

東アジアにおける大気汚染物質の挙動解明を 目的とした自然放射能ラドンの同時測定

(研究課題番号 10044148)

平成10年度～平成11年度科学研究費補助金(基盤研究(B)(2))
研究成果報告書

平成12年3月

研究代表者 飯田孝夫
(名古屋大学大学院工学研究科教授)

はしがき

酸性雨などをもたらす大気汚染物質の移流・拡散や原子力事故に伴う放射性物質の広域拡散の研究は地球環境問題の重要かつ緊急な課題である。大気中に存在する天然放射性物質のラドンは半減期が 3.8日、化学的に不活性である。ラドンの発生源は陸地表面にあるので、同じく地表面に発生源を持つ大気汚染物質の良いトレーサとなりうる。東アジア地域のいろいろな地点でラドン濃度を同時に連続測定し、気象解析と時間変動解析を行えば、大陸から気流に沿って大気汚染物質がどのように移流・拡散して行くかの情報を与える。

広域成分のラドン濃度測定値を得るために隠岐諸島の五箇村、横尾山を選んだ。日本における広域成分ラドンの発生源となっているアジア大陸のラドン濃度を得るために、韓国ソウル、トンヘと中国の煙台を選んだ。日本の代表地点として日本海側の金沢と太平洋側の名古屋を選んだ。

大陸から気流に沿って、煙台、ソウル、トンヘ、隠岐、金沢、名古屋でラドン濃度の時系列データを得ることができた。全測定期間のラドン濃度平均値は、ソウルが $8.4 \pm 1.9 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 、横尾山が $2.2 \pm 0.8 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 、五箇村が $3.5 \pm 1.1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 、金沢が $5.6 \pm 0.7 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 、名古屋が $5.3 \pm 1.9 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ であった。各地点の濃度は春期から夏期にかけて低く、終期から冬期にかけて高くなる季節変動を示した。流跡線解析や露点との比較から判断すると気団が大陸性であるか海洋性であるかによって、これらの季節変動は起きる。日々の変動も観測され、この原因の一つとして前線の通過に伴うラドン濃度上昇が挙げられる。オゾン濃度や大気汚染物質も同じ現象が見られた。相関関数・スペクトルを用いて気象要素との相関を調べ、これらの手法がラドン濃度変動解析にも適用できることが分かった。気圧との相関が見られた。金沢では低気圧に伴う降水による影響がみられた。五箇村におけるラドンと大気汚染物質の相関関数を調べたところ、降雨のない時期はラドンと大気汚染物質はよい相関関係であった。隠岐島の大気中ラドン濃度については、鉛直混合2層モデルにより隠岐島周辺の大気境界層の長期浮遊ラドン濃度を推定できた。日没時のラドン濃度と長期浮遊ラドン濃度の差から短期浮遊ラドン濃度を推定できた。

ラドン濃度連続測定に関しては、欠測の問題が重要である。トンヘ、隠岐のような遠隔地ではラドン濃度測定値を得るには、メンテナンスのため測定点に足を運ばねばならない。将来はラドン濃度測定システムのオンライン化が望まれる。今後の課題としては、測定地点近傍の散逸率も連続測定、測定地点として大気汚染物質などが観測されている地点、時系列解析の手法を発展させるなどである。隠岐では信頼性のあるラドンの広域成分の観測値が得られたので、3次元シミュレーションの検証に用いる予定である。

名古屋大学図書



20095676

研究組織

研究代表者	： 飯 田 孝 夫	(名古屋大学大学院工学研究科教授)
研究分担者	： 森 泉 純	(名古屋大学大学院工学研究科助手)
研究分担者	： 小 村 和 久	(金沢大学理学部教授)
研究分担者	： 吉 岡 勝 廣	(島根県衛生公害研究所主任研究員)
研究分担者	： 金 潤 信	(漢陽大学産業医学研究所所長)
研究協力者	： 権 成 顔	(漢陽大学産業医学研究所助教授)
研究協力者	： 鈴 木 敦 雄	(名古屋大学大学院工学研究科大学院生)
研究協力者	： 卓 維 海	(名古屋大学大学院工学研究科大学院生)
研究協力者	： 橋 口 幸 弘	(名古屋大学大学院工学研究科大学院生)

研究経費

平成10年度	2,000千円
平成11年度	1,800千円
計	3,800千円

研究発表

(1) 国際会議等

- ・ K.Komura: Monitoring of radon activity for surface air at Tatsunokuchi and out-flow water from a mining pit of former Ogoya Copper Mine, Seminar on Atmospheric Environment and Radon between Korea and Japan, Sept. 29, 1998, Seoul, Korea, pp. 61-62.
- ・ K.Yoshioka: The profile of ^{222}Rn concentration in the lower atmospheric boundary layer of Shimane peninsula and Oki island in Japan Sea, Seminar on Atmospheric Environment and Radon between Korea and Japan, Sept. 29, 1998, Seoul, Korea, pp. 85-96.
- ・ T.Iida, K.Yamada, H.Miyachi, et al. : Monitoring of atmospheric radon concentrations at various locations in East Asia, Seminar on Atmospheric Environment and Radon between Korea and Japan, Sept. 29, 1998, Seoul, Korea, pp. 111-122.
- ・ K.Yoshioka: The special feature of diffusion transport in the atmospheric boundary layer using ^{222}Rn concentration of Oki island in Japan Sea, IRPA10, May 14-19, 2000, Hiroshima, Japan.

(2) 国内口頭発表等

- ・ 吉岡勝廣，島根半島における下層大気中のラドン濃度の高度プロファイル，日本保健物理学会第33回研究発表会，1998年5月14-15日、浜松
- ・ 吉岡勝廣，島根半島の高度30mの大気中ラドン濃度とラドン短寿命娘核種濃度の比較，第35回理工学における同位元素研究発表会，1998年6月29日-7月1日、東京
- ・ 吉岡勝廣，島根半島の大気中ラドン濃度の高度プロファイル，第39回島根県保健福祉環境研究発表会，1998年7月30日、松江
- ・ 橋口幸弘、飯田孝夫、吉岡勝弘、小村和久、金潤信：日本海域における大気中ラドン濃度の時系列解析、日本保健物理学会第34回研究発表会、1999年5月27-8日、大分
- ・ 吉岡勝廣，下層大気中ラドン濃度と鉛直温位傾度の鉛直分布の時間変化との関係，第36回理工学における同位元素研究発表会，1999年7月5-7日，東京
- ・ 吉岡勝廣，環境モニタリングへのラドンのトレーサ利用，第40回島根県保健福祉環境研究発表会，1999年7月26日，松江
- ・ 橋口幸弘、飯田孝夫、吉岡勝弘、小村和久、金潤信：大気中ラドン濃度の時系列解析、日本原子力学会1999年秋の大会、1999年9月10-12日、柏崎
- ・ 橋口幸弘、飯田孝夫、吉岡勝弘、小村和久、金潤信：大気中ラドンの挙動解析、日本原子力学会中部支部第31回研究発表会、1999年12月7-8日、名古屋

目 次

第1章 序論	1
1-1 はじめに	1
1-2 本研究の背景	1
1-3 本研究の目的と意義	3
参考文献	3
第2章 日本海域における大気中ラドン濃度の測定	5
2-1 観測地点	5
2-2 大気中ラドン濃度測定系	6
2-3 測定結果	8
2-3-1 観測期間	8
2-3-2 日平均値	8
2-3-3 月平均値	13
2-4 季節変動に関する考察	14
2-4-1 気団の交替	14
2-4-2 流跡線解析	16
2-4-2-a 流跡線	16
2-4-2-b 流跡線解析	17
2-4-3 降水量とラドン濃度の関係	20
2-4-4 季節変動に関するまとめ	22
参考文献	22
第3章 気象要素との相関関係	24
3-1 時系列解析の方法	24
3-1-1 トレンド	24
3-1-2 同時分布	25
3-1-3 自己相関関数	27
3-1-4 相互相関関数	28
3-1-5 パワースペクトル	30
3-2 ラドン濃度と気象要素の変動の時系列解析	31
3-2-1 気象データ	31
3-2-2 ソウル、隠岐・名古屋・金沢における測定値の相関	32

3-2-3	気象要素との相関	34
3-2-4	数日周期成分	39
3-2-4-1	前線通過に伴う変動	39
3-2-5	日周期成分	42
3-2-5-1	日変動要因	42
3-3	大気汚染物質との相関関係	44
	参考文献	47
第4章	日本海の隠岐島の大气中ラドン濃度による大气境界層の 拡散輸送特性	48
4-1	はじめに	48
4-2	大气中ラドン濃度の測定	48
4-2-1	測定場所	49
4-2-2	測定装置	49
4-3	測定結果	50
4-4	考察	55
4-4-1	大气境界層の鉛直混合2層モデル	55
4-4-2	輸送時間によるラドン原子の分類	56
4-4-3	夜間のラドン濃度の推定	56
4-4-4	昼間のラドン濃度の推定	57
4-4-5	長期浮遊ラドン成分と短期浮遊ラドン成分の推定	57
4-5	結論	60
4-6	今後の研究の進め方	61
	参考文献	61
第5章	まとめと今後の課題	63
5-1	結論	63
5-2	今後の課題	64

第1章 序論

1-1 はじめに

ラドン-222 (^{222}Rn 、以下ラドン) は、ウラン系列に属する天然放射性核種で、 ^{226}Ra の α 崩壊によって発生する。ラドンは半減期約3.82日で α 崩壊し、娘核種の ^{218}Po (半減期3.05min) となる。

1986年のチェルノブイル原子力発電所の事故で放出された人工放射性核種など、人間の生活環境に影響を与える人工放射性核種の環境中での挙動が注目されている。また放射性核種だけでなく、近年は大気汚染物質など様々な物質についての輸送、循環にも関心が集まっている。近年におけるコンピュータのめざましい発展は膨大かつ複雑な計算を可能にし、物質挙動を知る上で有効な数値モデルを飛躍的に進化させている。その中でも、チェルノブイル事故によって放出された人工放射性核種の大気中の輸送に適用したWSPEEDI (Worldwide Version of System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information)の成果⁽¹⁾⁽²⁾は大きな注目を浴びている。しかしながら、WSPEEDIはすべての放射性核種について物理的・化学的な性質を考慮したうえで、これらの物質の挙動を評価しているわけではない。各々の核種についてモデルを構築していくことが現在要求されている。さらに、モデルの入力値となる気象データの精度がモデルの結果を左右するため、気象データは重要な要素となっている。1996年3月から気象庁による天気予報は20km間隔で3時間毎にできるようになるなど、気象データの精度についてもかなりの進歩が認められる⁽³⁾。しかし、大気拡散の重要なパラメータである乱流に関する情報はまだ充分とは言えない。これは大気の乱れが等方的ではないことや時間的、空間的なスケールが幅広いことに由来している。このように大気の輸送過程には未知領域があり、それらを解明することが期待されている。

ラドンは希ガスであるため化学的反応性に乏しい。さらに半減期が約3.82日と比較的長いため、大陸-大洋間のような広い領域の大気のトレーサとして利用できる⁽⁴⁾。大気汚染物質や放射性核種の挙動を調べ、大気中の拡散過程を解明するために、ラドン及びその娘核種は利用され、大気中ラドンの測定やそれに関連する研究は頻繁に行われている。

1-2 本研究の背景

屋外ラドン濃度の測定は、以前より当研究室でも行われ、解析も行われてきた^{(5)~(9)}。名古屋の地表付近で観測されるラドン濃度は、朝方に高く日中に低くなる

日変動がみられる。この濃度変動の原因として、一日における日射量の周期的変化が挙げられる。日射量の多い昼間では大気鉛直方向の混合が盛んなため、地表面から発生したラドンはすみやかに上空へ拡散し、その結果地表付近のラドン濃度が低くなる。一方、夜間には混合が弱く拡散が小さくなるため地表付近にラドンが溜まり、ラドン濃度が高くなる。

名古屋大学の坂下はラドンの三次元移流拡散モデルを開発したものの、ラドン濃度変動の測定値を完全に再現することはできなかった⁽⁹⁾。それは、実際の測定値は狭域成分とグローバルな広域成分とをたし合わせたものであり、このモデルでは日変動に支配的な観測点周辺から大気に散逸したラドンの挙動を正確に再現できないためである。以降、このモデルは広域三次元輸送モデルとして用いられた。こうしてラドン濃度変動の‘広域成分と狭域成分’という概念が生まれた。広域成分は水平方向に4000km四方・鉛直方向に4kmの領域（広域領域）とし、狭域成分は水平方向に20km四方・鉛直方向に1kmの領域（狭域領域）と定義されている⁽¹⁰⁾。

この広域三次元移流拡散モデルの検証をするにあたって広域成分の測定値が必要となり、小笠原母島での観測が宮地、山田によって1994年12月から1996年10月までの約二年間行われた⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。その後、栗原が広域大気拡散モデルを開発し、広域モデルの実測データに基づく検証が名古屋大学で初めて行われた⁽¹³⁾。しかしそれでも測定地点の数、測定地点の空間的広がりでは十分とは言えなかった。そのため本研究では広域成分の測定点として隠岐を、大陸からの発生源としてソウルおよびトンヘ（韓国）、煙台（中国）を選定し、ラドン濃度の連続測定を行った。

ラドンは、大気中で除去や変質を受けるSO_xやNO_xなどの物質に比べると、大気中の動態が単純である。しかし、現状では大気安定度に起因する濃度日変動・大気境界層から自由大気への除去率・積雲対流による雲輸送など細かい点では未知の領域も多く、まだ研究の余地が残されている。

また2001年、2003年の春に、東アジア、北太平洋西部を中心に陸上、船舶、航空機、衛星を用いて行う大規模な大気エアロゾルの国際共同観測計画（Asia-Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment : ACE-Asia）が実行の段階に移されようとしている⁽¹⁴⁾。本研究はこの計画に先駆け、ラドンをトレーサとして日本海域における気象要素を解明するための基礎的資料の提供を行う。

最近ではコンピュータの発展に伴い、相関関数やスペクトル解析といった統計的手法・時系列解析⁽¹⁵⁾が確立し、様々な分野で利用されている⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾。従来のラドン濃度時系列データの解析手法は、単に他の気象要素との同時分布を取り相関係数を調べ、相関の有無を議論するに止まっていた。それは気象データの入手の難しさなどが原因となって、精度、期間共に十分な気象データ準備できなかったからである。1995年から気象データをCD-ROM形式（気象庁発刊）で容易に入手できるようになった。さらに最近ではインターネット経由で世界の気象データを入手することもでき

るようになってきている。このように多種にわたる気象要素を容易に入手できるようになったため、ラドン濃度についても時系列解析が導入されつつある。坂下は時系列解析を用いてラドン濃度の測定値と計算値を比較した⁽¹⁰⁾。名古屋大学では、ラドン濃度連続測定を日本海周辺の多地点で長期間行っているので十分な観測値が蓄積されている。本研究ではこれらラドン測定値をより充実した気象データを用いて解析を行い、日本海域での大気中ラドンの挙動の解明を試みた。

1-3 本研究の目的と意義

本研究は、比較的動態の把握しやすい天然放射性核種であるラドンの大気中における挙動の解明を主な目的とし、人工放射能や大気汚染物質の動態を解明するための基礎的資料の提供に重点をおいている。以下に本研究の目的を挙げる。

- (1) 広域成分のラドン濃度の測定
- (2) ラドンの大気中における挙動の解明

広域成分のラドン濃度測定値を得られる観測地点として、海洋上の孤島や上空が挙げられる。広域成分のラドン濃度測定値を得るために隠岐諸島の五箇村、横尾山を選定した。日本における広域成分ラドンの発生源となっているであろうアジア大陸のラドン濃度測定値を得るため、韓国のソウル、トンヘ、中国の煙台を選定した。

以上のことから、本研究の意義として以下の四つが挙げられる。

- ・気象現象の未知領域の解明
- ・環境放射能の動態の基礎研究
- ・環境モニタリングの基礎資料
- ・大気汚染物質や放射性核種の大気中拡散過程解明のためのトレーサ利用

参考文献

- (1) Ishikawa, H.: Development of Regionally Extended Worldwide Version of System for Prediction of Environmental Emergency Dos Information, WSPEEDI(I). J. Nuclear Sci and Tech, 28[6], 535-546, 1991.
- (2) Ishikawa, H.: Development of Regionally Extended Worldwide Version of System for Prediction of Environmental Emergency Dos Information, WSPEEDI(II). J. Nuclear Sci and Tech, 28[7], 642-655, 1991.

- (3) 気象庁編：平成8年度版 今日的气象業務 自然と地球をみつめて、p.p1, 1996
- (4) 池辺幸正：ラドンのトレーサ利用、続・大気中のラドン族と環境放射能、日本原子力学会、pp. 325-332, 1990
- (5) 西村健：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1988
- (6) 西村孝夫：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1985
- (7) 安達貞志：名古屋大学工学部原子核工学科卒業論文、1989
- (8) 丸貴徹庸：名古屋大学工学部原子核工学科卒業論文、1991
- (9) 坂下哲哉：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1992
- (10) 坂下哲哉：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻学位論文、1997
- (11) 宮地秀幸：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1996
- (12) 山田克己：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1998
- (13) 栗原治：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1997
- (14) 広瀬勝己：大陸起源エアロゾルの海洋への影響、エアロゾル研究、日本エアロゾル学会、vol.14 No.3 pp5-9,1999
- (15) 北川源四郎著：FORTRAN77 時系列解析プログラミング 岩波書店、1993
- (16) 赤池弘次、北川源四郎：時系列解析の実際Ⅰ 朝倉書店、1994
- (17) 赤池弘次、北川源四郎：時系列解析の実際Ⅱ 朝倉書店、1995

第2章 日本海域における大気中ラドン濃度の測定

ここでは1998年10月から1999年8月の期間に、2-1で述べる測定地点において行われたラドン濃度測定の結果と考察、及び解析について述べる。

ここで最初に「広域成分」と「狭域成分」について説明する。この概念は計算手法の必要から生じている⁽¹⁾。広域領域とは日本海周辺を中心に水平方向に4000km四方・鉛直方向に4kmの領域のことをいい、狭域領域とは水平方向に20km四方・鉛直方向に1kmの領域のことをいう。広域成分は東アジアを含む広範囲にわたって発生、輸送される長距離成分を指し、狭域成分は観測点周辺の狭域領域で発生、輸送される成分を指す。ラドンおよびラドン・トロン娘核種の広域成分を測定するには、測定場所として狭域成分を無視できる場所を選ばなければならない。狭域成分が無視できる場所は、‘海岸線’付近で海上から風が吹いてくる場所や周りが海に囲まれた‘小さな島’、直下の地表から散逸されたラドンの拡散による寄与の小さい‘上空’が挙げられる。

2-1 観測地点

観測地点は以下の7地点である。観測地点をFig.2-1に示す。隠岐諸島については測定点が2点あるため別にFig. 2-2で示す。



Fig. 2-1 location of monitoring points.

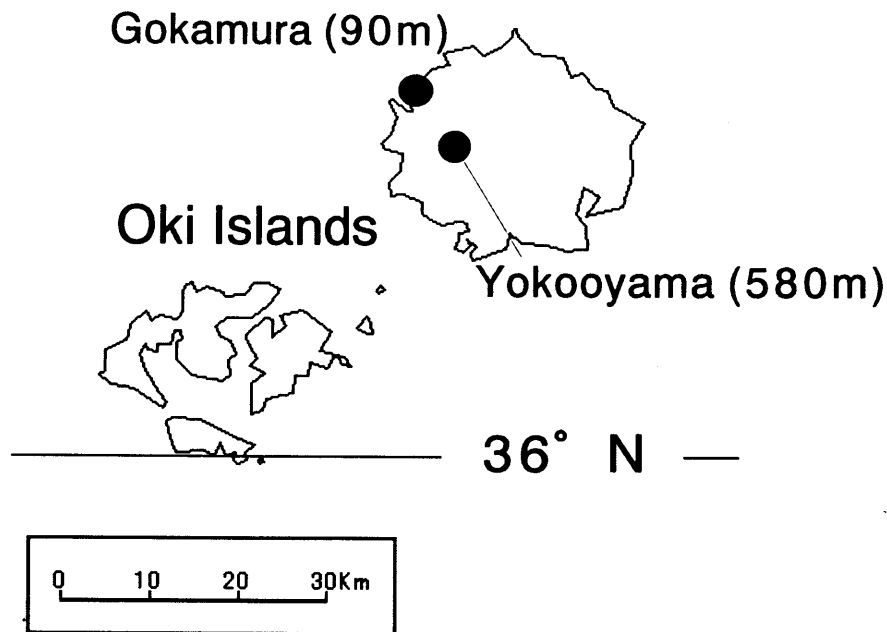


Fig. 2-2 location of two monitoring points in Oki Islands

トンへについては1999年6月から、煙台については1999年8月から測定を開始しており、ラドン濃度測定結果の蓄積が不十分であるため本論文では解析を行っていない。

2-2 大気中ラドン濃度測定系

各地点において、大気中ラドン濃度を静電捕集型ラドン連続測定装置 (ERM) で測定した⁽²⁾。測定装置をFig. 2-3に示す。

ここでERMの測定原理を簡単に説明する。まず、捕集口から約 $1 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ の流量で空気を連続的に採取する。この空気試料は除湿剤とフィルタを通過し、水蒸気とエアロゾルを除去した後、半球容器に入る。ラドンは半球容器内で崩壊し、その直後においてはラドン娘核種 ^{218}Po (RaA) 原子は80%から90%が正に帯電している。ERMでは負に印加した捕集電極上に、 $^{218}\text{Po}^+$ イオンを集め、 ^{218}Po と ^{214}Po (RaC') より放出される α 線をZnS (Ag) シンチレーションカウンタで計数し、その計数值からラドン濃度を求める。 $^{218}\text{Po}^+$ イオンの捕集効率は、湿度に依存するため、流入系に除湿剤として P_2O_5 を用いている。

1時間間隔で連続測定された α 計数は、パーソナルコンピュータ (PC) で式 (2-1) を用いてラドン濃度に変換される。

$$Q = \frac{C(I) - \sum_{i=1}^5 C'(I-i)}{\eta VF(I)} \quad (2-1)$$

ここで、
 Q は、ラドン濃度(Bq m^{-3})、
 $C(I)$ は、インターバル I (s)での α 線計数、
 $C'(I-i)$ は、 i 回前のインターバルで蓄積した娘核種による、インターバル I での期待される α 線計数、
 η は、系の効率、
 V は、捕集容器の容積(m^3)、
 $F(I)$ は、Batemannの式の崩壊定数・計数時間を含んだ項(s)
 である。

ERMにより測定されたラドン濃度の誤差は、効率を0.3、ラドン濃度を通常の大気レベルである 5.0 Bq m^{-3} とした場合、16%程度である。検出下限は、 $0.3 \sim 0.5 \text{ Bq m}^{-3}$ である。

除湿剤の上流に膜法乾燥空気発生装置 (AMH-20型、ヤマト科学株式会社製) を用いることにより、除湿剤である五酸化二リンの交換回数を減らすことも可能である。この方法はソウルで採用されている。この膜法乾燥器からの空気の漏れは確認されなかった。

データの転送については、電子メールに出力ファイルを添付する方法を用いた。将来、測定点がさらに増えることを考えると、オンライン化するのが望ましい。

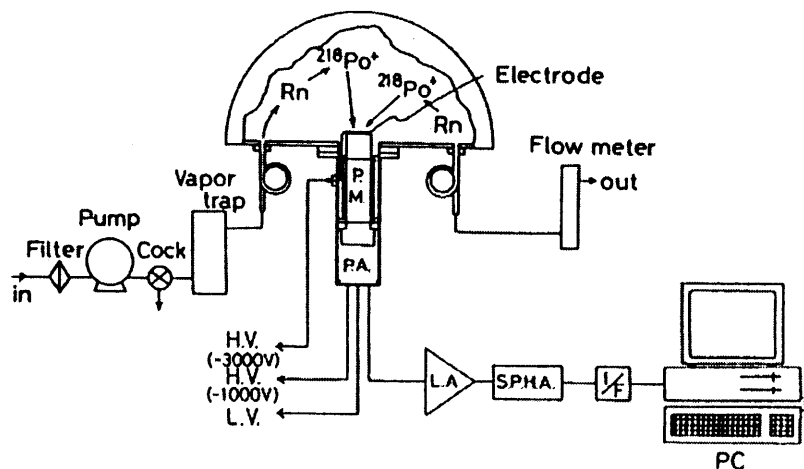


Fig. 2-3 System of the measurement of atmospheric ^{222}Rn concentration.

