

Study on variations of radionuclide concentrations in atmosphere

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2021-09-09 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.24517/00063581

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



大気中の放射性核種濃度の変動に関する研究*

多田 哲郎**, 趙 蘭才**, 小村 和久**, 阪上 正信**

1. はじめに

大気中に存在する放射性核種のうち浮遊塵の形で存在しているものについては、当施設で1982年よりフィルター等をもった2種のエアサンプラーで捕集しており、そのうち ^7Be と ^{210}Pb が γ 線測定で定常的に検出され、また後者の娘 ^{210}Po も放射性化学分離、 α 線測定を行えば検出できる。LambertとSanak(1985)がまとめた ^{210}Pb 、 ^{210}Po の起源、存在量、循環系のモデルによると、それらの主な生成起源は大地の ^{226}Ra が壊変して生れ大気に放出された気体状の ^{222}Rn であり、これが放射性壊変して途中の短寿命核種を経て ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3$ 年)、 ^{210}Bi ($T_{1/2}=5.01$ 日)、 ^{210}Po ($T_{1/2}=138.38$ 日)が順次生成するが、それらは比較的長い寿命のため、浮遊塵に付着して主に降水によって地表に到達する。なお ^{210}Pb 、 ^{210}Bi 、 ^{210}Po 存在の定常状態を考えると $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ または $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ の放射能比より浮遊塵の平均滞留時間が推定できることが知られている(Lehmann and Sittkus, 1959; Nevissi *et al.*, 1974)。

^7Be は宇宙線の陽子等の高エネルギー粒子による空気主成分の ^{14}N や ^{16}O の核破砕により主に成層圏で生成される。その生成量は宇宙線強度の強い高緯度・極地方で多いこと、また春期などの成層圏から対流圏への大気の混合が活発になる時期には地表近くで ^7Be 濃度が高まるとされるスプリングリークの現象が指摘されている。

本研究では浮遊塵中の ^{210}Pb 、 ^7Be 濃度の変動について気象現象との関連性と浮遊塵の滞留時間の評価について検討した。

2. 試料と方法

試料には5段階の粒度別に浮遊塵を選別捕集するア

ンダーセンハイボリュームエアサンプラー(以下AHと略)を用いて約1カ月捕集したものと、ハイボリュームエアサンプラー(以下HVと略)を用いて間に1日休ませて数日間連続捕集したものを使用した。なお、フィルターにはPallflex社製ガラス繊維フィルターを主に使用し、一部には住友電機製フロロポアフィルターも用いた。浮遊塵捕集後、ガラス繊維フィルターは重量増加を求めたのち、その3/4を35mmφのディスクに加圧成型し、フロロポアフィルターはそのまま5cm×5cmに折りたたみ、各々 γ 線測定線源とした。 ^{210}Pb はGe-LEPSで46.5keVの γ 線、 ^7Be はGe(Li)検出器で477.5eVの γ 線を各々測定定量を行った。 ^{210}Po は収率トレーサーとして一定量の ^{210}Po を添加したのち放射化学的分離を行い、電着線源を作成し、Si表面障壁型検出器による α 線測定で定量を行った。

3. 結果と考察

3.1 浮遊塵中 ^{210}Pb 、 ^7Be 濃度の月別変動

AHを用いて採取測定した浮遊塵中 ^{210}Pb 、 ^7Be 濃度の月別変動を1983年4月から本年1月迄月間水量とともにFig. 1に示した。両核種濃度とも約3~5倍の変動を伴ない、その変動の様子は類似している。降水量の変動の様子とは逆の関係がみられる。この2点で地表近くの大気における両核種の挙動が似ていて、降水による洗浄効果があったと考えられる。季節変化については3~5月の春に両核種濃度のピークが見られるが、 ^7Be についてはスプリングリークという原因も考えられるが、成因の異なる ^{210}Pb にも春にピークがあるということは、むしろ両核種濃度のピークはこの時期における降水量の少なさからくる浮遊塵の洗浄効果低下によるものもかなり寄与するのではないかと考えられる。

Fig. 1に同時に当施設の小村が南極において捕集

* Study on variations of radionuclide concentrations in atmosphere.

