

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

原発事故により放出された大気中微粒子等のばく露評価とリスク評価
のための学際研究
(5-1501)

平成27年度～平成29年度

Interdisciplinary Study on Inhalation Exposure and Risk Assessment Focusing on Suspended Particles
Derived from the Nuclear Accident

〈研究代表機関〉
東京大学

〈研究分担機関〉
首都大学東京

国立研究開発法人 宇宙航空研究開発機構
一般社団法人 日本保健物理学会
国立研究開発法人 国立環境研究所

平成30年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発の方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた主な成果	
6. 研究成果の主な発表状況	
7. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 大気放出からばく露評価・リスク評価に至る総合解析手法の設計 （東京大学）	18
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-2 SPM計のろ紙分析による放射性核種比の再現 （首都大学東京）	37
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	
4. 結果及び考察	
5. 本研究により得られた成果	
6. 国際共同研究等の状況	
7. 研究成果の発表状況	
8. 引用文献	
II-3 初期被ばく評価の精緻化のための大気中放射性核種の時空間分布の再現 （国立研究開発法人 宇宙航空研究開発機構）	56
要旨	
1. はじめに	
2. 研究開発目的	
3. 研究開発方法	

4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

II-4 微粒子性状および短寿命核種の寄与を考慮した線量評価の精緻化 81

(一般社団法人 日本保健物理学会)

要旨

1. はじめに
2. 研究開発目的
3. 研究開発方法
4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

II-5 大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築 100

(国立研究開発法人 国立環境研究所)

要旨

1. はじめに
2. 研究開発目的
3. 研究開発方法
4. 結果及び考察
5. 本研究により得られた成果
6. 国際共同研究等の状況
7. 研究成果の発表状況
8. 引用文献

III. 英文Abstract 126

I. 成果の概要

課題名 5-1501 原発事故により放出された大気中微粒子等のばく露評価とリスク評価のための学際研究

課題代表者名 森口 祐一（東京大学 大学院工学系研究科 都市工学専攻 教授）

研究実施期間 平成27～29年度

累計予算額 106,002千円（うち平成29年度：35,501千円）

本研究のキーワード 放射性セシウム、放射性ヨウ素、浮遊粒子状物質、不溶性粒子、大気移流拡散沈着モデル、線量評価、内部被ばく

研究体制

- (1) 大気放出からばく露評価・リスク評価に至る総合解析手法の設計（東京大学）
- (2) SPM計のろ紙分析による放射性核種比の再現（首都大学東京）
- (3) 初期被ばく評価の精緻化のための大気中放射性核種の時空間分布の再現
（国立研究開発法人 宇宙航空研究開発機構）
- (4) 微粒子性状および短寿命核種の寄与を考慮した線量評価の精緻化
（一般社団法人日本保健物理学会）
- (5) 大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築（国立研究開発法人 国立環境研究所）

1. はじめに（研究背景等）

東北地方太平洋沖地震・津波に伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が環境中に放出された。事故による健康リスクについては、UNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）やWHO（世界保健機関）による評価が行われてきたが、事故後初期の実測データの不足から、初期被ばくによるリスクは不確実性が大きく、その改善が懸案課題として指摘されてきた。環境省に設置された「東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う住民の健康管理のあり方に関する専門家会議」の中間取りまとめ（平成26年12月）では、「Ⅲ 被ばく線量把握・評価」のうち、「③ 国による今後の調査研究の方向性」において、『事故初期の被ばく線量については、現在も複数の研究機関により今般の原発事故による被ばく線量の評価についての研究が行われていることから、今後さらに調査研究を推進し、特に高い被ばくを受けた可能性のある集団の把握に努めることが望ましい。』ことが示された。

これまで、事故後初期の放射性プルーム（汚染気塊）による汚染実態は、主に空間放射線量の推移や地表への沈着量分布から把握され、大気中の実試料の成分分析は限定的であったが、本研究グループが先行研究において実施してきた大気環境常時監視装置に残された浮遊粒子状物質（SPM）のろ紙の分析などにより、事故直後の大気微粒子中の放射性物質濃度の時空間分布に関する新たな科学的知見が得られつつある。

一方、事故後初期に大気から捕集された試料から、炉心溶融時に生成されたと見られる不溶性粒子が発見された。この粒子の性状は、従来の内部被ばくの線量評価で想定されていたものとは異なる性状を持ち、的確なばく露評価、リスク評価のためには、この不溶性粒子の問題も含め、事故に伴って大気中に放出された放射性物質の物理的・化学的性状や核種構成を考慮したリスク評価が急務である。

2. 研究開発目的

本研究では、こうした国内外からの要請や先行研究の進展を踏まえ、大気中での物質の移流・拡散現象の解明、大気中の微粒子等に含まれる成分の分析、放射性物質の性状を考慮した線量評価など、異なる専門分野の研究者の学際的な連携により、各分野の最新の知見を統合した被ばく線量評価手法を構築することによって、事故後初期に放出された物質の吸入に伴う健康リスクのより適正な評価に役立てることを目的とした。

とくに、事故後初期に採取された大気中微粒子試料に含まれる放射性核種の構成比と性状を解明する実験科学的手法と、環境への放出から人への影響に至る過程を記述する大気移流拡散沈着モデル、ばく露モデル、線量評価モデル等の数理工学的手法の組み合わせにより、初期被ばく線量の不確実性の低減のために求められる知見の集積を目指した。

3. 研究開発の方法

(1) 大気放出からばく露評価・リスク評価に至る総合解析手法の設計

1) 研究全体の枠組み設計

各サブテーマから得られる成果、研究協力者から得られる情報、及びこれら以外の文献情報等を組み合わせることで、大気拡散・ばく露評価の統合モデルとしてまとめあげるため、研究班の全体会合、個別のサブテーマに関する打ち合わせ会合を随時開催して研究の進捗状況の確認や最新の知見の共有を行うとともに、事故後初期に行われた空間線量測定や環境媒体中濃度に関する実測調査、核種の構成比や形態に関する研究論文、調査結果データなどの収集、整理を行った。

2) 横断的な研究協力体制の構築と不溶性セシウム粒子に焦点をあてた情報集約

本研究の担当機関以外の研究協力者の協力を得るため、主に当該機関への訪問によって具体的な協力内容を協議し、試料の提供依頼や、協力先における試料測定を実施した。

また、本課題と関連する研究課題に関する学際的・横断的な情報共有のため、毎年度、ワークショップを開催した。このほか、日本学術会議総合工学委員会原子力事故対応分科会原発事故による環境汚染調査に関する検討小委員会の活動に参画することで、本研究のみでは得ることが困難な情報の取得の機会とした。

3) 事故後初期の観測データとの相互比較および炉内事象との整合性の評価

サブテーマ2、3における大気中I-131濃度の時空間分布推計手法開発の進展を踏まえ、I-131濃度とCs-137濃度の比の空間分布に着目して、1)で収集した文献や調査データをもとに、事故後初期の大気中実測試料のほか、土壌などの大気以外の環境試料中の測定データや体内の測定データをもとにした摂取推計値も交えて、大気中のI-131/Cs-137比の時空間分布の整合性の検討を行った。また、I-131以外の短寿命核種濃度とCs-137濃度との比率を設定して空間線量率を推計し、原発周辺のモニタリングポストでの空間線量率の時間変動と比較することによって核種構成比の妥当性を検証した。さらに事故の進展(炉内事象)に関する情報と、核種比の変化や物理的・化学的性状の変化について考察した。

4) 他のサブテーマの成果も含めた総合的な考察

サブテーマ1自身の成果と他のサブテーマの成果をもとに、課題全体としての考察、残された課題をまとめた。

(2) SPM計のろ紙分析による放射性核種比の再現

1) 放射性ヨウ素の定量

本研究開始前の予備研究により、SPM計で使用されたテープろ紙から ^{129}I を分離・回収することが可能なこと、 ^{129}I 存在量をAMS法により測定できることを確認した。こうした結果を踏まえて、本研究では、まず、SPM計で使用されたテープろ紙に捕集された原発事故由来の ^{129}I を正確に定量するための基礎検討を行った。その後、福島県内を中心としてテープ状ろ紙に捕集されたSPM試料のルーチン的な分析を行った。これらのSPM試料は、先行研究で放射性セシウムを測定済みである。

^{129}I 濃度実測値から ^{131}I 濃度の推定に用いる $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比を得るために、事故当時に ^{131}I が定量された東京都産業技術研究センター(TIRI)、理化学研究所、旧川崎市公害研究所、ならびに首都大学東京が捕集した大気浮遊塵(APM)を分析した。これらの捕集面積は大きいので、直径10 mmまたは19 mmの円盤状に切断した小片を分析に用いた。

SPM試料中の ^{129}I の定量は次のように行った。SPM計で使用されたテープ状ろ紙に直径11 mmで捕集されたSPMの1部分(通常は1/4)をろ紙と共に切断し、まず、切断片中の ^{137}Cs をガンマ線スペクトロメトリにより定量した。また、切断の前後でイメージングプレートを用いてオートラジオグラフを取得した。次に、図(2)-1で示すとおり、切断片試料に既知量のヨウ素(^{127}I)担体を添加し、水酸化ナトリウムを用いてアルカリ融解し、ヨウ素を分離した。AMS測定のためにヨウ素をヨウ化銀沈殿として回収し、測定に供した。AMS測定は東京大学タンデム加速器研究施設にて実施した。 ^{137}Cs の測定と ^{129}I 測定のためのヨウ素の化学分離操作を本グループが行い、AMS法による ^{129}I の測定(ヨウ化銀沈殿作成を含む)を東京大学タンデム加速器研究施設に委託した。

2) 放射性セシウムの定量

テープ状ろ紙上に1時間毎に捕集されたSPMの捕集日時を同定後、SPMスポットを1つずつ切断し、 γ 線測定用試料を作成した。これを首都大学東京または日本原子力研究開発機構に設置されているゲルマニウム半導体検出器にて約1時間測定し、 ^{137}Cs と ^{134}Cs を定量した。定量のための試料と同サイズの $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 標準線源は自作した。なお、平成27年度は、試料の一部(2地点、307試料)の γ 線測定と放射性セシウムの定量を(財)日本分析センターに委託した。平成28年度末からは、自動試料交換機を利用した測定も行なった。

(3) 初期被ばく評価の精緻化のための大気中放射性核種の時空間分布の再現

1) 事故直後の大気中放射性核種の測定データの収集と解析

ア) 大気中放射性セシウムの時空間分布の作成

全国の自治体では、大気環境常時監視網でSPMの質量濃度を多数の地点で測定している。サブテーマ(2)の先行研究の成果としてデータ集論文¹⁾で公開した99地点のCs-137濃度を解析するとともに、1時間毎に空間分布図を作成した。その後、福島県から、第一原発から20km圏内の2地点(双葉と楢葉)について、大震災後も稼働していたSPM計の使用済みテープろ紙が提供された。慎重に検討した結果、正常に採取されていたと判断し、これら2地点のSPMろ紙を分析して、解析を行った。これらのデータは、モデルの検証用データとして、サブテーマ5に提供した。

イ) 既存のデータ解析による事故直後のプルーム中のヨウ素131とセシウム137の解析

JAEA-NSRI(日本原子力研究開発機構原子力科学研究所)等のいくつかの機関が原発事故直後に独自に大気中の放射性物質を採取・測定したデータが公開されており、そのデータ解析を行った。これらのデータは、一部を除き採取時間が1時間前後と短時間であり、1時間毎に連続採取されたSPMテープろ紙との定量的な比較が可能である。I-131は気体状と粒子状とが存在するが、気体状と粒子状を別々に分析した機関は、NSRIとJCAC(日本分析センター)だけであった。

2) I-129濃度を用いた大気中I-131濃度の時空間分布の構築手法の開発

まず、テープろ紙の長期保管中の放射性ヨウ素の揮散による損失を考慮して、I-129(a)濃度(aは粒子状を意味する)を補正した。次に、サブテーマ2の結果をもとに、I-129(a)濃度からI-131(a)濃度を推定する手法を決定した。さらに、1)イ)の解析結果を用いて、ガス状ヨウ素I-131(g)を含むI-131(a+g)濃度(a+gは粒子状とガス状の合計)を推定する手法を新たに開発した。これらを用いて、SPM地点でのI-131(a+g)濃度を推定し、その時系列データを作成した。I-131(a)濃度とI-131(g)濃度との関係についても推定し、既往の知見と比較検討した。

3) 複数の大気輸送モデルによるシミュレーション結果の比較検討

大気中セシウム137(Cs-137)の濃度分布の再現性向上を目指し、東京大学大気海洋研究所、国立環境研究所と共同で開発を進めている領域版NICAM(Diamond-NICAM²⁾)を中心として、大気移流拡散沈着モデル(以下、ATDMと)の高精度化を行ってきた。NICAMはモデルの気象場を直接計算することが可能であるが、気象場の不確実性を軽減するために、ナッジング手法を取り入れた。

(4) 微粒子性状および短寿命核種の寄与を考慮した線量評価の精緻化

1) 不溶性の粒子に適した体内動態モデル

ICRPから公表されている最新のモデル(呼吸気道モデル:ICRP Publication 130、胃腸管モデル:Publication 137)をもとに検討を行った。従来のICRPモデルでは、血液への溶解のしやすさをFast、Moderate、Slowという3段階に分けていた。粒子が不溶性の場合には、ICRPの定義するSlowよりさらに血液に吸収されにくいと考えら

れる。動物実験からの知見も考慮して、ICRPモデルに準じながらも血液への移行は全くあるいはほとんど生じないとした体内動態モデルを検討した。

2) 少数の粒子吸入に適した線量評価モデル

ICRPのモデルでは、粒子径が対数正規分布している多数の粒子を吸入したときの動態を想定しているが、環境中から発見されている不溶性のセシウム微粒子は、粒子1個あたりの比放射能が高く、少数の粒子を吸入しただけでも被ばくを与える可能性も考えられる。そのため、1つずつの粒子の吸入からその後の体内動態までをシミュレーションで追跡し、1個の粒子を吸入したときの実効線量や等価線量の確率密度分布を評価するモデルを開発した。

3) 開発したモデルの妥当性の検証

開発したモデルの妥当性検証の方法として、ICRPモデルによる線量係数との比較および作業者の体内残留セシウムのデータとの比較を行った。

4) 不溶性微粒子を吸入した際の内部被ばく線量評価

モデルの妥当性を確認した後、各種の条件設定を行って、1個の粒子を吸入した際に取りうる預託実効線量、肺等価線量（肺吸収線量）の範囲を評価した。

5) 不溶性微粒子の近傍の局所線量評価

比放射能の大きい不溶性微粒子が体内の同じ場所に長時間付着した場合に、何等かの確定的影響が起こりうるのかどうかを検討するため、放射線の挙動を計算する汎用のシミュレーションコードPHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) を用いて、微粒子近傍の組織に与える局所的線量の評価を行った。

6) 事故初期における短半減期核種による内部被ばくの推計の向上のための方策

事故初期における短半減期核種による内部被ばくでは、放射性ヨウ素によるものとそれ以外の核種によるものがある。当時の内部被ばくを評価する手がかりとして、事故直後の大気浮遊じんへのサンプリングによるデータがあり、現在でも原子力規制庁のホームページ等で公開されているが、放射平衡が成り立っているはずのI-132とTe-132の濃度に関して減衰補正の方法に起因すると考えられる不自然な点がある。それに加えて当時の高バックグラウンド条件下で得られたガンマ線スペクトルの解釈にも課題があると考えられることから、PHITSを用いたシミュレーションによって検証を試みた。

(5) 大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築

1) 大気拡散・ばく露評価統合モデルによる呼吸由来の初期被ばく線量推計手法の概要

SPMろ紙の分析によって得られた事故直後の大気中の粒子状放射性物質濃度データ（サブテーマ2、3）を用いてATDMを検証・改良し、このATDMで計算された時空間濃度データを用いて、① Cs-137計算濃度をもとにサブテーマ3によるI-131/Cs-137比とI-131のガス粒子比を使って推計、② I-131計算濃度を直接使用、の2つの方法によりI-131濃度を推計した。次に、I-131濃度計算結果とばく露評価モデルを用いて、呼吸由来の初期被ばく線量を3つの視点から推計した。

2) 大気輸送沈着モデルの検証・精緻化

2つの領域スケール大気輸送沈着モデル（WRF/CMAQとNICAM）を基に、サブテーマ2、3によって得られたSPM自動測定器のテープろ紙の分析結果を用いた大気シミュレーションの検証・精緻化を進めた。いずれの計算においても水平空間解像度は3kmに設定し、最新のソースタームの一つであるKatataらの成果³⁾、及び地上気象観測データに同化して求められた気象解析データ⁴⁾を入力データとして利用した。

また、WRF/CMAQでは湿性沈着モジュール、ソースターム、気象解析データに対する感度実験を実施して、シミュレーションによる再現性の不確実性を評価した。また、WRF/CMAQではI-131の大気濃度も合わせて計算した。I-131のガス粒子変換が擬一次反応によって進むと仮定して、変換速度に対する感度実験も評価した。

3) ばく露評価モデルによる甲状腺等価線量推計

ア) ばく露評価モデル

ATDMによるCs-137濃度およびI-131の1時間値（Bq/m³/h）をもとに、福島県内におけるI-131の吸引による甲状腺等価線量（Thyroid equivalent dose）を試算した。ATDMには、CMAQとNICAMの2種類を使用した。甲状腺等価線量の推計方法を図1に示す。

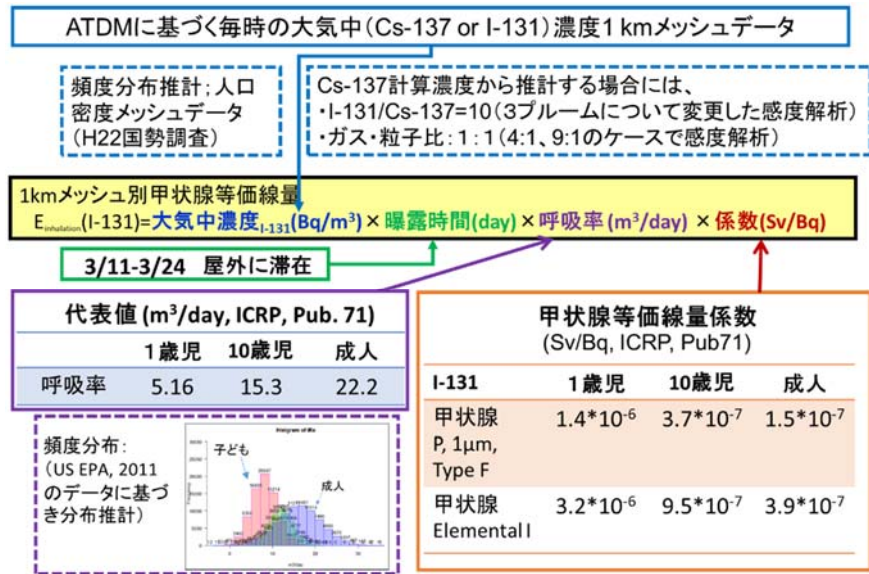


図1 I-131の甲状腺等価線量推計手法の概要

イ) 甲状腺等価線量推計

本研究では、甲状腺等価線量を以下の3つの評価ケースで推計した。

① SPM観測地点における推計

SPMのCs-137濃度の実測値とI/Cs比に基づく甲状腺等価線量と、ATDMIによるCs-137濃度再現結果とI/Cs比に基づく甲状腺等価線量を比較するため、101地点のSPM観測局(同じ3次メッシュ)における日別の線量評価を行った。

② 市町村内の確率論的分布推計

福島県内について、市町村ごとに甲状腺等価線量の確率分布推計を行った。得られた確率分布を、いわき市・川俣町・飯舘村における甲状腺被ばく線量の実測値⁵⁾、およびUNSCEARのATDM⁶⁾に基づく甲状腺等価線量の分布推計と比較した。

③ 避難シナリオごとの推計

放射線医学総合研究所が設定した18避難シナリオの行動場所、移動時間に基づいた甲状腺等価線量を推計した。この推計結果をWSPEEDIⅡに基づく推計結果⁷⁾、UNSCEARの結果⁸⁾と比較するとともに、避難による回避線量を試算した。また、18シナリオ以外の避難経路と避難開始時間等に対応できるようにするため、任意の避難パターンにおける甲状腺等価線量を推計するツールを開発した。

4) 不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布と被ばく線量の推計方法

不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布を推計するために、その放出期間を仮定した上で、2)のATDMを用いた大気輸送・沈着シミュレーションを実施した。更に、3)の内部被ばく評価モデルを用いて、不溶性粒子の吸入による肺等価線量を地域別に試算した。また、ATDMIによる不溶性粒子の大気濃度計算結果をもとに、3)の市町村内の確率論的分布推計手法を用いて、福島県内では市町村別、関東地域では地域別(北関東6地域、南関東10地域)に肺等価線量の確率密度分布を推計した。

4. 結果及び考察

(1) 大気放出からばく露評価・リスク評価に至る総合解析手法の設計

1) 研究全体の枠組み設計

本研究の提案時点で作成した初期被ばく線量推計と環境モニタリングデータ・拡散モデルとの関係図と本研究課題の各サブテーマと外部機関との研究協力の関係図とを統合し、さらに事故直後の実測データの反映について加筆することによって研究全体の枠組みを設計した。

2) 横断的な研究協力体制の構築と不溶性セシウム粒子に焦点をあてた情報集約

横断的な情報共有のため、平成28年度、29年度は不溶性セシウム含有粒子に焦点をあてた「分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会」を開催し、炉内事象から拡散・沈着、環境中の核種測定、被ばく線量評価に至る知見の収集と共有を図った。不溶性セシウムの検出状況を表1にまとめて示す。

表1 不溶性セシウム粒子検出の媒体、地域、報告者

媒体	地域	タイプ・形状	報告者、報告資料、報告年
大気	茨城県つくば市	A 球状	気象研Adachiら ¹⁾ (2013) 東京理科大Abeら ²⁾ (2014)
	関東広域	A 球状	理科大・気象研・推進費5-1501グループ ¹²⁾ (2017)、本報告(2018)
	福島県中部	A 球状	
	東京都内	A 球状	九州大Imotoら ⁶⁾ (2016) 九州大Furukiら ⁷⁾ , Imotoら ⁸⁾ (2017)
土壌	1F近傍	A 球状・非球状	九州大Furukiら ⁷⁾ , Imotoら ⁸⁾ (2017)
地表	福島県内	A 球状	農環研Yamaguchi ³⁾ ら・東大Kogureら ⁵⁾ (2016)、Yamaguchiら ¹⁶⁾ (2018)
土壌・塵	1F北西約20km	A 球状・非球状	筑波大→JAEA Satouら ⁴⁾ (2016) Satouら ¹⁵⁾ (2018)
	1F近傍	A・B 球状・非球状	
土壌	1F北側15km圏	B 非球状	理科大小野ら ⁹⁾ (2017)
	北西15km以遠	A 球状	
室内塵	1F近傍	A 非球状	東大Higaki・東北大Yoshidaら ¹¹⁾ (2017)
河川	福島県口太川	A 球状	東大Miuraら ¹⁵⁾ (2018)

3) 事故後初期の観測データとの相互比較

I-131/Cs-137比に着目して、地表沈着量、人体の測定からの摂取量比の推計値、ATDMによる推計値の相互比較を行い、UNSCEAR報告でこの比が高いと指摘された浜通り南部(South Trace)については、浜通り南部を16日午前中に通過したブルームについての解析の優先度が高いと判断した。I-131以外の短寿命核種を含む核種構成比を想定した空間線量率の推計値と近傍のモニタリングポストでの線量率との比較や、Te-132/Cs-137比の解析からも、このブルームの核種構成比が他と異なることが確認された。なお、I-131/Cs-137比について、人体の測定からの摂取推定値と環境中での測定値を比較する際には、摂取量推定で仮定されたヨウ素の物理化学的性状および半減期補正の条件を揃えることが重要である。

4) 他のサブテーマの成果も含めた総合的な考察

本研究課題の総括として、各サブテーマから得られた知見を統合し、被ばく線量が高かった可能性のある集団を同定するうえで重要なブルームの通過時期・地域と、それらの不確実性の要因を表2にまとめた。

表2 高い被ばくを受けた可能性のある日時・地域、不確実性の程度・要因

対象地域		ブルーム到達日 ブルーム番号								
		日 2011年3月)								
		12-13	15		16	18	19	20-21	21	
		P1	P2	P3	P4	P5	P6	P8	P9	P9'
福島県 浜通り	原発北	12日夕方～ 13日午前		午後		午後	昼頃	20日午後～ 21日午前		
	原発北西			午後						
	原発南西		午前		未明、昼頃					
	原発南		午前		未明、昼頃			20日朝	未明	朝～午後
福島県 中通り				午後				20日午後～ 21日午前		
関東	茨城・千葉北西部		午前						朝	
	茨城南東・千葉北東部				朝、午後					
	栃木・群馬・埼玉		午後							
不確実性 の主因	主要な問題・課題	ブルームを再現できない	原発近傍の再現性、山岳域での湿性沈着計算に課題	左記に加えて、原発北西方向の湿性沈着計算に大きな課題	原発北西方向への輸送の再現が困難、ソースタームの不確実性が大きい	ブルームを再現できない、ソースタームの不確実性が大きい	-		ブルームを再現できず、関東の高濃度を過小評価、浜通り南部では過大評価	
	気流拡散場	○			○	○			○	
	ソースターム	○			○	○				
	湿性沈着(降水を含む)		○	○	○				○	
	I/C s比、I存在形態	○ (I/Cs比が大)			○ (I/Cs比が大)					○ (I/Cs比が大)

(2) SPM計のろ紙分析による放射性核種比の再現

1) 放射性ヨウ素の定量

正確に ^{129}I を定量するために、担体ブランク、操作ブランク、ろ紙ブランクを評価した。操作ブランクはほとんど無視できることがわかり、主なブランクは担体ブランクで、使用したヨウ化カリウム試薬には約 1.3×10^{-9} Bq/mgIの濃度で ^{129}I が含まれていることがわかった。未使用の新品のろ紙に含まれる ^{129}I は無視できる量であったが、SPM計で使用されたろ紙のSPMの捕集されていない部分には、 ^{137}Cs は検出限界以下にもかかわらず無視しえない量の ^{129}I が検出された。特にガラス繊維製ろ紙で顕著であり、濃度の低い試料では補正が必要であることがわかった。

SPM計ではSPMはろ紙上に直径11 mmの円盤状で捕集される。 ^{129}I の定量には、その一部(通常1/4)を切断して分析に用いる。そのため、大気中濃度を知るには、分析に使用した部分の全体に対する割合が必要である。この割合は、試料を切断後、ガンマ線を測定し、 ^{137}Cs 放射能の切断前の全体に対する割合で算出できる。この方法では ^{137}Cs と ^{129}I が捕集面内に均一に捕集されていることが前提となるが、TIRIのAPM試料を利用してそれぞれの核種の分布の均一性を調べた。1枚のろ紙(90mmφ)から面積既知(10mmφおよび19mmφ)の複数の小片を切断し、オートラジオグラフを撮影した後、 ^{137}Cs と ^{129}I を定量した。オートラジオグラフでの観察により、放射性核種は常に均一に分布しているのではなく、多くのろ紙で粒子状のものが点在することがわかった。一枚のろ紙からの複数の切断片を比較すると、粒子状の物が多いほど ^{137}Cs を多く含むが、 ^{129}I はどれにもほぼ一定量含まれていることがわかった。また、オートラジオグラフで点状のものが観察されない場合は、どの切断片にも ^{137}Cs と ^{129}I はほぼ同量含まれることがわかった。以上より、 ^{129}I はTSP捕集面内にほぼ均一に分布しているが、 ^{137}Cs は均一ではなく、粒子状の数に依存することがわかった。SPMのろ紙の分析に際しては、あらかじめオートラジオグラフを得て、 ^{137}Cs が過剰または過小に分布している部分を切断しないようにした。

TIRI、理研、旧川崎市公害研、首都大で捕集されたAPMを分析し、当時定量された ^{131}I 濃度(2011年3月11日に減衰補正した値)と ^{129}I 濃度の相関を調べた。 ^{131}I と ^{129}I は3桁の濃度範囲にわたって良い相関を示したことから、事故から6年たった後でも、十分当時の ^{129}I を定量できることがわかった。得られた $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 放射能比は、つくば市内で捕集したTSPの分析により得た値と良く一致したが、土壌や降下物の分析により得られた比よりは大きかった。ORIGENコードによる燃料棒内の放射性核種評価値は、土壌での比と良く一致しており、APMでの比が大きくなるのは、ろ紙の保管中に捕集された ^{129}I の20~30%が揮散した結果によると結論した。

福島県内のSPM局を中心に、42局でのSPMテープ状ろ紙を用いて、 ^{137}Cs 濃度がピークを示す時刻とその前後の時刻における大気中粒子状 ^{129}I 濃度を定量した。これより初めて放射性ヨウ素の時空間分布が明らかになった。 ^{129}I 濃度は、最大で約 1.4×10^{-3} Bq/m³であった。 ^{129}I 濃度の経時変化は基本的に ^{137}Cs 濃度の変化と同様で、 ^{137}Cs 濃度と ^{129}I 濃度のそれぞれのピーク時刻は一致した。しかし、福島県中通り地方の3月16日0時前後や3月21日12時前後、福島原発より北方地点での3月19日早朝や3月21日早朝など、顕著な ^{137}Cs 濃度ピークが観測されない時刻に、 ^{129}I 濃度ピークが観測された。 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比はブルームによって大きく変動した。3月15日や3月20-21日に到達したブルームでは 1×10^{-7} 以下であったが、先に述べた中通り地方の3月16日や3月21日午後では 10^{-6} 台に達した。さらに、原発の北方地点では 10^{-5} 台に達する時もあった。関東地方の3月22日から23日は、これ以前の日よりも $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が高かったが、浜通り地方の3月22日と23日も 10^{-6} 台と高かった。

2) 放射性セシウムの定量

自動SPM計で使用されたテープ状ろ紙を用いて、東日本の48地点における事故当時の放射性セシウム濃度を定量した。新たに回収された福島原発近傍の2局(双葉と楢葉)で使用されたろ紙の分析を詳細に行ない、これまで未発見であった放射性ブルームの存在を明らかにした。また、首都圏での放射性セシウムの拡散のより詳細な様子や、原発から300~450km遠方の地点への拡散の様子が明らかとなった。本研究により、測定対象日(2011年3月12~23日)のろ紙を提供していただいた自治体で最低1地点の測定を終えることができた。

(3) 初期被ばく評価の精緻化のための大気中放射性核種の時空間分布の再現

1) 事故直後の大気中放射性核種の測定データの収集と解析

ア) 事故直後の放射性セシウムの時空間分布

データ集論文¹⁾で公開済みのSPM測定局99地点について、1時間毎のCs-137濃度の空間分布図を作成した

ことで、いつ、どの地域に、どの程度の濃度が、どれだけの期間、測定されていたかが明らかになった。また、この時空間分布図に、気象庁の客観解析データの風向風速を重ね合わせることで、高濃度の放射性物質を含むプルームが、どのように輸送されたかが示された。新たに入手できた原発近傍の2地点(双葉と楢葉)のSPMろ紙の放射性セシウム測定データを解析して、これまで明らかにできた10個のプルーム(P1-P9, p2)に加えて、さらに9個のプルームが確認された。

イ) 既存のデータの解析による事故直後のプルーム中のI-131とCs-137の関係

Cs-137濃度とI-131(a+g)*濃度(*は、3月11日の原子炉緊急停止時に半減期補正した値を意味する)の比は、福島県と関東地方に関係なく、プルーム毎に3つのグループに大別された。Aグループは、3月15日、20日と21日午前中のプルームで、そのほとんどは、I-131(a+g)* / Cs-137は10に近く、西原⁹⁾が推計したインベントリ(格納容器内の存在量)の値に近かった。Bグループは、3月16日のプルームで、約70とAグループよりも比が大きく、3月21日午後以降のデータ(Cグループ)は約360と、A、Bグループに比べてさらに大きかった。

全放射性ヨウ素に占める粒子状ヨウ素の比も、3グループに大別された。Aグループでは平均して約0.5、Bグループでは平均0.3であった。Cグループでは平均0.4だったが、ばらつきが大きかった。原発から距離が遠い地点では、気体状とガス状は平衡に達していたと推測したが、放出時の気体状と粒子状の比は、実測や解析データがなく、これらの比を、放出時に当てはめることは不確実性が大きい。

2) I-129濃度を用いた大気中I-131濃度の時空間分布の構築手法の開発

ア) I-129濃度とCs-137濃度との関係

サブテーマ2から提供されたSPM地点のI-129濃度を用いて解析するに際して、テープろ紙の長期保存による損失を考慮して、実測されたI-129(a)濃度の約1.4倍した値を、I-129濃度データとして用いた。

福島第一原発の近傍のSPM局における、2011年3月12-23日の主なプルーム中のCs-137濃度とI-129(a)濃度との関係を、西原⁹⁾によるインベントリのI-129(a+g) / Cs-137比(1, 2, 3号機の平均値で 3.0×10^{-7})と比較した結果、この比に近い値で変化するグループ(Y)と、相対的にI-129(a) >> Cs-137のグループ(X)、およびI-129(a) << Cs-137のグループ(Z)に大別された。原発の約3km北西に位置する双葉局では、ばらつきが大きく、特にZのグループが多かった。南方17kmに位置している楢葉局では、ばらつきが小さくなったが、Zのグループも存在した。一方、原発25km北方の原町局では、これら2地点よりばらつきが小さく、多くのデータがYのグループだった。約50km以上離れた中通りのSPM測定局では、ばらつきのあるデータは非常に少なかった。これらから、原発に近い地点ほど発生源の影響を直接受けたために、ばらつきが大きかったと推定される。なお、Zグループでは、I-131(a)*よりI-131(g)*濃度のほうがはるかに高く、まだ気体状と粒子状との間に平衡関係に達していないと推定され、またXグループでは、なんらかのプロセスで選択的にCs-137が除去されたかI-131(a)*が増加したためと推測される。

イ) I-131濃度の推定手法の構築

補正したI-129(a)濃度からI-131(a)*濃度への変換は、サブテーマ2のTIRIのろ紙の測定値をもとに、3月15日のプルーム(P2)での関係式($I-131(a)* = 3.68 \times 10^7 \times I-129(a)$)を用いた。次に、I-131(a)*濃度からI-131(a+g)*濃度の推定は、次の二つの方法で求めた。

- ① I-131(a+g)*濃度をSPM地点の実測のCs-137濃度から推定し、その後に、I-129(a)から求めたI-131(a)*濃度を求め、最後に $I-131(g)* = I-131(a+g)* - I-131(a)*$ を求める方法
- ② I-131(a)*とI-131(g)*との比を与えて、両者を合計してI-131(a+g)*を求める一方、実測のCs-137濃度から $I-131(a+g)* / Cs-137$ を求め、整合性があるかどうか確認する方法

ウ) 福島県の主なSPM地点でのI-131濃度の推定

原発北～北側に位置する双葉局および原町局に3月12日に到達したプルーム、南側に位置する楢葉局に3月15日に到達したプルームについて解析し、I-131濃度の経時変化を推定した。双葉局の最大値は3月12日14-15時の1号機ベント時で、約30万Bq/m³と推定された。楢葉局では、3月15、16日に高濃度となったほか、上記Cグループのプルームが到達した21日は、Cs-137濃度のわりにCs-131濃度が高かった。

エ) 中通り

3月15-16日と3月20-21日のデータを解析した結果、 $I-131(a+g)* / Cs-137 = 10$ 、 $I-131(a)* / I-131(a+g)* = 0.5$ として求めた結果と整合がとれていた。但し、この比は、3月16日の未明に急上昇した。降水や鉛直混合など、気象

条件の影響が考えられる。

3) 複数の大気輸送モデルによるシミュレーション結果の比較検討

従来、ATDMによる放射性物質の動態シミュレーションの結果は、主に航空機モニタリングによる土壌沈着量と比較検討されてきた。その後、本研究の先行研究によるSPMろ紙中の分析による大気中Cs-137濃度の実測値が明らかになってきたことから、サブテーマ5と協力して、複数の大気輸送モデル間の比較検討を行った。対象としたモデルは、国立環境研究所で開発されたWRF-CMAQ領域化学輸送モデルをベースにした放射性物質の大気輸送沈着モデル（以下、単にCMAQモデルと呼ぶ）及び、東京大学で開発されたNICAM-SPRINTARS化学輸送モデルをベースのモデル（以下、単にNICAMモデルと呼ぶ）である。

これまでの相互比較では成し得なかった詳細な比較を行うために、使用する気象データおよびCs-137放出量データを共通のものにし、モデル間相互比較を行った。例えば、3月15日の午前中に関東地方に到達したCs-137のプルームは、どちらもほぼ再現できたが、その到達時間は少し遅れた。現象を再現できるモデルは、日やプルームにより異なる場合があるため、性能の異なる二つのモデルを最適に組み合わせたマルチモデル・アンサンブル手法を導入することにより、シミュレーション結果の精度が一段と向上する見通しが得られた。

さらに、より新しいソースタームを用いて実測値との比較を行った。CMAQモデル、NICAMモデルに加えて、気象庁気象モデルに結合した化学輸送モデルであるNHM-Chem（以下、単にNHMモデルと呼ぶ）も用いた。3月15日から16日にかけてのピークでは、どのモデルでも概ねプルームの到来を再現できていたが、福島県中通りにあるSPM測定点では、Cs-137濃度絶対値の再現性にモデル間のばらつきがあった。また、関東平野にあるSPM測定点では、濃度絶対値の再現性のモデル間のばらつきよりも、濃度の時間変動（減衰）のモデル間のばらつきが顕著であった。こうしたモデル間のばらつきは、モデルで利用する気象データの不確実性、モデル解像度、解像度に合わせて表現されるモデル内部での気象場の不確実性、物質拡散のばらつき等に起因している。さらに、共通の気象データを利用してもモデル解像度の違いやモデル内部で表現される気象場のばらつきにより、実際に再現されるモデル気象場のばらつきが依然として存在することが明らかとなった。

単一モデルの中に存在する不確実性を特定するために、NICAMモデルのみを用いた複数の感度実験も行った。CMAQモデルの感度実験については、サブテーマ5で行った。

(4) 微粒子性状および短寿命核種の寄与を考慮した線量評価の精緻化

1) 不溶性の粒子・少数の粒子吸入に適した線量評価モデルの開発と検証

粒子状物質に関する知見をもとに、ICRPのモデルに加えてリンパへの移行経路を新たに加えた体内動態モデルを開発した。また、コンパートメントモデルにおいて、1個の粒子を吸入してからある時間 t が経過したときに当該コンパートメントに残っている確率をもとに、粒子の体内動態をシミュレーションした。呼吸によって取り込まれた粒子が呼吸気道のどの部位に沈着するかについても、確率論的に評価した。開発したモデルの検証のため、計算値とICRPモデルに基づいた計算値を比較したところ、吸入する粒子の数（シミュレーションのヒストリー数）を増やしていくと、両者の比はほぼ1に近づき、ヒストリー数を 10^7 とすると比は1.0となった。これにより、開発したモデルは妥当なものであると考えられた。また、作業者の体内残留セシウムのデータとの比較を行った。本研究で開発したモデルにおいて、吸入したセシウム中の不溶性セシウムの割合を適切に設定することによって、実測値とシミュレーションによる曲線が良く一致することが確認された。

2) 不溶性微粒子を吸入した際の内部被ばく線量評価比放射能の大きい単一の粒子を吸入した場合には沈着する部位、移動経路、残留時間の確率的な振る舞いによる不確かさによって、線量がゼロ（吸入しても即座に呼吸気として排出される）から、ICRPの線量係数（血液中に溶けにくい粒子、Type S）の最大で100倍程度までの非常に幅広い範囲の値を取りうることが示唆された。通常セシウムは、「血液中に溶けやすい粒子（Type F）」と仮定した線量係数が使われる。これはType Sの線量係数の約10倍である。したがって可能性は非常に低いものの、通常のセシウムの線量係数の約1,000倍の線量係数を取る確率もわずかながら存在する。しかしながら、摂取する粒子の個数が増加することによって、線量分布の幅（不確かさ）は縮小することがわかった。しかしながら、線量係数は少数の粒子の場合、不確かさが大きい、平均線量が1mGy程度以上になると不確かさは小さくなる。ICRPのタイプSの線量係数と比べて、肺預託吸収線量の算術平均値は1.6倍程度となることがわかった。シミュレーションを行う粒子の個数を増やしていくと、99パーセンタイル値（最大に近い値）と算術平均値との比も1に

近づいていくことがわかった。

3) 不溶性微粒子の近傍の局所線量評価

セシウムの粒子が長時間、1か所に付着したという条件で計算すると、不溶性微粒子のごく近傍(0.1mm以内程度)の領域は特に吸収線量が高くなる。数十Bqの放射能が同じ場所に留まり続けた場合には、呼吸気道表層部に沈着した微粒子近傍の標的細胞 1mm²の領域では0.1 Gy/day程度になる計算結果となった。但し、線量評価を行う領域(質量)を広く取るにつれて、線量は急激に減少するし、小さくすることで増加する。微粒子近傍の領域を対象とした線量評価が健康影響につながるかはその領域でのしきい線量と比較する必要があるが、過去の知見から非常に小さい領域で考えた場合には、通常影響が発生すると考えられている組織反応のしきい線量より、しきい線量が大きくなることが予想され、少数の細胞に限定した損傷であれば、がんリスク以外の影響の起きる可能性は低いといえる。それでも、多くの粒子数を吸入して多数の細胞が影響を受ける場合には、がんリスク以外の組織の障害につながるかどうかは今後動物実験などによる検証が必要と考えられた。

4) 事故初期における短半減期核種による内部被ばくの推計の向上のための方策

PHITSを用いたシミュレーション結果から、ゲルマニウム半導体検出器を用いて計測されたエネルギースペクトル形状は、バックグラウンド環境の放射性物質の量にも影響を受け、測定試料の放射性物質の量が少ないと高バックグラウンドにより低エネルギー側の試料由来のピークが消失しうることから、高バックグラウンド環境下での計測であることの考慮が必要であることが示された。

(5) 大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築

1) 大気輸送沈着モデルの検証・精緻化

本研究で使用した複数のATDMは、福島県や関東地方へ輸送された多くの放射性プルームを捉えているものの3月12～13日や3月19日にかけての原発北側へのプルームなど、正確には再現できていない事象もあった。また、Cs-137の期間積算濃度(3月12～23日)と日積算濃度は、ほとんどの地点で期間積算濃度を0.1～10倍の範囲で再現しており、日積算濃度に対しても多くの地点で0.1～10倍の範囲で再現していた。また、粒子状I-131濃度についてもCs-137と同程度の再現性があることを確認した。

WRF-CMAQを基に、大気シミュレーションの不確実性や再現性の支配要因を評価した結果、感度評価を実施した気象モデル・ソースターム・湿性沈着モジュールにおいて、いずれかの設定がもう一方よりも顕著に再現性が優れているということとはなかった。そのことを反映して、これら4つの感度実験に基づくアンサンブル平均は、比較的安定にいずれの事例も再現しており、不確実性低減の方法として有用であると示唆された。

2) ばく露評価モデルによる甲状腺等価線量推計

ア) SPM実測値に基づく推計結果、並びにATDMに基づく推計との比較

大気濃度測定地点の屋外に滞在し続けたと仮定した場合の甲状腺等価線量について、SPMろ紙のCs-137実測値をもとに、ベースケースとしてI-131/Cs-137比=10、I-131のガス粒子比=1:1を使って推計し、ATDMに基づく推計値と比較した。Cs-137実測値とI/Cs比をもとに推計した甲状腺等価線量は、双葉で約160 mSv、櫛葉で約70 mSv、原町で約20 mSvであり、中通りの3地点では1.3～2.4 mSv程度、北関東の3地点では1.1～2.5 mSv程度と推計された。日別に見ると、浜通り地区の原発北側では3/12と3/18、原発南側では3/15、中通りでは3/15と3/20-21、北関東では3/15-16と3/21の寄与が大きい。なお、Cs-137実測値とATDM計算値をもとにした3種類の推計線量を比較すると、最大で1オーダー程度異なる。

Cs-137濃度からI-131濃度をより実態に即して推計するためには、I-131/Cs-137比、ガス粒子比の設定が重要である。サブテーマ3の結果により、3/12午後の北方へのプルームや3/15夜～3/16早朝のプルームのI-131/Cs-137比はデフォルト値の10の数倍、3/21の午後以降に放出されたプルームのI-131/Cs-137比は100程度の可能性があり、ガス粒子比もプルーム、あるいは原発からの距離によって変化している可能性がある。そこで、Cs-137実測値を用いた推計において、これらの3つのプルームが到達する時間帯のI-131/Cs-137比とガス粒子比をベースケースから変えて感度解析を行った。浜通りの原発北側では、3/12の寄与が大きくなり、甲状腺等価線量が2倍程度になる可能性がある。浜通りの南側では、影響は小さい。一方、ガス粒子比による影響は大きくても+25%程度であった。

イ) 甲状腺被ばく線量実測値(小児甲状腺簡易測定調査)との比較

甲状腺の簡易測定に基づく等価線量の評価データが公表されているいわき市、川俣町、飯舘村について、ATDMに基づくこれら市町村の確率分布と実測に基づく線量分布を比較したところ、CMAQは全体的に実測より高めに、NICAMは低めに偏りのある分布となった。屋内退避による線量の低減を考慮すれば、川俣町、飯舘村では、CMAQは比較的近い分布といえる。また、UNSCEARのATDMに基づく確率分布と比較した結果、平均値で見ると、おおまかに $CMAQ_{I-131_based} \approx CMAQ_{Cs-137_based} > UNSCEAR_{ATDM} > NICAM_{Cs-137_based}$ の関係がみられた。CMAQとUNSCEAR_ATDMは比較的近い分布傾向であった。

ウ) 避難シナリオごとの甲状腺等価線量推計

18パターンの避難シナリオ別の甲状腺等価線量を推計し、WSPEEDI II に基づいて推計した先行研究の報告値と比較した。但し、先行研究は本研究と異なるソースタームを用いていることに注意を要する。比較結果ではモデル間の違いが大きく、NICAMは全体的に低く評価している。

以下、特徴的な結果が得られたシナリオについての考察を簡潔に記す。

① シナリオ1、11

これらのシナリオでは、CMAQ推計結果が非常に高い。計算結果では、甲状腺等価線量の大部分は、16日の0～9時（ピークは16日未明）に避難先の川内村で被ばくしている。可搬型モニタリングポストやモニタリングポストによる空間線量の時間変化から判断すると、プルームは通過してはいるが、CMAQはI-131濃度やCs-137濃度を過大評価している可能性が高い。過大評価の要因としては、降水による湿性沈着が過小なこと、気流場の再現性の問題が考えられる。なお、プルームは16日未明に通過したため、人々は屋内におり、屋外滞在を仮定した本推計値よりもさらに低いと考えられる。

② シナリオ4

双葉を12日夜に出発し、19日昼まで川俣に滞在したシナリオである。本研究のCMAQ、先行研究のWSPEEDI II の線量推計結果が70～85mSvで一致しているが、このシナリオでは、12日の避難前もしくは避難中に高濃度プルームに遭遇している可能性があるため、実際の避難とプルームのタイミングに関する精査を要する。

③ シナリオ9

南相馬市20 km圏内を15日昼前に出発し、伊達市役所に移動したシナリオである。このシナリオでは避難前の12日夕～夜に原発北側に流れた高濃度プルームの影響を大きく受けていると考えられる。原町におけるCs-137実測濃度に基づく線量推計値との比較結果から推測すると、ATDMによる本推計結果は過小評価している可能性がある。一方、WSPEEDI II の推計値は本推計値よりも更に低く、大幅に過小評価している可能性が高い。

エ) 甲状腺等価線量のまとめ

福島県内の市町村別、避難指示区域内外別に、甲状腺等価線量を推計した結果を、UNSCEAR(2013) による年間甲状腺等価線量の平均値、放射線医学総合研究所による推計値と比較して示した。また避難によって回避された線量の推計値についても、UNSCEARによる推計との比較を含めて提示した。

オ) 不確実性の評価

本研究における甲状腺等価線量の推計結果には、多くの不確実性が存在する。その主要な要因としては、①ソースターム、②モデル計算との比較に用いる濃度実測データの不確実性、③ATDMによる大気濃度の再現性、④Cs-137から推計する際のI-131/Cs-137比、I-131の形態の設定、⑤屋内・屋外の濃度比、⑥人の行動（滞在場所）データ、⑦吸入した後の体内動態などが考えられる。ここでは、③と④の不確実性を、ATDM濃度の再現性の検証並びにATDMと線量評価の感度解析によって評価した。また、高い被ばくを受けた可能性のある日時・地域について不確実性の要因を議論した。

3) 不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布と被ばく線量の推計

不溶性粒子の放出が想定された期間についてATDMによって計算されたCs-137濃度と全放出期間のCs-137濃度を実測濃度と比較した結果、ATDMは、不溶性粒子放出期間に放出されたと考えられるCs-137粒子濃度の時間変動の基本的特徴をほぼ再現していた。不溶性Cs粒子の放出時間帯、プルームの到達時間帯、到達した地域が解明されつつある中で、ATDMを用いた地域別の線量推計の試算が可能になりつつあることを示した。

5. 本研究により得られた主な成果

(1) 科学的意義

東電福島第一原発事故により大気中に放出された放射性物質の移流・拡散・沈着状況を解明する研究は国内外で多く行われてきたが、原発近傍での住民の被ばくの推計への適用に焦点をあてたものはほとんどなかった。本研究では、大気環境常時監視測定局のろ紙上の放射性物質測定という独自の強みを生かして得られる情報、事故後初期のさまざまな測定データ、大気移流拡散沈着モデルおよびばく露評価モデルの計算結果を組み合わせて総合的に解析することで、事故後初期の呼吸由来の内部被ばく線量を推計する手法を設計し、実際にこの方法による地域別の線量分布推計が可能であることを示した。

不確実性を考慮しながら、要素を組み合わせて目的とする結果を導く役割を担ったサブテーマ(1)の成果は、学際性、総合性を求められる環境科学研究の雛形としての意義があるものである。

サブテーマ(2)では、原発事故当時にSPM計のテープ状ろ紙に捕集された大気浮遊粒子中の原発事故由来のI-129の濃度を定量する手法を確立し、多数の地点での試料測定に適用した。これによりこれまで不明であった放射性ヨウ素の拡散の様子が明らかとなった。事故当時の大気中I-131濃度をI-129濃度からより正しく復元するための今後の課題を明らかにした。また、原発事故直後の大気中Cs-137濃度の東日本での1時間毎の空間分布が、各自治体により運営されている大気環境監視網で稼働している自動SPM計の使用済みテープ状ろ紙をGe検出器で測定することにより明らかになった。これらのデータは、福島原発からの放出率の推定、大気輸送・沈着モデルによるシミュレーション結果の不確実性を少なくするために、大きく貢献すると期待される。

サブテーマ(3)では、サブテーマ(2)で測定されたCs-137濃度の新たなデータをもとに、東北地方南部や関東地方を中心とした地域でのCs-137濃度の時空間分布を作成した。また、原発近傍のSPM地点の双葉と楢葉の新たなデータを解析して、これまでわからなかった原発近傍での放射性物質の動態を初めて明らかにするとともに、これまでに報告した10個のプルームを含む合計19個のプルームを明らかにした。また、サブテーマ(2)で測定されたSPMテープろ紙中の粒子状のI-129濃度とCs-137濃度との比が3つのグループに大別されることがわかり、Cs-137濃度だけではわからなかった大気中の放射性核種の複雑な挙動が、はじめて明らかになった。粒子状のI-129濃度から変換した粒子状I-131濃度と既存の公開されたI-131濃度から、SPM地点での気体状と粒子状のI-131濃度を推定する手法を初めて開発し、SPM地点でのI-131濃度を初めて推定した。さらに、これまでの大気汚染物質シミュレーションモデルの検証では、モデルと観測の差の要因を切り分けることができなかったが、本研究のように単一放出源であるCs-137の動態に着目することで、モデルの様々な過程に起因する誤差要因を解析することが可能となった。大気汚染物質シミュレーションに関する国内でモデル間相互比較が行われた例はごく限られていたが、本研究を通じて、Cs-137シミュレーションに関するモデル間相互比較を継続的に行うことが可能となり、得られた知見は大気汚染物質モデルコミュニティにとっても非常に重要なものである。

サブテーマ(4)では、多数の粒子を吸入することを前提として構築されていた従来の体内動態モデルに対して、1個の粒子を吸入した際の体内動態を確率論的に表現するモデルを開発した。このモデルを使用することによって、内部被ばく線量の確率密度分布(線量の取りうる幅)を評価することができた。吸入粒子数が1個の場合、線量分布の幅(不確かさ)は非常に大きいですが、吸入粒子数の増加に伴い、不確かさは減少することがわかった。

サブテーマ(5)では、サブテーマ(2)、(3)における大気濃度の実測データとその解析結果、大気移流拡散沈着モデルおよびばく露評価モデルの計算結果をもとに、複数の方法に基づき呼吸由来の甲状腺等価線量を新たに推計し、高い被ばくを受けた可能性のある日時・地域について、推計結果の不確実性を示した。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

平成28年度、平成29年度に開催した「分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会」の一部を参加した専門家の了解を得て関係行政機関に公開し、不溶性セシウム粒子の研究動向に関する最新の情報を提供した。平成29年5月に、福島県内、東京都内、仙台市内の3箇所で、SPMろ紙を提供いただいた地方自治体への経過報告を兼ねて、本研究課題の進捗状況および不溶性粒子に関する研究動向について、地方自治体向けの説明会を開催した。放射性物質で汚染された廃棄物の処理に対する国民からの疑問への対応のため、本課題のサブテーマ1による不溶性セシウム粒子に関する研究動向について、個別に情報提供した。事故後初期のモ

ニタリングデータに関して、スペクトル情報を用いた解析は住民の疑問に対応する際に有益であると考えられることから、平成29年度原子力災害影響調査等事業放射線健康管理・健康不安対策事業（放射線の健康影響に係る研究調査事業）において、自治体への住民の問い合わせに対して、本研究で得られた成果が活用されるとともに、研究者と一般の住民の間でのコミュニケーションが改善された。その対応の様子を第一回環境創造シンポジウムでのブース展示でデモにより示した。

<行政が活用することが見込まれる成果>

事故直後の実測データの不足から不確実性が大きいとされてきたI-131の呼吸摂取由来の内部被ばく量の推計手法・推計結果を提示したことは、放射線健康管理のための重要な知見であり、別途、放射線の健康影響に係る研究調査事業で実施されている住民の被ばく線量の包括的な把握のための調査研究で活用可能な知見を提供するものである。とくに、検討会中間とりまとめで言及されていた「高い被ばくを受けた可能性のある集団の把握」に大きく貢献するものである。

また、本課題はUNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）2017年白書にMajor Japanese research projects and programmesの一つとして記載されていたもので、本課題が計画に沿って進行し、所期の成果を挙げたことで、原発事故影響の科学的解明における国際貢献を果たすことができる。

市民の関心の高い不溶性粒子問題に関して、粒子の数としては少ないが、粒子1個あたりの比放射能の大きい不溶性セシウムを吸入したときの線量の取りうる幅とその線量の大きさを吸入する粒子数に応じて一般市民に提示することができる。事故初期に得られた環境モニタリングデータに関して、高バックグラウンド環境であることを考慮して解釈した結果を一般市民に提供することができると考えられる。

