

|         |   |
|---------|---|
| 氏名      | 青山道夫  |
| 生年月日    |   |
| 本籍      | 神奈川県  |
| 学位の種類   | 博士(理学)                                      |
| 学位記番号   | 博甲第289号                                     |
| 学位授与の日付 | 平成11年3月25日                                  |
| 学位授与の要件 | 課程博士(学位規則第4条第1項)                            |
| 学位授与の題目 | 大気圏における人工放射性核種の挙動に関する地球化学的研究                |
| 論文審査委員  | (主査) 山本 政儀<br>(副査) 坂本 浩, 中西 孝, 大村 明雄, 小村 和久 |

## 学位論文要旨

Annual  $^{137}\text{Cs}$  deposition in Japan during 1945 -1956 was reconstructed and cumulative  $^{137}\text{Cs}$  deposition during 1945 -1997 was estimated to be ca.  $3500 \text{ Bq m}^{-2}$  at the end of 1997. A semi-empirical box model of atmospheric transport was developed. The model divided the stratosphere of the Northern Hemisphere into three compartments : the atmosphere above 21 km, stratosphere below 21 km, active mixing and exchange (AME) layer near the tropopause. The half residence times for transfer between upper and lower stratospheric compartments, between the lower and AME Layer compartments, and between the AME layer and troposphere were 0.5, 0.7 and 0.3 yrs, respectively. The dry deposition velocities for the Chernobyl-derived fallout radionuclides were found to be a function of the size of the radionuclide-bearing particles and were the same order as the gravitational settling velocity for supermicron particles. The increase of the dry deposition velocities for submicron particles could be due to Brownian diffusion. It was estimated that 0.51% of the released caesium isotopes and 0.19% of the released  $^{90}\text{Sr}$  have been transported to the stratosphere. With regard to the altitude distribution of the stratospheric Chernobyl-derived radioactivity, 46% was in the AME layer near the tropopause, while 54% was transported into the lower stratosphere. The radiocaesium in the surface air at Tsukuba derived from the bituminization facility of the Donen, Tokai was detected for 6 days after the accident. The local meteorological conditions and lower altitude release of radiocaesium just near surface might cause the relatively long periods of the detection.

大気圏核実験や原子炉事故等により一般環境に放出された人工放射性核種の大気圏での挙動についての研究の終局的な目的は、人類が被曝する放射線量を監視し放射線防護上の措置を講じることである。このためにまず必要なことは人工放射性核種の降下量や大気中で

の濃度の測定であり、併せて重要なことは放射性物質の大気中での輸送機構を明らかにすることである。大気中での輸送機構が明らかになれば、大気中への放射性物質の予期せぬ事故等による放出が生じたときに、その動態を予測をすることが可能になる。このために、過去数多くの研究が行われてきたが、成層圏と対流圏を含む全球規模での輸送機構については、不十分な状況であり、地球上の各地の降下量が異なる原因についても定量的な説明はできていない。また、対流圏内の輸送に関しても、ドライデポジションや降水による大気中の人工放射性核種の除去過程についても、定性的な理解に留まっている。本研究では、過去の大気圏核実験や原子炉事故等により放出された人工放射性核種の挙動について、現実の観測データの解析に基づいて、全球規模の大気圏での人工放射性核種の挙動を地球化学的な観点から研究をおこない、下記のことを明らかにした。

1) 北極氷床の層別の $^{137}\text{Cs}$ 濃度、大気圏での核爆発量データおよび日本（1957年から1980年3月まで東京高円寺1980年4月から現在までつくば）での $^{137}\text{Cs}$ 降下量の観測が始まる1957年以前の外国での観測値を用いて、1945年から1956年までの期間の降下量を再構成し、1945年から1997年までの期間について日本での $^{137}\text{Cs}$ 年間降下量を評価した。Fig. 1に示すように、1945年の $^{137}\text{Cs}$ 年間降下量は約 $6 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と推定した。1961-1962年の大規模大気圏核実験の結果、1963年の年間降下量は $1900 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ となり最大値を記録した。最近の数年間は $0.2 - 0.3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であった。また、それらを用いて減衰を考慮した積算降下量を評価した結果(Fig. 1)、積算降下量の最大は1966年で約 $6000 \text{ Bq m}^{-2}$ 、1997年末で約 $3500 \text{ Bq m}^{-2}$ となっている。

