

## 大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と安定元素の関係

袁 軍<sup>1</sup>、松本洋平<sup>2</sup>、本間 信<sup>2</sup>、世良耕一郎<sup>3</sup>、高辻俊宏<sup>1</sup>

<sup>1</sup>長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科

852-8151 長崎県長崎市文教町1-14

<sup>2</sup>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

<sup>3</sup>岩手医科大サイクロトロンセンター

020-0713 岩手県岩手郡滝沢村滝沢宇留が森348-58

### 1 はじめに

本研究は、天然放射性同位元素の<sup>210</sup>Pb、<sup>7</sup>Be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、特徴的な元素がその浮遊物に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。

前回の報告<sup>(1)</sup>は、長崎市街地にある長崎大学環境科学部屋上での観測であった。2009年5月以降、大陸からの越境大気をとらえることを目的として、さらに西方の山上にある、ながさき県民の森に観測点に移された(図1)ので、そこで得た試料に含まれる<sup>210</sup>Pbと、PIXEによる元素分析を前回同様に分析して比較した。また、エアロゾルの総質量を測定したり、安定鉛の同位体比を長崎大学にあるICP-MS装置を用いて測定したりした。このことについて報告する。

### 2 方法

#### 2.1 試料採取

エアロゾル採取には、ハイボリュームエアーサンプラー柴田科学製AH600-Fとアドバンテック QR-100 シリカ繊維濾紙 203×254 mm を用いた。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。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をガンマエックス型ゲルマニウム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のうち、一部をPIXE分析用に使用し、残りを安定鉛の同位体比の測定などに使用した。

#### 2.2 測定方法

濾紙は、吸湿性があるため、エアロゾルの質量測定には、除湿機能付きのデシケーター



図1. 環境科学部とながさき県民の森の位置関係

(サンブラテックオードデシケーターAM-3型 (オレンジ)) を用いた。

放射能の測定には、濾紙をポリエチレンラップに包み、金型に入れてからプレス器で円盤状に成形したのち軟膏容器に入れ、Ortec社GMXシリーズゲルマニウム半導体検出器を用いて行った。元素の測定は、日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター(NMCC)においてPIXEにより行った。安定鉛の同位体分析には、日立P-5000型質量分析計を用いた。鉛含有量の校正にはNIST SRM981鉛標準試料 (National Institute of Standards and Technology, U.S. Department of Commerce.) を用いた。

### 3 結果と考察

#### 3.1 ながさき県民の森の各元素濃度とPb-210濃度の比較

ながさき県民の森の試料から検出された各元素を $^{210}\text{Pb}$ 濃度と比較した (図2-1~2)。季節変動が見られた元素が、Ti、Cr、Mn、Fe、Zn、nss-Sr、Rb、Pb、nss-Br、nss-Mg、Cu、Niであった。一方、季節変動が見られなかった元素はNa、Se、V、Zrであった。

黄砂が飛来してきたのは、2009年は2月20日、2月21日、3月17日、10月19日、12月26日であった。2010年は3月16日、3月20日、3月21日、4月27日、4月30日、5月4日であった。

