

氏名	阿部 琢也
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第888号
学位授与の日付	平成19年3月22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	極低バックグラウンドγ線スペクトロメトリーによる大気中放射性核種の高解像度測定
論文審査委員(主査)	小村 和久(自然計測応用研究センター・教授)
論文審査委員(副主査)	山本 政儀(自然計測応用研究センター・教授), 中西 孝(自然科学研究科・教授), 横山 明彦(自然科学研究科・教授), 天野 良平(医学系研究科・教授)

### Abstract

By the use of extremely low background gamma spectrometry at Ogoya Underground Laboratory (OUL), temporal variations of airborne radionuclides were investigated with several hours of time resolution. In this study, two types of measurements were carried out.

The first one is high resolution measurement during meteorological event, such as passages of cold fronts, an approach of typhoon and coming of Asian dust (Kosa), to investigate variations of concentrations of long-lived  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  and short-lived  $^{214}\text{Pb}$  and  $^{212}\text{Pb}$ , caused by rapid climate changes. In this study, remarkable differences were found between long- and short-lived nuclides due to differences of their origin

The second one is simultaneous high resolution at three locations with different geographical circumstances viz, 1) LLRL in Nomi City, 2) Shishiku Plateau (640m a.s.l) in Hakusan City and 3) Hegura Island in Wajima City located 50 km from Noto Peninsula, to investigate spatial distributions of airborne radionuclides. In this research, it was confirmed that short-lived  $^{212}\text{Pb}$  provides valuable information on meso-scale vertical mixing such as formation or breaking of inversion layer, like gaseous  $^{222}\text{Rn}$ . It was also found that variations of long-lived  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  depend dominantly on movement of air mass.

The results obtained in this study provide new information in the field of atmospheric research using airborne radionuclides as useful geochemical tracers.

大気地球科学的過程の挙動解明を目的として、現在まで大気中放射性核種に関する研究が多くなされてきた。これらのほとんどが生成後すぐにエアロゾル粒子に吸着して挙動することから、大気及びエアロゾル粒子の良いトレーサーになり得る。関連する数多くの研究の中でもとりわけ多く調査されている陸源性の $^{210}\text{Pb}$ （半減期 22.3 年）及び宇宙線起源の $^7\text{Be}$ （53.3 日）は、それぞれ地表及び上空を起源とする大気塊のトレーサーとして用いられてきた。これらの長寿命核種の大気環境での動態は、降水による湿性沈着といった急激な気象学的要因に支配される。それら要因はしばしば数時間といった短い時間スケールで起こることから、核種の濃度も同じスケールで変動していると考えられる。しかしながら、これらの核種の大気中濃度の低さに起因する測定の高難しさから、このような短い時間スケール（高解像度）での観測はほとんどなされていなかった。

一方で、短時間間隔での観測においても $^{214}\text{Pb}$ （26.8 分）及び $^{212}\text{Pb}$ （10.6 時間）のような短寿命核種を対象としてその動態調査が精力的に行なわれている。これらの濃度は、短寿命であることに起因して、観測地点周辺の地理的条件や局地的な大気の状態を強く反映している。このうち $^{212}\text{Pb}$ は適度な半減期を持つことから、準地域的（メソスケール）での大気移動に関する情報を持つと考えられる。そのような観点から、空間的距離をおいた複数地点での $^{212}\text{Pb}$ の同時観測は有用であると考えられるが、測定にかかるまでの時間経過に起因する減衰の問題から、実施が困難であった。

本研究では、尾小屋地下測定施設（石川県小松市）に設置されている最大 16 台の Ge 半導体検出器を使用して極低バックグラウンド $\gamma$ 線スペクトロメトリーを行なうことによって、前述のような困難さを克服した。このことにより、①急激な気象変化に対する長寿命核種 $^7\text{Be}$ 及び $^{210}\text{Pb}$ 濃度の変動観測及び、②長寿命核種及び短寿命核種 $^{212}\text{Pb}$ 濃度の複数観測地点における高解像度同時観測の二種類の観測を実施し、以下のことを明らかにした。

観測①においては、寒冷前線通過時、台風接近時及び黄砂到来時といった特徴ある気象変化に伴う放射性核種の濃度変動に着目した。寒冷前線通過時には、降雨によって $^7\text{Be}$ 及び $^{210}\text{Pb}$ の濃度は急激に減少したが、その直前の寒冷前線の接近に伴って濃度の上昇傾向を示した。このことはこれらを多く含む気塊の到来を示唆しているものと考えられた。台風接近時の観測において、長寿命核種の濃度は数日前から激減したのに対して、短寿命核種では風速の増加に伴った直前の減少のみ観測された。このことは、短寿命核種が近傍に起源を持つのにたいして、長寿命核種は遠方に広く起源を持っていることを強く示唆している。すなわちより広い範囲の情報を有している。濃度の減少時に降雨がほとんど見られなかったことから、台風の接近によって長寿命核種を低濃度に含む空気塊が現地へ流入したためと考えられた。三つ目の観測対象として黄砂到来時を選んだ。黄砂到来時には、長寿命核種濃度が高い傾向が見られた。核種濃度とエアロゾル粒子の質量濃度は線形的な関係を示さなかったことから、黄砂が降下してくる天候において、核種濃度が比較的高いと考えられる上層大気からのエアロゾル粒子の下層大気への流入によると結論付けた。その一方で、他に検出された人工放射性核種である $^{137}\text{Cs}$ は、エアロゾル粒子の濃度と比例関係にあることから、再舞い上がりによって大気中へもたらされていることが再確認された。

