

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。

01.10.-4 [技術情報室]

大気中放射性物質の広域挙動に関する調査研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

平成4年3月

財団法人原子力安全技術センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。
〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49

核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、限られた関係者だけに配布するものです。従って、その取扱には十分注意を払って下さい。なお、この資料の供覧、複製、転載、引用等には事業団の承認が必要です。また今回の配布目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

This document is not intended for publication. No public reference nor disclosure to the third party should be made without prior written consent of Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

本資料についての問合せは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団
技術管理部 技術情報室

配布限定

PNC TJ1545 92-005

1992年3月



大気中放射性物質の広域挙動に関する調査研究

要　旨

大気中の放射性物質の挙動を把握するためには、局地的に発生した成分と同時に、広域で発生した成分を評価する必要がある。この調査研究では、ラドンの広域挙動解明を目的として、次の研究を実施した。まず、日本およびアジア大陸（中国）におけるラドン濃度のレベルや変動について調査を行った。次にラドンの広域輸送モデルに必要な地表面からのラドンの散逸率分布を求める方法について検討を行い、土壤中²²⁶Ra 含有率から求める方法およびその問題点について述べた。問題点の一つに土壤の乾燥度の影響が挙げられるため、本調査研究では北京および福州において散逸率、²²⁶Ra 含有率および土壤の含水率の測定を実施した。福州で採られたデータによると、散逸率と含水率の間にきれいな逆相関関係が認められた。最後に、ラドンの広域挙動についてのモデル開発の現状について調査を行い、モデル開発にあたっての問題点を摘出した。

*本報告書は(財)原子力安全技術センターが動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究成果である。

契約番号-----030 D 0126

事業担当者：浅野智宏 安全部安全管理課

LIMITED DISTRBUTION

PNC EJ1545 92-005

MARCH, 1992



S u r v e y o n t h e b e h a v i o u r o f r a d i o a c t i v e
s u b s t a n c e s i n t h e a t m o s p h e r e

A B S T R A C T

To Clarify the behaviour of radioactive substances in the atmosphere, we must study local scale behaviour and regional scale behaviour. For the purpose of clarifying the regional scale behaviour of radon-222, we carried out the following study : First, we surveyed the research concerning the concentration and time schanges of radon in Japan and Chinese Continent Next, methods for obtaining the regional distribution of radon exhalation rate are discussed, which concern dosely to long-range transport model of radon. Although radon exhalation rates can be estimated from the radium-226 content in the soil, dryress of the soil may causes the estimation a great deal of error. In the present study, we carried out simultaneous measurements of radon exhalation, soil moisture and radium-226 content of soil at Beijing and Fuzhou, China a close inverse correlation was shown betteer radon exhalation and soil moistere at Fuzhou. Finally, the survey ofthe research about the regional seale behaviour of radon was made, and some problems in the research was pointed out.

※ Work performed by Nuclear Safety Technology Center under contract with
Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison: Tomohiro Asamo, Safety Division

大気中放射性物質の広域挙動に関する調査研究委員会委員

委員会委員

委員長	池 辺 幸 正	名古屋大学教授
委 員	藤 高 和 信	科学技術庁 放射線医学総合研究所 環境衛生研究部第一研究室長
	下 道 國	名古屋大学工学部助教授
	飯 田 孝 夫	名古屋大学工学部原子核工学科助手
	木 下 瞳	(財)原子力安全技術センター理事

目 次

委員会委員名簿

1. 序	1
1. 1 ラドン濃度の調査	1
1. 2 ラドン発生源の評価	2
1. 3 ラドンの広域挙動モデルの調査	2
1. 4 トリチウムの広域挙動	3
2. ラドン濃度の調査	3
2. 1 日本と中国のラドン濃度	3
2. 2 ラドン濃度の連続測定	6
2. 2. 1 日本における測定	6
2. 2. 2 中国における測定	7
3. ラドンの発生源分布の評価	12
3. 1 はじめに — 予備的考察 —	12
3. 2 中国における散逸率等の測定	15
3. 2. 1 測定法	15
3. 2. 2 測定結果	15
3. 3 考察	17
4. ラドンの広域挙動モデルの調査	18
付録 1 静電捕集型 ^{222}Rn 濃度連続測定装置 (ERM)	24
付録 2 名古屋 (点線) と土岐 (実線) のラドン濃度連続測定	25~40
付録 3 散逸率測定	41~43
付録 4 中国福州における散逸率Eと土壤含水率 (LWC) の日々測定	44~51

表 目 次

Fig 1 An example of the variation of ^{222}Rn concentration	1
Fig 2 Seasonal variation of ^{222}Rn concentrations at several cities in Japan ...	3
Fig 3 Seasonal variation of ^{222}Rn concentrations in several prefectures	4
Fig 4 (a)~(c) Regional distribution of ^{222}Rn concentration (a) Apr. ~ May 1986 (b) Dec. 1986 ~ Jan. 1987, and (c) annual mean ...	5
Fig 5 Seasonal variation of ^{222}Rn concentrations in mountainous regions and near sea	6
Fig 6 Average outdoor ^{222}Rn concentrations at 6 cities in China	7
Fig 7 ^{222}Rn concentrations at Nagoya (dotted line) and Kanazawa (solid line)...	8
Fig 8 ^{222}Rn concentrations at Nagoya (dotted line) and Toki (solid line).....	9
Fig 9 ^{222}Rn concentrations at Fuzhou, China (preliminary data).....	10
Fig 10 ^{222}Rn concentrations at Fuzhou, China (improved data)	11
Fig 11 Distribution of average ^{226}Ra content of surface soil in China	13
Fig 12 Relationship between outdoor ^{222}Rn concentrations and ^{222}Rn concentrations in soil	14
Fig 13 Relation between the exhalation rate and water content of soil	17
Fig 14 Relation between annual mean Rn concentrations and exhalation rate at each site	18
Fig 15 Calculated domain and mesh size	19
Fig 16 Model-simulated radon concentration in spring (4.15.1988-4.20.1988)	20
Table Results of measurements of ^{222}Rn exhalation rate, water content in soil and several nuclide concentration in soil at Beijing district	16

1. 序

原子力開発を推進するに当たっては、施設に起因する放射線の影響を評価することはもとより、環境中に存在する放射性物質の挙動、変動要因等を明らかにすることが必要である。この調査研究では、大気中の放射性物質であるラドン (^{222}Rn) とトリチウム (^3H) に着目する。

ラドン濃度は、Fig. 1 に示すような日変動を示すことがよく知られている。ラドンの大気中における垂直分布や時間変動（日変動）は、Hess¹⁾以来、主として 1 次元拡散方程式を用い、古くは定率状態、後には非定率状態として取り扱われてきた。この取扱いには、無限の一様な面源という仮定があるため、実際のラドンの動態を取扱う場合には適用に限度があるが、適用性についての検討は余り進んでいない。特に日本のように海洋の影響が大きいと考えられる地理的条件の下では、2 次元、3 次元の取扱いへと研究を進める必要がある。池辺ら²⁾は、Fig. 1 に示すように、ラドン濃度を斜線の成分（近傍に起源をもつ成分）と白抜きの成分（遠方に起源をもつ成分）とに区分して解析を行うことを提案した。遠方起源成分は、移流によって遠方から選ばれる成分であると考え、流跡線解析を用いる一層モデルによってこの成分をかなりよく説明できることを示した。^{2, 3)}。このように遠方起源成分の寄与が確認されたので、この調査では、ラドンの広域挙動やラドンの遠方起源成分の寄与を解明することを最終的な目的の一つとする。そのために、次の研究を行う。

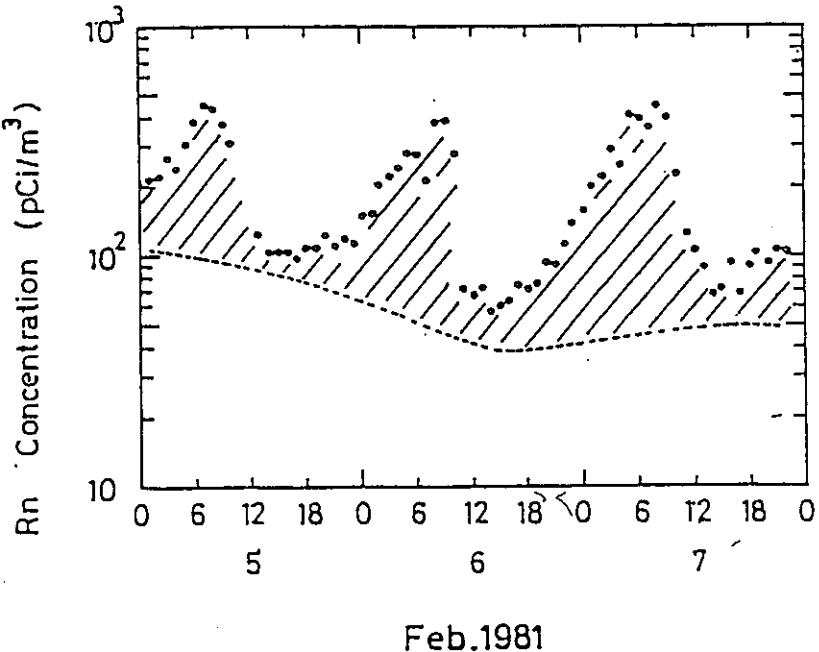


Fig. 1 An example of the variation of ^{222}Rn concentration

1.1 ラドンの濃度の調査

日本およびアジア大陸（中国）におけるラドン濃度のレベルや濃度の時間変動に関する調査を行う。また、必要に応じて、ラドン濃度の現地測定の実施や解析を行う。

1. 2 ラドンの発生源の評価

様々なデータに基づいて、アジア大陸のラドン発生源（分布）について検討する。

1. 3 ラドンの広域挙動モデルの調査

ラドンの広域挙動モデルについて調査し、上記の調査・検討に基づき、濃度変動をシミュレートするためのモデル開発にあたっての問題点を摘出する。

次に、日本において大気水蒸気中のトリチウム濃度の測定はかなり行われてきた。しかし、トリチウム濃度や時間変動を定量的に説明しようとする研究は殆んど行われていない。

よく知られているように、1980年頃以前にはspring maximumの現象がみられ、当時は成層圏大気の対流圏への混入によるトリチウムの供給が大きかったことは明白である。しかし、1984年頃には、spring maximumが消失している。戸沢⁴⁾は、平均的な移流を考慮に入れた二層モデルによって、名古屋の水蒸気中トリチウム濃度（月平均値）をかなりよく説明した。これによって、1985～86年頃の冬季のトリチウムの起源の大部分は、アジア大陸（中国）にあること、ラドンの場合と異なって、水蒸気中トリチウムには近傍起源は殆んど寄与せず、遠方起源が殆んどであることなどが推測された。その後もトリチウムのレベルは年々低下して、現在では核実験の影響は余りみられなくなりつつある。このような時期ではあるが、大気圏におけるトリチウムの広域挙動を調査研究することには、次のような意義があるものと考える。②日本への供給源として興味のある中国の過去のトリチウムデータは、従来殆んど公表されなかったが、近年公表される状況になってきつつある。更に、中国、衛生部が全国規模調査を3年計画（1991年5月～1994年4月頃）で実施しつつある。これらのデータは、基礎的データとしての価値が高く、日本への供給源の資料としても調査を行う必要があろう。⑥緯度効果と大陸効果のため、中国のトリチウムレベルは現在でも高いことが十分予測される。中国の国土が広いことも考慮に入れると、環境（大気圏）におけるトリチウムの動態を検討するフィールドとして中国は最高であろう。⑦これらの検討によって得られる知見を生かして、中国、日本を含む東アジア地区におけるトリチウムの広域挙動を検討することは、平常時だけでなく事故時の広域挙動を把握するためにも役立つものと思われる。なお、⑧水蒸気は、雲を通じて地球温暖化に大きく影響を及ぼす物質であるが、水蒸気の未知の挙動を知る手段（トレーサー）として、トリチウムが地球環境問題の分野で将来利用されるものと期待される⁵⁾。

以上の状況をふまえて、この調査研究において、

1.4 トリチウムの広域挙動

トリチウムの広域挙動についての調査と検討を計画している。2年度にトリチウムの発生源の調査を実施し、3年度に広域挙動について若干の検討を実施する予定である。

2. ラドン濃度の調査

2.1 日本と中国のラドン濃度

日本でラドンまたはラドン娘核種の濃度を測定した文献は数多い。しかし測定に労力を要し、労力を省くための連続測定装置は費用を要するため、年間を通じた測定を多点で得た組織的測定についての文献は殆んどなかった。村山が日本の5都市で行った全β計測の測定をまとめた文献⁸⁾が初期の組織的測定として挙げられる。

Fig. 2に村山がまとめた結果を示す。

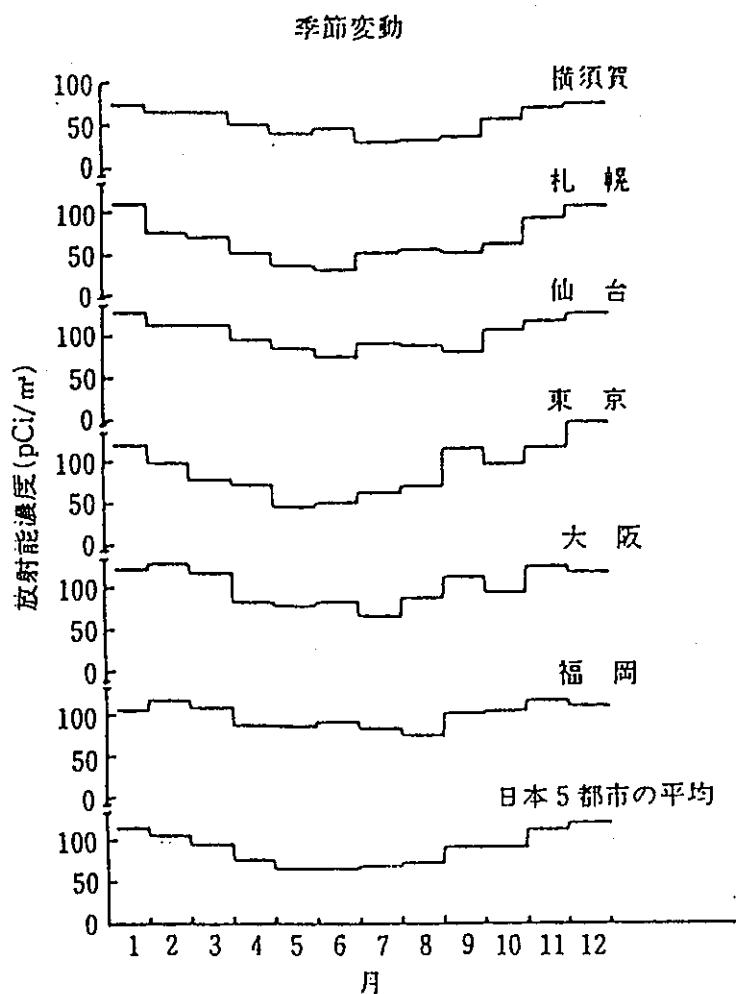


Fig. 2 Seasonal variation of ^{222}Rn concentrations at several cities in Japan

近年passive 法⁷⁾が開発され、多点で安価にラドンの積分濃度を知る途が開かれた。しかしpassive 法の主な測定対象は鉱山内空気や屋内空気であり、一般に低感度で測定値の信頼性に欠ける。飯田ら⁸⁾は、屋外大気も測定対象として、高感度で信頼性の高い静電捕集型積分ラドンセンサー（以下IRMと略す）を開発した。阿部らは、このモニターを使用して室内と共に屋外空気の組織的測定を実施した⁹⁾。Fig. 3に測定結果の一例を示す。

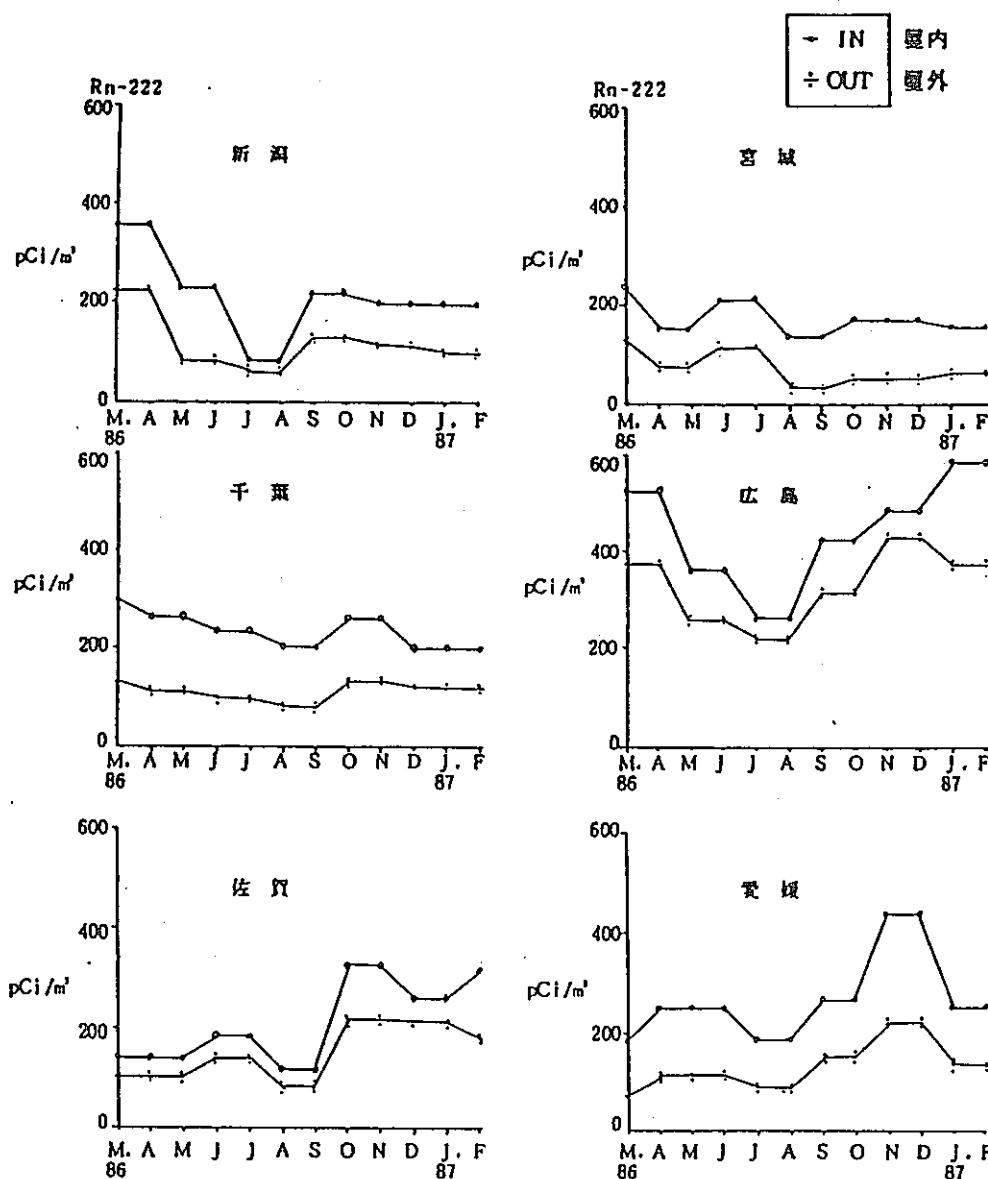


Fig. 3 Seasonal variation of ^{222}Rn concentrations in several prefectures

なお、測定は13都道府県において行われ、屋外大気のラドン濃度の平均値は約 $5 \text{ Bq}/\text{m}^3$ であった。

山西ら¹⁰⁾は、IRMを用いて中部地区において詳細なラドン濃度の測定を実施し、各地

点で2ヶ月毎の測定値を得た。Fig. 4には、水平分布3例を示す。このようにラドン濃度の水平分布を詳細に示した例は従来殆んどみられない。またFig. 5には、季節変動の測定例を示す。なお山西らは、ラドン濃度と阿部ら¹¹⁾の環境放射線の測定値との相関があることを示し、水平分布は主として土壤中の²²⁶Ra含有量に依るとしている。

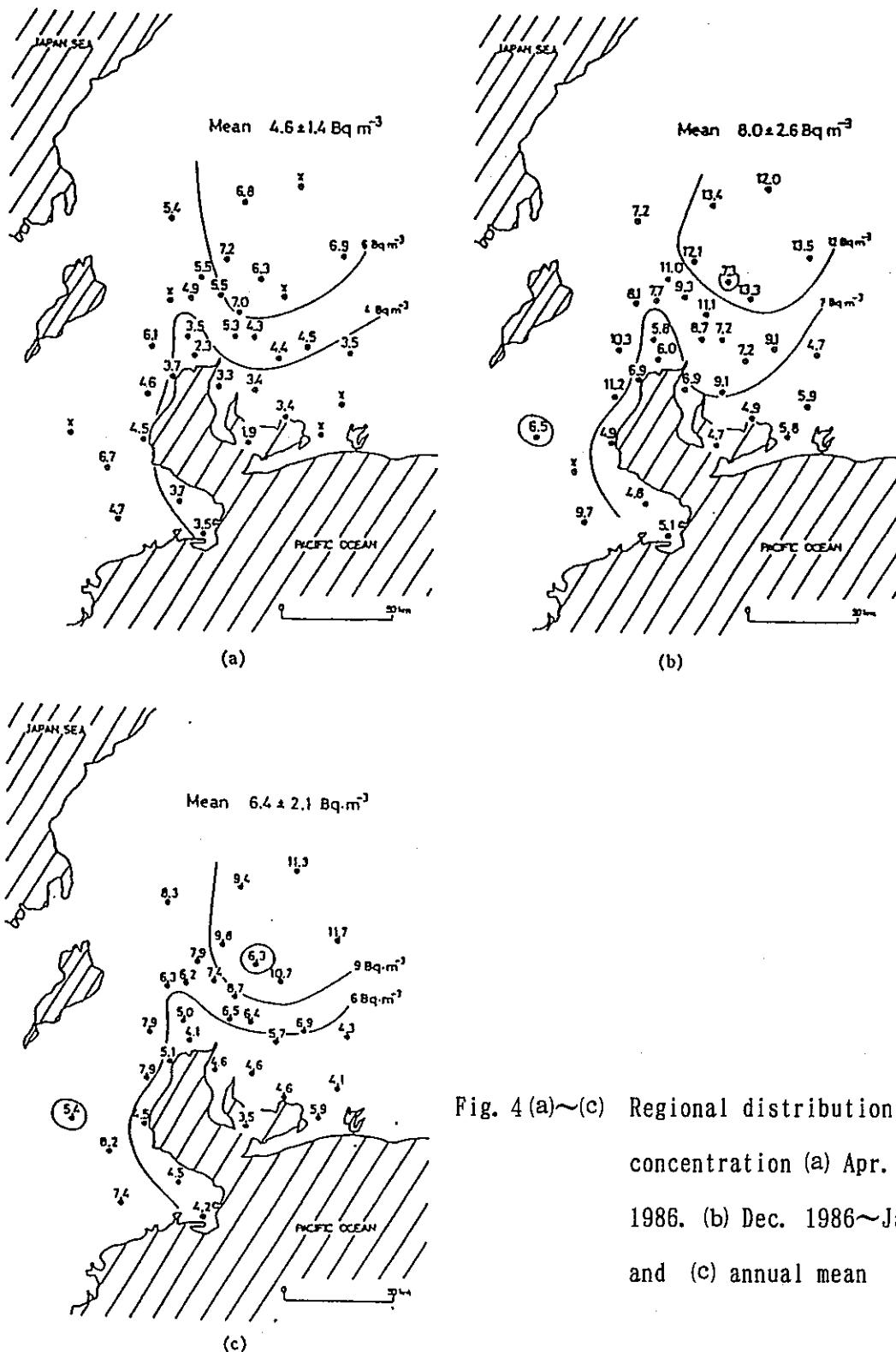


Fig. 4 (a)~(c) Regional distribution of ^{222}Rn concentration (a) Apr. ~ May 1986. (b) Dec. 1986~Jan. 1987 and (c) annual mean

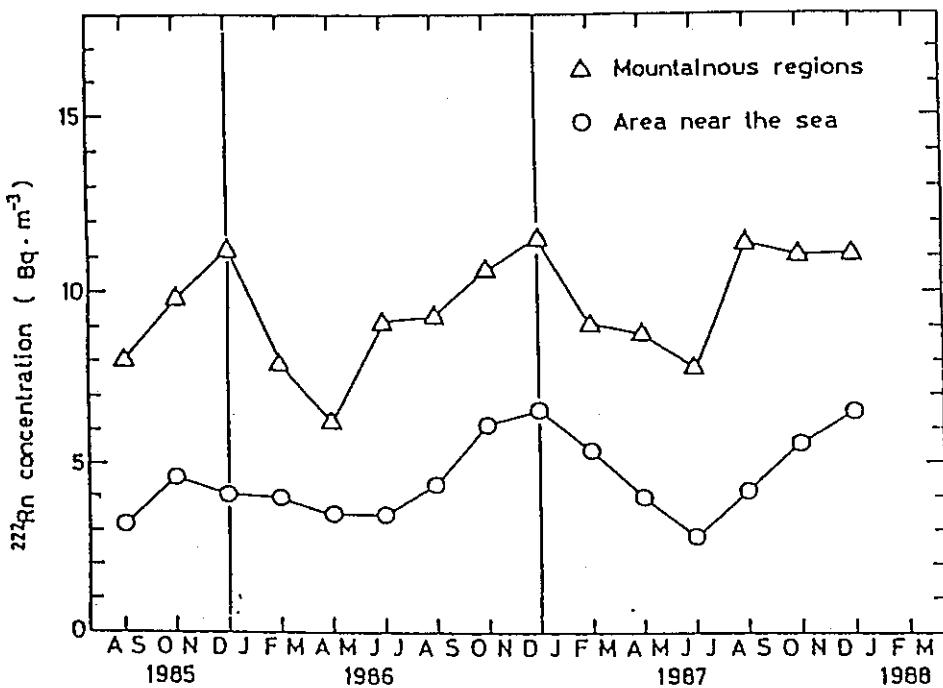


Fig. 5 Seasonal variations of ^{222}Rn concentrations in mountainous regions and near sea