ほぼ全ての元素濃度において黄砂時に上昇するピークが見られた。特に、Pb、Ti、Mn、

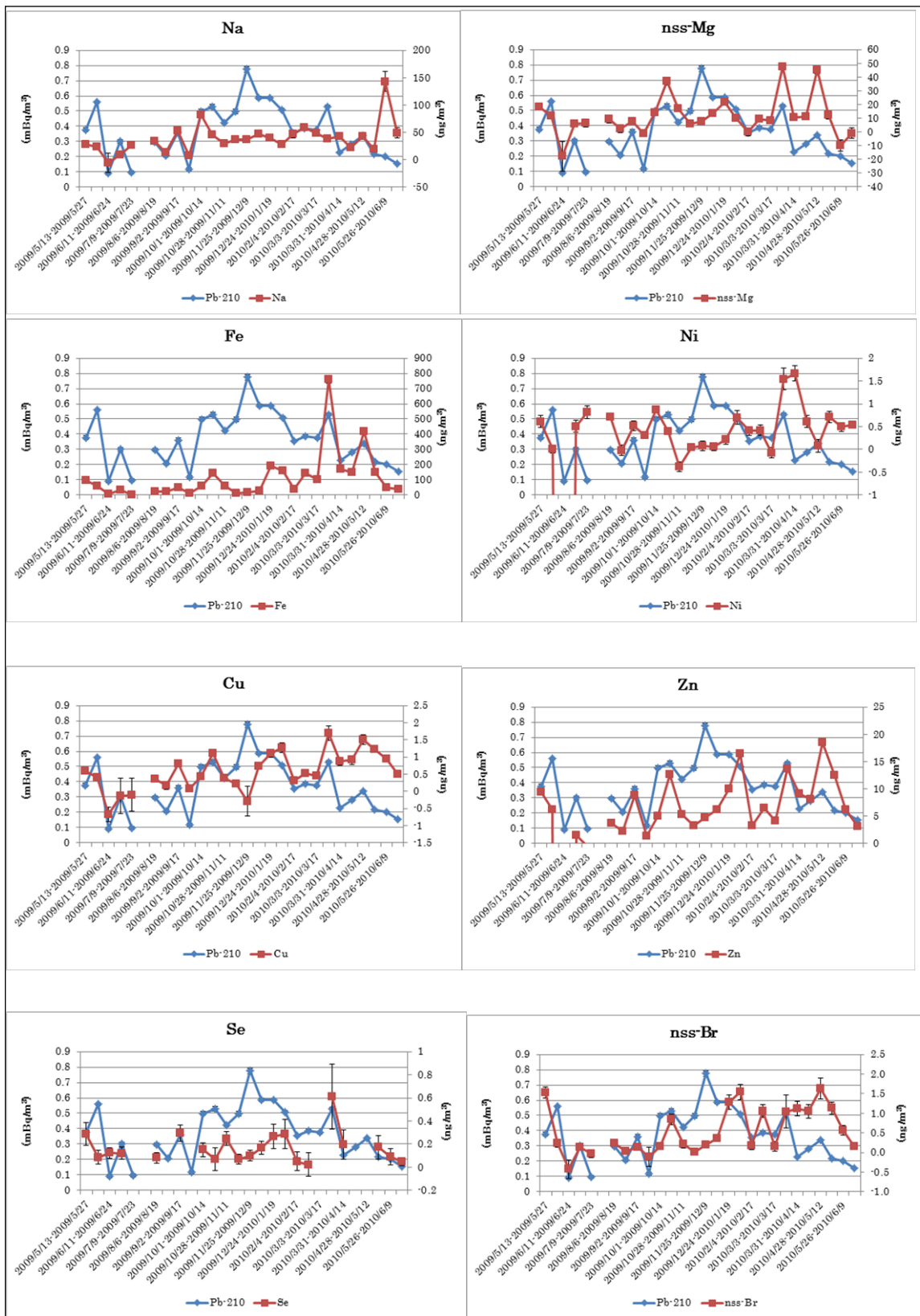


図2-1 ながさき県民の森における各元素と<sup>210</sup>Pbの季節変動

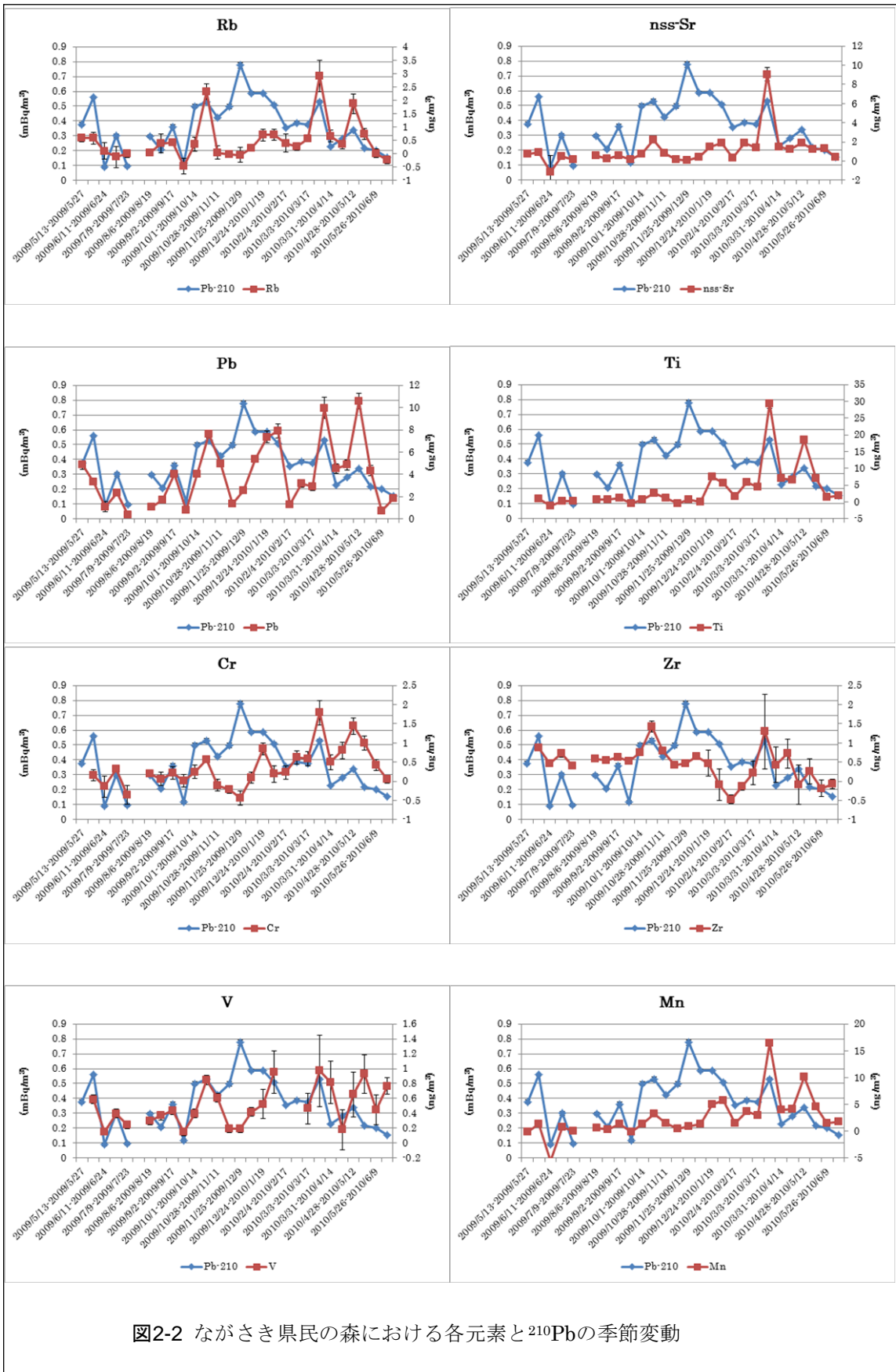


図2-2 ながさき県民の森における各元素と $^{210}\text{Pb}$ の季節変動

nss-Mg、Fe、Zn、Rb、Crには、はっきりとしたピークが現れた。一方、黄砂時に関わらず、濃度が一定であった元素はNaであった。

環境科学部屋上と異なり、各元素濃度と<sup>210</sup>Pb濃度の連動は明瞭ではなかった。

### 3.2 ながさき県民の森と長崎大学環境科学部屋上の比較

図3は、前回報告の長崎大学環境科学部屋上とながさき県民の森のエアロゾル中元素濃度の比である。Pb、Rb、Niは、年間を通して、比が1に近いのに対して、環境科学部屋上で高濃度を示す元素がある。Naが夏場に大きいので、環境科学部屋上は、南風による潮風の影響があると考えられる。Cuのように年間を通して大きい元素もある。Nss-Brが夏に欠いているのは、環境科学部屋上において、マイナスの値を示したためである。

