

大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係

松本洋平¹、本間 信¹、田浦慎太郎¹、世良耕一郎²、高辻俊宏³

¹長崎大学大学院生産科学研究科
852-8151 長崎県長崎市文教町1-14

²岩手医科大サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢宇留が森348-56

³長崎大学環境科学部
852-8151 長崎県長崎市文教町1-14

1 はじめに

本研究は、Pb-210、Be-7という放射性同位元素と安定元素との関係を探ることで、大気中浮遊物の挙動を解明することが目的である。また、その浮遊物に有害な元素が付着していないかを調査し、放射性同位元素とどのような関係にあるのかを調べるものである。今までのサンプルをPIXE分析することで、従来のICP-AES法では測定できなかった元素を測定でき、またデータが安定している等の良好な結果が得られた。

今回の報告では、PIXE分析で得られた安定元素と放射性同位元素がどのような関係にあるのかということと、得られた結果から大気中浮遊物質がどのような挙動を示していると考えられるのかを報告する。

2 実験方法

今回の測定では、ハイボリュームエアースンプラー柴田科学製AH600-Fを用いて、長崎大学環境科学部棟屋上にて試料を採取した。そのハイボリュームエアースンプラーは、分流装置を搭載しており、粒径別にエアロゾルを採取することが可能であった。しかし、その装置を使用すると、各フィルターに吸着するエアロゾルが極微量となり、Pb-210等の放射性同位元素の測定やICP-AES分析法での元素の検出が困難であった為、その分流装置を取り外し、バックアップフィルター(図1.1)のみを用いて、エアロゾルの採取を行った。試料採取は、2007年12月～2009年5月にかけて行った。また、試料は1週間に渡って採取した。そして、図1.2に示すような採取したサンプルを切り分け、切り分けたサンプルの4分の3をGe半導体検出器に使用し、放射性同位元素を測定した。そして、残りの4分の1をPIXE分析用に使用することにした。



図1.1 吸着前の濾紙

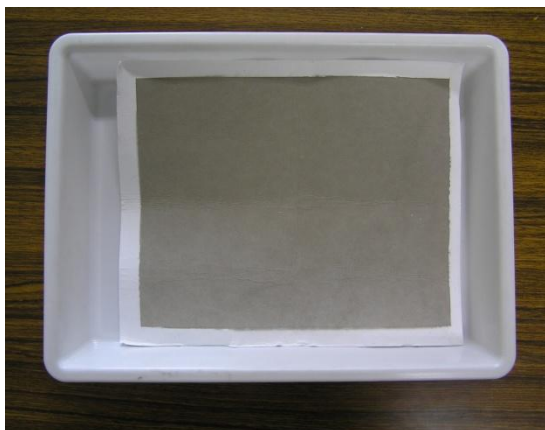


図1.2 吸着後の濾紙

3 結果と考察

3.1 放射性同位元素

Ge半導体検出器で測定できたのは、Pb-210とBe-7であった。Pb-210は、地殻に含まれるU-238が崩壊することで、様々な核種を経て発生する。その壊変途中で気体のRn-222を経るので大気中に飛び出し、引き続き崩壊により微粒子となる。つまり、Pb-210は陸上起源と言える。そして、発生したPb-210はエアロゾルに付着し、大気中を浮遊する特徴があり、Pb-210が陸上由来の指標となっている。

中国などの遠方から飛来してくるエアロゾルは粒径が小さいものが多い。一方、粒径が大きいものは、滞空時間が短いため、近隣からのものが多い。遠方の元素との関係を調べるのが目的であるのに、近隣のエアロゾルが多く吸引されると、質量あたりの遠方からの元素量が少なくなってしまう。粒径が小さく遠方から飛来してくるエアロゾルは、粒径が大きく滞空時間の短い近隣から来るものよりも、質量あたりの表面積が大きく、Pb-210の微粒子と接触する時間も長いので、それだけ多量のPb-210が付着しているものと考えられる。つまり、遠方からのエアロゾルの量の指標としては、質量よりもPb-210の量の方が優れているだろうから、遠方の浮遊物の挙動を解明するという点において、より良い結果が得られるのではないかと期待している。また、現在、エアロゾルの質量も測定しており、Pb-210と元素の関係、もしくは、質量と元素の関係のどちらが浮遊物の挙動を解明するのにふさわしいのかを、検討していきたい。

Be-7は、大気中の酸素や窒素が宇宙線と衝突することで発生し、大気中を浮遊するので、Pb-210と同様に大気輸送の解析に有用であると考えられる。

そこで、Pb-210とBe-7の相関図を図2に表した。Pb-210とBe-7は、相関係数 $R = 0.634$ 有意水準 $p = 2.24 \times 10^{-6}$ で強い相関があった。この二核種の起源は異なるが、小さいエアロゾルに多く吸着するという点は同じなので、似た挙動を見せる¹⁾ものと考えられる。今回の報告では、Be-7と各元素についての関係まで直接検討していないが、Pb-210と強い相関が見られ、またPb-210とBe-7共にエアロゾルに吸着するという特徴があることから、Pb-210と各元素との関係の場合と同様の結果になると推測している。

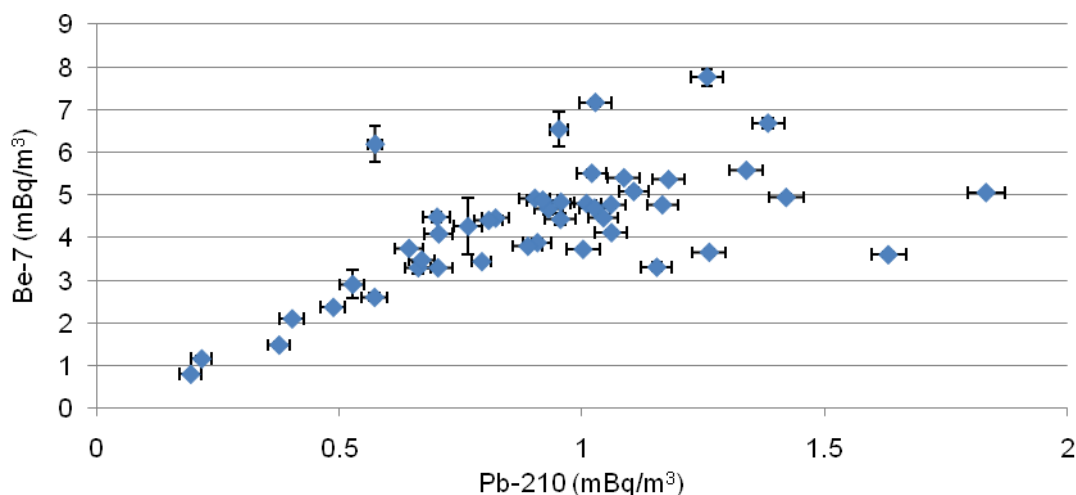


図2. Pb-210とBe-7の相関図

3.2 PIXE分析での測定結果と考察

PIXE分析により、様々な元素を測定することができた。エアロゾルには土壌起源と海水起源の2種類が存在するため、海水起源による寄与分を差し引いた（海水からの寄与分を差し引いた元素をnssと表記することにする）。

