

平成 22 年 6 月 23 日現在

研究種目：若手研究(スタートアップ)
 研究期間：2008 年度～2009 年度
 課題番号：20810045
 研究課題名(和文) 放射性核種をトレーサーとした超微小粒子及び微小粒子の物質交換に関する測定装置開発
 研究課題名(英文) Development of measuring exchange of ultrafine particles using radioactive nuclide as a tracer
 研究代表者
 反町 篤行(SORIMACHI ATSUYUKI)
 独立行政法人放射線医学総合研究所・放射線防護研究センター・研究員
 研究者番号：60466050

研究成果の概要(和文)：深刻化する東アジアからの越境大気汚染の中でも、エアロゾルが植物や人間の健康に与える影響はまだ十分に解明されていない。大気に含まれる様々な物質が地表面に運ばれる過程は、主に降雨による湿性沈着と降雨によらない乾性沈着に大別される。乾性沈着過程は湿性沈着よりも複雑であるが、その超微小粒子に関するデータはほとんどない。本研究は、ラドン壊変生成物をトレーサーとした超微小粒子の乾性沈着フラックスを測定する装置の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：It remains to be fully elucidated how the presence of aerosol particles influences plant and human. Removal mechanisms of airborne substances over the ground consist mainly of wet and dry deposition processes. Although the mechanism of dry deposition is more complicate than wet deposition, little information on dry deposition of ultrafine aerosol particles is available. In this study we developed the implement of measuring the dry deposition flux of ultrafine particles using unattached radon progeny as a tracer.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,330,000	399,000	1,729,000
2009 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,530,000	759,000	3,289,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：環境動態解析

キーワード：環境動態解析、エアロゾル、放射線計測、乾性沈着

1. 研究開始当初の背景

大気に含まれる様々な物質が地表面(ここで、地表面の他、水面及び植物や構造物の表面等も一括して「地表面」と呼ぶ)に運ばれる過程は、主に湿性沈着と乾性沈着に大別さ

れる。これらのうち、理論的理解及び測定技術のいずれの面においても、乾性沈着が湿性沈着に比べてはるかに難しい問題を内包している。湿性沈着が最終的には雨滴の重力落下という比較的単純な物理過程によって決

まるのに対して、乾性沈着に関わる過程は乱流輸送、分子拡散、地表面との物理・化学・生物学的相互作用等の多岐にわたり、しかもそのどれ一つをとってみても相当に複雑である、ということが難しさの原因に他ならない。特に、ガス状物質と粒子状物質の振る舞いはかなり異なる点が多く、ガスの場合は分子拡散のみを考えれば十分であるが、粒子に対してはそれに対応するブラウン拡散の他にも、慣性衝突、さえぎり、静電相互作用、泳動効果等の異なる輸送過程を並列的に考慮しなければならない。現在では地球上の多くの地域で雨量と雨の組成に関するデータが得られているので両者の掛け算によって湿性沈着量のある程度の精度で評価することが可能である。一方、乾性沈着に関する研究は、欧米において1980~1990年代頃に盛んに行われ、多くのデータの蓄積とともにパラメタリゼーションの細緻化が進んでいるが、東アジアにおいては最近フィールド研究の成果が出つつあるが、欧米と比べると非常に遅れているのが現状である(松田ら, 2007)。

粒子の沈着に関して、森林において理論値と実測値で大きく異なる場合があり、従来の理論では粒子の沈着に大きく寄与する複雑な森林の構造が十分に表現されていないという問題が指摘されている(Garland, 2001)。また、ディーゼル排気ガス粒子のような粒径が $2.5 \mu\text{m}$ より小さい粒子(PM_{2.5})に関して、環境省はPM_{2.5}の環境基準の制定を乗り出す方針を決めており、社会的及び学術的な関心も大きい。そのため、超微小粒子及び微小粒子の大気-陸域における環境動態の解明は、大気科学や環境科学において極めて重要な課題である。

