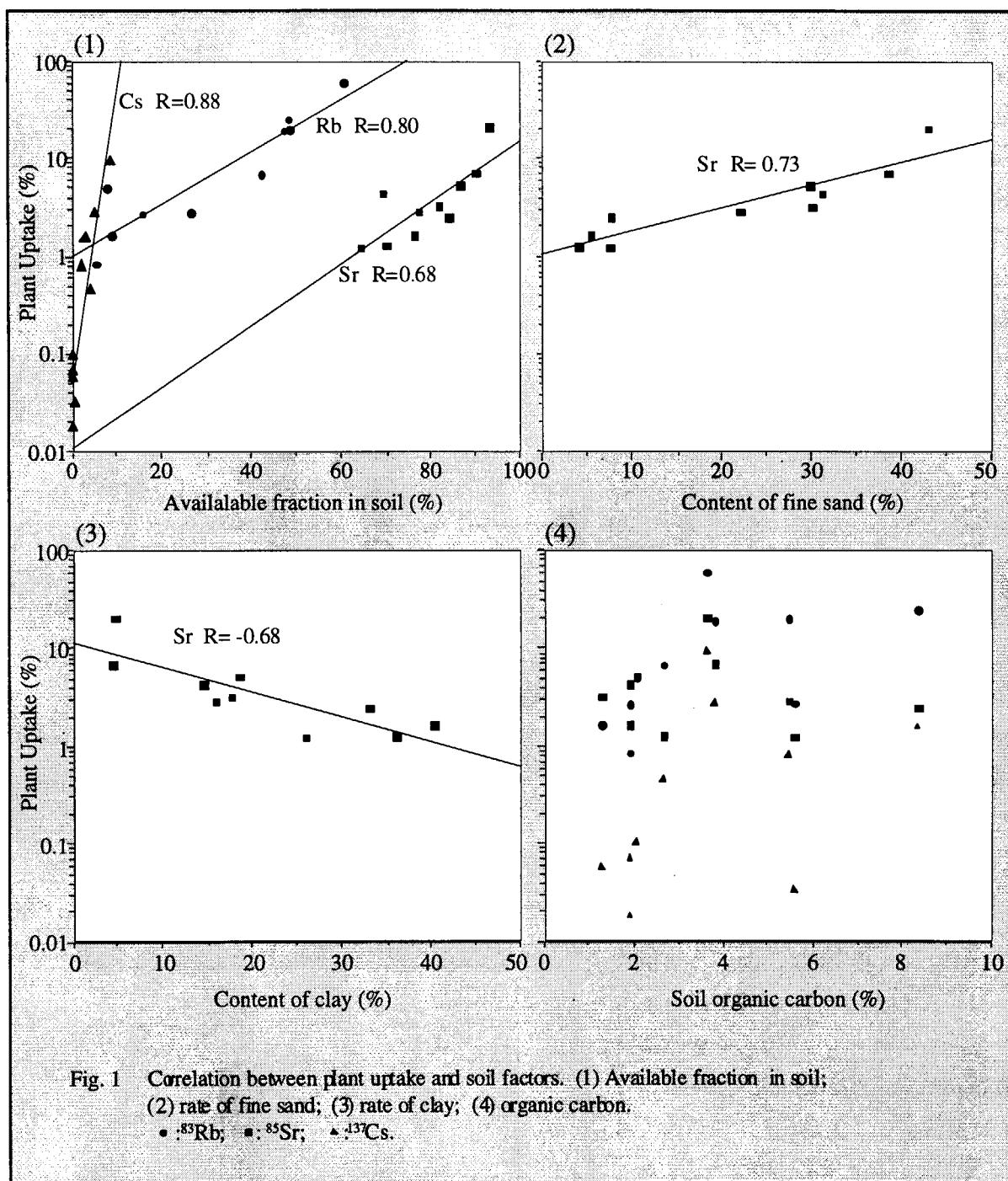


Fig. 1 Correlation between plant uptake and soil factors. (1) Available fraction in soil; (2) rate of fine sand; (3) rate of clay; (4) organic carbon.
•: ^{88}Rb ; ■: ^{85}Sr ; ▲: ^{137}Cs .

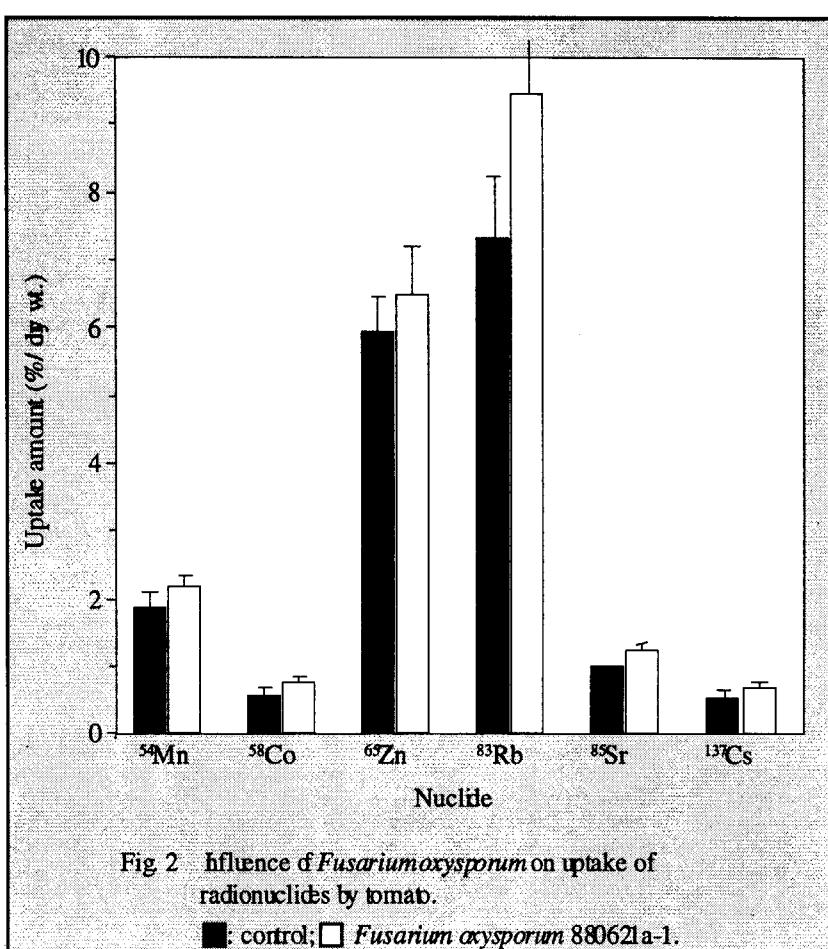
3. 3. 移行に影響を及ぼす根圏微生物

根圏微生物として得られた微生物をキュウリ、トマト、ダイズ、イネの根圏に接種して植物による核種取り込みに及ぼす影響を調査したところ、複数の植物-根圏微生物の組み合わせで、核種取り込み量の増加が認められた。以下に、その例を示す。

3. 3. 1. トマト-*Fusarium oxysporum*

トマト根圏より分離・保存した糸状菌の1菌株をトマト根圏に接種した場合に ^{88}Rb 、 ^{137}Cs 等の核種の取り込みの増加が見られた (Fig. 2)。¹¹⁾ この糸状菌菌株は、ポテトデキストロース培地上で白色からやや紫がかった橙色の菌叢を形成して良好に生育した。生育最適温度はおよそ27℃であった。本菌は、弓形で複数の隔壁を

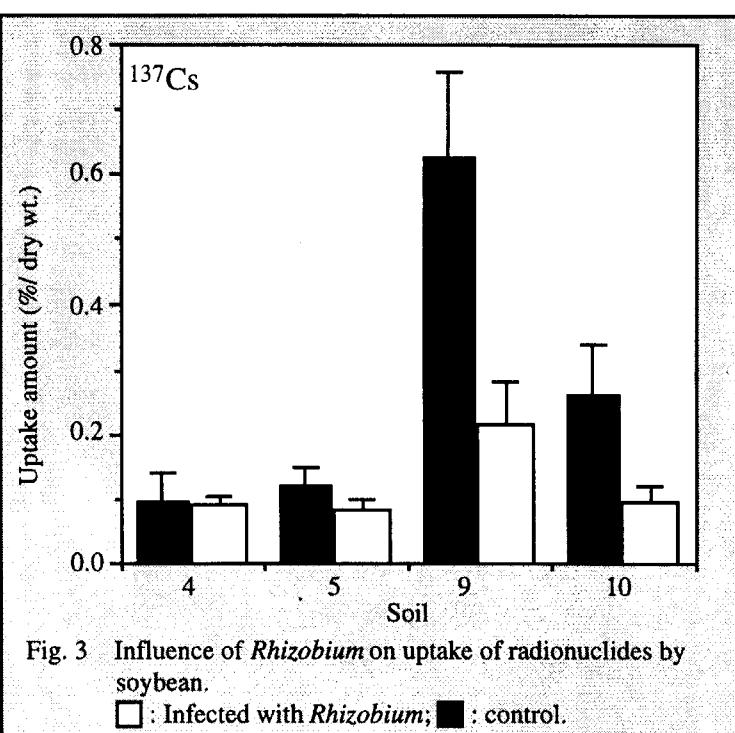
本菌は、弓形で複数の隔壁を持つ大型分生子を形成し、小型分生子を短担子梗上のフィアライドより擬頭状に形成、厚膜胞子を連鎖、または単生で、菌糸あるいは大型分生子上に、間生または頂生で形成することから *Fusarium oxysporum* Schlechtend.: Fr. と同定された。¹⁷⁾



3. 3. 2. ダイズ根粒細菌

千葉県富里町で採取し研究温室内でダイズに接種を繰り返して維持したダイズ根粒約100粒を5mlの水中でホモジナイズしたものを根粒細菌*Rhizobium* sp.の接種源として用いた。この接種源を、高圧滅菌(121℃、40分間)した土壤に250μl/ポット施用し、根粒細菌接種土壤および対照として高圧滅菌土に250μl/ポットの滅菌水を加えた土壤にダイズを播種したところ、約40日後に根粒細菌接種土壤のみで根粒の形成が確認された。

根粒細菌が共生するダイズでは、共生のないダイズに比較して、地上部への⁸⁵Sr、¹³⁷Cs等の核種移行が減少



することが判明した (Fig. 3)。また、根粒部における⁸³Rb等の核種濃度が健全な根に比較して高いことを見いだした。

3. 3. 3. イネ-*Gibberella fujikuroi*

イネ根圈より分離・保存した糸状菌の1菌株の菌体懸濁液をイネ土壌に接種した場合に、葉長の増加、地上部乾重の僅かな増加とともに、⁸⁵Sr、¹³⁷Cs等の核種の取り込みの増加が見られた (Table 4)。分離菌株は、弓形で複数の隔壁を持つ大型分生子を形成し、小型分生子を短担子梗上のフィアライドに連鎖状に形成すること、また、イネの葉長を増加させることなどから、*Gibberella fujikuroi* (Sawada) Wollenweber (不完全世代名、*Fusarium moniliforme* Sheld.) と同定された。*G. fujikuroi*にはジベレリンを産生する株が存在することは広く知られている。¹⁷⁾ 供試した菌株は、イネの葉長を増加させたため、ジベレリン産生株であることが推測された。そこで、菌体懸濁液の代わりにジベレリンA₃¹溶液を施用したところ、150 µg/mlで菌体懸濁液と同様の核種移行量の増加が認められた (Table 4)。

Table 4 Influence of *Gibberella fujikuroi* and gibberellin on uptake of radionuclides by rice.

Control	<i>G. fujikuroi</i> ¹⁾	Gibberellin A ₃ (µl/ml)			
		600	450	300	150
Uptake amount (%) / plant					
⁵⁴ Mn	1.39	2.65	2.62	2.55	2.18
⁵⁸ Co	0.07	0.24	0.18	0.10	0.17
⁶⁵ Zn	0.71	1.21	1.44	1.24	1.06
⁸³ Rb	1.63	2.55	3.14	2.90	2.83
⁸⁵ Sr	0.08	0.15	0.14	0.13	0.14
¹³⁷ Cs	0.02	0.04	0.05	0.04	0.04
Shoot dry wt. (g)	0.209	0.234	0.331	0.309	0.299
Root dry wt. (g)	0.076	0.073	NT ²⁾	NT	NT

¹⁾ Strain no. GF1. ²⁾ Not tested.

4. 考 察

様々な環境汚染物質に対するバイオリメディエーションの試みが近年報告されているが、多くの場合、物質代謝微生物を用いた環境汚染物質の分解や、物質吸着能を有する微生物を用いた水系中の汚染物質の除去を目的としている。しかしながら、我々がターゲットとしている土壌中の放射性核種は分解が不可能であるため、代謝微生物の探索・利用は無意味である。一方、土壌中で物質吸着能を有する微生物を安定増殖させることの困難さ、たとえできたとしてもその微生物を土壌中からいかに回収するか、などの諸問題点が存在するため、従来の微生物に依存したバイオリメディエーションと異なる考え方・手法を構築する必要があると考えられた。その点、植物を用いて、土壌中の核種を吸収させ、その地上部を収穫することで、汚染の濃縮・回収を行うファイトリメディエーションには実

¹⁾ Gibberellin A₃; Gift from Dr. Y. Suzuki, Microbial Toxicology Lab., RIKEN.

用の可能性があると考えられる。

すでに、Gouthuら (1997) が報告したように、キュウリ、トマトなどの栽培植物が土壤中の核種をより多く取り込み、また地上部の生育も早いことからリメディエーション用の植物として有用であると考えられ、⁹⁾我々は主にこれらをモデル植物として実験を進めている。しかしながら、環境中の放射性核種のソースとしての潜在的可能性をもつ施設の立地を考えた場合、耕地のみならず、寒冷地や原野、あるいは我が国特有の水田などの環境条件で利用可能な植物種の利用も考慮しておく必要があると考えられ、その候補として、牧草、シバやイネを用いた実験も今後は必要であると思われる。

我々は本試験を通じて、植物への核種移行に関する土壤の物理化学的性状、根圏微生物等のファクターを具体的に示した。この中で、土壤中の利用可能核種量、陽イオン交換容量、土壤の構成における細砂・粘土の割合、土壤pH、数種の土壤微生物などが移行に影響を及ぼすことが示された。ここで得られた根圏土壤の様々なファクターに関する知見は、食用植物の安全性確保および汚染土壤のファイトリメディエーションの効率化を図るために基礎的データとして有効であると考えられるが、今後さらに根圏微生物の及ぼす影響の要因について解析を進めるとともに、これらのファクターを組み合わせて、植物利用による土壤中の放射性核種のリメディエーションのモデル系構築を試みたいと考えている。

土壤中、とりわけ植物根圏には、非常に多種の、また多数の微生物が存在するが、植物病原菌等一部を除いて、植物やその他の生物とどのような相互作用を持つかについて明らかにされた例は少ない。³⁾ しかしながら、近年、植物の生育をレギュレートするような細菌・糸状菌が明らかにされたり、植物病害の発生を抑制する機能を持つものが発見、利用が試みられてきている様に、^{2,4)}次第に植物－微生物複合系の解析が進みつつある。

最近、能勢ら (1998) は、酵母 *Saccharomyces cerevisiae* Meyen ex Hansen にマルチトレーサーを与えた後に洗浄してもトレーサーを回収できないことから、多くの核種がその菌体表面に強く吸着しているか、あるいは内部に取り込まれていることを示唆した。^{18,19)} 一方、酵母等が、カドミウムやニッケル等と結合するタンパク質を生産することも報告されており、^{13,14)}このようなタンパク質コーディング遺伝子を植物に導入し、植物根で同タンパク質を発現し、より多くの核種を取り込むような、バイオリメディエーション用植物の分子育種も今後期待されるところである。

参考文献

- (1) 安部静子：“マルチトレーサーの製造と化学、生物への応用”、 *RADIOISOTOPES*, **44**, 321-329, (1995).
- (2) 有江 力・難波成任・山下修一・土居養二・木嶋利男：“*Pseudomonas gladioli*を定着させたネギまたはニラの混植によるユウガオつる割病の生物的防除”、 *日植病報*, **53**, 531-539, (1987).
- (3) Arie, T., Kobayashi, Y. and Yamaguchi, I. : Microorganisms in rhizosphere, plant pathogens and biocontrol agents, *RIKEN Review*, **3**, 27-28, (1993).
- (4) Arie, T., Kobayashi, Y., Okada, G., Kono, Y. and Yamaguchi, I. : Control of soilborne clubroot disease of cruciferous plants by epoxydon from *Phoma glomerata*, *Plant Pathology*, **47**, in press, (1998).
- (5) Bilo, M., Steffens, W. and Fuhr, F. : Uptake of ^{134/137}Cs in soil by cereals as a function of several soil parameters of three soil types in upper Swabia and North Rhine-Westphalia (FRG), *J. Environ.*

- Radioactivity*, **19**, 25-39, (1993).
- (6) Dighton, J., Clint, G. M. and Poskitt, J : Uptake and accumulation of ^{137}Cs by upland grassland soil fungi : a potential pool of Cs immobilization, *Mycol. Res.*, **95**, 1052-1056, (1991).
 - (7) Entry, J. A., Rygiewicz, P. T. and Emmingham, W. H.. : Accumulation of cesium-137 and strontium-90 in Ponderosa pine and Monterey pine seedlings, *J. Environ. Qual.*, **22**, 742-746, (1993).
 - (8) Gouthu S., Arie, T., Ambe, S. and Yamaguchi, I.: Screening of plant species for comparative uptake abilities of radioactive Co, Rb, Sr and Cs from soil., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **222**, 247-251, (1997a).
 - (9) Gouthu S., Arie, T., Ambe S. and Yamaguchi, I.: Selection of plants for phytoremediation of soil contaminated with radionuclides and the impact of some parameters on plant uptake, in Proceedings of International Meeting on Influence of Climatic Characteristics upon Behavior of Radioactive Elements, IES, Aomori, pp. 221-228, (1997b).
 - (10) Gouthu S., Arie, T., Ambe S. and Yamaguchi, I.: Screening of plants for soil-radionuclide accumulators., *RIKEN Accel. Prog. Rep.*, **31**, 145, (1998a).
 - (11) Gouthu, S., Arie, T., Ambe, S. and Yamaguchi, I.: Possible role of soil-microbes in plant uptake of radionuclides. *RIKEN Accel. Prog. Rep.*, **31**, 146, (1998b).
 - (12) Gouthu, S., Weginwar, R., Arie, T., Ambe, S. and Yamaguchi, I. : Subcellular distribution and translocation of radionuclides, *Environ. Tox. Chem.*, submitted.
 - (13) Inouhe, M., Sumiyoshi, M., Tohoyama, H. and Joho, M. : Resistance to cadmium ions and formation of a cadmium-binding complex in various wild-type yeasts, *Plant Cell Physiol.*, **37**, 331-346, (1996).
 - (14) Kneer, R., Kutchan, T. M., Hochberger, A. and Zenk, M. H. : *Saccharomyces cerevisiae* and *Neurospora crassa* contain heavy metal sequestering phytochelatin, *Arch. Microbiol.*, **157**, 305-310, (1992).
 - (15) Kudo, T., Maeda, M., Fuji, F., Chung, S.-Y., Hasegawa, Y., Eun, S. and Yoshida, Y. : Isolation and characterization of diverse polychlorinated biphenyl (PCB)/ biphenyl-degrading gram-positive bacteria. in *Microbial diversity and genetics of biodegradation*, Japan Scientific Societies Press., pp. 133-147, (1997).
 - (16) MacLaren, R. G. and Crawford, D. V. : Studies on soil copper. 1. The fractionation of copper in soils. *J. Soil. Sci.* **24**, 172-181, (1973).
 - (17) 松尾卓見・駒田 旦、松田 明編：“作物のフザリウム病”、全国農村教育協会、東京、(1980).
 - (18) Nose, Y., Enomoto, S. and Ambe, F.: Multitracer study on biosorption of various trace elements in yeast *Saccharomyces cerevisiae*.. *RIKEN Accel. Prog. Rep.*, **31**, 141, (1998).
 - (19) Nose Y., Enomoto S., Ambe S., Ambe F. and Yamaguchi, I.: Multitracer study on biosorption of various trace elements in yeast *Saccharomyces cerevisiae*., in *Abstract book of International Conference on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences (NAMLS)*, Oct. 26-30, Beijing, China, pp.155-156, (1998).
 - (20) Saber, D. L. and Crawford, R. L. : Isolation and characterization of *Flavobacterium* strains that degrade pentachlorophenol, *Appl. Environ. Microbiol.*, **50**, 1512-1518, (1985).
 - (21) Shinonaga, T., Ambe, S. and Yamaguchi, I.: Uptake rate of trace elements by soybean plants., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **236**, 133-137, (1998).

- (22) Stomp. A.-M., Han, K.-H, Wilbert, S. and Gordon, M. P. : Genetic improvement of tree species for remediation of hazardous wastes, *In Vitro Cell. Dev. Biol.*, **29**, 227-232, (1993).
- (23) Tamura, K., Hasegawa, Y., Kudo, Y. and Yamaguchi, I. : Isolation and characterization of PCNB degrading bacterium, *Pseudomonas aeruginosa* strain I-41. *J. Pesticide Sci.*, **20**, 145-151, (1995).
- (24) Yamaguchi, I., Nakashita, H., Arie, T., Kobayashi, Y., Someya, K., Tamura, K., Kono, Y. and Okada, G. : Microbial degradation of PCNB, a residual fungicide against clubroot: How can clubroot disease of crucifers be controlled with less impact on the environment? in *Proceedings of International Conference on Asian Network on Microbial Researches (ANMR Conference), Yogyakarta, Indonesia*, pp. 359-370, (1998).



20. 微生物によるウラン・プルトニウムの生体濃縮

BIOACCUMULATION OF URANIUM AND PLUTONIUM BY MICROORGANISMS

東和大・バイオ工学

坂口孝司

SAKAGUCHI TAKASHI

ウランの採鉱、抽出、精錬、同位体濃縮、燃料製造成型加工から原子炉での燃焼、使用済み燃料の再利用に及ぶ一連の核燃料サイクル過程には、ウランやプルトニウムの分離回収が必要となる。これらの分離回収法としては、現在、溶媒抽出法、イオン交換法、沈殿法、などの手法が開発利用されている。

われわれは、ここ 20 数年来、微生物や生体系物質を利用する核燃料物質の回収資源化、放射性核種の除染処理について、生化学、錯体化学、生態学、資源工学、生物工学などの学際的観点から総合的解析を試みているが、その研究過程で、生物が核燃料物質に対して強い親和性を示すことを見出した。これらの知見を基盤にして、生物が持っている優れた生体機能を利用して核燃料物質を回収利用しようとする、いわゆるバイオプロセッシングの新技術の開発を目指して研究を進めている。

微生物のなかには、*Bacillus subtilis*, *Micrococcus luteus*, *Zooglea ramigera*, *Streptomyces lleroris*, *S. viridochromogenes* などのように、大量のウランを自分の体内に濃縮する能力をもつものが存在する。

ウラン鉱床地帯には、ウランなどの放射性物質に耐性をもった高性能ウラン濃縮菌や鉱石からウランを溶出する能力をもった微生物が存在しているものと思われる。そこで、われわれは、世界の主要ウラン生産国であるカナダ、アメリカ、オーストラリアの異なるウラン鉱床地域において、高性能ウラン濃縮菌の検索を行ってみた。その結果、*Bacillus* 属、*Arthrobacter* 属の細菌に高い濃縮能が認められた。なかでも *B. subtilis*、*Arthrobacter* sp. は、菌体 1 g 当たり 615 mg にも及ぶ多量のウランを濃縮することができ、そのウラン濃縮容量(5 mgEq / g)は実に市販キレート樹脂の 2 倍にも達する。また、これらの微生物のウラン取り込みは、速度がきわめて速く(1 ~ 2 分程度)、しかも他の重金属イオンが溶液中に共存していても、より選択的にウランを取り込むことができるという特徴を示す。

これらの微生物は、ウランだけでなくトリウムもよく濃縮するが、pH 3.5 の条件では、ウランよりもトリウムに対して高い選択濃縮能を示す。

これらの高性能ウラン濃縮菌は、生菌体そのものだけでなく、ポリアクリルアミドゲルに包括固定化した菌体もウランに対し強い親和性を示す。この固定化菌体は、固液接触性、安定性などの点で生菌体よりも優れており、ウラン精錬廃水などの含核燃料物質廃水の処理に適用できる。

以上のように、*B. subtilis*、*Arthrobacter* sp. などの微生物は、ウラン、トリウムに対し強い親和性を示すが、人工放射性元素であるプルトニウムに対しては、どの程度の濃縮能を示すのであろうか。

微生物のプルトニウムに対する挙動を、*B. subtilis*、*Arthrobacter* sp. を使って詳しく解析してみた結果、これらの微生物は、ウランのみならずプルトニウムに対しても強い親和性を示すことが明らかになった。これらの微生物は、pH 4 ~ 8 の領域で最もよくウランを取り込むが、0 ~ 3 の酸性溶液からは全く取り込むことができない。しかし、これらの微生物は、pH 0 ~ 1.5 の強酸性溶液からもIV価プルトニウムをよく濃縮することができる。とりわけ pH 1.5 の溶液からは、ほぼ定量的にプルトニウムを体内に取り込む。

一方、これらの微生物は、IV価プルトニウムをV価プルトニウムに還元する能力をもっている。V価に還

元されたプルトニウムは不均化反応によりIV価とVI価に変わるが、微生物はIV価プルトニウムを最も高い濃縮率で体内によく取り込む。しかし、VI価およびIII価のプルトニウムは少量しか取り込むことができない。

以上のように、*Bacillus* などの微生物のウラン、トリウム、プルトニウムのアクチノイド元素に対する挙動は、元素の種類の違いによって異なっているがわかった。

微生物のなかには、アクチノイド元素に対する濃縮能、酸化能、還元能などの優れた生体機能を持ったものが存在する。この生体機能を利用して、ウラン、トリウム、プルトニウムなどのアクチノイドの分離回収、廃水処理などの過程に、さらには放射性廃棄物処理の核種閉じ込めに利用する新しいバイオシステムが構築できるのではないだろうか。著者らは、この夢を追って研究を進めている。

21. 水田土壤における物質循環と微生物の働き

犬伏和之

千葉大学 園芸学部

水田土壤は表面に田面水を湛え、ラン藻やアカウキクサ、植物プランクトンなど光合成生物が住む場となっている。また田面水によって大気と遮断され酸素の拡散速度が著しく低下しているため、土壤水中の溶存酸素が好気性生物によって消費されると、嫌気的環境になり、酸化還元電位の低下とともに、硝酸イオンの消失、酸化マンガンや酸化鉄、硫酸イオンといった土壤中のいわば酸化剤の還元が引き続いておこる。これらの反応は土壤中の有機物分解反応と共役しており、還元反応の進行に伴い、土壤溶液中に二酸化炭素（炭酸水素イオン）が蓄積してくる。ところがこれらの酸化剤が還元消費されると、最終段階として水稻根や有機物由来の水素と二酸化炭素とからメタンが生成する。また、有機物分解産物である酢酸などを主体とする有機酸もメタンの生成基質となっている。メタンは温室効果ガスとして、近年特に注目されている。以上の物質変化に関わる微生物についても紹介した。

CYCLES OF MATERIALS AND ROLES OF MICROORGANISMS IN PADDY SOIL

INUBUSHI KAZUYUKI

Faculty of Horticulture, Chiba University

Paddy soil is characterized as a unique anaerobic ecosystem covered by surface water, which is suitable harbor of phototrophic organisms including cyanobacteria, azolla and other phytoplanktons. Surface water of paddy soil is also playing as a barrier of diffusing oxygen from the atmosphere into the soil, so that reduced conditions are predominant in the soil, due to the successive reactions of oxygen consumption, nitrate-, Mn oxides-, Fe oxides- and sulfate-reductions. These reactions occur in parallel with decomposition of soil organic matter, resulting built up of carbon dioxide (bicarbonate) in soil solution. After consuming these oxidizing agents, methane production starts which is derived from accumulated carbon dioxide and hydrogen released by rice root or soil organic matter. Methane is also made from organic acids due to organic matter decomposition. Methane is one of greenhouse gases, and control of this gas flux becomes a big concern by the world. This paper is dealing with such reactions taking places in the submerged paddy soil, with attentions to soil microorganisms carrying these reactions.