中国においては、屋内ラドンの測定は各地で活発に行われ、報告も出されている。屋外ラドンについては、衛生部工業衛生実験所を中心とする全国的調査が実施されてきたようであるが、公式の報告は未発表である*。中国では、屋外濃度測定にはpassive法を用いず、また連続測定装置もないため、ラドン濃度の日平均値が午前11時頃出現する頻度が高いことから、各地でactive法によって午前11時に行った測定値をデータとして使用することが多い。

金ら¹²⁾は、IRMを用いて、中国の6都市でラドン濃度の測定を一年間実施した。測定の結果（年平均値）をFig. 6に示す。この結果の検討については3章で述べる。

2.2 ラドン濃度の連続測定

2.2.1 日本における測定

passive法はラドンの積分濃度（長期間の平均濃度）を得るのに簡便・安価な方法であるが、ラドン濃度の連続測定値は多くの貴重な情報を含んでいる。飯田¹³⁾は、静電捕集方式のラドン濃度連続測定装置（以下ERMと略する）を開発した（付録1参照）。この装置を用いて名古屋大学において1984年以来連続測定を実施している。また、1990年10月

*放射線影響と防護に関する国際会議（水戸プラザホテル、1992年3月18～20日）において、工業衛生実験所所長王作元氏により、「中国における屋内ラドンとその生物学的影响」の講演が行われる予定である。

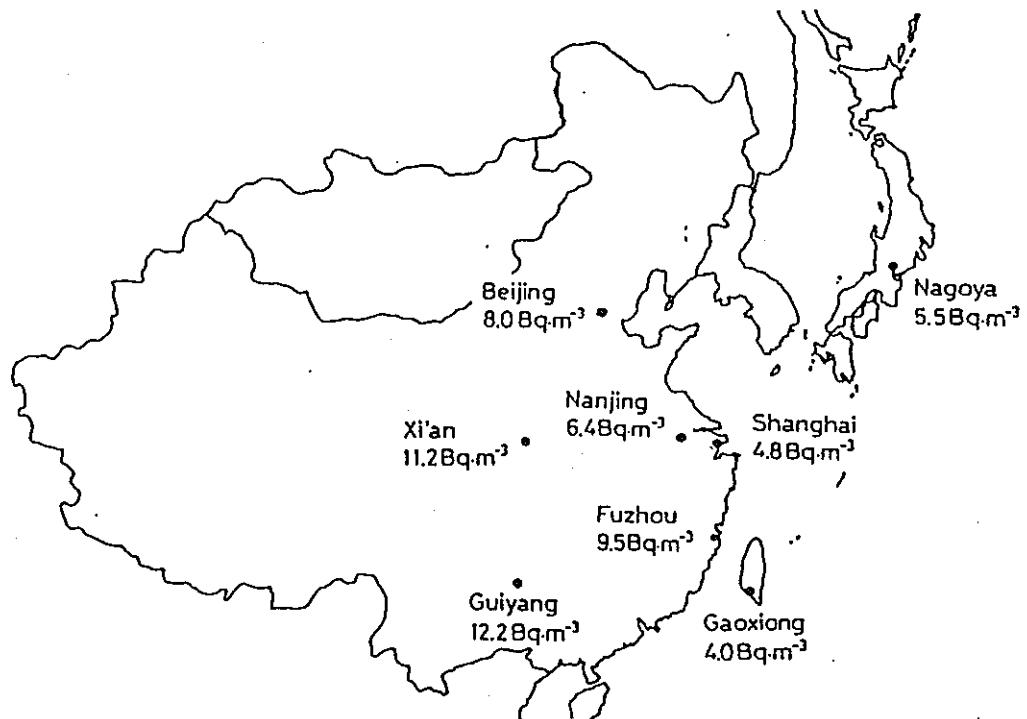


Fig. 6 Average outdoor ^{222}Rn concentrations at 6 cities in China

より動燃中部事業所内で連続測定を実施した。更に、文部省科学研究費の助成金を得て、金沢大学低レベル放射能実験施設構内で1990年11月より連続測定を実施している。これらのデータは、本報告の第4章で述べる濃度変動シミュレーション計算との比較に用い、シミュレーションモデルの妥当性の検証やモデル改良のために使用する。

本節では、以下に、名古屋、土岐、金沢で得られたデータにおいて、簡単に比較する。Fig. 7には、名古屋と金沢の測定値の一例を示す。一般に冬季には名古屋のレベルがやや高い。季節風の吹出しが強いとき日変動が認められず、両地点の濃度レベルは等しくて低い。また夏季に金沢に高濃度が現れることがある。Fig. 8には名古屋と土岐の測定値の一例を示す。両地点の濃度変動は、レベルもパターンもほぼ一致している。一日の最低値の一致がよいことは、遠方起源成分の両地点への寄与がほぼ等しいという考えを指示している。両地点の測定値を付録2に示した。

2.2.2 中国における測定

中国福建省放射衛生防護所構内において、ERMを用いた連続測定を実施している。

Fig. 9には初期の、Fig. 10には最近のデータの例を示す。初期のデータは、停電のため余りよくない。その後停電対策の装置が加えられ、良いデータが得られている。

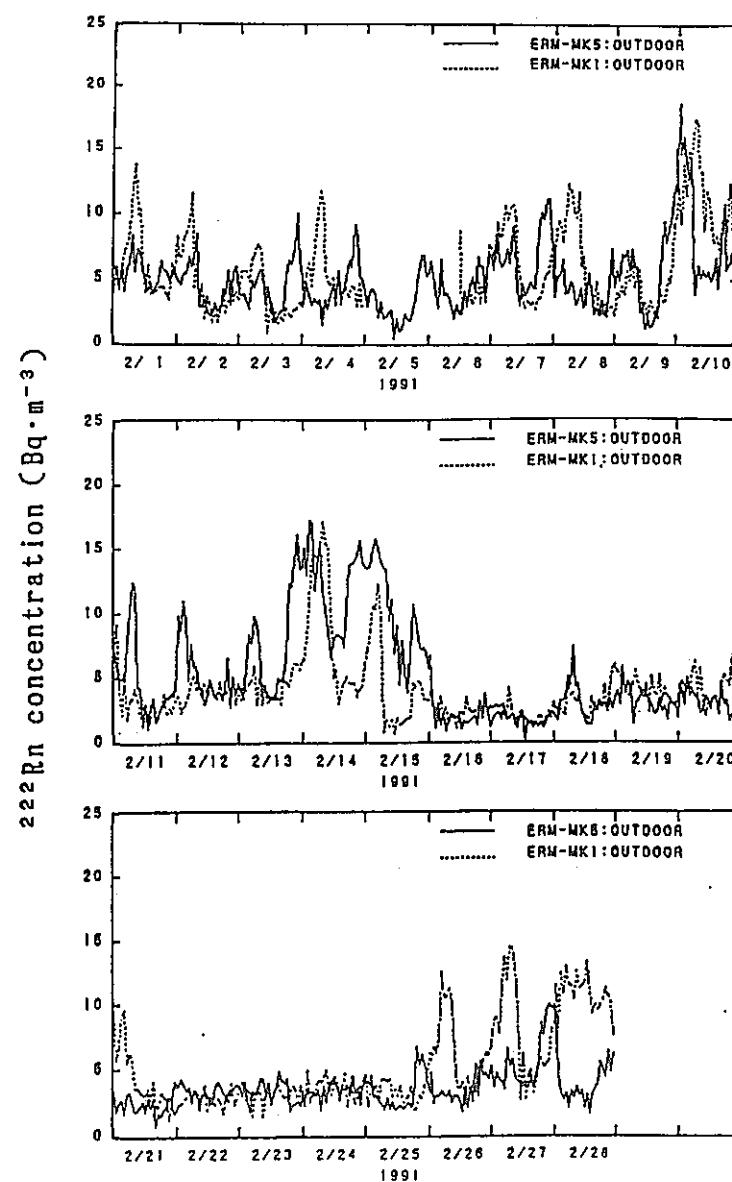
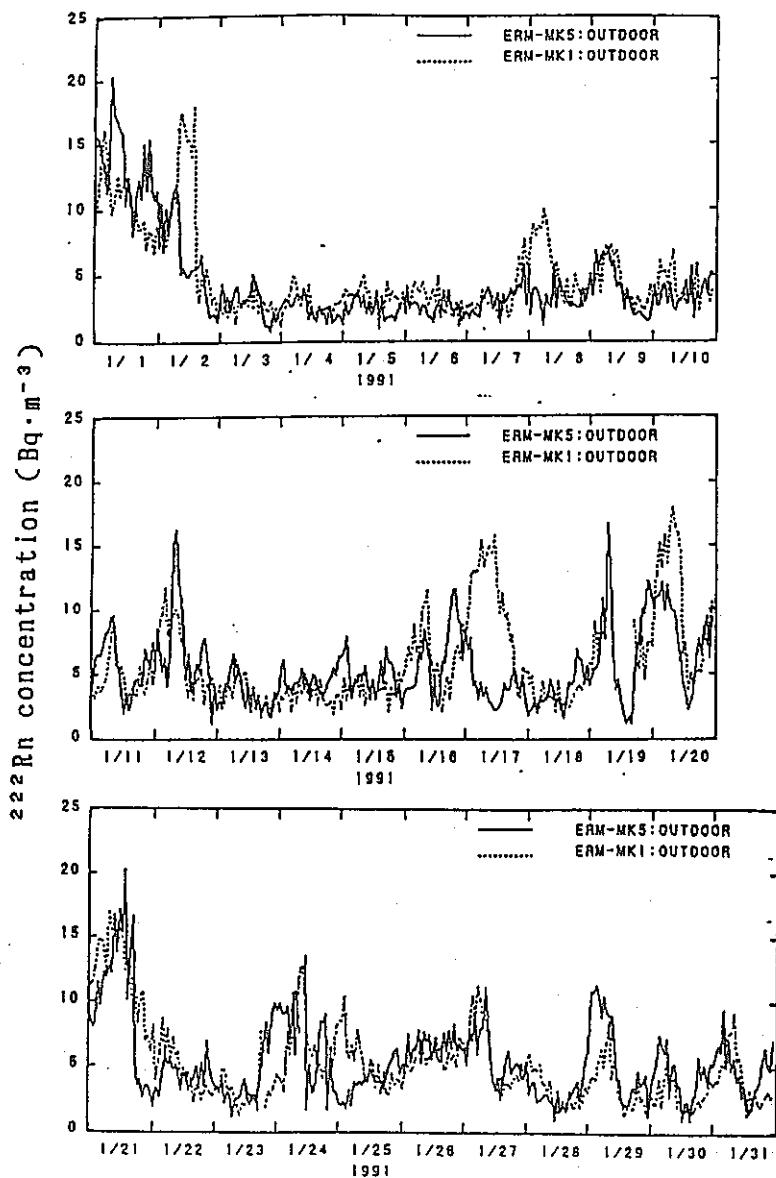


Fig. 7 ^{222}Rn concentrations at Nagoya (dotted line) and Kanazawa (solid line)

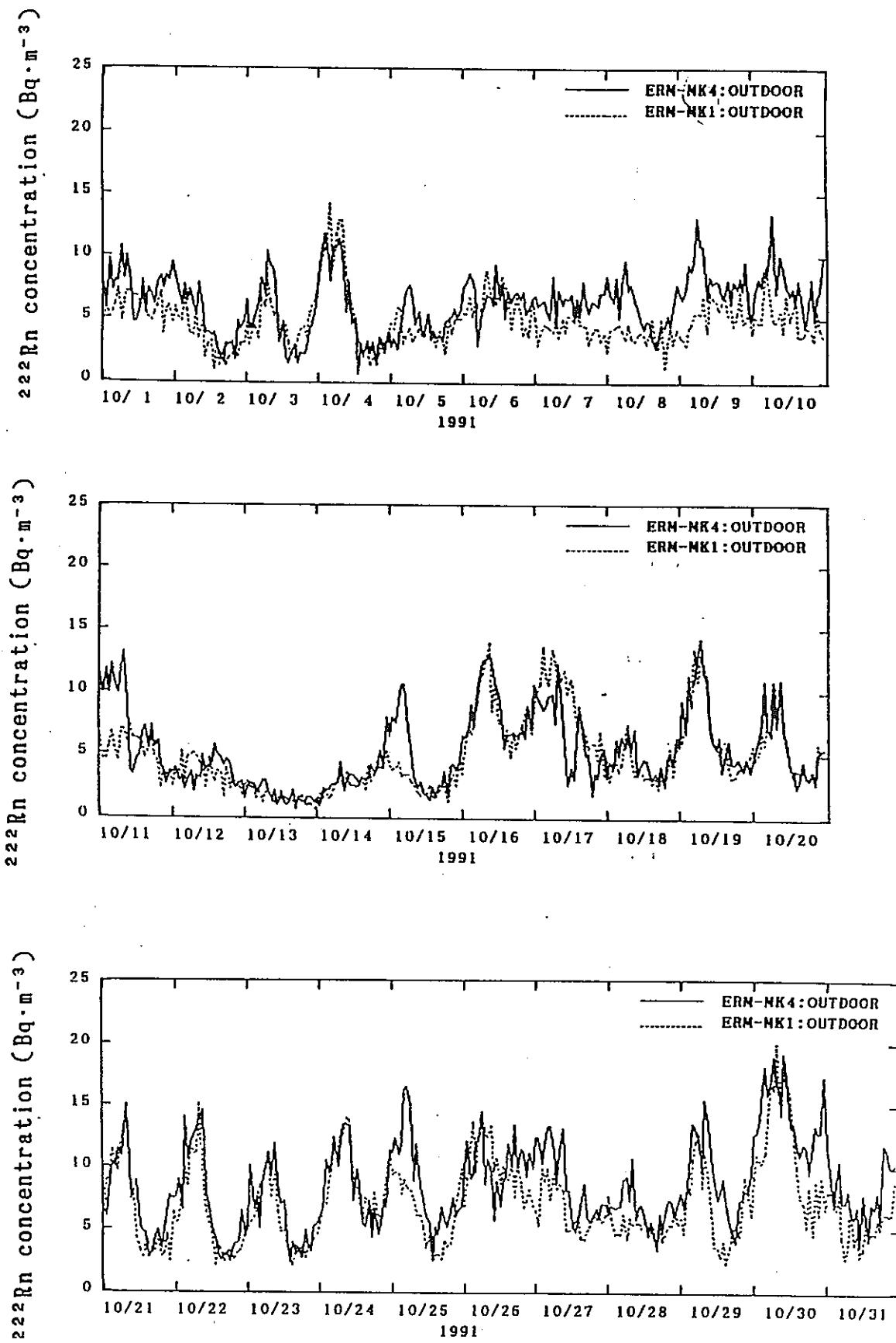


Fig. 8 ^{222}Rn concentrations at Nagoya (dotted line) and Toki (solid line)

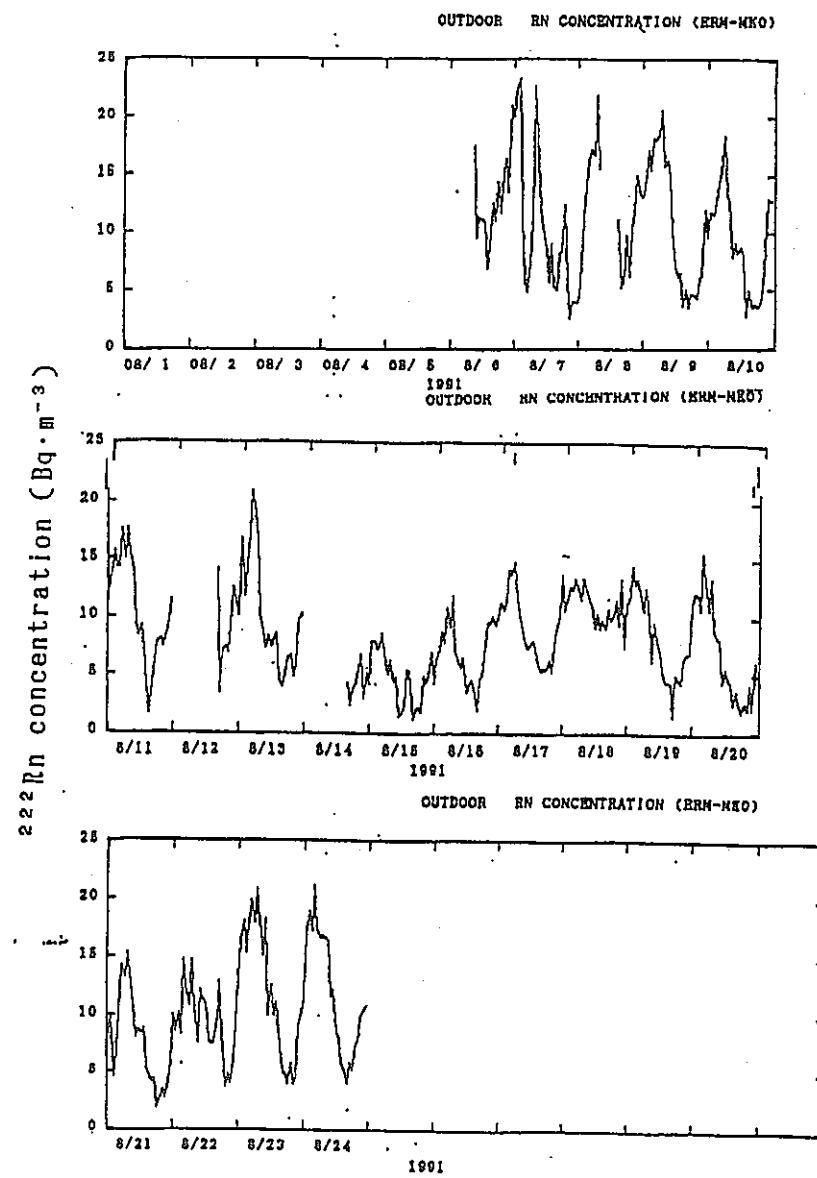
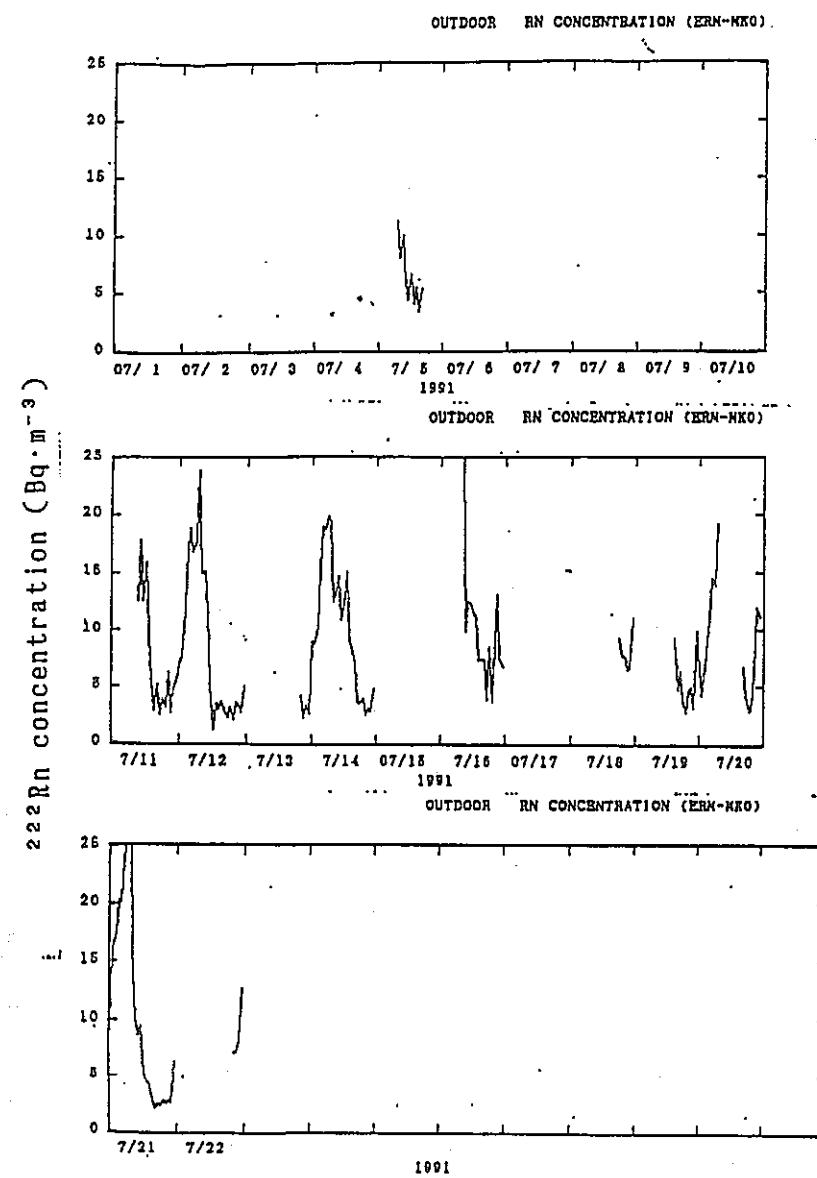


Fig. 9 ^{222}Rn concentration at Fuzhou, China (preliminary data)

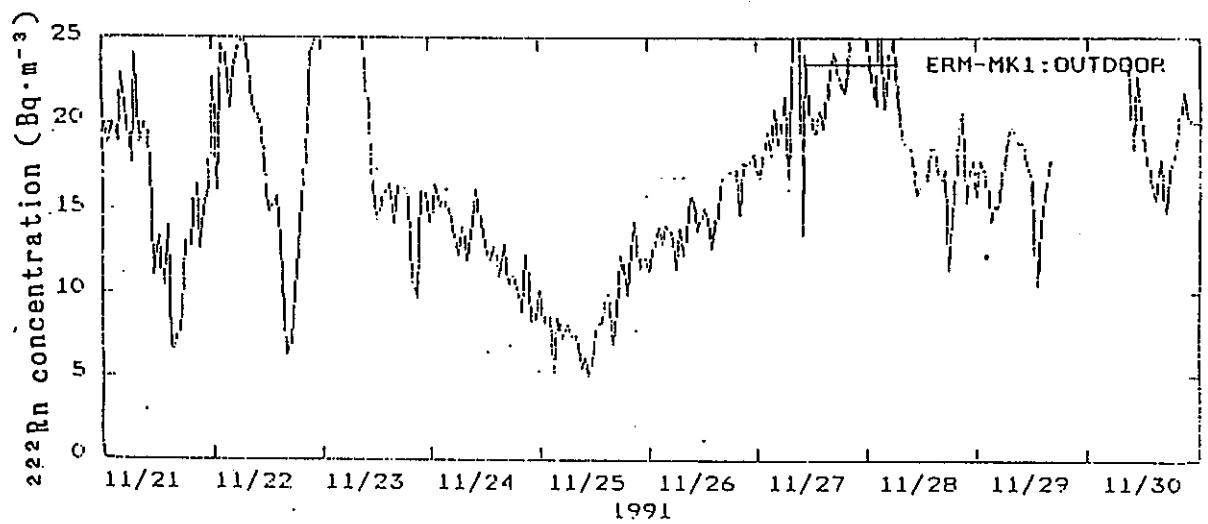
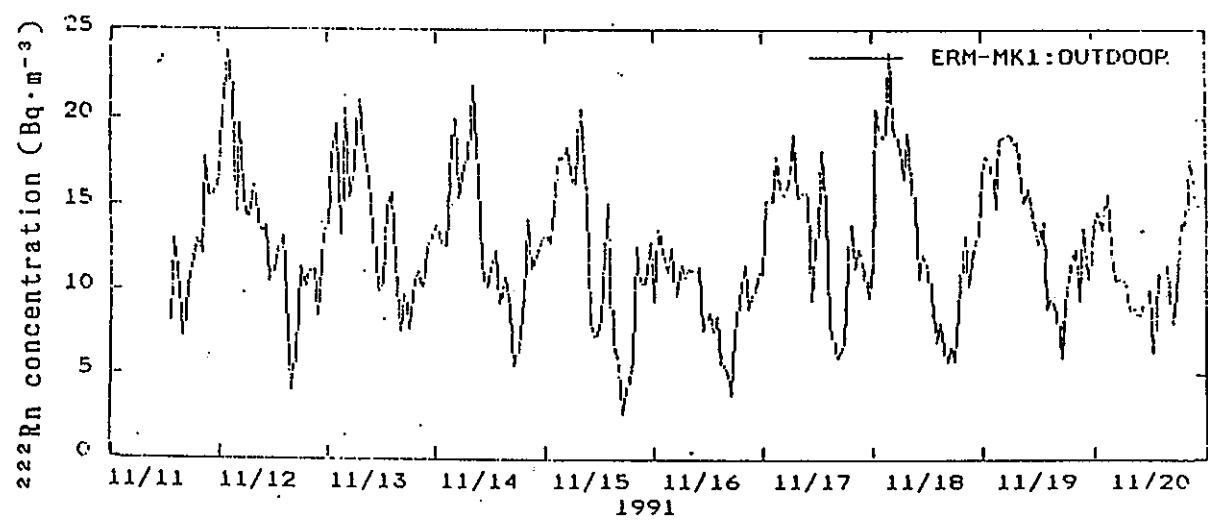


