

南極海における大気中ラドン濃度観測

田 阪 茂 樹^{*1}・松 原 正 也^{*1}・田 口 彰 一^{*2}
長 田 和 雄^{*3}・山 内 恭^{*4}

要 旨

第46次南極地域観測隊において、高感度ラドン検出器を南極観測船「しらせ」に設置し、2004年12月3日～2005年3月19日まで南極海洋上大気中の²²²Rn濃度を連続観測した。フリーマントルから昭和基地沖合まで（往路）の15日間、昭和基地沖合からシドニーまで（復路）の38日間を解析した。濃度の平均値は往路が39 mBq/m³、復路が48 mBq/m³であった。日平均した濃度と風速には相関があり、風速が5 m/secの場合濃度は32 mBq/m³、13 m/secに増加すると62 mBq/m³となった。寒冷前線に伴うラドン濃度増大現象（ラドニックストーム）時の濃度は、往路の事例では70 mBq/m³、復路の事例では114 mBq/m³であった。

海洋からの放出量が風速の2乗に比例する条件を与えた全球移流拡散モデルを使ってラドン濃度を計算し、観測された風速依存性の検証を行った。

1. はじめに

半減期3.8日の²²²Rn（ラドン）は大気の輸送拡散を検証するためのトレーサーとして広く用いられている。この理由はラドンが鉍物に含まれる²²⁶Ra（ラジウム、半減期1600年）の自然崩壊によって生成され、陸面からは海面の200倍程度強く放出される性質を持つからである。海洋にもラジウムが溶けているので海水中にもラドンが存在し、表層海水のラドン濃度を用いて大気と海洋の気体交換速度が推定されている。南極大陸は氷床で覆われているため、南極大陸から発生するラドンは海洋よりも少ない。したがって南極海洋上の大気中ラドンは海洋から放出されたラドンと、南アメリカ大陸、アフリカ大陸、オーストラリア大陸で放出され輸送されたラドンからなる。

Lambert *et al.* (1970) は1968年2月22日に南極大陸の Terre Adelie 基地（南緯67度、東経140度）で大気中のラドン娘核種をフィルターに採取し、 α 線シンチレーション計測法を用いてラドン濃度を測定した。通常は1 pCi/m³ (1 pCi=37 mBq) の濃度が低気圧の通過に伴って10 pCi/m³に急増した、と報告している。このようなラドン濃度増大現象を「ラドニックストーム」と呼んだ。また Polian *et al.* (1986) は南インド洋の Crozet, Kerguelen, Amsterdam の各島で、 α 線シンチレーション計測法を用いて濃度を測定している。これらの島では通常濃度は0.2～1.5 pCi/m³であり、ラドニックストーム時は4時間程度で4～10 pCi/m³まで急増し、2～6時間で元のレベルまで低下する、と報告している。この高濃度ラドンは低気圧に伴ってアフリカ大陸から輸送されたと結論している。

南極海洋上の大気中ラドン濃度は対流圏オゾンや関連する反応性気体の起源を推定する為にも用いられている。Gros *et al.* (1998) は、1993年から1994年の夏季に1日に2回2時間かけて船上で大気を採取し Lambert *et al.* (1970) 等と同じく α 線シンチレ

*1 岐阜大学総合情報メディアセンター。

*2 産業技術総合研究所環境管理技術研究部門。

*3 名古屋大学大学院環境学研究所。

*4 国立極地研究所。

—2007年2月15日受領—

—2010年11月10日受理—

ジョン計測法を用いて濃度を測定した。観測海域はタスマニア島からロス海を経てニュージーランドにいたる南緯43°~77°の範囲で、濃度の平均値は1 pCi/m³と報告している。また、南緯65°と77°の間で、2例のラドンニックストーム（最大ラドン濃度値4 pCi/m³と5 pCi/m³）を報告している。