例えば、Brの海水起源の元素量の差し引きの計算²⁾は以下のように行った

$$[nss-Br]=[Br]-[Na]\times[Brの海水中の平均濃度]/[Naの海水中の平均濃度]$$

今回の報告では、Br、S、Sr、Mgの4元素について海塩成分を差し引き³⁾した。他の元素については、海水での組成比が非常に小さいため、計算を省略した。このようにして、得た結果を元に、全ての元素の結果とPb-210との関係を図3-1~13として示した。

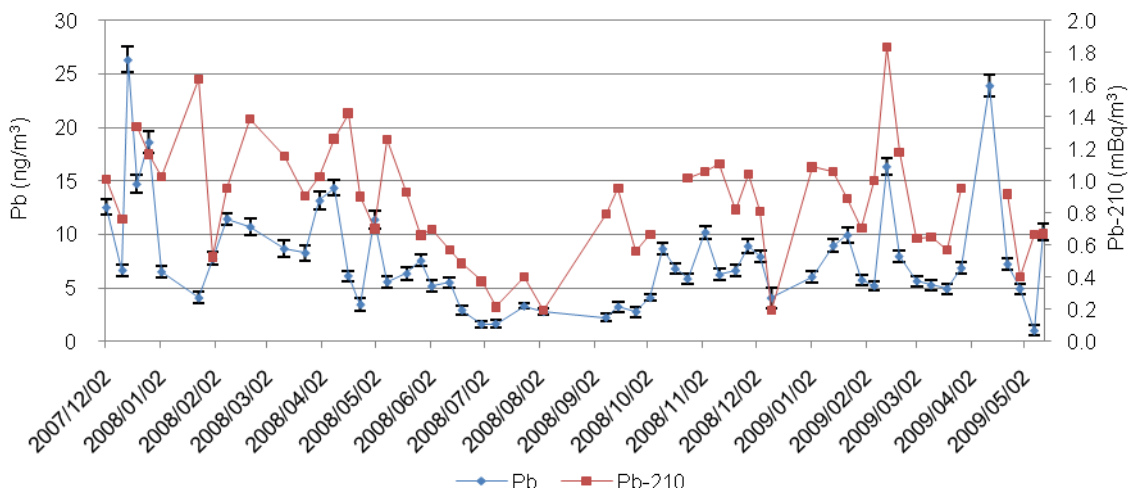


図3-1. PbとPb-210の季節変動

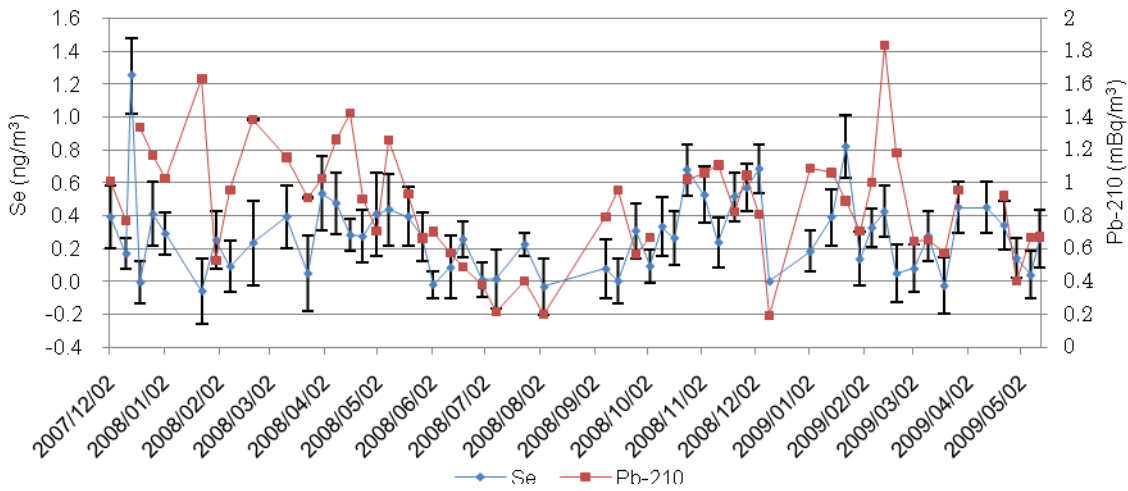


図3-2. SeとPb-210の季節変動

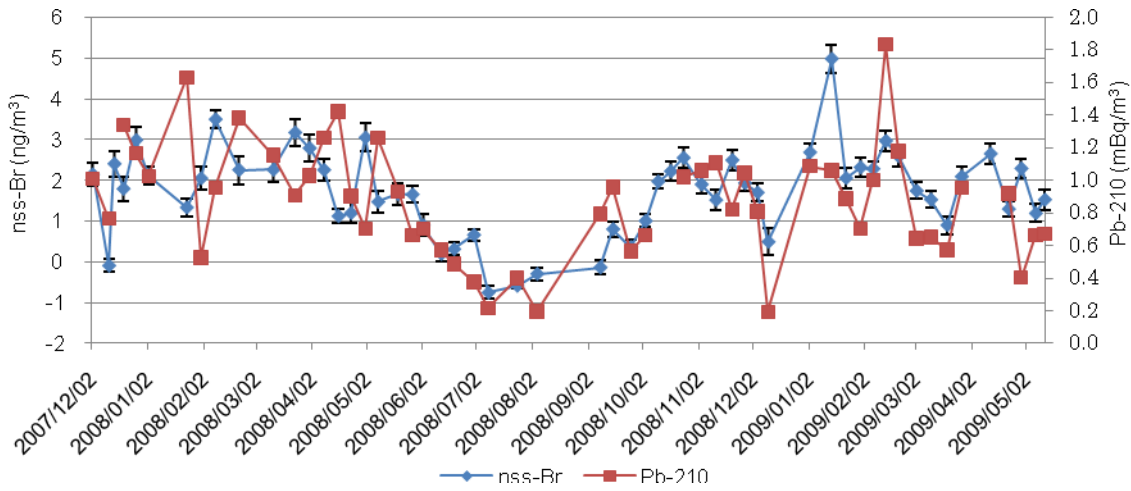