Fig.10 ^{222}Rn concentration at Fuzhou, China (improved data)

ラドン濃度レベルは、Fig. 8 の名古屋のデータに比べて高めである。この傾向は、passive 法 (IRM) で得られた値 (Fig. 6 参照) とも一致している。今後も連続測定を実施し、月平均値と季節変動の統計、時間変動の解析などを行うことが望まれる。なお、平成 4 年度には、北京にも ERM を設置する予定である。

3. ラドンの発生源分布の評価

3.1 はじめに — 予備的考察 —

地表面からの ^{222}Rn の散逸率の測定は古くから数多く行われてきた。しかし、殆んどの測定は 1 地点で行われており、分布について論じた文献は極めて数少ない^{13, 14)}。そのため、ラドンの輸送計算にあたって、通常は測定値の世界平均値^{15, 16)}が用いられるか¹⁷⁾ または規格化された値が用いられている^{18, 19, 20)}。

ラドンの輸送モデルにおいて、中国におけるラドンの散逸率の水平分布については、従来も現在でも 1.0 近似として世界平均値または規格化された値として 1.0 atom/(cm³ · s) を用いている。しかしラドンの散逸率には、地域による差異が予想されるので、一様な散逸率の仮定には無理がある。本調査研究では、中国における散逸率分布の評価を目的の一つとしている。

ラドンの散逸率は式(1)で記述される^{21, 22)}。

$$E = n_{air} \cdot a \sqrt{\frac{D}{\lambda}} \quad (1)$$

ここで、 E : 散逸率 ($\text{Rn原子} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

n_{air} : 土壌中の空気率 (-)

D : ラドンの拡散係数 ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

λ : ラドンの崩壊定数 (s^{-1})

$$a = \frac{\delta A}{n_{air}}$$

ここで、 δ : ラドンの escape-to-production ratio (-)

A : 土壌の Ra 含有率 ($\text{Bq} \cdot \text{cm}^{-3}$ of soil)

この式から、ラドンの散逸率分布の第 1 近似として、土壤物理量に平均的な値を代入して ^{228}Ra の分布図から計算による求める方法が考えられる。この方法の妥当性は、次の検討か

らも言えそうである。池辺²³⁾ らは、中部地区においてラドンの積分濃度と散逸率の測定を行った結果をまとめて、散逸率はラドン積分濃度と1次の関係にあることを示した。また、山西¹⁰⁾ は、ラドン積分濃度と環境放射線線量率の間に相関があることを示した。環境放射線線量率は ^{226}Ra 濃度のほか、土壤中のトリウム濃度、 ^{40}K 濃度、宇宙線にもよるが、線量率と土壤中 ^{226}Ra の相関は比較的よいものと予測される。上述の検討から、散逸率と土壤中の ^{226}Ra の含有率の間に比例関係を仮定することは、測定の面からも言えそうである。

幸い中国では組織的調査が進んでいて、Fig. 11に示すように、全国の土壤中 ^{226}Ra 分布図が公表されている²⁴⁾。第1近似としては、この分布図から式(1)を用いて散逸率分布を出せばよいものと思われる。

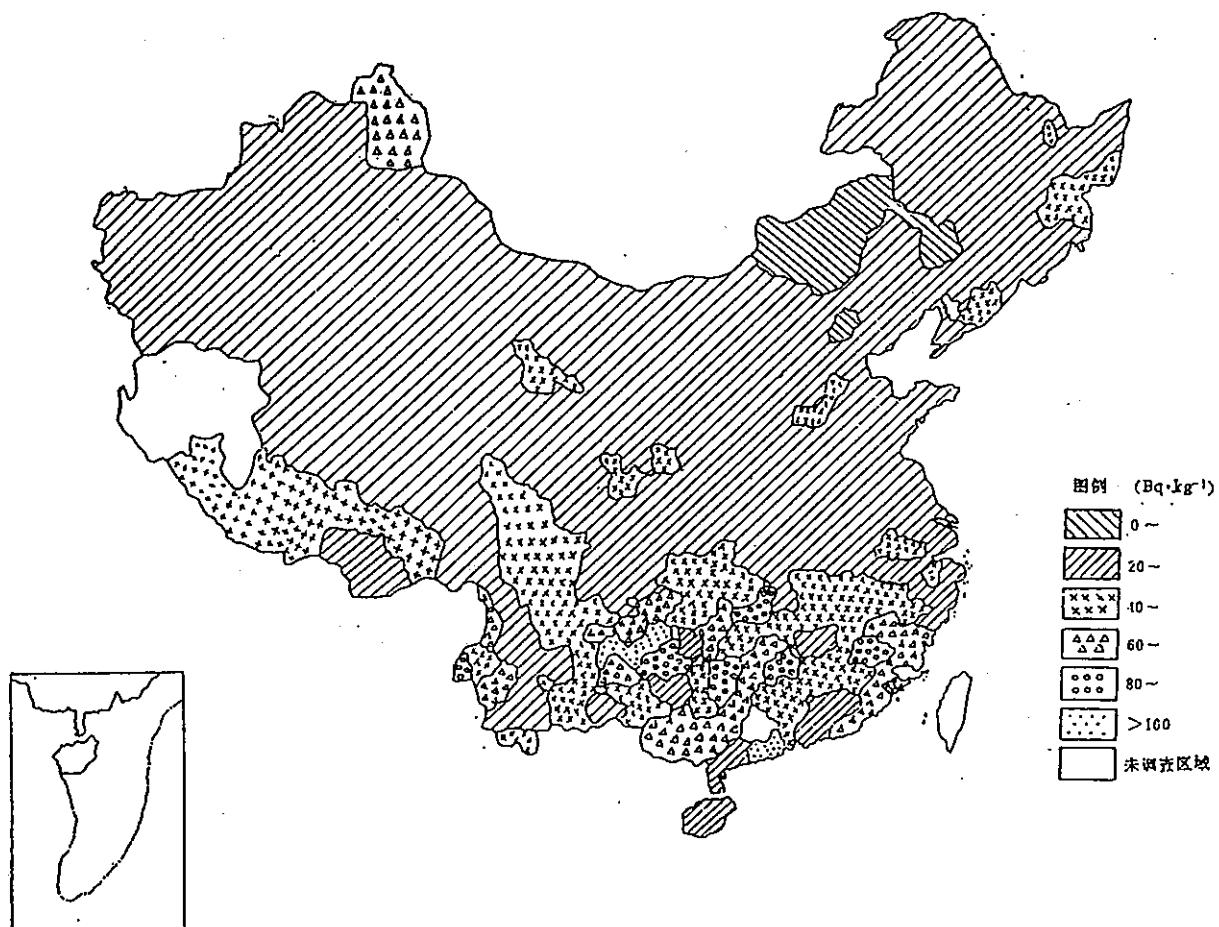


Fig. 11 Distribution of average ^{226}Ra content of surface soil in China

しかし、この第1近似には、問題点が含まれている。金らは、Fig. 12の関係について、次のような考察で行っている¹⁰⁾。高尾、上海、名古屋、南京、福州、貴陽の6点では、土壤

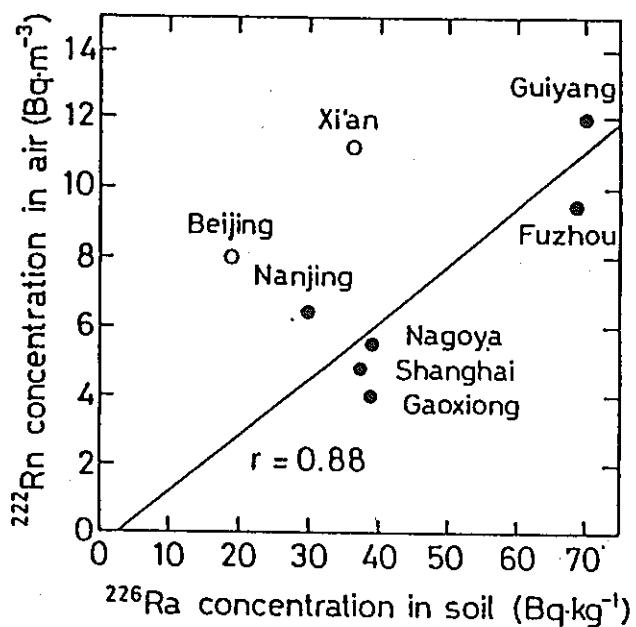


Fig. 12 Relationship between outdoor ^{222}Rn concentrations and ^{226}Ra concentrations in soil

中ラジウム濃度と空気中ラドン積分濃度との相関（相関係数0.88）が認められるが、北京と西安では、ラジウム濃度に較べてラドン濃度が高い。これは、上述の第1近似の採用に疑問を生じさせる。北京と西安のラドン濃度が ^{226}Ra 含有量に比して高い理由として、金らは次の二つの要因を挙げている。

- ① 土壤の乾燥度の地理的mapによれば、北京、西安を含む中国内陸部は、非常に乾燥している。散逸率には土壤の含水率依存性があることが知られており（次節参照），中国の散逸率を推測するためには、乾燥度の考察を必要とする可能性がある。
- ② 一般に大陸の内陸部は、大気安定度において安定状態の出現頻度が高い。このため、ある一定の散逸率に対するラドン濃度が沿岸部や日本よりも高い可能性がある。

以上のいづれかまたは両方の理由により、北京と西安のラドン濃度が高めに観測されたものと考えられる。日本の中北部地区との違いは、中国の国土が広大なため、狭い地域とはちがった観点からの考察を必要とするであろう。

上記の理由で、本調査研究においては、北京、福州（次年度は長春、西安も予定にいたい）において、散逸率、 ^{226}Ra 含有量と共に土壤含水率の測定を実施し、乾燥度の影響について検討を加えることとした。また次年度以降に、安定度との関連についても考察を加えた。そのためには、ERMの北京における設置を必要とする。

3.2 中国における散逸率等の測定

3.2.1 測定法

散逸率の測定法としては、古くから用いられている蓄積法を用いた¹⁴⁾(付録2参照)即ち土壤を円筒形の容器(直径25cm, 高さ5cm, 容積2,360ml)でおおい、地面から散逸してくるラドンを30分間蓄積する。蓄積されたラドンをあらかじめ真空にしておいたシンチレーションセルに導入し、 α 線計測を行ってラドン濃度を求める。求めたシンチレーションセル内のラドン濃度から、次の式を用いて散逸率を算出する。

$$E = \frac{f Q V}{T S} \quad (2)$$

ここでEは散逸率(Bq/(m³・s))

Qはシンチレーションセル内のラドン濃度(Bq/m³)

Vは捕集容器の容積(m³)

Tは蓄積時間(s)

Sは捕集容器の底面積(m²)

である。fはシンチレーションセル内のラドン濃度が捕集容器に蓄積後のラドン濃度よりも、封入時の外気導入のため薄まっているための補正係数であり、付録2より、f=1.08となった。f, V, T, Sに実験に用いた値を代入すると、

$$E = 2.8 \times 10^{-2} \times Q \quad (\text{mBq}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})) \quad (3)$$

となる。

含水率測定は、土壤内1kgをサンプリングし、乾燥器中で、100~110°Cの温度で2日間乾燥させ、乾燥前後の評量より次式を用いて決定した。

$$\text{含水率} = \frac{\text{水の質量}}{\text{湿潤土壤の質量}} \times 100 \quad (\%) \quad (4)$$

^{226}Ra 含有量の測定はGe検出器を用いて行われた。

3.2.2 測定結果

北京市および近郊で1991年11月5日~6日に測定した結果をTable 1に示す。試料番号5と6の散逸率測定値は、シンチレーションセルの真空度に疑いがもたれるため除いてみると、試料番号1~4から、散逸率は14~34mBq/(m³・s)であった。東条と西村¹⁴⁾が示したように、散逸率は場所および季節による差異が大きく、これらの地点で測定を積

み重ねないと明確な結論は出しにくいが、上記の散逸率は、名古屋大学構内および近傍における平均値 $10\text{mBq}/\text{m}^3 \cdot \text{s}$ より大きく、Fig. 12に示した結果を散逸率で説明できるかもしれない。

Table 1 Results of measurements of Rn exhalation rate, water content in soil and several nuclide concentration in soil at Beijing district

Rn 散逸率実測値

1991. 11. 5-6

番号	1	2	3	4	5	6
時 間	11.5 10:50	11.5 14:12	11.5 15:18	11.6 10:17	11.6 15:28	11.6 16:15
測定地点	工業衛生 実験所花壇	地壇公園 北門西側	西土城南段	香山植物園	流行病研究 所 球技場	昌一流公路 (稻田)
温 度 (°C)	14	9	9	9.5	11	9
気 压 (mm Hg)	766	766	766	765.5	767.7	768
土壤含水量 (%)	13.2	7.6	12.1	7.8	12.0	13.8
シンチセル濃度 (Bq/m ³)	495±11	1226±16	677±12	531±11	134±5.6	152±6.1
散逸率 (mBq m ⁻² s ⁻¹)	14	34	19	15	3.8	4.3
備 考					リークの 可能性 有	リークの 可能性 有
土壤中核種 含有量 (Bq/kg)						
Ra-226	19.6±2.2	16.5±1.7	20.1±2.3	19.3±2.0	16.7±1.8	16.4±1.7
Th-232	38.0±5.7	35.4±4.6	41.5±5.1	44.3±4.6	40.2±4.6	40.9±4.1
K-40	666 ± 45	645 ± 42	648 ± 44	671 ± 43	745 ± 48	666 ± 43
Cs-137	4.68±1.41	7.57±1.35	8.15±1.6	—	7.12±1.27	7.35±1.24

Fig. 13には、福建省放射衛生防護所構内（福州市）における1991年7月から1992年1月の間の測定値をまとめた結果を示す。1地点の測定では、図にみられるように、散逸率の含水率依存性がきれいに認められる。なお、付録4には、福州における散逸率と含水率の日々変化および散逸率、含水率、およびラドン濃度の月平均値（1991年11月より1992年1月まで）を示す。

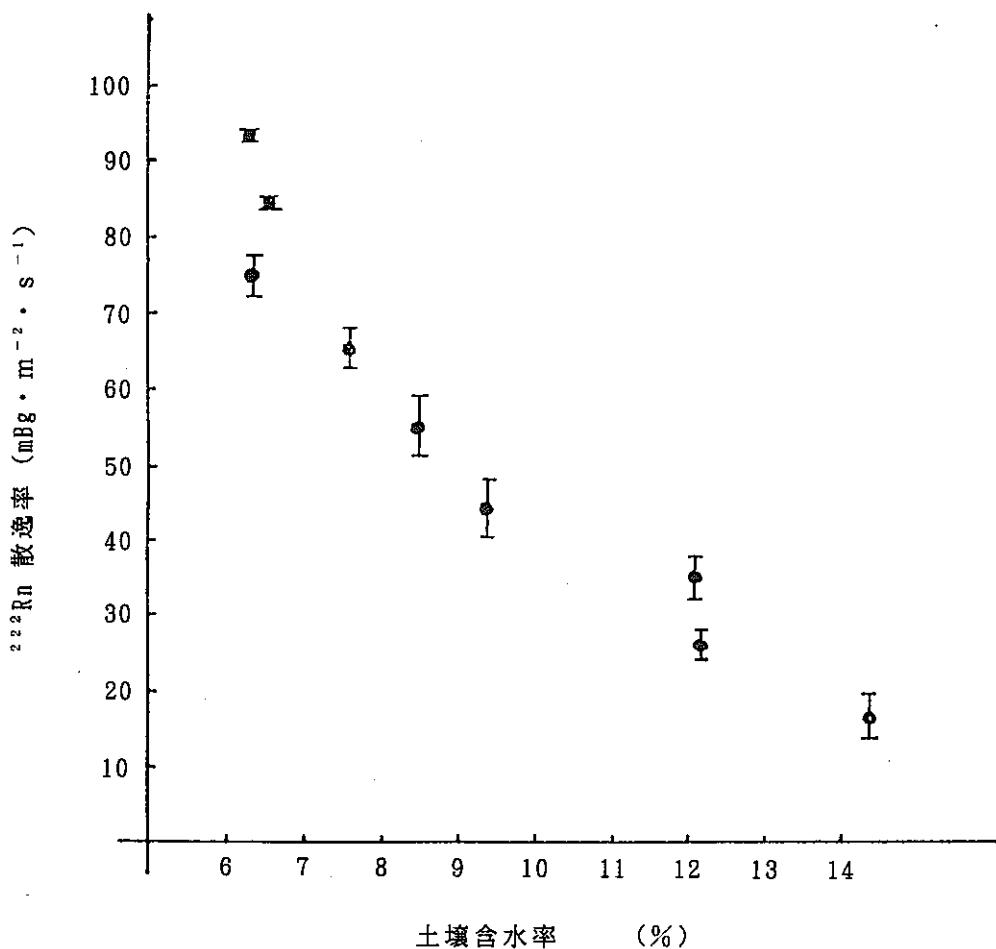


Fig. 13 Relation between the exhalation rate and water content of soil

3.3 考察

この調査研究では、中国における散逸率の分布を ^{226}Ra 含有量の分布図から推定するに際しての問題点について検討を加え、どのような補正を加えればよいかを知ろうとしている。補正の要因として、含水率（乾燥度）と大気安定度に着目している。しかし、乾燥度についての補正是困難であることも予想される。池辺²³⁾は、中部地区で測定したラドン積分濃度（年平均値）と散逸率の間に、Fig. 14に示すような1次の関係があることを示した。この関係を用いると、日本のように狭い地域では、ラドン濃度から散逸率を求める方法も考えられる。それ故、中国においても、大気安定度の差による内陸効果がラドン濃度に対しては余り大きくなければ、或いは補正が容易であれば、 ^{226}Ra 含有量分布から散逸率分布を推測するよりも、むしろラドン濃度の分布図が得られるならば、それから散逸率分布を求める方が実

際的かもしれない。この点については、次年度以降に検討を行いたい。

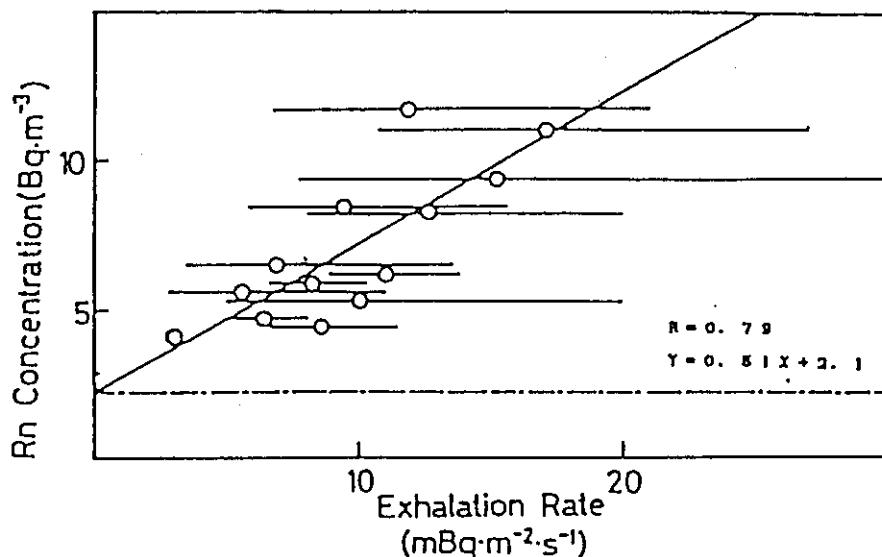


Fig. 14 Relation between annual mean Rn concentrations and exhalation rate at each site

4. ラドンの広域挙動モデルの調査

ラドンの広域挙動についての解析は、従来いくつか行われてきた。日本では、小島³⁾ 池辺²⁾ が流跡線解析に基づく一層モデルで広域挙動を解析し、名古屋における季節変動を説明している。しかし、時々刻々の変動を十分説明するためには、数値シミュレーションの発想をまたねばならなかった。

大型計算機の発達に伴って、物質の輸送を数値シミュレーションによって取扱うことが可能になってきた。広域スケールから地球規模スケールのシミュレーションモデルが種々の物質を対象として行われてきた。しかし、広域スケールから半球スケールのシミュレーションについていえば、シミュレーションの正しさの検証を行うのに適切な物質が少なく、むしろ、ラドンの対流圏内垂直分布等の観測値を用いて、シミュレーションの妥当性をみようという段階に見える。ラドンを対象とするシミュレーションについてみると、広域スケールから半球スケールの対流圏を対象とした文献がいくつかある。しかし、地表面濃度の変動に重点をおいた広域スケールシミュレーションは少ない。Heimannsら²⁶⁾ は、インド亜大陸半島の南方に位置する島へのインド洋とアフリカ大陸からラドンの輸送シミュレーションを行っているが、測定と計算の一一致度は余りよくない。日本では、名古屋大学、日本原子力研究所、中部大学のグループが協力して、最近ラドンの数値シミュレーションコードの開発に取組んでいる。この研究の特徴

は、近傍起源成分については局地スケールの数値シミュレーションを行い、遠方起源成分については広域スケールの数値シミュレーションを行い、両者によって、地上ラドン濃度の全成分の時々刻々の変動を計算しようとする点にある。計算値を観測値と比較することで、シミュレーションコードの妥当性を検証し、また不一致点については事例解析を行って、計算の改善を試みようとしている。この数値シミュレーションコードの開発によって、局地スケールから広域スケールに及ぶ物質の大気拡散の基礎となるシミュレーションコードの確立が期待される。

このグループの開発の現状を簡単に述べる。先ず、局地スケールの数値シミュレーションは、原研で開発されたSPEEDI（点源を対象）の面源化を行う方向で進められている。当初山田ら²⁷⁾は、名古屋を中心とする200km 西方の面源についてのシミュレーションコードを開発した。その後村上は、このコードに改善を加えつつ、80km四方の面源からの局地スケールシミュレーションを行っている²⁸⁾。濃度計算にはランダムウォーク法を使用している。また、このグループ

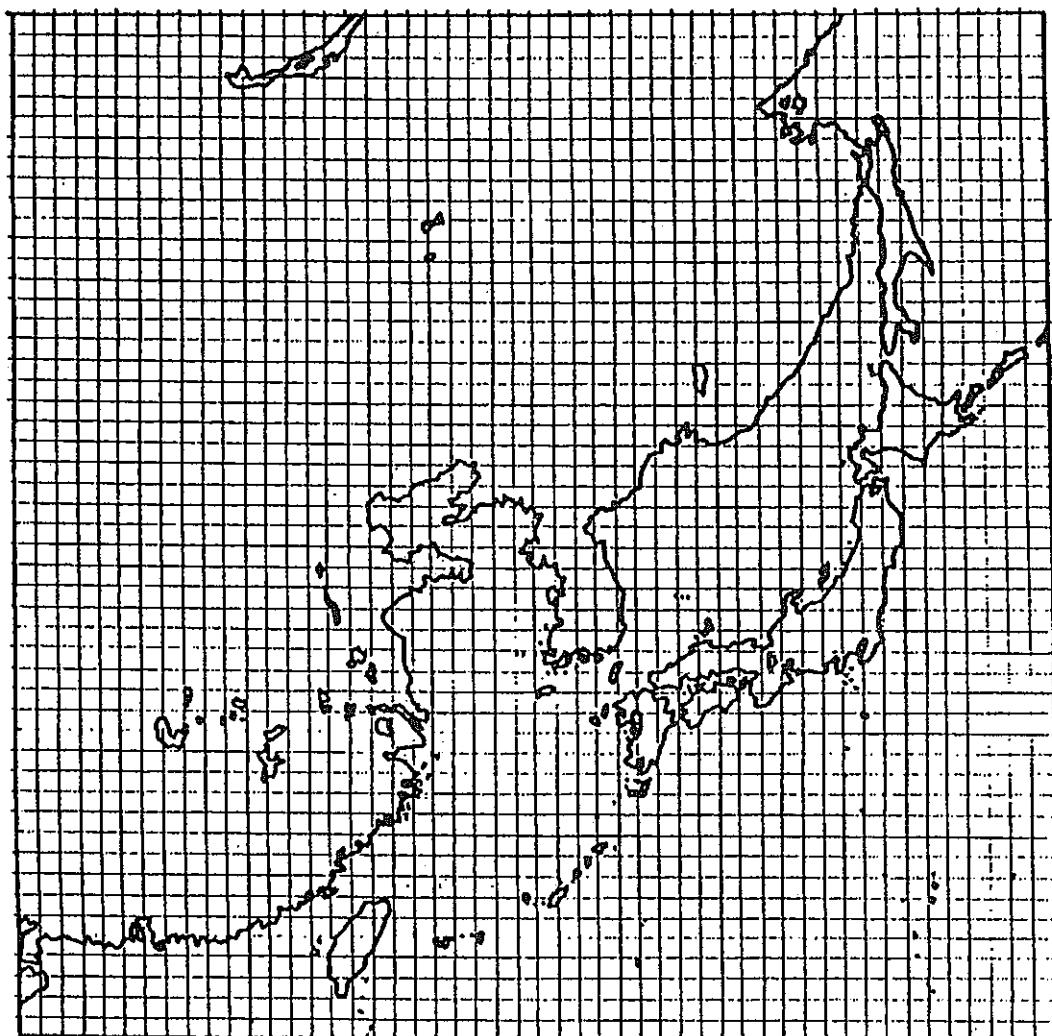


Fig. 15 Calculated domain and mesh size

は、名古屋を中心とする東アジアの $4,000\text{km} \times 4,000\text{km}$ の領域を対象として、広域スケールの数値シミュレーションを行っている。当初は、ランダムウォーク法を発展させたパフの手法による計算を行った²⁹⁾が、その後差分法を用いて改善をはかり、移流には修正EXQUISITE法、拡散にはCrank-Nicolson法を用いている。風のデータは、世界気象機関の広域気象観測データを用い、また、拡散係数は夜間と昼間に分けて評価している³⁰⁾。Fig. 15に、広域計算の領域とメッシュ分割($80\text{km} \times 80\text{km} \times 200\text{m}$)を示す。Rnの発生源データとしては、陸上では一様発生源を仮定し、散逸率として世界平均値に近い $1\text{Rn atom}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$ を用いている。なお、近傍起源成分を除くため、名古屋を中心とする $80\text{km} \times 80\text{km}$ のメッシュからのRnの発生は0とし、海面からの発生も陸上の1/100程度であるため0とおいている。計算の一例をFig. 16²⁸⁾に示す。図の細い実線が広域からの成分である。同じ期間に、近傍($80\text{km} \times 80\text{km}$)からの成分を評価して、両方の成分を合わせた計算による全成分が、図の点線で示されている。また、ERMを用いた測定値が、太い実線で示されている。この例では、計算と測定の濃度変動の傾向が比較的よく一致している。他の例では、これ程高い一致を示さない例もある。これらの不一致の原因を明らかにして、数値シミュレーションを改良する方向で研究が進められている。