表層海水中ラドン濃度から求めた大気と海洋の間の気体交換速度と風速の関係の検討から Wanninkhof (1992) は交換速度が風速の2乗に比例するモデルを提案した。Schery and Huang (2004) はこの関係に基づいて海洋起源のフラックス F_{sea} を

$$F_{sea} = au^2 Ra / Sc^{1/2} \quad (1)$$

で計算した。 a は定数 (sec/m), u は月平均風速 (m/sec), Ra は海洋混合層内のラジウム濃度 (mBq/m³), Sc はシュミット数である。シュミット数は $Sc = A + Bt + Ct^2 + Dt^3 + Et^4$ の多項式で表され、 A, B, C, D, E は定数, t は海水温 (摂氏) である。このフラックスは海洋全体で平均すると0.00182 Rn 原子/cm²/sec (0.0382 mBq/m²/sec) となる。交換速度を風速の何乗で表現するのが適当かについては例えば Wanninkhof and McGillis (1999) や Ho *et al.* (2006) が議論している。

Taguchi *et al.* (2002) は、ラドンを用いて全球移流拡散モデルを評価する実験で海洋のフラックスは一定とした。南極周辺のように陸域起源ラドン濃度が極めて低くなる地域では、海洋起源のラドン濃度が卓越するので、長距離輸送の再現性を検証するには海洋からのフラックスにも精度が求められる。ところが、Schery and Huang (2004) のフラックスの評価や、気体交換係数の風速依存性を大気中ラドン濃度から論じたものは筆者らの知る限り見当たらない。また海洋からのフラックスを評価する為には南極海のように陸域起源ラドンが減衰している海域での観測が有効だが、先に述べた先行研究から0.2 pCi/m³以下の低濃度を測定する必要性がわかる。

本研究の目的は低濃度を精度よく長期間測定するために開発したラドン検出器の動作を現場観測で確認し、低濃度地域のラドン濃度の変動を示し、長距離輸送の評価、海洋からのラドンの放出量の評価などへの利用の可能性を示すことである。具体的には第46次南極地域観測隊において、南極観測船「しらせ」に高感度ラドン検出器を搭載し、南極海における大気中ラドン濃度の連続観測を行い、暫定的なフラックス推定値

を全球移流拡散モデルに与えて再現実験を行い比較した。次の節では高感度ラドン検出器の構造、校正、観測航海の概要を述べ、引き続き節で観測結果、複数のフラックス推定値を用いた全球移流拡散モデルの計算結果を例示し、風速と濃度の関係を考察する。

2. 観測方法

2.1 高感度ラドン検出器

今回用いた高感度ラドン検出器は静電捕集型と呼ばれる型式で根本ほか (1997) と Takeuchi *et al.* (1999) が記述した旧型ラドン検出器と同じである。測定原理は、ラドンの娘核種が陽イオン化している性質を利用して、PIN フォトダイオードの表面にラドン娘核種を静電的に捕集し、娘核種²¹⁸Po, ²¹⁴Po, ²¹⁰Poの α 崩壊によって放出される α 線のエネルギーを高精度で測定するというものである。Ui *et al.* (1998) は、旧型検出器を用いて1996年9月~1997年1月に昭和基地で大気中ラドン濃度の観測を行っている。

検出器は容積70リットルのステンレススチール製の静電捕集容器、フィードスルー、プラスチック製蓋などからなり、頭部には、PIN フォトダイオード、前置増幅回路・高電圧分割回路が内蔵されていて、静電捕集容器にはフランジ、大気入出パイプが付属している。容器内面からのラドン放出を避けるために前述のラドン検出器を改良して容器の構造を曲面状とし、溶接した部分の加工精度を上げた。容器内面は電解複合研磨法で平滑性 $R_{max} = 0.4 \mu\text{m}$ の鏡面仕上げを行った。

2.2 感度校正

検出器の静電捕集電圧特性を調べるために、検出器、電離箱、気圧計、露点計、流量計、気温計、エアポンプ、ラドン源から構成されるラドン濃度校正実験システムを製作した。ラドン濃度標準原器として容積1.5リットルのガス用電離箱を使用した。この電離箱はラドン濃度国際共同比較実験 (下ほか 1997) で絶対値が校正されている。

捕集電圧特性を調べるために、ラドン源からラドンガスをシステムの純空気の循環系に導入した。絶対湿度を $0.35 \pm 0.05 \text{ g/m}^3$ に保って、静電捕集電圧を -500 V から $-2,900 \text{ V}$ まで変化させて特性実験を行った。捕集電圧が $-2,000 \text{ V}$ 以上では濃度校正係数がほぼ一定になる事が分かったので南極海の観測では捕集電圧を $-2,000 \text{ V}$ で固定した。

