

本資料は〇一年一〇月々日付で登録区分、  
変更する。

[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(Ⅱ)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

平成5年3月

財団法人原子力安全技術センター

© 核燃料炉・核燃料開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合、下記に記載の会社にご連絡ください。  
〒319-1184 茨城県東海村大字村松4番地49  
技術管理部 技術情報室  
技術協力課  
日本原子力開発機構  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Nakagun, Ibaraki, 319-1184  
Japan Nuclear Cycle Development Institute,  
Technology Management Division,  
Technical Cooperation Section,  
Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

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わ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

配付限定  
PNC ~~1545~~ 93-005  
1993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、ラドンとトリチウムの広域挙動解明を目的として、次の調査研究を実施した。まず、中部地区のラドンの発生源分布を求め、日本の求め方を提言した。中国の発生源分布は、 $^{226}\text{Ra}$  含有量分布から計算によって求めた。この方法の問題点を検討するため、本調査研究では北京と福州において散逸率と土壤の含水率の測定を実施した。検討に基づいて、プルームモデルを用いた計算とラドンの積分濃度から散逸率を推定する別の方針を提言した。次に、ラドンの大気中動態の数値シミュレーション開発の現状について調査を行い、計算値が実測値と一致することを示した。最後に、日本と中国の環境水中のトリチウムの分布と変動について文献調査を行った。また、現在実施中の東アジア地域の環境水中トリチウムの組織的調査を紹介した。

\*本契約書は(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-----040 D 0198

事業担当者：浅野智宏 安全部安全管理課

LIMITED DISTRBUTION  
PNC PJ1545 93-005  
MARCH, 1993

登録区分  
01/10/4  
変更表

Survey on the behavior of radioactive substances in the atmosphere

ABSTRACT

To clarify the behavior of radioactive substances in the atmosphere, we must study both local and regional scale behaviors. For the purpose of clarifying the regional scale behavior of  $^{222}\text{Rn}$  and  $^3\text{H}$ , we carried out the following study: First we estimated the horizontal distribution of radon exhalation rate at Chubu-District, and proposed a method for estimating those in Japan. The regional distribution of radon exhalation rate in China was estimated from a chart of  $^{226}\text{Ra}$  content in soil by using a theoretical formula. To clarify the problems arising from applying the formula, exhalation rate and soil moisture have been measured at Beijing and Fuzhou. Based on the investigation, we proposed another procedure for assuming the exhalation rate using both observed integrating radon concentration and calculated one from plume model and meteorological data. Next, we surveyed the development of numerical simulation for radon behavior in the atmosphere, and showed that calculated temporal variation of radon concentration agrees fairly well with observed one at Nagoya. Finally we surveyed the temporal variation and regional distribution of environmental tritium in Japan and China, and also introduced the present nation-wide survey of environmental tritium in Eastern Asia (China and Japan).

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

PNC Liaison: Tomohiro Asano, 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（II）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 放射線医学研究所 環境衛生研究部第一研究室長
	下 道 國	岐阜医療技術短期大学教授
	飯 田 孝 夫	名古屋大学工学部原子核工学部助手
	永 峰 康一郎	名古屋大学工学部原子核工学部助手
	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
2. ラドンの発生源分布の評価 .....	2
2.1 日本の発生源分布 .....	2
2.2 中国の発生源分布 .....	6
3. ラドンの大気中挙動モデルの調査 .....	10
3.1 数値シミュレーション .....	10
3.2 プルームモデルを用いた解析 .....	11
3.3 中国におけるラドンの連続測定 .....	18
4. 東アジアにおけるトリチウムの調査 .....	19
4.1 はじめに .....	19
4.2 環境水中のトリチウムの分布と変動 .....	20
4.3 水蒸気中トリチウムの測定 .....	23
付 錄 北京におけるラドン濃度連続測定 .....	29

## 図 表 目 次

Fig. 1 Deviation of Rn exhalation rate around Nagoya University .....	3
Fig. 2 Regional distribution of annual mean Rn concentration .....	4
Fig. 3 Relationship between annual mean Rn concentration and exhalation rate ...	4
Fig. 4 Regional distribution of Rn exhalation rate inferred from Rn concentration .....	5
Fig. 5 Relationship between annual mean Rn concentration and exposure rate due to external natural radiation .....	5
Fig. 6 Distribution of Rn exhalation rate in China (atoms cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ) .....	6
Fig. 7 Relationship between Rn exhalation rate and liquid water content of soil at Beijing and Chaungchun .....	9
Fig. 8 Correlation between liquid water content of soil and Rn exhalation rate .....	10
Fig. 9 Map of six classified Rn sources .....	10
Fig. 10 Calculated Rn concerntation from six classified sourced in December, 1990 .....	11
Fig. 11 Comparison between calculated and observed Rn concentration .....	12
Fig. 12 Calculation of Rn concentration classified by source distance .....	13
Fig. 13 Comparison between calculated and observed Rn concentration .....	14
Fig. 14 Relationship between Rn concentration and atmospheric stbility .....	15
Fig. 15 Comparison between calculated and observed Rn concentration in 1990 .....	16
Fig. 16 Temporal variation of observed Rn concentration at Beijing in 1992 .....	17
Fig. 17 Temporal variation of observed Rn concentration at Fuzhou .....	18
Fig. 18 Monthly variation of <sup>3</sup> H concentration in rain water .....	20
Fig. 19 Monthly variation of <sup>3</sup> H concentration in water vapor .....	21
Fig. 20 Temporal variation of <sup>3</sup> H concentration in rain water in Japan .....	21
Fig. 21 Comparison of latitude effect between Japan and China .....	23
Fig. 22 Distribution of <sup>3</sup> H concentration in rain water in Eastern Asia.....	24

Fig.23 Apparatus for sampling of water vapor .....	24
Fig.24 Apparatus for collecting water vapor .....	25
Fig.25 Comparison between passive and active sampling method .....	26
Table 1 List of observation data at Beijing and Chaungchun .....	8
Table 2 Observed apparent half life of $^{3}\text{H}$ in rain water .....	22
Table 3 Observed apparent half life of $^{3}\text{H}$ in water vapor .....	22
Table 4 Cross-checking of $^{3}\text{H}$ analysis between Japan and China .....	27
Table 5 List of $^{3}\text{H}$ concentration in water vapor in Eastern Asia .....	28

## 1. 序

原子力開発を推進するためにあたっては、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 ( $^{222}\text{Rn}$ ) とトリチウム ( $^3\text{H}$ ) に着目し、その広域挙動に関する調査研究を目的としている。この報告の構成と概要を述べる。

### 1.1 序

序では、この報告の概要を述べている。

### 1.2 ラドンの発生源分布の評価

ラドンの大気中挙動を知るために欠かせない発生源分布について述べている。

濃尾平野を中心とする中部地区において、ラドン濃度の年平均値と散逸率の測定値の間に直線関係が見出された。この関係を用いて、ラドン濃度分布図から散逸率分布図を得ることができた (Fig. 4)。また中部地区以外では、環境放射線の全国調査の結果からラドン散逸率の分布を知る方法が現時点では有力な方法である。

中国のラドン発生源分布については、組織的調査によって得られている土壤の  $^{226}\text{Ra}$  含有量分布図から理論計算によって散逸率分布図を作成した (Fig. 6)。この方法には問題点が含まれているため、北京において散逸率、土壤の含水率、 $^{226}\text{Ra}$  含有量などの測定を実施して検討した。その結果、土壤物性の差異が理論計算に及ぼす影響が大きい可能性が示唆された。

### 1.3 ラドンの大気中挙動モデルの調査

ラドンの大気中動態を知るための数値シミュレーションとしては、広域スケールと局地スケールのシミュレーションを同時にやって、両者による計算結果を加算した計算値を実測値と比較する必要がある。その結果、計算値は実測値とかなり良い一致を示し、数値シミュレーションコードの妥当性を検証することができた。また、発生源分布として中部地区で得られた発生源分布を採用することによって、一様分布を仮定した場合よりも計算値が測定値によく一致した。この数値シミュレーションによって、任意の区域で発生したラドンが観測点の濃度に寄与する値を知ることができる。例えば、観測点より 40km 圏内からの寄与は、80km 圏内からの寄与の 90% 程度を占めることがわかった。また中国のいろいろな地域からの寄与

を分けて評価することができた。

$^{220}\text{Ra}$  含有量から散逸率を理論計算で求める方法の信頼性には限界があるため、別の方針を検討した。先ず、ブルームモデルを用いて名古屋のラドン濃度の変動をかなりよく説明することができる事を示した。これは、ある期間の積分濃度の測定値とブルームモデルを用いた積分濃度の計算値とを比較することで、散逸率の推定値を得る方法に根拠を与えるものである。この方法を中国に適用する方向が示された。

静電捕集型ラドン連続測定装置を用いて、福州に次いで北京でも測定を開始した。両地点での測定例を比較すると、沿岸部と内陸部の特徴と解釈される時間変動が見出された。

#### 1.4 東アジアにおけるトリチウムの調査

東アジアにおける環境トリチウム調査の意義について考察を行い、現在実施中の中国との共同研究による組織的測定の必要性を述べている。

この考察に基き、先ず東アジア（日本と中国）における環境水中のトリチウムの経年変化、緯度効果と陸地効果、地域分布などについて、文献調査を行った。近年における降水中トリチウム濃度の見かけの半減期は、5～8年である。1978年の降水中トリチウムについての緯度効果は、中国と日本のいづれにおいてもSchellらの文献に近かった。また1978年の中国と日本を含む東アジア地域の降水中トリチウム濃度分布図を示した（Fig. 22）。

次に、中国が実施中の環境トリチウムの全国規模調査を紹介し、水蒸気中トリチウムについての中国と日本の共同研究の実施について紹介している。この調査を可能としたPassive法による水蒸気中のトリチウムサンプリング法、共同観測の具体的実施計画と進行状況などについて述べている。

### 2. ラドンの発生源分布の評価

$^{222}\text{Rn}$  の大気中挙動を知るために、発生源分布の評価が欠かせない。そのための平成3年度に継続して調査検討を行う。

#### 2.1 日本の発生源分布

ラドンの散逸率の測定は多大の労力を必要とするので、地域分布についての測定は殆んどなく、わざかにPearson<sup>1)</sup> と東条<sup>2)</sup> の研究が挙げられる。

東条によると、名古屋大学を中心とする1～2kmスケールの散逸率の平均は、 $10\text{mBq}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})$  であった(Fig. 1参照)。また、濃尾平野を中心とする中部地区において、passive法によって測定したラドン濃度の年平均値(Fig. 2参照)と散逸率の測定値との間に、Fig. 3に示す関係が見出された<sup>3)</sup>。Fig. 3の直線関係を用いると、Fig. 2より中部地区の散逸率分布図を求めることができる。Fig. 4は、局地スケールのラドン濃度変動の数値シミュレーションに用いるため、メッシュで表わした中部地区の散逸率分布である。

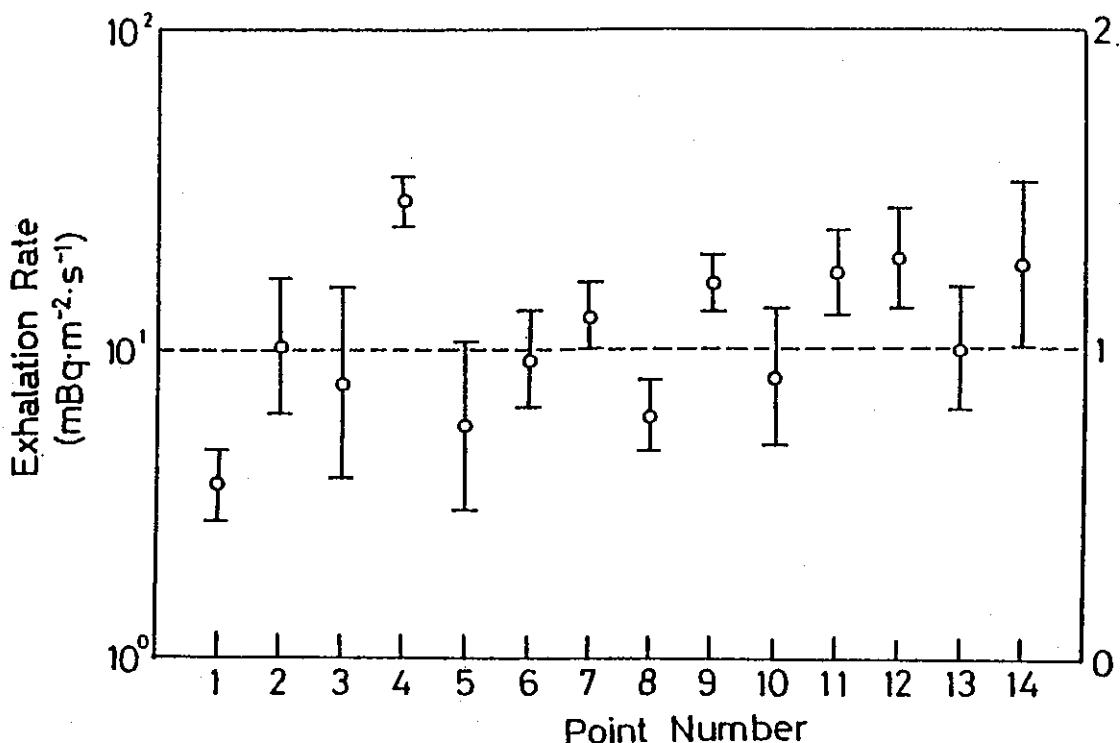


Fig. 1 Deviation of Rn exhalation rate around Nagoya University

中部地区以外ではこのようなデータは得られていないため、次の方法が有用と思われる。Fig. 5は、中部地区で得られたラドン濃度の年平均値と、阿部・藤高ら<sup>4)</sup>が行った全国調査からよみとった環境放射線線量との関係をプロットしたものである<sup>5)</sup>。Fig. 3とFig. 5の関係を用いると、環境放射線線量の全国分布図からラドンの散逸率の推定分布図を得ることができる。このような分布図の信頼性について言及することはできないが、土壤のU,  $^{226}\text{Ra}$ 含有量の組織的測定がない我国では、現時点では有力な方法と思われる。

