

氏名	山口 芳香
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第960号
学位授与の日付	平成19年9月28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	大気環境動態のトレーサーとしての $^{210}\text{Po}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ の高解像度観測
論文審査委員(主査)	奥野 正幸(自然科学研究科・教授)
論文審査委員(副査)	山本 政儀(環日本海域環境計測センター・教授), 中西 孝(自然科学研究科・教授), 井村 久則(自然科学研究科・教授), 横山 明彦(自然科学研究科・准教授)

## Abstract

By the use of ultralow background Ge detectors at Ogoya Underground Laboratory (OUL), it is possible to detect extremely low levels of environmental radionuclides. In this study, we carried out to measure the variations of concentrations of airborne  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^7\text{Be}$  at three monitoring points, i.e., 1) Low Level Radioactivity Laboratory (LLRL 40m a.s.l) in Nomi City as the regular monitoring point, 2) Shishiku Plateau (640m a.s.l) located about 8 km from LLRL to know vertical difference, high-resolution and 3) Hegura Island located 50 km from Noto Peninsula in the Sea of Japan to investigate the influence of Asian continent or mainland of Japan. The measurements of airborne  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  were performed nondestructively by ultra low background  $\gamma$ -spectrometry at OUL, and of  $^{210}\text{Po}$  were performed by  $\alpha$ -spectrometry after radiochemical treatment at LLRL.

These various interesting results on the concentrations and variation patterns of these nuclides were obtained; during the drastic meteorological changes such as the passage of typhoon approach and/or passage of typhoons and Kosa events (yellow sand), at the simultaneous high resolution measurements, further, at the daily monitoring.

These results in this study provide new informations for the field of atmospheric and geochemical research using airborne radionuclides as useful tracers.

## <はじめに>

大気中に含まれる自然・人為起源の各種物質の発生源や環境動態を解明することは、生態系への影響や、ヒトへの健康影響の予測を可能とし、ひいては汚染の防止対策の構築にも寄与する。またそれらの物質の環境影響の予測とその要因の解明は、自然災害の予測を可能とし、災害を未然に防止することにもつながるものと期待される。

極東アジアの中緯度域に位置する日本列島は、ジェット気流に伴う偏西風が卓越し、大陸から日本海を経由して、大量の自然・人為起源の気体状及びエアロゾル状の各種物質が、列島上空更には北太平洋上にまで輸送される。日本海は、豊富な自然資源に恵まれているが、地震や火山活動が盛んであるとともに、人為的原因による化学物質や放射能汚染にはきわめて弱い閉鎖的な海域である。一方、日本及び中国、北朝鮮、韓国、ロシアなどの環日本海域諸国から排出される二酸化炭素や酸性物質、燃焼粉塵等の人為的汚染物質は、黄砂などの自然由来の物質と相まって、近年の地球規模の環境変動を誘発する大きな要因と考えられている。このような地域は、世界的にも例がない。

生成後すぐに大気浮遊塵(エアロゾル粒子)に吸着し、挙動を共にする大気中放射性核種は、大気及びエアロゾル粒子のトレーサーとして有用であり、中でも、陸源性の  $^{210}\text{Pb}$ (半減期 22.3 年)及び宇宙線誘導核種である  $^7\text{Be}$ (同 53.3 日)を、それぞれ地表及び上層大気圏を起源とする大気動態のトレーサーとして用いた報告は少なくない。加えて、 $^{210}\text{Pb}$  及び  $^{222}\text{Rn}$ (半減期 3.8 日)の娘核種であり、大気浮遊塵の滞留時間の推定( $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  放射能比より)や、気団の移動の推測、更には火山活動の影響を評価するためのトレーサーとして利用されてきた  $^{210}\text{Po}$ (半減期 138.4 日)の挙動をも同時に調べることで、大気及びエアロゾル粒子の動態や、大気中の各種物質輸送について、より詳細な情報が得られることは疑いない。大気中  $^{210}\text{Po}$  の濃度は、山火事や、風による大陸からの風送塵の輸送、成層圏あるいは高層対流圏からの古い気団の侵入などにより増加するという報告がある。