観測②では、筆者らの実験施設（LLRL）に加えて、地理的環境を大きく異にする二つの観測地点において $^{212}\text{Pb}$ 濃度の変動に特に着目して同時観測を行なった。一つ目の観測地点は、大気の垂直混合の情報を得ることを目的として、標高 650 m の獅子吼高原（SSK）を選

んだ。もう一つの観測地点としては、能登半島輪島沖から 50 km北に位置する、日本海上の孤島の舳倉島 (HGR) を、大陸及び日本本土からの大気の影響評価を目的として選択した。LLRL-SSK同時測定では、地表を発生場とする $^{212}\text{Pb}$ の濃度変動に、高度の差に依存すると考えられる数時間から半日程度の時間的位相差が見られた。その位相差は、冬季より夏季において顕著であった。このことは、 $^{222}\text{Rn}$ の測定によって確認される結果と一致しており、混合層の成長とその高さの変化によって説明された。LLRL-HGR同時観測では、水平方向の距離に依存する位相差を期待したが、HGRの $^{212}\text{Pb}$ 濃度変動は観測ごとに大きく異なっており、明確な結果は得られなかった。 $^{212}\text{Pb}$ は陸源性の短寿命核種であるので、観測地点付近における風の強弱によってその濃度を大きく左右される。そのために一般的に風速の大きなHGRにおいては観測期間によって結果が大きく異なると考えられた。一方で強風時にも濃度が保たれていたことがあり、これは遠方起源からの影響が表れているものと思われた。今後、近傍と遠方の二つの起源を分別するような測定とモデルを構築することで、HGRにおける $^{212}\text{Pb}$ の濃度変動観測は、日本海域への大気を通しての物質の流入過程についての良い情報を持つ可能背もある。LLRL-SSK-HGRの三地点同時観測からは、前線の三地点への同時の通過に対して、長寿命核種の濃度に同時の急激な減少が見られた。この同時性は、①の観測とともに長寿命核種の気象に対する鋭敏性を示す結果となった。

以上から次の事が結論として得られた。数時間スケールでの急激な気象変化時には短寿命核種に比べて長寿命核種の変動の方が鋭敏であった。そのため、高解像度観測による長寿命核種の変動解析は大気中における地球科学的過程の解明に新たな情報を与えると考えられる。また、垂直距離が数百メートル程度の大気の輸送に関しては $^{212}\text{Pb}$ が有用なトレーサーになりうる事が示唆された。本研究により得られた結果は、放射性核種を大気過程のトレーサーとして用いる研究分野に新しい知見を与えるものである。

## 学位論文審査結果の要旨

本学位論文に対し、各審査委員が参考論文等の関連資料を含め予備審査を行ない、平成19年2月6日の口頭発表及び質疑応答（最終試験に代える）の結果を踏まえ、同日開催された審査委員会において以下の通り判定した。

大気中に極微量存在する天然放射性核種ラドンの娘核種  $^{210}\text{Pb}$  (半減期 22 年) 及び宇宙線誘導核種  $^7\text{Be}$  (半減期 53 日) は、測定上の困難さから一日以下の時間分解能で観測した例は殆どなく、ましてや複数地点での同時測定は皆無である。本研究は、水深 270m 相当の地下測定室に設置した 17 台の超低バックグラウンド Ge 検出器の使用により、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  及び  $^{212}\text{Pb}$  (半減期 10.6 時間) を 2～数時間という高い時間分解能で測定した観測結果を詳細に解析したものである。観測拠点として辰口と鉛直分布観測に適した海拔 640m の獅子吼高原、バックグラウンド成分が低く遠方起源の観測に適したと考えられる輪島沖 50km の舢倉島の 3 地点を選び、平常時、台風及び寒冷前線通過時、降雨・降雪時、黄砂到来時など様々な気象条件下で同時測定を行った。その結果、これら放射性核種の濃度はラドンに匹敵する短時間変動をすること、ラドンのような規則的な日変動と異なり予想を超える極めて複雑な変動をしていることを初めて明らかにした。本研究では、これらの変動を半減期、生成起源の違い、大気塊の輸送・混合を考慮することにより合理的に説明している。

以上の成果は、博士（理学）の学位を授与するのに十分値すると判定した。