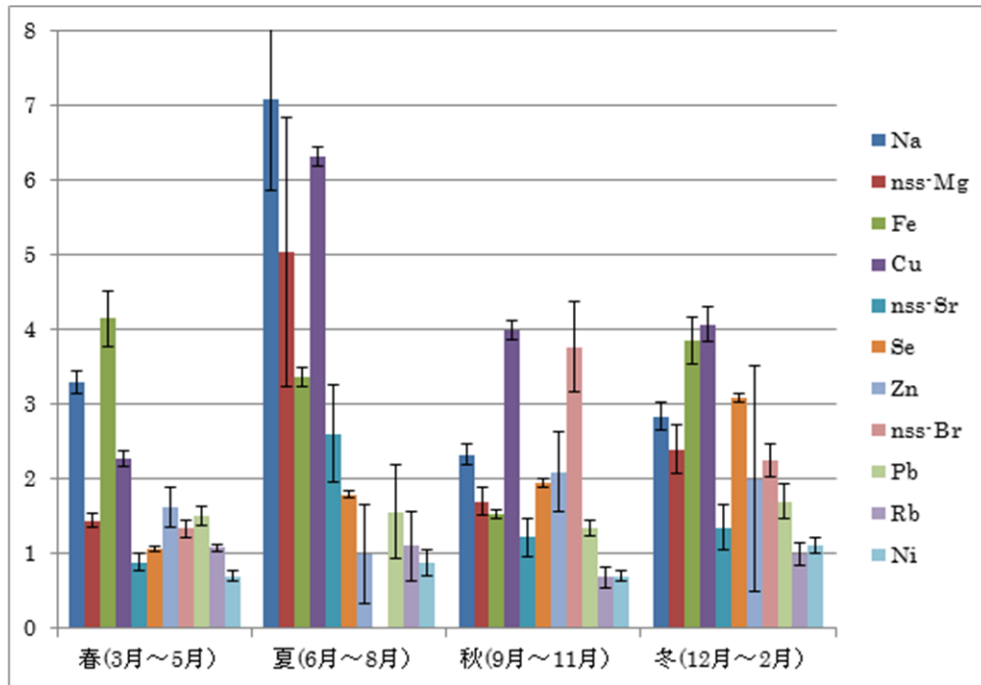


図3. 長崎大学環境科学部棟屋上とながさき県民の森のデータの比

図4は、ながさき県民の森と長崎大学環境科学部における<sup>210</sup>Pb濃度を示している。長崎大学屋上のほうが、約2倍の濃度がある。アスファルトの路面や建物の屋根、モルタル塗りの地面などに降り積もったエアロゾルが風で再浮遊することがあるとすれば、両者に降り注ぐ<sup>210</sup>Pbの量に差がないとしても、ながさき県民の森のような森林地帯よりも、都市部の方が大気中の<sup>210</sup>Pb濃度が高くなると考えられる。長崎大学屋上における<sup>210</sup>Pb濃度をながさき県民の森の<sup>210</sup>Pb濃度で割ったものが、この再浮遊による各元素の濃度の増幅率を表すのであれば、図3のグラフの値をこの比で割ったものは、再浮遊の影響を補正したものとなる。それを図5に示す。図5で値が1になるものは、再浮遊がないとすれば、長崎大学屋上とながさき県民の森で同じ量になると考え

