

〔短 報〕

## 降下物、大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動 (第 5 報)

— 大気浮遊じん中濃度と時間降水量 —

石川県危機管理監室原子力安全対策室 内田 賢 吾  
石川県保健環境センター 環境科学部 鳥屋子やまと  
石川県危機管理監室消防保安課 井上 和 幸

## 〔和文要旨〕

当センターの屋上で採取した大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量との関係を検討した。その結果、時間降水量が増加すると大気浮遊じん中濃度が低下し、ウォッシュアウトの傾向が見られた。降水による大気浮遊じんの洗浄が明瞭な月と不明瞭な月があり、季節毎の気象に影響を与える気団の起源が関係していると考えられた。降水の有無による鉛-210/ベリリウム-7の比較から、ベリリウム-7と鉛-210の洗浄に違いが見られ、大気浮遊じん中で異なった状態で存在する可能性が考えられた。

キーワード：大気浮遊じん、降水量、ベリリウム-7、鉛-210、ウォッシュアウト

## 1 はじめに

本県では、「志賀原子力発電所周辺の安全確保及び環境保全に関する協定書」に基づき、1990年7月から志賀原子力発電所周辺の環境放射線監視において、降水等により地表面にもたらされる雨水・塵等を「降下物」として、また、大気中に含まれる塵を「大気浮遊じん」として放射能の測定を行っている<sup>1)2)</sup>。

加えて、2018年度から原子力発電所事故時の人工放射性核種の大気沈着プロセス解明の参考とするため、大気浮遊じん及び降下物に含まれる自然放射性核種のベリリウム-7及び鉛-210に着目し、その変動と挙動について解析・調査を行っている。

第1報<sup>3)</sup>では、降下物及び大気浮遊じんの測定結果より、ベリリウム-7及び鉛-210の降下量は12月～2月に多く、大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の濃

度は2月～3月、10月～11月に高いこと、この原因は日本列島に影響を与えている気団や季節風の影響によると考えられることを報告した。

第2報<sup>4)</sup>では、数時間の降下物及び大気浮遊じんの調査結果から、降水、前線の通過、空気塊の動き等の気象状況の変化が降下物中及び大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の濃度に与える影響について考察した。

第3報<sup>5)</sup>では、3～4日間毎に採取した降下物及び大気浮遊じんの調査結果のうち、降水が観測されなかった期間の沈着量をもとに、降下物中の乾性沈着量及び湿性沈着量の割合を検討した。

第4報<sup>6)</sup>では降水量と降下量の関係について、降水量の増加に伴って降下量も増加するなど3グループに分けられ、増加の度合いや傾向が季節によって異なることを報告した。

本報では、降水と大気浮遊じんの関係について第3報

Variation and Behavior of Beryllium-7 and Lead-210 in Fallout and Airborne Dust (5th. Report) –Radioactivity in Airborne Dust and Hourly Precipitation–. by UCHIDA Kengo (Atomic Power Safety Policy Division, Office of Superintendent for Crisis Management, Ishikawa Prefecture), TOYANAGO Yamato (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science) and INOUE Kazuyuki (Fire Fighting and Public Safety Division, Office of Superintendent for Crisis Management, Ishikawa Prefecture)

Key words : Airborne Dust, Precipitation, Beryllium-7, Lead-210, Washout

及び第4報で示した降水による大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の洗浄（雲底下洗浄（ウオッシュアウト）<sup>6)</sup>）について検討を行ったので報告する。

## 2 調査方法

### 2.1 調査対象

#### (1) 大気浮遊じん

大気浮遊じんは、当センター（金沢市太陽が丘）B棟屋上においてハイボリウムエアサンプラー（紀本電子工業(株)製120SL）を用い、流速1,200L/minで、ろ紙（Advantec製GB-100）上に採取した。

#### (2) 降水量

降水量は、当センター屋上に設置されている気象観測装置（光進電気工業製）の観測データを用いた。試料を採取した期間中の降水量の積算値を採取した時間で除し、1時間あたりの降水量（mm/h）（以下、「時間降水量」という。）として算出した。

### 2.2 調査期間

2020年4月3日から2023年3月31日までの3年間で、週2回、3～4日間毎（主に、月曜から金曜と、金曜から月曜まで（以下、「試料採取期間」という。))採取を行った。