検出器の湿度特性を調べるために、上記の校正実験システムを用いて湿度特性実験を行った。システム内の空気の露点と気温から絶対湿度を測定した。捕集電圧を $-2,000\text{ V}$ で一定にして、シリンジで純水を注入して絶対湿度を 0.4 g/m^3 から 12 g/m^3 まで変化させて濃度校正係数を求めた。絶対湿度を 0.4 g/m^3 から 2 g/m^3 まで上げていくと、校正係数は 1.0 から 0.8 ($^{214}\text{Po}/\text{day}$)/(mBq/m^3)まで減少し、校正係数の湿度依存性が現れた。絶対湿度が 2 から 12 g/m^3 の範囲では校正係数は湿度と無関係にほぼ一定となった。

南極海での採取大気の絶対湿度範囲は後述する2つの観測海域について、1) 往路で $4\sim 11\text{ g/m}^3$ 、2) 復路で $2\sim 11\text{ g/m}^3$ であった。湿度特性実験結果から、絶対湿度 2 g/m^3 以上での濃度校正係数 CF は、

$$CF = 0.81 \pm 0.04 \quad (^{214}\text{Po}/\text{day}) / (\text{mBq}/\text{m}^3)$$

となった。濃度観測値 RN はこの CF を用いて次式、

$$RN = (CPD - BG) / CF \quad \text{mBq}/\text{m}^3 \quad (2)$$

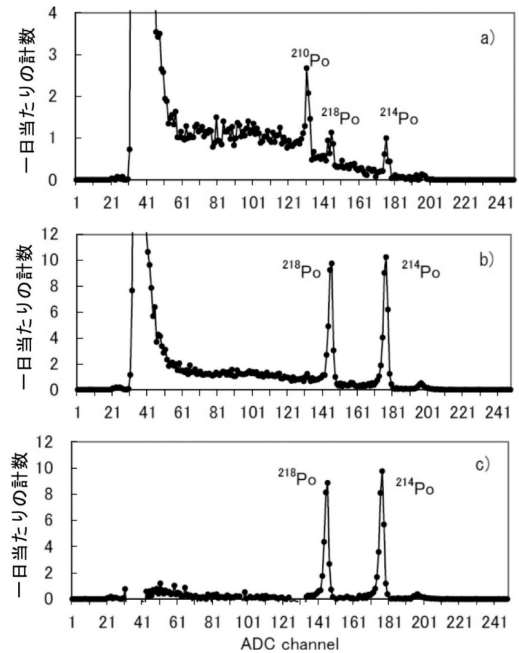
で与えられる。但し CPD は1日あたりのカウント数である。本短報では日平均値のみを議論する。

2.3 バックグラウンドの補正

ラドン検出器の静電捕集容器内部のステンレスチール表面からのラドン放出を調べるためにブランク実験を3回行った；A) 2004年11月30日から2004年12月2日までの3日間、B) 2005年7月26日から8月2日までの8日間、C) 2006年10月21日から2006年12月11日までの52日間。上記C)のブランク実験期間における1日あたりのパルス波高分布を第1図aに示す。横軸のアナログデジタル変換器の一目盛り（チャンネル）は 3.9 mV である。南極海における2004年12月3日から2005年3月19日の107日間の観測期間におけるパルス波高分布は第1図bに示す。次に第1図bから第1図aの分布を減じたパルス波高分布を第1図cに示す。この図でラドン娘核種 ^{218}Po 、 ^{214}Po の α 線による2つのピークが確認できる。第1図cは南極海における濃度を求めるための、ブランクを差し引いたラドン娘核種による信号分布となる。

日別濃度を算出するために、第1図c横軸のラドン娘核種 ^{214}Po の信号領域（ROI領域）は $164\sim 181$ チャンネルとした。第1図aにおいて、このROI領域のカウント数をラドン娘核種 ^{214}Po の1日当たりのブランク係数率を BG とすると、 $BG = 4.8 \pm 0.3$ ($^{214}\text{Po}/\text{day}$) となった。

2004年12月3日から2005年3月19日の観測期間にお



第1図 観測パルス信号のエネルギーレベル別の度数、a) ブランク実験時 2006年10月22日から12月12日まで、b) 観測時の生データ2004年12月3日から2005年3月19日、c) ブランクを差し引いた観測値。