Key word

Paddy Soil, Anaerobic Bacteria, Organic Matter Decomposition, Cycling of Bioelements

1. 緒 言

水田は日本では耕地面積の約半分を占め、また地球全体ではアジアを中心として約1億5千万ヘクタールに広がっている。そして重要な食糧生産の場として過去数千年にわたりコメを生産し続けてきた。水田では作物としての稻はまったく連作障害を受けず、また化学肥料の登場以前から空中窒素固定微生物の働きで高い土壌肥沃度を維持しており、土壌浸食も受けにくく、したがって極めて持続的な物質循環システムとみなすことができる。ここでは、水田土壤の特徴を述べた後、炭素、窒素、イオウなどの生元素の土壤中での形態変化に関わる反応と循環を、それぞれの反応に関わる土壤微生物の働きに注目して紹介し、類似した環境である自然湿地や深層地下での微生物作用の推定への糸口を提供したい。

2. 水田土壤の特徴と微生物の働き

2. 1 田面水と酸化層および還元層

水田土壤の最大の特徴は、その表面が人為的に深さ数センチ程度の水で覆われている（湛水）ことである（Fig. 1）。その表面水（田面水）には、水稻の生育前半には十分な太陽光が届くため緑藻やラン藻（シアノバクテリア）、植物プランクトンなどが活発な光合成を行っている。また、灌漑水中の栄養塩を効率良く吸収し、水田における浄化機能を發揮している。

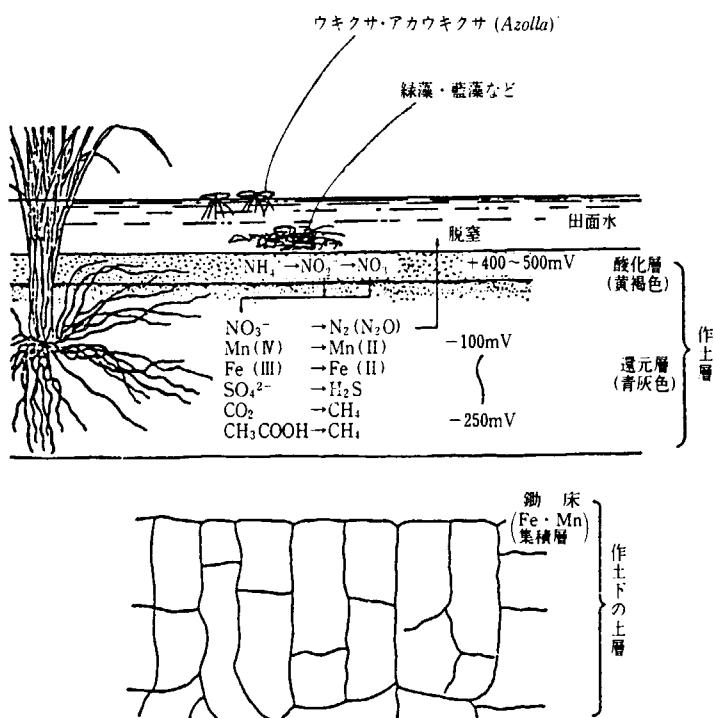


Fig. 1 Schematic diagram of submerged paddy soil

さらに、ラン藻が共生するアカウキクサや単独に生育するラン藻、光合成細菌は空中窒素固定作用を持つため、水田土壌の長期的な肥沃度維持に貢献している。実際にベトナムやフィリピンでは生物肥料としてアカウキクサの利用が実用化している。これらの田面水中の生物は水稻の生育に伴い、到達光量が減少し、その一部は枯死して土壌表面へ易分解性有機物として供給される。

土壌表面の数ミリの土層は湛水後まもなく田面水中の光合成の結果、供給される十分な酸素などで好気的に維持されるのに対し（酸化層）、それ以下は嫌気的な土層（還元層）として酸化還元電位（Eh, ORPともいう）や土色などで区別される。

2. 2 湛水直後の反応

還元層では、土壌溶液中の溶存酸素が好気性生物によって急速に消費され、次いで通性嫌気性細菌である硝酸還元菌（脱窒菌）によって硝酸イオンがガス状窒素にまで変換される。これらの反応は通常、湛水後約1週間程度で終了する（Fig. 2）。これらの変化は特に水田土壌が、湛水前に乾燥した場合、急速に進み、酸化還元電位の低下にも反映されている（Fig. 3）。なお、以下の一連の実験で供試した土壌試料は、Table 1に示したような国立および各県農業試験場の30～50年以上にわたる長期肥料連用水田作土より採取した土壌である。このTableより、肥料の種類によって土壌の有機物含量などが大きく変化していることがわかる。

Table I. Some characteristics of the soils (I).

Name	Soil group	Years of experiment	Plot*	pH (H ₂ O)	Total C (%)	Total N (%)	Texture
Aomori	Wet andosol	45	PK (A)	5.7	3.12	0.246	CL
			PKM (B)	5.8	4.26	0.348	CL
Aizu	Gray lowland soil	53	NPK (A)	5.0	2.46	0.226	CL
			NPKM (B)	5.0	3.24	0.311	SL
			NPKS	5.9	3.15	0.260	CL
Nagano	Gray lowland soil	28	NPK (A)	5.9	1.18	0.115	LiC
			NPKM (B)	6.0	1.51	0.148	CL
Konosu	Gray lowland soil	51	none (A, NF)	6.2	2.07	0.185	LiC
			NPK (CF)	5.4	2.73	0.239	LiC
			PKCaG (GM)	6.5	2.75	0.269	LiC
			PKM (B, OM)	5.6	3.39	0.320	LiC
Anjo	Yellow soil	52	NPKCa (A)	6.0	1.11	0.100	LiC
			NPKCaM (B)	5.6	1.85	0.165	LiC
Shizuoka	Brown lowland soil	35	NPK (A)	6.0	1.65	0.174	LiC
			NPKM (B)	5.9	2.15	0.223	LiC
Yamanashi	Gray lowland soil	—	—	6.5	1.52	0.153	SL

* Fertilizer application: nitrogen, N; phosphate, P; potassium, K; calcium, Ca; farmyard manure or compost, M; rice straw, S; green manure, G; and no fertilizer application, none.

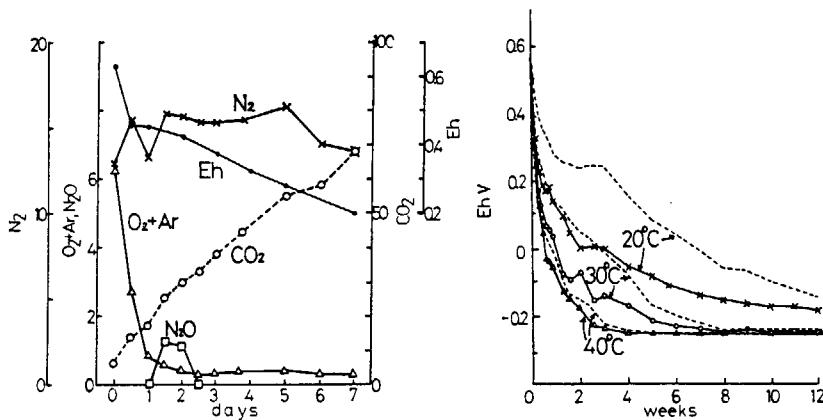


Fig. 2

Fig. 3

Fig. 2 Changes in contents of dissolved gaseous components (ml/liter of soil solution) and Eh (V) in moist soil of Konosu (OM) at 20°C under submerged conditions.

Fig. 3 Decrease of Eh in air-dry (—) and moist (----) soils of Konosu (NF) under submerged conditions.

2. 3 マンガンと鉄の還元反応

さらに、土壤中の酸化マンガンや酸化鉄を還元するマンガン細菌あるいは鉄細菌（間接的な還元作用を含む）によって、2価マンガンや2価鉄が生成される（Figs. 4, 5）。土壤中に含まれる酸化マンガンや酸化鉄量には、土壤タイプや施肥歴によって固有の値があるので、湛水後、2価マンガンや2価鉄の生成速度は次第に低下し、生成量は頭打ちとなることが確認される。

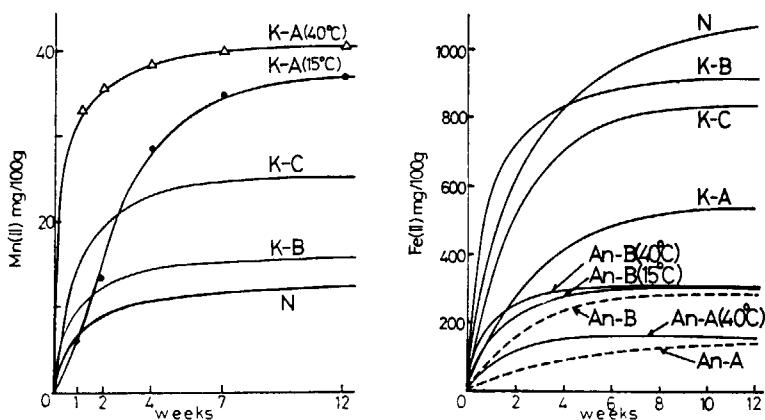


Fig. 4

Fig. 5

Fig. 4 Mn(II) formation in air-dry soils of Konosu (K) and Nagano (N). Three curves for K-C, K-B, and N show the averages of results at 15, 20, 30, and 40°C.

Fig. 5 Fe(II) formation under submerged conditions in air-dry soils of Konosu (K) and Nagano (N) at 40°C, and air-dry (—) and moist (----, 15°C) soils of Anjo (An).

2.4 硫酸還元反応と有機酸の蓄積

マンガンと鉄の還元に引き続いて、絶対嫌気性細菌である硫酸還元菌によって、硫化物が生成される。土壤中の硫酸イオンは硫化物イオンに還元され、通常は鉄イオンと反応して硫化鉄として沈着する。また有機物分解の中間産物である酢酸などの有機酸が一時的に土壤中に蓄積することも起こり得る(Figs. 6, 7)。急速な硫酸還元や有機酸の蓄積は、特に高温条件で顕著に認められる。

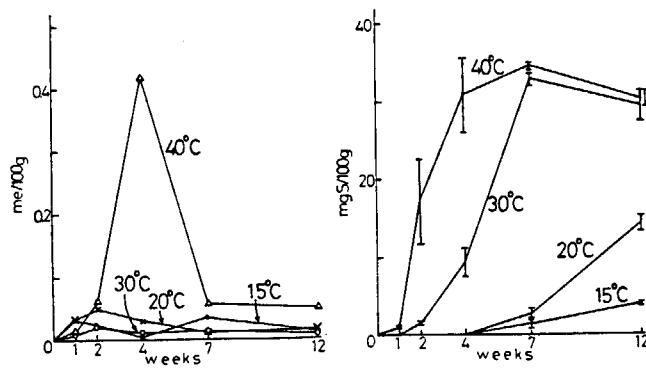


Fig. 6

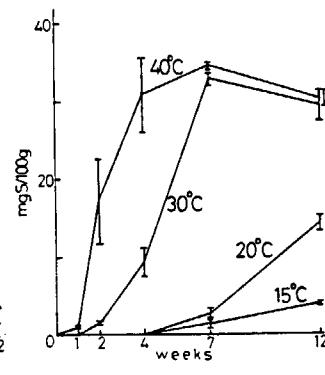


Fig. 7

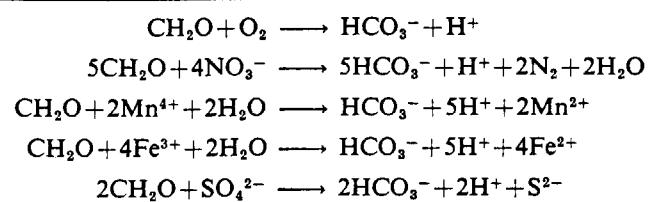
Fig. 6 Changes in the amounts of volatile fatty acids in air-dry soil of Konosu (CF).

Fig. 7 Effect of temperature on S(II) formation in air-dry soil of Konosu (CF). Vertical bars indicate the difference between duplicated experiments.

2.5 還元反応と有機物分解反応の共役

ところで、以上の諸反応はいずれも有機物の分解反応と共役しており(Table 2)、還元反応の進行に伴い二酸化炭素が土壤溶液中に溶存ガスとして(あるいは炭酸水素イオンとして)蓄積していく。これまでの諸反応量をTable 2の各式にあてはめ、分解有機物当たりに換算して表わしたものが、Fig. 8である。この図には、次に述べるメタン生成も炭素換算して含めてある。この図から共役有機物分解量の観点からすると、湛水前半では鉄還元が反応量としては最も重要であることがわかる。また湛水中盤から後半では、有機酸生成とそのメタンへのほぼ定量的な変換反応が、特に低温条件より高温条件の方で大きな割合を占めることが確かめられた。

Table 2. Reduction reactions and organic matter decomposition.



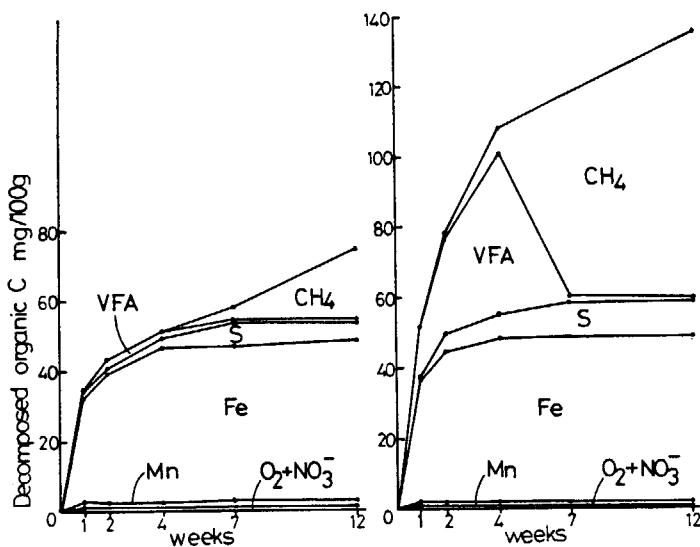


Fig. 8 Products of reduction reactions associated with decomposition of soil organic matter in Konosu air-dry soil (OM) at 20°C (left) and 40°C (right).

上述のようにして求めた有機物分解量の計算値と実測値とは、有機物の多い土壤で湛水後期にそれが生じ計算値が実測値を下回る以外、両者が極めて良く一致することが確認された (Fig. 9)。それの原因としては、Table 2で考慮されていない反応が有機物の多い土壤で湛水後半に起こることを示唆している。

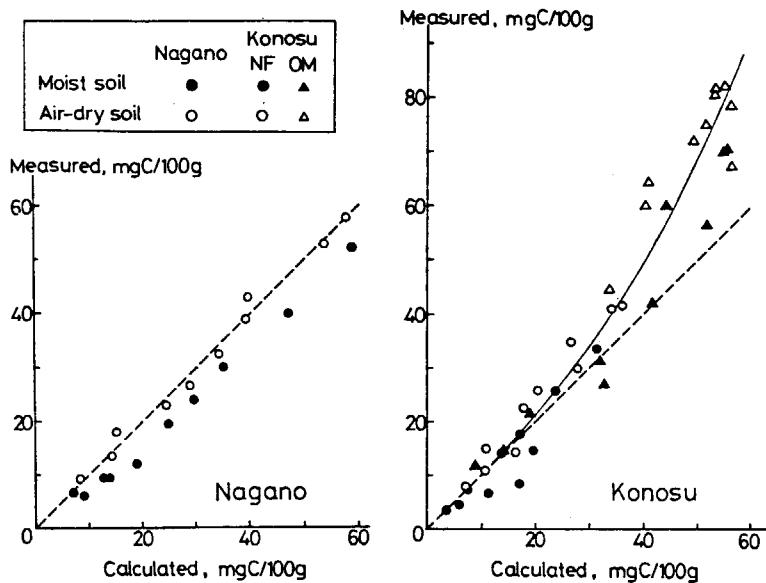
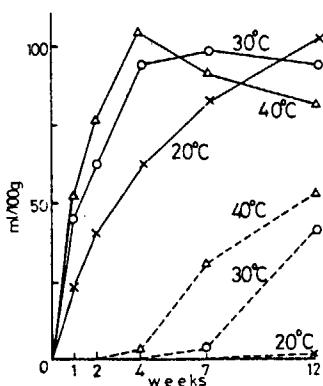


Fig. 9 Calculated amount of decomposed organic carbon and measured amount of CO_2 in Konosu (NF and OM) and Nagano soils. Broken lines (----) indicate that the calculated amounts are equal to the measured ones.

2. 6 メタン生成反応

ところで還元過程の最終段階では、絶対嫌気性細菌であるメタン生成菌（古細菌）によって、これらの二酸化炭素と水稻根または有機物分解に由来する水素ガスとを材料として、メタンが生成される (Fig. 10)。この図から、湛水後半に溶存二酸化炭素量の減少とメタンの生成が並行して進んでいることが理解される。このほかに、酢酸を主体とする有機酸もメタン生成菌の基質となる。



Fig

Fig. 10 Changes in carbon dioxide (—) and methane (----) concentrations in air-dry soil of Konosu (CF).

生成したメタンの約9割は水稻体経由で大気へ放出されるが、地球温暖化の1つの要因として注目されている。最終的なメタン生成量は炭素換算で二酸化炭素生成量の1/100～1/2まで変化し、この比は土壤中の酸化剤と還元剤（有機物）量の比で決まることが明らかにされている。

2. 7 有機物分解モデル

これまで述べたメタンや二酸化炭素生成量を、有機態炭素の分解量として1次反応モデルに当てはめた。隣接する水田と畑から採取した土壤にグルコースやアラニ

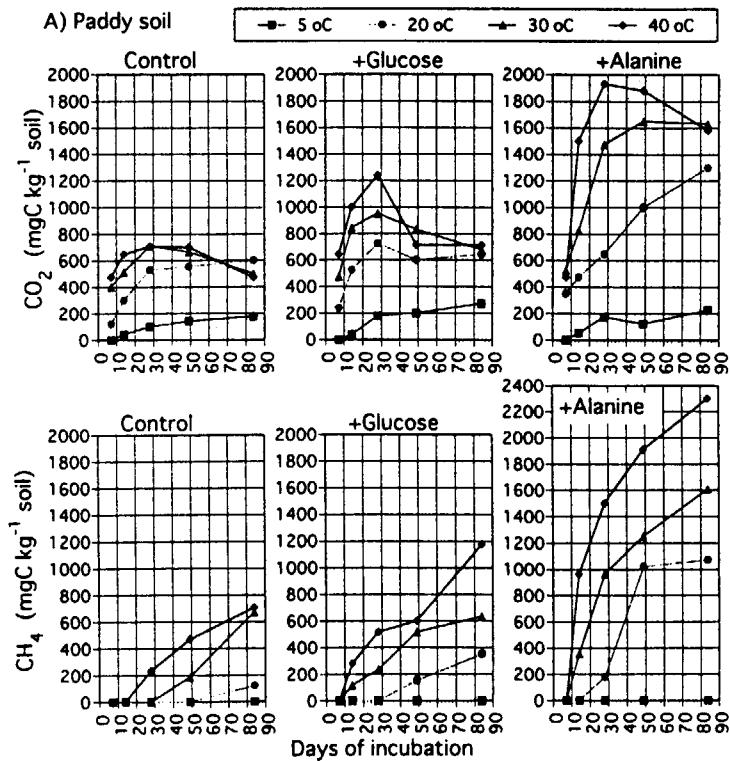
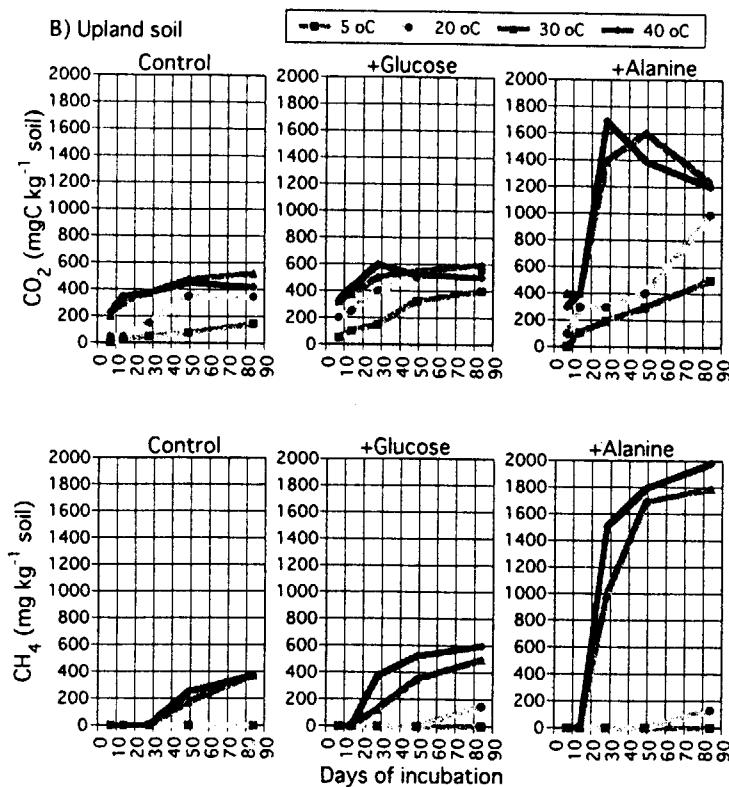


Fig. 11a Production of CO₂ and CH₄ in anaerobically incubated paddy soils

Fig. 11b Production of CO₂ and CH₄ in anaerobically incubated upland soils

ン溶液を添加し、それぞれの無添加土壤と共に5～40°Cで湛水培養温度した。生成したメタンと二酸化炭素量は有機物の添加の有無や培養温度で大きく変化したが(Fig. 11)、無添加条件では両者の合計量Yは、次式：

$$Y = A_1[1 - \exp(-k_1 \cdot t)] + A_2[1 - \exp(-k_2 \cdot t)]$$

によく当てはまることが見い出された(Fig. 12)。

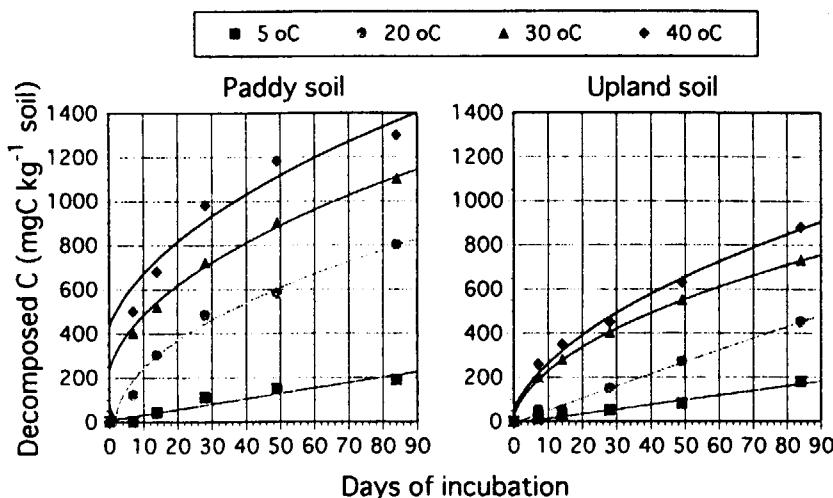
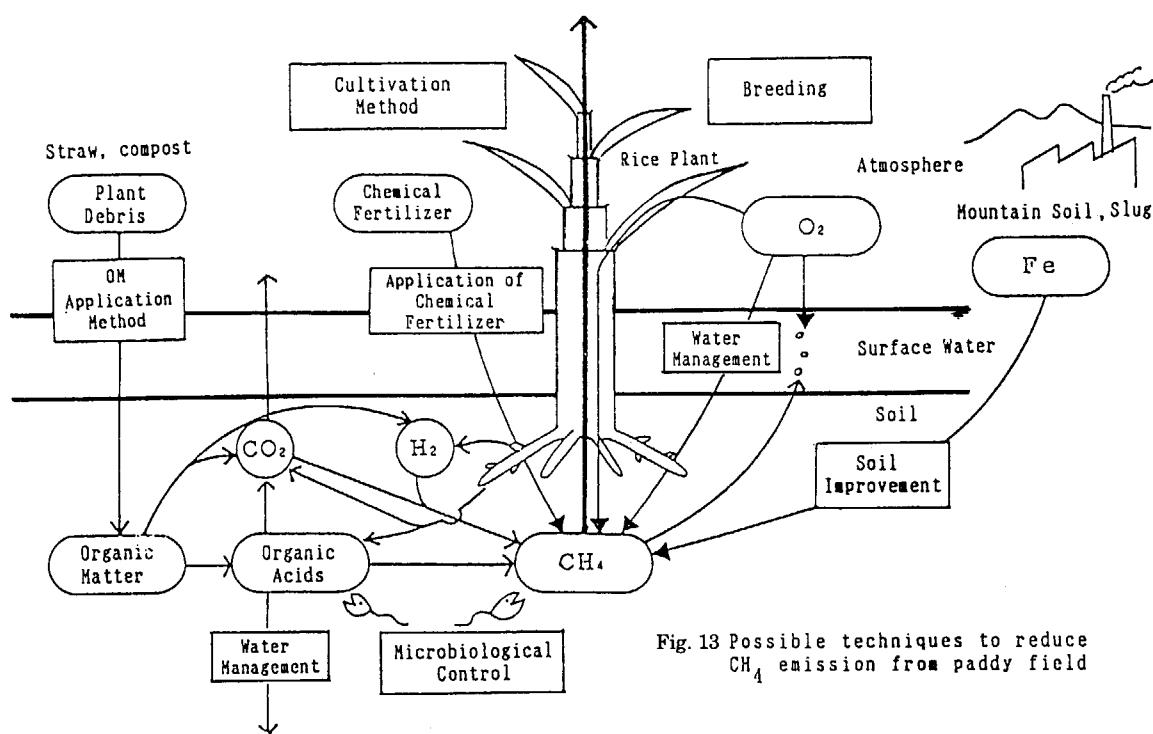


Fig. 12 Decomposition pattern of soil organic matter in paddy soil and upland soil under different temperatures

2. 8 水田からのメタン放出の制御

水田は、一種の人為生態系であるため、そこからのメタン放出量についても人為的制御による削減が比較的容易であると考えられる (Fig. 13)。たとえば水管理によってメタン放出量を大幅に削減させることは可能である。

しかし、水田を落水すると次に述べるような様々な酸化反応が再び土壤中で進行し、特にアンモニア酸化反応では土壤から中間産物として、メタンよりさらに強力な温室効果ガスである亜酸化窒素ガスが生成されるので、注意を要する。



3. 落水後の水田

水田では人為的な湛水の後、収穫前に田面水が排除される（落水という）。この過程で大気から酸素が土壤内に侵入し、土壤は急速に酸化される。この時に起こる物質変化は基本的には上述の還元反応の逆反応である。すなわち、メタン酸化、イオウ酸化、鉄酸化、マンガン酸化、そしてアンモニア酸化（硝酸化成）反応が、概ねこの順序で進行する。ただし、乾燥化は湛水開始時より不均一に進むので、たとえば団粒内部と外部のような部位ごとに、反応程度が大きくなることが多い。

一方、湛水中でも土壤中の水浸透速度が速い砂質な土壤等では溶存物質の下方への溶脱が問題となる。日本では水田の生産性を向上させ機械化を推進するため、水田の水管理を容易にする基盤整備が進められている。

4. 結 言

水田は嫌気的な環境における物質循環のモデルとしてこれまでの知見を集約することができる。また水稻は他の作物と極めて異なる嫌気的土壤への適応を果たしており、その生産性を維持しつつ地球環境へのインパクトを低減するための技術が確立されつつある。水田は人為生態系として持続的生産を可能にしている。

本稿はSSPNおよびWSTに掲載された論文^(1, 2)に基づき、要約・再構成したものである。

参考文献

- (1) Inubushi, K., H. Wada and Y. Takai: Easily decomposable organic matter in paddy soil, IV. Relationship between reduction process and organic matter decomposition, *Soil Sci. Plant Nutr.*, 30, 189-198, (1984).
- (2) Inubushi, K., K. Hori, S. Matsumoto and H. Wada: Anaerobic decomposition of organic carbon in paddy soil in relation to methane emission to the atmosphere, *Water Sci. Tech.*, 36, 523-530, (1997).
- (3) 犬伏和之：水田の物質循環と微生物の働き、物質循環における微生物の役割、微生物の生態19、日本微生物生態学会編、学会出版センター、91-118、(1994).