### 2.3 測定方法

#### (1) 試料の調製

大気浮遊じんを採取したろ紙は6.5cm×5.5cmに折り畳み、アクリル製測定容器に詰め、測定試料とした。

#### (2) 放射能分析（ガンマ線核種分析）

ガンマ線核種分析の方法は、放射能測定法シリーズ<sup>7)</sup>に準じた方法とし、ゲルマニウム半導体検出器（SEIKO EG&G製GEM-C7080-LB-C-HJ-S、相対効率45%程度、分解能2keV未満、鉛-210などの低エネルギーガンマ線測定可能）を用い、測定時間は80,000秒とした。測定結果については、採取開始から採取終了までの中間日時で半減期の補正を行った。

## 3 結果と考察

### 3.1 大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量

#### (1) 大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の推移

月毎の大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度の平均値と時間降水量を表1に示す。あわせて、2013年度～2019年度まで7年間の大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210濃度の平均値<sup>3)</sup>及びこの平均値に対する今回の調査結果の放射能比を示す。月毎の比がほぼ1前後で推移しており、今回調査を行った3年間は2013年度～2019年度までの7年間と同様の変動であったと考えられる。

大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の推移（2020年4月～2023年3月）を図1に示す。ベリリウム-7、鉛-210とも、7月～8月に濃度が低い傾向であった。この傾向は、第1報の結果と同様であり、日本列島に影響を与えている低緯度の海洋性気団（小笠原気団、赤道気団）が支配的となるためと考えられる。また、第1報で観測された3月～5月、10月～11月に高緯度の大陸性気団（シベリア気団）の影響により高く

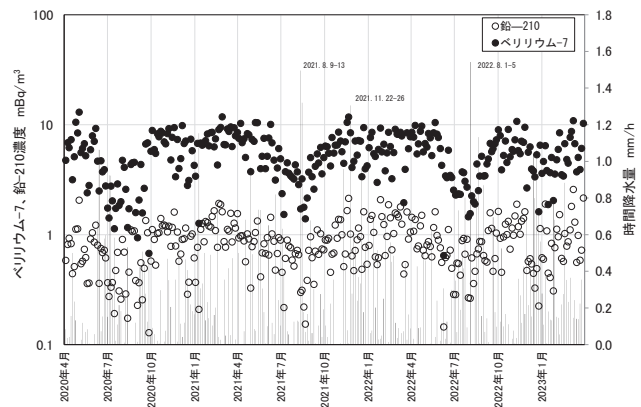


図1 ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量

表1 ベリリウム-7、鉛-210濃度と時間降水量

試料採取期間数	ベリリウム-7							鉛-210					時間降水量				
	平均値 A	標準偏差	最高値	最低値	2013-2019 B 平均値	比A/B	平均値 C	標準偏差	最高値	最低値	2013-2019 D 平均値	比C/D	平均値	標準偏差	最大値	最小値	
	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>		mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>	mBq/m <sup>3</sup>		mm/h	mm/h	mm/h	mm/h	
4月	26	6.26	1.68	9.43	2.71	6.03	1.04	0.89	0.30	1.50	0.33	0.93	0.96	0.212	0.265	0.97	0.00
5月	27	5.97	2.15	11.0	2.04	5.86	1.02	0.86	0.37	2.06	0.36	0.88	0.98	0.128	0.220	0.74	0.00
6月	25	3.86	1.99	8.62	0.50	4.12	0.94	0.72	0.29	1.44	0.14	0.88	0.81	0.249	0.301	1.06	0.00
7月	27	2.21	0.80	3.84	0.94	2.36	0.94	0.55	0.24	0.93	0.19	0.59	0.92	0.290	0.298	0.92	0.00
8月	27	2.31	1.03	4.29	0.71	2.60	0.89	0.57	0.29	1.10	0.15	0.73	0.78	0.369	0.497	1.54	0.00
9月	25	4.01	1.69	7.38	0.55	4.23	0.95	0.78	0.39	1.63	0.13	0.79	0.98	0.197	0.199	0.69	0.00
10月	26	5.68	1.32	7.75	3.43	5.36	1.06	0.98	0.27	1.41	0.45	0.94	1.04	0.090	0.130	0.52	0.00
11月	27	5.71	1.99	9.59	2.18	5.35	1.07	1.10	0.45	2.14	0.47	0.94	1.17	0.292	0.322	1.31	0.00
12月	26	4.68	1.77	8.92	1.39	4.62	1.01	0.74	0.33	1.62	0.22	0.77	0.95	0.467	0.307	1.06	0.00
1月	26	4.45	1.72	7.23	1.06	4.66	0.96	0.97	0.48	2.08	0.21	0.93	1.05	0.307	0.283	1.15	0.01
2月	24	5.50	1.94	10.2	2.49	5.24	1.05	1.20	0.43	1.92	0.57	1.05	1.14	0.278	0.258	0.88	0.00
3月	25	6.04	1.80	8.31	1.51	5.86	1.03	1.20	0.53	2.57	0.44	1.22	0.98	0.143	0.153	0.47	0.00

