

本資料は 年 月 日付けて登録区分、
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(Ⅲ)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

平成 6年 3月

財団法人原子力安全技術センター

印

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 PJ1545 94-003
1994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。先ず、ラドンの発生源分布を土壤の ^{226}Ra 含有量分布から計算によって作成した場合、各地の土壤物性の差異に起因する実測値との差異は $\pm 50\%$ 以内であることを示した。次に日本で観測されるラドンの発生源別寄与について検討した。3次元移流・拡散数値シミュレーション、流跡線モデルなどに基づいて、季節風卓越時の大陸からの寄与は、金沢、名古屋で $1 \sim 3 \text{ Bq}/\text{m}^3$ であると推測された。また、中国を含む東アジア地域で実施した水蒸気中トリチウムの組織的調査で得られた地域分布を示し、北京における濃度の日々変動を2層流跡線モデルを用いて解析した結果を示した。

* 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 050 D 0247

事業担当者：浅野智宏 安全部安全管理課

LIMITED DISTRBUTION
PNC PJ1545 94-003
MARCH, 1994



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 radon and tritium, we carried out the following study: First, it is shown that the estimated radon exhalation rate obtained at each place from ^{226}Ra content of soil using a theoretical formula coincides with the measured value within ± 50 percent. The difference arises from the property of soil. Next the origin of measured radon was studied. Based on a numerical simulation of three dimensional diffusion of radon, a trajectory model and other analytical methods, it is concluded that in winter monsoon season contribution of radon originated from Asian Continent amounts to $1\sim 3 \text{ Bq/m}^3$ at Nagoya and Kanazawa. Finally, regional distributions of tritium concentration in water vapor in East Asia are shown. Observed day-to-day variation of tritium concentration in water vapor at Beijing is also shown. The variation was analyzed by using a two-layer trajectory model for tritium behavior in the atmospheric environment.

※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（Ⅲ）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 環境衛生研究所第一研究室長
	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教授
	永 峰 康一郎	名古屋大学工学部原子核工学部助手
	石 塚 信	(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 序	1
1.2 ラドンの発生源分布の評価	1
1.3 ラドンの大気中挙動モデルの調査	1
1.4 東アジアにおけるトリチウムの調査	2
2. ラドンの発生源分布の評価	2
2.1 中国における散逸率等の測定	2
2.2 検討および結論	4
3. ラドンの大気中動態モデルの調査	7
3.1 流跡線モデル	7
3.2 中国におけるラドンの連続測定	9
3.3 ラドンの発生源別寄与	12
4. 東アジアにおけるトリチウムの調査	18
4.1 はじめに	18
4.2 passive 法による測定	19
4.3 active法による測定	21
付録1. 北京における屋外ラドン濃度測定	26
付録2. ブルームモデルによる測定値の解析	35
参考文献	39

図 表 目 次

Fig. 1 Relationship between Rn exhalation rate and liquid water content of soil at Chaungchun	4
Fig. 2 Relationship between outdoor Rn concentration and ^{226}Ra content in soil	4
Fig. 3 Relationship between outdoor Rn exhalation rate and ^{226}Ra content in soil	6
Fig. 4 Relationship between distant Rn component and time	8
Fig. 5 Calculation of time variation of distant Rn component	9
Fig. 6 An example of temporal variation of observed Rn concentration of Beijing in 1993	10
Fig. 7 Monthly mean value of Rn concentration at Beijing and Fuzhou	11
Fig. 8 Map of six separated Rn sources	13
Fig. 9 Calculated Rn concentration from six classified sources in December, 1990	14
Fig. 10 Comparison between calculated and observed Rn concentration	15
Fig. 11 Comparison of Rn concentration measured at Kasugai, Toki, Kanazawa and Nagoya in Jan. 1~10, 1991	16
Fig. 12 System of water vapor sampling and tritium measurement	18
Fig. 13 Sampling station of tritium in water vapor in Eastern Asia	20
Fig. 14 Two-monthly mean value of tritium concentration in water vapor	20
Fig. 15 Regional distribution of tritium concentration in water vapor in August-September, 1992	21
Fig. 16 Regional distribution of the annual mean value of tritium concentration in water vapor from June, 1992 to Sept., 1993	22
Fig. 17 Day-to-day variation of tritium concentration in water vapor at Beijing	24
Fig. 18 Two-layer trajectory model for transport of tritium in water vapor	24
Fig. 19 Source of tritium in evaporated water vapor assumed from tritium concentration in rain and snow	25

Fig.20 Comparison between observed tritium concentration and calculated one by two-layer trajectory model	25
Table 1 List of observation data at Chaungchun	3

1. 序

原子力開発を推進するにあたっては、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}Rn)とトリチウム(^3H)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、発生源分布を知る必要がある。前報において、組織的調査データのある土壤の ^{226}Ra 含有量分布図から理論計算によって中国のラドン発生源分布図を作成した。この分布図の信頼性を検討するため、中国において散逸率等の測定を実施した。検討の結果、様々な場所で土壤の ^{226}Ra 含有量から散逸率を推定すると、ほぼ±50%の範囲で実測値と合うことが示された。また、推定値の不正確さは土壤物性の差異に起因するものと推測された。

1.3 ラドンの大気中挙動モデルの調査

日本で観測されるラドンの発生源別の寄与について、名古屋の観測値の解析例を中心とし、大陸からの寄与の評価に重点をおいて述べている。

(1) 3次元移流拡散数値シミュレーション

局地スケールおよび広域スケールの移流拡散シミュレーションを実施すると、ラドンの観測値と比較することができる。計算値は観測値とよい対応を示す。中国、朝鮮半島を含む大陸部を6つの地域に区分し、広域スケール数値シミュレーションによって各地域に起源をもつラドンの名古屋における濃度への寄与を評価した。北西風が卓越する冬季の大陸からの寄与は名古屋において $1 \sim 3 \text{ Bq}/\text{m}^3$ であった。

(2) 日本各地のラドン連続測定

名古屋、金沢、春日井、土岐などにおけるラドンの連続観測値から、北西風が卓越した期間の金沢のラドンの起源は大陸とみることができること、濃度は $2 \sim 3 \text{ Bq}/\text{m}^3$ であるこ

とが推測された。

(3) 流跡線モデル

流跡線に沿って動く空気に気柱を考え、気柱内のラドンの収支をモデル化することによって、ラドンの濃度の変動を解析した。このモデルによって、大陸起源ラドンの寄与を評価することができる。

以上の検討から、大陸起源ラドンの日本における寄与は、地理上の位置、季節や気象条件によって異なるが、十分考慮すべきレベルにあるとの結論を得た。

1.4 東アジアにおけるトリチウムの調査

中国で行われている環境トリチウムの全国規模調査を合わせて、東アジア地域における水蒸気中トリチウムの調査が実施された。この調査には、passive 法による水蒸気捕集法を用いた地域分布測定と、active法による採集法を用いた日々の濃度変動測定がある。この報告には、得られた地域分布と濃度変動の測定例が示されている。また、濃度変動を二層流跡線モデルを用いて解析した結果が示されている。

2 ラドンの発生源分布の評価

ラドンの発生源分布を知ることは、この報告で取り扱っている広域輸送計算における線源項として欠かせないことはもとより、地球温暖化や酸性雨研究へのラドンのトレーサー利用、肺線量評価に有用なポテンシャルラドン濃度算定などへの応用につながる理工学の基礎資料としての価値がある。

2.1 中国における散逸率等の測定

前年度報告で北京における測定結果をまとめた。その後長春で四季にわたって散逸率等の測定を行った。Table 1 およびFig. 1 にその結果をまとめて示す。

図に認められるように、散逸率の土壤含水率依存性が認められる。鉄北公園のデータを除くと、平均約 $30\text{mBq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ である。

西安で1993年4月に行った測定結果は、4地点で、1.5, 2.3, 2.7, 9.3, 18 $\text{mBq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ であり、かなりばらついていた。今後の測定が待たれる。

Table 1 List of observation data at Chaungchun

測定地点	南湖公園	人民広場	西安広場	鉄北公園	動植物園
気温 (°C)					
1992年 8月	26.8	27.0	29.0	27.8	29.3
1992年11月	7.0	11.0	11.5	12.0	8.2
1993年 3月	4.0	4.0	4.0	5.0	6.0
1993年 5月	21.3	20.0	17.0	20.5	18.5
気圧 (mmHg)					
1992年 8月	740.0	740.3	739.4	741.7	740.6
1992年11月	746.8	747.3	747.0	748.2	748.0
1993年 3月	745.5	747.0	745.2	747.2	746.8
1993年 5月	745.2	743.4	746.0	746.5	744.5
土壤含水量 (%)					
1992年 8月	10.3	14.6	12.4	12.2	12.6
1992年11月	14.3	15.7	13.0	16.4	19.2
1993年 3月	21.3	14.1	21.5	22.8	19.2
1993年 5月	17.3	12.3	14.1	19.3	15.4
Rn散逸率 (mBq/(m ² ·s))					
1992年 8月	30.9	35.1	32.5	11.1	29.2
1992年11月	25.2	19.9	50.9	1.3	23.4
1993年 3月	22.1	2.2	4.6	4.3	32.1
1993年 5月	18.8	37.1	35.8	7.9	38.3
土壤中核種含有量 (Bq/kg)					
²²⁶ Ra 1992年 8月	21.4	30.4	20.6	36.0	29.2
1992年11月	32.1	26.4	27.4	29.3	36.2
1993年 3月	19.8	23.4	26.1	34.4	36.2
1993年 5月	30.9	32.7	28.8	45.8	47.7
²³² Th 1992年 8月	44.4	52.8	46.1	57.3	53.5
1992年11月	50.5	52.6	45.7	45.2	50.9
1993年 3月	42.2	47.0	46.1	48.8	50.9
1993年 5月	48.8	59.2	42.2	58.8	58.5
⁴⁰ K					
1992年 8月	665	738	646	735	589
1992年11月	653	666	654	625	593
1993年 3月	655	690	631	624	593
1993年 5月	736	706	675	636	560

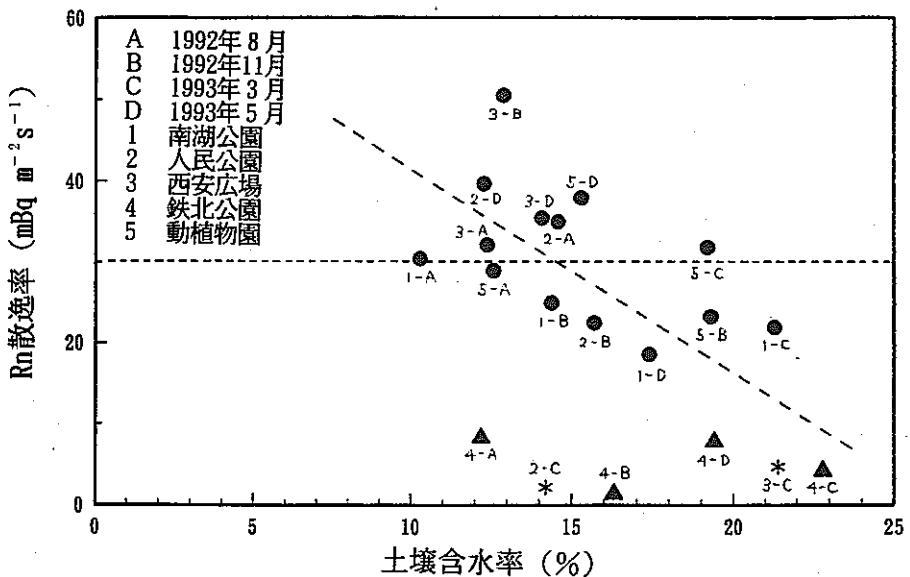


Fig. 1 Relationship between Rn exhalation rate and liquid water content of soil at Chaungchun

2.2 検討および結論

Fig. 2 に土壤中 ^{226}Ra 含有量と、passive 法で測定した空気中 Rn 濃度（年平均値）との関係を示す（一部のデータは本報告書 I¹⁾ の Fig. 12 に既出、名古屋の Ra 含有量と貴陽の Rn 濃度は訂正してある）。図のばらつきの原因として、今まで次の 4 つの要因を挙げた^{1), 2)}。

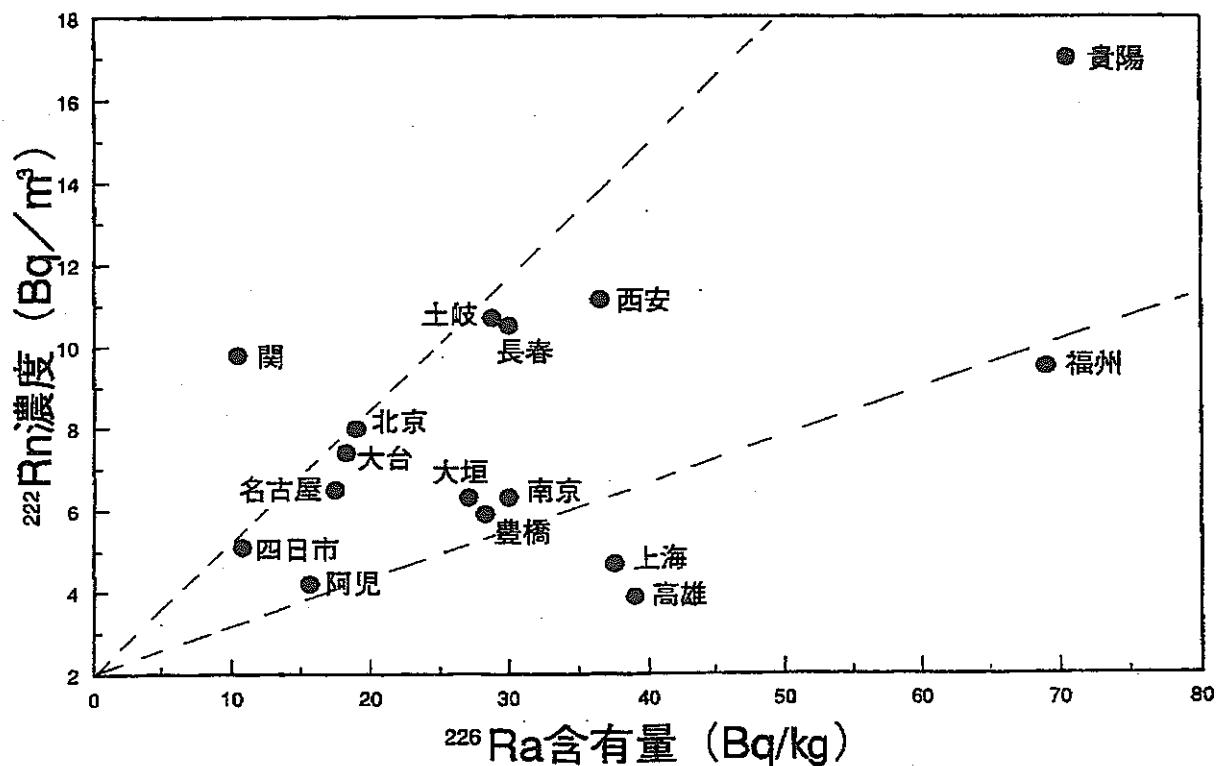


Fig. 2 Relationship between outdoor Rn concentration and ^{226}Ra content in soil

- 1) 内陸乾燥地域では土壤含水率が小さい可能性があること
- 2) 内陸地域は大気安定度で安定の出現頻度が高いこと
- 3) 地理的位置による海洋の影響の有無
- 4) 土壌物性のちがい

このうち、1)と2)の要因では、北京、西安の内陸部地点が上海、福州などの沿岸部地点に較べてRa含有量に対する空気中Rn濃度が高い事実の説明をし得ないことを前報で述べた。新たに加えた日本の中北部地区的データも加味すると、上記3)と4)の要因が両者のばらつきの理由であると判断される。村上³⁾によると、測定点の20~30km圏内から発生したRnによる寄与がRn濃度の大部分を占める。このことから、海岸近傍の都市は上記3)の要因により低濃度の説明をしうるが、海から数10km以上内陸の地点については、上記4)の土壤物性によって相関にはばらつきを生じているものと推定される。

Fig. 3には、散逸率と土壤中²²⁶Ra含有量との関係を示す。この関係は、発生源(散逸率)との直接の関係を示しており、気象条件や地理的条件に依らない関係である。北京、長春のデータは今回の調査で得られたもの、名古屋のデータは名古屋大学第3グリーンベルトにおける値、中部地区における各点は東条⁴⁾と赤沢⁵⁾が得た観測値を整理したものである。

Rn散逸率Eは次の式で表わされる²⁾。

$$E = \delta A \sqrt{\frac{D}{\lambda}} \quad (\text{Rn atom} \cdot \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}) \quad (1)$$

ここでAは土壤のRa含有量(Bq/cm⁻³ of soil)である。

この式に拡散係数D=0.05cm²s⁻¹、Rnの崩壊定数2.1×10⁻⁶s⁻¹を代入し、土壤密度を2.0g·cm⁻³とする。今ラドンのescape-to-production ratio δ=0.15, 0.1(UNSCEAR, 1982)、およびδ=0.067を仮定すると図の実線および点線の関係をうる。

図より、δ=0.1として土壤中の²²⁶Ra含有量から推定する散逸率Eは、ほぼ±50%の範囲で実測値と合うことが示される。測定地域の片寄りなどを考慮すると、この図に示された関係は実測例を増して確認してゆく必要がある。

以上これまでにってきた考察によって、次の結論をうる。ラドンの発生源分布をうるため、次の方法が考えられる。

- 1) Rn散逸率を直接測定する方法は、ある地域の平均的な散逸率を評価するためには多点の測定が必要であり非常に多くの労力を要するため適当でない。簡便な散逸率測定法の開発