しかしながら、それらの核種の表層大気中濃度の低さ(〜mBq/m<sup>3</sup>)等から、その測定には技術的困難さがつきまとうことも相まって、短時間スケール(高解像度)での観測はこれまでほとんど行われていないが、水深換算 270 m の尾小屋地下測定施設(石川県小松市/以下 OUL)に設置した最大 16 台の Ge 半導体検出器を使用した極低バックグラウンド $\gamma$ 線スペクトロメリーを行うことにより、それらの技術的難問を克服することが可能になった。本研究では、世界的にも特殊な地理的条件を備えた日本海沿岸地域の石川県内において、地形的な環境を異にする 3 箇所を観測地点として選び、目的に応じて、その中の 1-3 箇所で行った。定常時には、2 箇所において原則 1 日間隔で、台風の接近や黄砂到来時等の急激な気象変化時には、定常観測地点において 2-6 時間間隔という短時間スケールでの高解像度観測、また複数観測地点における高解像度同時観測も行い、種々の条件下における大気中放射性核種の濃度変動及び大気環境動態との関連について調べ、新たな知見を得ることを目的とした。また <sup>210</sup>Po、<sup>210</sup>Pb 及び <sup>7</sup>Be の 3 核種を同時にトレーサーとして用いることの有用性をも模索した。

## <実験方法>

### 1. 観測地点の選定

- (1) 金沢大学環日本海域環境研究センター・低レベル放射能実験施設(以下 LLRL);石川県能美市、北緯 36 度 26 分、東経 136 度 32 分、標高 40 m。通常の地表大気中放射性核種を評価するための定常観測地点。
- (2) 獅子吼高原(以下 SSK);石川県白山市、北緯 36 度 27 分、東経 136 度 39 分、標高 640 m。(1)より直線距離で約 8 km。大気中放射性核種の鉛直濃度分布の観測拠点。
- (3) 舳倉島(以下 HGR);石川県輪島市、北緯 37 度 51 分、東経 136 度 55 分、標高 10 m。輪島沖の北 50 km の日本海上に位置する絶海の孤島。面積約 1 km<sup>2</sup>で平坦。大陸や日本列島から到来する大気の影響評価の観測拠点。

### 2. 大気浮遊塵試料の採集(サンプリング)

大気浮遊塵試料は、毎分 700-900L の流量で、ハイボリュームエアサンプラ(Sibata-1000F/以下 HV)を用い、石英繊維濾紙(ADVANTEC QR-100、254 mm × 203 mm)の上に採集した。極低レベルの放射性核種濃度を測定するためには、濾紙に含まれる自然放射性核種に起因する放射能のブランクレベルは、その補正を最小限にすべく、十分に低いことが望ましい。石英繊維濾紙中の自然の放射性核種のレベルは、ガラス繊維濾紙より一桁低いことを $\gamma$ 線スペクトロメリーにより確認したため、試料の採集には石英繊維濾紙を用いることとした。

### 3. 測定線源試料の作製及び測定

<sup>210</sup>Pb 及び <sup>7</sup>Be については、非破壊測定を行うため、大気浮遊塵採集後の濾紙を金型に入れ、油圧式プレス機により 40 MPa の圧力で加圧成型を行うことにより直径 35 mm、厚さ 3 mm のディスク状にしたものを、ポリエチレン袋に入れて真空状態にし、測定線源試料とした。OUL 内での極低バックグラウンド Ge 検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメリーにより、両核種の放射能を定量した。

一方、<sup>210</sup>Po については、<sup>209</sup>Po 収率トレーサーを加えて放射化学的分離を行った。裏面をビニールテープで覆った銀小片(10 × 10 mm、0.2 mm 厚)の表面にポロニウム(<sup>210</sup>Po 及び <sup>209</sup>Po)を電着させたものを測定線源試料とし、LLRL 内で Si 検出器による $\alpha$ 線スペクトロメリーを行った。<sup>210</sup>Pb 及び <sup>210</sup>Bi から成長する <sup>210</sup>Po の寄与を最小限にするために、サンプリング終了後、1 週間以内(数日中)に化学分離を行うことにより、信頼できるデータが得られることがわかった。