* 金沢大学理学部低レベル放射能実験施設 Tetsuro TADA, ZHAO Lancai, Kazuhisa KOMURA and Masanobu SAKANOE Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Wake, Tatsunokuchi, Ishikawa 923-12, Japan. 1986年11月8日受理

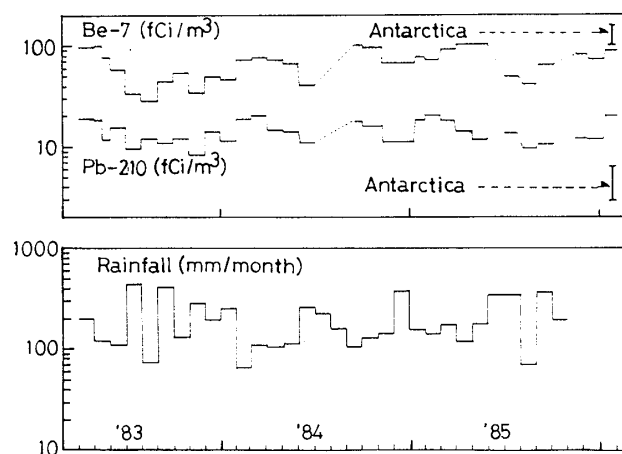


Fig. 1 Monthly variations of Pb-210 and Be-7 concentrations in aerosols.

した浮遊塵試料についての測定値も示した。当施設での値との違いのある原因については、南極が雪氷に覆われているため土壌からの ^{222}Rn の放出が少なく、それから生成する ^{210}Pb もすくなくなることと、極地での宇宙線強度が高いため ^7Be の生成が他の地域より多いことが考えられる。

一方、粒度分布については正規対数確率紙に累積粒度分布をとり空気動学的放射能中央径 (AMAD) を求めると ^{210}Pb は $0.5\text{ }\mu\text{m}$ 、 ^7Be は $0.8\text{ }\mu\text{m}$ と質量中央径 $2\sim 3\text{ }\mu\text{m}$ と比べて極めて小さいことから舞い上がり成分からの寄与は少ないと考えられる。

3.2 浮遊塵中 ^{210}Pb 、 ^7Be 濃度の短時間変動

HVを用いた ^{210}Pb 、 ^7Be 浮遊塵中濃度の短時間の変動を昨年1～9月についてFig. 2に降水量とともに示した。ここでは次の3つの点が検討して注目し値する。第1に両核種濃度の変動傾向の類似性、第2に両核種濃度と降水量の変動傾向の逆相関性、第3に降水のほとんどない期間の核種濃度変動の原因である。

第1の点についてはFig. 3に示すように横、縦軸に各々の ^7Be 、 ^{210}Pb 濃度をとりデータをプロットしてみるとほぼ $1/2\sim 2$ 倍内の変動で、 $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 比は平均 0.2 となつてほぼ一定である。このことから地表近くの大気では両核種の挙動が降水による洗浄効果などの際ほぼ同じであると考えられる。なお、南極では先に述べた理由により $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 比は極めて小さく、また春先の試料ではスプリングリークに起因する $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 比の低下もうかがわれる。

第2の点についてはFig. 4に示すように横、縦軸に各々の ^{210}Pb 濃度と降水量をとった。ここでは降水量についてはサンプリング開始12時間前からサンプリ

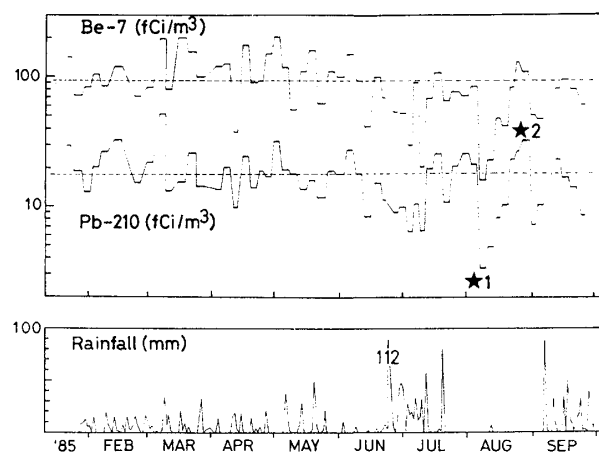


Fig. 2 Variations of Pb-210 and Be-7 concentrations with time as compared with the rainfall.

