

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901
 研究種目：若手研究(B)
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23710007
 研究課題名（和文）天然放射性核種をトレーサに用いた東アジア域の大気中物質輸送・除去メカニズムの解明
 研究課題名（英文）Study for atmospheric transport and deposition processes by the natural radionuclides as a tracer
 研究代表者
 平尾 茂一 (HIRAO SHIGEKAZU)
 名古屋大学・工学研究科・助教
 研究者番号：30596060

研究成果の概要（和文）：大気環境問題の解決には大気輸送モデルの利用が不可欠であり、モデルの信頼性を担保するためには、モデルを検証する必要がある。本研究では、天然放射性核種のラドンの大気中濃度を測定し、得られた観測値を用いて長距離ラドン輸送モデルの検証を行った。長期間の大気中ラドン濃度の観測値を整備し、年によって異なる季節変化を明らかにした。観測値と計算値の比較の結果、モデルの精度はファクター2であることを示した。

研究成果の概要（英文）：

Analysis of atmospheric transport model is essential to understand and solve atmospheric environment problems. The validation of the model is important to make the model simulation reliable. We measured atmospheric radon-222 concentration near the surface with high-sensitivity radon monitor, clarifying seasonal variation and its inter-annual difference. Additionally, We evaluated the performance of a long-range atmospheric radon transport model. As a result of comparison between measured concentrations and calculated concentrations, 70 % of the calculated values were within a factor of 2 of the measured values. It indicated that the uncertainty was estimated to be a factor of 2.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：環境放射能

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：ラドン、環境放射能、大気輸送モデル

1. 研究開始当初の背景

東アジア域から北西大西洋への大気汚染物質の越境輸送や原子力施設の事故に伴う放射性物質の大気拡散は東アジア地域の大気環境にとって重要な研究課題である。これら大気環境問題の解決には、汚染物質の放出源と汚染物質濃度の時空間的な情報が求められる。汚染物質の大気中での振舞いは、1) 放出の状況、2) 水平移流・拡散、3) 大気境界層内の鉛直拡散、4) 変質・除去過程によって

決まる。越境汚染が問題の場合、これら複数の要因の結果として大気中濃度が変わることが問題を複雑にする。問題解決には、野外観測データの蓄積と同時に、数値計算モデルによる解析が有効である。したがって事前に数値計算モデルの不確かさを観測データによって検証することが必要である。モデル計算値との比較に用いる観測値が大気中で複雑な化学反応過程を伴う物質の濃度等である場合、物理モデルの不確かさの検証や問

題点の整理を十分にできない恐れがある。そこで複雑な化学反応過程を持たない天然放射性物質の Rn-222 (以下ラドン) に着目し、大気輸送のトレーサとして用いることが効果的であると考えた。ラドンは半減期 3.8 日の放射性希ガスで化学的に不活性である。発生源が陸地表面にあるため、同じく地表面に発生源を持つ大気汚染物質のトレーサとして適する。ラドンを対象とした大気輸送モデルは、一般的な化学輸送モデルにおいて考慮すべき化学反応や沈着過程を考慮する必要がないため、物質の移流・拡散過程の再現性の詳細な検証が可能である。それに加えてラドン壊変生成物である Pb-210 などは、空気中のエアロゾルと大気中の挙動を共にし、ラドンからその壊変生成物までを用いて大気輸送モデルを検証することで沈着過程を含めた包括的なモデル検証が可能である。

2. 研究の目的

これまでもラドンにより長距離輸送モデルが検証されているものの、総観規模の物質輸送現象を対象とするためには、時空間的に観測値が疎らであり、モデルの問題点の整理が不十分であった。これを解決するには観測値の信頼性を向上させた上でのモデル検証が必要である。本研究では、日本を含む東アジア域の大気輸送現象に着目し、大気中ラドン濃度の観測を行い、濃度の時間変化およびその要因を明らかにしたうえで、大気中ラドン濃度を用いたラドン長距離輸送モデルの再現性評価および問題点の抽出を目的とした。

3. 研究の方法

八丈島、波照間島および落石岬で、静電捕集型ラドン検出器を使用して、大気中ラドン濃度を 1 時間毎に連続観測した。八丈島と波照間島には検出部に PIN フォトダイオードを用いた高感度型検出器を導入し、 α 線スペクトロメトリによる S/N 比の向上を実現し、70L の捕集容器 (従来の捕集容器の約 4 倍) を用いることで得られる計数を増加させ、信頼性の高い観測値を得た。得られた観測値に加えて過去の観測値を用いて約 10 年の大気中濃度の時間変化を解析し、モデルの検証に適している観測値を検討した。