なる傾向についても同様であった。

時間降水量との関係では、時間降水量が最も大きかったのは2021年と2022年の8月で約1.5mm/hが観測されている。夏季は海洋性気団の影響により大気浮遊じん中濃度が低く、降水によるウォッシュアウトの影響でさらに濃度が低くなると思われたが、最低値とはならなかった。最低値となったのは両核種とも2020年9月や2022年6月で、その際の時間降水量は0.3~0.5mm/hと平均的な値であった。図1からは降水による大気浮遊じん中の両核種のウォッシュアウトの傾向は明瞭に見ることができなかった。

2021年1月や2023年1月には降雪の影響と考えられる濃度の低下が観測された。両期間ともベリリウム-7と鉛-210の濃度低下の状況は異なっており、鉛-210の方が長期間、濃度の低下が継続する傾向となった。これは積雪により鉛-210の供給源である地面からのラドン-222の放出が遮られたことが原因と考えられた。

(2) 散布図による比較

大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量との関係を年度毎の月平均値の散布図として図2に示す。図では、第1報で大気浮遊じん中濃度と月間降

水量の関係から検討した2グループに分け、線形近似により求めた近似式も示した。

第1報及び西尾ら<sup>8)</sup>と同様、7月~8月を除き時間降水量の増加に伴い大気浮遊じん中濃度が低下するウォッシュアウトの傾向が見られる結果となった。

9月~6月のデータのうち、近似式から外れたデータに年月を示したが、6月、9月の一部は7月~8月のグループに近い値を示すものが見られた。この原因として、年による気団の入れ代わり時期のずれによる可能性が考えられた。また、2023年1月が7月~8月のグループに近い結果となったが、原因は分からなかった。

試料ごとの大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係を散布図として図3に示す。試料は3~4日間毎の採取による調査であるため、結果にばらつきはあるが、ベリリウム-7及び鉛-210とも、時間降水量が大きくなると濃度が低下し、ウォッシュアウトの傾向が認められた。ばらつきは時間降水量が小さい時ほど大きく、例えば、降水がない(0mm/h)時では、ベリリウム-7、鉛-210とも最低値と最高値の濃度幅は10倍程度となった。

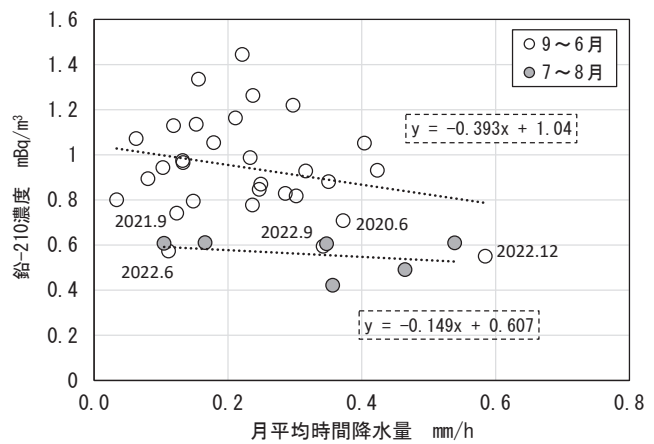
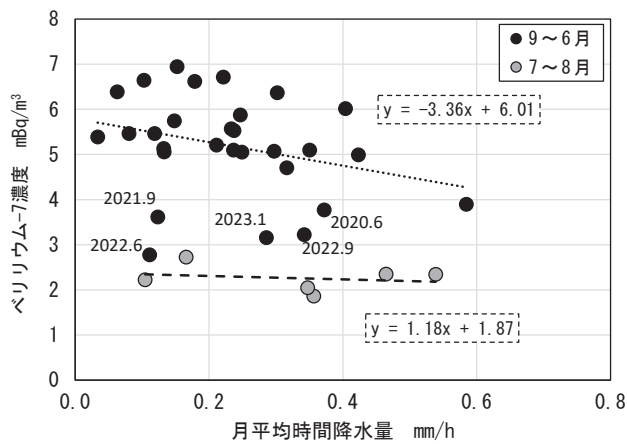