22. 水循環系の管理と物質循環

京都大学大学院農学研究科 三野 徹

植物は、大気圏と土壤圏をつなぐインターフェイスとして、地球上における水と炭素の循環を形成する上で最も重要な役割を果たしている。一方、土壤は植物により生産された有機物の最終の分解場であり、土壤中には微生物を中心にその間隙特性に応じた独特の生態系が形成されている。そこは、炭素や窒素、硫黄などの元素、さらにナトリウムや鉄などのさまざまな金属イオンの化学反応や移動の場として機能する。これらは太陽エネルギーによって駆動される水循環と深い関わりを持つ。そのため水循環は地球上の生態系や環境の形成にきわめて大きな影響を与える。従来、農学分野では、人間が長い年月をかけて育種選別してきた植物である作物を対象に、農地空間のさまざまな人為的制御によって、農業生産の増大や効率化を図ってきた。しかしながら、今日、従来では農業の副産物であった環境保全機能について注目が集まり、食料生産と環境保全の両面が調和した新しい農業のあり方が模索されている。従来の農業技術の蓄積をもとに、対象を、作物から植物へ、農地から地域へと拡大することにより、新たに地域環境を管理する技術を確立する試みが続けられている。これらの試みを『水循環系の管理と物質循環』という切り口で整理してみたい。

MANAGEMENT OF WATER CYCLE SYSTEM AND BIOGEOCHEMICAL CYCLE

IMITSUNO TORU

Graduate School of Agriculture, Kyoto University

The author already discussed on this subject in some publications individually. In this paper, they are arranged to be unified on the view point of the management of water cycle system. The modernization of the water use system in agriculture is developing by excluding a natural system from it. It becomes, however, clear that it is very important to include a natural eco-system, ie. the plant ecosystem and/or the soil ecosystem, on the view point of material cycle. It will be necessary to combine a natural system to an artificial one in order to establish the better environmental conditions.

Keyword

Water Cycle, Evapotranspiration, Biogeochemical cycle, Agricultural Water Use, Environmental Stock, Environmental Management

1. 水循環と植物の役割

地表面における放射収支の結果、地表面が獲得する純放射は潜熱伝達と顯熱伝達の形で大気中を輸送される。潜熱フラックスは地球上の水循環を引き起こす駆動力となるが、植物は根を利用して土壤圈から土壤水分を集め、葉を利用して大気圏へそれを効率よく蒸散させる仕組みを持つ。この蒸散により光合成が促進され、生態系を通して炭素循環が駆動される。この水と炭素の循環において土壤水分がボトルネックとなる。以上について引用文献¹⁾を用いて述べてみたい。

1.1 地表面における放射収支

シテファン・ボルツマンの法則によれば、絶対温度が0度以上のあらゆる物体は、電磁波の形で絶対温度の3乗に比例したエネルギーを放射し、その波長は絶対温度に反比例する。太陽の温度は5,700Kと推定されており、その温度に対応するエネルギーを絶えず放射しており、地球に到達したときそれに垂直な平面では1cm²当たり1分間に1.95cal(36KW·m⁻²)の強度となり、これは太陽定数と呼ばれる。そのうち約37%は反射し、残りの63%が地球によって吸収される。一方で地球も同様に電磁波エネルギーを放射するが、地球の平均温度は一定であるから、地球が吸収するエネルギーと地球が放射するエネルギーは平衡している。地球が獲得する太陽エネルギーは太陽に向かって垂直な投影断面積に太陽定数を乗じたものとなるが、地球の放射エネルギーは全表面から放射されるから、単位地球表面積当たりの平均値で見ると、その値は0.49cal·cm⁻²·min⁻¹(0.342KW·m⁻²)となる。ステファン・ボルツマンの法則から逆算すると、地球の有効温度は250K(-23°C)となり、その波長は太陽の放射エネルギー(短波放射、可視光)に比べて長くなる(長波放射、赤外放射)。この値は大気圏の上端、地表から約5,000上空の温度に対応する。

地球の大気圏の外側に到達した太陽の放射エネルギーは、そのうち一部が反射され、一部は大気を通過する際に吸収されて残りが地表面に到達する。地表面でもさらに一部が反射され、最終的に地表面に吸収されるのはその内の47%にすぎない。地球全体では約37%が短波放射の形で反射されることになる。地球表面ならびに地表面における放射収支の状況を整理したものが図-1である。地表面が吸収した純放射エネルギーが、地表面温度15°Cと大気圏の上端の温度-23°Cの差によってどのようにして大気圏外へ輸送されるかが地球環境を形成する最も重要な仕組みとなる。このような大気圏の温度環境は、水分子が固相、液相、気相の三相状態を取る範囲に一致し、地表面温度15°Cは様々な酵素の作用が最も活発となる範囲であり、動物や植物の生命活動にとって最も適した温度環境である。

1.2 顯熱伝達と潜熱伝達の配分

大気によるエネルギー輸送は、大気を暖める形で温度の低い上空へ直接熱エネルギーとして輸

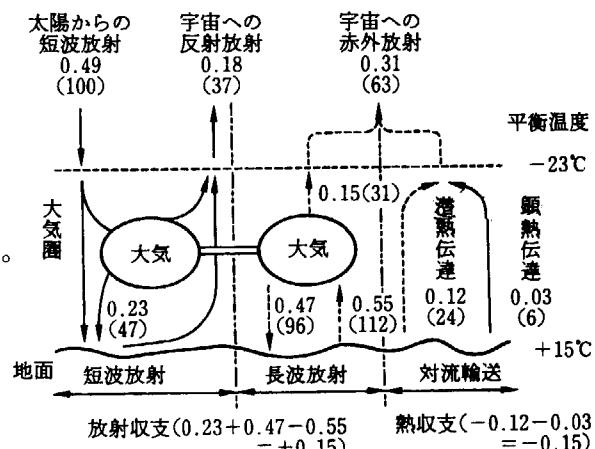


図-1 地球および地表面の放射収支

送する顯熱伝達（顯熱の形での単位時間当たりのエネルギー輸送量）と、水分子の運動エネルギーの形で含まれる水蒸気の潜熱エネルギーとして輸送される潜熱伝達（水蒸気の状態での単位時間当たりのエネルギー輸送量）がある。潜熱伝達は蒸発過程でエネルギー変換されるが、1グラムの水が蒸発するのに必要な蒸発潜熱は約 $600\text{cal}(143\text{J})$ であるために、1グラムの水蒸気が輸送されると、これに相当するエネルギーが輸送されることと同じになる。1 cm^2 当たり 1 グラムの水が蒸発すると水深に換算すると 10 mm となるから、1 mm の蒸発は $60\text{ cal}\cdot\text{cm}^{-2}$ ($2.51\text{MJ}\cdot\text{m}^{-2}$) のエネルギーの換算値となる。

エネルギー収支式と大気中のエネルギー輸送式を組み合わせると、潜熱伝達に対して次のペンマン・モンテイス式が導かれる。

ここで IE は潜熱伝達に配分されるエネルギーfluxを表すが、潜熱伝達と顯熱伝達の合計値は純放射 R_n に等しいから、顯熱伝達は $R-\text{IE}$ から計算することができる。すなわち、純放射の配分がこの式を元に決まることになる。また、 Δ は飽和水蒸気圧～温度曲線の勾配、 I は蒸発潜熱、 γ は乾湿計定数、 r_v と r_a はそれぞれ気孔抵抗と大気中の輸送抵抗、 e_s と e_a はそれぞれ飽和水蒸気圧と大気中の水蒸気圧で、 e_s-e_a は飽差を表す。上式の右辺第一項は放射エネルギーによる蒸発量を、第二項は大気の乾燥力による蒸発量を表す。なお、この式に含まれる気孔抵抗 r_v として群落抵抗を用いると上式は植物群落からの蒸散量を表すことになる。この式に含まれるすべての変数ないしパラメータは、気温、湿度、純放射（あるいは日射量）、風速という一般的な気象観測により得られる観測データをもとに決める所以であるので、気象観測データから蒸散量を推定する式としてよく利用され、またその推定値は実測値とよく一致することが確かめられている。

この式は、放射エネルギーが地表面あるいは水面で顯熱エネルギーと潜熱エネルギーに変わるためにその変換割合を表すことになるが、式中に植物の特性である気孔抵抗 r_v や大気中における物質やエネルギーの輸送特性を表す r_a が、地表面でのエネルギー配分過程でどのような影響を与えるかをきわめて明快に表している。とくに地表面近傍における植物の存在が顯熱、潜熱の両エネルギーの配分に決定的な影響を与えることがわかる。植物の存在や地表面の乾湿の程度は地球上における水循環と地表面の温度環境の形成に大きな影響を与えるが、その影響度合いを定量的に評価する上で、ペンマン・モンテイス式はきわめて重要な意味を持つ。

モンテースは乾燥条件の下で水分ストレスがかかって実蒸発散位が減少するケースを想定して上述のような展開をしたが、一方、湿潤状況下で水田や森林などの背丈の高い植物群落からの実蒸発散は蒸発散位より大きくなり、時には群落が獲得した純放射量を超えるケースもあることがしばしば報告されている。これは、顯熱伝達の湧点が群落内部深くまで入り込みその輸送に大きな群落抵抗が作用するが、潜熱伝達は群落内部では抵抗の小さい植物体を通過し群落頂部まで輸送されるために、群落抵抗が顯熱伝達に選択的に作用し、純放射が選択的に潜熱伝達へ配分されることになる。

また、群落上部では風速は高さとともに急激に加速され、それにより大気のエンタルピー（顯熱と潜熱エネルギーの合計値である全エネルギー）の輸送係数が背丈の低い植生に覆われた地面や水面に比べて著しく大きくなり、逆に大気の抵抗は小さくなる。そのために図-2に示

すように、背丈の高い植生で覆われた表面は周辺地域からエンタルピーを引き込み、上空へと輸送することになる。すなわち移流の発生である。このように背丈の高い群落は、潜熱伝達へのエネルギーの選択的配分とともに、周辺地域からのエネルギーを移流によってかき集める機能を持ち、蒸モンテースの考えたケースとシンテース式とも言える。湿润地得した太陽エネルギーはもと、発な生産活動を行う特性を、長圏の境界部に存在し、両圏域を通過する水の伝達だけではなく、動的に水循環に関わっている。

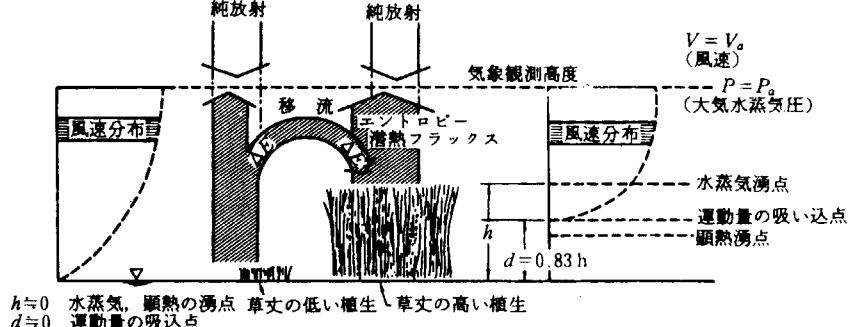


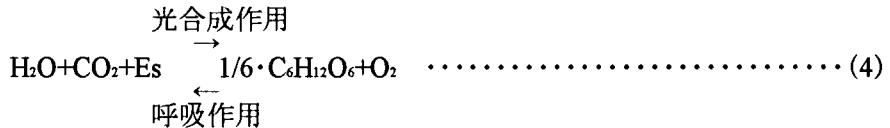
図-2 地表の被覆状況の違いによる移流発生の機構

てかき集める機能を持ち、蒸発散位をはるかに越えた著しい蒸散量を示すことになる。これは、モンテースの考えたケースと全く逆の植生の存在によるエネルギー配分機構であり、いわば逆モンテース式とも言える。湿润地域の植物、とくに水稻は、このような機構により自らの群落が獲得した太陽エネルギーはもとより、周辺地域に降り注ぐエネルギーを移流によって取り込み、活発な生産活動を行う特性を、長い進化の過程で獲得したと考えることができよう。大気圏と土壤圏の境界部に存在し、両圏域を通過する水循環の橋渡しをする植生は、単に物理的、受け身的な通過する水の伝達だけではなく、上述したように、乾燥、湿润の状況に合わせて自ら積極的に水循環に関わっていることが理解できる。

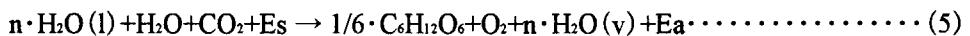
1.3 蒸散と土壤・植物・大気システム (SPAC)

水、炭酸ガスと太陽エネルギーを原料として緑色光合成生物によってブドウ糖と酸素ガスが生成される。合成反応に関する詳しい研究が進められ、現在かなりのところまでの解明がなされている。ここではこのような詳しい反応過程ではなくマクロに捉えた光合成の意義を考えて行くことにする

植物による光合成過程を化学反応式を借りて表せば次のようになる。



光合成と呼吸とは互いに逆反応の関係にあるが、両辺のエントロピーを計算すると左辺のエントロピーは右辺のそれよりも大きくなるために、エントロピーの増大原理によりこのままでは呼吸作用しか進まないことになる。植物がエントロピー増大原理を犯してまで光合成作用を進めることができるのは、上式に蒸発散過程が考慮されていないためである。蒸発散過程を改めて考慮すると光合成過程は次のように表すことができる。



ここで、 $H_2O(l)$ は液状水、 $H_2O(v)$ は水蒸気状態の水で、 E_a は蒸発潜熱である。液状水は蒸発して水蒸気になる際に多量の蒸発潜熱を吸収するが、同時に吸収熱量をその時の絶対温度で除した値として定義されるエントロピーは著しく大きくなる。したがって、光合成過程で発生したエンントロピーを水の蒸発で吸収することにより、右辺のエントロピーより左辺のそれを大きくして、左辺から右辺へ向かう反応を可能とする。すなわち、植物体からの蒸散作用は光合成過程で生じ

るエントロピーを大気へ排出するために必要な現象であると考えることができる。このために必要な水分子の数 n は、エントロピー収支から計算して、最小でも光合成の原料として利用される水分子の 300 倍から 500 倍程度と計算されている。つまり蒸散による膨大な水の消費があって初めて光合成反応が進むことになる。

光合成の結果排出される水蒸気は、上述した地球の水循環の仕組みの中で大気圏の上空まで運ばれ、そこで凝固・凝結して雲となり、エントロピーの小さい液状水の降雨となって地表に帰り、再び植物に吸収される。雲を形成する際に凝固熱、凝結熱として放出されたエントロピーは、地球が放射する長波放射としてはるか彼方の宇宙空間へ捨てられる。

一方、生成されたブドウ糖は食物連鎖として生態系を移動し、次々と動物や微生物の呼吸作用により分解され、同時に酸素ガスは炭酸ガスに変わり、再び植物の光合成原料となる。このように、水、炭素、酸素は絶えず地球上を循環しているが、これらは図-3 に示すようにすべて植物体を通して循環することになる。この循環過程で植物は光合成を行い、太陽エネルギーのほんの僅かの部分を化学エネルギーの形に固定する。それは大きく見積もっても数パーセント以下であり、このようにして固定された化学エネルギーによって地球上の生態系が駆動されることになる。

1.4 土壌水分と水ならびに炭素の循環

光合成により生成されたエネルギーの一部は植物自らが呼吸作用により消費するが、残りの純生産量は最終的には土壌微生物の呼吸作用により大半が消費される。図-3 に示すように、植物体を通して循環する水と炭素の循環経路では 2 つのネックポイントがある。一つは植物体の気孔であり、他は土壌間隙である。気孔が閉じると、蒸散量が減少すると同時に、光合成の原料である炭酸ガスが植物体内に取り込めなくなり、また、呼吸作用も低下して植物の活性が低下し、有機物の生産量が低下する。気孔の開閉は土壌水分によって生じることが明らかにされている。とくに植物水分生理学や灌漑工学分野で、根の周辺の土壌水分が初期しおれ点や生長阻害水分点より乾燥すると気孔は閉じ始めることが明らかにされている。

一方、土壌間隙は気相と液相部分に分けられるが、土壌中の微生物の呼吸作用に必要な酸素と炭酸ガスは気相中を拡散により運ばれる。そのために気相率が大きい方が好気性の微生物の活動が活発になる。通常の条件下で好気性微生物が活動するには気相率が 15%ないし 20%必要といわれている。しかし、気相率が大きいことは土壌水分が少ないことを意味する。したがって、水、炭酸ガス、酸素ガスのスムーズな循環を確保するためには、土壌水分が少なすぎず、また多すぎもしない好適な水分範囲にあることがきわめて重要となる。灌漑や排水は圃場における水分環境を好適な状態に管理するために行われる。植物は水循環と炭素循環に大きく関わり、ジオシステムとエコシステムを結合する上できわめて重要な機能を果たしているが、その機能は土壌水分の

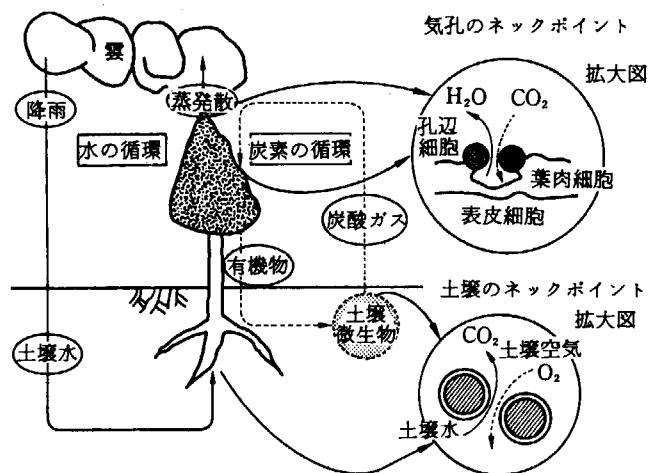


図-3 植物体を通して循環する炭素と水の循環系路

状況によって大きく支配されることがわかる。

植物の光合成にともなう純生産は、次第に消費されながら食物連鎖により生態系を通過し、最終的には炭酸ガスと水に分解される。地球上では気温や水の存在条件によって様々な生態系が形成されるが、陸地における一次生産量の分布は表-1のように整理できる。陸上生態系では、植物が生産した純生産の大半は土壤微生物による分解により消費される。

2. 土壤生態系と物質循環

植物生産によって得られる有機物は食物連鎖により生態系を通過し、最終的に土壤微生物により無機物に分解される。この過程で土壤中では微生物による酸化還元反応が生じ、様々な物質がこの過程で移動する。土壤水分の制御を介して、土壤生態系とそれによる物質循環を操作することが可能である。以上について引用文献²⁾を用いて述べてみたい。

2.1 生物地球化学的循環 (Biogeochemical Cycle)

植物により生産された化学エネルギーは、食物連鎖により生態系を通じて移動するが、炭素や水素、酸素以外の微量元素も同時に運ばれる。

生態系を流れるエネルギーを運ぶ有機物は途中で呼吸作用により一部消費されながら、最終的には土壤微生物により分解されて無機物に変わる。それらの無機物は再び植物によって吸収されるために、生物圏を絶えず循環することになる。一方、地球上には、上述したような生態系を経由する経路以外の無機的な物質循環経路があり、両循環が結合して地球上での全体の物質循環が形成されている。

土壤圏では、微生物活動に伴う酸素消費速度に供給速度が追いつかない場合に嫌気的環境が形成され、同時に微生物による嫌気的呼吸作用により土壤中に存在する無機物や金属イオンが還元される。これらの還元反応は、微生物の存在による生化学的触媒作用によって、微生物が存在しない場合より加速されることが多い。土壤中で生じるこのような酸化還元反応により生成された物質は、気体となって大気に揮散したり、吸着され易い形になって土壤に吸着保持されたり、水に溶けやすくなつて溶液の形で運搬されたりする。

生体構成元素として、また肥料としても重要な要素である窒素の循環は、生物的循環と無機的循環が複雑に絡み合っている。一酸化二窒素を始めとする NO_x はこのような複雑な循環過程を辿って発生、消滅を繰り返している。また、海水中を始めとして自然界に多量に存在し植物の必須元素一つである硫黄は、図-4に示すような循環経路を持っている。酸性雨が土壤に与える影響は、このような硫黄の循環と複雑な関連をもつ。また、還元状態の下での生物化学的作用による硫黄の循環経路で生じた酸性硫酸塩土壤は、東南アジアなどでの海岸低湿地開発において大き

表-1 地球上の各種生態系における一次生産量

生態系の種類	面積 (10 ⁶ km ²)	一次生産量 (kJ m ⁻² y ⁻¹)	総生産量 (10 ¹² kJ y ⁻¹)
陸上			
砂漠	40.0	0.8	32
草地	42.0	10.5	441
森林	39.0		1617
乾燥林	9.4	10.5	99
北方針葉樹林	10.0	12.5	125
湿潤温帯林	4.9	33.4	164
熱帯雨林	14.7	83.6	1229
農地	14.0		259
伝統的農法	10.0	12.5	125
近代的農法	4.0	33.4	134
小計	135.0		2349
海洋			
外洋	326.0	4.2	1369
沿岸	34.0	8.4	286
汽水域、珊瑚礁	2.0	83.6	167
小計	362.0		1322
合計	497.4		4241

* オダムの推定値⁷⁾をもとに整理

** 海洋生態系における上昇流海域は無視した

な問題になる。

2.2 土壤圈における有機物分解機能

土壤は有機物の最終分解場として地球上の物質循環に重要な役割をはたしている。主として土壤中に多量に生息する微生物がその分解を担っている。土壤のこのような有機物分解機能は、農村地域におけるし尿や生活排水の浄化方法と大きな注目を集めている。栄養負荷を与えたときの微生物の個体数と分解速度の変化を調べた例では、エネルギーの分

解速度が十数倍になっても、微生物の個体密度は2倍程度に増加するに過ぎないことが報告されている。微生物は活性度を高めてエネルギーの消費速度を増すだけで、大型生物のように生体量を増加させることはない。なお、原生動物ではやや大きな個体数の増加を示し、微生物と大型生物との中間的性格を示している。微生物が中心となって形成される土壤圈の生態系のこのような特徴により、土壤は有機物の最終分解場として極めて優れた特性を持っていると考えられる。

下水処理の技術の一つである活性汚泥法はそのような微生物の機能を利用したものである。湖底や水路底に堆積したヘドロも、水中における活発な微生物活動による有機物の分解生成物である。最終的には土壤生態系による分解に頼るにしても、あらかじめ人為的な処理によってなるべく土壤生態系への負荷を抑え、持続的な分解機能を維持するいろいろな工夫が必要である。なお、圃場に適度な有機物を返すことは、有機物による土壤物理性の改良が図れるために、廃物処理と同時に耕地土壤の管理上でも好ましい。土壤を単なる廃棄物処理の場として利用するのではなく、人間社会の物質循環と結合させ、人間活動と自然生態系が整合した持続的な物質循環システムを組み立てることは、持続的な環境を作り上げる上で今後とくに重要となろう。

2.3 物質循環における土壤水分の役割とその管理

土壤中におけるガス輸送は、主として土壤隙間の気相を通した拡散によって生じる。好気性微生物の活動は多量の酸素を消費して、炭酸ガスを放出する。酸素の供給能より消費量が大きいと、酸素を消費つくして還元状態となり、嫌気性微生物が好気性微生物にとって代わる。嫌気性微生物は周辺の物質、例えば鉄やマンガンを還元する無酸素の呼吸を行う。条件によっては有機物を電子の受容体とする発酵が生じる。

土壤中の酸素ガスの拡散は気相率に大きく依存する。平均的な土壤微生物の活動状態を想定して単位土壤体積あたりの酸素消費量を与え、酸素の分布状態を土壤中の酸素ガスの拡散の数値シミュレーションにより求めた結果を、気相率をパラメータにとって整理したものが図-5である。気相率が10%を越える場合には土壤は酸化状態となるが、その値を切ると還元状態となること

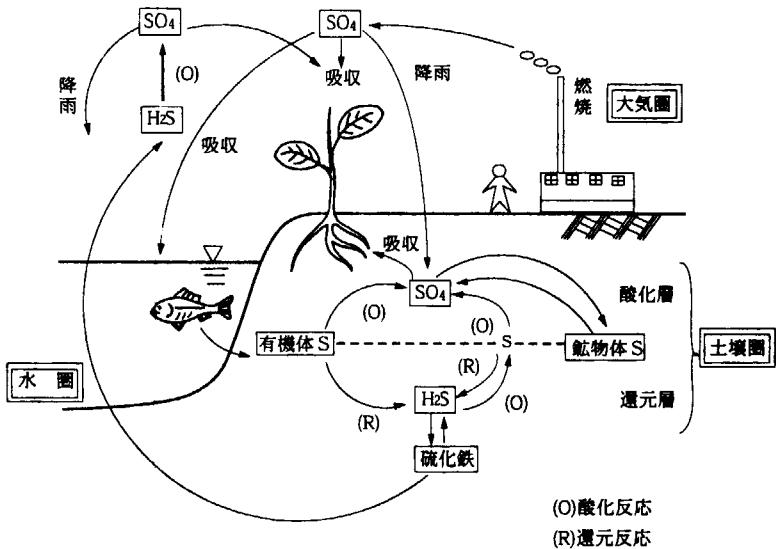


図-4 硫黄(S)循環の概念図

(O)酸化反応
(R)還元反応

がわかる。間隙率があらかじめ決まっている土壤では、気相率は含水率と補の関係にあり、含水率が大きくなると気相率は減少する。結局、土壤の含水率によって土壤中の酸化還元状態が決まることになり、土壤生態系は土壤水分状況によって基本的に異なってしまうことがわかる。土壤生態系により発生するメタンや一酸化二窒素などの温暖化効果ガスの制御に、土壤水分管理が極めて重要となることがこれにより理解できる。