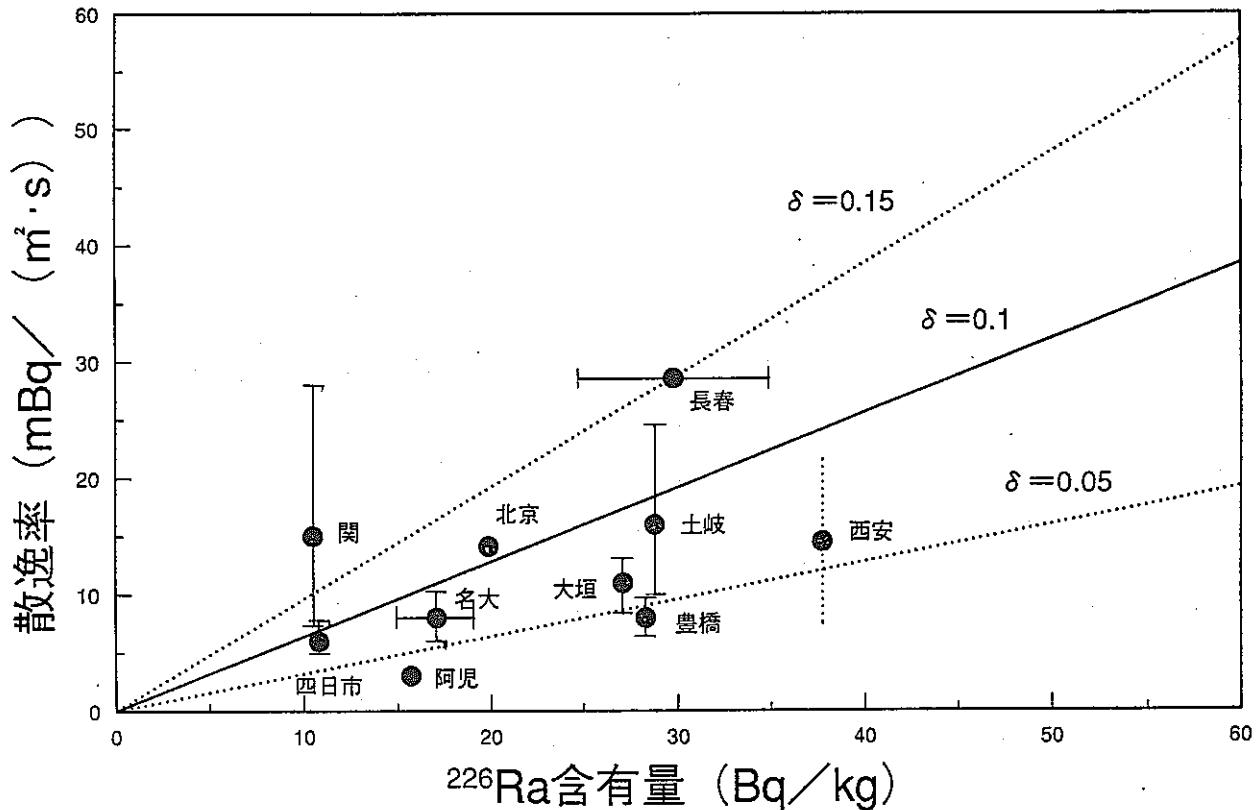


Fig. 3 Relationship between outdoor Rn exhalation rate and ^{226}Ra content in soil

が望まれる。

2) 土壤中の ^{226}Ra 含有量の測定は散逸率測定よりも労力を要しないため、上記(1)式を用いて散逸率を推定する方法としては 1) よりも実用的である。但し推定値に土壤物性に起因する誤差 $\pm 50\%$ 程度がありうる。

3) passive 法で測定した空気中 Rn 濃度から、前報¹⁾ Fig. 14 に示した関係を用いて散逸率を推定する方法も有用と考えられる。また前報²⁾ Fig. 15 に示した解析など、Active 法による Rn 連続測定値を気象学的に解析することによって、広い地域の平均的な散逸率を評価する手法も更に検討する余地がある。

4) この報告で示した中国の発生源分布は、上記 2) の方法によって得た前報²⁾ Fig. 6 である。中国における散逸率の実測例の解析などによって、図に示した数値には $\pm 50\%$ 程度の誤差がありうる。日本の中北部地区的発生源分布は、上記 3) の方法によって得た前報²⁾ Fig. 4 である。

3. ラドンの大気中動態モデルの調査

3.1 流跡線モデル

池辺ら^{6), 7)}は、流跡線解析によるRnの長距離輸送モデルを提案した。このモデルでは、地上で観測されるRn濃度観測値を、近傍に起源をもち日変動を示す近傍起源成分と、遠方に起源をもち、より長い周期の変動を示す遠方起源成分に分けて取扱う。遠方起源成分は次のようにモデル化する。地表から散逸したラドンは、移流によって流跡線に沿って運ばれながら、拡散によって大気境界層内で一様に混合される。その一部は上層の自由大気層との空気の混合によって大気境界層から除去される。近傍に起源をもつラドンは拡散の途中にあり、鉛直方向に濃度勾配を形成している。遠方起源成分の空気中濃度 n ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) は、流跡線に沿って時間 t をとると、式

$$\frac{dn}{dt} = -(\lambda_d + \lambda_r)n + S$$

で表わされる。ここで

λ_d : 放射性壊変定数 (s^{-1})

λ_r : 自由大気中への除去率 (s^{-1})

S : ラドンの供給率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)

であり

$$S = E / H$$

E : 散逸率 ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

H : 大気境界層の高さ (m)

である。

Fig. 4 は、大陸性気団および海洋性気団について名古屋におけるラドン濃度測定値（遠方起源成分、日最低値より $0.8 \text{Bq}/\text{m}^3$ を差引いた残りの成分）を整理したものである。大陸性気団については、大陸を離れたときを時刻 0 とし、海洋性気団については気塊が日本に上陸した時刻を 0 としている。

いづれの場合も $\lambda_r = 0.5 \text{d}^{-1}$ を用いている。図に示された実線は式(2)の解であり、測定値をよく説明している。

Fig. 4 はデータを統計的に処理したものであるが、Fig. 5 は個々の流跡線に沿ったモデル計算値を示した。図には 3 次元移流拡散数値シミュレーションの結果が比較のために示されて

おり、かなり良い一致が認められる。なお観測値にみられる日変動は近傍に起源をもつ成分によって別の手法で説明される²⁾。

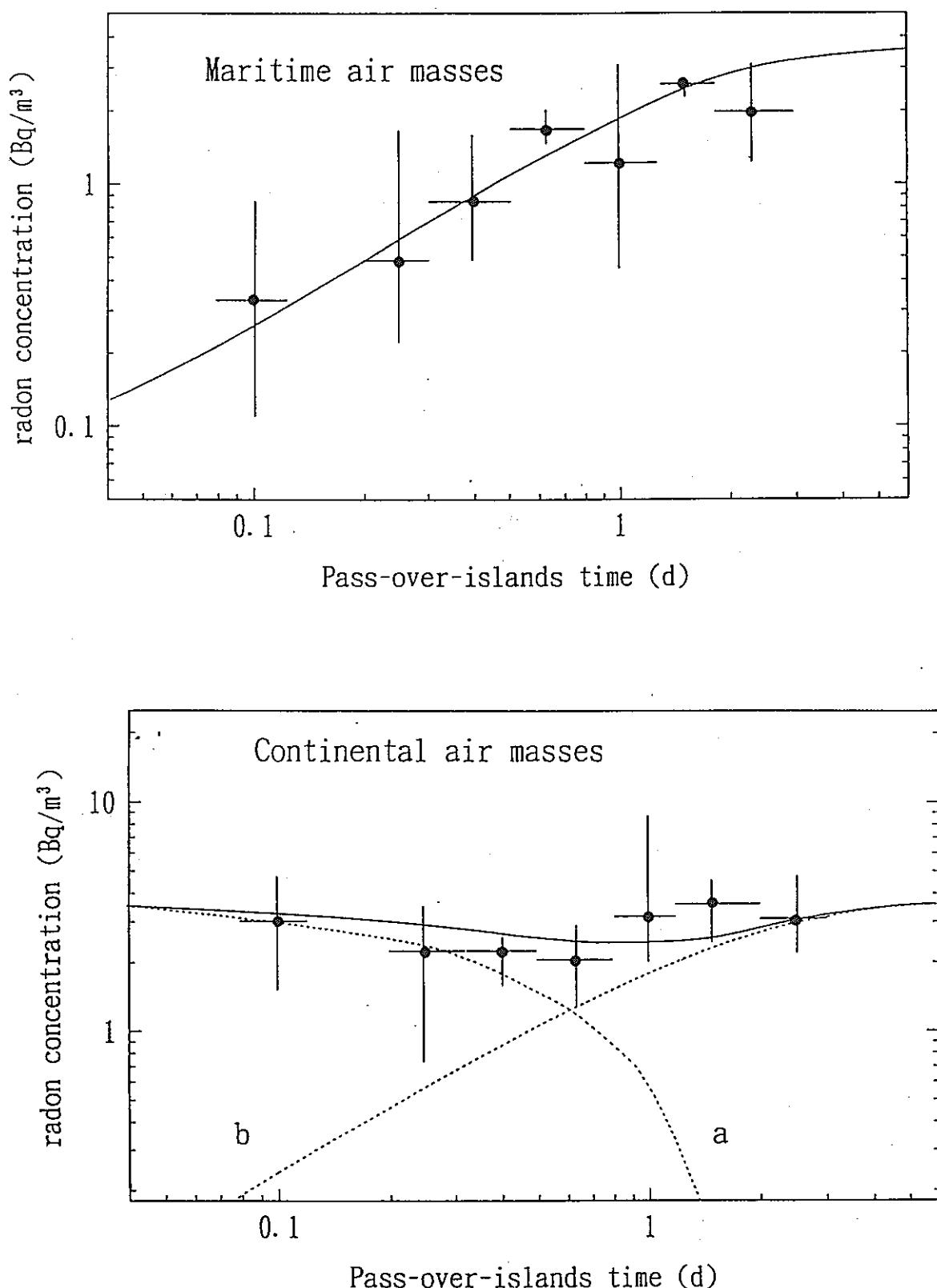


Fig. 4 Relationship between distant Rn component and time

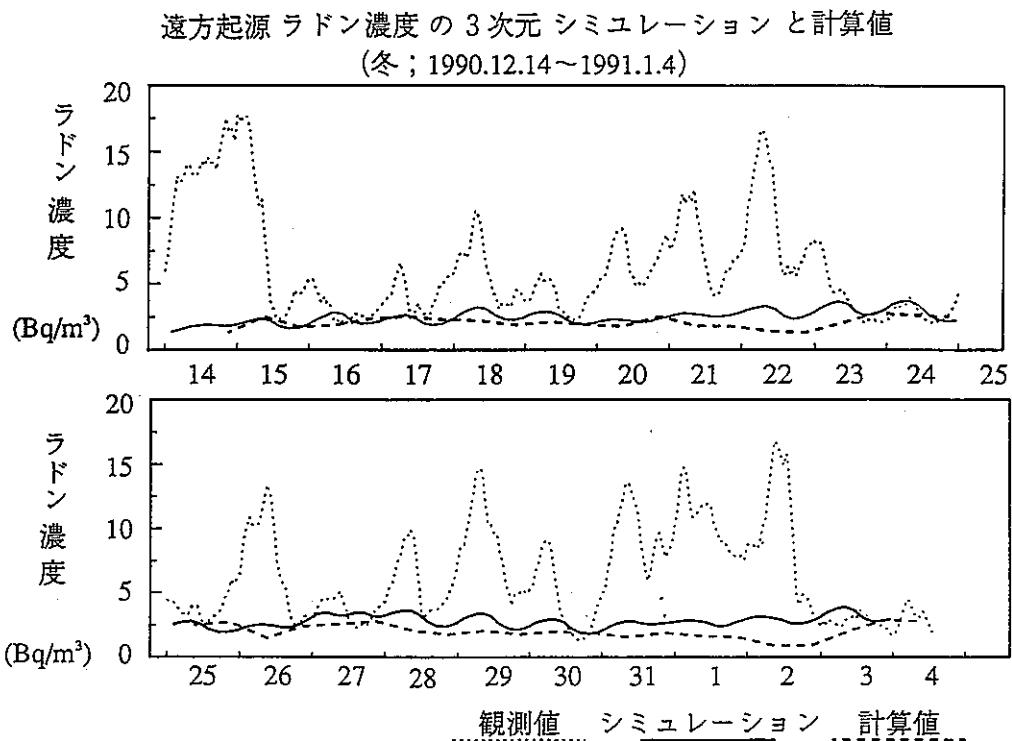


Fig. 5 Calculation of time variation of distant Rn component

3.2 中國におけるラドンの連続測定

前報²⁾付録に、北京におけるラドンの連続測定結果（1992年9月～12月）を示した。測定器は静電捕集方式ラドンモニター（ERM）^{③)}である。Fig. 6にその後の測定例を示す。また付録1に北京における1993年1月～9月の測定結果を示す。

図に認められるように、日変化の最低値は2～3 Bq/m³程度のことが多く、名古屋や福州のような沿岸地点で時々みかけられる0に近い値は認められない。これは北京がかなり内陸にあるためと解釈される。

式(2)および(3)によると、定常状態において

$$n_{\infty} = \frac{1}{\lambda_d + \lambda_r} \cdot \frac{E}{H} \quad (4)$$

となる。今 $E = 14 \text{ mBq}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ （観測値平均）および $n_{\infty} = 2 \sim 3 \text{ Bq}/\text{m}^3$ を代入すると、 $H = 890 \sim 590 \text{ m}$ となり、大気境界層の厚さ（500～1000m）と矛盾しない。

Fig. 8に、北京と福州のRn濃度の月平均値を示す。福州の方がやや高濃度なこと、両地点とも冬季に高く春から夏にかけて低いという季節変動を示していることがよみとれる。

なお、付録2に、前報²⁾に述べたブルームモデルを用いて計算値を観測値に合わせた結果

を示してある。気象データは北京気象台より得た。実測値 $E = 14 \text{ mBq} / (\text{m}^2 \cdot \text{s})$ を用いると計算値と観測値はかなり良い対応を示していることから、実測値は北京地域の代表値として大むね妥当なものと思われる。

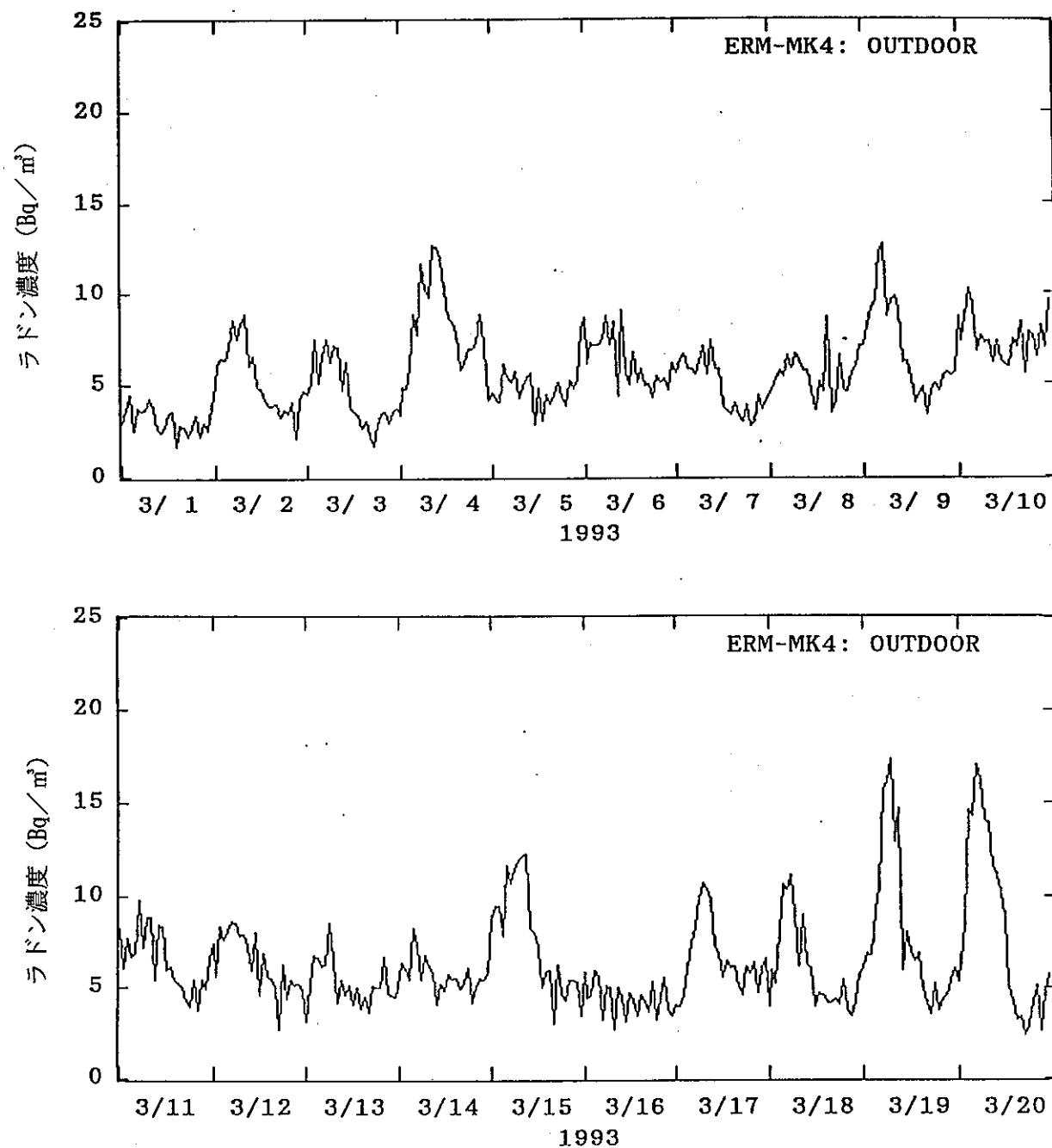


Fig. 6 An example of temporal variation of observed Rn concentration of Beijing in 1993

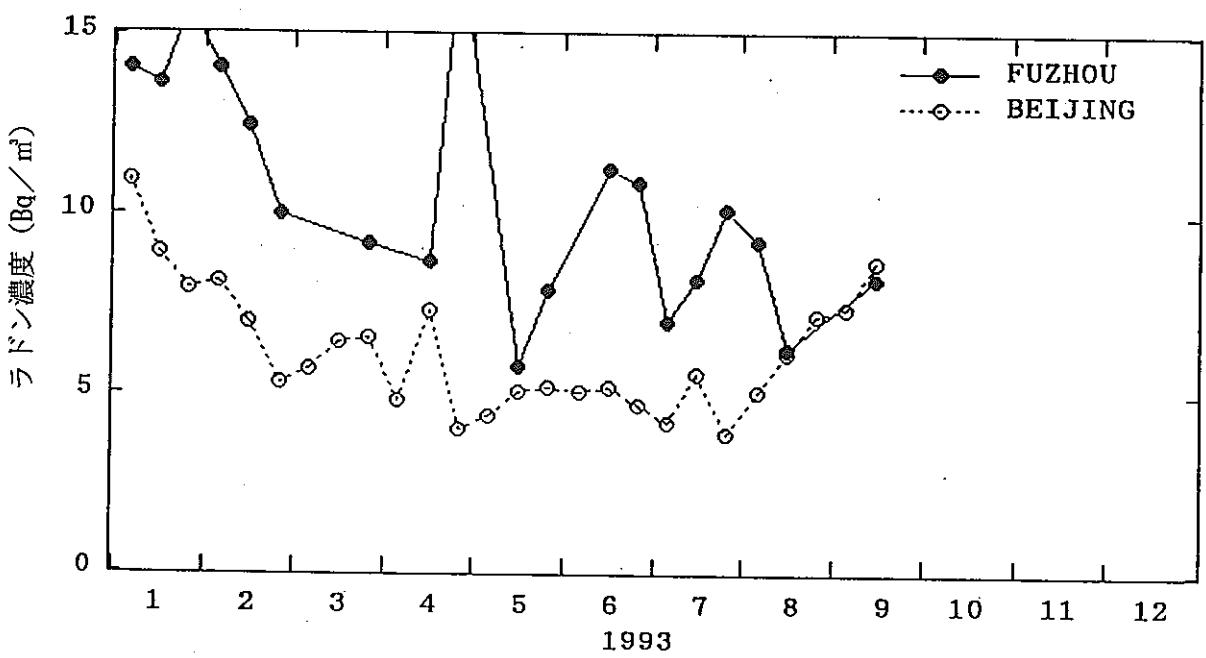
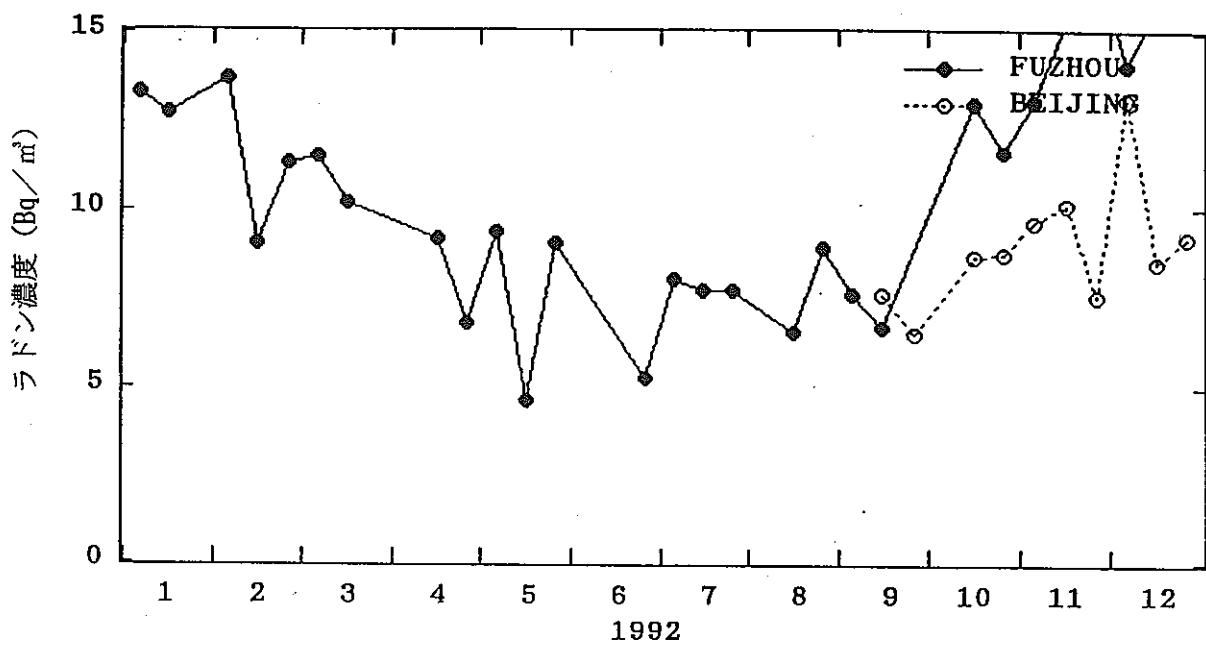