この計算では、陸上での発生源を一様としている。本研究で、散逸率の分布を明らかにしていくことは、ラドンの数値シミュレーションコード開発のために有益な資料を提供するものと期待される。その他広域計算コードの問題点として、垂直方向の拡散係数の与え方の改善が挙げられる。また局地計算コードとしては、ランダムウォーク法は面源には不適であるため、地

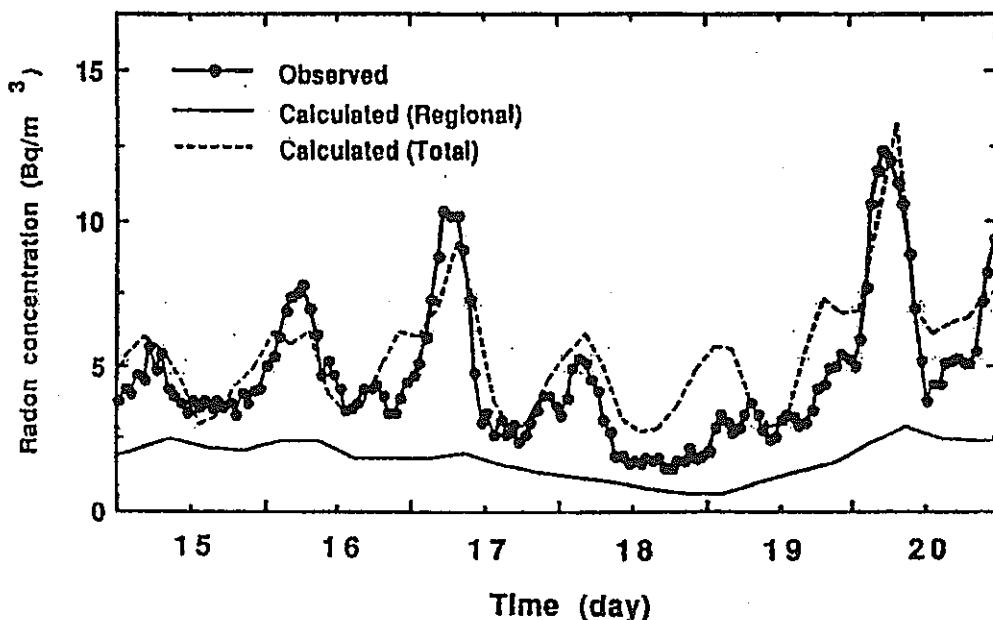


Fig. 16 Model-simulated radon concentration in spring. (4.15.1988-4.20.1988)

形準拠を用いた差分法の採用が望まれる。

Reference

- 1) V.F.Hess and W.Schmidt, Über die Verteilung Radisactiver Gase in der Freien Atmosphäre : Physik. Zs., Bd. 19, pp. 109-114 (1918)
- 2) Y.Ikebe et al., On the Origin and Transport of Rn-222 in the Atmosphere : Res. Lett. Atmosph. Electr., Vol. 3, pp. 51-54 (1983)
- 3) 小島秀蔵, 気中Rn濃度の季節変動の要因 : 名古屋大学工学部原子核工学科卒業論文 (1982)
- 4) 戸沢克弘, トリチウムと安定同位体の降水および水蒸気中の変動 : 名古屋大学大学院工学研究科修士論文 (1988)
- 5) GEWEX 作業委員会, GEWEX へ向けて — 我国の取り組みの現状 — : 大気, Vol. 38, No.10, pp. 45-50 (1991)
- 6) T.F.Gessel, Background Atmospheric ^{222}Rn concentrations Out doors and Indoors : A Review : Health Phys., Vol. 45, p. 289 (1983)
- 7) 飯田孝夫, Passive 型ラドン濃度測定器について : 保健物理, Vol. 20, pp. 407-415 (1985)
- 8) T.Iida et al., An Electrostatic Integraing ^{222}Rn Monitor with Cellulose Nitrate Film for Environmental Monitaring : Health Phys., Vol. 54, No.2, pp. 139-148 (1988)
- 9) 阿部道子, 阿部史朗, 屋内・外のラドン等の全国測定 : 放医研環境セミナーシリーズ, No.15, pp.79-88
- 10) H.Yamanishi et al., Measurements of Regional Distribution of Radon-222 Concentration : J.Nucl. Sci. Technol., Vol. 28, pp. 331-338 (1991)
- 11) S.Abe, et al., Extensive Field Survey of Natural Radiation in Japan : J.Nucl. Sci. Technol., Vol. 18, pp. 21-45 (1981)
- 12) 金益和ほか, 中国におけるPassive 法による屋内・外ラドン濃度調査 : 保健物理, Vol. 26, pp. 341-350 (1991)
- 13) J.E.Pearson. et al., A Soil-Gas Emanation Measurement System Used for Radon-222 : J.Appl. Meteor., Vol. 4, pp. 349-356 (1965)
- 14) 東条啓司, 土壤からの ^{222}Rn 散逸率の測定及び大気中濃度との関連 : 名古屋大学大学院修士論文 (1990)

- 15) M. H. Wilkening et al., Radon-222 Flux Measurements in Widely Separated Regions :
The Natural Radiation Environment II, Ed. by J. A. S. Adams et al., pp. 717-730,
USERDA, Conf-72080S, 2 (1972)
- 16) K. K. Turekian et al., Geochemistry of Atmospheric Radon and Radon Products : Ann.
Rev. Earth Planet. Sci., pp. 5227-5255 (1977)
- 17) D. J. Jacob and M. J. Prather, Radon-222 as a Test of Convective Transport in a General
in a General Circulation Model : Tellus, Vol. 42B, pp. 118-134 (1990)
- 18) W. Jacobi and K. André, The Vertical Distribution of Radon 222, Radon 220 and Their
Decay Products in the Atmosphere : Journal of Geophysical Research, Vol. 68,
pp. 3799-3813 (1963)
- 19) Y. Ikebe, Variation of Radon and Thoron Concentrations in Relation to the Wind Speed
: Journal of the Meteorological Society of Japan, Vol. 28, pp. 461-468 (1970)
- 20) H. L. Beck and C. V. Gogolack, Time-Dependent Calculations of the Vertical Distribution
of ^{222}Rn and Its Decay Products in the Atmosphere : Journal of Geophysical Research,
Vol. 84, pp. 3139-3148 (1979)
- 21) H. Israel, "Die Natürliche und Kunstliche Radioaktivität der Atmosphäre" : Nuclear
Radiation in Geophysics, Springer-Verlag KG, Berlin, 76~79 (1962)
- 22) T. Kataoka, Y. Ikebe and S. Minato, Influence of the Distribution of ^{222}Rn Concent-
rations under the Ground on Natural Gamma-Ray Flux Density and Exposure Rate :
Health Phys., Vol. 37, pp. 669-675 (1979)
- 23) Y. Ikebe et al., Use of Radon-222 as a Tracer in the Study of Atmospheric Diffusion
: Proceeding of The Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy
Research — Global Environment and Nuclear Energy —, Mito, pp. 53-56 (1991)
- 24) 張淑蓉他, 我国土壤中放射性核素及分布 : 中華放射医学与防護雜誌, Vol. 8, pp. 1-15 (1988)
- 25) 西村孝夫, 大気中ラドン濃度変動の気象解析 : 名古屋大学大学院修士論文 (1985)
- 26) M. Heimann, P. Monfray and G. Polian, Modeling the long-range transport of ^{222}Rn to
subantarctic and antarctic areas : Tellus, Vol. 42B, pp. 83-99 (1990)
- 27) 山田博之, 屋外大気中ラドン-222濃度の時間変動シミュレーション : 名古屋大学大学院修
士論文 (1989)

- 28) 村上俊行他, 大気中ラドン- ^{222}Rn 濃度の時間変動シミュレーション(Ⅱ) : 日本大気電気学会第46回研究発表会予稿集 (1992)
- 29) 石川裕彦他, 東アジア地域におけるラドンの長距離輸送シミュレーション: ラドンシンポジウム, 京大原子炉実験所 (1991)
- 30) 坂下哲哉他, ラドンの広域拡散シミュレーション(Ⅱ) : 日本大気電気学会第46回研究発表会予稿集 (1992)

付録 1 静電捕集型 ^{222}Rn 濃度連続測定装置 (ERM)

装置の構成と動作原理

新しく試作した測定装置の概略図をFig. 17に示す。フィルターを通してポンプで吸引された空気は五酸化二リン (P_2O_5) を用いた除湿器を通って捕集容器に入る。このとき ^{222}Rn 娘核集及びエアロゾルと水蒸気は取り除かれる。捕集容器は半径 200mmのアルミ製半球容器から成っており、内容積は約17lである。空気の出入口は容器内に光が入らないように1回ひねった管になっている。 ^{222}Rn の崩壊生成物の ^{218}Po 原子は80~90%正に帯電している。その $^{218}\text{Po}^+$ イオンは負に印加されたアルミニウム蒸着マイラー膜($0.9\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$)の捕集電極上に集められる。電極上の ^{218}Po と ^{214}Po より放出される α 線は $10\text{mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ のZnS(Ag) 蛍光膜に入射する。 α 線による発光は光電子増倍管でパルス信号に変えられ、プリアンプ、リニアアンプ、シングルチャンネル・パルスハイト・アナライザー、インターフェイスを通りパソコン・コンピューター (PC9801RX) に送られる。パソコン・コンピューターでは、1時間間隔の連続測定された α 計数値からBateman の式を用いて自動的に ^{222}Rn 濃度に変換される。得られた ^{222}Rn 濃度データは毎日24時間にフロッピー・ディスクに格納される。

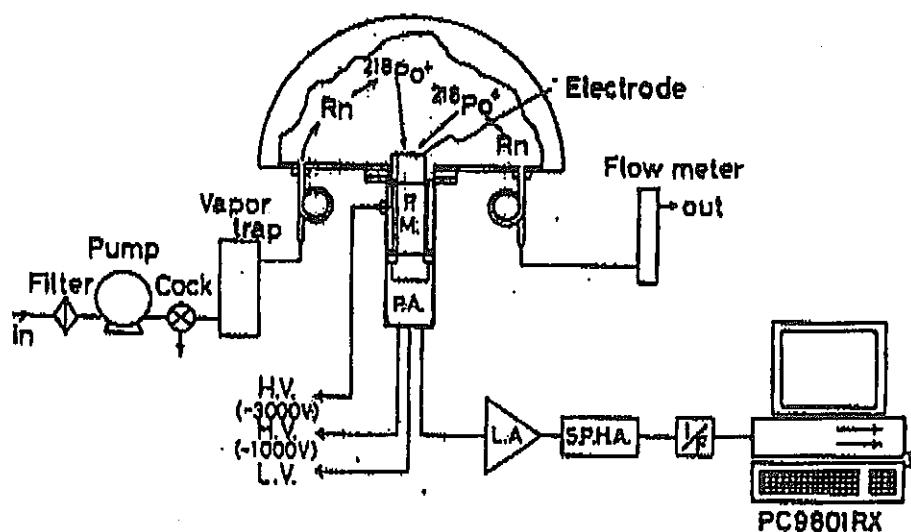
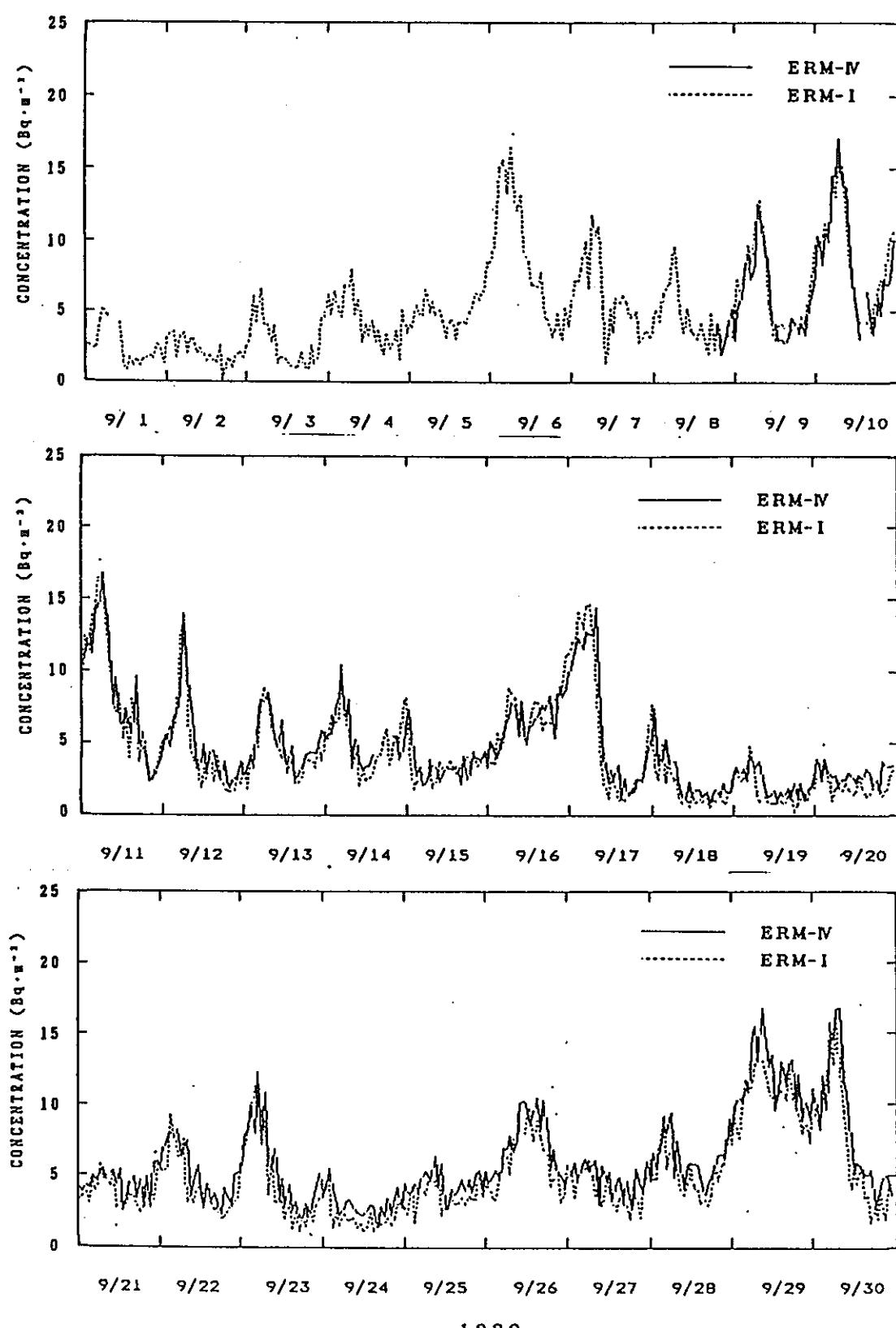
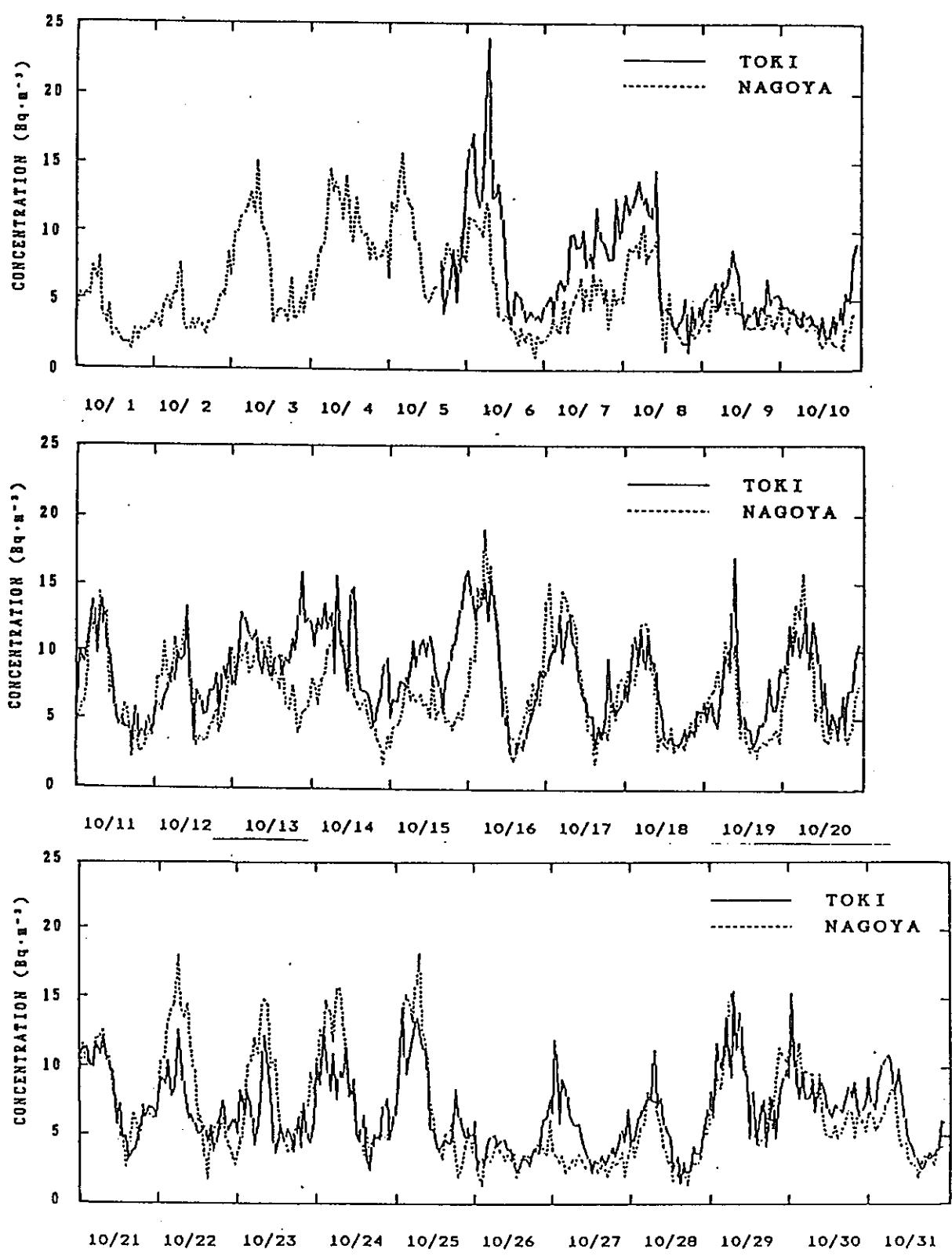


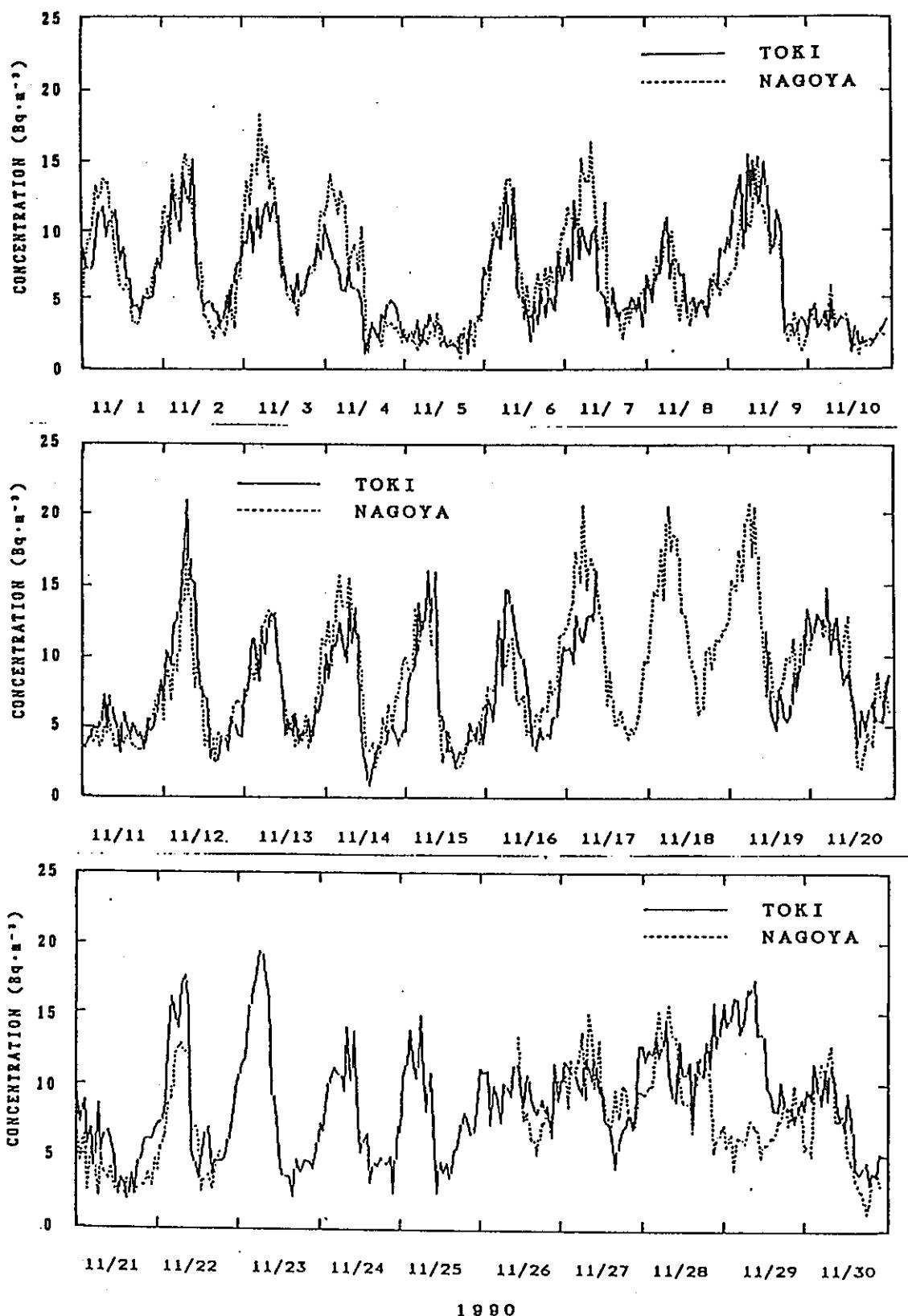
Fig. 17 Schematic diagram of continuous electrostatic ^{222}Rn monitor