6. 研究成果の主な発表状況

(1) 主な誌上発表

<査読付き論文>

- 1) Nakajima T., Misawa S., Morino Y., Tsuruta H., Goto D., Uchida J., Takemura T., Ohara T., Oura Y., Ebihara M., Satoh M.:
Progress in Earth and Planetary Science 2017 4:2, DOI: 10.1186/s40645-017-0117-x, 2017
“Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident.”
- 2) Morino, Y., and Ohara, T.: Global Environmental Research, 20, 23-31, 2017
“Atmospheric modeling of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident.”
- 3) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、森口祐一、大原利眞、中島映至: Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2017-6, November 2017 R, 56-63 (2017). (発行月: 2017年11月)
「東電福島第一原子力発電所近傍の2地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」
- 4) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、森口祐一、大原利眞、中島映至
エアロゾル研究, 32巻4号, 244-254, 2017
「東電福島第一原子力発電所事故直後の東日本における放射性セシウムの時空間分布—大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析—」
- 5) Tsuruta, H., Oura, Y., Enihara, M., Moriguchi, Y., Ohara, T., Nakajima, T.
Geochemical Journal, Vol. 52 (No. 2), pp. 103-121, 2018
“Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011”

(2)主な口頭発表(学会等)

<課題全体、サブ1に関わるもの>

- 1) 森口祐一:第56回大気環境学会年会講演要旨集、110-111、早稲田大学、2015年9月15-17日、2015.「原発事故により放出された大気中微粒子等のばく露評価とリスク評価のための学際研究」
- 2) 森口祐一、鶴田治雄、海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、五藤大輔、高木麻衣、中山祥嗣、森野悠、大原利眞、中島映至:日本放射線影響学会第60回大会、京葉銀行文化プラザ(千葉市)、平成29年10月28日「I-129測定による事故後初期の大気中I-131濃度の再現と吸入被ばくの推計」
- 3) 森口祐一、鶴田治雄、海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、大原利眞、高木麻衣、森野悠、五藤大輔、中山祥嗣、中島映至:第19回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月13-15日「初期内部被ばく線量評価のため実測値・推計値の総合解析」
- 4) 森口祐一(2018):日本保健物理学会シンポジウム 福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて 一不溶性粒子と短半減期核種一、平成30年3月19日「福島事故後の不溶性粒子の検出の地域分布と拡散予測」

<主としてサブ1、2に関わるもの>

- 1) 小野崎晴佳、小野貴大、飯澤勇信、阿部善也、中井泉、足立光司、五十嵐康人、大浦泰嗣、海老原充、宮坂貴文、中村尚、鶴田治雄、森口祐一:日本地球惑星科学連合 連合大会(JpGU)2017年大会、平成29年5月25日、幕張メッセ「SPMテープ濾紙より分離された放射性エアロゾルの放射光X線複合分析による化学・物理的性状解明」
- 2) 小野崎晴佳、小野貴大、飯澤勇信、阿部善也、中井泉、足立光司、五十嵐康人、大浦泰嗣、海老原充、宮坂貴文、中村尚、鶴田治雄、森口祐一:第53回X線分析討論会、徳島大学、平成29年10月26日「放射光X線分析により明らかになった福島第一原発事故由来の放射性粒子の性状および飛散状況」

<主としてサブ2に関わるもの>

- 1) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、鶴田治雄、森口祐一、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之、山形武靖、永井尚生、関本俊:2016日本放射化学学会年会・第60回放射化学討論会(2016)「東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比」
- 2) 大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、鶴田治雄、中島映至、森口祐一、大原利眞、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之:2016日本放射化学学会年会・第60回放射化学討論会(2016)「東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料のオートラジオグラフと $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比」
- 3) 大浦泰嗣、鶴田治雄、海老原充、大原利眞、中島映至、森口祐一:第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、1、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析:(その1)放射性セシウムの定量」
- 4) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、鶴田治雄、森口祐一、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之:第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、2、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析:(その2)放射性ヨウ素(I-129)の定量」
- 5) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎裕之、鶴田治雄、森口祐一:第19回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月13-15日「大気浮遊粒子試料中のI-129/I-131比」
- 6) 大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、松崎浩之、鶴田治雄、森口祐一:第19回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月13-15日「自動SPM計でのテープろ紙の分析による大気中の福島原発事故由来 ^{129}I 濃度」

<主としてサブ3、2、1に関わるもの>

- 1) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至:第17回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、2016年3月8-10日、2016.「大気浮遊粒子状物質(SPM)自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定(その3):福島原発事故直後の大気中Cs-137高濃度現象とその気象学

的考察」

- 2) Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima (2016): European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2016, Vienna, April 22, 2016. “Comprehensive Retrieval of Spatio-temporal Variations in Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing Filter-tapes of Operational Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan”
- 3) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至 (2016): 日本気象学会 2016 年度春季大会講演要旨集、358、国立オリンピック記念青少年総合センター、2016 年 5 月 18-21 日。「大気環境常時測定局で使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後における東日本での大気中放射性セシウムの時空間分布(その2): 高濃度現象とその気象場の解析」
- 4) Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima (2016): The 26th Goldschmidt Conference, Yokohama, 26 Jun.-1 Jul, 2016.
“Comprehensive retrieval of spatio-temporal distribution of atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations”
- 5) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一・中島映至: 第 57 回大気環境学会年会、北海道大学工学部、平成 28 年 9 月 7-9 日
「SPMテープろ紙の分析による福島原発事故直後の大気中放射性セシウムの時空間分布(その2)東北地方への輸送過程」
- 6) 鶴田治雄、大浦泰嗣・海老原 充、大原利眞、森口祐一、中島映至 (2016): 第22回大気化学討論会、北海道大学工学部、2016年10月12-14日
「福島原発事故直後の大気中放射性ヨウ素の動態(その1)既存の公表データの解析からわかったこと」
- 7) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至 (2016): 第59回日本放射線影響学会ワークショップ「福島原発事故から5年、線量再評価の現状」、285、JMSアステールプラザ、2016年10月27-28日。
「事故後初期の大気浮遊粒子状物質中の放射性核種の測定と解析」
- 8) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至 (2016): 日本気象学会 2016 年度秋季大会講演要旨集、484、名古屋大学、平成 28 年 10 月 26-28 日。
「大気環境常時測定局で使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後における東日本での大気中放射性セシウムの時空間分布(その3): 関東地方での複雑な輸送過程の解明」
- 9) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至 (2017): 第 18 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 29 年 3 月 14-16 日。
「大気浮遊粒子状物質(SPM)自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定(その 4)東電福島第一原発近傍の 2 地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」
- 10) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一・司馬 薫・草間優子・荒井俊昭・松本伸弘・山田裕子・中島映至: 日本気象学会2017年度春季大会 講演予稿集、318、国立オリンピック記念青少年総合センター、平成29年5月28日
「福島原発事故直後における大気環境測定局のテープろ紙中の放射性核種分析データから明らかになったこと」
- 11) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、松崎浩之、森口祐一、大原利眞、中島映至: 第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、3、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日
「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析:(その 3) 放射性セシウムと放射性ヨウ素の大気中での動態」
- 12) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至: 福島原発事故直後の大気中放射性核種の動態、第57回大気環境学会年会 講演要旨集、152、兵庫医療大学 平成29年9月8日
- 13) 鶴田治雄、海老原充・大浦泰嗣・白井直樹、松崎浩之、森口祐一、大原利眞、中島映至 : 第 19 回環境放

射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 30 年 3 月 13-15 日

「福島第一原子力発電所事故初期の大気汚染監視網 SPM 測定地点における大気中 I-131 濃度の推定」

＜主としてサブ4に関わるもの＞

- 1) Ichiro Yamaguchi, Alex Malins: 第15回日本放射線安全管理学会(2016)
“Preliminary attempt to re-estimate the concentration of ^{132}I in the air considering ground depositions of radionuclides”
- 2) Ichiro Yamaguchi, Alex Malins: 12th Research meeting on PHITS(2016)
“Preliminary attempt to re-estimate the concentration of radioactive iodine-132 in the air.”
- 3) 反町篤行: 第 58 回大気環境学会年会・特別集会 5(2017)
「福島原発事故における内部被ばく調査 ―現状と課題―」
- 4) K. Manabe and M. Matsumoto: Joint ICRP-RERF-JHPS Workshop on Recent Progress in Radiation Dosimetry for Epidemiology and Radiological Protection (2017), “Modeling of Internal Dose from Insoluble Cesium”
- 5) 真辺健太郎: 日本保健物理学会シンポジウム I「福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて―不溶性粒子と短半減期核種―」(2018)
「不溶性粒子の吸入による内部被ばく線量の評価」
- 6) 山口一郎、Alex Malins: 日本保健物理学会シンポジウム I「福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて―不溶性粒子と短半減期核種―」(2018)
「短半減期の内部被ばく」

＜主としてサブ5に関わるもの＞

- 1) 森野悠、滝川雅之、中島映至、大気モデル相互比較研究チーム: 日本放射線影響学会第 59 回大会 (2016)
「大気モデル相互比較に基づく福島原発事故起源の Cs-137 の動態解析」
- 2) Morino, Y.: Ibaraki Univ.-IRSN joint symposium for environmental radioactivity studies on the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident (2016)
“Model inter-comparison study on atmospheric ^{137}Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident”
- 3) Ohara, T.: Ibaraki Univ.-IRSN joint symposium for environmental radioactivity studies on the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident (2016)
“Current status and future direction of atmospheric environmental research on the 1F accident”
- 4) 森野悠, 北山響, 滝川雅之, 中島映至, 速水洋, 永井晴康, 寺田宏明, 斉藤和雄, 新堀敏基, 梶野瑞王, 関山剛, Damien Didier, Anne Mathieu, 大原利真, 鶴田治雄, 海老原充, 大浦泰嗣, 柴田徳思: 日本気象学会 2017 年度春季大会 (2017)
「大気モデル相互比較に基づく福島原発事故起源の ^{137}Cs の動態解析」
- 5) 大原利真、高木麻衣、森野悠、五藤大輔、中山祥嗣、森口祐一、鶴田治雄: 第 19 回環境放射能研究会 (2018)
「大気拡散・ばく露評価統合モデルを用いた事故初期の経気道ばく露推計」

7. 研究者略歴

研究代表者

森口祐一

京都大学工学部卒業、国立環境研究所循環型社会・廃棄物研究センター長などを経て、現在、東京大学大学院工学系研究科・都市工学専攻・教授

研究分担者

1) 海老原 充

東京大学大学院理学系研究科修了、群馬大学工学部講師、東京都立大学理学部化学科助教授、首都大学東京大学院理工学研究科教授、特任教授等を経て、平成30年4月より早稲田大学教育・総合科学学術院・教授

2) 中島映至

東北大学理学部物理学卒業、東京大学大気海洋研究所教授などを経て、現在、国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構地球観測研究センター・センター長

3) 甲斐倫明

東京大学工学部卒業、日本原子力研究所研究員、東京大学大学院医学系研究科助手などを経て、現在、大分県立看護科学大学・教授、一般社団法人日本保健物理学会・代表理事

4) 大原利眞

北海道大学工学部卒業、静岡大学工学部教授などを経て、現在、国立研究開発法人国立環境研究所・企画部・フェロー

引用文献

- 1) Oura Y., Ebihara M., Tsuruta H., Nakajima T., Ohara T., Ishimoto M., Sawahata H., Katsumura Y. and . Nitta W.: A Database of Hourly Atmospheric Concentrations of Radiocesium (^{134}Cs and ^{137}Cs) in Suspended Particulate Matter Collected in March 2011 at 99 Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan, *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences* 15, 15–26 (2015).
- 2) Uchida J., Mori M., Hara M., Satoh M., Goto D., Kataoka T., Suzuki K., Nakajima T. (2017): Impact of lateral boundary errors on the simulation of clouds with a non-hydrostatic regional climate model, *Monthly Weather Review*, 145, 5059–5082, doi:10.1175/MWR-D-17-0158.1
- 3) Katata G., Chino M., Kobayashi T., Terada H., Ota M., Nagai H., Kajino M., Draxler R., Hort M.C., Malo A., Torii T., Sanada Y. (2015) Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 1029–1070.
- 4) Sekiyama T.T., Kajino M. & Kunii M (2017). The Impact of Surface Wind Data Assimilation on the Predictability of Near-Surface Plume Advection in the Case of the Fukushima Nuclear Accident. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 95, 447–454
- 5) Kim, E., Kurihara, O., Kunishima, N., Momose, T., Ishikawa, T., Akashi, M. (2016a) Internal thyroid doses to Fukushima residents – estimation and issues remaining, *Journal of Radiation Research*, 57, S1, i118–i126
- 6) United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) (2013) Levels of effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami, 2014, UNSCEAR 2013 Report Volume 1. Scientific Annex A. UNSCEAR_2013_Annex-A_Attach_C-9.
- 7) Kim, E., Tani, K., Kunishima, N., Kurihara, O., Sakai, K., Akashi, M. (2016b) Estimation of early internal doses to Fukushima residents after the nuclear disaster based on the atmospheric dispersion simulation, *Radiation Protection Dosimetry*, 171, 3, 398–404.
- 8) United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) (2013) Levels of effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami, 2014, UNSCEAR 2013 Report Volume 1. Scientific Annex A.
- 9) 西原健司, 山岸功, 安田健一郎, 石森健一郎, 田中究, 久野剛彦, 稲田聡, 後藤雄一: 福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出、*日本原子力学会論文誌*, 11, 13–19 (2012)

II. 成果の詳細

II-1 大気放出からばく露評価・リスク評価に至る総合解析手法の設計

東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻
研究協力者 派遣研究員
東京理科大学
気象研究所

森口祐一
鶴田治雄
中井泉・阿部善也
五十嵐康人・足立光司

平成27～29年度累計予算額：11,150千円（うち平成29年度：4,545千円）

〔要旨〕

本サブテーマでは、本研究課題を構成する各サブテーマから得られる成果、研究協力者から得られる情報、及びこれら以外の文献情報等を組み合わせることで、放射性物質の大気への放出からばく露評価・リスク評価に至るまでの総合解析手法を設計した。研究班内の会合、事故後初期の空間線量測定、環境中放射能の実測調査、核種構成比や形態に関する情報の収集・整理に加え、分野横断的なワークショップの開催によって情報共有を行った。特に、セシウム含有不溶性粒子（いわゆるセシウムボール）については、研究協力者の協力によるSPMろ紙の測定で関東地方の広範囲への拡散を明らかにするとともに、検出の報告について媒体、地域別にまとめた。本課題の中核をなすI-131の濃度の時空間分布に基づく被ばく線量の推計に関しては、I-131/Cs-137比に着目して、関連する情報を大気以外の媒体についても収集し、大気中I-131推計への活用可能性と課題について考察した。とくに、人体測定に基づくヨウ素セシウム比との比較および比較に際しての留意点を明らかにした。また、I-131以外の短寿命核種を含む核種構成比を想定した空間線量率の推計値と近傍のモニタリングポストでの線量率との比較やTe-132/Cs-137比の解析により、プルームによる短寿命核種の構成の相違について考察した。本研究課題の総括として、各サブテーマから得られた知見を統合し、被ばく線量が高かった可能性のある集団を同定するうえで重要なプルームの通過時期・地域と、それらの不確実性の要因をまとめた。

〔キーワード〕

総合解析、ヨウ素セシウム比、不溶性粒子、ばく露評価、空間線量率

1. はじめに

東北地方太平洋沖地震・津波に伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が環境中に放出された。事故による健康リスクについては、UNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）やWHO（世界保健機関）による評価が行われてきたが、事故後初期の実測データの不足から、初期被ばくによるリスクは不確実性が大きく、その改善が懸案課題として指摘されてきた。

これまで、事故後初期の放射性プルームによる汚染実態は、主に空間放射線量の推移や地表への沈着量分布から把握され、大気中の実試料の成分分析は限定的であったが、本研究グループが先行研究において実施してきた大気汚染常時監視装置に残された浮遊粒子状物質（SPM）のろ紙の分析などにより、事故直後の大気微粒子中の放射性物質濃度の時空間分布に関する新たな科学的知見が得られつつある。一方、事故後初期に大気から捕集された試料から、炉心熔融時に生成されたと見られる不溶性粒子が発見された。この粒子の性状は、従来の内部被ばくの線量評価で想定されていたものとは異なる性状を持ち、的確なばく露評価、リスク評価のためには、この不溶性粒子の問題も含め、事故に伴って大気中に放出された放射性物質の物理的・化学的性状や核種構成を考慮したリスク評価が急務である。

2. 研究開発目的

本研究では、こうした背景を踏まえ、大気中での物質の移流・拡散現象の解明、大気中の微粒子等に含まれる成分の分析、放射性物質の性状を考慮した線量評価など、異なる専門分野の研究者の学際的な

連携により、各分野の最新の知見を統合した被ばく線量評価手法を構築することによって、事故後初期に放出された物質の吸入に伴う健康リスクのより適正な評価に役立てることを課題全体の目的とした。とくに、事故後初期に採取された大気中微粒子試料に含まれる放射性核種の構成比と性状を解明する実験科学的手法と、環境への放出から人への影響に至る過程を記述する拡散モデル、ばく露モデル、線量評価モデル等の数理的手法の組み合わせにより、初期被ばく線量の不確実性の低減のために求められる知見の集積を目指した。

こうした学際的・総合的な研究の実施においては、プロジェクトの構成要素の相互関係を明らかにし、各構成要素から得られる成果を繋ぎ合わせて課題全体の目的達成に結び付けることが重要である。また、本課題への参画機関だけでは直接得ることが困難な情報も組み入れる必要がある。

そこで、本サブテーマでは、本課題を構成する各サブテーマから得られる成果、研究協力者から得られる情報、及びこれら以外の文献情報等を組み合わせることで、放射性物質の大気への放出から、ばく露評価・リスク評価に至るまでの総合解析手法を設計することを目的とした。

3. 研究開発方法

(1) 研究全体の枠組み設計

各サブテーマから得られる成果、研究協力者から得られる情報、及びこれら以外の文献情報等を組み合わせることで、大気拡散・ばく露評価の統合モデルとしてまとめあげるため、研究班の全体会合、個別のサブテーマに関する打ち合わせ会合を随時開催して研究の進捗状況の確認や最新の知見の共有を行うとともに、事故後初期に行われた空間線量測定や環境媒体中濃度に関する実測調査、核種の構成比や形態に関する研究論文、調査結果データなどの収集、整理を行った。

なお、研究提案時の計画において、サブテーマ(4)として実施予定としていた「微粒子性状及び短寿命核種の寄与を考慮した線量評価の精緻化」に関しては、担当を予定していた機関の研究者の異動のため、研究体制を変更して平成28年度からの実施を目指すこととし、初年度に予備的検討を行った。日本保健物理学会との協議を行い、学会内に新たに設置された内部被ばく影響評価委員会に本研究の担当者がオブザーバーとして参加し、内部被ばくに関する研究レビューに関する情報を共有することや、同委員会の構成員から個別に情報提供を受けることによって、線量評価に関する予備的検討を行った。

(2) 横断的な研究協力体制の構築と不溶性セシウム粒子に焦点をあてた情報集約

本研究の担当機関以外の研究協力者の協力を得るため、主に当該機関への訪問によって具体的な協力内容を協議し、試料の提供依頼や、協力先における試料測定を実施した。また、本研究は課題名で「学際研究」と銘打っており、本課題と関連する研究課題に関する横断的な情報共有のため、毎年度、ワークショップを開催した。初年度は、平成28年2月19日に東京都内において、約50名の専門家の参加のもとで、福島第一原子力発電所事故由来放射性物質調査研究「分野横断ワークショップ放出・拡散・測定・線量評価グループ拡大再会合」を開催し、炉内事象から拡散・沈着、環境中の核種測定、被ばく線量評価に至る知見の収集と共有を図った。中間年度は、平成29年2月13日および2月21日に、東京都内において、延べ約70名の専門家の参加のもとで、「分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会」を開催し、不溶性セシウム含有粒子に焦点をあてて、炉内事象から拡散・沈着、環境中の核種測定、被ばく線量評価に至る知見の収集と共有を図った。最終年度は、平成30年3月6日に約50名の参加のもと、「分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会2018」を開催し、不溶性セシウム粒子研究の最新の情報共有を行った。中間年度および最終年度の会合では、本課題のサブテーマ(4)の参考とするため、事故後初期に飛散されたと考えられる不溶性セシウム粒子の実態解明に焦点をあてた。また、最終年度には、ソースターム、移流拡散沈着モデル、線量評価の専門家との意見交換のための会合を延べ3回開催し、本研究で得られつつある成果を報告するとともに、さらに解明を進めるべき課題の整理を行った。このほか、日本学術会議総合工学委員会原子力事故対応分科会原発事故による環境汚染調査に関する検討小委員会の活動、とくに炉内事象と環境汚染の関係を検討する「事故と環境情報の交流ワーキンググループ」および事故後初期を中心とする情報の収集を検討する「放射線・放射能測定データアーカイブズワーキ

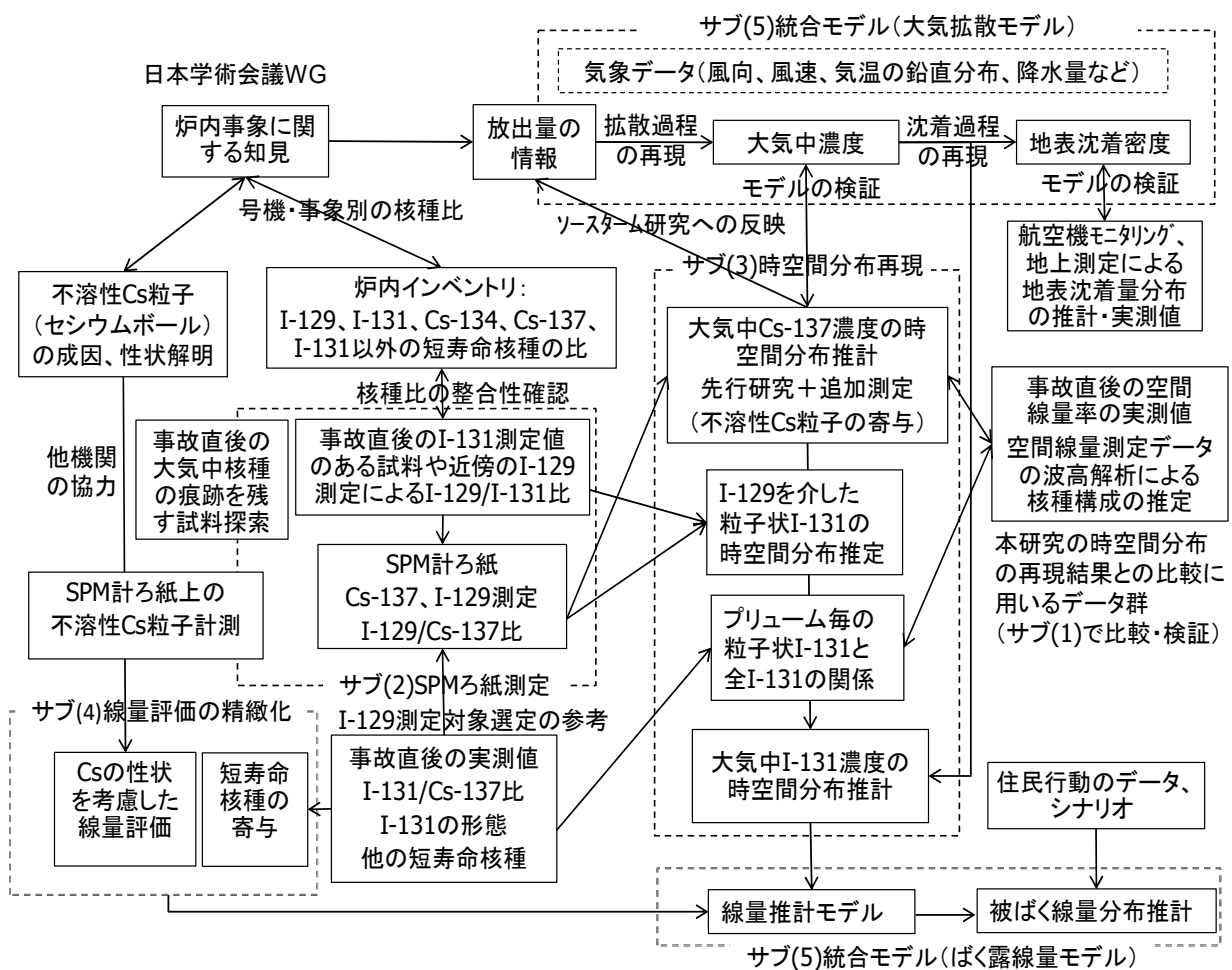
ンググループ」に参画することで、本研究のみでは得ることが困難な情報の取得の機会とした。

(3) 事故後初期の観測データとの相互比較

サブテーマ(2)におけるテープろ紙上のI-129濃度の実測や、これを反映させたサブテーマ(3)における大気中I-131濃度の時空間分布推計手法開発の進展を踏まえ、I-131濃度とCs-137濃度の比の空間分布に着目して、(1)で収集した文献や調査データをもとに、事故後初期の大気中実測試料のほか、土壌などの大気以外の環境試料中の測定データや体内の測定データをもとにした摂取推計値も交えて、大気中のI-131/Cs-137比の時空間分布の整合性の検討を行った。具体的な較方法は結果とともに4.で記載する。また、I-131濃度とCs-137濃度との比に加え、I-131以外の短寿命核種濃度とCs-137濃度との比率を炉内インベントリ等に基づいて設定して空間線量率を推計し、原発周辺のモニタリングポストでの空間線量率の時間変動と比較することによって、I-131/Cs-137比をはじめとする核種構成比の妥当性を検証した。さらに、上記(2)で得た事故の進展(炉内事象)に関する情報と、核種比の変化や物理的・化学的性状の変化について考察した。

(4) 他のサブテーマの成果も含めた総合的な考察

サブテーマ(1)自身の成果と他のサブテーマの成果をもとに、課題全体としての考察、不確実性の低減の観点からの残された課題をまとめた。



図(1)-1 本研究の枠組みの全体構成

4. 結果及び考察

(1) 研究全体の枠組み設計

本研究の提案時点で作成した初期被ばく線量推計と環境モニタリングデータ・拡散モデルとの関係図と本研究課題の各サブテーマと外部機関との研究協力との関係図とを統合し、さらに事故直後の実測データの反映について加筆することによって研究全体の枠組みを設計した。その結果を図(1)-1に示す。

このうち、事故直後に行われたダストサンプリングによる核種測定データや空間線量率の実測データは、本研究における核種構成比の設定や、大気中放射性核種の時空間分布の再現結果と比較のためのデータとして重要である。収集した核種測定データの一覧を表(1)-1に、空間線量率の測定地点の分布を図(1)-2に示す。ここで、空間線量率の測定は原子力施設周辺の常時監視地点でも行われており、図示したのは、それら以外の地点での事故に呼応して行われた調査地点である。ダストサンプリングによって得られたデータの具体的な活用については、サブテーマ(3)の成果として別途報告する。

表(1)-1 事故直後にダストサンプリングによる核種分析を行った機関とその対象核種

Institution	Sampling sites	Atmospheric radionuclides																		RDR	Met.
		Xe-133	Tc-99m	Te-129	Te-129m	Te-131m	Te-132	I-131	I-132	I-133	Cs-134	Cs-136	Cs-137	Mo-99	Ba-140	La-140	Nb-95	Ag-110m	Bi-214(N)		
JAEA-NSRI	Tokai (NSRI)	△ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	×	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	×	×	×	×	×	×	○	○
JAEA-NCL	Tokai (NCL)	×	×	×	○ ¹⁾	×	○ ¹⁾	○ ¹⁾	×	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	×	×	×	×	×	×	○	○
JAEA-ORDC	Oarai (Oarai)	×	×	×	○ ¹⁾	×	○ ¹⁾	○ ¹⁾	×	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	○ ¹⁾	×	×	×	×	×	×	○	○
NIES/KEK	Tsukuba(N)	×	○	×	○	×	○	○ ²⁾	×	○	○	○	○	×	×	×	×	×	×	○	×
MRI	Tsukuba(M)	×	○	×	○	×	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	×	×	×	×
CTBTO	Takasaki	△ ³⁾	○	○	○	×	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	
RIKEN	Wako	×	×	×	○	×	○	○	×	○	○	○	○	○	×	×	○	○	×	○	
JCAC	Chiba	×	×	×	×	×	○	○ ⁴⁾	○ ⁴⁾	○ ⁴⁾	○	○	○	×	×	×	×	×	×	○	○
JCAC	Chiba (in-situ)	○	×	×	×	×	×	○	○	×	○	×	○	×	×	×	×	×	○	○	○
TIRI	Setagaya	×	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	×	×	○	×
KMRIEP	Tajima	×	×	×	×	×	×	○	×	×	○	○	○	×	×	×	×	×	×	○	○
KPIPH	Chigasaki	×	△	○	○	×	○	○	○	○	○	○	○	○	×	×	×	×	×	○	○

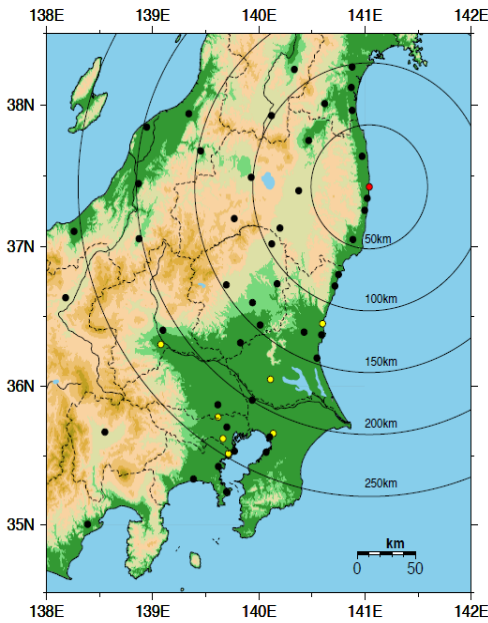
注1): 気体と粒子とを分離して採取および測定(活性炭カートリッジはTEDA添着有り)

注2): 気体と粒子とを分離して採取および測定(活性炭カートリッジはTEDA添着無し)

注3): 採取装置の汚染のため参考値

注4): 気体と粒子とを分離して採取したが、測定は分離せず一括(気体+粒子)測定

△: 定量できず参考値



図(1)-2 事故直後の空間線量率の測定地点

(2) 横断的な研究協力体制の構築と不溶性セシウム粒子に焦点をあてた情報集約

1) 横断的な情報共有で取り上げた主なテーマ

3年度延べ4回のワークショップにおける情報交換および分野ごとの専門家との個別の意見交換でとりあげた主なテーマを表(1)-2に記録として示す。

表(1)-2 横断的な情報共有のためのワークショップおよび専門家との意見交換会合の主なテーマ

開催年度	会合名
	セッション・テーマ構成と報告件数、主な項目
H27	福島第一原子力発電所事故由来放射性物質調査研究分野横断ワークショップ・グループ1 「放出・拡散・測定・線量評価」拡大再会合
	分科会A 原子炉から放出された放射性核種の形態とその計測拡散沈着モデル
	炉内事象と放出量推定／事故直後の放射性核種の計測と化学性状／大気拡散沈着モデルとその検証／被ばく影響評価側からのコメント
	分科会B 放射性核種の時空間分布の計測、モデリングとばく露評価、線量評価
	初期被ばくの線量再構築／初期被ばくに関する放射性核種の物理化学性状、ばく露評価、影響評価／内部被ばくの計測と情報
H28	分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会
	測定、物理・化学性状関係 5件／ 室内調査関係 1件／ 生体・健康影響関係 2件
H29	分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会2018
	物理・化学性状の解明、環境動態 2件／ 地域分布（性状解明を含む）5件／ 生体影響 3件／ 発生機構・環境放出 1件
	福島事故の大気シミュレーション会合
	3月12日午後～夜の事象／空間線量率の実測値によるモデルの再現性の検証方法／Te-132(I-132)と他の核種の比／不溶性粒子（いわゆるCsボール）放出時間帯とソースタームの変動の関係／データ共有の方法とスケジュール
	初期内部被ばく線量評価に関する研究報告・意見交換会
	移流・拡散・沈着モデルから線量推計を行う際の不確実性の要素／I-131とCs-137の吸入摂取比・環境中の存在比／ソースターム／呼吸由来の内部被ばくで特に留意すべきと考えられるブルーム
	放出量推計および大気拡散沈着モデルに関する研究報告・意見交換会
	5-1501プロジェクトの成果概要／移流・拡散・沈着モデルから線量推計を行う際の不確実性の要素／ソースターム／呼吸由来の内部被ばくで特に留意すべきと考えられるブルーム

2) 不溶性セシウム粒子の研究レビューとSPMろ紙試料の測定結果

上記の横断的な情報共有のためのワークショップにおいて、本課題初年度の平成27年度には、「放出・拡散・測定・線量評価」に関する幅広いテーマを取り上げたが、第2年度、最終年度は、いわゆるセシウムボールなどのセシウム含有不溶性粒子に焦点をあてた。これらの会合を通じて得た情報を含め、不溶性粒子の研究の進展を以下に概説する。

不溶性セシウム含有粒子（いわゆるセシウムボール）については、2013年の気象研究所の足立らの論文¹⁾、2014年の東京理科大学の阿部らの論文²⁾によって、その存在と性状が明らかにされた。ケイ酸塩ガラスが主でセシウムのほか、鉄、亜鉛などを含む。これらの論文は、2011年3月14～15日に茨城県つくば市で大気中から採取された試料についてであるが、その後の他の論文^{3), 4)}で、同種の粒子の福島県内の地表からの発見が報告され、粒子の微細構造の解明も進められてきた⁵⁾。また、2016年6月に横浜で開催された国際学会で、2011年3月15日に東京都内でフィルターに採取されたセシウムは80～89%がガラス状微粒子であったことが九州大学を中心とする研究チームから報告された⁶⁾。このグループは、原発近傍の土壌からの検出について論文発表^{7), 8)}しており、球状、非球状の両方が報告されている。

一方、こうした直径数 μm 以下の粒子のほか、より大粒径、高放射能の粒子も発見についても報告^{9), 14)}されており、前者をAタイプ、後者をBタイプと呼ぶのが通例となりつつある。但し、微小なAタイプで球状以外のもの、より大粒径のBタイプで球状のものも報告されており、「セシウムボール」という名称で一括りにするのは必ずしも適切ではない。こうした粒子の生体影響については、本研究のサブテーマ(4)を担当する日本保健物理学会内部被ばく影響評価委員会で検討されており、2017年3月に公開で行われたシンポジウムで進捗状況が報告¹⁰⁾された。

2017年3月の原子力学会では、原発に近い帰還困難区域の家屋内での清掃作業時に着用したマスクから、球形だけでなく非球形で、組成が最初に発見されたセシウムボールと類似のセシウム粒子の発見が報告され、その後論文¹¹⁾として発表された。これらの粒子がいつ、どこに飛来したかは解明途上であるが、大気浮遊粒子状物質の測定局のテープ状ろ紙を用いた分析を本研究課題の一環として、東京理科大学、気象研究所などの協力を得て実施し、その成果を2017年5月の本地球惑星科学連合の2017年大会ではじめて発表した。本課題の終期には、最初の発見者である足立によるレビュー論文¹³⁾が発表され、河川水中の不溶性粒子など新たな論文掲載が続いた¹⁴⁾⁻¹⁶⁾。これら不溶性セシウム粒子検出の報告について、媒体、地域別にまとめた結果を表(1)-3に示す。

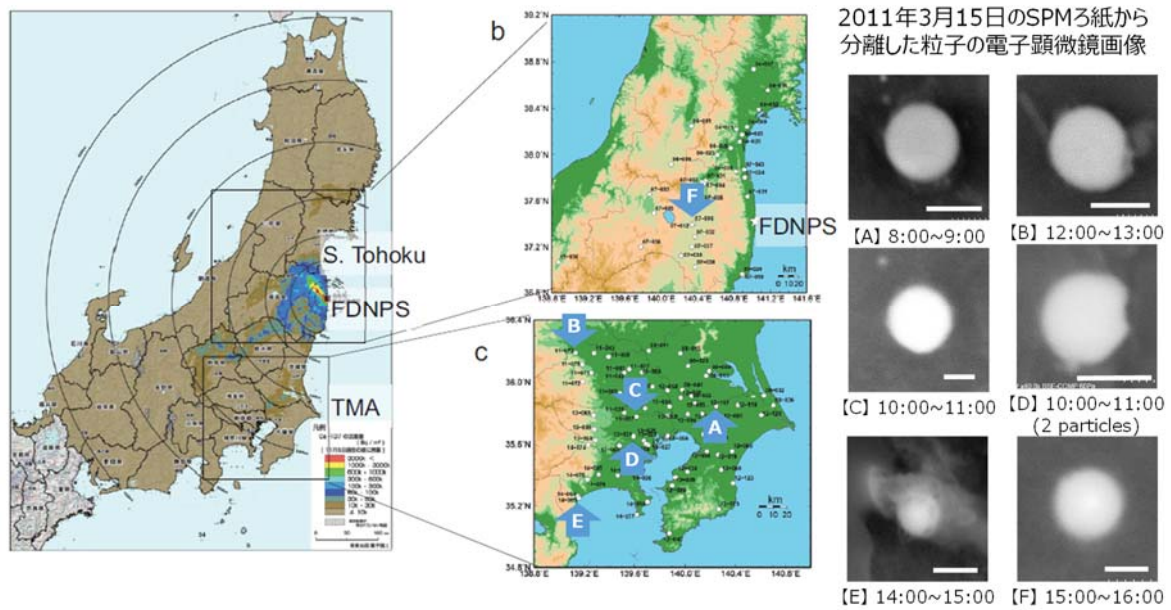
表(1)-3 不溶性セシウム粒子検出の媒体、地域、報告者

媒体	地域	タイプ・形状		報告者、報告資料、報告年
大気	茨城県つくば市	A	球状	気象研Adachiら ¹⁾ (2013) 東京理科大Abeら ²⁾ (2014)
	関東広域	A	球状	理科大・気象研・推進費5-1501グループ ¹²⁾ (2017)、本報告(2018)
	福島県中部	A	球状	
	東京都内	A	球状	九州大Imotoら ⁶⁾ (2016) 九州大Furukiら ⁷⁾ , Imotoら ⁸⁾ (2017)
土壌	1F近傍	A	球状・非球状	
地表	福島県内	A	球状	農環研Yamaguchi ³⁾ ら・東大Kogureら ⁵⁾ (2016)、Yamaguchiら ¹⁶⁾ (2018)
土壌・塵	1F北西約20km	A	球状・非球状	筑波大→JAEA Satouら ⁴⁾ (2016) Satouら ¹⁵⁾ (2018)
	1F近傍	A・B	球状・非球状	
土壌	1F北側15km圏	B	非球状	理科大小野ら ⁹⁾ (2017)
	北西15km以遠	A	球状	
室内塵	1F近傍	A	非球状	東大Higaki・東北大Yoshidaら ¹¹⁾ (2017)
河川	福島県口太川	A	球状	東大Miuraら ¹⁵⁾ (2018)

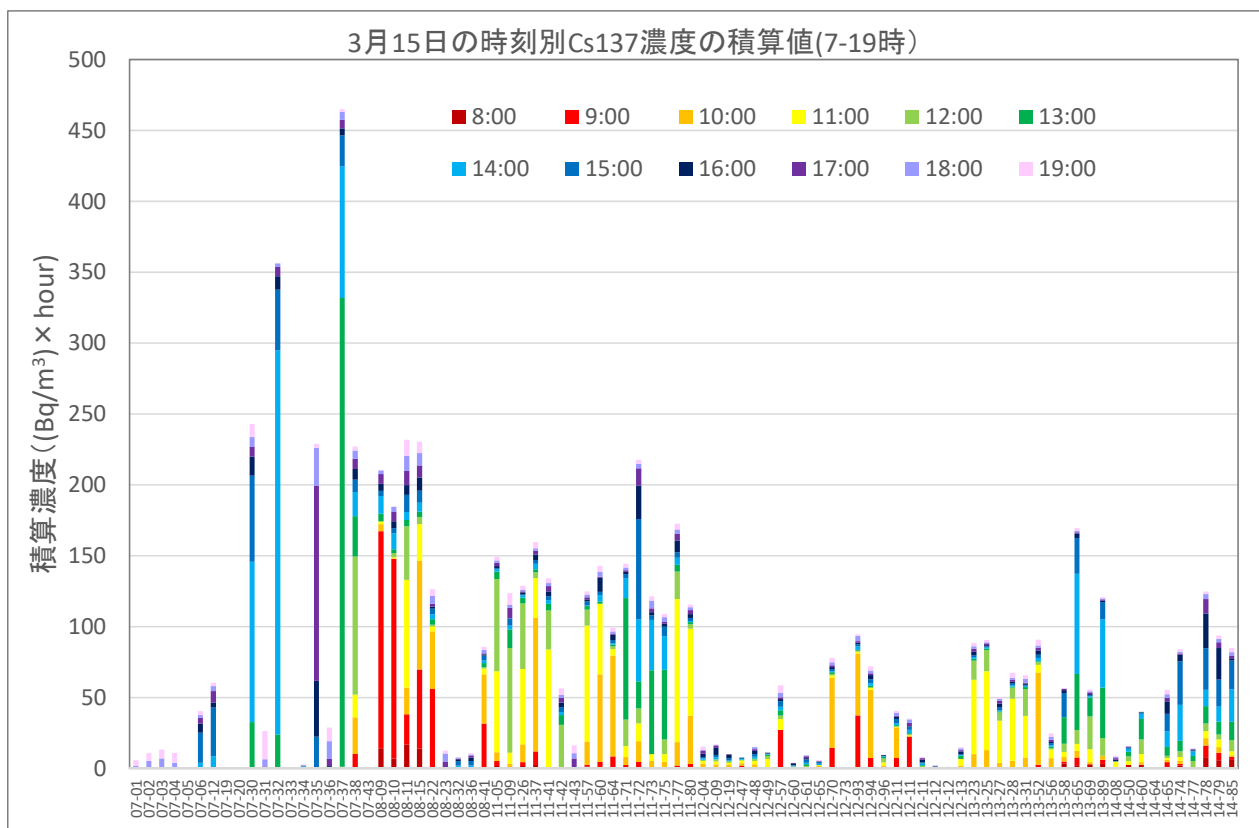
上記2つのタイプの粒子のうち、より大粒径のBタイプは、福島第一原発近傍の北～北西方向の地表から検出されており、2011年3月12日午後の1号機水素爆発時の飛散が原因との説¹⁴⁾がある。一方、Aタイプは最初に茨城県つくば市で発見されたことに端的に表れているように、福島県内外の広範囲にわたるさまざまな媒体から検出されている。以下に述べる関東広範囲での事故後初期に採取された大気中試料のほか、福島県内の河川水や地表（杉の葉や不織布、土壌）から検出されてきた。原発近傍では室内からも検出されたことは先述のとおりである。

セシウムの沈着量が多く空間線量の高い地域が原発北西方向に延びていることがよく知られているが、15日夕刻以降のこの方向への高密度のセシウムの沈着をもたらしたのは主に3号機からの放出と考えられており、2号機に由来する不溶性粒子とは起源が異なる。森林内でのセシウムの動態解明の研究から得られた林内での循環などの挙動は、不溶性粒子が主では説明しにくいとため、地表に沈着したセシウムは水溶性のものが主の地域もあると考えられる。地表沈着に占める不溶性粒子の割合の地域分布の解明には、土壌中の不溶性セシウム粒子の測定が必要となるが、水溶性セシウムも土壌鉱物粒子に吸着して不溶性となるため、これらの分離が課題である。

本研究課題では、サブテーマ(2)において、大気中浮遊粒子状物質（SPM）常時監視測定局のテープ状ろ紙を用いた測定によって、事故後初期の放射性核種の時空間分布を明らかにすることを特徴としている。SPMろ紙を用いた測定では、関東地方の広い範囲で2011年3月15日午前～昼すぎにかけてAタイプの粒子が検出され、福島県中部の測定局のろ紙上でも、3月15日午後にAタイプの粒子を確認した。検出された地点の分布、検出時刻を図(1)-3に示す。



図(1)-3 関東広域および福島県中部への到達時刻と粒子の顕微鏡写真
(研究協力：気象研究所、東京理科大学)



図(1)-4 SPM測定局における3月15日7-19時のCs-137濃度の時刻積算値

当時の風向・風速から逆算すると、これらは3月14日深夜ないし15日未明に放出されたものと推定され、Cs-134/Cs-137比や当時の炉内事象の進展などから、排出源は2号機とする説が有力である。Aタイプの粒子の放出がいつまで続いていたかは解明途上であるが、14日夜から15日午後にかけて放出が続いていたと仮定すれば、関東地方や福島県内への到達は主として15日の日中と考えられる。先行研究で測定されたSPMろ紙上のCs-137濃度の時間積算値を図(1)-4に示す。これら全ての時間帯でCs-137が不溶性粒子として到達したとはいえないが、不溶性粒子を多く含む可能性のある時間帯の濃度レベルを示したもので、サブテーマ(4)の成果と組み合わせることで、不溶性セシウム粒子による被ばく線量評価の上限の目安を推計することができる。15日の日中に到達したセシウムが不溶性であることを想定した線量の試算結果については、サブテーマ(5)で報告する。

(3) 事故後初期の観測データ等との相互比較と考察

1) 利用可能なデータと比較対象

図(1)-1に示した本研究の推計フローでは、事故直後の大気中I-131の実測値が、その濃度の時空間分布に基づく被ばく線量の推計において重要な役割を果たす。しかし、表(1)-1に示したとおり、大気試料の測定地点数はかなり限定されており、とくに放出源の東電福島第一原発に近い地域での事故後数日間について利用可能なデータ数が少ない。サブテーマ(2)におけるSPMろ紙上のI-129の測定は、事故直後の実測値の不足を補う有力な手法であるが、サブテーマ(3)で詳述するとおり、ガス状ヨウ素が測定できないことが課題である。そこで、実測値がより豊富なCs-137とガス状を含む全I-131との存在比の情報や、その推計に関連する情報を大気以外の媒体についても収集し、大気中I-131推計への活用可能性と課題について考察した。この観点を中心に、本研究から実測、シミュレーション計算、データ解析によって得ようとする情報と、既往の情報との相互関係を表(1)-4にまとめた。

表(1)-4 本研究による測定値・推計値・解析結果と既往の情報との関係

本研究から得られる結果			事故直後の採取試料の 貸与測定[サブ(2)]		SPMろ紙測定 [サブ(2)]		核種比の解析 [サブ(1),(3)]	ATDM計算値 [サブ(3),(5)]
比較対象 情報源	出典	対象核種	Cs-134,137	I-129	Cs-134,137	I-129	Cs-137,I-131,Te-129等	Cs-137,I-131
事故直後に採取・ 測定された大気 試料	TIRI等	Cs-134,137	ろ紙上の偏在 状況の測定		近傍地点間の 比較 [先行研究]			
		I-131		I-131/I-129比			I-131/I-129の既往研究と の比較[サブ(1),(2)]	
	JAEA- NCL, NSRI, DoE等	Cs-134,137 I-131					I-131/Cs-137比 [サブ(3)]	
		Te-132等の他核 種					Te-132/Cs-137比 [サブ(1)]	
事故直後の採取 試料の貸与測定	TIRI	I-129	I-129/Cs-137 比の計算		I-129/Cs-137比の近傍地点 との比較			
SPMろ紙測定	先行研究	Cs-134,Cs-137						Cs-137大気中濃度の 再現性
	本研究	I-129			I-129/Cs-137比の 地点別変化		I-131/I-129比を用いた I-131推定 [サブ(3)]	SPMから推計したI-131 濃度との比較
核種比の 解析結果	本研究	I-131/Cs-137					SPMろ紙のI-129からの推 計と既往研究とのI- 131/Cs-137比の比較 [サブ(3)]	I-131/Cs-137比と沈着 挙動の関係の考察[サ ブ(1),(3)]
モニタリングポスト 波高分析	KEK, 名古屋大 等	I-131,Cs-137,Te- 132,Xe-133などの 短寿命核種					Cs-137濃度から空間線量 率を推計する際の核種構 成比の設定[サブ(1)]	
ソースターム研究	JAEA等	I-131 Cs-137 Te-132等					I-131/Cs-137比の時間変 動、短寿命核種との核種 構成比の確認	ソースタームにフィード バックすべき課題抽出
空間線量率	福島県, MEXT等				SPMろ紙上のCs-137実測値と核種構成比から推計した 空間線量率と実測された線量率の比較[サブ(1)]			大気実測値のない地 点でのピーク日時確認
地表沈着量	MEXT, JAEA等	Cs-137 I-131					I-131/Cs-137比の地域差 の考察[サブ(1)]	沈着量の再現性検証
体内摂取量推計	NIRS	I-131/Cs-137比					I-131/Cs-137比の比較、 地域差の考察[サブ(1)]	

2) 地表沈着量など他の環境媒体中のI-131/Cs-137比

I-131とCs-137（ないしCs-134）の比の空間分布情報が充実しているものとして地表沈着量が挙げられる。これには航空機モニタリングによるI-131の地表沈着量分布の推計結果¹⁷⁾や、文部科学省が実施した事故直後の土壤中の放射性物質濃度のデータ¹⁸⁾などがある。地表沈着量分布は、大気移流拡散沈着モデル(ATDM)の計算結果の検証に活用されてきたが、ATDMは大気中での移流・拡散と、地表への乾性沈着・湿性沈着という2つのステップを経ることから、地表沈着量の再現性は、その中間にある大気中濃度の直接の検証とはならない。沈着量のI-131/Cs-137比が高くなる要因としては、炉内からの放出比が高かった可能性と、降水により除去されやすいCsが原発から近距離で先に沈着し、大気中のI-131/Cs-137比が高まったブルームが到達した先で沈着することによる可能性などが考えられる。ヨウ素とセシウムとでは沈着挙動が異なること、とくにヨウ素の物理的・化学的形態によって沈着挙動が異なることに注意が必要である。

地表沈着量におけるI-131/Cs-137比の地域差については、国連科学委員会(UNSCEAR)報告¹⁹⁾でも取り上げられ、上記の航空機モニタリングなどをもとに、浜通り南部(South Traceと名付けられている)で高いことが指摘されてきた。この地表沈着をもたらしたブルームの通過時には、大気中のヨウ素濃度も高かった可能性があり、被ばく線量評価の観点からその日時の解明が関心事となる。

大気拡散沈着モデルによる計算結果、空間線量率の変動、表(1)-1に挙げた大気中試料の測定結果から、浜通り南部の主なブルームの通過は、3月15日早朝、3月16日早朝、3月21日早朝、3月22日以降が考えられるが、事後的な測定で得られる地表沈着量は積分値であり、個々のイベントごとの情報を直接得ることはできない。これらのブルームの風下側に位置する茨城県つくば市内での降下物や土壤中濃度の測定²⁰⁾によれば、15～16日のブルームに比べ、21～22日のブルームによる地表へのI-131の沈着が支配的で、これは後者での降水の影響が大きいと考えられる。また、大気中濃度の実測において、3月21日午後以降に福島県南部でI-131/Cs-137比が100を超えており(サブテーマ(3)報告の図(3)-7左のCグループ)、浜通り南部の一部はこの21日午後以降のブルームの影響を受けたことが考えられる。

一方、福島県浜通りでは、後述するように、人の体内の放射性核種比から、16日朝にI-131/Cs-137比の高いブルームが通過した可能性が示唆されていること、15日夕から16日午前にかけても降水がみられたことから、浜通り南部を16日午前通過したブルームについての解析の優先度が高いと判断する。SPMろ紙、によるCs濃度の時空間分布が再現され、大気中濃度での拡散モデルの検証、改良が可能となったが、乾性沈着、湿性沈着の双方を考慮したうえで、地表へのI-131の沈着量と大気中濃度の双方についてモデルがバランスよく再現できるようにすることが、大気中のI-131濃度のモデルによる推計から線量評価を行ううえでの重要課題である。

3) 人体測定に基づくヨウ素セシウム比との比較および比較に際しての留意点

環境省が設置した「東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う住民の健康管理のあり方に関する専門家会議」での被ばく線量の評価においては、人体を対象とした直接測定を重視し、環境中の測定値やモデル推計は補助的なものという考え方がとられてきた。このため、Whole Body Counter(以下WBCと略記)やサーベイメータによる甲状腺測定などの直接測定から得られた知見と、本研究のように環境中の実測値と大気拡散沈着モデル(ATDM)を用いた推計値との比較も重要な課題である。甲状腺に対する線量の推計値に着目した比較は、サブテーマ(5)で行っているため、ここでは、両者におけるI-131/Cs-137比に着目して比較、考察した。なお、後述するとおり、この比の比較にあたっては条件を揃える必要があるが、まず報告された値をそのまま記述した後、比較あたっの留意点を挙げる。

WBCなどによるなどによる体内存在量の実測値と体内動態モデルから逆推計されたヨウ素とセシウムの摂取比は、放射線医学総合研究所(放医研)を中心とする研究グループによる一連の推計²¹⁾⁻²³⁾、環境省放射線の健康影響に係る研究調査事業鈴木班報告書²⁴⁾ではI-131/Cs-137として、3～5程度の値が示されている。これらの報告値は、サブテーマ(3)で詳述する大気中試料や上述の地表沈着量などの環境中試料における比よりも小さい傾向にあり、その一因として、摂取量を逆算する際に用いられるICRPの体内動態モデルに比べて、日本人は甲状腺にヨウ素が集まりにくいことが挙げられている。但し、これらは異なる時期に、異なる対象者の集団について、異なる方法で測定したものであり、各々の測定対象とな

った異なる集団が、同様の被ばく量分布をもっていたと仮定している。本研究の結果からは、気象に大きく左右されるプルームの特性上、わずかの距離や方位の違いでも呼吸由来の被ばく量が大きく異なることが示唆され、ヨウ素の測定対象とした集団とセシウムの測定対象とした集団が、同様の線量分布をもつと仮定することの妥当性は慎重な評価が必要と考えられる。

長崎大学を中心とする研究グループによる事故後初期の作業者に関する測定²⁵⁾では、同じ対象者について同時にI-131とCs-137をWBCで測定している。この報告のI-131/Cs-137比は幾何平均値で6.04、中央値は6.65であり、計算で仮定したヨウ素の物理化学的性状の差異を考慮すれば、上記の放医研の報告値と大差ないが、対象者によって比は大きく異なり、最大値は約40に達している。対象者の日時別の滞在地の履歴と関係づけた整理がなされており、値が高い要因として、16日朝の福島県浜通り南部への滞在を挙げている。

但し、これらヨウ素のセシウムに対する摂取量と環境媒体中の比を比較する際には、ヨウ素の形態による体内動態の相違やウ素の半減期の補正などについて、以下のように条件を揃える必要がある。