図3-3. nss-BrとPb-210の季節変動

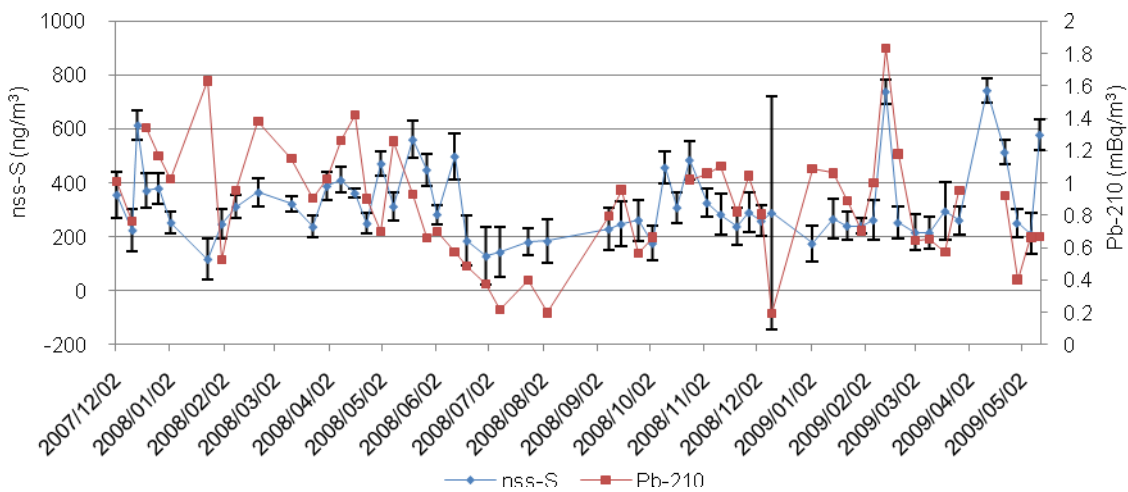


図3-4. nss-SとPb-210の季節変動

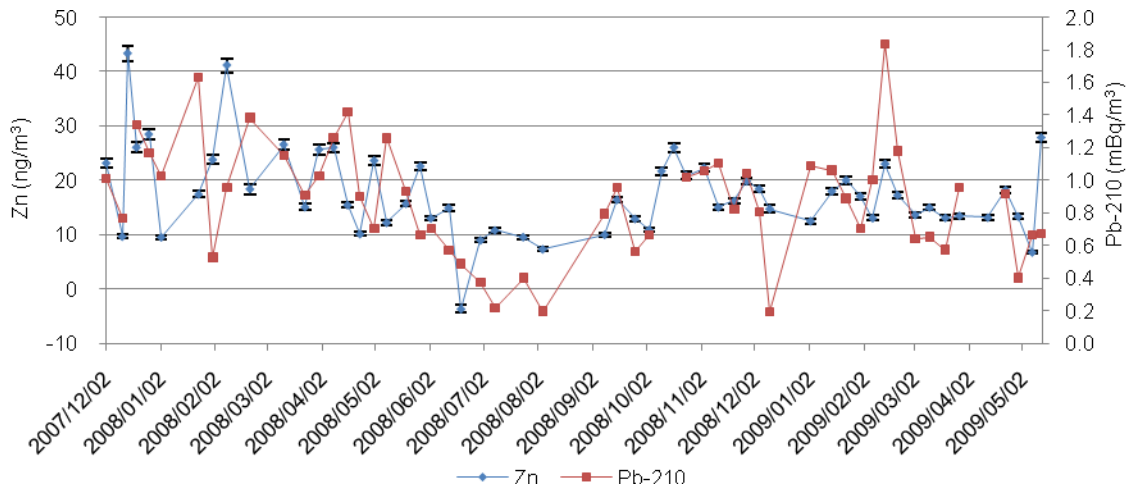


図3-5. ZnとPb-210の季節変動

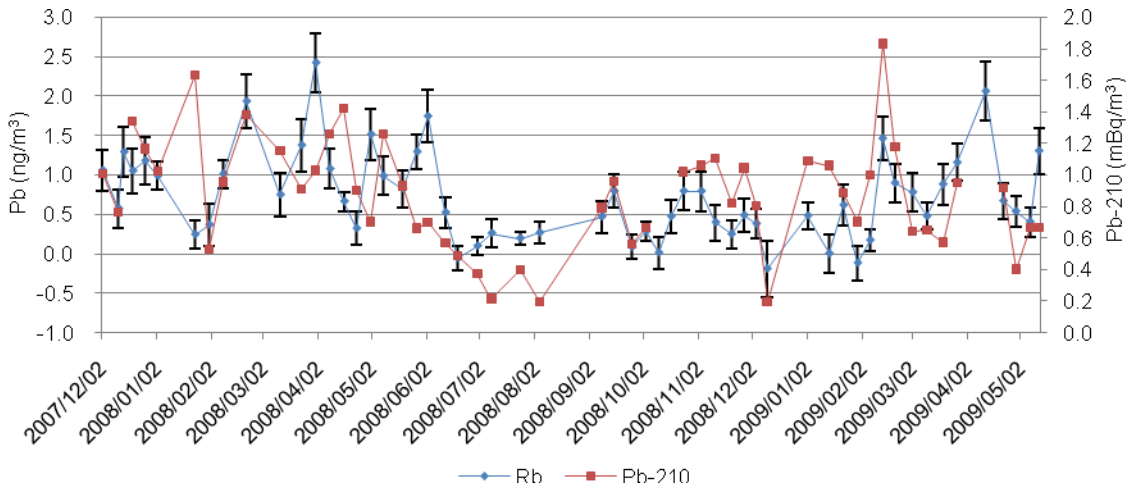


図3-6. RbとPb-210の季節変動

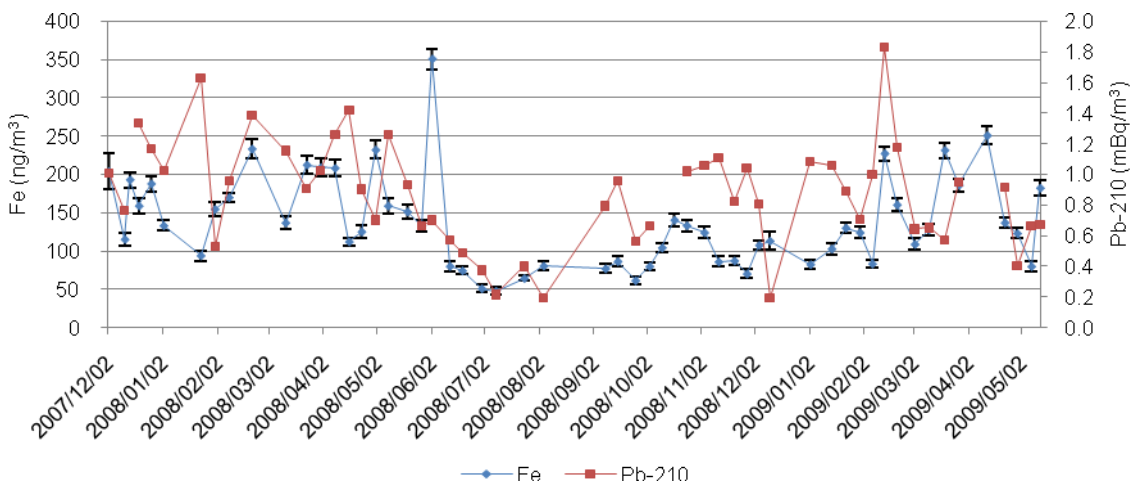


図3-7. FeとPb-210の季節変動

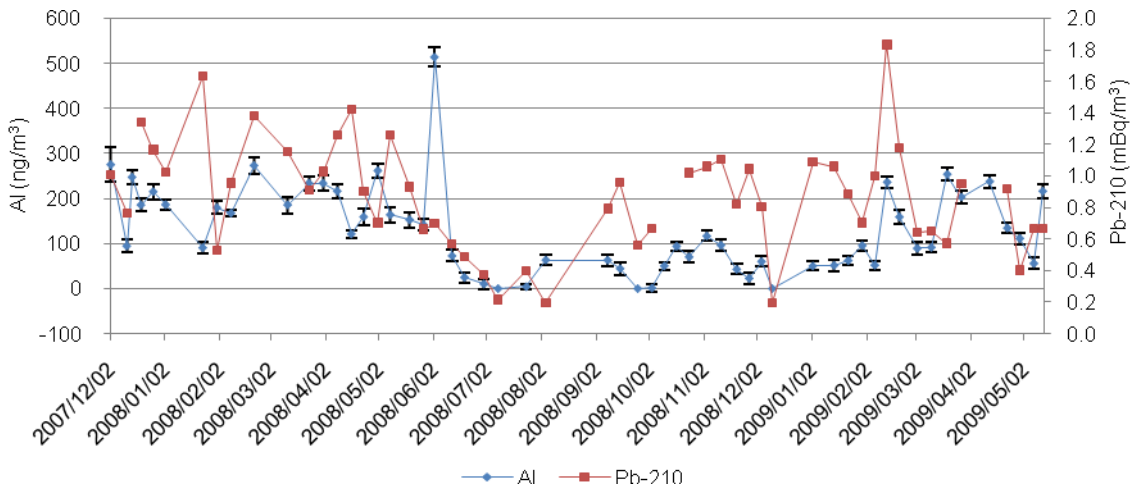


図3-8. AlとPb-210の季節変動

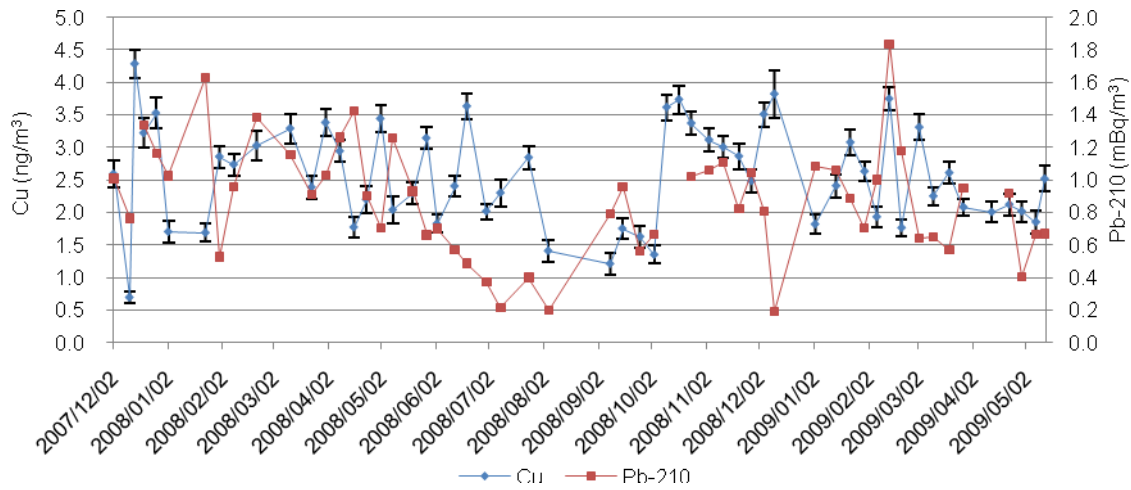


