

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¹、世良耕一郎²、高辻俊宏¹

¹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

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 348-58

1 はじめに

本研究は、天然放射性同位元素の²¹⁰Pb、⁷Be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^①では長崎市にある長崎大学環境棟の屋上と県民の森で観測であった。そこで得た試料に含まれる²¹⁰Pb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。そして、福島第一原発事件は発生してから、長崎市の北部にある県民の森には2011年3月23日—4月27日と7月20日—27日にCs-134、Cs-137が検出された。長崎大学環境棟の屋上には8月18日—8月24日にCs-134、Cs-137が検出され、さらに大きかった。それは福島第一原子力発電所から飛んできたことを示唆している。

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203×254mmを用いた。試料採取は、2011年3月～2012年3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利用した。

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（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。



図1.1吸着前の濾紙

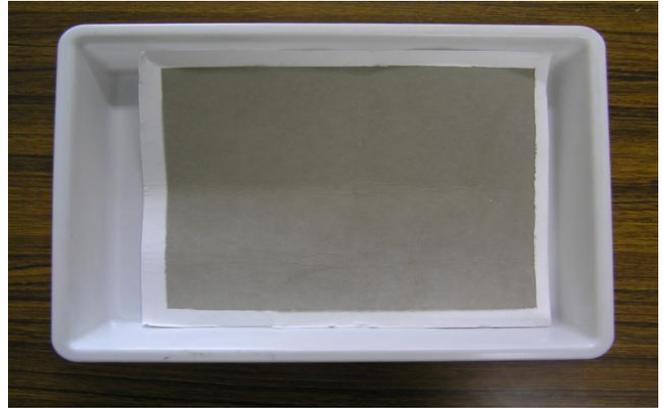


図1.2吸着後の濾紙

2.2 測定方法



図2.1 環境科学部とながさき県民の森の位置関係

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（サンプラテック 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ترون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 長崎県民の森に検出された各元素濃度と長崎大学環境棟屋上に検出された各元素濃度