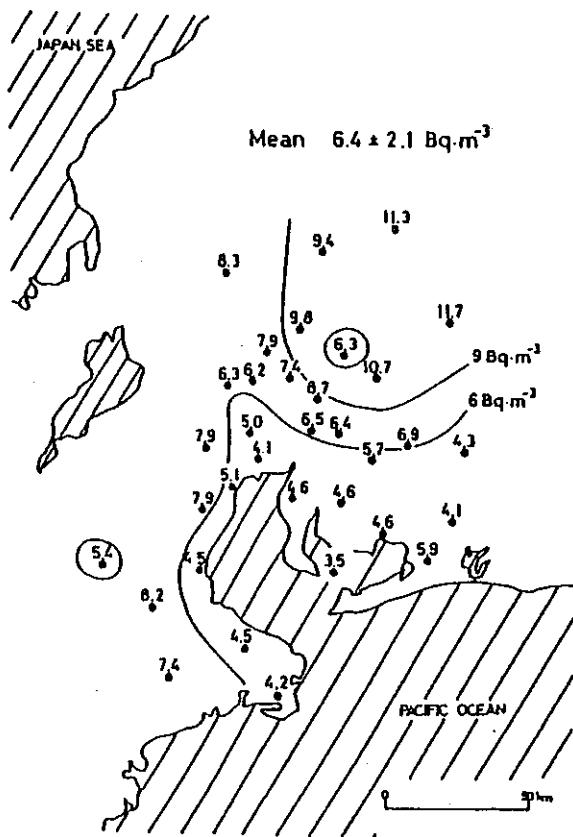


Fig. 2 Regional distribution of annual mean Rn concentration

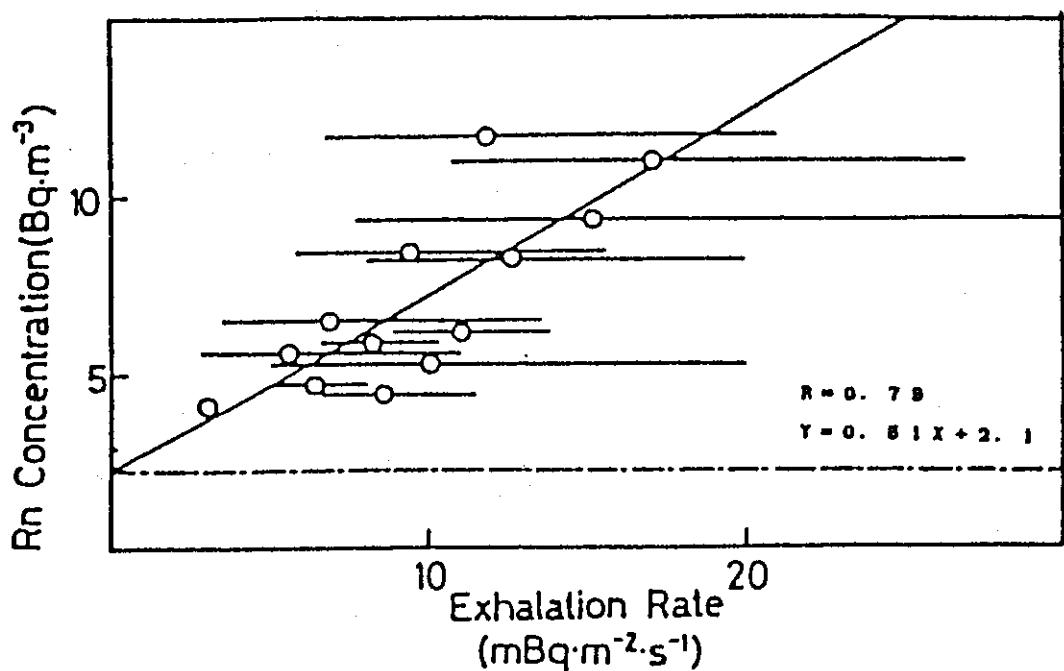
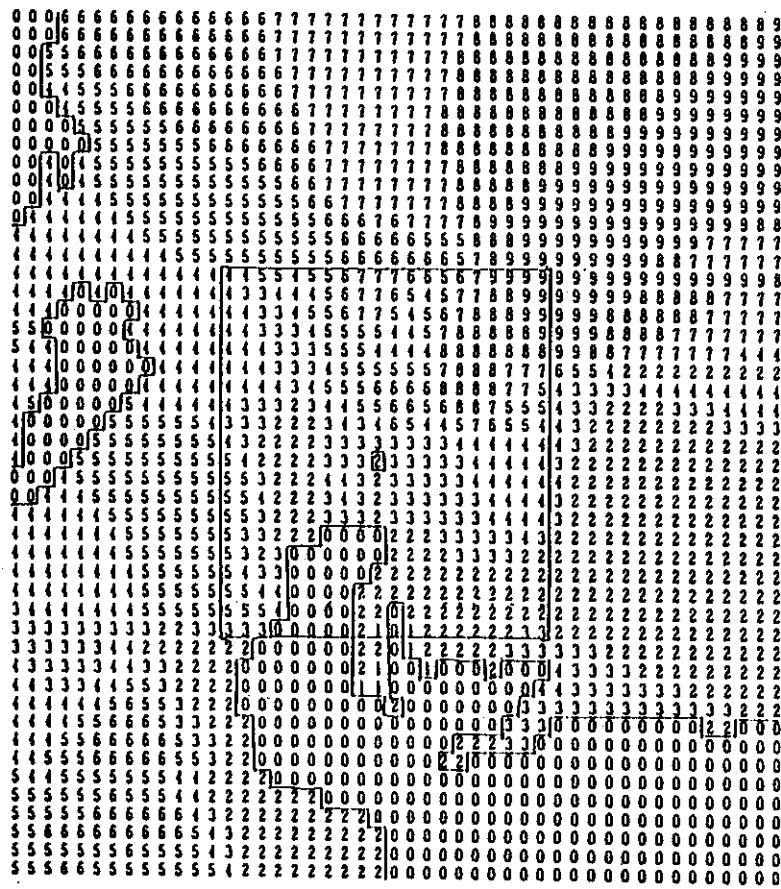


Fig. 3 Relationship between annual mean Rn concentration and exhalation rate



枠内からのみラドン発生 国は名古屋大学のあるセル  $\times 10^{-1} [\text{atoms}/\text{cm}^2 \text{s}]$

Fig. 4 Regional distribution of Rn exhalation rate inferred from Rn concentration

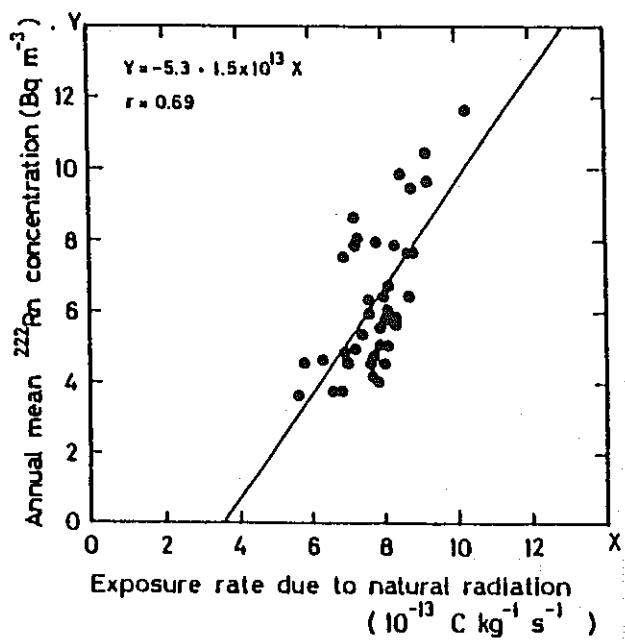


Fig. 5 Relationship between annual mean Rn concentration and exposure rate due to external natural radiation

## 2.2 中国の発生源分布

### 2.2.1 Ra含有量分布図より求める方法

前年度の報告書<sup>6)</sup>（12頁）で、第1近似としてRa含有量分布図より散逸率分布図を作成すればよいことを述べた。即ち、ラドンの散逸率は、(1)式で記述される。

$$E = \delta A \sqrt{D / \lambda} \quad (1)$$

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

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

$\lambda$  : ラドンの崩壊定数 ( $\text{s}^{-1}$ )

$\delta$  : ラドンのescape-to-production ratio (-)

A : 土壤のRa含有量 ( $\text{Bq}/\text{cm}^3 \text{ of soil}$ )

である。今、土壤の密度  $\rho = 2.0 \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ,  $\delta = 0.1$  (UNSCEAR, 1982) とすると、前年度報告13頁のRa含有量分布図より、Fig. 6に示す散逸率分布を作成ことができる<sup>7)</sup>。

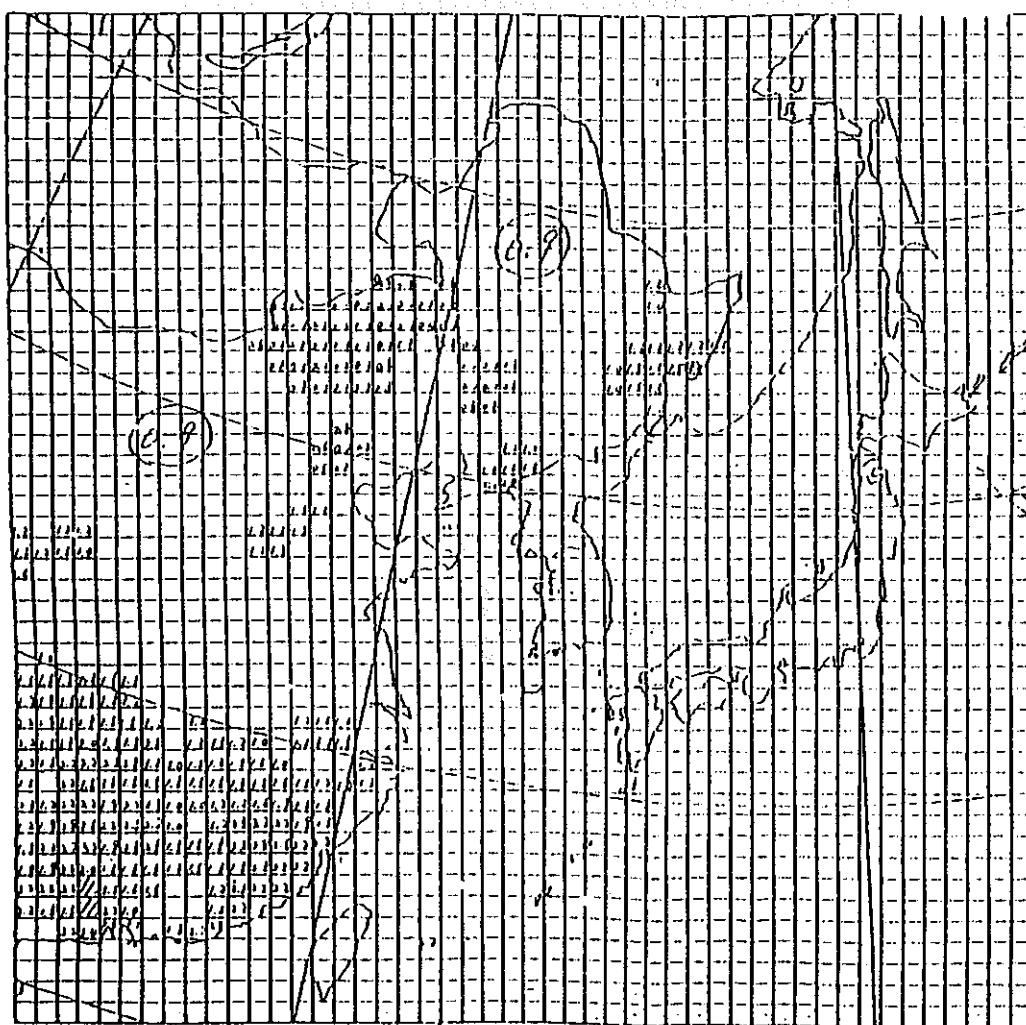


Fig. 6 Distribution of Rn exhalation rate in China ( $\text{atoms} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ )

この図は、広域拡散数値シミュレーションに用いるため、メッシュで分布を表わしている。

しかし、前年度報告（13～14頁）の考察によれば、この方法で求めた分布図には、土壤の乾燥度や大気安定度の視点からの検討を加える必要があった。また、(1)式は理想化された条件の下に導かれた式であり、土壤物性が場所により一様でないことを考えると、この方法で求めた分布について検討を加える必要がある。そのため、中国で実際に散逸率の測定を行い、考察を行なう。

## 2.2.2 中国における散逸率等の測定

前年度に続いて、北京、長春で散逸率の測定を行った。Table 1 およびFig. 7 にこれらの結果をまとめて示す。

Fig. 7 で、a, b, c, d はそれぞれ1991年11月、1992年2月、4月および8月の測定を表わし、数字は測定地点（1：工業衛生実験所、2：地壇公園、3：西土城、4：香山植物園、5：流行病研究所、6：昌一流公路の稻田）を表わしている。また○は信頼性のある測定値、×は信頼性に欠ける測定値、△はやや信頼性に欠ける測定値と判断したデータである。黒丸は長春の8月のデータである。図より、北京の年間平均散逸率を $14\text{mBq}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})$ とした。

長春の測定例は少いが、北京よりもレベルが高いようである。

## 2.2.3 考察

前年度報告Fig. 12において、中国内陸部の北京と西安は沿岸部に較べて $^{226}\text{Ra}$ 含有量に対する空気中Rn濃度が高いことを示した。その理由として、土壤の乾燥度および大気安定度の出現頻度の差異に着目した。

ラドン散逸率に土壤含水率が影響を及ぼすことは明らかである。前年度報告のFig. 13の福州の例およびFig. 8 に示す大阪と名古屋の例はそれぞれ一地点での測定例である。Fig. 6 に示した北京の例では含水率依存性は余り認められない。また、含水率は福州で6～14%，大阪、名古屋で6～14%，北京で3～16%と大きい差異が認められない。これらのことから、空気中Rn濃度と土壤中Ra含有量の比の値が内陸部で高い理由を土壤含水率で説明することはできない。

次に、大気安定度の出現頻度について考察する。今、北京と中部地区の大気安定度の出現頻度に大きい差異がないと仮定すると、Fig. 3 の直線部分の関係を用いて、北京のRnの散逸率測定値 $14\text{mBq}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})$ に対応するRn濃度は約 $7\text{Bq}/\text{m}^3$ である。これにFig. 3 の

Table 1 List of observation data at Beijing and Chaunchun  
Rn散逸率実測値（北京）

測定地点	工業衛生 実験所	地壇公園	西土城	香山植物園	流行病研究所	昌一流公路
気温 (°C)						
1991年11月	14.0	9.0	9.0	9.5	11.0	9.0
1992年2月	7.8	7.0	2.5	1.0	5.0	5.5
1992年4月	22.5	19.0	20.5	19.3	24.0	20.5
1992年8月	27.0	26.0	28.5	28.0	31.0	31.0
気圧(mmHg)						
1991年11月	766.0	766.5	766.0	765.5	767.7	768.0
1992年2月	767.6	767.0	766.6	762.6	764.2	764.6
1992年4月	754.0	754.5	755.6	753.1	759.4	759.7
1992年8月	752.0	752.5	753.0	750.7	752.8	752.0
土壤含水量 (%)						
1991年11月	13.2	7.6	12.1	7.8	12.0	13.8
1992年2月	7.0	5.2	6.0	2.7	11.0	11.0
1992年4月	13.5	3.7	5.4	2.5	14.9	15.0
1992年8月	14.6	7.1	11.6	16.2	2.9	17.6
Rn散逸率 (mBqm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> )						
1991年11月	13.9	34.3	19.0	14.9	3.8	4.3
1992年2月	9.5	25.8	9.5	0.7	1.2	2.2
1992年4月	24.1	16.7	14.6	1.6	16.7	0.7
1992年8月	21.6	14.3	13.0	13.0	11.5	0.0
土壤中核種 含有量 (Bq/kg) <sup>226</sup> Ra						
1991年11月	19.6	16.5	20.1	19.3	16.7	16.4
1992年2月	31.4	21.0	26.8	27.4	25.9	21.0
1992年4月	27.2	22.6	27.7	22.3	28.9	27.7
<sup>232</sup> Th						
1991年11月	38.0	35.4	41.5	44.3	40.2	40.9
1992年2月	41.9	38.4	38.9	33.0	47.3	39.3
1992年4月	39.3	37.0	43.2	35.2	37.9	34.9
<sup>40</sup> K						
1991年11月	666	645	648	671	745	666
1992年2月	605	576	557	539	628	625
1992年4月	582	575	605	567	520	647
<sup>137</sup> Cs						
1991年11月	4.63	7.57	8.15	-	7.12	7.35
1992年2月	3.16	8.03	2.07	2.10	5.20	6.35
1992年4月	5.60	7.28	-	-	7.08	7.01

Rn散逸率実測地（長春）

測定地点	工業衛生	地壇公園	西土城	香山植物園	流行病研究所
気温 (°C)					
1992年8月	26.8	27.0	29.0	27.8	29.3
気圧(mmHg)					
1992年8月	740.0	740.3	739.4	741.7	740.6
土壤含水量 (%)					
1992年8月	10.3	14.6	12.4	12.2	12.6
Rn散逸率 (mBqm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> )					
1992年8月	30.9	35.1	32.5	11.1	29.2

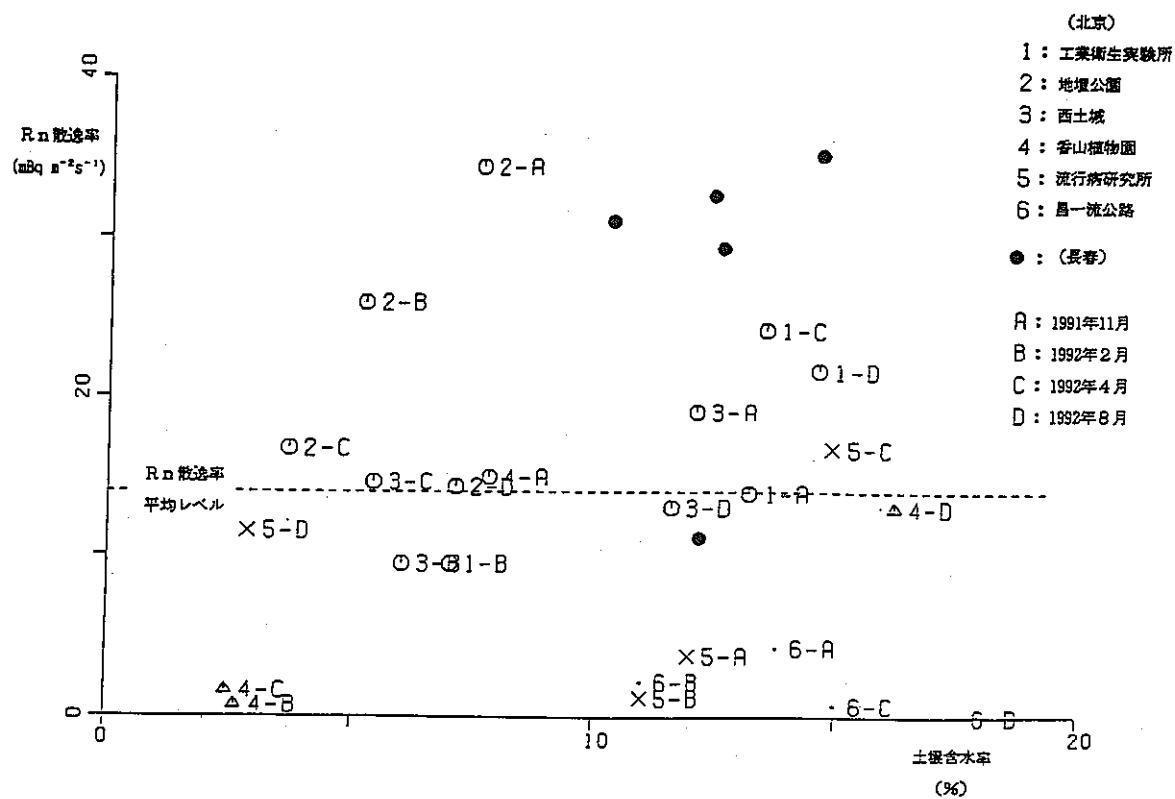


Fig. 7 Relationship between Rn exhalation rate and liquid water content of soil at Beijing and Changchun