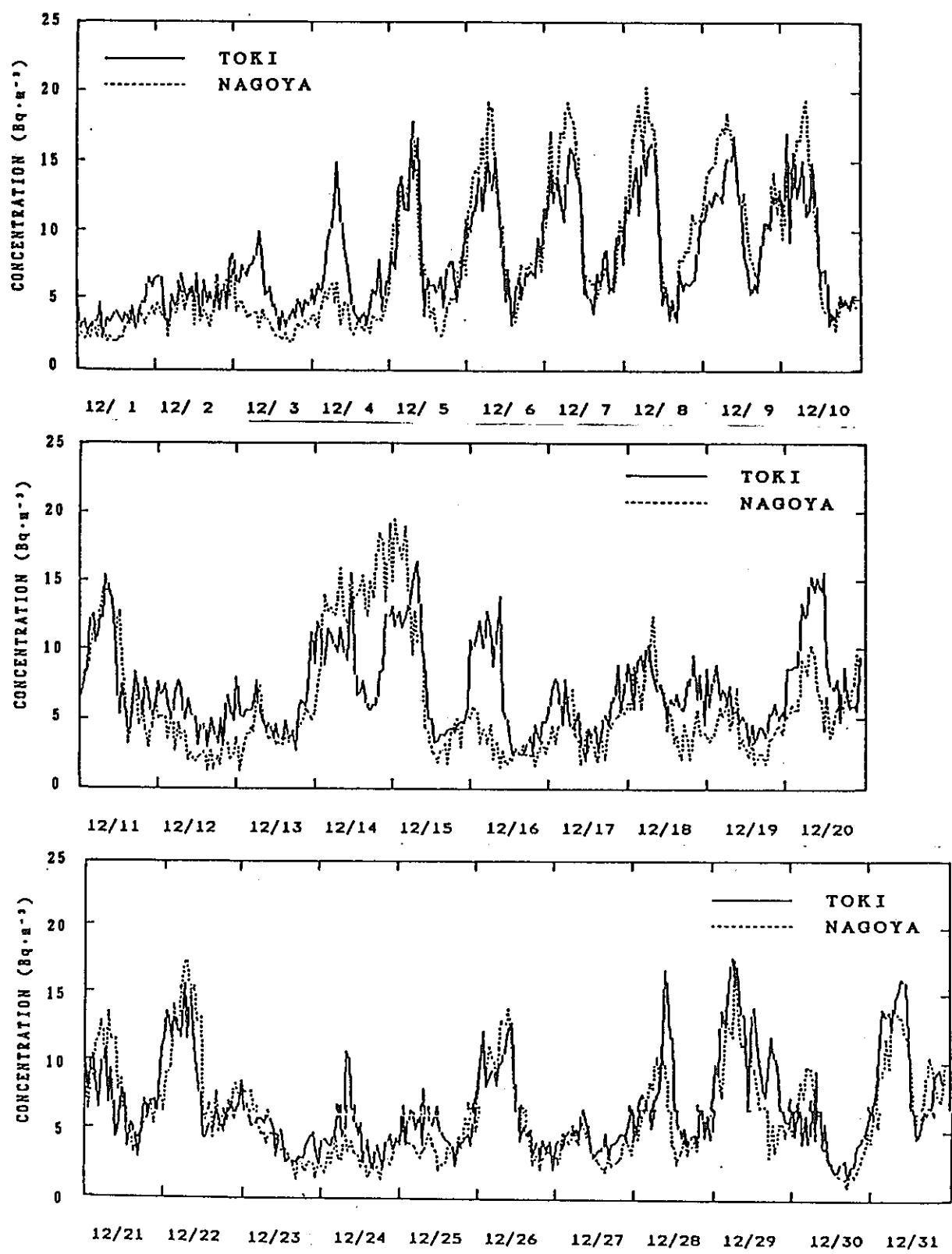
付録 2 名古屋（点線）と土岐（実線）のラドン濃度連続測定

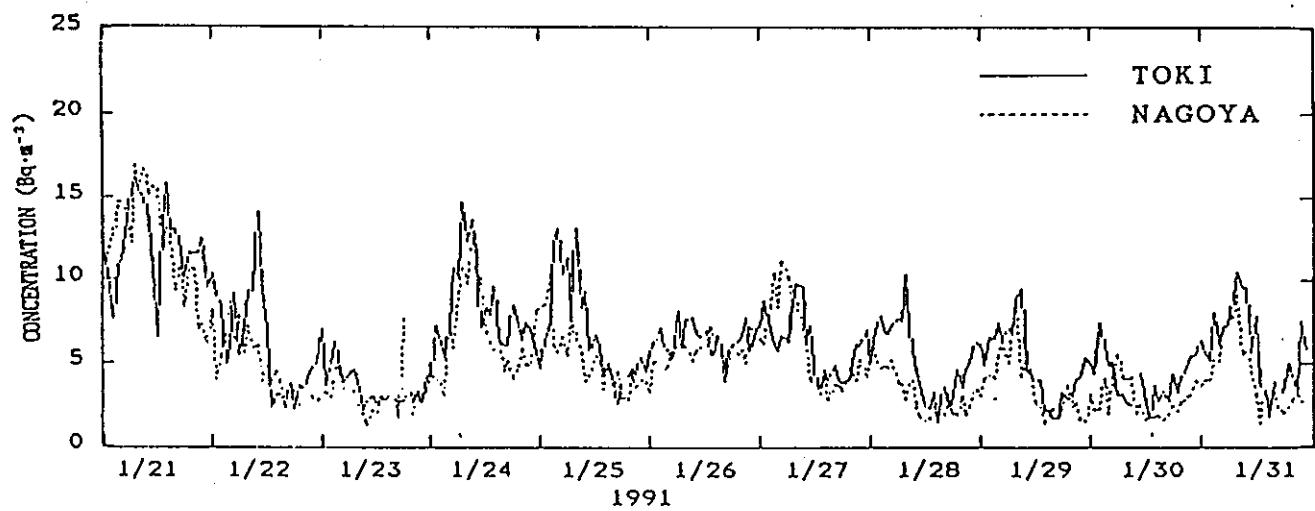
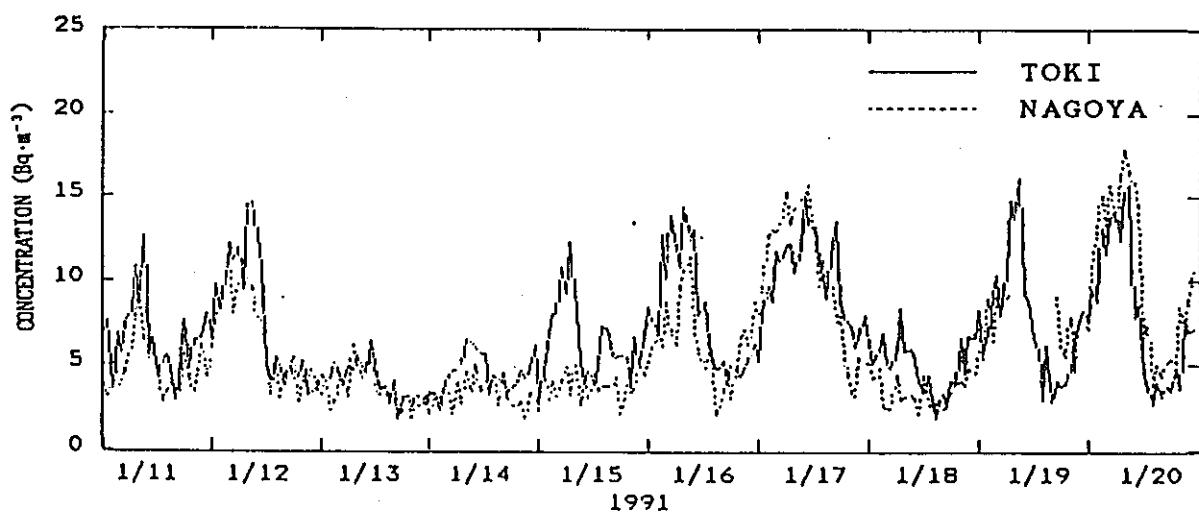
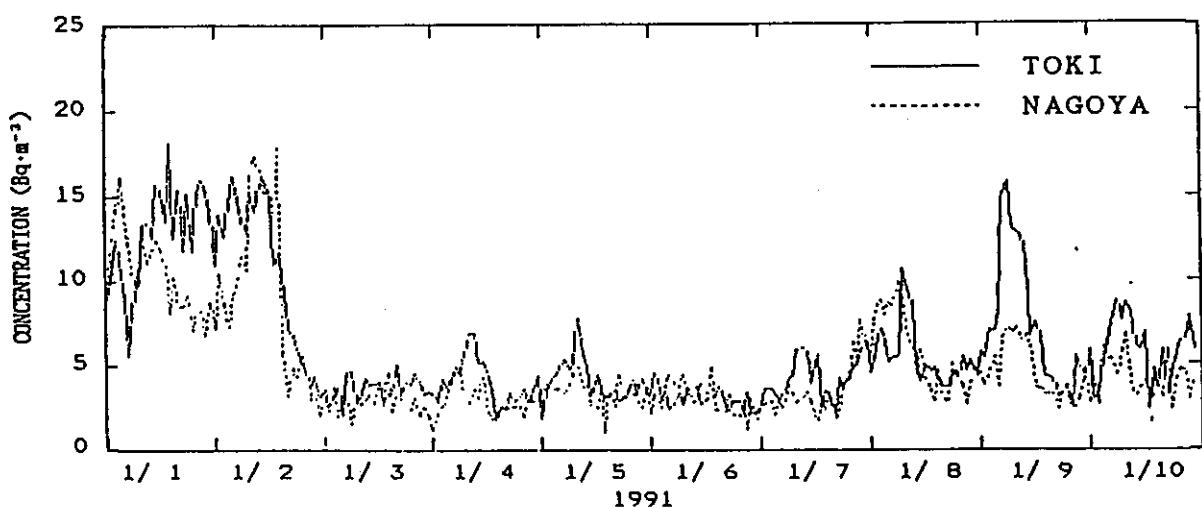


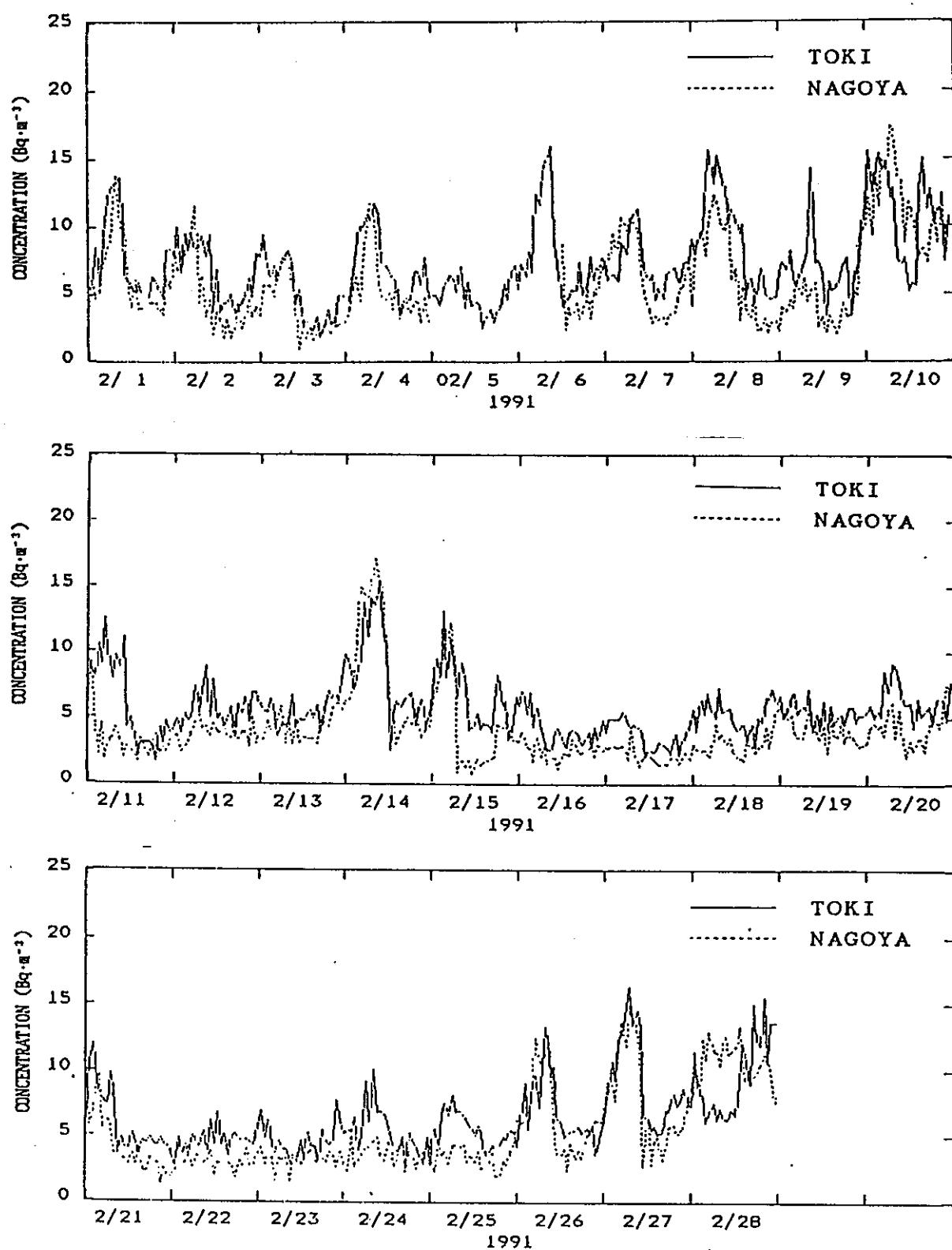
1990



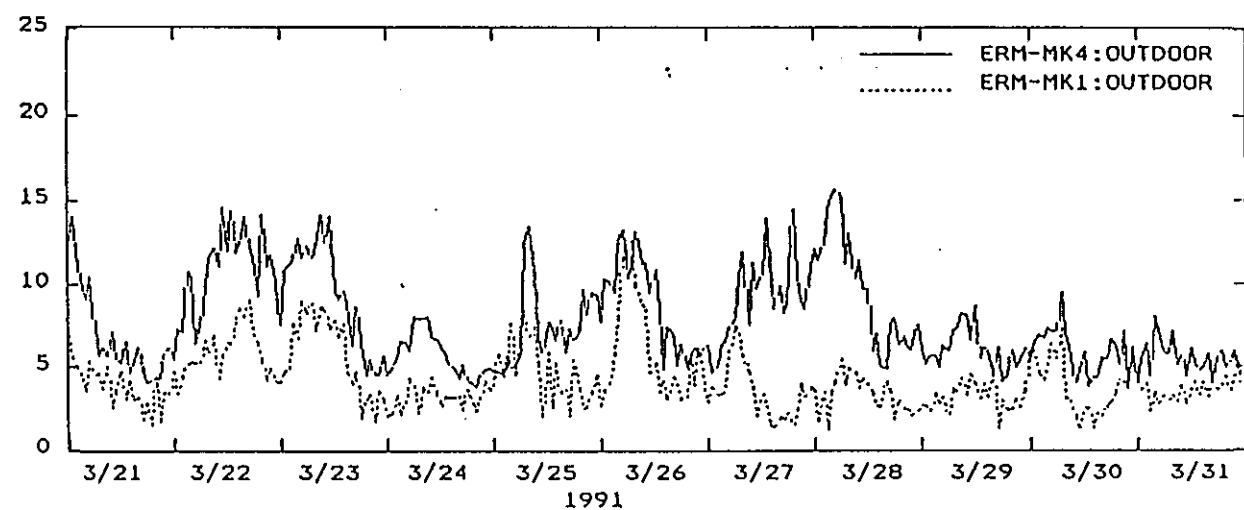
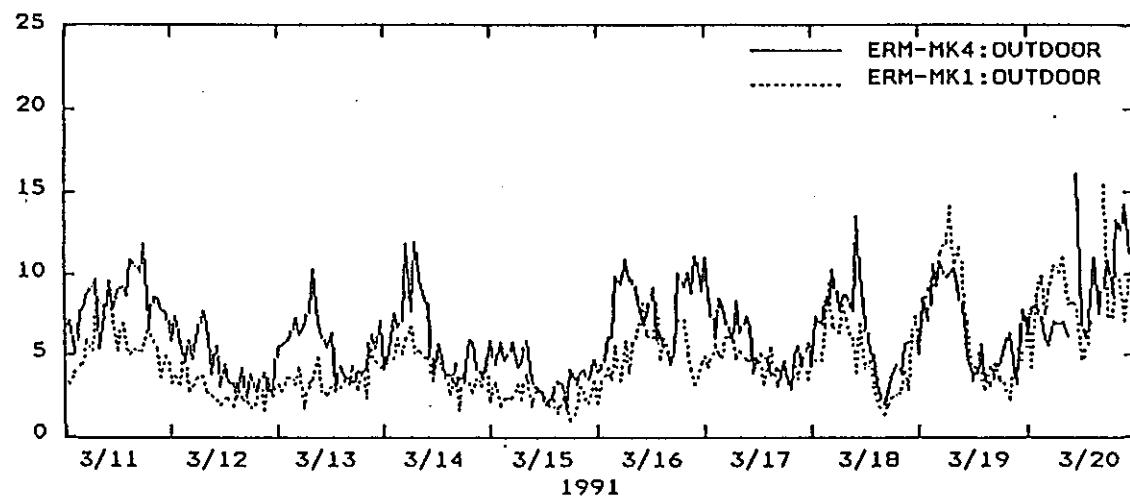
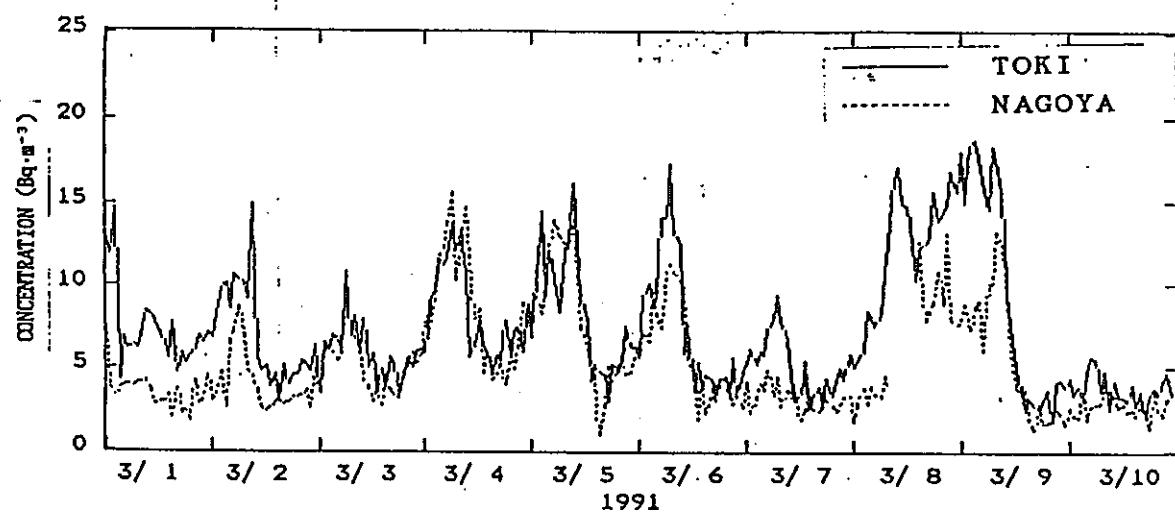


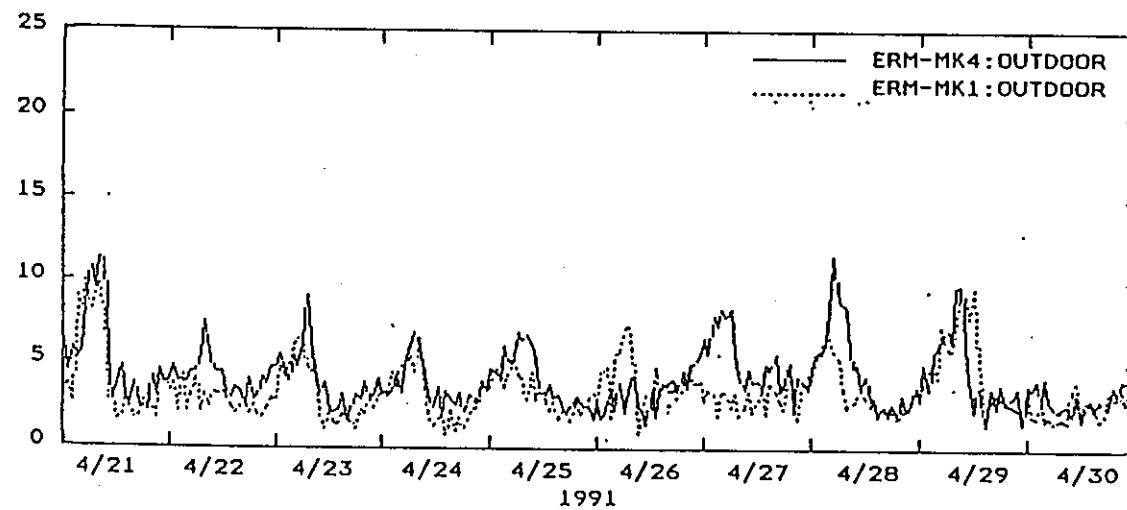
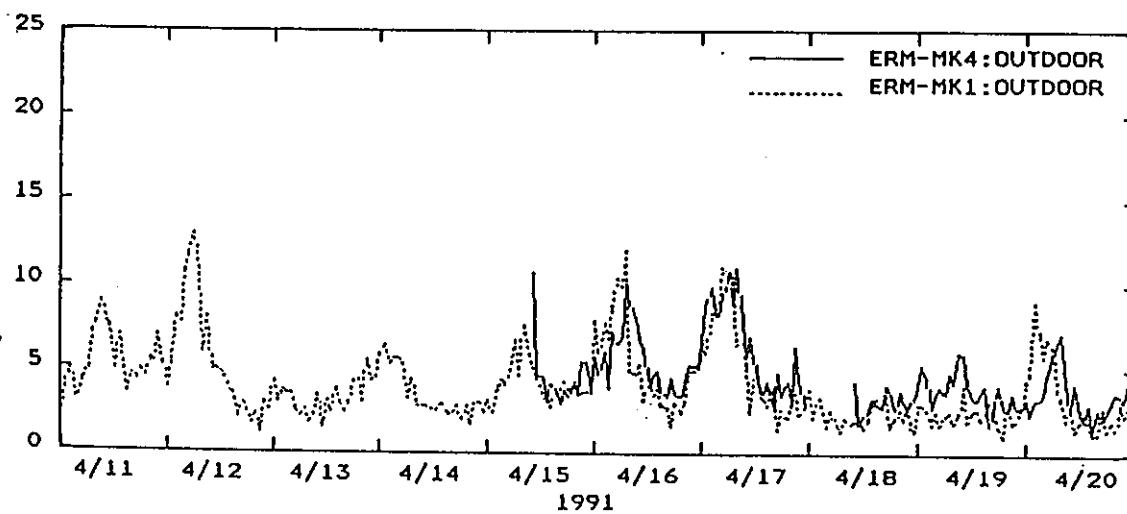
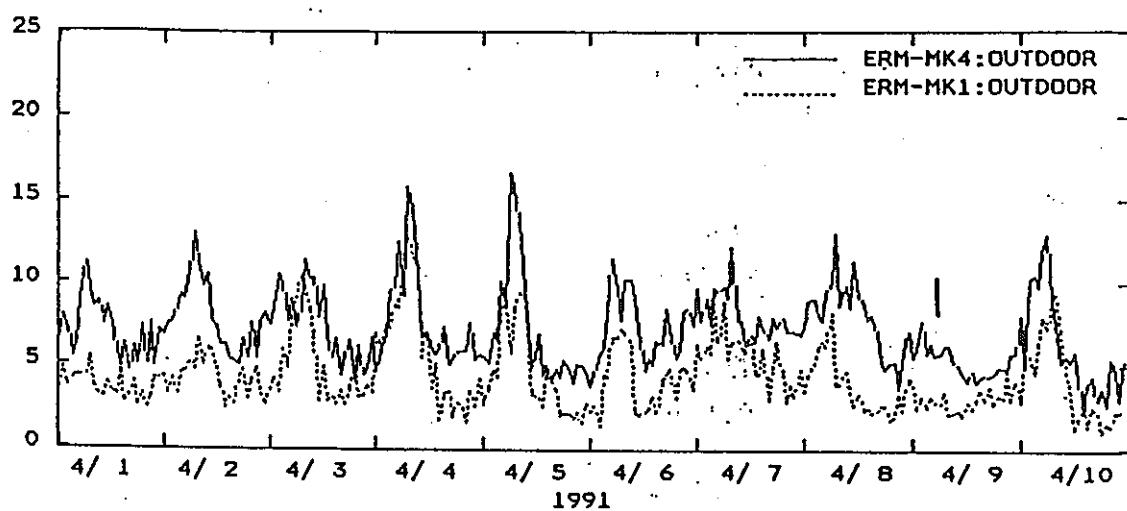


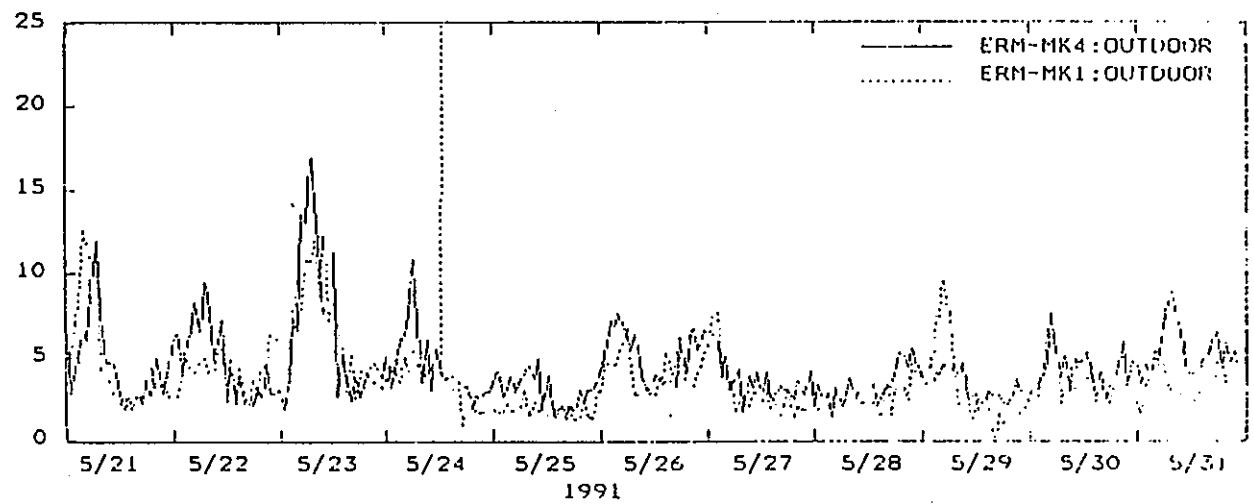
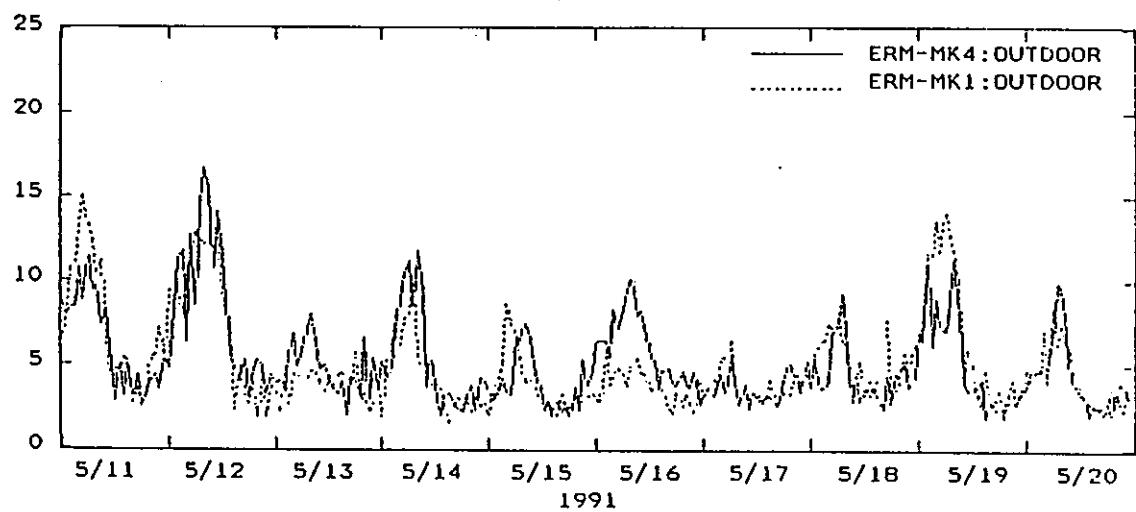
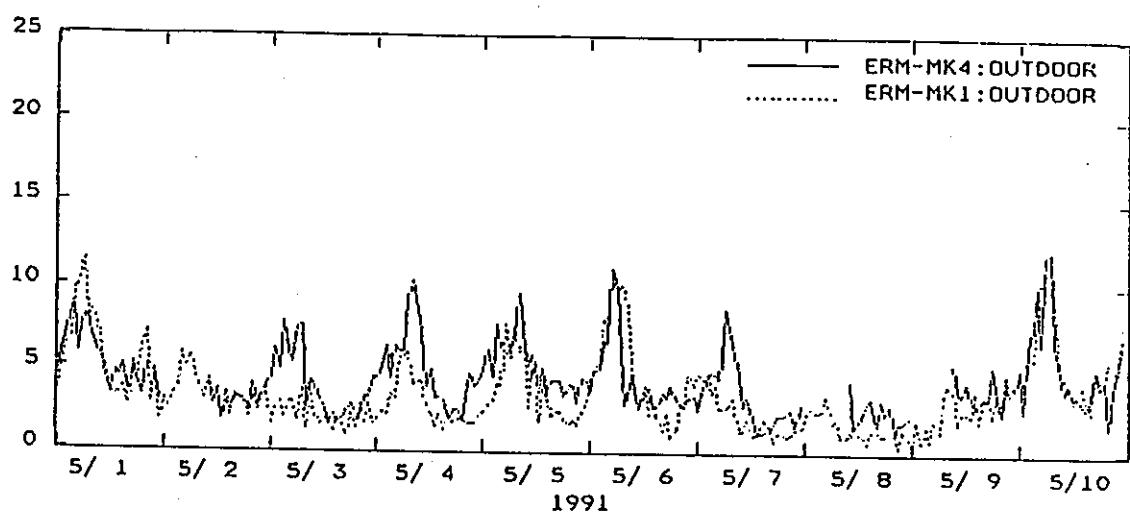