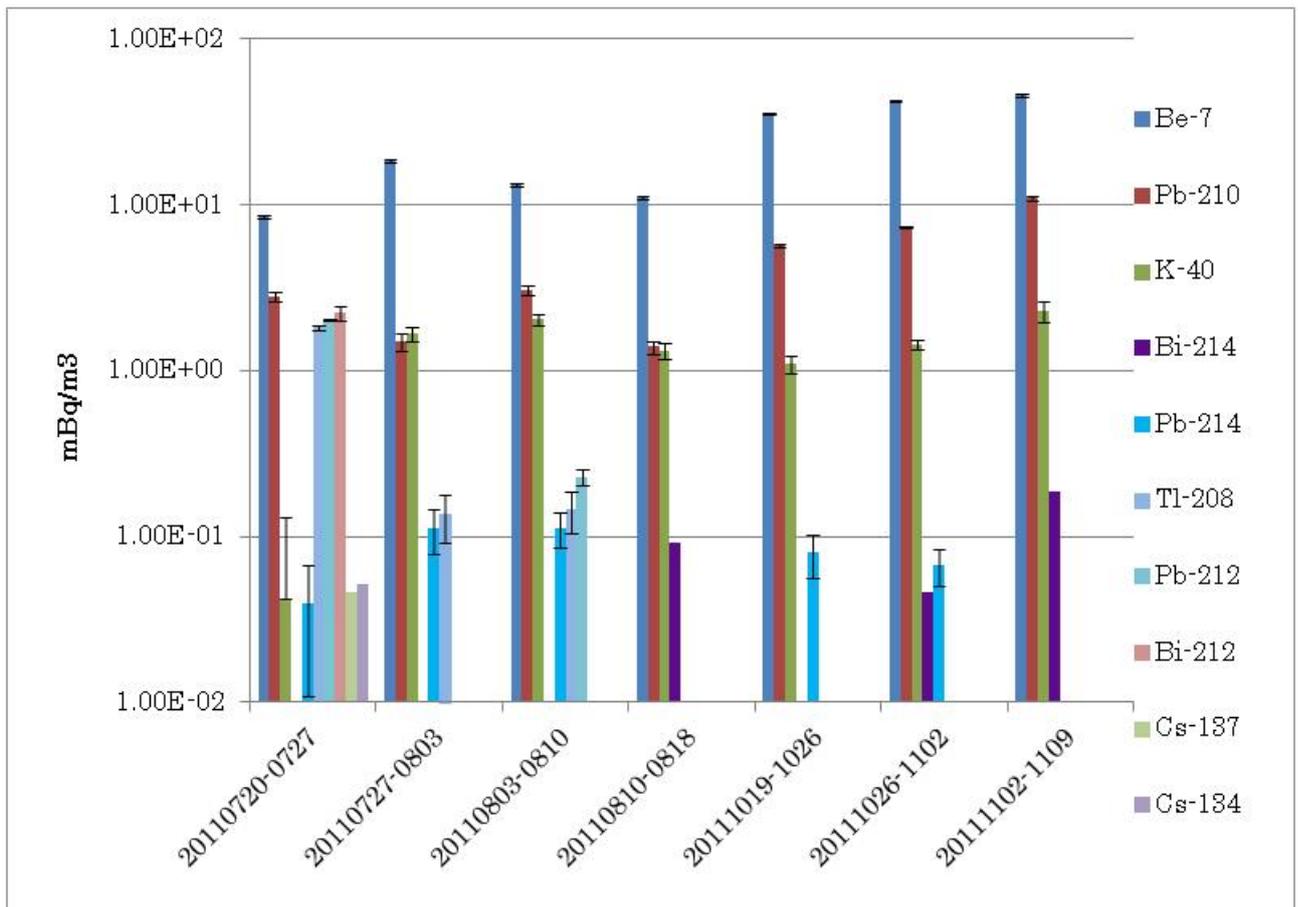


図3.1 県民の森で検出された元素の比較

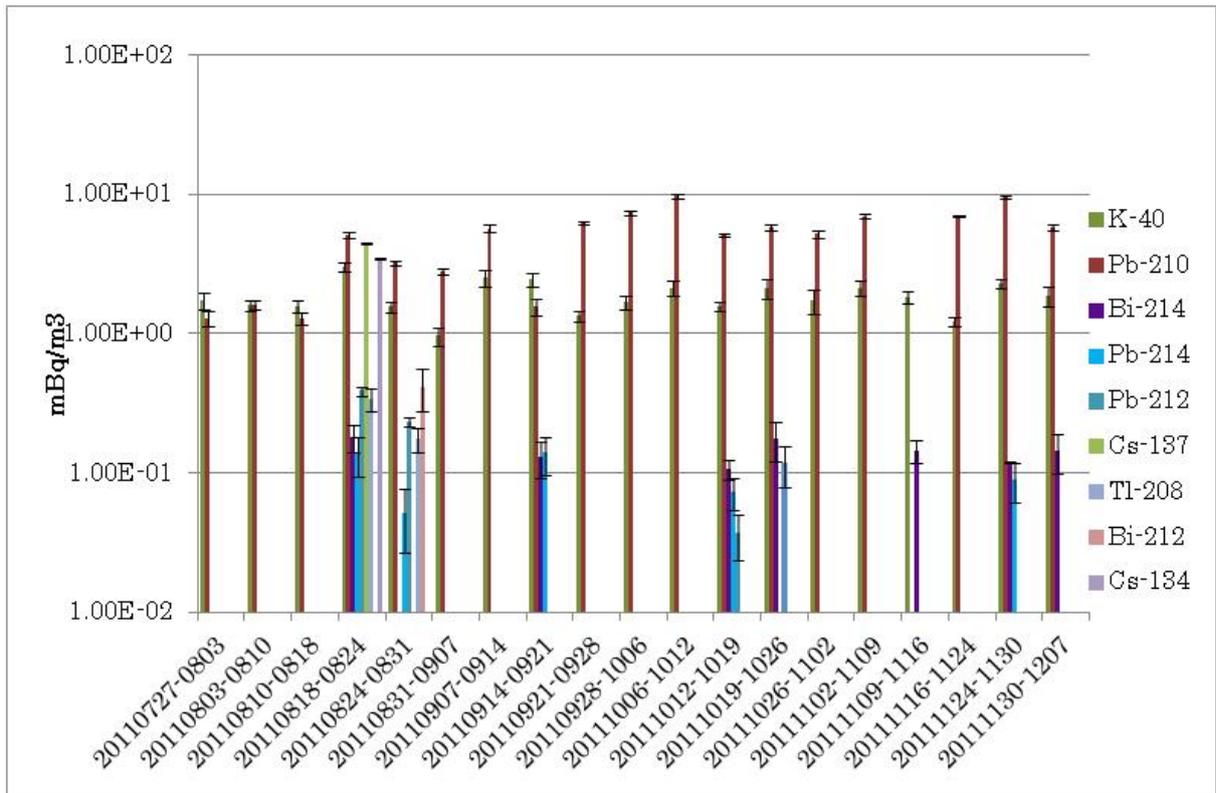


図3.2 長大屋上で検出された元素の比較

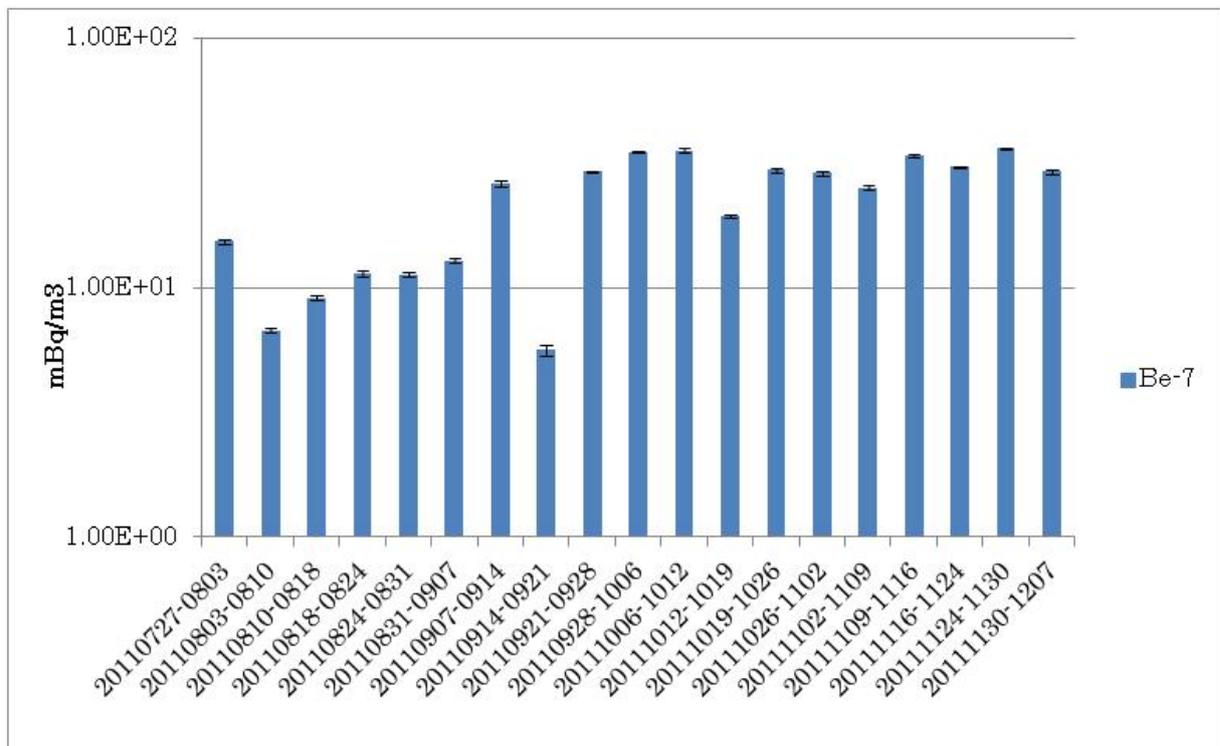


図3.3 長大屋上で検出された元素の比較

図3.1、3.2、3.3は長崎に検出された全ての放射性同位元素の濃度である（縦軸には対数を取っている）。夏から冬までのデータにより、Pb-210はだんだん大きくなる傾向を示しているが、全体的に比較できなかった。

図3.4は県民の森と長崎大学屋上で検出されたCsの比較、20110818-0824は屋上のデータで、他のデータが全部県民の森のデータである。20110818-0824の放射能が大変高かった。

図3.5はエアロゾルの質量を空気量で割ったものを示している。8月の長崎屋上のCsの量が8-9倍（図3.5）になり、エアロゾルの質量が1/3～1/2になったとすれば、密度は、20倍ぐらいになっている。エアロゾル自体は濃縮がひどく、空調のほこり等扱う人はさらに危険であるということになる。

捕集した濾紙に含まれるエアロゾル質量と²¹⁰Pb放射能の関係を図3.6、3.7に示した。冬の時期に上昇している。大陸から飛来してくるエアロゾルに²¹⁰Pb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、落下速度も小さいため長距離を飛行する。²¹⁰Pb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。