2) 過去の研究によって成層圏のエアロゾルの滞留時間が約1年であることが示されている。しかし、実際の観測結果によると、みかけの成層圏滞留時間はかなりの変動を示し、短い場合には約0.5年（1980年中国第26回大気圏核実験の場合）長い場合には1.7年（1960-61大規模核実験で放出されたプルトニウムの経年変化から評価）であった。成層圏に打ち上げられた放射性物質の経時変化や地上で観測された降下量の経時変化を解析することによって、実際の圏界面高度が1日より短い時間スケールで上下することによって混合が促進されること（Fig. 2）が、みかけの成層圏滞留時間を変動させる主要因であることを明らかにした。従って、成層圏を少なくとも3層に分けて考えることが重要であり、各層の滞留半減時間は、上部成層圏（高度21km以上）が0.5年、下部成層圏（高度21km以下）が0.7年、対流圏界面直上層が0.3年と推定された。

3) 1990年代の降下量の特徴は、その主たる起源が成層圏ではなく、過去の大気圏での核実験起源によるものや、いくつかの原子力発電所事故やその他の核事故に由来するものが、一度地表に降下した後、再浮遊したことによるものがほとんどであることを明らかにした。

4) 1986年4月のチェルノブイリ原発事故由来の放射性核種についてアンダ-センサンプラを用いて平均粒径分布を求めた。Table 1に採取期間毎の核種毎の空気力学的放射能中央径（AMAD）を示す。その結果、チェルノブイリ原発事故由来の放射性核種を含むエアロゾルのAMADは $^{131}\text{I} < ^{137}\text{Cs}, ^{103}\text{Ru} < ^{90}\text{Sr} < ^{239,240}\text{Pu}$ の順序で大きくなることが分かった。この内、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 及び $^{103}\text{Ru}$ のAMADはサブミクロンであった。また、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 及び $^{103}\text{Ru}$ の3核種の場合、 $0.43 \mu\text{m}$ 以下に全体の放射能の50%が存在し、粒径の増加と共に急速に放射能が減少する分布を示した。また、 $1.1 \mu\text{m}$ 以下の分画には $^{131}\text{I}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 及び $^{103}\text{Ru}$ がそれぞれ83%、90%及び94%の放射能が含まれていることが分かった。5月末までの観測によると、粒径分布は時間と共に変化し、平均粒径は $^{137}\text{Cs}$ の場合 $0.4 \mu\text{m}$ から $0.7-0.8 \mu\text{m}$ と増加し、 $^{103}\text{Ru}$ においても同様な傾向が認められた。つくばの個別降水で観測したチェルノブイリ原発事故由来の放射性物質についての

washout ratio (Table 2) は、 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  <  $^{90}\text{Sr}$  の順序で大きくなり、 $^{90}\text{Sr}$  が降水により最も除去され易いことが明らかになった。更に、ドライデポジションや降水によるエアロゾルの除去のされ易さの順序と平均粒径の順序は良く対応していることが分かった。この結果は従来研究されてきた降水やドライデポジションによるエアロゾルの除去がエアロゾルの粒径と密接に関連しているという機構と良く一致した。

チェルノブイリ原発事故由来の放射性核種の大気からの除去過程を解明するために、実際につくばで得た粒径分布及びドライデポジションから、粒径とドライデポジションベロシティ ( $V_d$ ) の関係を最小二乗法を用いて計算した。降下量の多い期間と少ない期間の2つにわけて計算した結果、信頼できる粒径に依存する  $V_d$  が求められた。Fig. 3 に示すように、 $V_d$  は粒径に依存しており、 $1\ \mu\text{m}$  以上の粒子では重力沈降の速度と同じオーダーであった。 $1\ \mu\text{m}$  以下の粒径に対する  $V_d$  は、重力沈降によるものからは大きく異なっており、粒径  $1\ \mu\text{m}$  付近で  $V_d$  は極小となったのち、粒径が小さくなるにしたがって、 $V_d$  が大きくなる傾向にあることを明らかにし、Brown運動の効果の関与の可能性を提示した。

5) チェルノブイリ原発事故のように対流圏下部に放出された放射能でも成層圏に輸送されることを、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  および  $^{90}\text{Sr}$  月間降下量の経年変化の解析から解明した。本研究で得た成層圏を3つにわけて取り扱うモデルを  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  および  $^{90}\text{Sr}$  月間降下量の経年変化に適用し、成層圏に輸送された  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  は放出総量の0.51%、 $^{90}\text{Sr}$  は0.19%であり、輸送された高度は下部成層圏と対流圏界面直上層にそれぞれ46%と54%であることを明らかにした。