矩形部分に相当する  $3 \sim 4 \text{ Bq/m}^3$  (後出, Fig. 16参照) を加えると,  $10 \sim 11 \text{ Bq/m}^3$  となる。一方北京の年平均Rn濃度(測定値)は約  $8 \text{ Bq/m}^3$  であった。この両者の値に大きい差異が認められないことは、中部地区と北京の大気安定度の出現頻度に大きい差異が認められないことを示唆している。この推論は実際の気象観測値を用いて検証する必要がある。

以上の考察では、空気中Rn濃度と土壤中Ra含有量の比の値が中国内陸部で高い理由を説明できない。外に考えられる理由として、(1)式の  $\delta$  など土壤物性の場所による差異、土壤中の実効拡散係数の複雑さ<sup>8)</sup>、海洋の影響の有無などが挙げられる。しかしこれらについての検討は困難なので、当面はFig. 6をもって散逸率分布とし、Fig. 6の妥当性または補正に関して、Rnの年平均濃度と気象データを用いて散逸率を推定する方法を用いて検討を行う(3.3で詳述する)。

### 3. ラドンの大気中挙動モデルの調査

#### 3.1 数値シミュレーション

名古屋大学、原研のグループがラドンの数値シミュレーションを実施している内容について前年度報告書で述べた。以下にはその後得られた知見を記す。

Fig. 9は広域スケール数値シミュレーションに用いている発生源分布をいくつかの地域に区分したものである。散逸率として、陸上で  $1 \text{Rn原子}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$  の一様分布を採用している。Fig. 10に、名古屋におけるラドン濃度（局地スケールからの寄与を除外してある）の計算値の一例を示す<sup>9)</sup>。Fig. 9の各地域からの寄与をよみとることができる。

局地スケール数値シミュレーションについては、発生源分布として一様分布（名古屋大学近傍の測定値  $0.48 \text{Rn原子}/(\text{cm}^3 \cdot \text{s})$  とする）を用いる場合（点線）とFig. 4の散逸率分布を用いる場合（実線）について計算した結果の比較をFig. 11に示す<sup>10)</sup>。図より明かなよう

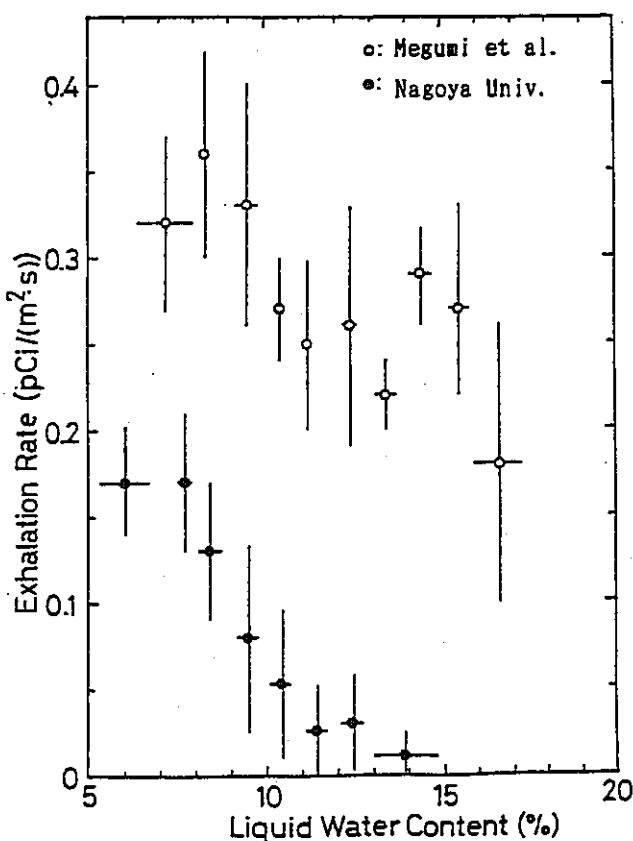


Fig. 8 Correlation between liquid water content of soil and Rn exhalation rate

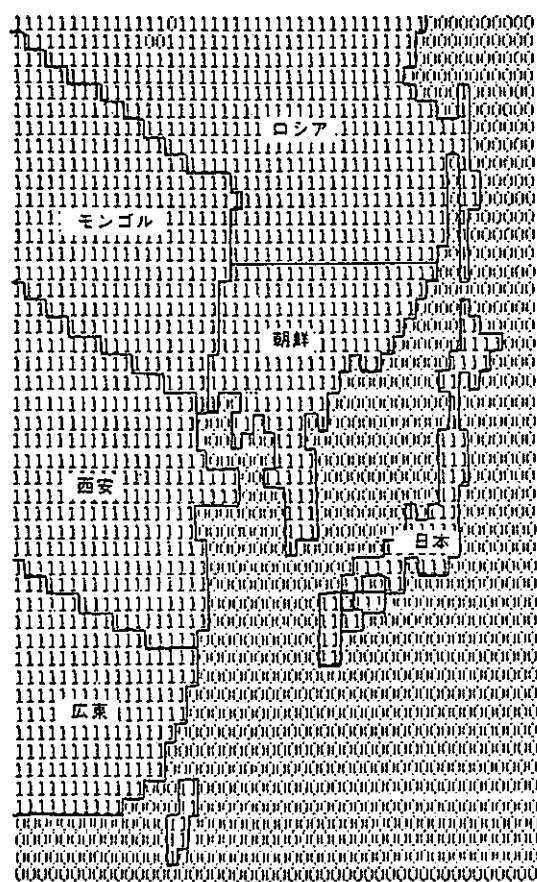


Fig. 9 Map of six classified Rn sources

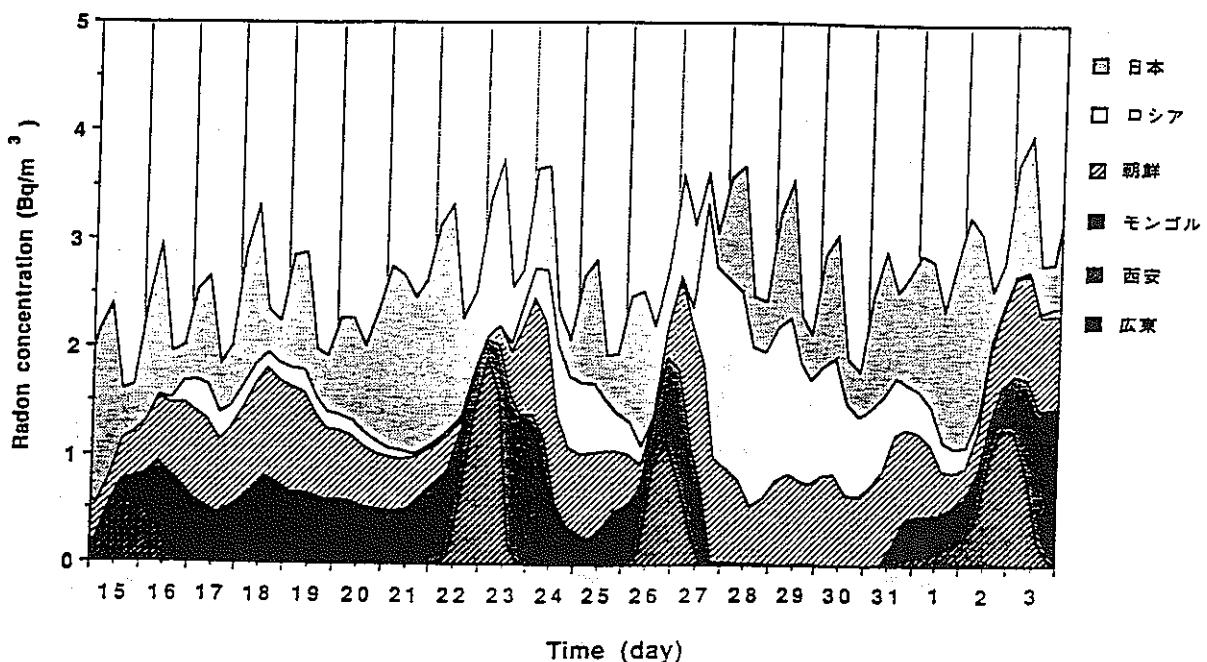


Fig. 10 Calculated Rn concentration from six classified sources in December, 1990

に、散逸率に地域分布を与えた方が実測値に近づいている。

次にFig. 12には、観測点からの距離別に発生源の寄与を評価した例を示す<sup>10)</sup>。図の上部は距離別発生源分布（発生率は0.48Rn原子／(cm<sup>2</sup>・s)で一様としている）を示し、下部に距離別の寄与を示す。図より40km圏内からの寄与は80km圏内からの寄与の90%程度であることがよみとれる。この期間は冬期の季節風が卓越した期間であり、他の期間は近くの起源の寄与がもっと大きいものと推測される。なおFig. 13は同期間の濃度変動の計算値（波線が広域からの寄与）と観測値を示している。

### 3.2 プルームモデルを用いた解析

2.2.3において、気象データとラドンの積分濃度（平均値）から散逸率を推定する方法の検討が望ましいことを述べた。中国各地では、風向、風速、日射量などの簡単な気象データしか入手できない事情を考慮して、最も簡単なパスカルの安定度やプルームモデルを用いて検討する。中国に適用する前に、データの豊富な名古屋について散逸率推定手法を検討する。

Fig. 14は、毎時のパスカルの大気安定度とラドン濃度との関係（1990年11月）を示す<sup>11)</sup>。図より、安定時（F）の方が不安定時（A）よりもラドン濃度が高いという単純な関係は見出されない。

(1990.12.15 ~ 1991.1.3)

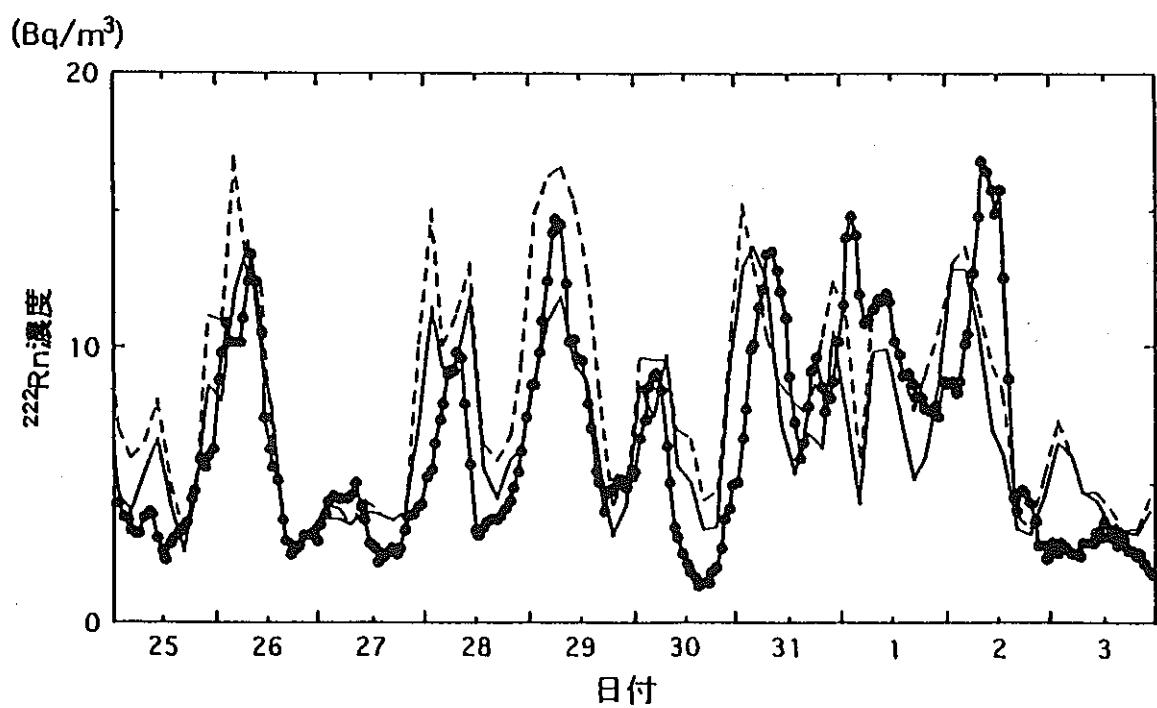
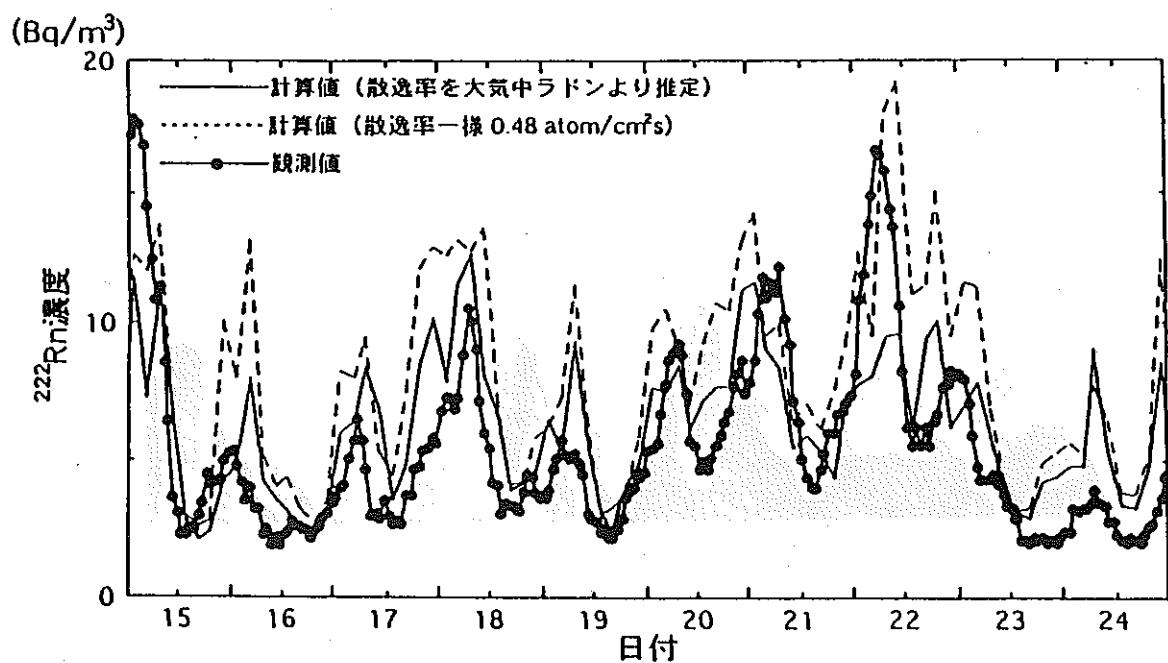
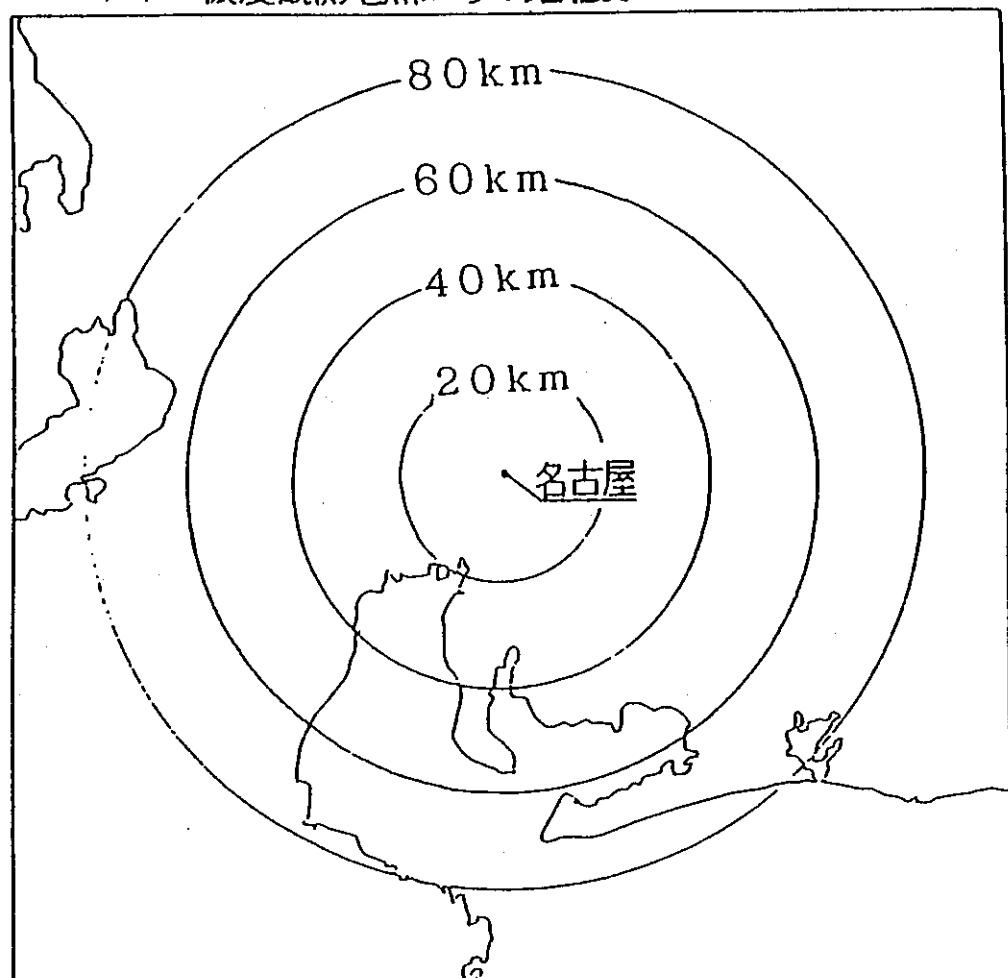