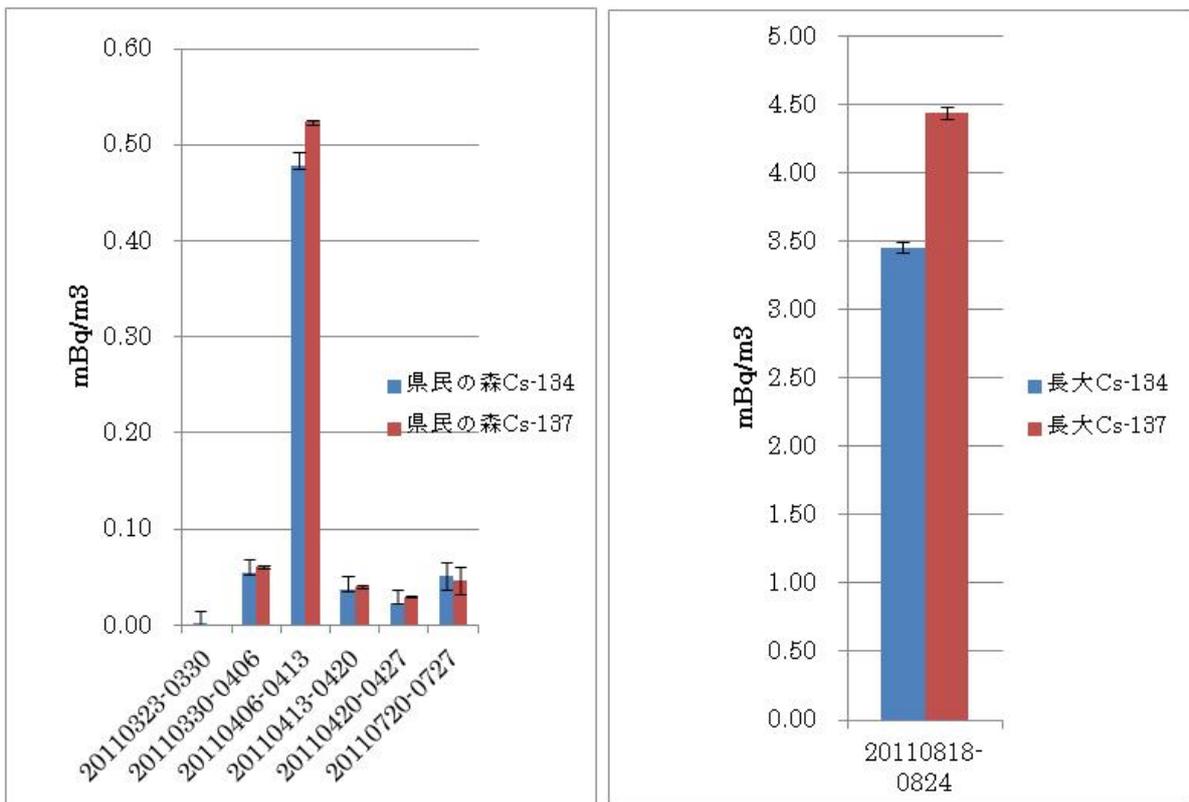


図3.4 県民の森と長崎大学屋上にCsの比較

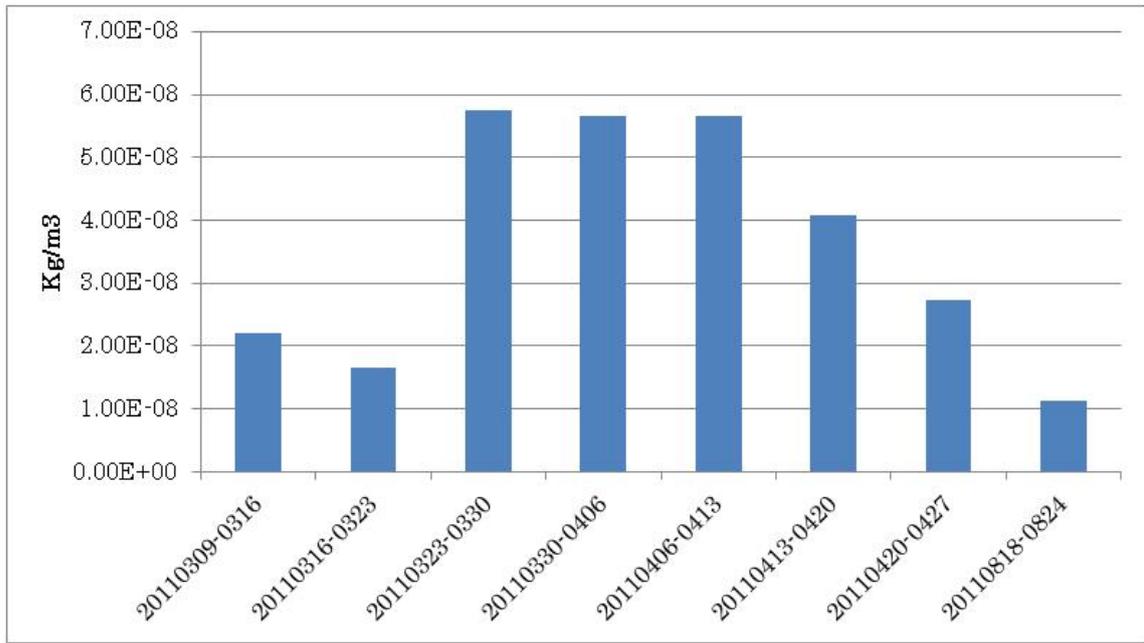


図3.5 エアロゾルの質量と空気量の割ったもの

3.2 長崎県民の森と長崎大学環境棟屋上の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²¹⁰Pb放射能の関係を図3.6、3.7に示した。冬の時期に上昇している。大陸から飛来してくるエアロゾルに²¹⁰Pb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、落下速度も小さいため長距離を飛行する。²¹⁰Pb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。