波照間島については、観測値に対する島から発生したラドンの寄与を把握するために、土壌中の Ra-226 含有量とラドン散逸率の測定を実施した。島の大部分を占めるサトウキビ畑の 6 地点で表層土壌 5 cm を採取し、乾燥・均質化により試料調整を行った。試料中の U-238 系列 (Ra-226)、Th-232 系列、K-40 の放射能濃度を、HPGe 半導体検出器を用いて測定した。同地点で散逸率を、チャンバー (半径 12.5 cm、高さ 4.5 cm) を用いた蓄積法に

より、10 分間に蓄積した空気中のラドンをシンチレーション法 (AB-5) で測定しラドン散逸率を導出した。

モデルは、気象モデル MM5 と移流拡散モデル HIRAT をオフラインで結合した長距離ラドン輸送モデルを用いた。MM5 で計算した風速場と鉛直乱流拡散係数を用いて、放射壊変を含めた 3 次元移流拡散方程式に基づき、1 時間毎の大気中ラドン濃度分布を計算した。計算対象領域は東アジア域を水平方向に 72 km 格子で 136×108、鉛直方向には最下層を 50 m とし上端 10 km までを不均等に 20 分割した。気象場の計算には初期・境界値に、気象庁の全球客観解析値 GANAL (6 時間間隔) を用いた。海面温度データには、NCEP の oisst (週平均値) を用いた。MM5 の物理過程のスキームには、降水過程に Goddard microphysics、積雲対流過程に Anthes Kuo、大気境界層過程に Gayno Seaman、地表面の熱収支過程に Five layer soil model、放射過程に Cloud radiation を用いた。ラドン散逸率分布に、Schery and Wasiolek (1988) の推定値を用いた。計算期間は 2008 年から 2011 年を設定した。ラドン散逸率分布は、これまでにファクター 2 程度の不確かさがあることが分かっており、まずは陸面に対して地域分布を考慮した Schery and Wasiolek (1998) によるラドン散逸率分布を与えた。海面でのラドン散逸率は 0.14 mBq m⁻² s⁻¹ の一定値を与えた。

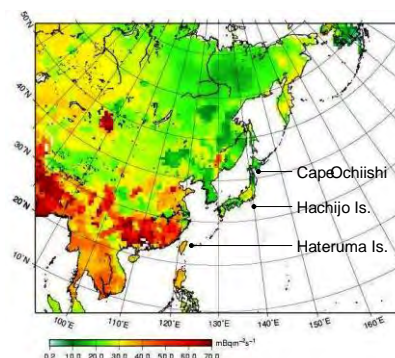


図 1. 計算領域内のラドン散逸率分布。黒点は測定地点を示す。

4. 研究成果

(1) 大気中ラドン濃度変動の解析

新たに導入した高感度型検出器を用いて 2 年間の連続した大気中ラドン濃度の観測を実施し、信頼性の高い観測データセットを整備した (図 2、3)。日本周辺で大陸性気団の勢力が卓越する時期では従来の検出器による過去の観測値が有効であることを確認した。一方で高感度型検出器によって従来の検出器よりも低い濃度の観測が可能となり、海洋性気団の勢力が卓越する夏季の観測地点のバックグラウンド濃度を明らかにした。八丈島と波照間島の平均ラドン濃度は、それぞ

れ 1.7 Bq m^{-3} と 1.4 Bq m^{-3} であり、名古屋の年平均値の約 7 Bq m^{-3} と比べて低い。総観規模での気象現象と対応する数日周期の変化が観測され、日変動は観測されないことを確認した。また過去の観測結果では、主に7月上旬から8月末に 0.5 Bq m^{-3} 以下の濃度が数日間継続する傾向が八丈島で見られていた。しかし2011年と2012年では、太平洋高気圧の日本への張り出しが9月中旬まで継続したため、低い濃度の継続期間が9月中旬まで観測された。八丈島・波照間島の大気中ラドン濃度が、東アジアの地表面から発生する物質の長距離輸送モデルの検証を行う際に有効であり、日本周辺での大気質の変化の指標となる可能性を示唆する。