### 4. データ解析及び大気中放射性核種濃度の算出

<sup>210</sup>Pb 及び <sup>7</sup>Be については、測定により得られた $\gamma$ 線スペクトルから、各々 46.5 及び 477.6 keV の光電ピークを用い、ピーク面積の計算を行なった。光電ピークのカウンタ面積からブランクカウンタの面積を差し引いた後、試料採集中、採集終了から測定開始までの時間及び測定中における放射壊変による減衰について補正を行うことにより、両核種の大気中濃度を算出した。

<sup>210</sup>Po については、測定により得られた $\alpha$ 線スペクトルから、<sup>209</sup>Po 及び <sup>210</sup>Po の両ピークにおいて、ROI が等しくなるよう範囲を定め、各々のカウンタの合計及びその相対誤差を求めた。加えた収率トレーサー <sup>209</sup>Po の放射能(8.3 mBq)及び <sup>210</sup>Po/<sup>209</sup>Po のカウンタ比から、測定線源試料中の測定時における <sup>210</sup>Po の放射能を求めた後、化学分離時から測定終了までの減衰補正及び採集終了から化学分離までの間における <sup>210</sup>Pb 及び <sup>210</sup>Bi からの成長について補正を加えた採集した大気の体積で除して、単位体積当たりの大気中濃度を算出した。

## <結果及び考察>

### 1. 大気中放射性核種の季節変動

LLRLにおいては2003年5月23日から、SSKにおいては同年9月3日から、いずれも2006年10月31日までの間、ほぼ一日間隔で大気中の $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ の観測を行った。2005年11月17日以降は、 $^{210}\text{Po}$ を加えた3核種について観測した。大気中の $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ の濃度は、両地点共、偏西風の影響を受けやすい春季と秋季に高く、夏季と冬季には低めの値を示す傾向が見られた。

高濃度の $^{210}\text{Pb}$ を含む寒気団がアジア大陸で発生するシベリア高気圧の影響で東進してくること、高濃度の $^7\text{Be}$ を示す北極気団が高緯度地域から南下してくる影響により、この地域の大気中濃度は冬季に高値を示すものと考えられる。しかしながら、この地域の特徴として冬季の降水量が多いことから、これらの核種は雪片によりウォッシュアウトされ、その大気中濃度は低い値を示したものと推察した。 $^{210}\text{Po}$ については、全体としては親核種である $^{210}\text{Pb}$ とほぼ似た季節変動を示したが、その変動幅は季節や気象により一律ではなかった。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は、1-2月に最も低い値を示し、春季から夏季にかけては高くなる傾向を示した。これは、冬季には高い $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比を示す表層土壌からの $^{222}\text{Rn}$ の散逸が、積雪や路面の凍結により抑制されたためであると推察した。

### 2. 気象変動に伴う大気中放射性核種の濃度変動

台風の接近時及び黄砂の到来時に、定常観測地点(LLRL)において2~6時間で高解像度観測を行った。

2006年9月5~9日における台風14号接近時の観測においては、9月7日午前9時頃の台風の最接近時付近において、 $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ 及び $^{210}\text{Po}$ の濃度は全て顕著な減少を示した。しかしその時に、降雨がほとんど観測されなかったことから、この結果はウォッシュアウトが原因ではなく、 $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ が各々低濃度である大気塊が、現地へ流入したためであると考えられた。また、 $^{210}\text{Pb}$ のそれと比較して、 $^7\text{Be}$ 濃度はその減少が急激(1/20~1/10)であった。結果として、 $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ の濃度は一時的に逆転し、 $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 放射能比は高い値を示した。寒冷前線の通過時にも、同様の現象が観測されたとの報告があることから、これは両核種の起源の違いによる回復率の差、即ち高層大気圏起源の $^7\text{Be}$ の流入が、地表面近くで発生する $^{222}\text{Rn}$ 起源の $^{210}\text{Pb}$ のそれと比べて遅いことに因るものであると推察した。

一方で、台風の接近に伴って採集された大気浮遊塵の質量濃度が増加し、また最接近時付近で $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が高い値を示した原因としては、強風による海上からの海塩粒子( $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb} \approx 0.6$ )及び風送塵( $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb} = 1$ と仮定できる)の大量輸送が示唆された。