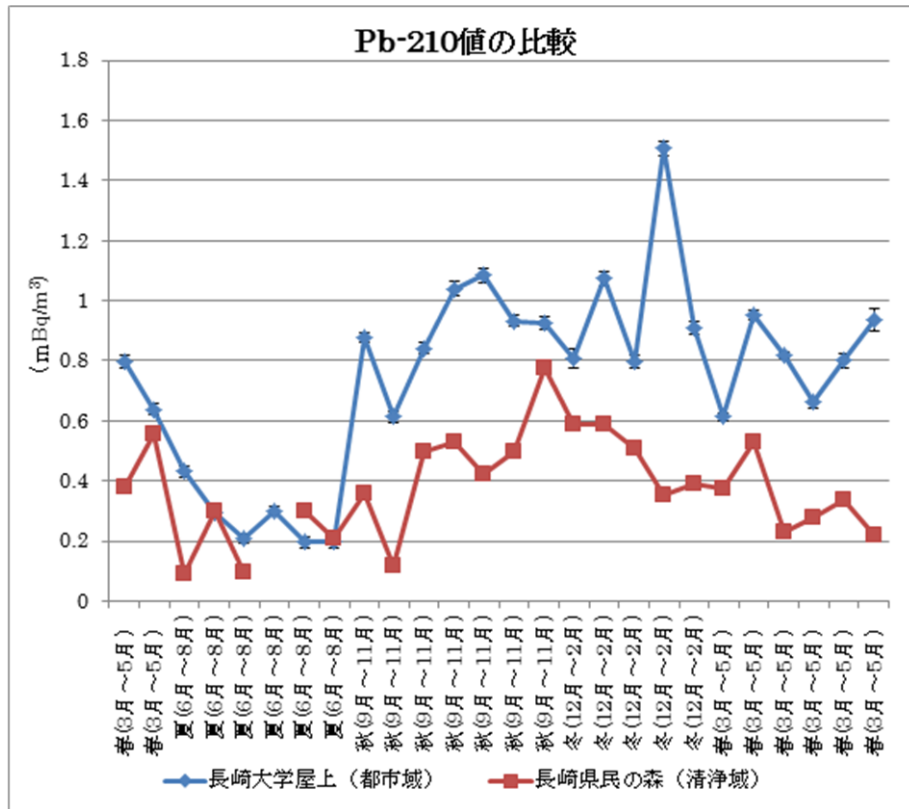


図4. 環境科学部と県民の森での $^{210}\text{Pb}$ 濃度の比較

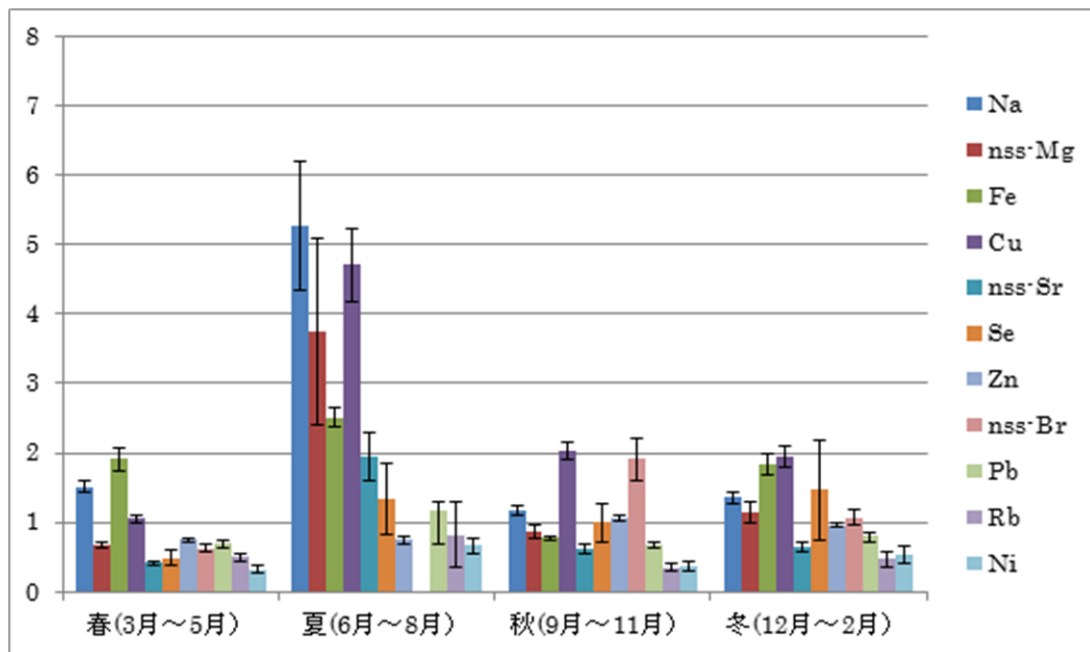


図5. 図3の値を $^{210}\text{Pb}$ 濃度の比で割ったもの。再浮遊の影響の補正を試みた。

られる。季節に関わらず、1に近くなるものは少なかった。Na、nss-Mg、Cuは夏に突出している。Naは夏に大学屋上で増加している。Nss-Mgの突出は、大学屋上における夏場の<sup>210</sup>Pbの減少によるものであり、Cuはその中間である。これらの元素が<sup>210</sup>Pbより再浮遊しやすいのであれば、大学屋上においては、県民の森とは違う発生源を有しているものと考えられる。このグラフで、1より著しく低い元素については、再浮遊の影響を受けないためであるかもしれない。

### 3.3 Pb-210濃度とエアロゾルの質量の関係

捕集した濾紙に含まれるエアロゾル質量と<sup>210</sup>Pb放射能の関係を図6に示した。黄砂の時期に(b)の比が著しく上昇している。大陸から飛来してくるエアロゾルに<sup>210</sup>Pbが多く付着していると考えられる。エアロゾルは粒径が小さいほど体積あたりの表面積が大きく、ストークスの式から示されるように、落下速度が小さいため長距離を飛行する。<sup>210</sup>Pbの微粒子はエアロゾルの表面に付着し、滞空時間が長いほど多くの微粒子が付着するものと考えられる。エアロゾル質量と<sup>210</sup>Pbの相関は、相関係数0.678、有意水準 $1.563 \times 10^{-2}$ であり、有意である。Pb-210の量は、エアロゾルの量と関係していることをはっきり示している。