これまで申請者は、大気汚染を地表面への除去過程という側面から、世界で最も大気汚染が激しい国の一つである中国において二酸化硫黄とオゾンの乾性沈着に関するフィールド研究を行ってきた(Sorimachi et al., 2003; 2004)。また現在、屋内ラドンの低減に関わる対策研究に基づいて、ラドン・トロン及びそれらの壊変生成物の環境動態解析や放射性エアロゾルの発生及び測定手法の確立について研究している。申請者がこれまで行ってきた乾性沈着に関する測定技術と放射線計測を用いた放射性エアロゾルの測定技術を融合させることを踏まえて、本研究の着想に至った。そこで本研究では、ラドン・トロン壊変生成物をトレーサーとした超微小粒子及び微小粒子の沈着速度を測定する装置を開発することを目的とする。

2. 研究の目的

本研究は、大気環境中における超微小粒子及び微小粒子の大気-陸域の物質交換を解明するための手法として、ラドン(Rn-222)・

トロン(Rn-220)壊変生成物をトレーサーとした超微小粒子及び微小粒子の大気-陸域の物質交換に関する測定装置を開発することを目的とする。

3. 研究の方法

(1)放射性エアロゾル壊変生成物濃度測定

REA法システムのサンプリング部において、ラドン及びトロン壊変生成物のサンプリング特性について検討するため、当研究所で所有しているラドンチェンバー(容積:約 25m^3)

(**図1(a)**)とトロンチェンバー(容積:150L)

(**図1(b)**)を用いた。実験装置は、ガス及びエアロゾル発生部、チェンバー、エアロゾル捕集部で構成されている。ラドンガスは²²⁶Raセラミックス線源から、トロンガスはランタンマンタルから発生させる。エアロゾル粒子は凝縮式粒子発生器により発生させ、塩化ナトリウム粒子を核としたカルナウパワックスをコーティングしたものをを用いる。発生させた単分散エアロゾルの粒径分布は走査型電気移動度粒径測定装置により確認される。ラドン・トロン壊変生成物は、既存のエアロゾルに付着していないもの(非付着成分、unattached progeny)としているもの(付着成分、attached progeny)に大別され、それぞれメタルワイヤスクリーンとフィルターを用いることにより弁別捕集が可能である。ラドン及びトロン壊変生成物を400メッシュのメタルワイヤスクリーン($47 \text{mm}\Phi$)により捕集し(**図1(c)**)、その後ラドン及びトロン壊変生成物からのアルファ線をZnS(Ag)シンチレーションカウンタにより計数する(**図1(d)**)。ここで、アルファ線の計数を1分間隔で40分間行う。

(2) REA法システム

風速の鉛直成分 w を目的とする目的物質の濃度 C との共分散を $w' C'$ とすると、REA法によるフラックスは、式(1)で表わされる(Businger and Oncley, 1990)。

$$F = w' C' = b_c \sigma_w (C - C') \quad (1)$$

ここで、 C' と C はそれぞれ風が鉛直上向きと下向きのときの目的物質の濃度、 σ_w は同じ期間の鉛直風速の標準偏差である。 b_c は実験により評価される定数である。一般的には、渦相関法により風と同期して測定し、顕熱フラックス($w' T'$)を算出して、式(2)に示す b_t を目的物質の b_c の代用する例が多い。

$$w' T' = b_t \sigma_w (T - T') \quad (2)$$

ここで、 T' と T はそれぞれ風が鉛直上向きと下向きのときの平均気温である。

開発装置は、センサー部、サンプリング部、計測部、演算部から構成されている(**図2(a)**)。REA法は、風速の鉛直成分の符号に付随して高速動作電磁バルブでOn-Off動作制御を行い、サンプルのサンプリング、分析を行う(**図**