図2 ベリリウム-7及び鉛-210濃度と月平均時間降水量  
※ 9~6月、7~8月の2グループ<sup>3)</sup>で比較。

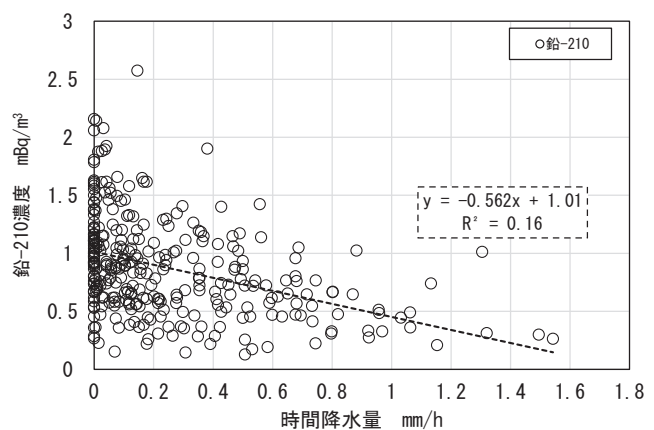
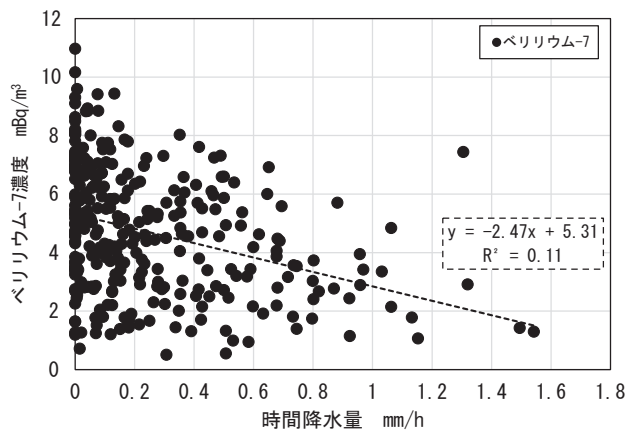


図3 ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係

### 3・2 降水による大気浮遊じんの洗浄

(1) 月毎の大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係

3・1(2)の3～4日間毎の短期間の調査では、時間降水量の増加と大気浮遊じん中濃度の低下との明確な関係が見出せなかった。そこで、大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度は同様の季節変動がある<sup>3)</sup>ことから、月毎のベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係について検討を行った。

ウォッシュアウトにより時間降水量が大きくなると洗浄効果によって大気浮遊じん中濃度が低下すると予想されることから、2020年4月から2023年3月のベリリウム-7及び鉛-210濃度の調査結果と時間降水量の関係について月別に散布図を作成し、近似式を求めた。近似式の傾きの絶対値が降水量1mm/hの洗浄量（以下、「洗浄率」とする。）、切片が時間降水量0mm/hの時の濃度（洗浄前の大気浮遊じん中濃度）と考えられる。求めた傾き、切片及び相関係数を表2に示す。

月毎に分けて検討を行ったが、ばらつきは大きかった。ばらつきが小さい、すなわち相関係数が最も大きかったのは鉛-210の4月分で相関係数が0.698であった。ばらつきが大きく、すなわち相関係数が最も小さかったのはベリリウム-7の8月分で相関係数が0.076であった。例示として両者の散布図を図4に示す。

図4に見られるように相関係数が最も大きい鉛-210の4月分については、時間降水量の増加に伴い大気浮遊じん中濃度が低下する傾向が見られた。相関係数が最も小さいベリリウム-7の8月分については、濃度と時間降水量にまったく関係がなく、降水の影響をほとんど受けないような結果であった。

洗浄率及び相関係数の関係を図5に示す。ベリリウム-7と鉛-210で若干違いはあるが傾向は同様であり、洗浄率は1月～5月、9月～10月に大きく、7月～8月は小さかった。相関係数は1月～4月、9月に大きく、8月に小さかった。