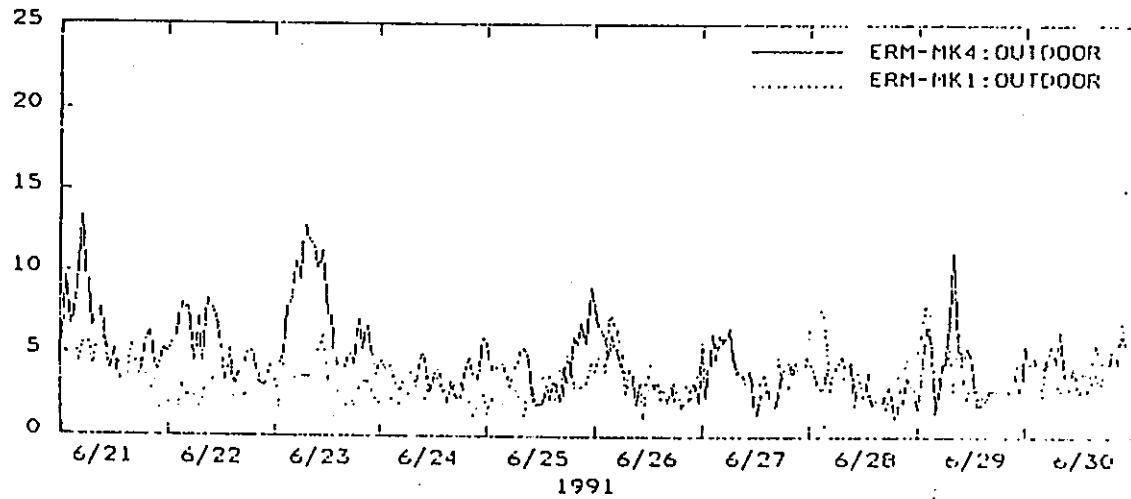
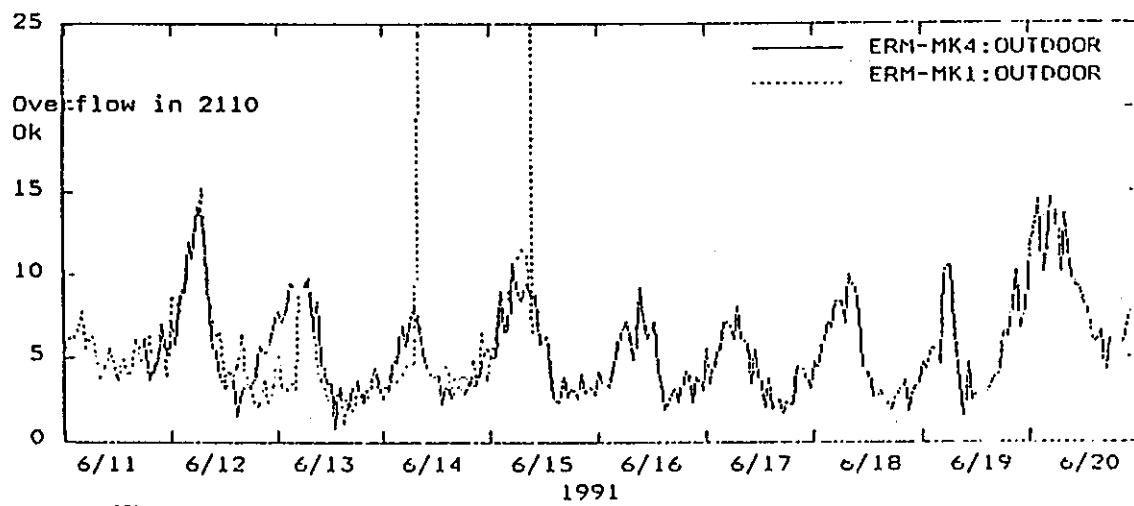
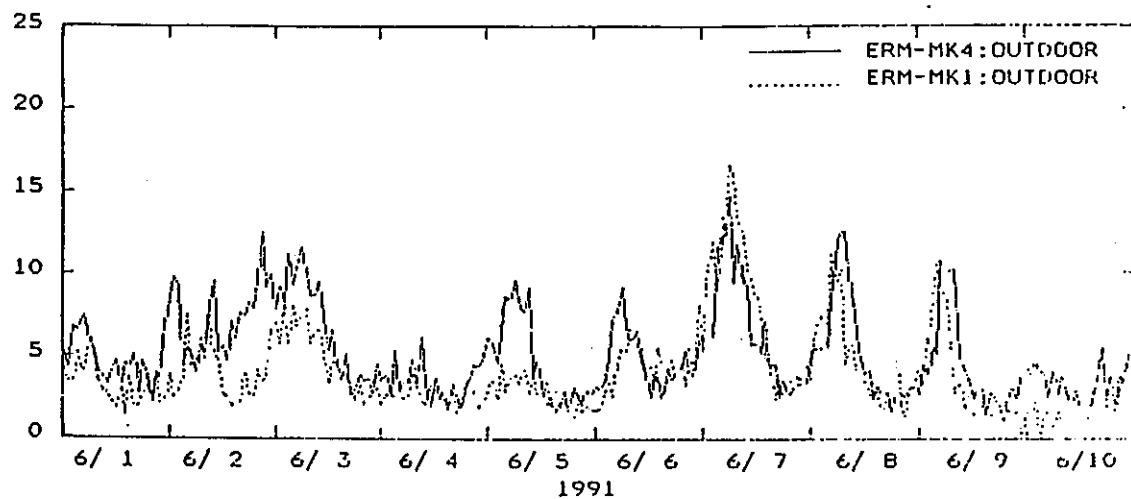


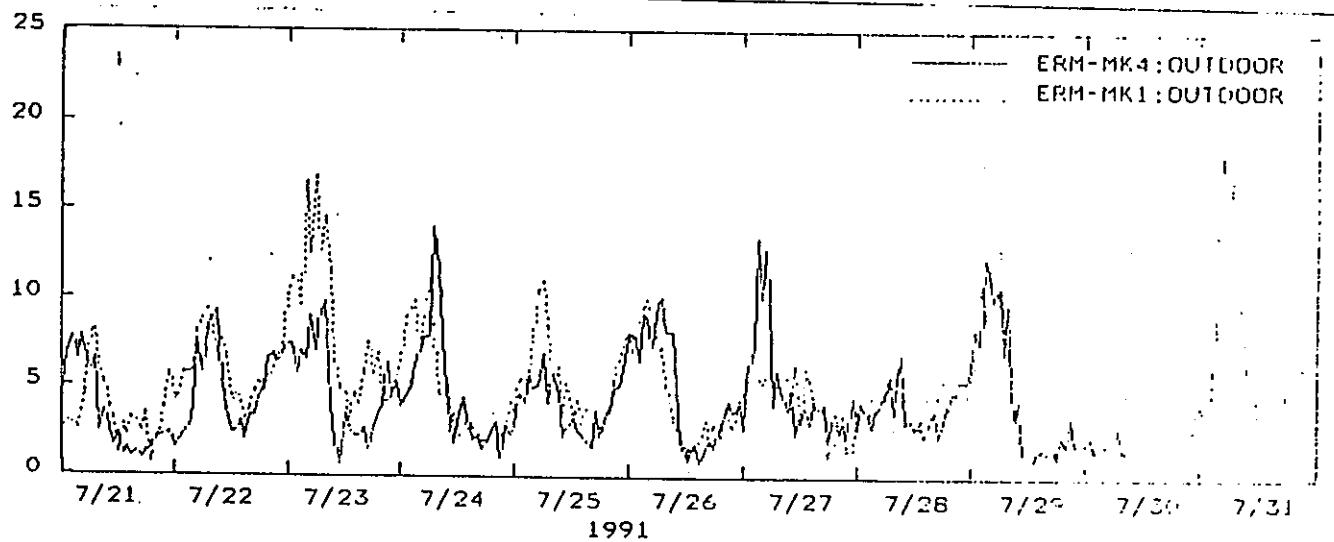
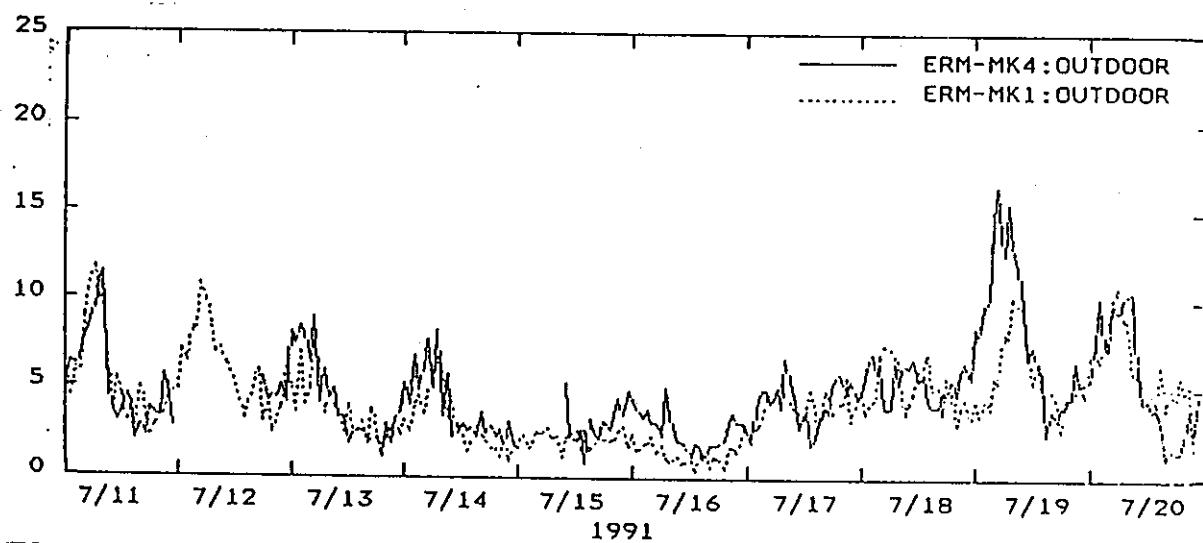
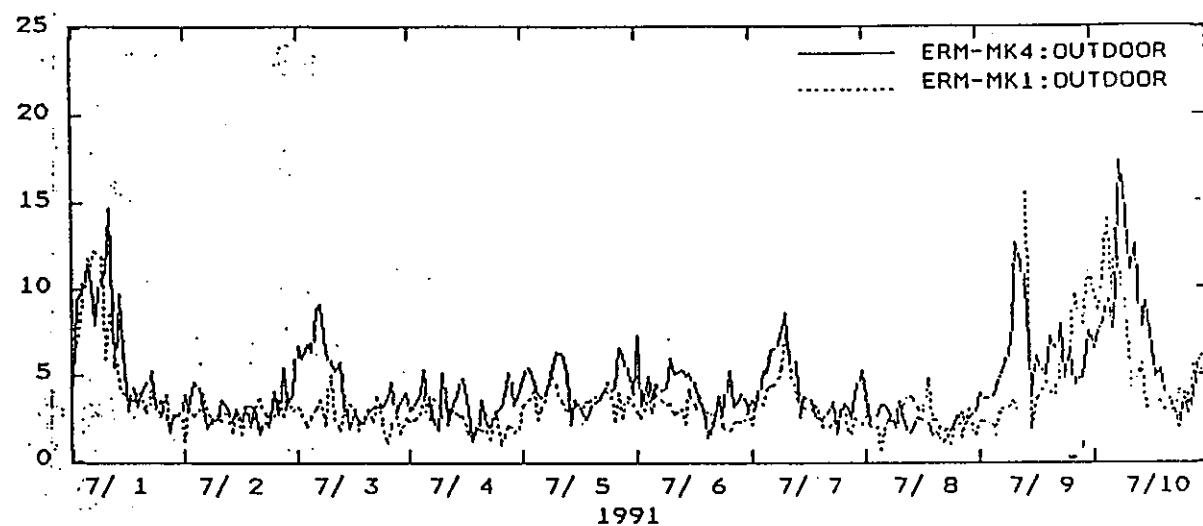
OUTDOOR³ RN CONCENTRATION (ERM-MK4)

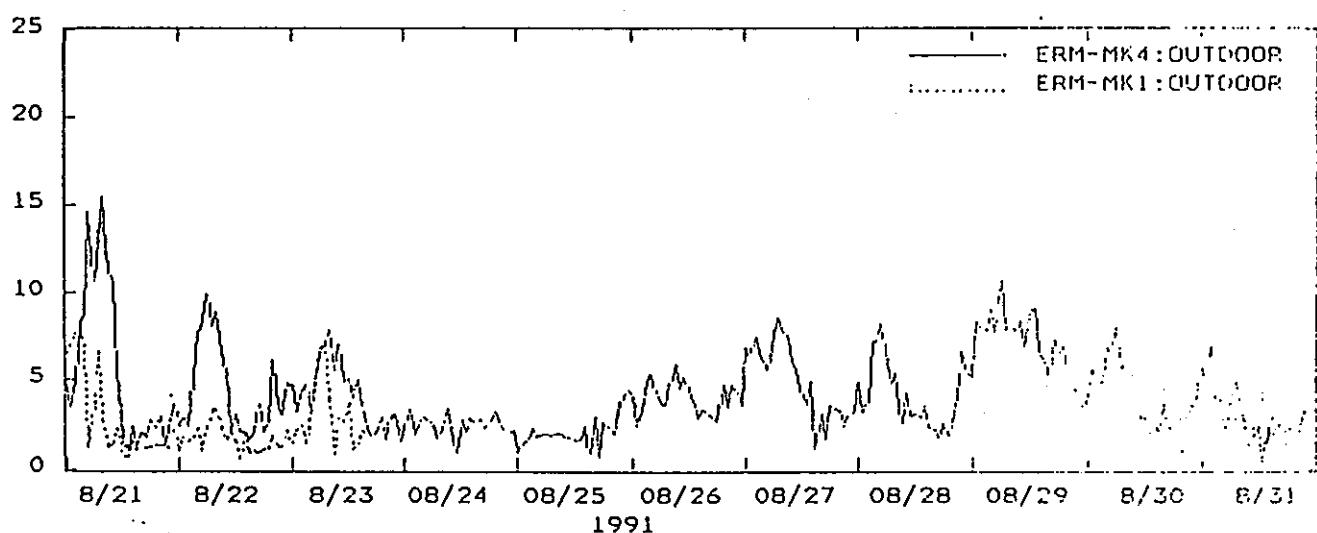
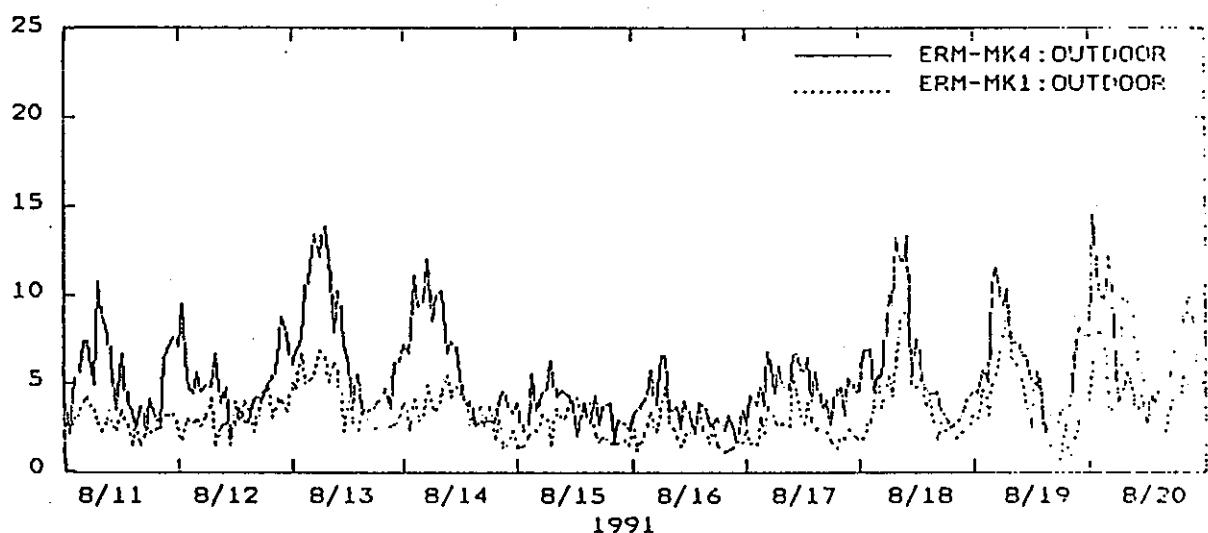
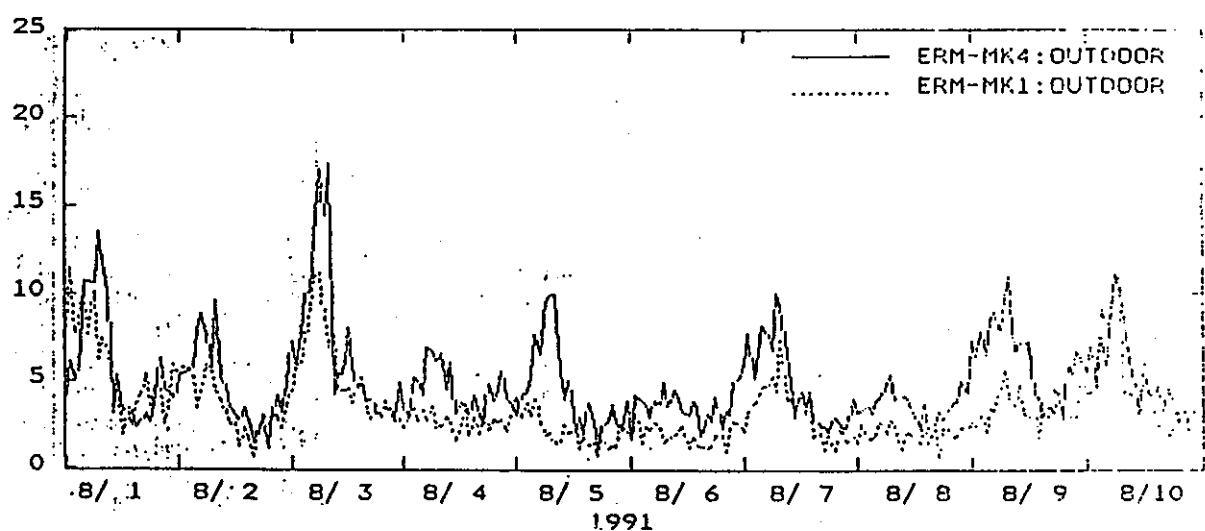


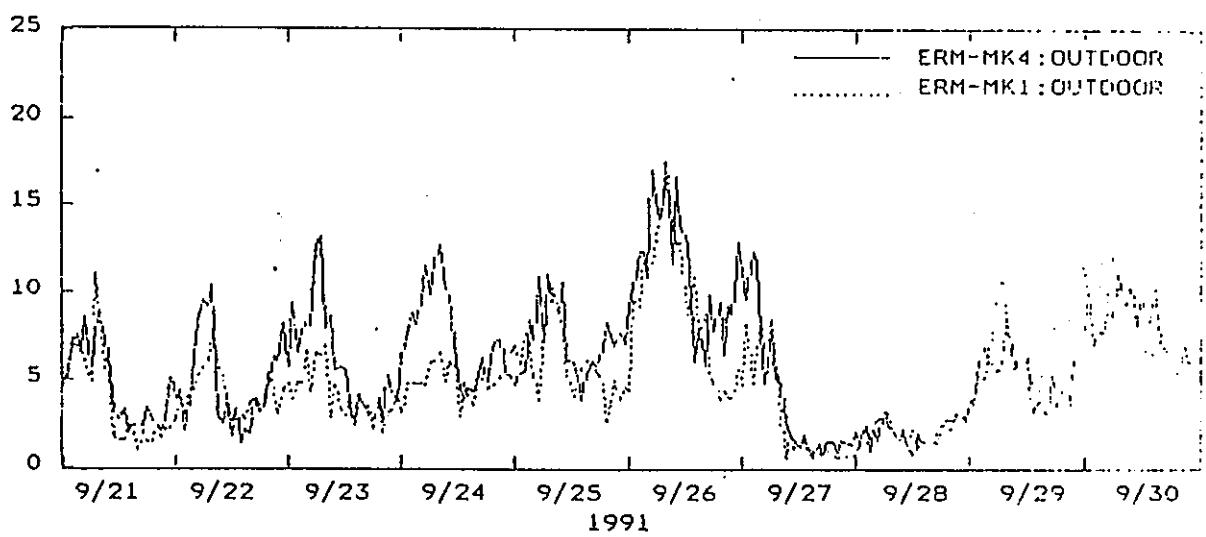
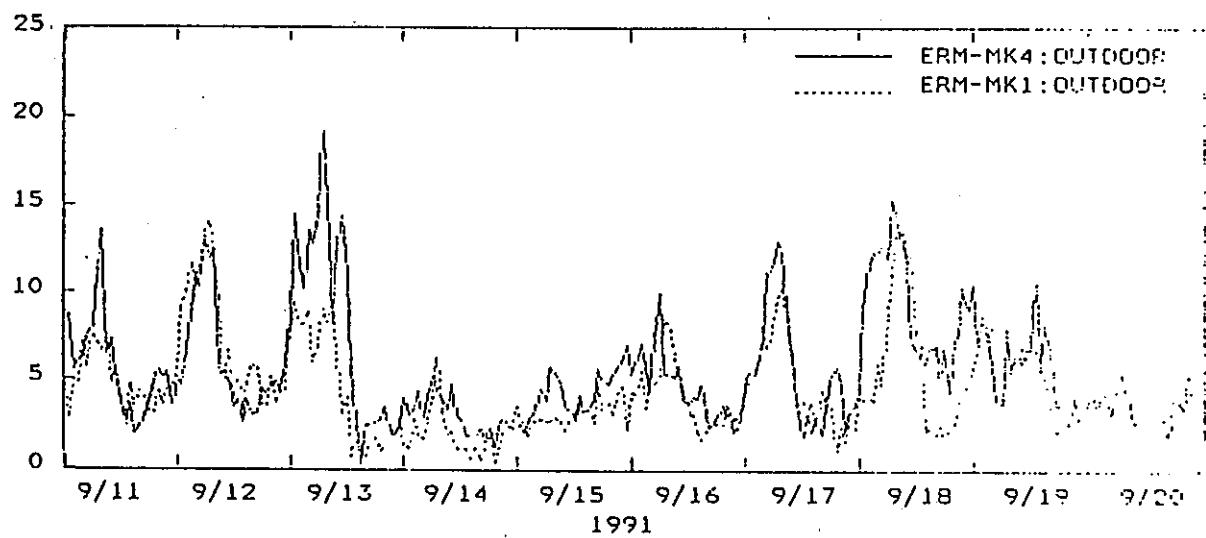
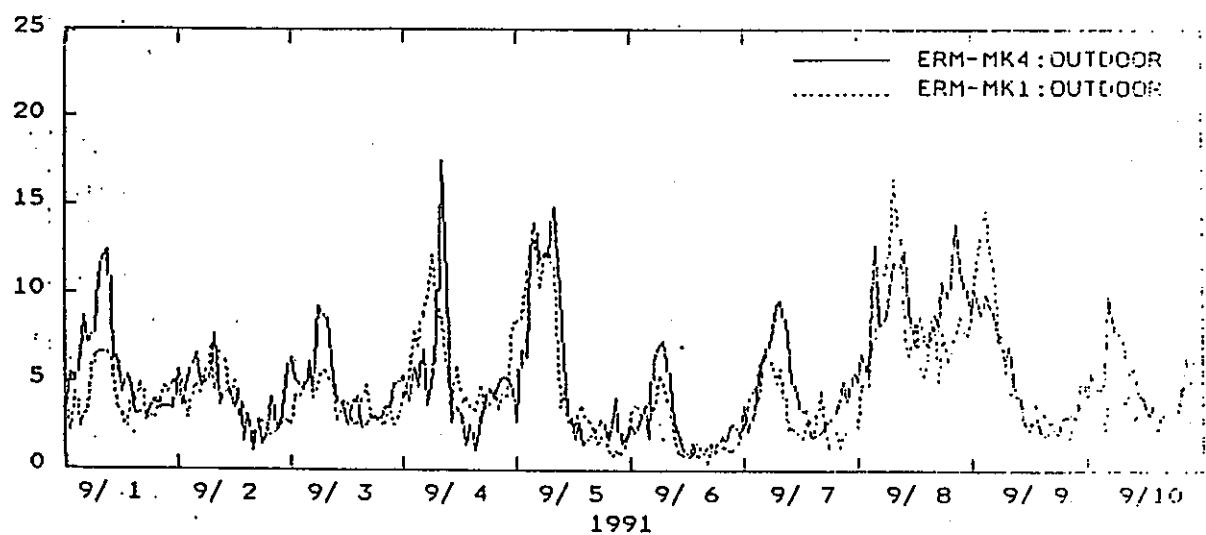