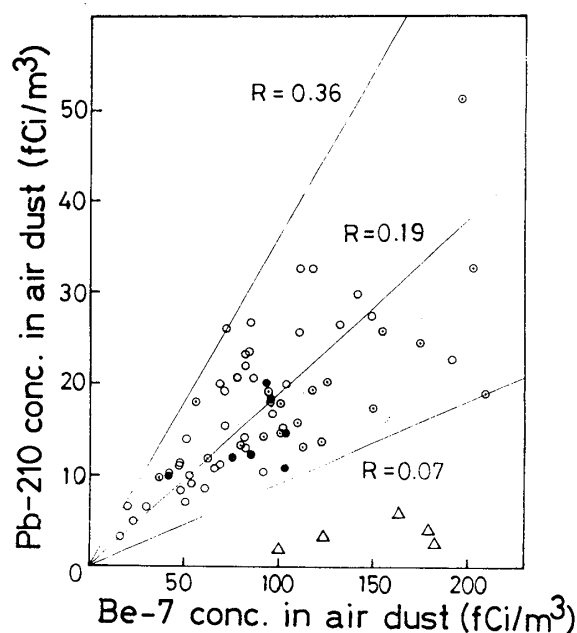


Fig. 3 The relationship between concentrations of Pb-210 in aerosol and that of Be-7.

R: $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ activity ratio

●: AH

◎: HV (Spring)

○: HV (Other seasons)

△: HV Antarctica

} Tatsunokuchi

ング終了までの間の積算降水量をとった。とくに明らかな関係はみられなかったが、一般に ^{210}Pb 濃度が高いのは降水量の少ない場合に現われ、逆に降水量が多い場合については ^{210}Pb は高濃度ではないことが明ら

かである。なお、より一層の関係解明には風向、風力等の要素を取り入れていく必要があると思う。

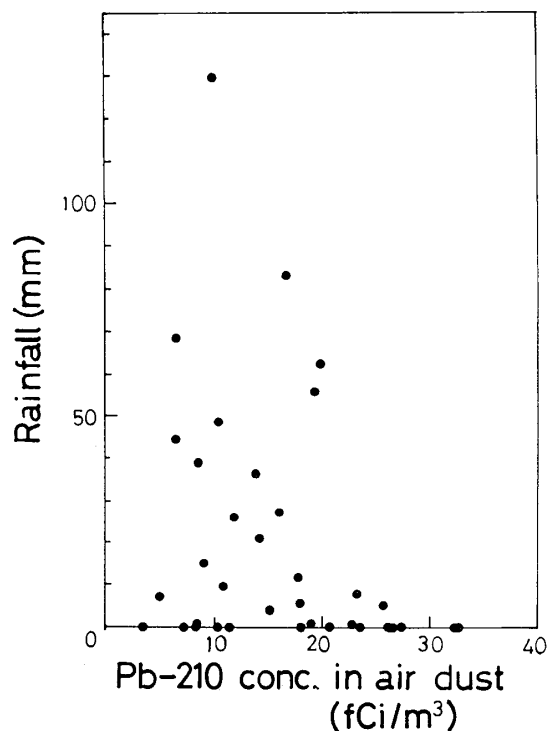


Fig. 4 The relationship of Pb-210 concentration in aerosol with the amount of rainfall in the period from 12 hours before sampling to the end of the sampling.

第3の点については Fig. 2 の中で★1, ★2で示した時期の核種濃度の ^{210}Pb 異差の原因を考えてみよう。サンプリング期間の日本列島の気圧配置から説明すると、★1では Fig. 5 のように台風8号が日本近海を通過したため ^{210}Pb , ^7Be 濃度の低い海洋からの南風が吹き込み、それらの濃度低下を引き起こし、★2では台風が3つ日本に接近してきたため ^{210}Pb , ^7Be 濃度の高い大陸からの北風が吹き込みそれらの濃度上昇を持たせたと考えられる。また、ここに考えた地域、海域による ^{210}Pb , ^7Be 濃度の違いについては、 ^{210}Pb に関しては Lambert と Sanak (1985) による世界各地の ^{210}Pb 濃度の分布も参考となり、 ^7Be に関してはその生成には宇宙線強度に関係する緯度の大小が影響しているものと考えられる。

3.3 ^{210}Pb 降下量の日本各地での違い

日本各地にエアサンプラーをおいて同時捕集することは困難なためトータルの ^{210}Pb の降下量をみるため各地の水田土壌と栽培されているタバコ生葉とタバコ栽培土壌中の ^{210}Pb 量を求めた結果が Fig. 6 である。日本海側が太平洋側よりも2～3倍高い ^{210}Pb 濃度を示しているが、この理由として年間を通じての降水量の違いの他に、 ^{210}Pb 濃度の高い北からの季節風の吹く冬に多い積雪にともない ^{210}Pb が日本海側に降下、蓄積するためと考えられる (Fukuda and Tsunogai, 1975)。