Fig. 7 Monthly mean value of Rn concentration at Beijing and Fuzhou

3.3 ラドンの発生源別寄与

日本で観測されるラドンの発生源別寄与について、名古屋の観測値の解析例を中心とし、大陸からの寄与の評価に重点をおいて検討する。なお、この頃では3年間の調査のまとめの意味で前報までの結果も一部再掲する。

3.3.1 3次元移流拡散数値シミュレーション

発生源別の寄与を評価するのに最適な手法は、ラドンの移流拡散数値シミュレーションによる方法である。シミュレーションに際して、発生源分布が線源として必要となる。前報²⁾で述べたように、数値シミュレーションにおいては、近傍起源成分（名古屋を中心とする80km×80kmを起源とする成分を定義）についての局地スケールの数値シミュレーションと遠方起源成分（4000km×4000kmの東アジアを対象とする）についての広域スケールの数値シミュレーションを行い、両者の和をとって地上ラドン濃度の全成分の時々刻々の変動を計算する。

Fig. 8に広域スケールシミュレーションに用いた発生源分布を示す。散逸率としては、陸上で1Rn原子／(cm³・s)の一様分布を採用している。図において発生源を便宜的に6つの区域に区分してある。数字は計算に用いた1メッシュ(80km×80km)ごとに記入しており、名古屋を中心とする80km四方の散逸率は0とおいている。Fig. 9に名古屋におけるラドン濃度変動の計算値の一例を示す¹⁰⁾。上記6地域からの各々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を与えるよりも、推定した地域分布を与えた方が観測値との一致がよい^{2), 3)}。Fig. 10に観測値と計算値との比較を示す。点線は広域からの寄与、実線は広域と局地両方からの寄与の計算値を示している。シミュレーションの結果は観測値の変動をよく説明している。

上記例によると、北西風が卓越する冬季の大陸からの寄与は、名古屋において1～3Bq/m³であった。このような計算例を重ねると一般的寄与を評価できるであろう。

なおFig. 8の大陸の一様発生源分布は、土壤のRa含有量から推測した発生源分布（報告2）のFig. 6）と大差ないため結果に大きい影響を与えない。なお、広東地域はこの季節には発生源として寄与しないため、散逸率の大きい差異はこの期間は問題とならない。

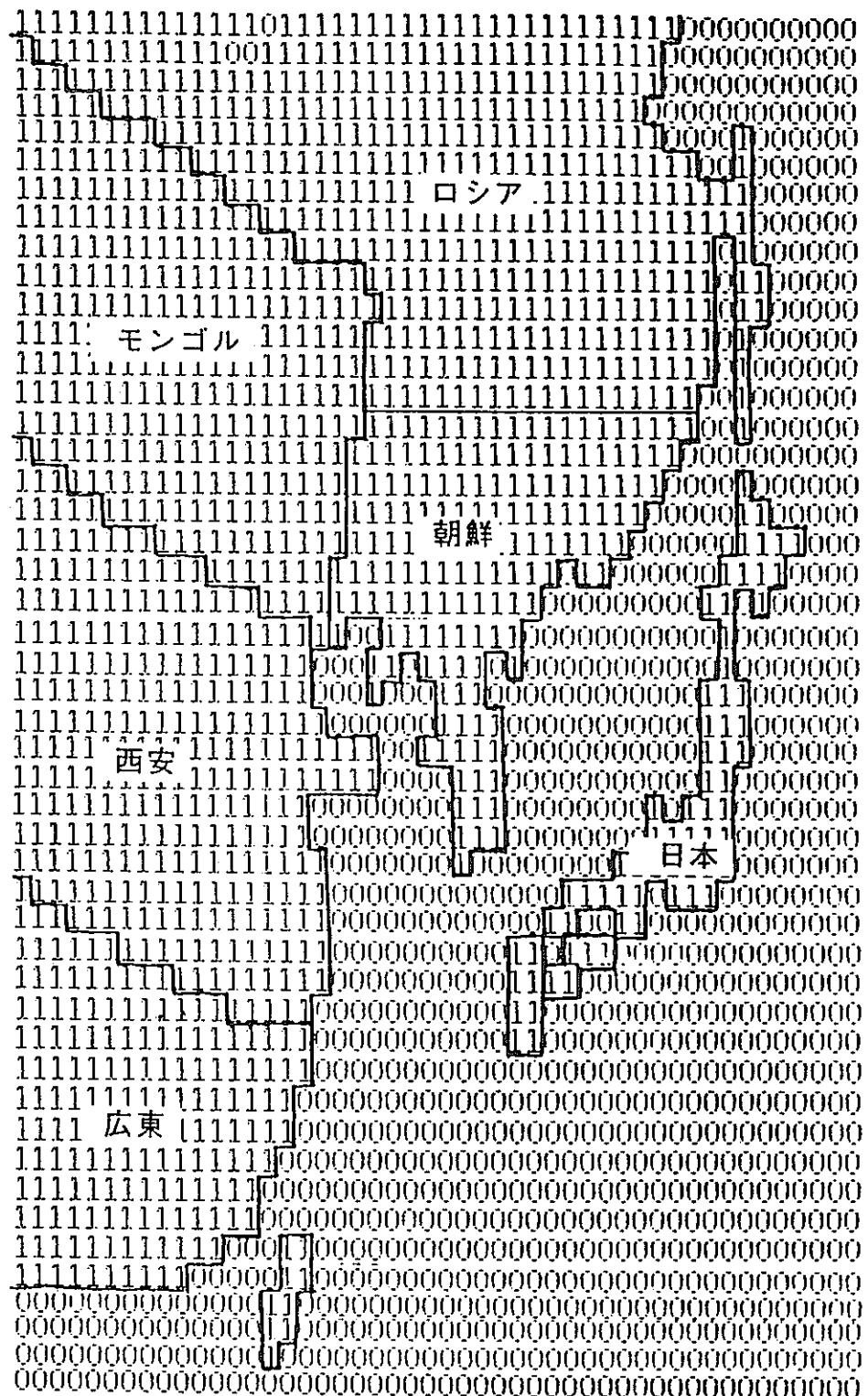


Fig. 8 Map of six separated Rn sources

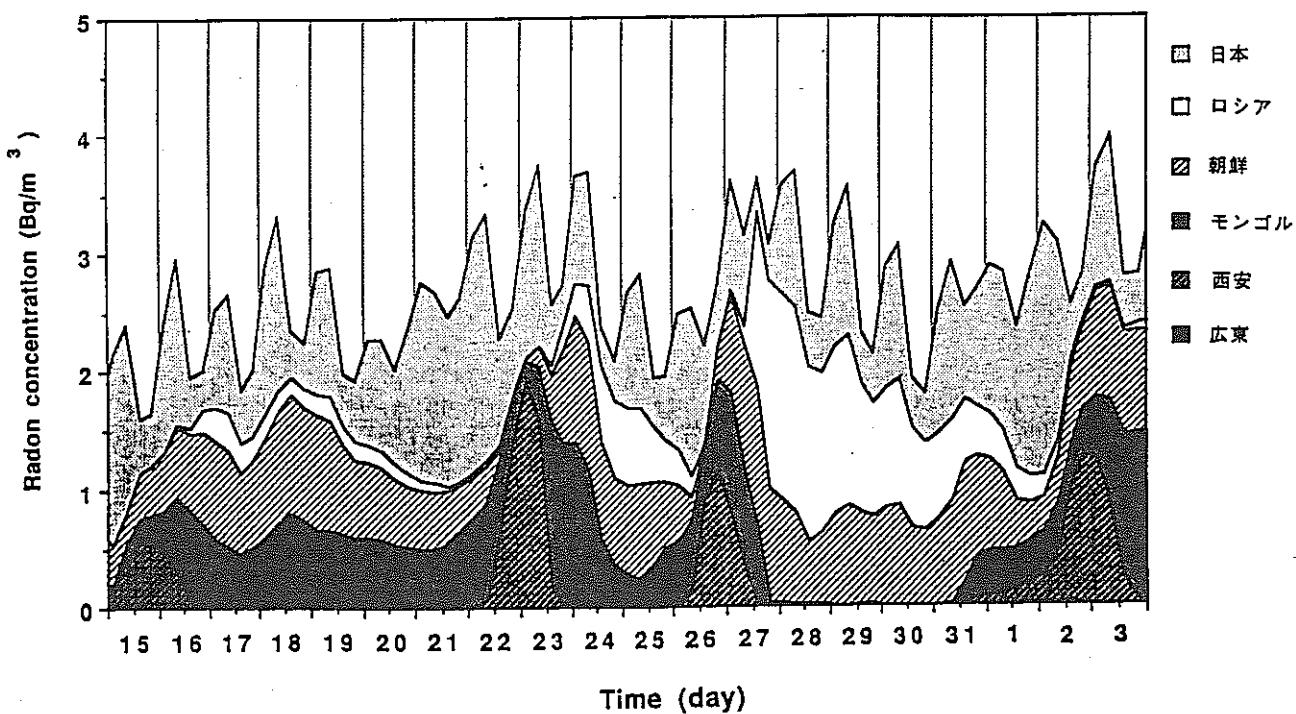
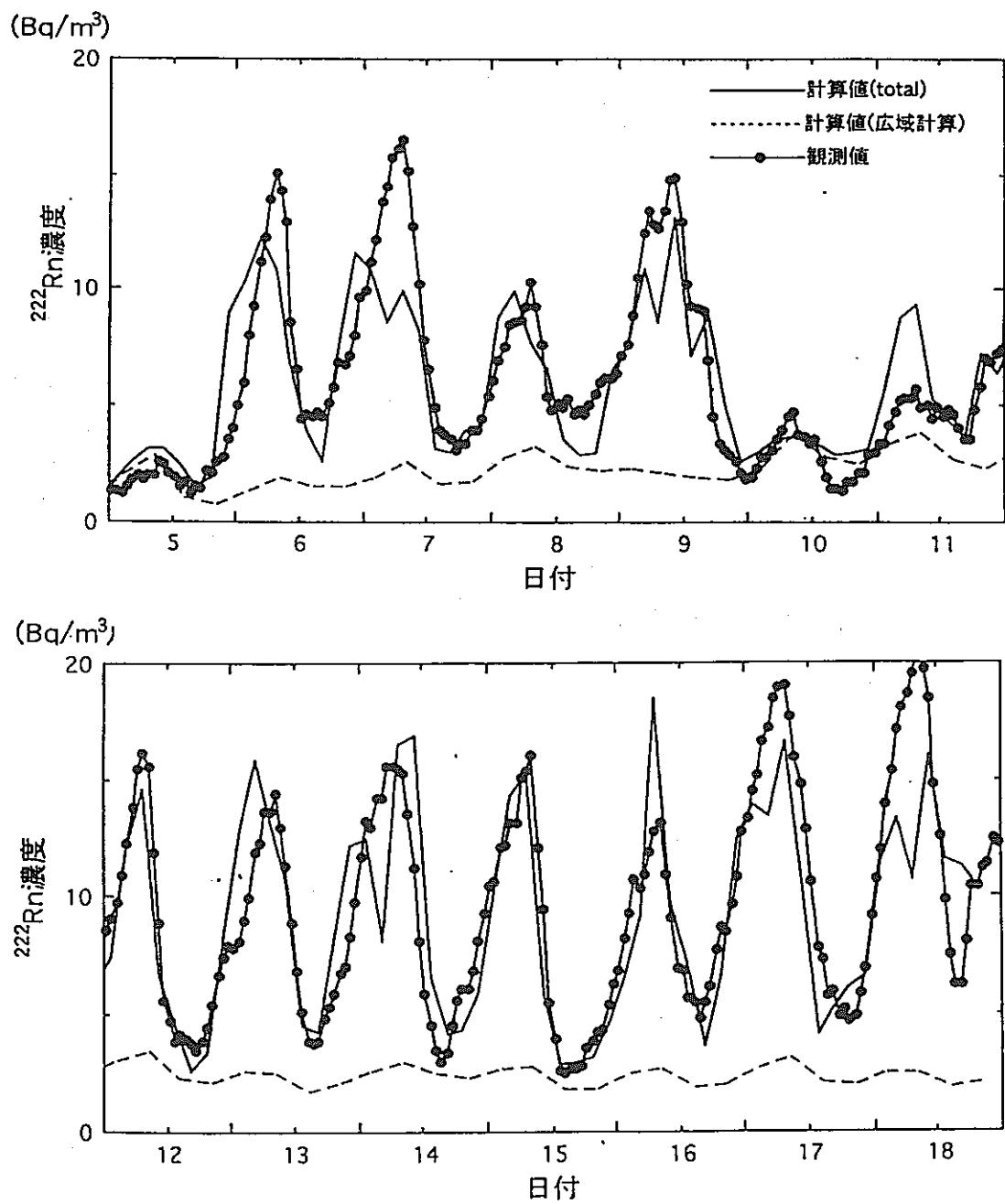


Fig. 9 Calculated Rn concentration from six classified sources in December, 1990

3.3.2 日本各地の連続測定

静電捕集方式ラドンモニタ（ERM）による連続測定を金沢、春日井、土岐、名古屋で実施した結果の一例として、季節風が卓越した1991年1月の例をFig. 11に示す。

1月3日から7日の卓越した季節風時の金沢のラドンの起源は大陸とみて差支えなく、 $2 \sim 3 \text{ Bq}/\text{m}^3$ の寄与である。春日井、土岐、名古屋では大陸起源成分は拡散により減少するが、日本内陸起源のRnの寄与が加わって金沢よりわづかであるが高い濃度になったものと推測される。



計算結果と観測値 (1990.11.5 – 1990.11.18)

Fig. 10 Comparison between calculated and observed Rn concentration

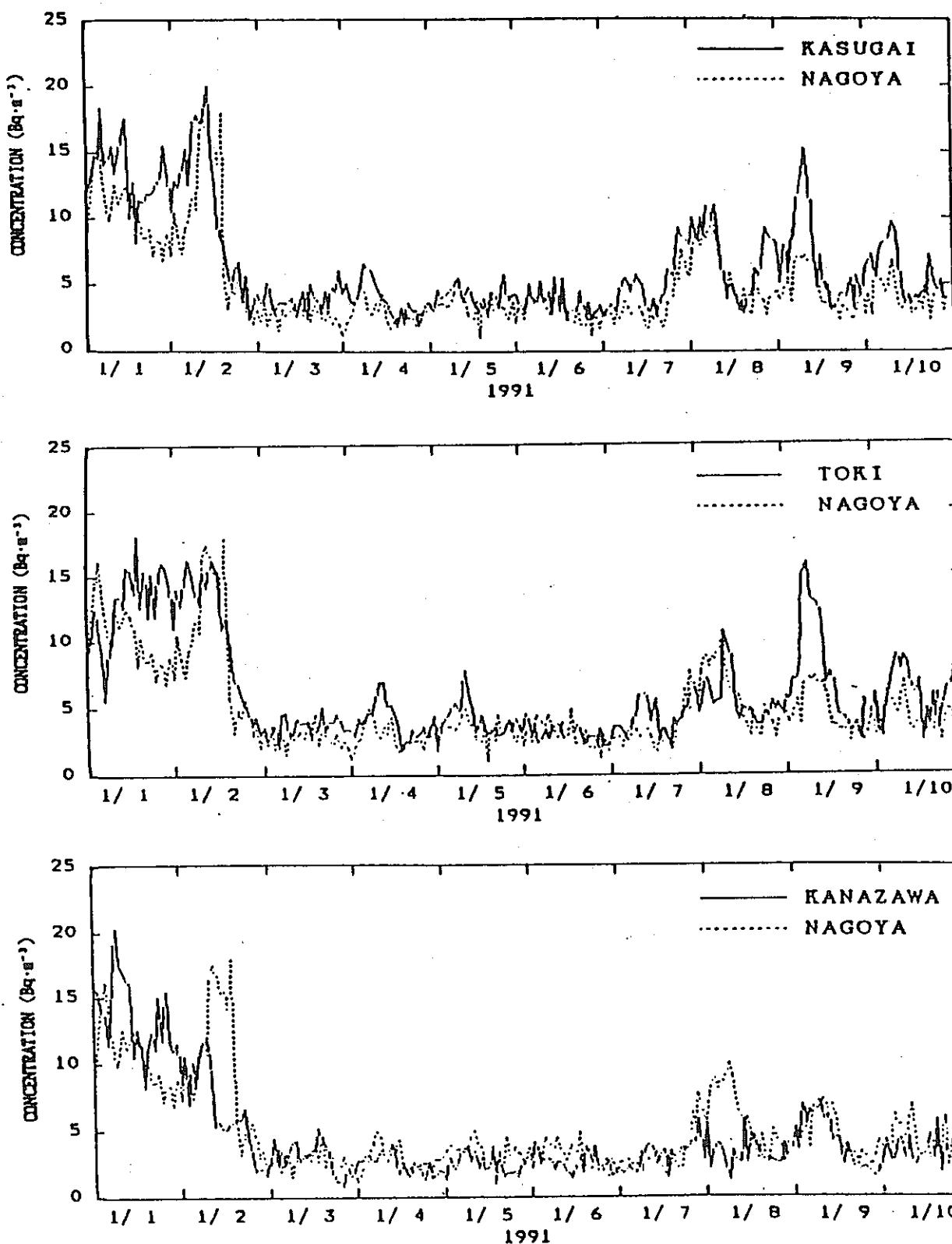


Fig.11 Comparison of Rn concentration measured at Kasugai, Toki,
Kanazawa and Nagoya in Jan. 1 ~10, 1991