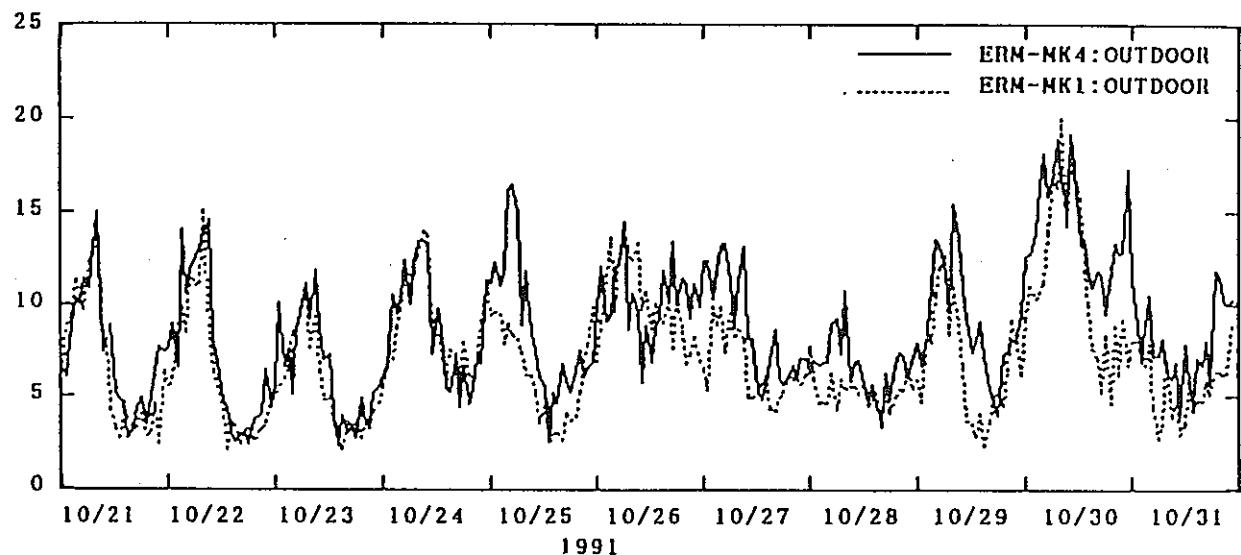
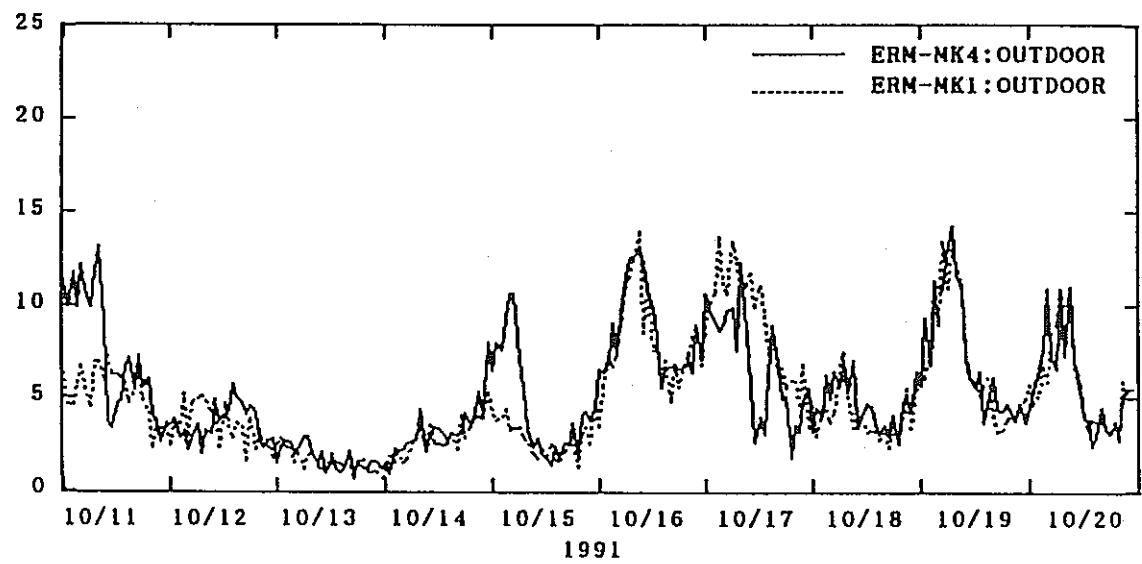
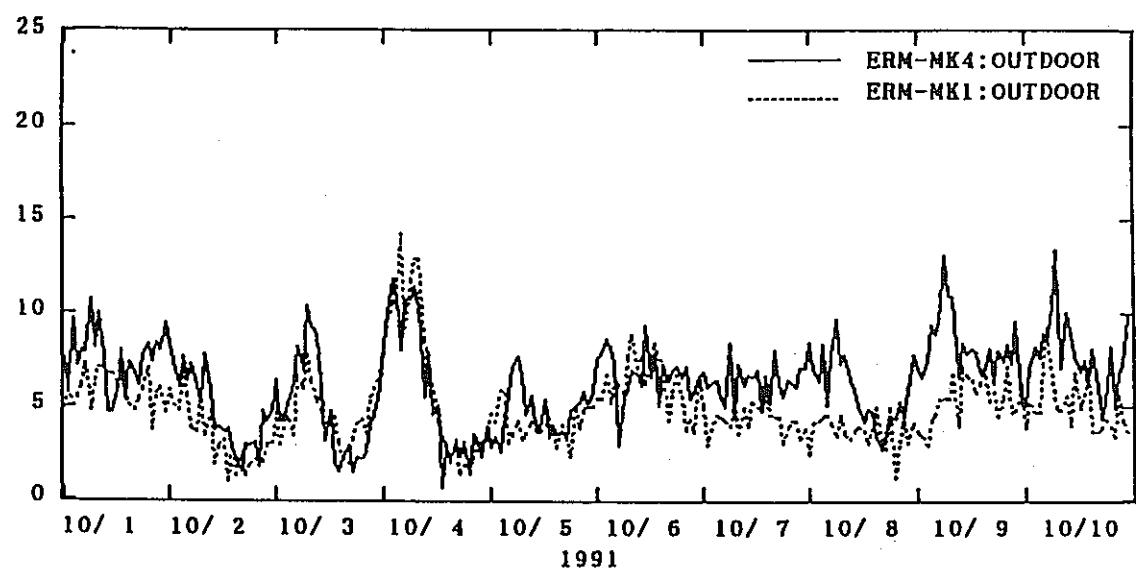


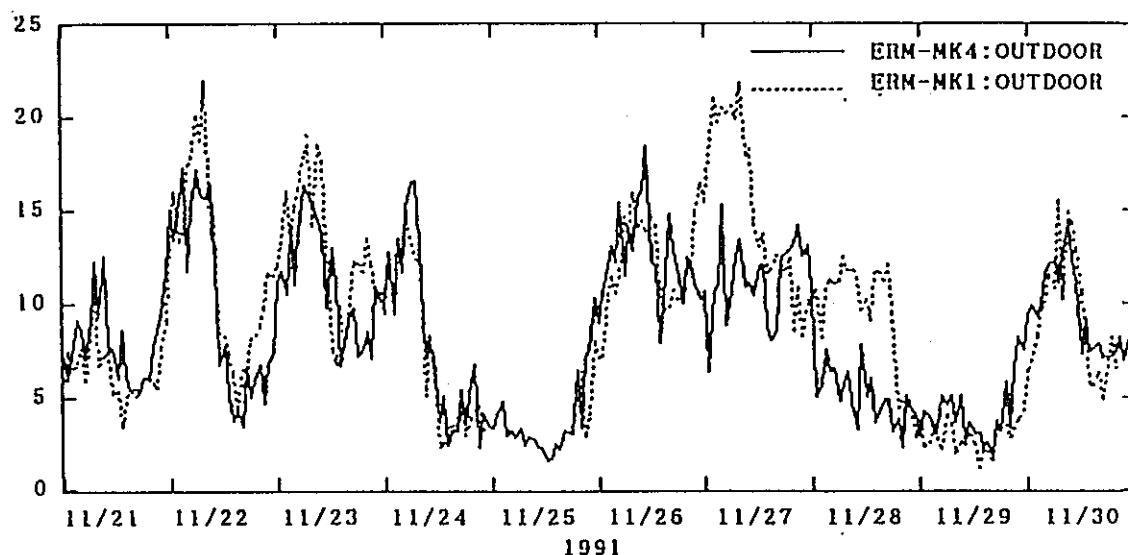
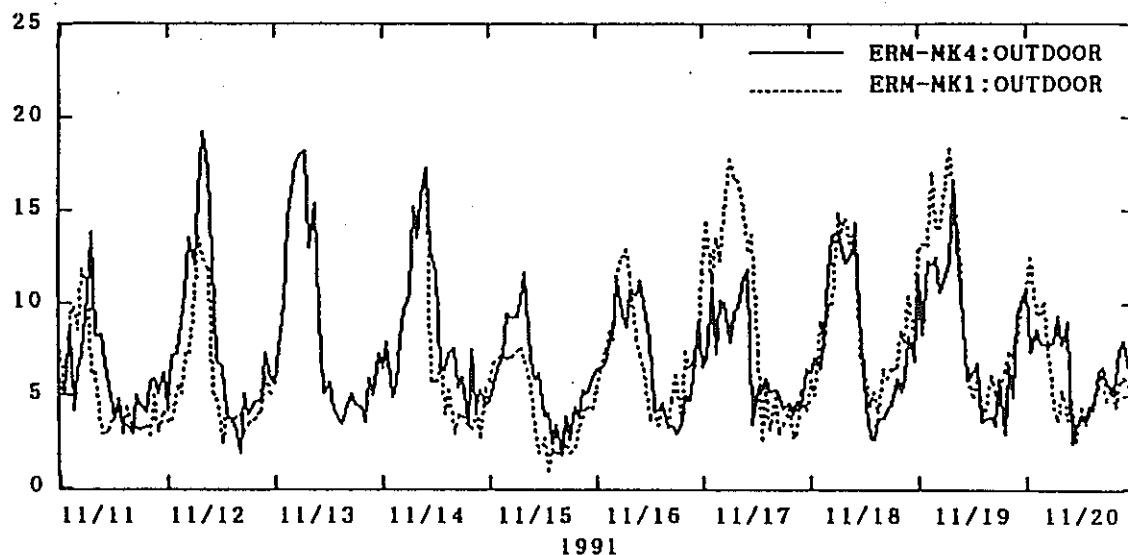
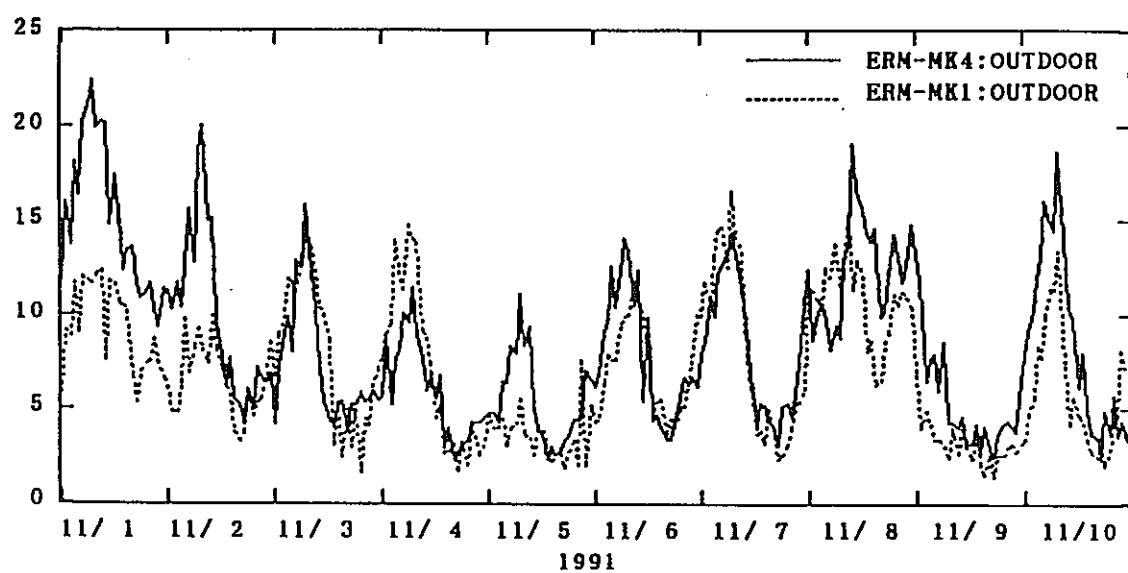


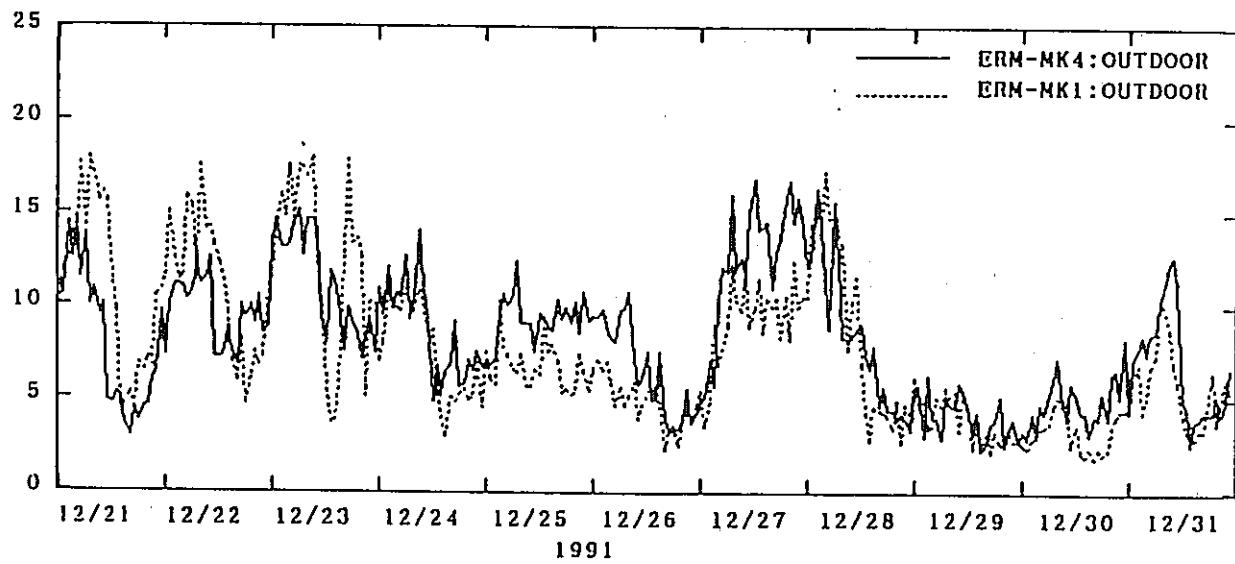
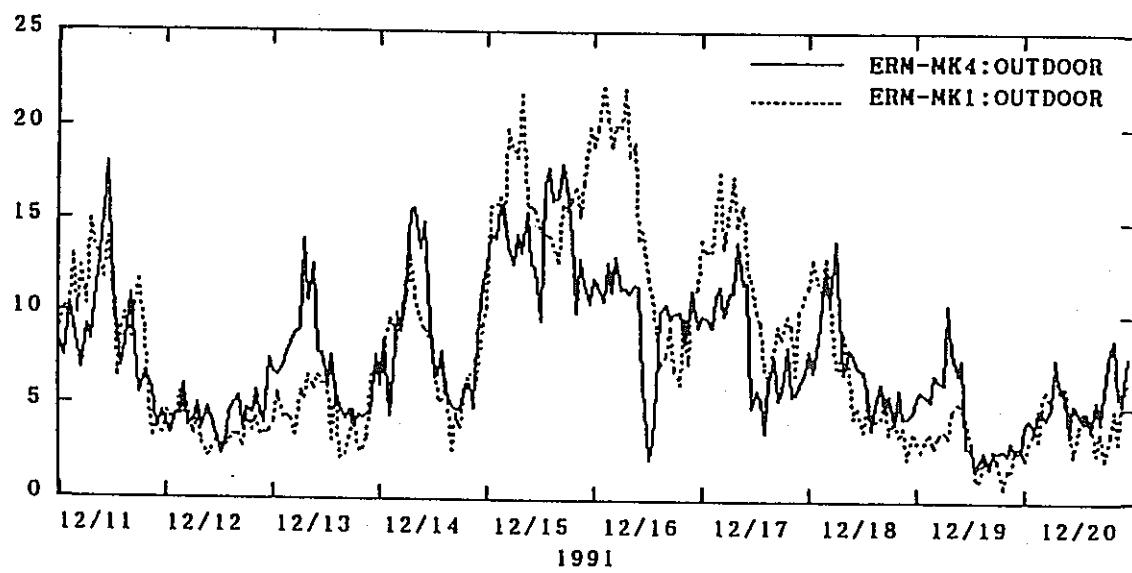
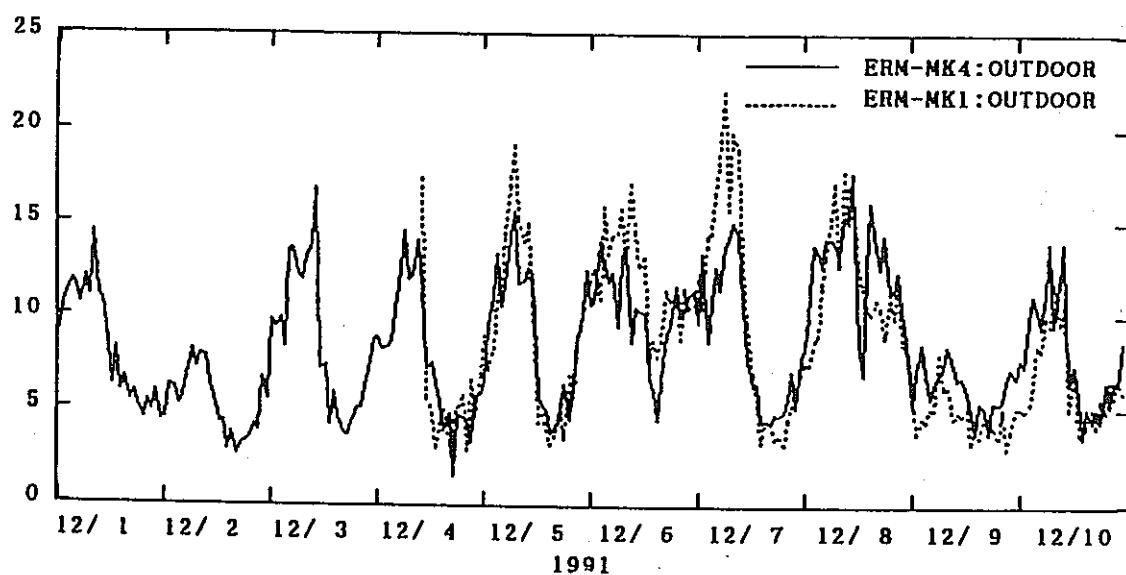






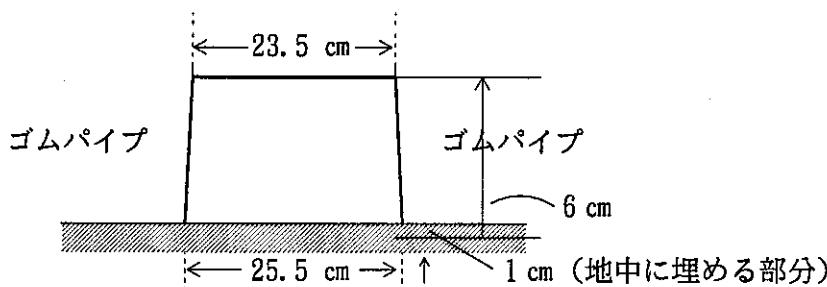






付録 3 散逸測定

☆捕集用容器



$$\begin{aligned} \text{容積: } V_N &= \pi r^2 h \\ &= 3.14 \times 12.25^2 \times 5 = 2355 \text{cm}^3 \\ &= 2360 \text{mℓ} \text{ (中国側の計算 } 2357 \text{ mℓ)} \end{aligned}$$

パイプ部分 (0.5cm ϕ , 長さ 83.5cm, 76.5cm)

$$\begin{aligned} V_p &= \pi r^2 h \\ &= 3.14 \times 0.25^2 \times 160 = 31.4 \text{ mℓ} \\ V &= V_N + V_p = 2390 \text{ mℓ} \end{aligned}$$

☆シンチセル容器: 700mℓ

☆散逸率の計算

$$E = f Q V / (T S)$$

f : 補正係数 ε : 捕集効率

$$f = \frac{1}{\varepsilon} \quad \varepsilon = \frac{\text{シンチセル封入後の濃度}}{\text{シンチセル封入前捕集容器内濃度}} = \frac{Q}{Q_0}$$

Q : シンチセルの濃度 (補正前)

V : 捕集容器の容積

T : 蓄積時間 (30min)

S : 捕集容器の底面積 (510cm 2)

☆採集効率 (ε) 又は補正係数 (f) の評価

(1) 原子力学会誌14(8), 415-421 (1972) によると、容器内のガスの変換は実験的には次式で表わされる。元から入っていた気体が t 時間後に残っている量 V^*

$$V^* = (1 - \ell) V_1 + \ell V_2$$

$$= (1 - \ell) (-vt + Vg) + \ell Vg \exp\left(-\frac{v}{Vg} t\right)$$

ここで、 $\ell : 0 \leq \ell \leq 1$ 実験的に決める値

v : 流量

t : 交換が始まってからの時間

Vg : 初期の量

同論文では、

チャンバー容積 30ℓ

流量 $40\ell/\text{min}$

で、5秒後ぐらいまでは、 ℓ はあまり関与しないことがわかる。即、1回入れ換わるのに相当する時間が45秒であるから、 $45/5 = 9$ 、つまり容器容積の $1/9$ の交換までは ℓ はあまり影響しない。

(2) 今回の採集では、

ラドン蓄積容器 2390ml

シンチセル 700ml (真空にして封入)

採集時間 $15\sim20\text{s}$ (シンチセル封入時間)

従って、流量は、 $2.8\sim2.1\ell/\text{min}$

(1) 即ち、 2390ml を約 $2.8\ell/\text{min}$ で、15秒間流したことになる。(通気量は $2.8\ell/\text{min} \times 15\text{s} \approx 700\text{ml}$)。

今、(1)での式がそのまま使えると仮定すると、

$$\ell = 0.7 \text{ (とする)}$$

$$v = 2.8\ell/\text{min} = 0.047\ell/\text{s}$$

$$t = 15\text{s}$$

$$Vg = 2,390\ell$$

として、

$$\begin{aligned}
 \therefore \frac{V}{Vg} &= (1 - 0.7) \left(-\frac{0.047 \times 15}{2.39} + 1 \right) \\
 &\quad + 0.7 \exp \left(-\frac{0.047 \times 15}{2.39} \right) \\
 &= 0.3 (1 - 0.29) + 0.7 \times 0.745 \\
 &= 0.213 + 0.525 \\
 &= 0.734 \quad (0.738 \sim 0.731)
 \end{aligned}$$