①ヨウ素の物理的・化学的形態の設定：WBCによる計測やサーベイメータによる甲状腺からの線量測定値から摂取量に換算する際のヨウ素の形態として、全量元素状ヨウ素と仮定しているケース、全量粒子状ヨウ素と仮定しているケース、実測データ及び文献値をもとに比率を設定しているケースが存在するが、形態によって気道などへの沈着率が異なるため、体内への残存量から推計した摂取比が異なる。放医研の推計では、全量元素状ヨウ素と仮定しているが、粒子状ヨウ素を仮定した場合には、比は約2倍となることを報告している²³⁾。長崎大報告では、粒子状ヨウ素を仮定している。従って、長崎大の報告値の幾何平均約6と、放医研の報告値3は同等である。実際の環境試料では、ガスと粒子の比は日時、場所により異なるが、本研究ではデフォルトとして1:1と設定しており、全量ガス状と設定して求めた摂取比に対して、環境中の比は約1.5倍に相当する。

②ヨウ素の半減期補正の有無、補正する場合の基準とする日時：摂取（環境試料の場合は採取）した日時とするか、地震による原子炉緊急停止時刻（2011年3月11日14時46分）とするか

本研究のサブテーマ(3)では、測定日時の異なる環境試料について統一的に比較し、また、炉内インベントリと比較するため、原子炉停止時刻に半減期補正している。このため、3月15日午後に摂取したと仮定した場合、停止からヨウ素131の半減期の約半分の時間が経過しているため、半減期補正した値は、摂取時の値の約1.4倍となる。

これら2つの要素を考慮すれば、ガス状：粒子状を1:1として原子炉停止時に補正したヨウ素セシウム比は、全量元素状ヨウ素として3月15日の摂取を仮定した場合の摂取比の約2倍となり、放医研報告の3～5は、この想定での環境試料では6～10に相当する。すなわち、体内摂取から求めた値と、環境中存在比の典型的な値として本研究で設定した値（=10）と大差はない。したがって、ヨウ素の摂取量の過小推計を避けるためには、この係数自身の大小よりも、環境中でのヨウ素セシウム比が代表値の10を大きく上回る時間帯、地域がどこに存在したかや、その際の大気中ヨウ素濃度の絶対値が大きかったかどうかに関心が注がれることが重要である。

4) 空間線量率の再現性と核種構成比の考察

原発から距離の近いSPM測定局でのCs-137やI-129の測定結果でみられるプルーム通過による鋭いピークは、福島県原子力センターによる原発周辺のモニタリングポスト(MP)における空間線量率データ²⁶⁾と時間的にもよく一致しているが、原発近傍では1km程度離れたMP間で空間線量率の上昇傾向が大きく異なる場合もある。これは、プルームの空間スケール、とくに風向に対して幅方向の拡がり小さいためと考えられる。また、空間線量率の上昇幅がCs濃度の上昇幅より顕著に大きい場合がみられ、I-131以外も含めた寿命核種や希ガスなど、他の核種のCs-137に対する比が大きいためと推定される。

本研究サブテーマ(3)の先行研究では、I-131などの短半減期核種を含めた大気中濃度の測定値の解析により、I-131/Cs-137比などの核種構成比は、炉内の存在量（インベントリ）における比と類似の値を示す場合と、これとは大きく外れた値を示す場合があることを明らかにしてきた。

原発近傍でのプルームの挙動や短寿命核種を含めた核種構成比を解明するうえでも、MPで得られた空

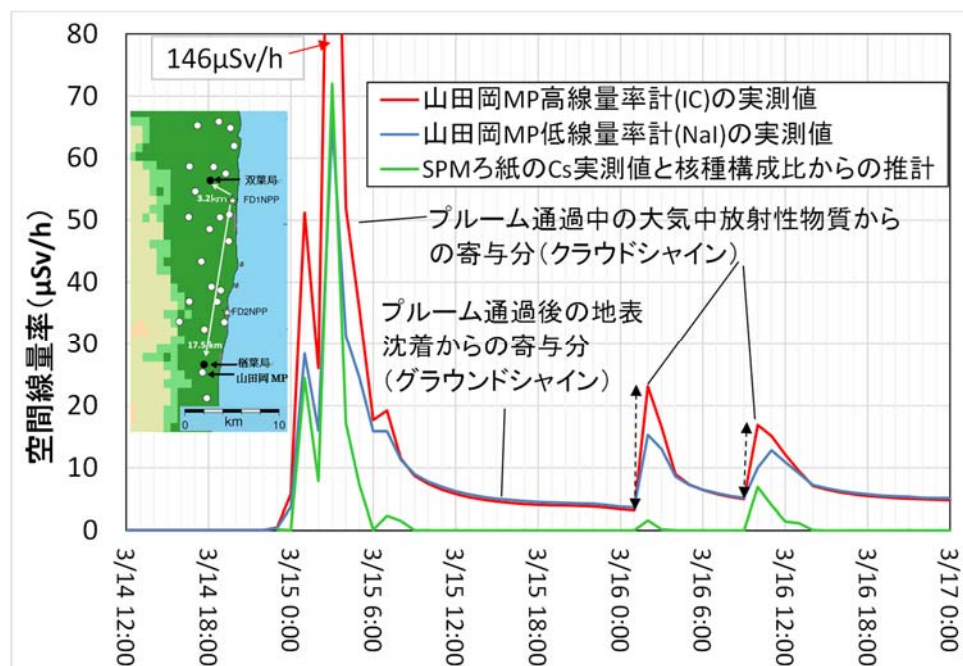
間線量率の変動の解析が有用である。空間線量率は、主に大気中のブルーム由来のクラウドシャインとブルーム通過後の地表沈着由来のグラウンドシャインに影響され、波高分析によってこれらを分離したうえでI-131などの短寿命核種濃度や核種構成比率を推計する研究^{27)~29)}も行われてきた。

一方、本研究のサブテーマ(5)で利用したソースタームおよびその先行研究^{30)~32)}において、空間線量率の測定値は大気中核種の測定データがない時間帯の時間あたりの放出率の推計に利用されてきた。そこで利用された核種構成比は、主にJAEA原子力科学研究所(NSRI)での測定値が根拠とされている。

こうした核種構成比は、実際には炉内事象の進展とともに時々刻々変化していた可能性があるが、そうしたデータはほとんど得られていない。そこで、ソースタームの推計や波高分析から得られた代表的な核種構成比を表(1)-5のように設定し、サブテーマ(2)のSPMろ紙上のCs-137の実測値に乗じて、ブルーム通過時のクラウドシャインの空間線量率変化を計算した結果を図(1)-5に示す。比較対象としたのは、SPM 檜葉測定局のCs-137濃度と、山田岡MPの空間線量率で、両測定点の距離は約0.9kmである。

表(1)-5 設定した核種構成比と3月15日2-3時の核種別線量率寄与の推定値

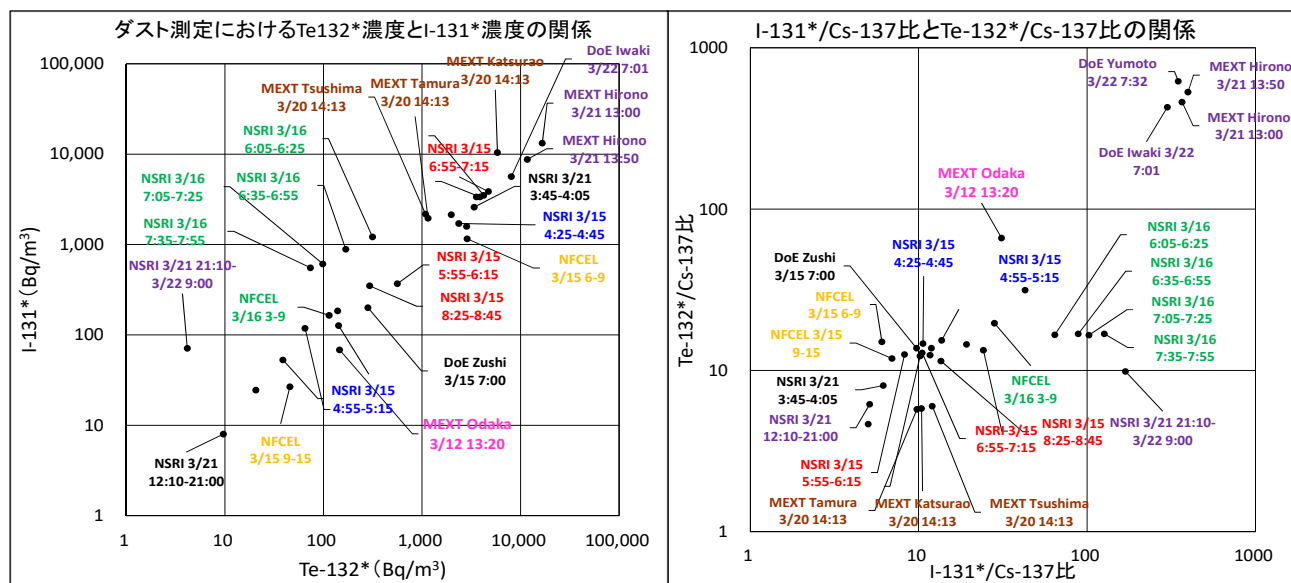
核種	放出量 構成比	大気中濃度 Bq/m ³	線量寄与 μSv/h
Cs-137	1	8.30E+03	1.1
Cs-134	1	8.27E+03	2.8
I-131	10	6.13E+04	5.0
Te-132	15	5.82E+04	2.6
I-132		5.82E+04	30.3
I-133	20	1.03E+04	1.3
Xe-133	750	3.92E+06	29.0
上記核種合計			72.0



図(1)-5 SPM檜葉局でのCs実測値による推計線量と山田岡MPでの線量実測値との比較

図(1)-5 から、SPM 測定局での Cs-137 濃度と核種構成比からの推計値と近傍の MP での線量実測値は、3月15日2~3時の最大の濃度ピークおよび3月16日9~10時のピークについては、ファクター2程度の範囲で一致する。これに対し、3月16日1~2時のピークでは、Cs-137濃度と核種構成比から推計した線量率は、MPでの実測値に比べて大幅に過小であり、短寿命核種の比率がより高かったと考えられる。実際、本研究のサブテーマ(5)で利用したソースタームの論文では、3月15日20時から3月16日6時までの間について、I-131/Cs-137比をその前後の時間帯の3倍の約30に設定している。但し、表(1)-5に示したとおり、空間線量率への寄与でみた場合には、Te-132とその娘核種であるI-132、希ガスの

Xe-133 が大きく寄与する。表(1)-1 で示したとおり、Xe-133 の実測地点は極めて限られているが、Te-132 については、より多くの地点で大気中濃度の実測が得られている。そこで、本研究で主眼をおいてきた I-131、Cs-137 と、Te-132 の時間変動、空間変動について解析を行った。その結果を図(1)-6 に示す。



図(1)-6 空間線量率への寄与が大きい短寿命核種Te-132とI-131、Cs-137との関係

(a) Te-132濃度とI-131濃度の関係 (b) I-131/Cs-137比とTe-132/Cs-137比の関係

ここで、I-131濃度、Te-132濃度はいずれも粒子状、ガス状の合計値であり、原子炉停止時に半減期補正した値である（サブテーマ(3)での表記と同様、*を付している）。

図(1)-6(a)から、Te-132*とI-131*は10～10,000Bq/m³程度の幅広い濃度範囲において概ね比例関係にあり、ほぼ同程度の濃度であるが、3月16日午前6時～7時台のNSRI（茨城県東海村の原子力科学研究所）では、Te-132*に比べてI-131*濃度が高い。核種比に着目した図(1)-6(b)から、浜通り南部（広野町、いわき市）において、I-131*/Cs-137*比が100以上と高かった3月21日午後～3月22日朝は、Te-132*/Cs-137*比も高く、その傾向は複数の機関の測定値で一致している。表(1)-7で設定した代表値はI-131*/Cs-137比で10、Te-132*/Cs-137*比で15であり、この値に近いプロットが多くある一方、上述のとおり、3月16日朝のNSRIでのプロットはこれから外れてI-131濃度が相対的に高い。また、1号機のベントや水素爆発による大規模な放出より前の放出をとらえた3月12日13時台の南相馬市小高のプロットは、I-131、Te-132とも、Cs-137との濃度比が代表値の数倍に達している。これらのことから、実測値の利用可能な時間帯、地点に関する限り、3月12日、3月16日、3月21日午後以降については、代表的な核種構成とは大きく異なる核種構成であったとみられる。なお、3月16日朝に東海村のNSRIに到達したブルームは、図(1)-5で示した櫛葉局の午前2時のピークに対応していると考えられるが、NSRIでのTe-132とCs-137の比は標準的な値を大きく上回ってはならず、I-131/Cs-137比が高いことだけでは、この時間帯の空間線量率の上昇を説明できない。このことと、千葉市の日本分析センターでの測定において、3月16日午前中にXe-133の線量寄与が高かったことが報告されていたことは定性的には符合する。Cs-137濃度のわりに空間線量率の上昇幅が大きい事象は、Te-132の娘核種のI-132の寄与が大きい場合以外にXe-133の寄与の大きい場合にも生じ、また、Te-132とI-131の比例関係から外れる事象も見られたことから、ブルーム通過時のクラウドシャイン由来の空間線量率の値をI-131濃度の指標として直接利用することは適切ではない。これら短寿命核種の構成比が異なる原因を、炉からの放出時の要因、降水など移流拡散沈着時の要因の両面からさらに解析することで、内部被ばくの評価という観点で最も関心が注がれているI-131濃度の再現につなげることが今後の課題である。ブルーム通過後の地表沈着由来のグラウンドシャインの値とその減衰傾向は、核種比を知る手がかりの一つとなると考えられ、波高分析の成果も交えたさらなる総合解析が必要である。

(4) 他のサブテーマの成果を含めた総合的な考察

ここでは、本課題の一連の成果をもとに、課題全体にまたがる重要事項について考察を加える。

1) ソースタームおよび炉内事象に関して

本課題では、ソースターム（放射性物質の放出量の経時変化、核種構成）は既往の研究成果を利用し、自ら再推計することは行っていない。原発 20km 圏の 2 測定局（双葉、楢葉）の SPM ろ紙分析から、放出源に近い地域での大気中セシウム濃度の経時変化が得られたことは、ATDM との組み合わせによる時間分解能の高いソースタームの推定に大きく貢献しうる。但し、総合的な解析を進める中で、気象場の分解能や、沈着挙動の再現性など、新たな未解決の課題も顕在化しており、実測値と ATDM による推計値の不一致が、ソースターム側、気象場や沈着など ATDM 側のいずれによるものかを見極めるためには、さらなる解析が必要である。炉内事象との関連においては、1 号機水素爆発前を含む 3 月 12 日の各時間帯におけるヨウ素の放出要因、16 日未明～午前の中での I-131/Cs-137 比の上昇が、炉内事象によるものか環境中での沈着事象によるものかを見極め、3 月 21 日午後以降に環境中で I-131/Cs-137 比が大幅に上昇した要因の解明がとくに重要である。また、不溶性セシウム粒子に関しては、放出された可能性が高い 14 日夜～15 日未明の炉内事象解明が重要である。

2) ヨウ素／セシウム比について

多くの地点、日時において、ガス状・粒子状を合計した I-131 と Cs-137 の比（3/11 の原子炉緊急停止時に補正した値）は約 10:1 であることが再確認された。この値は、半減期補正や、摂取比の推計において仮定したヨウ素の形態を考慮すれば、WBC などによる人体の測定からの推計値と大きく異なるものではない。この比から外れてヨウ素／セシウム比の高いブルームが存在することは本研究以前から知られていたが、SPM ろ紙を用いた I-129 の測定によって、新たに 3 月 12 日の北～北西方向のブルームについても、比が高かった可能性が見出された。これは、高い被ばくを受けた可能性のある集団の把握という観点で重要な知見である。SPM ろ紙の分析でこうした新たな情報が得られたが、日時、場所によりヨウ素のガス：粒子比が大きく異なると考えられることが、大きな不確実性要因である。

3) 高い被ばくを受けた可能性ある事象と不確実性の程度、要因

上記の考察を踏まえ、高い被ばくを受けた可能性ある事象について、不確実性の程度とその主要な要因を表(1)-6 に付記した。この表で示されるように、線量評価における不確実性の程度と要因は事象によって異なり、極めて複雑である。今後、これらの結果をもとに、継続的に不確実性を低減することが求められる。

表(1)-6 高い被ばくを受けた可能性のある日時・地域、不確実性の程度・要因

対象地域		ブルーム到達日 ブルーム番号	日 (2011年3月)								
			12-13	15		16	18	19	20-21	21	
			P1	P2	P3	P4	P5	P6	P8	P9	P9'
福島県 浜通り	原発北	12日夕方～ 13日午前		午後		午後	昼頃	20日午後～ 21日午前			
	原発北西			午後							
	原発南西		午前		未明、昼頃						
	原発南		午前		未明、昼頃			20日朝	未明	朝～午後	
福島県 中通り				午後				20日午後～ 21日午前			
関東	茨城・千葉北西部		午前						朝		
	茨城南東・千葉北東部				朝、午後						
	栃木・群馬・埼玉		午後								
不確実性 の主因	主要な問題・課題	ブルームを再現できない	原発近傍の再現性、山岳域での湿性沈着計算に課題	左記に加えて、原発北西方向の湿性沈着計算に大きな課題	原発北西方向への輸送の再現が困難、ソースタームの不確実性が大きい	ブルームを再現できない、ソースタームの不確実性が大きい	-	ブルームを再現できず、関東の高濃度を過小評価、浜通り南部では過大評価			
	気流拡散場	○			○	○		○			
	ソースターム	○			○	○					
	湿性沈着(降水を含む)		○	○	○			○			
	I/Cs比、I存在形態	○ (I/Cs比が大)				○ (I/Cs比が大)				○ (I/Cs比が大)	

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

東電福島第一原発事故により大気中に放出された放射性物質の移流・拡散・沈着状況を解明する研究は国内外で多く行われてきたが、原発近傍での住民の被ばくの推計への適用に焦点をあてたものはほとんどなかった。本研究では、大気環境常時監視測定局のろ紙上の放射性物質測定という独自の強みを生かして得られる情報、事故後初期のさまざまな測定データ、大気移流拡散沈着モデルおよびばく露評価モデルの計算結果を組み合わせることで、事故後初期の呼吸経路の被ばく線量を再現する手法を設計し、実際にこの方法による地域別の線量分布推計が可能であることを示した。推計に必要な要素ごとの研究の科学的意義は他のサブテーマに帰属すべきものであるが、各々のもつ不確実性を考慮しながら、要素を組み合わせることで目的とする結果を導く役割を担った本サブテーマの成果は、学際性、総合性を求められる環境科学研究の雛形としての意義があるものである。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

平成28年度、平成29年度に開催した「分野横断ワークショップ不溶性セシウム粒子研究会」の一部に参加した専門家の了解を得て関係行政機関に公開し、不溶性セシウム粒子の研究動向に関する最新の情報を提供した。平成29年5月に、福島県内、東京都内、仙台市内の3箇所で、SPMろ紙を提供いただいた地方自治体への経過報告を兼ねて、本研究課題の進捗状況および不溶性粒子に関する研究動向について、地方自治体向けの説明会を開催した。放射性物質で汚染された廃棄物の処理に対する国民からの疑問への対応のため、本課題のサブテーマ1による不溶性セシウム粒子に関する研究動向について、個別に情報提供した。

<行政が活用することが見込まれる成果>

事故直後の実測データの不足から不確実性が大きいとされてきたI-131の呼吸摂取由来の内部被ばく量の推計手法・推計結果を提示したことは、放射線健康管理のための重要な知見であり、別途、放射線の健康影響に係る研究調査事業で実施されている住民の被ばく線量の包括的な把握のための調査研究で活用可能な知見を提供するものである。とくに、検討会中間とりまとめで言及されていた「高い被ばくを受けた可能性のある集団の把握」に大きく貢献するものである。

また、本課題はUNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）2017年白書にMajor Japanese research projects and programmesの一つとして記載されていたもので、本課題が計画に沿って進行し、所期の成果を挙げたことで、原発事故影響の科学的解明における国際貢献を果たすことができる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) 鶴田 治雄, 大浦 泰嗣, 海老原 充, 森口 祐一, 大原 利真, 中島 映至
エアロゾル研究, 32巻4号, 244-254, 2017

「東電福島第一原子力発電所事故直後の東日本における放射性セシウムの時空間分布—大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析—」

- 2) Tsuruta, H., Oura, Y., Enihara, M., Moriguchi, Y., Ohara, T., Nakajima, T.
 Geochemical Journal, Vol. 52 (No. 2), pp. 103-121, 2018
 “Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011”

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 鶴田治雄, 五十嵐康人, 井上智博, 大河内博, 大原利眞, 梶野瑞王, 兼保直樹, 北和之, 反町篤行, 平木隆年, 堀江洋佑, 森口祐一, 森野悠, 渡邊明: 大気環境学会誌、**51**、A11-A19 (2016).
 「福島第一原子力発電所事故による放射性物質の大気環境影響調査研究の現状と課題」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) 森口祐一: 第56回大気環境学会年会講演要旨集、110-111、早稲田大学、2015年9月15-17日、2015
 「原発事故により放出された大気中微粒子等のばく露評価とリスク評価のための学際研究」
- 2) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至: 第17回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、2016年3月8-10日、2016.
 「大気浮遊粒子状物質 (SPM) 自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定 (その3): 福島原発事故直後の大気中Cs-137高濃度現象とその気象学的考察」
- 3) Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima (2016): European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2016, Vienna, April 22, 2016.
 “Comprehensive Retrieval of Spatio-temporal Variations in Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing Filter-tapes of Operational Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan”
- 4) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至 (2016): 日本気象学会2016年度春季大会講演要旨集、358, 国立オリンピック記念青少年総合センター、2016年5月18-21日. 「大気環境常時測定局で使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後における東日本での大気中放射性セシウムの時空間分布 (その2): 高濃度現象とその気象場の解析」
- 5) Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima (2016): The 26th Goldschmidt Conference, Yokohama, 26 Jun.-1 Jul, 2016. “Comprehensive retrieval of spatio-temporal distribution of atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations”
- 6) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一・中島映至: 第57回大気環境学会年会、北海道大学工学部、平成28年9月7-9日
 「SPMテープろ紙の分析による福島原発事故直後の大気中放射性セシウムの時空間分布 (その2) 東北地方への輸送過程」
- 7) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、鶴田治雄、森口祐一、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之、山形武靖、永井尚生、関本俊: 2016日本放射化学学会年会・第60回放射化学討論会 (2016)
 「東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比」
- 8) 大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、鶴田治雄、中島映至、森口祐一、大原利眞、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之: 2016日本放射化学学会年会・第60回放射化学討論会 (2016)
 「東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料のオートラジオグラフと $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比」
- 9) 鶴田治雄、大浦泰嗣・海老原 充、大原利眞、森口祐一、中島映至 (2016): 第22回大気化学討論会、北海道大学工学部、2016年10月12-14日
 「福島原発事故直後の大気中放射性ヨウ素の動態 (その1) 既存の公表データの解析からわかったこと」
- 10) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至 (2016): 第59回日本放射線影響

学会ワークショップ「福島原発事故から5年、線量再評価の現状」、285、JMSアステールプラザ、2016年10月27-28日。

「事故後初期の大気浮遊粒子状物質中の放射性核種の測定と解析」

- 11) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利真、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至（2016）：日本気象学会 2016 年度秋季大会講演要旨集、484、名古屋大学、平成 28 年 10 月 26-28 日。

「大気環境常時測定局で使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後における東日本での大気中放射性セシウムの時空間分布(その 3)：関東地方での複雑な輸送過程の解明」

- 12) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利真、森口祐一、中島映至（2017）：第 18 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 29 年 3 月 14-16 日。

「大気浮遊粒子状物質(SPM)自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定(その 4) 東電福島第一原発近傍の 2 地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」

- 13) 小野崎晴佳、小野貴大、飯澤勇信、阿部善也、中井泉、足立光司、五十嵐康人、大浦泰嗣、海老原充、宮坂貴文、中村尚、鶴田治雄、森口祐一：日本地球惑星科学連合 連合大会(JpGU)2017年大会、平成29年5月25日、幕張メッセ

「SPMテープ濾紙より分離された放射性エアロゾルの放射光X線複合分析による化学・物理的性状解明」

- 14) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利真・森口祐一・司馬 薫・草間優子・荒井俊昭・松本伸弘・山田裕子・中島映至：日本気象学会2017年度春季大会 講演予稿集、318、国立オリンピック記念青少年総合センター、平成29年5月28日

「福島原発事故直後における大気環境測定局のテープろ紙中の放射性核種分析データから明らかになったこと」

- 15) 大浦泰嗣、鶴田治雄、海老原充、大原利真、中島映至、森口祐一：第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、1、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日

「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析：(その1) 放射性セシウムの定量」

- 16) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、鶴田治雄、森口祐一、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之：第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、2、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日

「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析：(その2) 放射性ヨウ素 (I-129) の定量」

- 17) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、松崎浩之、森口祐一、大原利真、中島映至：第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、3、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日

「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析：(その3) 放射性セシウムと放射性ヨウ素の大気中での動態」

- 18) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利真、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至：第57回大気環境学会年会 講演要旨集、152、兵庫医療大学 平成29年9月8日

「福島原発事故直後の大気中放射性核種の動態」

- 19) 小野崎晴佳、小野貴大、飯澤勇信、阿部善也、中井泉、足立光司、五十嵐康人、大浦泰嗣、海老原充、宮坂貴文、中村尚、鶴田治雄、森口祐一：第53回X線分析討論会、徳島大学、平成29年10月26日

「放射光X線分析により明らかになった福島第一原発事故由来の放射性粒子の性状および飛散状況」

- 20) 森口祐一、鶴田治雄、海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、五藤大輔、高木麻衣、中山祥嗣、森野悠、大原利真、中島映至：日本放射線影響学会第 60 回大会、京葉銀行文化プラザ（千葉市）、平成 29 年 10 月 28 日

「I-129 測定による事故後初期の大気中 I-131 濃度の再現と吸入被ばくの推計」

- 21) 森口祐一、鶴田治雄、海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、大原利真、高木麻衣、森野悠、五藤大輔、中山祥嗣、中島映至：第 19 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 30 年 3 月 13-15

日

「初期内部被ばく線量評価のため実測値・推計値の総合解析」

- 22) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、永川栄泰、桜井昇、羽場宏光、松崎裕之、鶴田治雄、森口祐一：
第 19 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 30 年 3 月 13-15 日

「大気浮遊粒子試料中の I-129/I-131 比」

- 23) 大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、松崎浩之、鶴田治雄、森口祐一：第 19 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 30 年 3 月 13-15 日

「自動 SPM 計でのテープろ紙の分析による大気中の福島原発事故由来 ^{129}I 濃度」

- 24) 鶴田治雄、海老原充・大浦泰嗣・白井直樹、松崎浩之、森口祐一、大原利眞、中島映至：第 19 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 30 年 3 月 13-15 日

「福島第一原子力発電所事故初期の大気汚染監視網 SPM 測定地点における大気中 I-131 濃度の推定」

- 25) 大原利眞、高木麻衣、森野悠、五藤大輔、中山祥嗣、森口祐一、鶴田治雄：第 19 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 30 年 3 月 13-15 日

「大気拡散・ばく露評価統合モデルを用いた事故初期の経気道ばく露推計」

- 26) 森口祐一(2018)：日本保健物理学会シンポジウム 福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて
ー不溶性粒子と短半減期核種ー、平成 30 年 3 月 19 日

「福島事故後の不溶性粒子の検出の地域分布と拡散予測」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 第56回大気環境学会特別集会「福島第一原子力発電所事故直後の大気中放射性物質動態、炉内事象
および初期被ばくの研究に関する新たな進展とその横断的な考察」

(特別集会の主催主体は大気環境学会であるが、本研究課題の広報のため学会への参加登録費なし
で一般の参加者が聴講できるよう、本課題から学会に働きかけて一般公開したもので、主催に準ず
るものである。)

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 2016年4月2日 毎日新聞朝刊 「土記 ろ紙は語る」
(青野由利専門編集委員執筆によるコラムにおいて、本研究に関する紹介がなされたもの)
<http://mainichi.jp/articles/20160402/ddm/003/070/118000c> (2018年4月28日確認)
- 2) 2017年6月6日放映 NHK総合テレビ クローズアップ現代「原発事故から6年 未知の放射性粒子に
迫る」 研究代表者(サブテーマ(1)リーダー) 森口祐一がサブテーマ(4)甲斐倫明リーダーとともに
にゲスト解説者として出演
- 3) 2018年3月17日放映 NHK総合テレビ NHKスペシャル「メルトダウンFile.7」) エンドロールにお
いて取材協力者として森口祐一、鶴田治雄を明記

(6) その他

とくに記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Adachi et al. :Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.*, 3:2554 (2013) <http://www.nature.com/articles/srep02554>
- 2) Abe et al. Detection of Uranium and Chemical State Analysis of Individual Radioactive Microparticles

- Emitted from the Fukushima Nuclear Accident Using Multiple Synchrotron Radiation X-ray Analyses. *Anal. Chem.*, 86 (17), pp 8521–8525 (2014) <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/ac501998d>
- 3) Yamaguchi et al.: Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant, *Sci. Rep.*, 6:20548 (2016)
 - 4) Satou et al. :First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Anthropocene*, 14, 71-76, (2016)
 - 5) Kogure et al.: Constituent elements and their distribution in the radioactive Cs-bearing silicate glass microparticles released from Fukushima nuclear plant. *Microscopy* 65, 451–459 (2016)
 - 6) Imoto et al.: Cesium-rich micro-particles unveil the explosive events in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Goldschmidt Conference Abstracts 1253 (2016)
 - 7) Furuki et al.:Caesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Sci. Rep.*, 7:42731 (2017)
 - 8) Imoto et al.:Isotopic signature and nanotexture of cesium-rich microparticles: Release of uranium and fission products from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Sci. Rep.*, 7:5409 (2017)
 - 9) 小野ら: 福島第一原子力発電所事故により 1 号機から放出された放射性粒子の放射光マイクロビーム X 線分析を用いる化学性状の解明, 分析化学, 66(4), 251 (2017)
 - 10) 日本保健物理学会シンポジウム 「福島事故を内部被ばくから考える」実施報告 (2017)
 - 11) Higaki et al.: Discovery of non-spherical heterogeneous radiocesium-bearing particles not derived from Unit 1 of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, in residences five years after the accident, *J Environ Radioact.* 177:65-70 (2017)
 - 12) 小野崎ら : SPM テープ濾紙より分離された放射性エアロゾルの放射光 X 線複合分析による化学・物理的性状解明、日本地球惑星科学連合 2017 年大会
 - 13) 足立光司 : 原子力発電所事故で放出された不溶性放射性粒子の形態と組成 ,エアロゾル研究,32(4) (2017)
 - 14) Satou et al.: Analysis of two forms of radioactive particles emitted during the early stages of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident, *Geochemical Journal*, 52 (2018)
 - 15) Miura et al. :Discovery of radiocesium-bearing microparticles in river water and their influence on the solid-water distribution coefficient (Kd) of radiocesium in the Kuchibuto River in Fukushima, *Geochemical Journal*, 52 (2018)
 - 16) Yamaguchi et al.: Structures of radioactive Cs-bearing microparticles in non-spherical forms collected in Fukushima, *Geochemical Journal*, 52 (2018)
 - 17) Torii et al.: Enhanced analysis methods to derive the spatial distribution of ^{131}I deposition on the ground by airborne surveys at an early stage after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *Health Physics*, 105(2), 192-200, (2013)
 - 18) 文部科学省 : 土壌モニタリングの測定結果 (平成 23 年 5 月 31 日まで), 原子力規制庁及び福島県による土壌試料の測定結果 (原子力規制委員会 : 放射線モニタリング情報ホームページ掲載), 平成 24 年 9 月 12 日 (2012)
<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5080/view.html> (平成 30 年 4 月 21 日確認)
 - 19) United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) (2013) Levels of effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami, 2014, UNSCEAR 2013 Report Volume 1. Scientific Annex A.
 - 20) Fujiwara, H.: Observation of radioactive iodine (^{131}I , ^{129}I) in cropland soil after the Fukushima nuclear accident, *Science of the Total Environment*, 566-567, 1432-1439, (2016)
 - 21) Kim et al. : Intake ratio of ^{131}I to ^{137}Cs derived from thyroid and whole-body doses to Fukushima residents, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 168, No. 3, pp. 408–418 (2015)
 - 22) Kim et al.: Estimation of early internal doses to Fukushima residents after the nuclear disaster based on the atmospheric dispersion simulation, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 171, No. 3, pp. 398-404 (2015)
 - 23) Kim et al.: Early Intake of Radiocesium by Residents Living Near the TEPCO Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant after the Accident. Part 1: Internal Doses Based on Whole-body Measurements by NIRS, *Health Phys.* 111(5):451-464, (2016)
 - 24) 鈴木元ら:4-1 東京電力福島第一原子力発電所事故における住民の線量評価に関する包括研究,テーマ (4)事故後の住民の被ばく線量の包括的な把握に関する研究,平成 28 年度原子力災害影響調査等事業

- (放射線の健康影響に係る研究調査事業) 報告書, 公益財団法人原子力安全研究協会, 411-542 (2016)
http://www.env.go.jp/chemi/rhm/reports/h2903e_5.pdf (平成 30 年 4 月 22 日確認)
- 25) Morita et al.: Spatiotemporal Characteristics of Internal Radiation Exposure In Evacuees and First Responders after the Radiological Accident in Fukushima, *Radiation Research*, 180, 299–306 (2013)
 - 26) 福島県生活環境部原子力安全対策課: 平成 23 年 3 月 11 日～3 月 31 日 (東日本大震災発生以降) にモニタリングポストで測定された空間線量率等の測定結果について、平成 24 年 9 月 21 日、(2012)
<http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec/16025d/post-oshirase.html>
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5080/24/Readings%20of%20soil%20monitoring_All%20Results%20for%20May_2011_20120912.pdf
 - 27) 平山英夫ら: モニタリングポストでの波高分布の時系列変化とブルーム中放射性核種に対する検出器応答を用いたI131 濃度の推定, 日本原子力学会和文論文誌, 13(3), 119-126, (2014)
 - 28) 平山英夫ら: 福島県モニタリングポストのNaI(Tl)検出器波高分布データを用いた空気中I-131放射能濃度時間変化の推定, 日本原子力学会和文論文誌, 14(1), 1-11, (2015)
 - 29) Terasaka et al.: Air concentration estimation of radionuclides discharged from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station using NaI(Tl) detector pulse height distribution measured in Ibaraki Prefecture, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 53(12), 1919-1932, (2016)
 - 30) Katata et al.: Numerical reconstruction of high dose rate zones due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *J. Environ. Radioact.*, 111, 2-12, (2012a)
 - 31) Katata et al.: Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part I: Source term estimation and local-scale atmospheric dispersion in early phase of the accident, *J. Environ. Radioact.*, 109, 103-113, (2012b)
 - 32) Katata et al.: Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 1029–1070, (2015)

II-2 SPM計のろ紙分析による放射性核種比の再現

首都大学東京

大学院理工学研究科

大学院理工学研究科

海老原充

大浦泰嗣・白井直樹

平成27～29年度累計予算額：55,928千円（うち平成29年度：18,502千円）

予算額は、間接経費を含む。

【要旨】

福島原発事故当時の大気中放射性ヨウ素 ^{131}I 濃度を推定するために、大気汚染常時監視網に設置されている自動SPM測定装置で使用されたテープ状ろ紙を用いて ^{129}I を定量した。この試料の ^{129}I を正確に定量するための基礎検討を行なった後、福島県を中心として42のSPM測定局で使用されたろ紙を分析し、事故当時の大気中粒子状 ^{129}I 濃度を定量した。これにより初めて放射性ヨウ素の時空間分布が明らかになった。また、 ^{129}I 濃度から ^{131}I 濃度を推定するために、事故当時に ^{131}I が定量された大気浮遊塵試料を分析し、 $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比を求めた。この過程で、捕集後から ^{129}I 定量までの試料保管の間に、20-30%の ^{129}I が揮散していたのではないかと推定された。また、先行研究につづき、青森県から静岡県にいたる新たな48局でのテープ状ろ紙を用いて大気中放射性セシウム濃度を定量した。これにより、福島原発から遠方への放射性プルームの拡散の様子が明らかとなった。

【キーワード】

大気汚染常時監視網、大気浮遊粒子状物質 (SPM)、ヨウ素-129、ヨウ素-131、セシウム-137

1. はじめに

2011年の東日本大震災によって引き起こされた東京電力福島第一原子力発電所事故によって大量の放射性核種が環境中に放出された。今なおその健康への影響が議論されているが、事故当時の測定データが不足しており、被ばく線量等のリスク評価の不確実性は大きい。特に、 ^{131}I の影響に関しては、その重要性にも関わらず、半減期が短いことから事故直後の測定データが限定的であり、その環境中での拡散挙動や、健康への影響が十分解明されないまま現在に至っている。

首都大学東京、東京大学、国立環境研究所の共同研究グループは、各自治体が運用している大気汚染常時監視網の自動SPM測定装置 (SPM計) で使用されたテープ状ろ紙に注目した。この装置は大気中の粒径 $10\mu\text{m}$ 以下の微小粒子状物質 (SPM) を1時間ずつろ紙上に捕集し、その大気中濃度を自動的に測定する装置で、原発事故時も稼働しており、事故初期のSPMが捕集されていた。共同研究グループはこのろ紙に捕集されたSPMを分析することにより、事故当時の大気中放射性セシウム (長半減期の ^{134}Cs と ^{137}Cs) 濃度を定量できることを示し、東日本の99地点の事故直後の大気中の放射性セシウムの濃度を定量して¹⁾、その時空間分布を初めて明らかにした²⁾。しかし、被ばく線量評価に重要な ^{131}I などの短半減期核種については、すでにすべて壊変してしまっており定量は不可能であった。

本研究では、この先行研究をふまえて、引き続き放射性セシウムを定量すると共に、短半減期のため情報が得られなかった ^{131}I の事故当時の大気中濃度を推定するために、長半減期の放射性ヨウ素同位体である ^{129}I (半減期 = 1570万年) の大気中濃度を同じSPM計のろ紙を用いて定量する。

2. 研究開発目的

福島原発事故の初期に大気中に放出された放射性物質の移流・拡散による東日本における放射性物質濃度の時空間分布の再現 (サブテーマ3) と、大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築による吸入に伴う内

部被ばく線量評価(サブテーマ5)で使用するための、事故当時の大気中放射性核種濃度を事故後初期に大気汚染常時監視網のSPM計で使用されたテープ状ろ紙に捕集されたSPMを用いて定量する。

初期被ばく評価において重要な放射性核種の一つは ^{131}I であるが、これは短寿命(半減期 = 8 日)であるためにすべて壊変してしまっており、現在では事故当時の大気中 ^{131}I 濃度の直接定量は不可能である。そこで、長半減期の同位体である ^{129}I (半減期 = 1570 万年)を定量し、 ^{131}I 濃度を推定する。 ^{129}I の定量には、ヨウ素の化学分離を併用した加速器質量分析(AMS)法を利用する。本研究開始前の予備研究により、SPM計で使用されたテープ状ろ紙から ^{129}I を分離・回収することが可能なこと、 ^{129}I 存在量をAMS法により測定できることを確認した。そこで、本研究では、SPM試料の ^{129}I を正確に定量するための基礎的検討を行った上で、ルーチン的にSPM試料を分析し、 ^{129}I 濃度を求め、サブグループ3とサブグループ5にデータを提供する。 ^{129}I 濃度から ^{131}I 濃度を推定するには、 $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比が必要である。この比は同位体比であるため、試料が異なっても $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比は同一(厳密には放出源の原子炉が同じならば)のはずである。そこで、あらかじめ、事故当時に ^{131}I が定量された大気浮遊塵試料で ^{129}I を定量することにより、 $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比を得る。

本研究開始までに宮城県、山形県、福島県、関東地方5都県、ならびに新潟県の101局の大気汚染常時監視局のSPM計で使用されたテープ状ろ紙の分析により、大気中放射性セシウム濃度を得て、時空間分布を再現した。本研究では、国または自治体が運用しているモニタリングポストによる空間線量率との比較、首都圏でのより詳細な空間分布の取得、ならびに福島原発からより遠方への放射性物質の大気中拡散状況の取得のために適切な地点を選定し、放射性セシウム濃度を定量する。定量値はサブグループ3とサブグループ5に提供する。

3. 研究開発方法

3-1 放射性ヨウ素 ^{129}I の定量

本研究開始前の予備研究により、自動SPM測定装置で使用されたテープろ紙から ^{129}I を分離・回収することが可能なこと、 ^{129}I 存在量をAMS法により測定できることを確認した。こうした結果を踏まえて、本研究では、まず、SPM計で使用されたテープろ紙に捕集された原発事故由来の ^{129}I を正確に定量するための基礎検討を行った。その後、福島県内を中心としてテープ状ろ紙に捕集されたSPM試料のルーチン的な分析を行った。これらのSPM試料は、先行研究で放射性セシウムを測定済みである¹⁾。

^{129}I 濃度実測値から ^{131}I 濃度の推定に用いる $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比を得るために、東京都産業技術研究センター(TIRI)が事故当時に世田谷区深沢の同センター駒沢支所で捕集した大気浮遊塵(APM)試料³⁾を分析した。APMはSPMとは異なり、粒径による分級をせずに大気をそのままろ紙でこしとって得た粒子である。この試料はろ紙上に直径90 mmの円盤状でAPMが捕集されており、これから直径10 mmまたは19 mmの円盤状に切断した小片を分析に用いた。

^{129}I の定量は次のように行った。SPM計で使用されたテープ状ろ紙に直径11 mmで捕集されたSPMの1部分(通常は1/4)をろ紙と共に切断し、まず、切断片中の ^{137}Cs をガンマ線スペクトロメトリにより定量した。また、切断の前後でイメージングプレートを用いてオートラジオグラフを取得した。次に、図(2)-1で示すとおり、切断片試料に既知量のヨウ素(^{127}I)担体を添加し、水酸化ナトリウムを用いてアルカリ融解し、ヨウ素を分離した。AMS測定のためにヨウ素をヨウ化銀沈殿として回収し、測定に供した。AMS測定は東京大学タンデム加速器研究施設にて実施し、試料中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比を測定した。この $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比と添加したヨウ素担体量から、 ^{129}I を定量した。 ^{137}Cs の測定と ^{129}I 測定のためのヨウ素の化学分離操作を本グループが行い、AMS法による ^{129}I の測定(ヨウ化銀沈殿作成を含む)を東京大学タンデム加速器研究施設に委託した。

3-2 放射性セシウムの定量

テープ状ろ紙上に1時間毎に捕集されたSPMの捕集日時を同定後、SPMスポットを1つずつ切断し、 γ 線測定用試料を作成した¹⁾。これを首都大学東京または日本原子力研究開発機構に設置されているゲルマニウム半導体検出器にて約1時間測定し、 ^{137}Cs と ^{134}Cs を定量した。定量のための試料と同サイズの $^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$ 標準線源は自作した。なお、平成27年度は、試料の一部(2地点、307試料)の γ 線測定と放射性セシウムの定量を(財)日本分析センターに委託した。平成28年度末からは、自動試料交換機を利用した測定も行なった。

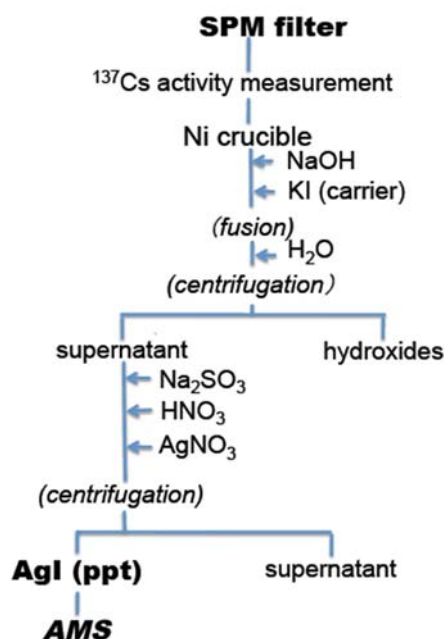
4. 結果及び考察

4-1 放射性ヨウ素

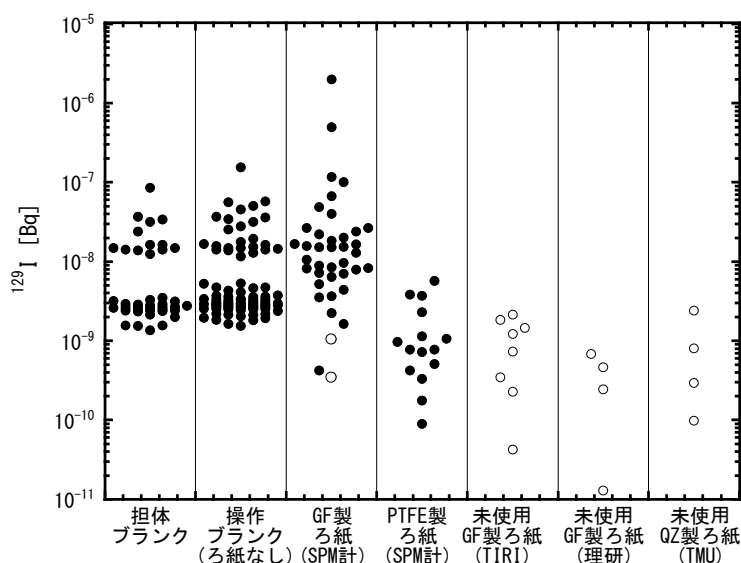
4-1-1 ブランクの評価

SPMはテープ状ろ紙上に捕集されているが、これからSPMだけを物理的に分離することは困難なため、ろ紙とともに ^{129}I の分析に供しなければならない。従って、SPM中の極微量な ^{129}I を正確に定量するためにはろ紙に含まれている ^{129}I の量(ろ紙ブランクと呼ぶ)を評価する必要がある。AMS法により ^{129}I の定量を行うためには、試料中の ^{129}I のみを分離する必要がある、そのためにヨウ素の化学分離操作を行う。その際に、予め一定量の安定ヨウ素 ^{127}I を担体として加えるが、この時に用いるヨウ化カリウム試薬中の ^{129}I の量(担体ブランクと呼ぶ)も評価する必要がある。さらに、一連の化学操作中に用いる試薬や実験室環境から混入する ^{129}I の量(操作ブランクと呼ぶ)の寄与も評価する必要がある。そこで、未使用のテープ状ろ紙や、ろ紙ブランクとして実際にSPMが捕集されたるろ紙のSPMが捕集されていない部分(捕集日が変わるときの空送り部分)の分析を行った。また、担体ブランク(ヨウ化カリウムを水に溶解し、亜硫酸ナトリウム水溶液を加えただけの試料)や操作ブランク(実試料を使用せず、ヨウ素担体のみで一連の化学操作を行なった試料)は、化学分離操作を行なう都度に繰り返し定量した。図(2)-2に本研究で分析した各ブランク全試料の ^{129}I 量を示す。通常、ヨウ素担体として1 mgI ~ 2 mgIを使用するが、この担体ブランクの ^{129}I は 10^{-9} Bq台であった。 1×10^{-8} Bqを超える値は、担体を10 mgI ~ 20 mgI使用したときのもので、ほぼ担体量に比例して担体ブランク値も増加することが確認された。

本研究で使用したヨウ化カリウム試薬には、約 1.3×10^{-9} Bq/mgIの濃度で ^{129}I が含まれていたことになる。操作ブランクも、担体を1 mgI ~ 2 mgI使用したときは 10^{-9} Bq台で、10 mgI ~ 20 mgI使用すると 1×10^{-8} Bqを超えた。担体ブランクと操作ブランクの値はほぼ等しいことから、ヨウ化カリウム以外の試薬や実験室環境から混入する ^{129}I の量は無視できることがわかった。SPMを捕集するテープ状ろ紙にはガラス繊維(GF)製ろ紙とふっ素樹脂(PTFE)製ろ紙の2種類が存在する。未使用のろ紙を分析したところ、GF製ろ紙には 10^{-10} Bq台(図中の○)の ^{129}I が検出された(操作ブランクの寄与を補正した)。一方、PTFE



図(2)-1 ヨウ素の化学分離手順



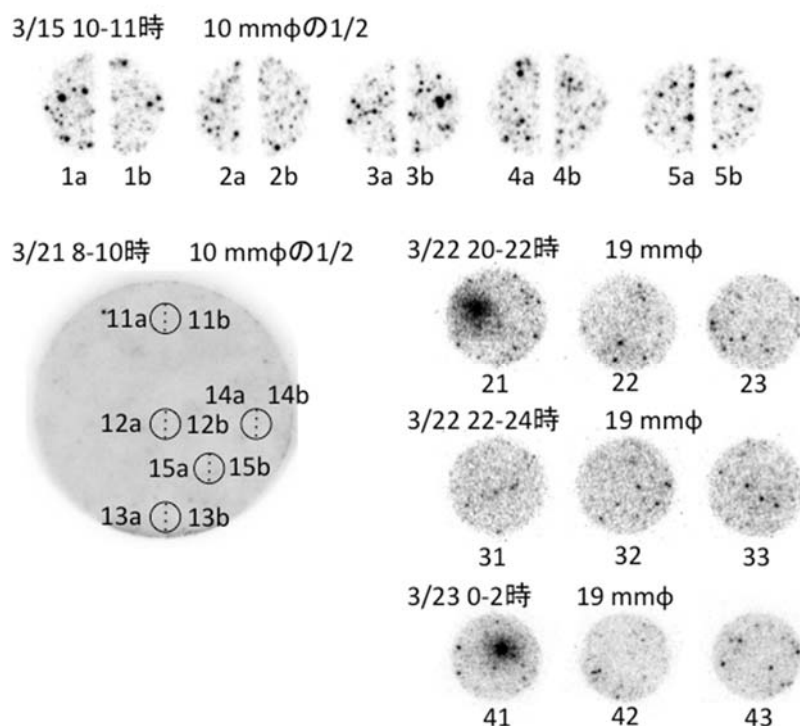
図(2)-2 ^{129}I のブランク値

製ろ紙では検出されなかった。 ^{137}Cs が検出限界以下であったSPMろ紙のブランク試料（採取日が変わるときにコマ送りされる、SPMを捕集していない部分のろ紙片）を分析したところ、 ^{129}I 放射能（図中の●）は未使用ろ紙でのブランク値（図中の○）よりも高く、また、試料間で2桁程度でばらついており、GF製ろ紙のブランク試料の値はPTFE製ろ紙のブランク試料の値よりも系統的に高かった。放射性セシウムの定量では、SPMのろ紙裏面の付着が問題となった。GF製ろ紙よりもPTFE製ろ紙の方が放射性セシウムの裏面への付着率が系統的に高かったが、 ^{129}I のろ紙ブランクは、逆にGF製ろ紙の方が高かった。放射性セシウムのろ紙裏面への付着とは異なる過程で付着した可能性がある。大部分のSPM試料の ^{129}I は 10^{-8}Bq 以上であり、 ^{129}I 濃度が小さい試料に対しては、ろ紙ブランク値の補正が重要であることが判った。各SPM局でそれぞれ使用されたテープ状ろ紙の ^{137}Cs が検出されないブランク試料を必ず分析し、この ^{129}I 定量値で補正した。

東京都産業技術研究センター、理化学研究所(理研)、ならびに首都大学東京(TMU)で捕集されたAPM試料に対して、未使用のろ紙ブランクもそれぞれ測定した。いずれも約 $3 \times 10^{-8} \text{ Bq}$ 以下の ^{129}I しか含まれておらず、ブランクとして十分低いことがわかった。なお、川崎市の未使用ろ紙の測定は、入手しなかったため行なわなかった。

4-1-2 試料内の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の均一性

これまでに多くの研究者により福島原発事故により放出された放射性物質で汚染された様々な環境試料が分析されてきた。放射性核種濃度の定量に加えて、先のチェルノブイリ原発事故当時よりもイメージングプレート（IP）を利用してオートラジオグラフが容易にとれるようになったため、試料内での放射性物質（ほとんどは放射性セシウムと考えられる）の分布も数多く測定されている。これらの画像の多くが、放射性物質が試料に一様に分布しているのではなく、まだら状に分布していて、放射能強度の強い粒子の存在を示していた。そして、いわゆるセシウムボールと呼ばれる ^{137}Cs 放射能強度の高い微小粒子が単離されている。本研究で用いるSPM試料も例外ではなく、先行研究によりオートラジオグラフィにより高放射能粒子が存在することが確認された。さらに、これらの粒子はSPMのろ紙上捕集面に均一に分布しておらず、その存在割合が捕集日時により異なっていた。本研究により、一部のSPM試料でCsボールが存在することも確認された。本研究では、SPM試料の一部を分取し、その分取した試料に対して $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$



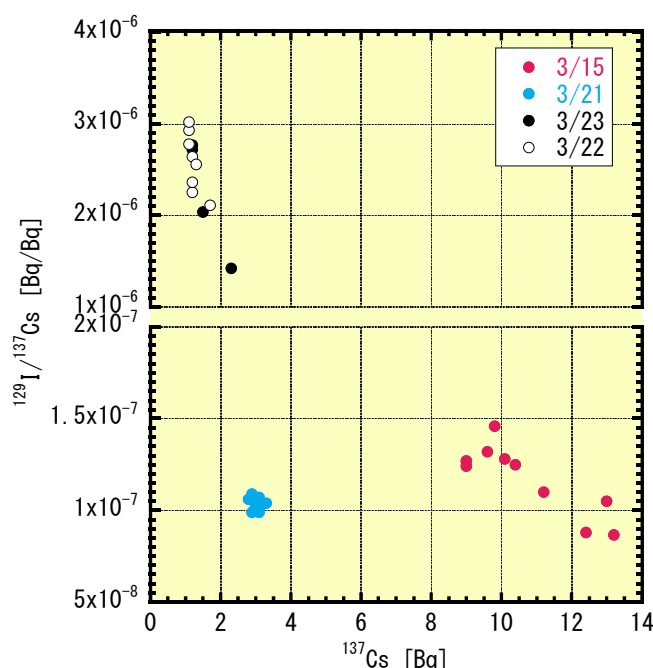
図(2)-3 切断片のオートラジオグラフ。像の下の数字は試料番号。

比を測定し、これを利用して最終的に大気中 ^{129}I 濃度を計算することを計画した。もし、分取箇所により $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が異なると、正確な ^{129}I 濃度を得ることができない。そこで、試料中で $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比に変動があるのかどうかを調べた。

東京都産業技術研究センターのAPM試料(直径90 mm)を用いて、同一試料から複数の断片を切断し、それぞれのオートラジオグラフとガンマ線を測定した後、化学分離操作を行ない ^{129}I を定量し、断片間の $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を比較した。図(2)-3に、この比較に用いた試料のオートラジオグラフを示す。放射能強度が強いほど黒く表示されるが、事故後の経過時間と放射性核種濃度から放射性セシウムの分布を示していると判断される。3月15日10時から11時に捕集されたAPM試料からは、直径10 mmの試料を5枚切断し、これらをさらに半分切断した。試料全体が灰色となっており、その上に点状の像が観察される。放射性セシウムはろ紙に様に分布しておらず、放射性セシウム濃度の高い粒子状の物質が点在していると考えられる。3月21日と3月22日に捕集された試料でも粒子状のものが観察されるが、3月15日より試料あたりの数は少なかった。さらに、3月22日20-22時の試料21と3月23日0-2時の試料41は、それぞれの他の2つの切断片には観察されなかった放射能強度の強い領域が存在する(そのようになるように切断箇所を選んだ)。一方、3月21日の試料は、ろ紙全体がほぼ様な灰色を示しており、点状の像は見られないので、放射性セシウムはほぼ均一に分布していると考えられる。