図3-9. CuとPb-210の季節変動

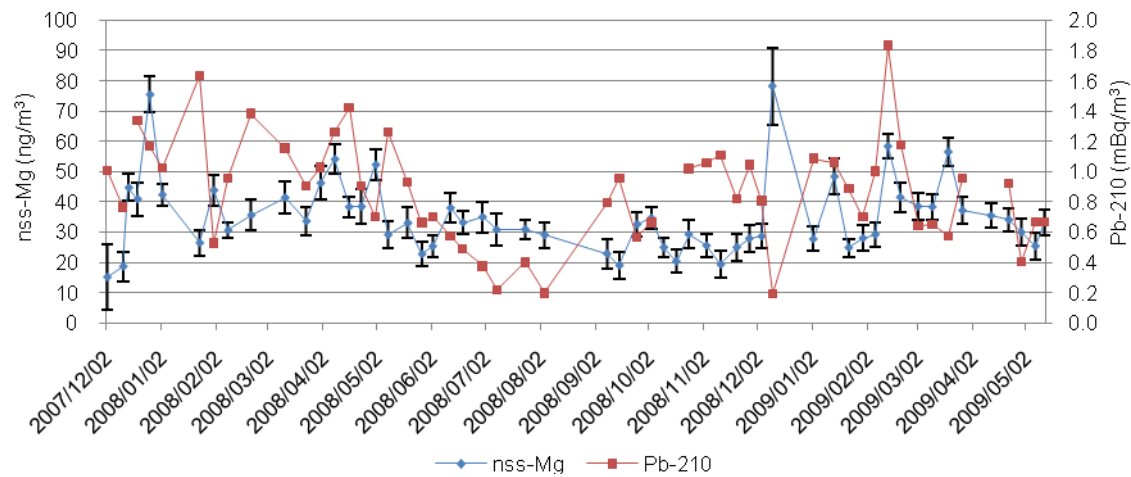


図3-10. nss-MgとPb-210の季節変動

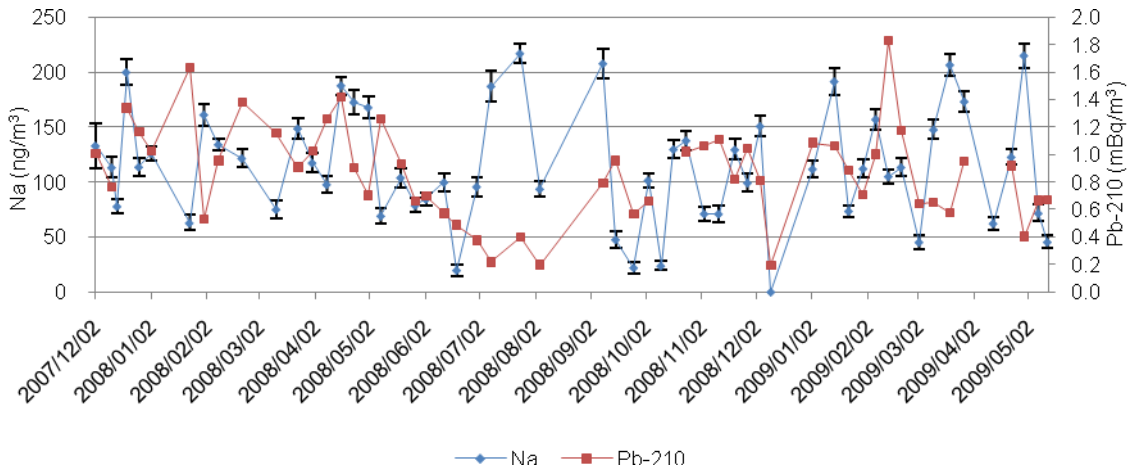


図3-11.NaとPb-210の季節変動

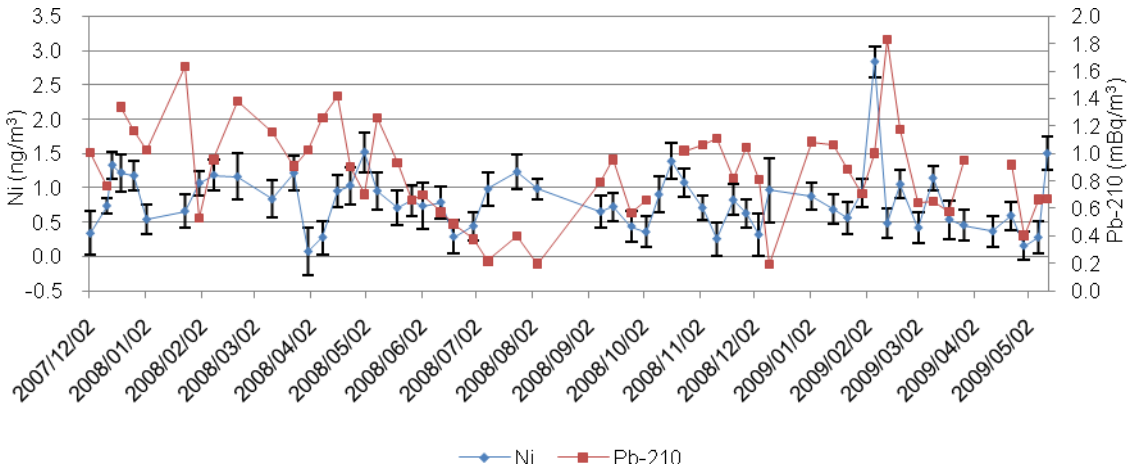


図3-12.NiとPb-210の季節変動

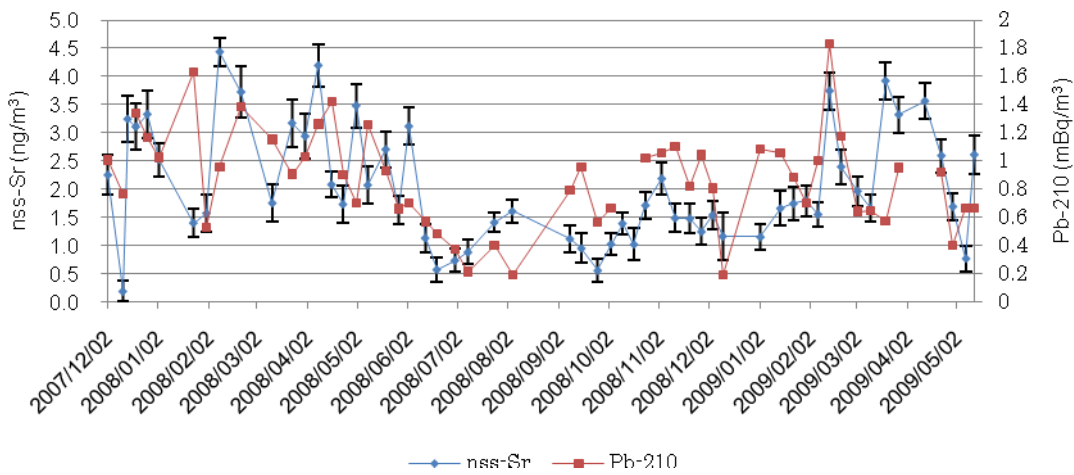


図3-13. nss-SrとPb-210の季節変動

その得られた結果の中で、明確な季節変動を見せた元素がAl、Se、nss-S、Fe、Zn、nss-Sr、Rb、Pb、nss-Brの9元素であった。また、Pb-210も、冬に高く、夏に低いという季節変動が見られ、先ほどの9元素とほぼ同様の季節変動があることが分かった。Pb-210に季節変動が見られる原因としては、梅雨等の連続的な降雨により、大気中からエアロゾルが洗い流されてしまうことが考えられる。また、夏が近づくと、南西からの風向が多くなり、大陸からの風が少なくなることも大きな原因として挙げられる。

さきほどPb-210はエアロゾルの量の指標となると示した。つまり、先ほどの9元素がPb-210と同様の傾向を見せたのは、ただ単にエアロゾルの量が減ったことで、それに付着して飛来してくる元素の量も減り、季節変動が見られたのではないかという考えに至った。そこで、元素の本当の季節変動を見る為に、Pb-210で元素を除したグラフを図4-1~13に示した。Pb-210で除することで微細なエアロゾル量あたりの元素の変動が分かる。