ける上記ROI領域の日別パルス波高分布からラドン娘核種 ^{214}Po のカウント数 CPD を求めた。

高感度ラドン検出器の検出下限は、Currieの定義式 (Currie 1968; 上山 2010) により、下式で与えられる。

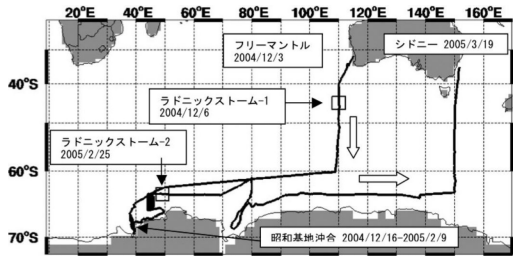
$$L = (BG + 4.65 \times SD) / CF \quad (3)$$

ただし、 L は1日当たりの検出下限濃度値 (mBq/m^3)、 CF は濃度校正定数 ($(^{214}\text{Po}/\text{day}) / (\text{mBq}/\text{m}^3)$)、 BG はブランク計数率 ($^{214}\text{Po}/\text{day}$)、 SD はその標準偏差である。

この式 (3) に、前述の濃度校正定数 CF 、ブランク係数率 BG とその標準偏差 SD を代入して、検出下限値 L として 7.7 (mBq/m^3) を得た。

2.4 観測概要

南極観測船「しらせ」第1観測室に高感度ラドン検出器とラドン観測システムを設置した。大気吸引パイプを第1観測室直近の左舷から海面上高度約 14 m に長さ約 1.5 m 突き出した。サンプル大気は飛沫トラップを通過した後、直径 $1/4$ インチ、長さ約 9 m のナ



第2図 第46次南極観測隊を輸送した「しらせ」の航跡。ラドニックストームを観測した地点を四角で示す。

ironチューブで室内配管して、空気吸入口から毎分 6.4 ± 0.5 リットルで観測システム配管系へ導入した。エアポンプは連続運転した。フィルターホルダーをラドン検出器の空気取り入れ口バルブの直上に取り付け、直径47 mmの孔径 $0.45 \mu\text{m}$ メンブレンフィルターを使用した。除湿剤は南極海では使用しなかった。ラドン娘核種 ^{218}Po 、 ^{214}Po 、 ^{210}Po が α 崩壊で放出する α 線によるパルス信号のピーク波高電圧を8ビット高速AD変換器によって計測し、サンプル大気の流れ、気温、相対湿度、露点温度とともに10分間隔で自動記録した。復路シドニー入港前にバルブを閉じて外気から遮断した。

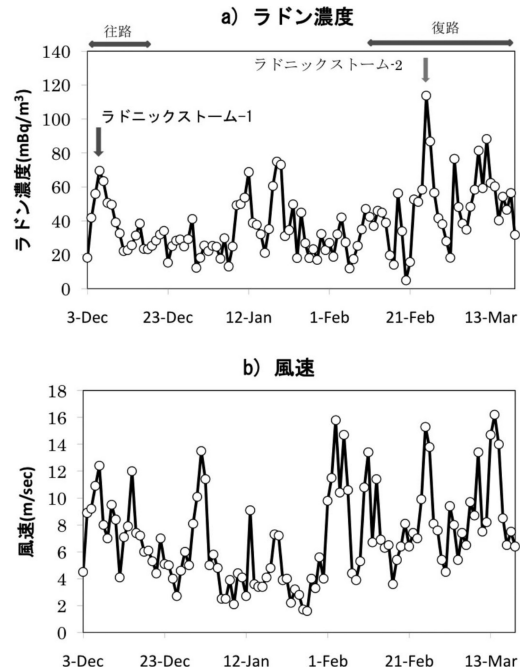
第2図に南極海における航跡を示す。観測海域と観測日は以下の通りである。

- 1) 往路は2004年12月3日から2004年12月17日までの15日間。オーストラリアのフリーマントル（東経 116° 、南緯 32° ）を出港して、東経 110° の子午線に沿って南下し、南緯 60° から西進して、昭和基地沖合（東経 40° 、南緯 69° ）に到達した。
- 2) 昭和基地沖合のリュツォ・ホルム湾定着海水内には2004年12月18日から2005年2月9日までの54日間。
- 3) 復路は2005年2月10日から2005年3月19日の38日間。昭和基地沖合からほぼ南緯 65° に沿って、東経 150° まで東進して、東経 150° の子午線に沿って北進し、オーストラリアのシドニー（東経 151° 、南緯 34° ）に入港した。