3.3.3 流跡線モデルに基く検討

Fig. 5 に示した流跡線モデルによる解析例は、遠方起源成分として大陸寄与分と日本国内寄与分を分離して示していないが、容易にそれぞれの寄与を評価できる。空気塊が大陸を離れてから日本海と日本の陸地を通過する際の大気起源ラドン濃度の減少の様子は、このモデルによるとFig. 4 の点線 a で表わされている。

以上のように、大陸起源ラドンの日本における寄与の割合は、地理的位置、季節、気象条件によって異なっているが、十分考慮に入れるべきレベルに達している。

4. 東アジアにおけるトリチウムの調査

4.1 はじめに

前報²⁾において、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年計画で実施されつつあること、池辺らはこの調査の一環として水蒸気中トリチウムの測定を共同研究として行っていることを述べた。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れると、トリチウムの広域動態の解明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。

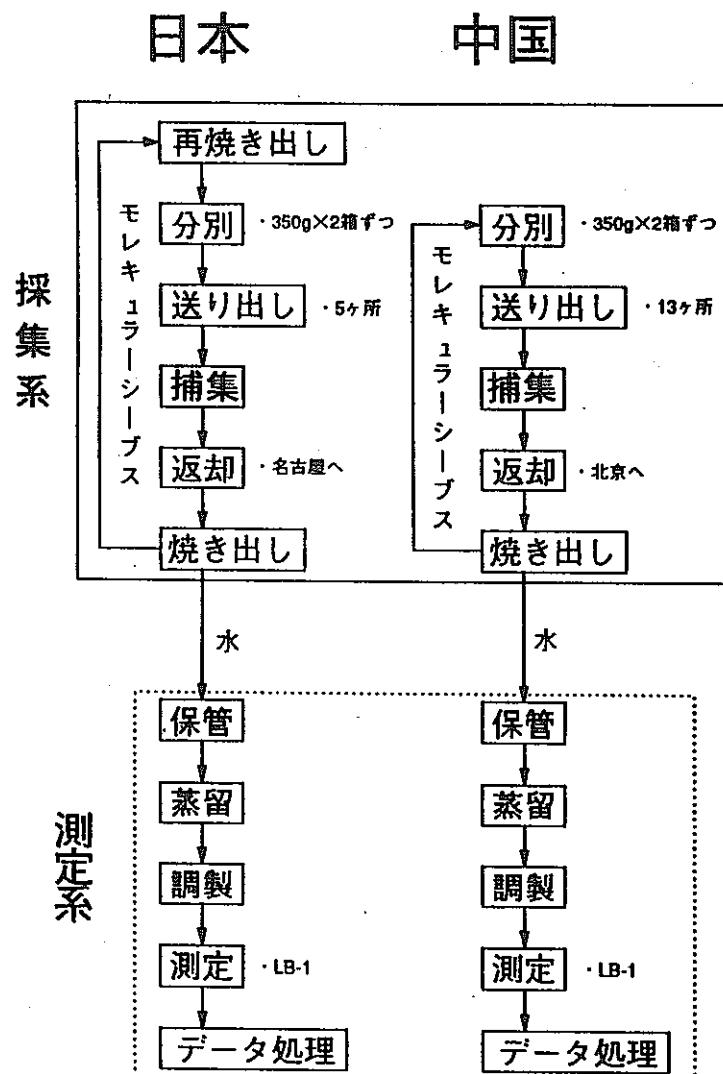


Fig. 12 System of water vapor sampling and tritium measurement

前報では実施中の共同研究について、その背景と意義、開発された測定法、クロスチェックの結果等について述べた。この報告では、得られた結果の一部および現在までの解析結果の一端を紹介する。

水蒸気中トリチウムの共同研究では、二つの測定を実施した。即ち、passive 法による水蒸気採集法を用いた地域分布測定と、active法による採集法を用いた日々の濃度変動の測定である。この研究に用いた水蒸気採集およびトリチウム測定システムをFig. 12に示す。十分水蒸気を焼出したモレキュラーシーブス 4 A を密閉容器に入れて北京に搬送し、北京より密閉容器のまま各地（13ヶ所）に送り出した。各地で水蒸気を採集後北京に返送し、北京で焼き出しを行って水として回収した。回収水のトリチウム濃度計測には低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター（Aloka，LB-1）を用いた。以上はpassive 法の場合であるが、active法の場合もほぼこの通りである。

4. 2 passive法による測定

Fig. 13にpassive法による水蒸気サンプリング地点（中国13地点、日本5地点）を示す。採集は1992年6月から1993年9月の16ヶ月間、2ヶ月ごとに実施した。

Fig. 14に、ハルピンなど4地点の測定例を示す。冬季にやや高濃度で、春から夏にかけて低濃度の傾向が認められる。

Fig. 15に、1992年8、9月の地域分布測定例を示す。またFig. 16には、年平均値の分布を示す。上海の異常値は採集点（研究所）の人工³Hによる環境汚染である。中国沿岸部の低レベルの測定値については、水の回収時における周囲の水蒸気の混入や放射能計数時の器機の安定性などの問題があり、再測定などによってデータの信頼性について検討してゆく必要がある。図より、全般に緯度効果と内陸効果が認められ、中国のトリチウムレベルは日本に比べて高濃度を保っていることがわかる。内陸部の高濃度地域は核実験や核施設による影響を受け易い地理に位置しており、これらの影響も高濃度の一因として考慮しなければならない。

水蒸気中トリチウム濃度と降水中トリチウム濃度の地域分布の濃度レベルの差や分布のちがいは興味がある。これについては後に述べる。

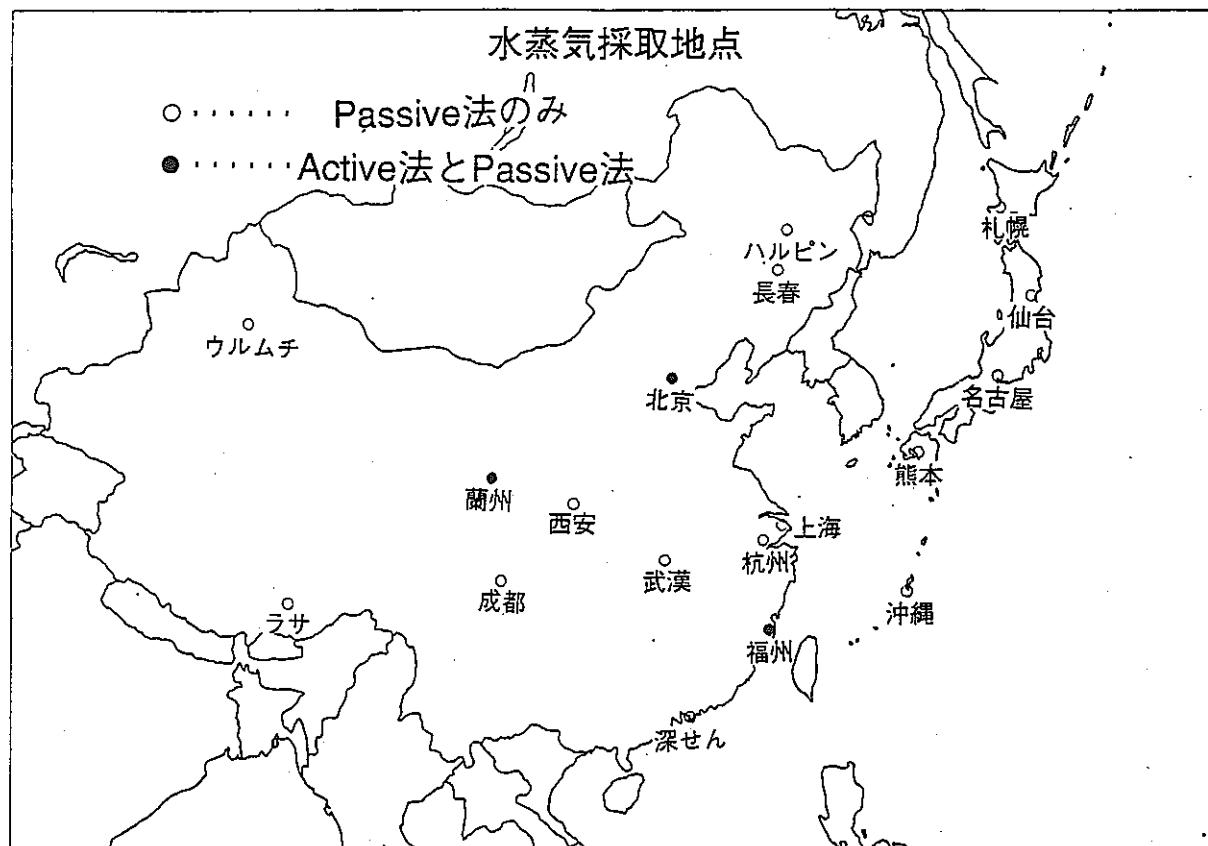


Fig. 13 Sampling station of tritium in water vapor in Eeastern Asia

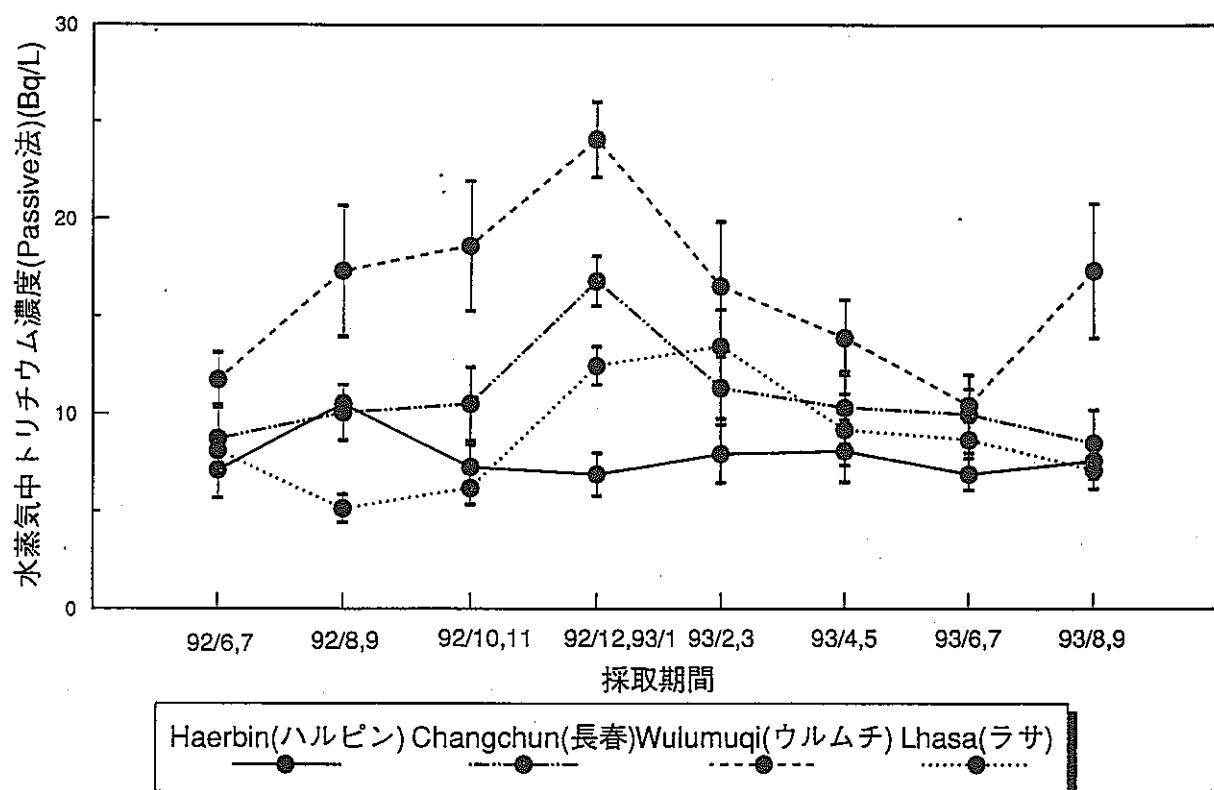


Fig. 14 Two-nonthly mean value of tritium concentration in water vapor

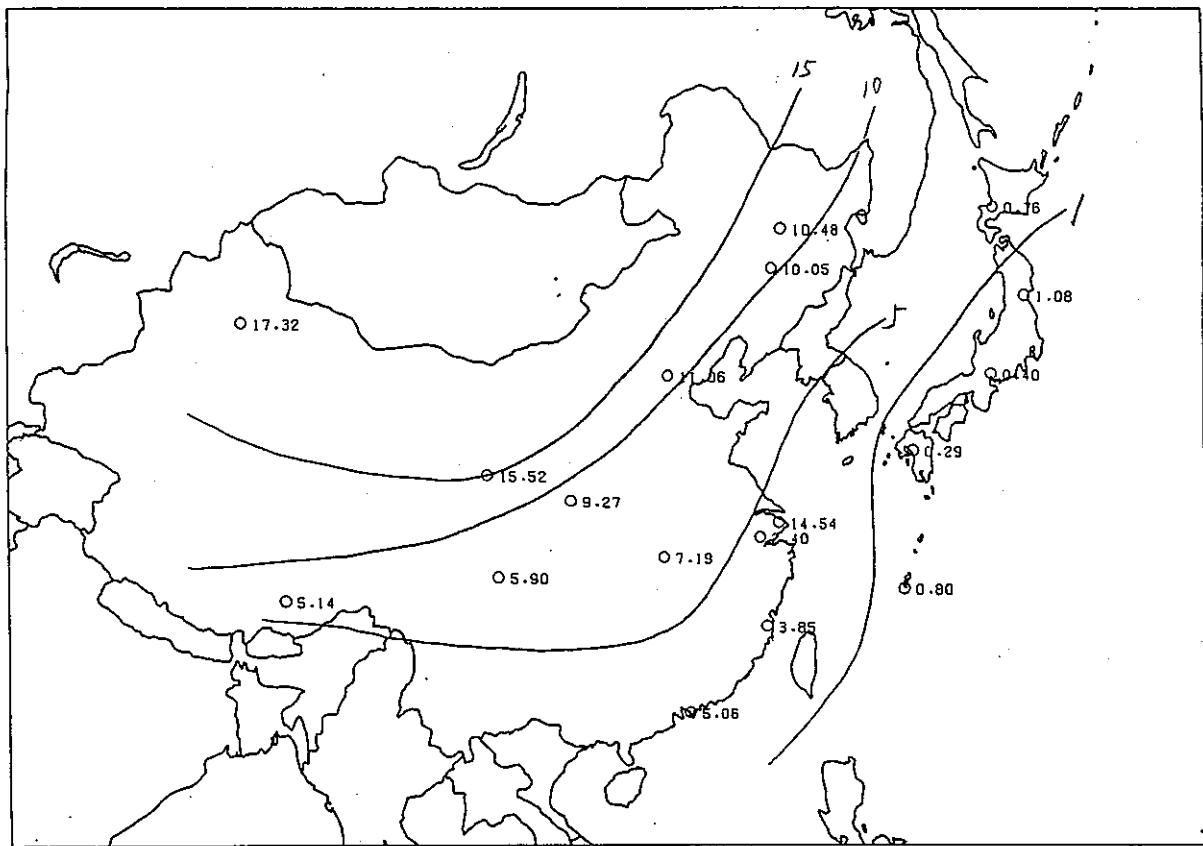


Fig. 15 Regional distribution of tritium concentration in water vapor in August-September, 1992

4. 3 active法による測定

active法による水蒸気サンプリングは、地理的特徴が異なる北京、蘭州、福州の3地点で春夏秋冬の四季ごとに2日連続サンプリングを5回づつ実施した。濃度の日々変動を解析することが目的である。

Fig. 16に北京における測定例を示す。1993年1月のデータが高濃度を示しており、他の月は似たような濃度レベルにある。

蘭州は高い濃度レベル ($10\sim15\text{Bq}/\text{m}^3$) を示した。蘭州の近くに核施設があり、その影響も考慮する必要があるかもしれない。

福州は近い濃度レベル ($3\sim15\text{Bq}/\text{m}^3$) にあったが、前述したデータの信頼性の検討が必要である。

ここでは、1992年9月の北京のデータの解析例¹¹⁾を述べる。このデータは池辺らが中国で採集し、水の回収の放射能計測も日本で行ったのでデータの信頼性が高い。解析には2層

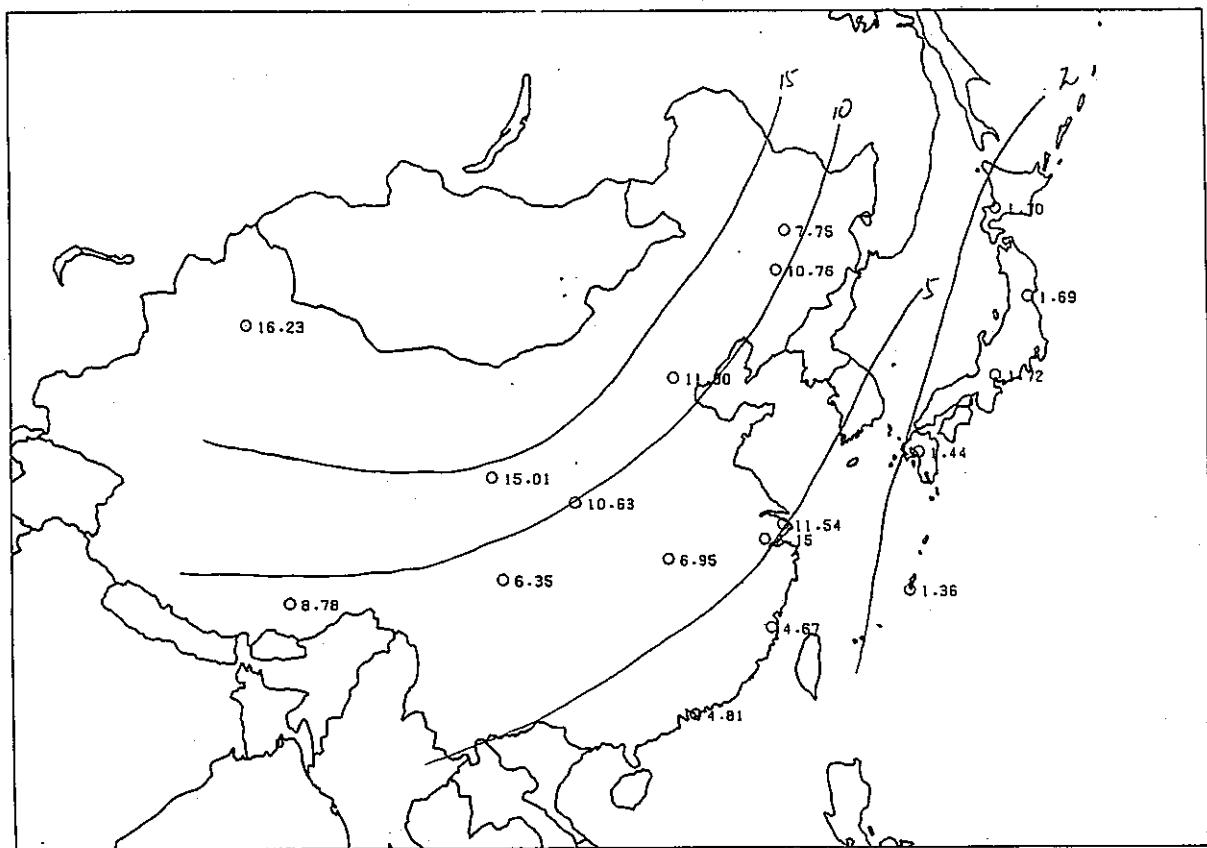


Fig. 16 Regional distribution of the annual mean value of tritium concentration
in water vapor from June, 1992 to Sept., 1993