Fig. 11 Comparison between calculated and observed Rn concentration

ラドン濃度観測地点からの距離別ソースマップ



距離別寄与

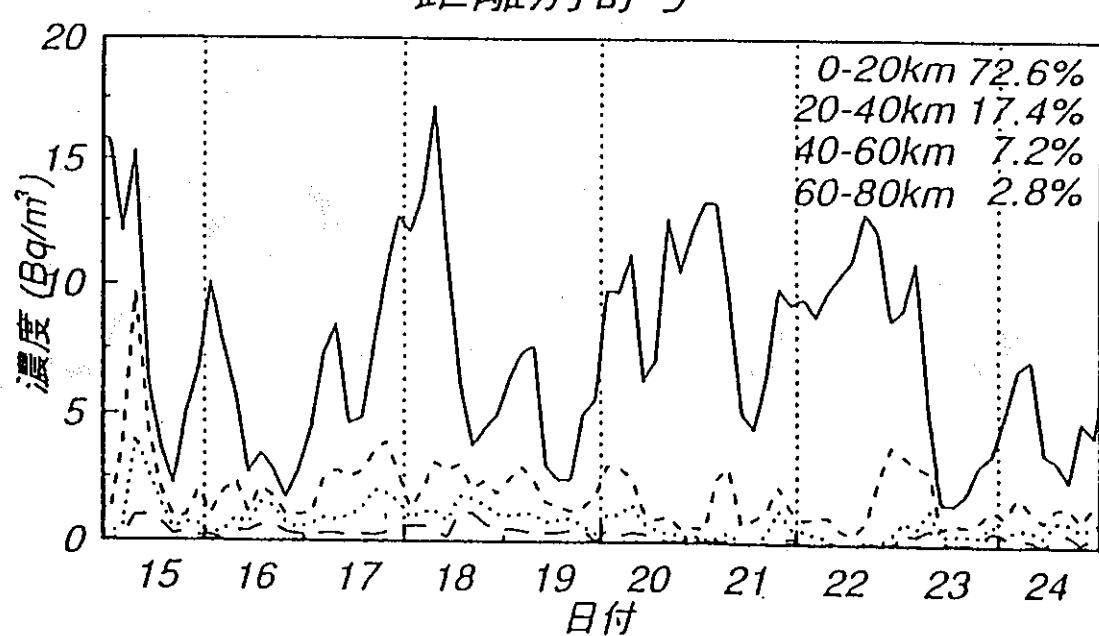


Fig. 12 Calculation of Rn concentration classified by source distance

(1990.12.15 – 1991.1.3)

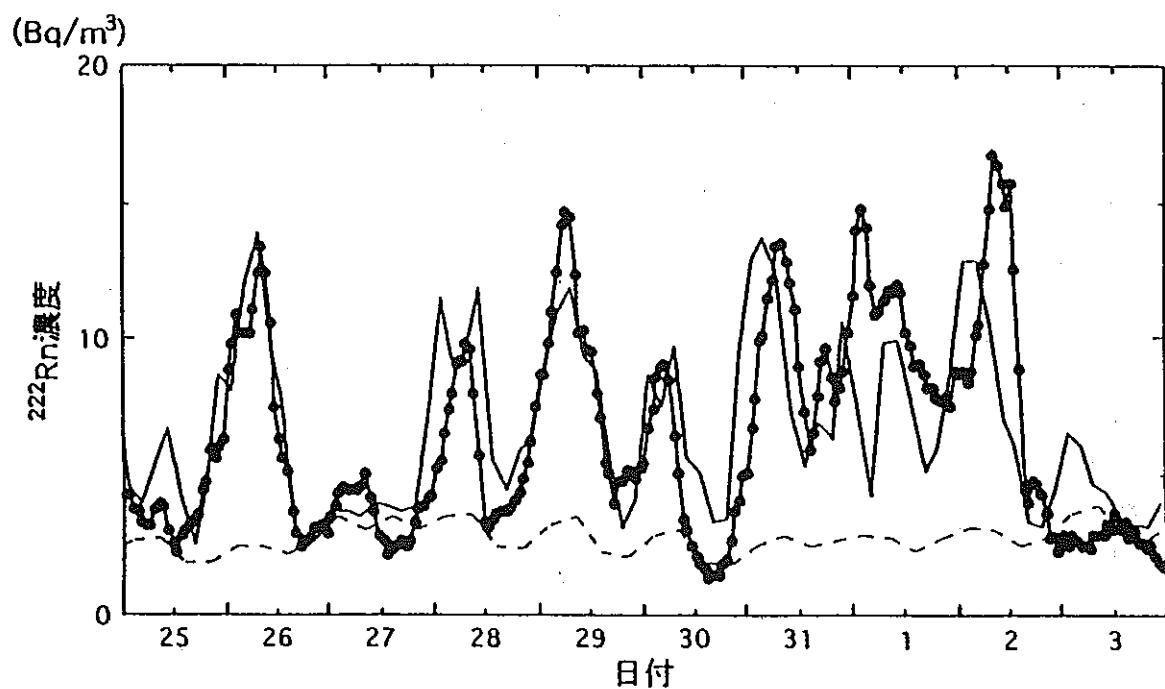
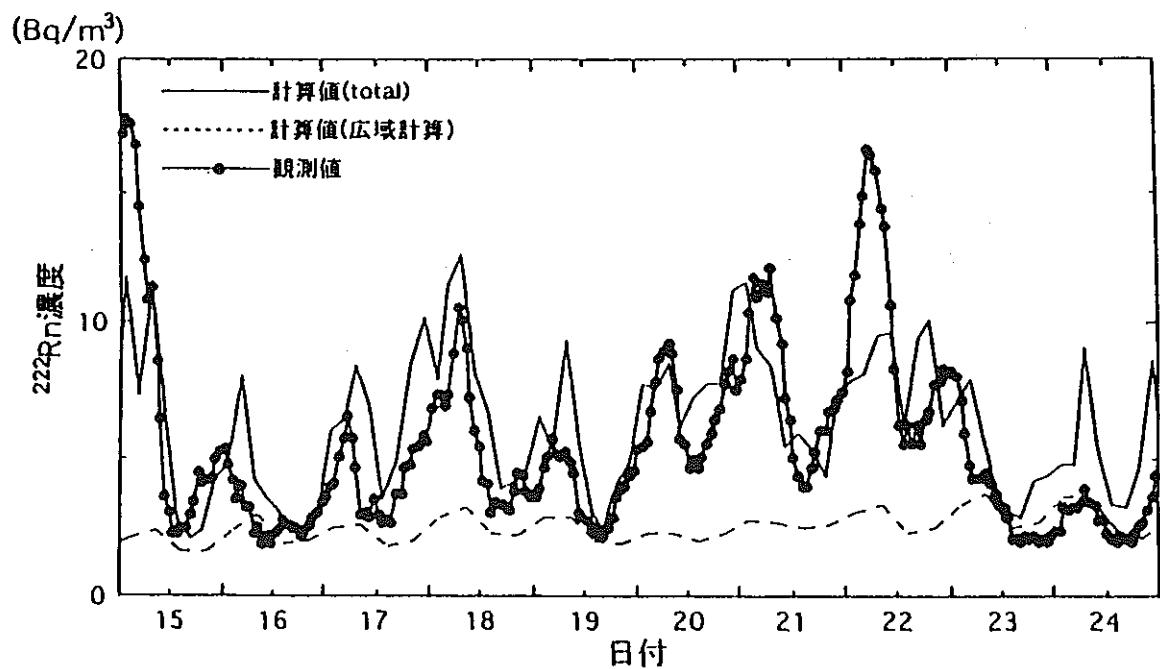


Fig. 13 Comparison between calculated and observed Rn concentration

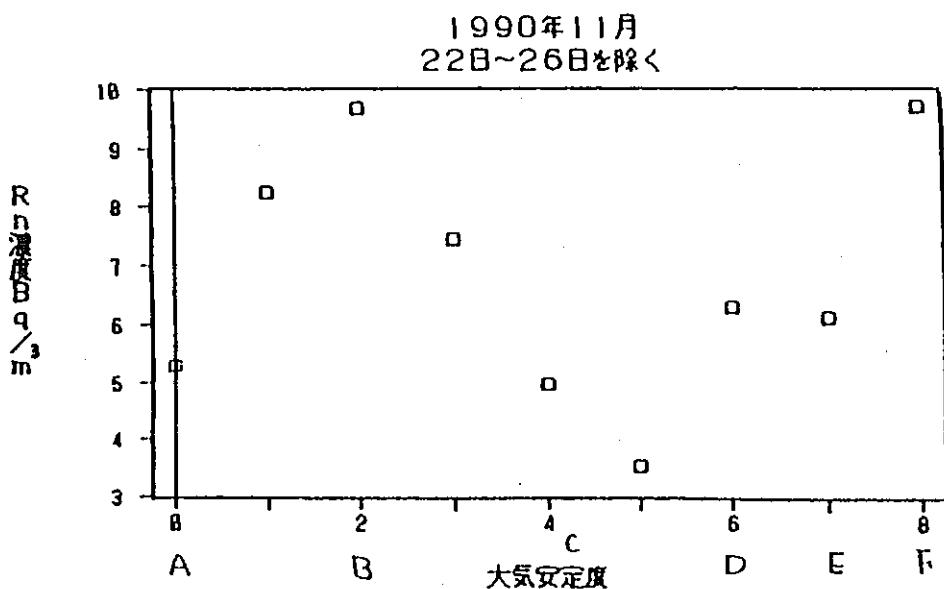


Fig. 14 Relationship between Rn concentration and atmospheric stability

よく知られているように、点源に対して汚染物質濃度  $C$  ( $x, y, z$ ) は、ブルームモデル式

$$C(x, y, z) = \frac{Q}{2 \pi \sigma_y \sigma_z U} f_1(y, \sigma_y) f_2(z, \sigma_z) \quad (2)$$

で表わされる<sup>11)</sup>。ここで

$C(x, y, z)$  : 任意の場所 ( $x, y, z$ ) における濃度 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )

$Q$  : 放射性物質の放出率 ( $\text{Bq}/\text{s}$ )

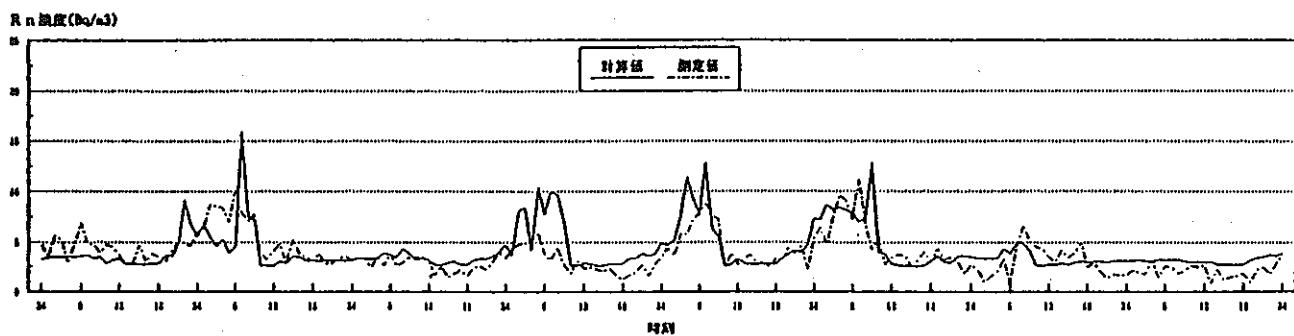
$U$  : 平均風速 ( $\text{m}/\text{s}$ )

$\sigma_y, \sigma_z$  : それぞれ  $y$  軸,  $z$  軸に沿っての濃度の標準偏差または拡散幅 ( $\text{m}$ )

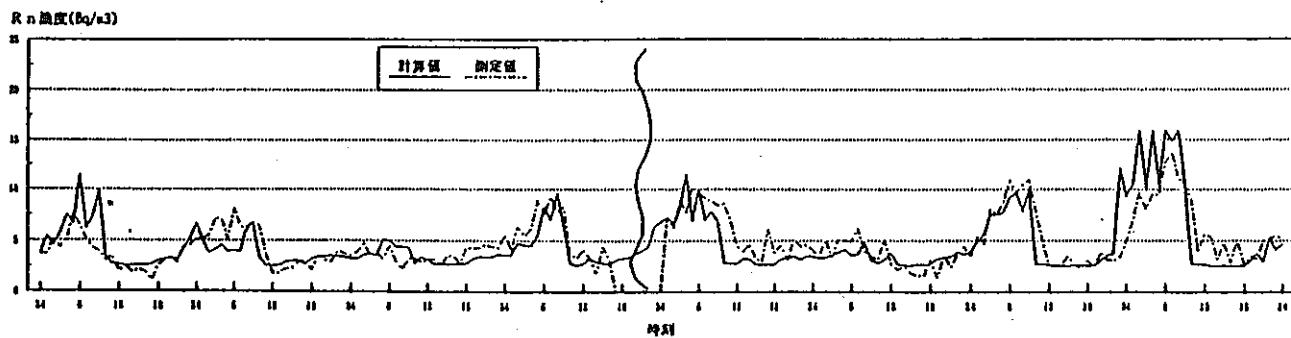
$H$  : 放出高 ( $\text{m}$ )

である。ラドンは面源であるので、測定点を中心とした  $200\text{m} \times 200\text{m}$  のメッシュを作り、各メッシュの中心からラドンが  $Q \text{ Bq}/\text{s}$  で発生するものとし、風上方向  $80\text{km}$  からの積分値を計算した。計算結果の一例を Fig. 15 に示す。但し、図に示した計算値は次のような手順で求めている。(a) 計算値は、通常 3 時間後の測定値と良い対応を示すので、3 時間ずらせて測定値と比較する。これは、実際の濃度は測定時以前の安定性に依って非定常的に変っているためと考えられる。(b) 積分濃度に  $80\text{km}$  以遠の遠方起源成分を加える。遠方起源成分と散逸率として、測定値と計算値とがなくべく一致するような適当な値を選ぶ。(実際には濃度の低い午後のデータを一致させることで遠方起源成分が定まり、ピークを一致させることで散逸率が定まる)。

3月6日-13日



3月14日-23日 (18, 19日を除く)



$$\text{遠方起源 } 2.5 \text{ Bq/m}^3, E = 15 \text{ mBq/m}^2\text{s}$$

Fig. 15 Comparison between calculated and observed Rn concentration in 1990

以上の手順で、図に見られる程度の対応が認められた。また、測定値と計算値の1ヶ月の積分濃度の比は、ほぼ1となった。

このように、プルームモデルを用いて測定値の変動をある程度説明することができたこと、測定と計算の積分濃度がほぼ一致していること、散逸率の推定値が名古屋大学周辺の散逸率の実測値<sup>2)</sup> ( $10 \text{ mBq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ ) に近いことなどから、プルームモデルを用いて散逸率を推定することができるものと考えられる。中部地区のある地点（たとえば土岐）を例にとって具体的手順を述べると、①遠方起源成分は名古屋と同じであるとする、②基準散逸率を用いて、プルームモデルによって毎時のラドン濃度を計算する、③ある測定期間について、測定された積分濃度と計算による積分濃度が一致するように散逸率を決定する。

地理的条件が中部地区よりも単純な中国の内陸地域にも、この方法は適用されるものと推測される。そのために次の検討を行う必要がある。①ラドンの連続測定（3.3 参照）を実施している北京の濃度変動をプルームモデルで説明し、推定される散逸率と測定された散逸率