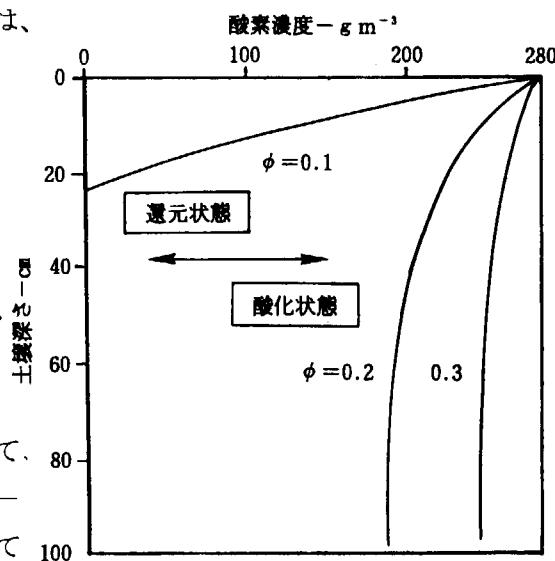
生態系を構成する代表的な元素C、N、Sについて、酸化還元状態における代表的な形態を整理すると図-6のようになる。これらは一部はガスの形態をとって土壤間隙を通過して大気中へ拡散したり、またイオンとなって土壤に吸着されたり、土壤水の移動に伴って輸送される。

一方、鉄やマンガンなどの重金属イオンは、土壤中の酸化還元状態によってその価数を変化させる。一般にイオンの価数が小さくなるほど水に対する溶解度は高くなるから、還元状態ではこれら金属イオンは溶け易く、逆に酸化状態では溶け難くなる。これらの金属イオンは、土壤中の酸化還元状態によって水に対する溶解度が変化し、溶脱されたり集積したりする。

アルカリ金属はアルカリ土類金属よりイオンの価数が低いから水に溶け易い。したがってアルカリ金属、例えばナトリウムは、アルカリ土類金属のカルシウムより土壤水の移動により輸送され易い。逆に土壤による吸着はアルカリ土類金属の方が強い。

作物根による水の吸收や土壤表面からの蒸発により、土壤水は毛管作用によって深い土層から地表近くの根群層へ移動する。植物根による吸収や蒸発に際して土壤水中の溶解物はそのまま残されるから、永い年月を経ると、地表近くの土層に塩類の集積が生じる。塩類が集積すると作物に水分ストレスや塩類によるストレスが生じて生産力が減少し、ついには枯死するか、あるいはナトリウム土のように土壤の物理性が著しく悪くなったりする。乾燥地における塩類集積は、土地の劣化や砂漠化を引き起こす最大の原因といわれている。

有機物を多く含んだ土壤の微生物活動が高い高温環境下にある湿地では還元状態が現れやすい。溶解度の低い重金属イオンは、還元状態では価数が低くなって水に対する溶解度が高まる。このような状況の下で土壤水が流動すると、それに伴ってイオンが輸送される。輸送途中で酸化



(引用文献(キャンベル, 1987)の原図に一部加筆)

土壤における酸素ガス濃度分布状況
のシミュレーション結果

図-5 土壤中の酸素濃度分布状況

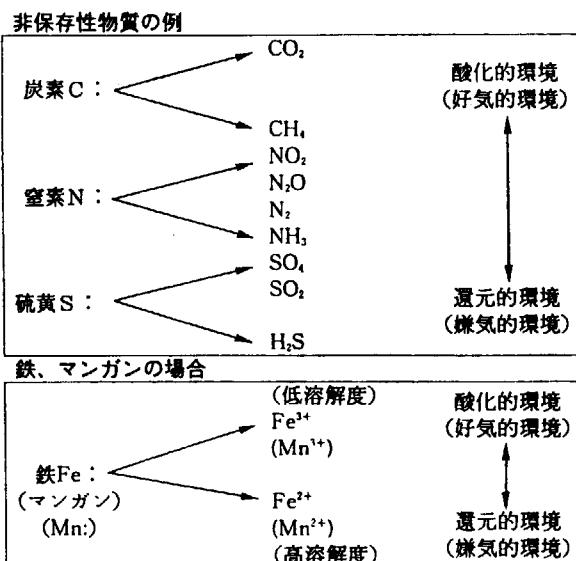


図-6 酸化・還元状態における物質の形態

環境に遭遇すると沈殿しそこに酸化物が集積する。

塩類集積を防止するためには蒸発散量を上回る灌漑水を与えて、集積した塩類を洗浄する、いわゆるリーチングを行う必要がある。しかしながら地下排水処理を行わないと、周辺地域の地下水位を上昇させ、新たに低地部に塩類集積の生じる恐れがある。さらに地下排水により塩分濃度高くなった水を下流で再利用すると、そこで塩類集積が発生する危険度が高まる。したがってリーチング用水の処理には十分注意する必要があるが、内陸部では蒸発池で処理する以外に有効な手だては無い。なお、湿潤状態では降雨量が蒸発散量を上回るために塩類集積は生じない。むしろ溶脱による土壤の酸性化が問題であり、これは酸性雨とともに寒冷湿潤地の土壤劣化の重大な問題点になりつつある。

以上のように、土壤水分は土壤中の物質の可動化と深い関わりを持つとともに、水の流れはそれを運ぶ役割を果たす。したがって、土壤水の水分含有量と水分フラックスの制御は土壤環境の管理に際してきわめて重要な意味を持っている。

灌漑や排水は環境管理のために水分フラックスを制御する技術であるといえる。灌漑排水技術は環境を形成する機構に重要な影響を与えることになり、環境を良くしたり悪くしたりする効果を持っており、環境管理の上では両刃の剣となる。

3. 流域水循環とその管理

水稻という単一作物群落の形成を図り水田農業を営む場が水田である。水田は多量の水を必要とするために、これまでに流域や地域レベルでの水循環の制御が図られ、それにより二次的自然が形成された。このようにして形成された莫大な水利資産と社会秩序を、これから環境管理にいかに活用するかが課題である。以上について引用文献³⁾を用いて述べてみたい。

3.1 大河川中下流地域の農業水利システム

わが国の大河川中下流部に位置する沖積平野の低平地が組織的に開発されるのは、戦国時代から江戸時代の初頭にかけてといわれており、現在、社会や経済活動の中心となってからの歴史はわずか数100年にしか過ぎない。この沖積平野の開発により食糧生産が急激に拡大し、それに伴いわが国の人口も急増した。

築堤技術の進歩により河川流路の固定に成功し、それと併行して、堤内地の用水、排水システムが形成されてゆく。平野部を取り乱れて乱流している多くの流路の中の主要なものが河川流路として固定され、残りの流路は堤内地の用排水路として整備されて行ったと考えられている。この用排水路は、最上流部に取水口を設けて河川と結合され、用水を河川から取水して、堤内地のすみずみまで用水を配分するとともに、堤内地に降った雨や後背地域からの流出水を排除する排水路としても機能する。また、上流水田にとり込まれた用水のうち、蒸発散や深部地下水へ涵養され残りの用水はこの水路に排水され、これらの排水は下流水田の用水源として利用される。水田への取水と水田からの排水をくり返しながら、最終的には堤内地の水は水路の末端から堤外地へ排除される。このように重力による自然流下を基本としながら、河川からの取水、上流水田からの排水、地区内降雨の排水や後背地からの流出水を徹底的に利用しつくす精微な水利用体系が形成された。このシステムでは、一つの用排水系統内の上流と下流の水田は一体となった運命共

同体であり、水の管理に関しては一糸乱れない集団的な管理を必要とする。そして、長い時間をかけた血で血を洗うような水争いを経て一つの水利秩序が形成されてきた。これが現在の水利慣行であり、わが国の伝統的な農村社会の基礎的な枠組となっている。

このような近世初頭の河川流路固定は、その後の流域全体の水の循環と物質の循環を大きく変化させ、大河川中下流部の土地利用と水利用の枠組みを形成する上できわめて重要な役割を果たしたといえる。このようにして、大河川下流にあるわが国の沖積平野の土地利用と水利用の基本構造ができ上がり、今日にみる沖積平野の二次的自然環境が形成されたといえる。このような伝統的な農業水利システムは、重力を駆動力とする自然流下システムと反復利用体系を基本としており、用水はあたかも極相となって生態系を通過するエネルギーの流れのように、徹底的に水を利用しつくすような形をとっている。河川管理と農業水利の体系は一体となって相互に強く依存しながら、流域の自然や社会環境を形成していると考えられる。水利慣行は、このような両者の一体性の上に形成された社会秩序である。

一方、高度成長期を迎え、堤内地の土地利用の一層の高度化が求められた。農業水利を中心に見ると、生産性の高い水田では人為的に圃場内の水循環を精微に制御することが要求され、圃場整備が全国的に押し進められた。一方、高度成長に伴う農業技術や農業構造の変化によって、一つひとつの圃場の自由な水管理が求められ、上水道のように弁を開閉することにより、用水を完全に制御することが求められた。そのために、パイプラインで圧力水を配る末端パイプラインが広く採用されることとなった。さらに、個々の圃場の水分環境を自由に制御するために排水路が整備され、用排水路を分離する方式が水田圃場整備の目標とされた。さらに、畑にも水田にもなるという汎用農地として、水環境を完全に制御できる農地基盤へ向けた高水準の整備へと展開していった。

高度成長期の工業の急激な発展と都市の急膨張は、沖積平野の水利用と土地利用の急激な再編を求めることがとなった。都市化は降雨の流出特性を急激に変化させる。また、沖積低平地への資産集積は洪水による安全度をこれまで以上に高くとることを求めた。

また、都市地域および都市近郊農村の混住化は水質汚濁を発生し、排水、用水とも機能強化が求められるようになった。そのために用水と排水が一体である伝統的な用排兼用システムは抜本的な再編が求められるようになる。水路敷地は道路や他の都市的施設としての利用が求められ、都市化、混住化地域を中心に用水路と排水路の分離を行い、それぞれの機能を独立させる整備が進んだ。排水路は、排水路機能強化のために、三面をコンクリートで張り粗度係数を小さくして通水機能の強化が図られ、はなはだしい場合には上部に蓋がかけられ、道路として利用される場合もあった。水質の良好な用水をパイplineに閉じ込めて、水質の悪い排水が混入しないような対策がとられた。このような機能本位の水路整備により、きれいな水は地下に潜り、地表の水路は排水や洪水の通り道と化していった。

3.2 地表水の循環システムと農業用水

農業生産は自然に開かれた環境の下で、自然資源を活用して生産活動を行うところに特徴がある。降雨、蒸発散、浸透といった自然環境から決まる水収支条件を与件として、それを安定化るために人工的に用水を供給したり過剰水を排除して、作物栽培に適した水環境を造り上げる

のが灌漑排水である。必要水量から消費水量を差し引いた残りの水は何らかの形で再び地表水として還元されることとなる。この還元水量はすべて利用されるとは限らないが、この還元水量の一部が下流部で再利用される。先に述べた伝統的農業水利ではこの還元水を下流部で繰り返しきりかえし利用する体系、すなわち需要地域が直列に連なった形となっている。複雑な繰り返し利用を行う伝統的農業水利システムの広域用水量は、このように直列に結合された用水系統内のすべての地域が相互に関連しながら、一体的に決まることになる。

近代的水利システムでは排水路へ直接各ブロックの排水が結合される。反復利用がないために、用水路の最上流点で取水しなければならない水量は各ブロックの必要水量の単純合計値であり、先の直列システムに比べてきわめて大きな値となる。いずれかの地域で必要水量の増減があった場合にはそのまま取水量の増減に影響する。

農業水利の近代化は、用排分離による直列システムの並列システム化を目指していたことはすでに述べたとおりである。当然広域用水量は反復利用がなくなる分だけ増加する。この増加分は、当初ダムによる水資源の外延的拡大により手当してきた。しかしながら、新規の開発が困難となるにしたがい、計画的な反復利用の強化、排水路の下流端に設けられたポンプで排水を拾い、パイプラインで用水路に再び押し上げる方式がとられるようになった。排水路の再末端にあるために水質は悪く、また、位置エネルギーも小さい。すなわち、水田の広域計画では、水量、水質ならびにエネルギーが互いにトレードオフの関係にあることがわかる。水量確保のためには、水質を犠牲にした上で、しかも高いエネルギーコストを覚悟しなければならないことになる⁸⁾。

現実の水利系統は上述したような単純な直列あるいは並列システムではない。きわめて複雑な構造を持つ上に、上述したような水量連続条件以外に水質や位置エネルギー、さらには水利権などの複雑な拘束条件がつけ加わることになる。今後の流域水循環の再生は、単に伝統的な直列システムへの回帰ではなく、ポンプとパイplineの利用により、重力エネルギーを駆動力とする自然流下システムの人工的補完を行う流域水循環の制御技術に加えて、水需要、水路内の流況、水質情報といった現代技術を駆使することにより、より積極的に新たな循環システムを組み立てることが必要であろう。

水循環系統の組立いかんにより広域用水量は変化する。目標の設定の仕方により大きく変わり、とくに経済的効率性か社会的公平性のいずれを目標にとるかによって、水循環系統と広域用水量は大きく変わってくることに注意を要しよう。

3.3 水利系統の再編成と共的管理—これから農業水利と沖積低平地の環境管理—

水質が良好で、しかも位置エネルギーが高い排水を積極的に再利用することは新たな反復体系を構築する上できわめて重要な課題である。そのためには水利の近代化が目標としてきた水需要の並列化ではなく、組織的な直列化を図ることが不可欠となる。さらに、このようなハードな水循環経路の組立だけではなく、水系全体の水量や水質、環境のモニタリング、省資源や省エネルギーへ向けての地域戦略などのソフト施策と、ハードの水利施設との整合を図ることがとくに強く求められる。高度成長期の整備により用排分離された近代的水利を、新たな視点から用水と排水の再結合を図ることがこれからの大きな課題になるといえよう。

水利系統の再編成は、地域の水を初めとする物質の循環系を大きく変えることになる。これは

地域の生活環境のみならず、沖積低平地において水田開発とともに形成された二次的自然に大きな影響を与える、地域の生産環境や生活環境、さらには自然環境を大きく変化させることになる。また、見方を変えれば、ダムなどによるこれまでの水資源の新規開発に代わり、利用効率の増進、すなわち水資源の再開発を意味することになるが、すでに既得利水者が存在する中での新たな水利用の枠組みを変えることとなる。したがって水利系統の再編には地域住民の参加や既得水利との調整問題など難しい問題が発生するが、これを、単に水資源開発や生活環境の整備問題にとどめるのではなく、総合的な地域環境管理問題の取り組みへ向かう契機としてとらえることが重要であり、これが水循環再生の本来の目的であると考えられる。水利システムは地域の生産活動や日常生活、そして自然環境を支える環境基盤として位置づけることが必要であろう。とくに長い歴史を持つ農業用水は農業生産のための用水であると同時に地域環境形成のための様々な機能を持つに至っていることを忘れてはならないだろう。

さて、このような新しい水循環システムが形成されたとして、誰がどのような責任の下で地域の水循環を管理制御するかが問題となろう。沖積平野の長い開発の歴史、その間に投下蓄積された莫大な資本、私有財としての土地との密接な係わりや様々な既得権を考えるとき、単純に公的管理のみで十分その役割を果たすとは考えられない。私的な生産活動や生活と密接に係わっているだけに、水循環の管理はきわめて難しい課題を提起することになろう。

伝統的農業水利では水利施設は分割支配できないためにそれを共有財と位置づけ、共的管理が行われてきた。とくに長い歴史の中で形成された水利慣行を管理の規範として、安定した水の利用秩序が維持されてきた。これらの秩序体系は一つの地域資産と考えることができる。これを現代に引き継いでいるのがいわゆる土地改良区である。しかしながら、伝統的農業水利が形成された時代には沖積平野は農業生産を産業活動の中心としたほぼ一様な農村社会が形成されていたと考えられるが、工業や都市が極度に発達したわが国の現状とは社会の構造が根本的に異なっている。都市化と混住化は従来の共的管理をきわめて難しくしており、土地改良区は様々な課題を背負っている。高度成長期にいろいろな形で公的管理への移行が図られてきたが、しかしながら財政の逼迫するこれから社会において公的管理は限界を迎えており、行政コスト削減の面からも改めて共的管理の在り方が問われており、地域環境管理組織としての土地改良区の役割の見直しが必要となっている。

地域環境基盤は優れて社会资本としての性格を持つが、地域環境管理の担い手が公的セクターのみで十分であるかというとそうでもないよう思われる。環境管理には私有財や共有財が複雑に絡み、規制緩和による経済活動の活性化を考えるとき、「公」と「私」の中間に位置する「共」の役割をもう一度見直す必要があろう。その際に上述した土地改良区の機能や役割はきわめて重要なと考えられる。農業水利分野では土地改良区の再生について様々な検討が進められ始めたところである。

また、過去の投資の莫大な蓄積を持つ水利資産の管理や更新はこれからの土地改良投資の一つの方向である。

水循環の再生には、改めて沖積平野の水利施設再整備と管理システムの構築が必要となるが、これまでに蓄積された農業水利の有形無形の資産を基礎として、農業生産活動にのみ特化するのではなく、地域の様々な機能を担う環境基盤として新たな視点から整備を図ることが必要であろ

う。水利再編はこれからの地域環境マネジメントを考える上で最大の課題となろう。

3.4 これからの沖積平野の水循環と環境管理

沖積平野は、河川によって輸送された土砂が堆積して形成され、水平な地層構造が発達している。とくに地層中に存在する地下水は河川水ときわめて密接な関わりを持っている。地下水の通り道となる地層は帶水層と呼ばれるが、沖積平野の帶水層中の地下水は河川水と直接連絡している。帶水層は沖積平野の水の循環経路の一つであり、地盤環境や自然環境に重要な影響を与えるが、さらにきわめて大きな水の貯留能力を持っている。このように、農業用水は地下水を介して沖積平野の自然環境と密接な関わりを持っている。

伝統的な農業水利システムは、地区内利用可能水の徹底した利用を前提に組み立てられており、自然のシステムと一体化しているところにその特徴を見ることができる。主として高度成長期に見られるこのような伝統的システムの近代化は、用水を生産する水源システムとそれを消費する需要システムを機能分化させ、それぞれの機能に特化させた機能本位のシステムを組み立て、また、自然の水循環システムから人為的な水利システムを切り離し、制御が容易となるシステムを組立ててきた。その結果、水のリサイクルは分断されて反復利用率は著しく低下した。さらに、自然のシステムから切り離された水利系統は同時に自然のストック容量を系から排除することとなり、降雨の利用効率の著しい低下を引き起こした。本来、農業水利は自然システムと人工システムの中間的性格を持っていたが、近代化の名の下に自然システムとしての性格を極力排除しようとしてきたように思われる。水利の近代化がもたらした資源利用の非効率性と環境への負荷の増大を改めるために自然システムとの再結合を図ること必要である。この意味で、農業水利は自然と人間社会をつなぐインターフェイスとしての役割を担っていると言えよう。

なお水のくりかえし利用体系は、近年問題となっている内分泌錯乱物質やその他自然生態系の中で消化しきれない物質の使用禁止を前提としており、この点は流域水循環管理の今後大きな課題である。

水循環制御の新しい技術を背景に、より望ましい自然システムと人工システムの再結合を図ることがこれからの農業水利に求められる課題であるといえる。さらに、社会システムとの結合の上により適切な地域環境をマネージする新たな体系の構築が、今、求められていると思われる。地域水循環の再生の究極の目標はこの点にあるといえよう。

4. 地域環境管理と社会経済システム

農業は食料生産と環境保全を両立させてきたが、特に、「公」でもなく「私」でもない両者にまたがる新しい概念である「共」が重要な役割を果たしてきた。これからの環境管理ではこの「共」をどのように位置づけるかが重要な課題である。以上について引用文献⁴⁾をもとに述べる。

4.1 環境管理と経済

環境管理は持続性を前提として出発しなければならないが、持続性をどのようにして経済原理の中に取り込むのかは、持続的な社会システムを構築する上できわめて重要な課題である。このためには、環境利用をめぐって市場原理がとの程度有効なのか、また南北問題や世代間の利用調

整をどのようにして図ればよいのか、自然の再生産能力や浄化能力などの自然生態系機能をどのようにして経済的に評価するかなど、これまでの経済学では扱いきれない多くの課題を解決しなければならない。

特定資源の利用による悪影響を修復してもなお純便益が得られるならば、これは社会的な純便益を増加させるとする、潜在的パレート改良論に基づく費用便益分析法が、従来の経済学における公共財利用の基本原理として用いられてきた。すなわち公共事業では便益が費用を上回ればその開発は何らかの形で社会全体に便益をもたらすから、その開発は社会に認められるべきであるとする考え方である。しかしながら、社会的便益を最大化するように環境を利用すると、環境が劣化して便益が次第に縮小して行くために持続性が維持できないが、それが費用便益分析理論には考慮されていないとする批判が出されている。環境利用の外部費用を考慮したとしても社会的な便益最大化方式では環境の劣化は免れることができない。むしろ自然の再生産力あるいは浄化能力の範囲に環境利用を限るべきであるとする考え方が一般的となっている。世界銀行の『ミニマム安全基準』やわが国の『環境容量』の概念はこのような考え方に基づくものである。すなわち環境利用は、経済原理や社会原理より、自然原理、すなわち自然の再生産力と浄化能力によってその利用限界が決まるこことを最重要視すべきである。

二酸化炭素の排出や森林伐採に課徴金を課したり、フロンガスの代替物開発に補助金を出したりする方法が考えられる。この方法によれば環境保全のための技術開発を促進する効果が期待できる。もう一つの方法として直接規制を行う方法が考えられる。炭酸ガスの排出を例に取ると、外部費用を考慮した上で社会の利益を最大化するような総排出量を決めて、各企業に割り当てる方法である。しかし、後者の方法は資源配分の効率性が妨げられるので好ましくないと指摘がある。とくに資源の効率的配分を主張する一部の経済学者たちは、なるべく政府の干渉を排除し市場の調整機能を活用すべきであるとして、環境管理に市場原理の導入を主張している。これに対して環境や資源は社会全体の立場に立ち公平に利用管理すべきであるとして、政府の介入を強めるべきであるとする意見もある。このように環境問題は、それぞれがよって立つ立場によって、対応策が正反対になることも少なくない。

4.2 環境管理と社会

環境管理に市場原理を持ち込もうとする試みに対して、逆に、社会的公平性から見ると、環境管理は市場には任せられないとして、社会全体として管理すべきであるとの強い主張もある。市場原理では経済的弱者により大きな負担がかかり、南北格差の拡大を一層助長することになる。環境利用は運命共同体の一員として弱者に手厚い施策が講じられるべきであるとする主張である。環境利用は生存権、生活圏の一部であると考えられ、かつて都市政策において議論されたように、最低の生存権は社会の構成員の全員に保証されるべきであるとするシビルミニマムの考え方と共通する考え方である。そのために環境は、経済原理ではなく社会原理によって管理されるべきであるとの主張である。

環境は、非排他性と非競合性によって市場性を持たない典型的な公共財として特徴付けられる。市場性を持たない資本は、社会全体から見て適正な存在量を確保するためには政府が公共投資によって適正な存在水準を確保することが必要となる。いわゆる社会資本整備として環境の利用管

理を位置づけることが必要がある。

4.3 環境倫理と南北問題

南北問題や世代間の環境利用をめぐる利害調整は、最も解決が難しい課題の一つであろう。それは価値観の違いにより考え方方が大きく異なってくるためである。環境利用をめぐって次のような4つの倫理観を整理することができる。

- ① 環境利用に対する南の期待効用と北の効用の合計値を最大にするという考え方
- ② 弱者に手厚い倫理観の下で、南あるいは次世代に優先的に利用権を回すという考え方
- ③ 技術革新を図り社会を発展させる原動力は強者のエリートが担うので、エリートに優先的に利用権を回すという考え方
- ④ 弱者、つまり南や次世代に回す分をあらかじめ確保した上で、残りを北の先進国や現世代へ配分する折衷的な考え方

いずれの考え方も、立場の異なる南北間での合意はきわめて難しいと言わざるを得ない。環境の利用や管理に関わる上述したような倫理観についての合意が無ければ、経済的な調整システムを組み立てることができない。つまり、価値観や倫理観といったきわめて主觀に近い考え方が、環境の利用や管理をめぐって大きな影響を与える。

4.4 環境管理における公・共・私と環境ストック

社会資本は『私的な動機（利潤の追求または私生活の向上）による投資のみに委ねているときには、国民経済社会の必要性から見て、その存在量が不足するか、あるいは著しく不均衡になる等の望ましくない状態におかれるであろうと考えられる資本』と定義されている。公共財と呼ばれる環境と直接関わる財は社会資本の中心であり、その整備には公が直接関与する公共事業が深く関わっていることがわかる。農業農村整備事業はこのような社会資本整備においてきわめて重要な役割を果たしている。

上述のような社会資本の分類によれば、水資源開発においてダムは社会資本であるが、その貯水される水は社会資本ではない。堤防は社会資本ではあるが河川は社会資本ではない。すなわち社会資本は直接投資の対象となる人工構造物に限定され、水資源や河川などの自然物は社会資本ではない。われわれが必要とするのは人工構造物ではなくそこから生み出される財やサービスである。そこで、水や河川などの自然物を自然資本と定義して、狭義の社会資本と区別して扱うべきであるとする考えがある。また、河川を流れる水は、長い歴史的な経過を経て形成された社会制度としての排他的利用権（慣行水利権）が定着しており、勝手に利用することはできない。土地は公共の福祉から自由な利用に制限を受けるとはいえ、私的所有制度に基づいて所有権が明確に決まっている。このように制度そのものも資本として考える必要がある。このように、環境の管理には自然資本、制度資本、狭義の社会資本という三つの資本を総合的に取り扱う必要があり、それらをまとめた『社会的共通資本』という概念が新たに提唱されている。とくに農村地域では自然が豊富に存在し、歴史的・制度的な資産に恵まれ、そして狭義の人工構造物である社会資本を通してこれらが持つ潜在的機能を大きく發揮させることが可能となる。都市と農村ではこれら三つの資本の存在状況が根本的に異なる。そのため農村地域における公共事業ではこれら

三つの資本の均衡を取ることが大きな課題であり、このような社会的共通資本の整備という視点が重要である。なお、歴史的な経過を経て形成されてきた水利秩序や、あるいは土地改良事業の実施を通して整備されてきた換地制度、また土地改良事業制度と土地改良区などはきわめて重要な制度資本と考えらるべきである。このような制度資本の活用によってより好ましい農村地域の社会経済システムを構築していくことが、これから農村地域の環境管理の最大の課題になるといえよう。

環境利用は持続的利用を基本原則として、持続的発展が可能な経済社会システムを実現することが地域環境管理の目標である。とくに現世代で環境ストック（資本）を食いつぶすのではなく、より好ましい形で次世代に継承して行くことは現世代に課せられた義務である。

引用文献

- 1) 三野徹：土壤生態系の基本的機能、木村真人編『土壤圈と地球環境』所収、19-34、名大出版(1997)
- 2) 三野徹：自然環境との調和を目指した地域の整備と管理、農業土木学会編『豊かで美しい地域をつくる－地域環境工学概論－』、159-181、農業土木学会(1995)
- 3) 三野徹：流域水循環と農業水利、河川、No. 627、20-26(1998)
- 4) 三野徹：環境管理と経済社会システム、農業土木学会編『人と自然にやさしい地域マネージメント－地域環境管理工学－』、177-189、農業土木学会 (1997)



23. 六ヶ所村の汽水湖尾駒沼における放射性核種等の挙動

近藤邦男、植田真司、川端一史、長谷川英尚、大桃洋一郎

環境科学技術研究所

核燃料サイクル施設に取り囲まれる六ヶ所村の汽水湖尾駒沼における放射性核種等の挙動に果たす植物プランクトンの役割を、フィールド調査と室内実験の両面から検討した。植物プランクトン種は、汽水域特有種に加え、淡水性種および内湾性種によって構成され、優占種の季節的変動が観測された。これらの植物プランクトン中には、放射性核種をはじめとする各種の元素が濃縮され、湖沼生態系内での元素移行に重要な役割を果たしている。植物プランクトンによる放射性元素および安定元素の濃縮は、代謝活動と深く関係するものと、無関係な二つの過程を経ることが明らかにされた。塩分および照度等の環境要因は、植物プランクトンによる放射性核種等の濃縮に大きな影響を及ぼし、その影響は植物プランクトン種の違いによって相異が認められた。

Behavior of Radioactive and Stable Elements in the Brackish Lake Obuchi in Rokkasho Village

Kunio KONDO, Shinji UEDA, Hitoshi KAWABATA, Hidenao HASEGAWA
and Yoichiro OHMOMO,

Institute for Environmental Sciences

Uptake of radionuclides and stable elements by phytoplankton and its species composition were investigated in the brackish Lake Obuchi bordering nuclear fuel cycle facilities. The occurrence of 46 species of phytoplankton were observed during the period from September, 1993 and December, 1996. The species composition revealed the presence of coastal and freshwater species in addition to species peculiar to brackish lakes. Seasonal fluctuations in the species composition were also observed. A close relationship between the uptake of Sr and Cs by phytoplankton and photosynthetic activity was confirmed. Salinity and light intensity have strong effects on the uptake of Sr and Cs by phytoplankton, and the effects were different by the species.

