

長崎に飛来する大気中浮遊物質に含まれる原発事故由来放射性物質と 天然放射性物質、安定元素

高辻俊宏¹、袁 軍¹、世良耕一郎²

¹長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科
852-8521 長崎県長崎市文教町1番14号

²岩手医科大学サイクロロンセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森348-58

1 はじめに

2011年3月に発生した福島第一原子力発電所事故からまもなく、長崎郊外、「ながさき県民の森」で採集した大気中浮遊物質(エアロゾル)内に微量の放射性セシウム(¹³⁴Cs、¹³⁷Cs)と放射性銀(^{110m}Ag)が検出された(図1)。流跡線解析によれば、大気は原発周辺を経由していると考えられた(図2)。広島においてもエアロゾル内から放射性ヨウ素(¹³¹I)、放射性セシウム(¹³⁴Cs、¹³⁶Cs、¹³⁷Cs)、放射性テルル(¹³²Te)が検出された²⁾。

空気体積あたりの放射能は微量であるが、大気に含まれるエアロゾルも微量であり、放射性セシウムの比放射能(質量あたりの放射能)は飯館村の高濃度汚染地域における表面土壌の濃度に匹敵する 2.4×10^4 Bq/kg に達した。

その後たびたび、エアロゾル中から放射性セシウムが検出された(参考文献³⁾ Fig. 3)が、流跡線解析によれば、多

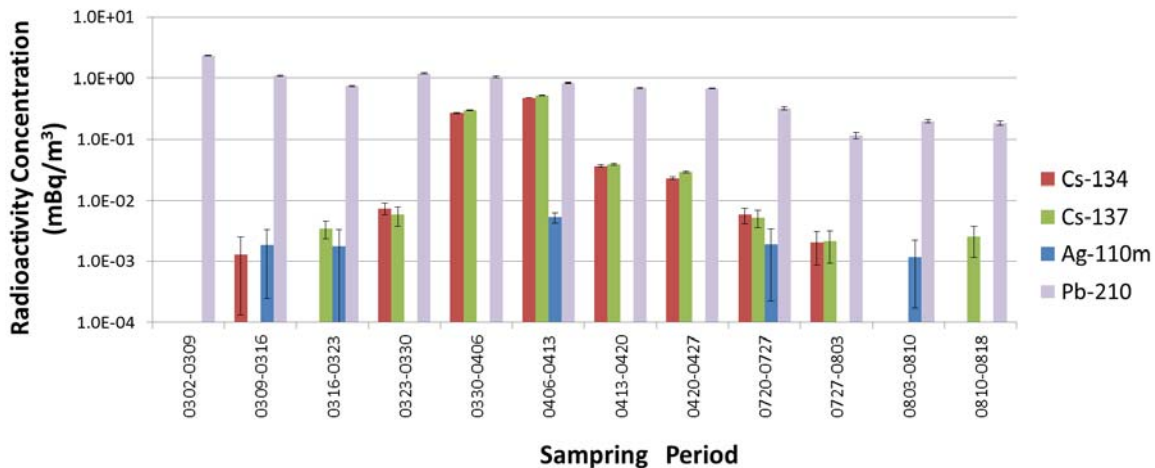


図1. ながさき県民の森において採取したエアロゾル中の放射能濃度の変化。縦軸は吸引した空気の体積あたりの放射能濃度、横軸はエアロゾルを採取した期間を示す。ハイボリウムエアサンプラと石英濾紙で約1週間かけて集めたエアロゾルをゲルマニウム半導体検出器で測定した。4つの核種のうちPb-210は天然放射性核種であるが、他は福島第一原子力事故由来と考えられる。参考文献より著者自身により転載一部壊変。