表2 月毎のベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係から得た近似式パラメータ (2020.4～2023.3)

	ベリリウム-7 (月別)					鉛-210 (月別)					鉛-210/ベリリウム-7		
	傾き	切片E	決定係数	相関係数	平均値G mBq/m <sup>3</sup>	傾き	切片F	決定係数	相関係数	平均値H mBq/m <sup>3</sup>	降水無観測時 (切片から算出) F/E	降水観測時 H/G	洗浄分 (F-H)/(E-G)
4月	-3.92	7.09	0.384	0.619	5.86	-0.78	1.06	0.487	0.698	0.78	0.15	0.13	0.22
5月	-3.38	6.32	0.087	0.294	5.31	-0.65	0.93	0.105	0.325	0.75	0.15	0.14	0.19
6月	-1.66	4.28	0.063	0.251	3.48	-0.38	0.81	0.149	0.386	0.66	0.19	0.19	0.19
7月	-0.83	2.45	0.095	0.308	2.07	-0.26	0.62	0.103	0.322	0.53	0.25	0.25	0.25
8月	-0.16	2.36	0.006	0.076	2.27	-0.16	0.63	0.070	0.264	0.51	0.27	0.22	1.19
9月	-3.23	4.65	0.144	0.379	3.75	-1.21	1.01	0.377	0.614	0.66	0.22	0.18	0.39
10月	-2.40	5.90	0.056	0.236	5.89	-0.65	1.04	0.099	0.315	0.98	0.18	0.17	8.09
11月	-1.73	6.21	0.078	0.280	5.71	-0.74	1.32	0.285	0.534	1.10	0.21	0.19	0.43
12月	-2.23	5.57	0.150	0.387	4.68	-0.42	0.90	0.154	0.393	0.74	0.16	0.16	0.19
1月	-2.80	5.30	0.208	0.456	4.45	-0.77	1.21	0.209	0.457	0.97	0.23	0.22	0.28
2月	-3.55	6.49	0.224	0.474	5.33	-0.94	1.46	0.319	0.565	1.19	0.22	0.22	0.23
3月	-4.28	6.65	0.133	0.364	5.71	-1.60	1.43	0.218	0.467	1.08	0.21	0.19	0.37
平均	-2.51	5.27	0.14	0.344	4.54	-0.71	1.03	0.21	0.44	0.83	0.20	0.19	1.00
最大	-0.16	7.09	0.38	0.619	5.89	-0.16	1.46	0.49	0.70	1.19	0.27	0.25	8.09
最小	-4.28	2.36	0.01	0.076	2.07	-1.60	0.62	0.07	0.26	0.51	0.15	0.13	0.19

切片：降水量0mm/hの大気中濃度      傾きの絶対値：降水量1mm/hの洗浄量  
G, H：降水観測時の平均値

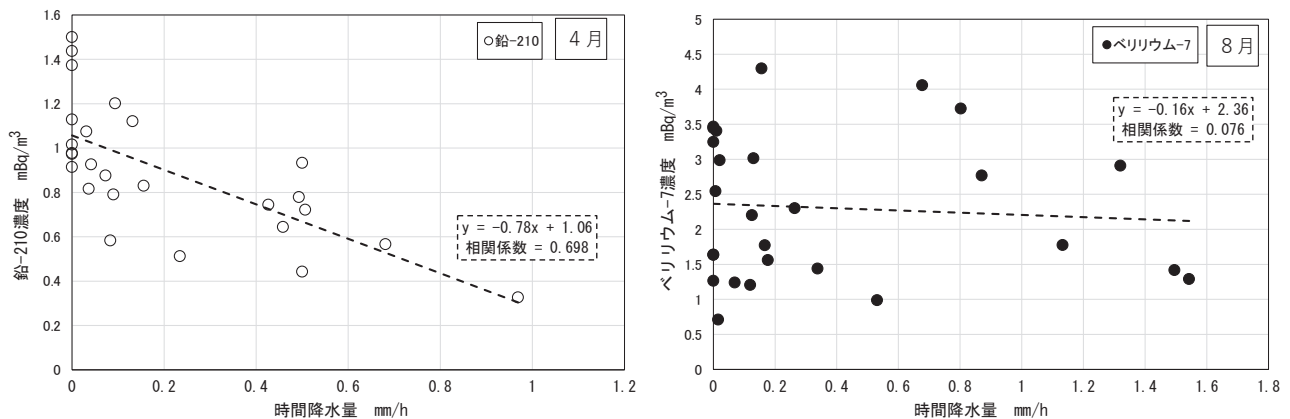


図4 ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量 (例：相関係数が最大と最小の月)