との一致を確認すること、②濃度の連続測定のない他の地点にもブルームモデルを適用して、積分濃度の測定値を用いて散逸率を推定することを、③その値を用いてFig. 6に示した散逸率分布図の信頼性について検討することなどである。

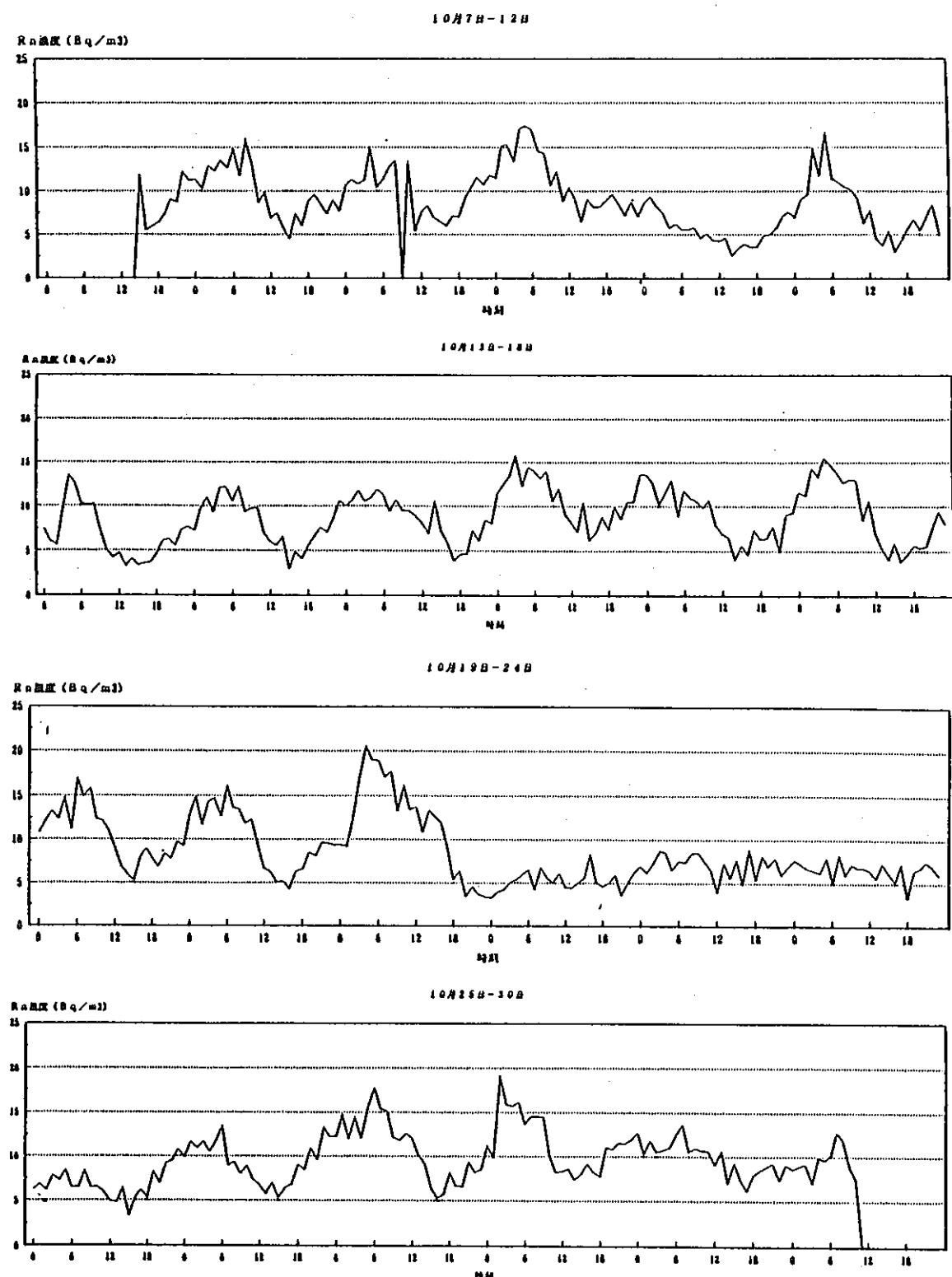


Fig. 16 Temporal variation of observed Rn concentration at Beijing in 1992

### 3.3 中国におけるラドンの連続測定

静電捕集型ラドン連続測定装置<sup>6)</sup>を用いて、福州に次いで北京でも測定を開始した。Fig. 16に北京での測定例<sup>12)</sup>を、Fig. 17に福州の測定例<sup>13)</sup>を示す。両者を比較すると、福州の方が日々の変動が大きく北京で小さい。また一日の最低値は北京では  $4 \text{ Bq}/\text{m}^3$  以上であるのに対して、福州では 0 に近い日もある。これらは福州が沿岸部、北京が内陸部にあるという地理的条件によるものと思われる。また、福州で北京にみられない高濃度が観測されるのは Ra含有量が高いため<sup>8)</sup>と思われる。

これらのデータは、ラドン散逸率や広域動態を検討するための基礎的な資料として今後活用されるものと期待される。

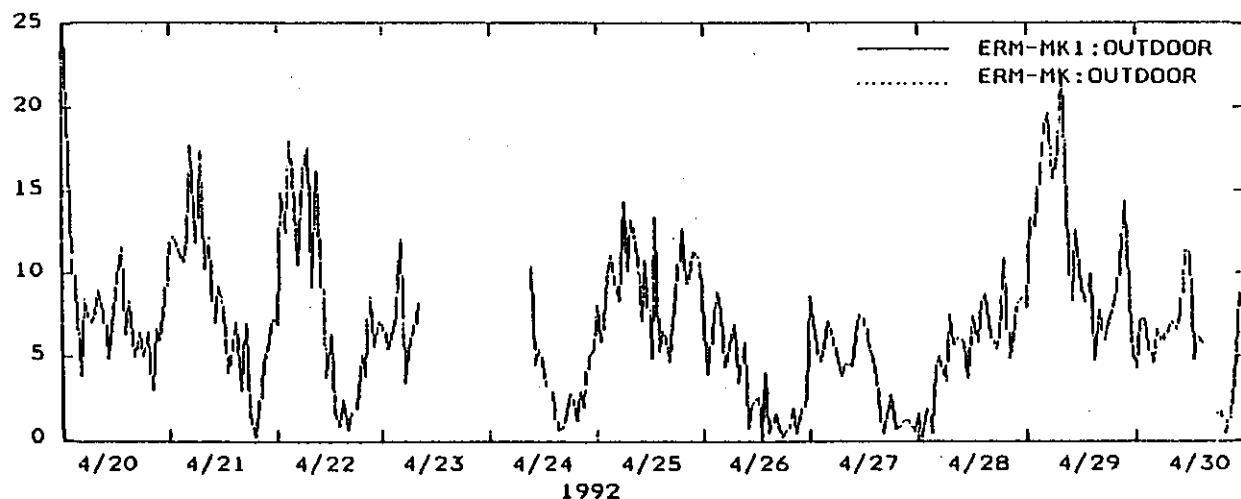
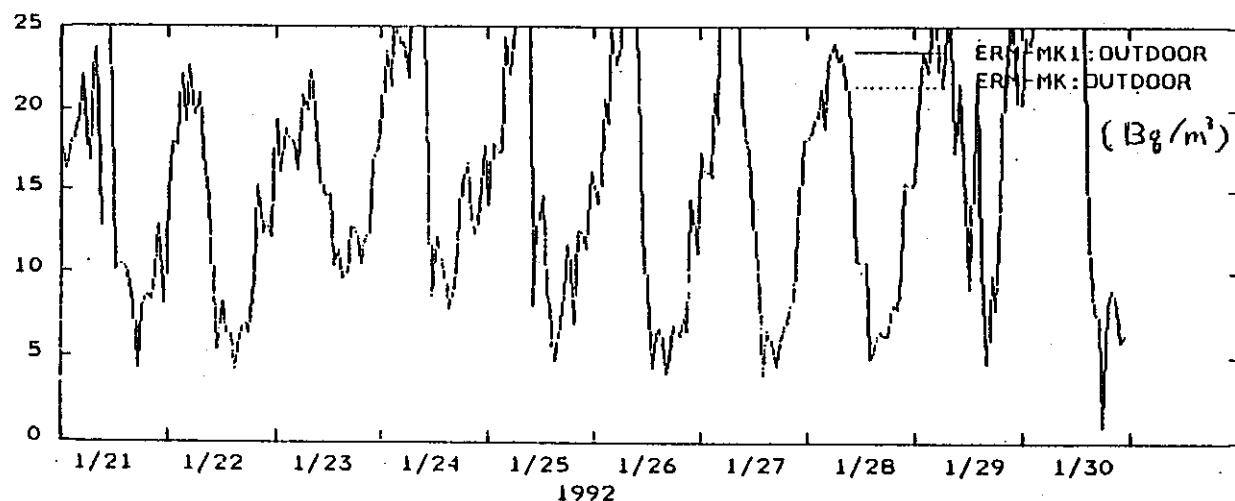


Fig. 17 Temporal variation of observed Rn concentration at Fuzhou

## 4. 東アジアにおけるトリチウムの調査

### 4.1 はじめに

日本において、水文圏のトリチウムの測定はかなり行われてきた。よく知られているように、1980年頃以前にはSpring maximumの現象が認められ、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、冬季に高く夏季に低い季節変化が数年観測された。その後もトリチウム濃度の減少が続き、最近では季節変化も明白でない。

このように水文圏トリチウム濃度の測定はかなり行われてきたが、降水や水蒸気中トリチウムについての定量的な解析は殆んど行われていない。戸沢<sup>14)</sup>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、ラドンの場合と違って、水蒸気中トリチウムには近傍起源は殆んど寄与せず、遠方起源が殆んどを占めることなどが推測された。従ってトリチウムの大気中動態を知るには広域輸送解析が重要である。

一方、日本への供給源として興味のある中国では、過去のトリチウムデータは殆んど公表されず、水文圏分布の空白地域であった。近年になって公表される状況になってきつつある。更に、中国衛生部を中心に、降水、河川水、湖水、飲用水、海水、食品などのトリチウムの全国規模調査が3年計画（1991年5月～1994年4月頃）で実施されつつある。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もなる。また、中国では、緯度効果と大陸効果のため、トリチウムレベルは現在でも高いものと予測される。中国の国土が広いことも考慮に入れると、環境（特に大気圏）におけるトリチウムの動態を研究するフィールドとして中国は最適であろう。

ところで、水蒸気中トリチウムのサンプリング法は、従来ポンプを用いたactive法であったが、横山<sup>15)</sup>は、吸着剤を静置したままactive法と同じく一定の流量で空気（水蒸気）中トリチウムを捕集できるpassiveサンプリング法を開発した。この方法は簡便であり、特に停電の多い中国の全国規模調査に適した方法であるため、池辺らは中国との共同研究\*を行っている。

中国を含む東アジア地域で、水蒸気を含む水文圏トリチウムの組織的調査のデータが得ら

---

\*文部省科学研究費国際学術研究（共同研究）平成4～5年度

れると、トリチウムの広域動態の解析に資することとなり、平常時のみでなく原子力事故時のトリチウムの挙動を把握するためにも役立つものと思われる。なお、水蒸気は、それ自身温暖化物質であると同時に、雲を通じて気候温暖化に大きい影響を及ぼす物質であるが、水蒸気や水の循環に関する知見が乏しいため、トリチウムをトレーサーとして環境における水循環に関する知見を得ることは、地球環境問題の分野からも期待される<sup>16)</sup>。

この報告では、以上の状況をふまえて、先ず東アジア地域のトリチウムの分布と変動についての過去の文献を用いた調査研究<sup>17)</sup>を紹介し、次に現在実施中の中国との共同研究を紹介する。

#### 4.2 環境水中のトリチウムの分布と変動

##### 4.2.1 経年変化

Fig. 18とFig. 19に名古屋における降水中トリチウムと水蒸気中トリチウム（いづれも1ヶ月サンプリング）の経年変化を示す<sup>18)</sup>。前述した季節変動と濃度の低下が認められる。

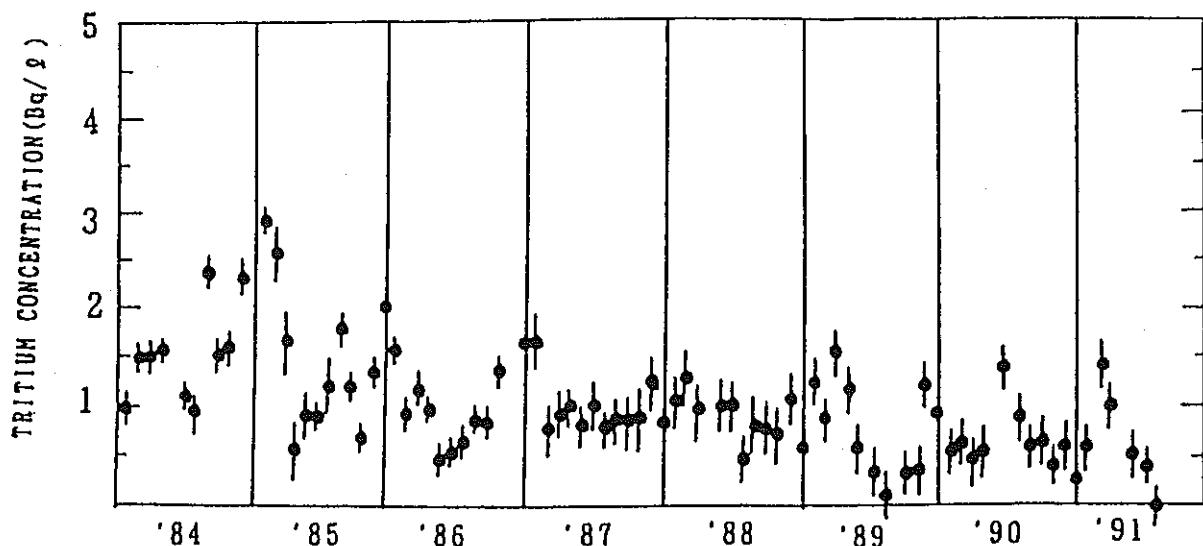


Fig. 18 Monthly variation of  $^3\text{H}$  concentration in rain water

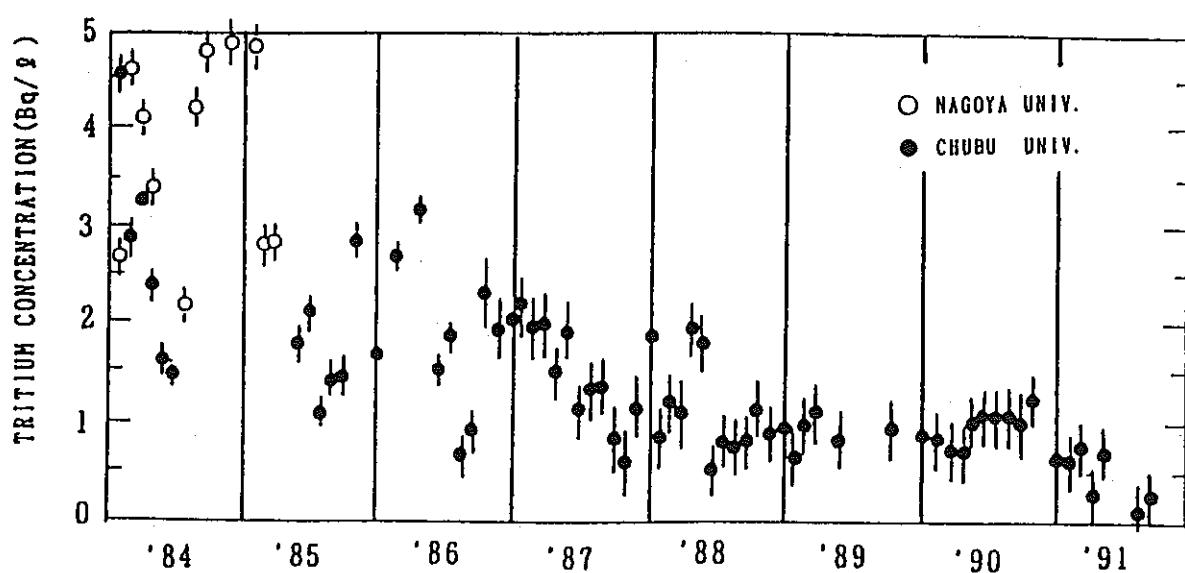


Fig. 19 Monthly variation of  ${}^3\text{H}$  concentration in water vapor

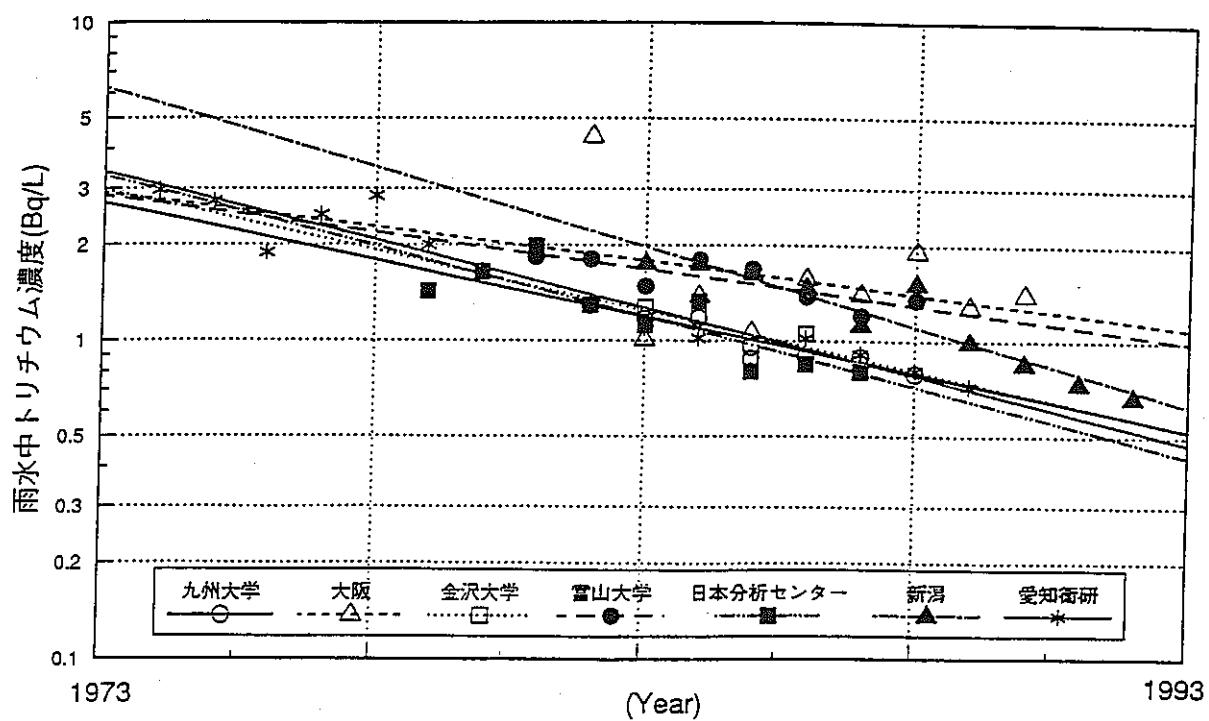


Fig. 20 Temporal variation of  ${}^3\text{H}$  concentration in rain water in Japan