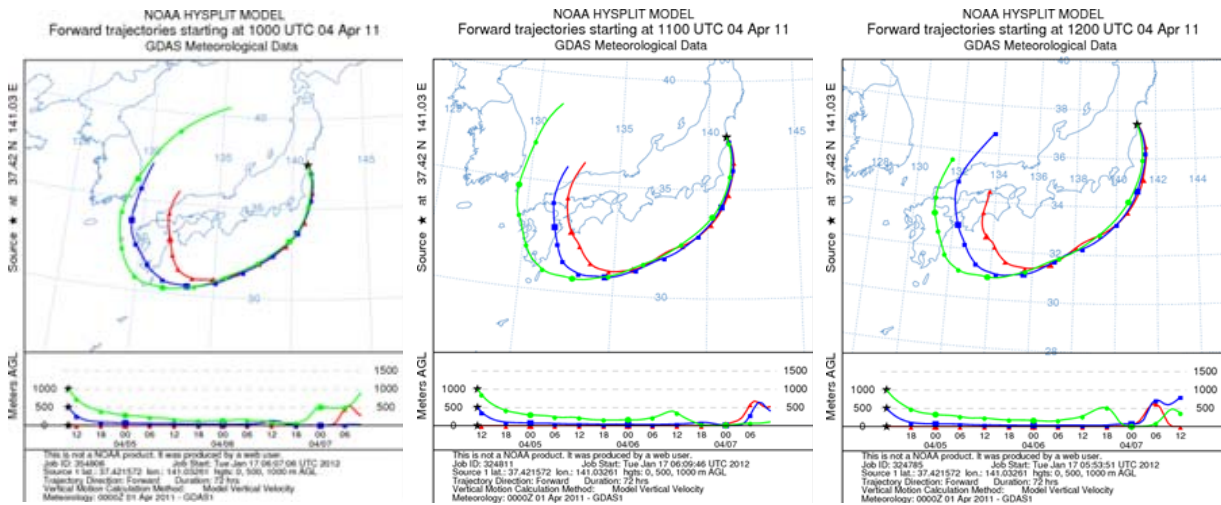


図2. NOAA HYSPLIT model の web site による福島第一原子力発電所上空からの前方流跡線分析。左から、2011年4月4日10:00 UTC、11:00 UTC、12:00 UTC に発電所上空を出発した大気(対地高度0、500、1000m)の流跡である。4月4日に出発した大気は6日に長崎、7日に広島付近に到達したと分析される。参考文献¹⁾より著者自身により転載一部壊変。

くの場合、大気は福島第一原発周辺を経由していないとされた。ところが、¹³⁴Csと¹³⁷Csの濃度比から、放射性セシウムの大部分は当該原発由来であると判断される。このことは、原発から放出されたもの、あるいは周辺に降下したものが再浮遊して直接長崎まで飛来したのではなく、一度遠隔地に降下したものが再度気流によって浮遊して飛来したことを示唆している。放射性セシウムが多く飛来する期間での流跡線解析の結果は朝鮮半島や本州の陸域を通過しているものが多かった(参考文献³⁾ Fig. 10, 11, 12, 13)。遠隔地の地表に放射性セシウムが存在することは、長崎大学構内の蘚苔類から放射性セシウムが検出された(濃度の一例は7.8 Bq/kg)ことで確かめられた³⁾。

今回の事故においては、外部に飛散した放射性セシウムは、原子炉内にあったものの1%にも満たない⁴⁾ことから、原子炉内の放射性セシウムの大部分が放出されるような過酷な事故が発生した場合には、今回の100倍程度の放射性セシウムがもたらされる可能性があり、長崎のように1000 km以上離れた地域においても、蘚苔類の放射能濃度が数百Bq/kgになることから判断して、農作物が国の定めている基準値の100 Bq/kg以上に汚染する可能性があることがわかった³⁾。

このように、現在の長崎におけるエアロゾルの放射能汚染は低濃度であるが、これを調べることにより、大規模な原子力災害が今後発生した場合の被害は、1000 km以上離れた地域においても、大きなものになりうると推測される。

エアロゾルの計測を引き続き行い、合わせて、PIXEによりエアロゾル中の安定元素の濃度を分析したところ、放射性セシウムの再浮遊を裏付けるような結果を得た。また、日本各地の蘚苔類を採集して測定したところ、長崎以外の遠隔地でも放射性セシウムを検出した。このことを報告する。

2 材料と方法

2.1 試料採取

大気中浮遊物(エアロゾル)の採取には、ハイボリュームエアサンプラー柴田科学製AH600-F(吸収流量:700L/min、一週間積算流量:約7000m³)とアドバンテック QR-100 シリカ繊維濾紙(捕集効率:99.99%、0.3 μmDop) 203×254mmを用いた。試料採取は、長崎大学(北緯32.785701°東経129.86479°)で行った。試料はほぼ1週間にわたって採取した。採取後サンプルから4分の3を切り分け、放射能測定のための試料とした。残りの4分の1のうち、一部(3cm×3cm)を、PIXEによる元素分析用に使用し、残りは予備試料として保管した。