切断片の ^{137}Cs 放射能、 ^{129}I 放射能、および $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を表(2)-1にまとめた。オートラジオグラフで観察されたように、3月15日は、断片試料の ^{137}Cs は9.0 Bqから13.2 Bqの間で、15 %の相対標準偏差でばらついた。3月22日と23日の試料21と試料41の ^{137}Cs は、他の2試料よりもそれぞれ約1.5倍と2倍高かった。3月21日は、断片試料10試料の ^{137}Cs は3月15日よりばらつきは小さく、相対標準偏差は5.3 %であった。一方、 ^{129}I はいずれの捕集日の試料においても、相対標準偏差は ^{137}Cs よりも小さく、 ^{129}I はろ紙内におよそ均一に分布していると考えられる。3月15日、22日と23日は、 ^{137}Cs と ^{129}I の分布が同一でないため、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、断片間で ^{137}Cs と同じ程度のバラつきが見られた。3月21日については、 ^{137}Cs と ^{129}I はともに試料内に均一に分布しているため $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比はほとんど変化がなかった。図(2)-4に ^{137}Cs と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の相関を示す。3月21日以外は、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ に有意な差があり、 ^{137}Cs が高くなると $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が小さくなるのがわかる。

以上より、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は試料内で常に一定ではなく、 ^{137}Cs の分布が不均一なために、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比も試料内の位置により変動することがわかった。この結果は東京都産業技術研究センターのAPM試料で得られたものであるが、SPM試料でも同様と考えられる。そのため、SPM試料を切断する前にオートラジオグラフを取得し、放射性セシウムが過度に濃集している部分、あるいは、少なくなっている部分を避けるように切断する部分を決定した。現在のところ、この不均一による定量値の変動の評価はできていない。切断片の面積を定量し、試料全体との面積比から大気中 ^{129}I 濃度を計算する方法がより適切であると判断する。SPM試料においては、現在のところ、正確な面積を効率良く定量する手段を見いだしていないので、切断片の概算の面積比(1/4、1/6、または1/8)を用いて ^{129}I 濃度を算出した。



図(2)-4 切断片での ^{137}Cs と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の相関

表 (2)-1 TIRIのAPM試料における同一試料からの複数切断片での¹³⁷Csと¹²⁹Iの定量値

試料 番号	捕集日時	切断サイズ	¹³⁷ Cs [Bq]	¹²⁹ I [×10 ⁻⁶ Bq]	¹³⁷ Cs/ ¹²⁹ I [×10 ⁻⁷ Bq/Bq]
1a	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	13.2	1.1	0.87±0.03
1b	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	9.8	1.4	1.5±0.1
2a	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	9.0	1.2	1.3±0.1
2b	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	10.1	1.3	1.3±0.1
3a	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	9.0	1.1	1.2±0.1
3b	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	12.4	1.1	0.88±0.03
4a	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	13.0	1.4	1.1±0.1
4b	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	10.4	1.3	1.3±0.1
5a	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	11.2	1.2	1.1±0.1
5b	3/15 10-11時	10 mm φ の1/2	9.6	1.3	1.3±0.1
11a	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	3.0	0.30	1.0±0.04
11b	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	3.1	0.31	1.0±0.04
12a	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	3.1	0.30	0.99±0.4
12b	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	2.9	0.32	1.1±0.05
13a	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	2.9	0.31	1.1±0.05
13b	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	3.3	0.35	1.0±0.04
14a	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	2.9	0.29	0.99±0.04
14b	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	3.0	0.31	1.0±0.04
15a	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	2.8	0.29	1.1±0.04
15b	3/21 8-10時	10 mm φ の1/2	3.1	0.34	1.1±0.04
21	3/22 20-22時	19 mm φ	1.7	3.7	21±1
22	3/22 20-22時	19 mm φ	1.1	3.3	30±1
23	3/22 20-22時	19 mm φ	1.2	2.8	24±1
24	3/22 20-22時	19 mm φ	1.3	3.3	26±1
31	3/22 22-24時	19 mm φ	1.1	3.2	29±1
32	3/22 22-24時	19 mm φ	1.1	3.2	28±1
33	3/22 22-24時	19 mm φ	1.2	3.2	26±1
34	3/22 22-24時	19 mm φ	1.2	2.7	23±1
41	3/23 0-2時	19 mm φ	2.3	3.2	14±0.5
42	3/23 0-2時	19 mm φ	1.2	3.4	28±1
43	3/23 0-2時	19 mm φ	1.5	3.0	20±1
44	3/23 0-2時	19 mm φ	1.2	3.4	27±1

4-1-3 ¹³¹I/¹²⁹I放射能比

¹²⁹I濃度から¹³¹I濃度を推定するには、¹³¹I/¹²⁹I比を知る必要がある。計算コードによる燃料棒内の放射性核種量の評価値から比を得ることもできるが、実測により求めた。事故当時に¹³¹I濃度が定量された大気浮遊塵（APM）試料を東京都産業技術センター（TIRI）、旧川崎市公害研究所、理化学研究所⁴⁾、ならびに首都大学東京（TMU）より提供を受け、直径10 mmまたは直径19 mmで試料を切断し、これらを用いて¹²⁹Iを測定した。分析に供した部分の全体に対する割合は面積比から算出し、¹²⁹I濃度を計算した。定量した¹²⁹I濃度を、事故当時に定量された¹³¹I濃度³⁾（2011年3月11日での濃度に換算）とともに表(2)-2に示す。

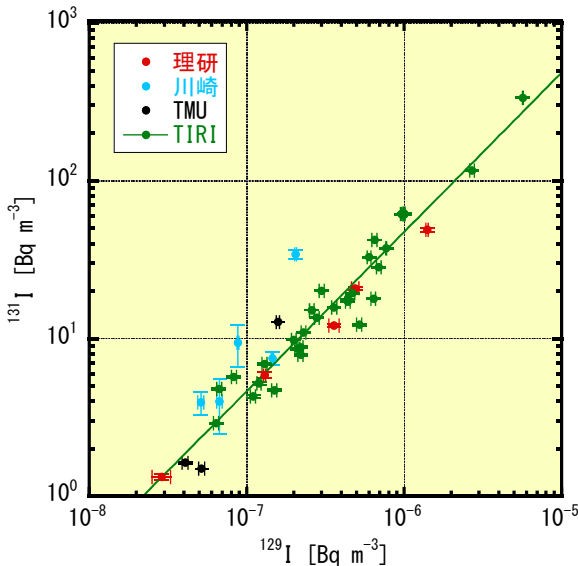


図 (2)-5 APM試料での¹²⁹Iと¹³¹Iの相関。

また、 ^{129}I 濃度と ^{131}I 濃度の相関図を(2)-5に示す。4機関から提供されたいずれの試料に対して、両者は3桁の濃度範囲にわたって良い相関を示し、事故から6年たった後でも、当時の ^{129}I を定量できることがわかった。

表(2)-2 APM試料の ^{129}I 定量値。

	捕集日時	^{131}I [Bq/m ³]	^{129}I [$\times 10^{-7}$ Bq/m ³]	$^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ [$\times 10^7$ Bq/Bq]
TIRI	3月15日 0:00-7:12	15.1 $\pm$ 0.04	2.6 $\pm$ 0.1	5.9 $\pm$ 0.2
	3月15日 7:12-8:23	4.7 $\pm$ 0.04	1.5 $\pm$ 0.1	3.2 $\pm$ 0.1
	3月15日 8:23-9:00	8.6 $\pm$ 0.1	2.1 $\pm$ 0.1	4.0 $\pm$ 0.2
	3月15日 10-11時	335 $\pm$ 1	57 $\pm$ 0.4	5.9 $\pm$ 0.04
	3月15日 11-12時	116 $\pm$ 0.4	27 $\pm$ 1	4.3 $\pm$ 0.1
	3月15日 12-13時	12.2 $\pm$ 0.1	5.2 $\pm$ 0.2	2.4 $\pm$ 0.1
	3月15日 13-14時	7.9 $\pm$ 0.1	2.2 $\pm$ 0.1	3.6 $\pm$ 0.1
	3月15日 14-15時	8.8 $\pm$ 0.1	2.2 $\pm$ 0.1	4.0 $\pm$ 0.1
	3月15日 16-17時	15.7 $\pm$ 0.1	3.6 $\pm$ 0.1	4.3 $\pm$ 0.2
	3月15日 18-19時	17.2 $\pm$ 0.1	4.4 $\pm$ 0.2	3.9 $\pm$ 0.1
	3月15日 19-20時	13.5 $\pm$ 0.1	2.8 $\pm$ 0.1	4.9 $\pm$ 0.2
	3月15日 20-21時	4.8 $\pm$ 0.1	0.67 $\pm$ 0.02	7.1 $\pm$ 0.3
	3月16日 2-3時	5.2 $\pm$ 0.1	1.2 $\pm$ 0.04	4.2 $\pm$ 0.1
	3月16日 3-4時	17.8 $\pm$ 0.1	4.4 $\pm$ 0.1	4.1 $\pm$ 0.1
	3月16日 4-5時	32.7 $\pm$ 0.1	6.0 $\pm$ 0.1	5.5 $\pm$ 0.1
	3月16日 5-6時	17.9 $\pm$ 0.1	6.4 $\pm$ 0.2	2.8 $\pm$ 0.1
	3月16日 6-7時	10.9 $\pm$ 0.1	2.3 $\pm$ 0.1	4.7 $\pm$ 0.2
	3月16日 7-8時	6.9 $\pm$ 0.1	1.3 $\pm$ 0.05	5.3 $\pm$ 0.2
	3月20日 16-24時	2.9 $\pm$ 0.02	0.64 $\pm$ 0.02	4.6 $\pm$ 0.2
	3月21日 0-3時	9.8 $\pm$ 0.1	2.0 $\pm$ 0.1	5.0 $\pm$ 0.2
	3月21日 3-8時	19.4 $\pm$ 0.1	4.7 $\pm$ 0.2	4.1 $\pm$ 0.1
	3月21日 8-10時	37.3 $\pm$ 0.2	7.7 $\pm$ 0.1	4.9 $\pm$ 0.1
	3月21日 10-12時	28.2 $\pm$ 0.2	6.9 $\pm$ 0.2	4.1 $\pm$ 0.1
	3月21日 12-14時	20.1 $\pm$ 0.1	3.0 $\pm$ 0.1	6.6 $\pm$ 0.3
	3月21日 14-16時	5.7 $\pm$ 0.1	0.83 $\pm$ 0.03	6.9 $\pm$ 0.3
	3月21日 16-18時	4.3 $\pm$ 0.1	1.1 $\pm$ 0.04	4.1 $\pm$ 0.2
	3月22日 18-20時	42.2 $\pm$ 0.2	6.5 $\pm$ 0.2	6.5 $\pm$ 0.2
	3月22日 20-22時	61.1 $\pm$ 0.3	10 $\pm$ 0.1	6.0 $\pm$ 0.1
	3月22日 22-24時	61.5 $\pm$ 0.3	9.6 $\pm$ 0.1	6.4 $\pm$ 0.1
	3月23日 0-2時	61.9 $\pm$ 0.3	10 $\pm$ 0.1	6.1 $\pm$ 0.1
TMU	3月22-23日 (APM)	12.7 $\pm$ 0.04	1.6 $\pm$ 0.04	8.1 $\pm$ 0.2
	3月30-31日 (APM)	1.5 $\pm$ 0.02	0.52 $\pm$ 0.02	2.9 $\pm$ 0.1
	3月30-31日 (PM2.5)	1.6 $\pm$ 0.02	0.41 $\pm$ 0.02	4.0 $\pm$ 0.2
理研	3月15日 11:15-11:45	48.9 $\pm$ 1.4	14 $\pm$ 0.3	3.4 $\pm$ 0.1
	3月20-21日	12.1 $\pm$ 0.2	3.6 $\pm$ 0.3	3.4 $\pm$ 0.3
	3月21-22日	5.8 $\pm$ 0.3	1.3 $\pm$ 0.02	4.5 $\pm$ 0.2
	3月22-23日	20.8 $\pm$ 0.6	4.9 $\pm$ 0.3	4.3 $\pm$ 0.2
	3月29-30日	1.3 $\pm$ 0.1	0.29 $\pm$ 0.04	4.5 $\pm$ 0.6
川崎	3月14-15日	7.5 $\pm$ 0.7	1.5 $\pm$ 0.02	5.1 $\pm$ 0.5
	3月15-16日	4.0 $\pm$ 1.5	0.67 $\pm$ 0.03	5.9 $\pm$ 2.3
	3月20-21日	9.4 $\pm$ 2.8	0.88 $\pm$ 0.01	10.7 $\pm$ 3.2
	3月21-22日	3.9 $\pm$ 0.7	0.51 $\pm$ 0.02	7.7 $\pm$ 1.3
	3月22-23日	34.1 $\pm$ 2.2	2.1 $\pm$ 0.03	16.6 $\pm$ 1.1

$^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 放射能比は 2.4×10^7 から 1.7×10^8 まで変動し、その単純平均は 5.3×10^7 で、相対標準偏差は45%であった。福島県内などの土壌や茨城県で捕集された大気浮遊塵などで測定された $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比を、ORIGENコードによる核燃料棒内の評価値⁹⁾と共に表(2)-3にまとめた。この表での $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比の実験値は、ORIGENコードによる2号機または3号機での評価値に近い値となっている。本研究によるAPMの $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比、特にTIRIの試料のみでの平均値は、Xuら⁵⁾によるつくば市内で捕集されたAPMの $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ と良く一致した。土壌の $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比^{6, 7, 8)}はお互いに良く一致しているが、APMの値よりも小さく、ORIGENによる評価値⁹⁾により近い。藤原⁶⁾はつくば市内での降下物と土壌の測定を行った。ヨウ素が揮発しない対策をとり試料を取り扱っており、降下物と土壌の値は非常に良く一致している。野口ら¹⁰⁾は、ミリボアフィルタ上の粒子状ヨウ素からのヨウ素の脱離特性を調べ、20分間で急速に脱離する成分とその後ゆっくりと脱離する成分があること、初期吸着量の約70～80%が粒子に残ることを報告した。APM試料の $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比(平均値: 4.6)は、評価値(2号機と3号機の平均値: 3.2)や土壌(平均値: 3.6)の1.1倍～1.4倍である。捕集直後は

表(2)-3 各種試料での $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 放射能比。

試料	場所	$^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比* [$\times 10^7$ Bq/Bq]	文献
大気浮遊塵	首都圏	5.3 ± 2.4	本研究
	東京都目黒区 (TIRI)	4.8 ± 1.2	本研究
	茨城県つくば市	4.46 ± 0.61	Xu et al. (2015) ⁵⁾
降下物	茨城県つくば市	3.68	Fujiwara (2016) ⁶⁾
土壌	福島県	2.74 ± 0.61	Miyake et al. (2015) ⁷⁾
	福島県	3.44	Muramatsu et al. (2015) ⁸⁾
	茨城県つくば市	3.68	Fujiwara (2016) ⁶⁾
モデル計算	1号機	2.18	西原他 (2012) ⁹⁾
	2号機	3.12	
	3号機	3.28	

* 2011年3月11日での値

表(2)-4 TIRIのAPM試料と柿の木坂のSPM試料での $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比

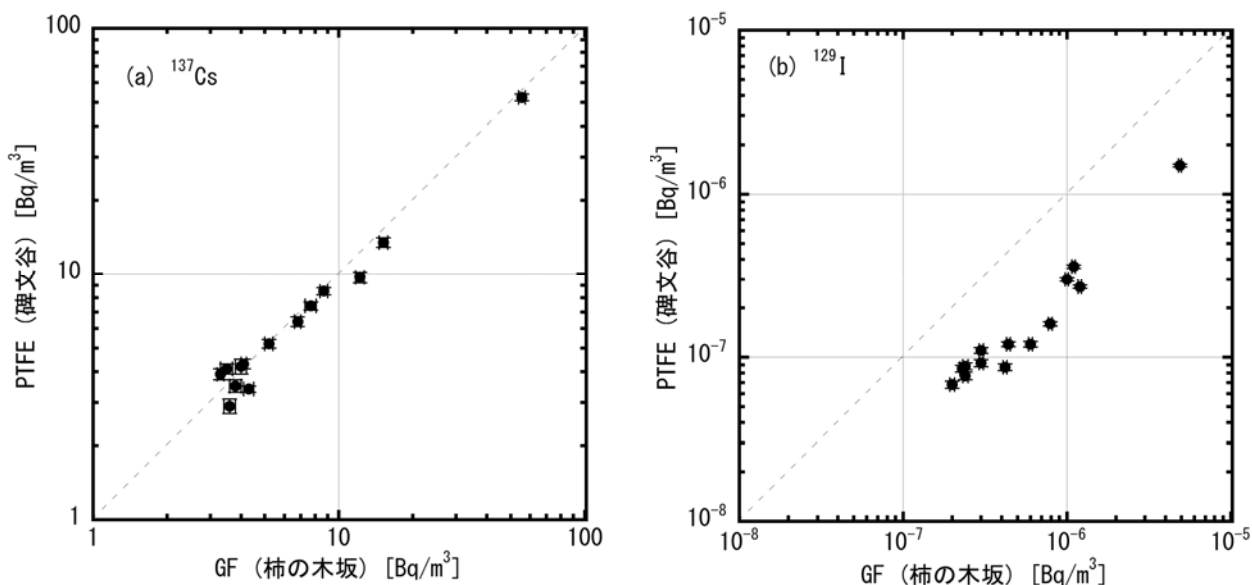
TIRI		柿の木坂	
捕集日時	$^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ [$\times 10^{-8}$ Bq/Bq]	捕集日時	$^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ [$\times 10^{-8}$ Bq/Bq]
3月15日 10-11時	9.5 ± 0.1	3月15日 10-11時	8.8 ± 0.3
3月15日 11-12時	11.7 ± 0.4	3月15日 11-12時	7.2 ± 0.03
3月16日 4-5時	12.5 ± 0.4	3月16日 4-5時	10.2 ± 0.5
3月21日 3-8時	10.9 ± 0.4	3月21日 4-5時	5.6 ± 0.4
		3月21日 5-6時	5.8 ± 0.3
		3月21日 6-7時	7.3 ± 0.3
		3月21日 7-8時	6.9 ± 0.5
3月21日 8-10時	11.7 ± 0.2	3月21日 8-9時	7.3 ± 0.3
		3月21日 9-10時	9.1 ± 0.4
3月21日 10-12時	12.3 ± 0.4	3月21日 10-11時	5.8 ± 0.3
		3月21日 11-12時	8.8 ± 0.4
3月21日 12-14時	9.7 ± 0.4	3月21日 12-13時	11.1 ± 0.7

評価値の値と同じであったと仮定すると、ろ紙の保管中に ^{129}I の20 % ～ 30 %が揮散したとするとAPMの値を説明することができる。この揮散量は野口らの報告と一致する。

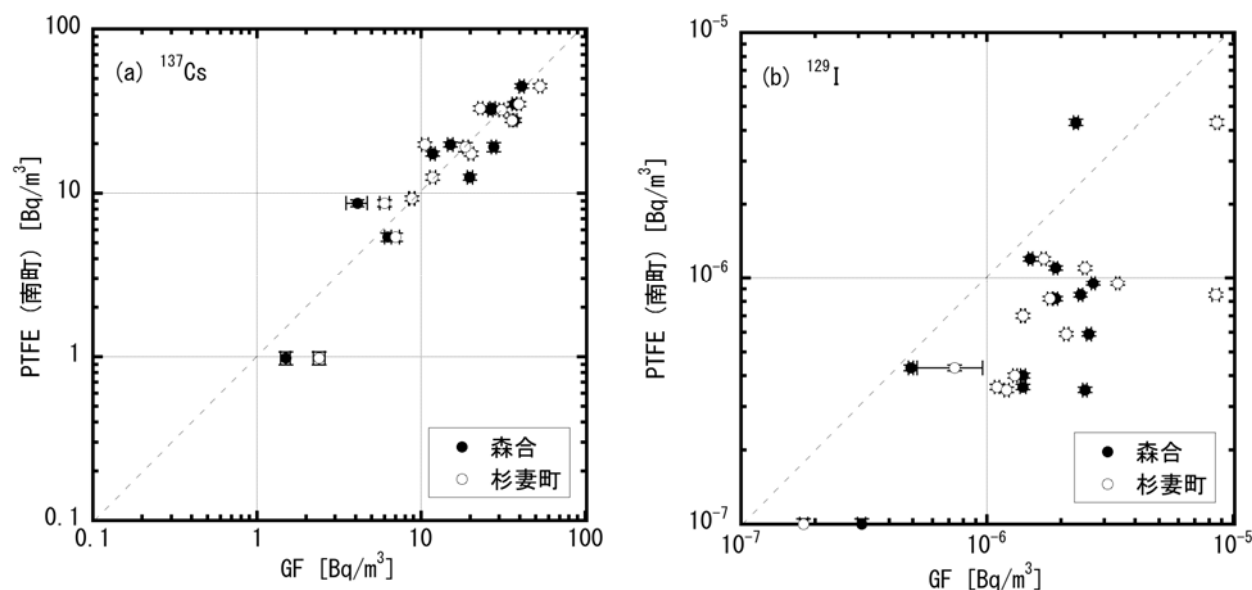
4-1-4 SPM計テープ状ろ紙を用いた大気中粒子状放射性ヨウ素濃度

4-1-3で述べたように、APMをろ紙上に捕集後に粒子状 ^{129}I の一部が揮散していることが推定された。同様の揮散がSPM計のテープ状ろ紙に捕集された粒子状 ^{129}I でもおこっているのであろうか。そこで、TIRIのAPMでの $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比と、この捕集地点の近隣の柿の木坂局での ^{129}I 濃度/ ^{137}Cs 比を比較した。3月15-16日に柿の木坂で捕集されたSPMの放射能比は平均すると約20%小さい値、3月21日は約30 %小さい値となった。先行研究で ^{137}Cs 濃度に差はないことを確認しているのに、 ^{129}I の値が小さめになっていることを示す。柿の木坂のろ紙からの ^{129}I の揮散割合はTIRIのろ紙よりも大きかった可能性がある。

SPM計で使用されたテープ状ろ紙の材質にはガラス繊維(GF)とフッ素樹脂(PTFE)の2種類がある。先行



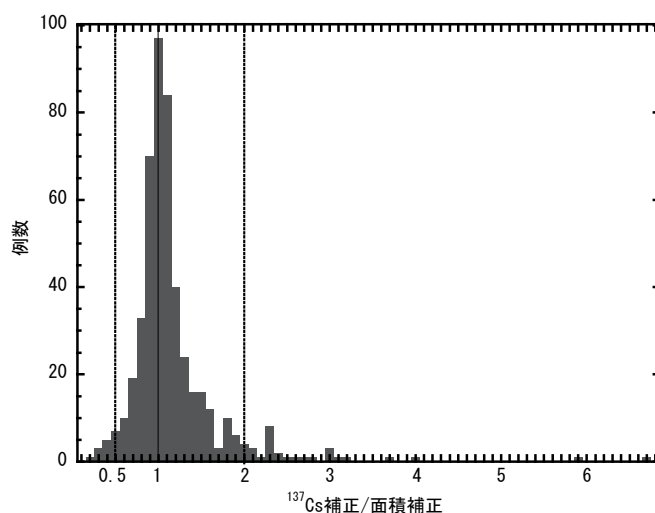
図(2)-6 東京都目黒区内の近接した地点、碑文谷(PTFE製ろ紙)と柿の木坂(GF製ろ紙)、における ^{137}Cs 濃度と ^{129}I 濃度の比較。



図(2)-7 福島市内の近接した地点、南町(PTFE製ろ紙)、森合(GF製ろ紙)、杉妻町(GF製ろ紙)における ^{137}Cs 濃度と ^{129}I 濃度の比較。

研究で、大気中放射性セシウム濃度の定量値はろ紙の材質によらないことをすでに確認している¹⁾が、放射性ヨウ素濃度でも同様であるかを検討した。先の柿の木坂局はGF製ろ紙を使用しており、この近くのPTFE製ろ紙を使用している碑文谷局での定量値を柿の木坂局と比較した。図(2)-6に碑文谷と柿の木坂で定量された ^{137}Cs 濃度と ^{129}I 濃度の比較を示す。 ^{137}Cs 濃度は2局間で良く一致しており、ろ紙の材質により ^{137}Cs 濃度定量値に差は生じない。一方、 ^{129}I 濃度は両地点で異なった。柿の木坂での濃度はTIRIによる深沢での濃度と近かったことから、PTFE製ろ紙である碑文谷での値が系統的にGF製ろ紙の柿の木坂よりも過小評価されたといえる。また、福島市内で近接している3局(森合:GF、杉妻町:GF、南町:PTFE)について同様に比較したところ、図(2)-7に示すとおりGF製ろ紙の森合と杉妻町での定量値は一致するが、PTFE製ろ紙の南町の ^{129}I 濃度は、碑文谷と同様に系統的に小さくなった。PTFE製ろ紙の碑文谷では特定の時刻に捕集されたSPMで ^{137}Cs 濃度が過大評価されることがあったが、これはオートラジオグラフや裏面の状況から ^{137}Cs を含むSPMの裏面への付着が主な原因と推定された。 ^{129}I の場合は、ろ紙保管中の揮散率がPTFE製ろ紙の方が大きい、あるいはヨウ素の捕集効率がPTFE製ろ紙の方が低いのではないかと考えられる。原因については、今後の検討を要する。SPM計ろ紙の ^{129}I の定量は、GF製ろ紙を使用している地点を優先的に行なった。

4-1-2で述べたように、より正確に ^{129}I を定量するためには、分析に供する切断片の全体に対する面積比から ^{129}I 濃度を定量する必要があるが、まだ効率良く正確な面積比を得る方法を見いだしていないので、本報告書では切断片のおよその面積比(1/4, 1/6, 1/8)を用いて ^{129}I 濃度を算出した。目分量で、1/4、1/6、または1/8を切断したが、これらの大きさが2倍以上あるいは1/2倍以下になったことは明らかになかったため、算出した ^{129}I 濃度の不確かさもこの範囲内だと判断する。なお、 ^{137}Cs で補正した場合の ^{129}I 定量値とおよその面積比で補正した場合の ^{129}I 定量値の比の頻度分布を調べたところ(図(2)-8)、ほとんどの試料での比は、0.5から2の範囲内であり、オーダーで異なることはなかった。しかし、比が2を大きくこえることが散見されたので、 ^{137}Cs 放射能での補正は注意を要する。



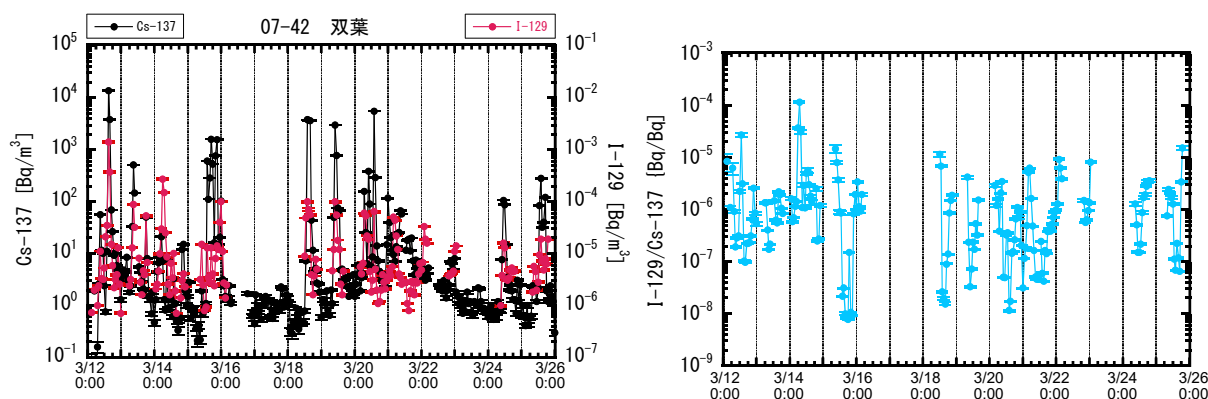
図(2)-8 ^{137}Cs 補正と面積補正による ^{129}I 定量値の比の頻度分布

本研究で ^{129}I を定量した局名と分析した試料の数を表(2)-5にまとめた。福島県を中心に、 ^{137}Cs 濃度がピークになった時刻とその前後を主として定量を行なった。一部PTFE製ろ紙の試料も分析したが、現時点では参考値として扱う。

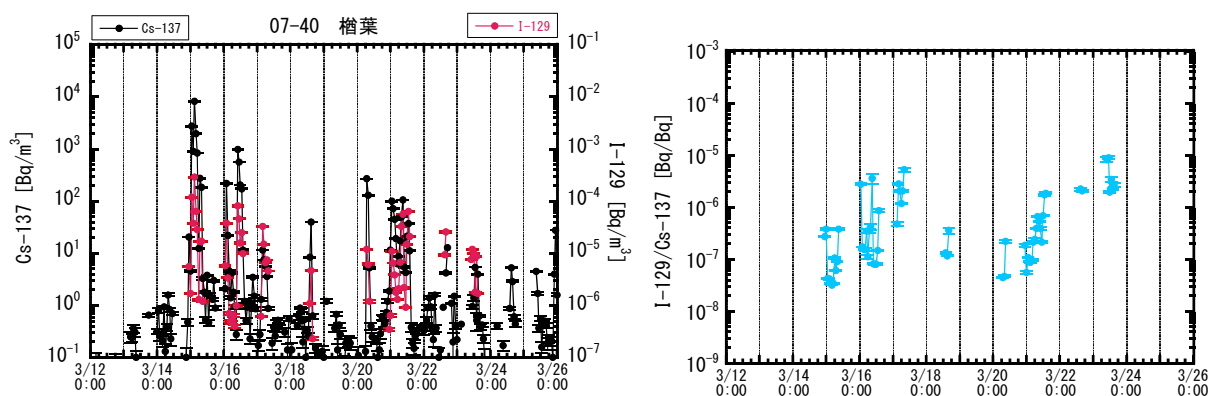
代表的な地域の ^{129}I 濃度と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の経時変化を図(2)-9～図(2)-17に示す。保管中の ^{129}I の揮散の補正はしておらず、測定値をそのままプロットした。 ^{129}I 濃度の経時変化は基本的に ^{137}Cs 濃度の変化と同様で、 ^{137}Cs 濃度と ^{129}I 濃度のそれぞれのピーク時刻は一致した。しかし、中通り地方の3月16日12時前後や3月21日12時前後、福島原発より北方地点での3月19日早朝や3月21日早朝など、顕著な ^{137}Cs 濃度ピークが観測されない時刻に ^{129}I 濃度ピークが観測された(例えば、図(2)-14の3月16日9時の ^{129}I のピーク)。揮発性のより高い物質のみが原子炉から排出されたか、あるいは輸送中に ^{137}Cs が選択的に大気中から除去されたのかもしれない。 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比はブルームによって大きく変動した。3月15日や3月20-21日に各SPM測定局に到達したブルームでは 1×10^{-7} 以下であったが、先に述べた中通り地方の3月16日や3月21日午後では 10^{-6} 台に達した。さらに、原発の北方地点では 10^{-5} 台に達する時もあった。関東地方の3月22日から23日は、これ以前の日よりも $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が高かったが、浜通り地方の3月22日と23日も 10^{-6} 台と高かった。

表(2)-5 本研究で ^{129}I を定量したSPM試料。

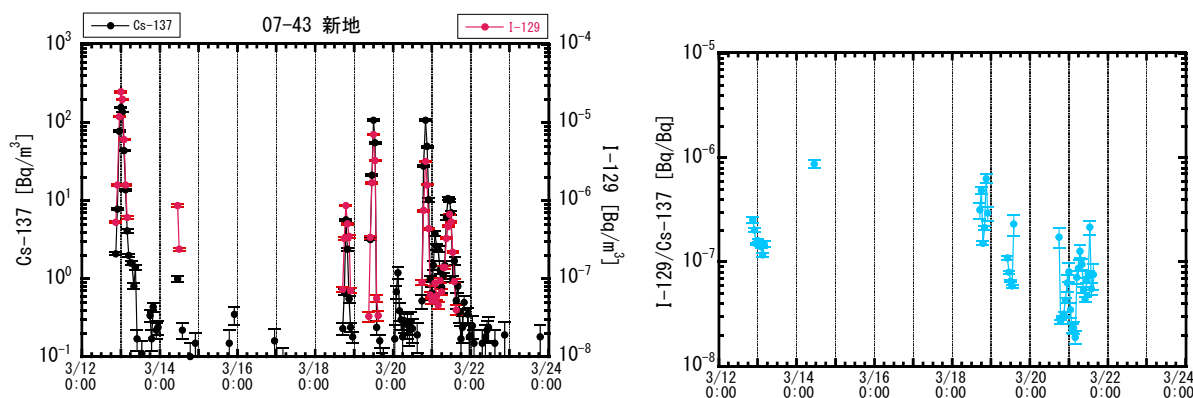
県名	局名	分析試料数	^{129}I 最大濃度 [$\times 10^{-6}$ Bq/m ³]
福島県	森合	29	4.8 ± 0.1
	杉妻町	32	8.6 ± 0.2
	愛宕下	2	3.4 ± 0.1
	台新	44	3.8 ± 0.1
	大原	7	11 ± 0.3
	白河	36	10 ± 0.2
	原町	81	210 ± 4
	須賀川	38	30 ± 1
	二本松	56	3.8 ± 0.1
	南会津	9	2.9 ± 0.1
	矢吹	44	17 ± 0.4
	棚倉	42	3.8 ± 0.1
	檜葉	61	290 ± 5
	双葉	165	1400 ± 40
	新地	45	25 ± 1
	南町(PTFE)	13	4.3 ± 0.1
	相馬(PTFE)	48	23 ± 0.4
宮城県	丸森	26	40 ± 1
埼玉県	和光	4	0.42 ± 0.01
	三郷	13	2.7 ± 0.1
茨城県	土浦保健所	12	23 ± 1
	土浦中村南	2	11 ± 0.2
	古河保健所	1	5.0 ± 0.4
	下妻	1	4.7 ± 0.1
	取手市役所	7	14 ± 0.2
	つくば高野	1	1.6 ± 0.2
	守谷	2	2.6 ± 0.2
		8	3.5 ± 0.1
	神栖下幡木	5	3.2 ± 0.1
	神栖横瀬	4	0.56 ± 0.08
千葉県	山王小学校	12	2.1 ± 0.03
	銚子唐子	10	2.5 ± 0.1
	成田加良部	9	1.6 ± 0.1
	柏大室	7	4.0 ± 0.04
	岩崎西	4	0.56 ± 0.01
	我孫子湖北台	3	1.5 ± 0.03
	栄安食台	3	0.57 ± 0.01
	成田奈土 (PTFE)	13	3.5 ± 0.1
東京都	柿の木坂	14	4.9 ± 0.1
	碑文谷 (PTFE)	14	1.5 ± 0.03
	町田市能ヶ谷 (PTFE)	2	0.12 ± 0.03
神奈川県	中区本牧 (PTFE)	4	0.28 ± 0.01



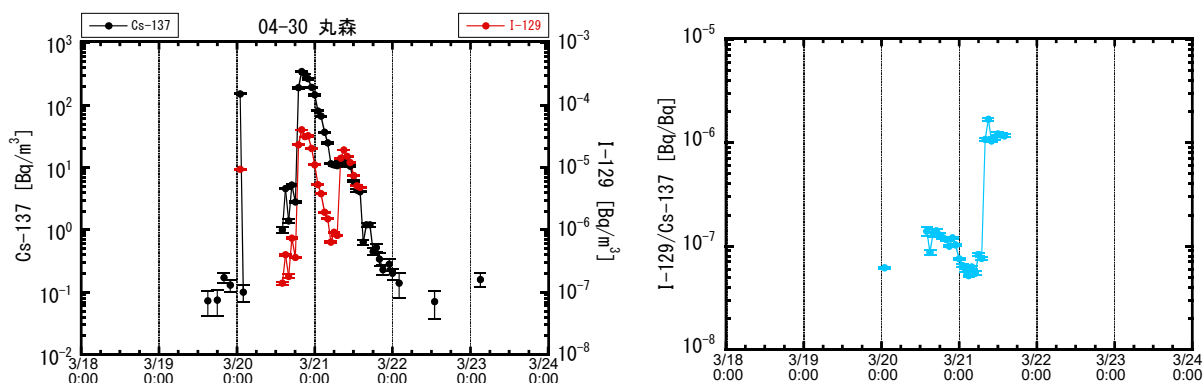
図(2)-9 福島県双葉局(原発近傍)での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。



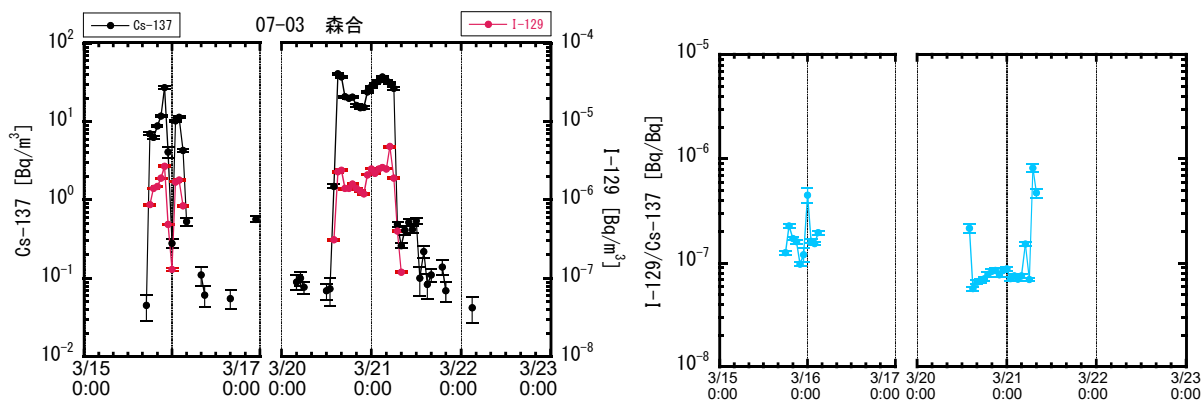
図(2)-10 福島県楡葉局(原発近傍)での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。



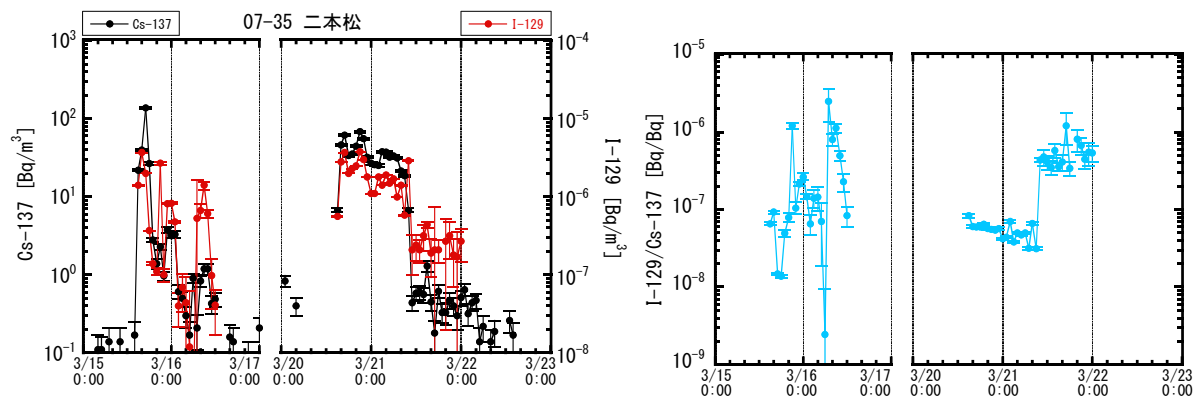
図(2)-11 福島県新地局(浜通り地方北部)での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)



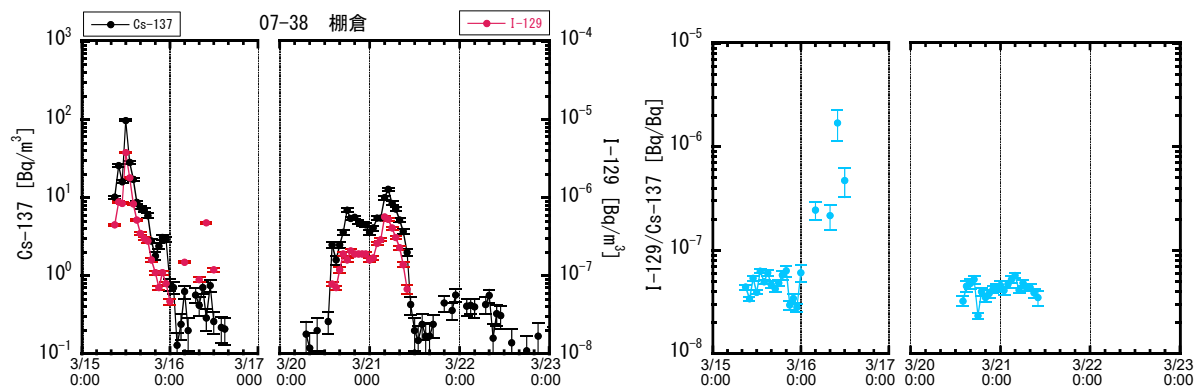
図(2)-12 宮城県丸森局での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)



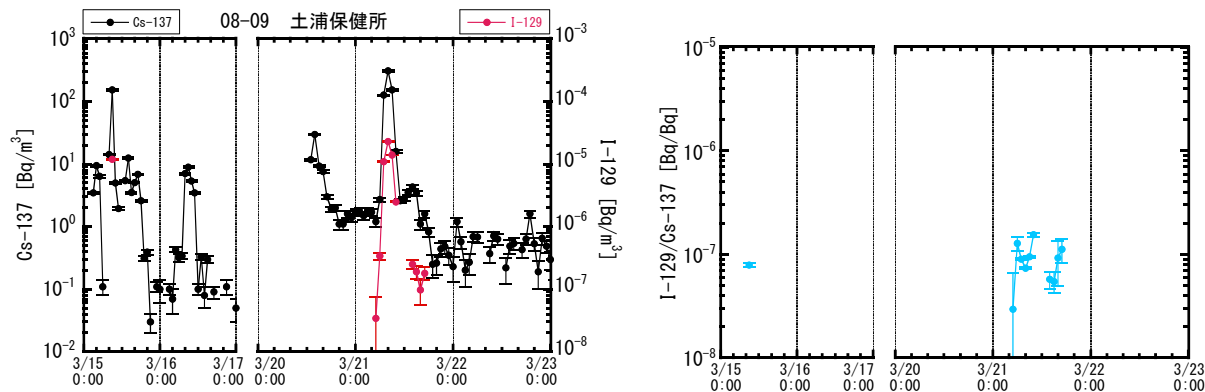
図(2)-13 福島県森合局(福島市内)での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。



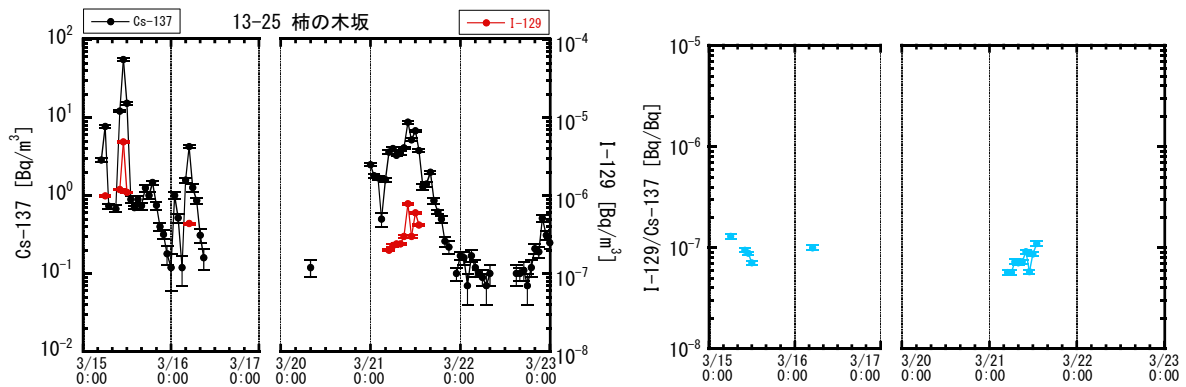
図(2)-14 福島県二本松局(中通り地方北部)での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。



図(2)-15 福島県棚倉局(中通り地方南部)での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。



図(2)-16 茨城県土浦保健所局での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。



図(2)-17 東京都柿の木坂局での ^{129}I ならびに ^{137}Cs 濃度(左)と $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比(右)。

新地と双葉は原発の北に位置しているが、3/12 からプルームが到達しており、原発により近い双葉では、何度も高放射能濃度のプルームが通過した。本研究での他の多くの地点では、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は 10^{-6} 以下であることが多かったが、浜通りでは $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が 10^{-5} を超えるプルームも観測された。 ^{129}I 濃度の増減は ^{137}Cs 濃度の増減とほぼ一致することが多いが、そうではないことも観測された。双葉の3/22 1時には、 ^{137}Cs 濃度ピークが観測されなかったが、 ^{129}I 濃度ピークが観測された。一方、3/15 午後には、 ^{137}Cs 濃度ピークが観測されたが、 ^{129}I 濃度には明らかなピークは観測されず、 10^{-8} 台の低い $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比であった。

楢葉は原発の南の浜通りに位置しており、何度も放射性プルームが通過したが、もっとも ^{137}Cs 濃度が高かったのは、3/15未明の ^{137}Cs 濃度が 10^4 Bq/m^3 近くに達するプルームであった。しかし、 $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は小さく、 ^{129}I 濃度はそれほど高くはなかった。関東地方の3月22日から23日は、これ以前の日よりも $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が高いプルームが観測されていたが、楢葉の3月22日と23日も 10^{-6} 台と高かった。

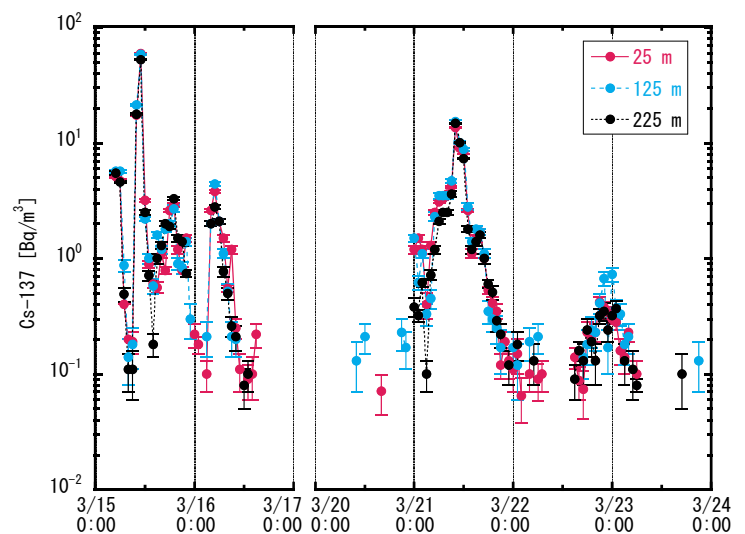
丸森は宮城県南部に位置するが、3月21日午後に $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の大きいプルームが到達した。このような $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の大きいプルームは同じく原発の北に位置する新地では観測されなかった。

中通りに位置する二本松では、3月16日朝と3月21日午後に $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の大きいプルームが到達した。グラフを示していないが、3月16日のこのプルームは他の中通地方の地点でも観測されており中通り地方を通過していった。

4-2 放射性セシウム

自動SPM計で使用されたテープ状ろ紙を用いて、東日本の48地点における事故当時の放射性セシウム濃度を定量した。新たに回収された福島原発近傍の2局(双葉と楢葉)で使用されたる紙の分析を詳細に行なうと共に、首都圏での放射性セシウムの拡散の様子をより詳細に調べること、原発より遠方の地点(青森県、岩手県、長野県、静岡県)での拡散の様子を調べることを中心に地点を選択した。表(2)-6に分析した局名と測定対象日をまとめた。本研究により、測定対象日を含むろ紙を提供していただいた全自治体で最低1地点の測定を終えることができた。

原発から北西3.2 kmと南17.6 kmにそれぞれ位置する双葉局と楢葉局では、 10000 Bq/m^3 を超える高濃度のプルームなど多くの放射性プルーム



図(2)-18 東京タワー局での ^{137}Cs 濃度の経時変化。

が観測されたが、ほとんどは先行研究で明らかにしたブルームであり、3月12日、13日、24日と25日に未発見のブルームを観測した(図(2)-9と図(2)-10)。

図(2)-18 に東京タワーでの ^{137}Cs 濃度を示す。ここでは標高の異なる3ヶ所(25 m、125 m、225 m)でSPMが捕集されたが、 ^{137}Cs 濃度は測定した期間ではほとんど一致しており、また、近くの柿の木坂での ^{137}Cs 濃度ともよく一致していることから、少なくとも都心部では高さ 225 m までよく混合されたブルームが到達したと推定される。

表(2)-6 本研究で放射性セシウムを定量したSPM試料。

県名	局名	測定対象期間
青森県	新城中央小学校	2011年3月12日～3月25日
	三木本中学校	2011年3月12日～3月25日
岩手県	津志田	2011年3月12日～3月16日, 3月20日～3月23日
	水沢	2011年3月12日～3月23日
	花城	2011年3月12日～3月16日, 3月20日～3月23日
	竹山町	2011年3月14日～3月23日
	新町	2011年3月15日～16日, 20日～23日
宮城県	巢子	2011年3月13日～16日, 20日～23日
	木町	2011年3月12日～3月23日
秋田県	古川2	2011年3月20日～3月23日
	広面	2011年3月12日～3月25日
山形県	横手自排	2011年3月12日～3月25日
	村山楯岡笛田	2011年3月15日～16日, 20日～23日
福島県	楡葉	2011年3月12日～3月25日
	双葉	2011年3月12日～3月25日
茨城県		2011年3月15日～16日, 20日～23日
埼玉県	衛生研究所	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	秩父	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	東越谷	2011年3月15日～16日, 20日～23日
千葉県	銚子唐子	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	市川二俣	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	船橋日の出	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	市原岩崎西	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	四街道鹿渡	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	芝山山田	2011年3月15日～16日, 18日～23日
	松戸二ツ木	2011年3月15日～16日, 20日～23日
東京都	国設新宿	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	檜原	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	東京タワー25m	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	東京タワー125m	2011年3月15日～16日, 20日～23日
神奈川県	東京タワー225m	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	鶴見区生麦	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	磯子区滝頭	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	国設川崎	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	茅ヶ崎市役所	2011年3月15日～16日, 20日～23日
新潟県	大和市役所	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	愛川町角田	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	亀田	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	長岡工業高校	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	山梨県	2011年3月15日～16日, 20日～23日
長野県	県庁自排	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	韭崎	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	環境保全研究所	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	小島田	2011年3月15日～16日, 20日～23日
静岡県	上田常磐城	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	小諸	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	服織小学校	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	浜松中央測定局	2011年3月15日～16日, 20日～23日
	掛川市役所	2011年3月15日～16日, 20日～23日

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

原発事故当時にSPM計のテープ状ろ紙に捕集された大気浮遊粒子中の原発事故由来の ^{129}I の濃度を定量する手法を確立し、多数の地点での試料測定に適用した。これによりこれまで不明であった放射性ヨウ素の拡散の様子が明らかとなった。事故当時の大気中 ^{131}I 濃度を ^{129}I 濃度からより正しく復元するための今後の課題を明らかにした。

原発事故直後の大気中 ^{137}Cs 濃度の東日本での1時間毎の空間分布が、各自治体により運営されている大気環境監視網で稼働している自動SPM計の使用済みテープ状ろ紙をGe検出器で測定することにより明らかになった。これらのデータは、福島原発からの放出率の推定、大気輸送・沈着モデルによるシミュレーション結果の不確実性を少なくするために、大きく貢献すると期待される。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

環境省の放射線の健康影響に係る研究調査事業の一つであるテーマ（4）事故初期の内部被ばく線量評価の精緻化に関する包括的研究：事故初期の住民内部被ばく線量評価の精緻化に関する包括研究において、被ばく線量評価で本研究により得られた大気中 ^{129}I 濃度の活用が見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) H. Tsuruta, Y. Oura, M. Ebihara, Y. Moriguchi, T. Ohara and T. Nakajima : Geochemical Journal 52, 103-121 (2018)
 “Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011”
- 2) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原充, 森口祐一, 大原利真, 中島映至: Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity, 56-63 (2017)
 「東電福島第一原子力発電所近傍の2地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」

(2) 口頭発表（学会等）

- 1) H. Tsuruta, Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, and T. Nakajima : American Geophysical Union Fall meeting 2015 (2015)
 “Comprehensive Retrieval of Spatio-temporal Variations in Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing Filter-tapes of Operational Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan.”
- 2) H. Tsuruta, Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, T. Nakajima: European Geosciences Union General Assembly 2016 (2016)

- "Comprehensive Retrieval of Spatio-temporal Variations in Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing Filter-tapes of Operational Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan"
- 3) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原充, 大原利眞, 森口祐一, 中島映至 : 日本地球惑星科学連合大会 (2016)
- 「SPM計使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後の大気中放射性物質の時空間分布の総合解析と気象学的考察」
- 4) H. Tsuruta, Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, T. Nakajima: Goldschmidt2016 (2016)
- "Comprehensive retrieval of spatio-temporal distribution of atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations."
- 5) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原充, 大原利眞, 森口祐一, 中島映至 : 第53回アイソトープ・放射線研究発表会 (2016)
- 「SPM計用テープろ紙の分析による福島原発事故直後の大気中放射性物質の時空間分布と高濃度時の気象場および発生源に関する総合解析」
- 6) 海老原充, 大浦泰嗣, 白井直樹, 鶴田治雄, 森口祐一, 永川栄泰, 櫻井昇, 羽場宏光, 松崎浩之, 山形武靖, 永井尚生, 関本俊 : 2016日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会 (2016)
- 「東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比」
- 7) 大浦泰嗣, 海老原充, 白井直樹, 鶴田治雄, 中島映至, 森口祐一, 大原利眞, 永川栄泰, 櫻井昇, 羽場宏光, 松崎浩之 : 2016日本放射化学会年会・第60回放射化学討論会 (2016)
- 「東電福島原発事故直後に採取された大気浮遊塵試料中のオートラジオグラフと $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比」
- 8) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原充, 大原利眞, 森口祐一, 中島映至 : 日本放射線影響学会第59回大会 (2016)
- 「事故後初期の大気浮遊粒子状物質中の放射性核種の測定と解析」
- 9) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原充, 大原利眞, 森口祐一, 中島映至 : 第18回環境放射能研究会 (2017)
- 「大気浮遊粒子状物質 (SPM) 自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定 (その4) 東電福島第一原発近傍の2地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」
- 10) H. Tsuruta, Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima : European Geosciences Union General Assembly 2017 (2017)
- "Comprehensive Analysis of Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident"
- 11) T. Nakajima, D. Goto, Yu Morino, S. Misawa, H. Tsuruta, J. Uchida, T. Takemura, T. Ohara, Y. Oura, M. Ebihara, and M. Satoh : European Geosciences Union General Assembly 2017 (2017)
- "Model simulations of the radioactive material plumes in the Fukushima nuclear power station accident"
- 12) M. Ebihara, Y. Oura, N. Shirai, Y. Nagakawa, N. Sakurai, H. Haba, H. Matsuzaki, H. Tsuruta, Y. Moriguchi : Goldschmidt2017 (2017)
- "A new approach for reconstructing the ^{131}I -spreading triggered by the FDNPS accident in 2011"
- 13) Y. Oura, M. Ebihara, N. Shirai, H. Tsuruta, T. Nakajima, Y. Moriguchi, T. Ohara, Y. Nagakawa, N. Sakurai, H. Haba and H. Matsuzaki : Goldschmidt2017 (2017)
- " $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ ratios for atmospheric particular matters collected just after TEPCO FDNPP accident"
- 14) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原充, 大原利眞, 森口祐一, 中島映至 : 日本地球惑星科学連合大会 (2017)
- 「福島第一原発近傍の2地点におけるSPM計使用済みテープろ紙の分析による放射性核種の動態」
- 15) 小野崎晴佳, 小野貴大, 飯澤勇信, 阿部善也, 中井泉, 足立光司, 五十嵐康人, 大浦泰嗣, 海老原充, 宮坂貴文, 中村尚, 鶴田治雄, 森口祐一 : 日本地球惑星科学連合大会 (2017)