Fig. 20には、日本各地の研究機関の降水中トリチウム濃度の経年変化の一例を示す。濃度は指数関数的に減少してしいる。Table 2とTable 3は、このように整理された降水と水蒸気中トリチウムのみかけの半減期をまとめたものである。

測定期間の長短の差異やデータの信頼性の問題もあるかもしれないが、2～3の例外を除いて、見かけの半減期は降水について5～8年位の範囲にある。水蒸気中トリチウムは測定点近くのトリチウム取扱施設の影響を受け易く、Table 3において九州大学のデータは経年変化がなくほぼ一定であったため記入していない。またFig. 19に示したデータは、トリチウム取扱施設が多い名大構内を避けて中部大学でサンプリングを実施している。

中国について入手した文献は少ないが、見かけの半減期は降水を含む陸水について、北京5.9年、武漢10.2年、データが少く信頼性にやや欠けるが福州3.7年である。内陸部の武漢の方が沿海部の福州よりも半減期が長い傾向にあるように思われるが、今後データを増して確認する必要がある。

Table 2 Observed apparent half life  
of  ${}^3\text{H}$  in rain water

研究機関名	緯度	半減期(Year)
九州大学	33.6	8.44
大阪	34.5	14.26
名古屋大学	35.1	6.53
愛知衛研	35.1	5.99
金沢大学	36.5	7.96
福井衛研	36.1	5.92
富山大学	36.7	13.12
動燃	36.5	8.05
放医研	35.6	5.05
日本分析センター	35.6	6.82
新潟	37.9	6.03

Table 3 Observed apparent half life  
of  ${}^3\text{H}$  in rain water vapor

研究機関名	緯度	半減期(Year)
九州大学	33.6	—
中部大学	35.1	4.35
福井衛研	36.1	7.21

※) 九州大学は傾きが正の値となった。

#### 4.2.2 緯度効果

1978年5月の中国の降水中トリチウムのデータが充実していたので、この時期の緯度効果を検討した。日本については1978年のデータは少ないので、各地の経年変化より外挿して求めたデータも採用した。得られた結果をFig. 21に示す。濃度は中国が5倍程度であり、これは内陸効果と核実験の影響によるものと思われる。また、Schellら<sup>18)</sup>が陸地と核実験の影響のない天然レベルの海上での緯度効果として示した値を点線で示してある。勾配はかなりよく似ている。

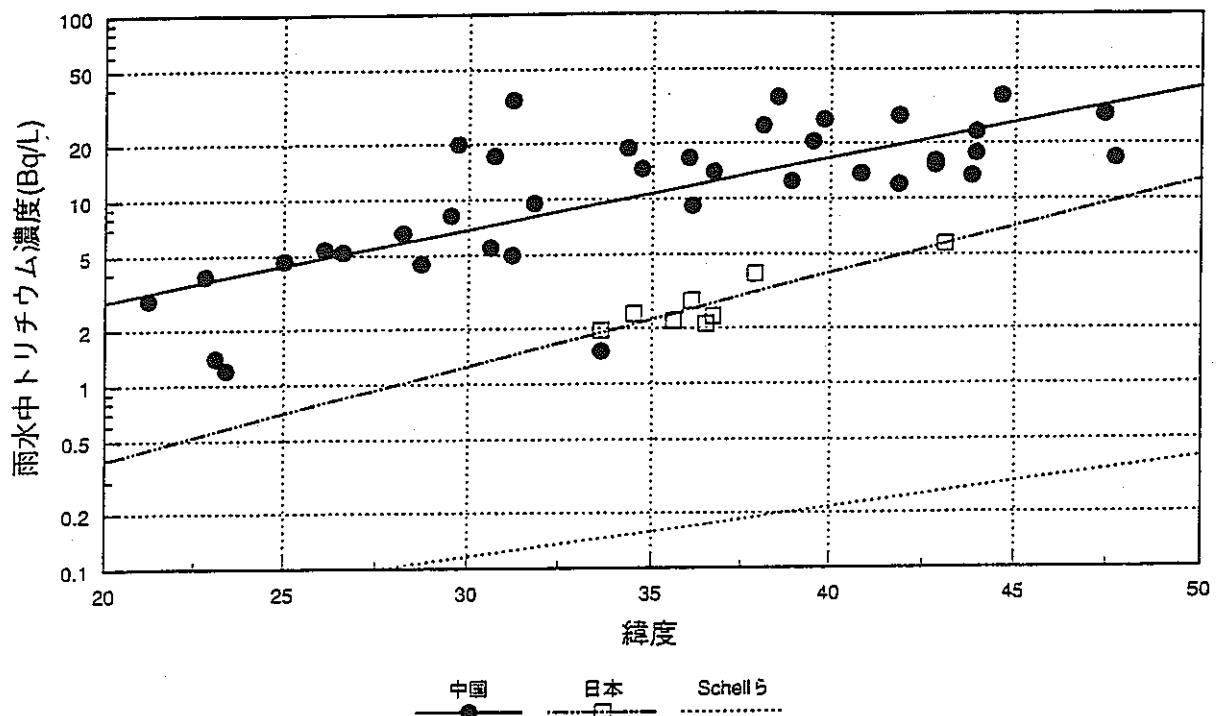


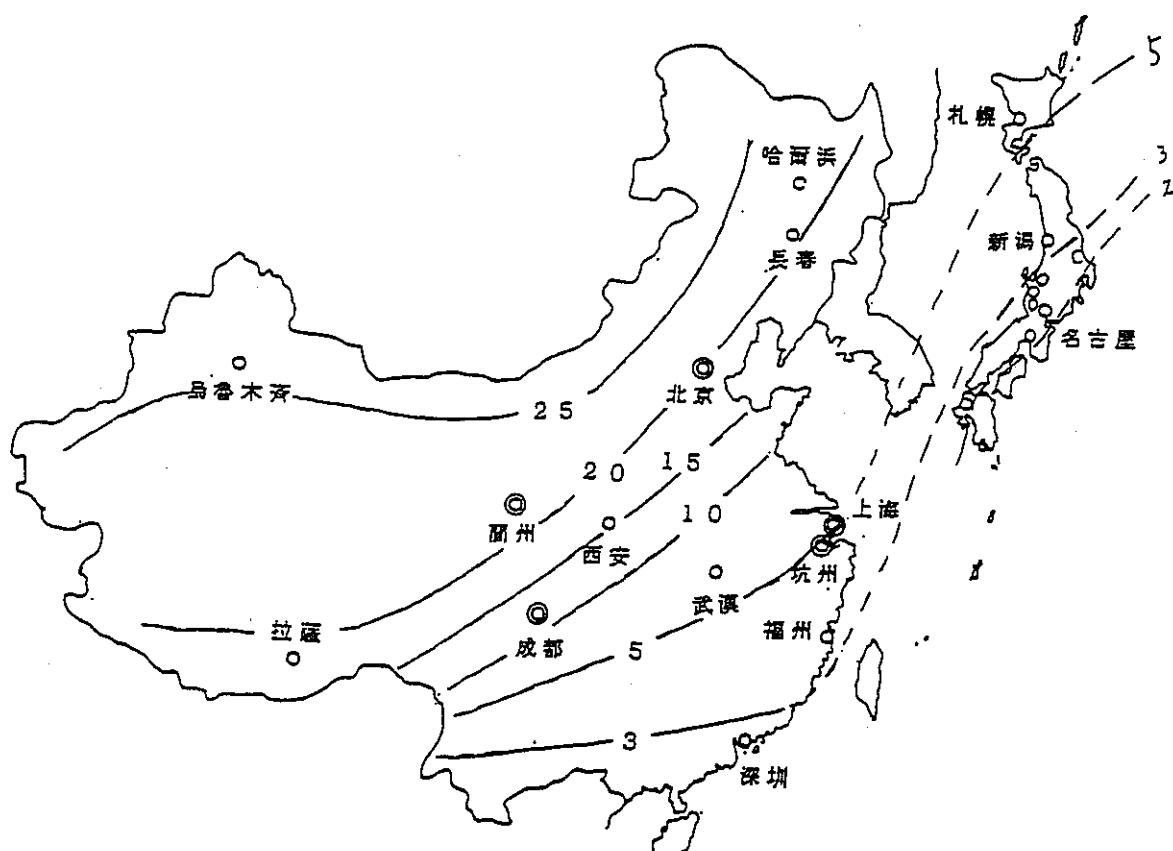
Fig. 21 Comparison of latitude effect between Japan and China

#### 4.2.3 地域分布

Fig. 22は、住天山からの私信による1978年5月の中国の降水中トリチウム分布に、日本における測定または推定濃度を用いて東アジア地域における分布図を作成したものである。緯度効果および陸地効果がよみとれる。

### 4.3 水蒸気中トリチウムの測定

4.1において述べたように、現在東アジア地域における水蒸気中トリチウムの組織的測定を中国との共同研究で実施中であるので、以下に紹介する。



数字の単位は  $Bq \cdot l^{-1}$  である。

Fig. 22 Distribution of  ${}^3H$  concentration in rain water in Eastern Asia

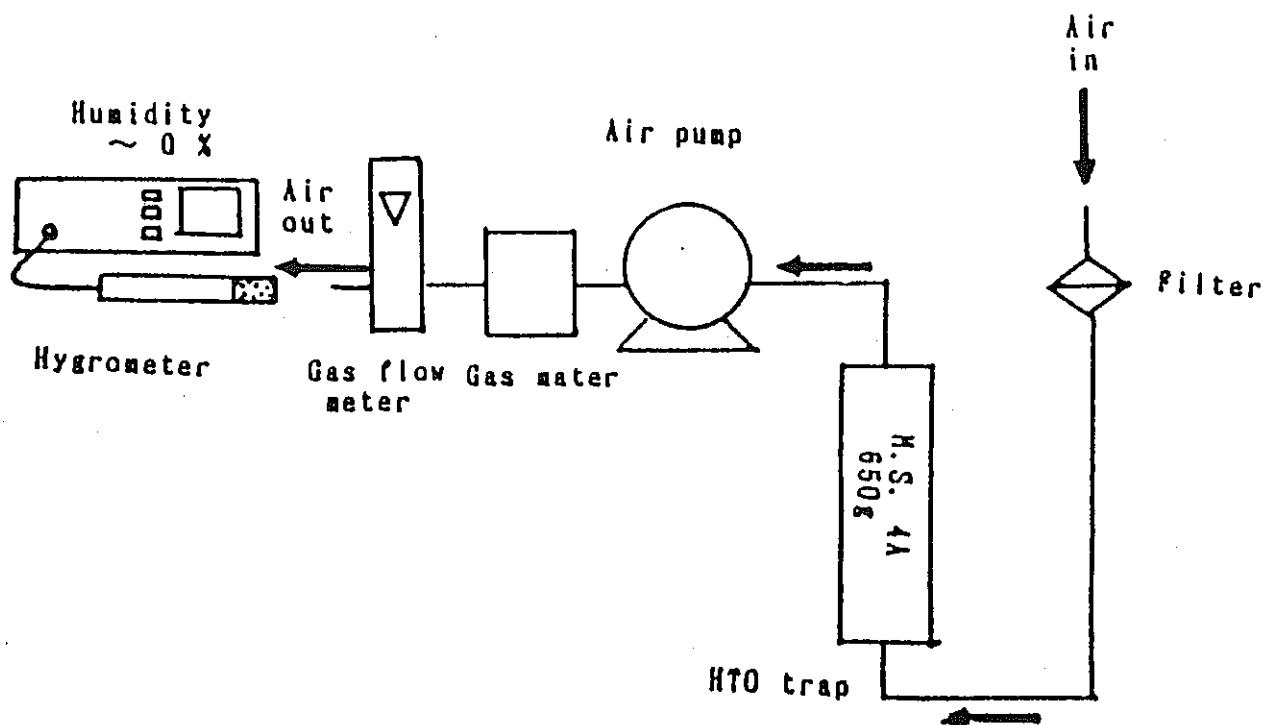


Fig. 23 Apparatus for sampling of water vapor

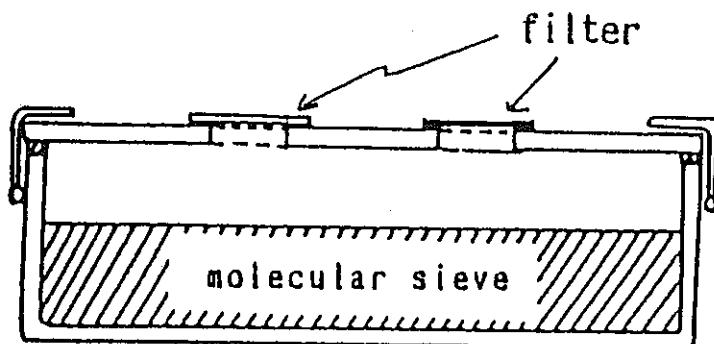
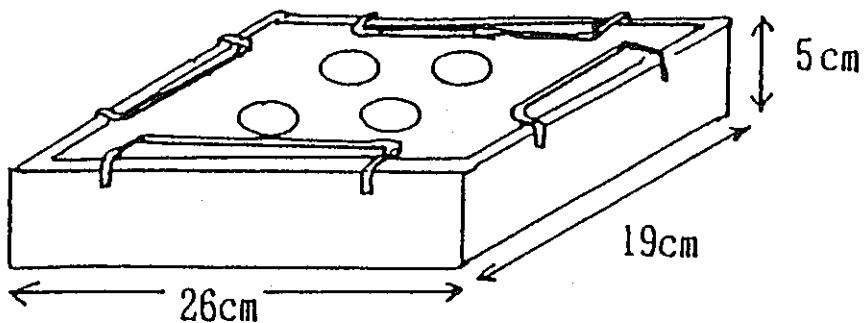


Fig. 24 Apparatus for collecting water vapor

#### 4.3.1 測定法

水蒸気中トリチウムの捕集法として、従来はFig. 23に示すようエアポンプを含む系（動力を用いるActive法）が用いられてきた。横山<sup>15)</sup>は、長期間捕集用に、簡便、安価な静置法（動力を用いないPassive 法、Fig. 24参照）を開発した。捕集容器には市販のプラスチック製食品保存容器を用いて、適量のモレキュラーシーブ 4 Aを封入してある。ふたにいくつかの穴をあけ、メンブレンフィルタを貼る。フィルタを通して空気は一定流量で外気と交換するが、容器に入った水蒸気を全て吸着させると、空气中水蒸気は一定流量でモレキュラーシーブに捕集されることとなり、Active法と同じ性能もつことになる。理論的考察によれば、フィルタ単位面積当たりの水蒸気の面速度  $v$  (cm/s) は、

$$v = \frac{D}{\delta} = \frac{\Delta W}{n_{out} TS} \quad (3)$$

ここで  $D$  : 水蒸気の拡散係数 (cm<sup>2</sup>/s)