日本全国の放射能汚染の程度を評価するため、各地の路面や駐車場などに生えている蘚苔類を収集して、放射能を測定した。

2.2 測定方法

エアロゾルの質量は、エアロゾル採取後の濾紙の質量から、エアロゾル採取前の濾紙の質量を差し引いて求めた。なお、濾紙は吸湿性があるため、質量は、除湿機能付きのデシケーター(サンプラテックオートデシケーターAM-3型)で水分を取り除いたのち測定した。測定には、風防に帯電防止用の導電性ガラスを採用した分析用電子天秤(精度0.0001g)を用いた。

放射能の測定は、ガンマエックス型ゲルマニウム半導体検出器を用いて行った。濾紙をポリエチレンラップに包み、金型に入れてからプレス器で円盤状に成形したのち軟膏容器(U-9容器と同型のもの)に入れて測定した。

元素分析は、エアロゾルを捕集したシリカ繊維濾紙について、仁科記念サイクロtronセンター(NMCC)においてPIXEで行った。

蘚苔類の放射能測定は、実験用オープンの中で80℃3日以上加熱乾燥させたものを軟膏容器に入れて行った。

2.3 海水に多数含まれる元素の濃度補正

エアロゾル中のS、K、Ca、Br、Srの濃度については、海塩成分を差し引いた値を推定した。海塩の量は、Naは全量が、海塩の成分であると仮定して、各元素の海塩成分を各元素の海水中平均濃度から推定した。このようにして求めた濃度をnss-Sなどと書いて示すことにする。

