資 料

高層大気中における放射性核種の挙動について (Ⅲ)

— 高空における浮遊塵の組成および ^{90}Sr , ^{137}Cs の濃度変動 —五十嵐俊次^{*1}

(1978年10月13日受理)

(1979年5月29日再受理)

On the Behavior of Radionuclide in the Upper Atmosphere (Ⅲ)

Variation of ^{90}Sr , ^{137}Cs and Component Elements of Airborne
Dust in the Upper AtmosphereShunji IGARASHI^{*1}

KEY WORDS: airborne dust, upper atmosphere, neutron activation analysis, component element, strontium-90, cesium-137, aerosol, interaction, condensation, correlation.

I 緒 論

地球を取り巻く大気中には、大気の正常成分のほかに天然あるいは人工の放射性物質、海洋に起源をもつ海塩粒子、地表からの土壌微細粒子および火山や産業活動等によって放出される無機性または有機性の粒子がエアロゾルとして浮遊している。これらのエアロゾル粒子は、大気中で粒子間の衝突、粒子表面でのガス状物質の吸着あるいは化学反応等他の物質と相互に作用して凝縮あるいは凝集し、重力沈降や降水洗浄によって地表に還元される¹⁻³⁾。

核爆発によって大気中に放出された核分裂生成物もまたこの大規模な物質循環の一員をなすものであり、他の物質と深く関連をもつことは明らかである。

本稿では、高層の大気を航空機を用いて定期的に採取し、それに含まれるエアロゾル粒子の成分元素を放射化分析によって求め、大気中におけるこれら元素の高度お

よび時期的変動を調べた。

また同時に ^{90}Sr および ^{137}Cs の放射化学分析を行い、両核種の濃度を測定し、これらの結果から両者の相互の関連について検討を行なった。

II 実験方法

1. 試料の調製および放射化分析

試料は、1974年8月から1975年12月までの間に本邦の中部上空(範囲: 36°N , 137°E ~ 38°N , 139°E) 10 km および 6 km 高度において航空機に装備した濾紙式集塵器を用いて約1時間の水平飛行を行なって採取した。また、採取頻度は、高度ごとに月2~3回行ない、使用した濾紙は、東洋濾紙 KK 製 No. 5 A, 32 cm ϕ のものである。

この試料採取に使用した濾紙について、その中心部および外縁部の2カ所を 4.9 cm ϕ の円形打ち抜きカッターを用いて有効集塵面積の5%に相当する量を抜き取って放射化分析に使用し、残部は、灰化して ^{90}Sr および ^{137}Cs の放射化学分析に使用した。

抜き取った濾紙試料は、清浄なポリエチレン製の照射用カプセルにつめ、原子炉で中性子照射を行なった。

^{*1} 防衛庁技術研究本部第1研究所第1部; 東京都目黒区中目黒 2-2-1 (〒153)
The 1st Div., The 1st Res. Center, Thech. Res. and Development Inst., J.D.A.; 2-2-1, Nakameguro, Meguro-ku, Tokyo.

なお放射化分析に当たって、1回の採取試料から抜き取ったものだけでは量的に少なく分析が困難であったため、4～5回分(約2カ月間にわたって採取した試料)の抜き取り試料をまとめて1放射化試料として分析を行った。

原子炉照射による試料の放射化においては、試料中に含まれる多種類の元素を分析する考えから短寿命の生成核種を対象として熱中性子束密度 $2 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ で5分間照射し、また長寿命の生成核種を対象として $5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ の中性子束で12時間照射して放射化した^{4,5)}。

さらに各元素の標準 γ 線スペクトルを得るため既知量の各種元素を含む標準試料およびバックグラウンドとして濾紙自体に含まれる元素を定量するため、未使用の濾紙を上述と同様な条件で照射して放射化した。

2. 試料中の含有元素の定量

試料中に含まれる元素の定量は、放射化した各試料の放射能を Ge(Li) 半導体検出器を組み込んだ γ 線波高分析装置で計測し、得られた γ 線スペクトルと既知量元素の標準 γ 線スペクトルとを比較して同定し、バックグラウンド等の補正を行なって定量した。

またバックグラウンドとしての未使用濾紙中に含まれる元素は、濾紙ごとに大きな差があるものもあり、このような元素(たとえば塩素等)については、データからはばいた。

定量した各元素は、試料採取時に測定した空気体積を標準状態の大気(760 mmHg, 15°C)に換算し、これによって 1 m^3 当たりの濃度として算出した。

3. ^{90}Sr および ^{137}Cs の分析

^{90}Sr および ^{137}Cs の分析試料は、放射化試料を抜き取った残部を電気マッフル炉で灰化処理(温度: 400～450°C, 13～15時間加熱)して調製した。この灰化試料について常法^{6,7)}に従って ^{90}Sr および ^{137}Cs の分析を行い、その放射能を低バックグラウンド計数装置で測定し、前述のように空気 1 m^3 当たりの濃度として表わした。

III 結果および考察

Fig. 1, 2 に高度 10 km および 6 km における浮遊塵の組成元素のうち、放射化分析によって定量された6元素の濃度変化を示す。

各元素の濃度変動は、Fig. 1, 2 に見られるように元素によって、また高度によってそれぞれ異なった変化を示している。

また各元素の濃度は、10 km および 6 km 高度とも同様な値を示しており、二高度間における明確な濃度差

Fig. 1 Variation of component elements in airborne dust at the altitude of 10 km.