$\delta$  : フィルタの厚さ (cm)

$\Delta W$  : 水蒸気の捕集量 (g)

$T$  : 水蒸気捕集時間 (s)  
 $S$  : フィルタの面積 ( $\text{cm}^2$ )  
 $n_{\text{out}}$  : 外気の水蒸気量 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

である。

これは実験で決定することができる。なお、モレキュラーシーブの捕集効率が低下しないため、捕集量 $\Delta W$ は、捕集時間と比例関係が認められる範囲にとどめる必要がある。またトリチウム測定に必要な水の量をうるため、捕集地点の気温と相対湿度に応じた捕集箱の数とフィルタ面積を選定する必要がある。なお、月単位では、捕集容器保存中の水蒸気のリークにも注意せねばならない。

Fig. 25に、Active法とPassive法でサンプリングを行った資料の比較を示す。5点のうち4点は良く一致している。

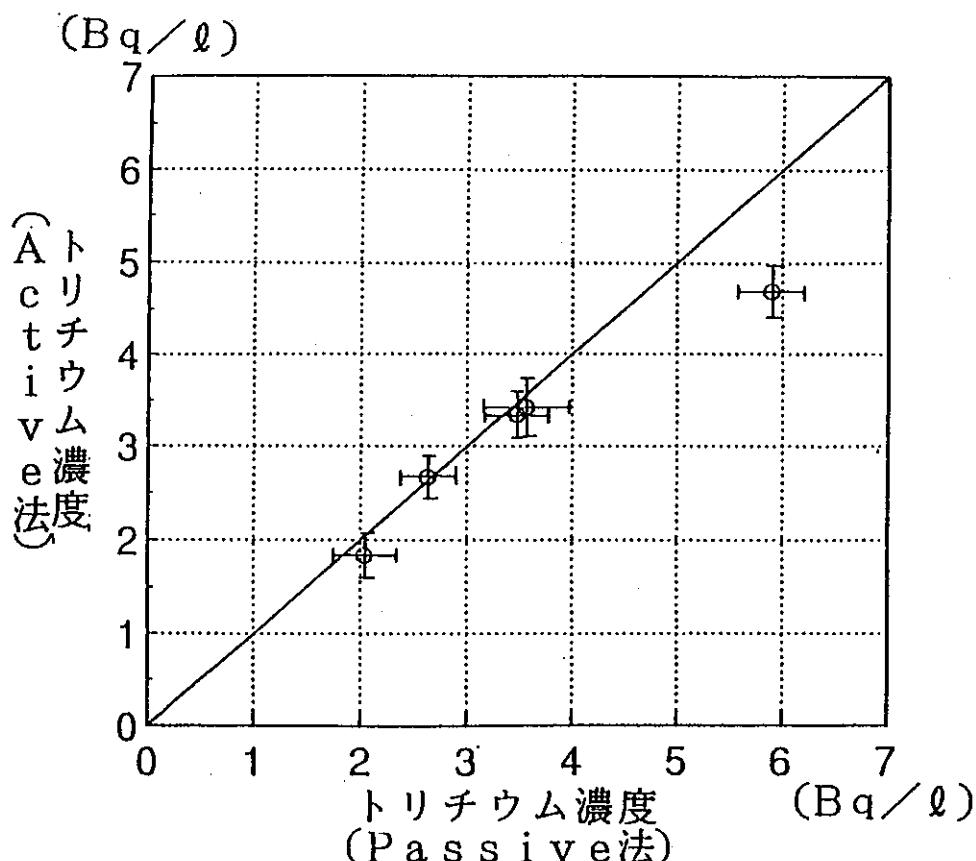


Fig. 25 Comparison between passive and active sampling method

#### 4.3.2 観測

Fig. 22に示した中国の13城市において、1992年6月より1年間、2ヶ月毎に水蒸気サン

プリングを実施している。また同期間に、札幌、仙台、名古屋、熊本、那覇の5地点でもサンプリングを実施している。中国の試料は、北京の衛生部工業衛生実験所に集めて、モレキュラーシーブからの水の回収および液体シンチレーションカウンター（Aloka LB-1）による計測を実施している。

また、水蒸気動態解析に用いるため、地理的位置に特徴のある蘭州、北京、福州の3市において、Active 法を用いたサンプリングを行っている。サンプリングは、春夏秋冬の四季節それぞれ10日間の間に5点の試料を得ている。

Table 4には、北京の環境水を用いた濃度測定のクロスチェックの結果を示す。1点を除いてほぼ一致している。

Table 4 Cross-checking of  $^3\text{H}$  analysis between Japan and China

サンプリング地点	種類	トリチウム濃度 (Bq/l)	
		日本	中国
工業衛生実験所	水道水	4.96±0.24	4.22±0.42
北京大学	水道水	3.00±0.24	3.56±0.50
北海公園	湖水	3.13±0.28	2.28±0.15
頤和園	湖水	4.25±0.25	3.77±0.30
香山公園	水道水	2.55±0.26	5.37±0.14

#### 4.3.3 結果

現時点までに得られたデータはさほど多くないが、Table 5に結果を示す。中国の濃度レベルが高いことがうかがわれる。

今後、計画に沿ったデータが得られたら、経年変化、分布と緯度、内陸効果、大気水圏中の動態解析などの検討資料として活用されるものと期待される。

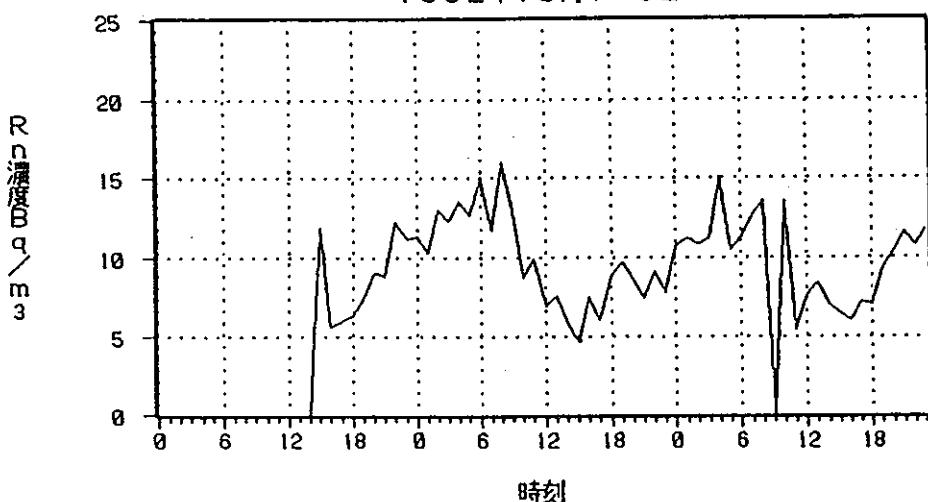
Table 5 List of  $^3\text{H}$  concentration in water vapor in Eastern Asia  
(Passive法)

採取場所	トリチウム濃度 (Bq/ $\ell$ )	
	6, 7月	8, 9月
北海道	1.56±0.23	0.76±0.27
宮城	1.40±0.28	1.80±0.26
愛知	1.65±0.27	0.40±0.22
熊本	1.57±0.25	0.29±0.24
沖縄	0.84±0.27	0.80±0.27
北陸	15.80±1.16	15.80±0.13
長春	39.19±2.00	28.32±2.16
西安	4.00±0.80	19.60±1.57
	22.33±1.78	

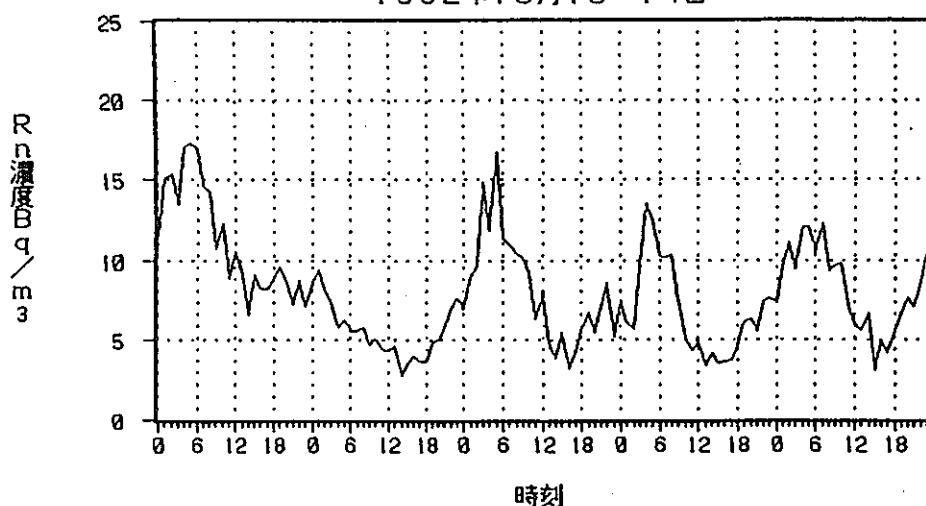
※) 日本のデータは名古屋大学  
中国のデータは中国にて測定

## 付録 北京におけるラドン濃度連続測定

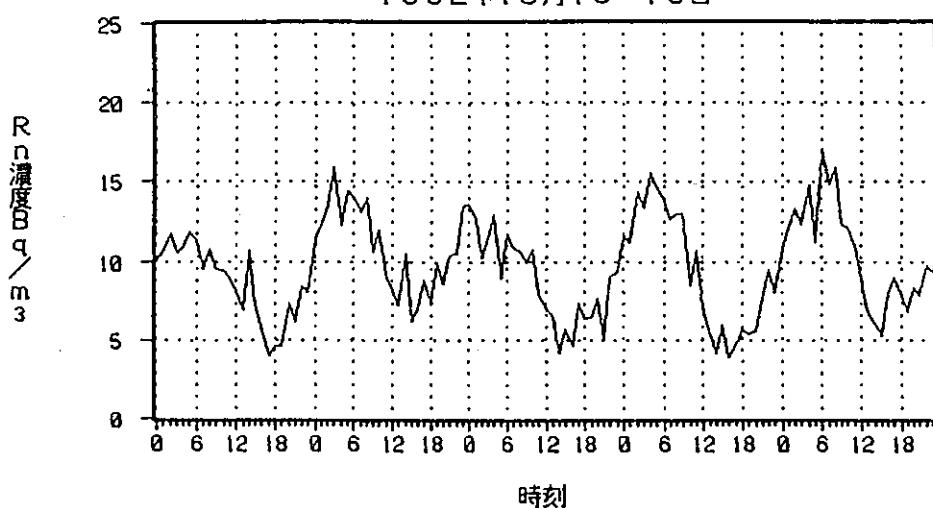
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年10月7-9日



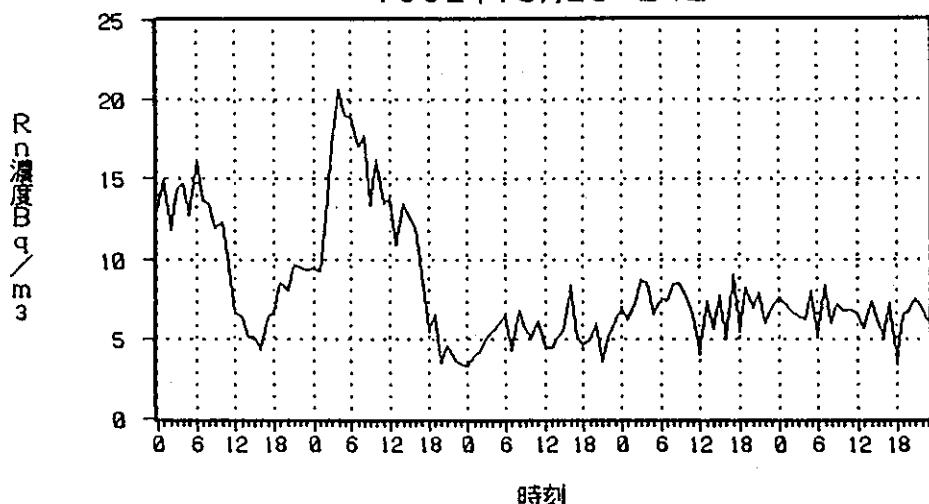
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年10月10-14日



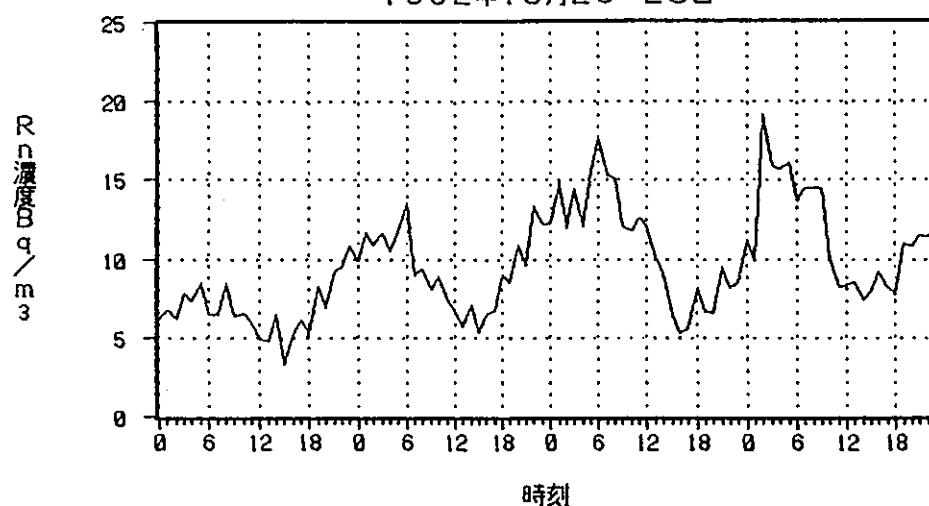
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年10月15-19日



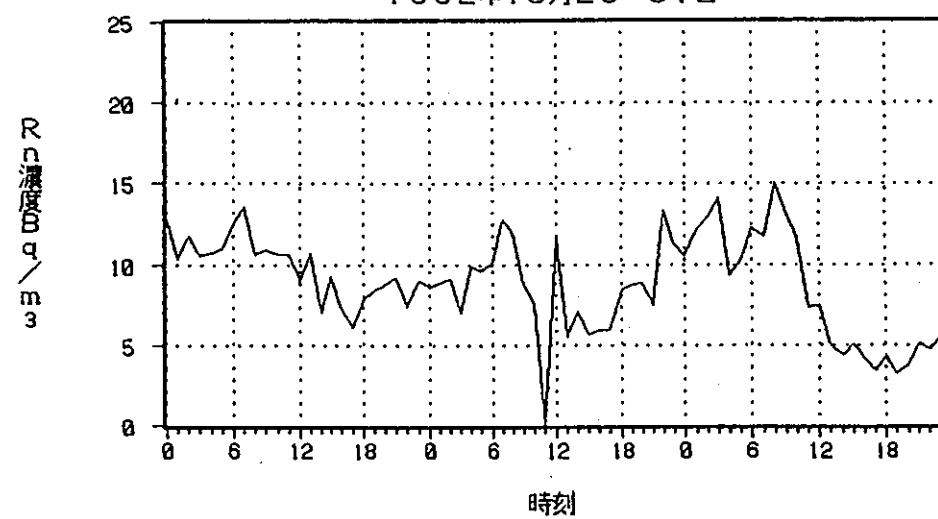
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年10月20-24日



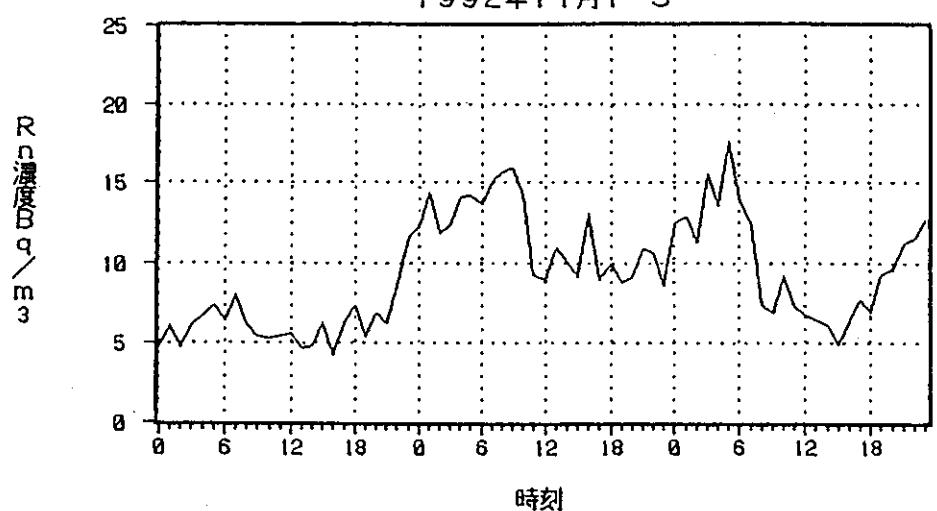
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年10月25-28日