2-3 測定結果

2-3-1 観測期間

1998年10月以降におけるラドン濃度が測定された期間をFig.2-4に示す。数時間単位の欠測はここでは省略している。

ソウル以外は概ね欠測も少なく長期間連続して測定できた。ソウルについては1998年10月3日から連続測定を開始したものの、ラドン濃度算出プログラムの不具合、ポンプの故障、捕集用高電圧の不具合、等の原因で観測が数度、長期にわたって中断した。

以降、本章では下記の観測期間内に得られた観測値について議論する。

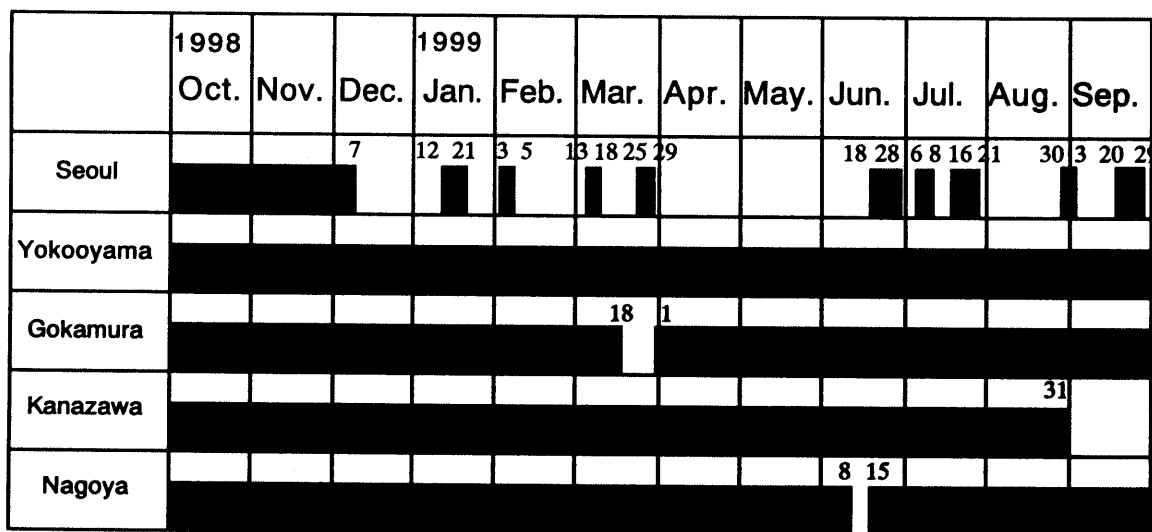


Fig. 2-4 The measuring term of atmospheric Rn concentration.

2-3-2 日平均値

1日の各地のラドン濃度の日平均値をFig. 2-4に示す。明確な周期的変動は見られなかったものの、濃度レベルが日ごとに変動していることが分かる。この変動は、低気圧に伴う前線の移動の影響、降雨の影響、などによるものと考えられる。この考察については3章で後述する。

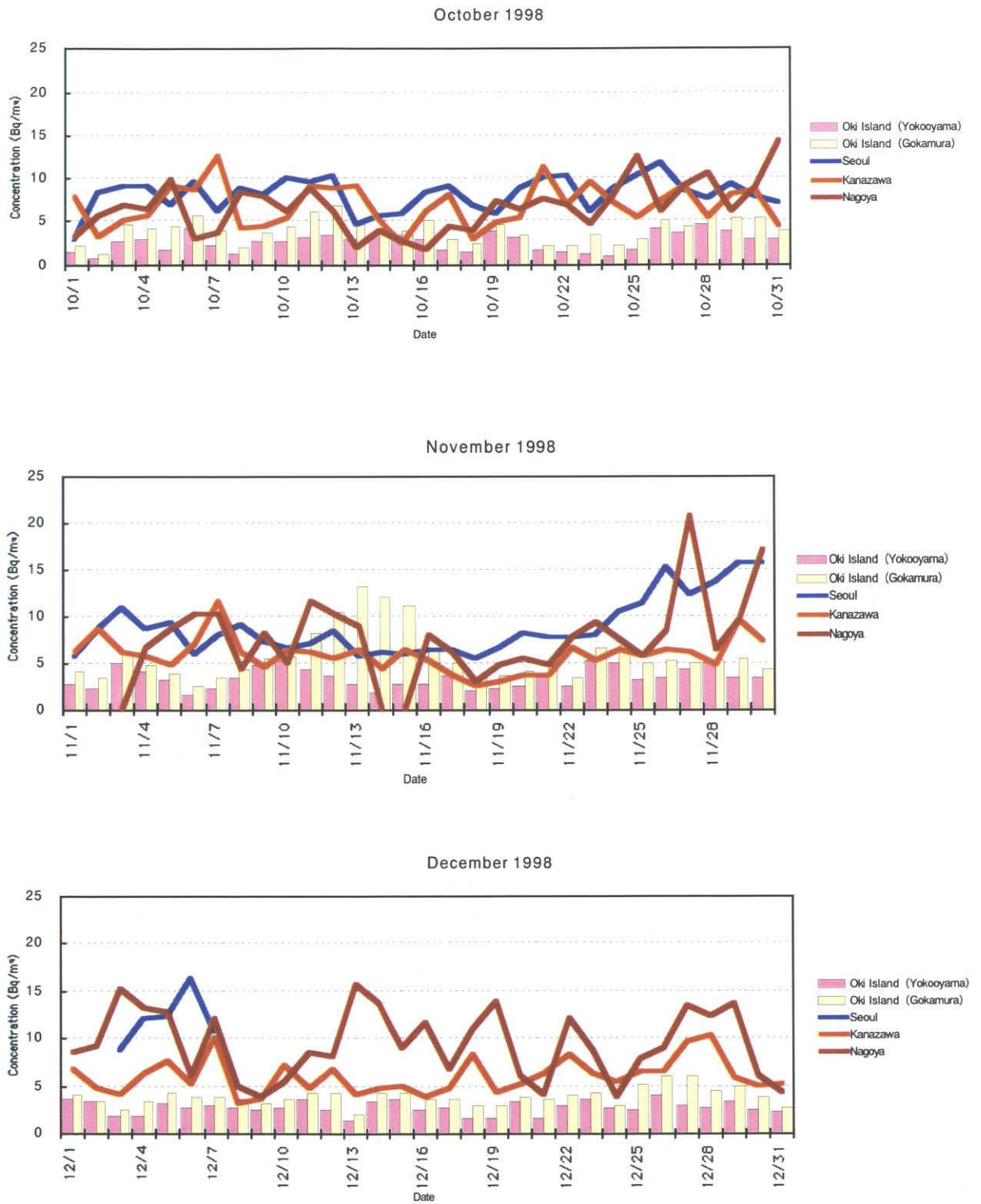


Fig. 2-5-1 Daily variation of radon concentration.

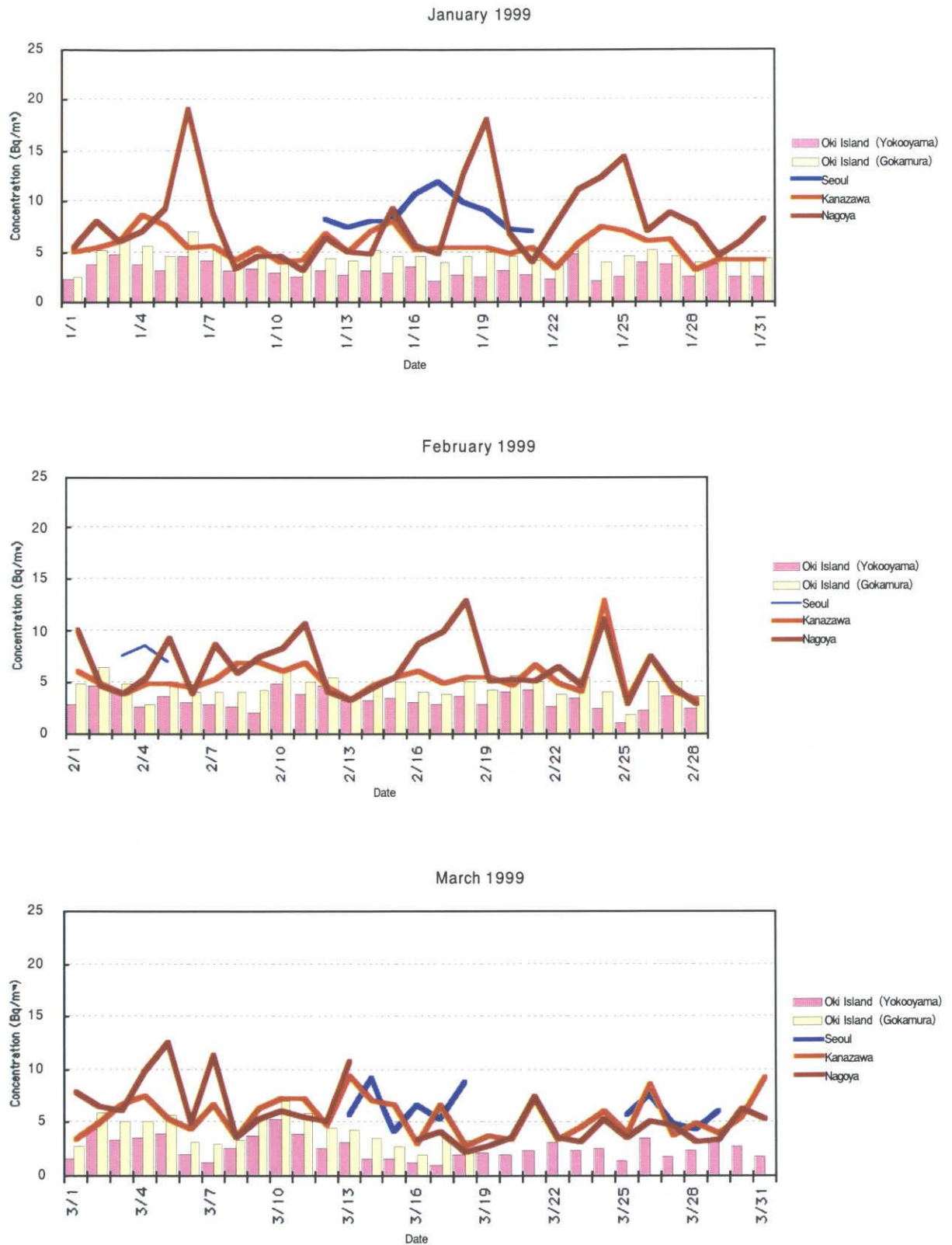


Fig. 2-5-2 Daily variation of radon concentration.

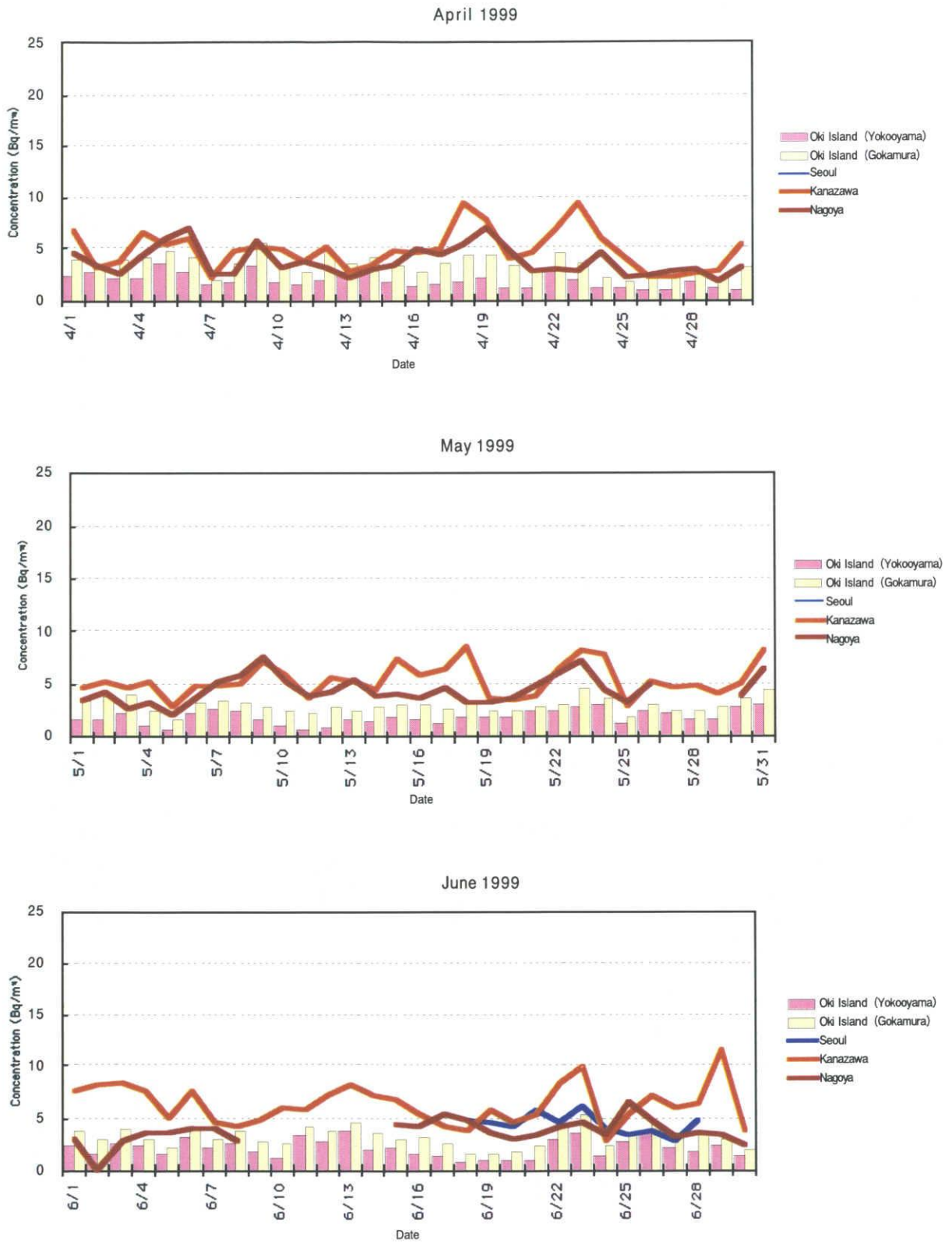


Fig. 2-5-3 Daily variation of radon concentration.

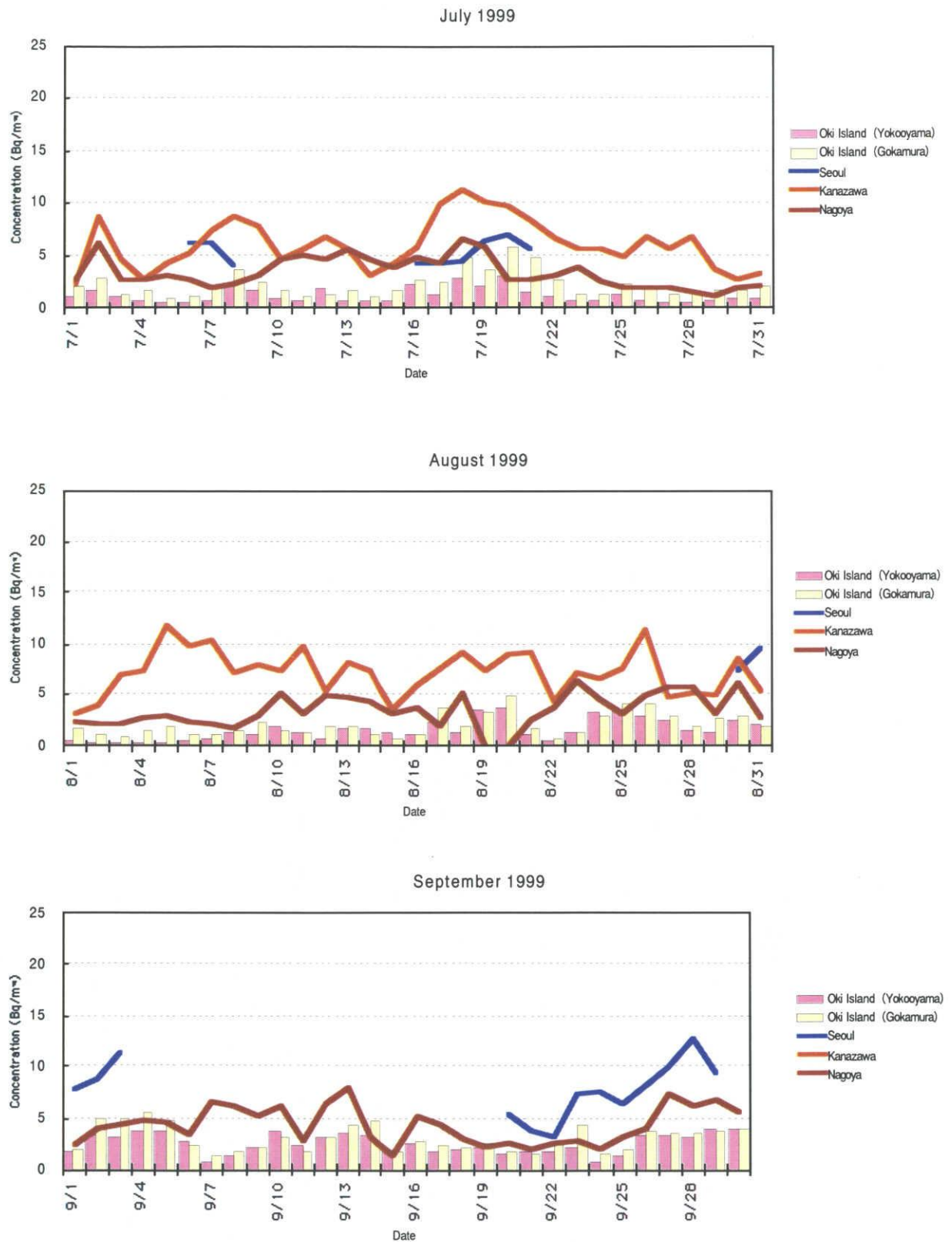


Fig. 2-5-4 Daily variation of radon concentration.

2-3-3 月平均値

各濃度の月別平均値をFig. 2-5に示す。全測定期間のラドン濃度平均値は、ソウルが $8.4 \pm 1.9 \text{ Bq m}^{-3}$ 、横尾山が $2.2 \pm 0.8 \text{ Bq m}^{-3}$ 、五箇村が $3.5 \pm 1.1 \text{ Bq m}^{-3}$ 、金沢が $5.6 \pm 0.7 \text{ Bq m}^{-3}$ 、名古屋が $5.3 \pm 1.9 \text{ Bq m}^{-3}$ であった。ただし98年12月以降のソウルの値は欠測が多いため信頼性は低い。各濃度はこれまでの測定と同じく春期（3～5月）から夏期（6～8月）にかけて低く、秋期（9～11月）から冬期（12～1月）にかけて高くなる季節変動を示した。

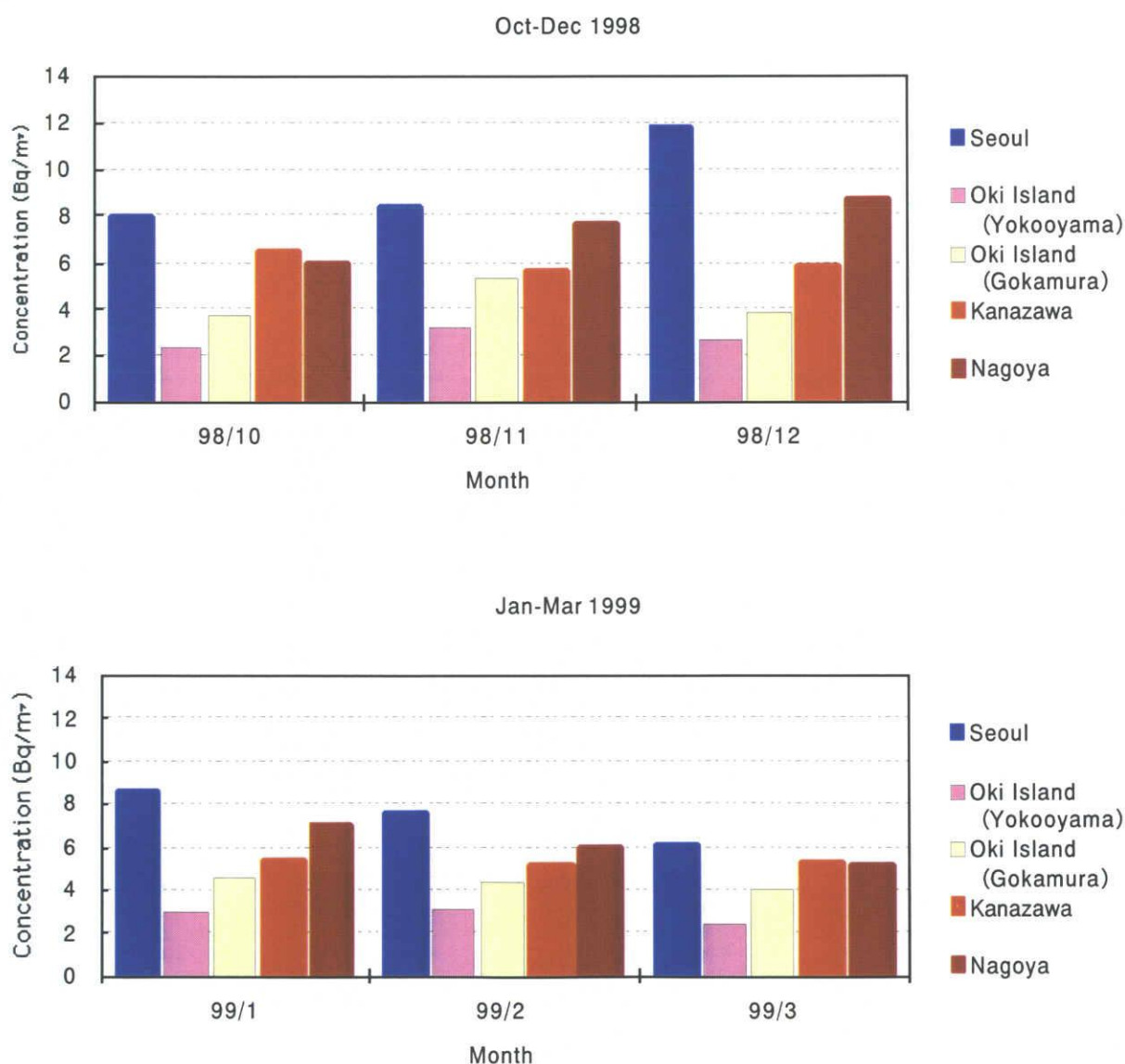


Fig. 2-6-1 Monthly average concentrations of radon.

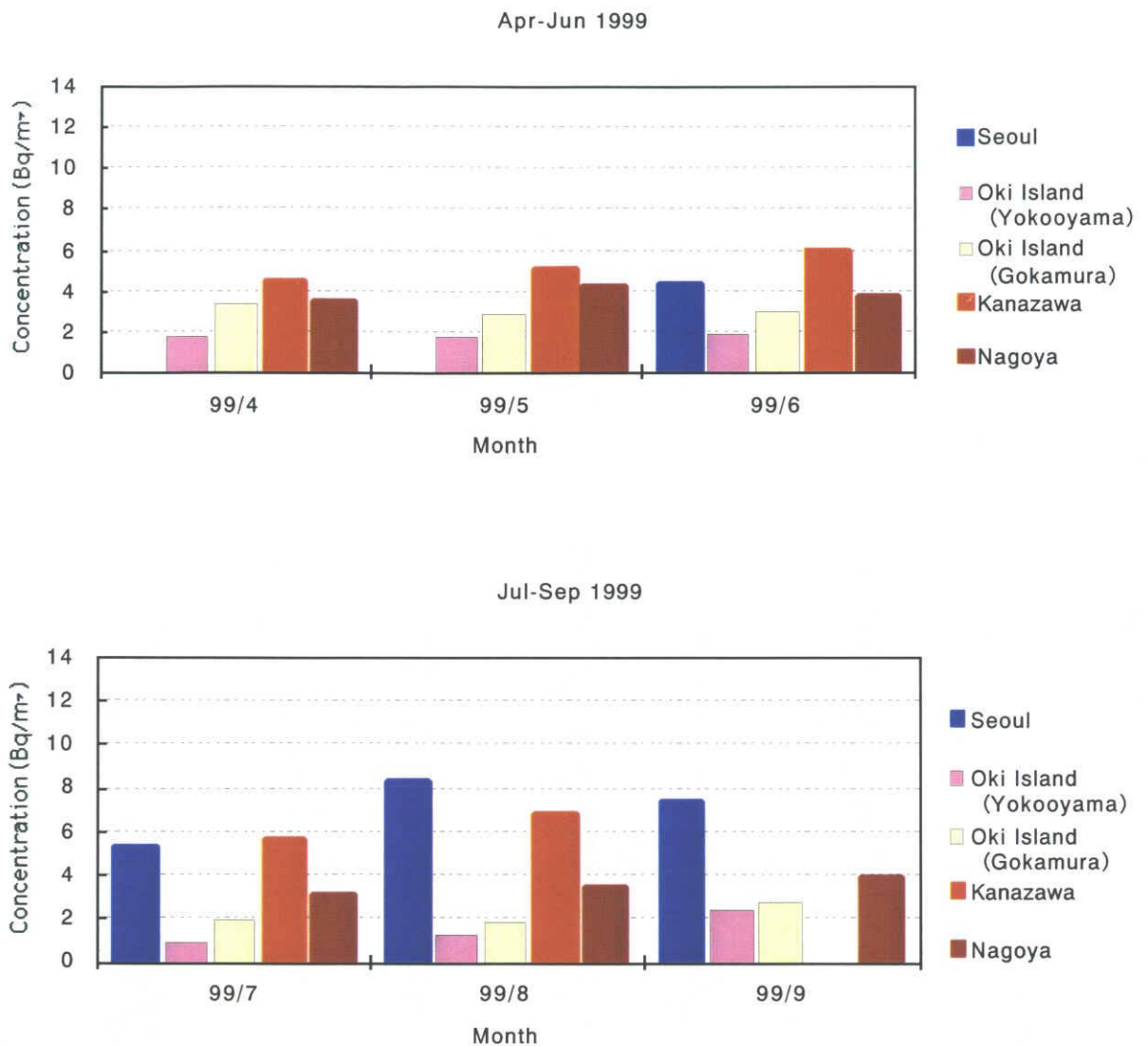


Fig. 2-6-2 Monthly average concentrations of radon.