流跡線モデル¹²⁾ を使用する。Fig. 18にこのモデルの概念を示す。鉛直方向の水蒸気プロファイルを、大気境界層と自由大気の2層に平均化する。流跡線に沿って流れる気柱を考え、大気境界層では蒸発による水蒸気とトリチウムの供給、自由大気層では降水による除去、2つの層の間では空気の混合による水蒸気とトリチウムの交換を考える。これらを数式化して解析を実施する。この解析のためには蒸発量と共に蒸発水蒸気（陸水、海水）中のトリチウム濃度を与えるなければならない。陸水中のトリチウム濃度は降水の観測値から推測した。即ち、1978年の中国の全国規模調査¹³⁾ および IAEA の出版物¹⁴⁾ より1978年当時の降水中トリチウム濃度分布を作成し、5～6年の見かけの半減期で濃度が減衰したものとして1993年時の降水中のトリチウム分布とした (Fig. 19)。Fig. 20に解析による計算値と実測値の比較を示す。単純化されたモデルを用いたこと、降水中トリチウム濃度が1978年時の観測からの推測値であることなどを考慮すると両者の一致は比較的よいものと思われる。今後モデルの改良、現在進行中の新しい降水・降水中トリチウム測定に基づく発生源の評価などを行うこと

で、観測値と計算値の対応を良くし、大気中トリチウムの広域動態のモデル化を改善してゆくことが望まれる。

なおFig. 16に示した水蒸気中トリチウムの地域分布の形は、Fig. 19に示した降水中トリチウム分布の地域分布に類似しているが、濃度レベルは前者の方が2～3倍高い。この理由について今後の検討が望まれる。

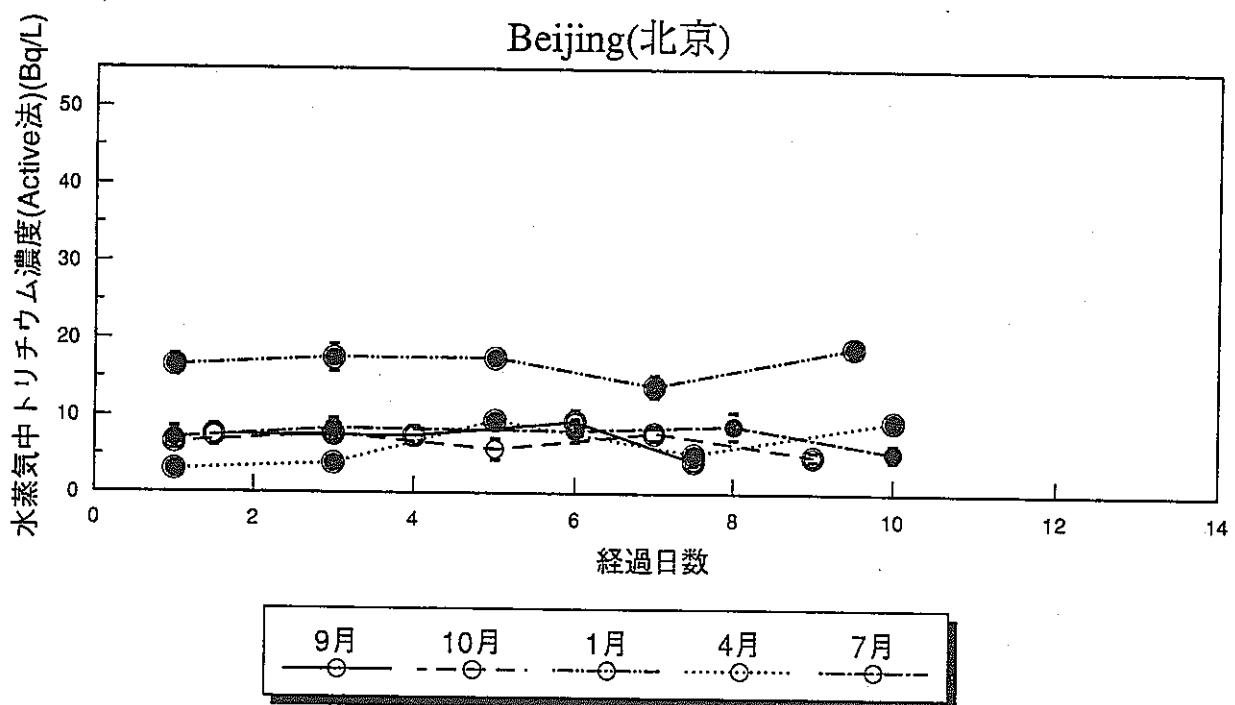


Fig. 17 Day-to-day variation of tritium concentration in water vapor at Beijing

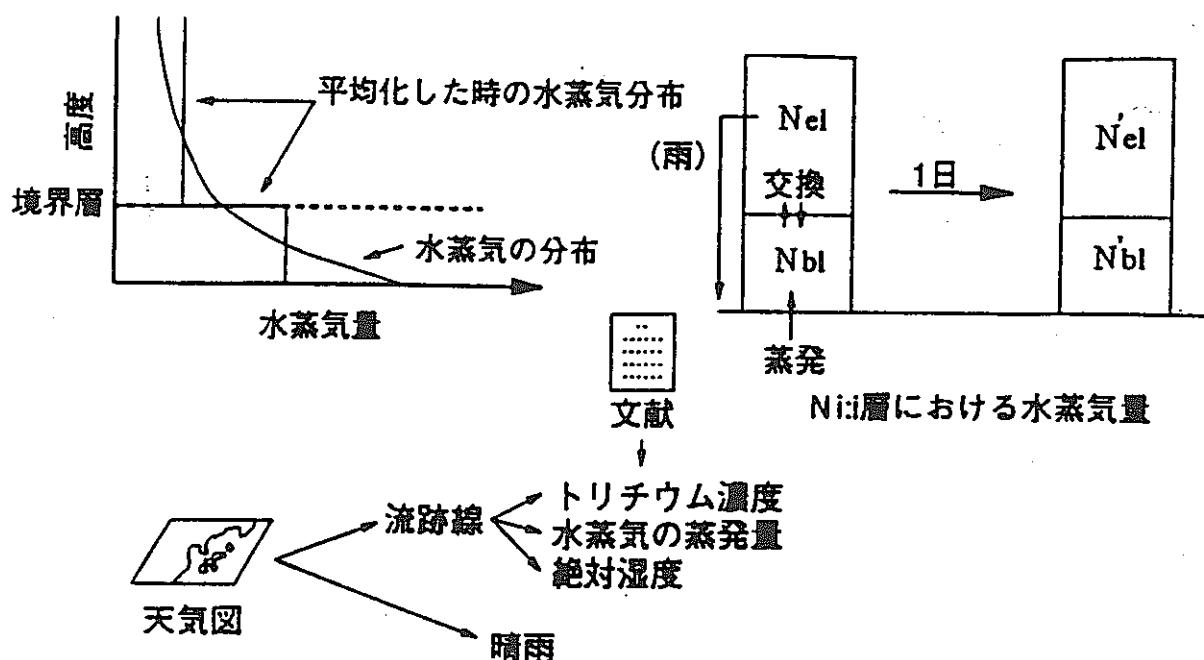


Fig. 18 Two-layer trajectory model for transport of tritium in water vapor

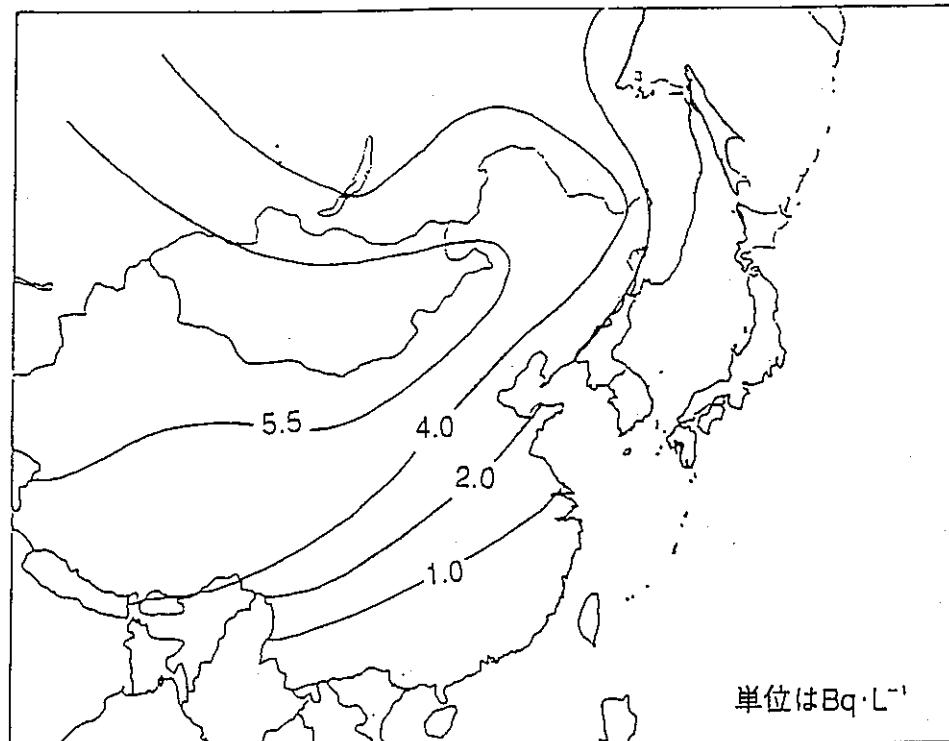


Fig. 19 Source of tritium in evaporated water vapor assumed
from tritium concentration in rain and snow