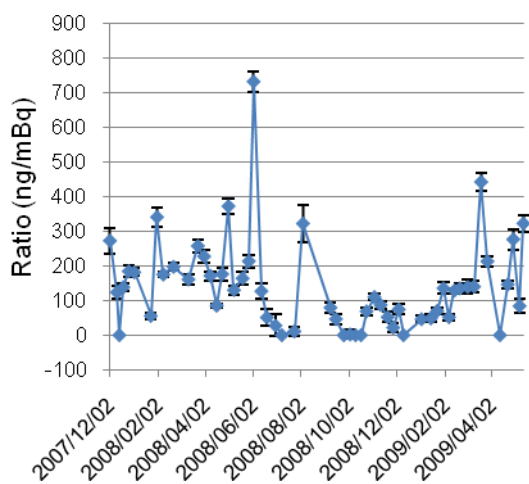


図4-1. AlとPb-210の比

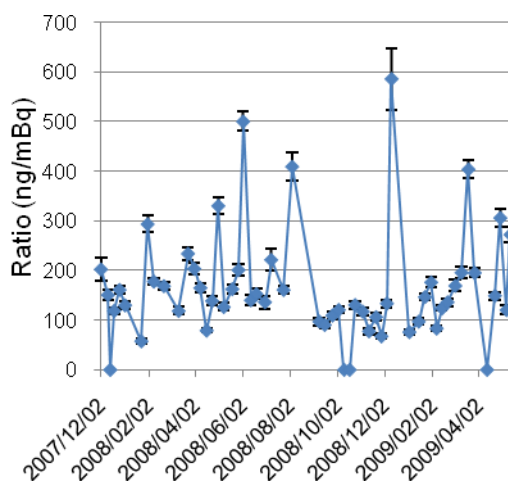


図4-2. FeとPb-210の比

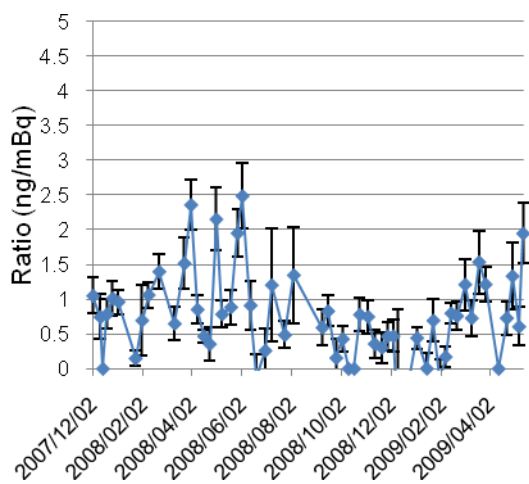


図4-3. RbとPb-210の比

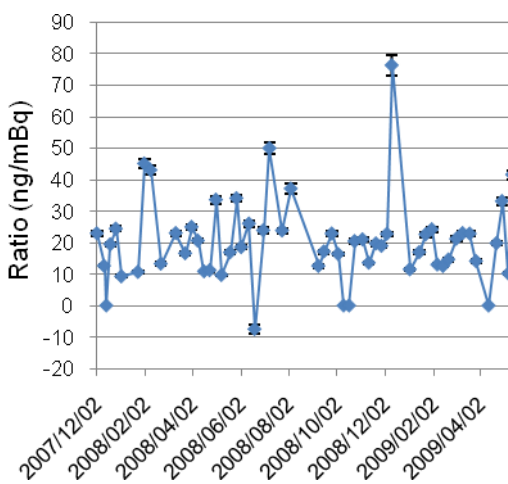


図4-4. ZnとPb-210の比

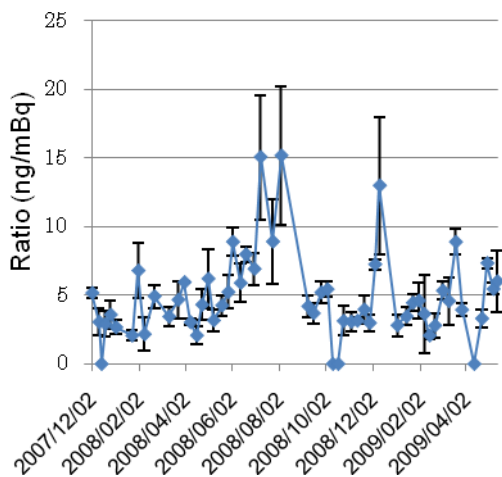


図4-5. NiとPb-210の比

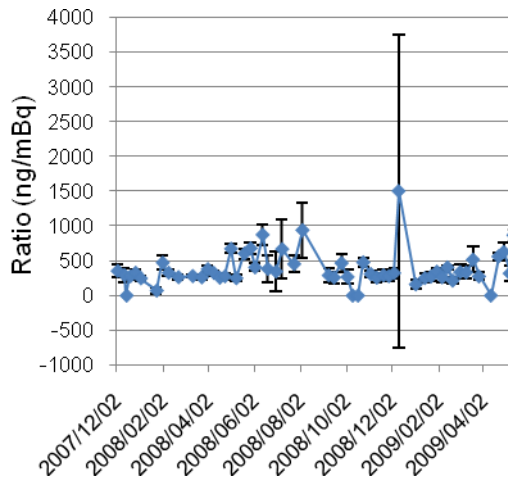


図4-6. nss-SとPb-210の比

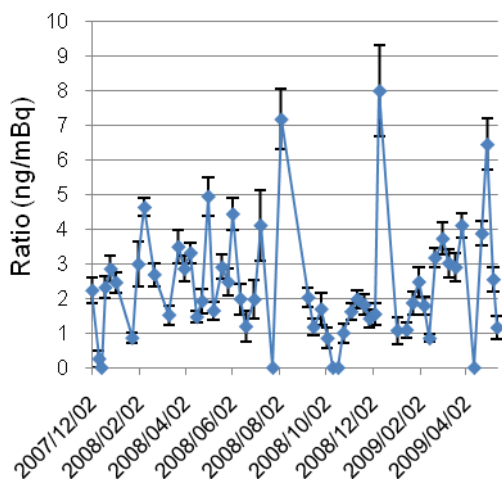


図4-7. nss-SrとPb-210の比

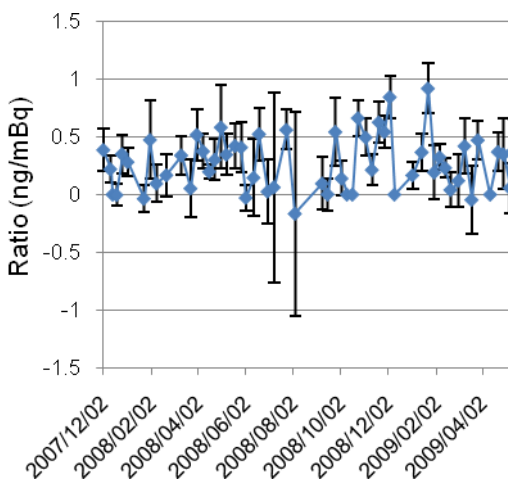


図4-8. SeとPb-210の比

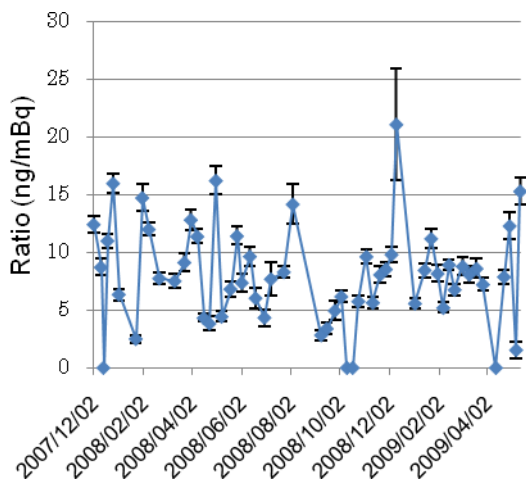


図4-9. PbとPb-210の比

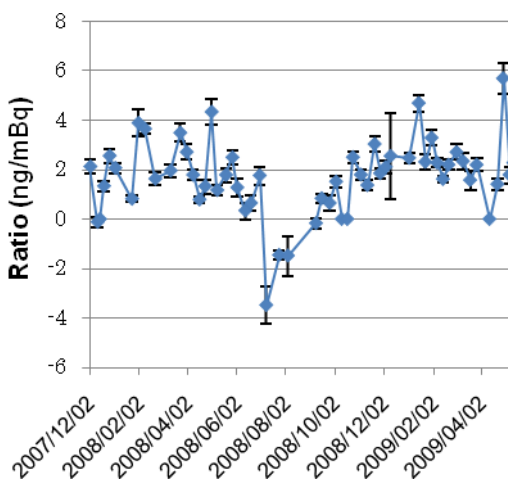


図4-10. BrとPb-210の比

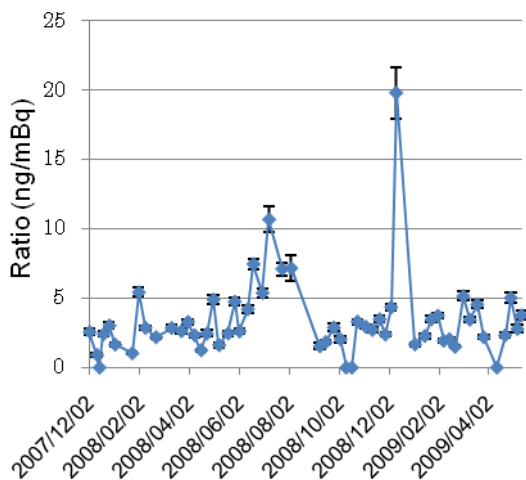


図4-11. CuとPb-210の比

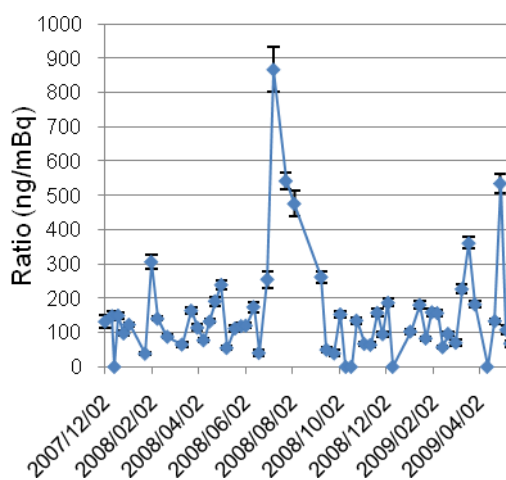


図4-12. NaとPb-210の比

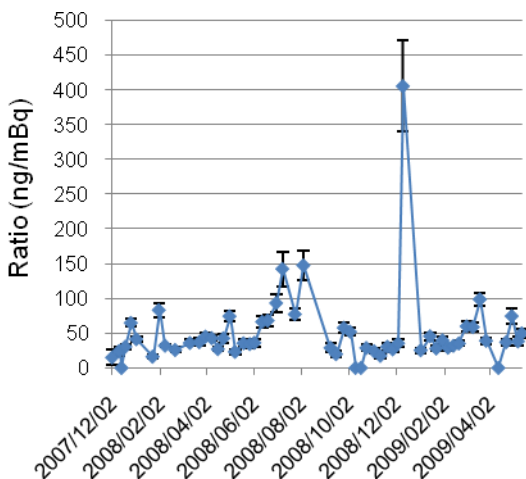


図4-13. nss-MgとPb-210の比