(ii) 故に、はじめの0.73が残り、0.27が出て行ったことになる。出て行った場合のラドン量は、捕集容器内のRn濃度を Q_0 とすると、

$$0.27Q_0 \times 2.39 \ell$$

で、それが700mlのシンチセルに封入されたのであるから、その場合の濃度（シンチセルでのRn濃度）は、

$$0.27Q_0 \times 2.39 / 0.7 = 0.92_2 Q^0$$

となる。

(iii) したがって、採集効率 ε は

$$\varepsilon = \frac{0.92Q_0}{Q_0} = 0.92_2$$

故に、補正係数 f は

$$f = \frac{1}{\varepsilon} = 1.08$$

となる。

これは、Rnが捕集容器とシンチセル系に均一に混合していると仮定した場合の効率

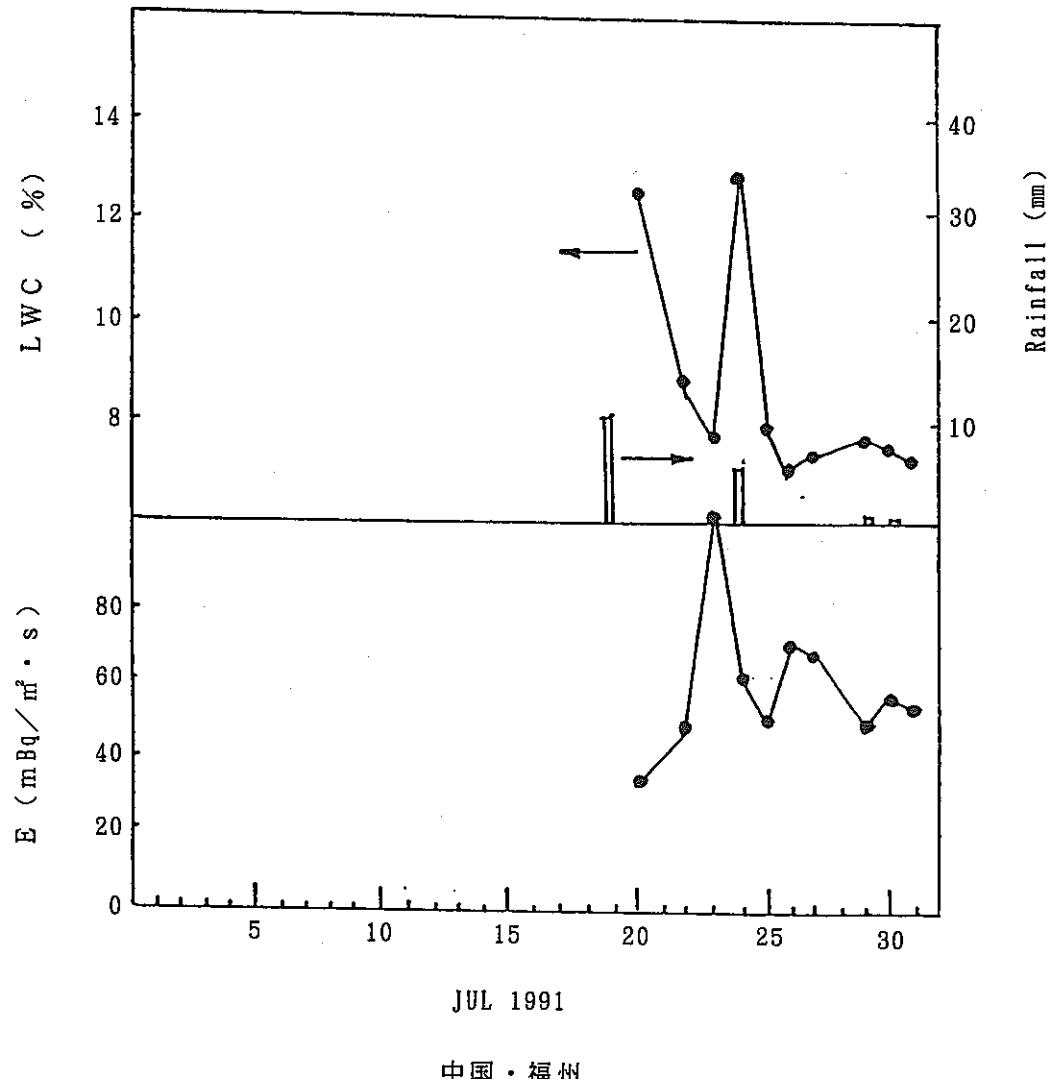
$$\varepsilon = \frac{2390}{2390 + 700} = 0.77$$

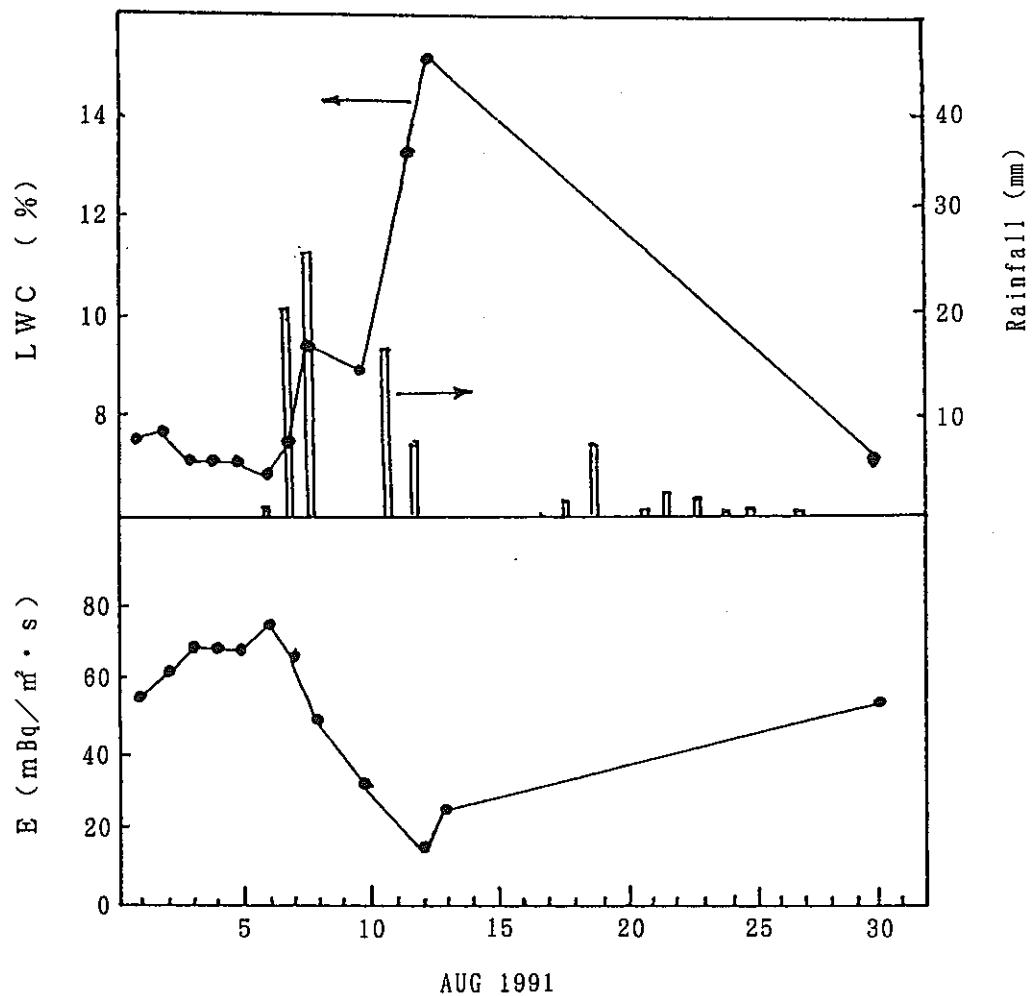
および補正係数

$$f = 1.30$$

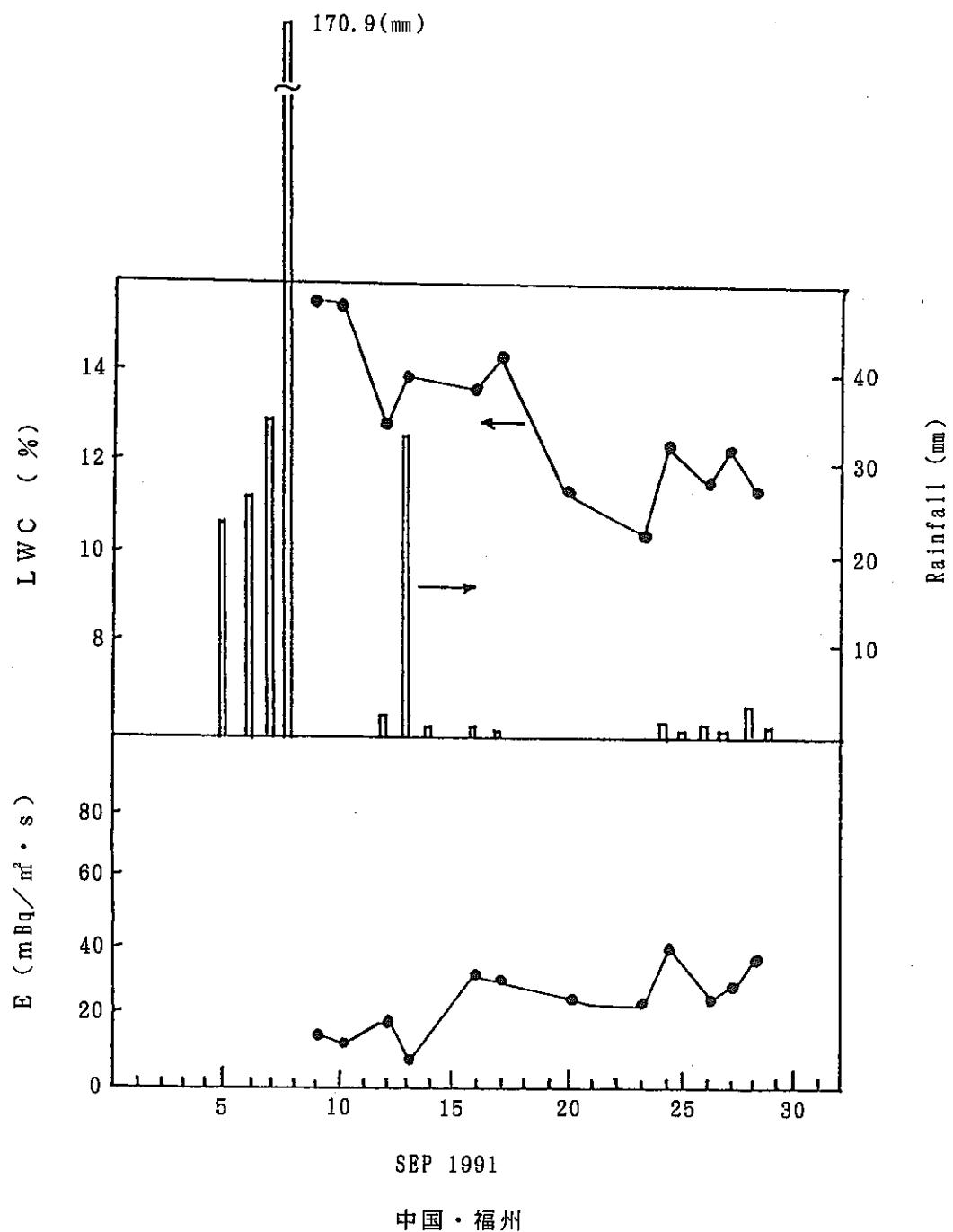
に近く、1.30は大きめの補正であることを考慮すると、 $f = 1.08$ は妥当な値と思われる。

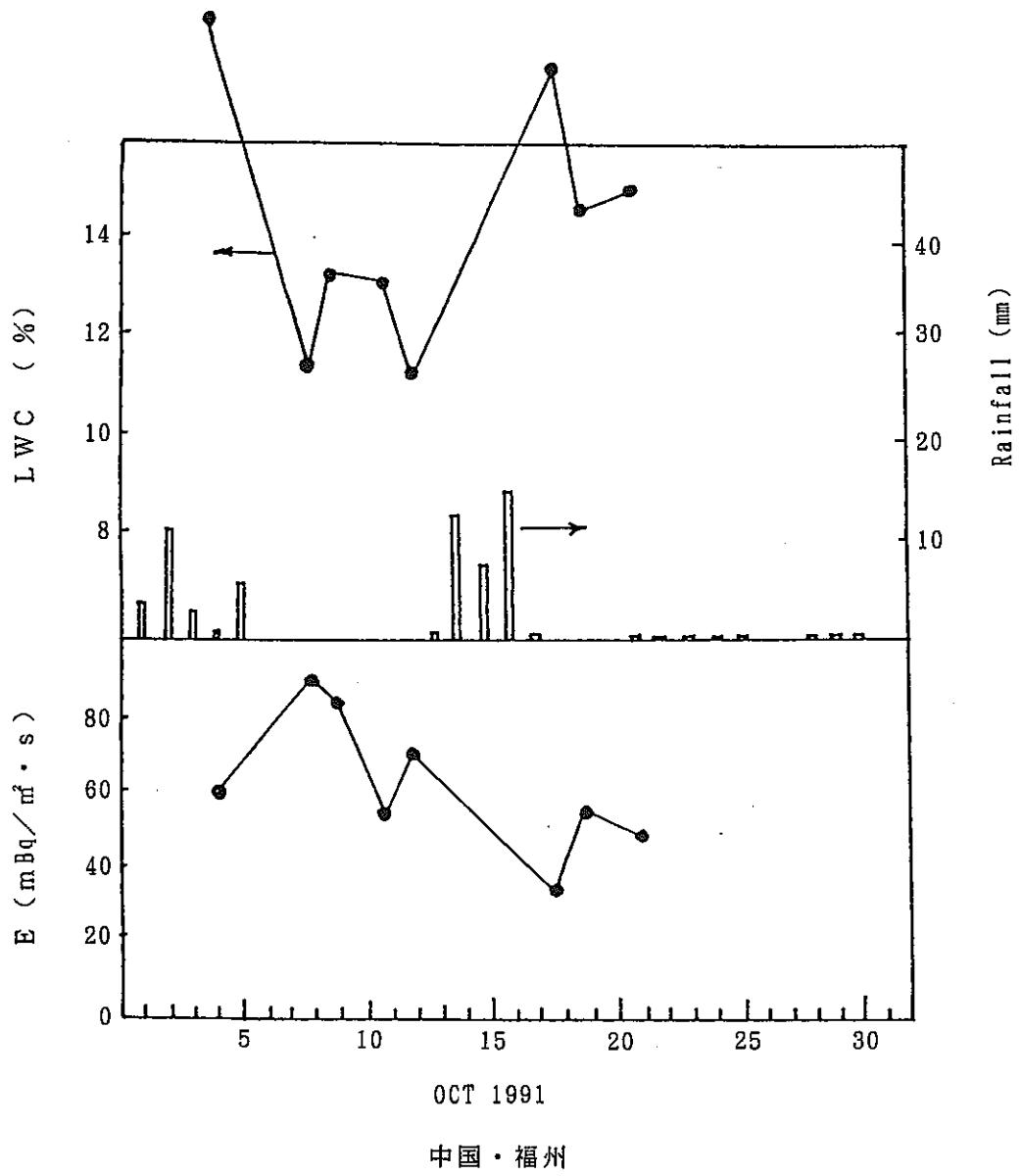
付録 4 中国福州における散逸率 E と土壤含水率 (LWC) の日々測定

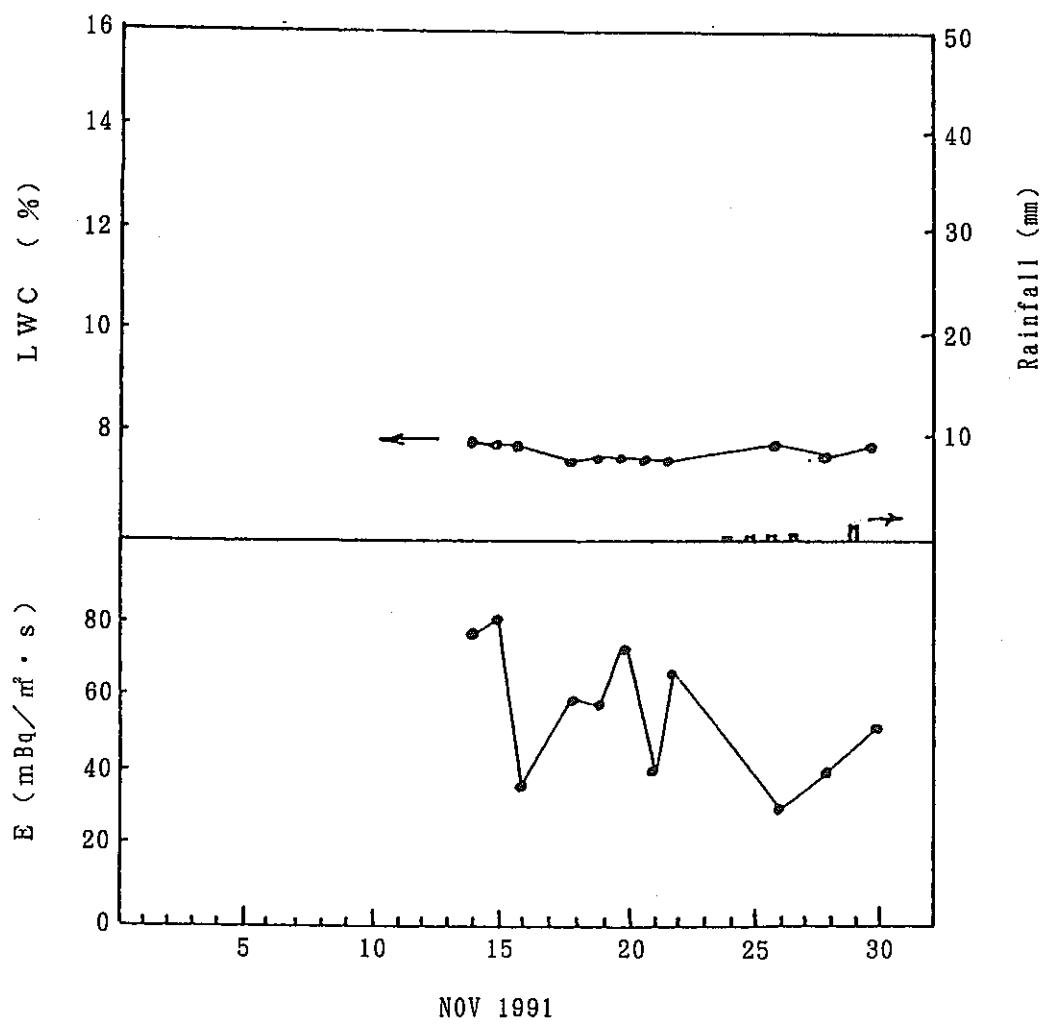




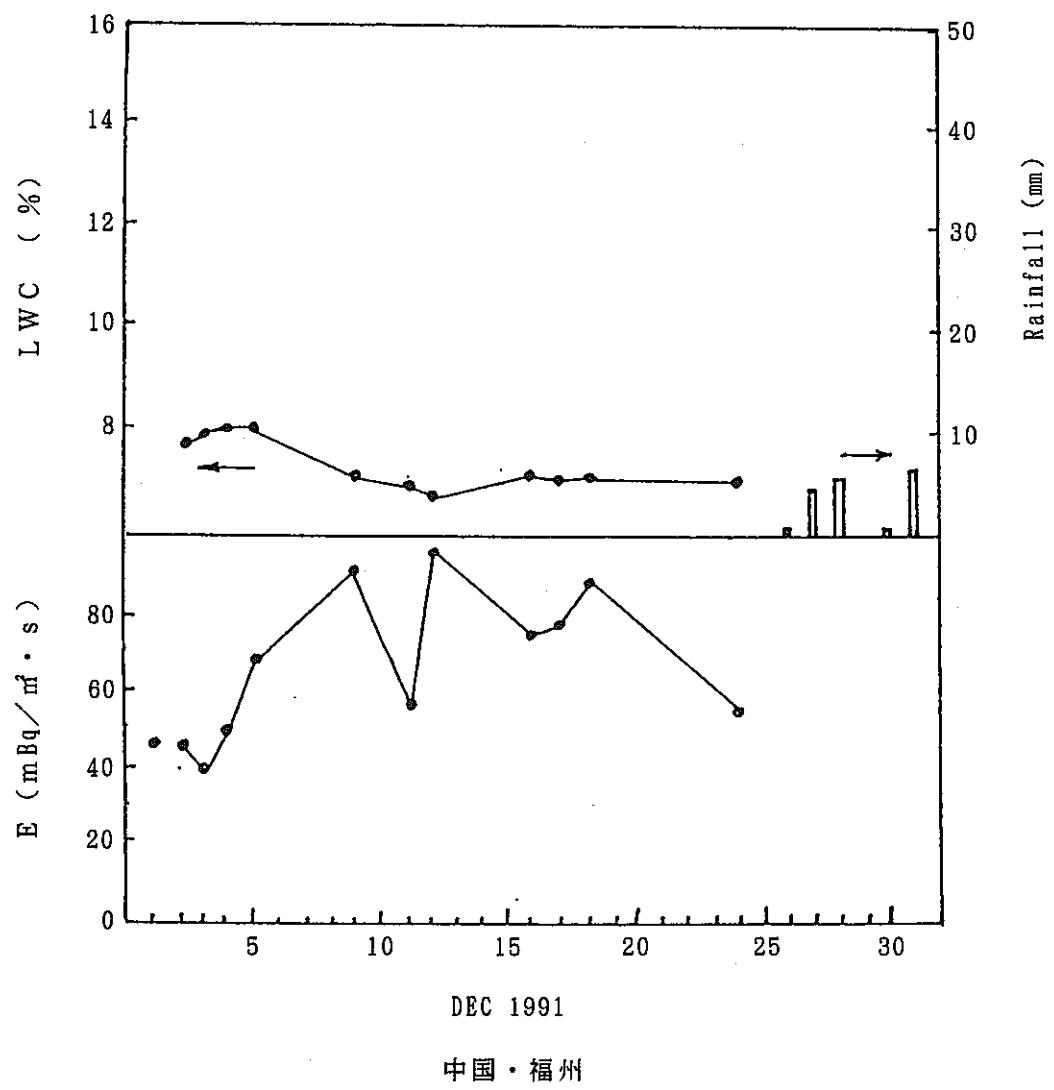
中国·福州

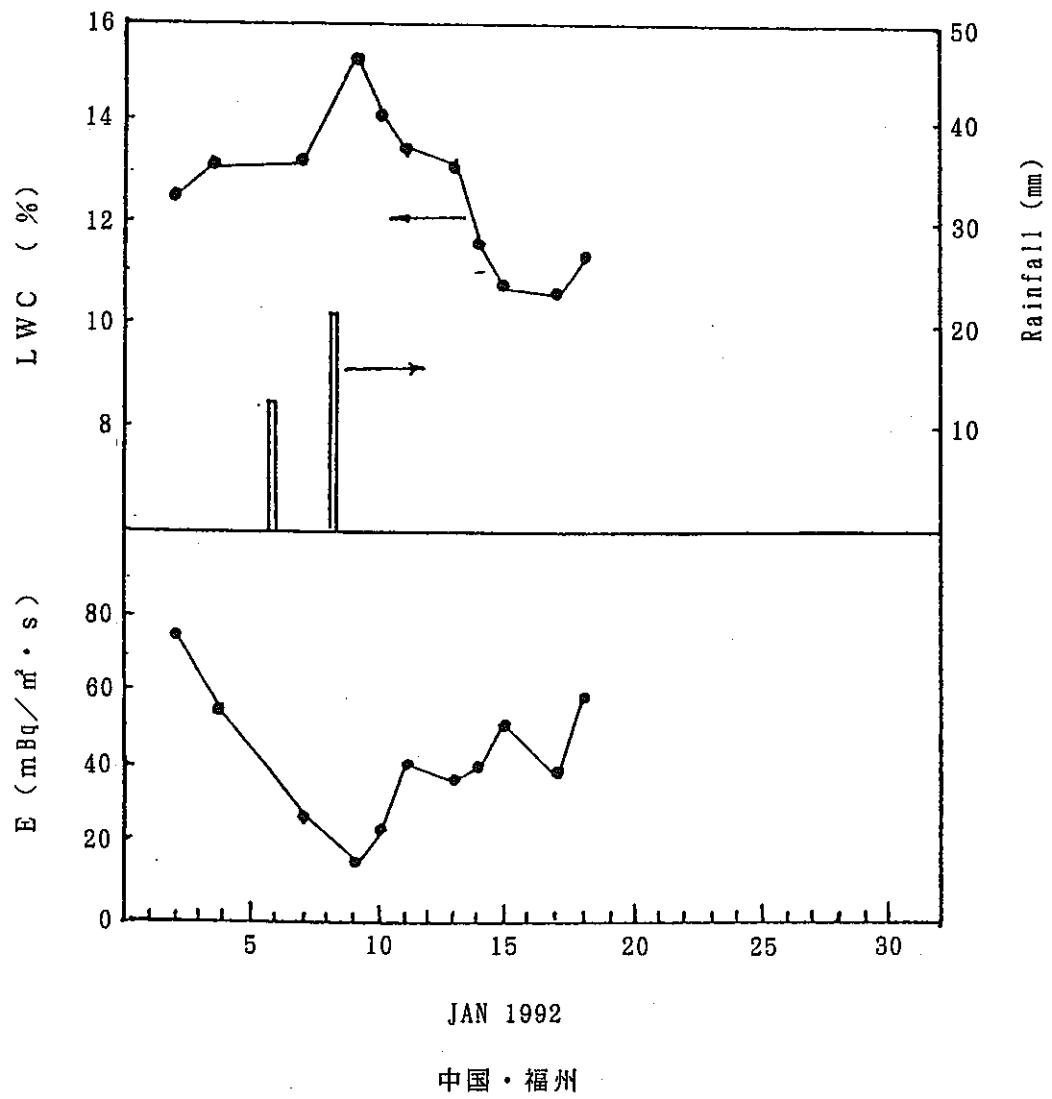






中国·福州





散逸率と相関因子の月平均値