Keywords : Brackish Lake, Radionuclides, Uptake, Suspended organic matter, Phytoplankton

1. はじめに

青森県の下北半島の湖沼群の中の一つである尾駒沼（オブチヌマ）は、流程 1.6 km の水道（尾

駒川) によって太平洋とつながる汽水湖（湖面積 3.71 km²）である。尾駒沼の位置する六ヶ所村にはウラン濃縮施設および低レベル放射性廃棄物埋設施設が立地し、すでに操業が開始されている。使用済核燃料再処理施設の建設が目下進捗中であり、近い将来操業が開始される予定である。これらの施設は、尾駒沼を取り囲む形になっており、排出放射性物質の安全評価の対象水域となっている。安全評価上は、十分な安全率 (safety margin) をとって、水生生物への放射性核種の濃縮係数 (CF 値) が採用されている。しかし、近年、より現実的な評価が求められており、そのためには尾駒沼における水質環境、生物相の構成、季節変化および放射性核種等の挙動に関する基礎的な知見を得る必要がある。

尾駒沼の植物プランクトンを主体とする懸濁有機物中には、放射性核種をはじめとする各種の元素が含有されている。植物プランクトンは、湖沼生態系内の食物連鎖の最も低段階に位置すると共に、湖水中の放射性核種等の各種元素を吸收・吸着した後、活性の低下に伴い沈降することにより、各種元素を湖底に蓄積する役割を果たしている^{1,2)}。したがって、湖沼生態系内での放射性物質等の挙動・移行を解明するためには、植物プランクトンの種構成、分布特性および生態系内での位置づけ等を明確にすると共に、放射性物質等の生物への移行に及ぼす水質環境変動の影響を解明することが重要である。

2. 調査水域の概要

尾駒沼は平均水深は2.4 m(最大水深:4.8 m)、湖の周囲は14.3 km(長さ:5.3 km; 最大幅 1.5 km) の汽水湖である(Fig. 1)。湖岸改変状況は自然湖岸が98%、半自然湖岸が2%と自然状態が比較的よく保たれている。流入河川は二又川が1本で、尾駒川を通して太平洋の海水と湖水との交換が行われている。

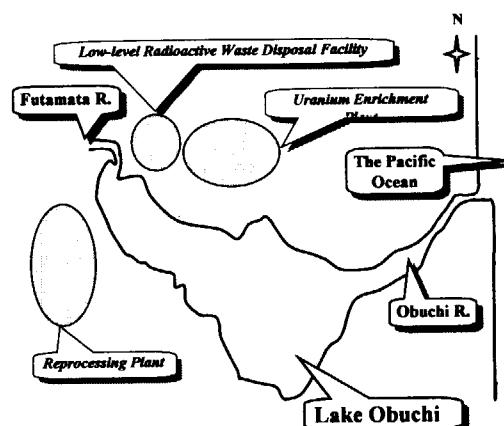


Fig. 1 Map of Lake Obuchi.

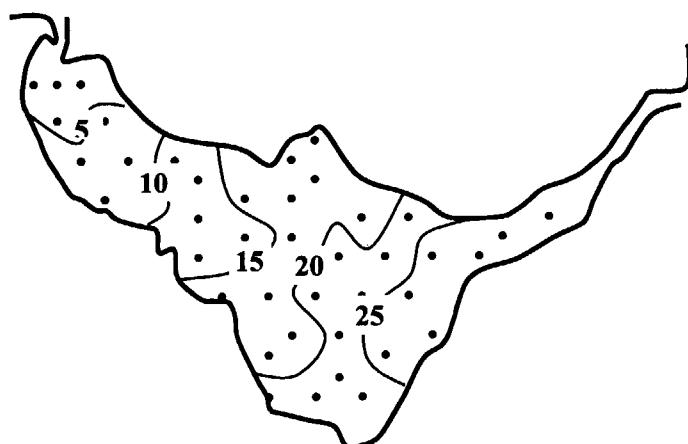


Fig. 2 Horizontal distribution of salinity in Lake Obuchi (Sept., 1996).

塩分の水平分布をみると、海洋からの流入口から河川が流入する水域に至る 5.3 km の間に 5 ~ 25 units まで大きく変化する (Fig. 2)。塩分の時系列変動は、海水が流入する東側の湖盆よりも二又川が流入する西側の湖盆 (0.5 ~ 21 units) の方が大きい。塩分の鉛直分布をみると、塩分躍層はほぼ年間を通して観測されるが、水深が浅いため微弱である。

3. 調査結果

3.1 湖底堆積物中の元素濃度分布²⁾

尾駒沼の 30 調査地点における湖底堆積物中の各種元素の濃度間の相関をみると、相関係数が 0.9 以上の比較的高い値が認められたのは、²³⁸U と ¹³⁷Cs ($r=0.90$)、¹³⁷Cs と Mn ($r=0.95$)、⁴⁰K と Mn ($r=0.93$)、Co と ⁴⁰K ($r=0.91$)、Ba と Co ($r=0.91$) との間であった。これらの元素は互いに供給源、物理化学的性質、無機または有機の懸濁物への吸収・吸着、あるいは湖底への蓄積過程のいずれかが類似しているものと考えられる。高い相関が認められた放射性核種 ²³⁸U および ¹³⁷Cs の供給源を把握するために、²³⁸U および ¹³⁷Cs と湖水中の塩分との関係を調査し結果、²³⁸U 濃度と塩分との間には正の有意な相関関係 ($r = 0.95$) が認められた。また、¹³⁷Cs の濃度と塩分との間でも比較的高い相関関係 ($r=0.89$) が認められた。これらのことから、尾駒沼における湖水中の ²³⁸U および ¹³⁷Cs の濃度と塩分と密接な関係があり、湖水中の ²³⁸U および ¹³⁷Cs の供給源は主に海洋であると判断される。

また、湖底堆積物中における放射性核種の濃度と粒径分布との関係をみると、0.075mm 以下の小さな粒径分画が占める割合が大きい堆積物は ²³⁸U および ¹³⁷Cs の濃度が大きくなる傾向が認められた。これに対し、大きな粒径が大部分を占めている堆積物は濃度が低くなる傾向が認められた。

さらに、湖底堆積物における放射性核種の濃度と有機物指標項目の濃度との関係をみると、比較的高い相関が認められた元素は ²³⁸U、¹³⁷Cs および ⁴⁰K であった。その他の元素は有機物指標項目との間に有意な相関関係は認められなかったことから、堆積物中における ²³⁸U、¹³⁷Cs および ⁴⁰K は、湖水中のこれらの放射性核種が植物プランクトン等の懸濁有機物に吸着されて沈降したか、あるいは有機物に富んだ堆積物に直接吸着したものと考えられる。

次に、潮流の観点から堆積物中における放射性核種および安定元素の濃度分布みてみると、太平洋から主湖盆に大きな流速で流入した海水は西部湖盆まで到達した後、西部湖盆を中心として形成される穏やかな停滞流によって一時滞留する傾向がある。西部湖盆から主湖盆にかけた底層域（水深 2.5 m 以深）では、湖水の塩分が一年を通して高濃度（20 以上）を形成している。これは、停滞水域に放射性核種 ²³⁸U および ¹³⁷Cs を高濃度に含む湖水が存在していることを示唆している。この停滞水域におけるクロロフィル a 量は、他の水域におけるクロロフィル a 量と比較して一年を通して高い傾向が観測された。このことは、停滞水域是有機物生産量が高く、懸濁有機物濃度が高いため、沈降物量も多くなることを示唆する。すなわち、この水域において ²³⁸U および ¹³⁷Cs を高濃度に含む湖水が植物プランクトンを主体とした懸濁有機物に吸着または吸収されて沈降（スキャベンジング）、あるいは溶存状態のまま直接堆積物へ吸着する現象が起こりやすくなることが考えられる。

3.2 懸濁有機物中の元素濃度

1993年9月から1995年9月の間、湖水中の懸濁有機物中（植物プランクトンが主体）における放射性核種および安定元素の含有濃度を測定した。元素の濃度をみると、放射性核種の²³²Thは0.12～1.08 μg/g dry（平均:0.38 μg/g dry）、²³⁸Uは1.69～2.44（平均:1.93 μg/g dry）、¹³⁷Csは0.0112～0.0176 Bq/g dry（平均:0.0141 Bq/g dry）であり、1.4～9.0倍程度の濃度変動（最大値／最小値）が観測された。安定元素の濃度は、Mnが145.6～357.3 μg/g dry（平均:239.9 μg/g dry）、Srが82.5～128.2 μg/g dry（平均:98.1 μg/g dry）、Csが0.81～1.65 μg/g dry（平均:1.11 μg/g dry）、Pbが11.2～16.5 μg/g dry（平均:13.1 μg/g dry）であった。

3.3 植物プランクトンの種構成

懸濁有機物中に含有される放射性核種等の濃度が変動する原因の1つとして、懸濁有機物の組成や物理化学的形態の変化が考えられる。そこで、その原因を探るために、懸濁有機物の主体となっている植物プランクトンの種構成の変動を調査した（1994年3月～1996年12月）。その結果、汽水湖固有の種に加え、内湾性および淡水性の種によって構成されていることが分かった。優占種として、*Melosira* sp.、*Chaetoceros* sp.、*Skeletonema costatum*、*Cyclotella nana*、*Asterionella japonica*等の珪藻類および渦鞭毛藻の*Cochlodinium helicoides*の出現が確認された。

種構成の季節変化をみると、比較的水温の低い春季には珪藻類の*Chaetoceros*、*C. nana*および*S. costatum*、水温の高い夏季には*Melosira* sp.、*Chaetoceros* sp.および*A. japonica*、秋季には*Melosira*、*Chaetoceros*および*S. costatum*、水温の低い冬季には*C. nana*および*S. costatum*の出現量が多いという変動傾向が認められた。

3.4 植物プランクトンへのCsおよびSrの濃縮（吸収・吸着）

植物プランクとの種の違いによる元素移行の相異を明らかにするために、尾駒沼から珪藻*S. costatum*、*C. nana*および渦鞭毛藻*C. helicoides*をはじめ5種を単離培養し、SrおよびCsの植物プランクトンへの吸収・吸着を室内培養実験によって検討した。

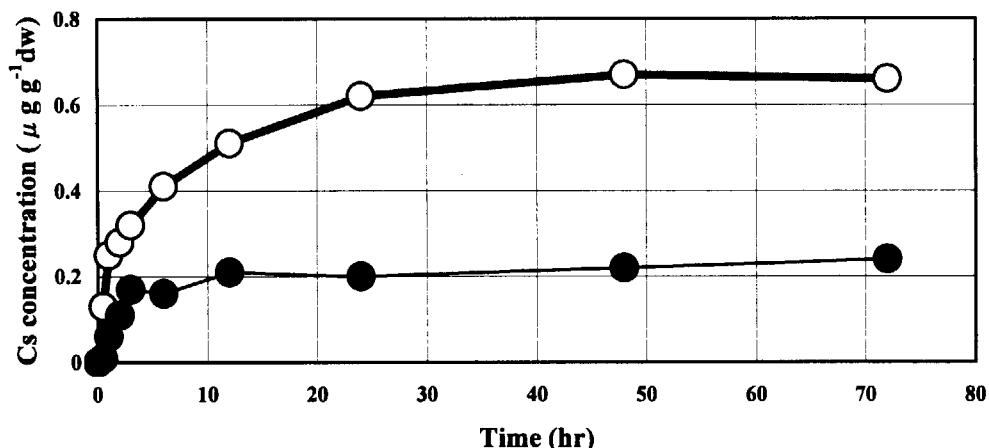


Fig. 3 Uptake of Cs by *S. costatum* under light and dark conditions.

○, light condition ; ●, dark condition

その結果、明条件下と暗条件下における植物プランクトンによる両元素の濃縮量を比較すると、いずれの種も暗条件よりも明条件の方が大きかった。Fig. 3 に、*S. costatum* の結果を示す。

明条件と暗条件における元素の濃縮量の差は、光合成活動に伴って生体内に吸収された量を示し、植物プランクトン生体内への元素の吸収と光合成活動との間に密接な関係があることが明らかとなった。しかし、暗条件下で培養した場合（光合成活動ができない状態）でも、植物プランクトン中の Sr および Cs 含有濃度は増大した。これは、光合成活動とは無関係なプロセスで植物プランクトンに濃縮されることを示す。これらのことから、尾駒沼に生息する植物プランクトンの放射性核種の濃縮は、光合成活動と関係するプロセスと、光合成活動とは無関係なプロセスで行われていることが明らかにされた。さらに、植物プランクトンの光合成活性は塩分、照度および温度等の環境要因の影響を強く受けることが明らかにされた。

これらのことから、湖沼環境中における放射性核種等の挙動を解明するためには、植物プランクトンへの放射性核種等の移行と各種環境要因との関係や植物プランクトン種による生理特性の相異等をさらに詳細に検討することが必要である。

4. おわりに

本研究は、青森県からの委託調査によって得られた成果の一部である。青森県および科学技術庁の関係者に深甚なる謝意を表します。

引用文献

- (1)近藤邦男、清家泰、伊達善夫: 汽水湖中海底質中の重金属および有機物の分布特性、水質汚濁研究、9: 215-224、(1986) .
- (2)植田真司、川端一史、長谷川英尚、桜井直行、近藤邦男: 青森県汽水湖尾駒沼の堆積物中における²³⁸U、¹³⁷Cs および安定元素の分布特性、陸水学雑誌、59: 159-173、(1998).



24. 潤沼におけるCs-137移行モデルの検討

武石 稔

核燃料サイクル開発機構 敦賀本部 環境監視課

放射性物質の降下量が短期的に変動した場合の環境モニタリングに資する観点から、茨城県中部太平洋沿岸に位置する潤沼における¹³⁷Csの移行モデルを検討した。潤沼各区域（流域土壌、湖水、湖底堆積物等）間の¹³⁷Csの移行現象を、1986年から実施した湖水、湖底堆積物中¹³⁷Cs濃度の変動等の観測結果に基づき連立微分方程式で表した。また、区域間の¹³⁷Csの移行速度を降雨強度の関数として表し、流域からの¹³⁷Csの流入量の増加、湖底堆積物（底泥）の巻き上げにともなう¹³⁷Csの再浮遊量の増加等の降雨効果について検討したので報告する。

STUDY ON TRANSFER MODEL OF ¹³⁷Cs IN LAKE HINUMA

Minoru TAKEISHI

Environmental Monitoring Section, Tsuruga Head Office,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

A transfer model has been developed to facilitate the environmental monitoring of fallout (Cesium-137) in lake Hinuma. The lake Hinuma is located near the Pacific Ocean in Ibaraki-prefecture in Japan. Transfer of ¹³⁷Cs between zones (i.e., catchment area, lake water, lake bed sediment) was modeled using standard differential equations based on the results of observations such as fluctuation of ¹³⁷Cs concentration in the lake water and sediments since 1986. Transfer velocities of ¹³⁷Cs between zones on the model were determined from expressed as a function of rainfall intensity. The effects of rainfall intensity (i.e., increasing inflow-flux of ¹³⁷Cs from catchment area and rolling-up of particles of sediments carrying ¹³⁷Cs) were investigated on this model.

1.はじめに

湖沼系は、流域に沈着した物質を降雨などにより集積する傾向がある。放射性核種の大気降下量が短期的に増加した際には、湖水及び湖沼生物中の放射性核種濃度の一時的増加と湖底堆積物（以下、堆積物という）中放射性核種濃度の増加が生じると考えられる。しかし、堆積物中放射性核種濃度は、湖沼系の水文学的特性に基づく放射性核種の流入及び流出フラックスの収支に依存するので、長期的には必ずしも蓄積傾向を示すとは限らない。

特に、降雨は流入フラックスと流出フラックスの両者をほぼ同時に増加させるため、湖沼系における放射性核種の移行現象を解明する上で重要である。そこで、実環境として涸沼における¹³⁷Csの移行とそれに及ぼす降雨等の影響を調査し、短期的変動が評価できる移行モデルを検討した^{1) 2)}。なお、本モデルは、環境モニタリング計画立案時の目安となること、並びに、環境モニタリングで得られた実測値の時間的補完を目的としており湖沼水域内の詳細な濃度分布まで算出する必要性は少ない。従って、水域の分割は必要最低限とし、湖水、堆積物全体に対する平均濃度の時間的変動を予測する観点からコンパートメントモデルで構築した。その検討結果、特に、湖水及び堆積物中¹³⁷Cs濃度に及ぼす降雨の影響のモデル化について報告する。

2. 潶沼の特性（観測結果）

涸沼は、湖面積9.35km²、平均水深2.1mの汽水湖でありFig.1に示す様に、流入河川、上流部、中流部、下流部、流出河川の区分が比較的明瞭な形状を有する。

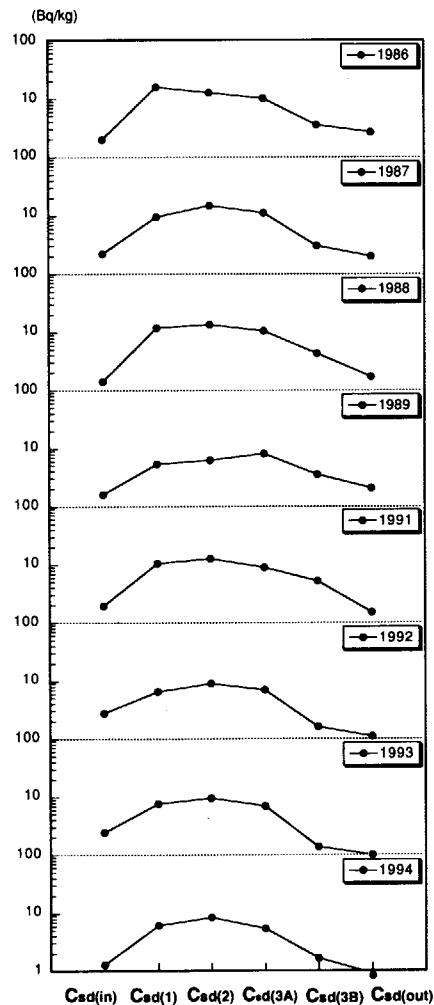


Fig. 2 Fluctuation of distribution patterns of ¹³⁷Cs in the sediments observed in the lake Hinuma

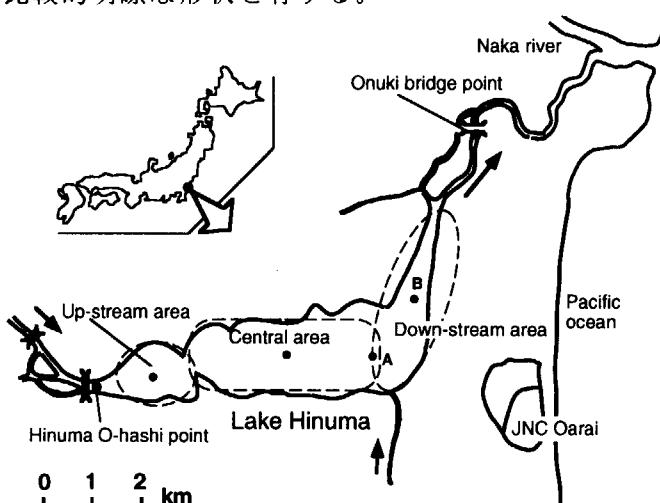


Fig. 1 A map showing the location of the lake Hinuma and three water zones of the lake in the model. ●: Sampling points

2.1 堆積物中¹³⁷Cs の移行挙動

1986年～1994年まで各水域の堆積物中¹³⁷Cs濃度の分布を調査した。堆積物は、主に夏季にエックマンバージ型のグラブ採泥器で船上から採取・乾燥後、¹³⁷CsをGe半導体検出器で測定した。堆積物中¹³⁷Cs濃度の各年の水平分布の変化をFig.2に、また、各水域毎の¹³⁷Cs濃度の経年的推移をFig.3に示す。

1986年は、4、5月に Chernobyl 事故の影響により¹³⁷Csの大気降下量が増加し

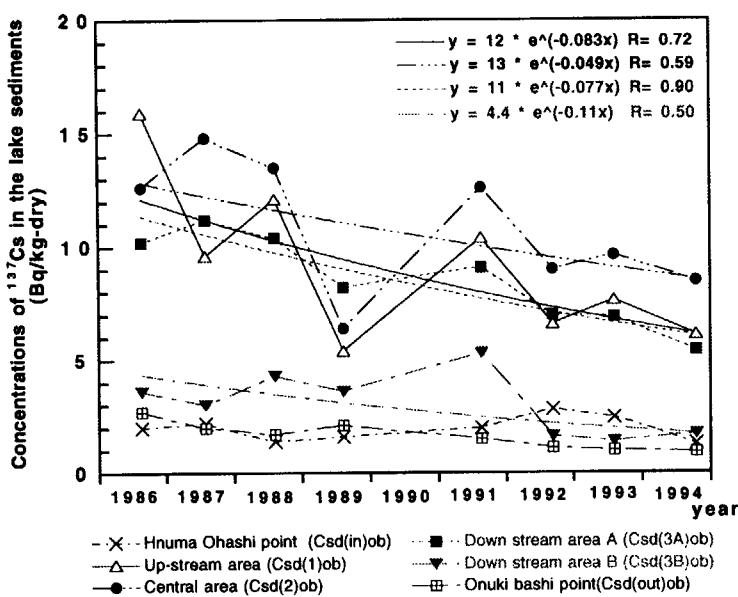


Fig.3 Fluctuation of ^{137}Cs concentrations in the sediments observed in the lake Hinuma

中 ^{137}Cs 濃度を1986年8月20日時点の濃度に半減期補正し、各水域間の変動を比較した。そのグラフを、50(mm/d)を超える日降雨強度(以下、R24と記す)の棒グラフとともにFig.4に示す。これらの変動をもたらした最も可能性の高い要因は降雨が考えられる。そこで、R24との関係を調査した。降雨は涸沼から約2km 東側に位置する大洗工学センター構内に設

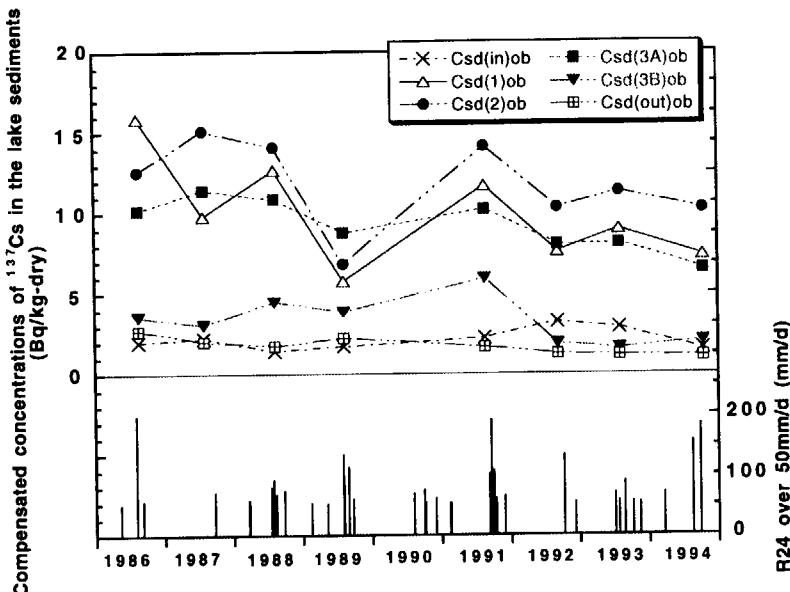


Fig.4 ^{137}Cs concentrations of the sediments compensated physical decay in the lake Hinuma and rainfall intensities over 50mm/d observed at 2km east

た。Fig.2、3の上流部堆積物中 ^{137}Cs 濃度が中央部、下流部より高いのは、試料を採取したのが1986年8月20日であるので、後で詳細に述べる降雨状況等を勘案すると切尔ノブイル事故の影響と推察された。1986年以降の ^{137}Cs の大気降下量は増加していないので各水域の堆積物中 ^{137}Cs 濃度は、Fig.3に示した様に変動しているものの長期的には減少傾向を示した。しかし、Fig.2、3の各水域間の経年変動を詳細に比較すると堆積物中 ^{137}Cs 濃度の減少は一様ではない。そこで各水域における1986年以降の各堆積物

中 ^{137}Cs 濃度を1986年8月20日時点の濃度に半減期補正し、各水域間の変動を比較した。そのグラフを、50(mm/d)を超える日降雨強度(以下、R24と記す)の棒グラフとともにFig.4に示す。これらの変動をもたらした最も可能性の高い要因は降雨が考えられる。そこで、R24との関係を調査した。降雨は涸沼から約2km 東側に位置する大洗工学センター構内に設置されたマス転倒式雨量計で連続観測した。R24が50(mm/d)を超える強い降雨は、切尔ノブイル事故の影響により ^{137}Cs の大気降下量が増加した1986年4月から堆積物を採取した同年8月20日までの間に、5月14日の51(mm/d)、8月3日の198(mm/d)の計2回発生した。その後、1986年から1987年の堆積物採取前日までの間では50(mm/d)を超える降雨は、57.5(mm/d)の1回、1987年から1988年では71.5(mm/d)、