2-4 季節変動に関する考察

ここでは2-3-2で述べたラドン濃度の季節変動についての考察を行う。数日周期の変動、日変動については3章以降で述べる。

2-4-1 気団の交替

ラドンは陸地から大気中に散逸し、海面からは散逸されない。よって測定地点を

取り囲む気団が大陸性か海洋性かによってラドン濃度のレベルが変化するはずである。その気団の交替を観察するのにもっとも簡単な方法は露点温度の変動を見ることである。

露点は、「水蒸気を含む空気が等圧的に冷却されたときに飽和に達する温度」と定義される⁽³⁾。圧力一定の下では気温が変化しても水の出入りがなければ露点は変わらない⁽⁴⁾。一般に海洋性気団は水蒸気を豊富に含んでいるため露点は高くなる。一方、大陸性気団は相対的に露点は低い。

Fig.2-6に名古屋と五箇村における露点とラドン濃度の月平均値をプロットした図を示す。名古屋と五箇村を選択した理由は、名古屋は狭域起源ラドンと広域起源ラドンが混在するのに対し、周りが海に囲まれた‘小さな島’にある五箇村は狭域起源ラドンの寄与が無視できるほど小さく、広域起源ラドンが支配的であると考えたからである。露点の測定地点は名古屋、五箇村それぞれ名古屋大学から北西1.5kmに位置する名古屋地方気象台、五箇村の南東10kmに位置する西郷地方気象台である⁽⁵⁾。

1998年10月および99年6月頃から8月にかけて露点は高く、98年11月から99年5月にかけて露点は低くなっており、気団の入れ替わりを見ることができる。露点の季節変動は、若干の位相のずれはあるものの、ラドン濃度と逆の相関関係にあるといえる。

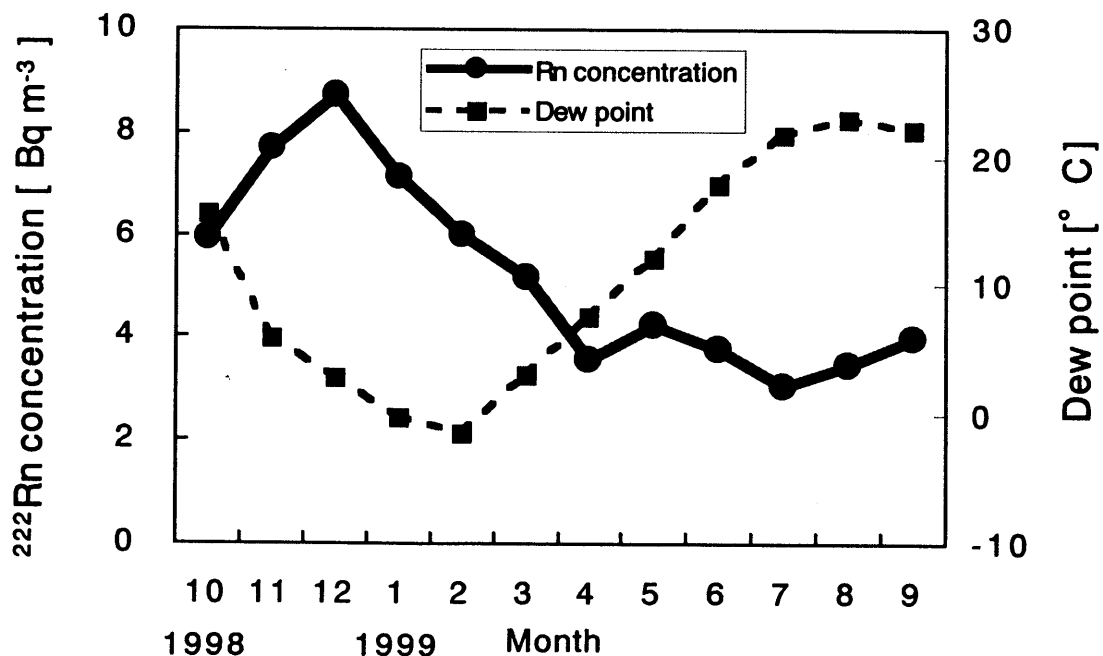


Fig. 2-7-1 Monthly averages of dew point and radon concentration at Nagoya.

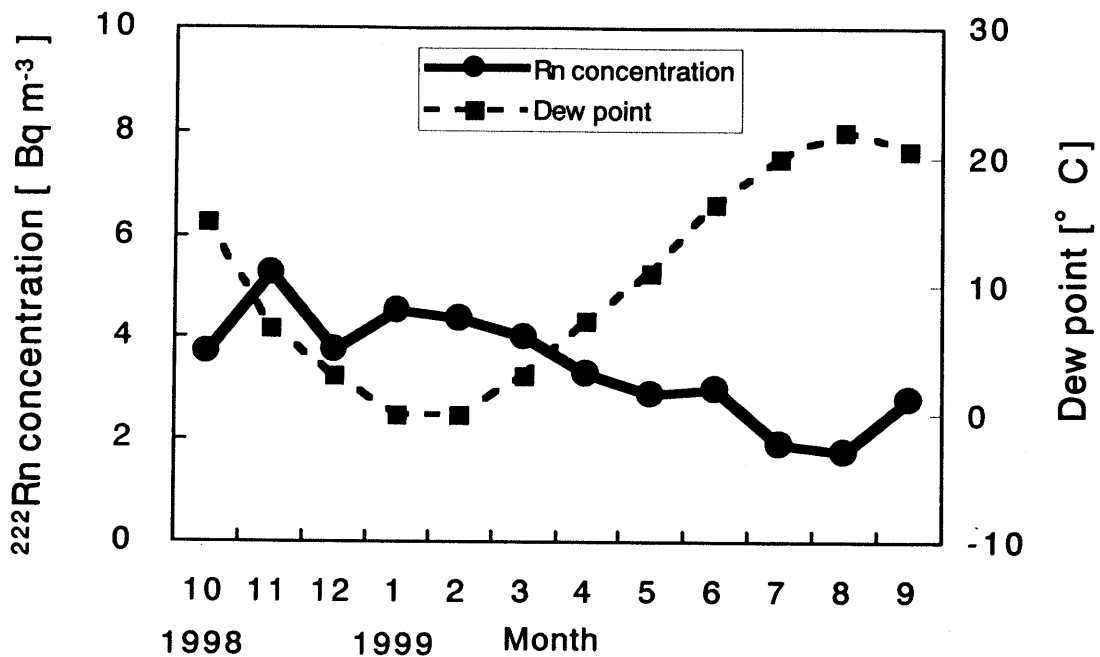


Fig. 2-7-2 Monthly averages of dew point and radon concentration at Gokamura, Oki Islands.

2-4-2 流跡線解析

2-4-2-a 流跡線

ある一様な性質を持って移動する空気を気塊と呼ぶ。この気塊の経路が流跡線である。十分短い時間には風の流の様子が変わらなると仮定して気塊の移動する道筋を描き、これを次々と結ぶことによって流跡線が得られる。流跡線を求める方法はいろいろあるが、等圧面解析と等温位面解析が有名である。以下に概要を述べる。

(a) 等圧面解析⁽⁶⁾

高層天気図は、等圧面上に描かれており、地表、850hPa,700hPa,500hPaの4種類がある。この高層天気図から風速、風向を読みとる方法で、手作業であるため労力と時間を要する。

(b) 等温位面解析

ある温位 Θ をもつ気塊は断熱変化をしている限り、温位 Θ である等温位面上を風とともに動くが、この面を離れることはない⁽⁷⁾。この点で等温位面解析は気塊の動きを追跡するのに適している。気象データを用いて計算機

で計算することになるが、天気図の読みとり作業をしない分、少労力、短時間で済むという利点もある。

本研究では任意の地点における風向風速により、数時間前に気塊があったであろう位置まで遡る方法⁽⁴⁾を用いた。前の気塊の位置を求めるのに地衡風近似⁽⁸⁾⁽⁹⁾を用いた。

流跡線作画で問題となるのは風向風速といった気象データの用意である。小島は高層気象天気図から風向風速を読みとり流跡線を手書きで描いた⁽⁶⁾。そのため、作業に非常に手間がかかった。鈴木はこの作業を簡単にするため、日本原子力研究所の緊急環境線量情報予測システム (SPEEDI) ⁽¹⁰⁾に組み込まれているLSWINDで計算された風速場データを用いて、大型計算機により自動作画を行った⁽¹¹⁾。しかし、風速場データを作成するには時間がかかる欠点がある。本研究の解析をする期間 (1998年10月~1999年8月) については名古屋大学大気水圏科学研究所の永尾による流跡線作成プログラムを用いた⁽¹²⁾。この流跡線は高度位置も計算している点で非常に優れている。この流跡線作画はGPV (Grid Point Value) データを利用し、等温位で作画する。GPVは気象庁の総観規模的予報モデルの出力であり、94年から天気予報の自由化に従い公開された⁽¹³⁾。GPVは気圧座標系の三次元分布で出力される。このGPVには予報値と客観解析値がある。予報値は、大気の運動を支配する物理法則を取り入れた数値予報モデルの出力であり、客観解析値はこの予報モデルの初期値として使用される。客観解析値は、実際に測定された観測値をGPVの格子点に内挿することによって得られるべきである。しかし観測点は離散的であり、単に内挿を試みただけでは気象学的に意味のある空間分布を得ることはできない。この為、現在の予報モデルでは一つ前の客観解析値から得られた予報値を第一推定値として使用し、この推定値と観測値をブレンドして客観解析値は求められる。GPVの格子点の近くに観測値が近くになれば、第一推定値がそのまま客観解析値となる。このような方法を解析予報サイクルと呼ぶ。観測は世界標準時で0時と12時 (日本時間で午前9時と午後9時) に行われる。よって流跡線は一日に午前9時と午後9時の2回、12時間間隔で作画できる。一般に気圧高度で850hPa以下で作画した流跡線は信頼性が低いため、気圧高度850hPaを開始高度とした。

2-4-2-b 流跡線解析

流跡線は、1日に2本引くことが可能であるが、本研究では開始時刻午前9時の流跡線をその日の流跡線とした。流跡線の例をFig. 2-8に示す。

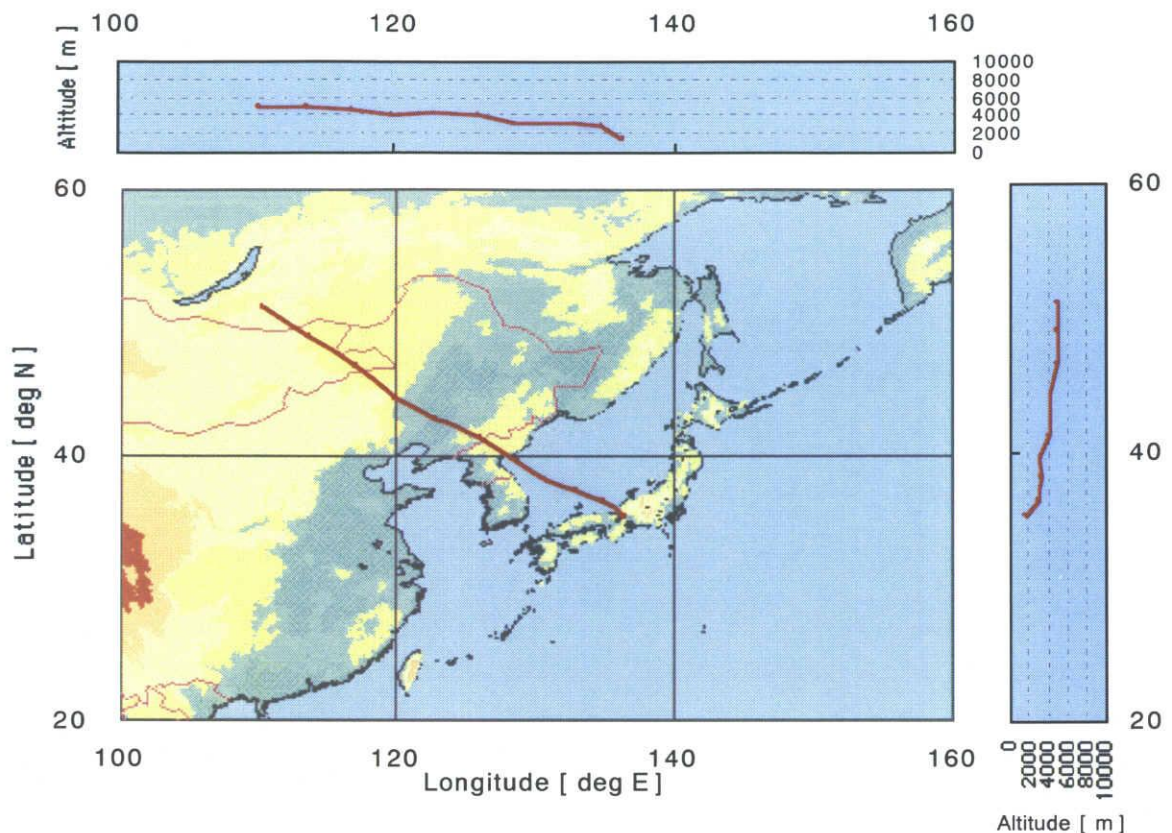


Fig. 2-8 An example of isentropic backward trajectory.

本研究では大気中ラドンの広域成分に着目しているため、ラドンの半減期3.82日を考慮して2半減期分の1週間遡ることとした。流跡線から得られる情報として気塊の由来する方角、移動時間、高度の3つが挙げられる。ただし大陸の地表高度データがなく気塊の高度に関して検討できなかったため、気塊の方角に関してのみ検討した。ここでは名古屋に至る気塊について考察する。

ラドンの発生源は主に地表面であるため、濃度は気塊の経路上の地理的条件に影響される。そこで、まず流跡線を方角別に分類した。方角をFig. 2-9のように四つの領域に分け、各月ごとに気塊の経路の割合を評価した。また、四方向以外の分類として、停滞・台風・大きく曲がり複数の領域をまたがっているその他の三種類を追加した。各分類に含まれる流跡線数の割合を名古屋、隠岐のそれぞれについて月毎にFig. 2-10に示す。気塊は秋期から春期にはDirection 2の大陸性が、7月以降はDirection 4の海洋性が支配的なことが分かる。このように、流跡線の方角でFig. 2-6に示した季節変動が説明できる。

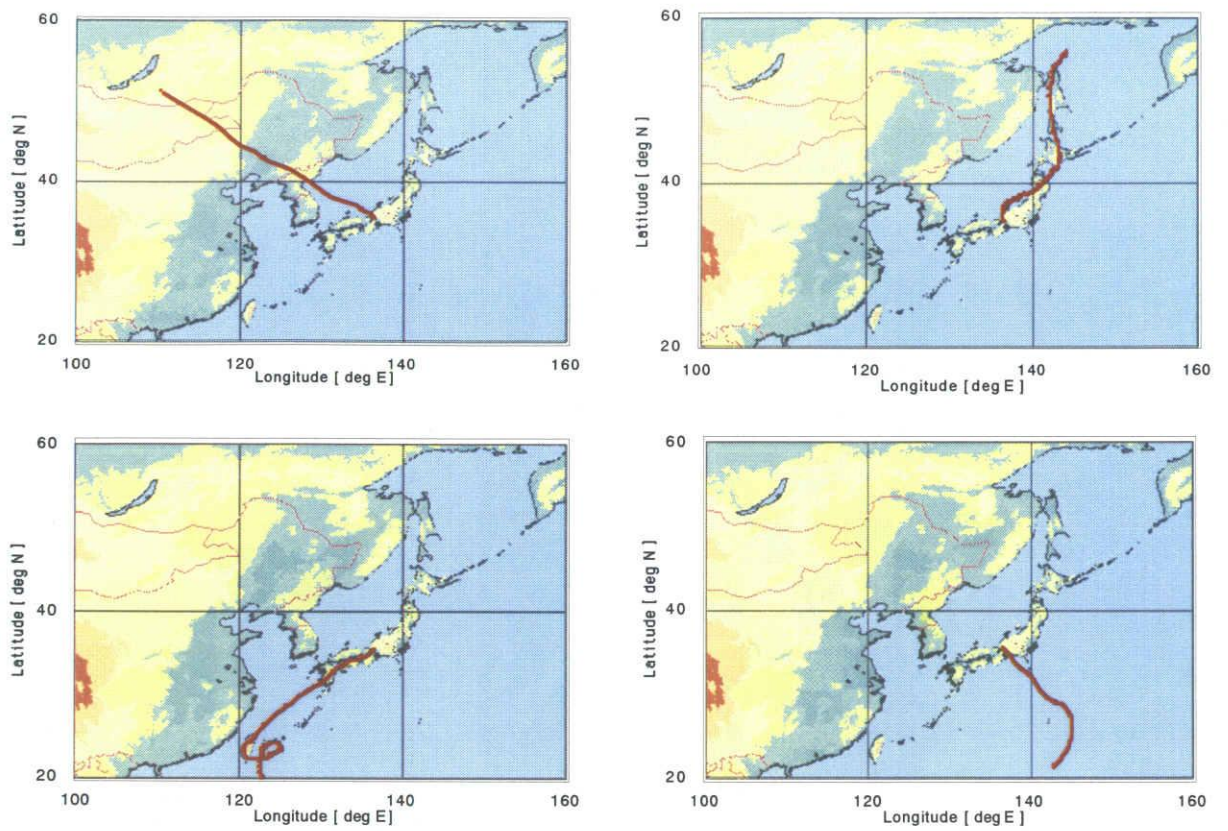


Fig. 2-9 Typical trajectories from each direction. Upper right is "Direction 1", upper left is "Direction 2", lower left is "Direction 3", lower right is "Direction 4".

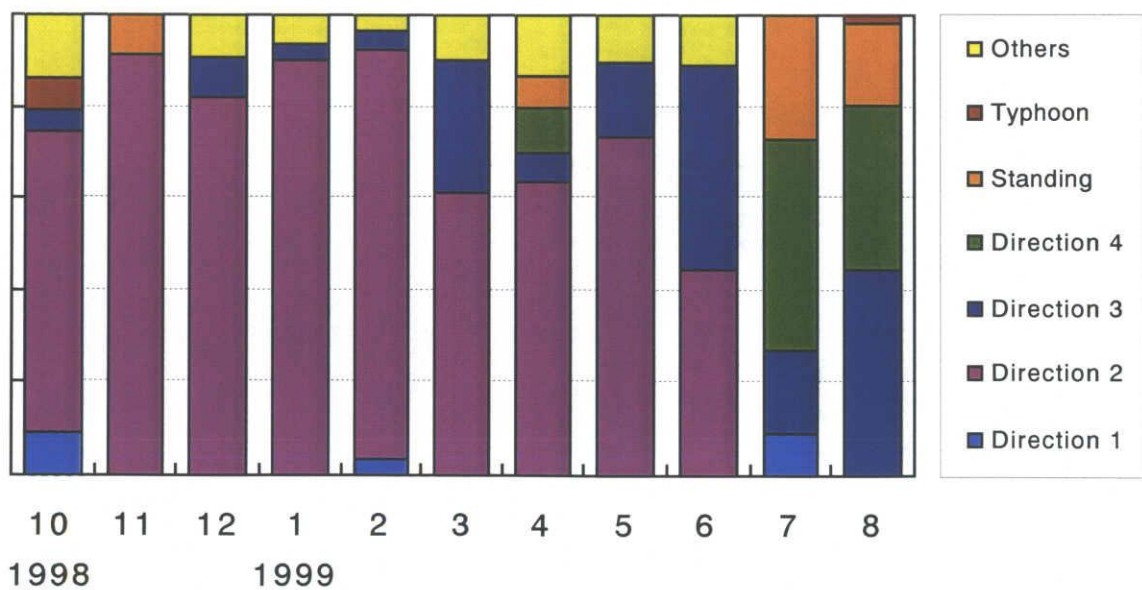


Fig. 2-10-1 Ratio of directions of the trajectories to Nagoya.

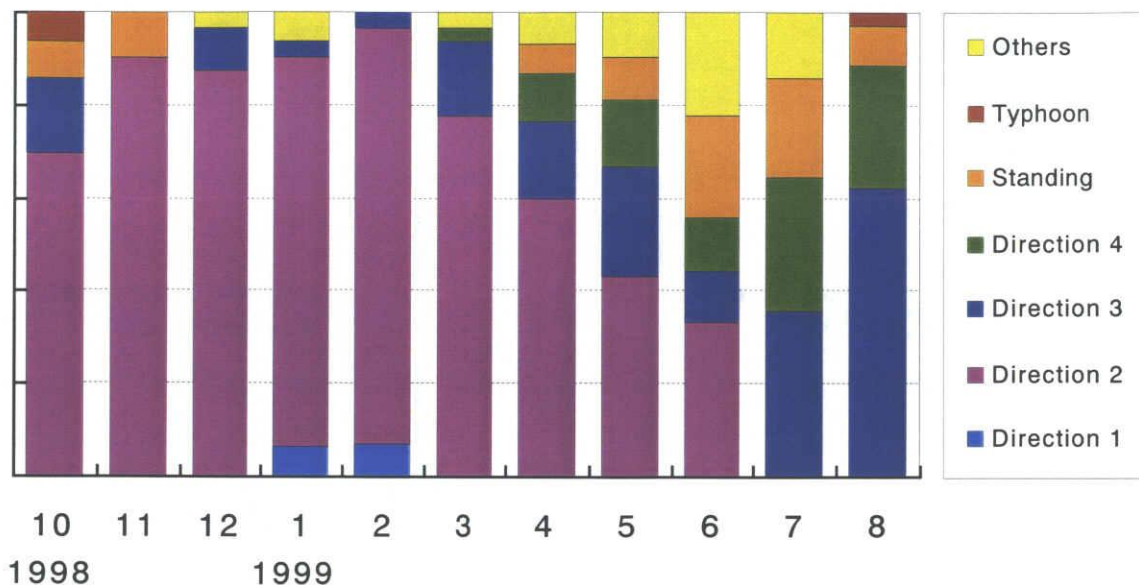


Fig. 2-10-2 Ratio of directions of the trajectories to Gokamura, Oki Islands.

2-4-3 降水量とラドン濃度の関係

ラドンは地表面から散逸するため、降雨があると土壌の含水率が上がり、土壌間隙中の空隙が減少し、ラドンの拡散係数が小さくなり、散逸率の低下が起こる⁽¹⁴⁾。その結果、降雨の後はラドン濃度の減少が起こる。よってラドン濃度は1ヶ月単位に平均すると降水量に関係すると考えられる。Fig. 2-11に名古屋と五箇村における月間降水量とラドン濃度の月平均値を示す。名古屋と五箇村を選択した理由は、名古屋は狭域起源ラドンと広域起源ラドンをが混在するのに対し、周りが海に囲まれた‘小さな島’である五箇村は狭域起源ラドンの寄与が無視できるほど小さく、広域起源ラドンが支配的であると考えたからである。

名古屋においては、6月から7月にかけての梅雨期は降水量も多く、それに対応してラドン濃度も低い値をとった。これは降雨により測定点近傍で散逸率の低下が起こり、狭域起源ラドン濃度が低下したことが一因と考えられる。

五箇村においては降水量とラドン濃度の対応関係は見られなかった。1999年8月においては、降水量が少ないにもかかわらずラドン濃度は低い。これは降水量の影響（測定点近傍に及ぼす影響）が小さく、五箇村は広域起源ラドンが支配的であるということを示唆している。

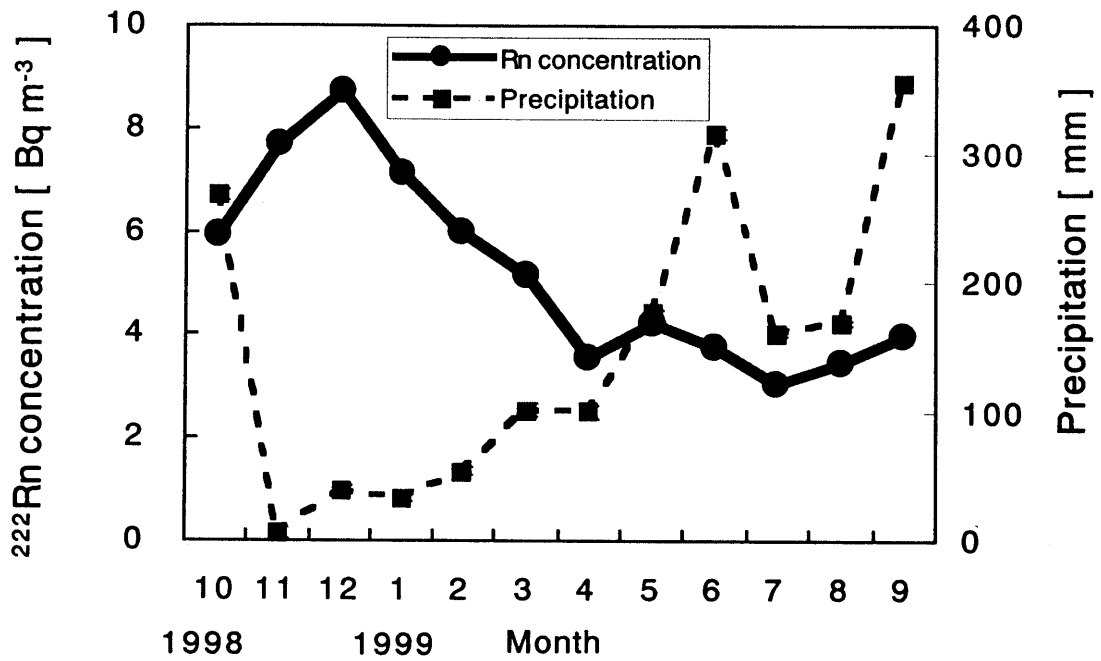


Fig. 2-11-1 Monthly precipitation and monthly average of radon concentration at Nagoya.