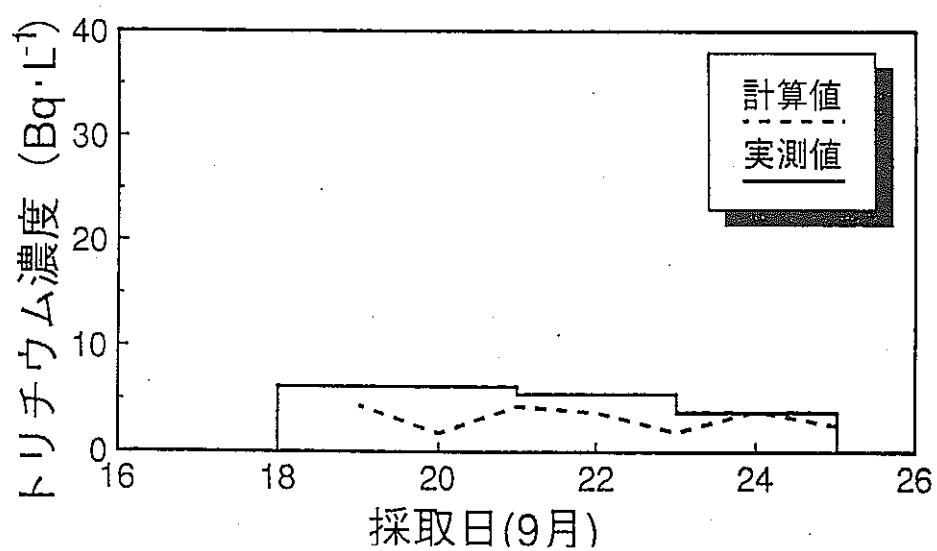
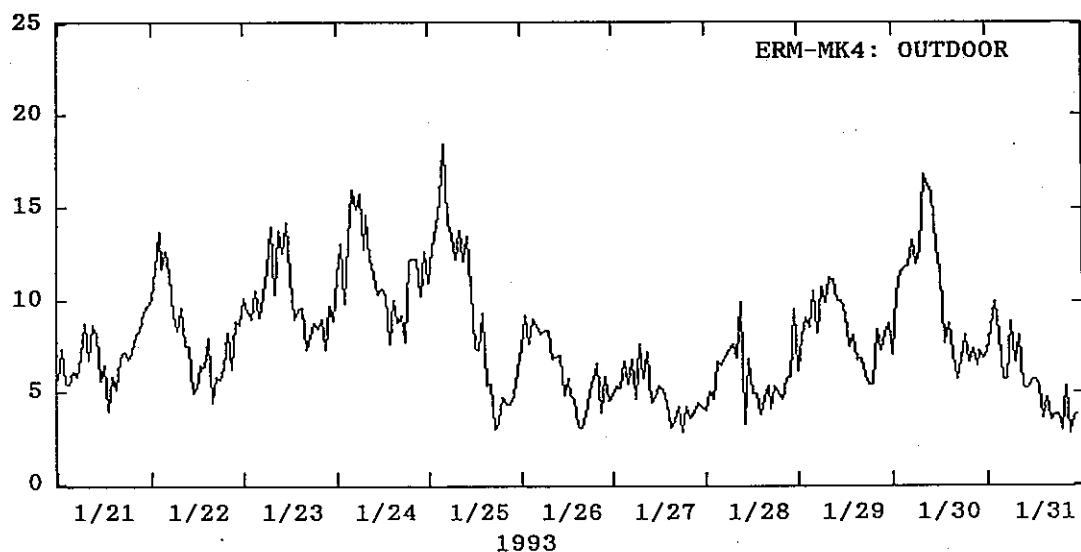
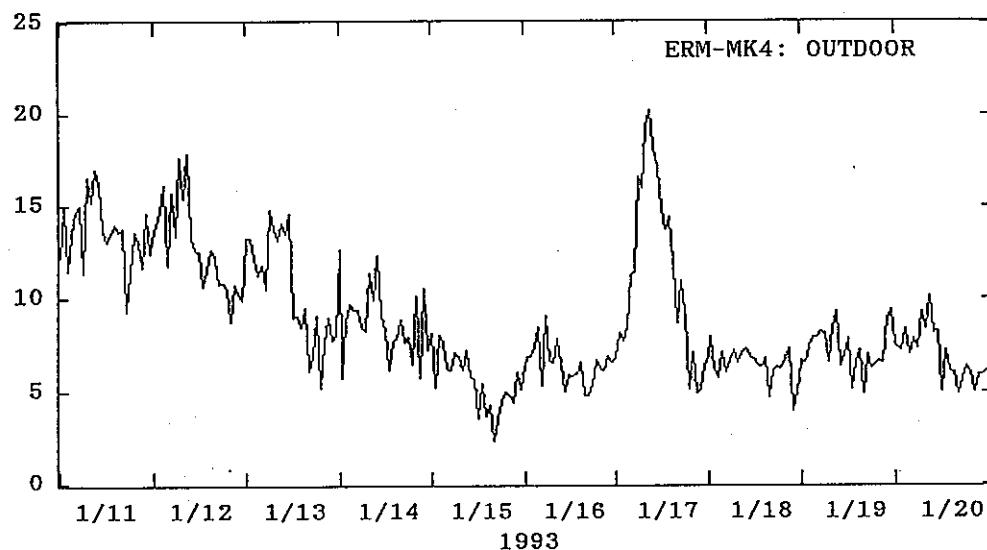
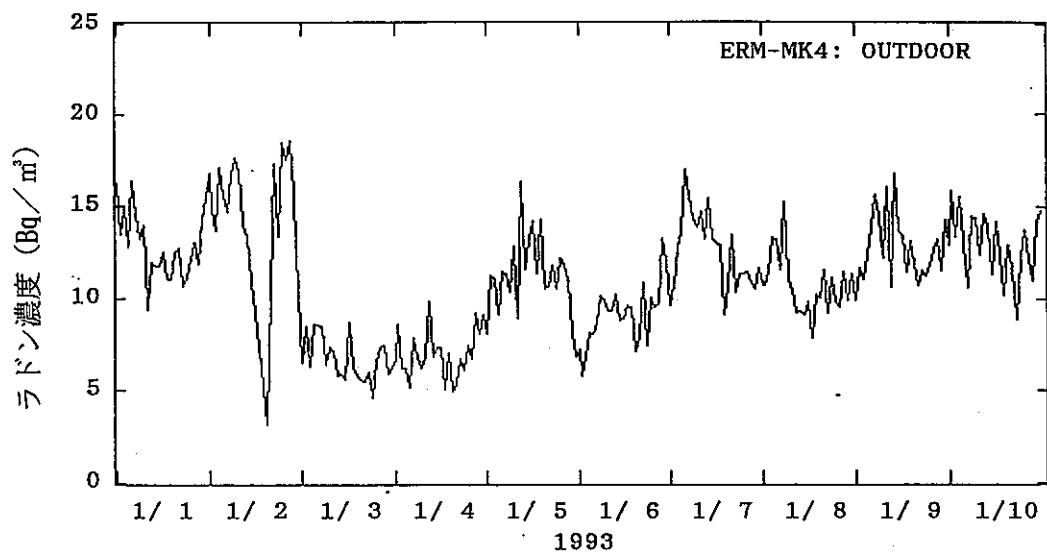
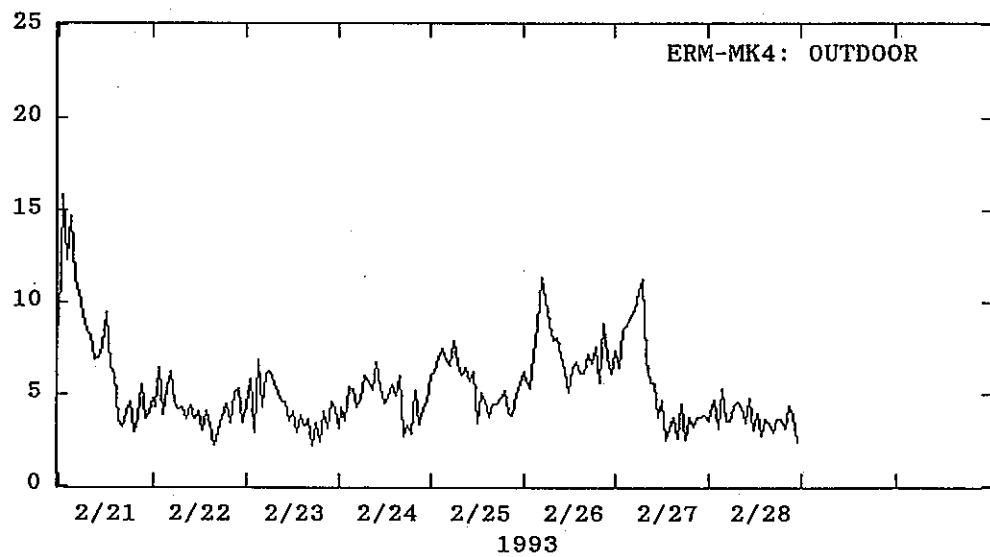
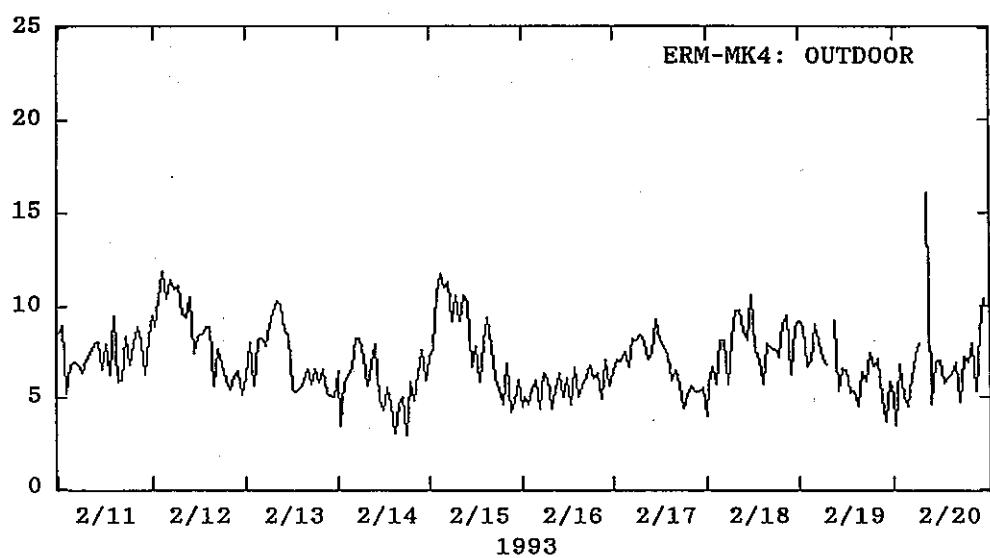
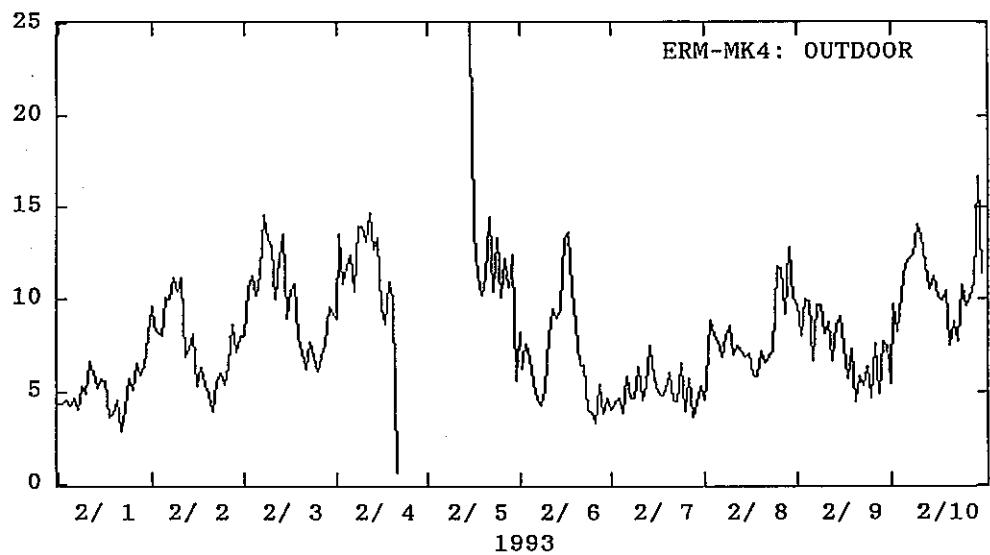
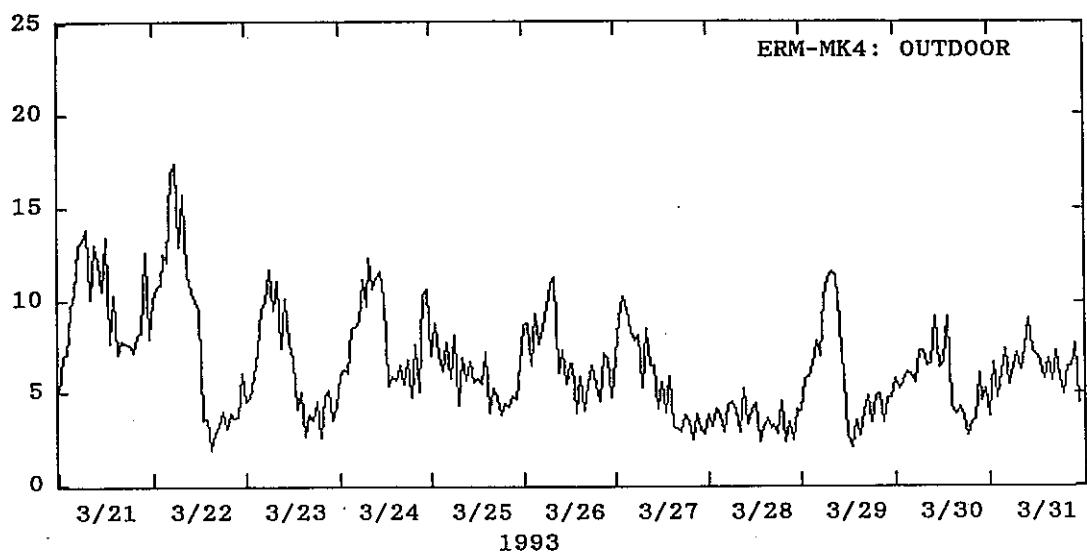
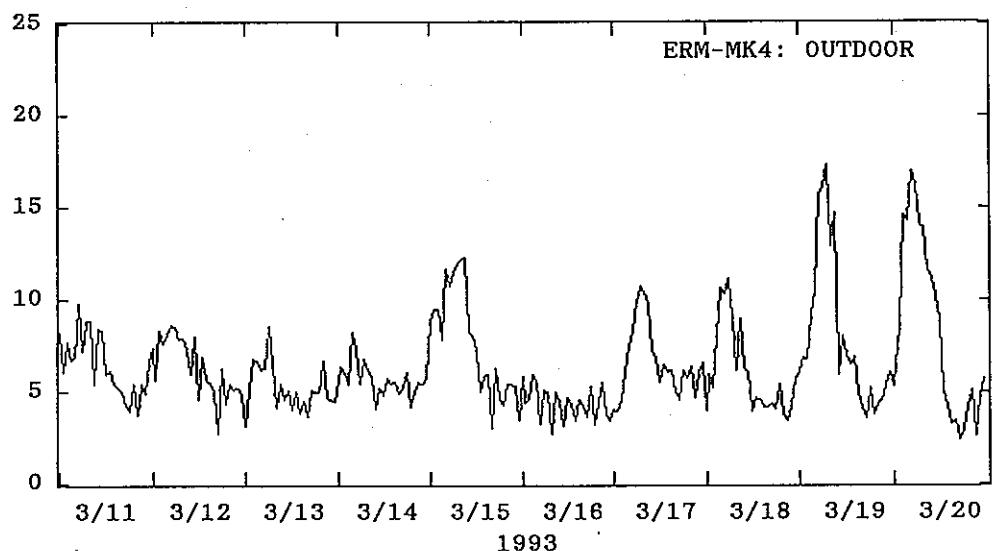
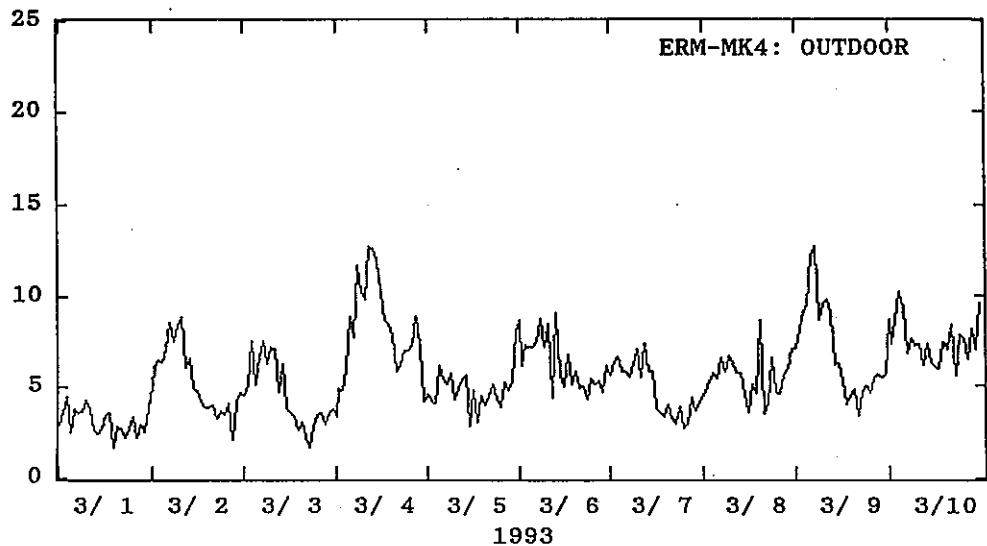


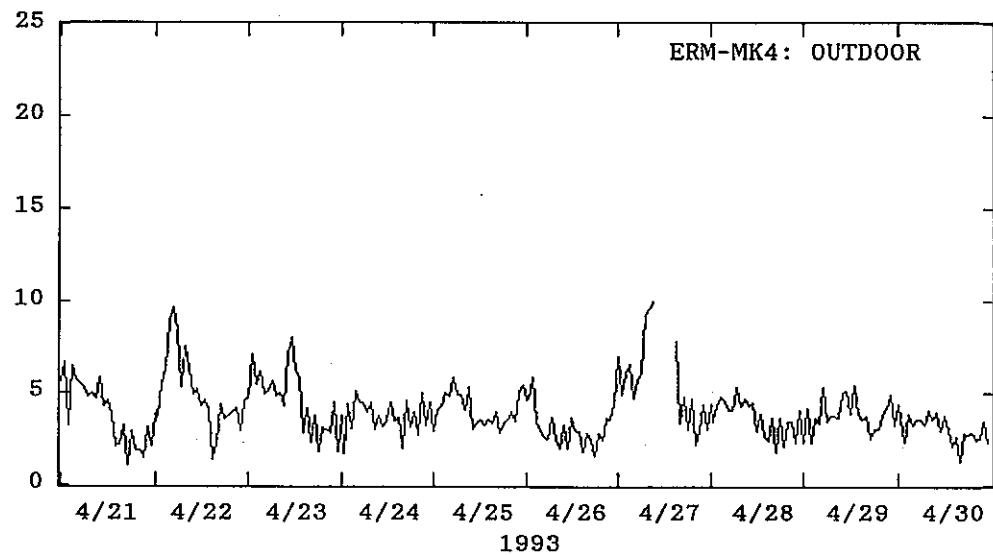
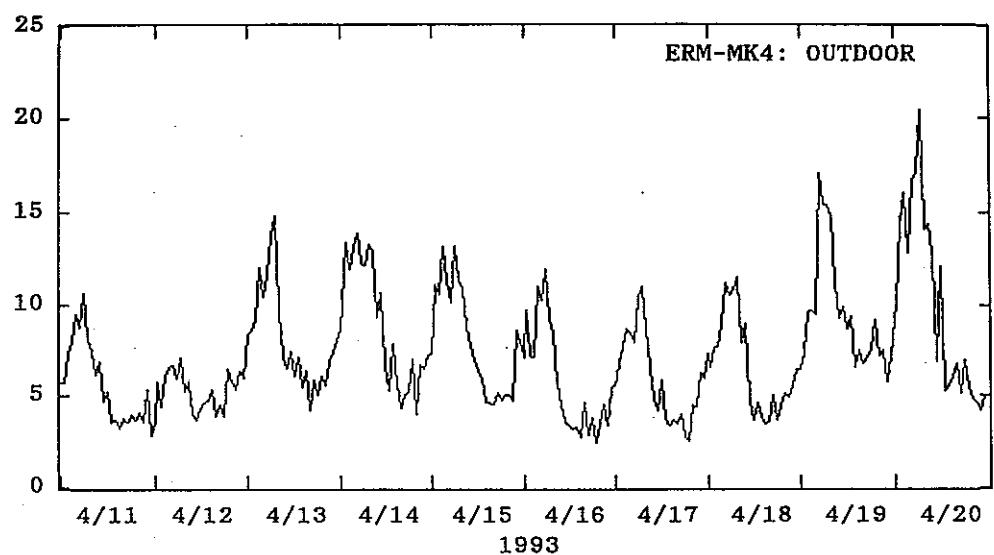
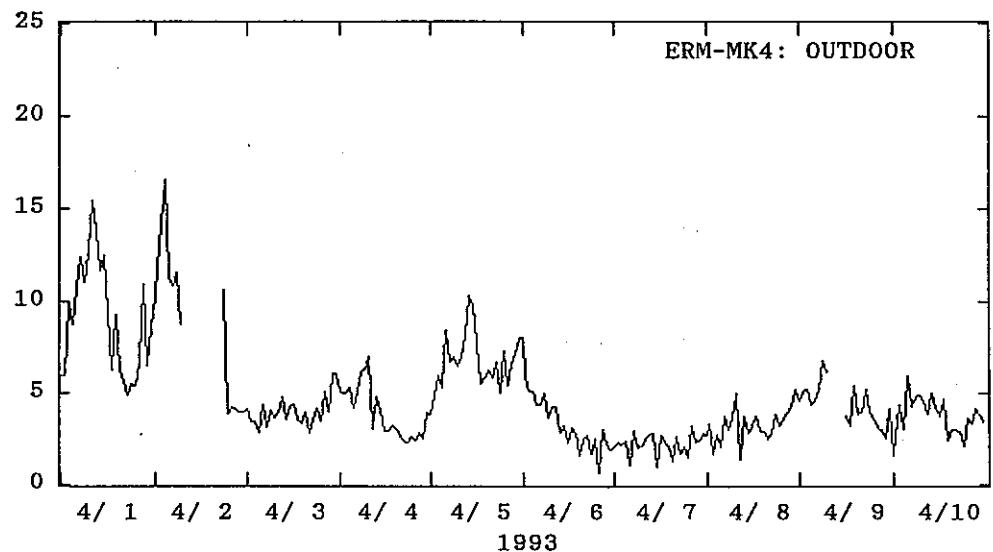
Fig. 20 Comparison between observed tritium concentration and
calculated one by two-layer trajectory model

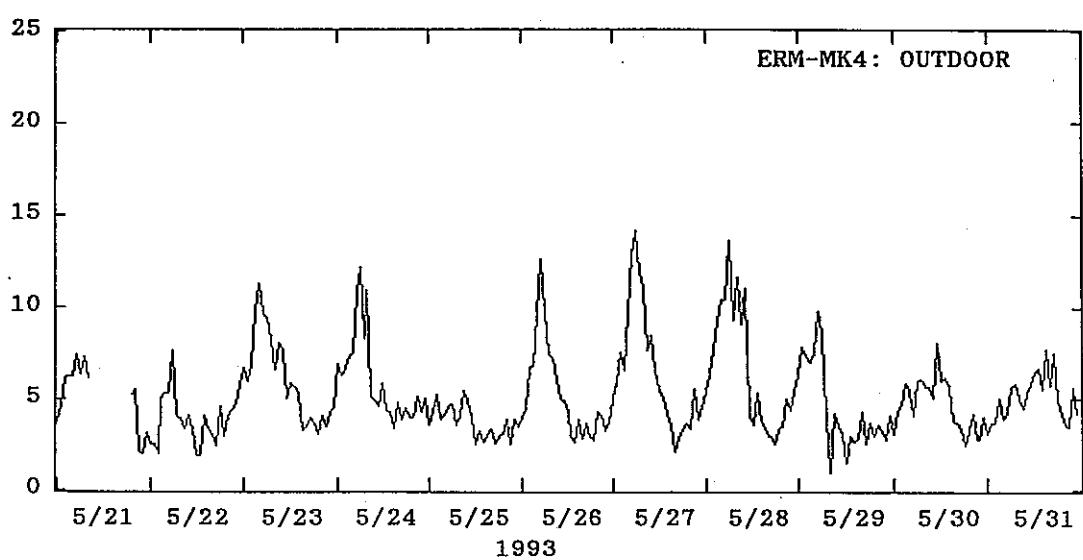
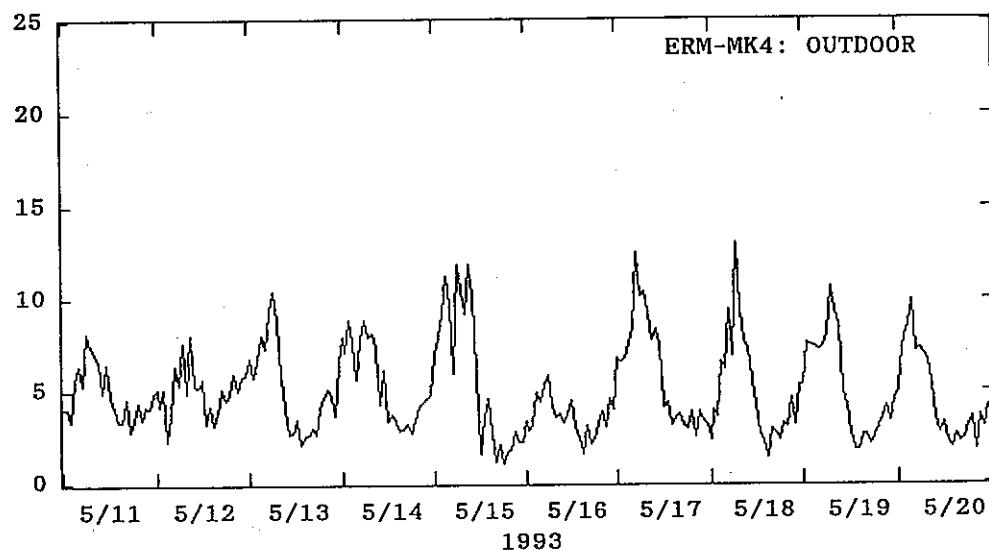
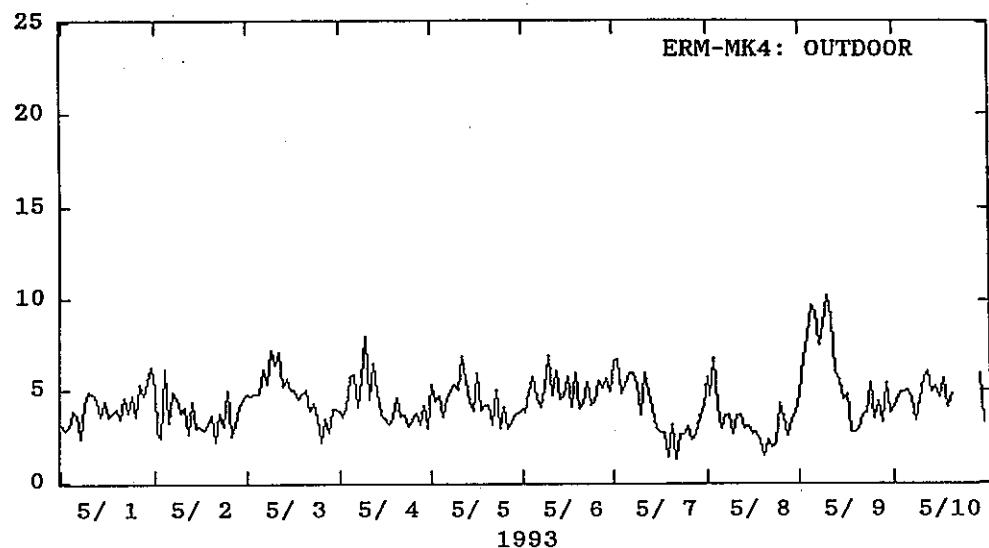
付録1 北京における屋外ラドン濃度測定