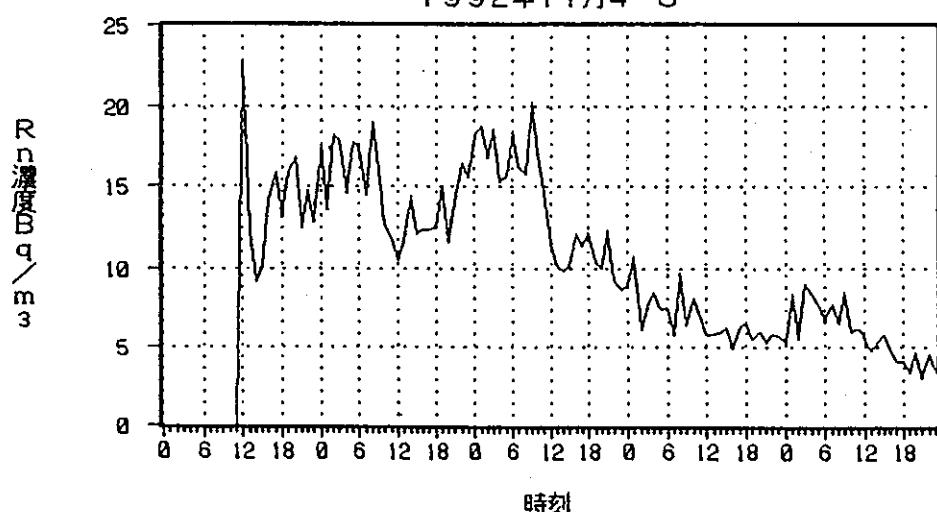
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年10月29-31日



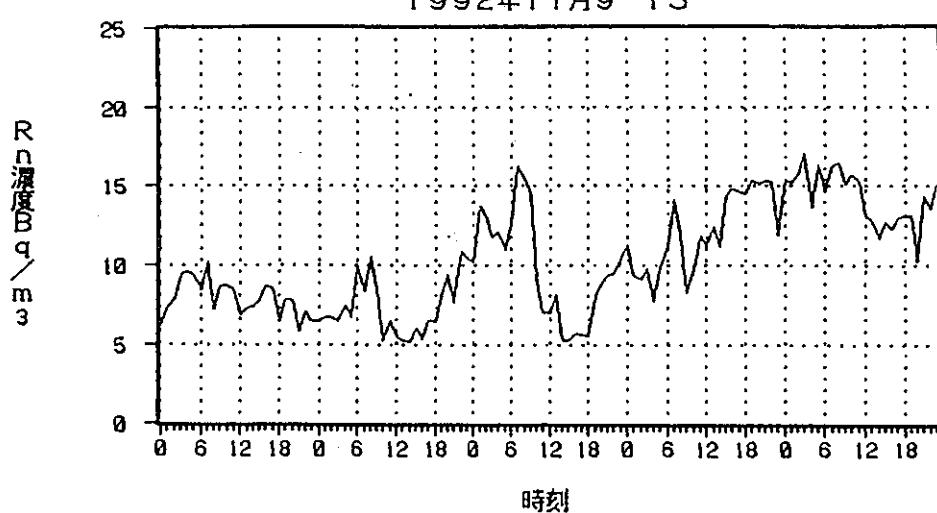
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年11月1-3



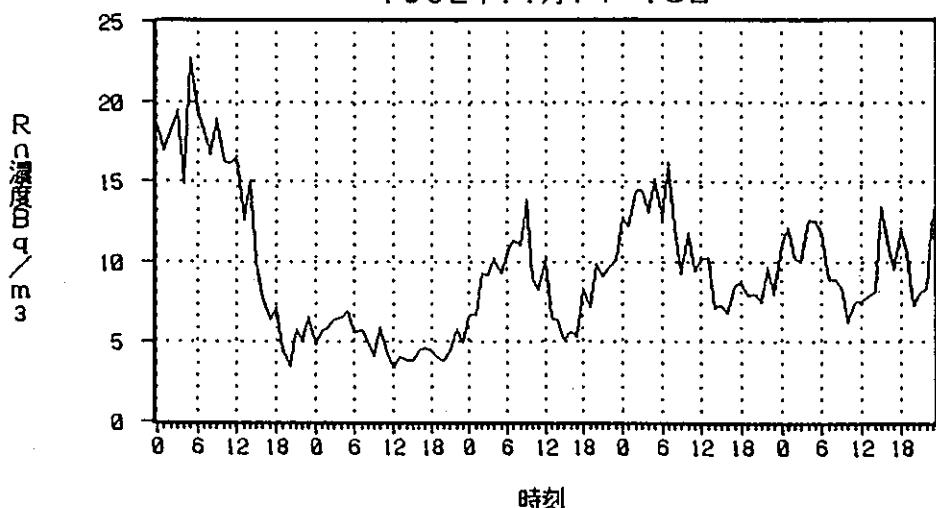
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年11月4-8



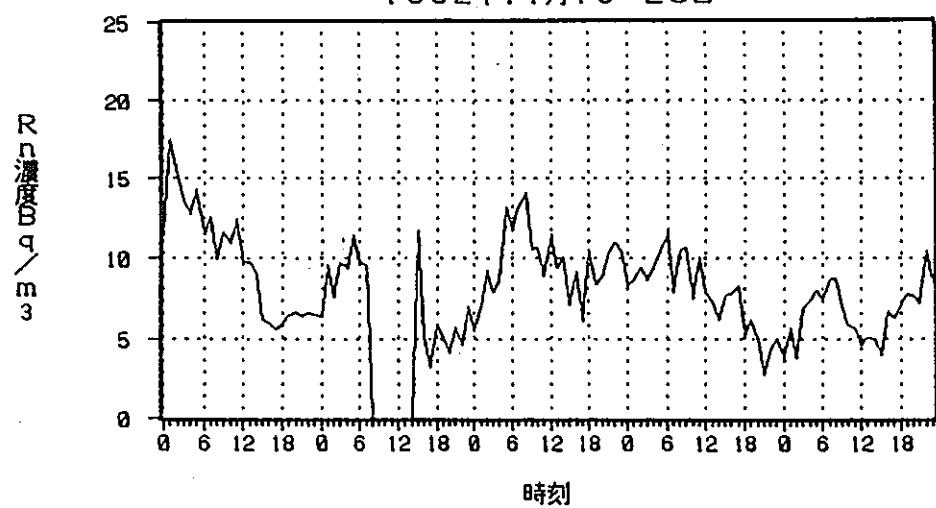
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年11月9-13



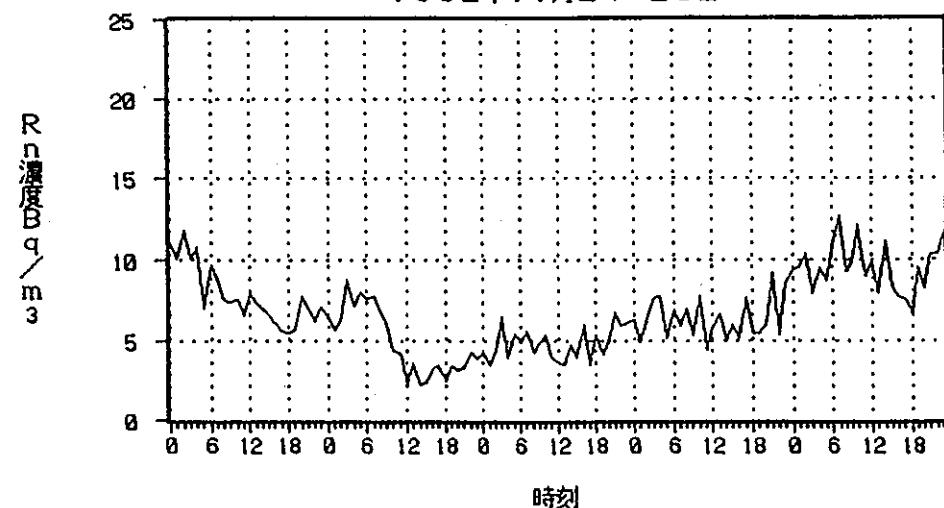
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年11月14-18日



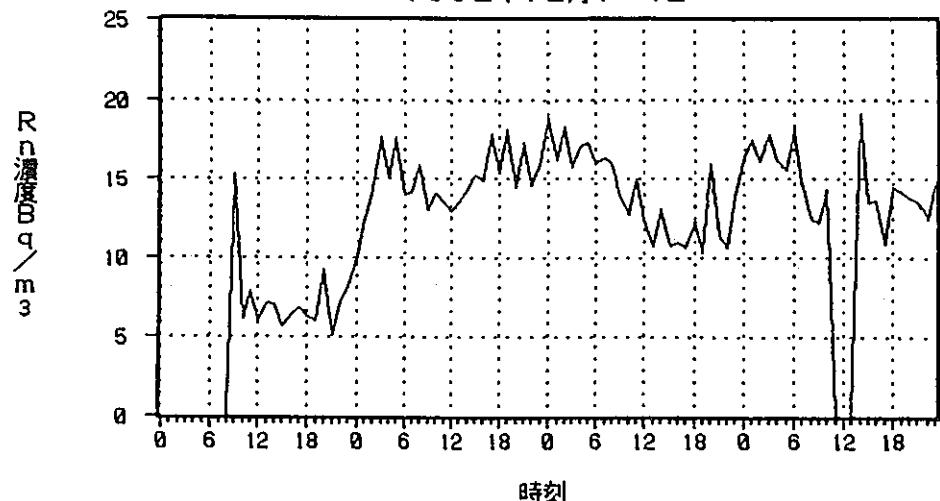
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年11月19-23日



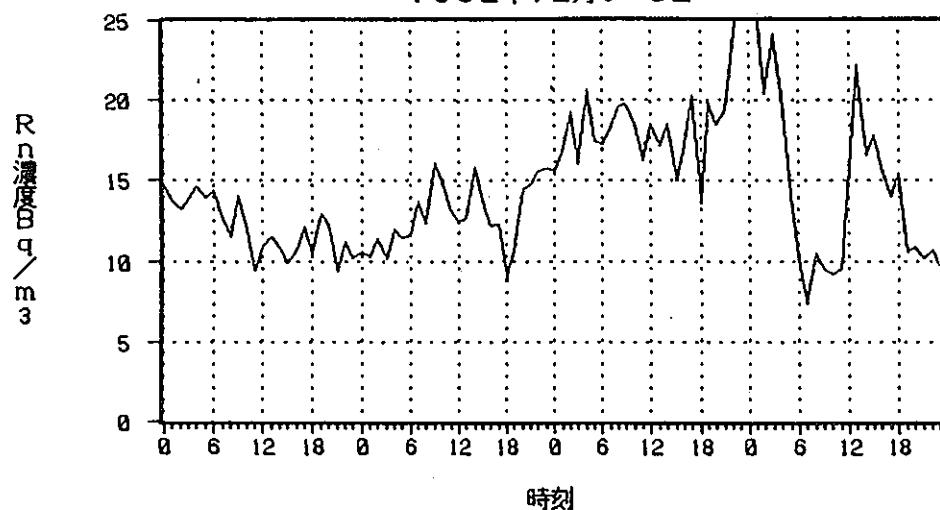
Rn濃度(北京)連続測定  
1992年11月24-28日



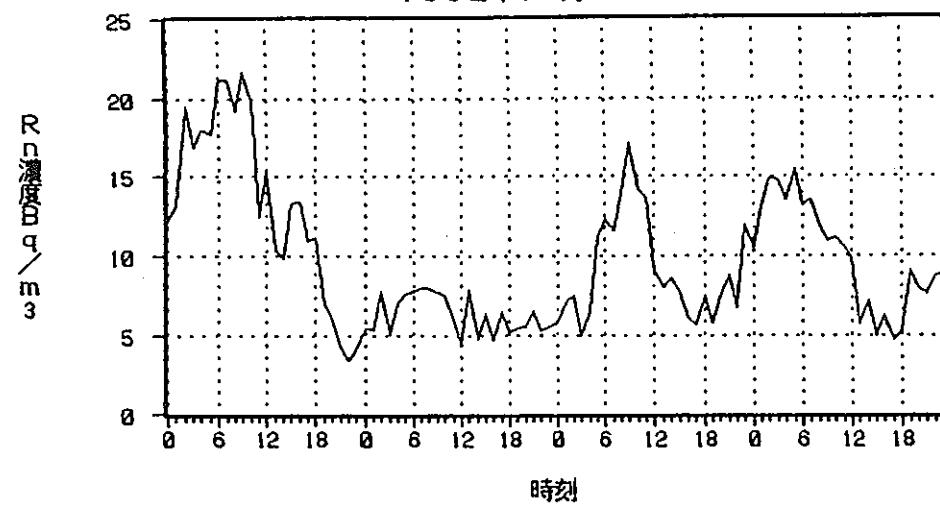
Rn濃度（北京）連続測定  
1992年12月1-4日



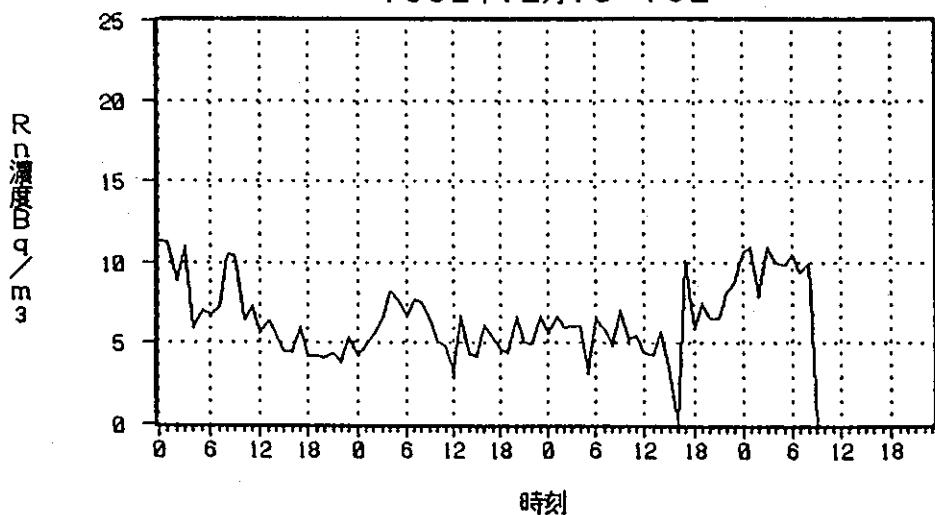
Rn濃度（北京）連続測定  
1992年12月5-8日



Rn濃度（北京）連続測定  
1992年12月9-12日



Rn濃度(北京)連続測定  
1992年12月13-16日



## Reference

- 1) J. E. Pearson, and G. E. Jones, Emanation of Radon-222 from Soils and Its Use as a Tracer : *J. Geophys. Res.*, Vol. 70, pp. 5279-5290
- 2) 東条啓司, 土壤からの $^{222}\text{Rn}$  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年3月)
- 3) Y. Ikebe et al., Use of Radon-222 as a Tracer in the Study of Atmospheric Diffusion : Proc. the Third Intern. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research, Mito, March (1991)
- 4) S. Abe, et al., Extensive Field Survey of Natural Radiation in Japan : *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol. 18, pp. 21-45 (1981)
- 5) H. Yamanishi et al., Measurements of Regional Distribution of Radon-222 Concentration : *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol. 28, pp. 331-338 (1991)
- 6) 大気中放射性物質の広域挙動に関する調査研究: (財)原子力安全技術センター (平成4年3月), PNC PJ1545 92-005
- 7) 松岡健一, 地中 $^{226}\text{Ra}$ の含有量及び気象データを用いた $^{222}\text{Rn}$ 散逸率の推定:名古屋大学卒業論文 (1993年3月)
- 8) T. Kataoka and Y. Ikebe, Measurement of Soil Concentration Profile of Radon-222 and Its Effect on Exposure Rate : *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol. 19, pp. 757-761 (1982)
- 9) 坂下哲哉, 大気中ラドン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 (1992年3月)
- 10) 村上俊行, 屋外大気中 $^{222}\text{Rn}$ 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 (1993年3月)
- 11) 環境被曝線量評価, 日本原子力学会 (1975年)
- 12) 王作元, 私信
- 13) 金益和, 私信
- 14) 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:名古屋大学大学院修士論文 (1988年3月)
- 15) 横山須美, 大気水蒸気中トリチウム濃度の測定:名古屋大学大学院修士論文 (1992年3月)

- 16) GEWEX 作業委員会, GEWEX へ向けて—我国の取り組みの現状— : 天気, Vol. 38, No. 10,  
pp. 45-50 (1991)
- 17) 瞑津正俊, 東アジア地域におけるトリチウム濃度の調査 : 名古屋大学卒業論文  
(1993年3月)
- 18) W. R. Schell, et al., World Distribution of Environmental Tritium, IAEA-SM-181/34,  
375 (1973)