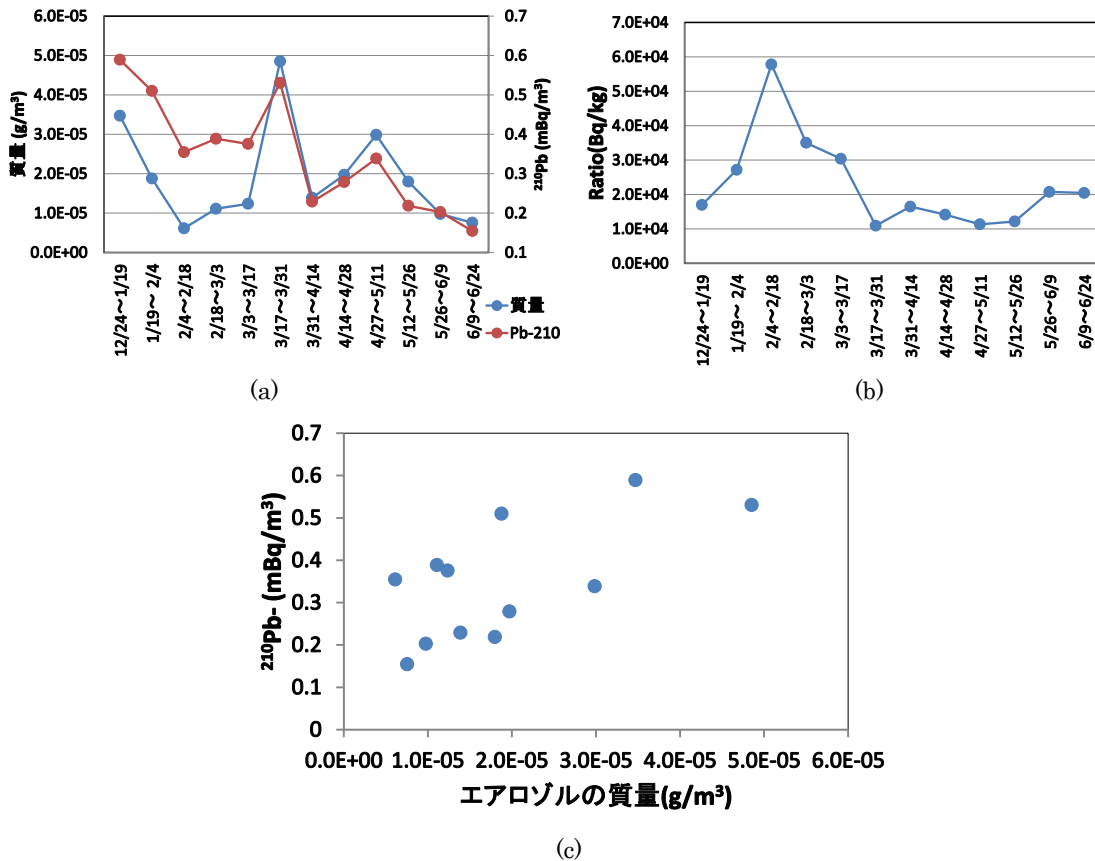


図6. (a) エアロゾルの質量と<sup>210</sup>Pb濃度の関係。(b) 質量に対する<sup>210</sup>Pb放射能の割合  
(c) エアロゾル質量と<sup>210</sup>Pb濃度の散布図

### 3.4 安定鉛同位体比と元素濃度の関係

鉛の安定同位体には、 $^{204}\text{Pb}$ 、 $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$ の4種類がある。天然放射性核種のうち、 $^{232}\text{Th}$ を起源とするトリウム系列は最終的に $^{208}\text{Pb}$ 、 $^{235}\text{U}$ を起源とするアクチニウム系列は $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{238}\text{U}$ を起源とするウラン系列は $^{206}\text{Pb}$ となる。このことから、地殻形成の年代や環境の違いによって、これらの放射性核種が化学的性質に応じて移動したり集積したりすれば、当然、最終的に到達する鉛同位体の比率に差が出ると考えられる。

鉛同位体比は、図7のようになった。明確な季節変動はみてとれない。しかし、 $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は、2010年3月17日～3月31日のサンプルが他のサンプルと比べて、はっきりとした減少が見てとれる。Pb濃度も3月17日～3月31日のサンプルは他のサンプルと比べて、濃度はか