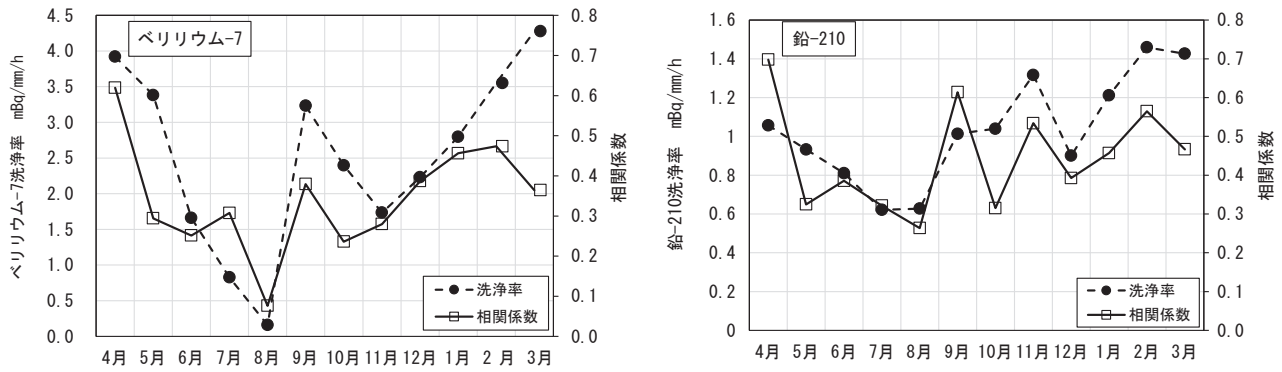


図 5 降水による洗浄率と近似式から求めた相関係数

(2) 洗浄率の違い

降水による大気浮遊じんの洗浄は、降水の粒径やダストの粒径・量などが関係すると言われている<sup>9)</sup>。

(1) に示した洗浄率が大きくかつ相関係数が大きい月(1月～4月)は降水による大気浮遊じんの洗浄が明瞭であることを意味している。この時期は第1報のとおり大陸性気団の影響を受け、大陸から黄砂のような土壌粒子やダストなどが継続的に供給される時期であり、大気中に粒子が多く存在することから、降水による洗浄が明瞭になり、降水による洗浄の影響が判別しやすくなったものと考えられた。

一方、相関係数が小さくかつ洗浄率が小さい月(8月)は洗浄にばらつきが見られていること、すなわち降水の粒径やダストの粒径・量などにばらつきがある可能性が考えられた。当該時期はベリリウム-7及び鉛-210の濃度が低い海洋性気団の影響を受ける時期であり、大陸性気団とは異なりダストの供給も少なく、さらに本県に至るまでの間に洗浄の影響を受け、ばらつきが出た可能性があると考えられた。

3.3 ベリリウム-7及び鉛-210の洗浄の違い

表2の時間降水量0mm/hの時(切片から算出。以下、「降水無観測時」という。)の大気浮遊じん中濃度(切片E, F)と降水観測時の大気浮遊じん中濃度の平均値(G, H)の差は降水による洗浄分を表すものと考えられる。それらの結果から、洗浄分の鉛-210/ベリリウム-7放射能比を求め、降水による洗浄について検討を行った。

その結果、降水無観測時の大気浮遊じん中の鉛-210/ベリリウム-7放射能比(F/E)は0.15～0.27(平均0.20)、降水観測時の大気浮遊じん中放射能比(H/G)は0.13～0.25(平均0.19)、洗浄分の放射能比((F-H)/(E-G))は0.19～8.09(平均1.00)となり、洗浄分の放射能比 $\geq$ 降水無観測時の放射能比 $\geq$ 降水観測時の放射能比となった。

大気浮遊じん中でベリリウム-7と鉛-210の存在状態が同じ場合、3者の放射能比は同じになると考えられるが、実際には6月、7月を除き洗浄分の放射能比が最も

大きくなった。このことから、降水によりベリリウム-7よりも鉛-210の方が洗浄の影響を受けていることが示唆された。第3報でも両核種の乾性沈着速度を求めているが、ベリリウム-7よりも鉛-210の方が乾性沈着速度が大きく、両核種で差がある結果となった。