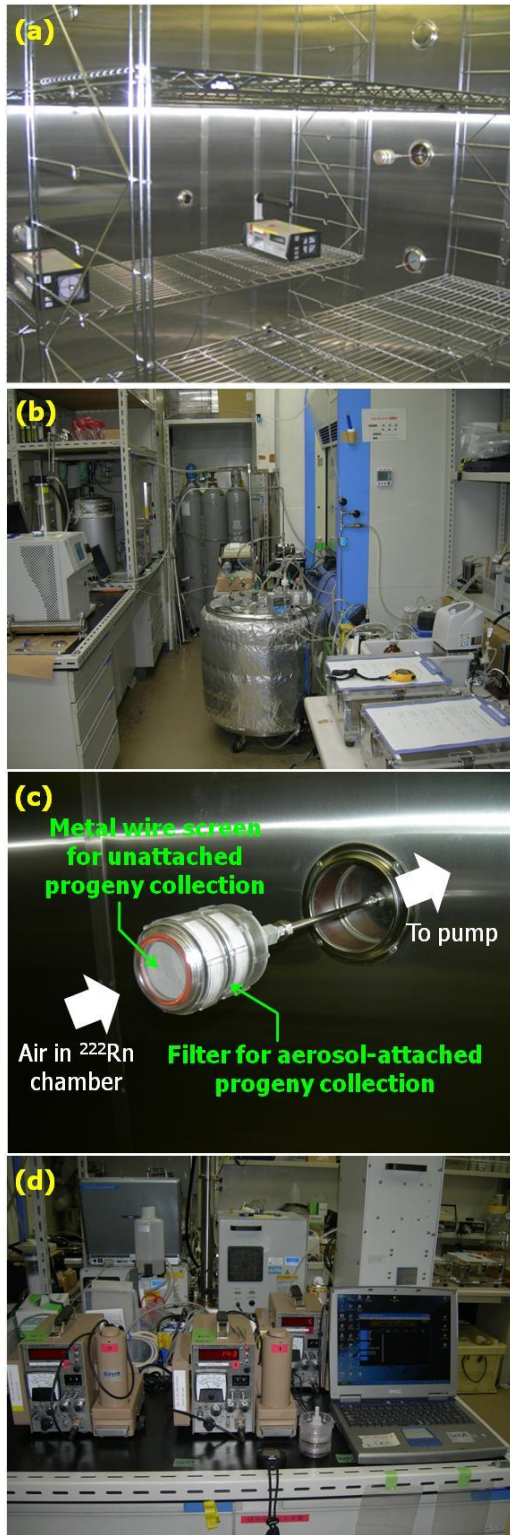


図1. 放医研(a)ラドンチェンバーシステム、(b)トロンチェンバーシステム、(c)ラドン及びトロン壊変生成物サンプリング、(d)ZnS(Ag)シンチレーションカウンター。

