

地表大気中の ^7Be 濃度の変動について (I)

Variations in the Concentration of ^7Be in Surface Air

冠野 禎男
Yoshio KANNO

西原 幸一
Kouichi NISHIHARA

地表大気中の ^7Be 濃度と大気汚染物質濃度との関連性を調べたところ、その変動は、光化学反応によらないオキシダント濃度変動に類似していたことから、光化学オキシダント中の自然起源によるオゾン比率の推定に利用できる可能性があった。

また、気圧配置や気象因子との関係から、 ^7Be 濃度変動を支配する主要因は、大きく次の二つに分けられるものと考えられた。

1. ^7Be が高濃度に分布している大気上層部との鉛直混合
2. ^7Be 運ぶ大気エアロゾルの降雨によるウォッシュアウト効果

はじめに

^7Be は主として宇宙線と大気中の窒素、酸素原子との核破碎反応により生成される天然放射性核種であるため、大気浮遊じん、降下物等の環境試料中に混入する。その半減期は、53.3日と比較的長く477.6keVの γ 線を放出するため、ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーにより検出される。

^7Be 濃度は、成層圏から降下する自然起源のオゾンと類似した濃度変動を示す事例^{1),2)}が報告されている等、その挙動をとらえることにより大気中の汚染物質の動きに関する知見が得られる可能性があることから、これらのデータを整理することは重要である。

そこで今回は科学技術庁の委託が開始された1988年7月から蓄積されている ^7Be に関するデータと、気象条件やその他の大気汚染物質との関係についてとりまとめたのでその結果を報告する。

調査方法

1. 調査期間

昭和63年7月～平成5年3月

2. 調査地点

調査地点は、各々半径1kmの円内に位置する。

(1) ^7Be 及び降水量

昭和63年7月～平成3年10月：香川県高松合同庁舎屋上（香川県高松市松島町1-17-28）

平成3年11月～平成5年3月：当センター屋上（香川県高松市朝日町5-3-105）

(2)大気汚染物質

平成2年1月～平成5年3月：高松競輪場

(香川県高松市福岡町1-4-46)

3. 試料採取法及びサンプル調整法

(1)大気浮遊じん

大気浮遊じんの採取は、毎週1回、紀本電子工業(株)社製130型のハイボリウムエアサンプラー（屋根付保護ケース内）にPallflex社製高純度石英繊維フィルター2500QAT-UP（8インチ×10インチ）を装着して実施した。吸引時間は約6時間、吸引量は約700 m^3 とした。集じん後、ろ紙は ϕ 47mmに打ち抜き、スチロール製測定容器（U8）に詰め込み、さらに ϕ 47mmアクリル板を乗せ、隙間は十條キンパリー(株)社製キムワイプを充填させた。

(2)降下物

受水面積 5,000 cm^2 の大型水盤中に深さ1cm以上になるように蒸留水を入れておき、1ヶ月間降下物を受け試料とした。これを蒸発皿中で加熱濃縮し、U8容器中に移し、赤外線電球を用い乾固させた。

4. 測定項目及び測定方法

測定項目、測定方法は表1に示すとおりである。

^7Be の定性定量には、25cm相対効率18.1～17.7%、FWHM1.69～1.73 keV (^{60}Co , 1332 keV)のゲルマニウム半導体検出器を用いた。この検出器は天然放射性元素によるバックグラウンドを低減するため、鉛遮蔽体（厚さ10cm）で覆われている。

なお大気中には、ウランやトリウム系列の娘核種である ^{222}Rn ($t_{1/2}=3.82\text{d}$)、 ^{220}Rn ($t_{1/2}=55.6\text{s}$)が地表から放出され、短期間に崩壊して生成された種々の短寿命核種である ^{214}Pb ($t_{1/2}=26.8\text{m}$)、 ^{214}Bi ($t_{1/2}=19.7\text{m}$)、 ^{212}Pb ($t_{1/2}=10.64\text{h}$)、 ^{212}Bi ($t_{1/2}=60.6\text{m}$)、 ^{208}Tl ($t_{1/2}=3.05\text{m}$)等が存在している。これらの核種は大気浮遊じんと共に捕集され、捕集終了後から測定開始までの時間が長い