6) 1997年3月11日の動燃東海再処理工場事故由来の放射性物質は、地表付近で放射能が放出されたため、半日の間に関東平野にひろがった後、局地的な気象条件に強く支配されて上空を往来した結果、つくばで採取した事故直後(1997年3月11日)から1997年3月17日までの大気浮遊塵サンプル中に事故由来の放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ ) が検出される結果となったことを、観測および数値シミュレーションによって明らかにした。

これらの結果は、核実験や事故等による大気中への放射性物質の放出が生じたときに、放射性物質の輸送・拡散を予測するための基礎データとなると考える。

Table 1. Activity median aerodynamic diameter (AMAD) of Chernobyl-derived fallout radionuclides observed at Tsukuba, Japan.

| Sampling period |          | AMAD ( $\mu\text{m}$ ) |                   |                   |                  |     |
|-----------------|----------|------------------------|-------------------|-------------------|------------------|-----|
| 1986            |          | $^{137}\text{Cs}$      | $^{134}\text{Cs}$ | $^{103}\text{Ru}$ | $^{90}\text{Sr}$ | Pu  |
| 6               | - 10 May | 0.38                   | 0.48              | 0.35              | -                | -   |
| 13              | - 17 May | 0.51                   | 0.45              | 0.54              | 1.2              | 2.1 |
| 17              | - 24 May | 0.71                   | 0.59              | 0.65              | -                | -   |
| 24              | - 31 May | 0.45                   | 0.36              | 0.38              | 1.0              | 2.5 |

Table 2. Washout ratios and wet deposition velocities of Chernobyl-derived fallout radionuclides observed at Tsukuba, Japan.

| Sampling period | Rainfall rate (mm h <sup>-1</sup> ) | Wet deposition velocity (mm s <sup>-1</sup> ) |                   |                  | Washout ratio x 10 <sup>6</sup> |                   |                  |
|-----------------|-------------------------------------|---|-------------------|------------------|---------------------------------|-------------------|------------------|
|                 |                                     | <sup>137</sup> Cs                             | <sup>103</sup> Ru | <sup>90</sup> Sr | <sup>137</sup> Cs               | <sup>103</sup> Ru | <sup>90</sup> Sr |
| 5 - 6 May       | 0.49                                | 2.6   | 3.8               | 16               | 0.19                            | 0.23              | 1.2              |
| 6 - 7 May       | 1.7                                 | 10  | 7.6               | 27               | 0.22                            | 0.16              | 1.4              |
| 14 - 15 May     | 7.6                                 | 70  | 35                | 230              | 0.32                            | 0.19              | 1.1              |
| 16 - 17 May     | 16                                  | 110   | 220               | 180              | 0.25                            | 0.41              | 0.50             |
| 19 - 20 May     | 0.8                                 | 7.4   | 6.3               | 31               | 0.34                            | 0.28              | 1.4              |
| 20 - 21 May     | 1.5                                 | 12  | 8.2               | 28               | 0.29                            | 0.20              | 1.4              |
| 29 - 30 May     | 3.6                                 | 53  | 15                | 39               | 0.53                            | 0.37              | 1.4              |

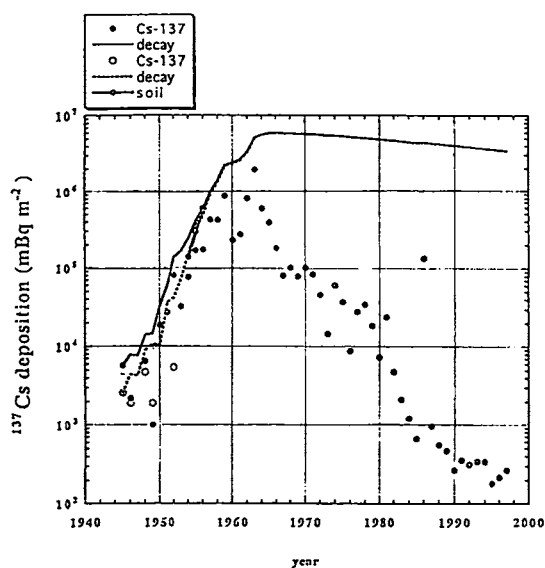


Fig. 1 Temporal variation of annual deposition and cumulative deposition of <sup>137</sup>Cs since 1945.