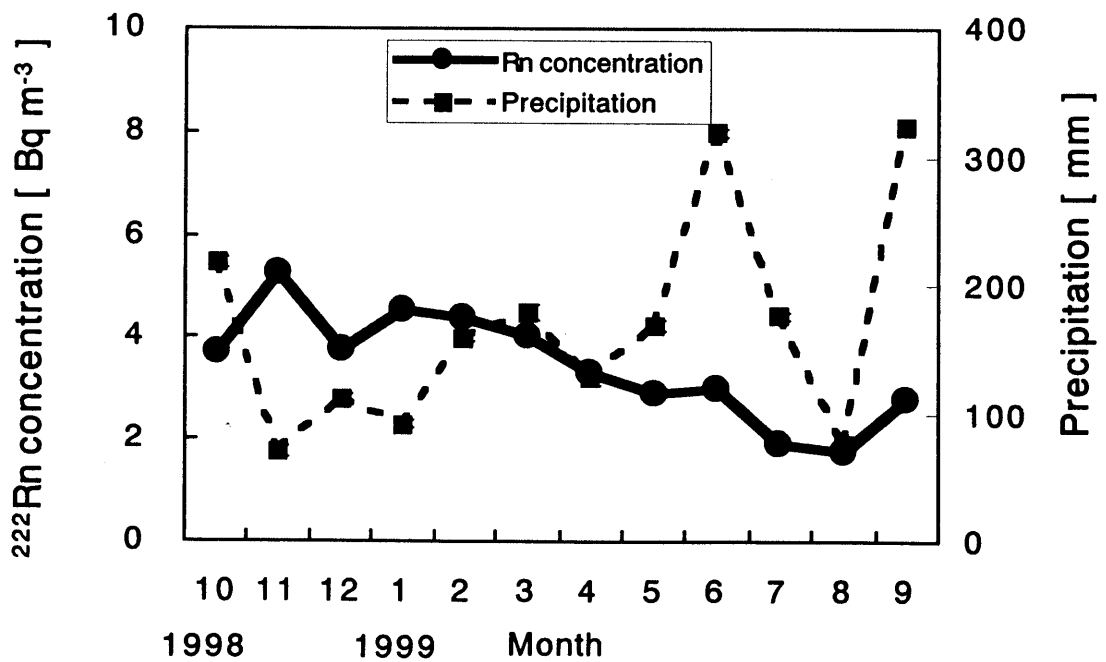


Fig. 2-11-2 Monthly precipitation and monthly average of radon concentration at Gokamura.

2-4-4 季節変動に関するまとめ

名古屋のラドン濃度は春から夏にかけて低く、秋から冬にかけて高い傾向にあった。気団の由来について露点温度、流跡線を用いて解析し、月平均ラドン濃度との関係を調べた結果、海洋性気団が支配的な時はラドン濃度が低く、大陸性気団が支配的な時はラドン濃度が高くなっている。名古屋は狭域起源ラドンと広域起源ラドンが混在するが、この現象はそのうちの広域起源ラドンの変動に寄与している。月別の降雨量とラドン濃度との関係を調べた結果、降雨量が多い月はラドン濃度が低い結果になっている。この現象は測定点近傍の散逸率の減少によるもので、狭域起源ラドンの変動に寄与している。

五箇村の月平均ラドン濃度も、変動の幅は小さいが春から夏にかけて低く、秋から冬にかけて高い傾向にあった。気団の由来について露点温度を用いて解析し、ラドン濃度との関係を調べた結果、海洋性気団が支配的な時はラドン濃度が低く、大陸性気団が支配的な時はラドン濃度が高くなっている。月別の降雨量とラドン濃度との関係を調べた結果、降水量とラドン濃度の対応関係は見られず、測定点近傍の影響がほとんどなかった。よって五箇村は広域成分が支配的であると言える。隠岐諸島の島後が半径10kmの小さな島であるという地域的特性からと考えられる。

参考文献

- (1) 坂下哲哉：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻学位論文、1997
- (2) Iida, T., Ikebe, Y. and Tojo, K. : An Electrostatics Radon Monitor for Measurements of Environmental Radon, Res. Lett. Atmos. Electr., vol. 11, pp. 55-59 1991.
- (3) 浅井富雄、武田喬男、木村竜治著 岸保勘三郎、浅井富雄編：大気科学講座 2 雲や降水を伴う大気、東京大学出版会 1981
- (4) 気象学ハンドブック編集委員会編：気象学ハンドブック、技報堂、1959
- (5) 気象庁：気象庁月報、1998～1999
- (6) 小島秀蔵：名古屋大学工学部原子核工学科卒業論文、1982
- (7) 小倉義光：一般気象学、東京大学出版会、1984
- (8) Pettersen: Weather Analysis and Forecasting, vol. 11, 1956.
- (9) Pickering et al. Monthly Weather Review, Vol.122, pp 864-879, 1994
- (10) Imai, K. et al. : SPEEDI, JAERI, 1297, 1985
- (11) 鈴木昭彦：名古屋大学工学部原子核工学科卒業論文、1993
- (12) 田中浩、永尾一平、松本潔：小笠原諸島母島における硫化ジメチル (DMS)、オゾン、及び雲の凝結核 (CCN) の季節変化、海洋生物圏起源の硫黄化合物

を前駆物質とする大気エアロゾル及び雲の形成過程の研究（平成7年度科学研究費補助金研究成果報告書）、pp. 1-40, 1996

(13) 安齋雅雄：新・天気予報の手引き、日本気象協会、1996

(14) 小嵐淳：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1999

第3章 気象要素との相関関係

3-1 時系列解析の方法

この節では、次節で用いる時系列解析の考え方と方法について説明する。例として金沢における1998年10月3日から17日までの15日間のデータを用いて解説を進める。

3-1-1 トレンド

トレンドとは時系列のおおよその傾向を表す。実際に観測される時系列はトレンドに様々な変動が加わったものと考えられる。ラドン濃度の観測値には避けがたい変動が含まれている。さらにERMの値にはその時刻より以前の捕集期間の誤差が含まれているため正確な誤差を見積もることは難しい。そこでラドンの濃度変動の傾向をつかみつつ、誤差を見積もるためにトレンドモデル⁽¹⁾を導入した。

トレンドモデルは時系列 Y_n がトレンド成分（真の値）と観測系の成分（変動と誤差）とから構成されていると仮定している。トレンドモデルにより Y_n は以下の式(3.1)で表される。

$$\left. \begin{array}{l} \Delta^k t_n = v_n \\ Y_n = t_n + w_n \end{array} \right\} \quad (3.1)$$

ここで t_n はタイムステップ n でのトレンド、 Δ^k は k 次の差分、 v_n は標準偏差が τ で平均が0の白色雑音である。 w_n は標準偏差が σ で平均が0の白色雑音で、観測系のエラーを表している。ここでは $k=2$ とした。このとき $t_n = 2t_{n-1} - t_{n-2} + v_n$ である。これはトレンド成分が局所的には直線的に変化することを表している。

σ を最尤法⁽²⁾で求め、カルマンフィルタと平滑化アルゴリズムによってトレンドを計算した。Fig.3-1にラドン濃度にトレンドモデルを適用した例を示す。ほとんどの観測値が $\pm 3\sigma$ の範囲内にあることが分かる。観測値がばらついている期間の相関関数やスペクトルを調べる場合にこのトレンドモデルを用いた。

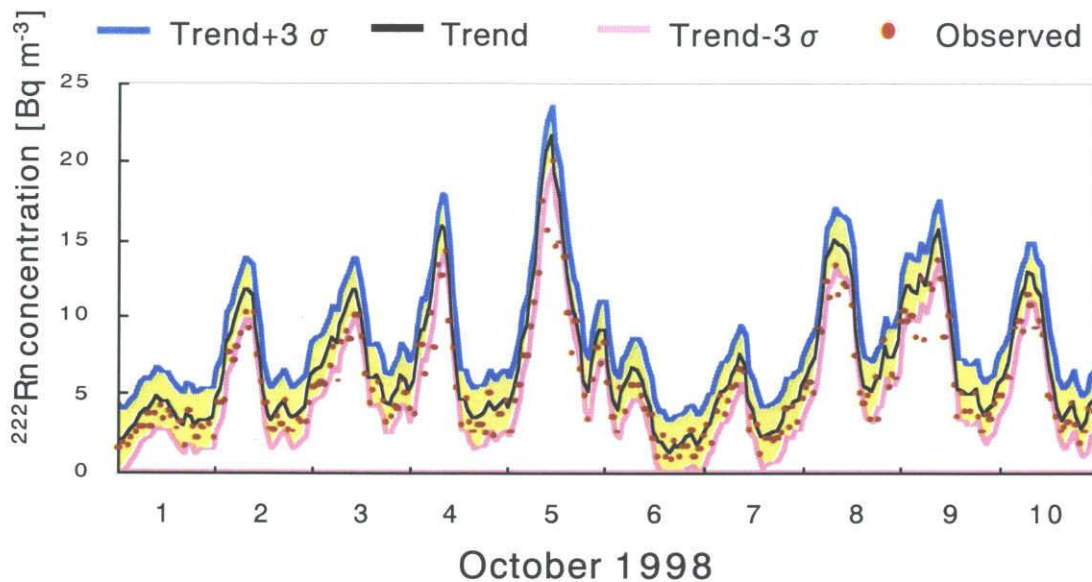


Fig. 3-1 Trend and errors of radon concentrations by an analysis of trend model.

3-1-2 同時分布

ランダムな現象の特徴を捉える手段として平均や分散がよく用いられる。そして二つ以上の値を比較する際、相関係数を調べるために散布図がよく用いられる。Fig.3-2にラドン濃度の値 Q_n を横軸に、同じ時刻の気温 T_n を縦軸にプロットした散布図を示す。

これまでの考察では、この散布図からラドン濃度と気温とは負の相関関係にあると説明されてきた。しかし、これはある同時刻の両者の値をプロットしたにすぎず、時系列としてのデータの特徴を説明するには不十分である。

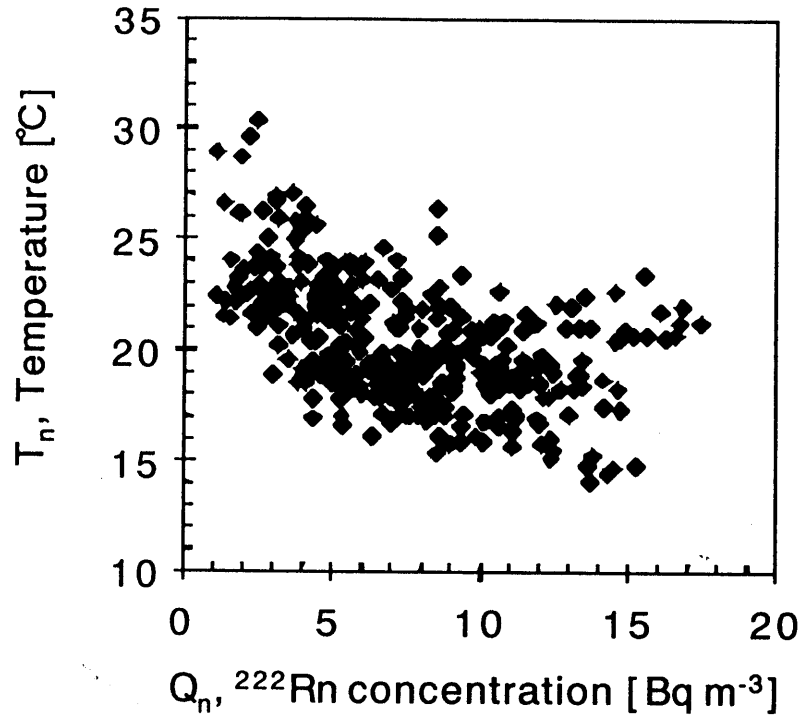


Fig. 3-2 Scatter plots between radon concentration and temperature.

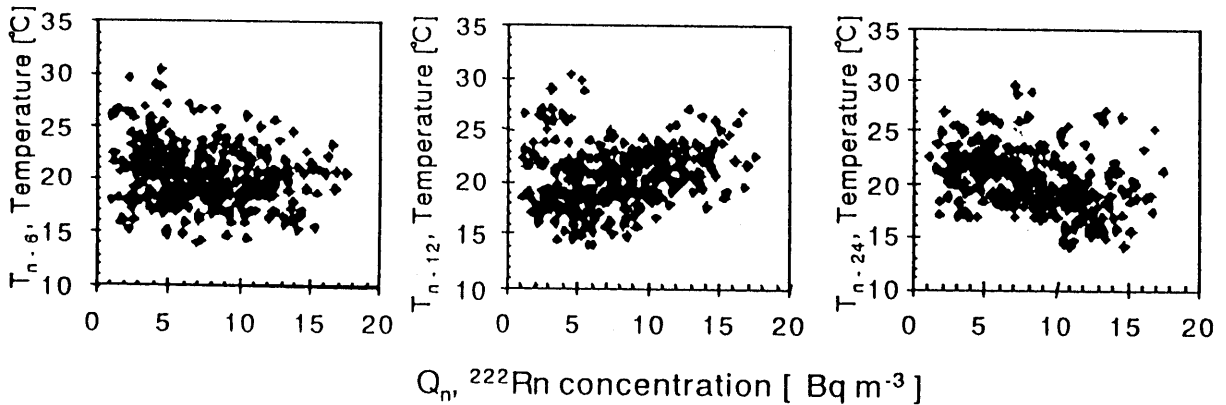


Fig. 3-3 Joint distributions between radon concentration and temperature. Left is Q_n - T_{n-6} , center is Q_n - T_{n-12} , right is Q_n - T_{n-24} .

次にラドン濃度 Q_n と6・12・24時間と時刻をずらしたラドン濃度 Q_{n-6} ・ Q_{n-12} ・ Q_{n-24} との同時分布図をFig. 3-4に示す。この場合、Fig.3-3で見られたようなはっきりとした相関関係を見ることはできない。Fig. 3-1から分かるように、これはラドン濃度が日変動をしていない日が何日かあるためである。

Fig. 3-3やFig. 3-4に見られる関連の違いは、 Q_n と Q_{n-k} の共分散や相関係数を用いて簡潔により表現できる。3-1-3で自己相関関数を、3-1-4で相互相関関数を導入する。

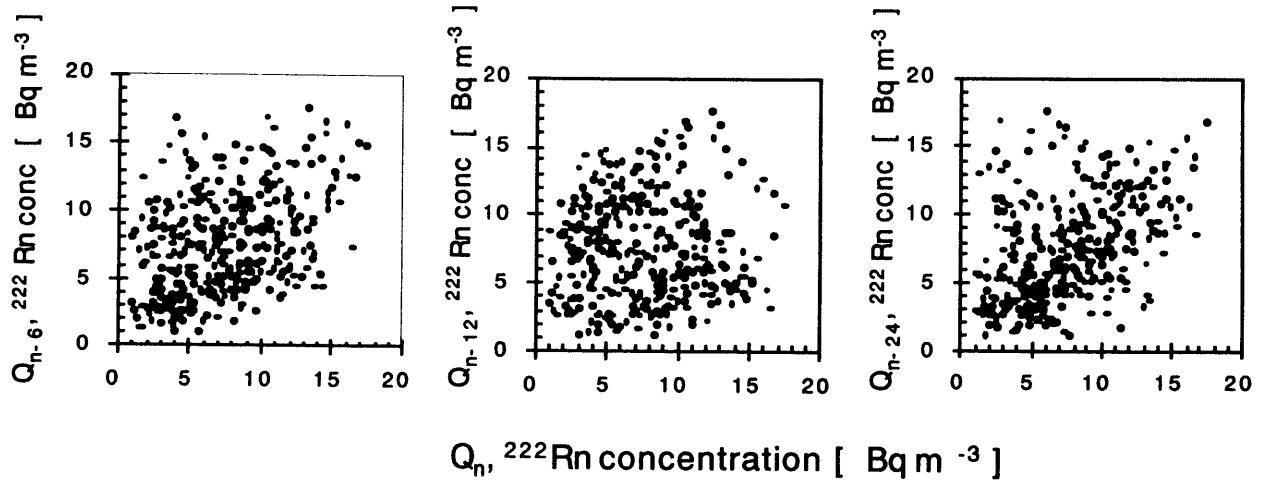


Fig. 3-4 Joint distributions of radon concentration. Left is Q_n-Q_{n-6} , center is Q_n-Q_{n-12} , right is Q_n-Q_{n-24} .

3-1-3 自己相関関数

自己相関関数⁽¹⁾は式 (3.2) で表される。

$$\left. \begin{aligned} \hat{R}_k &= \frac{\hat{C}_k}{\hat{C}_0} \\ \hat{C}_k &= \frac{1}{N} \sum_{n=k+1}^N (y_n - \hat{\mu})(y_{n-k} - \hat{\mu}) \\ \hat{\mu} &= \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N y_n \end{aligned} \right\} \quad (3.2)$$

ここで、 \hat{R}_k は標本自己相関関数、 \hat{C}_k は標本自己共分散関数、 $\hat{\mu}$ は標本平均、 k はタイムラグである。自己相関関数の性質として、

- (1) 偶関数、
- (2) $k=0$ で最大値を取る
- (3) 不規則現象では k が大きくなるほど相関が悪くなるなどがある。

先ほどのラドン濃度 Q_n と気温 T_n の自己相関関数をFig. 3-5に示す。縦軸は相関関数の値、横軸はタイムラグ k である。ここで自己相関関数のグラフの見方を説明する。Fig. 3-5の左側のグラフに着目する。これは、ある時刻 T から始まるラドン濃度の時系列データと、時刻 $T-k$ (k :タイムラグ) から始まるラドン濃度の時系列データの相関係数を、タイムラグの関数としてプロットしたものである。具体的には時刻 T と、それより24時間前の時刻 $T-24$ の相関係数は約0.5であったということFig. 3-5の左側のグラフは示唆している。

気温のグラフでは24時間ごとにピークが見られる。これは気温が24時間周期で変動していることを表す。一方、ラドンのグラフでも24時間周期が見られる。しかし $k=48$ から 96 にかけて全体的な相関係数が小さくなり $k=120$ に再び高くなる、などの違いが見られる。このことからラドン濃度の変動は日変動要因のほかに他の要因が加わって起きている、と予想される。

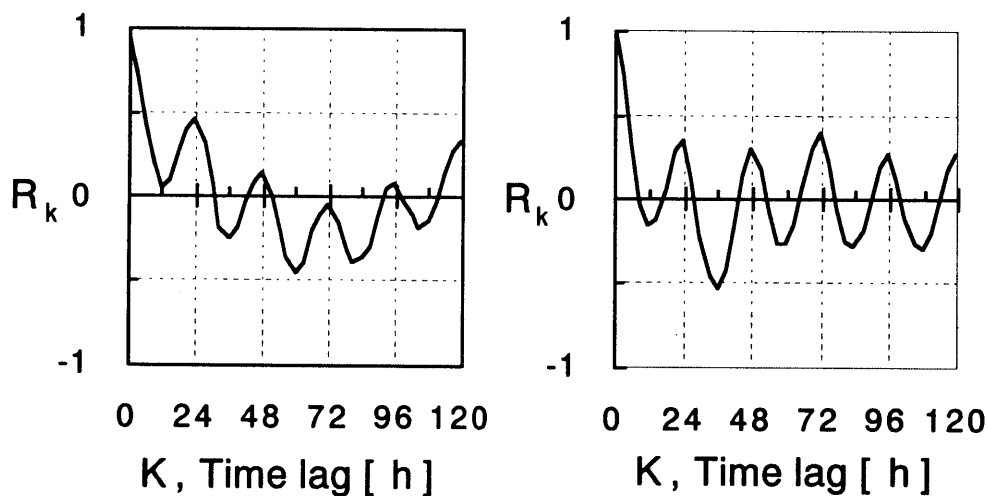


Fig. 3-5 Autocorrelation functions. Left is radon concentration, right is temperature.

3-1-4 相互相関関数

相互相関関数⁽¹⁾は式 (3.3) で表される。ただし、 $R_k(i,j)$ は時系列 $y_n(i)$ と $y_{n-k}(j)$ の相関関数である。

$$R_k = \left. \begin{array}{l} \left[\begin{array}{ccc} R_k(1,1) & \cdots & R_k(1,l) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ R_k(l,1) & \cdots & R_k(l,l) \end{array} \right] \\ R_k(i,j) = \frac{C_k(i,j)}{\sqrt{C_0(i,i) \cdot C_0(j,j)}} \end{array} \right\} \quad (3.3)$$

ここで相互共分散関数 $\hat{C}_k(i,j)$ と平均 $\hat{\mu}_i$ は式 (3.4) で表される。

$$\left. \begin{array}{l} \hat{C}_k(i,j) = \frac{1}{N} \sum_{n=k+1}^N (y_n(i) - \hat{\mu}_i) (y_{n-k}(j) - \hat{\mu}_j) \\ \hat{\mu}_i = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N y_n(i) \end{array} \right\} \quad (3.4)$$

相互相関関数の性質として、

- (1) $R_{ij}(k) = R_{ji}(-k)$
- (2) $k=0$ に関して対称性はない
- (3) $|R_k| \leq 1$

などがある。

先のラドン濃度 Q_n と気温 T_n の相互相関関数を Fig. 3-6 に示す。縦軸は相関関数の値、横軸はタイムラグ k である。行列の対角位置にあるグラフは自己相関関数である。このグラフの考察は3-1-3節で述べたとおりである。ここで相互相関関数のグラフの見方を説明する。ここでは Fig. 3-6 の行列の (1,2) 成分の位置にあるグラフに着目する。これはラドン濃度に対する気温の相互相関関数である。これは、ある時刻 T から始まるラドン濃度の時系列データと、時刻 $T-k$ (k : タイムラグ) から始まる気温の時系列データの相関係数を、タイムラグの関数としてプロットしたものである。具体的には時刻 T のラドン濃度と、それより24時間前の時刻 $T-24$ の気温の相関係数は約-0.4であったということを示唆している。

このグラフからラドン濃度と気温との逆相関関係をより明確に説明できる。

相関関数では、まず自己相関関数を比較し、それから相互相関関数を調べるとよい。その際注目すべき点として、関数のグラフが似ていないか、日周期がみられるか、長周期があるか、逆相関になっていないか、周期にずれはないかなどが挙げられる。

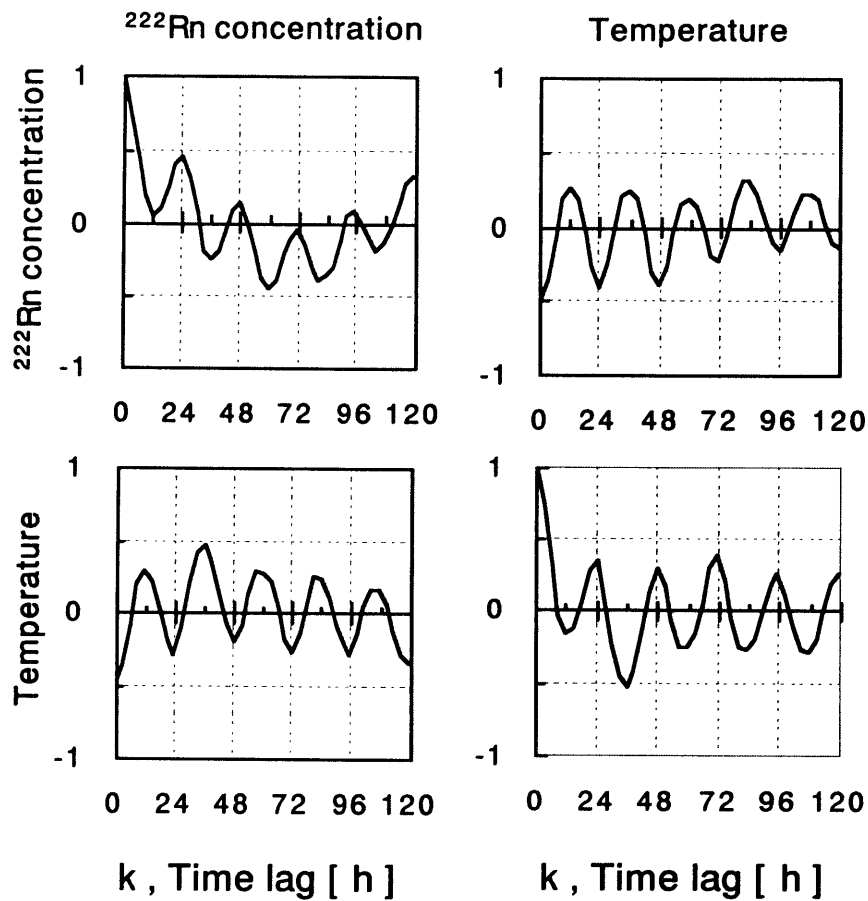


Fig. 3-6 Cross-correlation functions. Upper left is autocorrelation function of radon concentration, upper right is cross-correlation function of radon and temperature, lower left is cross-correlation function of temperature and radon, lower right is autocorrelation function of temperature.

3-1-5 パワースペクトル

自己共分散関数 \hat{C}_k をフーリエ変換したものがパワースペクトル密度関数である⁽¹⁾。ここでは単にスペクトルと呼ぶ。スペクトルは各周波数成分の寄与率を表す。つまり時系列データのスペクトルにピークが見られる場合、その周波数の周期が卓越して変動していることを表す。スペクトルの式を(3.5)に示す。

$$p(f) = \sum_{k=-\infty}^{\infty} C_k \cdot \exp[-2\pi \cdot i \cdot k \cdot f] \quad \left(|f| \leq \frac{1}{2} \right) \quad (3.5)$$

Fig. 3-7にラドン濃度と気温のスペクトルを示す。縦軸は $p(f)$ の対数で、横軸は周波数で表されている。ここでは入力データとして3時間毎の値を用いたため、周期 T [h]は $T=3/f$ で表される。ラドン濃度の最大のピークは $f=0.0375$ ($T=80$ h)で、これは自己相関関数に見られた数日周期の大まかな変動によるものである。日変動のピークは $f=0.13$ ($T=22.9$ h)に見られる。その他の $f=0.33$ のピークは $f_{80}=0.0375$ の高調波である ($f=n \cdot f_{80}$; n は整数)。気温の最大のピークは $f=0.13$ ($T=22.9$ h)にあり、これは日変動周期に相当する。その他の $f=0.25$ 、 0.375 のピークは高調波成分である。

本研究ではパワースペクトルでは、日変動やそれより長い周期の変動の周波数に注目している。また複数のピークがある場合、ピークの高さを比べることで変動に寄与する程度を知ることができる。

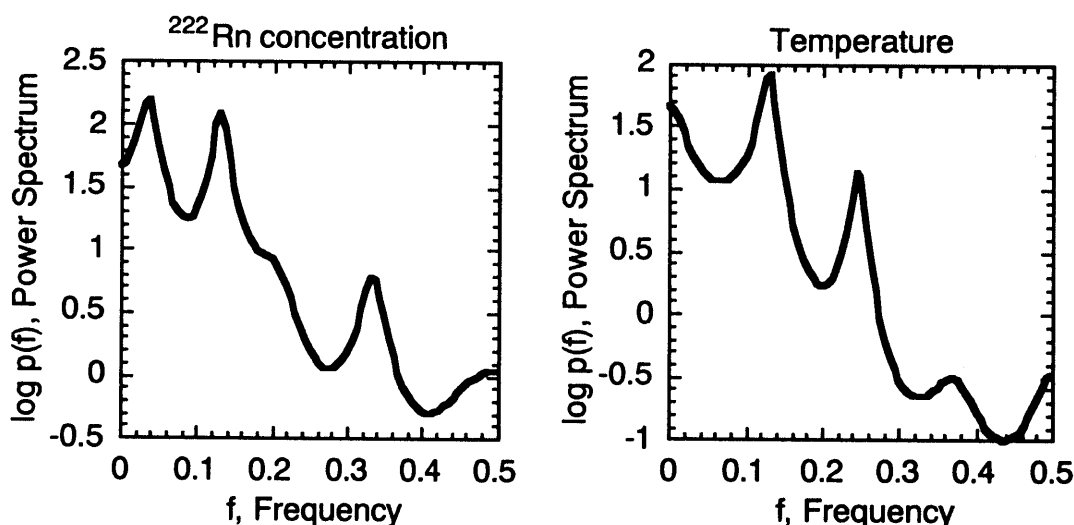


Fig. 3-7 Power spectra. Left is radon concentration, right is temperature.

3-2 ラドン濃度と気象要素の変動の時系列解析

3-2-1 気象データ

解析に用いた気象データは、気象庁発刊の地上気象観測値・高層気象観測値である。

地上気象観測値は、主に気圧・気温・蒸気圧・湿度・露点・風向・風速・降水量・積雪・日照時間・日射量からなり、全国161カ所の気象台や測候所で自動的に観測されている。観測手法が統一されている点、1時間毎にデータがある点で非常に有用で

ある。名古屋地方気象台（名古屋市千種区日和町2-18）は名古屋大学から約1.5km離れている。金沢地方気象台（金沢市西念町103街区12番地・金沢駅西合同庁舎）は金沢大学低レベル放射能実験施設から北東に20km離れている。西郷地方気象台は五箇村から南東に10km離れている。

高層気象観測値⁽³⁾は、全国18カ所の気象台・測候所で一日二回（午前9時と午後9時）レーウィンゾンデによって観測される地上から高度約30kmまでの気圧・気温・湿度・風向・風速からなる。特に気圧・気温・湿度のデータから大気の拡散に大きく影響する鉛直方向の仮温位⁽⁴⁾を知ることができる。高層気象観測は測定点が少ないため、それぞれラドン観測地点から最も近い地点のデータを用いることにした。名古屋については潮岬測候所（和歌山県西牟婁郡串本町）、金沢は輪島測候所（石川県輪島市）、五箇村は米子測候所（鳥取県米子市）のデータを用いた。

3-2-2 ソウル、隠岐・名古屋・金沢における測定値の相関

まず、4地点のラドン濃度観測値の違いを見るために相関関数を調べた。その例をFig. 3-8 に示す。グラフは1998年10月の3日～17日の15日間の時別値を入力データとした相関関数である。ソウル、金沢・名古屋の自己相関関数からは24時間周期の日変動がはっきりと分かる。金沢と名古屋の相関関数を見ると、名古屋のデータが金沢に比べ数時間だけ遅れている。これは他の期間においても全体的に見られた傾向である。さらにソウル、金沢には長い周期の144時間にピークが見られる。このピークは隠岐の自己相関関数にも見られる。この長周期が広域成分からなる隠岐にも見られることからすると、ソウル・金沢にも遠方成分の寄与がある、と予想される。

この傾向をスペクトルからも見る事ができる。Fig.3-9に4地点のスペクトルを示す。ソウル、隠岐・金沢には $f=0.007$ ($T=143h$) の長周期が見られる。名古屋においては $f=0.014$ ($T=71h$) の長周期が見られる。

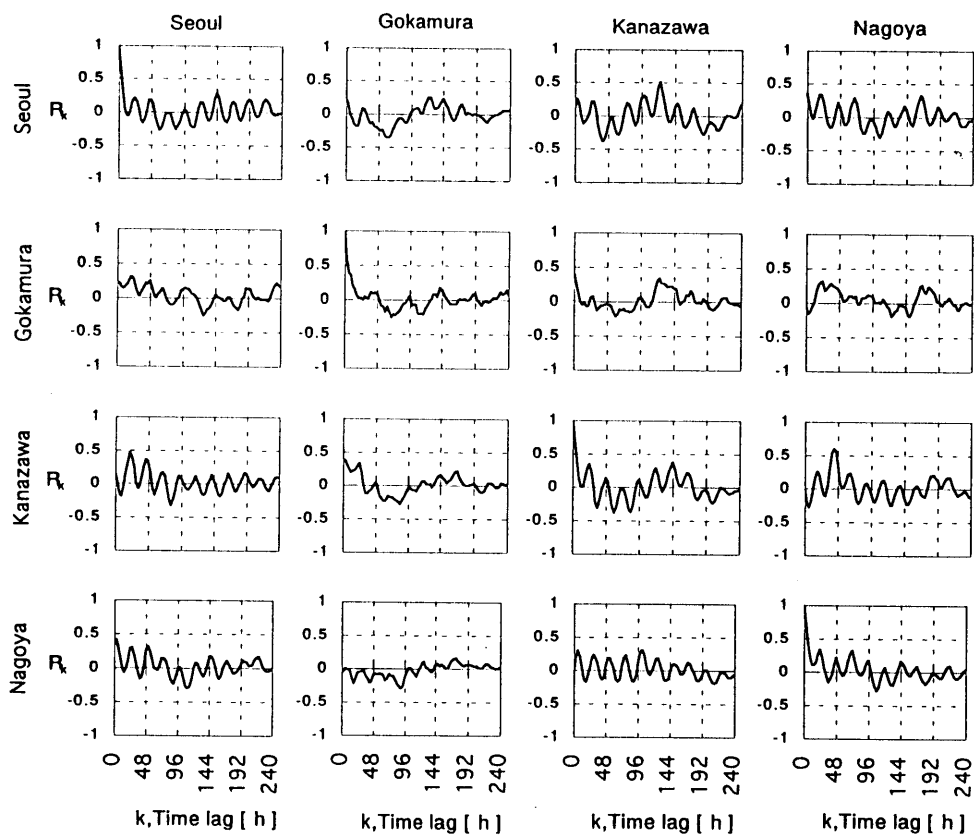


Fig. 3-8 Correlation functions of radon concentration at four stations.

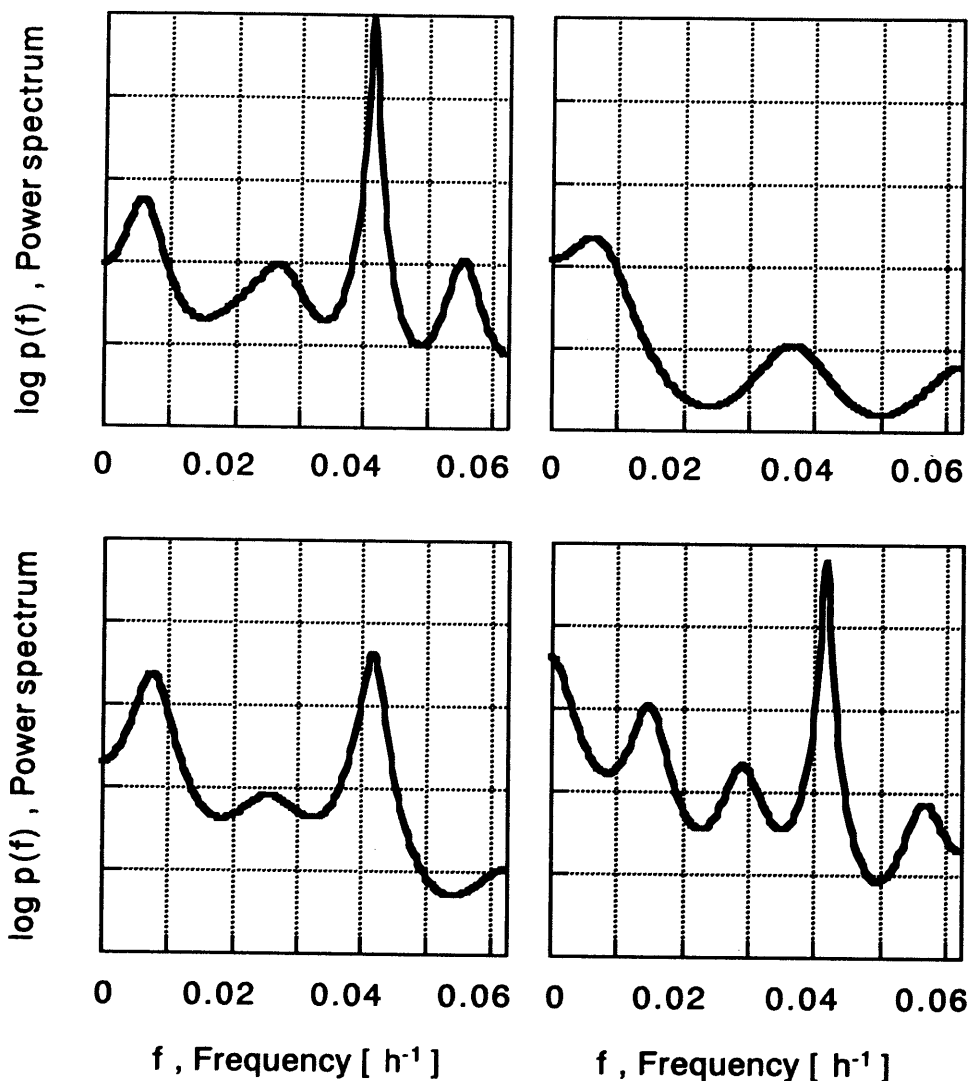


Fig. 3-6 Power spectra. Upper left is power spectra of radon concentration at Seoul., upper right is power spectra of radon concentration at Gokamura, lower left is power spectra of radon concentration at Kanazawa , lower right is power spectra of radon concentration at Nagoya.

3-2-3 気象要素との相関

これまでの大気中のラドンの研究で、ラドン濃度の変動要因についての報告が多くなされている。一般に日射量・風速・降水量・逆転層・気団の移動が濃度変動に寄与している⁽⁵⁾と指摘されている。特に日変動要因である日射量・風速はラドン濃度と逆相関になっている、と指摘されている。

本節では地上気象観測値を用いて、ラドン濃度と気象要素との相関関係をさらに詳しく調べる。まず以下に1998年10月3日から17日までのデータを例に議論する。

ラドン濃度と気象要素との相関関数を調べる。Fig. 3-10 に金沢・名古屋・五箇村のラドン濃度と地上気象観測値との相互相関関数を示す。いずれの地点も気圧の自己相関関数にタイムラグ約168時間のピークが見られることから、この時期の長周期変動が気圧によってもたらされたことが分かる。また、24時間周期の変動をする要素として金沢と名古屋については、気温・相対湿度・日照時間・日射量があげられる。

金沢についてさらに詳しくみる。ラドン濃度と気圧の相互相関関数から、ラドン濃度が気圧に比べ24時間遅れていることが分かる。両者の間に長周期の変動にずれがあることを示している。これは、低気圧の通過に伴い降水があったためラドン散逸が減り、地上付近の空気への夜間のため込みが小さくなったことの影響であると思われる。24時間の遅れについては、降水の後、ラドン濃度が一日後に回復したことを意味している。気温との相互相関関数からはラドン濃度と逆相関があることが分かる。一方日射量との相互相関関数からもラドン濃度と逆相関があることが分かるが、ラドン濃度は日射量より数時間遅れている。ラドン濃度と風速の相互相関関数をみると逆相関関係になっている。

五箇村においては、気圧に約192時間の長周期がみられる。しかし金沢に見られたラドン濃度が気圧に比べ24時間遅れる現象は起こっていない。測定点近傍のラドン散逸の影響が少ないからと考えられる。

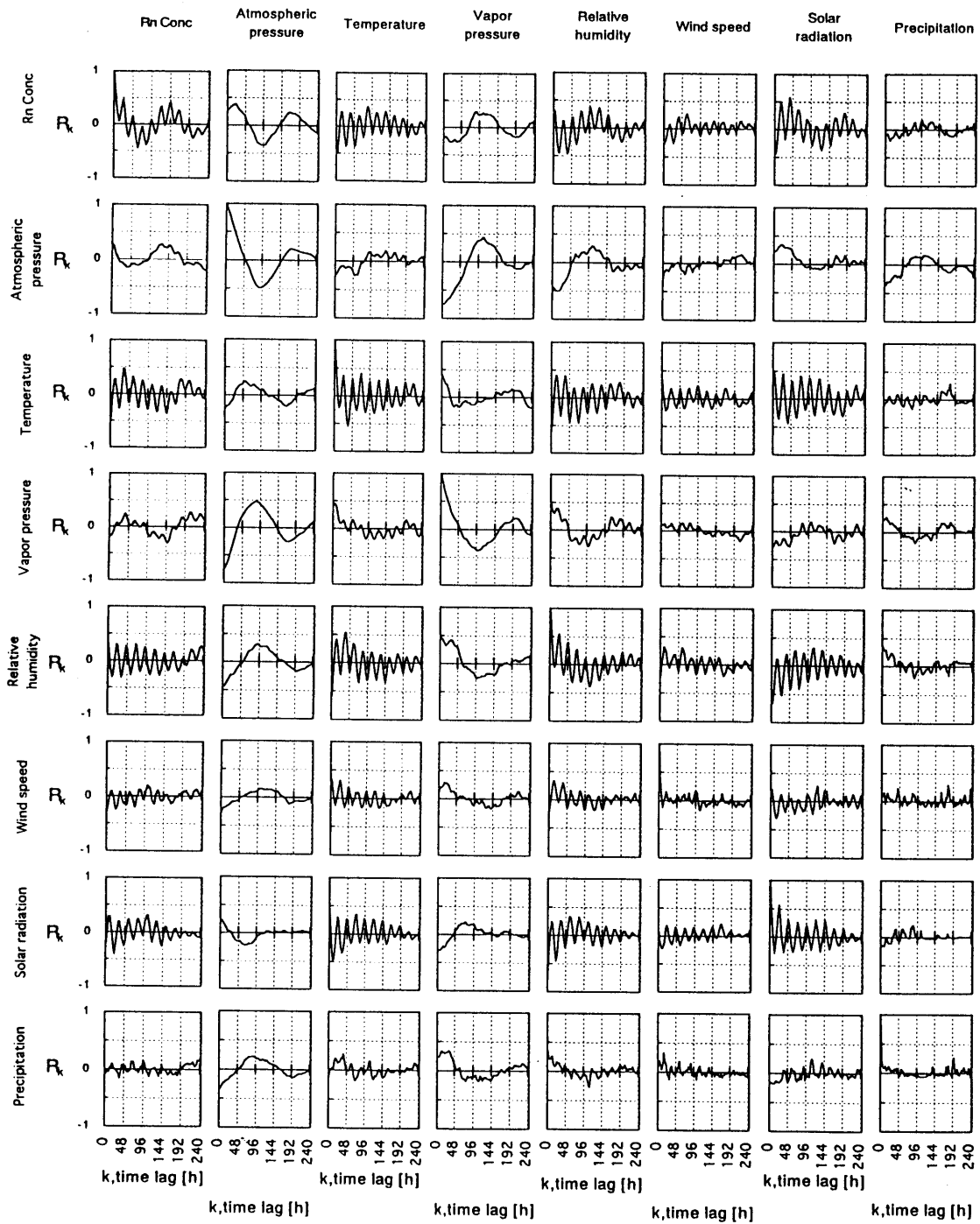


Fig. 3-10-1 Cross correlation functions of radon concentration and meteorological factors during October 3~17 1998 at Kanazawa.

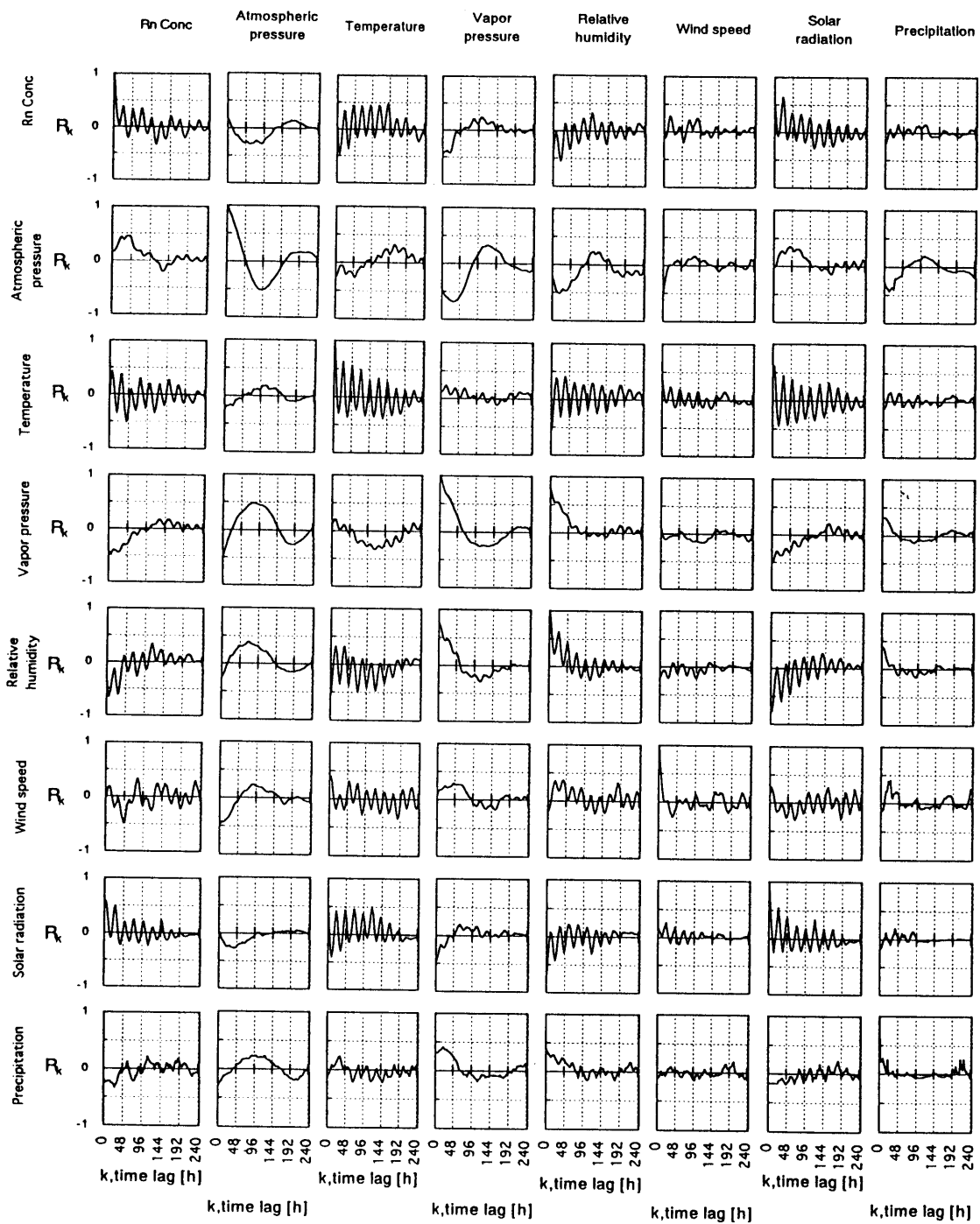


Fig. 3-10-2 Cross correlation functions of radon concentration and meteorological factors during October 3~17 1998 at Nagoya.

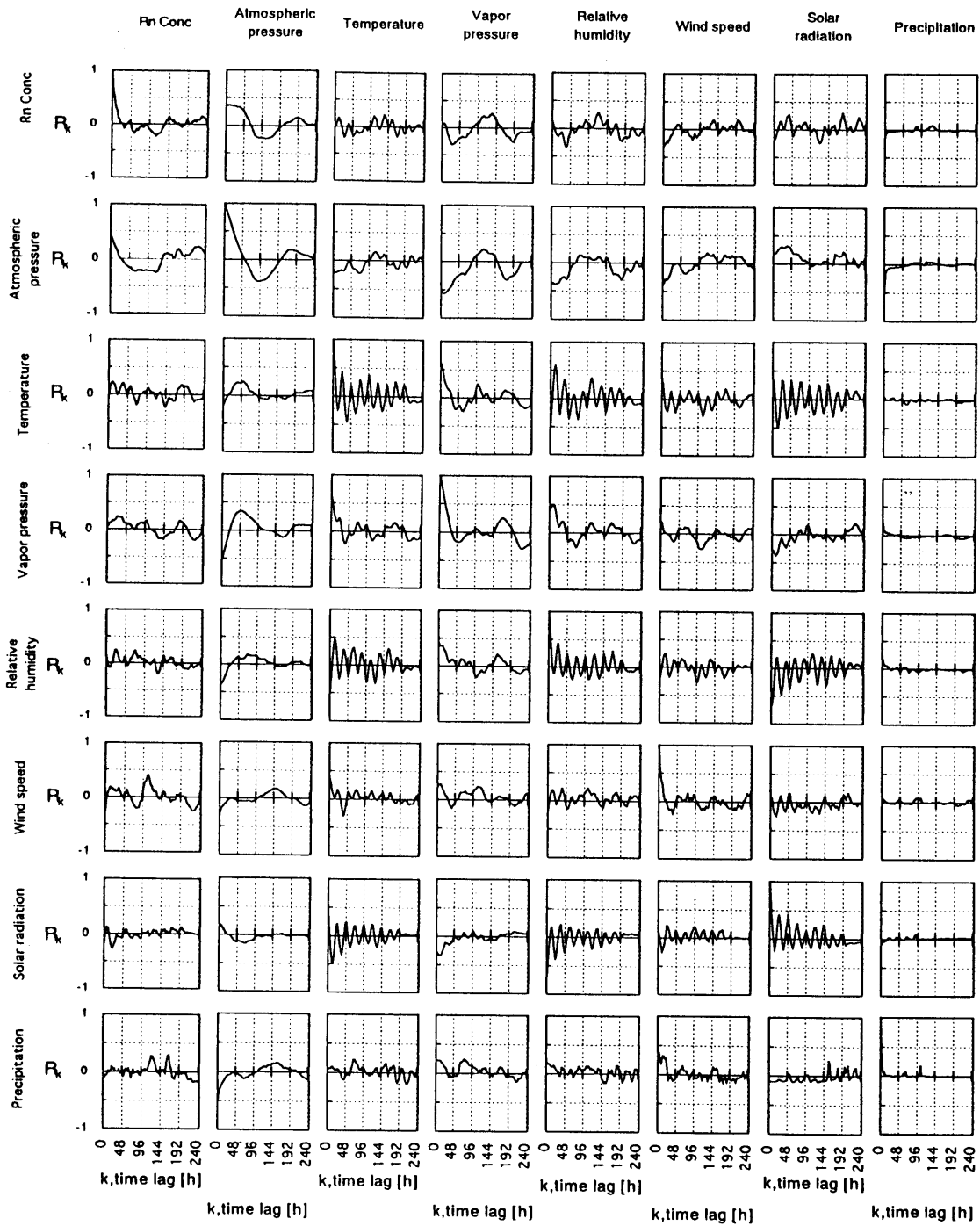


Fig. 3-10-3 Cross correlation functions of radon concentration and meteorological factors during October 3~17 1998 at Gokamura.

3-2-4 数日周期成分

3-2-4-1 前線通過に伴う変動

天気図⁽⁶⁾や気圧と見比べると、前線が通過するときラドン濃度が急激に高くなることがわかる。このような現象は秋期から春期にかけて頻繁に観測された。温暖前線と寒冷前線が通過した際の五箇村におけるラドン濃度変動の様子と天気図をFig. 3-11に示す。

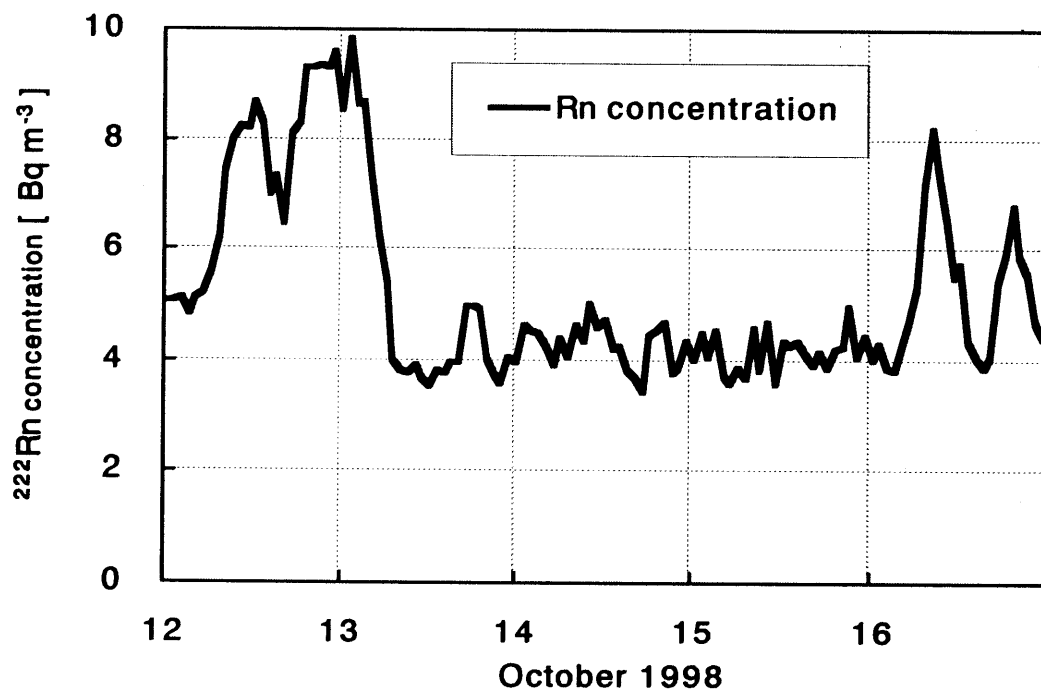


Fig. 3-11-1 The rapid increase of ^{222}Rn concentration as a front pass.

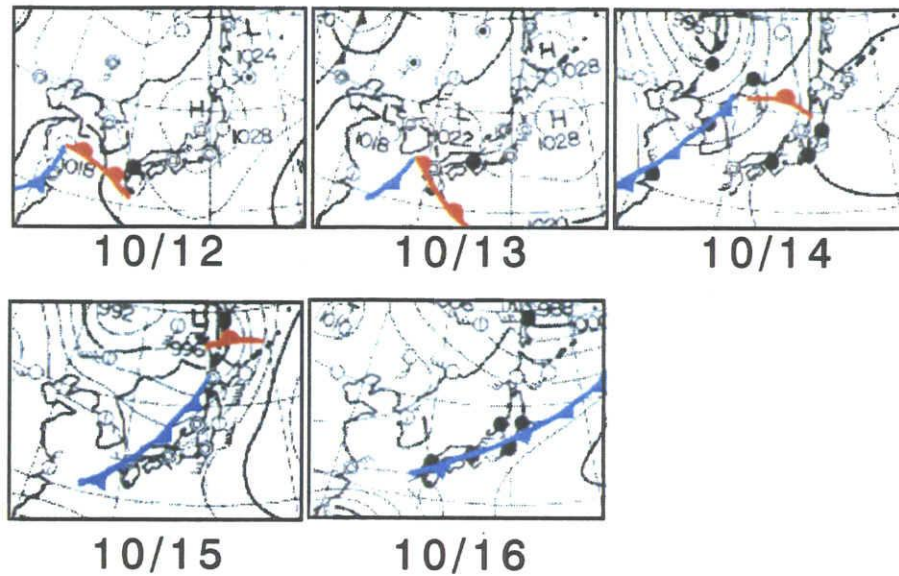


Fig. 3-11-2 Weather charts from Oct.12,1998 to Oct.16,1998

この現象は以下のように考えられる⁽⁷⁾⁽⁸⁾。Fig. 3-12-1に示すように前線は対称的な気団の境界であり、常に暖かい空気が冷たい気塊の上に重なっている。そのため、前線は常に逆転層の特性を持っていると言える。従って暖気が一種の蓋となりラドンの上方拡散を妨げるため濃度が高くなると考えられる。前線の通過とラドン濃度の関係をFig. 3-12-2に示す。温暖前線は傾斜が緩やかなため、上方に重なった暖気は広い地域にわたって地面に近い高さに位置する。前線面は寒気側に向かって高くなるため、前線の接近とともにこの混合層が低くなる。よって、温暖前線が通り過ぎるまで拡散状態は悪くなる一方である。逆に、寒冷前線が通り過ぎると、急に逆転層が来るためラドン濃度が急激に上昇する、と考えられる。

実際、天気図を見る限り温暖前線がラドン濃度測定地点を通過する例は1例しかなく、ほとんどが寒冷前線であったため、温暖前線についての考察は十分行えなかった。同様に停滞前線の通過例も非常に少ない。

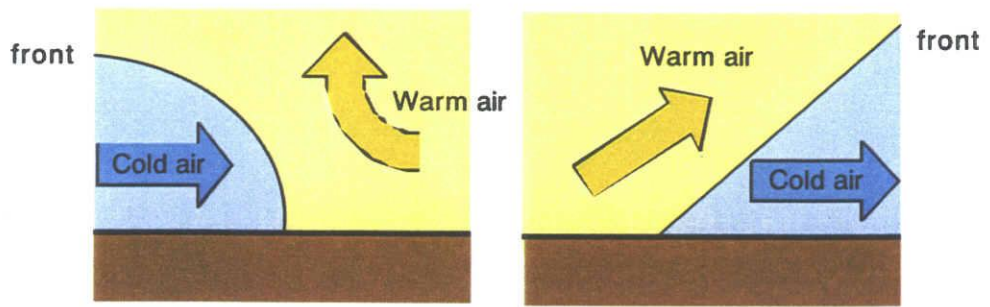


Fig. 3-12-1 The formation of a inverse layer due to a front.

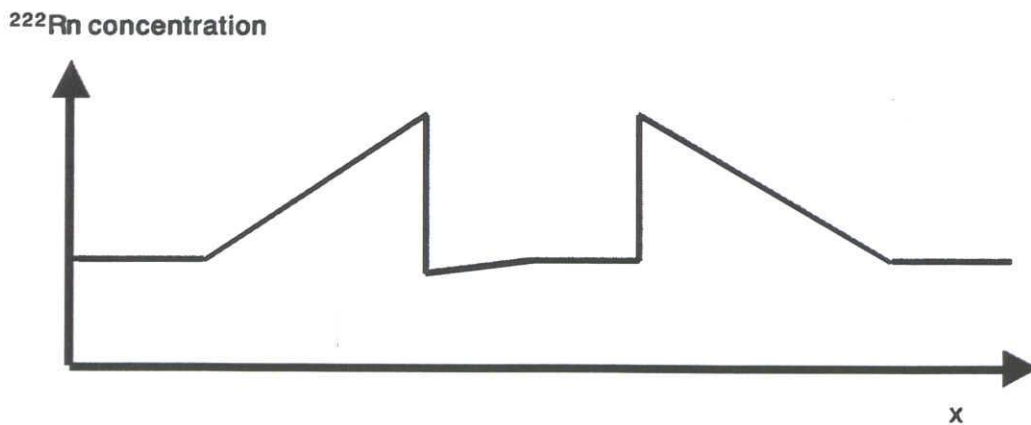
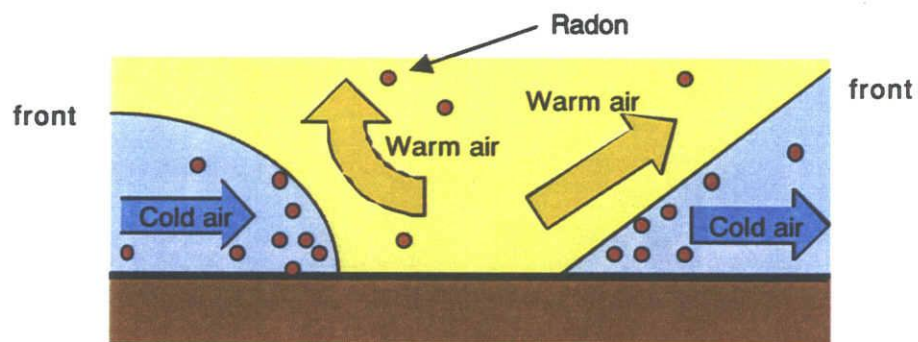


Fig. 3-12-2 A variation of ^{222}Rn concentration as a front pass.

3-2-5 日周期成分

3-2-5-1 日変動要因

ラドン濃度の日変動要因のひとつに逆転層がある。ここでは夜間の接地逆転層高度とラドンのため込みとの関係を議論する。

逆転層高度は高層気象観測値から鉛直仮温位分布を導出することで決定した。仮温位を算出する式を式 (3.6) に示す⁽⁹⁾。

$$\theta_v = (T + 0.0098 Z) \left(1 + 0.61 \cdot 0.622 \frac{461 T \cdot H \cdot \rho}{P \times 10^2} \right) \quad (3.6)$$

θ_v : *virtual potential temperature* [$^{\circ}\text{C}$]

T : *temperature* [$^{\circ}\text{C}$]

Z : *altitude* [m]

H : *relative humidity* [%]

ρ : *saturation vapor pressure* [hPa]

P : *atmospheric pressure* [hPa]

Fig. 3-13に1998年10月1日から7日の潮岬における鉛直仮温位分布図を示す。地表面近傍で仮温位勾配が安定から中立へと急激に変化する高度を逆転層高度とした。Fig. 3-1の名古屋のラドン濃度のグラフと比較してみると、接地逆転層が形成していた日の夜間にラドンの濃度上昇が大きいことが分かる。ただし、ラドンの濃度上昇が大きいからといって必ず仮温位の鉛直分布に接地逆転層が見られるわけではない。それは、高層気象観測値が午前9時と午後9時の2点しかなく、すべての濃度上昇に対応した仮温位鉛直分布図を得ることが出来なかったためである。

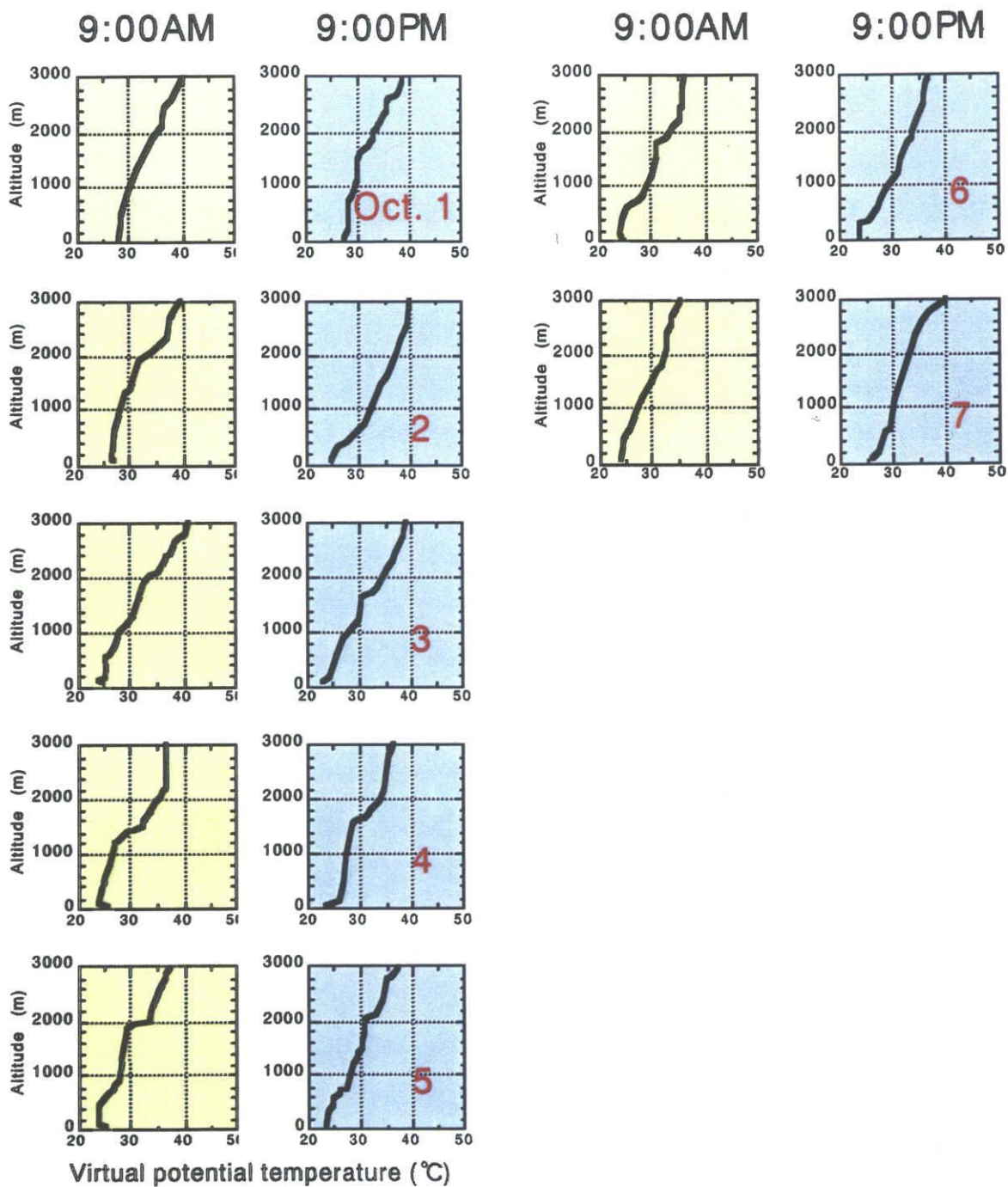


Fig. 3-13 Vertical virtual potential temperature from October 1 to 7, 1998 at Shionomisaki.

3-4 大気汚染物質との相関関係

1998年10月から1999年3月まで島根県衛生公害研究所により、隠岐諸島の五箇村で大気汚染物質 (NO、NO₂、SO₂、O₃)の連続測定が行われた。ここでは時系列解析の手法からラドン、気温、気圧との相関を見ていくことにする。Fig.3-14にラドン濃度と大気汚染物質の相関図を示す。Fig. 3-14のNO_xとは、NOとNO₂との和で定義されている。大気汚染物質は降雨により除去されることを考慮して、Fig.3-14-1では降雨のない時期である1998年12月18日から24日、Fig.3-14-2では降雨のあった時期である1999年2月3日から10日を選択し、それぞれの相関関係を見ていくことにする。

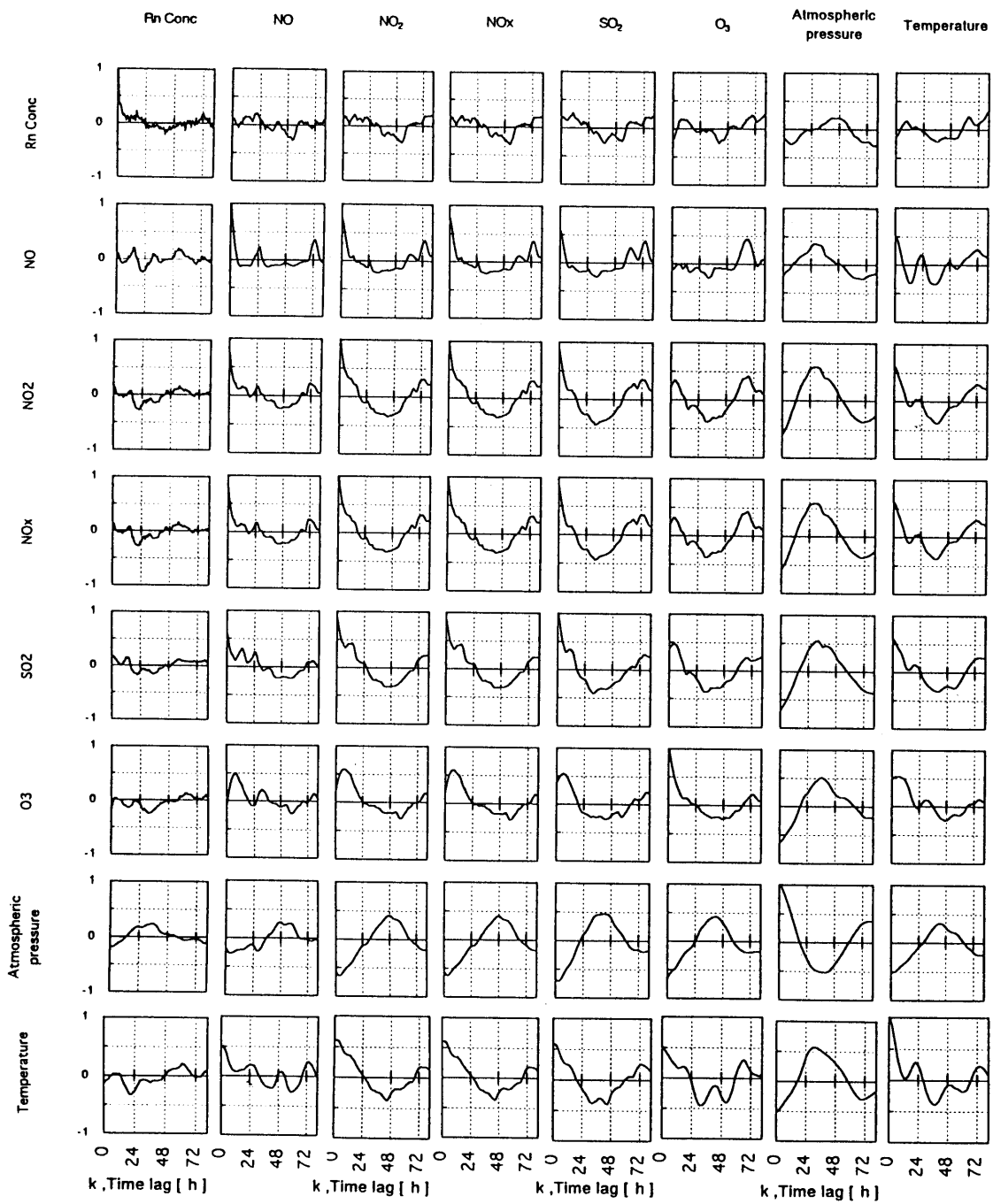


Fig. 3-14-1 Cross correlation functions of radon concentration and meteorological factors during December 18~24 1998 at Gokamura.

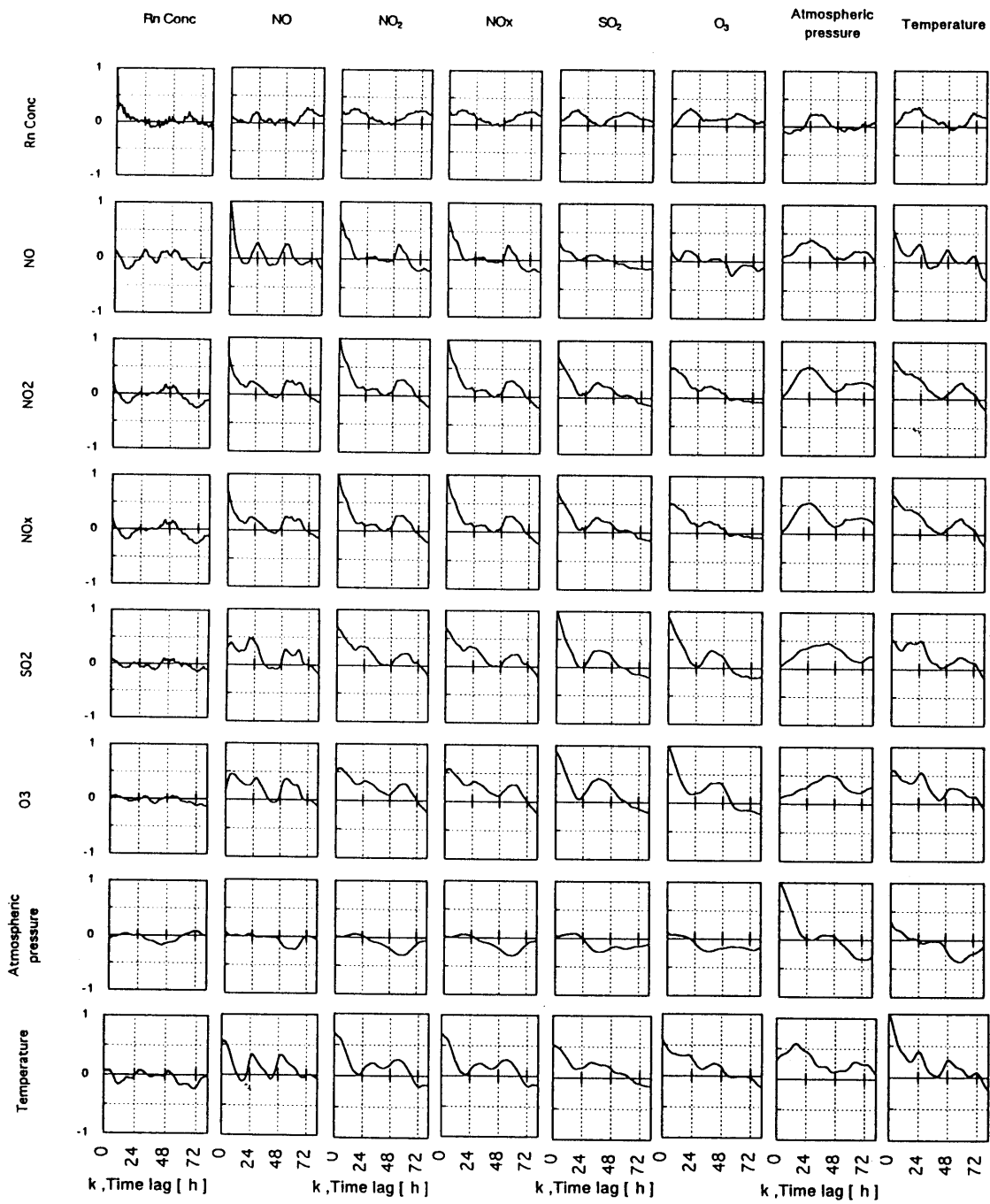


Fig. 3-14-2 Cross correlation functions of radon concentration and meteorological factors during February 3~10 1999 at Gokamura.

降雨のない期間である1998年12月18日から24日の相関図 (Fig. 3-14-1) について、ラドン濃度については72時間の長周期があることがわかる。このピークはNO、NO₂、NO_x、O₃、気温にも見られる。自己相関関数の形を見て、ラドン濃度と形が似ているものとしてNO₂、NO_x、O₃がある。

降雨のあった時期である1999年2月3日の相関図 (Fig. 3-14-2) では、ラドン濃度の自己相関関数を見ると60時間の長周期があることがわかる。しかしNO、NO₂、NO_x、SO₂、O₃の自己相関関数を見るとそれぞれ別の位置にピークが存在している。これはラドンは降雨による除去を受けなかったのに対し、NO、NO₂、NO_x、SO₂、O₃は降雨による除去を受け、それぞれ複雑な反応過程を経たためと考えられる。またNO、NO₂、NO_x、SO₂、O₃と気圧の相互相関関数を見ると、全ての領域で正の相関をとっている。これは低気圧の接近による降雨によりNO、NO₂、NO_x、SO₂、O₃が除去されたことに対応しているものと考えられる

参考文献

- (1) 北川源四郎著：FORTRAN77 時系列解析プログラミング 岩波書店、1993
- (2) 坂元慶行、石黒真木夫、北川源四郎：情報量統計学、共立出版、1983
- (3) 気象庁：気象庁月報 1998、1999
- (4) 小倉義光：一般気象学、東京大学出版会、1984
- (5) 岡部茂：自然界のラドン族に関する概論、大気中のラドン族と環境放射能、日本原子力学会、pp. 1-24, 1985
- (6) 日本気象協会：気象、No. 452-478
- (7) 森口寛、千秋鋭夫、小川弘：環境汚染と気象 朝倉書店、1990
- (8) オーク著、斉藤直輔、新田尚訳：境界層の気候、朝倉書店、1980
- (9) 山田克己：名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、1998

第4章 日本海の隠岐島の大気中ラドン濃度による大気境

界層の拡散輸送特性

4-1 はじめに

大気の擾乱は大別すると、高・低気圧の発達による水平規模の大きな擾乱と、鉛直熱輸送の卓越する小規模な対流運動に分けることができる。われわれがラドンを測定している大気境界層は、1日以内の時間スケールで加熱・冷却などにより生成される密度差により境界層の厚さ以下の空間スケールの対流が生ずるため、熱のみでなく空気の運動を通して運動量や微量物質などのフラックスも輸送されている。

われわれはラドンの空間分布の時間変動を推定し、大気境界層の拡散混合特性の時間的空間的な変動を解明することについて、ラドンのトレーサとしての可能性調査を試みる⁽¹⁾。

不活性気体であるラドン原子は約5.5日の平均寿命を有し、地殻の表面から大気中へ逸出した後には化学的に変質することなく大気中を長時間浮遊しているため、必然的に大気中には空間的な濃度分布ができている^(1,2)。従って、微量物質の拡散輸送問題に対しラドンをトレーサに用いるためには、まずその分布特性の時間変化を理解し大気中における挙動を推定することが必要である。

この目的のために測定場所として日本海の隠岐島を選んでいる⁽¹⁾。隠岐島は日本海の南端に位置する小島であり、ラドンは海洋表面からの散逸は無視できるほど少ないため、大気中ラドン濃度は日本列島内の測定値に比べ低い値であることが予想される^(1,2)。また、気象学的研究によって大気境界層の構造は陸上のそれに比べ比較的シンプルでその長期変動は緩やかであると考えられるため⁽⁴⁻⁶⁾、大気中ラドン濃度の変動も緩やかであることが予想される。従って、大気の間規模の擾乱、季節的に変化する気団の移流や日本列島上に停滞している気塊の流入等によって遠い場所から拡散輸送されるラドンの長期変動を推定することについても比較的容易であると考えられる。

4-2 大気中ラドン濃度の測定

われわれは大気境界層の拡散輸送特性を研究する目的で日本海の隠岐島を選んでラドン連続モニターで大気中ラドン濃度を測定している⁽¹⁾。日本海はアジア大

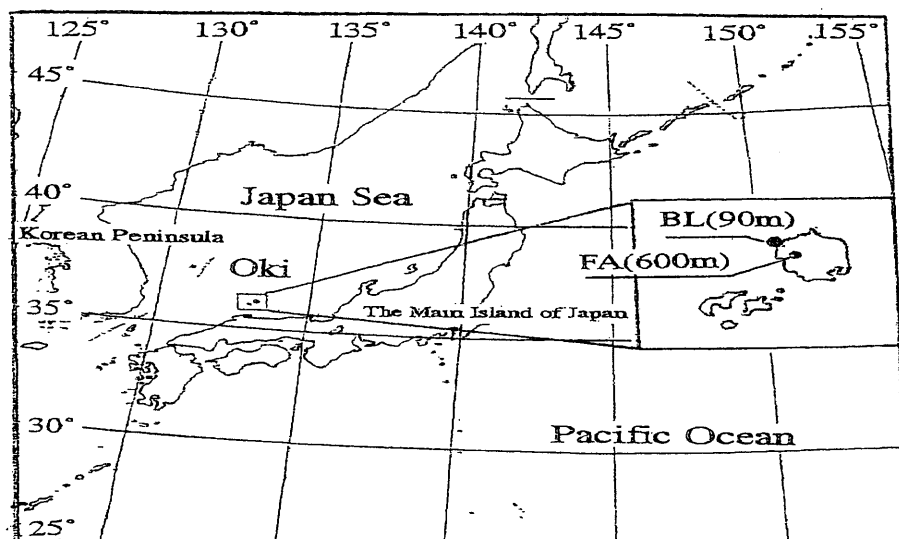


Fig. 4-1 Location map of Oki island in the East Asia.

陸東岸の日本列島との間の小さな沿海でその面積は約 101 万 km^2 である。隠岐島は日本海の南端に位置し、島根半島の北方約 70 km の直径約 17 km、面積約 240 km^2 の小島である。

4-2-1 測定場所

大気境界層は地表面と直接接する大気の下層であるため、ラドン濃度には鉛直分布があることは明白である。また、気象学的研究によれば⁽⁴⁻¹⁰⁾、隠岐島の地理的条件によってその大気境界層の厚さは比較的薄く安定していることが考察される。これらのことを考慮して、大気中ラドン濃度の測定場所は島の北西端の岬（海拔高度 $Z=90\text{m}$ 、以下 BL point と記す）と、島の西側の海岸線から約 4.5 km の横尾山（海拔 580 m の島内で 3 番目に高い山）の 20 m 鉄塔（海拔高度 $Z=600\text{m}$ 、以下 FA point と記す）に選定している。そして、BL point と FA point の直線距離は約 6.7 km 離れている。この測定場所の概略図は Fig. 4-1 に示す。

4-2-2 測定装置

ラドン濃度の測定器は Fig. 4-2 に示すとおり飯田の開発した静電捕集型ラドン連続測定装置である⁽³⁾。ラドン測定は $\text{ZnS}(\text{Ag})$ 検出器を内蔵している容積約 16.8 L の半球体に約 $1\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ の流速で試料空気を送り込み、高電圧を印加するこ

とによって空気中の ^{222}Rn から壊変した ^{218}Po と ^{214}Po を ZnS (Ag) 検出器上に捕集し、その α 線を連続的に計数することによって1時間ごとに測定値が得られる。試料空気はラドン娘核種や汚染微粒子等をポアサイズ $0.8\mu\text{m}$ のフィルターによって除去され、除湿器を通る間に湿分もほとんど全て除去される。そして、 ^{220}Rn (半減期=約 55.6 s) も採気口から検出器までの間にほとんど減衰する。

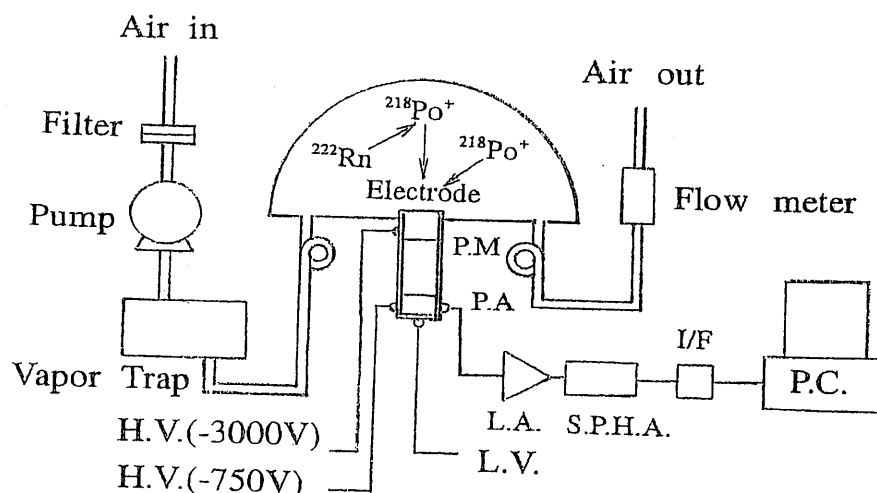


Fig. 4-2 Schematic diagram of electrostatic radon monitor.

4-3 測定結果

ラドン濃度の測定はBLpointでは1997年1月から、FApointでは1998年9月から連続測定されている。そのプロファイルは Fig. 4-3、4-4-1、4-4-2、4-5-1~4-5-5 に示すとおりである。Fig. 4-3 に示すとおり全体的にBLpointの月平均値はFApointの約1.5倍以上の高い値になっている。また、その長期変動の特徴は両者とも11月から2月の寒候期には高い値を示し5月から8月の暖候期には低い値になっている。

両者の日平均値や時間値を詳細に観察するとそれらの変動には明らかな違いが見られる。これは大気境界層内の接地境界層 (BLpointの高度) とエクマン層 (FApointの高度) の高度差と拡散輸送特性の違いによるものであり、この主な原因は接地境界層に夜間にできる気温の逆転層やエクマン層に数日間連続して停滞する安定な気温逆転層などの気象現象である。

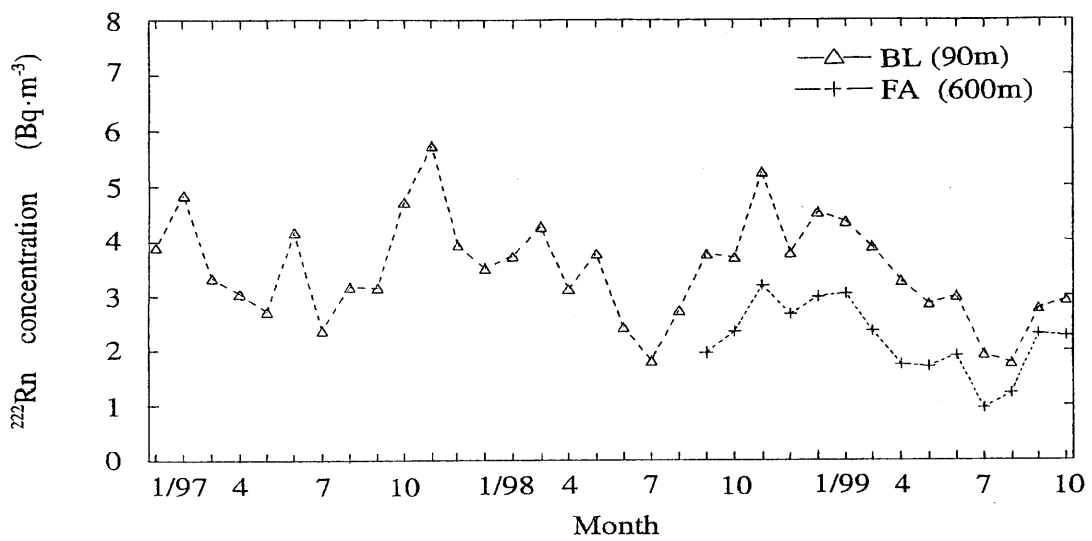


Fig. 4-3 Monthly means of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (Jan. 1997~Oct. 1999)

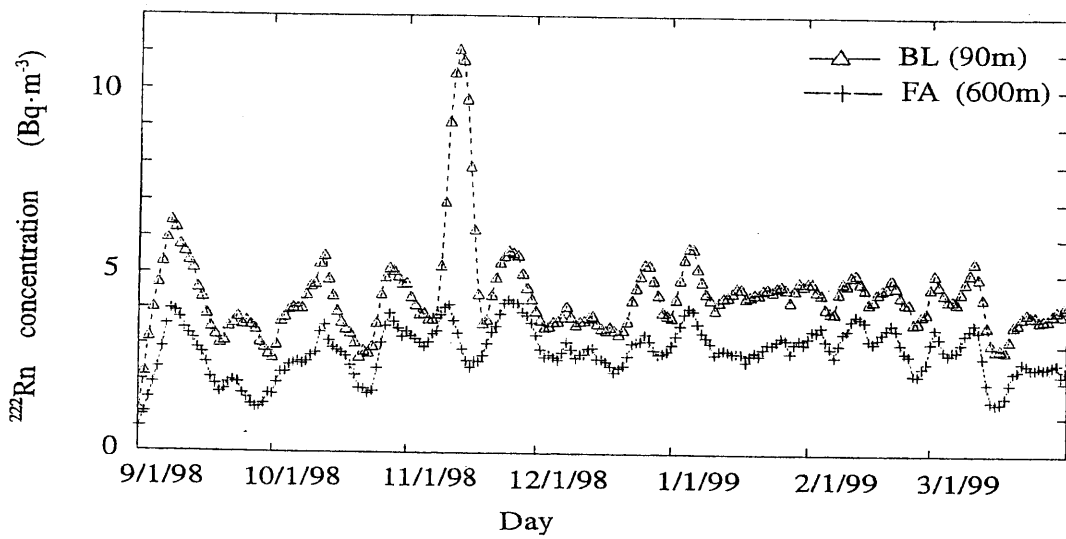


Fig. 4-4-1 Daily variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (1 Sept. 1998~31 Mar. 1999)

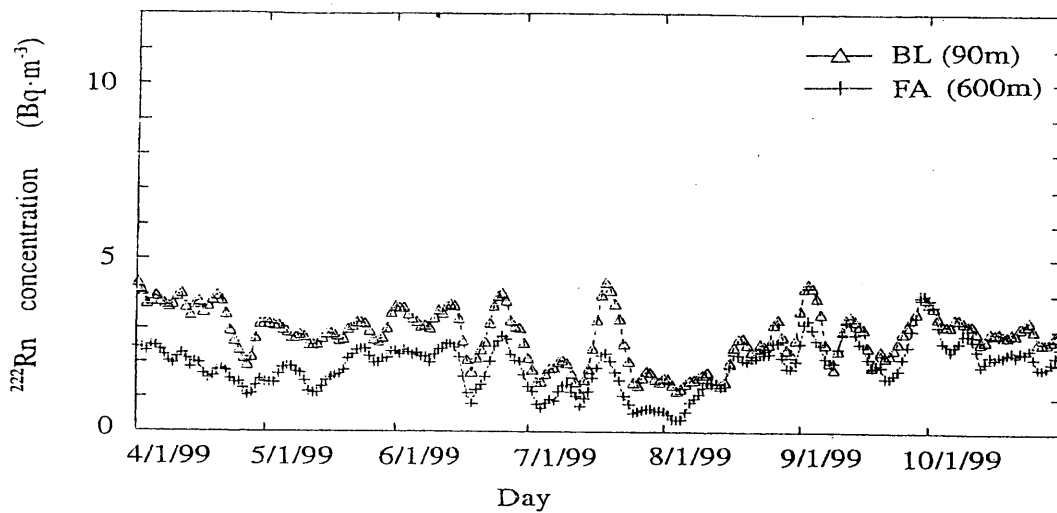


Fig. 4-4-2 Daily variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (1 Apr. 1999~31 Oct. 1999)

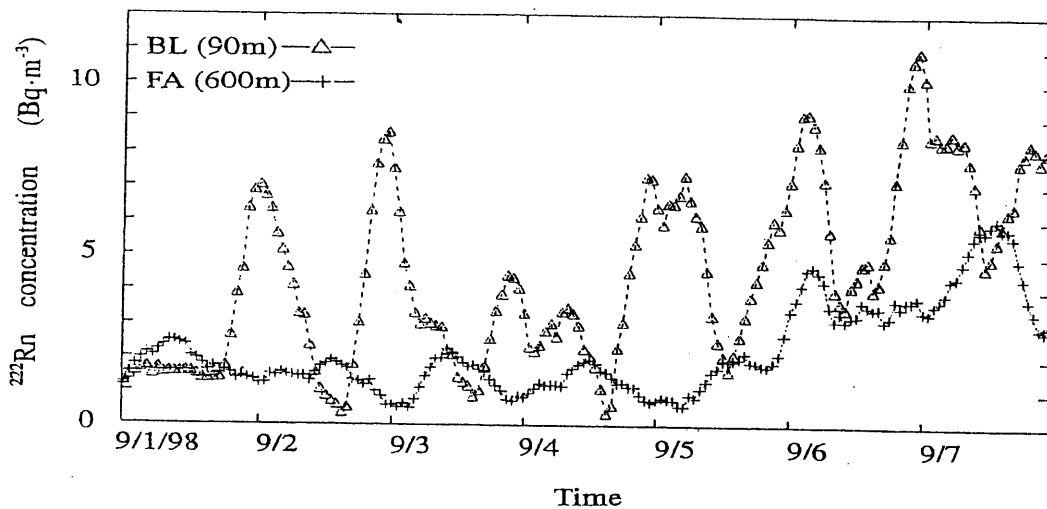


Fig. 4-5-1 The time variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (1 Sept. 1998~7 Sept. 1998)

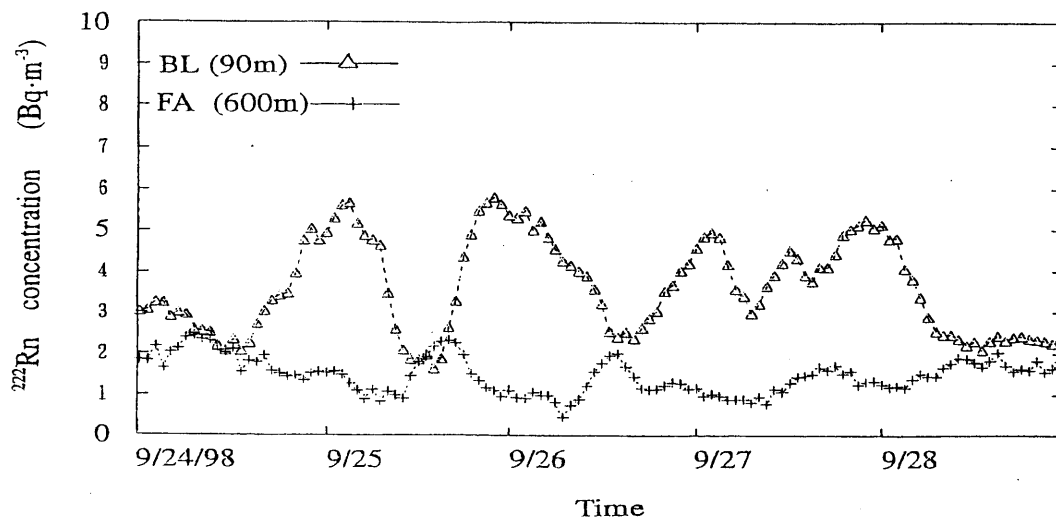


Fig. 4-5-2 The time variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (24 Sept. 1998~28 Sept. 1998)

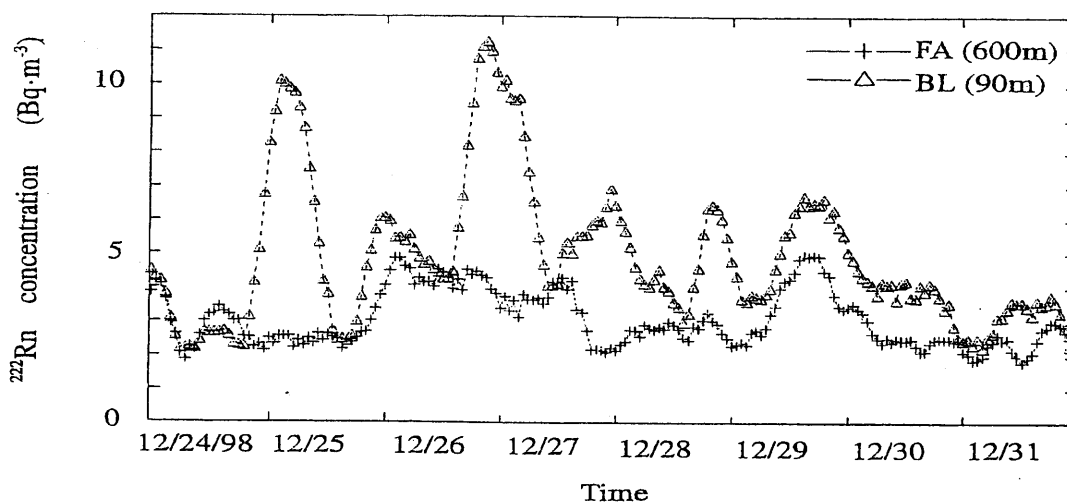


Fig. 4-5-3 The time variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (24 Dec. 1998~31 Dec. 1998)

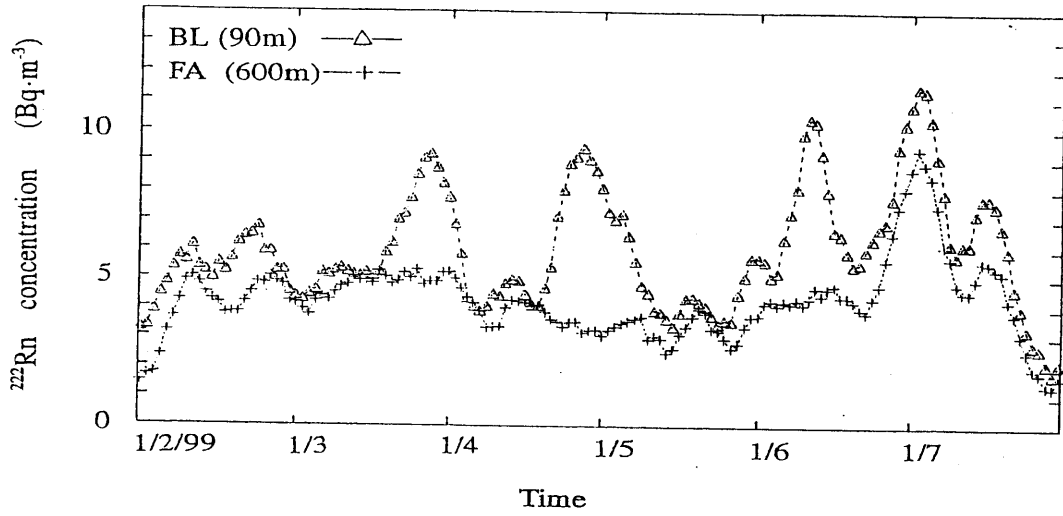


Fig. 4-5-4 The time variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (2 Jan. 1999~7 Jan. 1999)

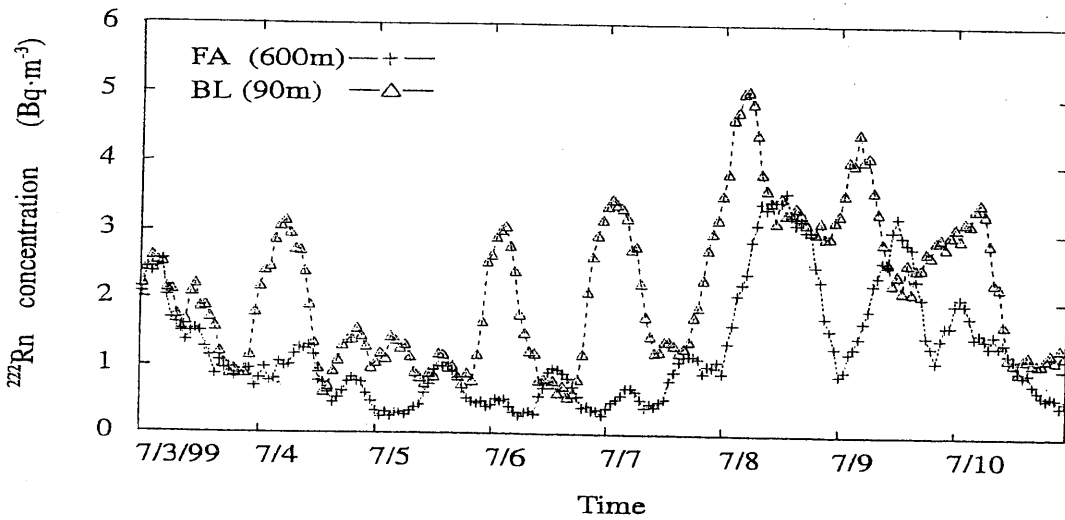


Fig. 4-5-5 The time variations of ^{222}Rn concentration in air at BL and FA sites in Oki Island. (3 Jul. 1999~10 Jul. 1999)

4-4 考察

BLpoint とFApoint のラドン濃度の変動は大気境界層の鉛直構造の時間変化に依存する拡散輸送特性の時間変化によるものと予想される。

ここでは、大気境界層の鉛直方向を2層に分ける混合モデルを仮定しBLpoint とFApoint のラドン濃度の時間変化を考察する。そして、地殻表面から大気中へ逸出したラドン原子の浮遊時間に着目し、長期浮遊ラドン成分と短期浮遊ラドン成分に分類しBLpoint とFApoint における両者の成分比を推定する。

4-4-1 大気境界層の鉛直混合2層モデル

大きな擾乱を受けていない大気境界層の構造について気象学的研究によって次のことが明らかになっている⁽⁴⁻¹⁰⁾。

- (1) 陸上の接地境界層は、夜間には安定な接地逆転層に覆われること
- (2) 昼間には境界層内の対流混合域と自由大気の準水平流とを分ける安定な逆転層 (capping inversion) に覆われていること
- (3) 海上の境界層は水平方向に深さが比較的一定であり陸上のものとは構造が異なっていること

などが明らかになっている。

この科学的知見に基づいて、Fig. 4-5-1 ~ 4-5-5 に示すBLpoint とFApoint の時間変動の測定結果をもとに大気境界層の鉛直方向を2層に分ける輸送混合モデルを仮定し、2つの測定場所 (BLpoint とFApoint) の大気中ラドン濃度の時間変化を検討する。本モデル—鉛直混合2層モデル—の概要は Fig. 4-6 に示すとおりである。

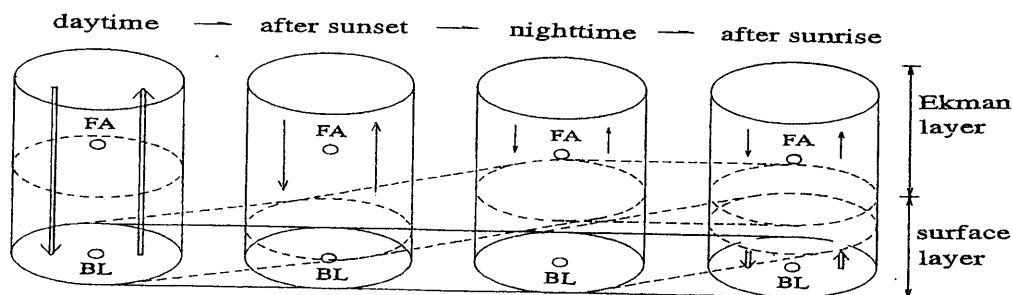


Fig. 4-6 Two layers vertical mixing model for diurnal change of ^{222}Rn concentration due to time variation of vertical structure in the atmospheric boundary layer.

のための鉛直混合2層モデル

- (1) 日の出後、日射によって地表が温められると1層目は地表面から上方へ成長する対流によって作られるがその上の2層目には夜間の弱い乱流状態の混合層が維持されている。そして、2層目との境界の逆転層は熱対流によって次第に侵食され薄くなって不鮮明になり遂には1層目と2層目のラドンは急速に拡散混合される。地表からの熱フラックスが減少し始めるころ2層目の頂部は安定成層(capping inversion)のためほぼ一定高度に落ち着き、日没頃には両層は拡散混合によってほぼ均一濃度になる。
- (2) 日没後、地表が冷却し始めると1層目は地表面から上方に成長する接地逆転によって作られるがその上の2層目には昼間の混合層が維持されている。このため2層目ではラドンの拡散混合は継続されるが、1層目の逆転層の中では対流がほとんどないため乱流拡散はなく鉛直濃度勾配ができると考えられ両層間のラドンの輸送はほとんど無くなる。従って、日の出頃には1層目と2層目の濃度には大きな違いがある。

4-4-2 輸送時間によるラドン原子の分類

ここで、ラドンの発生源を推定する目的で大気中におけるラドン原子の輸送時間による分類方法を検討する。

地殻から大気中へ逸出したラドンはすぐに拡散混合されるため1つの測定値をもとにラドンの発生場所ごとの成分を推定できないことはあまりに明らかである。

本モデルでは昼間と夜間の2層それぞれのラドン濃度を推定検討することによりラドン原子を浮遊時間によって2つに分類することができる。そして、測定場所に到達するまでの水平輸送距離が浮遊時間に比例すると仮定すれば、それぞれのラドン成分は発生場所からの大まかな距離に関係付けて推定することができる。

そこで、大気中へ逸出してから12時間以上浮遊しているものを長期浮遊ラドン(以下 LA ^{222}Rn と記す)、それ以内のものを短期浮遊ラドン(以下 SA ^{222}Rn と記す)と分類定義する。

4-4-3 夜間のラドン濃度の推定

地殻表面から大気中へ逸出し続けているラドンは厚い逆転層により上方へ拡散輸送されなくなるため、時間の経過とともにBLpointのラドン濃度は徐々に増加する。そして日の出前にはBLpointのラドン濃度はSA ^{222}Rn 成分がもっとも

大きくなる。

一方、2層目の対流混合は昼間に比べると弱いが継続することと1層目からS A²²²Rnの供給が無くなることによりF Apointのラドン濃度は徐々に低下し、日の出前にはL A²²²Rn成分がもっとも大きくなるとともに層内の濃度は最も均一な状態になっている。

4-4-4 昼間のラドン濃度の推定

2層目には対流によって1層目から隠岐島の地殻から逸出したS A²²²Rnを供給されるためF Apointのラドン濃度は急速に増加する。そして、層内のL A²²²Rn成分とS A²²²Rn成分は拡散混合によって次第に均一な状態になるとともに日没頃にはF ApointとB Lpointはほぼ同じラドン濃度になる。

4-4-5 長期浮遊ラドン成分と短期浮遊ラドン成分の推定

本モデルは夜間と昼間における大気境界層の対流混合特性の鉛直分布の違いに着目したものである。すなわち、1層目の特徴は昼夜の対流混合特性の違いが顕著であること、地表面からのラドンの逸出については昼夜の違いは少なく常時供給されることである。また、2層目の特徴は昼夜の対流混合特性の違いはほとんどないこと、その場所の地殻から逸出したラドンについては夜間にはほとんど供給されないのに対し、昼間には対流によってすばやく拡散することである。

従って、日の出頃の2層目のラドン濃度はS A²²²Rn成分が最も少なくL A²²²Rn成分が最も多くなっている。また、日没頃の1層目と2層目のラドン濃度は対流混合によってほぼ一様な鉛直分布になっていると考えられる。

これらのことから、L A²²²Rn成分とS A²²²Rn成分を推定すると下記のとおりである。

- (1) 日の出直前のF Apointのラドン濃度は隠岐島周辺の大気境界層のL A²²²Rn成分の濃度を表している。
- (2) 日没直前のF Apointのラドン濃度(S A²²²Rn + L A²²²Rn)と上記のL A²²²Rn濃度の差からF ApointのS A²²²Rn濃度を推定できる。
- (3) 日没直前のB Lpointのラドン濃度(L A²²²Rn + S A²²²Rn)と上記のL A²²²Rn濃度の差からB LpointのS A²²²Rn濃度を推定できる。

これらの推定されたS A²²²RnとL A²²²Rn成分の長期変動はFig. 4-7、4-8、4-9-1、4-9-2、4-9-3に示す結果であった。

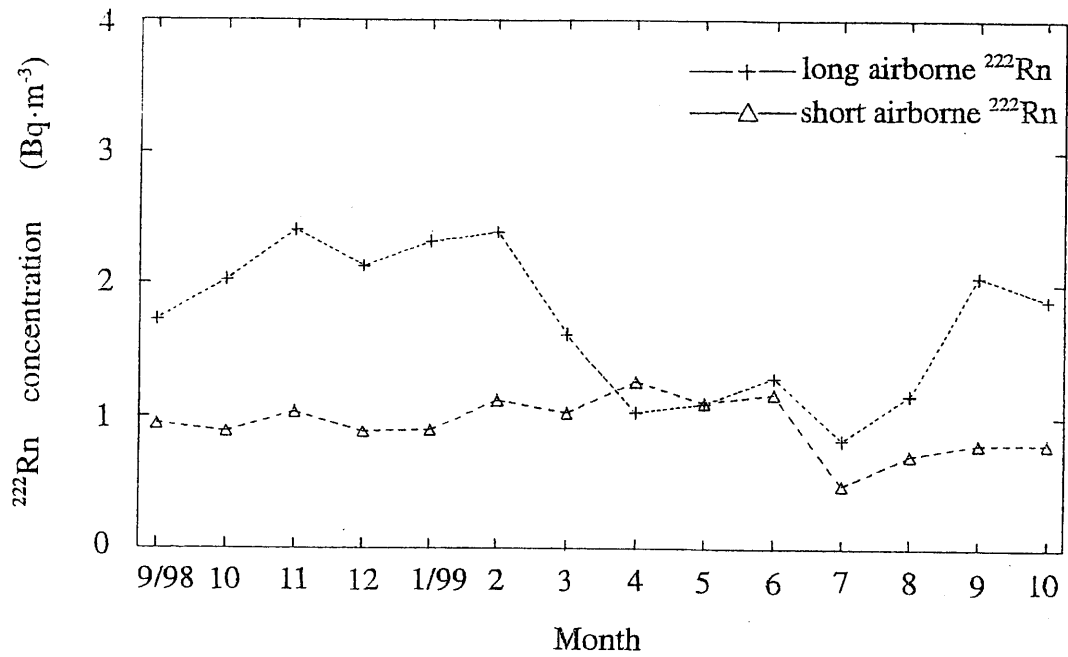


Fig. 4-7 The long variations of estimated long and short airborne ^{222}Rn s from observations of ^{222}Rn concentration in FA site by using the vertical two layers model.

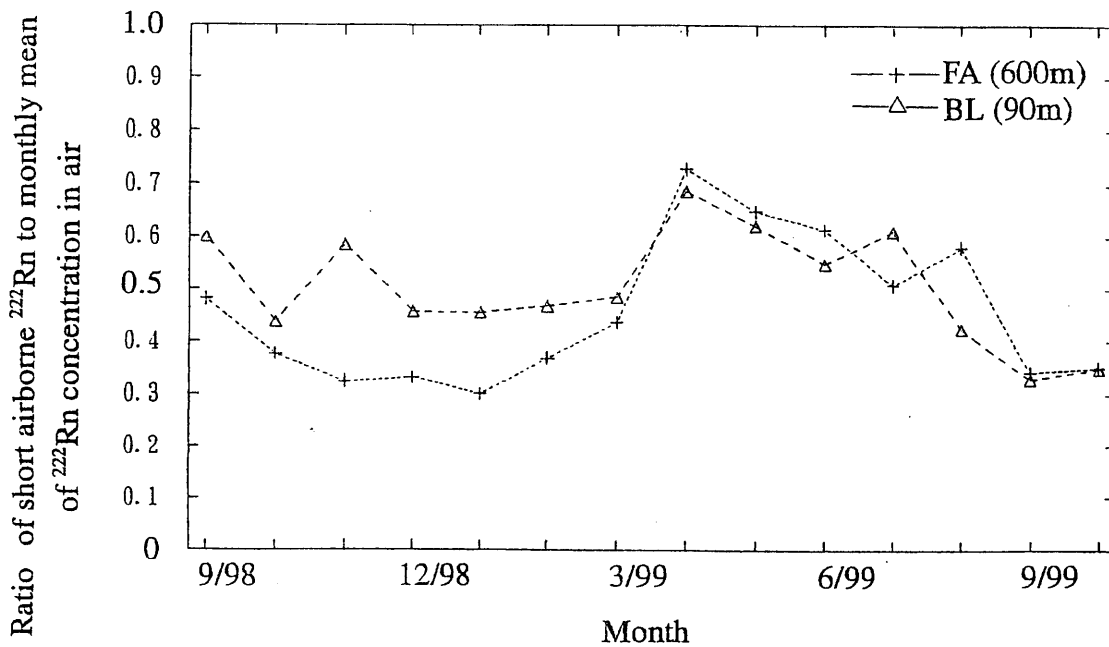


Fig. 4-8 The difference of long variations between BL and FA sites of estimated short airborne ^{222}Rn from each observation by using the vertical two layers model.

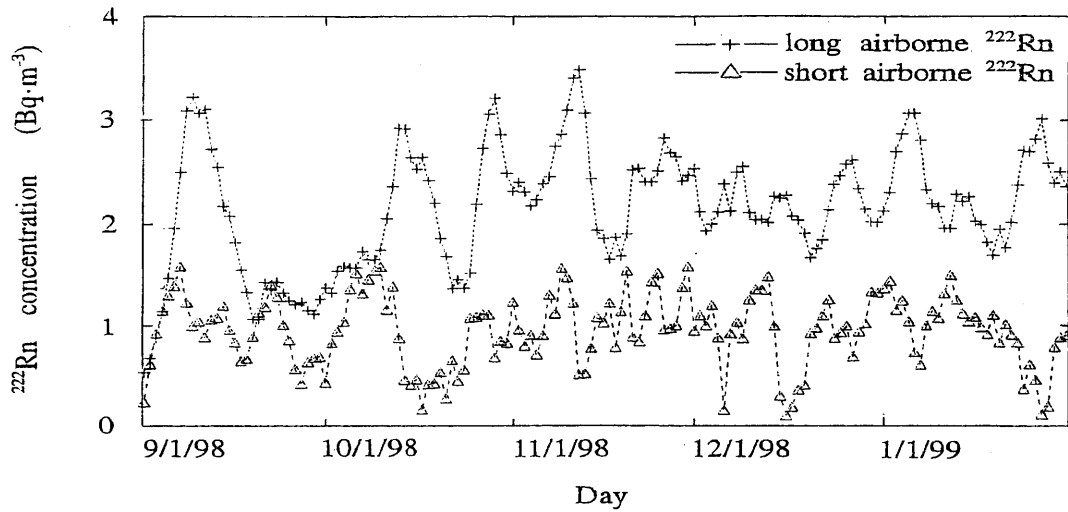


Fig. 4-9-1 Daily variations of estimated long and short airborne ^{222}Rn from observations of ^{222}Rn concentration in FA site by using the vertical two layers model. (1 Sept. 1998 ~ 31 Jan. 1999)

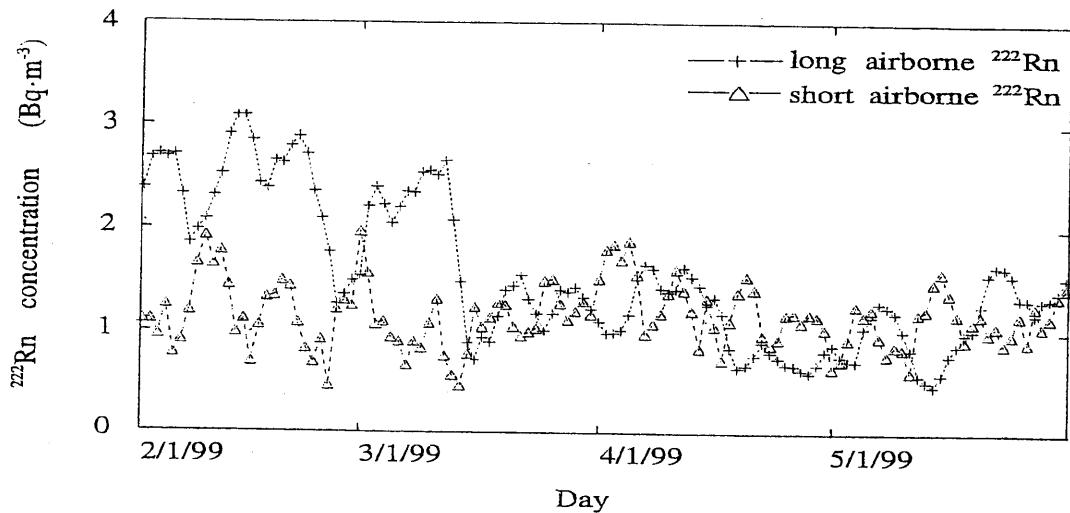


Fig. 4-9-2 Daily variations of estimated long and short airborne ^{222}Rn from observations of ^{222}Rn concentration in FA site by using the vertical two layers model. (1 Feb. 1999 ~ 31 May 1999)

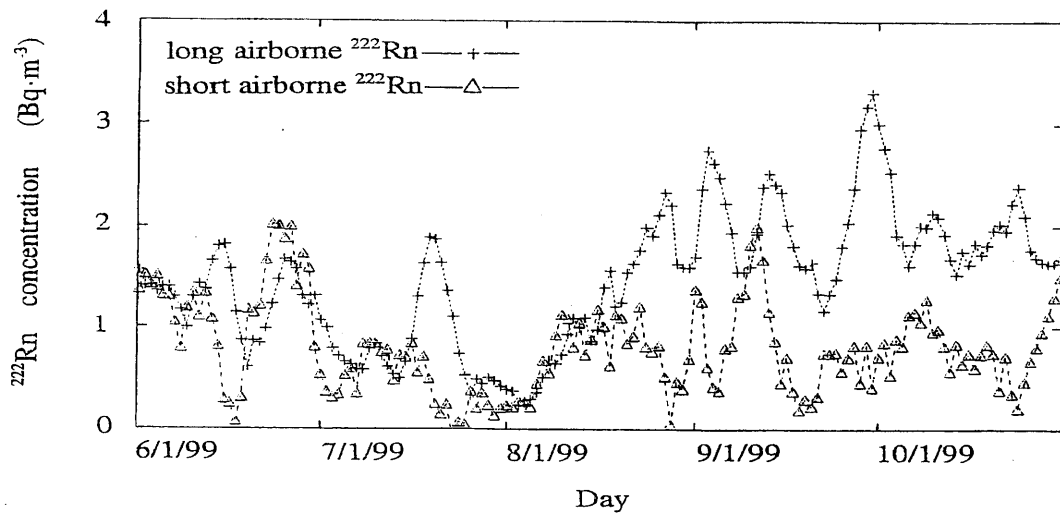


Fig. 4-9-1 Daily variations of estimated long and short airborne ^{222}Rn from observations of ^{222}Rn concentration in FA site by using the vertical two layers model. (1 Jun. 1999 ~ 31 Oct. 1999)

4-5 結論

- (1) 鉛直混合2層モデルによりFApointの日の出直前のラドン濃度の測定値から隠岐島周辺の大気境界層の長期浮遊ラドン濃度を推定することができた。長期浮遊ラドンの大気中濃度は11月から2月までの寒候期には $2\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ を超える高い値であり、4月から8月までの暖候期には約 $1\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 程度の低い値であった。
- (2) FApointの日没時のラドン濃度と上記で推定した長期浮遊ラドン濃度の差から短期浮遊ラドン濃度を推定することができた。FApointの短期浮遊ラドン濃度は4月から6月には約 $1.1\sim 1.3\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ で少し高いがそれ以外の季節は約 $0.5\sim 1.0\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 程度の値であった。
- (3) BLpointの日没直前のラドン濃度と上記で推定した長期浮遊ラドン濃度の差からBLpointの短期浮遊ラドン濃度を推定することができた。BLpointの短期浮遊ラドンとFApointのその長期変動傾向の違いは11月から2月に認められるが、その違いは大気境界層の拡散輸送特性の鉛直分布、特に接地境界層の鉛直拡散の影響に依存していることが明らかになった。

- (4) 隠岐島のラドン濃度の長期変動;11月から2月に高く5月から8月に低い月平均値, は主に長期浮遊ラドンの変動によることが明らかになり、短期浮遊ラドンの長期変動に与える影響はほとんど認められなかった。更に、短期浮遊ラドンの長期変動はほとんど認められなかったが、4月から8月に高い構成比であった。
- (5) B L point と F A point の大気中ラドン濃度の連続測定によって大気境界層の拡散輸送特性の鉛直分布を推定できることが明らかになった。また、大気境界層の鉛直混合2層モデルを仮定することによってB L point と F A point の大気中ラドン濃度の鉛直分布の時間変化を合理的に説明することができた。
- (6) 適切な測定場所を選定し大気中ラドン濃度の鉛直分布を連続測定することは、大気境界層の拡散輸送特性の空間分布の時間変動を気象観測に頼らずリアルタイムにモニタリングする手法として非常に有効であることが明らかになった。

4-6 今後の研究の進め方

われわれは長期浮遊ラドンの時間変動を推定するための本モデルの妥当性を確認するためには高層風の観測データとの比較解析を行って議論することが必要であると考えている。また、その長期変動の原因を明らかにするためには、日本列島、韓国および中国などのラドン濃度の測定結果との比較解析や流跡線解析などによって水平輸送モデルを仮定し検討することも必要である。そして、長期浮遊ラドンの高度分布を推定するためには雨水中のラドン娘核種濃度との比較解析も重要である。

参考文献

- (1) K. YOSHIOKA, The vertical profile of ^{222}Rn concentration in the lower atmospheric boundary layer at Shimane peninsula, Radon And Thoron In The Human Environment, World Scientific Publishing, 1998.
- (2) M. WIKENING, Radon in the Environment, ELSEVIER, 1990.
- (3) T. IIDA, Y. IKEBE, et al., Continuous measurements of outdoor radon concentrations at various locations in east Asia, Environmental International 22(1), s139-s147, 1996.

- (4) 浅井富雄, 大気対流の科学, 東京堂出版, 1983.
- (5) 近藤純正, 大気境界層の科学, 東京堂出版, 1982.
- (6) J. C. KAIMAL, The atmospheric boundary layer – its structure and measurement, 技報堂出版, 1993.
- (7) 浅井富雄, ローカル気象学, 東京大学出版会, 1996.
- (8) 竹内清秀, 近藤純正, 大気科学講座 1, 東京大学出版会, 1981.
- (9) T. E. GRANDEL, P. J. CRUTZEN, Atmosphere, Climate, and Change, 日経サイエンス, 1997.
- (10) 日本気象学会編, 気象科学事典, 東京書籍, 1998

第5章 まとめと今後の課題

5-1 結論

ラドンの広域成分の挙動解明を目的に、測定地点の数、測定地点の空間的広がり、の点で十分と言えるだけの測定点（煙台、ソウル、トンヘ、隠岐、金沢、名古屋）を選定し、ラドン濃度の測定を行った。その中でも特に、狭域成分の影響の小さい隠岐の五箇村で観測を行い、気象データや島根県衛生公害研究所の観測要素とともに解析を試みた。そして、隠岐ではラドンの広域成分を観測できたと言える。その理由として、日変動がほとんど観測されなかったこと、露点や流跡線で季節変動を説明できたこと、そして、オゾンや大気汚染物質と相関があることが挙げられる。

広域成分を測定できた隠岐の観測では、大気の挙動のシミュレーションの検証に用い得る信頼性のある観測値が得られたと言える。また、大気汚染物質やオゾンなどと比較できたため、ラドンのトレーサとしての利用価値をあらためて示す大変有意義な観測となった。

ラドン濃度変動と気象要素との相関を詳しく調べるために、気象庁が提供している地上気象観測値や高層気象観測値を用い、五箇村、・金沢・名古屋における測定値と比較した。手法として相関関数・パワースペクトルを計算する時系列解析を導入した。ラドンについても時系列解析が有効であることが分かった。

隠岐を含めた日本海域でラドンが他の物質と同じ挙動を示す観測結果が得られたことは大変意義深く、ラドンをはじめとする物質の大気中の挙動を解明するための基礎資料となりうる。以下、項目別に得られた結論をまとめる。

【ラドン濃度測定】

- (1) 全測定期間のラドン濃度平均値は、ソウルが $8.4 \pm 1.9 \text{ Bq m}^{-3}$ 、横尾山が $2.2 \pm 0.8 \text{ Bq m}^{-3}$ 、五箇村が $3.5 \pm 1.1 \text{ Bq m}^{-3}$ 、金沢が $5.6 \pm 0.7 \text{ Bq m}^{-3}$ 、名古屋が $5.3 \pm 1.9 \text{ Bq m}^{-3}$ であった。ただし98年12月以降のソウルの値は欠測が多いため信頼性は低い。各濃度は春期（3～5月）から夏期（6～8月）にかけて低く、秋期（9～11月）から冬期（12～1月）にかけて高くなる季節変動をした。
- (2) 露点温度や流跡線の由来が季節変動に影響する。広域ラドンが支配的な五箇村において月別の降雨量とラドン濃度との関係を調べた結果、降水量とラドン濃度の対応関係は見られなかった。

- (3) 日々の変動が観測され、この原因の一つとして前線の通過に伴う濃度上昇が挙げられる。オゾン濃度や大気汚染物質も同じ現象が見られた。

【気象要素との相関】

- (1) 相関関数・スペクトルを用いて気象要素との相関を調べ、これらの手法がラドン濃度変動解析にも適用できることが分かった。
- (2) 気圧との相関が見られた。金沢では低気圧に伴う降水による影響がみられた。そして、気圧に対して約一日後に日変動が回復することが分かった。
- (3) 五箇村におけるラドンと大気汚染物質の相関関数を調べたところ、降雨のない時期はラドンと大気汚染物質はよい相関関係であった。

【隠岐島の大気中ラドン濃度】

- (1) 鉛直混合2層モデルにより隠岐島周辺の大気境界層の長期浮遊ラドン濃度を推定できた。日没時のラドン濃度と長期浮遊ラドン濃度の差から短期浮遊ラドン濃度を推定できた。
- (2) 隠岐島のラドン濃度の長期変動；11月から2月に高く5月から8月に低い月平均値，は主に長期浮遊ラドンの変動によることが明らかになった。短期浮遊ラドンの長期変動に与える影響はほとんど認められない。
- (3) 大気中ラドン濃度の鉛直分布を連続測定することは、大気境界層の拡散輸送特性の空間分布の時間変動をリアルタイムにモニタリングする手法として非常に有効である。

5-2 今後の課題

ラドン濃度連続測定に関しては、欠測の問題が重要である。トンへ、隠岐のような遠隔地ではラドン濃度測定値を得るため、またメンテナンスのため測定点に足を運ばねばならないことが問題である。遠隔地におけるラドン濃度測定システムの監視は五酸化二リンの交換周期である1ヶ月おきになっているのが現状である。そのため将来はラドン濃度測定システムのオンライン化が望まれる。

本研究では、五箇村・名古屋・金沢の国内三地点だけを対象として時系列解析を行った。海外の地上気象データが入手できなかったためである。より詳しい解析をするためにより多くの地点の地上気象データを入手し、解析することが望まれる。また、ラドン濃度変動解析の分野での時系列解析手法はまだまだ始まったばかりであり、これから広範囲に用いられることを期待したい。さらに解析手法としても発展の余地がある。

気象現象は実験室系の測定とは異なり、再現性がなく偶発的に生じるものである。また考察に利用できるデータも限られている。そのため、現象の一般性を説明するためには、どのデータが使えるのか、どんな結果が得られるかを見定めた上で測定を行わなければならない。意義ある観測を行うためには、まず欠測のない測定を行う慎重さ、そして、気象データを積極的に収集する姿勢が求められる。以下、項目別に今後の課題の詳細な点について述べる。

【ラドン濃度の地上観測】

- (1) 大気中濃度だけではなくこの測定地点における散逸率も連続測定する。
- (2) その際、気象データが得られる地点を選択する。他の大気汚染物質などの観測があると理想的である。
- (4) 時系列解析の手法を発展させる。特に重回帰分析が有用であると思われる。

【解析手法】

- (1) 流跡線に関して、気塊の高度を考慮して気塊の方角・到達時間・高度の三つ変数について各濃度との関係を考察する。気塊の高度を考慮するには、地形データが必要である。
- (2) 三次元シミュレーションを行う。本研究からの具体的なフィードバックとしては、
 - (1) 隠岐（五箇村）は広域データが測定できるため有用である。
 - (2) 狭域成分が支配的な測定点においては降雨の影響を考慮しなければならない。その際、散逸率の計算も行う必要がある。
 - (3) これまでのモデルでは大気境界層以上の高度のラドン鉛直分布について論じられていない。実測値はある程度蓄積されてきたので、前線付近や低気圧中心のラドン鉛直分布を把握することが期待される。大気境界層以上の高度では、ラドン濃度は気塊の経路に依存するため、地形データ、積雪データが必要である。まだ、今後の課題は山積しているものの、一つ一つ解決していくことでより一層この研究が深まり、ラドンの挙動解明の手がかりとなるであろう。
- (3) 長期浮遊ラドンの時間変動を推定するための鉛直混合2層モデルの妥当性の検証を行う必要がある。このためには高層風の観測データとの比較解析を行って議論することが必要である。