この結果を見ると、先ほどのPb-210と同様の季節変動を見せた9元素をPb-210で除した結果の変動が幾つかのパターンに分類され、変動を明確に把握することができた。

nss-BrをPb-210で除したものは夏に大幅に減少している。これは、夏に長崎では南西の風が吹くことで、大陸からエアロゾルが来なくなったことが原因と考えられる。また、nss-Brの夏における減少傾向は、大陸から飛来するエアロゾルにはBrが多く含まれていることを示唆している。

しかし、nss-Br以外の元素は、Pb-210で除した場合、減少の見られる元素も存在したが、変動の見られない傾向の元素があり、また上昇するといった傾向が見られる元素もあった。これは元素濃度の減少幅と比べ、エアロゾルが大陸から飛来しなくなり、Pb-210が大幅に減少しすぎることが原因と考えられる。だが、元素濃度が主に大陸由来のPb-210のように減少しすぎないということは、長崎周辺からそれらの元素が人為的に排出されているのではないかと、また、近隣土壌からの寄与分もあるのではないかと考えることができる。それに加えて、Pb-210との比をとったと

きに、Pb-210との比が夏に大幅な減少をみせるということは、その元素がほぼ中国方面からだけ飛来してきているということも言えそうである。こういったように、Pb-210で除することは、エアロゾル当たりの季節変動が分かるだけでなく、どの元素が主にどこから来ているのかということまで分かる手法であり、エアロゾルの挙動を解明するのに大変役立つ手法であると言える。

一方、nss-Mg、Cu、Na、Niの4元素には明確な季節変動は見られなかった。また、それらの元素量をPb-210で除してみると、夏において大幅に増加する傾向が見られた。本来ならば、夏には大陸からのエアロゾルは減少し、減少する傾向になるはずである。だが、そうならなかったということは、先ほどの4元素は1年を通して、長崎周辺からの影響を受けているのではないかと考えた。