2(b))。センサー部では、風速の鉛直成分を三次元超音波風速計により測定する。サンプリング部では、目的物質は数 nm の超微小粒

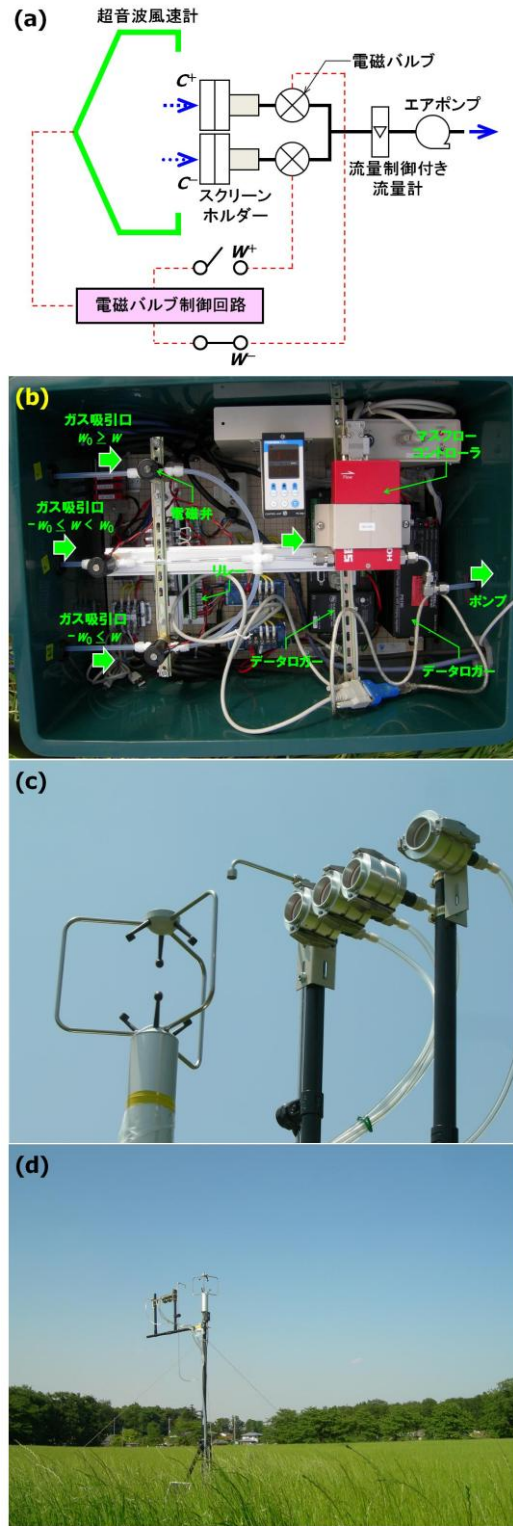


図2. (a) REA 法システムの概要図、(b)演算部（電磁バルブ制御回路）、(c)センサー部とサンプリング部、(d)フィールド観測の様子。

子であるため 400 メッシュのメタルワイヤースクリーン (47 mmΦ) を用いる (図 2(c))。サンプリング時間を 30 分とする。また、ト

レーサーとしてラドン壊変生成物を用いるため、計測部ではラドン壊変生成物からのアルファ線を ZnS(Ag)シンチレーションカウンタにより計数する。ここで、アルファ線の計数を 1 分間隔で 40 分間行う。演算部では閾値 ($w_0 = 0.1 \text{ m s}^{-1}$) を設定し、風速の鉛直成分が $w > w_0$ の場合は風が上向き ("Up")、 $w < w_0$ の場合は下向き ("Down")、 $|w| < w_0$ の場合 death band ("Neutral") とし、二方電磁バブルに信号を送りそれぞれの方向に対するサンプルを捕集する。

4. 研究成果

(1) 放射性エアロゾル壊変生成物濃度測定の見直し

ラドンチェンバーはラドン濃度、温度、湿度、エアロゾル個数濃度、エアロゾル粒子径を制御でき、通常はラドンの環境動態研究や関連機器の開発や校正に関わる作業に使用されている (例えば, Tokonami et al., 2005)。ラドンチェンバーの性能を維持するために、ラドン測定器の品質保証を確保することが肝要であるため、定期的 (1 回/年) な測定器の校正を国際的なラドン標準機関であるドイツ国物理技術研究所を利用して、ラドン比較校正実験を実施し、測定値の信頼性を確立している (Ishikawa et al., 2008)。本研究では、メタルワイヤースクリーンによりラドン壊変生成物のサンプリング流量に関する知見を得るためラドンチェンバーを用いた。図 3(a) に示すように、メタルワイヤースクリーンを用いたラドン壊変生成物のサンプリングに伴う不確定性 (本研究では繰り返し実験における相対標準偏差として評価) はサンプリング流量に依存していた。

トロン壊変生成物については発生方法が確立していなかったため、ラドンチェンバーと同様なエアロゾルの発生方法により発生させた。結果として、非付着及び付着トロン壊変生成物濃度は発生に関連するパラメータ (温湿度、エアロゾル個数濃度等) と同様に実験中においてほとんど一定であった (RSD: 約 20%) (図 3(b))。また、エアロゾル粒径は 50~200 nm の範囲で発生させることに成功し、非付着及び付着トロン壊変生成物濃度はトロン濃度やエアロゾルの粒径等を変化させることにより調節することが可能になった。本研究では、ラドンとトロン半減期、ラドンとトロンの壊変生成物のサンプリングに関する不確定性、サンプリングに伴う圧損等を考慮して、REA 法システムを用いたフィールド調査では、サンプリング流量を 15 L min^{-1} に設定した。ここで、本研究でのサンプリング条件では理論的には (Chen and Yeh, 1980; Chen et al., 1980) 50%透過率の粒径は 4.3 nm で、1 nm の粒子の集効率は 99%である (図 3(c))。また、超微小粒子のト