Table.1 Relationship between fluctuation patterns of ^{137}Cs concentrations in the sediments and rainfall intensities over 50mm/d observed at 2km east

Period	Csd(in) _{ob}	Csd(1) _{ob}	Csd(2) _{ob}	Csd(3A) _{ob}	Csd(3B) _{ob}	Csd(out) _{ob}	R24 >50mm/d		
	No.of Rainfall	Ave. (mm/d)	Max. (mm/d)						
86.4 - 86.8							2	125	198
86.8 - 87.8	→ ↘ ↗ ↗ ↘ ↘						1	-	57.5
87.8 - 88.8	→ ↗ ↘ ↘ ↗ →						4	76	93
88.8 - 89.8	→ ↘ ↘ ↘ ↘ ↗						6	78	133.5
89.8 - 91.8	↗ ↗ ↗ ↗ ↗ →						7	70	113
91.8 - 92.9	↗ ↘ ↘ ↘ ↘ →						6	96	191
92.9 - 93.8	→ ↗ ↗ → → →						4	78	78
93.8 - 94.10	↘ ↘ ↘ ↘ ↗ →						6	102	184

note ↗ : increase ↘ : decrease → : constant

59(mm/d)、80(mm/d)、93(mm/d)の計4回、1988年から1989年は68.5(mm/d)、74.5(mm/d)、53(mm/d)、52(mm/d)、133.5(mm/d)、83.5(mm/d)の計6回であった。これらの降雨状況と各水域の堆積物中 ^{137}Cs 濃度の変動との関係をまとめるとTable.1となる。Fig.4及びTable.1から以下のことが示唆された。

- 1) 1986年4、5月に Chernobyl 事故の影響により ^{137}Cs の大気降下量が増加し、その後の降雨、特に198(mm/d)の降雨時に流域に沈着した ^{137}Cs が流入河川経由で上流部に供給され、上流部堆積物中 ^{137}Cs 濃度が上昇した。しかし、1986年から1987年にかけては57.5(mm/d)の降雨が1回と強い降雨が無かつたため流域から上流部への供給量が減少するとともに、上流部堆積物中の ^{137}Cs が中流部、下流部Aに移動した。その結果、上流部堆積物中 ^{137}Cs 濃度は減少し、中央部と下流部Aの堆積物中 ^{137}Cs 濃度は上昇した。
- 2) 1987年から1988年は、50(mm/d)を超える降雨が4回あったことから、流域の ^{137}Cs が流入河川経由で上流部に供給され上流部の ^{137}Cs 濃度が再度上昇した。しかし、降雨による湖水流量率の増加も同時に繰り返し発生したため、1987年に ^{137}Cs 濃度が上昇した中央部と下流部A堆積物から下流部Bへの ^{137}Cs の移動が発生し中央部と下流部A堆積物の ^{137}Cs 濃度が低下した。
- 3) 1988年から1989年は、50(mm/d)を超える強い降雨が6回と1987年から1988年の期間よりさらに多く発生し、かつ、R24が最大133.5(mm/d)と100(mm/d)を超えたことから、降雨毎に流域から供給された ^{137}Cs も上流部に留まることなく中央部、下流部へと順次移行したことにより、各水域堆積物中 ^{137}Cs 濃度は全て低下した。
- 4) 1989年から1991年の2年間は、期間内最大のR24である113(mm/d)の降雨を記録したのが1989年の堆積物採取日の16日後の同年8月27日であり、その後のほぼ2年間は

100(mm/d)を超える降雨は無く55(mm/d)～75.5(mm/d)の範囲であった。特に、1989年から1990年前半と1991年前半には50(mm/d)を超える降雨が53.5(mm/d)の1回しか無かった。このため1989年8月27日の113(mm/d)の降雨以降に流域から¹³⁷Csが徐々に流入し上流部に供給された。その後堆積物中の¹³⁷Csの排出を促す強い降雨が無かったので各堆積物からの¹³⁷Csの流出量は小さく、1991年の堆積物中¹³⁷Cs濃度が1989年より増加した。

以上から、涸沼堆積物中の¹³⁷Csは主に降雨により流入河川を経由して上流部に供給され順次下流側に移動し排出される。降雨が殆ど無ければ上流部の¹³⁷Cs濃度は低下傾向となる。一方、R24が100(mm/d)以下で、かつ、間隔をおいて数回発生した場合は、流入フラックスが流出フラックスを上回り上流部、中央部を中心に堆積物中¹³⁷Cs濃度が上昇する。しかし、100(mm/d)以上の降雨が短期間に集中して発生した場合は、上流部も含め中央部、下流部全域の堆積物から¹³⁷Csの再浮遊が活発となり、流出フラックスが流入フラックスを上回り¹³⁷Cs濃度は減少すると推察された。

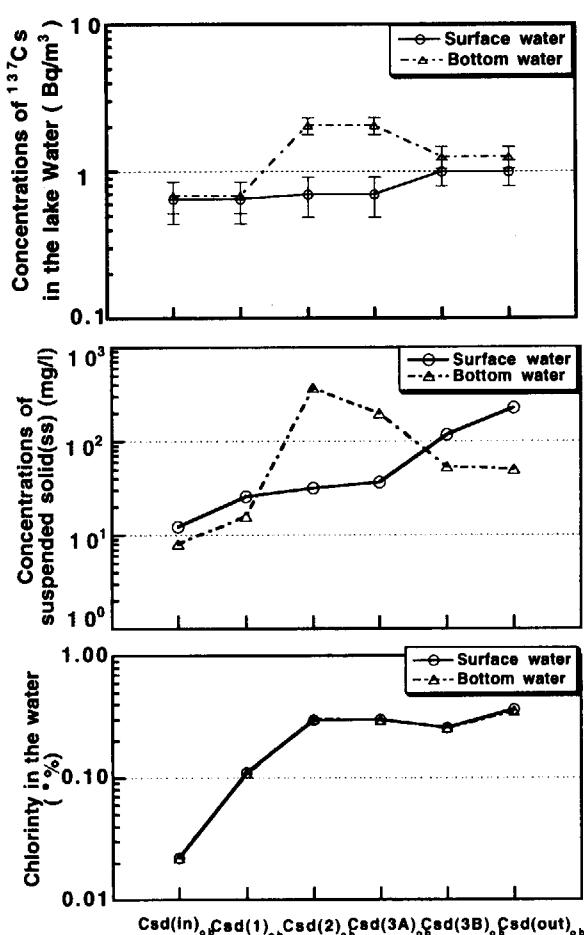


Fig. 5 The distribution pattern of ¹³⁷Cs in the sediments in comparison with that of suspended solid (SS) and chlorinity observed in the lake Hinuma

2.2 湖水中¹³⁷Cs の形態

湖水中¹³⁷Csの形態を推定するため表層と底から約50(cm)以内(以下底層という)の湖水を採取、¹³⁷Cs濃度、浮遊固体物質(SS)濃度及び塩素量を測定し、各々の水域間分布を比較した。その結果をFig.5に示す。湖水中¹³⁷Cs濃度の分布はSS濃度分布に近似していた。¹³⁷Cs、SSとともに底層濃度は中央部が上流部と下流部より高く、また、表層濃度は上流部、中央部、下流部と下流側へいく程高かった。この結果、堆積物の再浮遊現象が湖水中¹³⁷Cs濃度の変動に強い影響を及ぼしていることが示唆された。また、同一堆積物中の¹³⁷Cs濃度と⁹⁰Sr及び^{239,240}Pu濃度との相関関係を調べた。その結果をFig.6に示す。

淡水系では可溶性成分が多い⁹⁰Srとは相関が無く、不溶性成分が多い^{239,240}Puと相関があった。以上のことから、湖水中¹³⁷CsはSSと同一挙動をすることが示唆された。

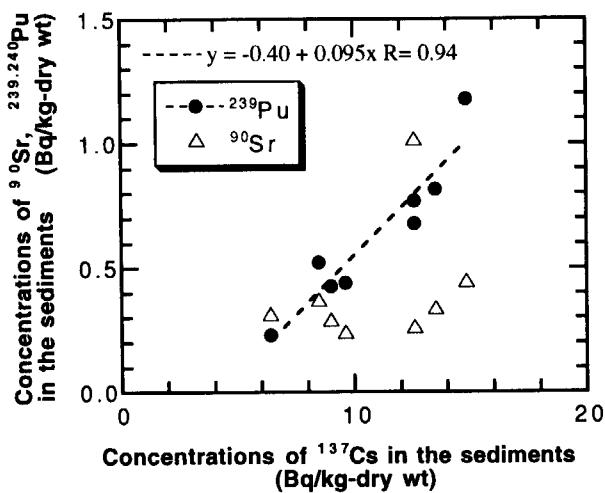


Fig.6 Relationship between ^{239,240}Pu, ⁹⁰Sr concentrations and ¹³⁷Cs concentrations in the sediments

3. 移行モデルの構築²⁾

モデルの詳細な構成は、参考文献2)に示したので参照されたい。ここでは、本モデルの全体構成と、特に上記観測データに基づくR₂₄の増加による¹³⁷Csの流入フラックスの増加現象のモデル化、並びに、R₂₄の増加による湖水流量率：Qの増加とそれに起因する底泥の巻き上げにともなう堆積物中¹³⁷Cs濃度の変動のモデル化について主に記述する。

3.1. モデルの全体構成

Fig.7に示す様に涸沼各水域を流域：S_f、湖水：L_(i)、表層堆積物：S_{sdL(i)}、深層堆積物：S_{sdd(i)}の各コンパートメントに区分し次の(1)～(5)式で表した。コンパートメント間の核種の移行速度定数は、1)流域及び湖面への核種の直接沈着：r_fA_{eff}、r_fA_{L(i)}、2)流域から流入河川経由での湖水への核種の流達：f_dS_f、3)流域土壤中の核種の放射性崩壊： λ_{S_f} 、4)流域土壤から深層への核種の地中移行： $\lambda_{R1}S_f$ 、5)湖水中核種の水域間移行：K_{e(i, i+1)}、6)湖水中核種の沈降：P_{sd(i)}、7)堆積物から湖水への核種の再浮遊：E_{sd(i)}及び掃流：Q_{B(i-1, i)}、Q_{B(i, i+1)}、8)湖水中での核種の放射性崩壊： $\lambda_{L(i)}$ 、9)表層及び深層堆積物から下層への核種の地中移行： $\lambda_{R2}S_{sdL(i)}$ 、 $\lambda_{R2}S_{sdd(i)}$ 、10)表層及び深層堆積物中の核種の放射性崩壊： $\lambda_{S_{sdL(i)}}$ 、 $\lambda_{S_{sdd(i)}}$ 、11)海の干満に伴う湖水の流出及び逆流（遡上流）、等を考慮して定めた。また、魚類中核種フラックス：F_{fish}については、摂取経路をエラ：R_p及び経口：U_fに、排泄過程を短期成分：E_{f1}と長期成分：E_{f2}に区分して表した。

$$\frac{dS_f}{dt} = r_f A_{eff} - f_d S_f - \lambda S_f - \lambda_{R1} S_f \quad (1)$$

$$\frac{dL(i)}{dt} = r_f A_{L(i)} + f_d(i) S_f - K_e(i \rightarrow i+1) - P_{sd(i)} + E_{sd(i)} - \lambda L(i) \quad (2)$$

(f_d(i) ≠ 0)

$$\frac{dS_{dL(i)}}{dt} = P_{sd(i)} - E_{sd(i)} + q_{B(i-1 \rightarrow i)} - q_{B(i \rightarrow i+1)} - \lambda_{R2} S_{dL(i)} - \lambda S_{dL(i)} \quad (3)$$

$$\frac{dS_{dd(i)}}{dt} = \lambda_{R2} S_{dL(i)} - \lambda_{R2} S_{dd(i)} - \lambda S_{dd(i)} \quad (4)$$

$$\frac{dF_{fish}}{dt} = U_f + R_p - E_{f1} - E_{f2} - \lambda F_{fish} \quad (5)$$

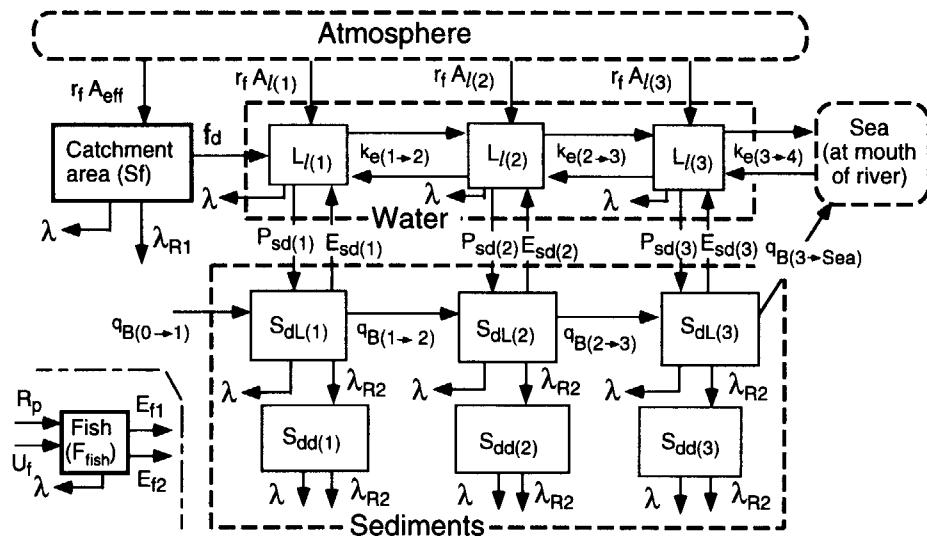


Fig.7 Schematic flow diagram of ^{137}Cs transfer model in the lake system

3.2. 流域から湖沼への核種の移行における降雨強度の影響

流域に沈着した ^{137}Cs の大部分は、主に、土壤粒子とともに流域表面での移動を繰り返しながら流入河川に達し、その後 ^{137}Cs は、河川水とともに湖沼に運ばれると仮定しモデル化した。流域表面での移動は一定の移動速度を仮定し物理学的半減期の補正を実施した。

流域表面での移動により流入河川に到達した ^{137}Cs は、流入河川を河川水とともに湖水へ移行する。そこで、 ^{137}Cs は、河川における汚濁負荷量の評価式（流達率=流達負荷量／流域内総排出負荷量）を参考³⁾に、流域から湖沼への ^{137}Cs の流達フラックス : $L_s(\text{Bq}/\text{s})$ を流域の ^{137}Cs 量 : $S_f(\text{Bq})$ で除した値で評価する。この値を以下流達係数 : $f_d(1/\text{s})$ と呼び、次の (8) 式で表わした。

$$f_d = \frac{L_s}{S_f} \quad (6)$$

一方、降雨量と L_s の関係は、一般的に $L_s \propto Q^b$ 形で表される³⁾。 Q' は流出高 (mm/s) であり、 b は 0.2~3 程度の定数である。 Q' を降雨時の流入河川水の流量率 (m^3/s) Q で表し、(6) 式に代入すると、 f_d は、(7-1) 式、比例定数 : k_c は(7-2) 式で表される。

$$f_d = k_c Q^b \quad (7-1)$$

$$k_c = \frac{L_s}{S_f Q^b} \quad (7-2)$$

また、Qは、洪水ピーク流量予測で用いられる「合理式」⁴⁾を参考に(8-1)式で表す。

$$R_{24} \geq R_w : Q = k_s f_M A_f R_{24} \times 10^3 + Q_0 \quad (8-1)$$

A_f ：流域面積、 f_M ：雨水のピーク流出係数、 k_s ：単位換算係数(1.157×10^{-5} 日/秒)用いる。雨水は、降雨強度が小さい場合は地上の植物等に遮断される。そこで、本モデルでは、Qは日降雨強度： R_{24} が一定の値 R_w 以下では増加しないとして(8-2)式の初期条件を導入した。

$$R_{24} \leq R_w : Q = Q_0 \quad (8-2)$$

流域から湖沼への雨水の到達時間は、流入河川の長さ(流路長)及び流路勾配に応じて遅れることが知られておりこれを考慮した。

3.3. 底泥の巻き上げに伴う堆積物中¹³⁷Csの再浮遊

湖沼中央部の堆積物は黒色で微細な泥状である。このため粒子間には粘着力が働く。堆積物の再浮遊の主要な成分は底泥の巻き上げによると考えられる。底泥の巻き上げは、流れが湖底に与える剪断力： $\tau_{b(i)}$ が限界掃流力： $\tau_{ce(i)}$ を超えた時に急激に発生すると報告されている^{5) 6) 7)}。そこで、次の(9)式で堆積物の再浮遊量を、(10)式で堆積物に吸着して再浮遊する¹³⁷Csの再浮遊フラックス： $E_{sdss(i)}$ を求めることとした。なお、 $E_{r(i)}$ ：堆積物iにおける底泥の巻き上げ量、 $\alpha_{(i)}$ ：底泥の巻き上げ係数、 b_s ：係数、 $A_{b(i)}$ ：湖底iの面積、 $C_{sdLss(i)}$ ：表層堆積物iにおける吸着成分の¹³⁷Cs濃度を表す。

$$E_{r(i)} = \alpha_{(i)} \left(\frac{\tau_{b(i)}}{\tau_{ce(i)}} - 1 \right)^{b_s} A_{b(i)} \quad (9)$$

$$E_{sdss(i)} = C_{sdLss(i)} E_{r(i)} \quad (10)$$

4. 移行モデルの検討結果

4.1. ¹³⁷Cs降下量(r_f)と湖水及び堆積物中¹³⁷Cs濃度

R_{24} を0(mm/d)、¹³⁷Csの降下量： r_f を堆積物中¹³⁷Cs濃度がほぼ一定に推移する 10^5 (Bq/m²/d)に設定し30日間隔で1日のみ各々 1×10^6 (Bq/m²/d)、 1×10^7 (Bq/m²/d)、 5×10^7 (Bq/m²/d)、 1×10^8 (Bq/m²/d)に増加させた場合の湖水及び堆積物中¹³⁷Cs濃度の変化をFig.8とFig.9に示す。なお、湖水中¹³⁷Cs濃度(以下、上流部： $C_{w(1)}$ 、中央部： $C_{w(2)}$ 、下流部： $C_{w(3)}$ と記す)の初期値は各水域とともに 1 (Bq/m³)、堆積物中¹³⁷Cs濃度の初期値は、上流部： $C_{sdL(1)}=12$ (Bq/kg)、中央部： $C_{sdL(2)}=13$ (Bq/kg)、下流部： $C_{sdL(3)}=11$ (Bq/kg)と設定した。湖水中¹³⁷Cs濃度は、 r_f が 1×10^6 (Bq/m²/d)では殆ど上昇せず、 1×10^7 (Bq/m²/d)以上で一時的に上昇し、10日～15日後に上昇前の濃度に戻った。湖水中¹³⁷Cs濃度の一時的上昇は、 r_f が 1×10^7 (Bq/m²/d)では各水域の濃度に殆ど差は生じなかつたが、 5×10^7 (Bq/m²/d)、 1×10^8 (Bq/m²/d)では $C_{w(1)}$ が $C_{w(2)}$ と $C_{w(3)}$ より大きくなつた。特に、 1×10^8 (Bq/m²/d)では $C_{w(1)}$ が約40(Bq/m³)に上昇したのに対して $C_{w(2)}$ は約30(Bq/m³)程度の上昇にとどまつた。

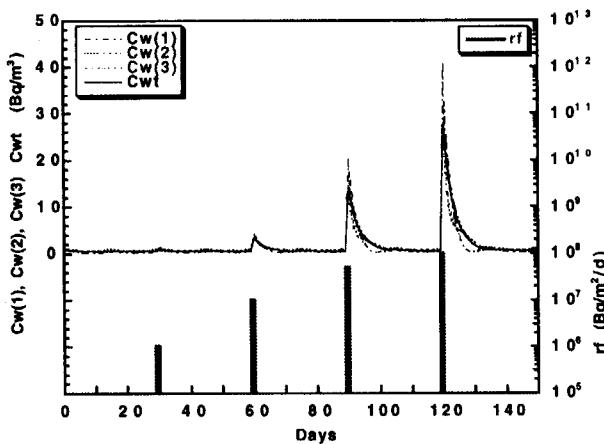


Fig.8 The variations of calculated concentration of ^{137}Cs in the lake water to the temporary depositions(rf's) of ^{137}Cs in the model. $C_{\text{w}}(1)$: Conc. of ^{137}Cs at the up-stream zone, $C_{\text{w}}(2)$: Conc. of ^{137}Cs the central zone, $C_{\text{w}}(3)$: Conc. of ^{137}Cs the down-stream zone

堆積物中 ^{137}Cs 濃度の上昇は、Fig.9に示す様に各水域ともにほぼ同傾向の上昇を示したが、詳細には $C_{\text{sdL}}(2)$ の上昇率が $C_{\text{sdL}}(1)$ と $C_{\text{sdL}}(3)$ の上昇率より大きい値を示した。

4.2 日降雨強度(R_{24})と湖水及び堆積物中 ^{137}Cs 濃度

r_f を一定 ($1 \times 10^5 \text{Bq}/\text{m}^2/\text{d}$) とし、 R_{24} を 1 日だけ 30、 50、 100、 200、 300mm/d と変化させた場合の湖水及び堆積物中 ^{137}Cs 濃度について計算した。計算結果を Fig.10、 11 に示す。湖水中 ^{137}Cs 濃度の一時的上昇は、 300mm/d 降雨時でも最大 $5(\text{Bq}/\text{m}^3)$ 程度であった。Fig.10 の各水域濃度の周期的変動は潮汐の影響によるものである。湖水中 ^{137}Cs 濃度は $100(\text{mm}/\text{d})$ では上流域 $C_{\text{w}}(1)$ が、 $200 (\text{mm}/\text{d})$ 以上では全水域で上昇した。この上昇は、 R_{24} の増大による流域からの流入フラックスの増加と底泥の巻き上げ量 : Er の増加によるものが主要な要因である。また、堆積物中 ^{137}Cs 濃度は、 Fig.11 に示す様に $100(\text{mm}/\text{d})$ では $C_{\text{sdL}}(1)$ が上昇、 $C_{\text{sdL}}(3)$ では減少傾向を示した。 R_{24} が増加すると $C_{\text{sdL}}(1)$ の濃度上昇は顕著になるが $C_{\text{sdL}}(3)$ の低下はそれほど大きくならなかった。 R_{24} の増加による $C_{\text{sdL}}(1)$ への流入フラックスの増加量が、湖水流量率の増加にともなう堆積物中 ^{137}Cs の中央部への移行量より勝るために $C_{\text{sdL}}(1)$ の濃度が上昇した。これに対して、 $C_{\text{sdL}}(3)$ の濃度低下が大きくなかったのは、 $C_{\text{sdL}}(2)$ から $C_{\text{sdL}}(3)$ への ^{137}Cs の移行量が $C_{\text{sdL}}(3)$ から流出河川への流出量と同レベルだったので相殺され $C_{\text{sdL}}(3)$ の濃度低下を抑制したからである。また、 $C_{\text{sdL}}(2)$ は殆ど変化しなかった。この結果は、 $50(\text{mm}/\text{d}) \sim 100(\text{mm}/\text{d})$ の降雨時には上流部の堆積物中 ^{137}Cs 濃度の上昇が中央部等より大きくなる澗沼の観測結果とほぼ一致しており、この現象についてはモデル上に表現できていると言える。しかし、 $100(\text{mm}/\text{d})$ 以上の激しい降雨が連続して続いた場合の観測結果では上流部堆積物を含め ^{137}Cs 濃度が全域で減少しており、Fig.11 のモデル計算結果と異なっていた。流域からの流入フラックスは、本モデルでは

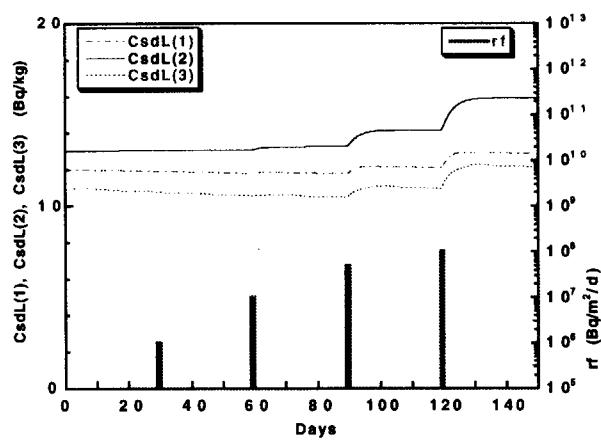


Fig.9 The variations of calculated concentration of ^{137}Cs in the Sediments to the temporary depositions(rf's) of ^{137}Cs in the model. $C_{\text{sdL}}(1)$: Conc. of ^{137}Cs at the up-stream zone, $C_{\text{sdL}}(2)$: Conc. of ^{137}Cs at the central zone, $C_{\text{sdL}}(3)$: Conc. of ^{137}Cs at the down-stream zone

(7-1)式に示した様にR₂₄の増加に伴って増大するが、観測結果では強い降雨が連続して発生した場合には¹³⁷Csの流入は一定のレベルで飽和し増加しない。さらに、堆積物からの底泥の巻き上げに伴う¹³⁷Csの流出が全水域で活発になり堆積物中¹³⁷Cs濃度が減少した。今後、(7-1)式の流達係数f_dに強降雨時の飽和因子等を組み込む必要性が示された。

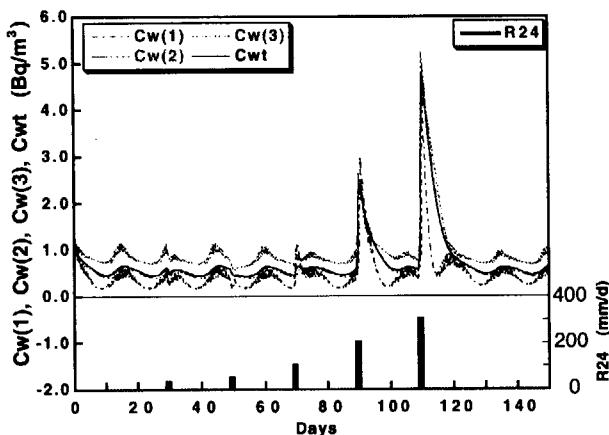


Fig. 10 The variations of calculated concentration of ¹³⁷Cs in the lake water to the temporary rainfall intensities(R₂₄) in the model.

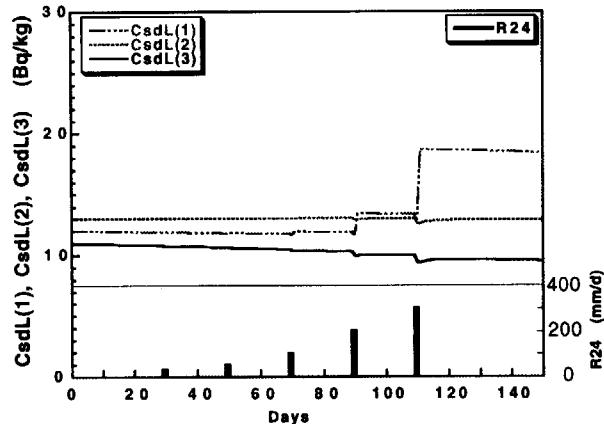


Fig. 11 The variations of calculated concentration of ¹³⁷Cs in the sediments to the temporary rainfall intensities(R₂₄) in the model.