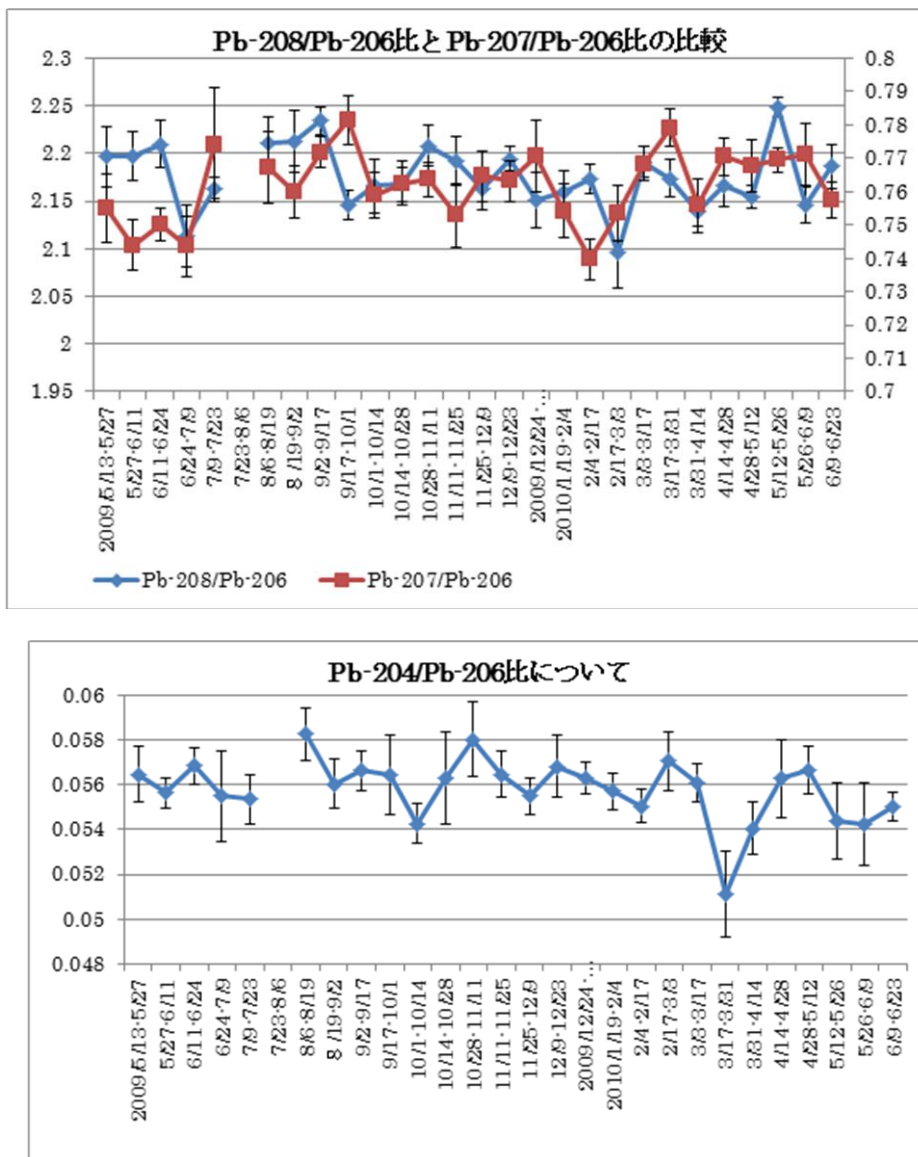


図7. 鉛の安定同位体比。上のグラフでは、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は左の目盛、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ は右の目盛である。



なり高いほうである。このサンプル採取期間に黄砂が二度も飛来してきており、大陸からの影響をより強く受けた結果がこの減少につながったのではないかと考えられる。だが、他の黄砂飛来時に $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比の減少が見られなかったため、黄砂と $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比に関係があるとは断定できない。

それぞれの鉛同位体比の間に相関があるかどうか調べたが、有意な相関は見当たらなかった。よって、それぞれの比は独立した影響源を持ち、それぞれの影響源により値が上下していると考えられる。影響源は、風上における有鉛ガソリンの使用、地殻の違い、鉛鉱山の存在など、種々考えられる。

石炭の $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比が、土壌中の比よりも、大気中のエアロゾルに含まれる比よりも低いと文献にあった<sup>2)</sup>。つまり、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比が小さいということは、石炭燃焼由来のPbであったと考えることができる。よって、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比と各元素濃度との変動をみたときに有意だとすれば、その元素は大陸の石炭燃焼により発生したものと考えることができる。