2006年4月に、少なくとも三度の黄砂が観察されたため、その付近では2~8時間間隔、それ以外の日は比較のために1日間隔で定常観測を行った結果、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$ 及び $^{210}\text{Po}$ の濃度は、降雨がなければ、黄砂到来時には増加する傾向を示すことが分かった。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比についても同様であった。また黄砂到来中は平常時に比べ、濾紙上に採集された粒子濃度はかなり高い値を示した。

黄砂はその発生源であるアジア大陸の乾燥地帯において、上昇気流により地上数キロメートルまで舞い上がり、強い偏西風により日本列島上空まで運ばれ、地表面に沈着するが、採取された大気浮遊塵の濃度と、これらの核種の大気中濃度の間には相関が見られないため、観測された高濃度は、大気中放射性核種が黄砂粒子に付着して降下するためではないことが示唆された。さらに、この黄砂到来期間に集められたサンプルのうちの幾つかから、人工放射性核種である $^{137}\text{Cs}$ が検出され、大気浮遊塵の濃度との間に線形相関を示したとの報告があることから、地表面に沈着した黄砂粒子が表層土壌と共に再浮遊したものと考えられた。

これらのことから、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が黄砂到来時に高い値を示したのは、放射性核種が付着した大気浮遊塵と共に、浮遊している砂塵そのもの及び黄砂粒子を含む表層土壌が再浮遊して濾紙上に集められ、それらを一緒に測定した可能性が高いものと推察した。

### 3. 複数地点における高解像度同時観測

LLRL-HGRの二地点間での同時観測(2005年5月16~17日)では、両地点とも概ね2時間間隔で観測を行ったが、共に $^{210}\text{Pb}$ 及び $^7\text{Be}$ の濃度は極めて低い値を示した。両核種の濃度レベルは両地点間で同程度であったが、その変動パターンにはやや相違が見られ、特に $^7\text{Be}$ において、LLRLの方が変動幅が大きかった。 $^{210}\text{Po}$ の濃度についても、両地点間で差は見られず、やはり共に低い値を示した。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比については、両地点共、やや高い値を示した。

この期間中には、どちらの観測地点においても降雨が観測されなかったことから、この低濃度はウォッシュアウトによるものではなく、これらの核種が極めて低濃度である大気塊(海洋性起源、もしくは湿性沈着等によってこれらの核種が付着した大気浮遊塵が既に除去されたもの等)が、両地点へ到来したことが示唆された。

気団や気塊の性質は、地表面の状態に特徴的なものとなるため、地表面状態の異なる地域に移動することにより変質が起こり、その内部において核種濃度の不均一さが生じる可能性がある。そのため、日本海を隔てて、地形的性状を異にするこの両地点間では、両核種の変動パターンに相違が見られた可能性も考えられる。

LLRL-SSK の二地点間での同時観測(2005 年 8 月 18-21 日)では、両地点とも概ね 3 時間間隔で観測を行った。この期間において、 $^{210}\text{Pb}$  及び  $^7\text{Be}$  の濃度レベル及びその変動パターンには、両地点間で大きな相違は見られなかった。 $^{210}\text{Po}$  については、両地点共に  $^{210}\text{Pb}$  と似た変動パターンを示し、その濃度及び  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  放射能比についても、両地点間で大きな差は認められなかった。

両地点共に、降雨は観測されず、また風向もほぼ一致していたことから、水平的には近距離にある両地点間の上空は、観測期間中同じ気塊で覆われていたことが示唆された。

LLRL-SSK-HGR の三地点における同時観測(2006 年 9 月 10-13 日)では、全地点で概ね 3 時間間隔の観測を行った。 $^{210}\text{Pb}$  及び  $^7\text{Be}$  濃度については、LLRL-SSK では変動幅の大きさに差はあるものの、全体として同様の変動パターンを示したが、HGR のそれはその様相を異にし、濃度変動幅が極めて小さい平坦な曲線を描いた。 $^{210}\text{Po}$  については、三地点共に細かい変動が見られた。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  放射能比についても、その値、変動パターンとも、三地点間で大きな違いは見られなかった。