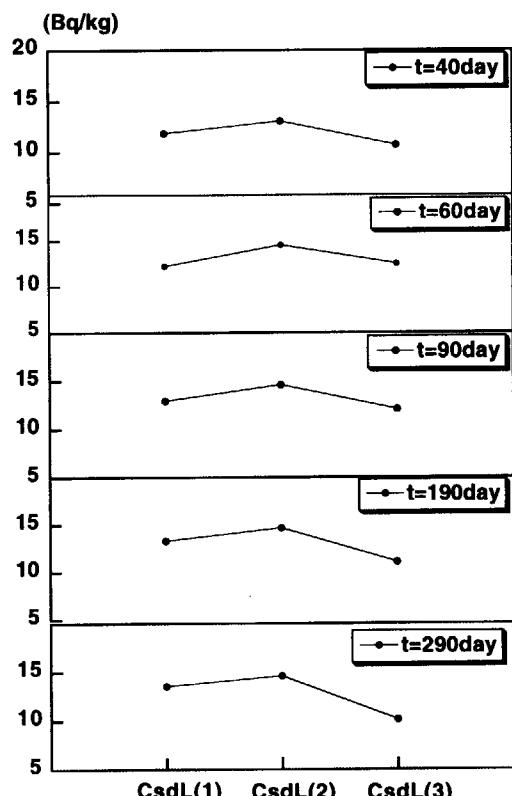


Fig. 12 Fluctuation of distribution patterns of calculated ¹³⁷Cs concentrations in the sediments at each water zones in the model.

4.3 堆積物中¹³⁷Cs濃度の各水域間分布

ケーススタディとしてチェルノブイル発電所事故後の降雨発生を模式的に計算した。r_fを一定値(1×10^5 Bq/m²/d)から計算開始50日後に1日のみ 1×10^8 (Bq/m²/d)まで上昇させ、その後、t=80日、180日、280日にR₂₄を一日のみ150 (mm/d)に変化させた場合の堆積物中¹³⁷Cs濃度の水域間分布の計算結果をFig.12に示す。t=40日はr_fの増加により、各水域堆積物中¹³⁷Cs濃度が上昇する。その後の降雨によりCsdL(1)は上昇するがCsdL(3)は減少する。CsdL(2)は殆ど変化しなかった。この結果は、Fig.4の100(mm/d)以下の降雨が間隔をおいて発生した場合の観測結果とほぼ類似していた。

4.4 1986年における湖水、湖底堆積物中¹³⁷Cs濃度の計算例

チェルノブイル発電所事故によりr_fが上昇した1986年の湖水と堆積物中¹³⁷Cs濃度の計算例

をFig.13及びFig.14に示す。 r_f は、R24と同様に涸沼から約2km 東側に位置する大洗工学センター構内に設置された水盤を用いて観測した。前述した様に8月3日に198(mm/d)と強い降雨があった。Fig.13でCw(1)が1Bq/m³以下から5Bq/m³近くまで上昇したが、全水域Cwtは約2.5Bq/m³の上昇にとどまった。一方、堆積物中¹³⁷Cs濃度は、 r_f の上昇に伴い全水域で¹³⁷Cs濃度が上昇したが、198(mm/d)の降雨時にはCsdl(1)が大きく上昇したものCsdl(2)とCsdl(3)は変化が殆ど無かった。

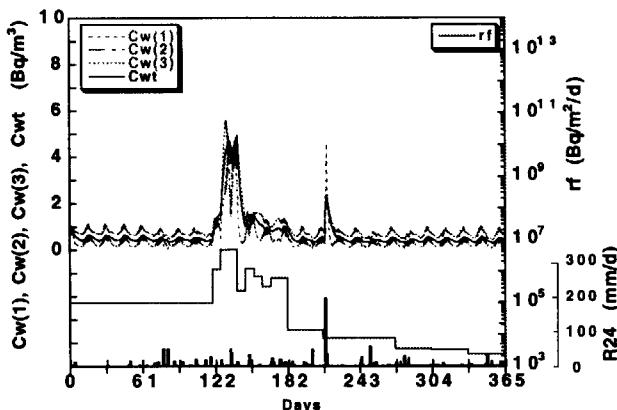


Fig.13 Simulation of concentration of ¹³⁷Cs in the lake water in the model in 1986

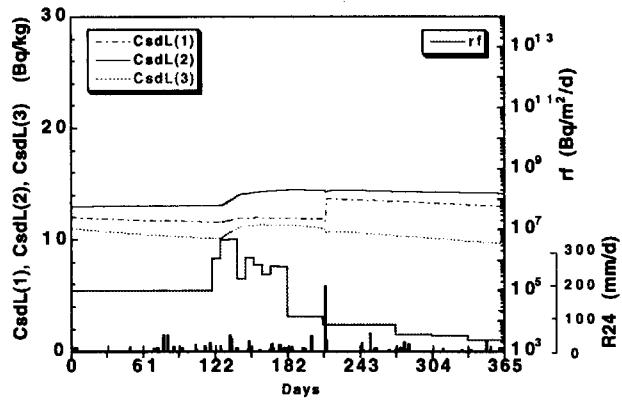


Fig.14 Simulation of concentration of ¹³⁷Cs in the sediments in the model in 1986

5.まとめ

実環境として涸沼における¹³⁷Csの移行とそれに及ぼす降雨等の影響を調査し、短期的変動が評価できる移行モデルを検討した。その結果をまとめると以下のとおりである。

涸沼の観測結果から以下のことが分かった。

1) 堆積物中の¹³⁷Csは主に降雨により流入河川を経由して上流部に供給される。日降雨強度が100(mm/d)以下で間隔をおいて数回発生した場合は、上流部、中央部等の上流水域側で堆積物中¹³⁷Cs濃度が上昇する。しかし、100(mm/d)以上の降雨が短期間に集中して発生した場合は、上流部、中央部、下流部各水域で堆積物中で¹³⁷Cs濃度が減少する。

2) 湖水中¹³⁷Cs濃度の分布はSS濃度分布に近似しており、¹³⁷Cs、SSとともに底層水濃度は中央部が上流部と下流部より高い、また、表層濃度は上流部、中央部、下流部の順に高くなる。堆積物中¹³⁷Cs濃度は、一般的に不溶性と報告されている^{239,240}Pu濃度と相関があったが、可溶性と言われている⁹⁰Srとは相関が無かった。

これらから、涸沼では、堆積物及び湖水中の¹³⁷Csの大部分が不溶性でSS等と同一挙動をとる。また、R24が弱く回数も少なければ堆積物中¹³⁷Cs濃度は減少傾向となる。50～100(mm/d)のR24では、流域から流入河川を経由して上流部に¹³⁷Csが供給され堆積物中¹³⁷Cs濃度は上昇する。しかし、100(mm/d)以上のR24では底泥の巻き上げ現象が全域で活発になり流出フラックスが流入フラックスを上回り、堆積物中¹³⁷Cs濃度が減少すると推察さ

れた。また、流域からの降雨時の流達係数を $f_d = K_c Q^b$ 式で、流量率Qを日降雨強度R24の関数($Q = K_s f_M A_r R_{24} \times 10^3 + Q_0$)としてモデル化しR24と関係を検討した。その結果は以下のとおりである。

- 1) r_f が増加すると、湖水中 ^{137}Cs は一時的に上昇した。 r_f が 1×10^8 (Bq/m²/d)では $C_w(1)$ が他の水域濃度より高く約 40 (Bq/m³)を示した。堆積物中 ^{137}Cs 濃度は、 $C_{sdL(2)}$ が他の水域より高い上昇率を示した。
- 2) R24を1日だけ30、50、100、200、300mm/dと変化させた場合の堆積物中 ^{137}Cs 濃度は、100mm/dでは $C_{sdL(1)}$ が上昇、 $C_{sdL(3)}$ が減少傾向を示した。R24が増加すると $C_{sdL(1)}$ の濃度上昇は顕著になるが、 $C_{sdL(3)}$ の低下はそれほど大きくならなかった。また、 $C_{sdL(2)}$ は殆ど変化しなかった。
- 3) r_f を一定 (1×10^5 Bq/m²/d)とし計算開始50日に1日のみ 1×10^8 (Bq/m²/d)まで上昇させ、その後、t=80日、180日、280日にR24を150(mm/d)に変化させた場合の堆積物中 ^{137}Cs 濃度のケーススタディ計算結果では、 r_f が上昇すると各水域堆積物中 ^{137}Cs 濃度はほぼ同時に上昇し、その後の降雨により $C_{sdL(1)}$ は上昇、 $C_{sdL(3)}$ は減少、 $C_{sdL(2)}$ は殆ど変化しなかった。この傾向は、100(mm/d)以下の降雨が間隔をおいて発生した場合の観測結果に近く、モデル上に同現象を表すことができた。
- 4) しかし、100(mm/d)以上の強い降雨時には上、中、下流部の全域で堆積物中 ^{137}Cs 濃度が減少する観測結果については、流入フラックスが飽和する、全水域の堆積物からの底泥の巻き上げにともなう ^{137}Cs の流出が活発になるなどが示唆されたが、今回のモデル上には十分表現できていなかった。今後の検討課題として確認できた。

参考文献

- 1) 武石 稔, 川村 将, 中島 尚子：“潤沼におけるフォールアウト核種の移行挙動に関する研究(I)”, 保健物理, 28, 283(1993)
- 2) 武石 稔, 篠原 邦彦, 中島 尚子：“潤沼におけるフォールアウト核種の移行挙動に関する研究(II)”, 保健物理, 32(1), 53(1997)
- 3) 土木学会編：水理公式集（昭和60年版）, 467(1994)
- 4) 吉野文雄, 米田耕蔵; 合理式の洪水到達時間と流出係数, 土木技術資料, 15-8, 379(1973)
- 5) 土木学会編：水理公式集（昭和60年版）, 467(1994)
- 6) 大坪国順, 村岡浩爾：“底泥の物性および限界掃流力に関する実験的研究”, 土木学会論文集, 365(II-4), 225(1985)
- 7) 平松和昭：“水質環境解析（その7）-濁り環境の解析手法-”, 農業土木学会誌, 62(4), 47(1994)



25. 河川による放射性核種の移行

松永 武

日本原子力研究所 環境安全研究部

河川流域における大気降下由来の放射性核種の移行挙動を研究した。河川流域の地表面土壌から河川経由による、それら核種の再移動の解析に主眼を置いた。対象放射性核種は国内の研究地域では大気圏内核実験起因の¹³⁷Cs そして自然起因の²¹⁰Pb、⁷Be である。久慈川流域では懸濁態の形態の重要性を定量的解析とともに示した。斐伊川流域とその流域内の宍道湖の系では、¹³⁷Cs の流出に関する経年的な解析を行い、大気から降下した¹³⁷Cs のその後の移行挙動を提示した。河川水中放射性核種の化学的存在形態の支配因子に関する研究を切尔ノブイル原子力発電所の近傍地域で行った。特に、水中に溶存する物質と放射性核種との結びつきに着目した。これまでに得られた結果から Pu、Am 同位体について分子量サイズの大きな溶存有機物との結合の卓越性が示唆される。

Migration of radionuclides through a river system

Takeshi MATSUNAGA

Department of Environmental Safety Research, Japan Atomic Energy Research Institute

Migration behavior of several atmospherically-derived radionuclides in a river watershed was studied. A main interest was in their relocation from the ground soil of the watershed to a downstream region through a river. Studied radionuclides are: ¹³⁷Cs generated by weapon tests in the atmosphere; ²¹⁰Pb and ⁷Be of naturally occurring radionuclides; ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am released by the Chernobyl nuclear power plant accident. Dominance of the form in suspended solid in river water (particulate form) was qualified for the radionuclides in the Kuji river watershed. An importance of discharge in flooding was also confirmed. A historical budget analysis for weapon test derived ¹³⁷Cs was presented for the Hi-i river watershed and its accompanied lake sediment (Lake Shinji). The work afforded a scheme of a fate of ¹³⁷Cs after falling on the ground soil and on the lake surface.

Several controlling factors, which can influence on the chemical form of radionuclides discharged to a river, were also investigated in the vicinity of the Chernobyl nuclear power plant. A special attention was paid on the association of the radionuclides with dissolved species in water. Preferential association of Pu and Am isotopes to a large molecular size of dissolved matrices, probably of humic substances, was suggested.

Keyword : Nuclear weapon tests, Chernobyl accident, Radionuclides, River watershed, Relocation, Discharge, Chemical form

1. はじめに

本研究は大気中に放出され、地表に降下・蓄積した人工放射性核種の長期的移行挙動の研究に寄与することを目的とし、大気から地表に降下したいくつかの放射性核種の河川流域における挙動を研究したものである。地表に蓄積した放射性核種の移行経路には地下への浸透、植物移行、再浮遊などいくつかの経路が存在する。こうした複数の経路の中で、雨水の作用などにより放射性核種が河川を経由して下流に再移動する経路には、下流域・河口域まで長距離を運ばれるという遠方移行の特性、また水利用による人との密接なアクセスの存在という特性がある。また、この再移動過程は大気-地表面-表面水系という広域的・長期的な移行過程の一部を担っている。このような認識の下に、河川における核種の移動担体、移動フラックス、河川水中における核種の存在状態を明らかにすることを目的に、以下に述べる一連の研究を行った。ここでは、大きく2つの事柄を述べる。1つは、河川流域における核実験フォールアウト由来の¹³⁷Csの移行特性を、福島県・茨城県を流れる久慈川の流域^{1), 2)}、そして島根県に位置する斐伊川流域³⁾で調べた事例である。2つには、河川水中放射性核種の存在形態を Chernobyl 地域の周辺河川で研究中の事例^{4), 5)}である。

2. 河川流域における¹³⁷Csの移行特性

2. 1 久慈川流域における¹³⁷Csの移行特性

(1) 実験方法

久慈川は北関東の福島県・茨城県を流れ、太平洋に注ぐ。その流域面積は1490 km²である(Fig.1)。この河川の下流(茨城県常陸太田市内)の地点で、河川水のサンプリングを行い、河川水中に溶存する¹³⁷Cs(溶存態)ならびに水中に浮遊する懸濁物質に含まれる¹³⁷Cs(懸濁態)を定量した。1987年から1988年にわたり延べ13回の野外調査を行った。

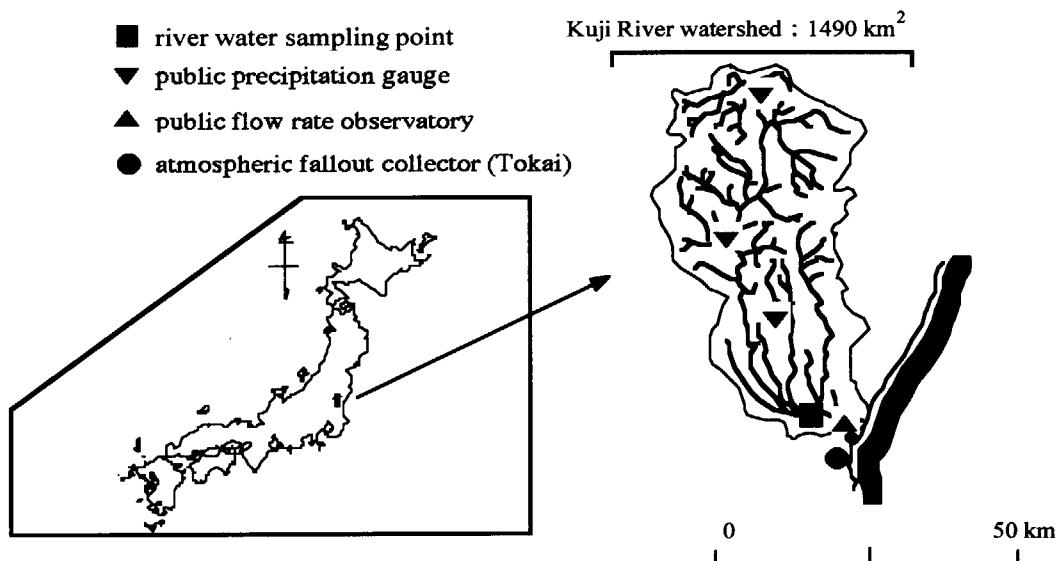


Fig. 1 Location of the Kuji River watershed and related sampling/observation points.

サンプリング地点は、河口から約 10 km の地点であり、海水塩分の影響は受けない一方、流域面積をほぼ (85%) 包含する地点である。川の流れの中心から、河川水をポンプで採水して、カートリッジフィルタ（孔径 1 μm）に通水し、懸濁物質（懸濁態放射性核種）を捕集した。次に、フィルタ通過後の河川水について溶存態の放射性セシウムをフェロシアン化コバルトカリウム添着吸着材で捕集した。この吸着材は、日本分析センターの樋口・野中⁶⁾により開発されたものである。

(2) 結果と考察

i) 河川水中の ^{137}Cs 濃度

久慈川河川水中の ^{137}Cs 濃度の定量結果を Fig.2 に示す。同図では、無降雨が続いた平水時の調査結果と降雨により増水が起きた後の連続した期間の調査結果を河川流量とともに示してある。この結果においては、平水時の濃度レベルは溶存態・懸濁態合わせて 0.1~0.3 mBq/l であり、水中濃度としては溶存態 ^{137}Cs 濃度の方が懸濁態 ^{137}Cs 濃度よりも多い。一方、増水時には両形態とも増加した。特に、懸濁態が顕著に増加し、溶存態を大きく上回る結果が見出された。この降雨増水時の流出増加は、 ^{137}Cs を蓄積している表土が雨水により浸食された後の河川への流入、また河床ならびに遊水地に堆積していた過去の浸食土壌の再移動の結果であると考えられる。こうした事象は容易に理解できる事柄であるが、ここでは、その定量的理義、すなわち、河川による核種 (^{137}Cs) の流出量の定量化を試みた。この評価の手順と評価結果を以下に述べる。

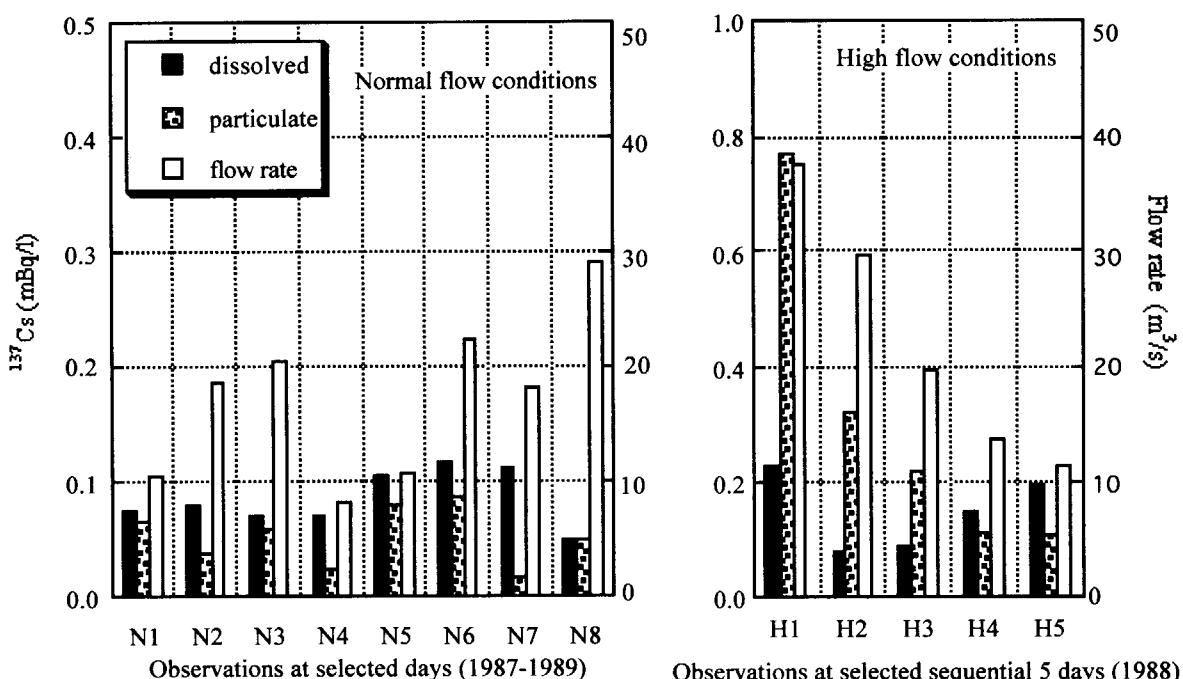


Fig.2 Radioactivity concentrations of ^{137}Cs in dissolved and particulated forms in Kuji River water under different flow rate conditions.

ii) 河川水中の¹³⁷Cs濃度

野外調査結果から¹³⁷Csの日流出量を算出し、河川流量との回帰分析を行うと両者は両対数軸上で、ほぼ直線で近似できることが分かった(Fig.3)。⁷Be、²¹⁰Pbの懸濁態についても、同様であった。つまり、経験的な評価式として、河川流量のべき乗の形式である種の放射性核種の流出量を近似できることが可能である。この流量のべき乗の形式は河川が運搬する鱗など他の化学物質の流出においてもしばしば成立するものである。

iii) ¹³⁷Csの移行収支

次に、流域全体を、一つのシステムとみなして¹³⁷Csの移行収支を考えた。まず、流域土壌における¹³⁷Cs蓄積量の推定を行った。大気からの¹³⁷Csの降下量に基づき、河川試料の採取を行った時期(1988)における累積降下量を流域土壌における蓄積量とした。大気圏内核実験が多く行われた1950年代後半から国際条約により核実験がほぼ停止される1962年までが、最も降下量の多い時代⁷⁾であり、この時代の降下が現在の蓄積量のほとんどの部分を構成している。気象研究所報告⁷⁾を利用して、野外調査実施時期の1988年での累積降下量を求めると3700MBq/km²となる。久慈川流域に近い東海村では1976年以降の観測値が得られており、これらの値は気象研究所の観測値とほとんど一致した。そこで、気象研究所による東京-つくばでの降下量を久慈川流域にも適用可能と考えて¹³⁷Csの流域蓄積量を3700MBq/km²と推定した。

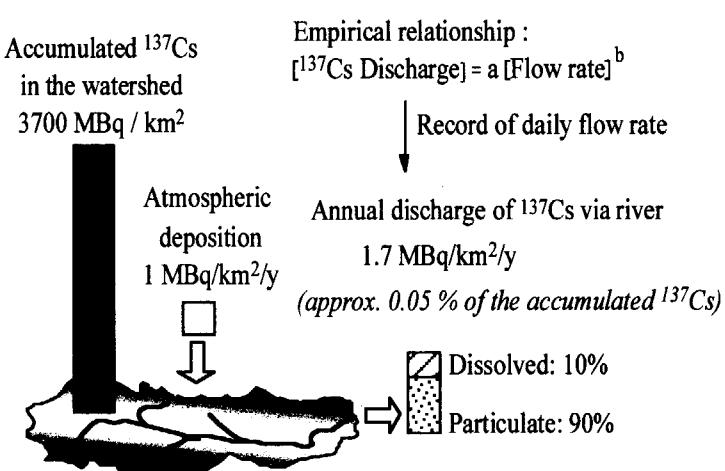


Fig.4 Scheme of annual budget of ¹³⁷Cs in the Kuji River watershed (1987-1988).

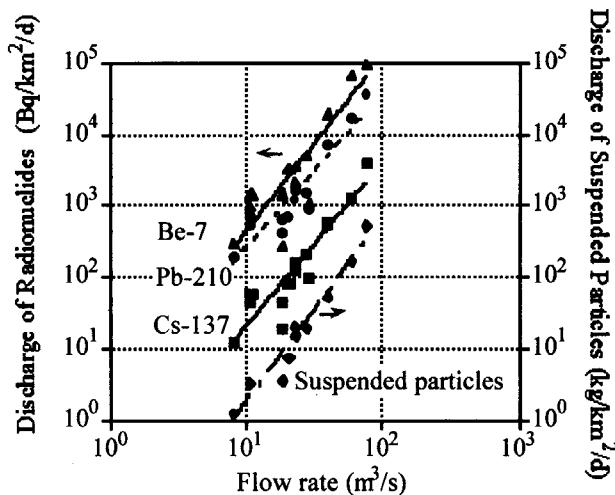


Fig. 3 Dependency of discharge of radionuclides and suspended particles on the river water flow rate

先に述べた核種流出量の経験式に年間の日流量記録を適用して、年間の流出量を求める。この野外調査実施期間(1987-1988)における¹³⁷Csの年間流出量は1.7MBq/km²と推定される。この年間流出量は、流域蓄積量推定値3700MBq/km²の約0.05%に相当する。その約90%が懸濁態の形で、残りの10%が溶存態の形と推定される。以上から、河川水中に浮遊する土壌粒子などの懸濁物質が¹³⁷Csの河川経由の移行媒体として重要であることが示された。懸濁物質の移行媒体としての重要性は、

^{137}Cs と同様に一般に土壤構成物質への吸着性の高い ^{210}Pb ならびに ^7Be についても成り立つものと考えられる。

2. 2 斐伊川流域における ^{137}Cs の移行

次に、島根県に位置する斐伊川流域での事例を述べる。久慈川流域の事例では、主に核実験に起因する大気降下 ^{137}Cs の現在の河川流出状況を調べた。この斐伊川流域では過去の状況の把握を試みた。この流域末端には宍道湖があり、湖底には流域表面土壤から流出した ^{137}Cs と湖面に降下した ^{137}Cs が蓄積している。そこで、その堆積物中の ^{137}Cs 濃度を調べ、年代付けを行い、年間堆積量の解析を行うことにより、斐伊川流域における ^{137}Cs の移行状況の時代的変遷を見出すことを試みた。

(1) 実験方法

斐伊川の流域図を Fig.5 に示す。斐伊川は、島根県の東部に位置し、その流域面積は 2070 km^2 である。その下流には、宍道湖（面積 79.7 km^2 、最大深度 5.5 m ）が位置している。宍道湖集水域は斐伊川流域のうち 915.3 km^2 を占めている。宍道湖の中央部で湖底堆積物を採取した（1994 年 7 月）。直径 11 cm のアクリルパイプにより、深度 44 cm までの柱状試料を得た。この試料を深さ方向 2 cm 区分で分割し、乾燥後、区分毎に均一に粉碎・混合した。その一部を分取して ^{137}Cs 、 ^{210}Pb の濃度をゲルマニウム半導体検出器で測定した。

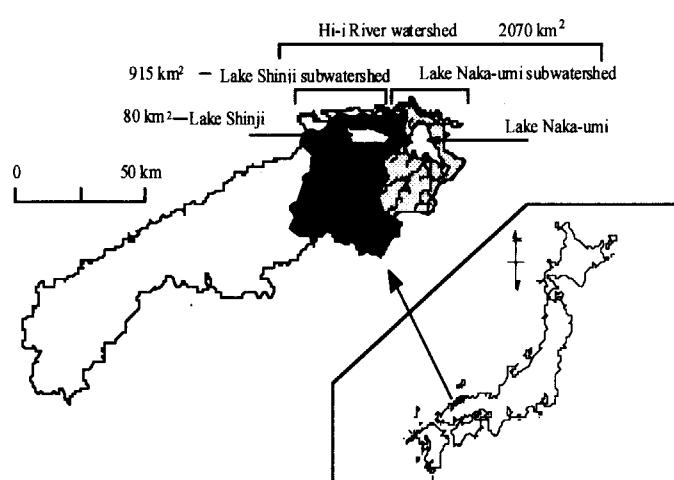


Fig.5 Location of the Hi-i river watershed and the Lake Shinji associated at the downstream region.