3. 結果および考察

3.1 日別ラドン濃度観測結果

第3図aは式(2)を用いて算出した、観測期間2004年12月3日～2005年3月19日の日別濃度観測値



第3図 ラドン濃度と風速, a) 日平均ラドン濃度, b) 風速。

RNである。また、第3図bは船上における日別風速値で「しらせ海上気象観測記録」の特別風速データを日平均して求めた。

3.2 観測値とモデル計算値の比較

比較のために用いた全球移流拡散モデルは Taguchi *et al.* (2002) を改造したモデルで、格子点間隔は水平 1.125° 、鉛直は60層からなり、6時間間隔の全球濃度を計算する。ECMWF 現業解析データを輸送の計算に用いた。このモデルでは、下部境界から放出されたラドンを境界層高度に応じて混合比に変換し、境界層内部では高さ方向に一律に加える。この方法はフラックスが一定でも境界層が薄ければ濃い濃度、厚ければ薄い濃度を与える。

南極大陸の大部分は氷床で覆われているので南極大陸のラドンフラックスはゼロとした。また、陸域起源のラドンフラックスは輸送モデルの検証 (Taguchi *et al.* 2002等) でよく利用される $1.00 \text{ Rn 原子/cm}^2/\text{sec}$ を与えた。海洋起源フラックスはモデル計算 (A) では、 $0.005 \text{ Rn 原子/cm}^2/\text{sec}$ とした。モデル計算 (B) では、陸域起源と南極大陸起源ラドンフラックスはモデル計算 (A) と同じで、海洋上は6時間ごと

の風速の2乗に比例する6時間ごとのフラックスを用いた。式(1)の定数 a は全海洋からの年間放出量が実験(A)と同じになるように変更($=1.64 \times 10^{-5}$)した。また緯度 $S = -40^\circ \sim -70^\circ$ の南極海における海水中ラジウム濃度 Ra はSchery and Huang (2004)に従い、

$$Ra = 1180 + (-40 - S) \times 60.8 \quad (\text{mBq/m}^3) \quad (4)$$

で与えた。

フラックス計算に用いた水温と地上高さ10mの風速は、NCAR/NCEP再解析データ(Kalnay *et al.* 1996)の値を用いた。ラドン濃度は、南アメリカ大陸、アフリカ大陸、オーストラリア大陸、北半球大陸および海洋起源を別々に計算した。「しらせ海上気象観測記録」の艦位データにもとづいて、位置と時刻の濃度を内挿により作成し、観測のある時刻の計算濃度だけを1日ごとに平均した。

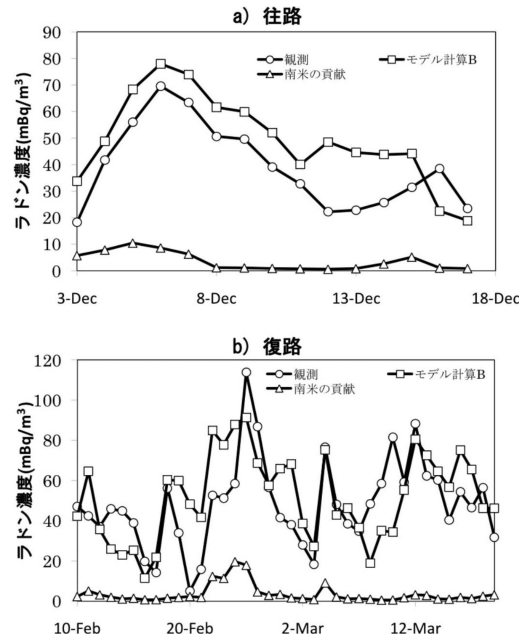
リュツォ・ホルム湾の昭和基地沖合に停泊中はオングル諸島の露岩域からのラドンも観測していると考えられるが、輸送モデルにはこの発生源を与えていないので、計算結果との比較は、1) 往路と 2) 復路を合わせた53日間について行った。ラドン濃度の観測値、モデル計算(A)、モデル計算(B)の平均値と標準偏差はそれぞれ、1) 往路で 39 ± 16 , 44 ± 14 , 49 ± 17 mBq/m³, 2) 復路で 48 ± 22 , 33 ± 12 , 52 ± 21 mBq/m³となった。