そこで、長崎は周辺が山に囲まれているので、長崎周辺の山の土壌からの影響ではないかと考え、山の土壌のデータを扱うことにした。長崎市周辺の山である峰火山と岩屋山、戸町岳、金比羅山、矢筈岳の5つの山の土をICP-AES分析法で測定したデータが当研究室にあった⁴⁾ので活用した。

採取風景は図5である。実験方法は、ステンレス製の空洞のある円筒形の筒を金槌で打ち込み、地表より5cmの土をくり抜くというものである。



図5. 戸町岳での土壌の採取風景

左図は戸町岳で土壌を採取した後の土壌表面を写したものである。

峰火山は21カ所、戸町岳は6カ所、岩屋山と金比羅山と矢筈岳はそれぞれ5カ所の土を採取した。そして、その結果から、Pb/Cuを求めたところ、以下の表の値を示した。

表1. 長崎周辺の山の土壌のPb/Cu

場所	岩屋山	戸町岳	峰火山	金比羅山	矢筈岳	AVERAGE
Pb/Cu	0.831	1.510	1.605	1.132	0.983	1.212

表より、長崎周辺の山のPb/Cuの値は、だいたい1.0～1.5あたりの値を示している。

ここで、図6にエアロゾル中のPb/Cuのグラフを示す。

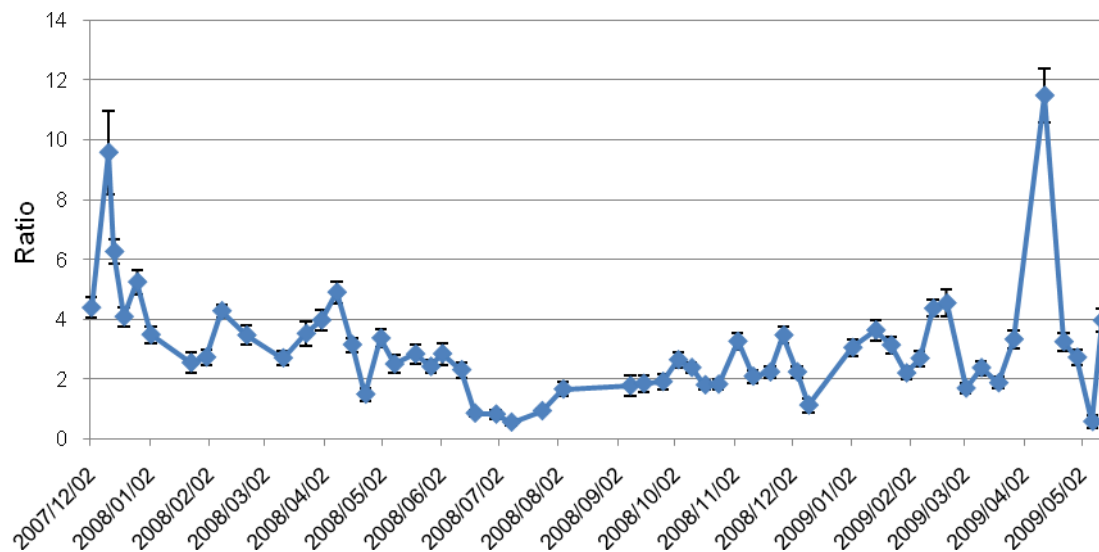


図6.エアロゾル中のPb/Cu

このグラフから、エアロゾル中の夏の間のPb/Cuが約1.0の値を示していることが分かる。この値は、長崎周辺の山の土壌のPb/Cuとほぼ一致する値である。つまり、長崎市における夏の間のエアロゾルは長崎市周辺の山の土壌由来のものであると推測される。

また、他の季節変動がみられなかったNi、MgについてもCuと同じように、土の分析を行うことで、Cuと同様の結果が得られると期待したが、残念なことにそれら3元素についての土の分析データがなかった。今後は、さまざまな地点の土を採取し、分析していきたい。

Naについては、海からの潮風の影響を受けたものと考えている。長崎において、夏は南西の風がよく吹く。また、地形的にも、南西方向以外は周りが山で囲まれていて、南西の方向のみ海に開かれているという特徴的な地形となっている。よって、夏に南西の風が吹いたときに、海からの潮風が長崎大学屋上にまで届いてくることで、Naの夏における急激な上昇に繋がったのではないかと考えられる。

今後としては、エアロゾル中の元素量の変動を追うのに、Pb-210と質量のどちらが優れているかを検討していきたい。また、現在、サンプルの採取場所を変えて測定を行っているので、場所が違うことで、どういった変化が出てくるのかも追究したい。

謝辞

この研究を支えてくれた多くの長崎大学環境科学部、長崎大学大学院生産科学研究科の学生や教職員の方々に心より感謝いたします。

参考文献

- 1) 田浦慎太郎：大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係，長崎大学大学院生産科学研究科修士論文（2009）

- 2) Xiao-Yang Yang : Long-range transport of fluoride in East Asia monitored at Noto Peninsula,Japan ,
Science of the total Enviroment 407,4681-6 (2009)
- 3) Little Waves : 海水の組成, http://www.littlewaves.info/marine/kw_seaelement.htm (2009)
- 4) 除偉新: 山頂付近の土壤に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係, 長崎大学環境科学部
卒業論文 (2007)

Relationship between radioactive isotopes and metals contained in the air suspended

Y. Matsumoto¹, M. Honma¹, S. Taura¹, K. Sera² and T. Takatsuji³

¹Graduate School of Science and Engineering, Nagasaki University
1-14 Bunkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

²Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173

³Faculty of Environmental Studies, Nagasaki University
1-14 Bunkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

Abstract

Relationships between stable elements and radioactive isotopes were explored for understanding the behavior of aerosol around Nagasaki-City. In the report, we presented relationships between the amounts of radioactive isotopes Pb-210 and Be-7 obtained from gamma spectrometry and the stable elements obtained from PIXE analysis, and considered conceivable behavior.

Thirteen elements were significantly detected from the PIXE analysis. Amount of the 9 elements, nss-Br, Al, Se, nss-S, Fe, Zn, nss-Sr, Rb and Pb were correlated with Pb-210 radioactivity and varied seasonally, where nss indicates non-sea-salt. The other 4 elements, Cu, nss-Mg, Ni and Na showed no seasonal variation. It suggests that large part of the 9 elements may come from the continent with the small grains of aerosol and the 4 elements may come from neighborhood with the relatively large grains.