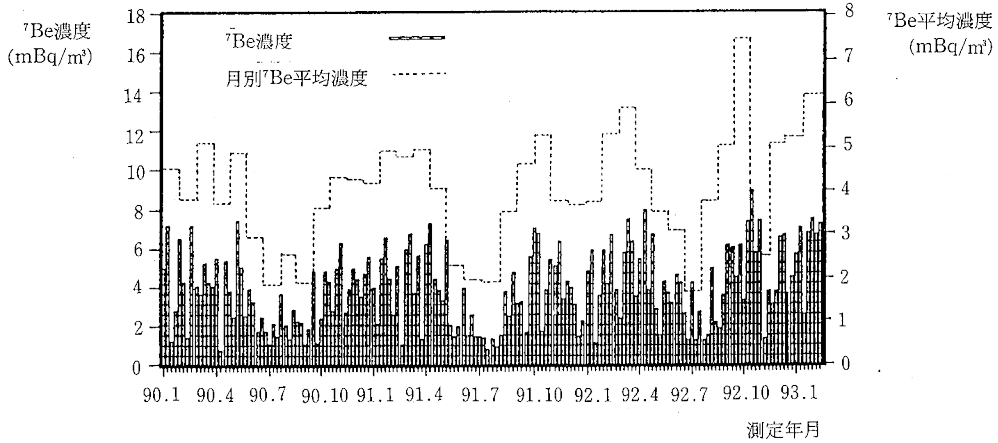


図2. 地表大気中の⁷Be濃度の推移

表2 ⁷Be濃度と大気汚染物質濃度の相関係数

| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|---|--------|----------|---------|---------|---------|------|
| 1 | 1.00 | | | | | |
| 2 | 0.166* | 1.00 | | | | |
| 3 | 0.035 | -0.184* | 1.00 | | | |
| 4 | 0.081 | -0.159* | 0.617** | 1.00 | | |
| 5 | -0.082 | -0.388** | 0.611** | 0.531** | 1.00 | |
| 6 | 0.074 | -0.023 | 0.642** | 0.696** | 0.644** | 1.00 |

- 1 : ⁷Be濃度
 2 : 光化学オキシダント濃度
 3 : 浮遊粒子状物質濃度
 4 : 二酸化窒素濃度
 5 : 一酸化窒素濃度
 6 : 二酸化硫黄濃度
- } ⁷Be採取時における平均濃度

データ組数 = 163
 ** : 危険率1%で有意
 * : " 5 "

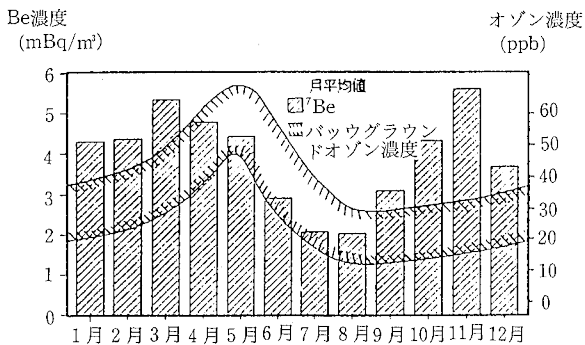


図3 ⁷Be濃度とバックグラウンドオゾンの年変化パターン

表3 ⁷Be濃度と光化学オキシダント濃度の相関係数

| | |
|-------------|--------|
| 昼間窒素酸化物低濃度時 | 0.232 |
| 夜間 " 高 " | 0.290 |
| 夜間 " 低 " | 0.449* |

データ組数=30
 * : 危険率5%で有意

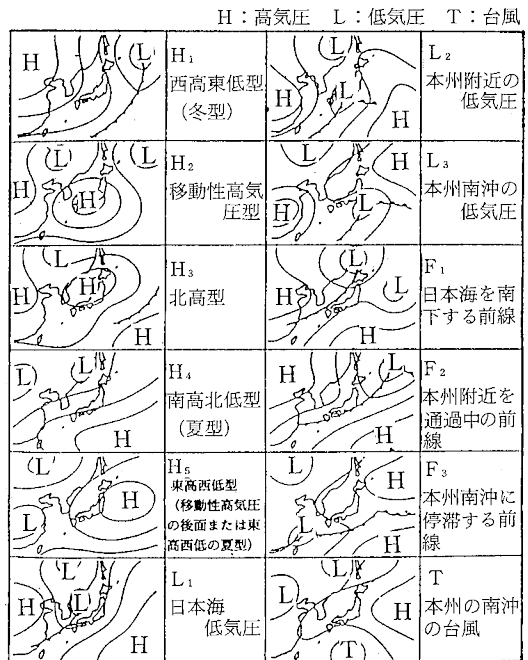


図4 天気図型モデル (気象協会)

そこで、溝口ら⁶⁾がとりまとめた全国各地のバックグラウンドオゾン年変化パターン模式図と本県の⁷Be月平均値を重ねてみると(図3)、秋の⁷Beのピーク以外はおおむね類似した変動パターンを示した。

今後は、本県においても人為起源物質による光化学反応や一酸化窒素等の一次汚染質による消費の影響の少ない地点でオゾン濃度を測定することにより、⁷Be濃度との間に高い相関があれば、⁷Be測定値から自然起源の成層圏オゾンの推定に利用できる。

3 気象条件との関係

3-1 気圧配置との関係

天気図型モデル(図4)と⁷Be濃度との関係を表4に示す。

⁷Be平均濃度が最大であった天気図型はH2(移動性高気圧)であり、次に高い型がH1(西高東低型)で三番目がH5(移動性高気圧の後面)であった。

次に⁷Be濃度が7mBq/m³を超えた日(13日)の気圧配置を調べたところ⁹⁾、表5のとおり移動性高気圧による影響と思われる日が7日、寒冷前線通過による影響と思われる日が6日であった。

バックグラウンドオゾン調査結果^{1), 6), 7), 8)}によると、大気の上昇しやすい移動性高気圧の後面や、上空寒気の侵入しやすい寒冷前線の後面から西高東低の気圧配置で成層圏オゾンの割合が高くなり、バックグラウンドオゾン濃度も上昇したことから、⁷Be濃度が高くなる気圧配置と共通した傾向が見られた。

また、⁷Be平均濃度の低い天気図型は、大気の安定した夏型や、降雨をもたらす型が見られた。

3-2 気象因子との相関

⁷Be濃度と気象因子との相関については表6に示すとおりで、気温、湿度、気圧、降水量と相関が見られた。

(1) 気温

気温については、夏季に⁷Be濃度が低下する季節変動が顕著に見られ、その結果逆相関が生じた。しかし、夏季に⁷Be濃度が高くなる事例^{11), 12)}が多く報告されており⁷Beの挙動と直接連動する因子ではないと考えられる。

(2) 湿度

湿度については、バックグラウンドオゾンと強い負の相関が見られた事例⁷⁾が報告されており、移動性高気圧による湿度の低い高濃度オゾン気塊が沈降してくる影響を受けていると考えられていることから⁷Beについても同様の挙動をしていることが類推される。

(3) 気圧

⁷Be濃度の変化と大気圧とは連動しているという報告¹³⁾と一致する結果となった(図5)。これは移動性

高気圧通過等による上空気塊降下による⁷Beの供給を示唆するものと思われる。

(4) 降水量

降水量とは負の相関が見られたが、これは⁷Beを選ぶ大気中エアロゾルのウォッシュアウト効果を反映したものと推測される。降雨時には気圧の低下や湿度の上昇を伴うことから、降水量はこの両者と⁷Be濃度との相関を説明する一つの要因とも考えられる。

また、表7に示すとおり、サンプリング時に近い降雨ほどウォッシュアウト効果が高いことから、降雨後の⁷Beの補給もかなり迅速に行われていると思われる。

表4 天気図型モデル別⁷Be平均濃度

| 天気図型 | 頻度 | ⁷ Be平均濃度 | 天気図型 | 頻度 | ⁷ Be平均濃度 |
|------|----|----------------------------|------|----|----------------------------|
| H 1 | 27 | 4.71 (mBq/m ³) | L 2 | 10 | 3.91 (mBq/m ³) |
| H 2 | 35 | 4.86 (mBq/m ³) | L 3 | 9 | 4.37 (mBq/m ³) |
| H 3 | 17 | 4.36 (mBq/m ³) | F 1 | 8 | 3.74 (mBq/m ³) |
| H 4 | 18 | 2.17 (mBq/m ³) | F 2 | 1 | 1.52 (mBq/m ³) |
| H 5 | 12 | 4.41 (mBq/m ³) | F 3 | 15 | 2.83 (mBq/m ³) |
| L 1 | 6 | 3.87 (mBq/m ³) | T | 5 | 1.24 (mBq/m ³) |

表5 ⁷Be高濃度日の気象

| ⁷ Be濃度 (mBq/m ³) | 採取年月日 | 気 象 |
|---|------------|--------------------|
| 9.00 | 1992.11.10 | 寒冷前線通過後冬型気圧配置強まる |
| 8.00 | 1992.4.28 | 東シナ海にある移動性高気圧に覆われる |
| 7.53 | 1992.3.31 | 移動性高気圧後面 |
| 7.49 | 1993.3.16 | 寒冷前線通過後冬型気圧配置へ |
| 7.47 | 1990.5.21 | 3日前に寒冷前線通過 |
| 7.41 | 1992.11.25 | 寒冷前線通過後冬型気圧配置へ |
| 7.38 | 1992.11.5 | 移動性高気圧後面 |
| 7.33 | 1991.4.22 | 移動性高気圧真下 |
| 7.24 | 1993.3.31 | 移動性高気圧後面 |
| 7.18 | 1990.1.23 | 移動性高気圧通過後強い冬型へ |
| 7.16 | 1990.3.5 | 寒冷前線がかすめて通過した後冬型へ |
| 7.07 | 1991.10.16 | 移動性高気圧後面 |
| 7.06 | 1993.2.23 | 寒冷前線通過後強い冬型へ |

表6 ⁷Be濃度と気象因子の相関係数

| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
|---|----------|----------|---------|---------|----------|------|
| 1 | 1.00 | | | | | |
| 2 | 0.363** | 1.00 | | | | |
| 3 | -0.191* | -0.361* | 1.00 | | | |
| 4 | -0.432** | -0.392* | 0.480** | 1.00 | | |
| 5 | 0.024 | -0.111 | 0.173* | -0.312* | 1.00 | |
| 6 | -0.451** | -0.677** | 0.147 | 0.461** | -0.234** | 1.00 |

- 1: ⁷Be濃度
- 2: 気圧
- 3: 降水量
- 4: 湿度
- 5: 風速
- 6: 気温

⁷Be採取日の日量
もしくは日平均値¹⁰⁾

データ組数 = 163

** : 危険率1%で有意

* : // 5 //

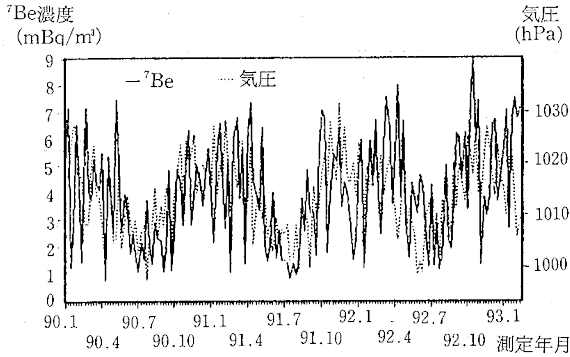


図5 ^7Be 濃度と気圧の変化

表7 降雨期間の差による ^7Be 濃度の変化

| 降雨の期間 | 頻度 | ^7Be 平均濃度 (mBq/m ³) |
|--------------|-----|--|
| サンプリング中 | 22 | 2.23 |
| サンプリング当日 | 52 | 3.47 |
| サンプリング前日及び当日 | 78 | 3.50 |
| サンプリング前1週間 | 142 | 3.99 |

4. 降下物について

^7Be の月間降下量の推移は、図6に示すとおりであり、季節的な変化よりむしろ、降水量に連動した挙動を示した。これは ^7Be の降下量が降雨により増加することを示しており、月間降下量が100mm付近までは ^7Be 降下量は降水量に比例して多くなる傾向が見られた¹⁴⁾。

また、雨水中の ^7Be 濃度は降水量が多いほど低い傾向¹³⁾が報告されていることから、大気中の ^7Be は初期降雨によるウォッシュアウト効果が大きく、大量に降雨があれば、その後の雨水により希釈されることが考えられる。

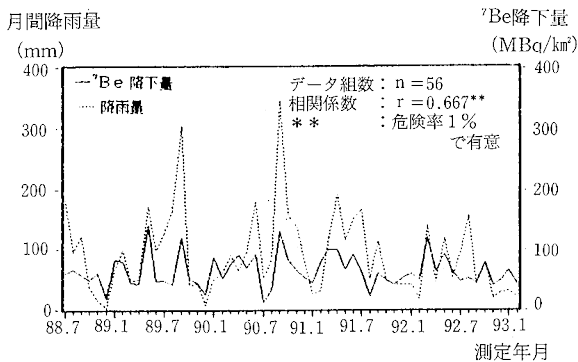


図6 降雨量と ^7Be 降下量

ま と め

地表大気中の ^7Be 濃度の変動に関与する因子についてとりまとめ検討したところ、次のことがわかった。

1. ^7Be 濃度は春先及び晩秋に最大となり、夏に最小となる季節変動を示した。
2. 大気汚染物質のうち光化学オキシダント濃度と正の相関が見られ、窒素酸化物濃度の低い夜間に相関係数が高くなることから、バックグラウンドオゾンと挙動がより類似しているものと思われる。
3. ^7Be 濃度は移動性高気圧や寒冷前線の後面で高くなる傾向があり、安定した気圧配置で低下することから大気上層部との鉛直混合率が濃度変動の要因であると考えられる。
4. 相関のみられた気象因子のうち、気圧及び湿度については上空からの ^7Be 高濃度気塊沈降を、降水量については、 ^7Be を運ぶエアロゾルのウォッシュアウト効果の影響を反映しているものと考えられる。
5. ^7Be 降下量は降水量と正の相関が見られ大気中 ^7Be のウォッシュアウト効果を補足する結果となった。

以上の結果より地表大気中 ^7Be 濃度は、大気上層部との鉛直混合率と ^7Be を運ぶ大気中エアロゾルの降雨によるウォッシュアウト効果が主な原因となり変動していると考えられる。

今後は降雨前後の大気中 ^7Be 濃度を雨水中濃度も含め、さらに詳細に調査することにより変動要因がより明確になっていくものと思われる。また、 ^7Be 濃度から成層圏由来のオゾン濃度を推定するためには、本県においても非汚染地域でのオゾン測定を行う必要がある。

文 献

- 1) 宇都宮 彬 他：第6回全国環境・公害研究所交流シンポジウム予稿集，51 (1991)。
- 2) 土井 妙子 他：第32回大気汚染学会，522 (1991)。
- 3) 静間 清 他：広島大学工学部研究報告，38，1 ((1989)。
- 4) 松浦 榮美 他：愛媛県公害技術センター所報，6，44 (1985)。
- 5) 天野 光 他：第19回放射能調査研究成果論文抄録集 (1976)。
- 6) 溝口 次夫 他：第6回全国環境・公害研究所交流シンポジウム予稿集，63 (1991)。
- 7) 早田 壽文 他：第6回全国環境・公害研究所交流シンポジウム予稿集，55 (1991)。
- 8) 早狩 進 他：第6回全国環境・公害研究所交流シンポジウム予稿集，47 (1991)。

- 9) 日本気象協会：気象 (1990～1993).
- 10) 高松地方気象台：香川県気象月報 (1990.1～1993.3)
- 11) H. Hötzl, R. Winkler: J. Environ. Radioactivity, **5**, 445 (1987).
- 12) Herbert W. Feely, et al. : J. Environ. Radioactivity, **9**, 223 (1989).
- 13) 平良 初男, 井上 誠司: Bulletin of the College of Science University of the Ryukyus, **45**, 81 (1987).
- 14) 石川 陽一 他: 宮城県原子力センター年報, **9**, 15 (1990).