往路での濃度の観測値とモデル計算(A)及びモデル計算(B)の相関係数は、それぞれ -0.18 と 0.82 となった。復路の相関係数は 0.26 , 0.62 となった。いずれの場合も観測値とモデル計算(B)の相関はモデル計算(A)よりも強い。

3.3 ラドニックストーム

1時間間隔のカウンタ数の観測結果によると、先行研究においてラドニックストームとして報告されている現象を往路と復路でそれぞれ1回捉えた。この報告ではモデルの時間間隔の制約からラドニックストームが観測された時間帯を含む1日の平均濃度について記述する。

第4図aには、2004年12月3日～12月17日の往路における濃度の観測値、モデル計算(B)の結果とそこに含まれた南アメリカ大陸起源の濃度を示す。2004年12月6日3時頃、南緯45度09分、東経110度00分でラドニックストーム-1を観測した。気象衛星NOAAの画像で見るとこの場所は寒冷前線の縁と思

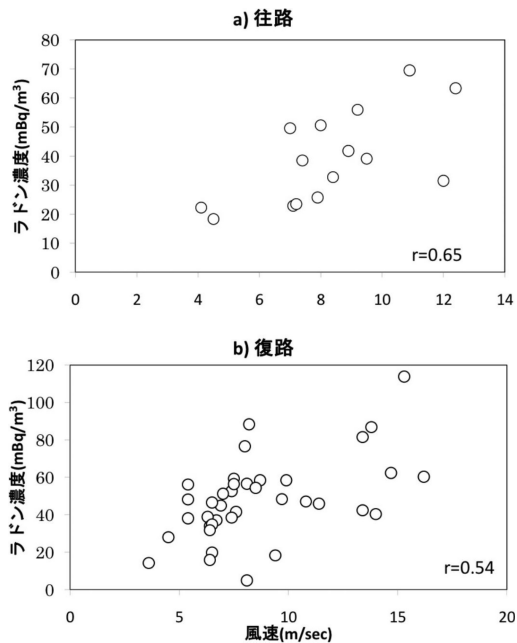


第4図 日平均ラドン濃度の観測値とモデル計算値、a) フリーマントルから昭和基地沖合まで、b) 昭和基地沖合からシドニー。丸印は観測、四角はモデル計算(B)、三角はモデル計算(B)に含まれる南米の寄与。

われる。2004年12月6日の日平均濃度の観測値は70 mBq/m³、モデル計算(A)では36 mBq/m³、モデル計算(B)では78 mBq/m³であった。12月6日の日平均濃度の発生源別の内訳(割合%)は、モデル計算(B)によれば、海洋54 mBq/m³ (69%)、南アメリカ大陸8.6 mBq/m³ (11%)、その他の合計は20%であった。なお往路15日間の発生源別の内訳は海洋84%、南アメリカ大陸7.3%、その他の合計は8.7%であった。

第4図bには、観測期間2005年2月10日～3月19日の復路における濃度の観測値、モデル計算(B)とその中の南アメリカ大陸起源の濃度を示す。2005年2月25日13時頃、南緯63度54分、東経49度04分でラドニックストーム-2を観測した。気象衛星NOAAの画像によればこの場所も寒冷前線と思われる。

日別濃度の観測値は114 mBq/m³、モデル計算(A)では44 mBq/m³、モデル計算(B)では91 mBq/m³であった。モデル計算(B)の計算値は観測値に比べて80%と低くなった。2月25日の発生源別濃度の内訳は、モデル計算(B)によれば、海洋58



第5図 日平均ラドン濃度と風速。a) フリーマントルから昭和基地沖合まで、b) 昭和基地沖合からシドニー。図中の r は相関係数である。

mBq/m³ (63%), 南アメリカ大陸18 mBq/m³ (20%), その他の合計17%であった。なお往路38日間の濃度の発生源別の内訳は海洋86%, 南アメリカ大陸6.8%, その他の合計7.2%であった。