$^{210}\text{Pb}$  及び  $^7\text{Be}$  の挙動については、観測初日の前線通過後に日本海上を覆い始めた高気圧の影響で、HGR だけが観測期間中、その安定した大気環境下にあり、殆ど変動が見られなかった可能性も考えられたが、 $^{210}\text{Po}$  の挙動から何か別の要因が関係している可能性も示唆された。

#### <結論>

種々の目的と条件の下で行った大気中放射性核種の観測結果より、日本海沿岸地域の特徴的な気候や、急激な気象変動及び地形的性状の違いに伴うそれらの挙動について、またその結果から推察される大気環境の動態について、いくつかの示唆が与えられた。

親核種  $^{210}\text{Pb}$  と概ね似たような変動パターンを示す  $^{210}\text{Po}$  は、短時間間隔の観測においては違った挙動も認められ、また  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  放射能比は、急激な気象変化に伴い特徴的な変動を見せた。 $^{210}\text{Po}$  をもトレーサーに加えた観測を行うことにより、滞留時間の評価を含め、これまで多く手掛けられてきた  $^{210}\text{Pb}$  及び  $^7\text{Be}$  の観測では知り得なかった何らかの手掛かりが得られる可能性があるものと考えられた。しかしながら、目的によっては、3 核種ではいささか不十分との見解も得た。たとえば、「環境物質」としての黄砂の探求等には、他の大気中放射性核種や、土壌起源の非放射性アルミニウム等もトレーサーとして同時に観測する必要性が考えられた。また地形的性状が異なるとはいえ、距離的には離れていない石川県内の 3 観測地点間での大気環境動態の違いを解明するためには、 $^{212}\text{Pb}$  などの短半減期核種を組み合わせていることが有用であることも示唆された。

本研究により得られた知見は、大気中放射性核種をトレーサーとして用いる研究分野に、新たな情報を与えるものと期待される。

## 学位論文審査結果の要旨

本論文は、大気中に存在する天然放射性核種  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$  および宇宙線生成核種  $^7\text{Be}$  を短時間試料採取の高解像度で測定し、長期間の変動と併せて、特に急激な気象変動に伴う応答、さらに複数地点間での同時観測から、これら核種の大気環境動態トレーサーとしての有用性を追及したものである。金沢大学・低レベル放射能実験施設(LLRL:石川県能美市)、加賀平野に位置する標高約 600 m の獅子吼高原(SSK)および輪島港から北 50km の日本海上に浮かぶ面積約  $1\text{km}^2$  の舳倉島(HGR)を観測地点として得た成果は大別して次の 3 点からなる。

1) 尾小屋地下低レベル放射能測定施設を利用した同時・複数短時間エアロゾル採取試料の微量放射能測定技術を確立し、LLRL および SSK で 2003 年から約 3 年半にわたり 1 日間隔での  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$  および  $^{210}\text{Po}$ (2005 年)濃度の長期・高解像度観測を実施して、日本海沿岸地域の特徴的な季節変動を反映した詳細な変動パターンを明らかにした。2) 急激な気象変動現象として、台風および黄砂飛来時の  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$  および  $^7\text{B}$  濃度変動を数時間スケールで追跡し、台風接近時には  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$  濃度の顕著な濃度変動や短時間での急激な濃度減少が出現すること、さらに黄砂飛来時にはこれら核種の放射能比での検討が黄砂に伴う環境汚染物質等の除去過程等解明に有効であることを示唆した。3) LLRL, SSK および HGR の 3 地点で  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$  および  $^7\text{Be}$  濃度の短時間試料採取同時観測を実施し、この地域全体の空間的な空気塊変動を検討した。これにより、観測期間の天気図から予想される空気塊〔気団〕の広がりとは矛盾しない結果を得、複数地点短時間試料採取同時観測が大気動態解析に有効であることを示唆した。

以上の研究成果を骨子学位論文とする当該学位論文に関し、指導教員の意見も参考にして 8 月 3 日の口頭発表前後に審査委員会を開催して協議を行った。その結果、同時・複数短時間エアロゾル採取試料の放射能測定技術の確立、それを基にした高解像度観測からの気団変動や環境汚染物質等の挙動の類推を可能とする当該学位論文は、放射線計測学、地球化学、大気環境化学分野の進展に寄与する一般性に富む新知見を提供しており、博士(理学)の学位を授与するに値するものと判定した。