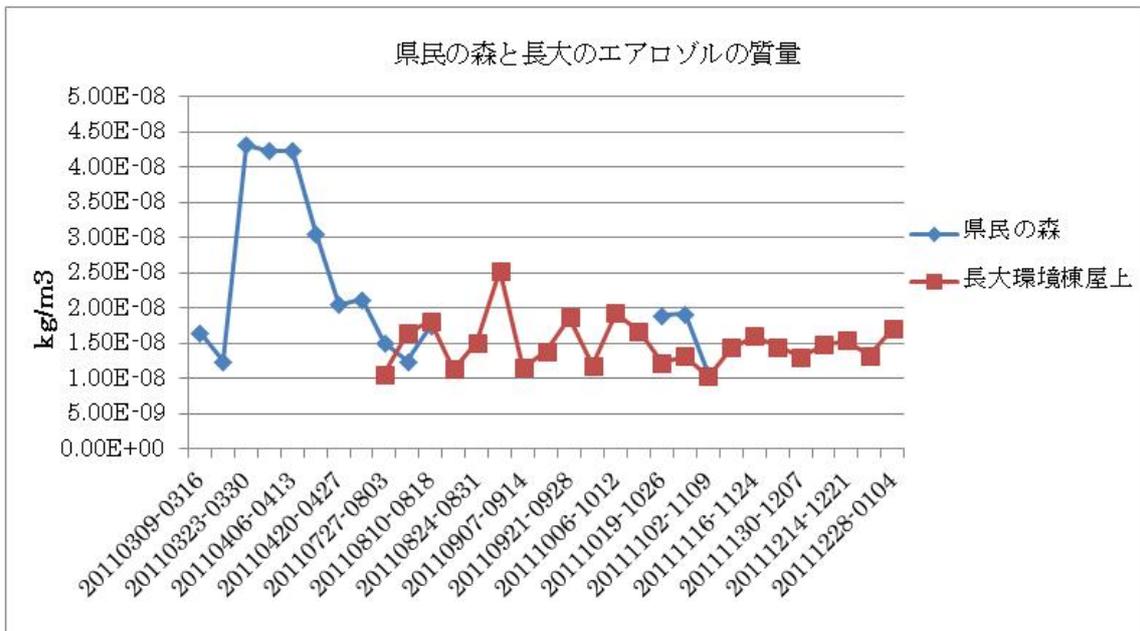


図3.6 県民の森と長崎大学環境棟屋上のエアロゾル

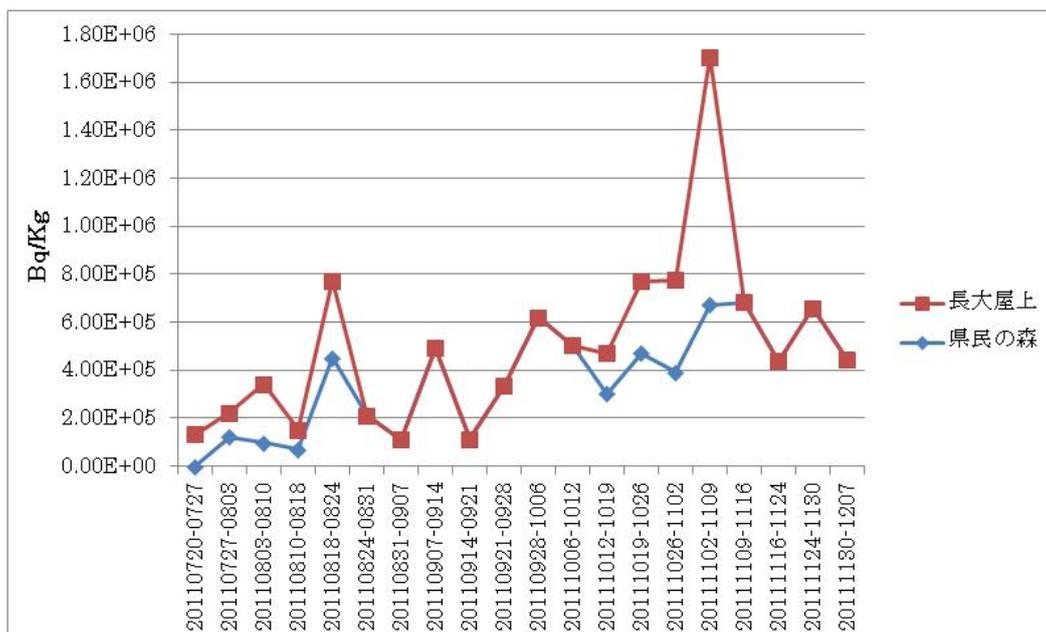


図3.7 Pb-210濃度とエアロゾル質量の関係の質量の比較

3.3 ながさき県民の森と長崎大学環境科学部屋上の比較

図3.8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¹⁾。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。