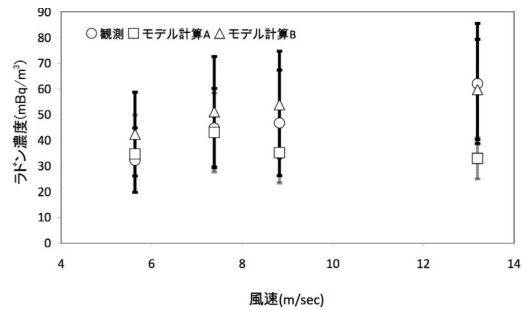
ラドンの発生海域を調べたところラドニックストームに伴う海洋起源ラドンの大部分は観測地点近傍20度の範囲であった。

3.4 ラドン濃度と風速

濃度と日別風速の相関を、往路(第5図a)と復路(第5図b)について示す。日別風速の平均値は、往路で 8.3 ± 2.3 m/sec, 復路で 8.6 ± 3.2 m/sec と大きな差はないが、風速が10 m/sec以上の出現日数は、往路で3日間、復路で9日間と増加していた。

往路と復路を合わせた53日間の、船上の日別風速値と濃度の観測値、モデル計算(A), モデル計算(B)の間の相関係数を求めたところ、観測値とは0.57, モデル計算(A)とは0.27, モデル計算(B)とは0.61となった。

53日間の日別風速値3.6~16.2 m/secを4つの階級に分けて、それぞれの階級毎に濃度の観測値、モデル計算(A), モデル計算(B)の平均値を計算した。



第6図 風速階級別の日平均ラドン濃度。丸印は観測、四角はモデル計算(A), 三角はモデル計算(B)。

第6図はその結果で、風速値が5.6 m/secで一番小さいときは、観測値、モデル計算(A), モデル計算(B)の3つの濃度値は33~42 mBq/m³で標準偏差の範囲内で一致した。日別風速値が5.6から13.2 m/secまで増加すると、観測値は33から63 mBq/m³まで増加している。これと比較して、風速依存性がないモデル計算(A)では風速が増加しても39~43 mBq/m³で変化がない。モデル計算(B)では、濃度計算値は風速とともに増加するが観測値と比較してその増加の割合は小さい。観測値の方がモデル計算(B)よりも風速との関係が強いと考えられる。つまりフラックスが風速の高次に依存すると考えた方が観測と良く一致する可能性を示しているといえる。

4. まとめ

第46次南極地域観測隊において、ラドン濃度検出限界値7.7 mBq/m³の高感度ラドン検出器を南極観測船「しらせ」の第1観測室に設置し、2004年12月3日~2005年3月19日まで海面上高度約14 mの大気中ラドン濃度を連続観測した。この観測期間内でリュツォ・ホルム湾外の南極海を航行していた期間は、往路15日間、復路38日間の合計53日間であった。本研究における観測結果を要約すると、

- 1) 往路と復路のラドン濃度の平均値は39と48 mBq/m³となった。風速10 m/sec以上の出現日数は、往路3日間、復路9日間であった。
- 2) 往路の2004年12月6日、復路の2005年2月25日に寒冷前線の中を航行中にラドニックストームを観測した。日平均ラドン濃度は往路の事例では70 mBq/m³, 復路の事例では114 mBq/m³と急増した。

3) ラドン濃度と風速の相関係数は往路0.65, 復路0.54で有意な相関があった。風速が5 m/secと小さいときはラドン濃度33 mBq/m³で, 13 m/secに増加すると63 mBq/m³まで増加した。

全球移流拡散モデルに暫定的な発生源を与えた結果によると, 風速の2乗に比例した海洋起源フラックスを用いた場合でも, モデル計算値よりも観測の方が風速との強い関係を示した。

これらの結果から, 本研究で用いたラドン観測装置は南極域でみられるような低濃度における変動も観測可能と判断でき, 観測空気の起源の推定, 大気と海洋の気体交換速度の推定に利用可能であると結論できる。今後, 南極海の大気中, 海洋中のラドン観測は, 大気海洋間ガス交換と長距離輸送のトレーサーとしての役割が大きく期待される。

謝 辞

しらせ船上観測では気象データと NOAA 画像の提供など, 「しらせ」乗員の皆様の観測協力に感謝いたします。本ラドン観測は, 第46次南極地域観測隊の隊員の協力の下に行われた, ここに記して感謝いたします。