Fig. 2 Variation of component elements in airborne dust at the altitude of 6 km.

は見られない。

定量された6元素のうち、Na および Al の濃度が他の元素に比べて約1桁以上大きい値を示している。また Na と Al は、ほぼ同程度の濃度であるが、他の元素の濃度は、 $\text{Cu} \geq \text{Zn} > \text{Mn} > \text{Co}$ の順となっている。

Fig. 3 は、高度 10 km および 6 km における ^{90}Sr および ^{137}Cs の濃度変化を示した。

Fig. 3 に見られるように ^{90}Sr および ^{137}Cs の濃度変

Fig. 3 Variation of ^{90}Sr and ^{137}Cs at the altitude of 10 and 6 km.

○, ^{90}Sr ; □, ^{137}Cs ; 10 km.
●, ^{90}Sr ; ■, ^{137}Cs ; 6 km.

動は、高度によって、また核種によってそれぞれ異なった変化を示しているが、しかし全般的に見た場合は、前述の Na や Al 等の濃度変動と異なり、10 km, 6 km 両高度とも全地球的大気循環論から導かれた春季極大、秋季極小のとおりの季節的変動に従った変化を示している。

10 km および 6 km の高度差による相違は、春季極大期のピークが高々度のほうがより明確であり、両核種の濃度も高々度のほうが高い値を示している。二高度間の濃度には約 10 倍の差が見られる。

また ^{90}Sr と ^{137}Cs の濃度は、Fig. 3 に見られるように春季極大期では同程度か、または ^{137}Cs のほうが ^{90}Sr よりやや高い値となったが、秋季極小期にかけては ^{137}Cs が ^{90}Sr より低くなっている。このことは、従来からいわれている ^{137}Cs と ^{90}Sr との比が平均 1.6~1.7 であるということ、あるいはすでに報告されている地表のデータとくらべると異なった状態である。この起因については、核種ごとの洗浄効果、あるいは挙動の相違等種々の要因によるものと考えるのが明確ではない。

大気中でのエアロゾル粒子は、その粒径、粒子数濃度および化学的性状等の違い、あるいは温度および湿度等種々の環境条件と関連して複雑な挙動を示し、相互に作用するといわれている^{1-3,8)} が、上層大気中に浮遊する上述の放射性、非放射性元素もエアロゾル粒子として粒子相互に作用し、凝集や付着等を起こすものと考えられる^{9,10)}。この観点から ^{90}Sr および ^{137}Cs と定量された非

放射性元素との関連性について調べた。しかし両核種と各元素との相関関係は、ほとんどの場合見られないか、または明確でなかった。ただ両核種と Na, Al の相関係数が他の元素に比べてやや高い値を示した。

Fig. 4~7 に高度 10 km および 6 km における ^{90}Sr および ^{137}Cs と Na, Al それぞれの濃度関係を示した。

また両核種と Na, Al との相関係数は、6 km 高度では ^{90}Sr と Al が約 0.78, ^{137}Cs と Na が 0.43 であり、10 km 高度では、前者が約 0.18, 後者が約 0.39

Fig. 4 Correlation of concentration between ^{90}Sr and Na, Al at the altitude of 10 km.

○, Na; △, Al.

Fig. 5 Correlation of concentration between ^{137}Cs and Na, Al at the altitude of 10 km.

○, Na; △, Al.

Fig. 6 Correlation of concentration between ^{90}Sr and Na, Al at the altitude of 6 km.

●, Na; ▲, Al.

Fig. 7 Correlation of concentration between ^{137}Cs and Na, Al at the altitude of 6 km.

●, Na; ▲, Al.

であった。

IV 結 語

以上の結果から次のことが明らかとなった。

- 1) 本邦の上層大気中に浮遊する ^{90}Sr および ^{137}Cs の濃度変動は、10 km, 6 km 両高度とも季節の変動に支配されているが、非放射性元素の場合は季節の変動は見られない。
- 2) 高度差による両核種の濃度は、約10倍の差が見られたが、非放射性元素の場合は、濃度差はほとんど認められなかった。
- 3) ^{90}Sr および ^{137}Cs ならびに各元素の濃度変動の様相は、高度によって異なり、二高度間における関連性は見られなかった。
- 4) 両核種と各元素との相関関係については、明確な結果は得られなかった。

参 考 文 献

- 1) 近藤次郎; “大気汚染”, p.11 (1975) コロナ社, 東京.
- 2) T. GILLESPIE and G.O. LANGSTROTH; *Canad. J. Chem.*, **30**, 1056 (1952).
- 3) N. FUCHS; *Z. Physik.*, **89**, 736 (1934).
- 4) 仲佐博裕; 第8回日本アイソトープ会議報文集 A/C-4, 159 (1967).
- 5) 仲佐博裕, 電力中研技研報告, 70067 (1971).
- 6) 放射線審議会放射能測定部会; “放射性ストロンチウム分析法”, 1 (1963).
- 7) 放射線審議会放射能測定部会; “セシウム137分析法”, 1 (1963).
- 8) B. JIRGENSONS and M.E. STRAUMANIS (玉虫文一ほか訳); “コロイド化学”, p.370 (1976), 培風館, 東京.
- 9) I.E. STRIK (市川富士夫ほか訳); “放射化学の基礎”, p.110 (1962), 南江堂, 東京.
- 10) G.K. SCHWEITZER and W.M. JACKSON; *J. Am. Chem. Soc.*, **76**, 941 (1954).