3.4 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比による浮遊塵の平均滞留時間の評価

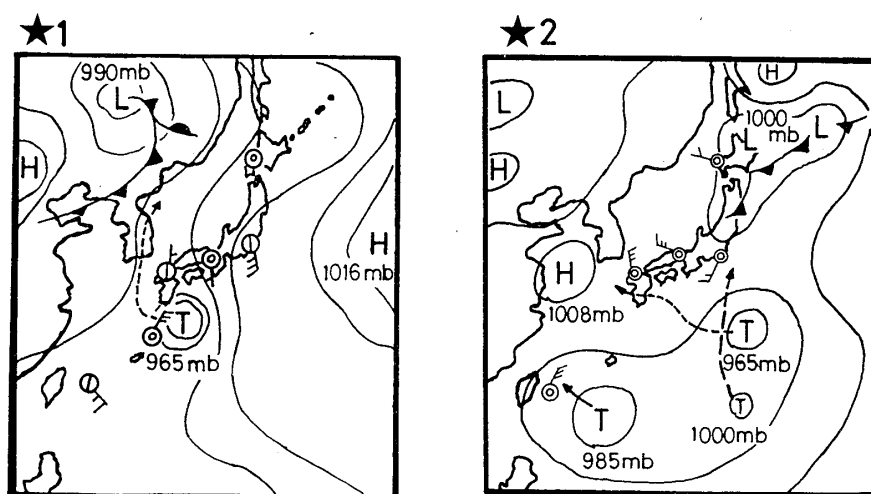


Fig. 5 The meteorological charts of sampling period approaching typhoons near Japan.

★1) 7th August, 1985; ★2) 27th August, 1985

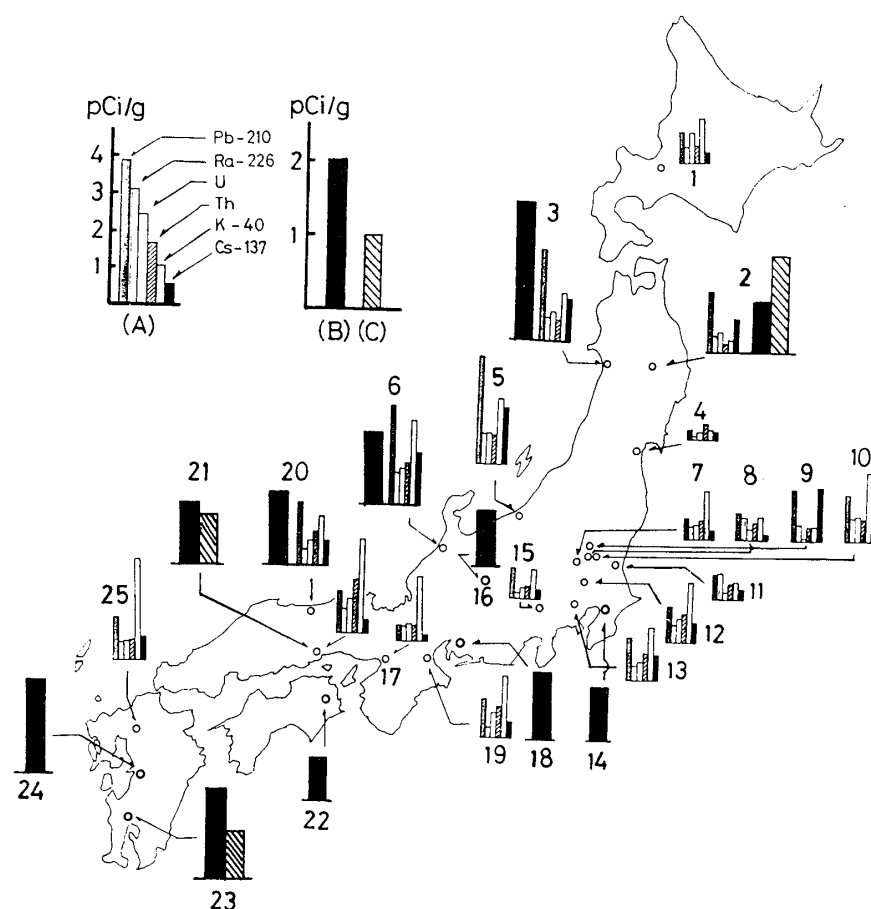


Fig. 6 Fallout Pb-210 concentrations in the rice-field soils, raw tobacco leaves and tobacco-field soils in Japan.