本研究は文部科学省科学研究補助金, 平成16年度~17年度, 「超高感度ラドン検出器を用いた海洋環境中のラドン濃度の連続観測」(課題番号16310007)及び, 科学研究費補助金学術創成研究費, 平成17年度~21年度, 「大気・陸上生物・海洋圏に関わる温室効果気体の全球規模循環の解明」(課題番号17GS0203)の支援を受けて行われた。また, 南極地域観測(第VI期5カ年計画)プロジェクト「南極域における地球規模大気変化観測」の中で行われた。

参 考 文 献

Currie, L. A., 1968 : Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Anal. Chem.*, **40**, 586-593.
 Gros, V., D. Martin, N. Poisson, M. Kanakidou, B. Bonsang, F. Le Guern and E. Demont, 1998 : Ozone and C₂-C₅ hydrocarbon observations in the marine boundary layer between 45°S and 77°S. *Tellus*, **50 B**, 430-448.
 Ho, D. T., C. S. Law, M. J. Smith, P. Schlosser, M. Harvey and P. Hill, 2006 : Measurements of air-sea gas exchange at high wind speeds in the Southern Ocean : Implications for global parameterizations. *Geophys. Res. Lett.*, **33**, L16611, doi : 10.1029/2006

GL026817.

Kalnay, E., M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski, J. Wang, A. Leetmaa, R. Reynolds, R. Jenne and D. Joseph, 1996 : The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **77**, 437-471.
 Lambert, G., G. Polian and D. Taupin, 1970 : Existence of periodicity in radon concentrations and in the large-scale circulation at lower altitudes between 40° and 70°south. *J. Geophys. Res.*, **75**, 2341-2345.
 根本真知子, 田阪茂樹, 堀 秀充, 奥村公宏, 梶田隆章, 竹内康雄, 1997 : 静電捕集型超高感度空気中ラドン検出器の開発. *Radioisotopes*, **46**, 710-719.
 Polian, G., G. Lambert, B. Ardouin and A. Jegou, 1986 : Long-range transport of continental radon in subantarctic and Antarctic areas. *Tellus*, **38 B**, 178-189.
 Schery, S. D. and S. Huang, 2004 : An estimate of the global distribution of radon emissions from the ocean. *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L19104, doi : 10.1029/2004GL021051.
 下 道国, 藤高和信, 古田定昭, 飯田孝夫, 飯本武志, 五代儀 貴, 黒澤龍平, 児島 紘, 真田哲也, 床次眞司, 藤元憲三, 宮野敬治, 山崎敬三, 米原英典, 1997 : 米国 EML におけるラドン共同比較実験. *保健物理*, **32**, 285-294.
 Taguchi, S., T. Iida and J. Moriiizumi, 2002 : Evaluation of the atmospheric transport model NIRE-CTM-96 by using measured radon-222 concentrations. *Tellus*, **54 B**, 250-268.
 Takeuchi, Y., K. Okumura, T. Kajita, S. Tasaka, H. Hori, M. Nemoto and H. Okazawa, 1999 : Development of high sensitivity radon detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A 421**, 334-341.
 上本道久, 2010 : 検出限界と定量下限の考え方. *ぶんせき*, **5**, 216-221.
 Ui, H., S. Tasaka, M. Hayashi, K. Osada and Y. Iwasaka, 1998 : Preliminary results from radon observation at Syowa station, Antarctica, during 1996. *Polar Meteor. Glaciol.*, **12**, 112-123.
 Wanninkhof, R., 1992 : Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean. *J. Geophys. Res.*, **97**, 7373-7382.
 Wanninkhof, R. and W. R. McGillis, 1999 : A cubic relationship between air-sea CO₂ exchange and wind speed. *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 1889-1892.

Atmospheric Radon Observation on the Antarctic Ocean

Shigeki TASAKA^{*1}, Masaya MATSUBARA^{*1}, Shoichi TAGUCHI^{*2},
Kazuo OSADA^{*3} and Takashi YAMANOUCHI^{*4}

^{*1} *Information and Multimedia Center, Gifu University, Gifu, 501-1193 Japan.*

^{*2} *Research Institute for Environmental Management Technology, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Ibaraki, 305-8569 Japan.*

^{*3} *Graduate School of Earth and Environmental Sciences, Nagoya University, Nagoya, 464-8603 Japan.*

^{*4} *National Institute of Polar Research, Tokyo, 190-8518 Japan.*

(Received 15 February 2007 ; Accepted 10 November 2010)