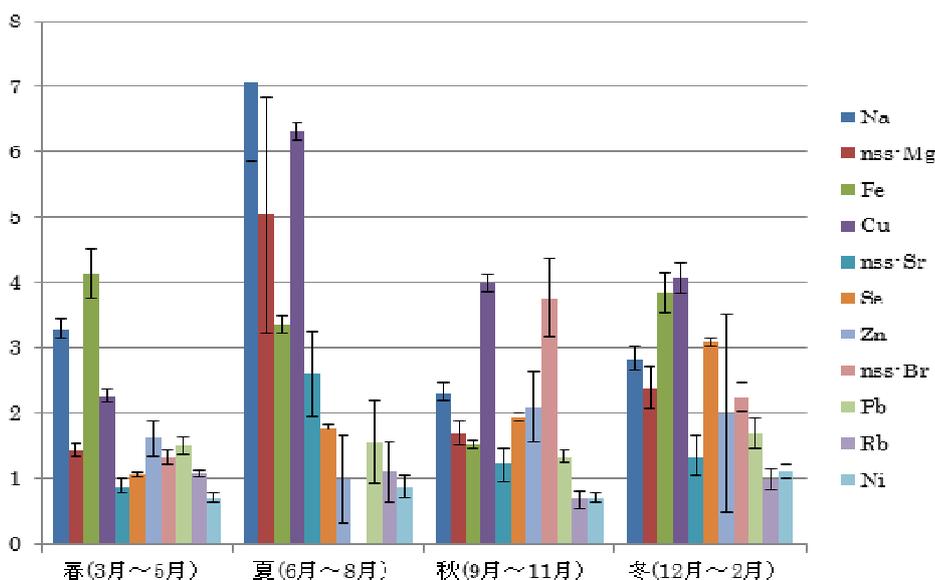


図3.8 長崎大学環境科学部棟屋上とながさき県民の森のデータの比

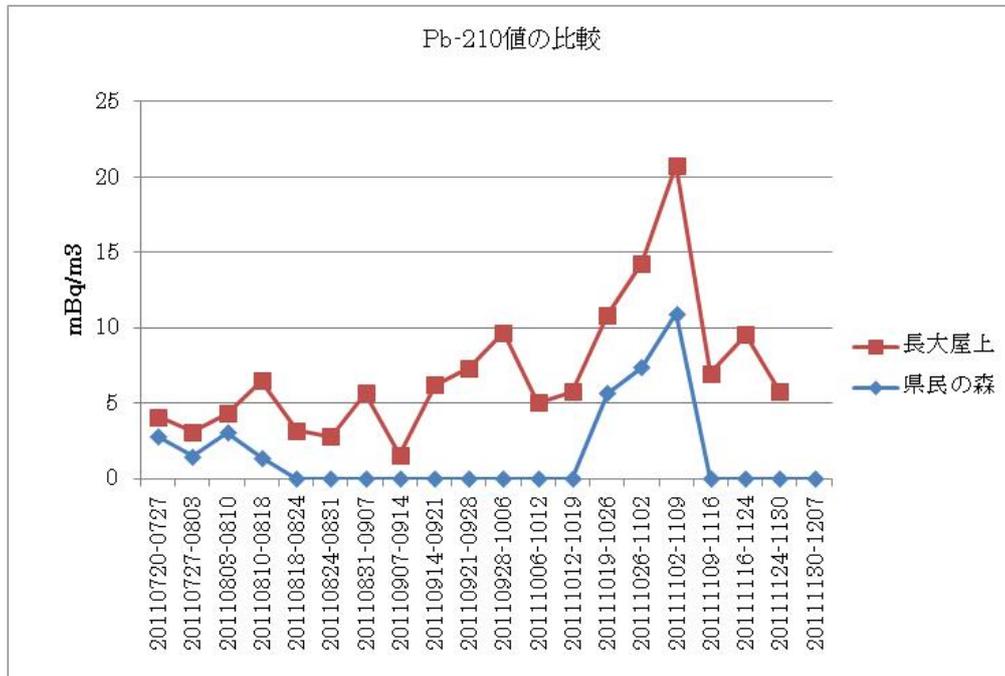


図3.9 Pb-210値の比較

2009年のデータにより、長崎県民の森と長崎大学環境科学部における²¹⁰Pb濃度は長崎大学屋上のほうが、約2倍の濃度があった。2011年のデータを比較したら、約2倍の濃度になっていることが証明できた。

3.4 気象図により、福島第一原発場の空気の軌跡

図3.10は2011年8月20日の福島第一発電所の上空の空気の軌跡である²⁾。この間に長崎にCs-134、Cs-137が検出されたことが分かったが、その大気に含まれていたCs-134、Cs-137は何処から飛んできたのが気象図でわかる。福島第一原子発電所の上空から長崎まで飛んできたことを示した。

3.5 安定鉛同位体比と元素濃度の関係

鉛の安定同位体には、²⁰⁴Pb、²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb、²⁰⁸Pbの4種類がある。天然放射性核種のうち、²³²Thを起源とするトリウム系列は最終的に²⁰⁸Pb、²³⁵Uを起源とするアクチニウム系列は²⁰⁷Pb、²³⁸Uを起源とするウラン系列は²⁰⁶Pb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3.11のようになった。明確な季節変動はみとれない。しかし、²⁰⁴Pb/²⁰⁶Pb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²⁰⁴Pb/²⁰⁶Pb比の減少が見られなかったので、黄砂と²⁰⁴Pb/²⁰⁶Pb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左右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。