「SPMテープ濾紙より分離された放射性エアロゾルの放射光X線複合分析による化学・物理的性状解明」

- 16) 北山 響、森野 悠、滝川 雅之、中島 映至、速水 洋、永井 晴康、寺田 宏明、斉藤 和雄、新堀 敏基、梶野 瑞王、関山 剛、Didier Damien、Mathieu Anne、大原 利眞、鶴田 治雄、大浦 泰 嗣、海老原 充、柴田 徳思：日本地球惑星科学連合大会（2017）
「大気モデル相互比較に基づく福島第一原発事故起源の¹³⁷Csの動態解析」
- 17) 小野崎晴佳、小野貴大、飯澤勇信、阿部善也、中井泉、足立光司、五十嵐康人、大浦泰嗣、海老原充、宮坂貴文、中村尚、鶴田治雄、森口祐一：第53回X線分析討論会（2017）
「放射光X線分析により明らかになった福島第一原発事故由来の放射性粒子の性状および飛散状況」
- 18) 大浦泰嗣、鶴田 治雄、海老原充、大原利眞、中島映至、森口祐一：第54回アイソトープ・放射線研究発表会（2017）
「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析：（その1）放射性セシウムの定量」
- 19) 海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、鶴田治雄、森口祐一、永川栄泰、櫻井昇、羽場宏光、松崎浩之：第54回アイソトープ・放射線研究発表会（2017）
「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析（その2）：放射性ヨウ素（I-129）の定量」
- 20) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、白井直樹、松崎浩之、大原利眞、森口祐一、中島映至：第54回アイソトープ・放射線研究発表会（2017）
「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析（その3）：放射性セシウム と放射性ヨウ素の大気中での動態」
- 21) 森野悠、北山響、滝川雅之、中島映至、速水洋、永井晴康、寺田宏明、斉藤和雄、新堀敏基、梶野瑞王、関山剛、Damien Didier、Anne Mathieu、大原利眞、鶴田治雄、海老原充、大浦泰嗣、柴田徳思：気象学会2017年度春季大会（2017）
「大気モデル相互比較に基づく福島原発事故起源の¹³⁷Csの動態解析」
- 22) 森口祐一、鶴田治雄、海老原充、大浦泰嗣、白井直樹、五藤大輔、高木麻衣、中山祥嗣、森野悠、大原利眞、中島映至：日本放射線影響学会第60回大会（2017）
「I-129測定による事故後初期の大気中I-131濃度の再現と吸入被ばくの推計」
- 23) 森口祐一、鶴田治雄、海老原充・大浦泰嗣・白井直樹、大原利眞・高木麻衣・森野悠・五藤大輔・中山祥嗣、中島映至：第19回環境放射能研究会（2018）
「初期内部被ばく線量評価のための実測値・推計値の総合解析」
- 24) 海老原充・大浦泰嗣・白井直樹、永川栄泰・桜井昇、羽場宏光、松崎裕之、鶴田治雄、森口祐一：第19回環境放射能研究会（2018）
「大気浮遊粒子試料中のI-129/I-131比」
- 25) 大浦泰嗣・海老原充・白井直樹、松崎浩之、鶴田治雄、森口祐一：第19回環境放射能研究会（2018）
「自動SPM計でのテープろ紙の分析による大気中の福島原発事故由来¹²⁹I濃度」
- 26) 鶴田治雄、海老原充・大浦泰嗣・白井直樹、松崎浩之、森口祐一、大原利眞、中島映至：第19回環境放射能研究会（2018）
「福島第一原子力発電所事故初期の大気汚染監視網 SPM 測定地点における大気中 I-131 濃度の推定」

（３）知的財産権

特に記載すべき事項はない。

（４）「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) NHKスペシャル「メルトダウン File.7 そして冷却水は絞られた～原発事故 迷走の2日間～」(2018年3月17日放送, 放射性セシウムの測定について5分ほど紹介)

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Y. Oura, M. Ebihara, H. Tsuruta, T. Nakajima, T. Ohara, M. Ishimoto, H. Sawahata, Y. Katsumura, and W. Nitta: Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences 15, 15-26 (2015).
A Database of Hourly Atmospheric Concentrations of Radiocesium (^{134}Cs and ^{137}Cs) in Suspended Particulate Matter Collected in March 2011 at 99 Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan
- 2) H. Tsuruta, Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, and T. Nakajima :Scientific Reports 4, 6717 (2014).
First Retrieval of Hourly Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing Filter-tapes of Operational Air Pollution Monitoring Stations.
- 3) 永川栄泰, 鈴木隆司, 金城康人, 宮崎則幸, 関口正之, 櫻井 昇, 伊瀬洋昭 : Radioisotopes 60, 467-472 (2011).
福島第一原子力発電所事故による放射性物質漏えいに係わる都内環境放射能測定及び被ばく線量測定
- 4) H. Haba, J. Kanaya, H. Mukai, T. Kambara and M. Kase : Geochem. J. 46, 271-278 (2012).
One-year monitoring of airborne radionuclides in Wako, Japan, after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident in 2011.
- 5) S. Xu, L. Zhang, S. P. H. T. Freeman, X. Hou, Y. Shibata, D. Sanderson, A. Cresswell, T. Doi, and A. Tanaka : Environmental Science & Technology 49, 1017-1024 (2015)
Speciation of Radiocesium and Radioiodine in Aerosols from Tsukuba after the Fukushima Nuclear Accident
- 6) H. Fujiwara : Science of the Total Environment 566-567, 1432-1439 (2016)
Observation of radioactive iodine (^{131}I , ^{129}I) in cropland soil after the Fukushima nuclear accident
- 7) Y Miyake, H. Matsuzaki, K. Sasa, T. Takahashi : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 361, 627-631 (2015)
Measurement of long-lived radionuclides in surface soil around F1NPP accident site by Accelerator Mass Spectrometry
- 8) Y. Muramatsu, H. Matsuzaki, C. Toyama, T. Ohno : Journal of Environmental Radioactivity 139, 344e350 (2015)
Analysis of ^{129}I in the soils of Fukushima Prefecture: preliminary reconstruction of ^{131}I deposition related to the accident at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP)
- 9) 西原 健司 岩元 大樹 須山 賢也 : JAEA-Data/Code 2012-018.
福島第一原子力発電所の燃料組成評価.
- 10) 野口 宏, 村田 幹生, 鈴木 克巳 : 保健物理 25, 209-219 (1990)
大気エアロゾルに対する放射性元素状 ヨウ素ガスの吸着特性

Ⅱ-3 初期被ばく評価の精緻化のための大気中放射性核種の時空間分布の再現

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構

地球観測研究センター

中島 映至

<研究協力者>

一般財団法人リモート・センシング技術センター

研究開発部

鶴田 治雄

国立研究開発法人国立環境研究所

地域環境研究センター

五藤 大輔

名古屋大学

大学院工学研究科

佐藤 陽祐

東京大学

大気海洋研究所

打田 純也

平成27～29年度累計予算額：18,935千円（うち平成29年度：6,203千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨]

大気環境常時測定網の浮遊粒子状物質(SPM)測定地点における、福島第一原子力発電所（第一原発）事故直後の大気中Cs-137濃度データ(サブテーマ2)を用いてその時空間分布図を作成するとともに、第一原発近傍の2地点のCs-137濃度を解析して、これまでよくわからなかった第一原発近傍でのCs-137の動態が初めて明らかになり、19個の放射性プルームを確認した。また、これらの観測データを用いて、複数の大気輸送沈着モデルによるシミュレーション結果を比較検証した。モデルは従来よりも高精度の気象および放出量データを用いたことで、どのモデルもプルームを概ね再現でき、モデルの様々な過程に起因する誤差要因を解析することが可能となった。しかし、最適なモデル・データの特定は難しいため、複数のモデルを最適に組み合わせたマルチモデル・アンサンブル手法を導入することが必要である。つぎに、SPM地点における粒子状I-129濃度データ(サブテーマ2)とCs-137濃度との関係を解析した結果、3つのグループに大別され、第一原発の近傍では両データのバラツキは大きく、遠方になるほどバラツキが少なくなり、インベントリのI-129/Cs-137の比に近い値で推移した。さらに、気体状と粒子状を合計したI-131濃度の推定手法を、I-129濃度から推定した粒子状I-131濃度と、事故直後に測定された既存のI-131濃度とCs-137濃度データを組み合わせることにより、新たに構築した。その推定手法を用いて、SPM地点でプルーム中のI-131濃度を計算した結果、遠方の福島県中通りでは、気体状I-131濃度と粒子状I-131濃度がほぼ1：1で平衡状態に達したと推定されたが、第一原発近傍では気体状I-131濃度が粒子状I-131濃度よりもはるかに高く推定された。これらの結果は、サブテーマ5に提供されて初期の内部被ばく線量評価およびUNSCEARなどの報告書で、活用されることが見込まれる。

[キーワード]

SPM地点、放射性ヨウ素、放射性セシウム、時空間分布、大気輸送沈着モデル

1. はじめに

福島第一原子力発電所事故直後における大気中の放射性セシウムや放射性ヨウ素の実測値は非常に少なく、放射性プルームの動態や、大気輸送沈着モデルによるシミュレーション結果の不確実性も大きかった。その後、SPMテープろ紙中の放射セシウムを測定することにより、プルーム中でのセシウム137（Cs-137）濃度の時空間分布を再現することができた。一方、半減期が8日と短いヨウ素131（I-131）濃度に関しては、事故直後の大気中濃度の推定手法を開発することが大きな課題となっていた。また、

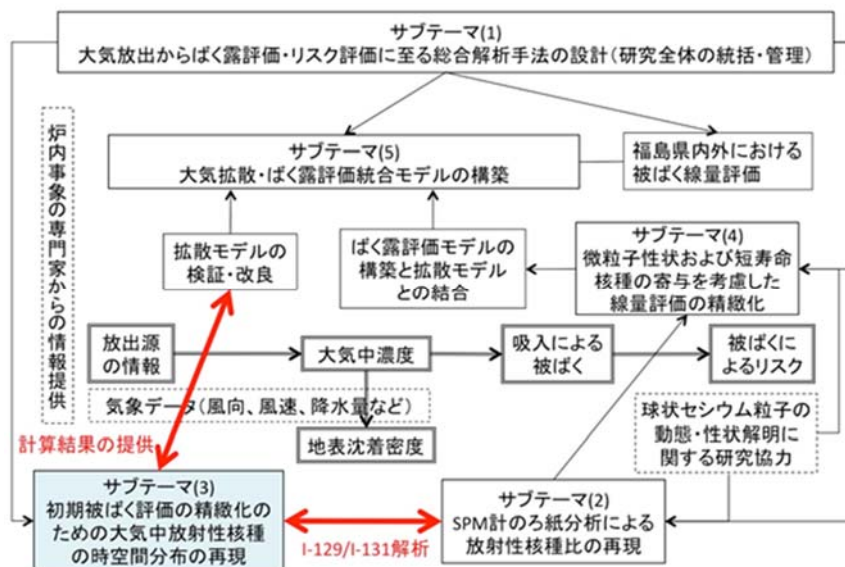
Cs-137に関して、新しく得られた測定結果を用いた、大気輸送沈着モデルのシミュレーション結果の検証は十分には行われていなかった。

2. 研究開発目的

事故後初期に大気中に放出された物質の吸入に伴う健康リスクの評価をより適正に行うため、実験科学的手法と数理的手法の組み合わせによる学際的研究によって、セシウムと、ヨウ素等の他の放射性核種との比率や、微粒子などに含まれる放射性核種の存在形態を明らかにし、事故後初期の放射性物質の精緻な時空間分布に基づく被ばく線量評価手法を開発する。これによって事故由来の放射性物質による健康リスク評価の高度化を可能とする。サブテーマ3では、他サブテーマの成果と先行調査研究の結果を用いて大気中放射性セシウム濃度および放射性ヨウ素濃度の時空間分布を再現する。直接関連のあるサブテーマの役割は以下の通りである（図(3)-1）。

サブテーマ2：事故後初期にテープ状ろ紙に捕集された微粒子の試料を分析し、初期被ばく評価で重要な放射性セシウム(Cs-134とCs-137)と長寿命核種ヨウ素129(I-129)の濃度を測定する。これらのデータの提供を受けて、サブテーマ3では、粒子中の放射性物質の性状解明を行う。

サブテーマ5：これを用いて大気輸送沈着モデルを改良し、これまでの地表沈着量の空間分布の再現性だけでなく、大気中濃度の時空間分布についても再現性を高める。そして、サブテーマ4の成果を受けて、大気輸送沈着モデルとばく露評価モデルを統合する。



図(3)-1 サブテーマ3と他のサブテーマとの連携

3. 研究開発方法

本サブテーマで取り扱う初期被ばく評価の精緻化のための大気中放射性核種の時空間分布の再現のために、大気汚染常時監視網での放射性核種測定データと大気輸送沈着モデルを用いた次の3課題について研究を行った。

(1) 事故直後の大気中放射性核種の測定データの収集と解析

(1) - 1 大気中放射性セシウムの時空間分布の作成

全国の自治体では、大気汚染防止法により、大気環境常時監視網で、大気中のSO₂やNO_xとともに、浮遊粒子状物質(SPM)の質量濃度も多数の地点で測定しており、図(3)-3に、東日本での事故前の平常時における測定網を示した。この測定は、住民の健康保護などを目的としているので、都市や工業地帯に多く設置されている。サブテーマ2で、これらのSPM計で使用済みのテープろ紙をGe半導体検出器で放射性セシウムを測定しており、その1時間毎のデータを用いて、データ集論文で公開した99地点のCs-137濃度を解析するとともに、1時間毎に空間分布図を作成した。その後、福島県から、第一原発から20km以内に設置されていた2地点（双葉と楡葉）について、東日本大震災後も短期間稼働していた

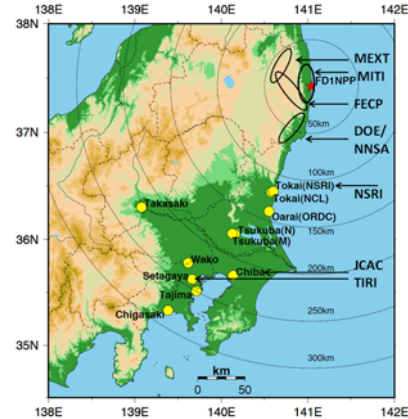
SPM 計用使用済みテプろ紙が提供された。そこで、地震や津波などの影響があるのかどうか、また、大気が適切に採取されていたかどうかを慎重に検討した結果、正常に採取されていたと判断して、これら2地点のSPMろ紙を分析して、解析を行った。これらのデータは、大気輸送沈着モデルの検証用データとして、サブテーマ5に提供した。

(1) - 2 既存のデータ解析による事故直後のプルーム中のI-131とCs-137の解析

福島第一原子力発電所事故直後に、JAEA-原子力科学研究所(NSRI)¹⁾を中心としたいくつかの研究機関などが独自に大気中の放射性物質を採取・測定したデータが公開されているので、そのデータ解析を行った。この解析では、SPM テプろ紙から得られた1時間毎のデータと比較可能な数時間以内に測定されたデータ、あるいは気体状と粒子状のI-131濃度(10%のTEDAが添着されたろ紙を使用したもの)が測定されたデータを対象とした。それらの機関とその位置を表(3)-1と図(3)-2に示した。これらのデータは、採取時間が1時間前後と短時間であり(約1日のJCACを除く)、1時間毎に連続採取されたSPM テプろ紙との定量的な比較が可能である。なお、関東地方では、独自に測定した機関は、図(3)-2の黄色の地点で示すように、11機関あるが、NSRIを除いて、大気採取時間は3時間から2日間と長いので、今回の解析では用いなかった。また、FECFの公表データは、I-131濃度だけでCs-137濃度は示されてなかったため、今回は使用しなかった。さらに、I-131は気体状と粒子状とが存在するが、これらの採取状況も、表(3)-1に示した。気体状と粒子状を別々に分析した機関は、NSRIとJCAC²⁾だけだった(DOE/NNSAのデータは3月22日以後なので、使用しなかった)。

表(3)-1 事故直後に福島県と関東地方で独自に短時間で大気採取・放射性核種分析をした機関

採取・測定機関	略称	測定場所(地点数)	大気採取時間(採取回数/日)	解析期間	採取物質(気体、粒子)
東京都立産業技術研究センター	TIRI	東京都世田谷区(1)	1-8時間(3-24回/日)	3月15-23日	粒子
JAEA-原子力科学研究所	NSRI	茨城県東海村(1)	0.3-12時間(2-10回/日)	3月15-23日	気体、粒子
JAEA-核燃料サイクル工学研究所	NCL	茨城県東海村(1)	3-12時間(2-5回/日)	3月15-23日	気体、粒子
JAEA-大洗研究開発センター	ORDI	茨城県大洗町(1)	3-12時間(2-4回/日)	3月20-23日	気体、粒子 (一つにまとめて測定)
日本分析センター	JCAC	千葉県千葉市(1)	24時間(1回/日)	3月15-23日	気体、粒子 (一つにまとめて測定)
経済産業省/福島県災害対策本部	METI	福島県東部浜通り(>10)	10-20分(数回/日)	3月12-13日	気体、粒子 (一つにまとめて測定)
文部科学省	MEXT	福島県東部(>10)	10-20分(数回/日)	3月20-25日	気体、粒子 (一つにまとめて測定)
米エネルギー省/国家核安全保障局	DOE/NNSA	福島県南東部(数地点)	10-20分(数回/日)	3月21-24日	気体、粒子
電気事業連合会	FECF	福島県東部(8)	10-30分(2回/日)	3月17-25日	気体、粒子 (一つにまとめて測定)
東京電力(株)	TEPCO	福島第1, 2原子力発電所(2)	8-20分(1.2回/日)	3月19-25日	気体、粒子



図(3)-2 表(3)-1に示した機関とその測定地点/地域的位置

(2) I-129濃度を用いた大気中I-131濃度の時空間分布の推定手法の開発

まず、テプろ紙の長期保管中の放射性ヨウ素の揮散による損失を考慮して、I-129(a)濃度(aは粒子状を意味する)を補正した(以後のI-129(a)濃度は、補正済みの濃度である)。次に、テプろ紙中のI-129(a)濃度からI-131(a)濃度を推定する手法を、サブテーマ2で得られた結果をもとに、決定した。なおI-129(a)濃度は粒子状だけなので、これだけでは、気体状のI-131(g)濃度(gは気体状を意味する)を推定することはできない。そこで、I-129(a)濃度だけでなく、前述した既存の事故直後のCs-137濃度とI-131濃度の関係を用いて、I-131(a+g)濃度を推定する手法をあらたに開発した。これらを用いて、福島県を中心としたSPM地点でのI-131(a+g)濃度を推定し、その時系列データを作成した。また、I-131(a)濃度とI-131(g)濃度との関係についても推定し、既往の知見と比較検討した。

(3) 複数の大気輸送モデルによるシミュレーション結果の比較検討

大気中Cs-137の濃度分布の再現性向上を目指し、東京大学大気海洋研究所・国立環境研究所と共同で開発を進めている領域版NICAM(Diamond-NICAM; Uchida et al., 2017)³⁾を中心として、大気輸送沈着モデルの高精度化を行ってきた。Cs-137の放出量データは、Terada et al. (2012)⁴⁾およびKatata et al., (2015)⁵⁾を用いた。モデル分解能は水平3kmあるいは5km、鉛直40層(最下層15m、高度ほぼ2km以下を20層)で

ある。NICAMはモデルの気象場を直接計算することが可能であるが、気象場の不確実性を軽減するために、ナッジング手法を取り入れており、ナッジングする気象場は気象庁Mesoscale model (MSM) および気象庁気象研究所で開発されたNHMモデルと結合した局所アンサンブルカルマンフィルタによって計算されたNHM-LETKFデータ (Sekiyama et al., 2017) ⁶⁾を用いた。

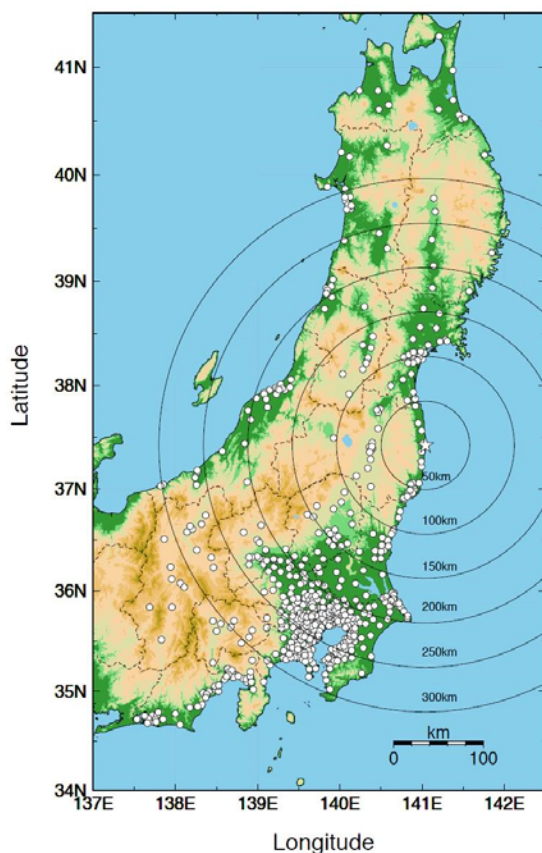
4. 結果及び考察

(1) 事故直後の大気中放射性核種の測定データの収集と解析

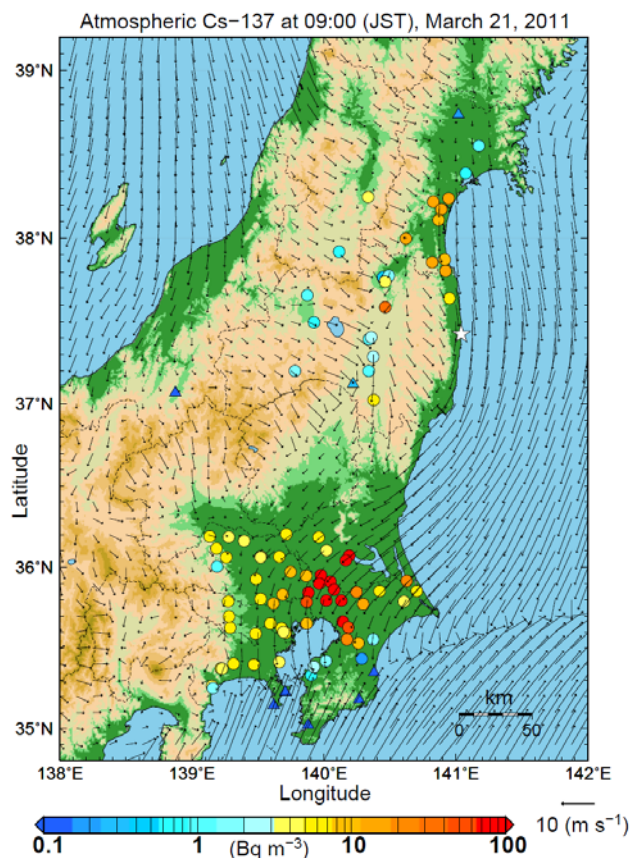
(1) - 1 事故直後の放射性セシウムの時空間分布

図(3)-3に、東日本での事故前の平常時における測定網を示した。これらのSPM地点のうち、すでに40地点のデータ解析結果を報告⁷⁾したが、その後のデータ集論文⁸⁾で公開した99地点のCs-137濃度を、1時間毎に空間分布図を作成したので、その1例を図(3)-4⁹⁾に示した。これらの図から、いつ、どの地域に、どのくらいの高濃度が、どれだけの期間、測定されていたかが、初めて明らかになった。また、この時空間分布図に、3時間毎に、気象庁の客観解析データの1000hPaの風向風速を重ね合わせたので、高濃度の放射性物質を含むブルーム/汚染気塊が、どのように輸送されたかが、はっきりと示された。その結果、これまで明らかにできた10個のプリューム(P1-P9, p2)を確認することができた⁹⁾。さらに、原発近傍の2地点(双葉と楢葉)の放射性セシウムデータを解析して、10個に加えて、さらに9個のプリュームを確認できた (図(3)-5) ¹⁰⁾。

次に、すでに作成した福島県内でのSPM地点でのCs-137濃度の空間分布を、双葉と楢葉のCs-137濃度を追加して、新たに作成したので、その例を図(3)-6に示した。福島県内のSPM地点でCs-137濃度が最も高かった、浜通りの双葉と楢葉のCs-137濃度の1時間毎の変化⁹⁾を、原町のデータとともに図(3)-7に示した。



図(3)-3 事故前の平常時に稼働していた東日本の各自治体のSPM地点 (白丸)。

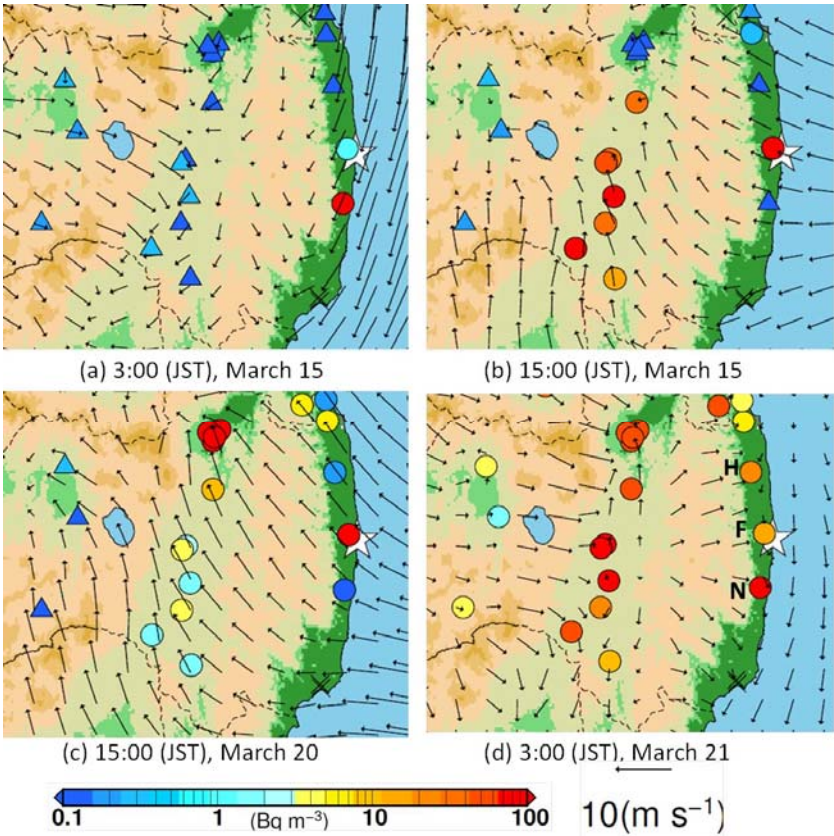


図(3)-4 SPM地点の大気中Cs-137濃度の時空間分布の1例(2011年3月21日9時)。なお矢印は気象庁の客観解析データで1000hPaの風向風速を重ね合わせた。

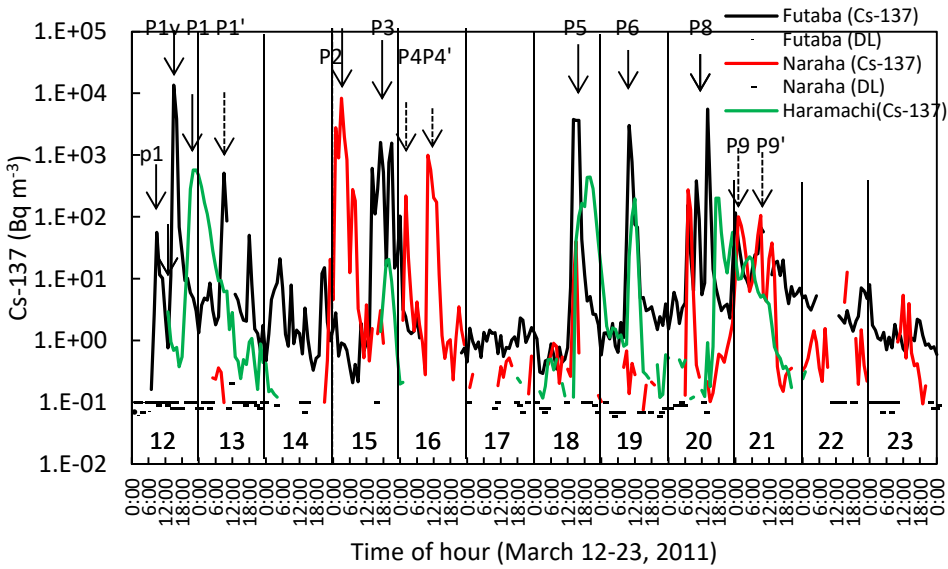
Plume No.	Day of March, 2011															Range of plumes			Source	Ref.
	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	Hamadori	Nakadori	Kantou	Unit		
																North	South			
p1	○														○			1	this study	
P1v	●														●			1	this study	
P1	●	→													●			1	1	
P1'		●													●			1	this study	
p2				○												○	○	1 and/or 3	2	
P2				●											●		●	2 and/or 3	1	
P3				●	→										●	●		2 and/or 3	1	
P4					●										●		●	2 and/or 3	1	
P4'					●										●			2 and/or 3	this study	
P5							●								●			2 and/or 3	1	
P5'							●									○		2 and/or 3	this study	
P6								●							●	●		2 and/or 3	1	
P7									○								○	2 and/or 3	1	
P8									●	→					●		●	2 and/or 3	1	
P8'									●							●		2 and/or 3	this study	
P9										●					○	●	●	2 and/or 3	1	
P9'										●						●		2 and/or 3	this study	
P10											●				●			1	this study	
P11												●			●	●		2 and/or 3	this study	

No.: Number of major plumes transport from the FD1NPP just after the accident.
Hamadori, Nakadori, and Kantou: The location of these areas is shown in Figs. 1b and 1c.
● : Maximum ¹³⁷Cs concentrations ≥ 100 Bq m⁻³. ○ : Maximum ¹³⁷Cs concentrations < 100 Bq m⁻³.
→: High ¹³⁷Cs concentrations continued to the following morning. ● : Precipitation was observed in the area.
Ref. 1: Tsuruta et al., 2014. Ref. 2: Tsuruta et al., 2017. (Tsuruta et al., Geochemical J., 2018: in press)

図(3)-5 双葉と檜葉のCs-137濃度の結果をもとに解析期間中に確認されたプルーム



図(3)-6 福島県内におけるSPM地点でのCs-137濃度の時空間分布図。2011年3月15日(a)3時と(b)15時、2011年(c)3月20日15時と(d)3月21日3時。原町(H)、双葉(F)と檜葉(N)のSPM局の位置も示す。星印が福島第一原子力発電所である。



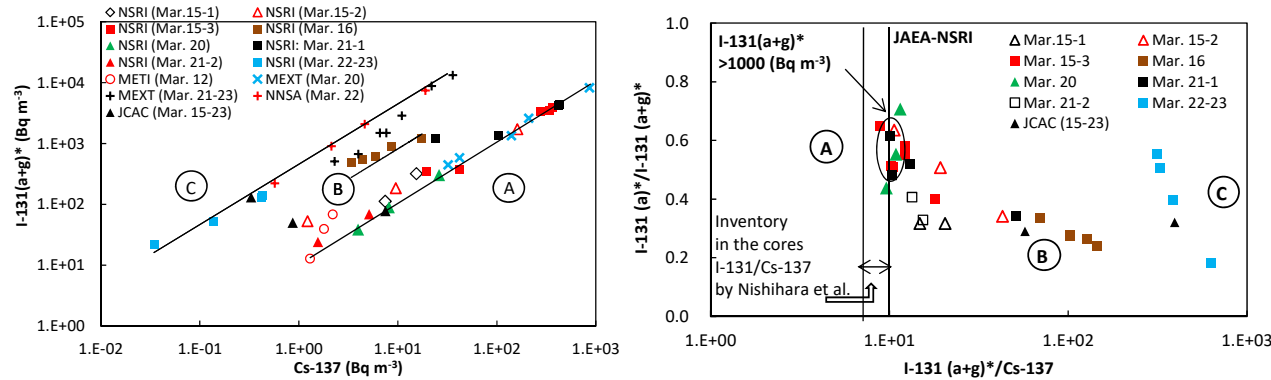
図(3)-7 浜通りの3地点におけるCs-137濃度の2011年3月12日から3月23日における時系列図。双葉(黒線)、桧葉(赤線)、原町(緑線)。プルーム番号は図(3)-5に示したものである。

(1) - 2 既存のデータの解析による事故直後のプルーム中のI-131とCs-137の関係

Cs-137 濃度と I-131(a+g)*濃度(*は、3月11日14時46分の原子炉緊急停止時に半減期補正した値を意味する)の関係は、福島県と関東地方に関係なく、表(3)-2に示すように、プルーム毎に次の3つのグループに大別された。

表(3)-2 既存の公表データの解析による I-131 濃度と Cs-137 濃度との関係

グループ	測定したプルームの月日	I-131(a+g)* / Cs-137	I-131(a) / I-131(a+g)*
A	15日(P2)、20日(P7、P8)、21日午前中(P9)	10	0.5
B	16日(P4)	70	0.3
C	21日午後以降	360	0.4



図(3)-8 (左)福島県東部(MEXT, METI, DOE/NNSA)と茨城県東海村(NSRI)及び千葉市(JCAC)での Cs-137 濃度と I-131(a+g)*濃度の散布図。(2011年3月12-23日) (右) NSRIとJCACでの I-131(a+g)* / Cs-137 と I-131(a) / I-131(a+g)*の散布図。

A グループは、3月15日、20日と21日午前中のプルームで、それらのデータのほとんどは、I-131(a+g)* / Cs-137 (以下 R(I/Cs)*と示す)は10に近かった。なお Nishihara ら¹¹⁾のインベントリによれば、原子炉の2号機と3号機の I-131/Cs-137 は、各9.7と9.2なので、Aのグループはこの値に近く、2号機あるいは3号機から放出されたと推測される。一方、グループBは、3月16日のプルームで、約70と

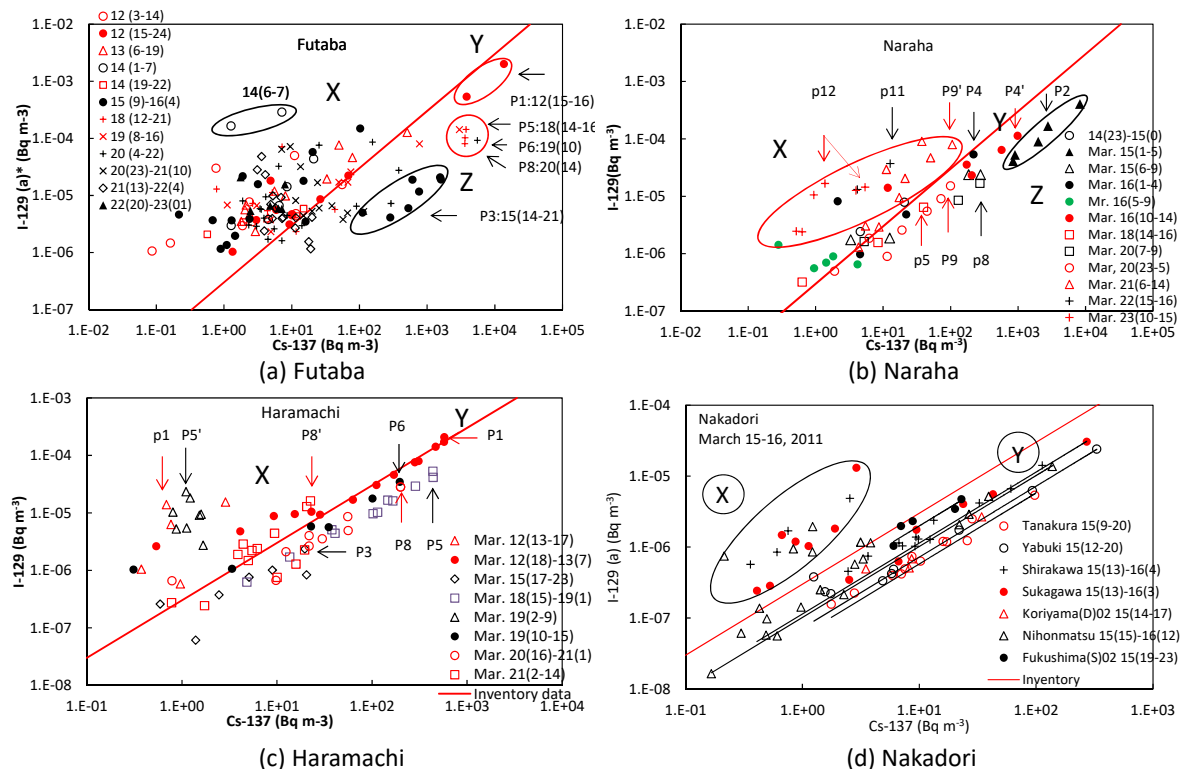
A グループよりも比がずっと大きく異なった。さらに、3月21日午後以降のデータは約360と、AとBグループに比べて非常に大きかった。この結果は、関東地方の茨城県東海村と千葉市のJCACでも、Cs-137とI-131(a+g)*との関係が一致したので、関東地方でも広範に得られていたと推察した。これらの違いは、放射性物質の原子炉から大気中への放出時の違いによるものと推測される。なお、3月12日のブルーム中の測定データは存在しなかったが、この日に測定された福島第一原子力発電所(FD1NPP)周辺での貴重なデータ¹²⁾によれば、午前中に直接漏えいした影響を受けてI-131(a+g)濃度とCs-137濃度はやや高く(図(3)-8)、3月12日のブルーム中では、この比の平均を参考にして、I-131(a+g)* / Cs-137を25と設定した。

次に、全放射性ヨウ素(I-131(a+g)*)に占める粒子状I-131(a)*の比も、図(3)-8に示すように3グループに大別された。Aグループでは、3月15日、20日と21日午前中のブルームで、平均して約0.5で、気体状と粒子状とが1対1だった。また、3月16日のグループBでは平均0.3で、気体状のほうが粒子状よりも大きかった。さらに3月21日午後以降のCグループでは平均0.4だったが、バラツキが大きかった。これらのデータは、原発から距離が遠かったので、気体状とガス状は平衡に達していたと推測した。なお、放出時の気体状と粒子状の比は、実測や解析データがなく、これらの実測した比の値を、放出時に当てはめることは不確実性が大きいことがわかった。なお、3月12日のブルーム中でのデータがなかったため、前述したように、独自に推測した。

(2) I-129濃度を用いた大気中I-131濃度の時空間分布の構築手法の開発

(2) - 1 I-129濃度とCs-137濃度との関係

サブテーマ2から提供されたSPM地点のI-129濃度を用いて解析するに際して、テープろ紙の長期保存による損失を考慮して、野口ら¹³⁾の結果をもとに、実測されたI-129(a)濃度の約1.4倍した値を、I-129濃度データとして用いた。

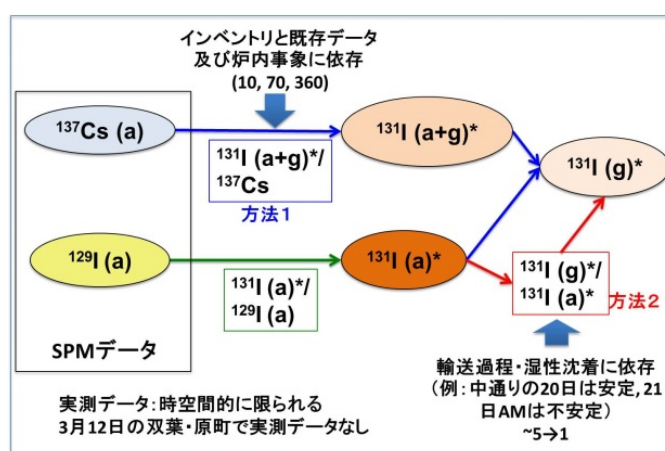


図(3)-9 (a)双葉、(b)楢葉、(c)原町、(d)中通りでのCs-137濃度とI-129(a)濃度との関係。用いたデータは、2011年3月12日から3月23日までのものである。

FD1NPP の近傍に位置する SPM 局における、2011 年 3 月 12-23 日の主なプルーム中の Cs-137 濃度と I-129(a)濃度(以後、粒子状物質を(a)と示す)との関係を、図(3)-9 に示した。図中のインベントリとは、事故時点で格納容器内に存在した放射性核種の推定量¹¹⁾であり、 $I-129(a+g)/Cs-137$ は、1, 2, および 3 号機の平均値で 3.0×10^{-7} である。これら 4 地点に共通して、このインベントリ比に近い値で変化するグループ(Y)と、相対的に $I-129(a) \gg Cs-137$ のグループ(X)、および $I-129(a) \ll Cs-137$ のグループ(Z)に大別された。FD1NPP から約 3km 北西に位置する双葉 SPM 局では、これらのバラツキが大きく、特に Z のグループが多かった。FD1NPP から南方 17km に位置している檜葉では、バラツキが少なくなったが、Z のグループも存在した。一方、FD1NPP から 25km 北方に位置している原町では、これら 2 地点よりバラツキのデータが少なく、多くのデータが Y のグループだった。さらに、FD1NPP から約 50km 以上遠くに位置する中通りの SPM 地点では、インベントリ比よりもやや少ない比で、インベントリ比に沿って変化し、バラツキのあるデータは非常に少なかった。これらから、FD1NPP に近い地点ほど発生源の影響を直接受けたために、バラツキが大きく、遠方から遠いほど、バラツキが小さくインベントリ比に近い値で変化したと推定される。なお、Z グループでは、 $I-131(a)^*$ より $I-131(g)^*$ 濃度のほうがはるかに高く、まだ気体状と粒子状との間に平衡関係に達していないと推定され、また X グループでは、なんらかのプロセスで選択的に Cs-137 が除去されたか $I-131(a)^*$ が増加したためと推測される。本報告では、Y と Z のグループを中心に、 $I-131$ 濃度を推定した結果の概要を述べる。

(2) - 2 $I-131$ 濃度の推定手法の構築

補正した $I-129(a)$ 濃度から $I-131(a)^*$ 濃度への変換は、3 月 15 日プルーム(P2)中での、東京都立産業技術研究センター¹⁴⁾が実測した $I-131(a)$ 濃度と、サブテーマ 2 で測定され補正した $I-129(a)$ 濃度との関係式 ($I-131(a)^* = 3.68 \times 10^7 \times I-129(a)$)を用いた。次に、SPM 地点での $I-131(a+g)^*$ 濃度の推定は、図(3)-10 に示すように、次の二つの異なった方法で求めた。



図(3)-10 $I-131$ 濃度の推定手法

- 1) 表(3)-2 の関係を参考に用いて $I-131(a+g)^*$ 濃度を SPM 地点の実測の Cs-137 濃度から推定し、その後、 $I-129(a)$ から $I-131(a)^*$ 濃度を求め、最後に $I-131(g)^* = I-131(a+g)^* - I-131(a)^*$ を求めた。その結果と図(3)-8 の関係とが整合しているかどうか検討した。
- 2) 表(3)-2 の関係から、 $I-131(a)^*$ と $I-131(g)^*$ との比を与えて、両者を合計して $I-131(a+g)^*$ を求めた。そして、実測の Cs-137 濃度から $I-131(a+g)^*/Cs-137$ を求め、図(3)-8 および表(3)-2 の関係と整合性があるかどうかを検討した。

なお、プルーム中の $I-131$ に関する実測値がない場合、たとえば 3 月 12 日のプルームでは、これらのデータを参考にして決定した。また本報告では、その目的のためにプルーム中の Cs-137 濃度のピーク付近に焦点をあてたので、その前後の濃度の低い時の $I-131(a+g)^*$ 濃度の信頼性は低いことに注意が必要である。また、Cs-137 濃度は低いのに、 $I-129(a)$ 濃度だけが急上昇したときは、 $I-131(a)^*$ 濃度は計算したが、 $I-131(a+g)^*$ 濃度は、その推定方法を十分に検討していないので、示さなかった。

(2) - 3 福島県の主な SPM 地点での I-131 濃度の推定

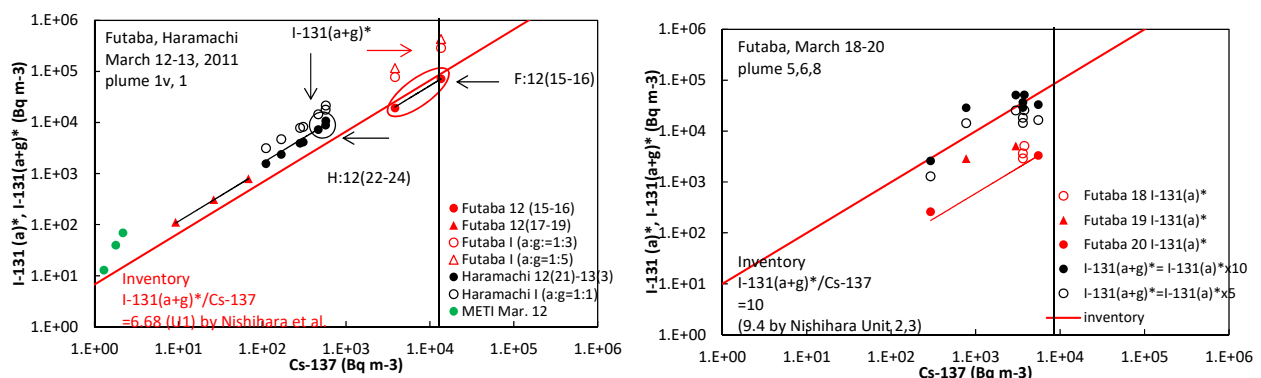
1) 双葉と原町

双葉では3月12日15時に1号機爆発(15時36分)直前のベントで放出されたプルーム(P1v)が到達した。一方、原町では1号機爆発後の12日夜間にプルーム(P1)が到達した。炉内でインベントリ比を変化させる事象が起こったあとに大気中に放出された場合は、インベントリ比とは異なった

I-131(a+g)*Cs-137 比になったと推測される。したがって、I-131(a+g)*Cs-137 は、どちらも1号機のインベントリ比約7より大きいと推測した。前述したように、3月12日は、既存のI-131(a+g)濃度の実測値がプルーム中では存在していなかったが、METIのデータを参考にして、インベントリ比より大きな値を設定した。これによれば、I-131(a+g)*=340,000 Bq m⁻³と推定され、I-131(a)* : I-131(g)*は約1:4となった。これから、I-131(a)*とI-131(g)*とは、FD1NPPから約3kmと近傍なので、まだ平衡に達していないと仮定した。これらの感度解析結果を図(3)-11に示した。I-131(a)* : I-131(g)*=1:3、あるいは1:5と仮定すると、I-131(a+g)*Cs-137=20あるいは30となり、I-131(a+g)*濃度は、それぞれ286,000あるいは430,000 Bq m⁻³と推定された。これらから、I-131(a+g)*濃度は不確実性が大きく、今後は、Katataら⁵⁾による放射性ヨウ素のFD1NPPからの放出量推定の再検討などを、炉内事象の専門家とともに行う必要がある。

一方、1号機の水素爆発後に原町で観測されたプルーム(P1)中のI-131(a)*Cs-137は、すでに実測値でインベントリ比を超えていたのでその比を使用できず、仮に気体から粒子への変換が平衡に達したと仮定すると、I-131(a)*:I-131(g)*=1:1としてI-131(a+g)*Cs-137は約30となった。なお、I-131(a)*:I-131(g)*=4:1と仮定するとI-131(a+g)*Cs-137は20となった。これらの推定値は、双葉のプルーム中での推定値と、おおむね一致した。

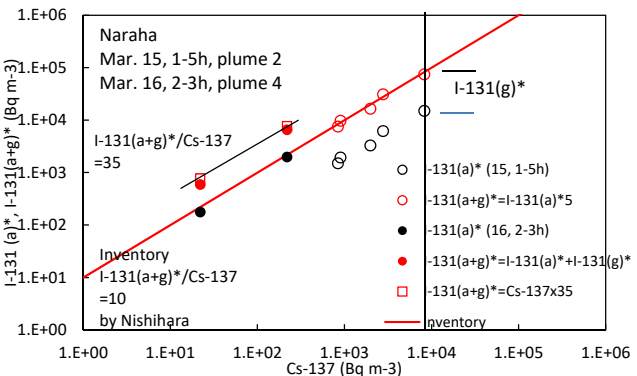
一方、双葉では3月18-20日にもCs-137の高濃度が測定されており、仮にI-131(a+g)*濃度をI-131(a+g)*Cs-137=10とすると、I-131(a+g)*濃度の推定値は、I-131(g)*濃度がI-131(a)*濃度の5倍あるいは10倍としても、低い場合があった。これらの結果からは、3月18-20日では、I-131の多くは気体状I-131(g)*で放出されたと推定されたが、不確実性は大きく、今後の検討課題である。なお、FD1NPP敷地内では、Cs-137濃度が増加するにつれて気体状I-131(g)*濃度がI-131(a)*濃度よりもはるかに大きくなった。ただし、Cs-137濃度は15-80 Bq m⁻³と低く、プルーム中ではなかったが、これらのデータも今後の検討課題である。



図(3)-11 プルーム中での Cs-137 濃度と推定した I-131(a)*および I-131(a+g)*濃度。(左)双葉と原町での3月12日、(右)双葉の3月18-20日

2) 檜葉

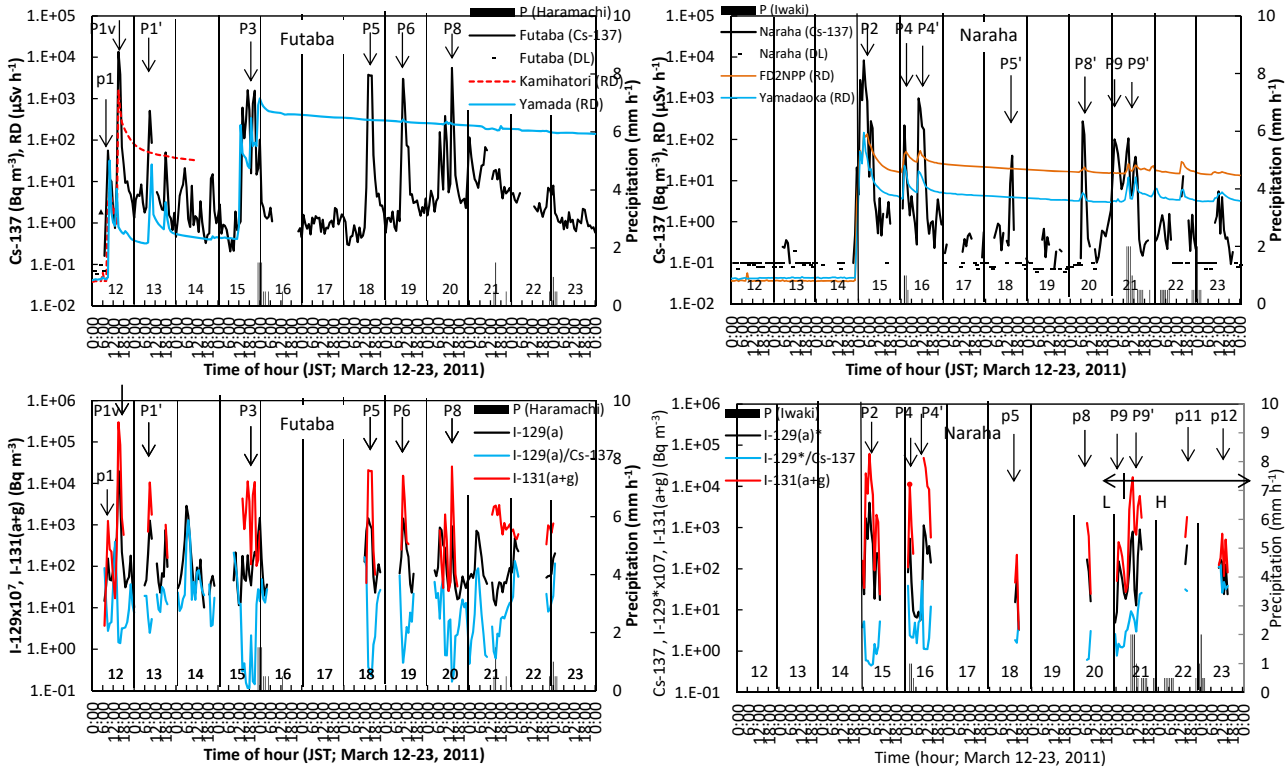
FD1NPPの南方17kmに位置している檜葉局での3月15日のプルーム(P2)は、図(3)-9のグループZに属していた。3月15日のプルームはインベントリ比に従うと仮定して、I-131(a)*Cs-137=10とI-129(a)から求めたI-131(a)*を用いたところ、I-131(a)*:I-131(g)*=1:5となった(図(3)-12)。また、3月16日未明のプルームP4では、I-131(a+g)*Cs-137は、NSRIで70だったので、その半分と仮定したときのI-131(a+g)*濃度と、I-131(a)*:I-131(g)*=1:5と仮定したときのI-131(a+g)*濃度は、ほぼ一致した。これらの結果は、気体状が全体の80%以上を占めていたことになり、FD1NPPにより近い双葉の推定を参考にとすると、実際にはもっと粒子状の割合が多いと予想されるので、やはり、不確実性が大きい結果となった。