そこで、ながさき県民の森で測定できた元素全てと $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比との関係を調べることにした。石炭を燃やすのは、主として、暖房のために秋から春(10月から3月)だと考えられるので、扱った元素濃度データは10月から3月までを用いることにした。

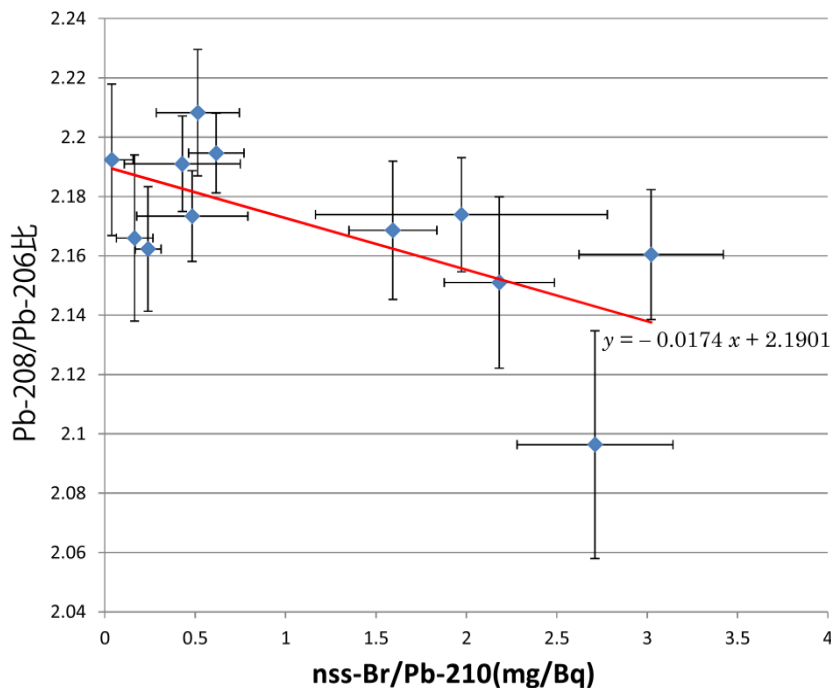


図8. nss-Br/ $^{210}\text{Pb}$ 比と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の安定同位体比の散布図

その結果、nss-Br/ $^{210}\text{Pb}$ 比と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は相関係数0.651、有意水準 $2.19 \times 10^{-2}$ という結果であり、相関があった(図8)。その他の元素と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比には有意な相関は見当たらなかった。

## 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) 松本洋平, 本間信, 田浦慎太郎, 世良耕一郎, 高辻俊宏, 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, NMCC共同利用研究成果報文集16(2009), 138-151 (2010)
- 2) 田籠久也, 川村秀久, 松岡信明, 田脇紳次:鉛同位体比を用いた石炭火力発電所周辺の環境影響評価; 環境と測定技術.Vol.26 No.4, 20-24 (1999)

## Relationship between radioactive isotopes and stable elements contained in the aerosol

J. Yuan<sup>1</sup>, Y. Matsumoto<sup>2</sup>, M. Honma<sup>2</sup>, K. Sera<sup>3</sup> and T. Takatsuji<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Fisheries Science and Environmental Studies, Nagasaki University  
1-14 Bunkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

<sup>2</sup>Graduate School of Science and Engineering, Nagasaki University  
1-14 Bunkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

<sup>3</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173

### Abstract

We investigated relationships between the amounts of a natural radioactive isotope  $^{210}\text{Pb}$  and the stable elements containing in the aerosol collected in Nagasaki Prefectural Forest Park and considered conceivable behavior of the aerosol comparing with that collected in the Nagasaki City urban district.

Amounts of  $^{210}\text{Pb}$  in the park was about half of the urban district. Amounts of almost elements were very much higher at the urban district. Strong correlations were not observed at the forest between  $^{210}\text{Pb}$  and stable elements contrary to the urban district. The situations suggest that the fallen aerosol refloat more easily at the urban district than the forest.

Amount of  $^{210}\text{Pb}$  per unit mass of the aerosol was largely increased at the season of “Yellow dust”. It suggests small aerosol particles floating the atmosphere for long distance and long time contain large amount of  $^{210}\text{Pb}$  particles.

Ratio of stable lead isotopes was investigated in the aerosol and correlation between other elements was investigated.  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  ratio and  $\text{nss-Br}/^{210}\text{Pb}$  ratio showed inverse correlation. It suggests Br emission from coal combustion has measurable environmental impact.