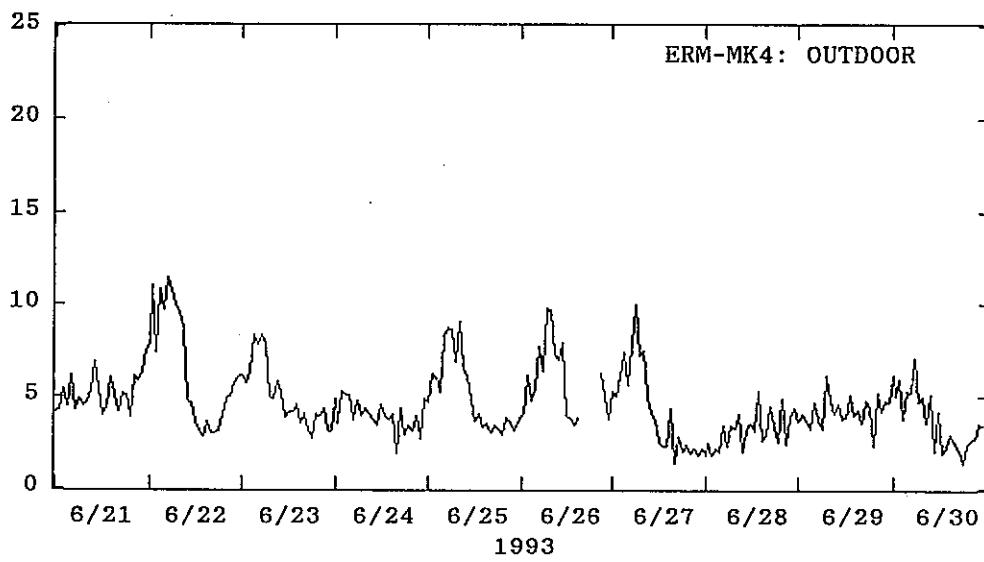
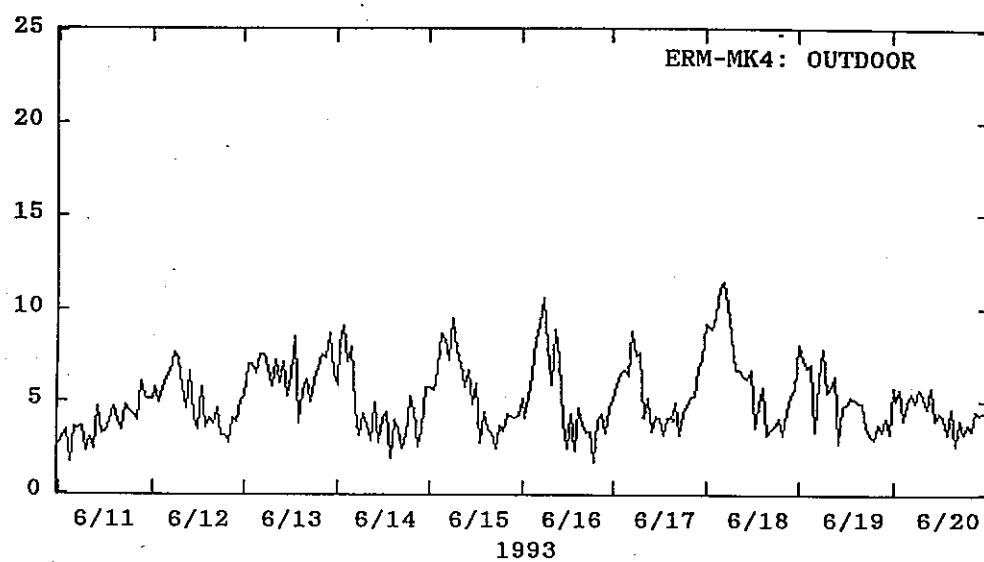
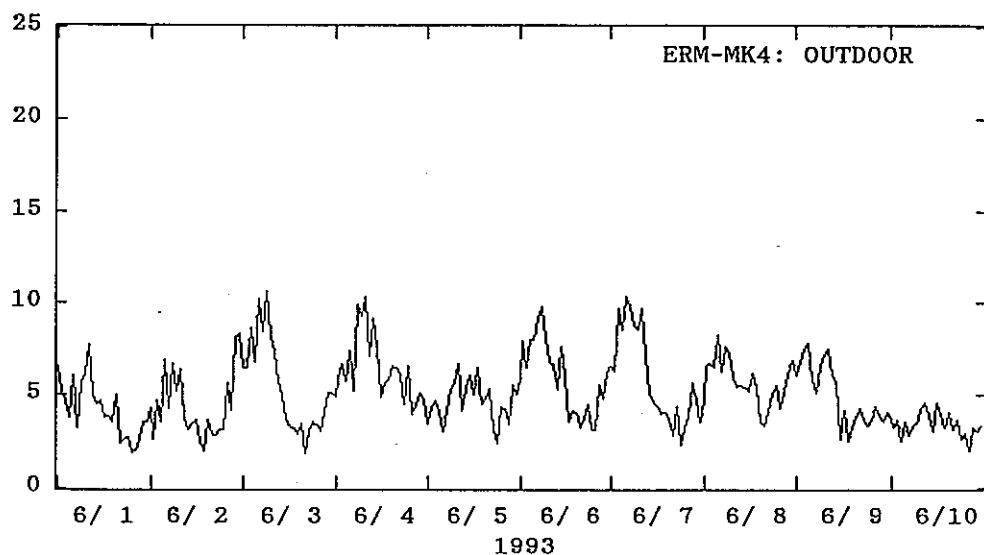


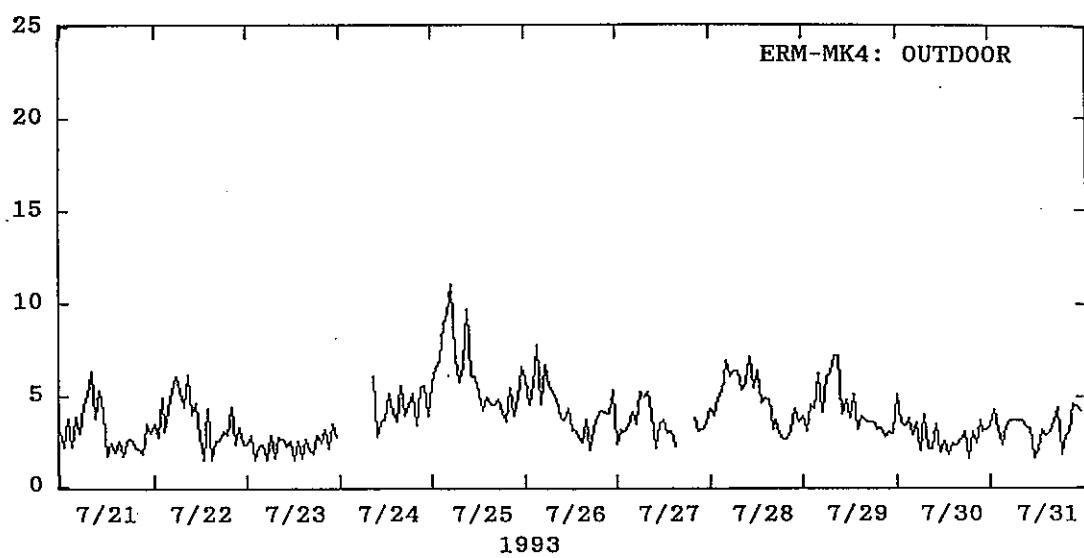
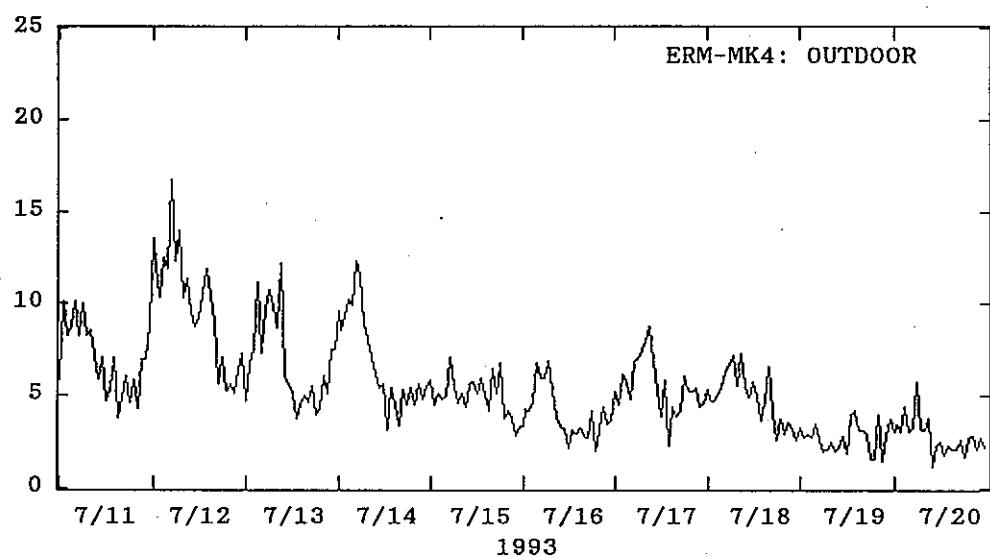
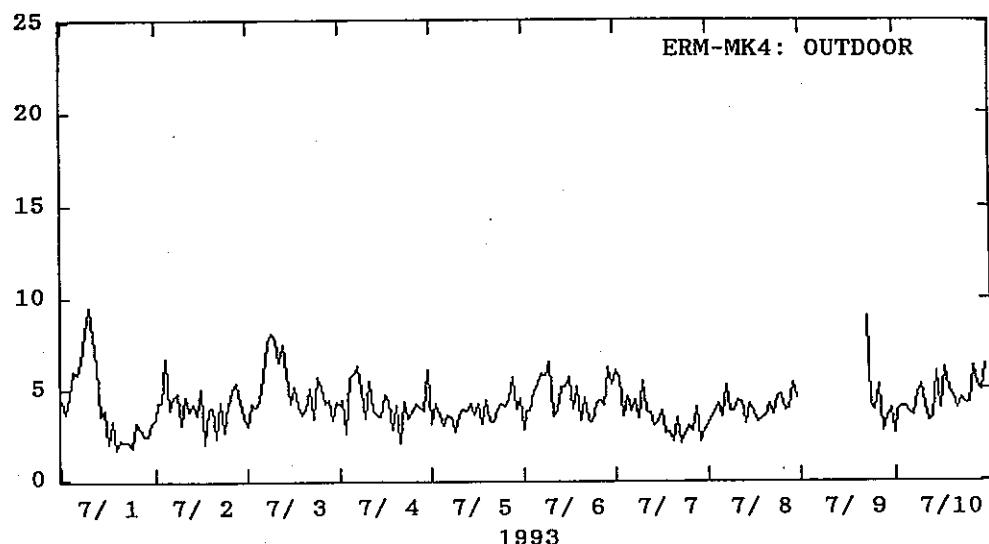


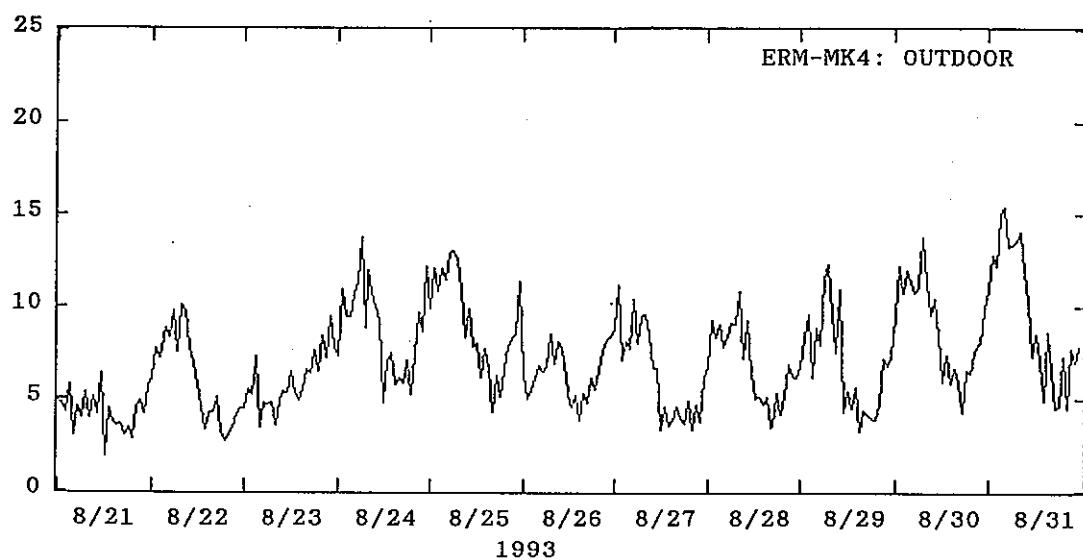
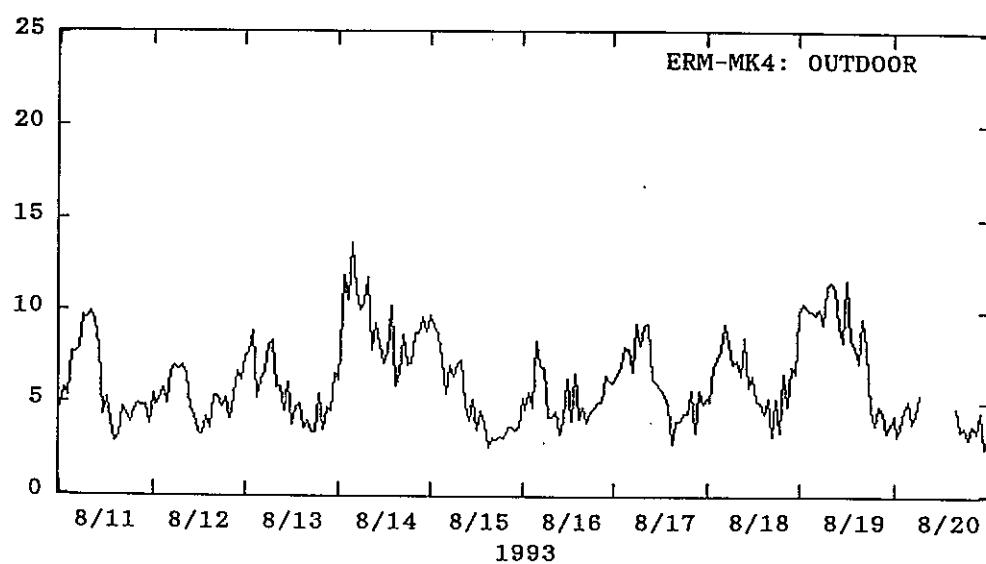
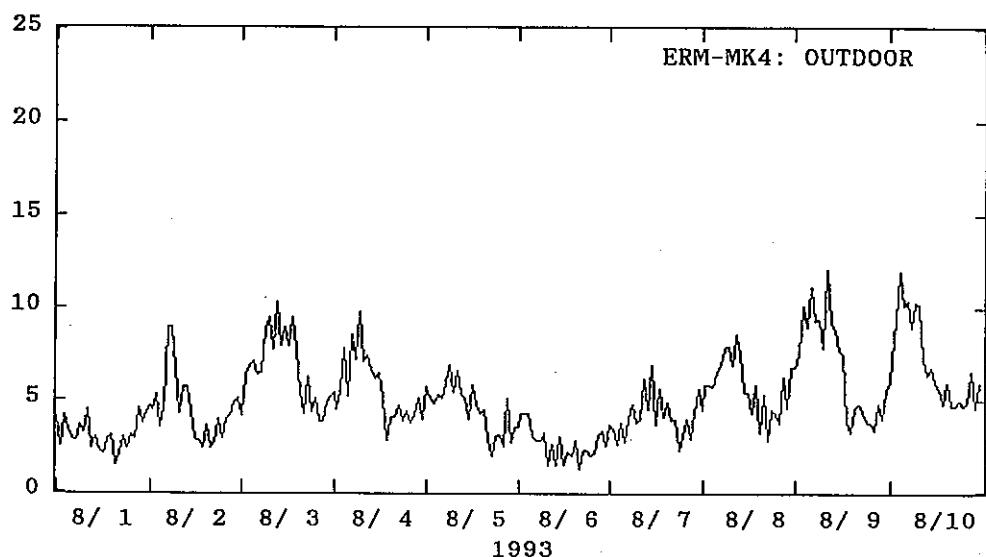


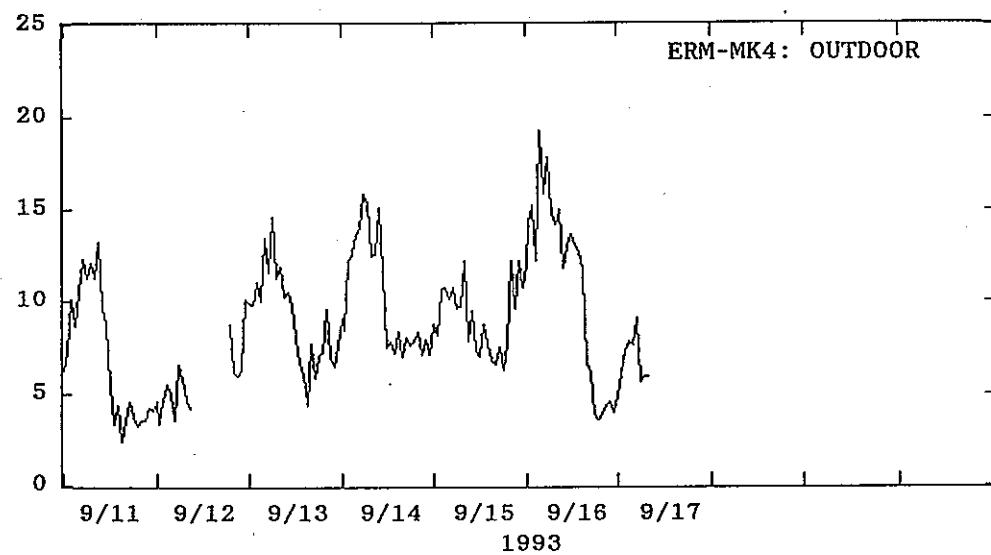
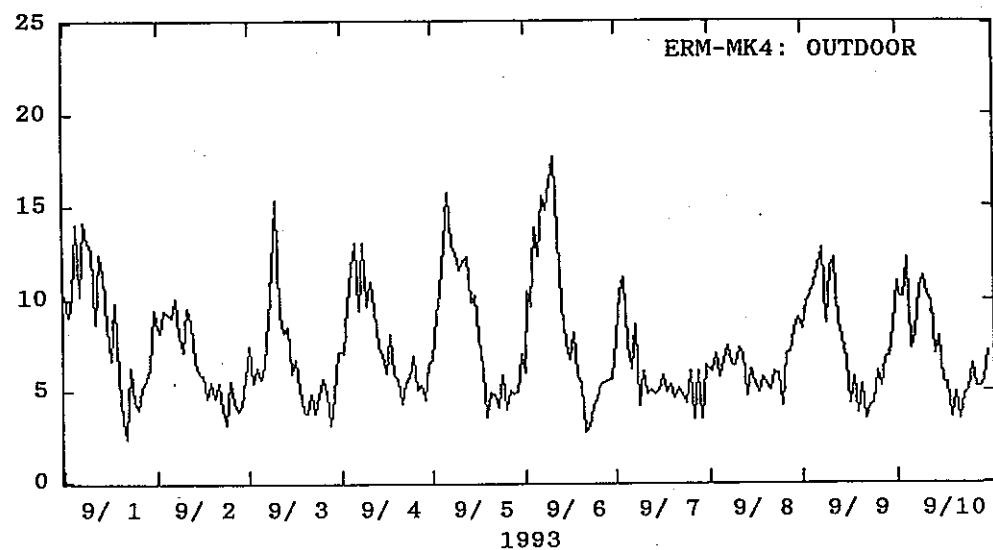




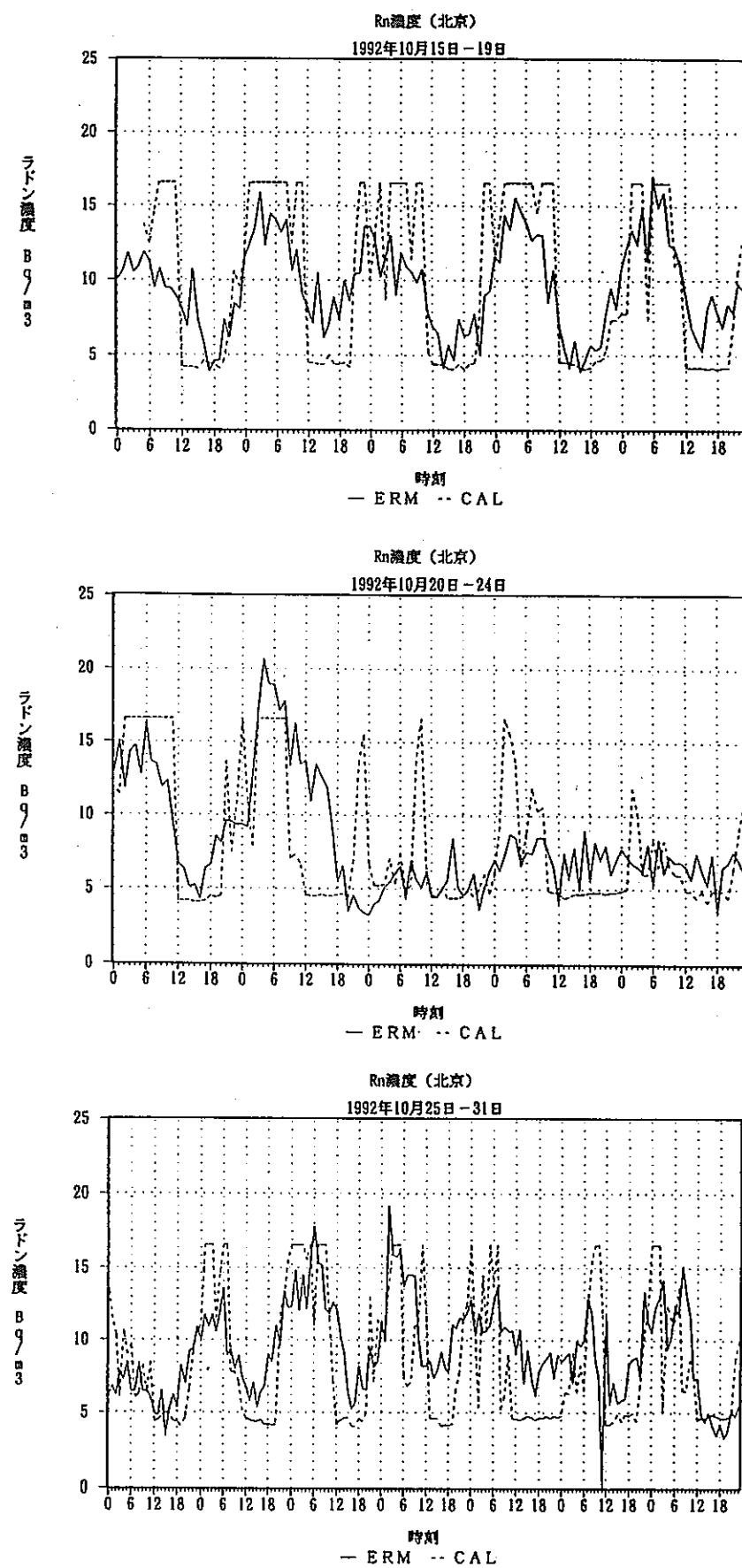


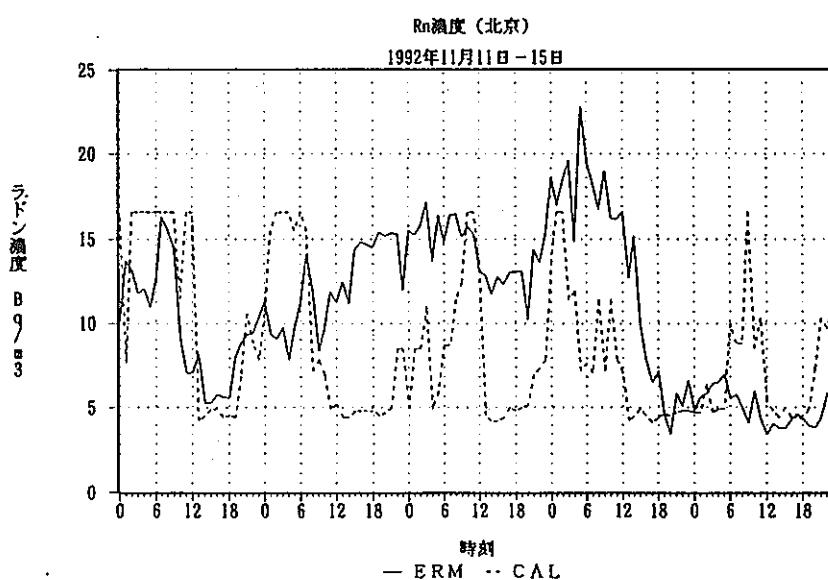
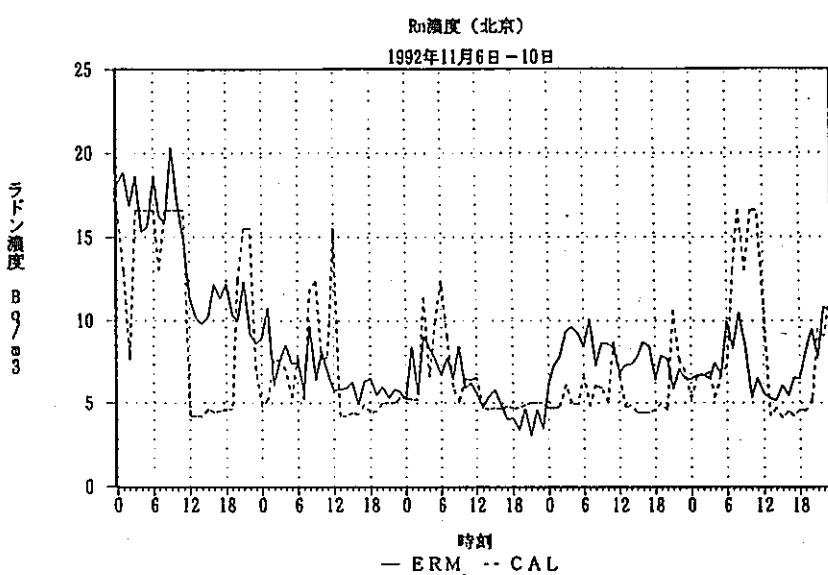
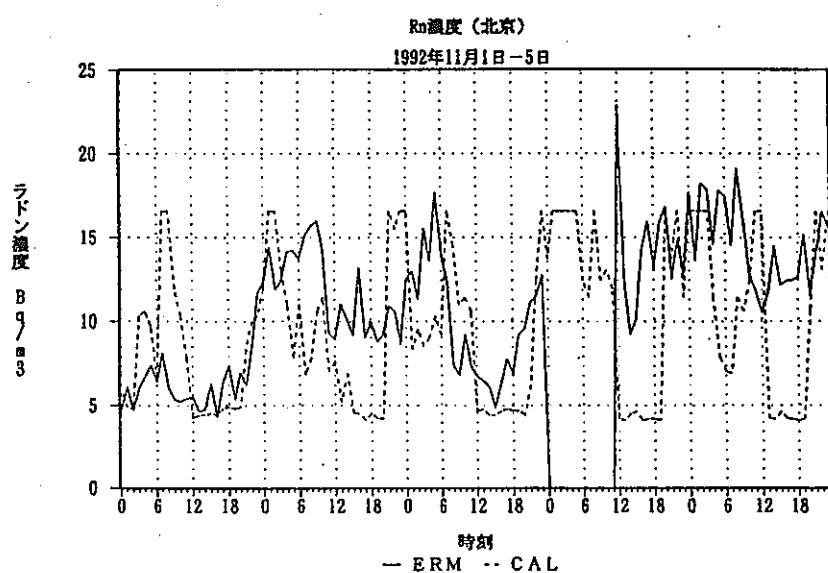


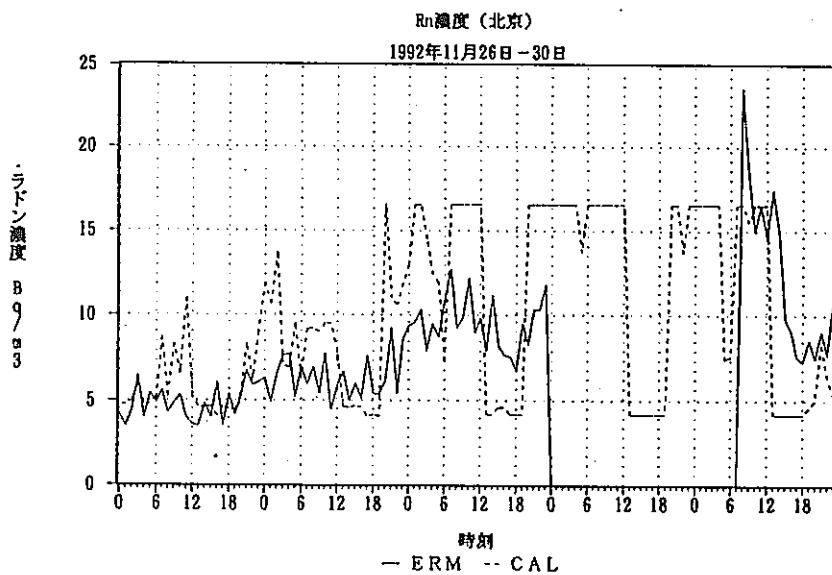
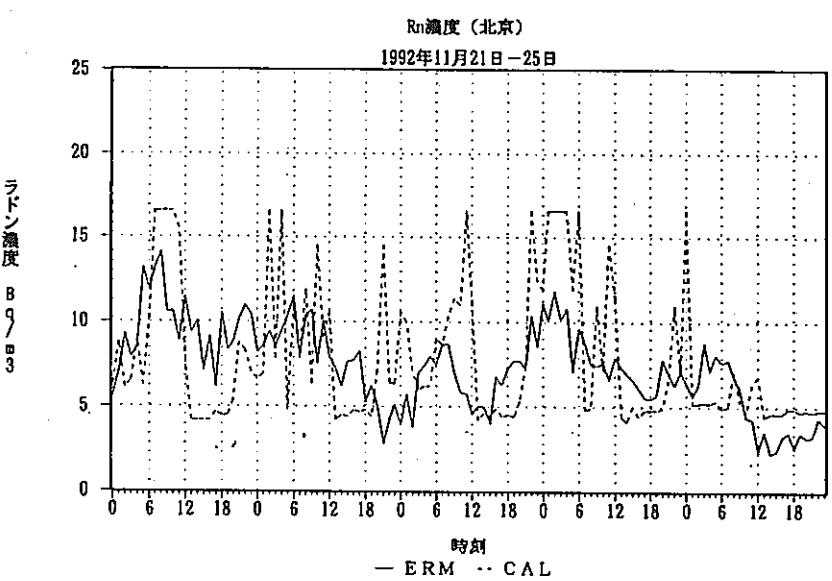
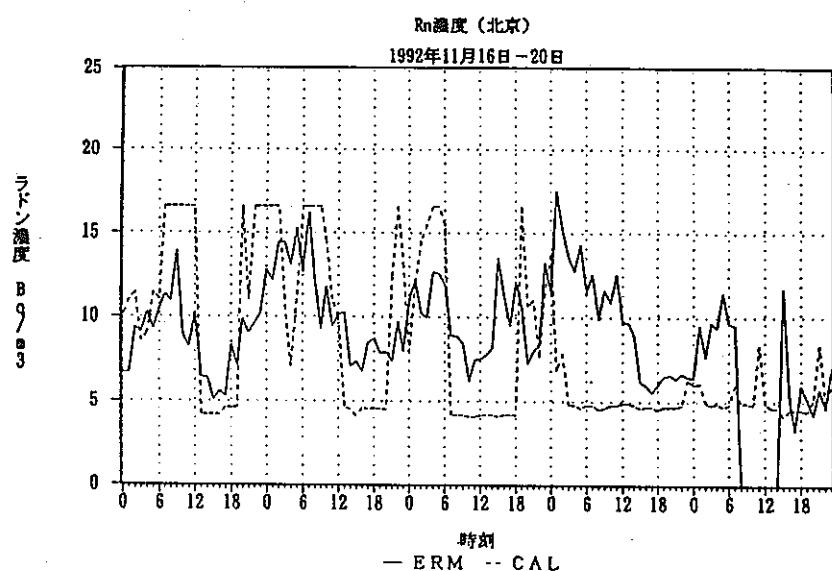


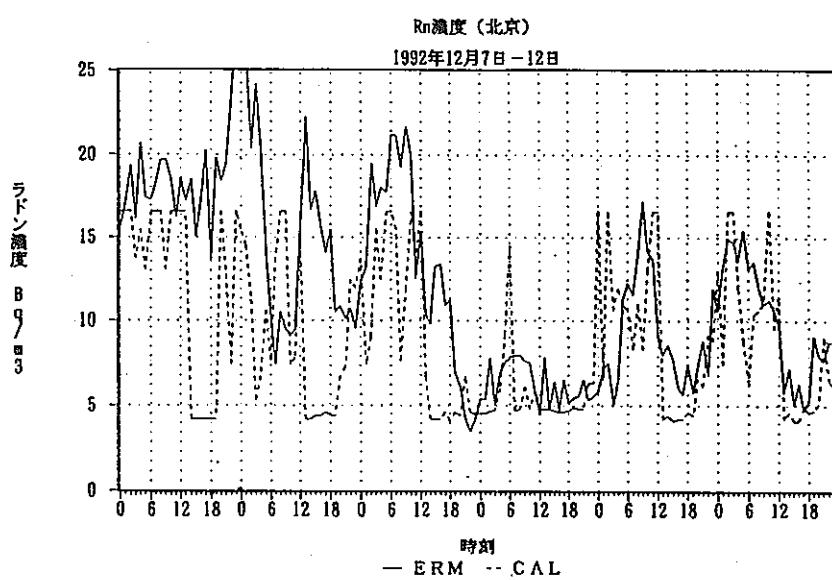
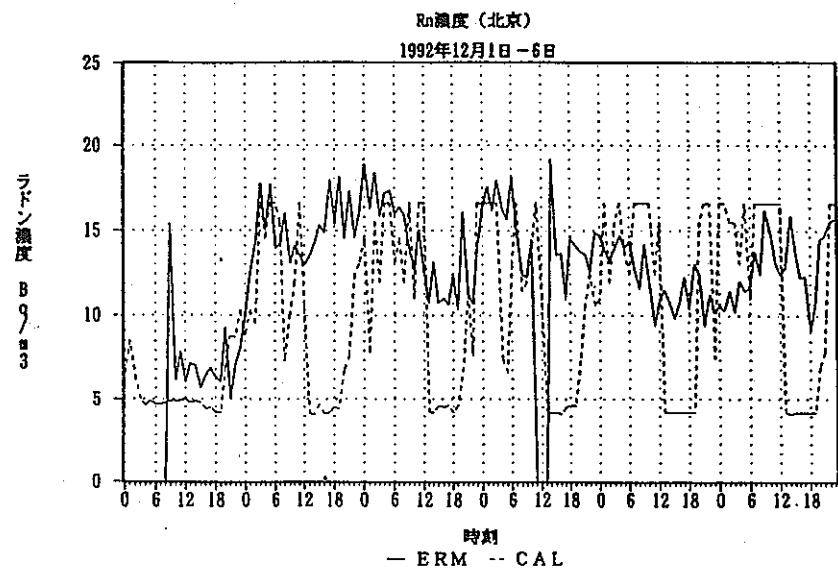


付録2 プルームモデルによる測定値の解析









参考文献

- 1) 大気中の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), P N C PJ1545 92-005
- 2) 大気中放射性物質の広域挙動に関する調査研究(II), (財)原子力安全技術センター (平成5年3月), P N C PJ1545 93-005
- 3) 村上俊行, 屋外大気中 ^{222}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)
- 4) 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年3月)
- 5) 赤沢孝, 東海3県における環境 γ 線による被ばく線量と土壤中の放射性核種の分布の評価:名古屋大学大学院修士論文 (1989年3月)
- 6) Ikebe, Y. et al., A long range transport of Rn-222, Proc. of Asia Congress on Radiation Protection, Beijing, Oct. 1993, pp575-578
- 7) Ikebe, Y. et al., On the origin and transport of Rn-222 in the atmosphere, Res. Lett. on Atmos. Electr., 3, 51-54(1983)
- 8) 鈴木昭彦, 流跡線の計算機による作画とラドンの広域輸送の解析:名古屋大学卒業研究 (1993年3月)
- 9) 飯田孝夫, 静電捕集型ラドン濃度連続測定装置, 大気中のラドン族と環境放射能, 日本原子力学会, pp65-73(1985)
- 10) Sakashita, T. et al., The numerical model on three dimensional atmospheric transport with application to the transport of radon-222, Proc. Joint Intern. Meetings of IAMAP-IAHS, Yokohana, Japan, July 1993(to be published)
- 11) 福田仁志, 中国における水蒸気中トリチウム濃度の調査と解析;名古屋大学大学院修士論文 (1994年3月)
- 12) 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 (1987年3月)
- 13) 任天山(私信)
- 14) IAEA, Technical Reports Series No.226, Environmental Isotops Data No.7, IAEA, Vienna(1983)