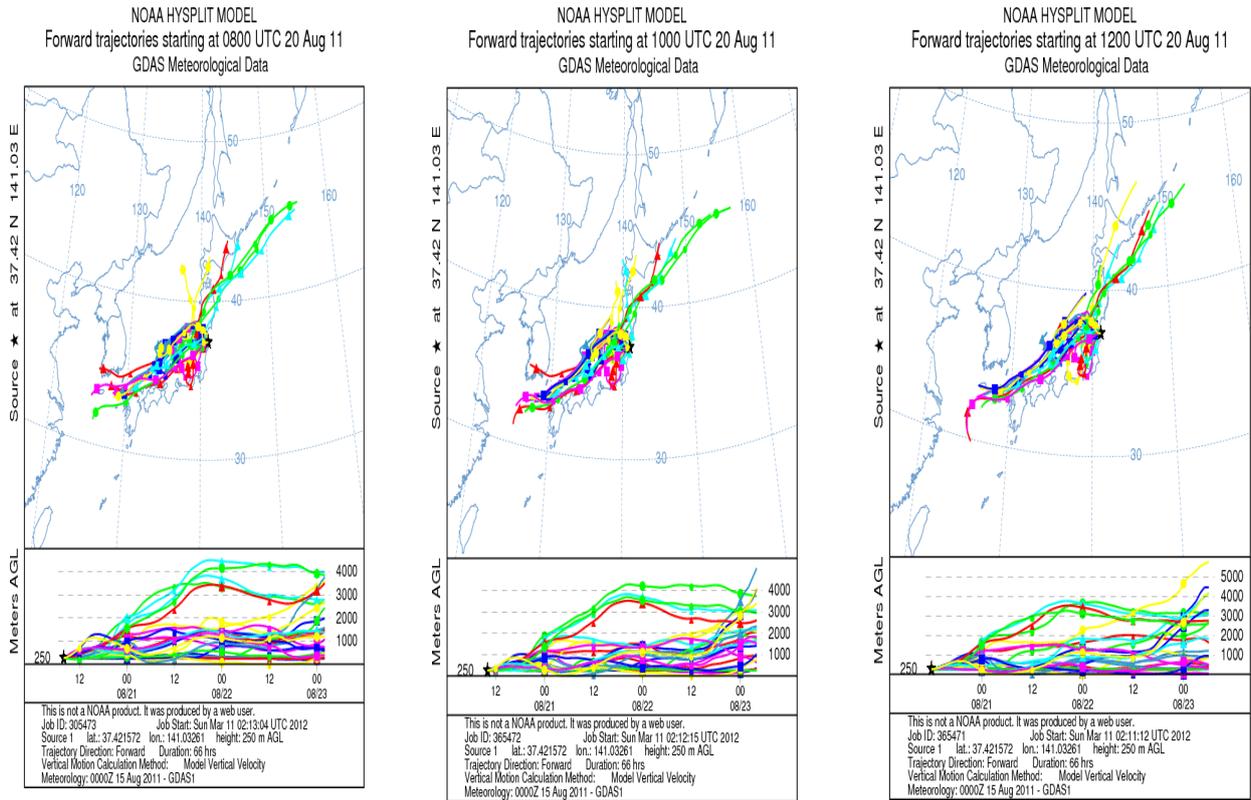


図3.10 福島第一原発の上空からの空気の軌跡

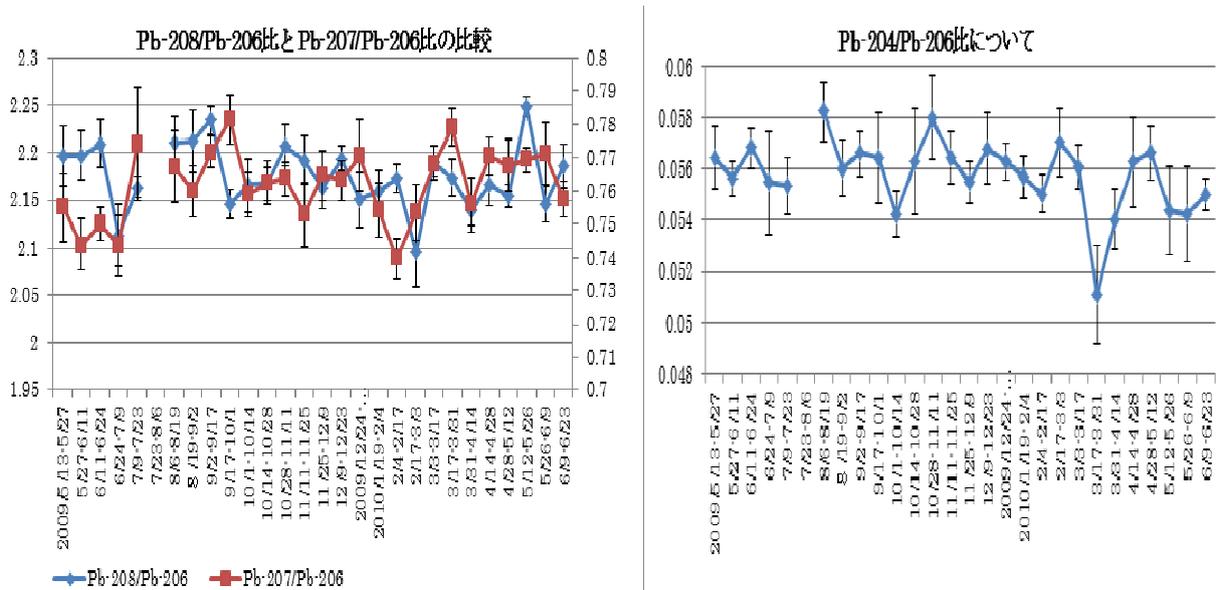


図3.11 鉛の安定同位体比。上のグラフでは、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は左の目盛り、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ は右の目盛りである。

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¹⁾。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。

その結果、 $\text{nss-Br}/^{210}\text{Pb}$ 比と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は相関係数0.651、有意水準 2.19×10^{-2} という結果であり、相関があった(図3.12)。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。

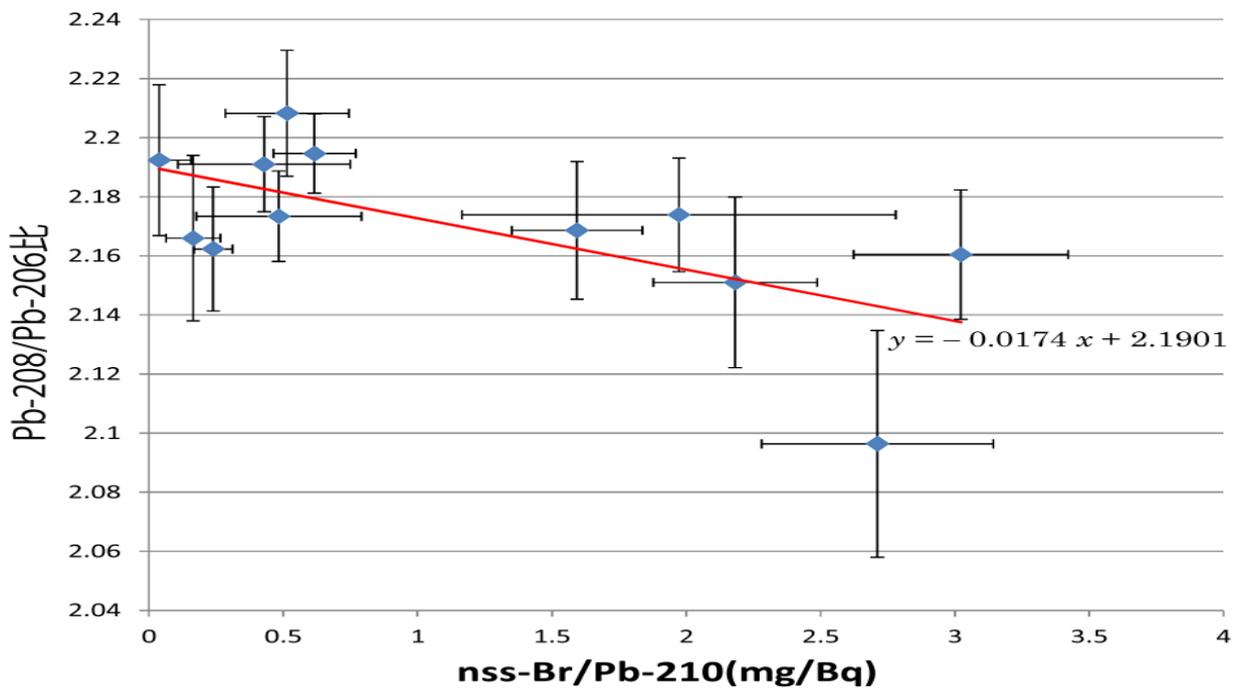


図3.12 $\text{nss-Br}/^{210}\text{Pb}$ 比と $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比は相関関係

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、長崎大学大学院水産・環境科学総合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) 袁軍, 松本洋平, 本間信, 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17(2010), 241-2511 (2011)
- 2) <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>

Relationship between radioactive isotopes and stable elements contained in the aerosol

J. Yuan¹, K. Sera² and T. Takatsuji¹

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

²Cyclotron 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}Pb and the stable elements contained 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}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}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}Pb per unit mass of the aerosol was largely increased at the season of "Yellow dust". It suggests small aerosol particles floating atmosphere for long distance and long time contain large amount of ^{210}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.