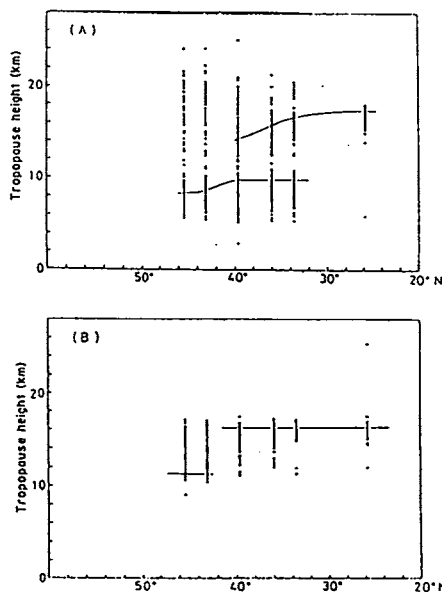


Fig. 2 The day-to-day variation of the tropopause height in the 20° - 40° N latitude along about 135° E longitude on January 1976 (A) and July 1976(B). The solid line represents the monthly mean tropopause height.

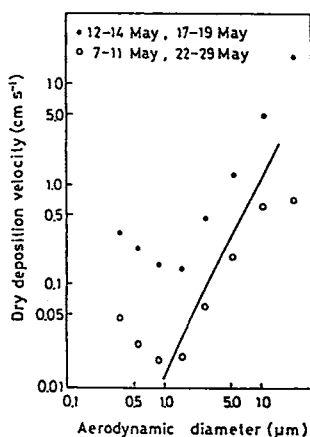


Fig. 3 The Relationships between the dry deposition velocity and aerodynamic diameter of Chernobyl-derived radioactivity. The number of the particle - size - dependent dry deposition velocities is eight, which corresponds to the particle diameters of 0.35, 0.54, 0.88, 1.55, 2.7, 5.1, 10, and 20 μm, respectively.

## 学位論文審査結果の要旨

本学位論文に関し、各審査委員が提出された学位論文及び参考論文等を個別に検討した後、審査委員のみによる面接審査及び第1回審査委員会を開催した。さらに、平成11年1月27日に口頭発表会(公開)並びに第2回審査委員会を開催し、協議の結果、以下のとおり判定した。

本論文は、過去の大気圏核実験や原子炉事故等により自然環境に放出された人工放射性核種について、大気及び降下物中の長期間の濃度測定を行い、その結果を解析することにより、大気中での放射性物質の輸送・拡散及び除去過程を地球化学的観点から究明したもので、研究成果は大別して次の4点よりなる。

- (1) 大気圏核実験で放出された $^{137}\text{Cs}$ について、日本での観測が始まる1957年以前の降下量を大気圏での核爆発量データ等を用いて再構成し1945年から現在までの年間降下量を明らかにした。
- (2) 大気圏核実験によって成層圏に打ち上げられた放射性物質の地表大気中濃度及び地上での降下量の経時変化((1)の成果)の解析により、成層圏を少なくとも3層に分けて考えることの必要性を提示し、各層での滞留半減時間を上部成層圏(高度21 km以上)が0.5年、下部成層圏(高度21 - 10 km)が0.7年、対流圏界面(約10 km)直上層が0.3年であることを見出した。さらに、最近の降下量はその主たる起源が成層圏からの直接降下ではなく、地表に降下したものの再浮遊に起因することを解明した。
- (3) 対流圏下部に放出されたチェルノブイリ原子力発電所事故(1986年4月)由来の放射性物質について、(2)の成果を適用して、 $^{137}\text{Cs}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ がそれぞれ総放出量の0.51%、0.19%成層圏に輸送されたことを解明した。また、大気及び降下物の放射能測定から、野外データとして初めてエアロゾルの粒径と直接降下速度との関係を明らかにした。
- (4) 地表付近で放出が起こった動燃東海再処理工場事故(1997年3月11日)由来の放射性物質( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ )について、筑波で観測した大気中濃度の経時変化を実際の気象データを取り入れた数値シミュレーションも駆使して解析し、局地的な輸送・拡散の実証的な新知見を得た。

以上のように、本論文は、これまで知見の少なかった大気中での物質の輸送・拡散・除去過程を、数十年から数日の時間スケールで、対応するイベントから放出された放射性物質をプローブとして解明したもので、その内容は地球化学的視点から見て一般性に富む多くの新知見を提供しており、今後の地球規模及び局地規模の大気中での物質の輸送・拡散挙動の予測に資するところ大であり、博士(理学)の学位を授与するに十分に値するものと判定した。