2.4 流跡線解析

参考文献³と同様の方法により、流跡線解析を行った。

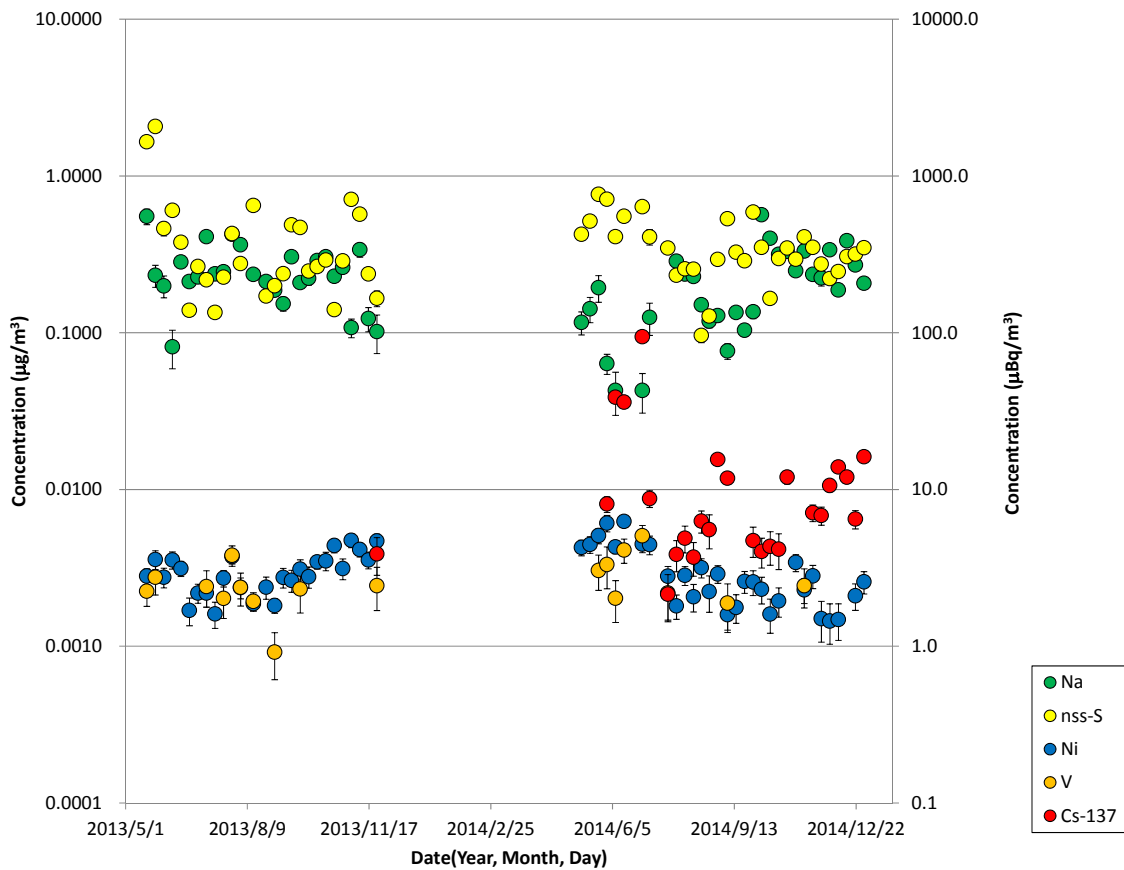


図3. エアロゾルから検出された¹³⁷CsとNa、nss-S、Ni、Vの濃度の時間的推移。¹³⁷CsとNaの動きが逆になっている傾向が見られる。

3 結果

3.1 エアロゾル

PIXEによってエアロゾル中から検出された元素は、Mg、Al、S、K、Ca、Ti、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Pb、Br、Sr、Zr、Mo、V、As、Naであった。Siも検出されているが、シリカ濾紙の主成分であるので、測定できたとは言えない。これらの元素のうち、 ^{137}Cs との相関が5%以下の水準で有意であったものは、Na、nss-S、Ni、Vの4元素であった。 ^{137}Cs とNa、nss-S、Ni、Vの濃度の時間的推移を図3に、 ^{137}Cs とNa、nss-S、Ni、Vの散布図を図4に示す。 ^{137}Cs と天然の放射性同位元素の ^{210}Pb と ^7Be との相関関係ははっきりしなかった。 ^{137}Cs と ^{134}Cs の放射能濃度は、2011年3月に半減期補正すると、いずれも、誤差の程度しか違いがなく、事故由来以外のものが多く含まれているよう