ける降下量データを用いて各年における累積降下量（放射性廻変考慮後）を求め、この量を斐伊川流域における ^{137}Cs の各年における蓄積量と考えた。

ii) 宍道湖湖底堆積物中の ^{137}Cs の堆積速度

湖底堆積物中の ^{137}Cs の鉛直分布を Fig.6 (a) に示す。1960 年代前期に相当する層に、核実験フォールアウトのピークが見出された。この堆積物試料ではこのピークが明瞭であることから、採取地点では堆積物の擾乱は極めて少なかったと推察される。堆積物試料中の ^{210}Pb 濃度の深度による変化

(2) 結果と考察

i) 斐伊川流域における ^{137}Cs の蓄積量

まず、ソースタームとして、島根県における ^{137}Cs 降下量を推定した。国内における放射性塵埃の降下量は科学技術庁の施策により、各都道府県で測定されており、結果は（財）日本分析センターでデータベースに構築されている。島根県地方では 1971 年以降、観測が継続されている。そこで 1970 年以前の年代については日本分析センターの協力を得て、東京、鳥取での年降下量データから推定した。こうして構成した島根県にお

(濃度勾配) から堆積速度⁸⁾が求められている⁹⁾。この堆積速度を用いて堆積物の各区分試料の堆積年代を推定し、この推定年代を用いて1年ごとの¹³⁷Csの堆積速度を算出した(Fig.6 (b))。

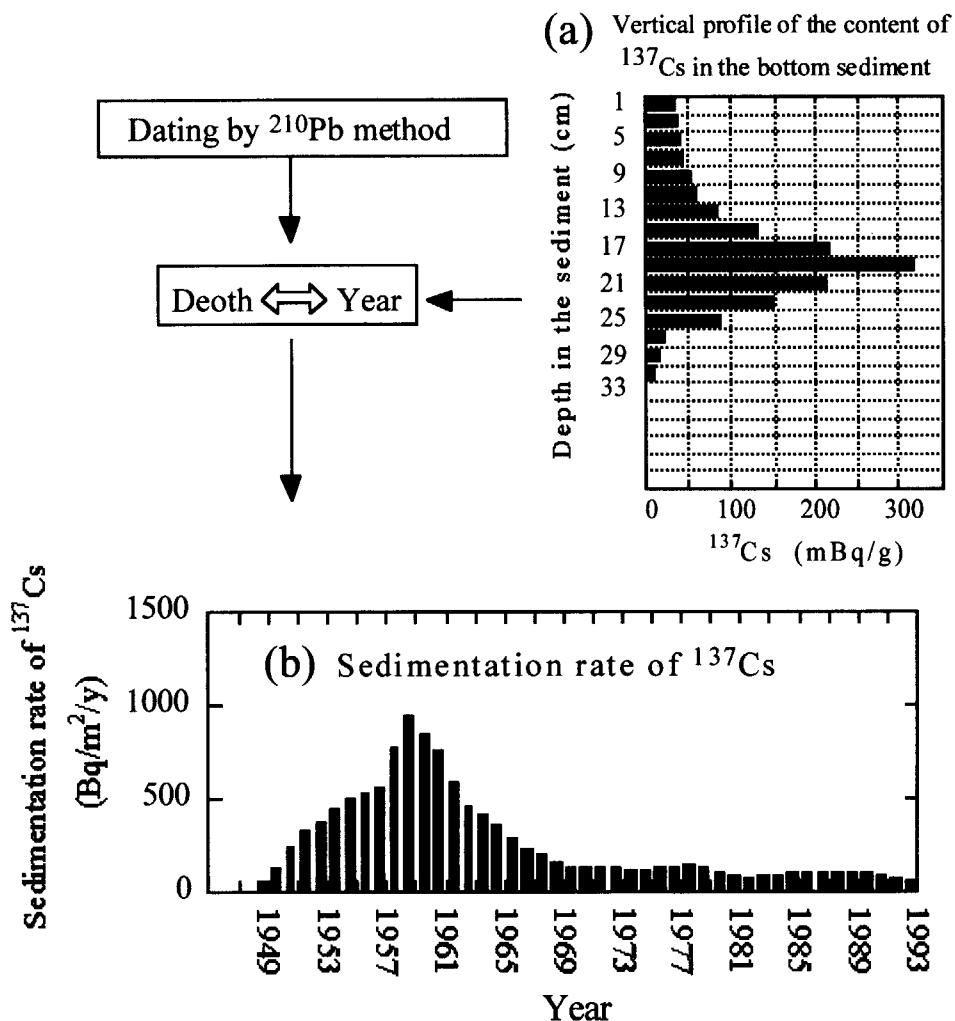


Fig.6 Analytical procedure for elucidation of the sedimentation rate of ^{137}Cs in the Lake Shinji.

iii) 宍道湖湖底への ^{137}Cs の供給過程解析

宍道湖湖底への ^{137}Cs の供給過程解析を通じて斐伊川-宍道湖水系における ^{137}Cs の移行収支を検討した。宍道湖堆積物への ^{137}Cs の供給を河川寄与と湖水面寄与の2つに分けて考えた。湖水面寄与とは、湖(宍道湖)水面に降下した ^{137}Cs の中で湖底堆積物に移行する部分である。本研究における評価期間(1954-1993)の中の最新年1993(堆積物採取を行った前年)の、流域蓄積量と湖底堆積物への供給量の比較から、この時点の河川寄与の割合を求めた。1993年の1年間で宍道湖全体量として 5×10^3 MBqの ^{137}Cs の堆積がある一方、大気降下量は約30MBqに過ぎず、この年代における宍道湖湖底への堆積はすべて流域河川からの寄与とみなすことができる。1993年における流域蓄積量

の総量は 3.4×10^6 MBq と推定されるので、河川経由の流入量は流域蓄積量の約 0.15% と推定される。

河川寄与の大きさが、過去においても流域蓄積量の 0.15% であったと仮定して、過去の年代における湖底への ^{137}Cs の供給状況を推定した。年代は、Fig.7 の横軸に示すように大きく 4 つに区切って考えた。湖水面全降下量のうち湖底堆積物に移行する割合については 2 つのケースを仮定した。1 つは 100% 堆積したとする場合であり、1 つは Chernobyl 事故の寄与から同割合を推定した場合である。Fig.7 上図は、湖底への供給量を河川寄与と湖水面寄与 (Case 1 : 降下量の 100% 堆積の仮定) に分けて推定した合算量と、実際の堆積物の解析から得られた量とを比較した結果を示している。この結果では、 ^{137}Cs の湖底堆積量観測値は中期の年代では河川寄与と湖水面寄与の推定値の合算量によりほぼ再現されているが、1950～1960 年代では、少し供給不足の結果になっている。

次に湖水面寄与を Chernobyl 事故の寄与の検討から湖水面全降下量のうち湖底堆積物に移行する割合を推定した場合 (Case 2) を述べる。Chernobyl 事故時の湖水面降下量と、同降下に基づくと推定される湖底堆積量の増加分とを比較すると、同事故由来降下量の約 40% が湖底に堆積したと推定することができる。この 40% という数値を用いて、湖底への ^{137}Cs の供給状況の評価を行った結果を Fig.7 下図に示す (Case 2)。この Case 2 では水面降下寄与を減ずるので、1950～1960 年代での湖底堆積量の供給不足は、Case 1 よりも、さらに大きい。

我々は、この 1950～1960 年代での供給不足に関して、次のような解釈を行っている。すなわち、その年代では河川寄与が、近年 (1980 年代以降) より大きかったのではないかと考える。1950～1960 年代は、頻繁に大気圏内核実験が行われたため降下量が多かった時代である。そのため雨水による再移動作用を最も強く受ける地表面土壤表面が最も ^{137}Cs 濃度が高かったのではないかと考えられる。また、土壤への降下後の土壤構成物質との (しばしば不可逆的な) 固定化も、現在に比較して進んでいなかったのではないかと推定される。つまり、論議中の供給不足を河川からの供給がより大きかったと考えることは合理的である。以上から、1950～1960 年代において、観測値と推定値との整合を図ると、この時代における河川経由による湖底堆積の寄与は、流域土壤に蓄積した ^{137}Cs の年間約 1% に達していた可能性が示唆される (Fig.7, Case 2)。

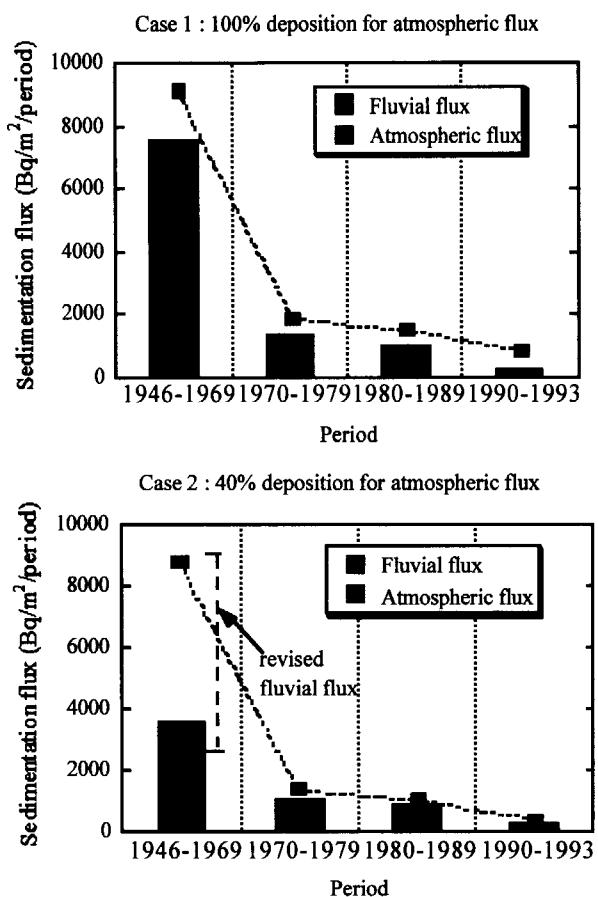


Fig.7 Estimation of respective contributions from fluvial and atmospheric fluxes of ^{137}Cs to the accumulation of ^{137}Cs in the bottom sediment of the Lake Shinji.

iv) 斐伊川-宍道湖水系における¹³⁷Csの移行収支

以上を総括すると、斐伊川-宍道湖のシステムでは¹³⁷Csについて以下のような収支を導くことが可能である（Fig.8）。湖底堆積への河川への流出寄与は近年では流域蓄積量の約0.15%と考えられる。 Chernobyl事故による降下量を手がかりに湖水面降下寄与を湖水面降下量の40%と仮定すると、1950-60年代では、河川寄与は近年より大きな1%程度と考えられる。年代による河川寄与の大きさの相違は、降下物の地表面土壌における埋没・固定化という“aging”的なためと考えている。

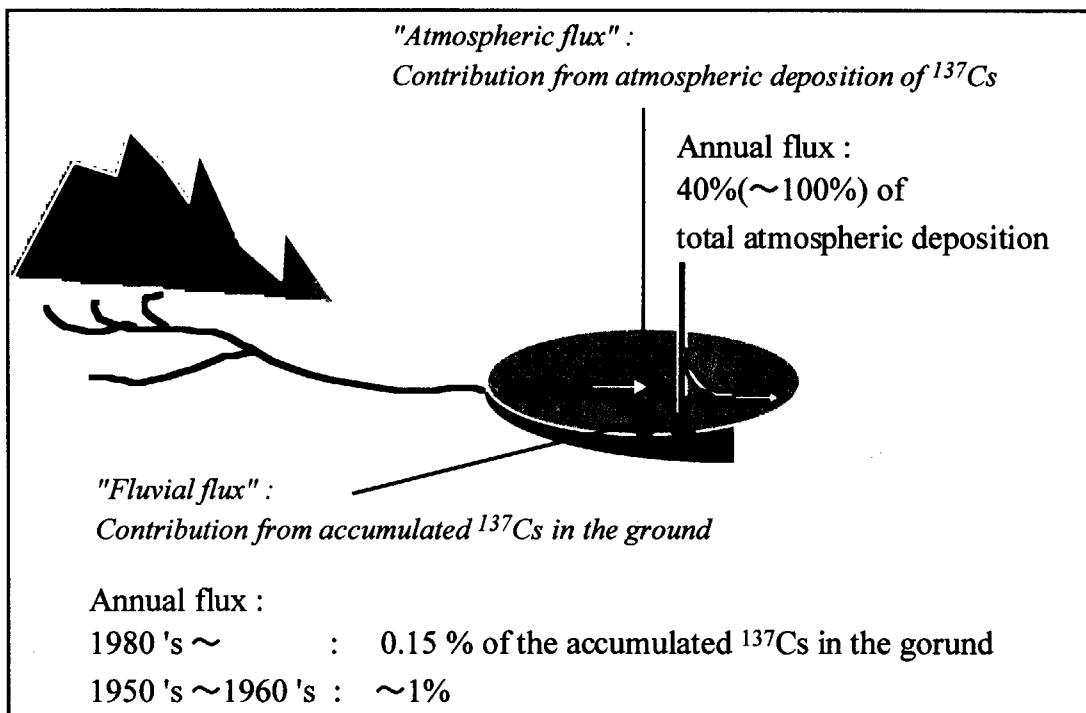


Fig. 8 Scheme of annual contributions of atmospherically-derived ¹³⁷Cs from fluvial and atmospheric fluxes to the bottom sediment of Lake Shinji in the Hi-i river watershed.

3. チェルノブイル地域の河川水系における放射性核種の存在形態

3. 1 実験方法

前節では、河川流域における放射性核種（おもに核実験フォールアウト起源の¹³⁷Cs）のマクロな移行収支を述べた。こうした収支の背後にある種々の反応機構にも、留意していく必要がある。土壌系・水系における放射性核種の固相・液相分配はマクロな移行を定めるに違いない1つの大きな要素である。この固相・液相分配の支配に関しては、種々の要因が知られている。我々は、実際の野外の水系環境において、環境要因が放射性核種の分配・移行をいかに規定しているかを知るために、チェルノブイル事故地域で研究を行っている。

Fig. 9 に、チェルノブイル事故地域周辺の河川水系と、我々の試料採取地点を示す。1986年に事故の起きたチェルノブイル原子力発電所は、プリピアチ川に面しており、この川から原子炉運転に必

重要な冷却水を得ている。このプリピアチ川ならびに周辺の支流と湖沼（1地点のみ）で、1996年から1998年にかけて各地点で1-3回、河川水を採取して、懸濁態と溶存態を分別して分析した。分析した放射性核種は¹³⁷Cs、⁹⁰Sr、^{239,240}Pu、²⁴¹Amそして一部の試料について²⁴⁴Cmである。

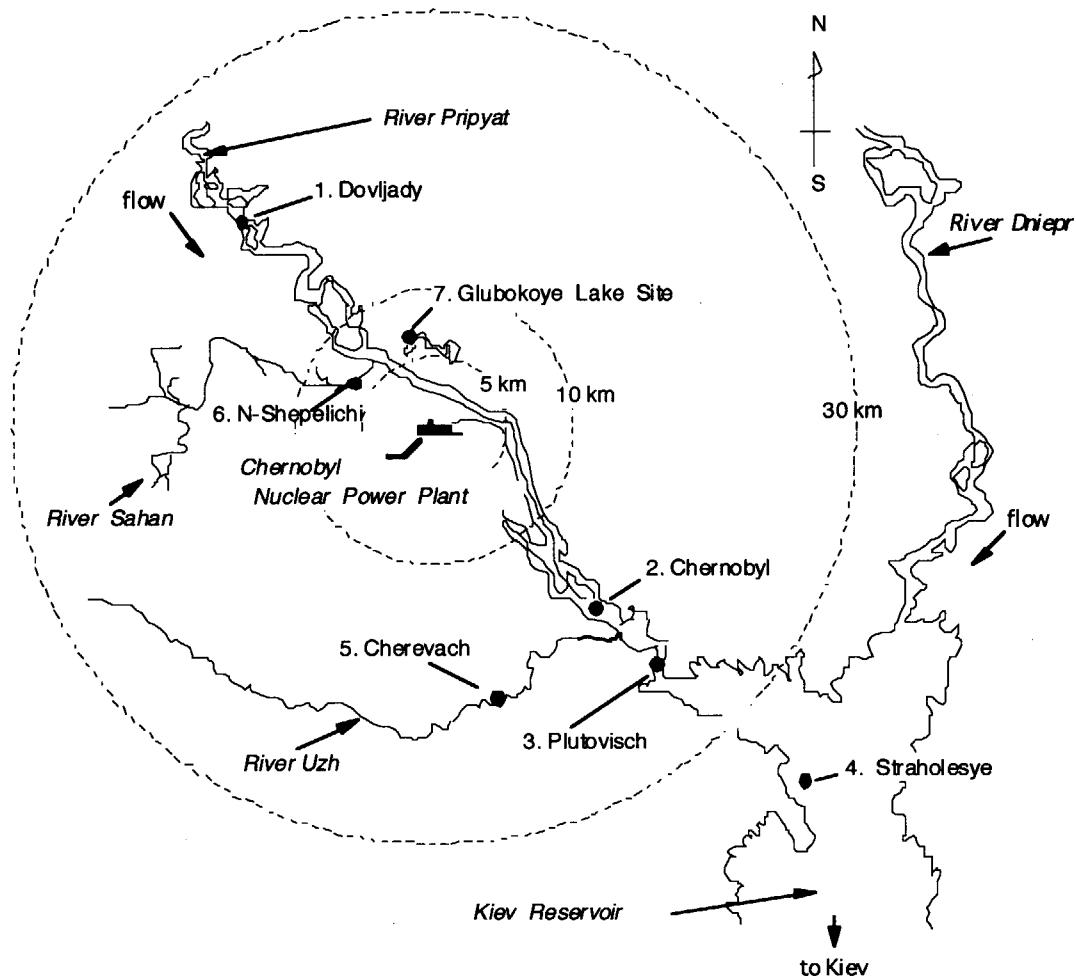


Fig. 9 The river system and the location of sampling points in the vicinity of the Chernobyl Nuclear Power Plant.

3. 2 結果と考察

i) 水中放射性核種の分配比

水中の懸濁態と溶存態との間での核種の分配比を検討した。各採水地点での分析結果を集約すると、^{239,240}Pu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cmの場合に最も分配比は大きく $10^5\text{-}10^6$ (ml/g) ((Bq/g)/(Bq/ml))であった。ついで¹³⁷Cs $1\sim 5 \times 10^4$ (ml/g)であり、⁹⁰Srでは最も小さな範囲 $10^3\text{-}10^4$ (ml/g)であった。これらの分配比はこれまでに核実験起因の放射性核種に対して河川・湖沼水で報告されている結果とほぼ一致する（ただし⁹⁰Srではより大きい）。チェルノブイル事故により環境中に放出された核種の形態は、事故地域近傍においては、ほとんどが原子炉内に存在した核燃料の細片であったと報告されている。事故後10-12年後にかけて採取したこれらの試料で、核実験起因フォールアウトと、同様の分配が見出されたのは着目すべき点である。チェルノブイル事故で環境放出直後は、放射性核種は燃料マトリクスに

閉じこめられ、独自の不動性を有していたと考えられる。特に揮散性の小さな⁹⁰Sr、Pu、Am、Cm同位体では、そうであったと考えられる。¹³⁷Csについては、揮散性が比較的大きいため、いったん揮散した後、他の飛散物質表面に沈着した形態と、燃料マトリクスに残ったままの形態の2つが存在したと報告されている。ここで見出された Chernobyl 事故核種（事故後 10-12 年後経過試料）と核実験起因フォールアウトとの淡水系中の分配比の一一致は、同事故での放出時の形態が事故後 10-12 年の間に環境中で変性を受けて、降下後 30-40 年を経過している核実験起因フォールアウトと類似の挙動を示すことを示唆していると考えられる。

ii) 溶存態・懸濁態放射性核種の存在形態

上述した見かけの分配比の核種間相違を理由づけし、より基礎的な反応機構によって核種の挙動を理解するため、また環境の条件が異なる場合の核種の挙動を予見するために、懸濁態と溶存態それぞれについて、さらにその存在形態研究を進めている。これまでに、溶存態については溶存する鉄水酸化物などの無機のコロイドや有機物との結びつきを限外ろ過の手法により調べた。この限外ろ過では分画分子量 10 万、1 万、1 千のフィルタを用いた。これらの分子量はあくまでも、操作便宜上の意味を持つものであり、実体上の分子量を意味しない。この分析において溶存核種の支持マトリクスとして念頭においている溶存物質は複合物であり、「分子量」を規定できる物質ではないことに留意が必要である。分析結果を Fig.10 に示す。⁹⁰Sr では「1 千」以下の分子サイズが主要な割合を有しており、単純に解離した Sr イオンとして存在している割合が多いことを示唆している。一方、Am、Pu では、より大きな分子量サイズの割合が多く、分子量サイズの大きな溶存物質が Am、Pu の支持体となっていることが示唆される。これまでの他の研究報告ならびに本研究における溶存元素分析結果を考慮すると、この大きな分子量サイズの溶存物質は腐植物質の一部ではないかと推定される。

懸濁態の核種の詳細分析については、懸濁物質自体の同定が必要である。そのため、フィルタ上に捕集して灰化物を得るのではなく、可能な限りそのままの形で懸濁物質試料を得るように、連続遠心器による捕集後に凍結乾燥を行う採取方法を導入した。こうして得た試料について、現在、種々の特性分析を進めている。

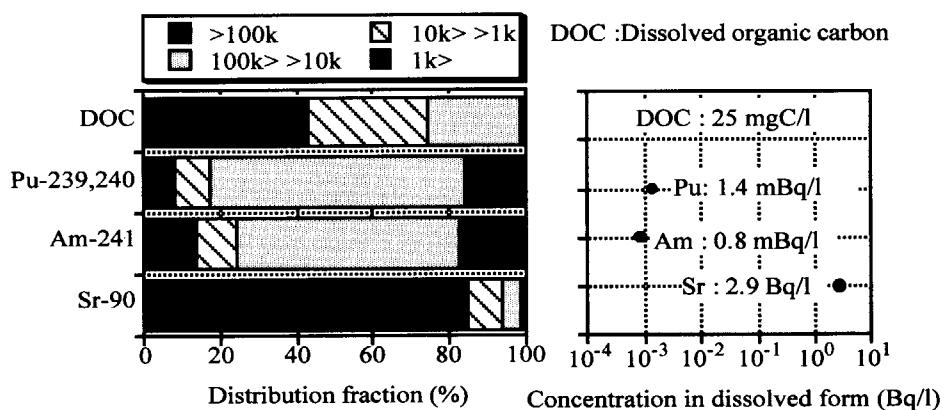


Fig.10 Size distribution of Chernobyl-derived radionuclides in dissolved forms (Matsunaga et al., unpublished). The figures of molecular sizes in the legend are operationally defined in the employed ultrafiltration procedure.

4. 結言

以上の結果は、もっぱら、野外試料の分析により得られた結果であるが、核種の移行挙動の予測、あるいは、観測環境と異なる自然条件での挙動推定には分析値の背後にある種々の反応機構の理解が重要である。今後、実験室系で確立された基礎的な反応理論、あるいはモデルによるアプローチを、野外観測系においてどう適用するかが、大変重要な課題と考えている。

付記

本報告は、日本原子力研究所 環境安全研究部 環境化学研究室が、これまでに行ってきた河川流域における放射性核種の移行挙動研究の一部を要約して紹介したものである。個々の研究についての実施者・成果の詳細については参考文献を参照されたい。なお、チェルノブイルにおける研究は日本原子力研究所とチェルノブイル国際研究センター（ウクライナ、CHESCIR/RADEK）との協力研究の下に行われている。

謝辞

本報告で述べた研究に関しては、次の方々・機関から御協力をいただいた。記して、感謝致します。
建設省常陸工事事務所。（財）日本分析センター。科学技術庁防災環境対策室。（財）放射線計測協会。三洋テクノマリン（株）。関根敬一（日本原子力研究所）。

参考文献

- (1) Matsunaga T., Amano H. and N. Yanase: Discharge of dissolved and particulate ^{137}Cs in the Kuji River, Japan, *Appl. Geochem.*, **6**, 159-167 (1991).
- (2) Matsunaga, T., Amano, H., Ueno, T., Yanase, N. and Y. Kobayashi, The role of suspended particles in the discharge of ^{210}Pb and ^7Be within the Kuji River watershed, Japan, *J. Environ. Radioactivity*, **26**, 3-17 (1995).
- (3) Matsunaga, T., Ueno, T., Chandradjith, R. L. R., Amano, H., Okumura, M. and H. Hashitani: A study on ^{137}Cs and mercury contamination in lake sediment caused by erosion of surface ground soil, In Proc. XIII Int. Symp. Environ. Biogeochem., 149, Monopoli (Bari), Italy, Sept.21-16 1997.
- (4) Matsunaga, T., Ueno, T., Amano, H., Onuma, Y., Watanabe, M., Nagao, S., Kovalyov, A.V., Tkachenko, Yu. V., Sukhoruchikin, A. K. and S.V.Kazakov : Migration Behavior of the Released Radionuclides in the river system in the exclusion zone of the Chernobyl Nuclear Power Plant, IAEA-TECDOC-964, 172-177 (1997).

- (5) Matsunaga, T., Ueno, T., Amano, H., Tkachenko, Yu., Kovalyov, A.V., Watanabe, M. and Y. Onuma: Characteristics of Chernobyl-derived radionuclides in particulate form in surface waters in the exclusion zone around the Chernobyl Nuclear Power Plants, *J. Contam. Hydrol.*, in press.
- (6) Higuchi H. and N. Nonaka In-situ sampling method of radionuclides in sea water. *Japan Chemical Analysis Centre Pub.* **10**, 65-71 (1985).
- (7) Meteorological Research Institute: Geochemical studies and analytical methods of anthropogenic radionuclides in fallout samples, Technical Reports of the Meteorological Research Institute No.36 (1996).
- (8) Wise, S. M.: Caesium-137 and Lead-210: A review of the techniques and some applications in geomorphology. In *Timescales in Geomorphology*, eds. R. A. Cullingford, D.A. Davidson & J. Lewin, John Wiley & Sons Ltd., 109-127 (1980).
- (9) Ueno, T., Amano, H., Chandrajith, R.L.R. and M. Okumura: Vertical distribution of radionuclides and mercury in Lake sediments, In *Proc. Int. Workshop on the Fate of Mercury in Gold Mining and Measures to Control the Environmental Pollution in Various Countries*, NIMD 001-1997, 52-60, National Institute for Minamata Disease (1996).

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名 称	記 号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換 算 表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(N\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)}(\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストーカス)}(\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
0.0980665	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
0.101325	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻¹	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻⁵	6.80460 × 10 ⁻⁵	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	I cal = 4.18605 J (計量法)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	= 4.184 J (熱化学)
9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	= 4.1855 J (15°C)	
3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	= 4.1868 J (国際蒸気表)	
4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS(仮馬力)	
1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻¹	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W	
1.60218 × 10 ¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270 × 10 ⁻¹⁰		1	100
3.7 × 10 ¹⁰	1	0.01	0.01	1	

照射線量	C/kg	R	線量当量	Sv	rem
	1	3876		1	100
	2.58 × 10 ⁻⁴	1			

(86年12月26日現在)

クロスオーバー研究シンポジウム 「放射性物質の環境移行研究の新たな展開」 報告集 1998年11月26日—27日、理化学研究所、和光市