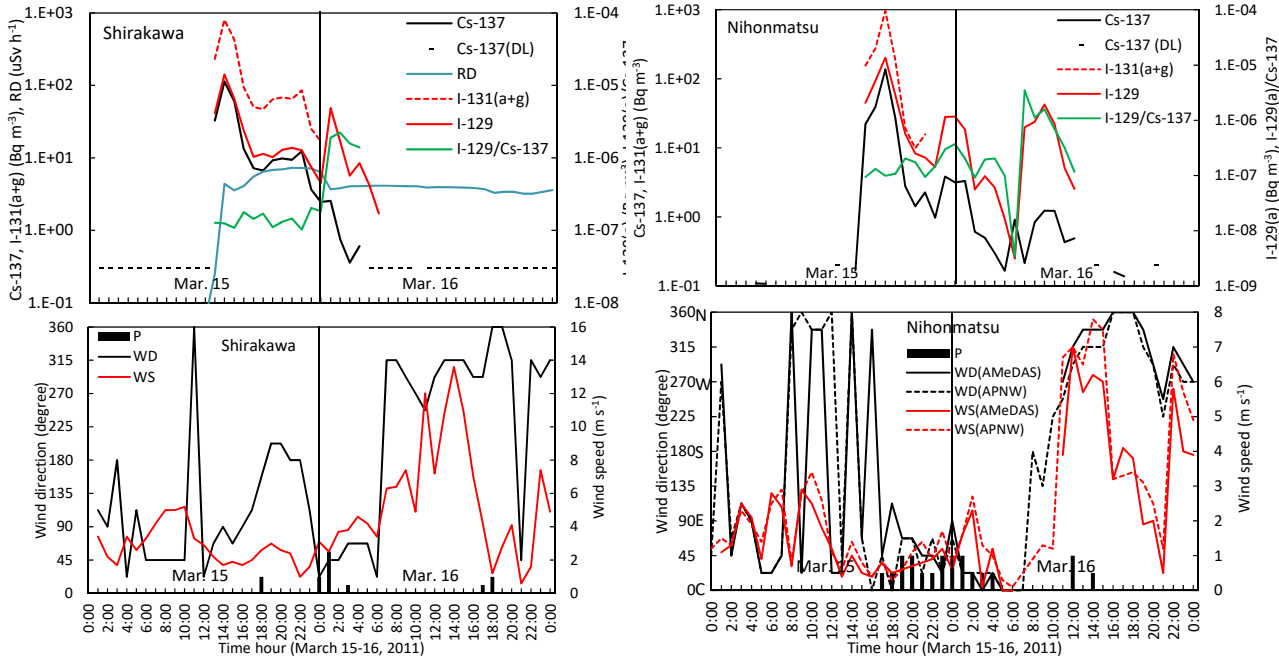
図(3)-12 櫛葉での3月15日と16日のプルーム(P2とP4)中でのCs-137濃度と推定したI-131(a)*およびI-131(a+g)*濃度。

3) 双葉と櫛葉のSPM地点におけるI-131(a+g)*濃度の経時変化

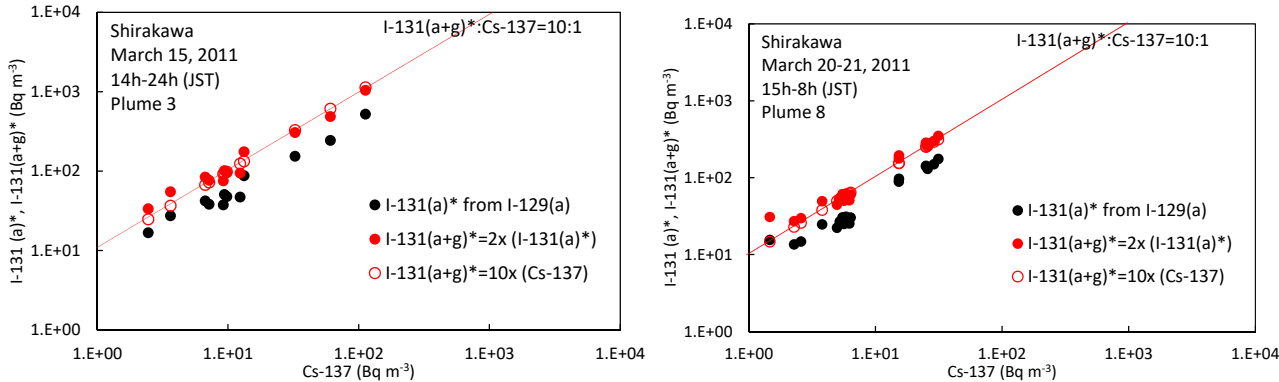
これらの推定手法を用いて、双葉と櫛葉のプルーム中でのI-131(a+g)濃度の時系列を、すでに公表されたCs-137濃度の時系列¹⁰⁾とともに、図(3)-13に示した。なおI-131(a+g)濃度は、先に求めた半減期補正済みのI-131(a+g)*濃度を、観測した時間での濃度に変換した値である。双葉でのI-131(a+g)濃度の最高は、3月12日15時の1号機ベントによる放出時の312,000 Bq m⁻³だったが、3月15日、18日、19日、20日のプルーム中でも10,000 Bq m⁻³を超える高濃度が推定された。一方、櫛葉での最高濃度は3月15日と16日だったが、3月21日の昼頃にも高濃度になった。これは、I-129(a)/Cs-137比が、3月21日7時頃から急上昇したためである。これに対応したデータは、図(3)-8のCグループであり、Cs-137濃度は低かったにもかかわらず、I-131(a+g)*濃度が非常に高くなった。この原因は、炉内での注水作業の影響と推測されるが、今後解明すべき課題である。



図(3)-13 2011年3月12-23日の(上)Cs-137濃度、(下)I-129、I-129/Cs-137、I-131(a+g)濃度の時系列。降水量も双方の図に示してある。比較地点は、(左)双葉と(右)櫛葉。



図(3)-14 (左)白河、(右)二本松での(上)Cs-137、I-129、I-129/Cs-137、I-131(a+g)濃度と、(下)風向風速と降水量の時系列(2011年3月15-16日)。二本松での風向風速は、AMEDAS データだけでなく、大気環境常時測定データも使用した。



図(3)-15 白河での(左)3月15日と(右)3月20-21日の日のプルーム中でのCs-137濃度と推定したI-131(a)*およびI-131(a+g)*濃度

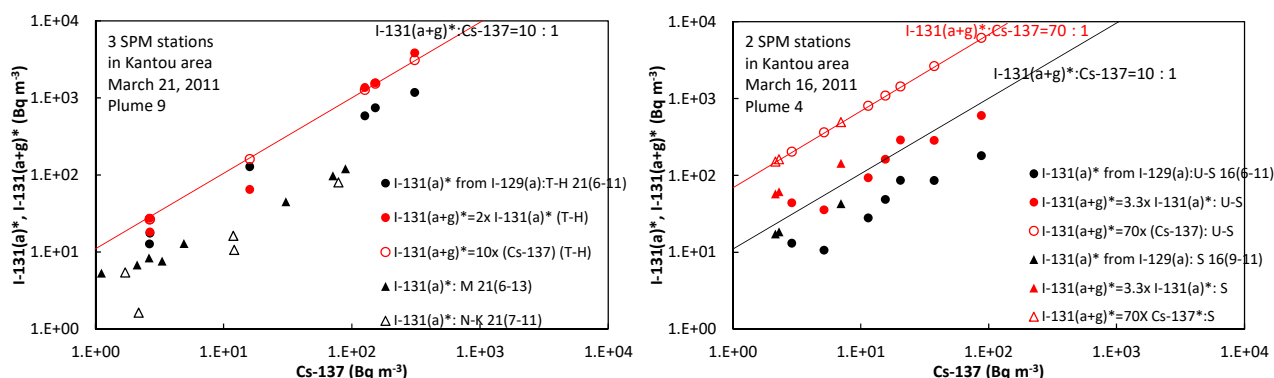
4) 中通り

中通りでの白河と二本松での3月15-16日と3月20-21日における、Cs-137、I-129(a)濃度、I-129(a)/Cs-137、および推定したI-131(a+g)濃度を、図(3)-14に示した。前述したように、中通りに到達したプルームは、FD1NPPより距離が遠いので、I-129/Cs-137は図(3)-9dに示すように、非常に安定していた。これらのプルームは2号機あるいは3号機(または両方)から放出されたと推定されており、放出時やその後の輸送過程の途中で、質的な変化がなかったとすれば、図(3)-8のグループAに属する、と推測された。そこで、I-131(a+g)*濃度の推定手法を、二つの異なった手法で求めて比較した結果を、図(3)-15に示す。それによれば、2号機でのI-131(a+g)*:Cs-137=10と、I-131(a)*:I-131(a+g)*=0.5として求めた結果は、どちらも整合性がとれていたことが明らかになった。しかしこの比は、3月16日の未明に、Cs-137濃度は低かったにもかかわらず、急上昇した。このとき降水があったので、気象条件、とくに大気鉛直混合が、その前より質的に変化したと推測される。このような状態は、図(3)-9のグループXに対応したデータ中でしばしば見られ、XグループでのI-131(a+g)*の推定手法は、気象条件、特に大気鉛直混合や湿性沈着などとの関係を検討する必要がある、今後の課題である。

5) 関東地方

サブテーマ2で分析された、関東地方のI-129(a)濃度データをもとに、3月21日のプルーム(P9)についての、I-131(a+g)*濃度の推定結果を、図(3)-16左に示した。このプルームの中心は、図(3)-4に示したように、北東風により茨城県土浦付近を9時頃通過したので、その付近のSPM地点(T-H)でのI-129(a)濃度から求めたI-131(a)*濃度を図(3)-16に示した。そして、I-131(a+g)*濃度を、これまでに記述した二つの独立した方法で求めた値は、ほぼ一致した。なお、このプルームの両端に位置した埼玉県と千葉県SPM地点(MとN-K)でのI-131(a)*濃度は、中心に位置したT-H地点よりはるかに低く、従って、気体状と粒子状とが1:1として求めたI-131(a+g)*濃度は、I-131(a+g)/Cs-137=10から求めたI-131(a+g)*濃度よりも低かった。このようなプルームの中心とその周辺の地点による違いについては、これからの検討課題である。

一方、3月16日のプルームP4の結果を図(3)-16右に示した。このプルームの中心は、北寄りの風で関東東部沿岸域を北方から南方に向かって通過した^{7,9)}。プルーム中心付近のSPM地点(U-S)でのI-131(a+g)*濃度を、二つの独立した方法で求めたが、どちらも、NSRIでの実測値によるI-131(a+g)/Cs-137=70から求めたI-131(a+g)*濃度よりもはるかに低かった。なお、前述したように、関東地方では千葉市のJCACでも気体状と粒子状のI-131濃度が測定されており²⁾、両者の比及びI-131(a+g)/Cs-137はNSRIの比とほぼ等しかった。そこで、JCAC地点近くのSPM地点(S)でのI-129(a)濃度から求めたI-131(a+g)*濃度は、U-S地点ほどではなかったが、低かった。この原因は、現時点では不明である。



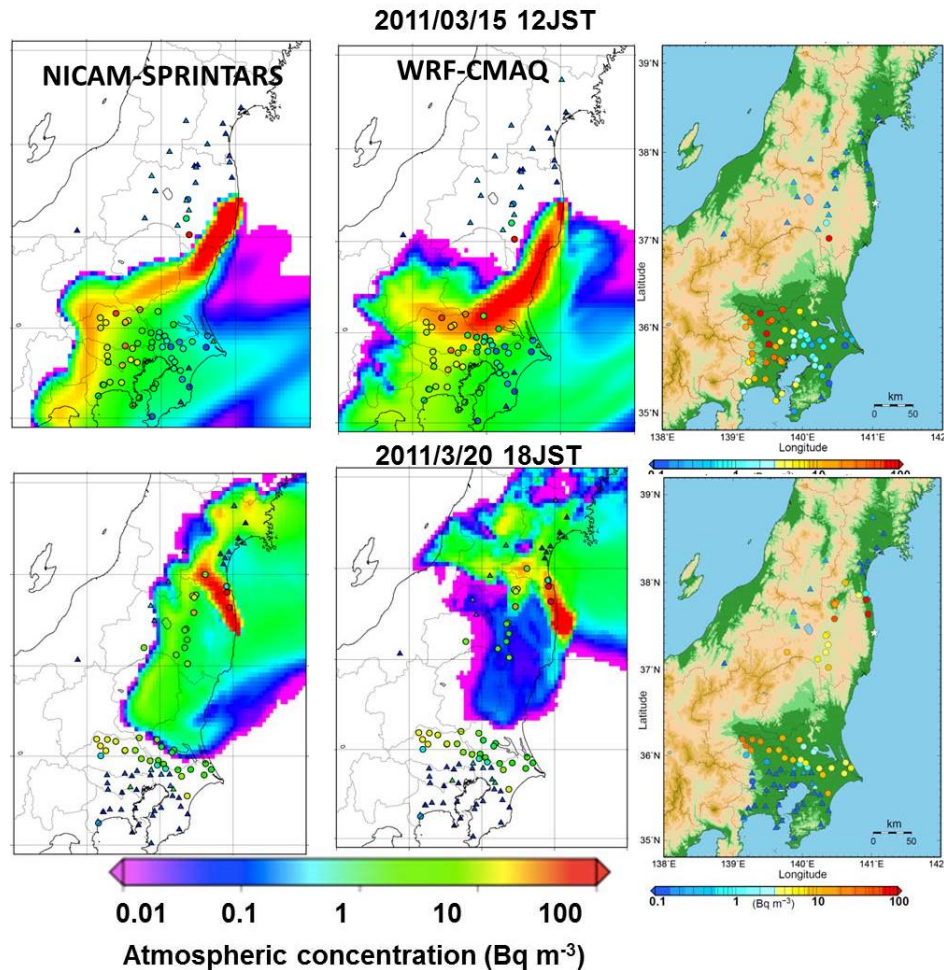
図(3)-16 関東地方の主なSPM地点のCs-137濃度とI-131(a)*およびI-131(a+g)*濃度との関係。(左)3月21日のプルームP9、(右)3月16日のプルームP4。

(4) 複数の大気輸送モデルによるシミュレーション結果の比較検討

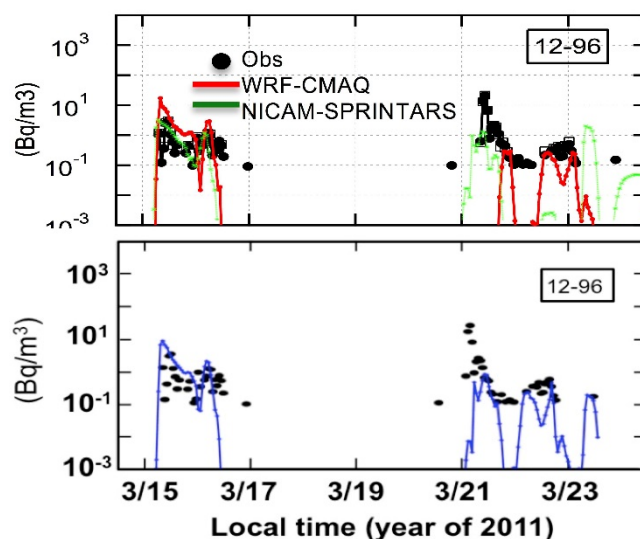
大気輸送・沈着モデルによる放射性物質の動態に関するシミュレーション結果は、文部科学省の航空機モニタリングによる土壌沈着量と比較検討されてきた¹⁾。その後、前述したSPMろ紙中の分析による大気中Cs-137濃度の実測値²⁾が明らかになってきたので、サブテーマ5では、大気輸送モデルの検証とその高度化のために、これらのデータが利用され始めた。そこで本サブテーマではサブテーマ5と協力して、複数の大気輸送モデル間の比較検討を行った。使用したモデルは、国立環境研究所で開発されたWRF-CMAQ領域化学輸送モデルをベースにした放射性物質の大気輸送沈着モデル（以下、単にCMAQモデルと呼ぶ）及び、東京大学で開発されたNICAM-SPRINTARS化学輸送モデルをベースのモデル（以下、単にNICAMモデルと呼ぶ）である。

第一次モデル相互比較では成し得なかった詳細な比較を行うために、CMAQモデルとNICAMモデルの2つのモデルを用い、使用する気象データ（気象庁客観解析気象データであるMSM）およびCs-137放出量データ（Terada et al., 2012）⁴⁾を共通のものにし、モデル間相互比較を行った¹⁶⁾。その比較検討結果の1例を、図(3)-17に示す。3月15日の午前中に関東地方に到達したCs-137のプルームは、どちらもだいたい再現できたが、その到達時間は少し遅れた。なお、実測値によれば、関東地方西部山麓地帯まで輸送され、NICAMモデルでは再現できたが、CMAQモデルでは再現されなかった。また、3月20日に関東地方北部に到達したプルームも、どちらのモデルでも概ね再現されたが、CMAQモデルの方が実測値より低かった。しかし他の事例では、NICAMモデルよりもCMAQモデルの方がよく再現できた場合もあった。

以上の結果から、よく再現できるモデルは、日やブルームにより異なる場合があることがわかったので、性能の異なる二つのモデルを、最適に組み合わせたマルチモデル・アンサンブル手法を検討した。その結果の1例を図(3)-18に示した。このような手法を導入すれば、SPMろ紙の実測値に対応できるモデルによるシミュレーション結果の精度が、一段と向上する見通しが得られた。



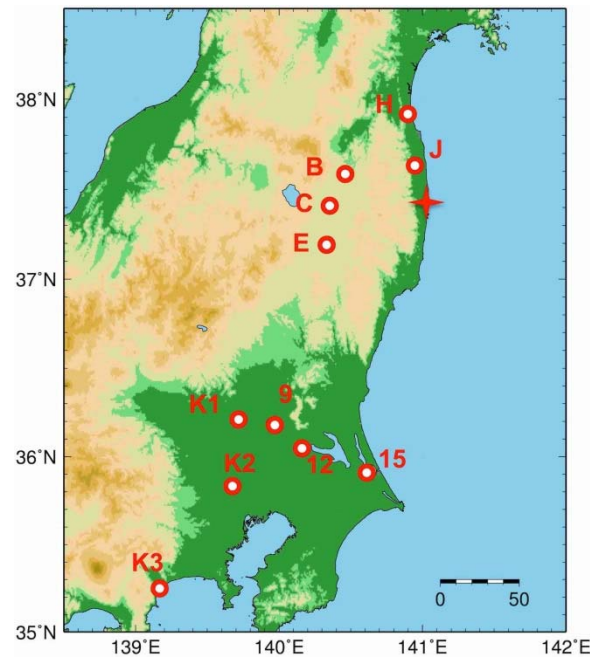
図(3)-17 大気中Cs-137濃度 (Bq m^{-3}) の空間分布。(左)NICAMモデルによる計算値、(中央)CMAQモデルによる計算値、(右)SPMろ紙の分析による実測値。(上)2011年3月15日9:00の事例、(下)2011年3月20日18時の事例。図中の○印はSPMろ紙による大気中濃度の実測値を示す。カラーコードは計算値のものと同じである。



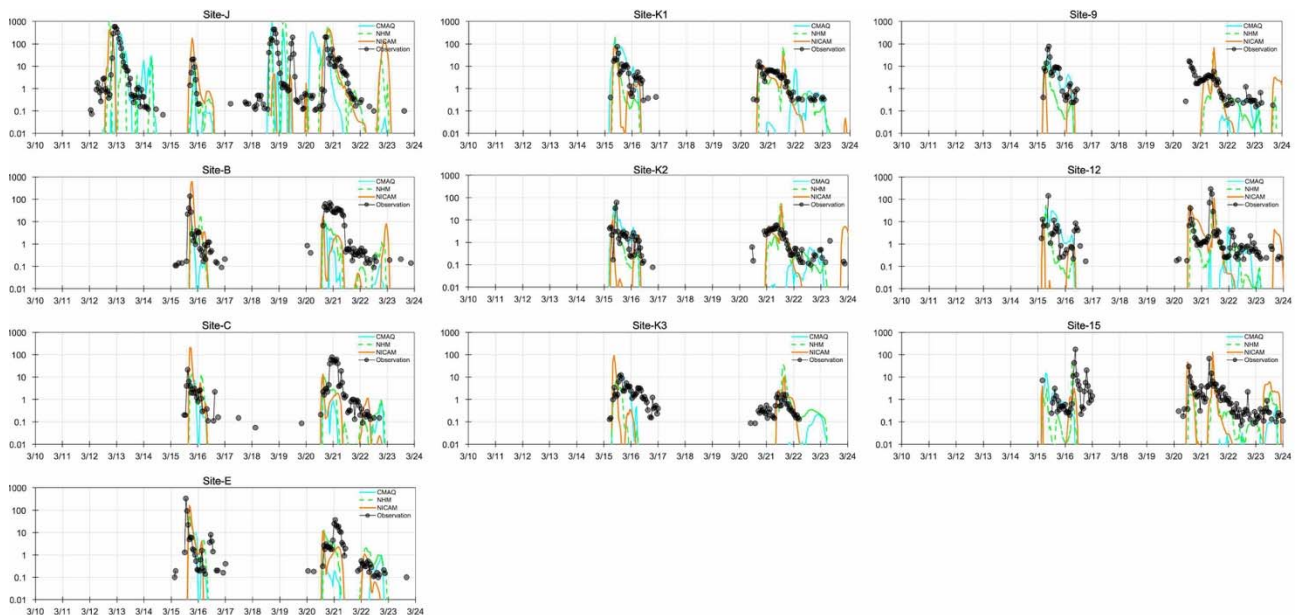
図(3)-18 SPM観測地点での大気中Cs-137濃度(Bq m^{-3})の時系列(3月15日～3月23日)。(上)黒丸は実測値、赤の実線はCMAQモデルの計算結果、緑の実線はNICAMモデルの計算結果。(下)黒丸は実測値、青の実線はマルチモデル・アンサンブル手法による計算結果。

ここまでの比較では、Terada et al. (2012)⁴⁾によって推定されたCs-137放出量データを用いたが、より精度良く推定されたKatata et al. (2015)⁵⁾によるCs-137放出量データを用いて、実測値との比較を行った。ここでは、図(3)-19に示したSPM観測地点における結果の例を図(3)-20に示す。比較したモデルは、CMAQモデルとNICAMモデルに加えて、気象庁気象モデルに結合した化学輸送モデルであるNHM-Chem（以下、単にNHMモデルと呼ぶ）¹⁵⁾も用いた。なお、NHMモデルの水平解像度は3kmであり、用いた気象データはNICAMモデルやCMAQモデルと同じMSMである。まず、これまでの結果と比べると、Terada et al. (2012)⁴⁾によるCs-137放出量データよりもKatata et al. (2015)⁵⁾によるCs-137放出量データを用いた方が、モデルが実測値をうまく再現できることが確認できた。結果を詳細に見ると、3月15日から16日にかけてのピークでは、どのモデルでも概ねプルームの到来を再現できていた。しかし、福島県中通りにあるSPM観測サイト（B、C、E）では、Cs-137濃度絶対値の再現性にモデル間のばらつきがあった。また、関東平野にあるSPM観測サイトでは、Cs-137濃度絶対値の再現性にモデル間のばらつきよりも、濃度の時間変動（減衰）のモデル間のばらつきが顕著であった。3月20日から21日にかけてのピークにおいては、福島県中通りにあるSPM観測サイト（B、C、E）でのモデル濃度が実測値に比べて過小評価していることがわかり、関東平野のSPM観測サイトでのモデル濃度は実測値を概ね再現することができていた。3月22日から23日にかけては、関東平野ではCs-137濃度の実測値が減衰をせず、ほぼ一定値をとっていたが、モデルではCs-137濃度の増減が大きくなっていた。このようなモデル間のばらつきは、モデルで利用する気象データの不確実性、モデル解像度、解像度に合わせて表現されるモデル内部での気象場の不確実性、物質拡散のばらつき等に起因している。ここでは、モデル内部での気象場の不確実性を見るために、3月20日から21日にかけて、つくばにおける気温と風に着目した（図(3)-21）。地表面での気温は、実測では7℃程度であったが、モデルではどれも9℃程度であり、モデルがやや過大評価していた。このことは、用いた気象データであるMSMが実測値をうまく再現できていたことが示唆される。高度750mより上空の気温は、実測値を再現するモデル結果もあった。風の場合に関しては、地表面ではモデルが実測値をよく再現しており、風速・風向の鉛直分布もモデルが概ね再現していたが、モデル間の違いが顕著である高度もあった。このように、用いる気象データの不確実性と共に、共通の気象データを利用してもモデル解像度の違いやモデル内部で表現される気象場のばらつきにより、実際に再現されるモデル気象場のばらつきが依然として存在することが明らかとなった。以上のような結果を得たので、NHMを用いた局所アンサンブルカルマンフィルター

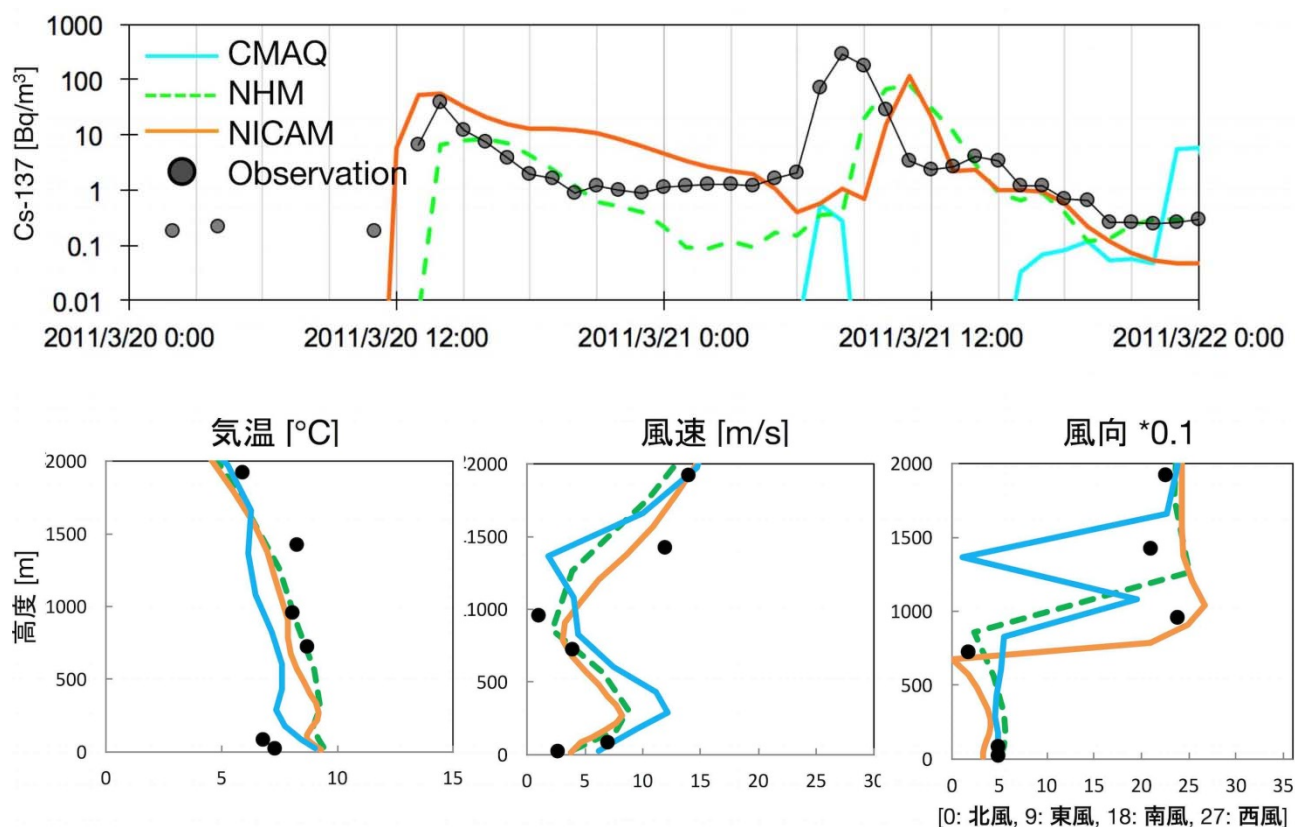
(NHM-LETKF) で高度化された気象データ⁶⁾を共通で使い、モデル解像度も統一した第二回国際モデル相互比較を行っている^{17,18)}。



図(3)-19. Cs-137大気濃度比較に利用したSPM観測地点 (Nakajima et al., 2017¹⁶⁾で利用した観測地点にほぼ対応している)

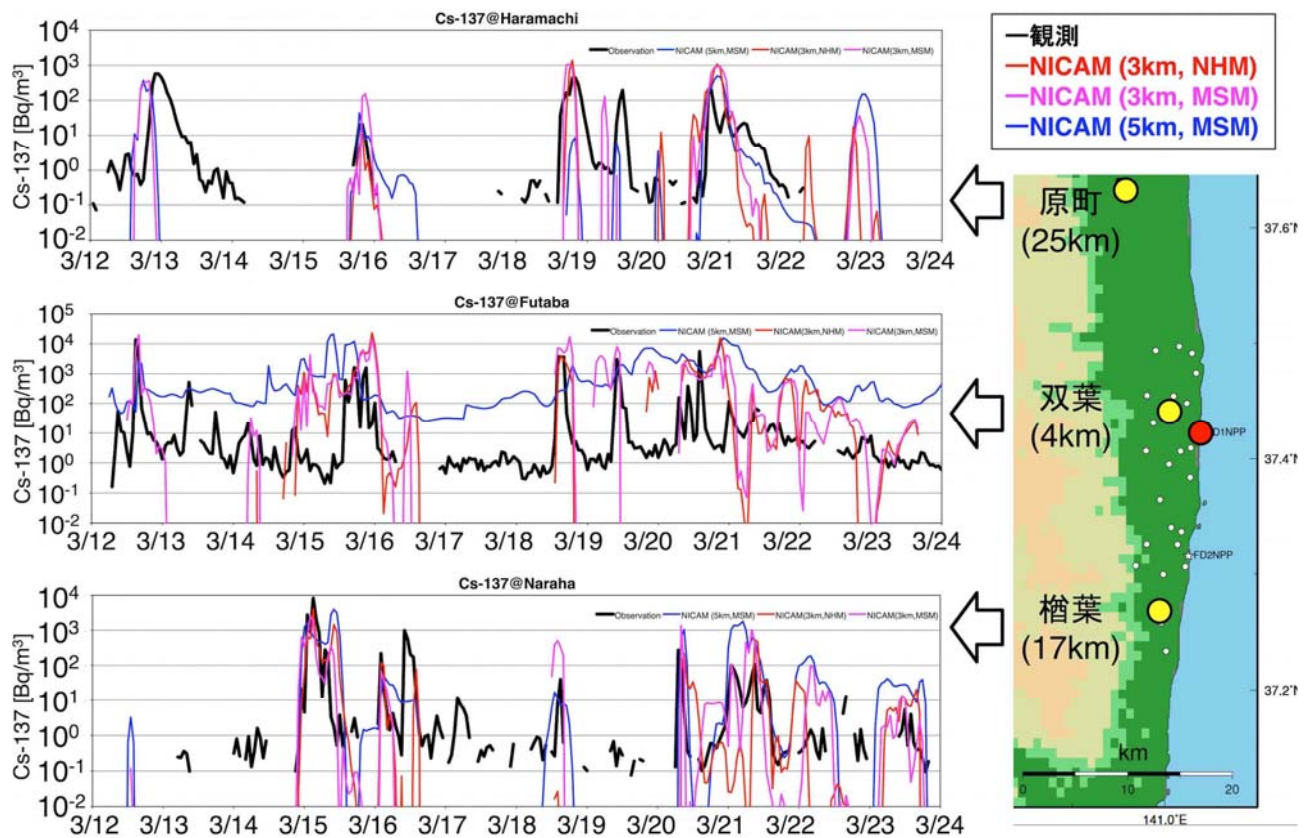


図(3)-20. 図(3)-19で示したSPM観測地点におけるCs-137大気濃度の実測値(黒丸)とモデル結果(CMAQモデルは水色実線、NHMモデルは緑色破線、NICAMモデルは橙色実線)の時系列比較

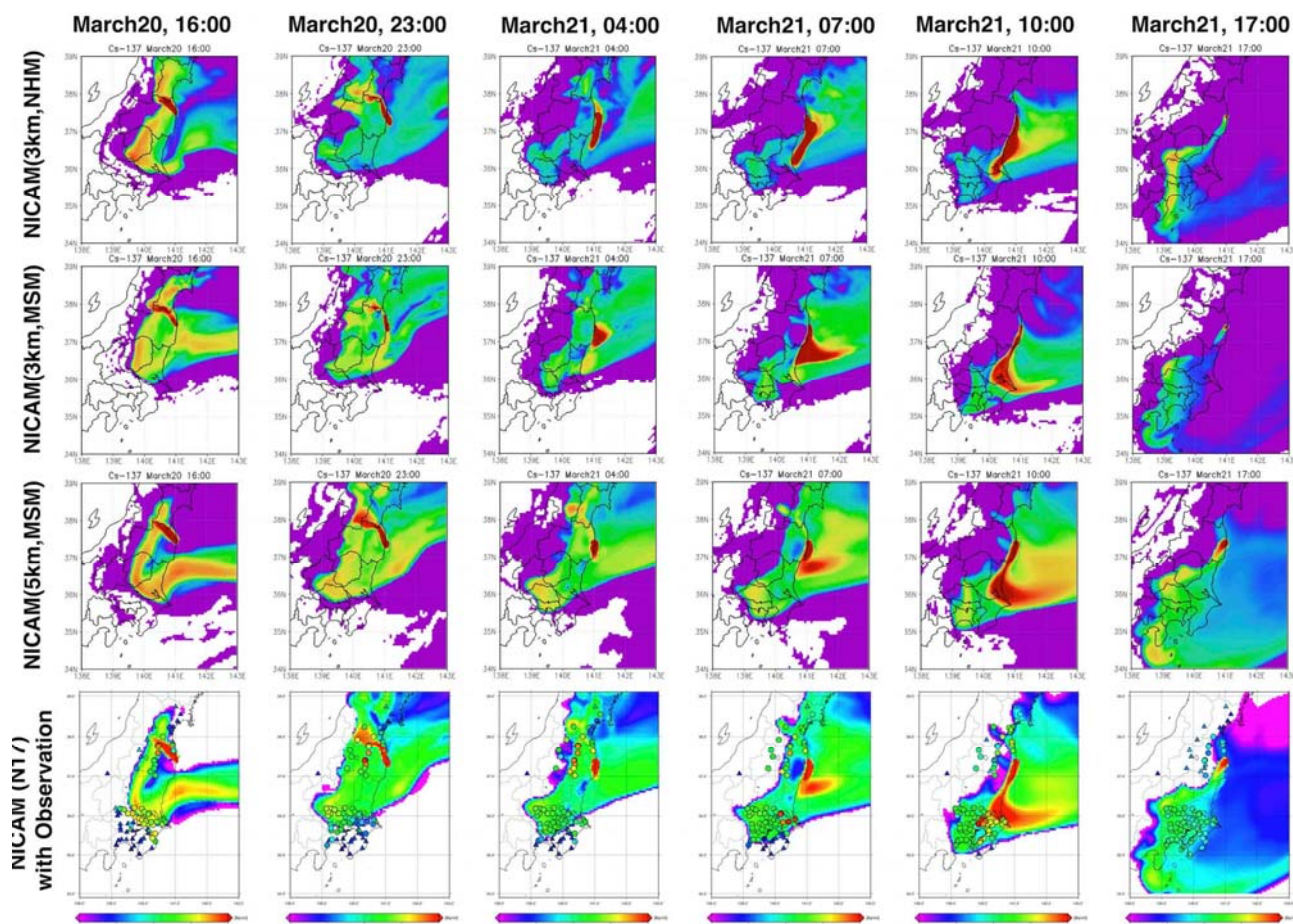


図(3)-21 (上) 3月20日から21日にかけてのつくばでの地表面Cs-137濃度変化、3月21日午前9時におけるつくばでの(左下)気温の鉛直分布、(中央下)風速の鉛直分布、(右下)風向の鉛直分布。実測値は黒丸。CMAQモデルは水色実線。NHMモデルは緑色破線。NICAMモデルは橙色実線。

前述したように、異なるモデル間のばらつきが明らかとなったので、次に単一モデルの中に存在する不確実性を特定するために、NICAMモデルのみを用いた複数の感度実験を行った。感度実験では、モデル解像度の違いと用いた気象場（ナudgingデータ）の違いを調べるために、モデル解像度は3kmと5kmに設定し、ナudgingデータはMSMとNHM-LETKF⁶⁾を用いた。Cs-137放出量はKatata et al. (2015)⁵⁾とした。図(3)-22に示した発生源付近の地表面Cs-137濃度時系列変化を見ると、例えば3月13日の原町における高濃度ピークは解像度の違いは小さかったが、用いた気象場の違いが現れていた。また、双葉では高解像度の方が再現性は良かった。檜葉では3月15日から16日にかけての高濃度ピークは、どのモデル感度実験でも同程度の再現性であったが、3月20日から21日における高濃度ピークは、モデル感度実験間で大きくばらついていった。図(3)-23では、3月20日から21日における地表面Cs-137濃度分布を比較した。図から明らかなように、モデル解像度と気象場の違いによって、広域分布に大きな違いがあることが示された。例えば、3月21日午前7時には霞ヶ浦周辺で高濃度が観測されたが、モデルでは3km解像度でNHM気象場を用いた結果が最も観測に近かった。今回得られた結果から、発生源付近および広域におけるCs-137濃度が最も良く再現できる設定を特定することは難しいが、それぞれのピークに関するモデル不確実性の切り分けを行うことができた。それでも、依然としてモデルが再現できていない高濃度ピークがあるため、モデルの高度化は引き続き検討すべき課題である。また、3km解像度でNHM気象場を用いた結果はサブテーマ5でも用いており、サブテーマ5でも詳細な比較に言及する。



図(3)-22 発生源付近での地表面Cs-137濃度の時系列変化。(左上)原町、(左中央)双葉、(左下)櫛葉、における結果。実測値は黒線。3km解像度でNHM気象場・Katata⁵⁾放出量を用いたNICAMモデル結果が赤色実線。3km解像度でMSM気象場・Katata⁵⁾放出量を用いたNICAMモデル結果が桃色実線。5km解像度でMSM気象場・Katata⁵⁾放出量を用いたNICAMモデル結果が青色実線。(右)SPM観測サイトの場所。



図(3)-23 地表面Cs-137濃度の広域分布（2011年3月20日から21日の場合）。（最上段）3km解像度でNHM気象場・Katata⁵⁾放出量を用いたNICAMモデル。（上から二段目）3km解像度でMSM気象場・Katata⁵⁾放出量を用いたNICAMモデル。（下から二段目）5km解像度でMSM気象場・Katata⁵⁾放出量を用いたNICAMモデル。（最下段目）5km解像度でMSM気象場・Terada⁴⁾放出量を用いたNICAMモデル⁴⁾および観測結果²⁾。

（5）まとめと今後の課題

1）まとめ

- ・ サブテーマ2で測定されたSPMテープろ紙中のCs-137濃度の新たなデータをもとに、東北地方南部や関東地方を中心とした地域でのCs-137濃度の時空間分布を作成し、10個のブルームについて放射性核種の1時間毎の詳細な空間分布を明らかにした。
- ・ また、原発近傍のSPM地点の双葉と楢葉の新たなCs-137濃度データを解析して、これまでに報告した10個のブルームを含む合計19個のブルームを明らかにした。
- ・ 原発から北西3.5kmの双葉では2011年3月12日の15時に、最高 $13,600 \text{ Bq m}^{-3}$ のCs-137濃度を観測し、1号機の水素爆発直前のベントによる放射性物質の放出を初めて明らかにした。さらに、原発から17km南方の楢葉でのCs-137濃度が測定されたことにより、これまでわからなかった原発からの関東地方へのブルームの輸送経路が明確になった。なお楢葉での最高濃度は3月15日3時の $8,300 \text{ Bq m}^{-3}$ だった。
- ・ サブテーマ2で測定されたSPMテープろ紙中の粒子状のI-129濃度をもとに、長期保存による損失量を補正し、その補正したI-129濃度から粒子状I-131(a)濃度への変換式を決定した。
- ・ 福島県内のSPM地点でのI-129濃度とCs-137濃度との比は、3つのグループに大別することがわかり、原発に近いほど両者のバラツキは大きく、遠方になるほど、インベントリ値の比に近い値で推移することがわかった。また、Cs-137濃度は低くても、I-129濃度がインベントリ比よりも大きいデータが存在し、その原因について、気象場との対応などを含めて検討する必要がある。これらから、Cs-137濃度だけではわからなかった大気中の放射性核種の複雑な挙動が、はじめて明らかになった。

- ・ 粒子状のI-129濃度から変換した粒子状I-131濃度と既存の公開されたI-131濃度から、SPM地点での気体状I-131(g)濃度と粒子状I-131(a)濃度を推定する手法を初めて開発し、SPM地点での主なブルーム中のI-131(a+g)濃度を推定した。
- ・ この手法を用いて推定した原発近傍のI-131濃度は、気体状I-131(g)濃度が粒子状I-131(a)濃度よりもはるかに高く、両者はまだ平衡状態に達していないと推定された。これらから、現在使用されている放射性核種の放出量の再評価が必要と判断された。
- ・ 気体状と粒子状の合計のI-131(a+g)濃度の最高は、双葉で3月12日15時に約312,000 Bq m⁻³と推定されたが、いくつかの仮定のもとに推定したので、不確実性は大きい。
- ・ 福島県中通りでのブルーム中の気体状I-131(g)濃度と粒子状I-131(a)濃度の比は1 : 1で平衡に達していたと推定された。しかし、ブルーム通過後にも、Cs-137濃度は低かったにもかかわらず、I-129濃度が急上昇して、インベントリ比よりもはるかに大きくなった現象が見られ、そのような時のI-131濃度は現状では推定しなかった。なおその原因は、今後の検討課題である。
- ・ 第一次モデル相互比較では成し得なかった詳細な比較を行うために、CMAQモデルとNICAMモデルの2つのモデルを用い、使用する気象データ(気象庁客観解析気象データであるMSM)およびCs-137放出量データ⁴⁾を共通のものにし、モデル間相互比較を行った¹⁶⁾。
- ・ よく再現できるモデルは、日やブルームにより異なる場合があることがわかったので、性能の異なる二つのモデルを、最適に組み合わせたマルチモデル・アンサンブル手法を検討し、SPMろ紙の実測値に対応できるモデルによるシミュレーション結果の精度が、一段と向上する見通しが得られた。
- ・ 最新のCs-137放出量データであるKatata et al. (2015)⁵⁾を用いて、CMAQモデル、NICAMモデルと共に気象庁気象モデルに結合した化学輸送モデルであるNHM-Chemによるモデル間相互比較も行い、気象場の再現性の違いも比較した。その結果、用いる気象データの不確実性と共に、共通の気象データを利用してもモデル解像度の違いやモデル内部で表現される気象場のばらつきにより、実際に再現されるモデル気象場のばらつきが依然として存在することが明らかとなった。
- ・ 上記の結果を得たので、NHMを用いた局所アンサンブルカルマンフィルタ(NHM-LETKF)で高度化された気象データ⁶⁾を共通で用い、モデル解像度も統一した第二回国際モデル相互比較を行うところである^{17,18)}。
- ・ 同時に、異なるモデル間のばらつきが明らかとなったので、次に単一モデルの中に存在する不確実性を特定するために、NICAMモデルのみを用いた複数の感度実験を行った。感度実験では、モデル解像度の違いと用いた気象場(ナッジングデータ)の違いを調べるために、モデル解像度は3kmと5kmに設定し、ナッジングデータはMSMとNHM-LETKF⁶⁾を用いた。Cs-137放出量はKatata et al. (2015)⁵⁾とした。その結果、モデル解像度と気象場の違いによって、広域分布に大きな違いがあることが示されたが、発生源付近および広域におけるCs-137濃度が最も良く再現できる設定を特定することは難しいが、それぞれのピークに関するモデル不確実性の切り分けを行うことができた。

2) 今後の課題

- ・ 本研究で構築したI-131濃度の推定手法を、さらに改良してより不確実性の少ないものにするには、炉内から大気中への放出時における気体状と粒子状のI-131濃度の割合やI-131濃度とCs-137濃度の比の、より正確な推定値が必要であり、今後の炉内事象の専門家による新たな情報が期待される。
- ・ モニタリングポストでの波高分布データの解析によりI-131濃度が推定されているので、それらとの比較をすることが必要である。
- ・ 大気輸送沈着モデルの継続的な検証と改良が必要であり、モデルと観測の差がどの過程に起因するかのかの切り分けを行うことが必要である。

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

1) サブテーマ2で測定されたCs-137濃度の新たなデータをもとに、東北地方南部や関東地方を中心とした地域でのCs-137濃度の時空間分布を作成した。また、原発近傍のSPM地点の双葉と楢葉の新たなデータを解析して、これまでわからなかった原発近傍での放射性物質の動態を初めて明らかにするとともに、これまでに報告した10個のブルームを含む合計19個のブルームを明らかにした。

2) サブテーマ2で測定されたSPMテープろ紙中の粒子状のI-129濃度とCs-137濃度との比が3つのグループに大別することがわかり、Cs-137濃度だけではわからなかった大気中の放射性核種の複雑な挙動が、はじめて明らかになった。粒子状のI-129濃度から変換した粒子状I-131濃度と既存の公開されたI-131濃度から、SPM地点での気体状と粒子状のI-131濃度を推定する手法を初めて開発し、SPM地点でのI-131濃度を初めて推定した。

3) これまでの大気汚染物質シミュレーションモデルの検証では、モデルと観測の差の要因を切り分けることができなかったが、本研究のように単一放出源であるCs-137の動態に着目することで、モデルの様々な過程に起因する誤差要因を解析することが可能となった。また、大気汚染物質シミュレーションに関する国内でモデル間相互比較が行われた例はごく限られていたが、本研究を通じて、Cs-137シミュレーションに関するモデル間相互比較を継続的に行うことが可能となり、得られた知見は大気汚染物質モデルコミュニティにとっても非常に重要なものである。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

UNSCEAR(原子放射線の影響に関する国連科学委員会)では、2015年と2016年の白書で、SPMテープろ紙中のCs-137濃度の論文^{7,8)}が、「大気中への放出、拡散および沈着に関する研究に重要な貢献をする刊行物の一つ」と評価された。本研究での原発近傍の双葉と楢葉のCs-137濃度の実測値¹⁰⁾と、初めて推定したI-131濃度については、UNSCEARへの、大気中への放出・拡散・沈着へのさらなる貢献が見込まれる。また、推定したI-131濃度については、初期被ばく線量評価に役立つことが見込まれる。さらに将来、同様な事故が起こった場合のインフラ整備や避難計画の策定に役立つことが見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

大気輸送沈着モデルによるCs-137シミュレーションの国際相互比較プロジェクトを行っている。第一回国際モデル相互比較では、日本学術会議(2014)¹⁹⁾によって報告されており、本サブテーマリーダーである中島がリードをして、国内外の10以上の研究グループが参加をした。第二回国際モデル相互比較は、第一回国際モデル相互比較を進展させ、より共通の境界条件を用いて、モデル間の差異を限定的にしたモデル比較を行っている^{17,18)}。名古屋大学大学院工学研究科を中心にとりまとめを行っており、参加を表明したのは国内外の10以上の研究グループであり、フランス放射線防護・原子力安全研究所(IRSIN)等も参加している。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) Nakajima T., Misawa S., Morino Y., Tsuruta H., Goto D., Uchida J., Takemura T., Ohara T., Oura Y., Ebihara M., Satoh M.: Progress in Earth and Planetary Science 2017 4:2, DOI: 10.1186/s40645-017-0117-x, 2017
 “Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident”
- 2) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、森口祐一、大原利眞、中島映至： Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2017-6, November 2017 R, 56-63 (2017). (発行月：2017年11月)
 「東電福島第一原子力発電所近傍の2地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」
- 3) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、森口祐一、大原利眞、中島映至：エアロゾル研究、**32**, 244-254 (2017); <https://doi.org/10.11203/jar.32.244> (2017年12月20日発行)
 「東電福島第一原子力発電所事故直後の東日本における放射性セシウムの時空間分布—大気環境常時測定局のSPM 計の使用済みテープろ紙分析データの解析—」
- 4) Tsuruta H., Y. Oura, M. Ebihara, Y. Moriguchi, T. Ohara, and T. Nakajima: *Geochemical J.*, **52** (2018), doi:10.2343/geochemj.2.0520. (公開日：2018年3月8日)
 Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原 充、大原利眞、中島映至：第56回大気環境学会年会講演要旨集、285、早稲田大学、2015年9月15-17日、2015.
 「SPM 計テープろ紙の分析による原発事故直後の大気中の放射性セシウムの時空間分布」
- 2) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、石本光憲、勝村庸介、荒井俊昭、司馬薫、草間優子、山田裕子、中島映至：第21回大気化学討論会、東京工業大学大岡山キャンパス、2015年10月19-21日、2015.
 「SPM計使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後における東日本の大気中放射性セシウムの時空間分布(その2)」
- 3) 鶴田治雄、大浦泰嗣・海老原 充、大原利眞、中島映至：弘前大学被ばく医療総合研究所創立5周年記念講演会、弘前大学医学部、2015年11月15日、2015.
 「福島第一原子力発電所事故直後の大気中放射性物質の環境動態-時空間分布の復元を目指して-」
- 4) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至：第17回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、2016年3月8-10日、2016.
 「大気浮遊粒子状物質(SPM)自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定(その3)：福島原発事故直後の大気中Cs-137高濃度現象とその気象学的考察」
- 5) Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima (2016): European Geosciences Union (EGU) General Assembly 2016, Vienna, April 22, 2016.
 “Comprehensive Retrieval of Spatio-temporal Variations in Atmospheric Radionuclides just after the Fukushima Accident by Analyzing Filter-tapes of Operational Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan”
- 6) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至 (2016)：日本気象学会 2016 年度春季大会講演要旨集、358, 国立オリンピック記念青少年総合センター、2016 年 5 月 18-21 日.
 「大気環境常時測定局で使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後におけ

る東日本での大気中放射性セシウムの時空間分布(その2): 高濃度現象とその気象場の解析」

- 7) Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, Y. Moriguchi, and T. Nakajima (2016): The 26th Goldschmidt Conference, Yokohama, 26 Jun.-1 Jul, 2016.
 “Comprehensive retrieval of spatio-temporal distribution of atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations”
- 8) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一・中島映至: 第57回大気環境学会年会、北海道大学工学部、平成28年9月7-9日
 「SPMテープろ紙の分析による福島原発事故直後の大気中放射性セシウムの時空間分布(その2)東北地方への輸送過程」
- 9) 鶴田治雄、大浦泰嗣・海老原 充、大原利眞、森口祐一、中島映至: 第22回大気化学討論会、北海道大学工学部、2016年10月12-14日
 「福島原発事故直後の大気中放射性ヨウ素の動態(その1) 既存の公表データの解析からわかったこと」
- 10) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至: 第59回日本放射線影響学会ワークショップ「福島原発事故から5年、線量再評価の現状」、285、JMSアステールプラザ、2016年10月27-28日.
 「事故後初期の大気浮遊粒子状物質中の放射性核種の測定と解析」
- 11) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、司馬薫、草間優子、荒井俊昭、山田裕子、中島映至: 日本気象学会 2016 年度秋季大会講演要旨集、484、名古屋大学、平成 28 年 10 月 26-28 日.
 「大気環境常時測定局で使用済みテープろ紙の分析による福島第一原子力発電所事故直後における東日本での大気中放射性セシウムの時空間分布(その3): 関東地方での複雑な輸送過程の解明」
- 12) 鶴田治雄、大浦泰嗣、海老原充、大原利眞、森口祐一、中島映至 (2017): 第 18 回環境放射能研究会、高エネルギー加速器研究機構、平成 29 年 3 月 14-16 日.
 「大気浮遊粒子状物質 (SPM) 自動測定器の使用済みテープ状フィルターの放射性核種測定(その 4) 東電福島第一原発近傍の 2 地点における事故直後の大気中放射性セシウムの経時変化」
- 13) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一、中島映至: 日本地球惑星科学連合 連合大会 (JpGU) 2017 年大会、平成29年5月25日、幕張メッセ
 「福島第一原発近傍の2地点におけるSPM計使用済みテープろ紙の分析による放射性核種の動態」
- 14) 小野崎晴佳・小野貴大・飯澤勇信・阿部善也・中井泉・足立光司・五十嵐康人・大浦泰嗣・海老原充・宮坂貴文・中村尚・鶴田治雄・森口祐一: SPMテープ濾紙より分離された放射性エアロゾルの放射光X線複合分析による化学・物理的性状解明、日本地球惑星科学連合 連合大会 (JpGU) 2017 年大会、平成29年5月25日、幕張メッセ
- 15) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一・司馬 薫・草間優子・荒井俊昭・松本伸弘・山田裕子・中島映至: 日本気象学会2017年度春季大会 講演予稿集、318、国立オリンピック記念青少年総合センター、平成29年5月28日
 「福島原発事故直後における大気環境測定局のテープろ紙中の放射性核種分析データから明らかになったこと」
- 16) 大浦泰嗣・鶴田治雄・海老原充・大原利眞・中島映至・森口祐一: 第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、1、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日
 「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析: (その1) 放射性セシウムの定量」
- 17) 海老原充・大浦泰嗣・白井直樹・鶴田治雄・森口祐一・永川栄泰・櫻井昇・羽場宏光・松崎浩之: 第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、2、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日
 「福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析: (その2) 放射性ヨウ素 (I-129) の定量」

- 18) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・白井直樹・松崎浩之・森口祐一・大原利眞・中島映至：第54回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集、3、東京大学弥生講堂、平成29年7月5日
福島第一原発事故直後に採取された大気浮遊粒子中の放射性核種の測定方法の開発と総合解析：(その3) 放射性セシウムと放射性ヨウ素の大気中での動態、
- 19) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・大原利眞・森口祐一・司馬 薫・草間優子・荒井俊昭・山田裕子・中島映至：第57回大気環境学会年会 講演要旨集、152、兵庫医療大学 平成29年9月8日
「福島原発事故直後の大気中放射性核種の動態」
- 20) 森口祐一・鶴田治雄・海老原充・大浦泰嗣・白井直樹・大原利眞・高木麻衣・森野悠・五藤大輔・中山祥嗣・中島映至：第19回環境放射能研究会講演要旨集、34、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月15日
「初期内部被ばく線量評価のための実測値・推計値の総合解析」
- 21) 海老原充・大浦泰嗣・白井直樹・永川栄泰・桜井昇・羽場宏光・松崎裕之・鶴田治雄・森口祐一：第19回環境放射能研究会講演要旨集、35、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月15日
「大気浮遊粒子試料中のI-129/I-131比」
- 22) 大浦泰嗣・海老原充・白井直樹・松崎浩之・鶴田治雄・森口祐一：第19回環境放射能研究会講演要旨集、36、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月15日
「自動SPM計でのテープろ紙の分析による大気中の福島原発事故由来¹²⁹I濃度」
- 23) 鶴田治雄・海老原充・大浦泰嗣・白井直樹・松崎浩之・森口祐一・大原利眞・中島映至：第19回環境放射能研究会講演要旨集、37、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月15日
「福島第一原子力発電所事故初期の大気汚染監視網SPM測定地点における大気中I-131濃度の推定」
- 24) 大原利眞・高木麻衣・森野悠・五藤大輔・中山祥嗣・森口祐一・鶴田治雄：第19回環境放射能研究会講演要旨集、38、高エネルギー加速器研究機構、平成30年3月15日
「大気拡散・ばく露評価統合モデルを用いた事故初期の経気道ばく露推計」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) 森口祐一・鶴田治雄：毎日新聞（2016年4月2日、全国版、3頁、「ろ紙は語る」）
- 2) 中島映至・鶴田治雄：「セシウムの粒、事故知る鍵」、日本経済新聞朝刊記事、2017年6月11日
- 3) 鶴田治雄：取材協力者、NHKスペシャル「メルトダウンFile.07」、TV放映、2018年3月17日

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Ohkura, T., Oishi, T., Taki, M., Shibnuma, Y., Kikuchi, M., Akino, H., Kikuta, Y., Kawasaki, M., Saegusa, J., Tsutsumi, M., Ogoose, H., Tamura, S., and Sawahata, T. (2012) Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, JAEA-Data/Code 2012-010.
- 2) Hikaru Amano*, Masakazu Akiyama, Bi Chunlei, Takao Kawamura, Takeshi Kishimoto, Tomotaka Kuroda, Takahiko Muroi, Tomoaki Odaira, Yuji Ohta, Kenji Takeda, Yushu Watanabe, Takao Morimoto (2012) Radiation measurements in the Chiba Metropolitan Area and radiological aspects of fallout from the

Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plants accident, *J. Environ. Radioact.*, **111**, 42-52.

- 3) Uchida J., Mori M., Hara M., Satoh M., Goto D., Kataoka T., Suzuki K., Nakajima T. (2017) Impact of lateral boundary errors on the simulation of clouds with a non-hydrostatic regional climate model, *Monthly Weather Review*, **145**, 5059-5082, doi:10.1175/MWR-D-17-0158.1
- 4) Terada, H., Katata, G., Chino, M., & Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *Journal of Environmental Radioactivity*, **112**, 141-54.
- 5) Katata G., Chino M., Kobayashi T., Terada H., Ota M., Nagai H., Kajino M., Draxler R., Hort M.C., Malo A., Torii T., Sanada Y. (2015) Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model, *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 1029-1070.
- 6) Sekiyama, T.T., M. Kajino & M. Kunii (2017). The Impact of Surface Wind Data Assimilation on the Predictability of Near-Surface Plume Advection in the Case of the Fukushima Nuclear Accident. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, **95**, 447-454
- 7) Tsuruta, H., Oura, Y., Ebihara, M., Ohara, T., and Nakajima, T. (2014) First retrieval of hourly atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations. *Sci. Rep.* **4**, 6717; DOI:10.1038/srep06717.
- 8) Oura, Y., M. Ebihara, H. Tsuruta, T. Nakajima, T. Ohara, M. Ishimoto, H. Sawahata, Y. Katsumura, and W. Nitta, 2015: A Database of Hourly Atmospheric Concentrations of Radiocesium (^{134}Cs and ^{137}Cs) in Suspended Particulate Matter Collected in March 2011 at 99 Air Pollution Monitoring Stations in Eastern Japan. *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **15**, 1-12.
- 9) 鶴田治雄・大浦泰嗣・海老原充・森口祐一・大原利眞・中島映至：東電福島第一原子力発電所事故直後の東日本における放射性セシウムの時空間分布—大気環境常時測定局のSPM 計の使用済みテープろ紙分析データの解析—。 *エアロゾル研究*, **32**, 244-254 (2017);
<https://doi.org/10.11203/jar.32.244>. (査読あり) (2017年12月20日発行)
- 10) Tsuruta H., Y. Oura, M. Ebihara, Y. Moriguchi, T. Ohara, and T. Nakajima: Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011. **52**, *Geochemical J.* (2018), doi:10.2343/geochemj.2.0520.
- 11) Nishihara, K., Iwamoto, H., and Suyama, K. (2012) Estimation of fuel compositions in Fukushima-Daiichi nuclear power plant. JAEA-Data/Code 2012-018, Japan Atomic Energy Agency.
- 12) 経済産業省(2011)：東京電力株式会社福島第一原子力発電所及び福島第二原子力発電所周辺の緊急時モニタリング調査結果について（3月11日～15日実施分）
<http://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/8422823/www.meti.go.jp/press/2011/06/20110603019/20110603019.html>
- 13) 野口宏, 村田幹生, 鈴木克巳 (1990): 大気エアロゾルに対する放射性元素状ヨウ素ガスの吸着特性, *保健物理*, **25**, 209-219.
- 14) Yoshiyasu Nagakawa, Takahiro Sotodate, Yasuhito Kinjo & Takashi Suzuki (2014) One-year time variations of anthropogenic radionuclides in aerosols in Tokyo after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant reactor failures, *J Nucl Sci Technol.*, 1-8, doi=10.1080/00223131.2014.985279
- 15) Kajino, M., Inomata, Y., Sato, K., Ueda, H., Han, Z., An, J., Katata, G., Deushi, M., Oshima, N., Kurokawa, J., Ohara, T., Takami, A. and Hatakeyama, S. (2012) Development of the RAQM2 aerosol chemical transport model and predictions of the Northeast Asian aerosol mass, size, chemistry, and mixing type. *Atmos. Chem. Phys.* **12**, 11833–11856.
- 16) Nakajima T., Misawa S., Morino Y., Tsuruta H., Goto D., Uchida J., Takemura T., Ohara T., Oura Y., Ebihara M., Satoh M.: *Progress in Earth and Planetary Science* 2017 4:2, DOI: 10.1186/s40645-017-0117-x

(2017), Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident.

- 17) Sato, Y., M. Takigawa, T. T. Sekiyama, M. Kajino, H. Grahm, N. Brännstørm, P. von Schoenberg, H. Kondo, H. Terada, H. Nagai, D. Quélo, A. Mathieu, J. Uchida, D. Goto, H. Tsuruta, H. Yamazawa, and T. Nakajima, 2018: 2nd Atmospheric Model Intercomparison Project for Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident on March 2011 ~ 2nd FDNPP-MIP., *AMS annual meeting 2018*, 1152, Austin, TX, USA.
- 18) Sato Y., M. Takigawa, T.T. Sekiyama, M. Kajino, H. Terada, H. Nagai, H. Kondo, J. Uchida, D. Goto, D. Quélo, A. Mathieu, N. Evangeliou, I. Pisso, A. Stohl, F. Sheng, Y. Morino, P. von Schoenberg, H. Grahm, N. Brännstørm, S. Hirao, H. Tsuruta, H. Yamazawa, and T. Nakajima (2018). 2nd Atmospheric Model Intercomparison Project for Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident on March 2011 ~ 2nd FDNPP-MIP. *European Geosciences Union General Assembly 2018*, EGU2018-2882, Vienna, Austria
- 19) 日本学術会議総合工学委員会原子力事故対応委員分科会 (2014): 報告「東京電力福島第一原子力発電所事故によって環境中に放出された放射性物質の輸送沈着過程に関するモデル計算結果の比較」、日本学術会議、 <http://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-22-h140902-j1.pdf>. (平成30年4月30日確認)

Ⅱ－４ 微粒子性状及び短寿命核種の寄与を考慮した線量評価の精緻化

日本保健物理学会 内部被ばく影響評価委員会

大分県立看護科学大学

福島県立医科大学

日本原子力研究開発機構

量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所

国立保健医療科学院

<研究協力者>

日本原子力研究開発機構

甲斐 倫明

石川 徹夫、反町 篤行

佐藤 達彦、真辺健太郎(平成29年度のみ)

松本 雅紀

山口 一郎

真辺健太郎(平成28年度のみ)、Alex Malins

平成28(開始年度)～29年度累計予算額：2,490千円（うち平成29年度：1,199千円）

予算額は、間接経費を含む。

【要旨】

不溶性微粒子は1つの粒子の持つ放射能が大きいということ、体内に取り込まれたときに血液に溶解しにくいという点で通常の可溶性セシウムとは異なり、ICRPの線量係数（単位放射能吸入あたりの実効線量や等価線量）を用いた従来の線量評価法が適用できないことが考えられた。そのため、1つずつの粒子の吸入からその後の体内動態までを追跡し、線量を確率的に評価する（1個の粒子を吸入したときの実効線量や等価線量の確率密度分布を評価する）モデルを開発した。これによって、ICRPが提示する単一の線量係数ではなく、1つの粒子を吸入した場合に線量の取りうる幅を評価した。

比放射能の大きい単一の粒子を吸入した場合には沈着する部位、移動経路、残留時間の確率的な振る舞いによる不確かさによってICRPの線量係数（Type S）で計算した値に比べて、最大100倍程度までの非常に幅広い範囲の値を取りうることが示唆された。その結果、線量係数は少数の粒子の場合、不確かさが大きい、平均線量が1mGy程度以上になると不確かさは小さくなる。ICRPのタイプSの線量係数と比べて、肺預託吸収線量の算術平均値は1.6倍程度となる。

一方で、シミュレーションを用いて粒子近傍の局所的線量分布の評価も行った。セシウムの粒子が長時間、1か所に付着したという条件で計算すると、不溶性微粒子のごく近傍（0.1mm以内程度）の領域は特に線量が高くなる。吸収線量は、吸収された放射線のエネルギーを質量で割ることによって評価される。そのため、微粒子近傍のどの部分の領域（質量）を考えるかによって線量が大きく異なることが示唆された。非常に小さい領域で考えた場合には、通常影響が発生すると考えられている組織反応のしきい線量より、しきい線量が大きくなることが予想され、少数の細胞に限定した損傷であれば、がんリスク以外の影響の起きる可能性は低いといえる。それでも、多くの粒子数を吸入して多数の細胞が影響を受ける場合には、がんリスク以外の組織の障害につながるかどうかは今後動物実験などによる検証が必要と考えられた。

事故後初期には、I-131やCs-134、Cs-137のほかにもTe-132/I-132が空気中に存在し、甲状腺に有意な内部被ばくを与えた可能性がある。そこでTe-132/I-132といった短半減期核種による内部被ばくに関しても検討を行った。当時の内部被ばくを評価する手がかりとして、事故直後の大気浮遊じんのスAMPLINGによって、Te-132/I-132の濃度が評価されているデータがある。これらのデータに関して放射平衡が成り立っているはずのI-132とTe-132の濃度に関して不自然な点があるため、当時得られたスペクトルの形状をシミュレーションによって検証することを試みた。得られたシミュレーション結果から、スペクトルの形状はバックグラウンド環境の放射性物質の量に影響を受け、測定試料の放射性物質の量が少なく高バックグラウンドにより低エネルギー側の試料由来のピークが消失しうること、低エネルギーピークが観測されている場合は、それは測定試料中の放射性物質に起因すると考えられることなどが示された。ここで示した結果は予備的なものであり、まだ多くの限界がある。今後、実際の装置の状況を反映させたシミュレーションが課題となると考えられた。

[キーワード]

不溶性微粒子、体内動態、確率論的線量評価、実効線量、局所的線量

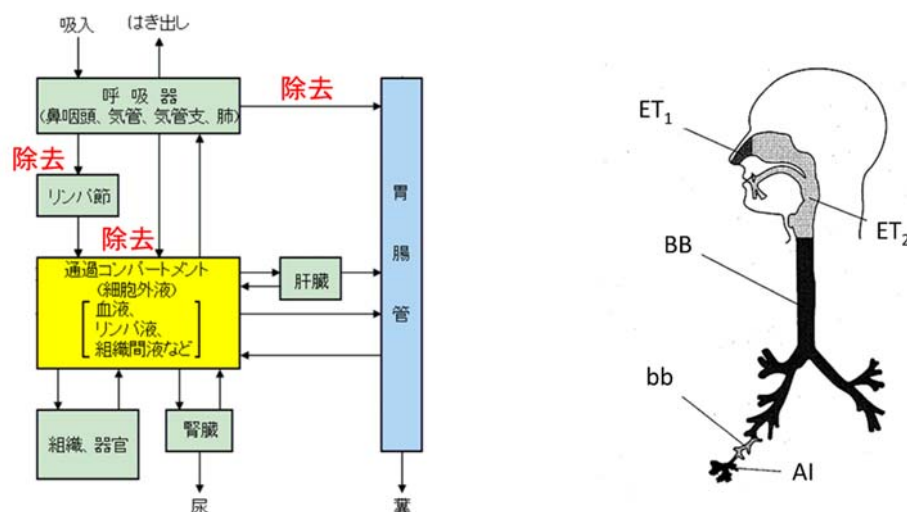
1. はじめに

放射線による人体への影響として、発がんに代表される確率的影響と、皮膚障害のようにしきい値が存在する確定的影響に分けられる。前者の目安になるのが実効線量や等価線量である。内部被ばくの場合には、体内に残留している放射性物質から将来にわたって受ける被ばく線量としての預託実効線量や預託等価線量が指標として用いられる。一般に預託実効線量や預託等価線量を評価するためには、国際放射線防護委員会（ICRP）の体内動態モデルや、それらのモデルから導出された線量係数（単位摂取あたりの預託実効線量または等価線量）が用いられている。事故後のセシウムに関する内部被ばく線量評価においても、ホールボディカウンタ（WBC）測定や環境中の放射性核種濃度の測定から体内に取り込んだセシウムの総量（摂取量）を推定し、それに線量係数を乗じることによって、内部被ばく線量（預託実効線量）が評価されてきた。このような従来の線量評価法を比放射能の大きい不溶性微粒子（いわゆるCsボール）に適用するにあたっては、以下のような問題点がある。

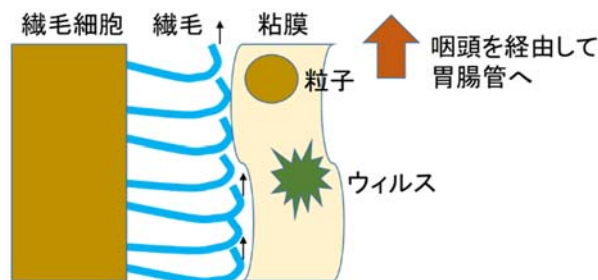
ICRPの体内動態モデルは大きく分けて呼吸気道モデル、胃腸管モデルなどに分かれており、図(4)-1（左）に簡略化した全体像を示している。この中で、呼吸気道モデルをさらに詳細に示したものを図(4)-1の右側に示している。呼吸気道モデルでは、呼吸気道を5つの領域に分け、それぞれET1（前鼻道）、ET2（後鼻道～喉頭）、BB（気管・気管支）、bb（細気管支）、AI（肺胞・間質）領域と名付けている。

後述するように、粒子を吸入した際に呼吸気道のどの部位に沈着するかは主に粒子径に依存する。例えば、大きい粒子であればET領域に沈着する確率が高いが、適度に小さい粒子であれば呼吸気道の奥のほうまで侵入しうる。呼吸気道に沈着した粒子は、図(4)-1（左）に示したように3つの経路で除去（クリアランス）される。すなわち、気道内壁の線毛運動により呼吸気道から咽頭へ移行し胃腸管を通じて体外へ排泄される経路（図(4)-2）、リンパ節への移行、および血液への吸収である。胃腸管、リンパ節への移行は、粒子の溶解性によらないと考えられているが、血液への吸収速度は粒子の溶解性に大きく依存する。

ICRPモデルでは、血液への溶解のしやすさをFast、Moderate、Slowという3段階に分けており、セシウムはFastとして扱われるのが普通であった。すなわち、呼吸器から速やかに血液（図(4)-1の「通過コンパートメント」）に移行し、ほぼ全身均一に分布するとされてきた。その後、体内のセシウムは成人で100日程度の生物学的半減期（セシウムの体内残留量が半分になるまでの期間）で減少していくとされている。しかしながら、仮に血液への吸収速度が遅くなれば、それだけ呼吸気道やリンパ節に長く残留することになり、被ばく線量も増加する。



図(4)-1 ICRPの体内動態モデル全体（左）と、呼吸気道モデル（右）



図(4)-2 呼吸気道内壁の繊毛運動によって、呼吸気道から粒子が除去される模式図

粒子が不溶性の場合には、ICRPの定義するSlow（血液中への溶解が遅い）に分類される物質よりさらに血液に吸収されにくいと考えられる。そのため、不溶性微粒子に適した血液への吸収速度などを考慮した体内動態モデルを検討する必要がある。

さらに、比放射能が高い微粒子ということで、1つの粒子の持つ放射能が大きいことに留意する必要がある。ICRPのモデルでは同様の放射能を持つ多数の粒子を吸入した場合を想定して、呼吸気道への沈着割合や沈着後の体内動態を評価している。そのため、取り込んだ放射能から内部被ばく線量への換算を行うための線量係数は、血液の吸収速度（F, M, S）および粒子径（空気力学的放射能中央径、AMAD）ごとに、一つの値が与えられる。しかしながら、1つの粒子の持つ放射能が大きいということを考えると、1つずつの粒子の吸入からその後の体内動態までを追跡し、線量を確率的に評価する（1個の粒子を吸入したときの実効線量や等価線量の確率密度分布を評価する）必要があると考えられる。これによって、ICRPが提示する単一の線量係数ではなく、1つの粒子を吸入した場合に線量の取りうる幅を評価することが可能である。

上述の線量評価は、確率的影響の指標となる実効線量や等価線量の評価に関するものであったが、一方で確定的影響の評価も行っておく必要がある。すなわち、比放射能の大きい不溶性微粒子が仮に体内のある場所に長時間付着した場合に、何等かの確定的影響が起りうるのかどうかという点に関しても検討を行った。このため、不溶性のセシウム微粒子から放出されるベータ線、ガンマ線の挙動をシミュレーションすることによって、線量の局所的分布を評価した。

一方、事故初期のヨウ素等短半減期核種による線量の推計は、実測値が限られており、環境モニタリングデータやモデルに基づく計算データによる被ばく推計がなされているが、その精度の向上が課題となっており、UNSCEAR 2017 White paper（国連科学委員会 2017年白書）¹⁾でも事故初期における短半減期核種による内部被ばくの推計の向上が期待されている。この点に関しても検討を行った。

2. 研究開発目的

上記の背景を考慮して、不溶性微粒子を吸入したときの実効線量、肺等価線量（肺吸収線量）を評価するために、以下を目的にモデルの開発を行った。

- 1) 不溶性粒子に適した血中への溶解度などを考慮した体内動態モデルを開発すること
- 2) 比放射能の大きい少数の粒子を吸入した際の内部被ばく線量を確率論的に評価できるような線量評価モデルを開発すること

ここで開発したモデルが妥当であるかどうかを検証する必要があるが、これについては二通りの方法で行った。一つは開発したモデルにおいて吸入する粒子の数を多くしてシミュレーションを行って線量係数を評価し、ICRPモデルによる線量係数との比較を行うことである。ICRPモデルでは前述のように同様の放射能を持つ多数の粒子を吸入した場合の線量係数を評価している。開発した確率的線量評価モデルが妥当であれば、ICRPの体内動態モデルに基づきシミュレーションする粒子の数を十分に大きくすれば、評価される線量係数はICRPの線量係数と一致するはずである。

もう一つの検証としては、WBCによるセシウム体内量の継続的な測定データとの比較を行った。事故後、長期間にわたってWBCで繰り返し測定が実施されている作業者のデータが論文で公表されている。こ

のデータから、セシウムに関する通常の生物学的半減期である100日程度よりずっと長期に残留している成分が観察されている。この成分を不溶性粒子の長期残留であるとすれば、この作業員のセシウム体内量の変化（セシウムの残留曲線）と、本研究における体内動態モデルで適切なパラメータを設定してシミュレーションしたセシウムの残留曲線がある程度一致すれば、限られた実測データではあるが現実の体内動態を反映していると考えられる。

これらの方法によって開発したモデルが妥当であることが確認された後、不溶性のセシウム微粒子を吸入した際の線量の取りうる範囲を評価することを目的に、単位放射能吸入あたりの預託実効線量や肺等価線量（肺吸収線量）の試算を行った。

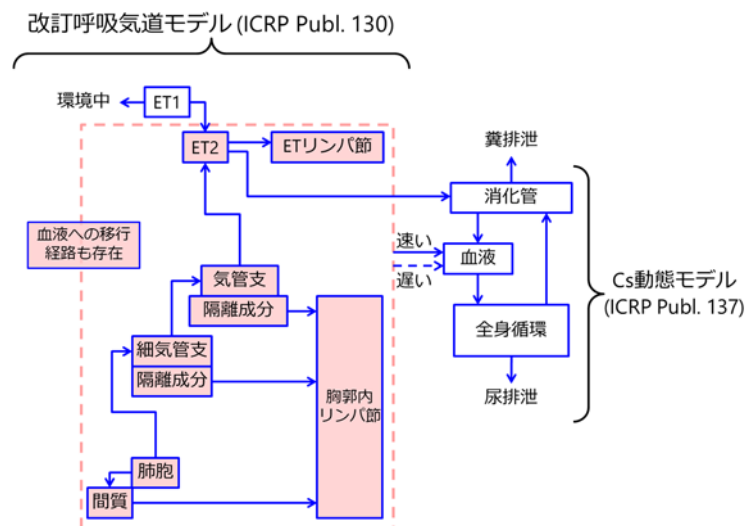
また、微粒子のごく近傍での局所的線量が確定的影響を与える可能性を評価する観点から、不溶性微粒子が体内のある場所に長時間付着した場合の微粒子のごく近傍での局所的線量分布を評価することを目的に、シミュレーションによる局所的線量評価を行った。

また、事故初期における短半減期核種による内部被ばくの推計の向上のための方策を検討した。

3. 研究開発方法

1) 不溶性の粒子に適した体内動態モデル

前述のように肺（呼吸気道）の各部位に沈着した粒子は、おもに3つの経路で呼吸気道から除去される（図(4)-1）。ICRPから公表されている最新のモデルは、呼吸気道モデルについてはICRP Publication 130²⁾、胃腸管モデルについてはICRP Publication 137³⁾である（図(4)-3）。本研究では、これらのモデルをもとに検討を行った。



図(4)-3 ICRPによる最新の呼吸気道モデルと胃腸管モデル（簡略化して表現している）

図(4)-3に示すように、ICRPのモデルでは、体内の各部位をコンパートメントで表現している。一つのコンパートメントに存在する放射能は、次のコンパートメント（例えばET2からETリンパ節）へ、ある速度定数（移行係数）で移行するものと仮定される。例えば、ET2に沈着した粒子は、ETリンパ節へ向かう経路と消化管へ向かう経路の二つの経路でET2から排出されることになる。それぞれの経路で設定されている移行係数を λ_1 、 λ_2 とし、ET2に流入する経路（ET1および気管支から）に関する移行係数を λ_3 、 λ_4 とすると、ET2の放射能の変化 $A(t)$ は次式で表される。

$$\frac{dA(t)}{dt} = -(\lambda_1 + \lambda_2)A(t) + \lambda_3B(t) + \lambda_4C(t)$$

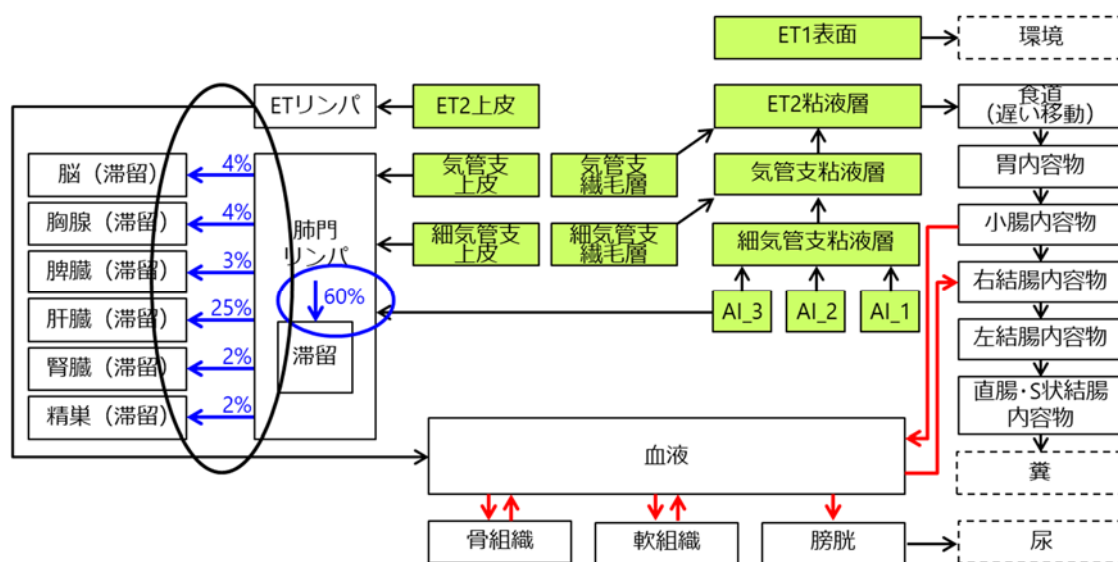
なお時間 t におけるET1、気管支の放射能をそれぞれ $B(t)$ 、 $C(t)$ としている。

このようにコンパートメントごとに常微分方程式を立てて、全てのコンパートメントに関する連立常微分方程式を解くことによって、ある時間 t における各コンパートメントの放射能や、各コンパートメントにおける総壊変数を求めることが可能となる。一方で、あるコンパートメント（臓器）で壊変が生じたときに当該臓器、あるいは周辺の臓器、組織で受ける放射線のエネルギーは、核データや標準人体ファントム（数値ファントム）から評価可能である。すなわち、標準人体ファントムでは、標準人における臓器の位置、大きさ等の情報を持っており、一方核データからは放出された放射線の人体内での透過率などを計算することができる。これにより、線源臓器（放射性物質が残留している臓器）で1つの壊変が生じて放射線が放出されたとき、標的臓器（着目している臓器）ではどのくらいの放射線エネルギーを受けるのかを評価することができる。

このような体内動態モデルや標準人体ファントム、および核データを用いて、核種ごとに1Bq摂取したときの預託実効線量や預託等価線量が計算され、ICRP Publicationに線量係数（単位摂取あたりの預託実効線量または等価線量）として整備されている。

従来のICRPモデルでは、血液への溶解のしやすさをFast、Moderate、Slowという3段階に分けていた。ここで粒子が不溶性の場合には、ICRPの定義するSlowよりさらに血液に吸収されにくいと考えられる。

粒子状物質の体内動態に関しては、動物実験からいくつかの知見^{4, 5)}が得られている。不溶性粒子の場合には、(1) 呼吸気道内壁の線毛運動により肺から咽頭へ除去（クリアランス）され、やがて胃腸管を通じて体外へ排出される経路が主となる、(2) 血液への移行は極めて少なく、組織・臓器への移行はリンパを通じて起こる、(3) 沈着した粒子の一部（～1%）はリンパを経由して2次臓器（肺門リンパ、脾臓、胸腺、脳、腎臓、肝臓、精巣等）に移行後、保持される、(4) 軟組織や骨組織への移行も見られるといった知見が得られている。このように肺胞まで侵入できる微粒子のうちサイズが小さいと感知されず纖毛運動が有効に機能しなかったり、あるいは、それよりもサイズが大きくてもアスベストのように特殊な形状のものはそこにとどまることも考えられるが、PM2.5のようにある程度のサイズのものは生体により感知されマクロファージにより貪食され除去されると考えられている。これらの知見を考慮すると図(4)-4のようなモデルが考えられる。



図(4)-4 粒子状物質に適した体内動態モデル

以上のような動物実験からの知見も考慮して、ICRPモデルに準じながらも血液への移行は全くあるいはほとんど生じないとした体内動態モデルを検討した。

2) 少数の粒子吸入に適した線量評価モデル

次いで、環境中から発見されている不溶性のセシウム微粒子は、粒子1個あたりの比放射能が高く、少数の粒子を吸入しただけでも被ばくを与える可能性も考えられる。ICRPのモデルでは、粒子径が対数正規分布している多数の粒子を吸入したときの動態を想定している。表(4)-1は、呼吸気道沈着モデル⁶⁾によって計算した単一粒子径の各部位への沈着割合（粒径別）である。

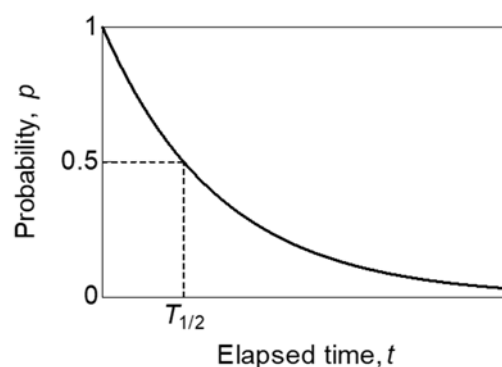
表(4)-1 呼吸気道別の沈着割合

	0.5 μm	1 μm	2 μm	3 μm	5 μm	10 μm
ET1	5.4%	15.6%	28.6%	35.3%	41.8%	40.3%
ET2	5.0%	19.3%	42.1%	47.6%	48.0%	42.2%
BB	0.3%	1.0%	2.5%	2.9%	2.5%	1.1%
bb	1.3%	0.9%	1.6%	1.7%	1.1%	0.1%
AI	7.8%	10.8%	11.9%	8.2%	2.7%	0.1%
合計	19.9%	47.6%	86.6%	95.7%	96.0%	83.7%

例えば、AMAD（空気力学的放射能中央径）が $1\mu\text{m}$ の粒子を吸入したときは、15.6%がET1に沈着し、呼吸気道全体では47.6%が沈着する（すなわち、52.4%の粒子は沈着せずに呼気とともに排出される）という計算になる。一方で、1個の粒子に着目した場合は、52.4%の確率で呼気とともに排出（被ばく線量=0）される一方、15.6%の確率でET1領域に沈着することもあり、10.8%の確率でAI（肺胞）領域に沈着することもあるという見方ができる。そのため、乱数を発生させて1個の粒子の沈着部位を決定することができる。すなわち、0～1で乱数を発生させたとき、0.524以下の値であれば呼気とともに排出され、0.524～0.68までの値であればET1に沈着するといったシミュレーションが可能となる。

次に沈着後の体内動態モデル（コンパートメントモデル）を確率論的モデルとして考えると次のようになる。図(4)-3に示したようなコンパートメントモデルでは、コンパートメント間の移行係数が一つの値に固定されている。例えば、当該コンパートメントの半減期（=移行係数/ $\ln 2$ ）が経過したときに、コンパートメント内に残留している放射能は初期放射能（ $t=0$ で当該コンパートメントに存在していた放射能）の半分であると評価される。

ここで1個の粒子を考えたとき、半減期に相当する時間が経過したときに当該コンパートメントに粒子が残っている確率は0.5と考えることができる。これを一般化して、ある時間 t が経過したときに当該コンパートメントに粒子が残っている確率 p は、図(4)-5のようなグラフで示すことができる。そこで、乱数から p を決定することによって、ある時間 t が経過したときに当該コンパートメントに残っているか、排出されているかをシミュレーションすることが可能である。この手法を用いて、1個の粒子の体内動態をシミュレーションするモデルを開発した。

図(4)-5 移行半減期 $T_{1/2}$ （ $=\ln 2 / \lambda$ ）で排出されるコンパートメントに粒子が残っている確率⁷⁾

なお比放射能の高い不溶性微粒子の場合、微粒子周辺で局所的に線量が高くなる可能性が考えられる。ICRPの線量評価モデルでは、臓器・組織平均の吸収線量をもとに実効線量や等価線量を評価している。そのため後述するように不溶性微粒子の近傍で局所的な線量分布が生じている可能性があるにも関わらず、臓器・組織の平均吸収線量のみでの評価でも良いかという点も検討しておく必要がある。

これに関しては、過去にトロトラストを投与された患者に関する追跡調査⁸⁾や、プルトニウム吸入したマヤック作業員の疫学調査⁹⁾の報告がある。トロトラストは、アルファ放出核種であるトリウムを含んでおり、肝臓・肺などトリウムやプルトニウムが蓄積しやすい臓器ではアルファ核種による不均一被ばくが生じている。組織平均吸収線量と、アルファ線の放射線加重係数20を用いて評価された肝臓がん・肺がんのリスクは、原爆被爆者のリスクと同程度であったと報告されている。発がんリスクは、臓器の標的細胞全体のリスクと関連していると考えられ、標的細胞全体の損傷量すなわち吸収エネルギー量に関係していると推察される。標的細胞が臓器全体に分布しているのであれば、臓器平均吸収線量がリスクを予測する線量となる。そのため本研究でも確率的影響の評価においては、組織平均線量に基づいた実効線量、等価線量を指標とすることとした。

3) 開発したモデルの妥当性の検証

上記1)、2)にて開発したモデルの妥当性検証の方法として、二通りの方法を検討した。一つはICRPモデルによる線量係数との比較である。すなわち、開発された少数の粒子の動態を確率的に評価するモデルにおいて、血液中への溶解速度をICRPのType Sと仮定し、かつ粒子の個数を増やしていった線量係数を評価する。このときの線量係数がICRPのType Sにおける線量係数と同等になれば、開発したモデルは妥当であると考えられる。

もう一つの妥当性検証として、Nakano et alが報告している作業員の体内残留セシウムのデータ¹⁰⁾を用いた。この研究では、7人の作業員について経時的にセシウム残留量を測定しており、7人中3人は合計16回、その他の4人でも7～11回の測定データがある。測定開始から800日までの残留曲線から、7人の被験者に関する¹³⁷Csの生物学的半減期を評価したところ、112日から131日であり、平均は116日であったと報告されている。しかしながら、測定開始から800日以降の残留曲線からは、3000日以上の実効半減期をもつ成分が観察されたとしている。さらに、測定に用いられたWBCは複数の検出器を備えているが、それぞれの検出器で測定された計数を比較してみると、長期残留成分は胸部上方に設置した検出器からの計数が相対的に多く寄与していることが示された。これらのことから、吸入によって取り込まれた不溶性セシウムが肺に長期間残留していることが示唆される。

本研究で開発したモデルにおいて、吸入したセシウム中の不溶性セシウムの割合や、その他のパラメータを適切に設定することによって、上記の測定で得られた残留曲線とある程度合致するかどうかを確認した。

4) 不溶性微粒子を吸入した際の内部被ばく線量評価

モデルの妥当性を確認した後に、各種の条件設定を行って、1個の粒子を吸入した際に取りうる預託実効線量、肺等価線量（肺吸収線量）の範囲を評価した。粒子に関する条件としては、粒子径：2.0 μm 、密度：2.0 g cm^{-3} 、形状係数（Shape factor）は1.0とした。これは、最初に発見されたCsボールの性状¹¹⁾に基づいている。また呼吸に関する条件設定として、成人男性、活動レベル：軽作業、呼吸習慣：鼻呼吸とした。沈着後の粒子の体内動態については、ICRPに準じたコンパートメントモデルを用いて評価を行った。

5) 不溶性微粒子の近傍の局所線量評価

比放射能の高い不溶性微粒子の場合、微粒子周辺で局所的に線量が高くなる可能性が考えられる。実効線量や等価線量などの確率的影響の指標となる線量に加えて、確定的影響の評価を行うための線量評価法を検討した。すなわち比放射能の大きい不溶性微粒子が体内の同じ場所に長時間付着した場合に、何等かの確定的影響が起りうるのかどうかを検討するため、微粒子近傍の組織に与える局所的線量の

評価を行った。これには、放射線の挙動を計算する汎用のシミュレーションコードPHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) を用いた。

6) 事故初期における短半減期核種による内部被ばくの推計の向上のための方策

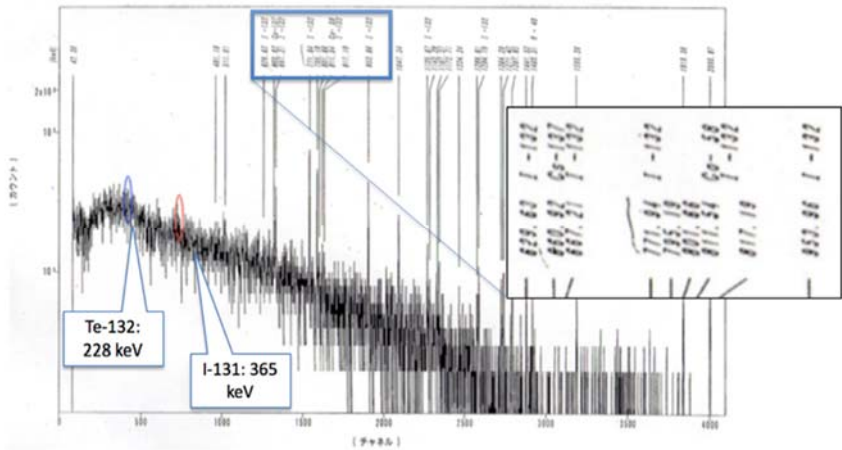
事故初期における短半減期核種による内部被ばくでは、放射性ヨウ素によるものとそれ以外の核種によるものがある。事故以前の運転により各号機に蓄積されていた放射性ヨウ素の量は、同位体の種類別に推計されており、それぞれの同位体の挙動が同じだとすると、I-131やI-129の量を把握することで他の放射性ヨウ素の同位体による線量も推計することが可能となるが、他の核種から壊変で生じず放射性ヨウ素では親核種の量を把握することが必要となる。この観点では放射性ヨウ素以外の核種の量を知る必要がある。このうち事故後2日目で空間線量率に最も寄与したのは、Te-132/I-132とされている¹²⁾。当時、ダストサンプリングにより評価された空气中濃度の例を表(4)-2に示す¹³⁾。このデータでは、放射平衡が成り立っているはずのI-132とTe-132に関して乖離があり、I-132の半減期補正においてTe-132からの供給を考慮しない安全側の推計がなされていると考えられる。この他、当時の混乱で扱いが誤っていたデータに対して、一般の方からの指摘が福島県庁にあり、福島県庁から原子力規制庁への問い合わせにより修正された¹⁴⁾。

バックグラウンドの線量率の増加がダストサンプリング結果に影響を与えたと考えられる例を図(4)-6に示す。この図は、福島市内において2011年3月18日の12:50-13:00に1 m³の空气中的放射性物質が活性炭フィルターを用いてサンプリングされ、2011年3月19日の15:51-16:08の1,000秒の間、ゲルマニウム半導体検出器を用いて計測されたエネルギースペクトルを示すものである。このスペクトルでは、バ

表(4)-2 ダストサンプリングにより評価された空气中濃度の例¹³⁾

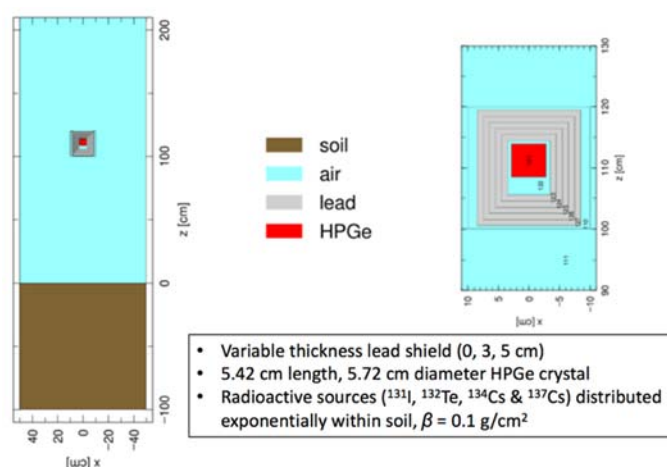
測定試料採取点*	採取日時	放射能濃度(Bq/m ³)						空間線量率 (μSv/h)	備考
		¹³¹ I	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹³² I	¹³² Te	その他検出された核種		
[3-1](33km北西)1回目	3月25日 12:28~12:52	38	1.6	1.9	110	1.6	不検出		[33]
[3-1](33km北西)2回目	3月25日 13:28~13:50	440	8.1	10	680	14	^{99m} Tc: 5.2		
[3-1](33km北西)3回目	3月25日 14:28~14:50	330	6.2	7.7	410	5.4	^{99m} Tc: 3.7		
[3-1](33km北西)4回目	3月25日 15:28~15:49	290	9.6	14	380	6.3	^{99m} Tc: 3.7		
Aコース	3月19日 13:16~13:36	25	6.1	7.0	29	11	^{99m} Tc: 1.6		
Dコース	3月19日 13:41~13:58	1.2	不検出	不検出	14	不検出	不検出		
Cコース	3月19日 13:54~14:14	1.7	不検出	不検出	15	不検出	不検出		
福島大学	3月18日 12:50~13:00	不検出	不検出	不検出	11,000	不検出	不検出		
福島飯坂IC	3月18日 13:51~14:01	不検出	不検出	不検出	11,000	不検出	不検出		
福島西IC	3月18日 14:30~14:40	不検出	不検出	不検出	9,100	不検出	不検出		
杉妻会館	3月18日 14:56~15:06	不検出	不検出	不検出	11,000	不検出	不検出		
Bコース	3月18日 14:11~14:31	3.3	1.3	不検出	4,000	2.0	⁵⁵ Co: 1.8 ^{99m} Tc: 11		
国道399号-114号交差点	3月18日 15:00~15:20	不検出	不検出	不検出	4,600	不検出	不検出		
常葉小学校入り口(田村市)	3月18日 10:55~11:05	2.2	不検出	不検出	16,000	不検出	不検出		
二本松市役所	3月18日 11:37~11:47	2.1	不検出	不検出	17,000	不検出	不検出		
道の駅 るくしま東和	3月18日 12:20~12:30	不検出	不検出	不検出	15,000	不検出	不検出		

^{99m}Tcの「m」は、原子の持つ軌道電子がエネルギーの高い軌道に遷移してエネルギーの高い励起(準安定)状態であることを表す。
備考欄の番号は、モニタリングカーによる測定箇所を示す。
* 空様の場所の詳細については確認中。
なお、ここに掲載された測定は、日本原子力研究開発機構により実施されています。



図(4)-6 事故初期に福島県内でのダストサンプリングで得られた試料を計測したスペクトル例

ックグラウンドの差し引きがなされておらず、低エネルギー領域にあると考えられるTe-132やI-131のピークが検出器外からの線源からの放射線の侵入により消失していると想定される。このため、Te-132の評価に資することを目的として、PHITSを用いたシミュレーションによりこの仮説検証を試みた。このシミュレーション計算は、広大な線源の広がりに対して、エネルギー沈着を計算する検出器の領域が小さいと共に、厚みのある鉛で検出器が覆われており、統計量を確保するために挑戦的なものとなる。このため、多段階の計算を用いると共に、大気中での輸送計算ではreflection boundariesを用い¹⁵⁾、ダンプデータを用いて再計算させる鉛のシールド内では、PHITSの自動重み付け計算法であるT-WWG (Weight Window Generator) を用いてシールド内の統計量を確保した。検出器応答を調べるためのエネルギー沈着では電子の追跡も追加した。ここでのカットオフ・エネルギーは、電子に対して100 keV、光子に対して3 keVとした。検討の過程で、接続計算で追跡する放射線粒子に重み付けをすることで、計算の不確かさの扱いに問題が生じることが確認されたので、PHITS [T-Deposit] tallyの計算方法が改良された。計算に用いた幾何学的な条件を図(4)-7に示す。



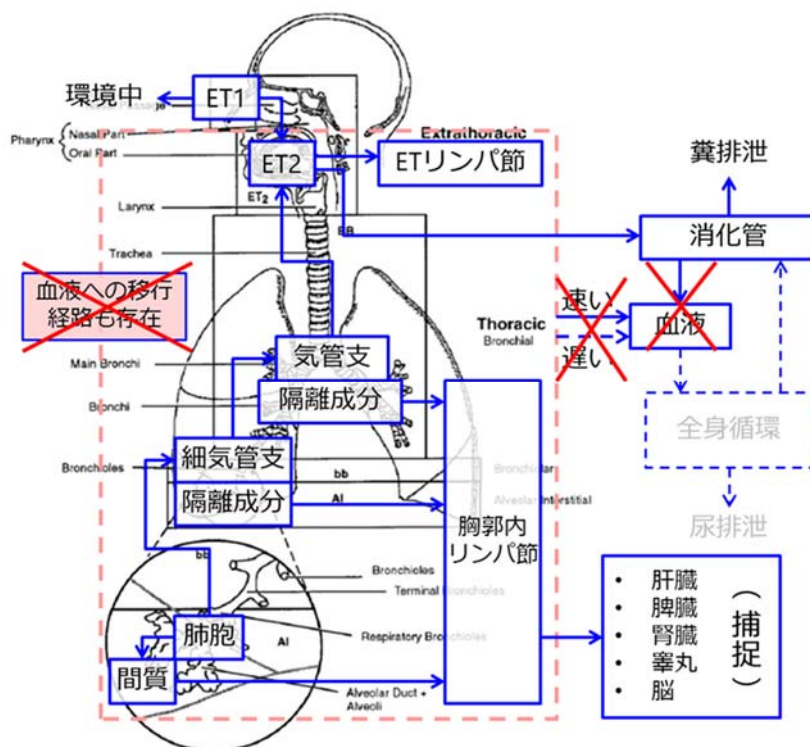
図(4)-7 計算に用いた幾何学的な条件

UNSCEAR 2013¹¹⁾の大気への核種の放出データを用い、2011年3月19日時点の値に核種組成を換算し、地表に降下した線源を以下のように設定した。すなわち地表に降下した放射性物質は地中に指数関数に従い浸透しているとし (β (relaxation mass depth) = 0.1 g/cm^2) ¹⁶⁾、I-132はTe-132からのingrowthを考慮し 0.57 MBq/m^2 とし、I-131はXe-131mの生成も考慮し 7.0 MBq/m^2 とし、Cs-134は 1.0 MBq/m^2 、Cs-137はBa-137mの生成も考慮し 1.0 MBq/m^2 とした。

4. 結果及び考察

1) 不溶性の粒子に適した体内動態モデル

このような粒子状物質に関する知見をもとに、ICRPのモデルに加えてリンパへの移行経路を新たに加えた図(4)-8のような体内動態モデルを開発した。

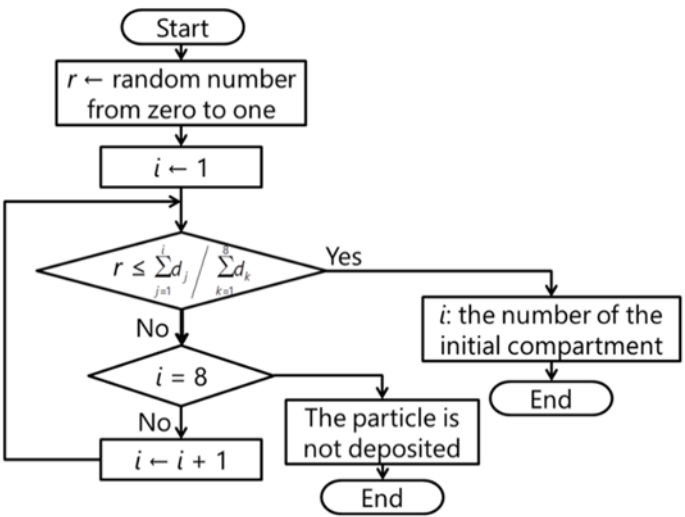


図(4)-8 血液への移行がほとんどない粒子状物質に関する体内動態モデル

2) 少数の粒子吸入に適した確率的な線量評価モデル

図(4)-3のようなコンパートメントモデルにおいて、図(4)-5のようなグラフをもとに乱数から p を決定することによって、ある時間 t が経過したときに当該コンパートメントに残っているか、排出されているかをシミュレーションした。

また、呼吸によって取り込まれた粒子が呼吸気道のどの部位に沈着するかについても、確率論的に評価した。これをフローチャートとして示すと、図(4)-9のようになる。



図(4)-9 呼吸気道の沈着部位を確率論的に評価するためのフローチャート⁷⁾

3) 開発したモデルの妥当性の検証

総壊変数および肺預託吸収線量に関して、本研究で開発したモデルで計算した値とICRPモデルに基づいて計算した値の比較を行った。比較したのは、あるコンパートメントにおける総壊変数 (N_S) および、単位放射能吸入あたりの肺吸収線量 (D_T) である。

表(4)-3に示すように、吸入する粒子の数（シミュレーションのヒストリー数）を増やしていくと、両者の比はほぼ1に近づき、ヒストリー数を 10^7 とすると比は1.0となった。これにより、開発したモデルは妥当なものであると考えられた。

表(4)-3 総壊変数および肺預託吸収線量に関して、本研究で開発したモデルで計算した値とICRPモデルに基づいて計算した値の比

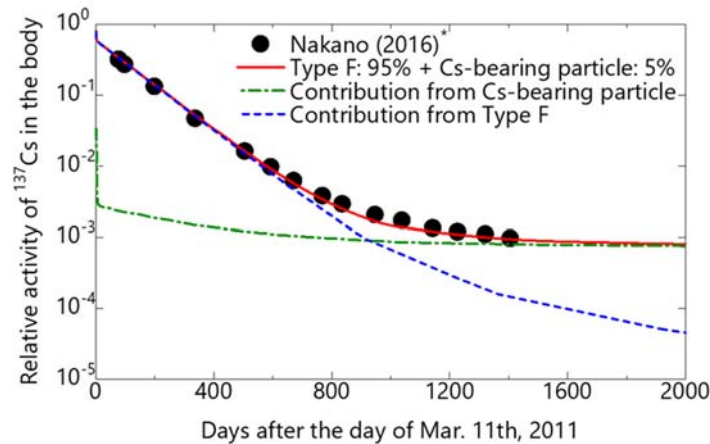
Ratio for N_S							Ratio for D_T					
Source regions	Deposition fraction	Number of histories				DCAL	Tissue	Number of histories				DCAL (Sv)
		10^4	10^5	10^6	10^7			10^4	10^5	10^6	10^7	
Alveolar-interstitium	1.1E-01	1.0	1.0	1.0	1.0	4.0E+06	Lungs	1.0	1.0	1.0	1.0	1.4E-07
Bronchiole-fast	9.9E-03	1.0	1.0	1.0	1.0	3.4E+03	ET region	0.5	0.9	1.0	1.0	2.3E-08
Bronchiole-slow	9.5E-03	1.2	1.1	1.0	1.0	2.6E+04	Stomach	1.0	1.0	1.0	1.0	5.5E-09
Bronchiole-sequestered	1.4E-04	0.0	1.1	1.0	1.0	1.1E+03	Small intestine	1.0	1.0	1.0	1.0	1.7E-09
Bronchi-fast	6.8E-03	1.0	1.0	1.0	1.0	8.1E+02	Colon	1.0	1.0	1.0	1.0	3.3E-09
Bronchi-slow	6.0E-03	1.0	1.0	1.0	1.0	1.7E+04	Urinary bladder	1.0	1.0	1.0	1.0	5.1E-10
Bronchi-sequestered	9.0E-05	1.3	0.8	1.0	1.0	7.1E+02						
Lymphatic nodes-Thoracic	—	0.8	0.9	1.0	1.0	3.4E+04						
ET1-surface	1.5E-01	1.0	1.0	1.0	1.0	1.3E+04						
ET2-surface	1.9E-01	1.0	1.0	1.0	1.0	2.5E+02						
ET2-sequestered	9.5E-05	0.0	0.8	1.1	1.0	4.1E+03						
Lymphatic nodes-ET	—	0.0	1.1	1.0	1.0	4.0E+03						

Good agreement for 10^7 histories

Good agreement for 10^6 histories

次に、Nakano et alが報告している作業者の体内残留セシウムのデータ¹⁰⁾との比較を行った。測定開始から800日以降の残留曲線からは、3000日以上の実効半減期をもつ成分が観察されたとしている。本研究で開発したモデルにおいて、吸入したセシウム中の不溶性セシウムの割合を適切に設定することによって、上記の測定で得られた残留曲線とある程度合致するかどうかを確認した。

不溶性セシウムが5%、残りが可溶性セシウムであると仮定して、開発したモデルによってセシウム残留量をシミュレーションした結果を図(4)-10に示した。実測値（黒丸）とシミュレーションによる曲線（赤）が良く一致していることがわかる。



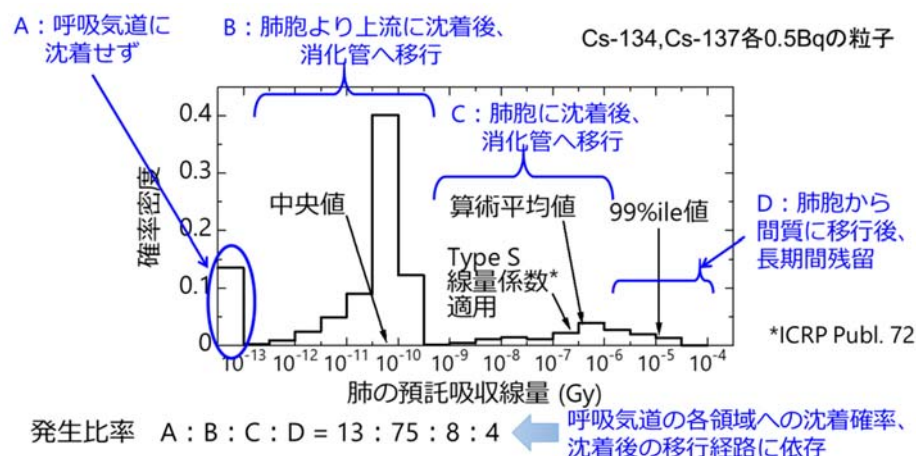
図(4)-10 被験者のセシウム残留量の経時的変化と本研究で開発したモデルで推定した残留曲線

4) 不溶性微粒子を吸入した際の内部被ばく線量評価

粒子径が $2\mu\text{m}$ で ^{134}Cs 、 ^{137}Cs それぞれ0.5Bqずつ、合計1Bqの放射能を持つ粒子を1個吸入するとして、肺預託吸収線量の確率密度分布を評価した結果を図(4)-11に示す。このグラフを見てわかるように、線量は非常に幅広い範囲に分布していることがわかる。

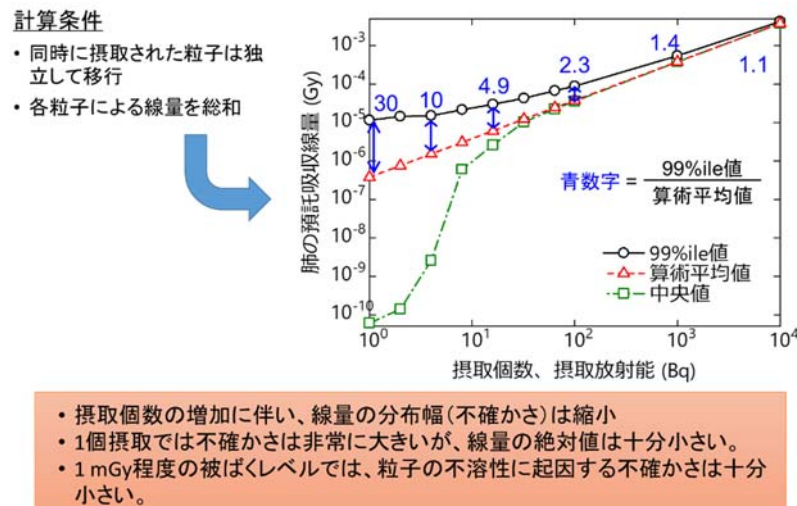
図(4)-11の一番左側 (A) については、粒子を吸入したが呼吸気道に沈着せずに呼気とともに排出される確率である。この場合の線量はゼロとなる。次にBとして示した領域は、呼吸気道で肺胞より上流(図(4)-1においてAIより上流の領域)に沈着し、その後纖毛運動によって消化管に排出される経路をたどる確率である。発生確率としては、このケースが一番多く、約75%を占めている。次にCとして示した領域は、肺胞に沈着した後に、纖毛運動によって消化管に移行するケースである。この場合の線量は 10^{-9} から 10^{-6} に分布していることがわかる。ICRPモデルにおけるType Sの線量係数もこの範囲内に含まれる。Dとして示した領域が線量としては一番高くなる。これは、肺胞から間質に移行後、長期間残留するケースである。このケースの確率は約4%であり、99パーセンタイル値もこの領域の中に含まれる。

ICRPは単一の線量係数を提示しているが、比放射能の大きい単一の粒子を吸入した場合には沈着する部位、移動経路、残留時間の確率的な振る舞いによる不確かさによってICRPの線量係数 (Type S) で計算した値に比べて100倍程度までの非常に幅広い範囲の値を取りうることを示唆している。