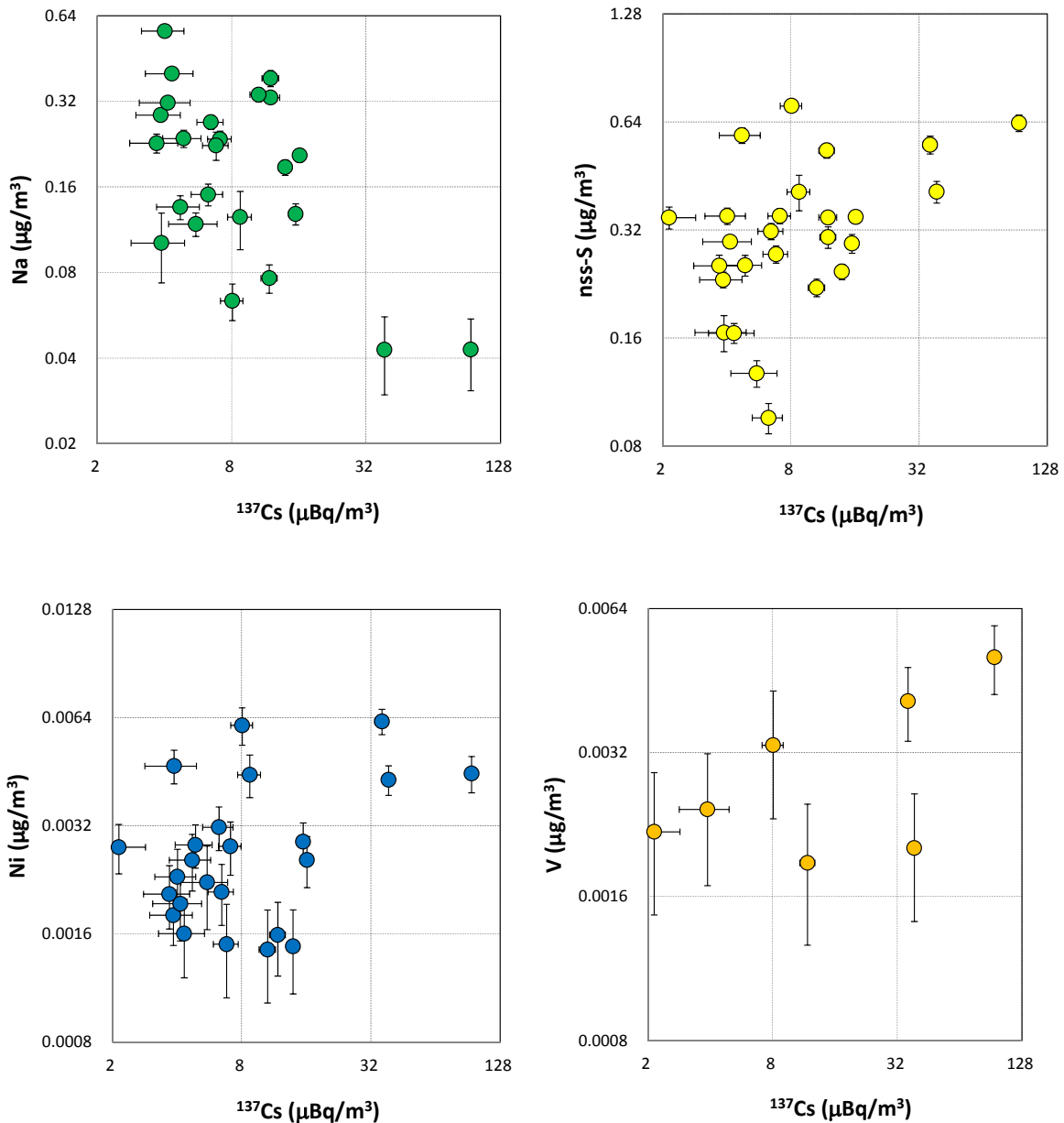


図4. ^{137}Cs とNa、nss-S、Ni、Vの散布図。 ^{137}Cs とNaは負の相関であり、 ^{137}Cs とnss-S、Ni、Vとは正の相関である。

な結果は得られなかった。

流跡線解析では、参考文献³⁾同様、福島第一原子力発電所上空を經由した大気は少なく、放射性セシウムが飛来した期間では、陸域を長く經由するものが多かった。

3.2 全国の蘚苔類

2014年4月から、2015年5月にかけて採集した蘚苔類の放射能濃度の地理的分布を図5に示す。愛知県以西では

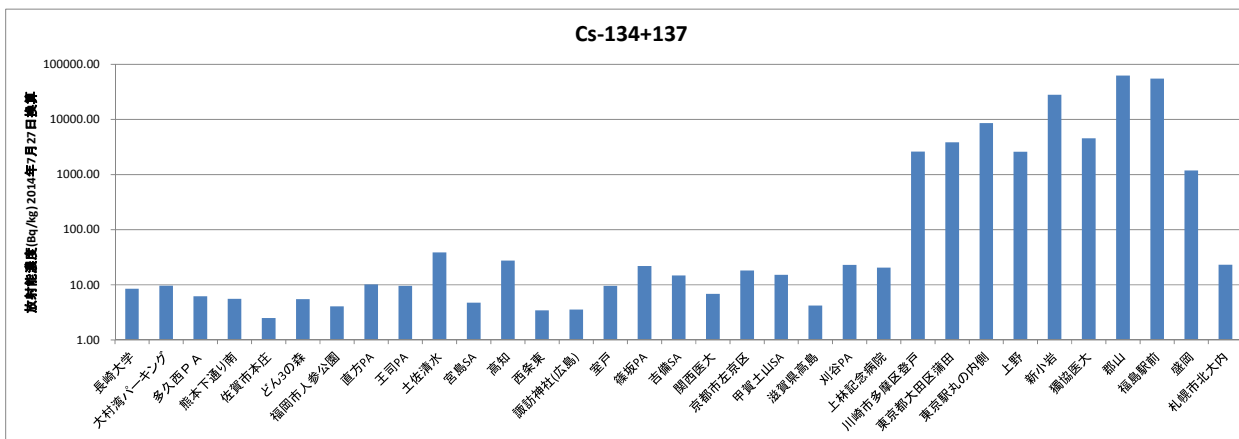
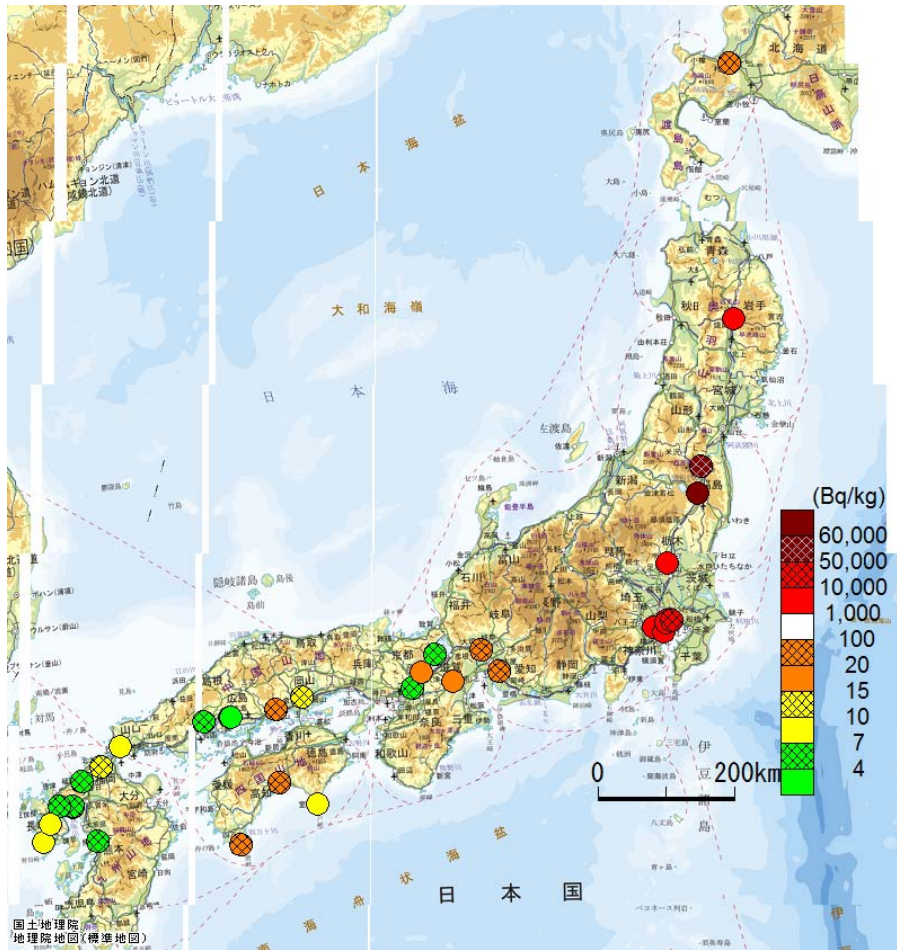