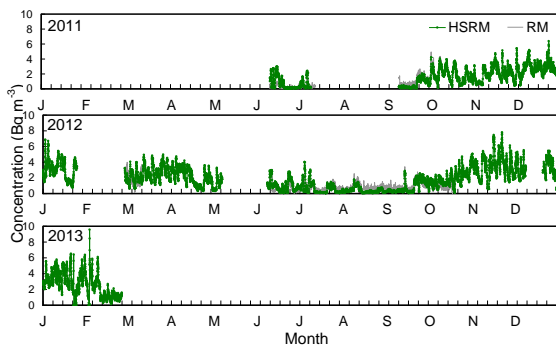


図 2. 八丈島での地表付近の大気中ラドン濃度観測値の時間変化。HSRM: 高感度型検出器、RM: 従来型検出器

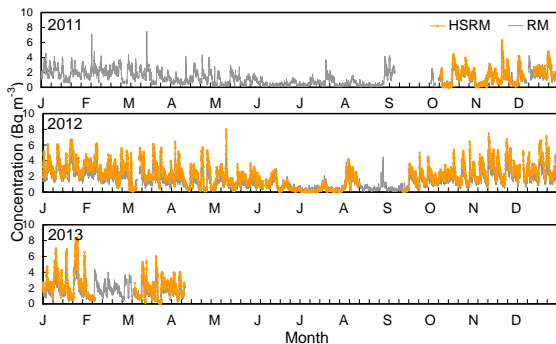


図 3. 波照間島での地表付近の大気中ラドン濃度観測値の時間変化。HSRM: 高感度型検出器、RM: 従来型検出器

(2) 近傍起源の影響の検討

波照間島の土壌中の Ra-226 (U-238 系列)、Th-232 系列および K-40 の含有量は、地点間でばらつきが大きく、6 地点の平均値はそれぞれ、 $(1.0 \pm 0.5) \times 10^2 \text{ Bq kg}^{-1}$ 、 $(2.4 \pm 0.6) \times 10^1 \text{ Bq kg}^{-1}$ および $(6.7 \times 0.8) \times 10^2 \text{ Bq kg}^{-1}$ であった。また各地点で直接測定したラドン散逸率と土壌中核種の含有量に正の相関が得られ、散逸率の平均値は $(1.1 \pm 0.5) \times 10^1 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。ただし、大倉ら(2010)により過去の名古屋の測定された土壌中の

Ra-226 含有量 (23.3 Bq kg^{-1}) に対する散逸率 ($9.8 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) と比較すると、波照間島では Ra-226 含有量に対して散逸率が比較的小さい。この傾向は波照間島の土壌が、隆起珊瑚礁の母岩上に土地改良のため客土されて形成されているため土壌厚さが名古屋などと比べて浅いためあるためと考えられる。これらの結果から波照間島の大気中ラドン濃度観測値に対する島起源のラドンの寄与を、定常状態のボックスモデルを用いて推定すると、安定境界層を 100 m と平均風速 5 m s^{-1} を仮定した場合、約 6% が得られた。簡略化されたモデルによる推定であり条件設定等の検討が必要であるものの、波照間島で観測される大気中ラドン濃度は、島起源の寄与が小さく大陸を起源とする長距離輸送成分の観察に適していることを示した。

(3) 長距離ラドン輸送モデルの再現性評価

計算された地表面付近のラドン濃度は、観測で得られた夏季に低濃度で冬季に高濃度を示す季節変化、および数日周期の時間変化を概ね良好に再現した。特に大陸で発生したラドンの寒冷前線に伴う大気輸送を良好に再現した (図 4)。モデル計算値と観測値の一致度はファクター 2 の範囲に 70% 程度と評価された。ただし八丈島と波照間島で計算値は観測値に対して 0.3 Bq m^{-3} 程度の過小傾向であり春季に最も良い再現性で秋季から冬季にかけて再現性の低下が示された。落石岬では 0.5 Bq m^{-3} 程度の過大傾向であり、冬季を除く期間で過大傾向が示された。ファクター 2 に含まれない計算値は、モデルで濃度上昇が再現されない場合と、濃度上昇は計算されるものの絶対値として不確かさが大きい場合であった。

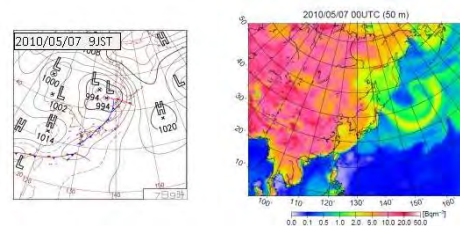


図 4. 長距離ラドン輸送モデルが寒冷前線に伴うラドンの長距離輸送を再現した典型例 (2010 年 5 月 7 日 9 時)。左: 地上天気図 (JMA)、右: モデル第一層計算結果