(A) Rice-field soils	(5) Takada	(12) Kohnosu	(19) Tsu
(B) Tobacco leaves	(6) Kanazawa	(13) Tachikawa	(20) Tottori
(C) Tobacco-field soils	(7) Ashikage	(14) Chiba	(21) Okayama
(1) Sapporo	(8) Kanuma	(15) Kohfu	(22) Tokushima
(2) Morioka	(9) Imaichi	(16) Nagano	(23) Kagoshima
(3) Akita	(10) Utsunomiya	(17) Habikino	(24) Kumamoto
(4) Sendai	(11) Mito	(18) Okazaki	(25) Tsukushino

^{210}Bi を定量して求めた $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ 比からの滞留時間の算出や $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$ 比による評価は行わなかった。ここでは $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比からのみかけの平均滞留時間の算出を試み、なおその際できるだけ正確な値を求めるのに ^{210}Pb からの ^{210}Po の成長がすくなくなるようにサンプリング期間を短く、かつ ^{210}Po の測定までの化学分離の時間を短くするようにした。1日間のサンプリングのデータによると $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比が0.07となり平均滞留時間は20日と算出された。これは一般に言われている6～8日よりはかなり長めである。 ^{210}Po を使った時に滞留時間が長めに出てくるのは舞い上がり土壌からの過剰の ^{210}Po の導入も考えられるが、これ

は Table. 1 のデータをみても大きくはなく、その時期の降水が少なかったために浮遊塵が大気中に長く滞在して ^{210}Pb から ^{210}Po が成長したこと、また最近注目を集めている ^{210}Po の火山からの放出 (Lambert *et al.*, 1979, 1982; Kuroda *et al.*, 1974; Sheng and Kuroda, 1985) の寄与もその理由の一つとして考えねばならない。特に火山からの影響については今後の課題として研究を重ねていく一方、降水の前後での滞留時間の違い等も検討する必要があると思う。

Table 1 Po-210 concentration and Po-210/Pb-210 ratio in surface air.

Sample Size Range	Po-210		Pb-210		Net Po-210		Po-210/Pb-210
	Gross (dpm)	Error (%)	Gross (dpm)	Contrib. (dpm)	(dpm)	(fCi/m ³)	
<1.1 μ m	16.66	2.8	279.0	4.57	12.09	0.955	0.043
1.1-2.0 μ m	3.24	4.4	39.1	0.64	2.60	0.205	0.066
2.0-3.3 μ m	1.30	6.0	23.7	0.39	0.91	0.072	0.038
3.3-7.0 μ m	1.49	3.9	11.5	0.19	1.30	0.107	0.113
>7.0 μ m	1.22	6.3	8.1	0.13	1.09	0.086	0.136
Total Amount			361.4		17.99	1.42	0.050 (mean)

Sampling interval : Dec. 1-15 Analyzed air volume : 5700 cubic meters ; Time before analysis : 2-5days

文 献

- Fukuda, K. and Tsunogai, S. (1975) Pb-210 in precipitation in Japan and its implication for the transport of continental aerosols across the ocean. *Tellus* **17**, 514-521.
- Kuroda, P. K., Liou, J. C. H., Banavali, A. D., Akridge, J. D. and Burchfield, L. A. (1984) Polonium-210 fallout from the 1980 eruption of Mount St. Helens and the mystery cloud of 1982. *Geochem. J.*, **18**, 55-60.
- Lambert, G., Buisson, A., Sanak, J. and Ardouin, B. (1979) Modification of the atmospheric polonium-210 to lead-210 ratio by volcanic emissions. *J. Geophys. Res.*, **84**, 6980-6986.
- Lambert, G., Ardouin, B. and Polian, G. (1982) Volcanic output of long-lived radon daughters. *J. Geophys. Res.*, **87**, 11103-11108.
- Lambert, G. and Sanak, J. (1985) La method du plomb-210 datation de la neige antarctique. Roth, E. et al., Eds. *Methodes de datation par les phenomenes nucleaires naturels applications.*, Chap. **18**, 496-515.
- Lehmann, L. and Sittkus, A. (1959) Bestimmung von Aerosolverweilzeiten aus de RaD-und RaF-Gehalt der atmosphärischen Luft und des Niederschlags. *Naturwissenschaften*, **46**, 9.
- Nevissi, A., Beck, J. N. and Kuroda, P. K. (1974) Long-lived radon daughters as atmospheric radioactive tracers. *Health phys.*, **27**, 181-188.
- Sheng, Z. and Kuroda, P. K. (1985) Atmospheric injections of polonium-210 from the recent volcanic eruptions. *Geochem. J.*, **19**, 1-10.