図5. 全国の蘚苔類に含まれる放射性セシウムの濃度分布。2014年7月27日換算の¹³⁴Csと¹³⁷Csの和を示している。

100 Bq/kg未満であった。高知県土佐清水市のものは、 ^{137}Cs の割合が大きく、福島第一原子力発電所事故由来以外のものが多いと考えられるが、それ以外では、そのような例はなく、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の割合は福島第一原発事故由来と仮定しても説明できる範囲のものであった。長崎市、札幌市の試料にも ^{134}Cs が検出された。

4 考察

^{134}Cs と ^{137}Cs の割合から、エアロゾル中の放射性セシウム的大部分が福島第一原発事故由来であると考えられることと、大気の流れ線解析によればエアロゾルを運んできた大気の多くが当該原発上空を経由していないことから、これらの放射性セシウムは陸域に堆積したものの再浮遊によると推測される。エアロゾルに含まれるナトリウムの大部分が海塩由来であるとするれば、陸域を長く経由してきた大気に含まれるエアロゾルにはナトリウムの濃度が低いと考えられ、放射性セシウムとナトリウムの濃度が逆相関を示すことは、放射性セシウムが地上からの再浮遊によってもたらされたとする推測と符合する。放射性セシウムと有意な正の相関を示したものはイオウとニッケル、バナジウムであった。イオウが化石燃料の燃焼によって大気中に排出されていることはよく知られている。ニッケルの大気中への排出の多くは熱源あるいは発電のための石炭の燃焼、廃棄物や下水汚泥の焼却、ニッケルの採鉱と初期の生産、スチール製造、電気メッキ、その他セメント製造などによるものであり、バナジウムは化石燃料の燃焼によるものである⁵⁾。これらはいずれも陸域が発生源であると考えられる。日本全国の蘚苔類から福島第一原発事故由来の放射性セシウムが広範囲に検出されることは、再浮遊のもととなる放射性セシウムが日本全国の地表に広範囲に存在していることを示している。朝鮮半島の蘚苔類の測定はできていないが、主として朝鮮半島を経由してきた大気中のエアロゾルにも同様の放射性セシウムが検出されることから、朝鮮半島の蘚苔類にも同様の放射性セシウムが含まれるものとみられる。

日本全国の蘚苔類の汚染は、長崎や札幌などの遠隔値でも数ベクレル/kg以上となっている。当該事故で大気中に飛散した放射性セシウムは原子炉内にあったものの1%にも満たないとされている⁴⁾から、この大部分が大気中に飛散するような事故が起こった場合には、日本全国の蘚苔類は数百ベクレル/kgを超える汚染となると考えられる。このことは、大規模な原発事故が発生すれば、日本全国の農作物に出荷制限をかけなければならないような汚染が生じる可能性があることを示している。

原発事故による放射能汚染は再浮遊によっても広がっていることがほぼ確実となったが、全体の汚染に関してどの程度寄与しているかはわからない。エアロゾル中の放射性セシウムの測定は容易であり、現在でも検出可能であるから、硫酸化物や微小粒子状物質について行われているように⁵⁾全国規模で日常的に実施し、有意なデータを公表することは技術的には可能である。そうすれば、全体的な検討が可能になり、今後起こりうる事故の際にも有効な情報となるだろう。

参考文献

- 1) Yuan J, Zeng Z, Takatsuji T(2012) Radioactivity of the aerosol collected in Nagasaki City due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. Proceedings of the 17th Hiroshima International Symposium - Lessons from unhappy events in the history of nuclear power development, 78-85 (<http://home.hiroshima-u.ac.jp/heiwa/Pub/E28/e28.pdf>)
- 2) Shizuma (2011), Measurement results of radioactive materials in air on Kagamiyama, Higashihiroshima City (in Higashihiroshima Campus, Hiroshima University) http://www.hiroshima-u.ac.jp/top/news_events/2010nendo/tohokujishin/sokuteikekka/
- 3) 袁 軍、世良耕一郎、高辻俊宏 (2015)大規模原子力事故時の遠隔地における放射線被ばくへの対処—長崎に飛来した福島第一原子力発電所の放射性物質からの推測—、日本衛生学会誌、70、149-160
- 4) 原子力安全・保安院. 福島第一原子力発電所1～3号機の原子炉停止時の放射性物質(ヨウ素131、セシウム137)の量について、福島1F1～3号機の原子炉停止時の放射性物質の量について、地震被害情報(第93報)(4月14日15時00分現在)及び現地モニタリング情報、経済産業省、2011
- 5) そらまめ君 環境省大気汚染物質広域監視システム、<http://soramame.taiki.go.jp/>、2015年6月12日閲覧

Radioactive materials from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, natural radioactive materials and stable elements in aerosols in the atmosphere of Nagasaki

T. Takatsuji¹, J. Yuan¹ and K. Sera²

¹Graduate School of Fisheries Science and Environmental Studies, Nagasaki University
1-14 Bunkyo-machi, Nagasaki 852-8521, Japan

²Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

^{134,137}Cs due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident were repeatedly detected in aerosols in the atmosphere of Nagasaki, over 1,000 km distant from the power plant, between March 2011 and December 2014. Air trajectory analysis showed a direct trajectory from the nuclear power plant to Nagasaki at the first arrival of ^{134,137}Cs. However, the direct trajectories were rarely shown at the subsequent arrivals. Alternatively, many trajectories mainly passed through land areas including Korean Peninsula when the concentrations of ¹³⁷Cs were high.

We now have measured concentrations of stable elements in the aerosols with PIXE analysis and found negative correlation between ¹³⁷Cs and stable Na concentrations, and positive correlation between ¹³⁷Cs and S, Ni, V. Na is thought to be mainly due to sea salt in the aerosols. S, Ni and V are considered mainly emitted from the combustion of fossil fuels in land area. The results suggest that ^{134,137}Cs were re-floated from land surfaces distant from the nuclear power plants and transported to Nagasaki.

We collected mosses on road and open parking of many places in Japan. Almost samples contain measurable amount of ¹³⁷Cs and most of the samples contain measurable amount of ¹³⁴Cs including samples of Sapporo Hokkaido and Nagasaki, most distant places from the nuclear power plants in Japan. Therefore, it is clear that ^{134,137}Cs due to the accident spread over almost of Japan with more or less concentrations and re-floating of them is totally possible.