(5) 再現性向上のための検討

再現性が低下した場合で次の 3 項目に対して検討を加えた; a) 濃度上昇の未再現、b) 冬季の過小評価傾向、c) 落石岬の過大評価傾向。

a) 濃度上昇がモデルで再現できない場合、大陸性気団と海洋性気団の気流収束帯に観測地点が位置する 경우가多く、半数程度の事例が冬季から春季に見られた。急激な濃度勾

配を持つ収束帯を再現するためには、濃度分布の空間構造を現在よりも詳細に解像する必要性が示唆される。

b) 冬季の地表付近のラドン濃度で示された過小傾向の要因の1つとして鉛直拡散係数の導出に用いられる温位の鉛直プロファイルに着目し、再現性を検討した。春季では八丈島のモデル計算値は気象庁による高層気象観測値と良好な再現性を示したものの、冬季では境界層の下層で計算値が観測値と比べ高温を示す傾向が見られた。複数地点の検証で同様の傾向が見られたことから、冬季に海上で大気境界層が発達する場合、拡散係数が過大計算され地上付近の濃度を過小に計算することが明らかになった。この傾向は海水面温度の入力値の不確かさと大気境界層スキームの不確かさの重ね合わせであり、今後の検討が必要である。

c) 冬季を除く期間に落石岬で過大傾向を示す要因として、同じ期間に別の地点では再現性の著しい低下が見られないことから、北海道の散逸率に着目した。北海道の散逸率は道内平均で約 $20 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (Schery and Wasiolek, 1998) を与えた。ただし Hirao *et al.* (2010) によれば $10 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度の散逸率が推定されており、高緯度での散逸率が過大に与えられている可能性が示唆される。したがって、Hirao *et al.* (2010) を参考に散逸率を修正し、モデル計算を実施した結果、落石岬での地表付近の大気中ラドン濃度の計算値は 0.5 Bq m^{-3} の過大傾向から 0.2 Bq m^{-3} へ改善した。

本研究の成果によって、大気中ラドン濃度の観測値が整備され、その観測値を使用し長距離ラドン輸送モデルの検証を可能とした。モデル検証の結果、モデルの不確かさの要因が整理され、モデルの精度向上のための今後の見通しを得た。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

①A. Wada, H. Matsuueda, S. Murayama, S. Taguchi, S. Hirao, H. Yamazawa, J. Moriizumi, K. Tsuboi, Y. Niwa and Y. Sawa, Quantification of Emission Estimates of CO₂, CH₄ and CO for East Asia Derived from Atmospheric Radon-222 Measurements over the Western North Pacific, *Tellus Series B Chemical and Physical Meteorology*, 査読有, 65, 1-15 (2013).

[学会発表] (計5件)

①平尾 茂一、吉田 和満、林 亮介、森泉 純、山澤 弘実、八丈島での大気中ラドン濃度の長期観測と輸送過程の解析、日本原子力学会 2013 年春の年会、大阪、2013 年 3 月 26-28 日

②林 亮介、平尾 茂一、森泉 純、山澤 弘実、遠嶋 康徳、向井 人史、波照間島の大気中ラドン濃度を用いた東南アジア域のラドン散逸率の推定、日本保健物理学会第 45 回研究発表会、名古屋、2012 年 6 月 16-17 日

③吉田 和満、平尾 茂一、森泉 純、山澤 弘実、アジア域大気中ラドン濃度を用いたラドン長距離輸送モデルの再現性評価、日本原子力学会 2012 年春の年会、福井、2012 年 3 月 19-21 日

④林 亮介、吉田 和満、平尾 茂一、森泉 純、山澤 弘実、夏期の波照間島における大気中ラドン濃度測定による東南アジアからの大気輸送の評価、日本原子力学会中部支部第 43 回研究発表会、名古屋、2011 年 12 月 13-14 日

⑤吉田 和満、平尾 茂一、森泉 純、山澤 弘実、田阪茂樹、シベリア及びアラスカ地域のラドン散逸率推定、日本保健物理学会第 44 回研究発表会、茨城、2011 年 10 月 15-17 日

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

http://www.ees.nagoya-u.ac.jp/~env_eng/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平尾 茂一 (SHIGEKAZU HIRAO)
名古屋大学・工学研究科・助教
研究者番号：30596060

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし