

# 放射性炭素の環境中移行

モニタリングデータとモデル検証プロジェクトは何を示唆する？



日本原子力研究開発機構

小嵐 淳

東海再処理施設 (TRP)の運転  
(1977年～)

国内

六ヶ所村の大型再処理施設が  
ホット試験開始 (2007年3月～)

国外

アジア地域における  
原子力利用の機運  
の高まり

**経験・知見**  
を活かした貢献

放射線防護に対する関心が増大  
(放射線防護の最適化の必要性)

原子力エネルギー利用の持続的発展

図0-1. 我々が今なすべきことは？

## 放射性炭素(炭素14, $^{14}\text{C}$ )

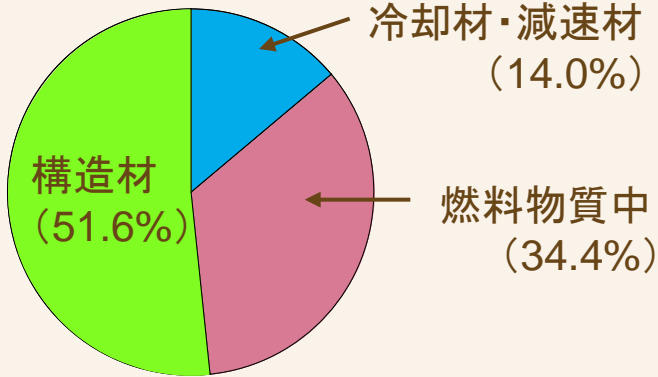
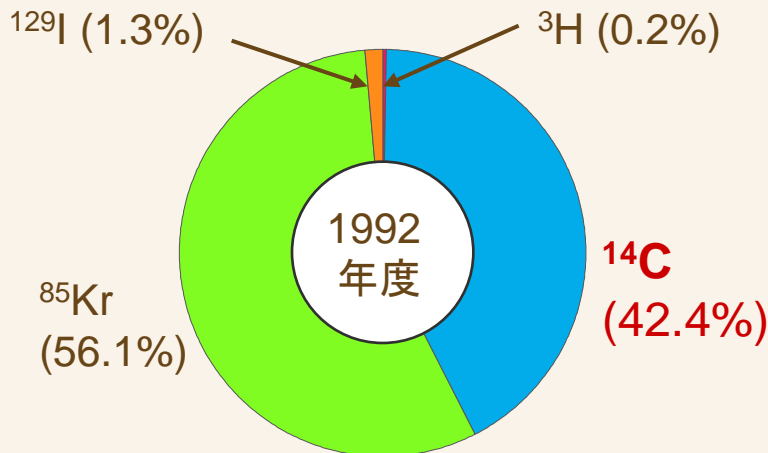


図0-2. BWRにおける $^{14}\text{C}$ 生成割合 (Kunz, 1985)

原子炉内で炭素, 酸素, 窒素の中性子放射化によって生成

使用済燃料の再処理に伴って、一部が再処理施設から環境中へ放出

$^3\text{H}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{129}\text{I}$  ...



$^{14}\text{C}$ は線量評価において最も重要な核種 (UNSCEAR, 2000)

大気→米→経口摂取の経路

図0-3. TRPによる陸域環境からの年間線量 ( $1.3\mu\text{Sv}$ )の内訳 (Takeishi et al., 2006)

## 内容:

1. TRPにおける $^{14}\text{C}$ モニタリング
2. モニタリングデータが示唆すること
3. IAEA-EMRASプロジェクト
4. TRPのデータを用いたモデル検証
5. まとめとこれから

# 1. TRPにおける $^{14}\text{C}$ モニタリング

## (1) 東海再処理施設について



写真1-1. 東海再処理施設

## ① TRPの設計

---

再処理量 :	210 tU/年 <sup>※1</sup>
燃焼度 :	28000 MWd/tU
冷却期間 :	180日
推定年間放出量 :	5.1 TBq/年

---

<sup>※1</sup> 2006年3月現在の再処理実績は約1100 tU

## ② モニタリングプログラム

- ・ 項目 :  
大気放出(毎週),  
周辺大気(毎月)  
米(毎年)  
気象観測など
- ・  $^{14}\text{C}$ モニタリングの公式開始:  
米は1982年~  
大気放出は1991年10月~

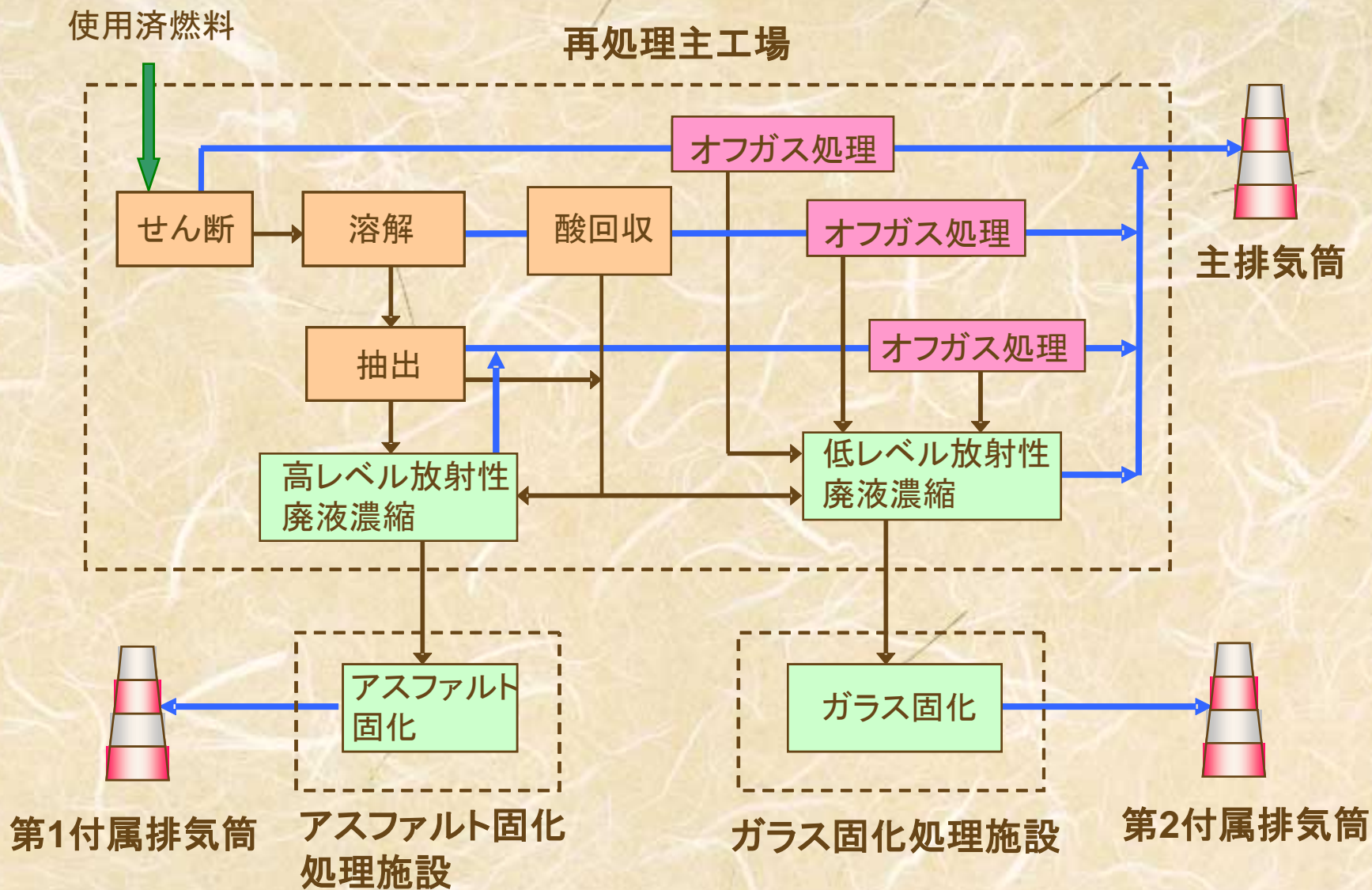
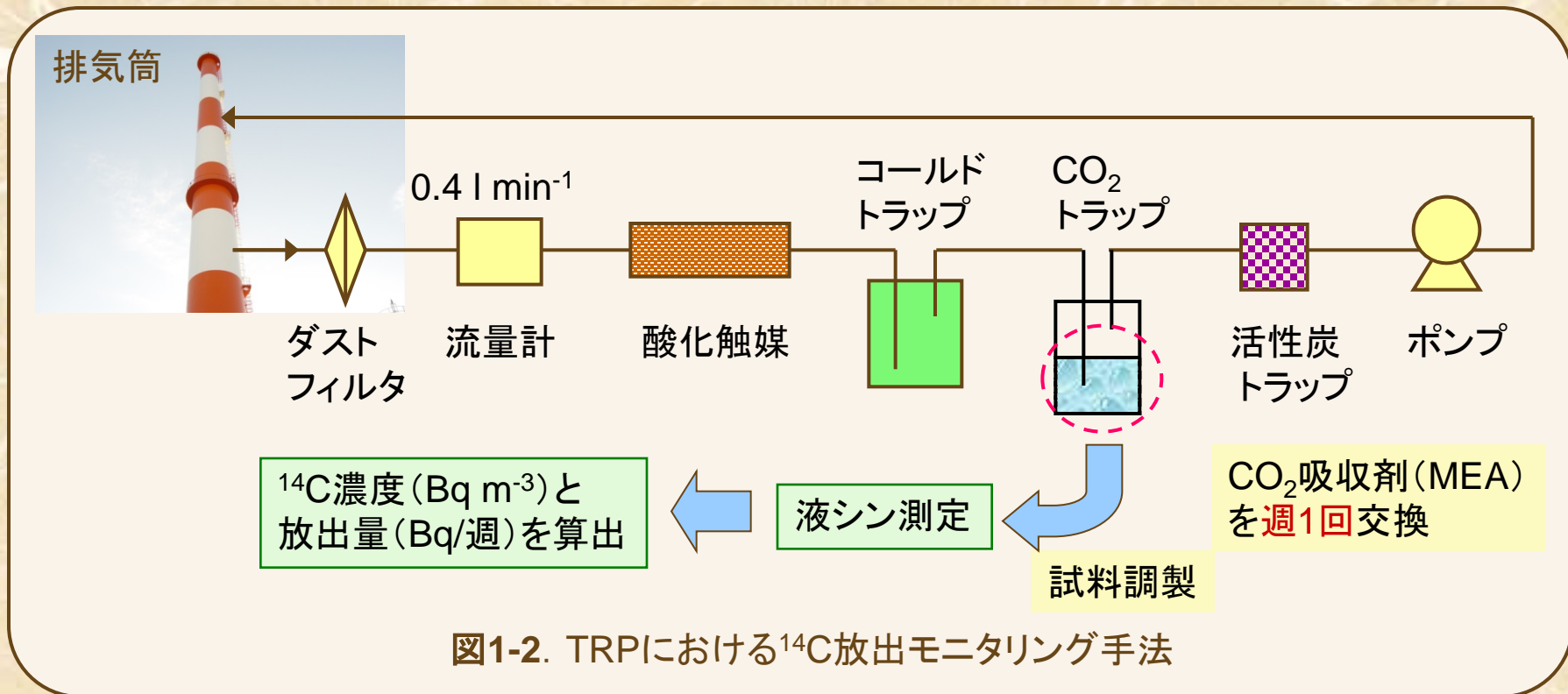


図1-1. TRPにおける再処理工程の概略

## (2) 放出モニタリング

- ① 主排気筒 : せん断・溶解をはじめ主要再処理工程からのオフガス
- ② 第1付属排気筒 : 低放射性液体廃棄物のアスファルト固化からのオフガス
- ③ 第2付属排気筒 : 高放射性液体廃棄物のガラス固化からのオフガス



### 【 放出に関する知見 】

- ・ 使用済み燃料中<sup>14</sup>Cの約3.7～24.1%が大気中へ放出 (Koarashi et al., 2008a)
- ・ 主排気筒から放出される<sup>14</sup>Cは97%～がCO<sub>2</sub>の化学形態 (Koarashi et al., 2005)

### (3) 環境モニタリング

#### ① 月間平均の大気CO<sub>2</sub>中<sup>14</sup>C濃度

地点	主排からの位置	データセット
ST-1	0.5 km・北西	1991.1-1994.2
ST-2	4.2 km・北西	1993.4-1994.3
ST-3	2.8 km・南西	1991.1-1997.1
ST-4	5.2 km・西南西(C)	1991.5-1995.12
ST-N	14.6 km・西北西(C)	1991.1-1996.6

#### ② 収穫時の米中<sup>14</sup>C濃度

地点	主排からの位置	データセット
R-1	1.9 km・西南西	1991-2001
R-2	1.0 km・西	1991-2001
R-3	11.8 km・西(C)	1991-2001

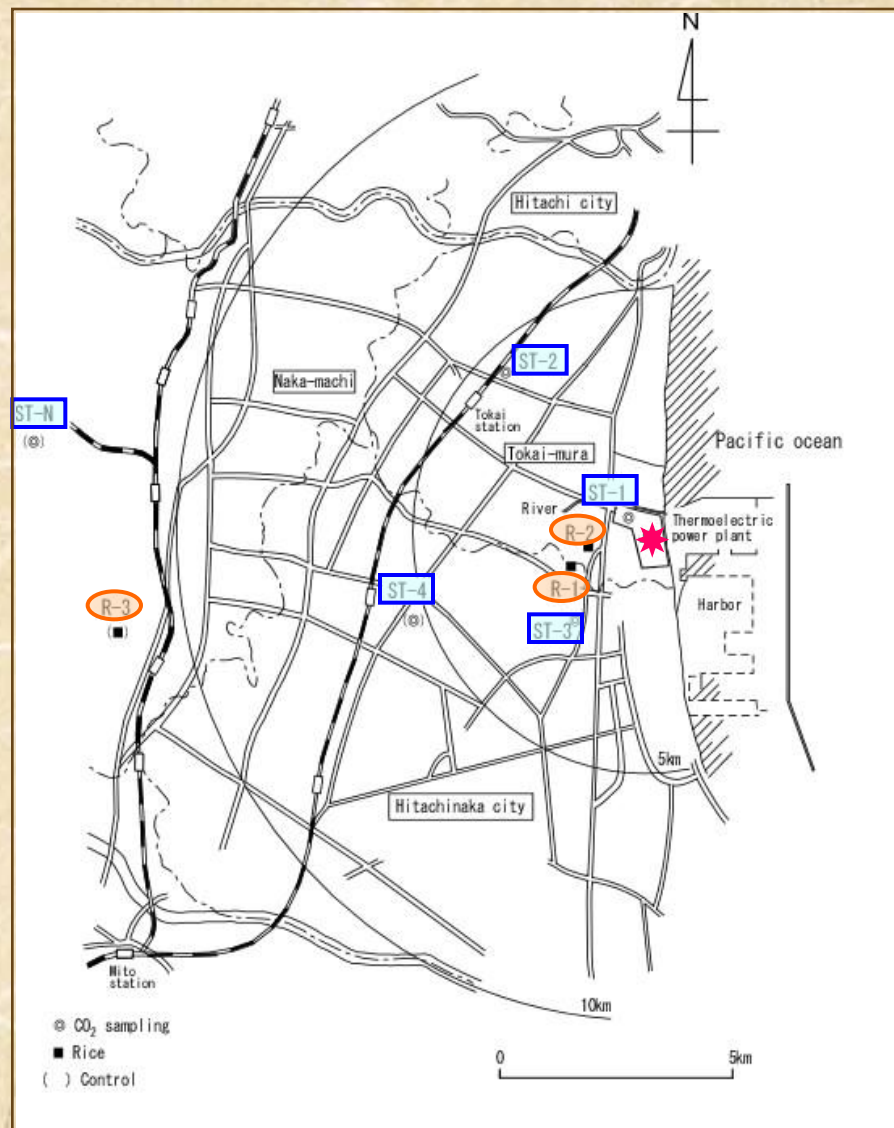


図1-3. TRPにおける<sup>14</sup>C環境モニタリング地点



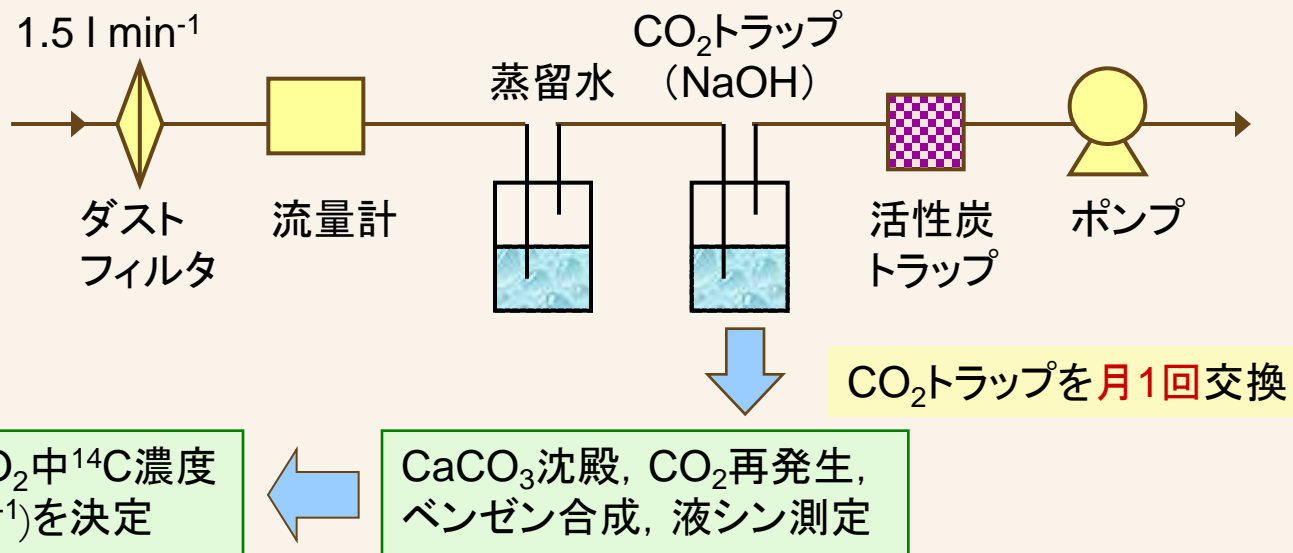


図1-4. 大気CO<sub>2</sub>中<sup>14</sup>C濃度(月平均)のモニタリング手法

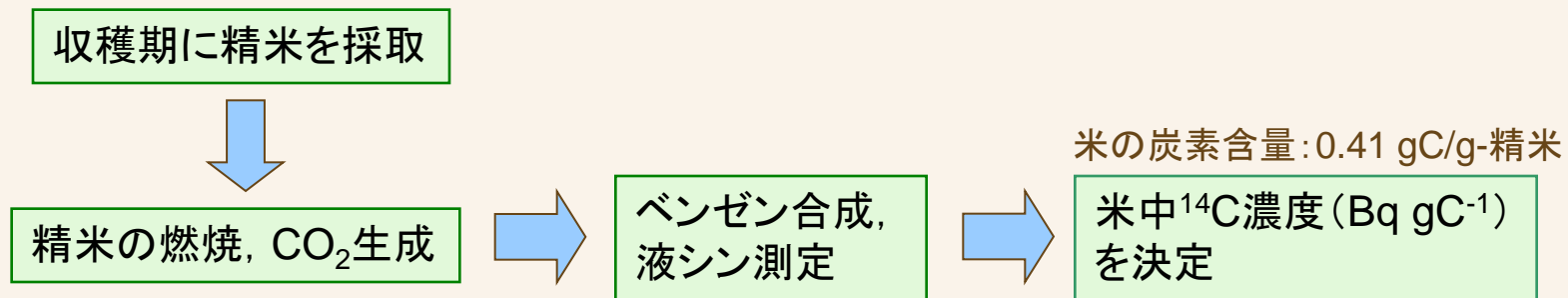


図1-5. 米中<sup>14</sup>C濃度のモニタリング手法

## (4) 気象モニタリング

- ① 風向・風速 (海拔100 m, 地上10 m)
- ② 降雨量
- ③ 大気温度, 相対湿度 (地上1.5 m)
- ④ 日射・放射収支量 (地上1.5 m)

### 【気象条件の特徴 (中野ら, 2006)】

- ・ 南西方向への風向出現頻度が高く, 年間変動は小さい
- ・ 大気安定度DとFの出現頻度が高く, 年間変動は小さい



写真1-2. 気象観測塔全景

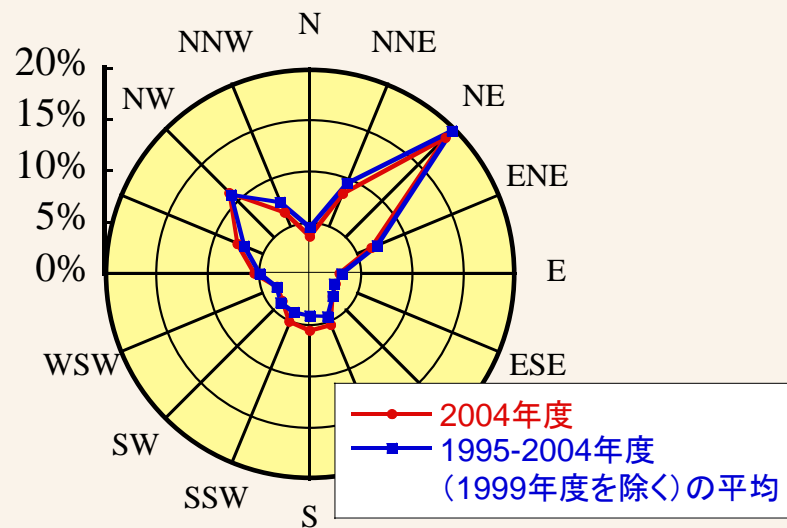


図1-6. 風向出現頻度

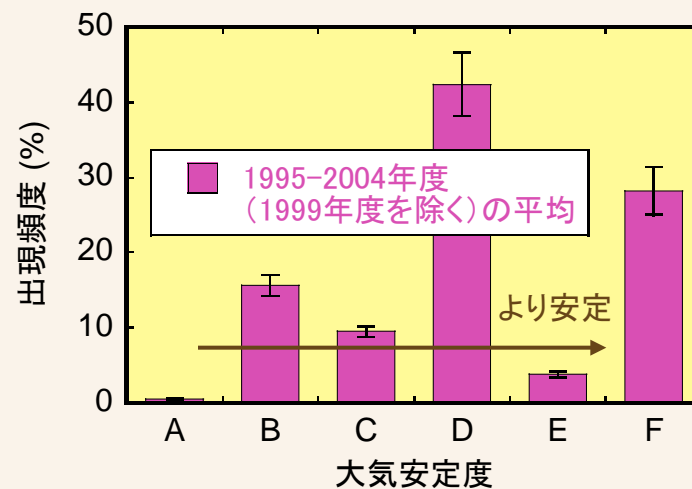


図1-7. 大気安定度出現頻度

## 2. モニタリングデータが示唆すること

### (1) 年間放出量

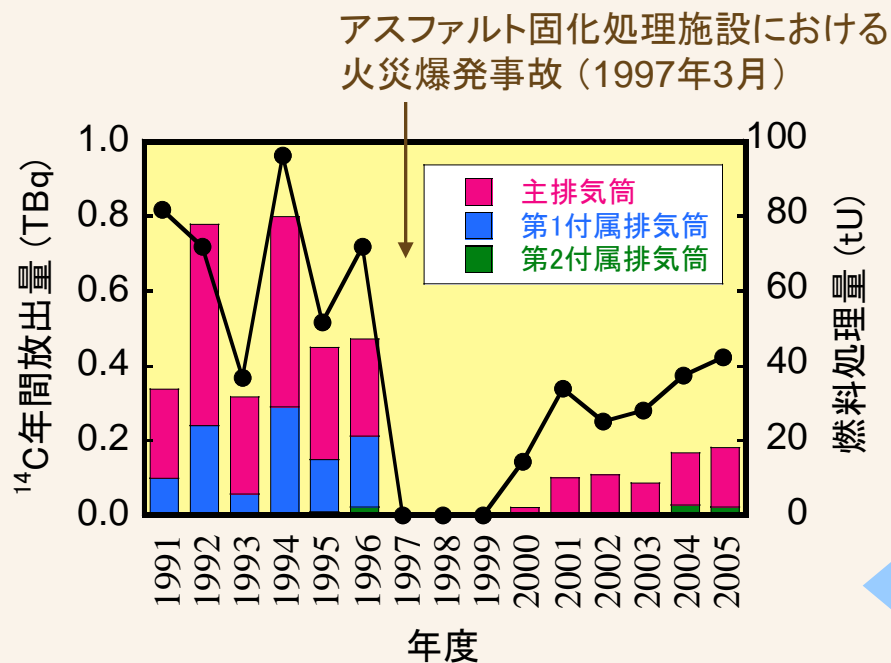


図2-1. TRPからの<sup>14</sup>C年間放出量(年度ごと)

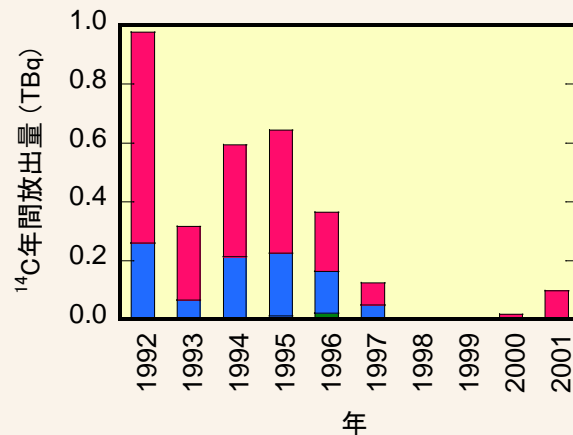


図2-2. <sup>14</sup>C年間放出量(年ごと)



写真2-1. 主排と第1付排

### 【年間放出量の特徴】

- ・ 燃料処理量は<100 tU/年度
- ・ 1994年度に最大放出量0.80 TBq(1992年に最大0.98 TBq) < 放出限度5.1 TBq
- ・ 1997年3月以前: 主排気筒と第1付排, 2000年7月以降: 主排気筒

## (2) 海外再処理施設との放出量比較 (UNSCEAR, 2000)

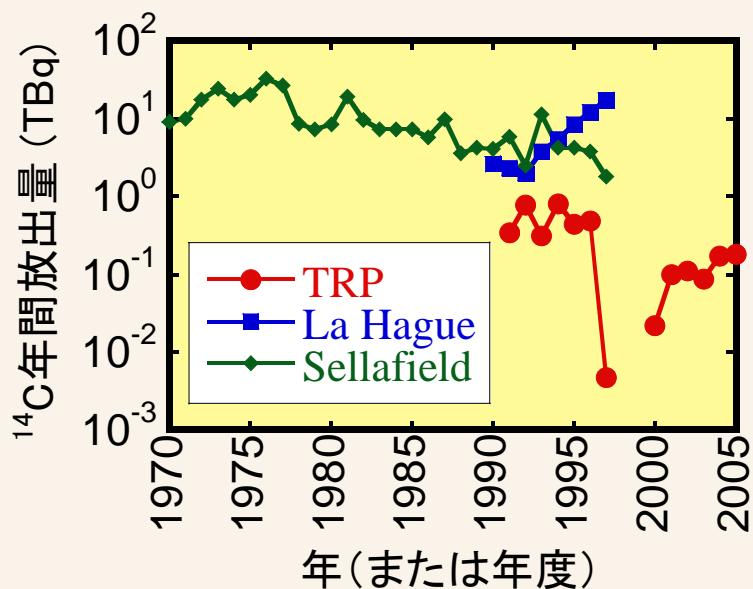


図2-3. TRPからの年間 $^{14}\text{C}$ 放出量

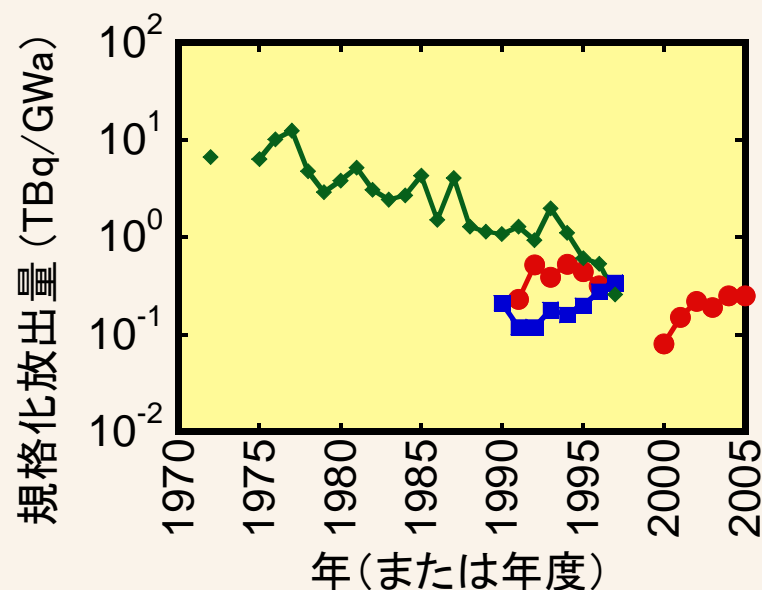


図2-4. 規格化放出量

### 【TRPからの $^{14}\text{C}$ 放出の特徴】

- ・ TRPからの放出量は、海外再処理施設からの放出量よりも一桁程度小さい
- ・ 規格化放出量(1992-1997年度平均:0.45 TBq/GWa)は、同レベル

### (3) 大気CO<sub>2</sub>中の<sup>14</sup>C濃度(月平均)

大気中<sup>14</sup>Cの年間平均濃度 (Bq gC<sup>-1</sup>)

地点	濃度範囲	
ST-1	0.264-0.265	(1991-1993)
ST-2	0.259	(1993)
ST-3	0.259- <b>0.274</b>	(1991-1996)
ST-4	0.259-0.263	(1991-1995)
ST-N	0.257-0.262	(1991-1996)
BG※	0.251-0.264	(1991-1996)

※府馬ら, 2002

#### 【大気中<sup>14</sup>C濃度の特徴】

- ・ ST-N地点はほぼBGLレベル
- ・ ST-3地点(2.8 km・南西)でわずかに増加傾向
- ・ ST-2(4.2 km・北西), ST-4(5.2 km・西南西)地点での増加は小

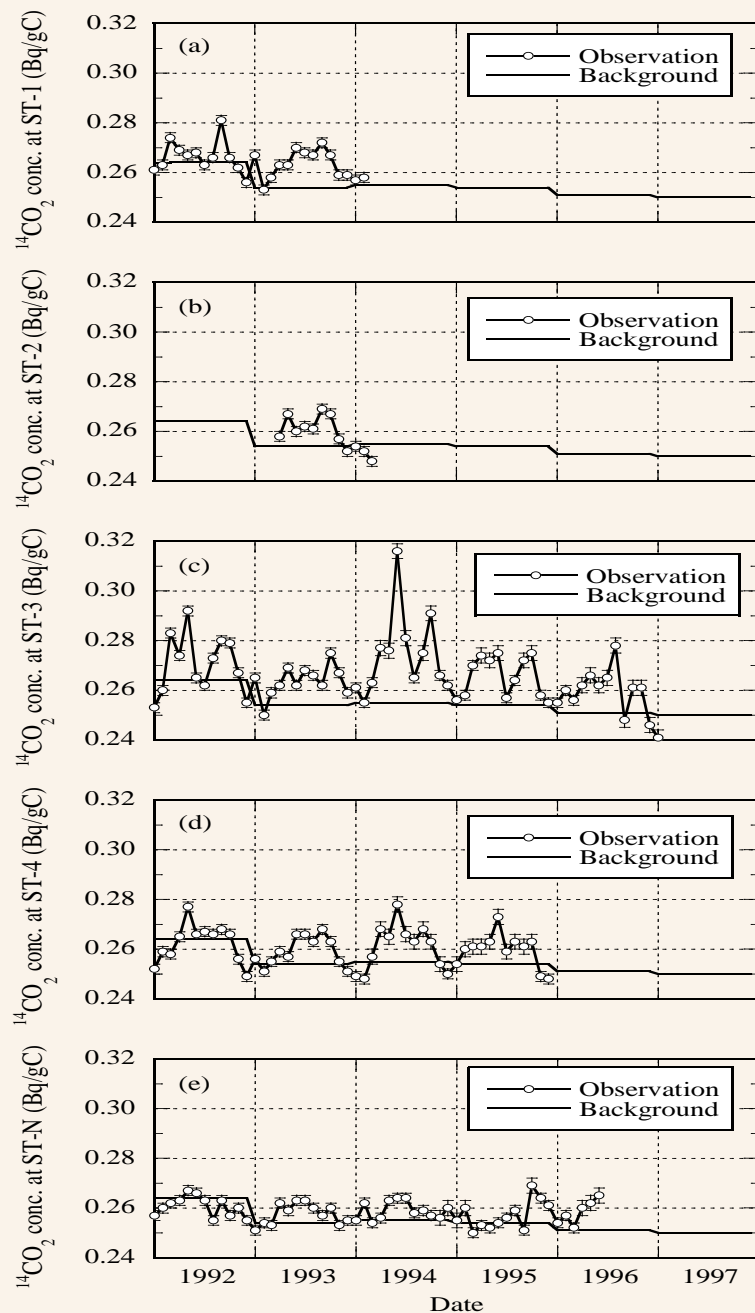


図2-5. 大気中<sup>14</sup>C濃度(月平均)

#### (4) 大気中 $^{14}\text{C}$ 濃度と放出量の関連性

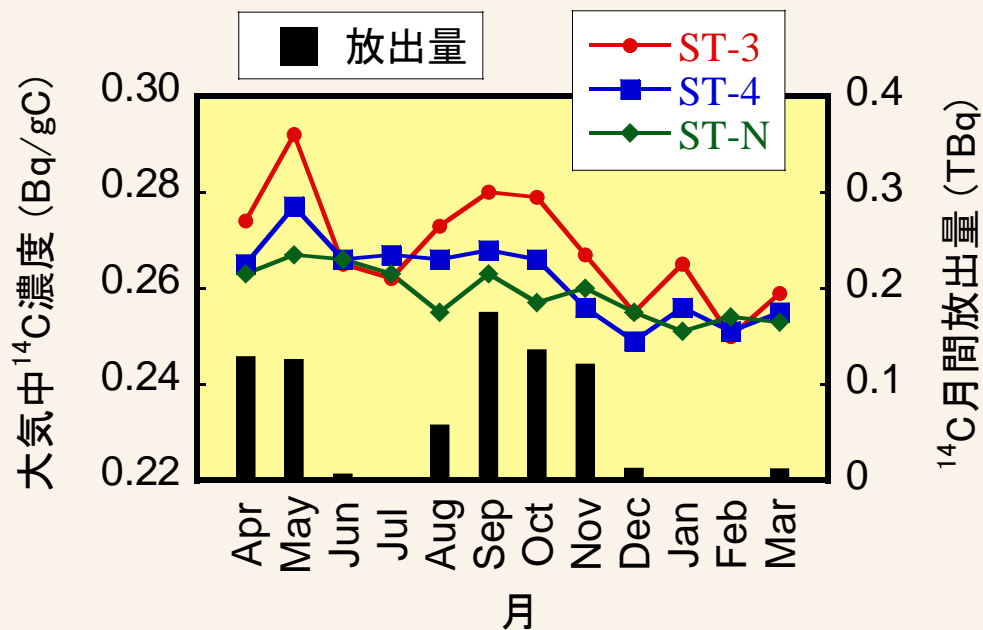


図2-6. 1992年度における $^{14}\text{C}$ 放出量と大気中濃度

#### 【関連性のから見えること】

- ・ TRPを起源とする $^{14}\text{C}$ が、大気中濃度に影響を及ぼす範囲は5 km以内
- ・ 放出のない期間の濃度増加はなく、大気中での $^{14}\text{C}$ の滞留はない

## (5) 収穫時の米中<sup>14</sup>C濃度

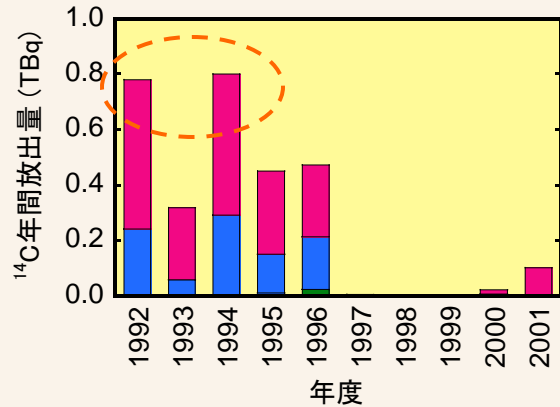


図2-7. <sup>14</sup>C放出量(年度ごと)

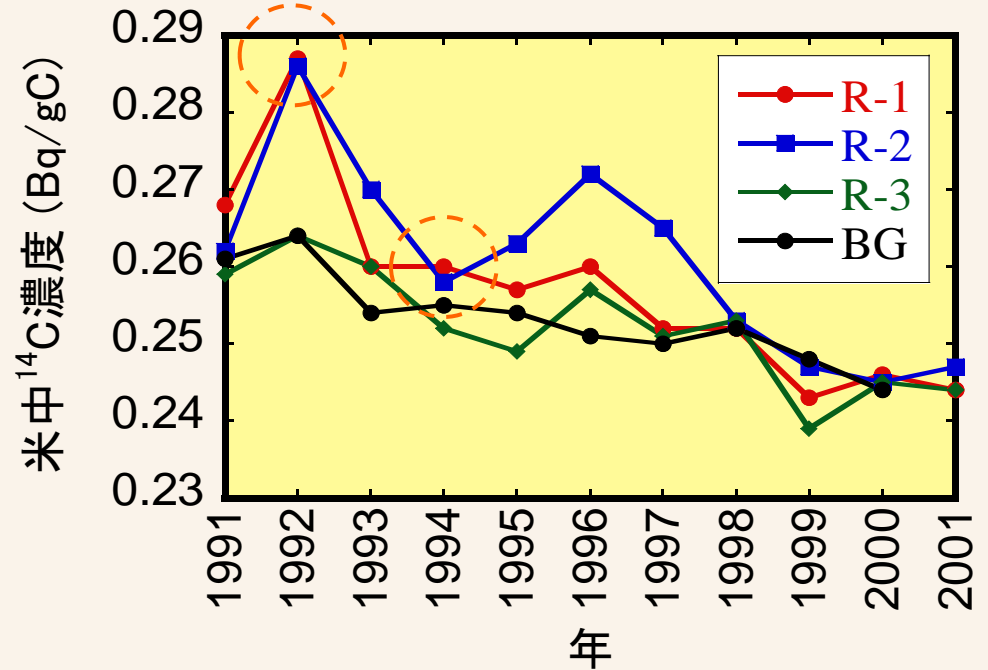


図2-8. 米<sup>14</sup>C濃度

### 【米中<sup>14</sup>C濃度の特徴】

- ・ R-1, R-2地点でBG(およびR-3地点)と比較して高い濃度
- ・ 1992年と1994年の比較から, 年間放出量と相関性が乏しい

年度	年間放出量	米中 <sup>14</sup> C濃度
1992	0.78 TBq	<b>0.287</b> Bq gC <sup>-1</sup>
1994	0.80 TBq	<b>0.260</b> Bq gC <sup>-1</sup>

## (6) 1992年と1994年で米中<sup>14</sup>C濃度がなぜ違う？

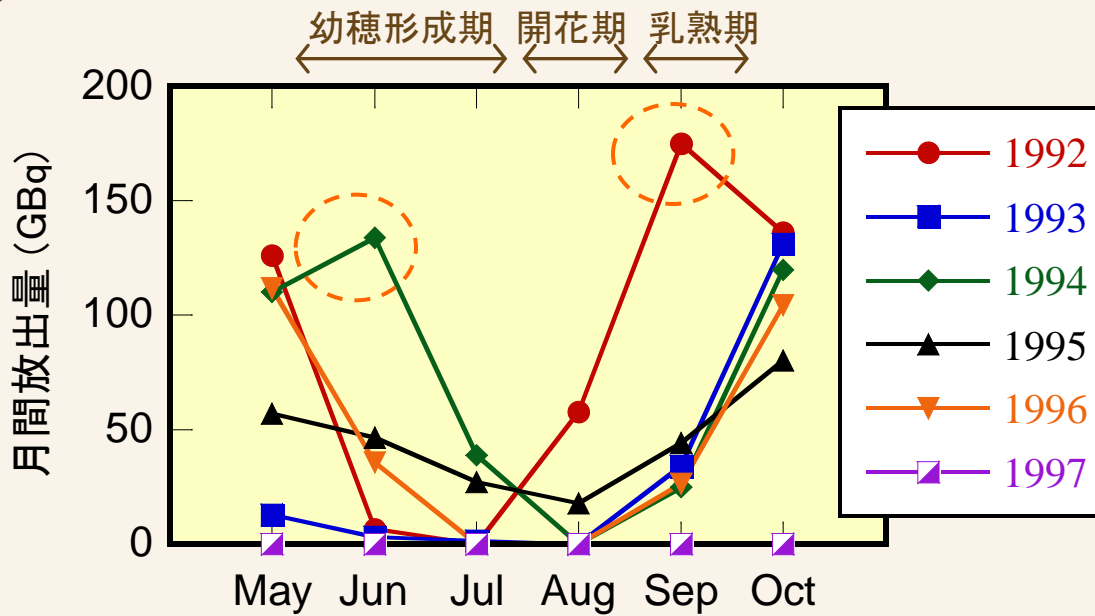


図2-9. 稲の生育期間中の<sup>14</sup>C月間放出量



移植前(5月中旬)



移植後

収穫  
(9月下旬)



乳熟期



出穂・開花期  
(8月上旬)



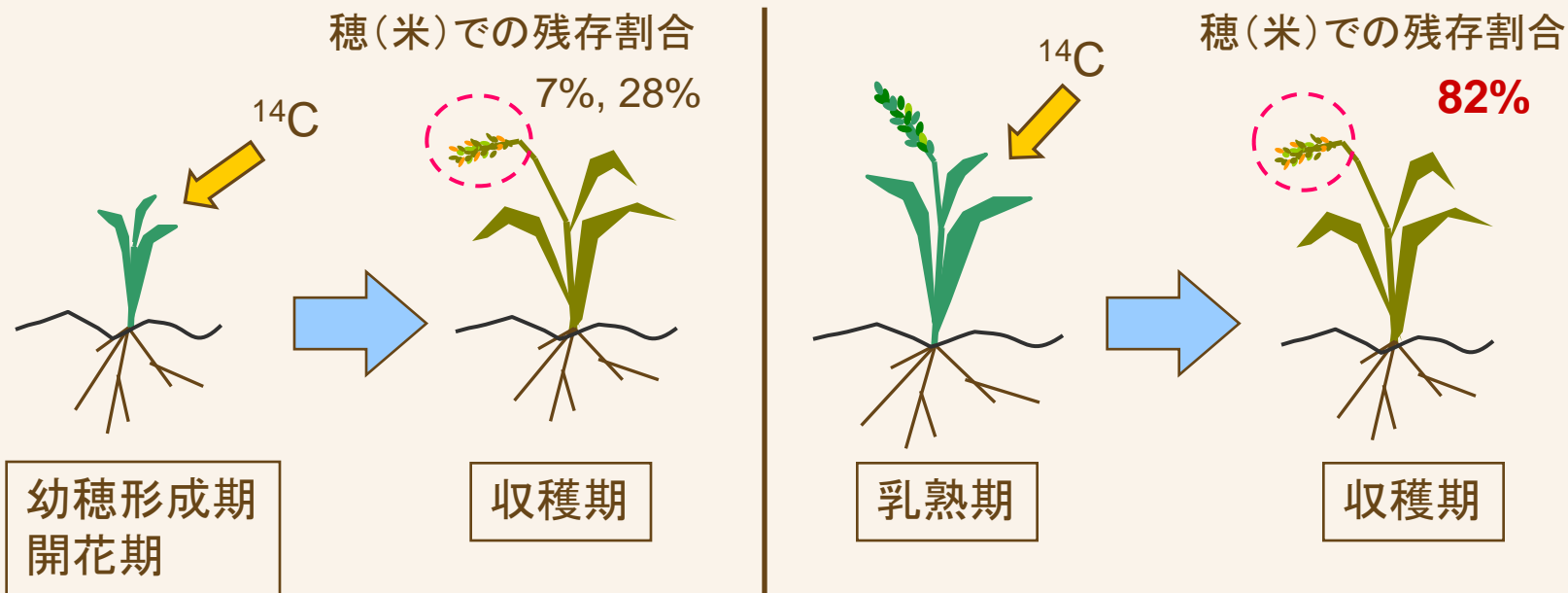


図2-10. 光合成産物の穂への移行 (大崎&田中, 1979)

### 【 実フィールドデータから推察できること 】

- ・ 放出“量”のみならず, 放出“時期”が米中 $^{14}\text{C}$ 濃度に影響
- ・ 特に収穫前の2ヶ月間(出穂開花～乳熟期)

### 3. IAEA-EMRASプロジェクト (<http://www-ns.iaea.org/projects/emras/>)

#### (1) EMRAS (Environmental Modelling for Radiation Safety)

- ・ IAEA主催のプロジェクト(2003年9月～2007年11月)
- ・ 特に**放出及びその後の環境中核種移行のモデル予測**において不確かさが残る課題(モデリング)に焦点
- ・ 3つのテーマ(7つのワーキンググループ)により構成

#### (2) EMRASに期待されるアウトプット

- ・ 環境中核種移行モデルにしようされる最新の科学的**データのレビュー**
- ・ **モデルの開発・改良**と予測における不確かさの低減  
⇒ 公衆の放射線防護の最適化
- ・ IAEAハンドブック(Technical Report No.364)の改訂とプロジェクトレポートの公刊

### (3) EMRASの構成

#### EMRAS

##### (T1) 核種放出評価

(WG1) Technical Report No.364の改訂  
(核種移行パラメータに関するHB)

(WG2) トリチウムとC-14の環境中移行

(WG3) チェルノブイリからのI-131放出

(WG4) 水圏(流域河川)における核種移行

##### (T2) 環境修復

(WG1) NORM(自然放射性物質)の放出

(WG2) 汚染した都市地域の環境修復

##### (T3) 環境の防護

(WG1) ヒト以外の生物種に対する線量評価

## (4) トリチウムと<sup>14</sup>Cの環境中移行ワーキンググループ

### ① 目的

- ・ 状況に応じて適切な予測結果を導くモデリングアプローチを検討・提供
- ・ 環境移行モデルによる予測の信頼性を獲得
- ・ モデル検証用データセットが得られる実験研究を促進させる

### ② モデル検証ステップ

- ・ シナリオリーダーによる**シナリオの立案**
- ・ モデラーによるシナリオエンドポイントのモデル計算(**ブラインドテスト**)
- ・ モデル及び予測結果の比較,  
**実測結果との比較**
- ・ モデルへの**フィードバック**,  
予測精度の**評価**, **知見の整理**, 等



写真3-1. 2004年4月LLNLにて

# 4. TRPのデータを用いたモデル検証

## (1) The Rice Scenario (Koarashi, 2005)

### ① ターゲット

大気放出された $^{14}\text{C}$ の米への移行

### ② 対象期間

1991年～2001年

### ③ シナリオが提供するデータ

- ・ 放出源情報
- ・ 気象データ, 等

### ④ シナリオが要求する予測対象

- ・ 大気中 $^{14}\text{C}$ 濃度 (ST地点)
- ・ 米中 $^{14}\text{C}$ 濃度 (R地点)

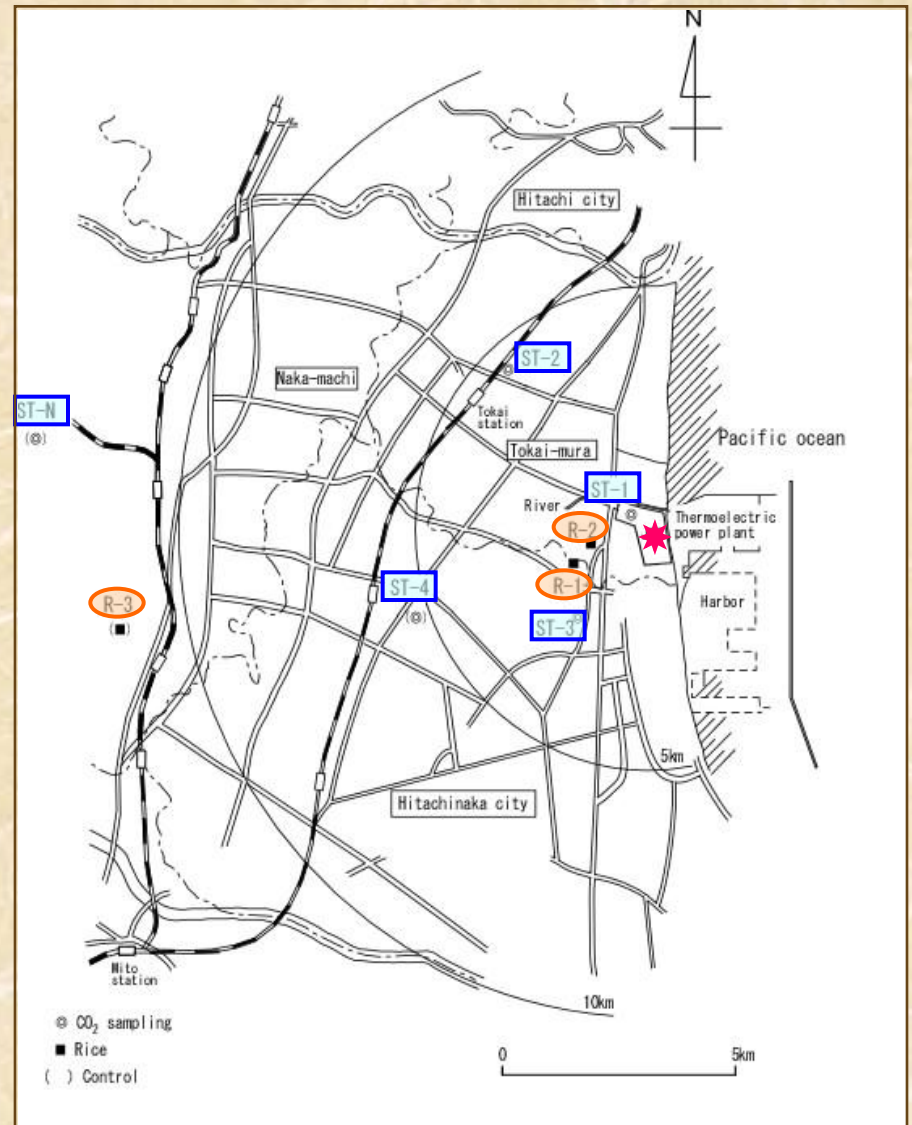


図4-1. The Rice Scenarioが対象とする領域

## シナリオが提供するデータ

- ・  $^{14}\text{C}$ 放出量（排気筒ごと, GBq/週）
- ・ 排気筒情報（高さ, 放出口直径, 排気速度, 排気温度等）
- ・ 気象データ（1時間値）
- ・ 各地点の緯度経度
- ・ 日本の年平均 $^{14}\text{C}$ バックグラウンド濃度（府馬ら, 2002）
- ・ 水田管理スケジュール等

## モデラー

モデル構築・計算

## シナリオが要求する予測結果

- ・ ST-1~3, N地点の1992年~1997年の各年5月~10月の月平均の大気中 $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq gC}^{-1}$ )
- ・ R-1~3地点で1992年~2001年に収穫された米中の $^{14}\text{C}$ 濃度 ( $\text{Bq gC}^{-1}$ )

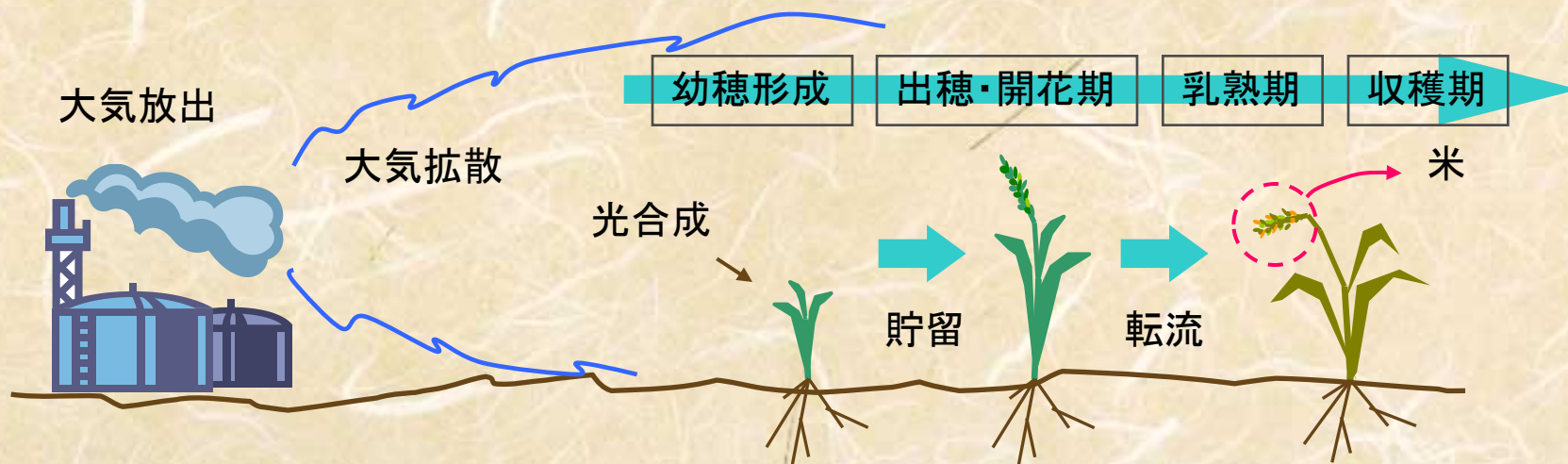


図4-2. The Rice Scenarioがターゲットとする $^{14}\text{C}$ 環境中移行

## (2) モデル計算参加者

- (1) P. A. Davis  
Atomic Energy of Canada Limited (**AECL**)  
Canada
- (2) D. Galeriu & A. Melintescu  
“Horia Hulubei” National Institute for Physics and Nuclear Engineering (**IFIN**)  
Romania
- (3) M. Saito  
Kyoto University Safety Reassurance Academy (**SRA**)  
Japan
- (4) F. Siclet  
Electricite de France (**EDF**)  
France
- (5) S. Uchida, H. Takeda, K. Tagami, T. Takahashi & K. Yamamoto  
National Institute of Radiological Sciences (NIRS) (**UTTY**)  
Japan

### (3) 大気拡散のモデリングアプローチ

Model (Modeller)	AECL (P. A. Davis)	EDF (F. Siclet)	IFINa (D. Galeriu and A. Melintescu )	IFINb (D. Galeriu and A. Melintescu )	SRA (M. Saito)	UTTY (S. Uchida et al.) <sup>a</sup>
Type of model	Sector-averaged Gaussian plume	Gridded Gaussian plume (ADMS3)	Sector-averaged Gaussian plume	Sector-averaged Gaussian plume	Sector-averaged Gaussian plume	Sector-averaged Gaussian plume
Receptor size	16 sectors each 22.5° wide	100 m × 100 m grid	32 sectors each 11.25° wide	32 sectors each 11.25° wide	16 sectors each 22.5° wide	16 sectors each 22.5° wide
No. of sources considered	3 for ST-1; one for other receptors	3	3	3	3	1
Plume rise estimation	Briggs' equation	Jet equation in the ADMS3 tool	Equation in the scenario <sup>b</sup>	Equation in the scenario <sup>b</sup>	Equation in the scenario <sup>b</sup>	Equation in the scenario <sup>b</sup>
Wind data used for calculation	100 m above sea level	10 m above sea level <sup>c</sup>	100 m above sea level	100 m above sea level	100 m above sea level	100 m above sea level
Wind velocity adjustment	Reduction by a factor 0.75-0.9, depending on downwind distance	Automatic treatment by ADMS3	No	No	No	No
Roughness length	0.4 m	0.5 m	Not required	Not required	Not required	Not required
Equation for vertical dispersion parameter	Smith-Hosker approach	Equation in ADMS3 (based on Monin-Obhukov similarity theory)	$\sigma_z = a \cdot x^{0.711}$ , where a depends on stability class	$\sigma_z = a \cdot x^b$ , where a and b depend on stability class	Equations in Japanese Meteorological Guideline <sup>d</sup>	Equations in Japanese Meteorological Guideline <sup>d</sup>
Dry deposition	0.003 m s <sup>-1</sup>	Not considered	Not considered	Not considered	Not considered	Not considered
Wet deposition	Not considered	Not considered	Not considered	Not considered	Not considered	Not considered
Other considerations and remarks	The sectors in the dispersion model were centered on the receptor of interest.					

<sup>a</sup>Data set at 10 m above the sea-level was entered in the model to calculate wind speed and direction at emission height.

<sup>b</sup>Meteorological Guideline for the Safety Analysis of Nuclear Power Plants” by Nuclear Safety Commission of Japan:  $\sigma_z = \sigma_0 \cdot X^{a_1+a_2 \cdot \log x + a_3 \cdot (\log x)^2}$  24



## (4) 米への移行のモデリングアプローチ

Model (Modeller)	AECL (P. A. Davis)	EDF (F. Siclet)	IFINa (D. Galeriu and A. Melintescu )	IFINb (D. Galeriu and A. Melintescu )	SRA (M. Saito)	UTTY (S. Uchida et al.) <sup>a</sup>
Type of model	Specific activity equilibrium model	Dynamic compartment model	Plant growth and <sup>14</sup> C incorporation	Plant growth and <sup>14</sup> C incorporation	Specific activity equilibrium model	Dynamic compartment model
Period considered for calculation of <sup>14</sup> C in rice grain	May to October	May to September	Dependent on temperature	Dependent on temperature	August and September	May to September
Compartment composition	-	One vegetative (leaf, stem, root) and one for ear	-	-	-	Two organic, one inorganic and two environmental <sup>b</sup>
Growth curve	-	A logistic curve (fitted to the scenario data)	A logistic curve	A logistic curve	-	A sigmoidal curve
Dark respiration	-	No	No	No	-	Yes
Other considerations and remarks		Remobilization of plant <sup>14</sup> C through respiration. <sup>c</sup>				Two pathways of carbon transfer to ear. <sup>d</sup>

### シンプル

- ・ 静的
- ・ 高い蓋然性
- ・ パラメータ少

比放射能平衡モデル  
(AECL、SRA)

数式モデル  
(IFIN)

動的コンパートメントモデル  
(EDF、UTTY)

### より複雑

- ・ 動的
- ・ 高い適用性
- ・ パラメータ多

## (5) 大気中<sup>14</sup>C濃度の予測結果

### 【 予測結果の特徴 】

- ・ AECL: 大きさ, 変動傾向ともによく合っている。
- ・ EDF: ST-1で過大評価
- ・ IFIN: 1992年のST-1における変動をよく捉えている
- ・ SRA: 1992年のST-1で過小評価
- ・ UTTY: 全体的に過大評価傾向

### 【 全体的な評価 】

- ・ 予測／実測比はほぼ  
ファクタ3以内

### 【 影響を及ぼしうる要因 】

- ・ 吹上げ高さ
- ・ 拡散パラメータ
- ・ 環境媒体との相互作用, 等

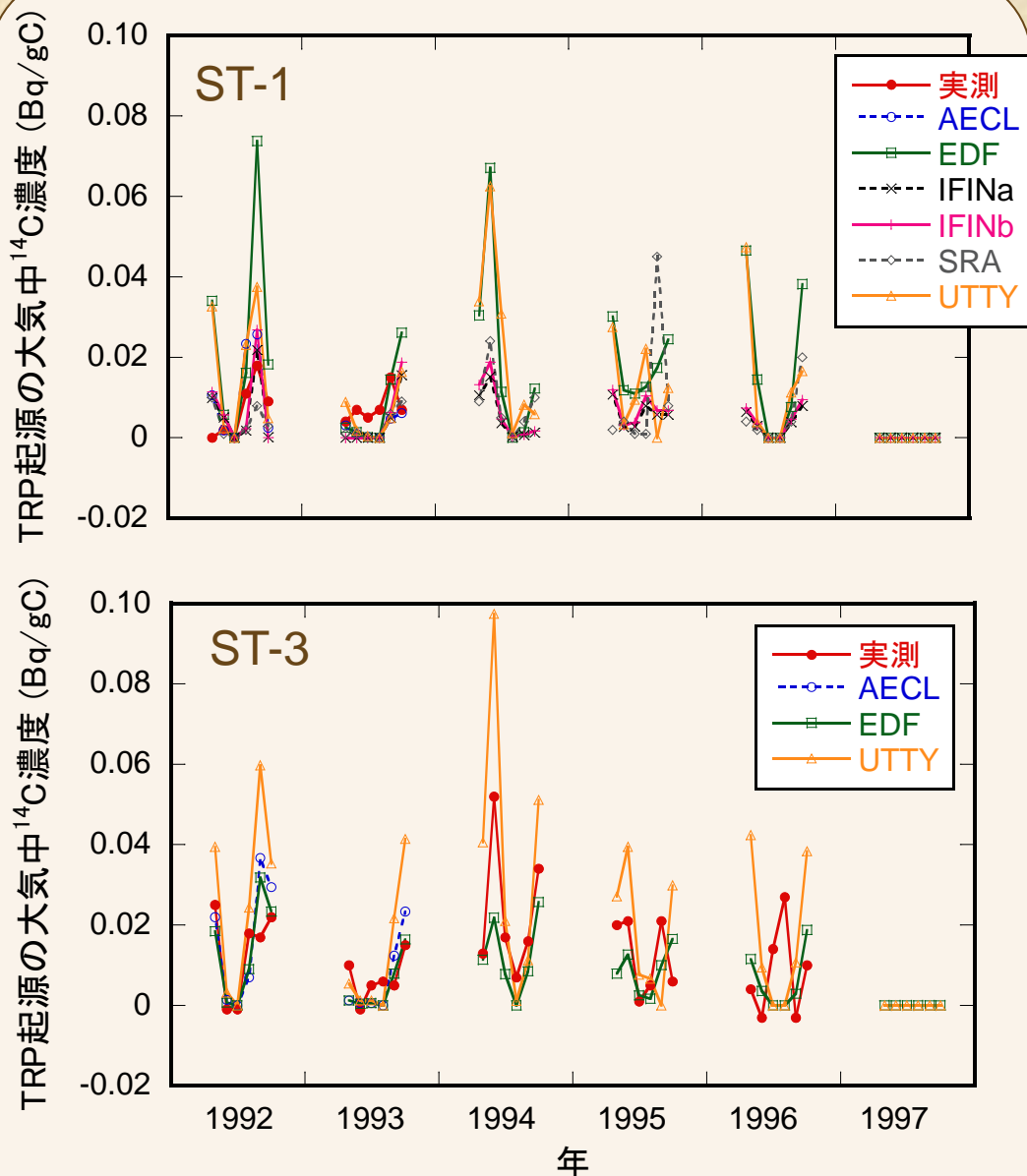


図4-4. 大気中<sup>14</sup>C濃度の実測・予測結果

## ① 吹上げ高さの影響

- ・ JAEAの拡散モデルで試算，吹上げ高さを気象指針の方法で推定
- ・ 放出源近傍大気の予測濃度：吹上げ考慮なし > 吹上げ考慮あり
- ・ 予測濃度の差：1.5～4倍程度，放出源に近い(ST-1)ほど大

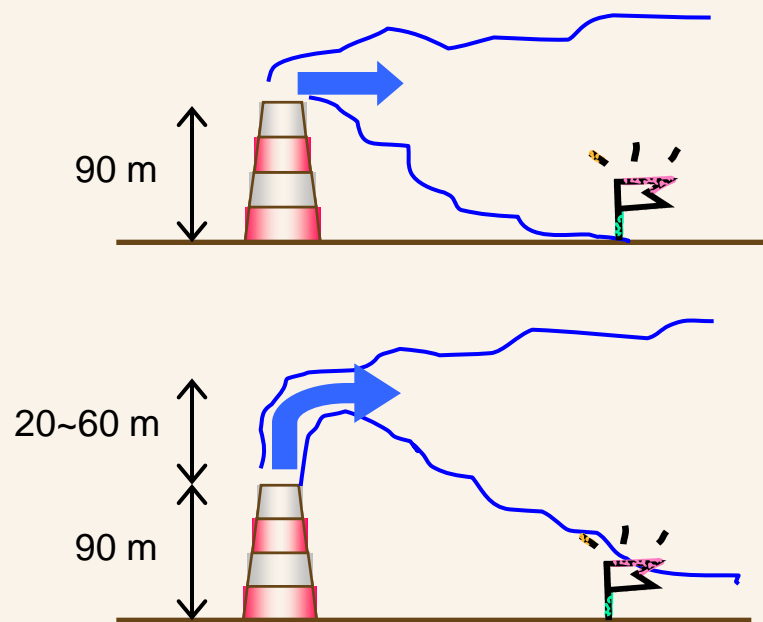


図4-5. 吹上げと大気拡散の模式図  
(上)吹上なし，(下)吹上あり

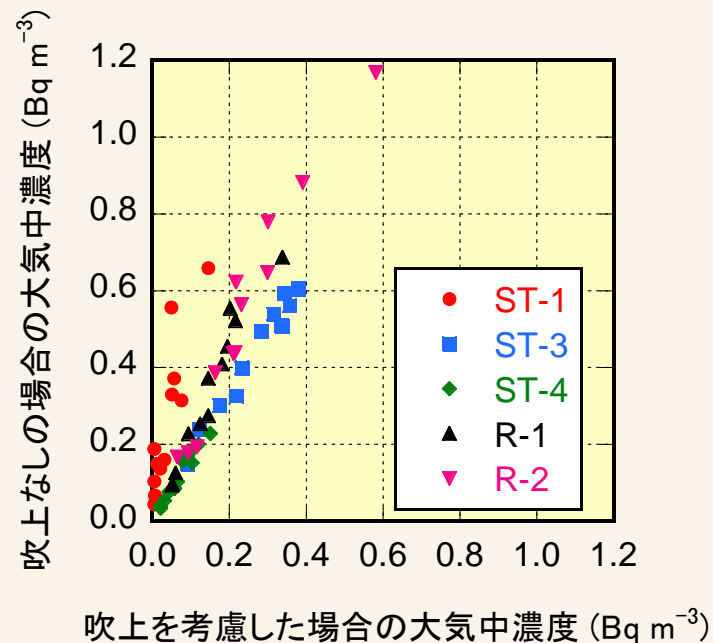


図4-6. 1Bq/月の放出に対する地表大気中<sup>14</sup>C濃度の計算値(1992年)

## ② 鉛直拡散パラメータの影響

- 安定度Fのとき,  $\sigma_z$ は,  
IFINa > IFINb, SRA, UTTY
- IFINaの濃度予測結果はIFINbより  
20%高い(ST-1)  
50%低い(ST-2, N)

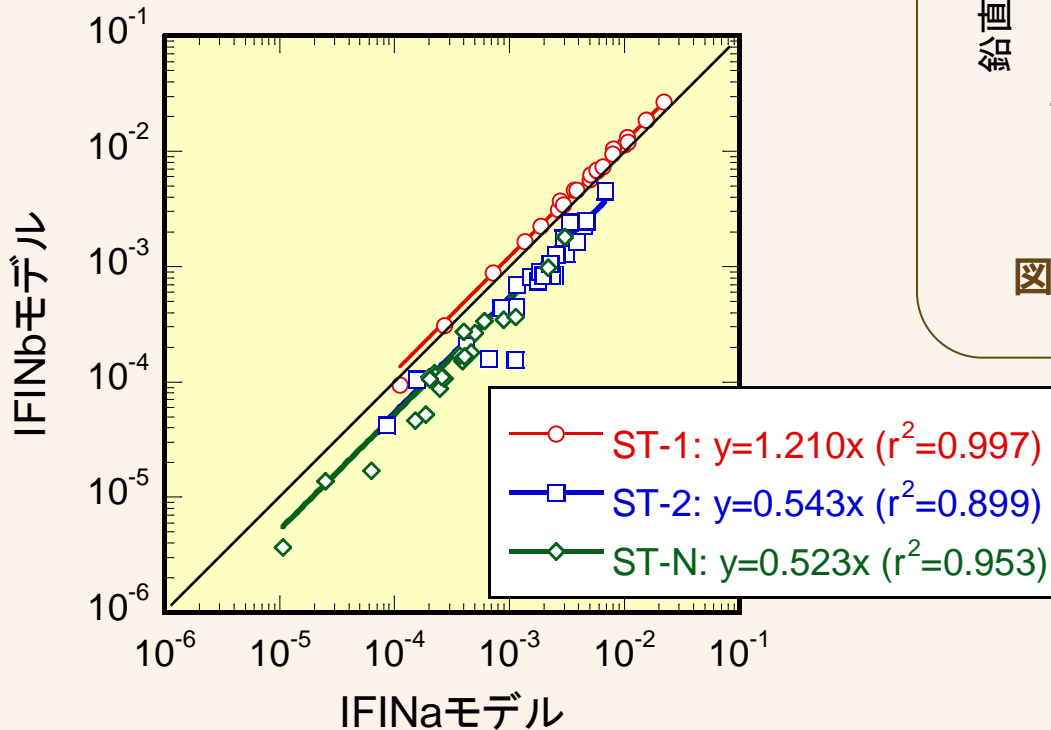


図4-8. 拡散パラメータの違いが濃度予測へ及ぼす影響

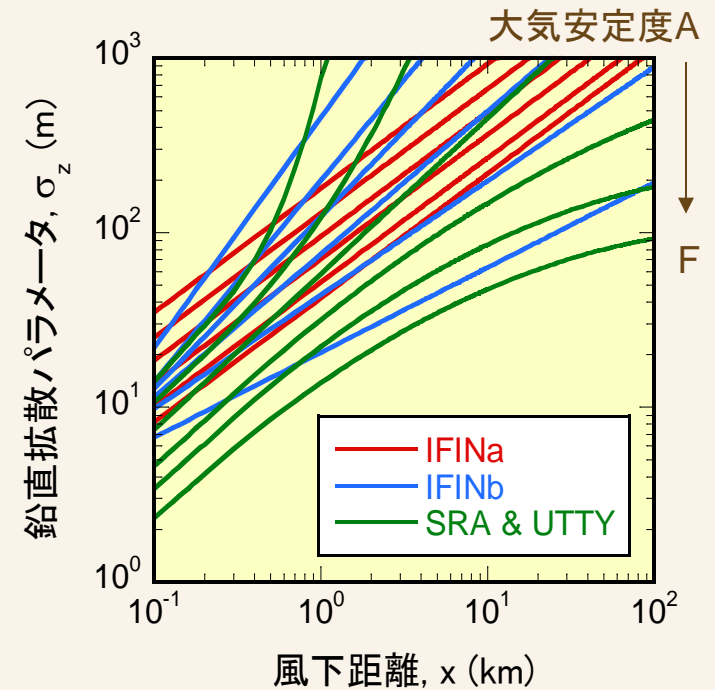


図4-7. 鉛直拡散パラメータの違い

## (6) 米中<sup>14</sup>C濃度の予測結果

### 【 予測結果の特徴 】

- ・ 1992年の米中濃度を**ファクタ2**以内で予測(EDFを除く)
- ・ EDF: 大気中濃度を過小評価していない ⇒ 米モデルに原因
- ・ AECLとUTTYは過大評価傾向
- ・ IFINとSRAは過小評価傾向

### 【 全体的な評価 】

- ・ 予測／実測比はほぼ**ファクタ3**以内

### 【 影響を及ぼしうる要因 】

- ・ (大気中濃度の予測結果)
- ・ 米中<sup>14</sup>C濃度に影響する期間
- ・ モデルの複雑さの違い
- ・ 穂(米)の生長曲線

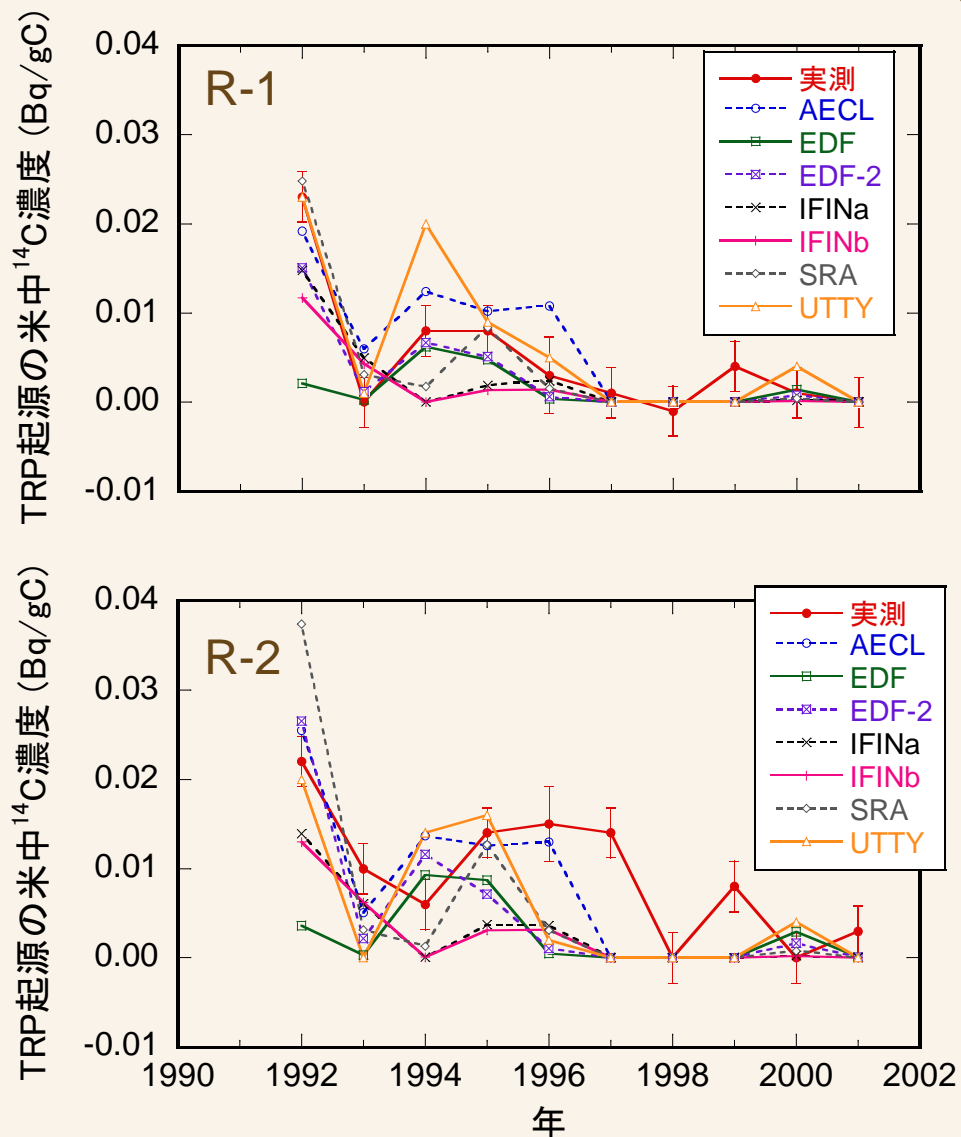


図4-9. 米中<sup>14</sup>C濃度の実測・予測結果

## ① 米中濃度予測で考慮する期間の影響

- ・ 全生長期間： AECL, EDF, UTTY  
1992年 < 1994年
- ・ 主に乳熟期： (IFIN), SRA  
1992年 > 1994年

乳熟期以前に稲に取込まれた<sup>14</sup>Cの米への寄与割合の違いを反映

## ② モデルの複雑さの違い

- ・ 明確な優劣はなし

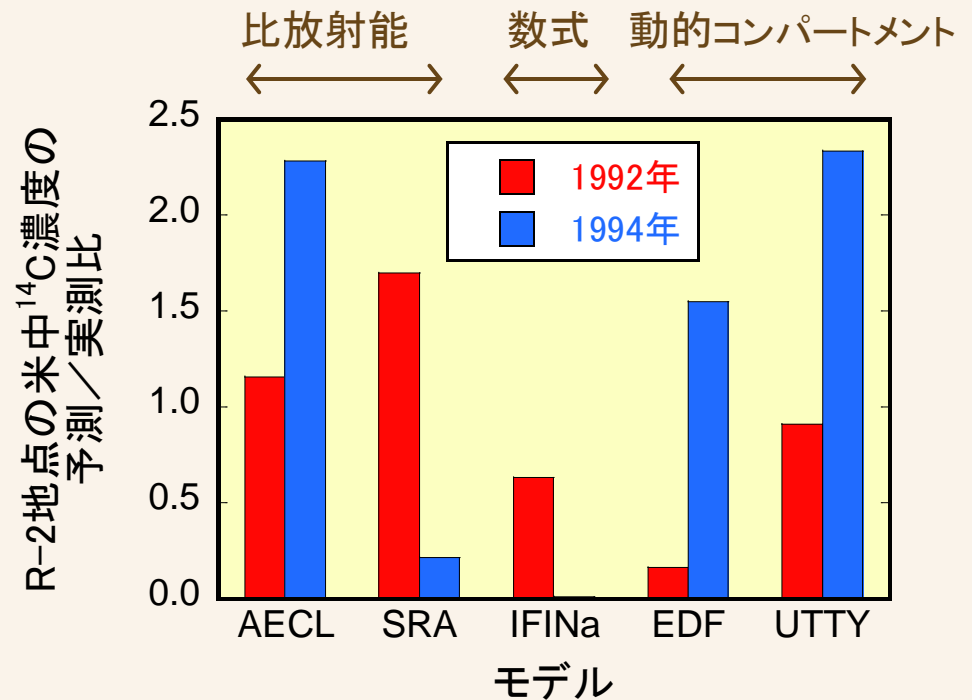


図4-10. 異なるモデルによる米中<sup>14</sup>C濃度予測結果

### ③ 動的モデルにおける稲の生長曲線

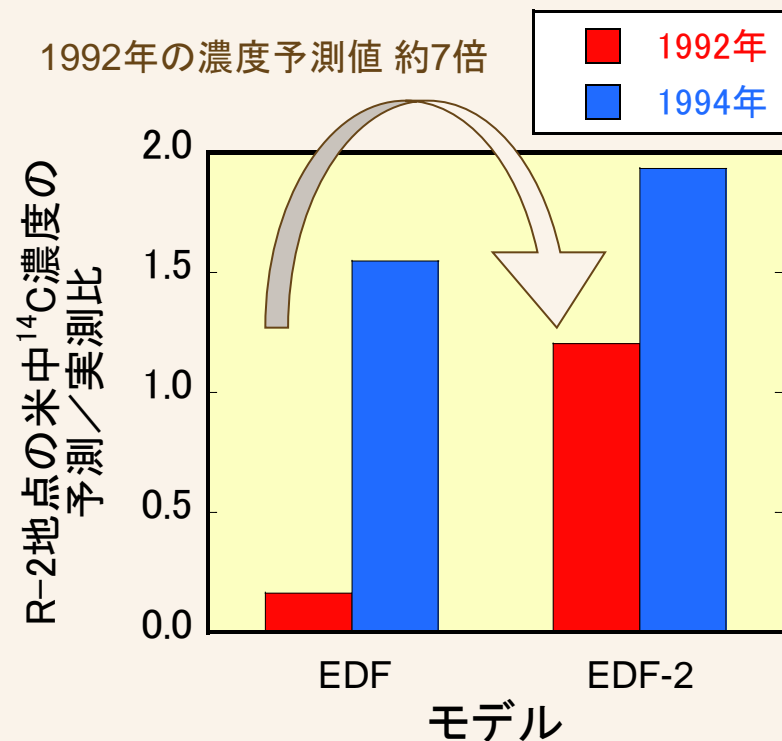


図4-11. 異なる生長曲線による米中濃度予測

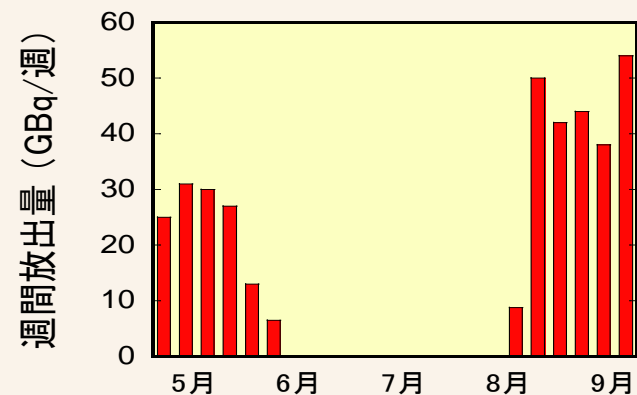


図4-12. 1992年の週間放出量

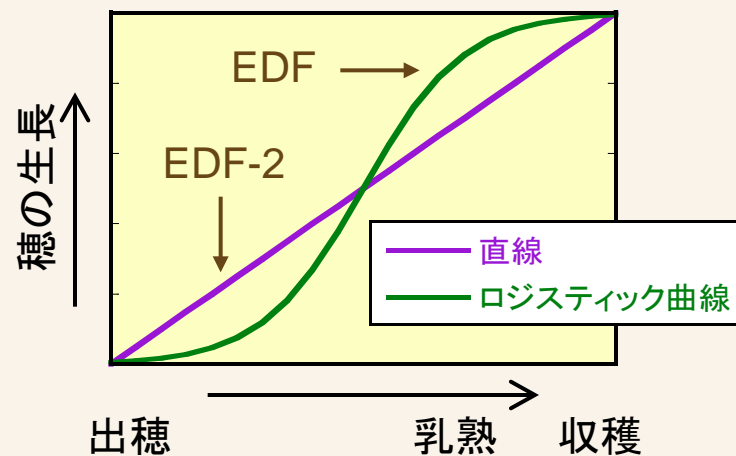


図4-13. 2つの生長曲線

## (7) 現状のモデル予測能力は？

### ① 大気拡散

**放射源情報**や気象情報が正確に得られれば、局所的な大気拡散を予測可能  
(月平均濃度の分解能)

➤ 普遍性の高さ, キーファクタ: 吹上げ高さの推定？

### ② 米への移行

複雑さの異なるモデルでいずれも良い予測精度(収穫時)

➤ モデルごとに異なるキーファクタ

比放射能平衡モデル：	米への寄与期間
数式モデル：	成育期間ごとの穂への光合成産物移行割合
動的コンパートメントモデル：	生長曲線

The Potato Scenario ( $^{14}\text{C}$ に関する第2のモデル検証シナリオ)は・・・

「短期的で大きなばく露に対する植物体内への $^{14}\text{C}$ 予測が困難である」ことを示唆

よりダイナミックな濃度変化に対しても有効に機能するモデルの開発・検証



## 5. まとめとこれから

### 「モニタリングデータ(個別の数値群)」が示す「結果」

- ✓  $^{14}\text{C}$ が大気中に放出されているが、わずか
- ✓ 大気中で $^{14}\text{C}$ 濃度の増加が認められるが、わずか
- ✓ 米中で $^{14}\text{C}$ 濃度の増加が認められるが、わずか

信頼性の高い  
モニタリング技術

安心できる？

### 「放出+環境モニタリング」結果の「複合的解釈」

- ✓ 管理された放出で、
- ✓ しっかりと説明できる予測可能な濃度増加であり、
- ✓ 線量は十分低く、
- ✓ 環境・公衆への影響はない。

現象の解明・把握

モデル評価・予測

安心できる！

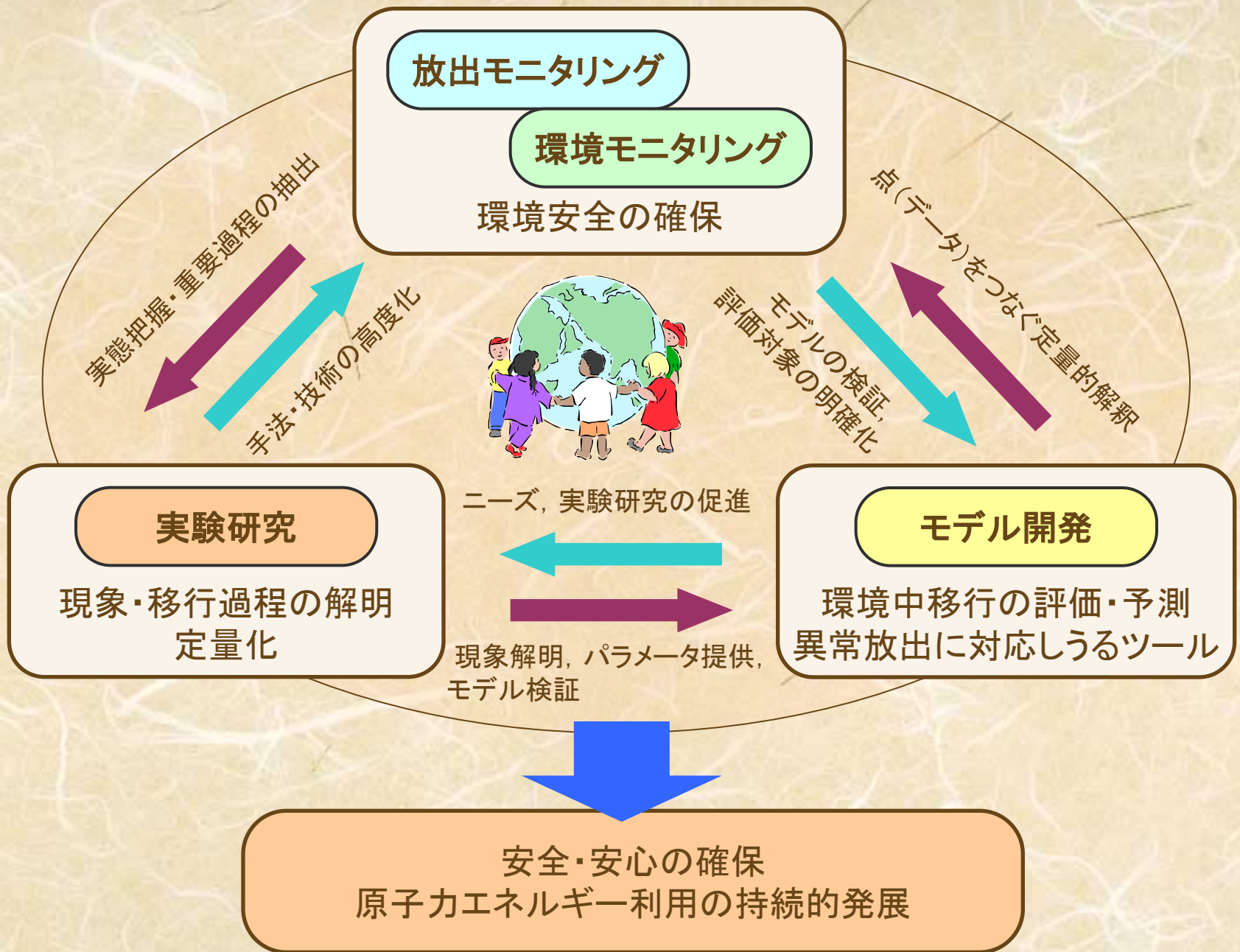


図5-1. 安全・安心確保のための有機的な取り組み

## 主な論文発表

- (1) Koarashi et al. (2016) Atmospheric discharge of  $^{14}\text{C}$  from the Tokai reprocessing plant: comprehensive chronology and environmental impact assessment. *J. Nucl. Sci. Technol.* 53, 546-553.
- (2) 上野 有美, 小嵐 淳, 他 (2014) RI施設における排気中 $^{14}\text{C}$ モニタリング: 捕集及び酸化方法の比較評価, *保健物理*, 49, 39-44.
- (3) Ota, Nagai, and Koarashi (2012) A land surface  $^{14}\text{C}$  transfer model and numerical experiments on belowground  $^{14}\text{C}$  accumulation and its impact on vegetation  $^{14}\text{C}$  level. *J. Environ. Radioact.* 107, 13-22.
- (4) Koarashi et al. (2011) Diverse monitoring approaches reveal  $^{14}\text{C}$  dispersion pattern and its impact on the environment around the Tokai reprocessing plant. *J. Nucl. Sci. Technol.* 48, 120-129.
- (5) Koarashi et al. (2008a) Monitoring methodologies and chronology of radioactive airborne releases from Tokai reprocessing plant. *J. Nucl. Sci. Technol. Sup.* 5, 462-465.
- (6) Koarashi et al. (2008b) Carbon-14 transfer into rice plants from a continuous atmospheric source: observations and model predictions. *J. Environ. Radioact.* 99, 1671-1679.
- (7) Yankovich, Koarashi et al. (2008c) International study on the validation of models for the environmental transfer of tritium and carbon-14. *Appl. Radiat. Isot.* 66, 1726-1729.
- (8) 小嵐 淳 (2007) 放射性炭素 - 環境中移行のモデル化に関する国際的な取り組み - (解説), *保健物理*, 42, 321-328.
- (9) Koarashi et al. (2006) A simple and reliable monitoring system for  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in radioactive airborne effluent. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 268, 475-479.
- (10) Koarashi et al. (2005a) Chemical composition of  $^{14}\text{C}$  in airborne release from the Tokai reprocessing plant. *Radiat. Prot. Dosim.* 114, 551-555.
- (11) Koarashi et al. (2005b) Radiocarbon and stable carbon isotope compositions of chemically fractionated soil organic matter in a temperate-zone forest. *J. Environ. Radioact.* 79, 137-156.
- (12) Koarashi et al. (2004) Evaluation of  $^{14}\text{C}$  abundance in soil respiration using accelerator mass spectrometry. *J. Environ. Radioact.* 75, 117-132.
- (13) Koarashi et al. (2002) Estimation of  $^{14}\text{CO}_2$  flux at soil-atmosphere interface and distribution of  $^{14}\text{C}$  in forest ecosystem. *J. Environ. Radioact.* 60, 249-261.