鉛-210は地面から放出されるラドン-222が壊変した自然放射性核種であり、ベリリウム-7は成層圏下部や対流圏上部で生成される宇宙線生成核種であることから、両核種が付着する大気浮遊じんの粒径が異なる可能性があることなど、起源の違いにより、大気浮遊じん中での存在状態が異なり、洗浄の影響の違いが見られる結果となったと考えられた。

4 まとめ

当センター屋上において、2020年4月～2023年3月、大気浮遊じんを週2回採取し、ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係について検討した。

- (1) 時間降水量増加に伴い、大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度が低下し、ウォッシュアウトの傾向が見られた。
- (2) 月毎の大気浮遊じん中ベリリウム-7及び鉛-210濃度と時間降水量の関係から、近似式を求め、降水による洗浄率及び相関係数を求めた。これらの関係から降水による大気浮遊じんの洗浄が明瞭な月と不明瞭な月があることが分かった。
- (3) 降水による大気浮遊じんの洗浄率に季節変動が見られたことから、季節毎に影響を与える気団の起源が関係していることが考えられた。
- (4) 大気浮遊じん中鉛-210/ベリリウム-7放射能比から、ベリリウム-7と鉛-210で降水による洗浄の影響の違いが見られ、大気浮遊じん中で異なった状態で存在する可能性が考えられた。

原子力発電所事故時の人工放射性核種の大気沈着プロセスの検討を目的に、大気浮遊じん及び降水物に含まれるベリリウム-7及び鉛-210に着目して、その変動と挙

動について解析・調査を開始した。

実際には、第2報で見られたように大気の移動、大気の降水への暴露履歴、試料採取期間中の降水の降り方など、降水の大気浮遊じんへの影響をどう導き出すべきか課題が大きいと考えられた。今回、降水による大気浮遊じんへの影響から、季節毎の気象に影響を与える気団が海洋性・大陸性などの起源の違いによって、降水による洗浄効果が異なることが分かった。また、第1報から本報までの調査を通して、降水に対する降下物と大気浮遊じんの挙動の違いなどは分かったものの、検討・考慮すべき課題も多く、当初目的の達成には至らなかった。

現在も福島第一原子力発電所周辺においては、人工放射性物質の分布・蓄積状況や移行などの調査によって、その挙動等の研究が行われている。今後は、これら研究の進捗を注視し、新たな知見等が見出されれば検討を進めたいと考えている。

## 文 献

- 1) 石川県, 志賀町, 北陸電力: 志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書(平成2年度~令和2年度)
- 2) 石川県, 志賀町, 北陸電力: 志賀原子力発電所周辺環境放射線監視年度計画(平成2年度~令和2年度)
- 3) 内田賢吾, 宮竹智代, 河野隆史, 小林浩美, 鶴谷亮太, 山口麻美, 吉本高志: 降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動(第1報), 石川県保健環境センター研究報告書, 57, 8-18(2020)
- 4) 内田賢吾, 河野隆史, 宮竹智代, 鶴谷亮太, 吉本高志, 内川慎互, 川畑俊之: 降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動(第2報), 石川県保健環境センター研究報告書, 57, 65-71(2020)
- 5) 井上和幸, 鳥屋子やまと, 岡田真規子, 内田賢吾: 降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動(第3報), 石川県保健環境センター研究報告書, 58, 43-51(2021)
- 6) 内田賢吾, 鳥屋子やまと, 岡田真規子, 井上和幸: 降下物, 大気浮遊じん中のベリリウム-7及び鉛-210の変動と挙動(第4報), 石川県保健環境センター研究報告書, 59, 39-44(2022)
- 7) 原子力規制庁: ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー, 放射能測定法シリーズ7(平成2年改訂)
- 8) 西尾宗馬, 草野祐也, 百島則幸: 熊本市におけるBe-7及びPb-210の季節変化と除去過程について, Proceedings of the Fourth Workshop on Environmental Radioactivity, 95-100(2003)
- 9) 藤田慎一, 三浦和彦, 大河内博, 速水洋, 松田和秀, 櫻井達也: 越境大気汚染の物理と化学, 2訂版, 157-162, 成山堂書店(2021)