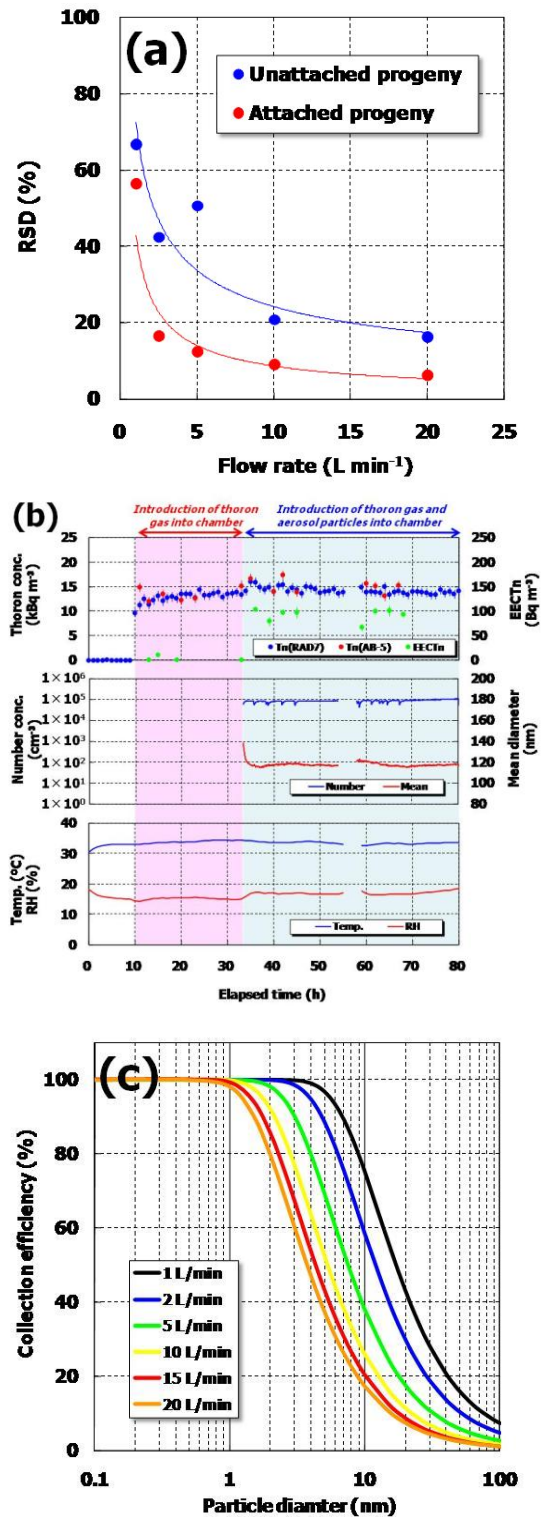


図 3. (a) ラドン壊変生成物の捕集に関する不確定性と流量の関係 (RSD: 相対標準偏差)、(b) トロン壊変生成物とその発生に関わるパラメータの時間経過、(c) 流量に対する 400 メッシュのメタルワイヤースクリーンの捕集効率とエアロゾル粒子の粒径の関係。

レーサーとして非付着ラドン壊変生成物を用いた。

(2) REA 法システムを用いたフィールド調査

フィールド観測は埼玉県立総合教育センター（埼玉県熊谷市）の牧草地において行われた（図 2(d)）。観測期間における牧草の高さは約 1 m で、センサー部とサンプリング部は地上約 2.5 m に設置された。測定は日中に行われた。観測サイトは全方位でフェッチが十分に取ることができなかったため、牧草地の面積や主風向を考慮して、観測システムを設置した。

REA 法システムによりサンプリングが行われ、十分なフェッチであった条件における風速の鉛直成分である”Up”、”Neutral”、”Down”の割合は、それぞれ 41%、32%、27%あった。

図 4 に 30 分ごとの $w' T'$ と $\sigma_w (T' - T)$ の相関関係を示す。式 (2) から b_1 は 0.42 であり、Businger and Oncley (1990) が提案した式による値 (0.46) に比べて、10%以内で一致した（反町ら, 2010, 学会発表予定）。

沈着速度 V_d は得られたフラックス F を大気中濃度 C で除することにより算出される。

$$V_d = F/C \quad (3)$$

大気中濃度 C の算出は (4) により行われる。

$$C = (C^u t^u + C^0 t^0 + C^d t^d) / t \quad (4)$$

ここで、 t^u 、 t^0 、 t^d はそれぞれ”Up”、”Neutral”、”Down” のバブルが開いている時間で、 t は全サンプリング時間 ($t = t^u + t^0 + t^d$) である。 C^0 は Death band のときの目的物質の濃度である。これまでラドン壊変生成物をトレーサーとした数 nm のエアロゾル粒子に対する V_d は 5 ~ 35 cm s^{-1} という値が見出されている (Schery et al., 1998)。しかし、今回の観測では風向に依存する不十分なフェッチや大気中濃度の定量性等の問題によりほとんどのデータが棄却された。

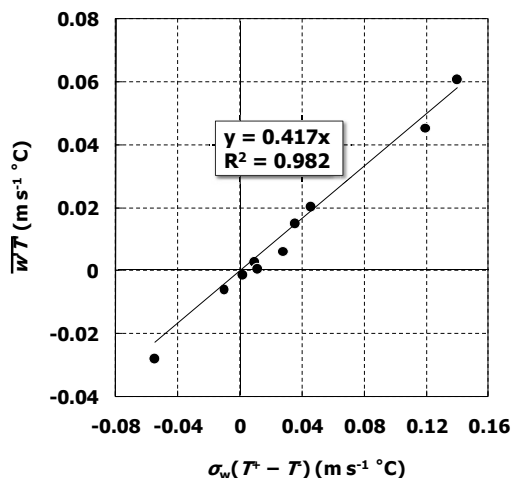


図 4. REA 法システムによる $w' T'$ と $\sigma_w (T' - T)$ の関係。

現在引き続き、フィールド調査を行っておりラドン壊変生成物の捕集法やアルファ線計測法の検討を行い、超微小粒子における乾性沈着に関するデータを取得し、国内外会議や国際学術誌等に発表する予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文 (話題、資料)] (計 2 件)

- ① 反町篤行, 「環境中におけるラドン」に関する国際会議報告, 保健物理, 査読無, Vol. 44, 2009, pp. 271-273.
- ② 反町篤行, 乾性沈着に関する研究への取り組み, エアロゾル研究, 査読無, Vol. 24, 2009, pp. 299-300.

〔学会発表] (計 3 件)

- ① Sorimachi A., Kranrod C., Janik M., Tokonami S., Performance test of thoron progeny monitor, International Workshop on Radiation Biology and Radiation Protection, 2009 年 10 月 16 日, 中国・上海.
- ② Sorimachi A., Kranrod C., Janik M., Hosoda M., Hassan N. M., Fukushi M., Sahoo S. K., Ishikawa T., Tokonami S., Upgrade of the NIRS thoron chamber - its performance as the radioactive aerosol chamber, International Conference on RADON in ENVIRONMENT, 2009 年 5 月 13 日, ポーランド・ザコパネ.
- ③ Sorimachi A., Development of aerosol dry deposition flux measurement with relaxed eddy accumulation technique, International Workshop on Atmospheric Deposition in East Asia, 2009 年 2 月 18 日, 東京都日野市.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

反町 篤行 (SORIMACHI ATSUYUKI)
 独立行政法人放射線医学総合研究所・放射線防護研究センター・研究員
 研究者番号: 60466050