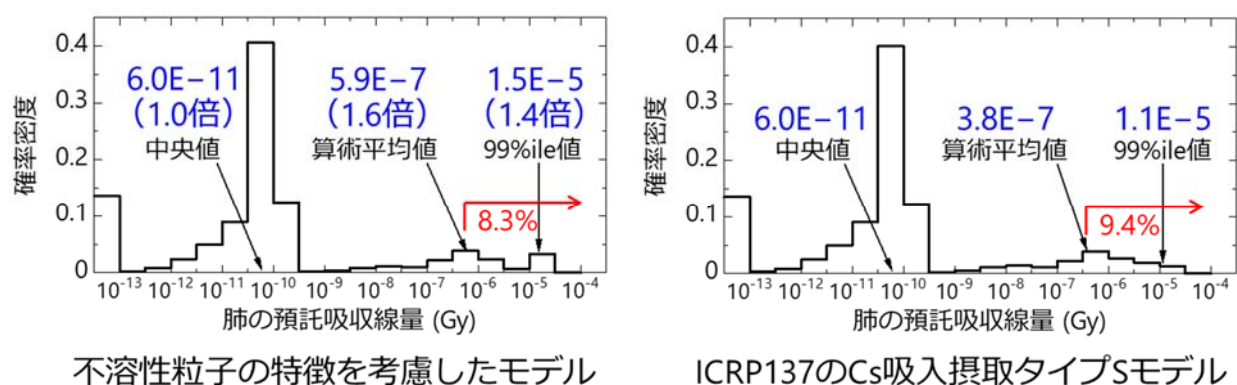
図(4)-11 1Bqの放射能を持つ粒子を吸入した場合の肺の預託吸収線量に関する確率密度分布

次に、摂取する粒子の個数を増やしていったときの確率密度分布の変化を図(4)-12に示した。粒子1個の吸入をシミュレーションすると図(4)-11に示したように、肺預託吸収線量の中央値、算術平均値、99パーセンタイル値に大きな開きがあった。しかしながら、図(4)-12に示したように吸入する粒子の数を増やしていくとともに、肺預託吸収線量の算術平均値と中央値はほぼ同様の値となった。また、99パーセンタイル値と算術平均値との比も1に近づいていくことがわかる。これらの結果から、摂取する粒子の個数が増加することによって線量分布の幅（不確かさ）は縮小することがわかる。



図(4)-12 複数の粒子を摂取した場合の肺の預託吸収線量

また、ICRPモデルにおいてCsの血液への吸収速度がType Sとして評価した肺の預託吸収線量の分布と、本研究で開発した不溶性粒子の特徴を考慮したモデルによる肺の預託吸収線量の分布とを比較したグラフを図(4)-13に示した。不溶性粒子の特徴を考慮したモデルのほうが、算術平均値で1.6倍、99パーセンタイル値で1.4倍であったが、中央値はほぼ同じであった。体内動態モデルの違いによる肺の預託吸収線量は、それほど大きくはなかった。

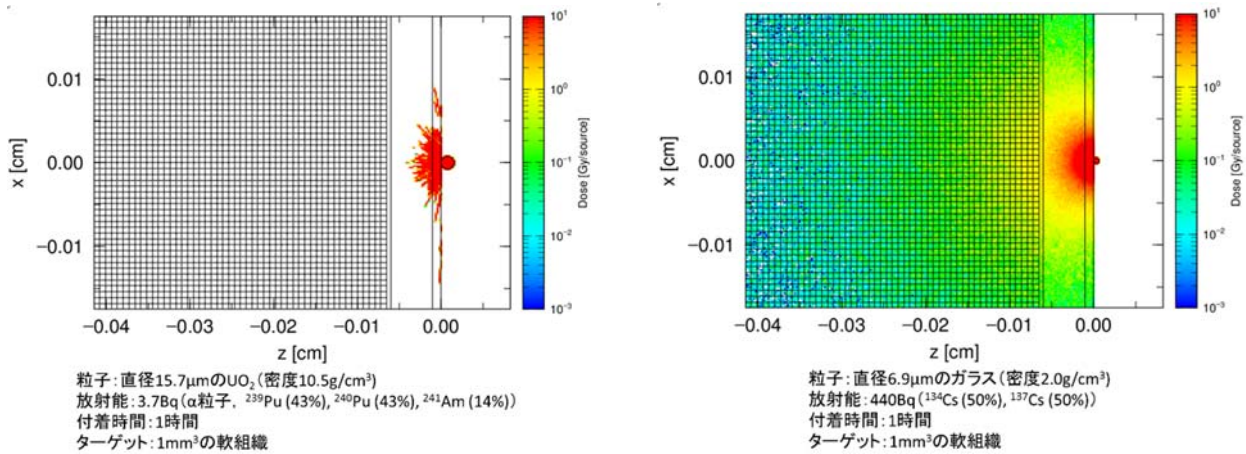


図(4)-13 不溶性粒子に関するモデルとICRPの吸入タイプSを仮定したモデルとの比較

5) 不溶性微粒子の近傍の局所線量評価

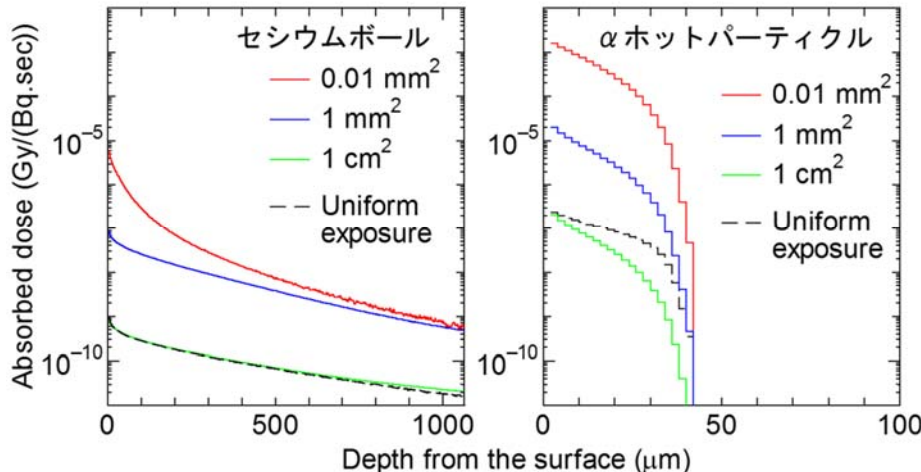
PHITSを用いて、粒子近傍の線量分布をシミュレーションした結果を図(4)-14に示す。シミュレーションの条件は図の下に書いてあるように、440Bqの放射能を持つセシウムの粒子が1時間、軟組織に付着したという条件で計算してある。

この図からわかるように、セシウムボールのごく近傍（0.1mm以内程度）の領域は特に線量が高いことがわかる。吸収線量は、吸収された放射線のエネルギーを質量で割ることによって評価される。ここで、微粒子近傍のどの部分の領域（質量）を考えるかによって線量が大きく異なることが示唆される。



図(4)-14 アルファ線を放出するホットパーティクル (左) と不溶性セシウム粒子 (右) の近傍での吸収線量分布

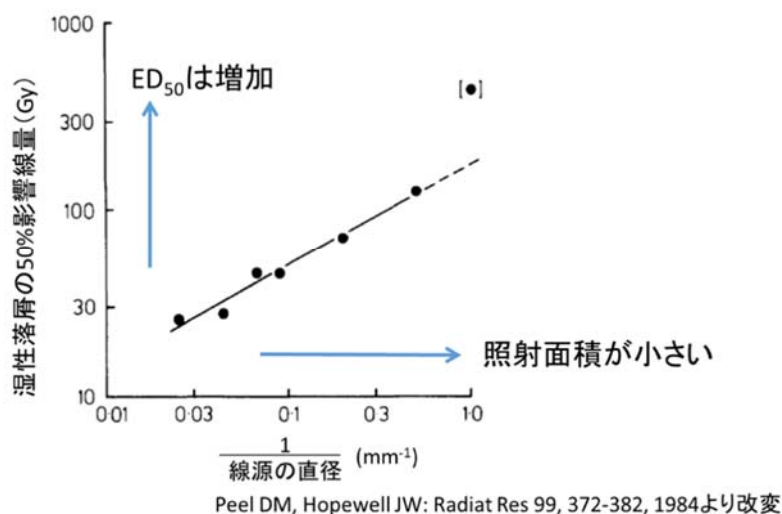
図(4)-15は、線量を積分する領域の大きさと線量との関連を示したものである。左のグラフで 10^{-5} Gy/(Bq. sec)の目盛りに相当する線量は、1 Bqの放射能が約28時間 (10^5 秒) 同じ場所に留まり続けた場合に、1 Gyとなる。この図から、線量を積分する範囲を小さく取った場合 ($0.1\text{mm} \times 0.1\text{mm} = 0.01\text{mm}^2$) の場合には、組織表面近くでは 10^{-5} Gy/(Bq. sec)のオーダーに迫る線量率になることがわかる。実際に観察されている不溶性粒子を想定して、数十Bqの放射性セシウム粒子が同じ場所に留まり続けた場合には、呼吸気道表層部に沈着した微粒子近傍の標的細胞1mm² (深さがET細胞: 40–50 μm, BB分泌細胞: 10–40 μm, BB基底細胞: 35–50 μm, bb分泌細胞: 4–10 μm) の領域では0.1 Gy/day程度になる計算結果となった。これは、線量評価を行う領域 (質量) を広く取るにつれて、線量は急激に減少するし、小さくとることで増加する。ただし、下記に述べるように領域の大きさによって線量の大きさの生物影響の意味が異なることを考えて数値の解釈しなければならない。



図(4)-15 吸収線量の距離・積分範囲依存性セシウムボール (左)、αホットパーティクル (右)

一方で、積分する領域の取り方と確定的影響のしきい線量とが関連することを示唆する報告がされている¹⁷⁾。この報告では、異なる面積を持つ面線源を利用してブタの皮膚にベータ線を照射し、皮膚の湿性落屑 (水ぶくれが出来て、皮膚が剥がれ落ちる症状) を生じる線量を観察している。これによると、照射面積が小さくなるにつれて湿性落屑の50%影響線量 (半数のサンプルに影響が生じる線量) は大き

くなるという結果になっている（図(4)-16）。

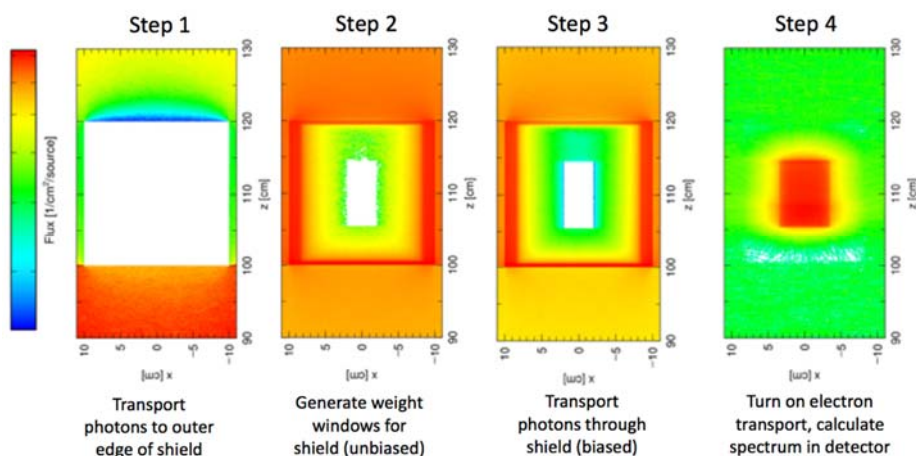


図(4)-16 皮膚障害（湿性落屑）の50%影響線量と照射面積との関係

したがって、図(4)-15で非常に小さい領域（例えば、 0.01mm^2 ）に着目すれば、相当の線量になるものの、その場合は通常影響が発生すると考えられている組織反応のしきい線量より、しきい線量が大きくなることが予想され、少数の細胞に限定した損傷であれば、がんリスク以外の影響の起きる可能性は低いといえる。それでも、不溶性粒子の組織反応については、多数の粒子数を吸入して多数の細胞が影響を受ける場合には、線量を評価する組織の領域との関係の点から動物実験で確かめる必要があるかもしれない。動物実験の結果によっては、多数の粒子が局所に集中的にエネルギーを付与することの健康影響が想定される場合には、被災動物を用いた研究やこれまでの研究成果¹⁸⁾を踏まえて、疫学研究を検討する必要があるかもしれない。

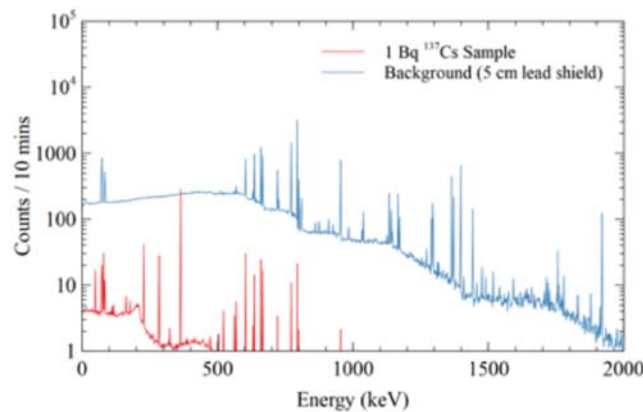
6) 事故初期における短半減期核種による内部被ばくの推計の向上のための方策

PHITSによって放射線粒子を輸送させた計算結果を図(4)-17に示す。色は、参考として示したものでそれぞれの図での相対的な関係を示すに過ぎず直接比較はできないが、それぞれのステップでのサンプリングの効率を示しており、T-WWG を用いると鉛シールド内の計算が効率的になされていることが示されている。

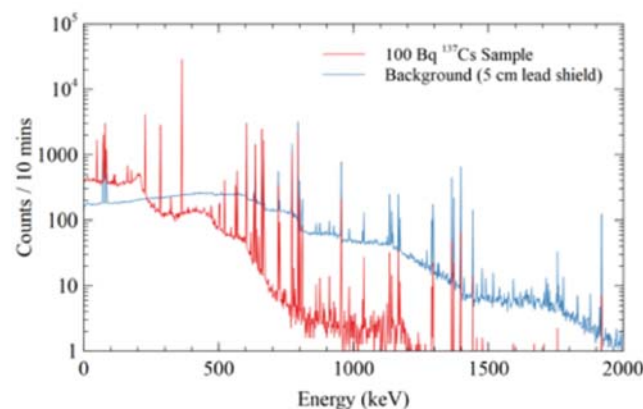


図(4)-17 各ステップの放射線粒子輸送計算結果

チャコール・フィルタで捕集された放射性物質の量がCs-137として1 Bqとした場合（他の核種は、UNSCEAR 2013の大気への核種の放出データに基づき組成比で値付け）のスペクトルの計算結果を図に示す。鉛の厚みは実際に模擬し5cmとしている。また、チャコール・フィルタで捕集された放射性物質の量について、Cs-137を100 Bq（他の核種は、UNSCEAR 2013の大気への核種の放出データに基づき組成比で値付け）とした場合のスペクトルの計算結果を図(4)-18と図(4)-19に示す。それぞれ試料に捕集された放射性物質の量を変化させており、図(4)-19は図(4)-18の100倍としている。



図(4)-18 計算で得られたスペクトル（捕集された放射性物質の量をCs-137で1 Bqとして規格化）



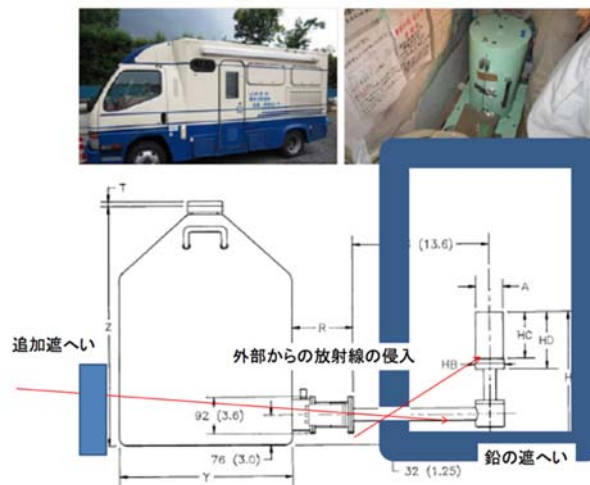
図(4)-19 計算で得られたスペクトル（捕集された放射性物質の量をCs-137で100 Bqとして規格化）

得られた計算結果から、スペクトルの形状はバックグラウンド環境の放射性物質の量に影響を受け、当時得られたスペクトルの形状に類似していること、試料の放射性物質の量が小さいと高バックグラウンドにより低エネルギー側の試料由来のピークが消失しうること、低エネルギーピークが観測されている場合は、それは試料中の放射性物質を示すと考えられることがそれぞれ示されたと考えられる。また、高エネルギーのピークの面積の比は、それぞれのピークの由来の弁別役に役立つとも考えられた。

ここで示した結果は予備的なものであり、まだ、多くの限界がある。例えば、環境中での放射性物質の存在は、均一な地表での降下とは異なると考えられるが、そのことは考慮されておらず、不均一性が結果に影響を与える可能性がある。また、装置やモニタリングカーの汚染が考慮されていない、親核種と子孫核種の間での化学的な違いによる環境中の挙動の差異が考慮されていない、検出器に応答特性が放射線エネルギー付与のみの考慮となっているなどの限界がある。

今後の課題として、実際の装置の状況（図(4)-20）を反映させて計算体系をより精緻化するとともに、このシミュレーション計算の妥当性を評価する必要がある。例えば、高バックグラウンド環境においてモニターカーでCs-137の667 keVの γ 線のシールドでの透過の程度などバックグラウンドの影響を適切に計算できているかどうかなどの検証が求められる。

短半減期核種による内部被ばくでは吸入曝露だけではなく、経口摂取による線量の実態把握も課題となっているが、研究者が関係を作ることによって当時の事実関係が確認されているので、飲食物の濃度プロファイルが構築できれば、聞き取り調査で経口摂取の実態を明らかにでき、症例対照研究などの疫学研究の質の向上に貢献できるとも考えられる。



図(4)-20 モニターカーと検出器周囲の遮へい

5. 本研究により得られた成果

(1) 科学的意義

多数の粒子を吸入することを前提として構築されていた従来の体内動態モデルに対して、1個の粒子を吸入した際の体内動態を確率論的に表現するモデルを開発した。このモデルを使用することによって、内部被ばく線量の確率密度分布(線量の取りうる幅)を評価することができた。吸入粒子数が1個の場合、線量分布の幅(不確かさ)は非常に大きいですが、吸入粒子数の増加に伴い、不確かさは減少することがわかった。

(2) 環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

スペクトル情報を用いた解析は住民の疑問に対応する際に有益であると考えられることから、平成29年度原子力災害影響調査等事業放射線健康管理・健康不安対策事業(放射線の健康影響に係る研究調査事業)において自治体への住民の問い合わせに対して、本研究で得られた成果が活用されるとともに研究者と一般の住民の間でのコミュニケーションが改善された。その対応の様子を第一回環境創造シンポジウムでのブース展示でデモにより示した。

<行政が活用することが見込まれる成果>

粒子の数としては少ないが、粒子1個あたりの比放射能の大きい不溶性セシウムを吸入したときの線量の取りうる幅とその線量の大きさを吸入する粒子数に応じて一般市民に提示することができる。

事故初期に得られた環境モニタリングデータに関して、高バックグラウンド環境であることを考慮して解釈した結果を一般住民に提供することができると考えられる。

6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) K. Manabe and M. Matsumoto: J. Nucl. Sci. Technol., DOI:10.1080/00223131.2018.1523756
“Development of a stochastic biokinetic method and its application to internal dose estimation for insoluble cesium-bearing particles”

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

※発表済みのもの又は確実に発表する予定のものにとどめること。

- 1) Ichiro Yamaguchi, Alex Malins: 第15回日本放射線安全管理学会(2016)
「Preliminary attempt to re-estimate the concentration of ^{132}I in the air considering ground depositions of radionuclides」
- 2) Ichiro Yamaguchi, Alex Malins: 12th Research meeting on PHITS(2016)
「Preliminary attempt to re-estimate the concentration of radioactive iodine-132 in the air.」
- 3) 反町篤行: 第58回大気環境学会年会・特別集会5 (2017)
「福島原発事故における内部被ばく調査 ―現状と課題―」
- 4) K. Manabe and M. Matsumoto: Joint ICRP-RERF-JHPS Workshop on Recent Progress in Radiation Dosimetry for Epidemiology and Radiological Protection (2017), “Modeling of Internal Dose from Insoluble Cesium”
- 5) 真辺健太郎: 日本保健物理学会シンポジウム I 「福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて―不溶性粒子と短半減期核種―」 (2018)
「不溶性粒子の吸入による内部被ばく線量の評価」
- 6) 山口一郎、Alex Malins: 日本保健物理学会シンポジウム I 「福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて―不溶性粒子と短半減期核種―」 (2018)
「短半減期の内部被ばく」
- 7) Kentaro Manabe and Masaki Matsumoto: The 5th Asian and Oceanic Regional Congress on Radiation Protection (2018)
「Internal Dose Estimation Considering the Characteristics of Insoluble Caesium-bearing Particles」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

- 1) 日本保健物理学会シンポジウム「福島事故を内部被ばくから考える」(主催: 日本保健物理学会、平成29年3月24日、東京大学、公開、参加者約60名)にて講演
- 2) 日本保健物理学会シンポジウム「福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて ―不溶性粒子と短半減期核種―」(主催: 日本保健物理学会、平成30年3月19日、東京大学、公開、参加者約80名)にて講演

(5) マスコミ等への公表・報道等

上記のそれぞれのシンポジウムでは報道関係者の取材に対応した。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): Fukushima 2017 white paper (2017).
- 2) International Commission on Radiation Protection (ICRP): ICRP Publication 130.
- 3) International Commission on Radiation Protection (ICRP): ICRP Publication 137.
- 4) Fletcher F., et al.: The Toxicity of Insoluble Cerium-144 Inhaled by Beagle Dogs: Non-neoplastic Effects, *Radiat. Res.* 155, 95-112 (2001).
- 5) Geraets L., et al.: Tissue Distribution of Inhaled Micro- and Nano-sized Cerium Oxide Particles in Rats: Results From a 28-Day Exposure Study, *Toxicol. Sci.* 127, 463-473 (2012).
- 6) International Commission on Radiation Protection (ICRP): ICRP Publication 66.
- 7) K. Manabe and M. Matsumoto: Development of a stochastic biokinetic method and its application to internal dose estimation for insoluble cesium-bearing particles, *J. Nucl. Sci. Technol.*, DOI: 10.1080/00223131.2018.1523756
- 8) Harrison JD and Muirhead CR: Quantitative comparisons of cancer induction in humans by internally deposited radionuclides and external radiation. *Int J Radiat Biol* 79, 1-13 (2003).
- 9) Gilbert ES, et al.: Lung cancer risks from plutonium: An updated analysis of data from the Mayak worker cohort. *Radiat Res.* 179, 332-342 (2013).
- 10) Nakano et al.: Three-year retention of radioactive caesium in the body of tepcoworkers involved in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident. *Radiat. Prot. Dosim.* 170, 315-318 (2016).
- 11) Adachi K, Kajino M, Zaizen Y, Igarashi Y.: Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci Rep*, 3, 2554 (2013).
- 12) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): UNSCEAR 2013 Report Annex A: Levels and effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 great east-Japan earthquake and tsunami, United Nations (New York) (2014).
- 13) 原子力規制委員会: ダストサンプリングの測定結果 (平成23年3月18日、19日、25日採取) . http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/4000/3698/24/1210_201103.pdf
- 14) 原子力規制委員会: 原子力規制庁及び福島県による大気浮遊じんの測定結果 . <http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/222/list-1.html>
- 15) Furuta T, Takahashi F. A computational approach using reflection boundaries for dose calculation in infinitely expanded radiation field. *Radiat Prot Dosim*, 167,392-8(2015).
- 16) Malins A, Kurikami H, Nakama S, Saito T, Okumura M, Machida M, Kitamura A. Evaluation of ambient dose equivalent rates influenced by vertical and horizontal distribution of radioactive cesium in soil in Fukushima Prefecture. *J Environ Radioact*, 151 Pt 1,38-49 (2016).
- 17) Peel DM, Hopewell JW: Nonstochastic effects of different energy beta emitters on pig skin. *Radiat Res* 99, 372-382 (1984).
- 18) Svendsen ER, et al. Reduced lung function in children associated with cesium 137 body burden. *Ann Am Thorac Soc.* 12(7):1050-7. doi: 10.1513/AnnalsATS.201409-4320C. (2015)

Ⅱ－５ 大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築

国立研究開発法人国立環境研究所

企画部

大原 利真

福島支部 環境影響評価研究室

高木 麻衣

地域環境研究センター 大気環境モデリング研究室

森野 悠・五藤 大輔

環境リスク・健康研究センター 曝露動態研究室

中山 祥嗣

平成27～29年度累計予算額：17,499千円（うち平成29年度：5,052千円）

予算額は、間接経費を含む。

【要旨】

福島第一原子力発電所の事故直後の大気中の粒子状放射性物質濃度データ（サブテーマ2，3）を使って、大気輸送沈着モデル（ATDM*）を検証・改良し、このATDMと内部被ばく線量推定モデルを結合することにより、事故後初期のI-131による呼吸由来の内部被ばく線量（甲状腺等価線量）を推計した。本研究で使用した複数のATDMは、福島県や関東地方へ輸送された多くの放射性プルームを捉えているものの正確には再現できていない事象もある。また、Cs-137の期間積算濃度（3月12～23日）と日積算濃度は、ほとんどの地点で期間積算濃度を0.1～10倍の範囲で再現しており、日積算濃度に対しても多くの地点で0.1～10倍の範囲で再現している。また、粒子状I-131濃度についてもCs-137と同程度の再現性があることを確認した。このATDMで計算された大気濃度をもとに内部被ばく線量分布を福島県内の市町村別に推計し、高い被ばくを受けた可能性のある日時と地域を明らかにした。また、避難シナリオ別の被ばく線量を評価し、各シナリオでの高被ばく日を把握した。これらの被ばく線量を複数の方法で推計し、その不確実性について議論した。本研究によって得られた成果は「東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う住民の健康管理のあり方に関する専門家会議」中間取りまとめにおける「国による今後の調査研究の方向性」の一つとして言及されていた「高い被ばくを受けた可能性のある集団の把握」に直接貢献するものである。また、呼吸由来の甲状腺等価線量に関する方法論と推計結果は、UNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）の報告書等において活用されることが見込まれる。更に、不溶性Cs粒子の放出期間を仮定したATDMシミュレーションにより、その大気濃度・沈着分布と被ばく線量を試算した。

【キーワード】

ばく露評価、大気輸送沈着モデル、I-131、呼吸経路内部被ばく、甲状腺等価線量

1. はじめに

福島第一原子力発電所の事故（以下、原発事故）により、大量の放射性物質が環境中に放出された。事故による健康リスクについては、WHOやUNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）による評価が行われているが、事故後初期の実測データの不足から、初期被ばくに伴うリスクの評価に必要な被ばく線量の推計結果は不確実性が大きく、その改善が懸案課題とされている。

これまで、事故後初期の放射性プルームによる汚染実態は、主に空間放射線量率の推移や地表への沈着量分布から把握され、大気中の実試料の成分分析は非常に少なかったが、大気汚染常時監視装置で使われたろ紙の分析により、事故直後の大気中の粒子状放射性物質濃度の時空間分布が明らかになりつつある。一方、時空間的に詳細な被ばく線量推計のためには大気輸送沈着モデル（ATDM*）が有用であるが、これらの粒子状放射性物質濃度データはモデルの検証や改良に有効である。

*)ATDM: Atmospheric Transport, Dispersion and Deposition Models. 大気移流拡散沈着モデルとも訳される

2. 研究開発目的

本研究のサブテーマ2、3による大気中の粒子状放射性物質濃度の実測データをもとにATDMを検証・改良するとともに、内部被ばく線量推定モデルを精査し、両モデルを結合して事故後初期の呼吸由来のI-131による被ばく線量の推計と不確実性評価を行うことを目的とする。

3. 研究開発方法

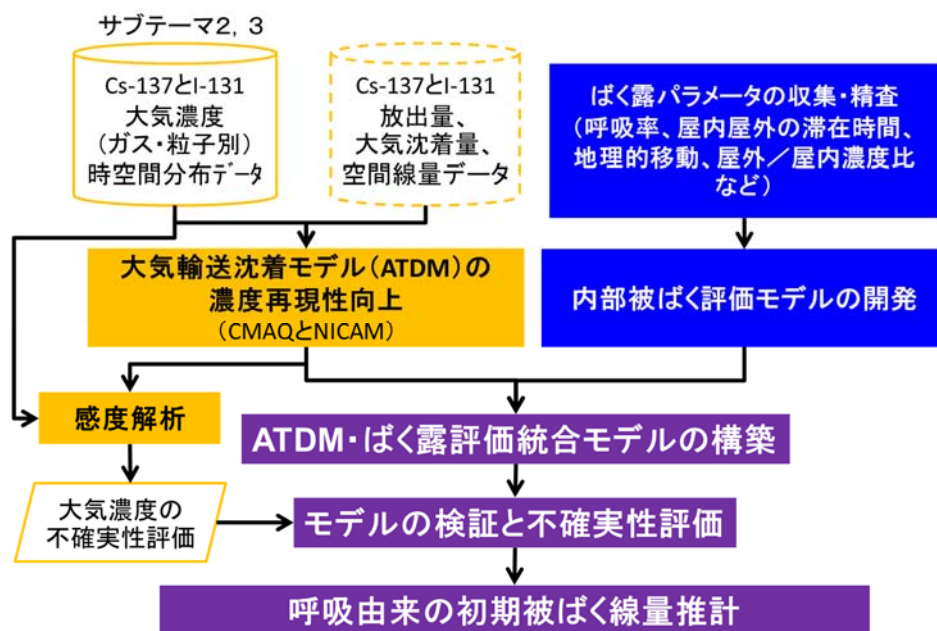
(1) 大気拡散・ばく露評価統合モデルによる呼吸由来の初期被ばく線量推計手法の概要

図(5)-1は、本研究のフローチャートを示す。大気汚染常時監視装置で使用されたる紙の分析によって得られた事故直後の大気中の粒子状放射性物質（Cs-137とI-131）濃度データ（サブテーマ2、3）を用いて、ATDMを検証・改良し、このATDMで計算された時空間濃度データを用いて、次の2つの方法によりI-131濃度を推計した。

- ① Cs-137計算濃度をもとにサブテーマ3によるI-131/Cs-137比とI-131のガス粒子比を使って推計
- ② I-131計算濃度を直接使用

次に、I-131濃度計算結果とばく露評価モデルを用いて、呼吸由来の初期被ばく線量を以下の3つの視点から推計した。

- ① 大気濃度測定地点における線量
→Cs-137実測値（サブテーマ3の結果をもとに設定したI-131/Cs-137比とI-131ガス粒子比を使用）に基づく推計値、ATDM計算値に基づく複数の推計結果（上記①と②）の比較
- ② 市町村毎の線量頻度分布
→市町村内のばらつき、小児甲状腺スクリーニング測定に基づく評価結果等との比較
- ③ 避難パターン毎の線量、避難による回避線量



図(5)-1 本研究のフローチャート

(2) 大気輸送沈着モデルの検証・精緻化

事故後初期のセシウム137（Cs-137）の大気濃度の再現を目指して、2つの領域スケール大気輸送沈着モデル（WRF/CMAQとNICAM）を基に、サブテーマ3によって得られた浮遊粒子状物質(SPM)自動測定器のテープろ紙の分析結果を用いた大気シミュレーションの検証・精緻化を進めた。

ATDMシミュレーションには、気象モデルWRF(Weather Research and Forecast)と化学輸送モデルCMAQ

(Community Multiscale Air Quality)をオフライン結合したシステム (Morino et al., 2013)¹⁾、及び東京大学大気海洋研究所・JAXA/EORCと共同で開発を進めている領域版NICAM (Diamond-NICAM; Uchida et al., 2017)²⁾を用いた。いずれの計算においても水平空間解像度は3kmに設定し、最新のソースタームの一つであるKatata et al. (2015)³⁾、及び地上気象観測データに同化して求められた気象解析データ(Sekiyama et al., 2017)⁴⁾を入力データとして利用した。シミュレーション期間は2011年3月11～23日である。なお、Katata et al. (2015)³⁾ではCs-137/I-131比の設定において物理的減衰を考慮していないが、本研究のWRF/CMAQではI-131の物理的減衰を考慮してCs-137/I-131放出比を設定した。Katata et al. (2015)³⁾では、I-131放出量とCs-137/I-131放出比を基にCs-137放出量を求めているので、Katata et al. (2015)³⁾とはI-131放出量は同一だがCs-137放出量が異なる(以後、Katata et al. (2015)³⁾修正版)。なお、NICAMでは上記補正をせずにKatata et al. (2015)³⁾を使用した。

また、WRF/CMAQでは以下に記した湿性沈着モジュール、ソースターム、気象解析データに対する感度実験を実施して、シミュレーションによる再現性の不確実性を評価した(表(5)-1)。

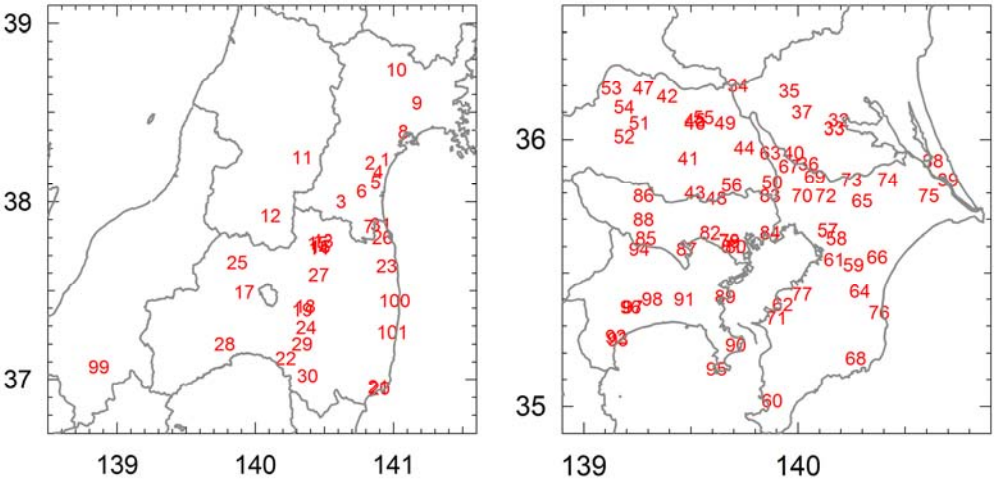
○湿性沈着モジュール：沈着係数を経験的に与えるWSPEEDIモジュール (Terada et al. (2012)⁵⁾) と診断的に計算するCMAQモジュールを用いたシミュレーション結果の比較 (湿性沈着モジュールの詳細はMorino et al. (2013)¹⁾を参照のこと)。

○ソースターム：Katata et al. (2015)³⁾修正版とTerada et al. (2012)⁵⁾に基づくシミュレーション計算の比較。

○気象解析データ：Sekiyama et al. (2017)⁴⁾と気象庁Mesoscale model(MSM) に基づくシミュレーション計算の比較。

また、WRF/CMAQではヨウ素131(I-131)の大気濃度も合わせて計算した(Morino et al., 2011)⁶⁾。I-131のガス粒子変換が擬一次反応によって進むと仮定して、変換速度に対する感度実験を評価している。

比較対象とした観測データの測定地点を図(5)-2に示した。なお、双葉(地点番号101)は福島第一原発から3kmほどの距離であり、空間解像度が3kmの大気モデルでは輸送過程を解像できていないことに注意が必要である。



図(5)-2 シミュレーションの検証に用いたSPMろ紙によるCs-137大気濃度の観測地点。地点の詳細は、Oura et al. (2015)⁷⁾ (地点番号1~99)、及びTsuruta et al. (2018)⁸⁾ (地点番号100~101)を参照のこと。

表(5)-1 WRF/CMAQで実施した大気シミュレーションの感度実験

計算事例	放出量	湿性沈着モジュール	気象場
STD	Katata et al. (2015) ³⁾ 修正版	WSPEEDIの除去係数	Sekiyama et al. (2017) ⁴⁾
WD2	Katata et al. (2015) ³⁾ 修正版	CMAQ	Sekiyama et al. (2017) ⁴⁾
MET2	Katata et al. (2015) ³⁾ 修正版	WSPEEDIの除去係数	気象庁MSM
ST2	Terada et al. (2012) ⁵⁾	WSPEEDIの除去係数	Sekiyama et al. (2017) ⁴⁾

(3) ばく露評価モデルによる甲状腺等価線量推計

1) ばく露評価モデル

ATDMによるCs-137濃度およびI-131の1時間値 (Bq/m³/h) をもとに、福島県内におけるI-131の吸引による甲状腺等価線量 (Thyroid equivalent dose) を推計した。ATDMにはWRF/CMAQ (以下、CMAQ) とNICAMの2種類を使用した。甲状腺等価線量の推計方法を図(5)-3に、計算式を式(5)-1に示す。

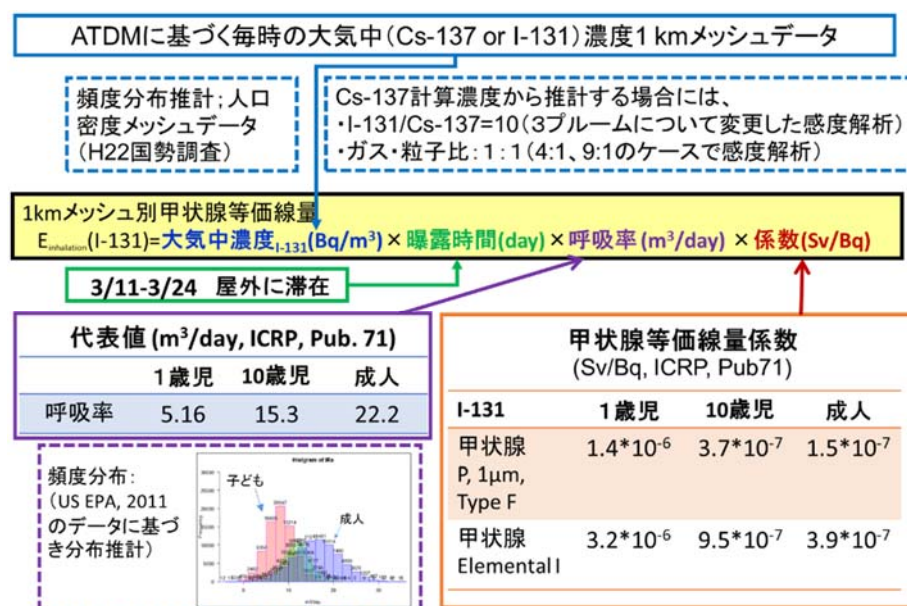
$$E_{inh,I-131}(Sv) = C_{I-131,p}(Bq/m^3/h) \times IR(m^3/h) \times K_{I-131,inh,p}(Sv/Bq) \\ + C_{I-131,g}(Bq/m^3/h) \times IR(m^3/h) \times K_{I-131,inh,g}(Sv/Bq)$$

式(5)-1

ここで、 $E_{inh,I-131}$ はI-131吸入による甲状腺等価線量、 C_{I-131} は大気中のI-131濃度（添字pは粒子状、gはガス状）、IRは呼吸率、 $K_{I-131,inh}$ はI-131による甲状腺等価線量換算係数を示す。 $E_{inh,I-131}$ は、1時間ごと、1 kmメッシュ（3次メッシュ；基準地域メッシュ）ごとに、大気中Cs-137濃度 (Bq/m³) と各メッシュの人口密度（平成22年の国勢調査データの総人口データ）で重み付けしたメッシュ分布データとして作成した。I-131濃度の1 kmメッシュデータはATDMの3 kmメッシュデータをもとに算出した。

大気中I-131濃度は、Cs-137濃度をベースにI-131/Cs-137比とI-131のガス粒子比を設定して計算する方法(Cs-137_based)と、I-131濃度の計算結果を直接用いる方法(I-131_based)の2種類で計算した。ここでI-131/Cs-137比は、サブテーマ3による解析結果をもとに3月15日～3月21日朝の代表値である10（3月11日に補正された値；その後の物理的減衰を補正して使用）をベースケースとして設定した。また、ガス状ヨウ素 (I-131(g)) と粒子状ヨウ素 (I-131(a)) の割合は、サブテーマ3の解析結果をもとに、I-131(a) = I-131(g)をベースケースとした。

屋内濃度については、I-131の屋内への侵入割合、屋内滞在時間に関する情報が不足していることから、安全側の見積もりとして屋内濃度＝屋外濃度とした。呼吸率IRは、SPM観測地点と避難シナリオごとの推計（後述）は、ICRP Publication 71⁹⁾にある1歳（5.16 m³/day）、10歳（15.3 m³/day）、成人（22.2 m³/day）を用いた。一方、市町村別推計（後述）では、個人間の呼吸率のバラツキを考慮するため、US EPA (2011)¹⁰⁾に基づき正規分布を仮定して呼吸率分布を与えた。甲状腺等価線量係数 (K_{I-131}) には、ICRP Publication 71⁹⁾に記載されているInhalation dose coefficientを用いた（I-131(g) for 1 year old : 3.9×10^{-7} Sv/Bq、I-131(p) type F for 1 year old : 1.5×10^{-7} Sv/Bq）。積算期間は2011年3月11日～3月23日とした。ATDMで計算されたI-131濃度分布データのデータ処理には、ArcGIS (ver.10.4) を、また、甲状腺等価線量のモンテカルロ計算には、R (ver.3.3.2) を用いた。



図(5)-3 I-131の甲状腺等価線量推計手法の概要

Cs-137_basedの感度解析として、サブテーマ3の結果に基づき、I-131/Cs-137比を、3/12の14時から16時、3/15の20時から3/16の6時については30、3/21午後については100とした。また、I-131_basedの感度解析として、CMAQにおいてガス粒子転換速度を0.04/hr、0.4/hrと設定して計算された大気濃度に基づき推計した。被ばく線量推計に使用したI-131濃度の推計方法と特徴は表(5)－2のとおりである。

表(5)-2 被ばく線量推計に使用したI-131濃度の推計方法と特徴

		Cs-137 based		I-131 based
		実測	NICAM	CMAQ
推計方法		実測またはATDMのCs-137から、 実測データをもとにI/Cs比、 I-131g/I-131aを設定して推計		ATDMのI-131濃度を 使用
I-131/ Cs-137 設定	ベースケース	10		不要
	感度解析	3/12 14-16, 3/15 20-3/16 06: 30 3/21 PM: 100		
I-131g /I-131a 設定	ベースケース	1		不要
	感度解析	4, 9		ガス粒子転換率 0.04/h, 0.4/h
特徴	長所	Cs-137実測濃度データを使用	Cs-137濃度の時空間分布データを使用	I-131濃度の時空間分布データを使用、ガスと粒子の沈着過程の違いを反映
	短所	測定地点以外では評価不可 I/Cs比、I-131g/I-131a設定の不確実性、 時空間変化を考慮しにくい	ATDMによるCs-137濃度再現の不確実性	ATDMによるI-131濃度再現の不確実性(I-131ソースタームを直接使用することによる不確実性を含む)

2) 甲状腺等価線量推計

本研究では、甲状腺等価線量を以下の3つの評価ケースで推計した。図(5)-4に各評価ケースの地理的関係を示す。

①SPM観測地点における推計

SPM観測地点におけるCs-137濃度の実測値とサブテーマ3の結果によるI-131/Cs-137比、I-131のガス粒子比を設定して計算した甲状腺等価線量と、ATDMによるCs-137濃度とI-131/Cs-137比に基づく甲状腺等価線量を比較するため、101地点のSPM観測地点における日別の線量評価を行った。

②市町村内の確率論的分布推計

福島県内については、市町村ごとに甲状腺等価線量の確率分布推計を行った。具体的には、式(5)-1の太字のパラメータ（人口密度で重みづけしたI-131メッシュ濃度、呼吸率）に確率分布を与え、モンテカルロシミュレーションによって確率論的に推計した。得られた確率分布を、いわき市・川俣町・飯舘村における小児甲状腺スクリーニング測定に基づく評価結果（Kim et al.,2016）¹¹⁾、およびUNSCEARのATDM（UNSCEAR, 2013）¹²⁾に基づく甲状腺等価線量の分布推計と比較した。

③避難シナリオごとの推計

（ア）放射線医学総合研究所が設定した18避難シナリオ

原発から20 km圏内の地域については、事故後の避難指示に基づいて避難が実施されたため、放射線医学総合研究所が設定した18の避難行動シナリオ（表(5)-3）¹³⁾の行動場所、移動時間に基づいた甲状腺等価線量を推計した。たとえば、シナリオ1は、富岡町役場に集合して、12日の3時～6時で川内村役場へ移動、16日10時～16時で郡山市内のビックパレットふくしまに移動する、というシナリオである。移動時間の取り扱いは、放射線医学総合研究所の手法¹³⁾に準じて行った。なお、シナリオ14～18は、本課題の評価期間の以後に避難を開始しているため、本課題では、最初の場所に滞在した推計となっている。この推計結果をWSPEEDI IIに基づく推計結果（Kim et al., 2016）¹⁴⁾、UNSCEARの結果（UNSCEAR, 2013）¹⁵⁾と比較するとともに、避難による回避線量を試算した。

表(5)-3 放射線医学総合研究所が設定した18の避難シナリオ

1	富岡町役場(12日03時->06時)川内村役場(16日10時->16時)ヒッグバレットふくしま
2	大熊町役場(12日10時->13時)船引就業改善センター
3	双葉町役場(12日03時->08時)川俣小学校(19日10時->16時)さいたまスパーアリーナ
4	双葉町役場(12日16時->21時)川俣小学校(19日10時->17時)さいたまスパーアリーナ
5	檜葉町役場(12日09時->13時)いわき市役場(31日10時->12時)船引就業改善センター
6	檜葉町役場(12日09時->13時)いわき市役場(16日10時->15時)会津美里町役場
7	浪江町役場(12日12時->15時)浪江町つしま活性化センター(16日10時->14時)安達体育館
8	田村市20km圏内(12日07時->08時)デンソウ東日本
9	南相馬市20km圏内(15日10時->16時)伊達市役所
10	広野町20km圏内(12日01時->08時)小野町役場
11	川内村20km圏内(13日10時->11時)川内村小学校(16日10時->16時)ヒッグバレットふくしま
12	葛尾村20km圏内(14日10時->18時)あづま総合体育館
13	浪江町つしま活性化センター(23日10時->14時)安達体育館
14	葛尾村役場(21日10時->12時)あづま総合体育館
15	飯館村役場(5/29日10時->11時)福島市役所飯野支所
16	飯館村役場(6/21日10時->11時)福島市役所飯野支所
17	南相馬市計画避難区域(5/20日10時->10時半)南相馬市市役所
18	川俣町計画避難区域(6/1日10時->10時半)川俣町役場



図(5)-4 甲状腺等価線量評価ケースの地点・地域的關係

(イ) 任意の避難パターンにおける推計

18シナリオ以外の避難経路と避難開始時間等に対応できるようにするため、任意の避難パターンにおける甲状腺等価線量を推計するツールを開発した。図(5)-5にそのインターフェイスを示す。任意の3次メッシュ番号と滞在日時、年齢を入力すると、日付ごと、避難中、場所ごとの甲状腺等価線量が表示される。また、避難しなかった場合の（最初の滞在場所における）甲状腺等価線量も計算できるため、回避線量も評価可能である。



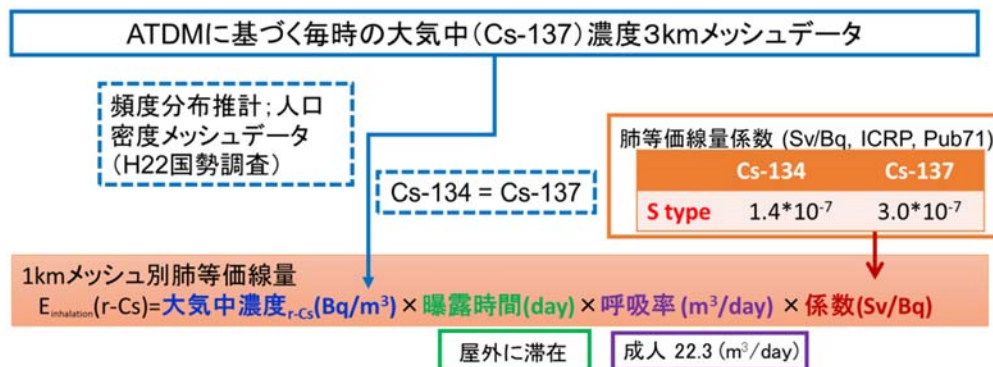
図(5)-5 任意の避難行動における甲状腺等価線量推計ツール(例)

(4) 不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布と被ばく線量の推計方法

不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布を推計するために、その放出期間を仮定した上で、(2)のATDM（CMAQを使用）を用いた大気輸送・沈着シミュレーションを実施した。更に、(3)の内部被ばく評価モデルを用いて不溶性粒子の吸入による肺等価線量を地域別に試算した。これまでに不溶性粒子として、粒径数 μm 以下の微小粒子（主に球形）と数十 μm 以上の粗大粒子（主に非球形）が観測されているが、ここでは前者の微小粒子を対象とした。

使用したCMAQと計算条件は(2)と同一であり、既往の不溶性Cs粒子の観測研究結果¹⁶⁾をもとに、3月14日の20時から3月15日の11時に放出された放射性Csの全量が不溶性粒子であったと仮定して計算した。この放出期間は、2号機の主蒸気逃がし安全弁開によって大量の放射性物質が大気中に放出され³⁾、放射性プルームが関東地域に流れた事象である。

また、CMAQによる不溶性粒子の大気濃度計算結果をもとに、(3)の市町村内の確率論的分布推計手法を用いて、福島県内では市町村別、関東地域では地域別（北関東6地域、南関東10地域）に肺等価線量の確率密度分布を推計した。推計手順を図(5)-6に示す。ここで肺等価線量係数には、不溶性粒子の特性を考慮して、ICRP Publication 71⁹⁾のS typeの係数を適用した。



図(5)-6 不溶性Cs粒子の肺等価線量推計手法の概要

4. 結果及び考察

(1) 大気輸送沈着モデルの検証・精緻化

最初に、CMAQとNICAMのCs-137大気濃度の計算結果を比較した。経時変化図(図(5)-7)を見ると、いずれのモデルも福島県や関東地方へ輸送された多くのCs-137プルームの到達を捉えているものの、3月12～13日や3月19日にかけての原町へのプルームなど、いずれのモデルも再現できていない事例もある。3月15日の関東地方や福島県中通りへのプルームは2つのモデルの結果が比較的一致しているのに対して、3月18日にかけての原町へのプルームや、3月20～21日にかけての福島県中通りへのプルームなど、両モデルで大きな違いが見られた事例も見られた。期間積算濃度（3月12～23日）と日積算濃度の地点別散布図(図(5)-8)からは、いずれのモデルもほとんどの地点で期間積算濃度を0.1～10倍の範囲で再現しており、日積算濃度に対しても多くの地点で0.1～10倍の範囲で再現していたことが分かる。ただ、CMAQは3月19～20日にかけての福島県浜通りや3月15～16日にかけて中通りで過大評価傾向が見られるものの関東などで比較的再現性が高いのに対して、NICAMは3月12～13日を除いて福島県浜通りで比較的よく再現しているが福島県中通りや関東地方で顕著な過小評価傾向が見られる。また、期間積算濃度のモデル／実測比の地域別値（最小値～最大値、平均値）は、CMAQとNICAMの各々について、浜通り（5地点）で（1.3～7.6, 3.4）と（0.1～2.8, 1.0）、中通り（11地点）で（1.4～5.8, 3.3）と（0.1～3.1, 0.9）、北関東（25地点）で（0.4～4.3, 1.0）と（0.1～1.5, 0.3）となる。このように、CMAQは浜通り・中通りで過大傾向、北関東で実測値と同程度であるのに対して、NICAMは浜通り・中通りで同程度、北関東で過小評価となり、全域的にCMAQ 計算値> NICAM計算値であり、また、両モデルとも浜通り・中通りと北関

東の濃度差を過大に評価する傾向がある。なお、両モデルとも、Sekiyama et al.(2017)⁴⁾の気象場にナッジングさせているものの、独立に気象シミュレーションを実施している。そのため両モデルで計算される風系などは異なっており、そのことが計算結果の違いを生む一因であると考えられる。

異なるモデル間で再現性が異なる要因を定量的に明らかにすることは困難であることから、ここではCMAQを基に感度実験を実施して、大気シミュレーションの不確実性や再現性の支配要因を評価した(既述、表(5)-1)。いずれの感度実験結果も、2モデル間ほどの大きな差異は見られないが、項目ごとに興味深い特徴が見られている。風系を支配する気象データを変更すると、プルームごとに経時変化パターンは大きく変化していた(図(5)-9)。3月12日や18日の原町でのプルームに対してはMET2(MSMを利用したシミュレーション)の方が良好な再現性を示したが、一方で3月20日の福島県中通りや3月20～21日にかけての関東地方へのプルームはSTD(Sekiyama et al. (2017)⁴⁾を利用したシミュレーション)が良好な再現性を示していた。なお、Cs-137積算濃度の散布図(図(5)-10右下図)を見ると浜通りの地点ではSTDで見られた過大評価がMET2で解消されているが、これは特に3月15日や20～21日の濃度にSTDで見られた過大評価がMET2で解消していることに起因する。福島県中通りや関東地方におけるSTDとMET2の計算値は、日ごとに大小関係や再現精度が逆転しており、いずれかの気象場が顕著に良好な再現性を示しているわけではない(図(5)-10、図(5)-11)。湿性沈着モジュールに対する感度は、当然であるが降水期間に限られる。3月15～16日にかけて福島県中通りでは、除去速度の速いCMAQモジュールを用いた計算(WD2)の方が現実を再現しているが、一方で3月16日や21日の関東地方へのプルームはWSPEEDIモジュールを用いたSTDの方が良好に再現していた(図(5)-10、図(5)-11)。ソースタームについては、3月12～13日の福島県浜通りのプルームや3月16日の関東地方へのプルームはSTD(Katata et al.(2015)³⁾修正版のソースタームを用いた計算)が、ST2(Terada et al. (2012)⁵⁾のソースタームを用いた計算)と比べて良好に再現していたが、一方で3月19日の福島県浜通りや宮城県へのプルームに対してはST2がより良好に再現していた。

日積算Cs-137濃度が100 Bq m⁻³以上の高濃度地点におけるCMAQの再現性を評価したところ(図(5)-11上図)、全ての高濃度日においていずれかの感度計算が70%以上の再現性(モデル値と実測値の比がファクター5以内(0.2～5)である測定局数の割合として評価)を示したものの、全ての日で30%以上の再現性(同上)を示した単一の感度計算は存在しなかった。高濃度事例別の特徴を整理すると次のとおりである。

①3月12～13日：STDとMET2とで福島県浜通り北部へのプルームの到達のタイミングが大きく異なり、両日間でプルーム再現性が大きく異なっていた。この期間は降水による湿性沈着の影響がなく、また、異なるソースタームを使用したST2でも改善が見られないことから、気流場の再現性に課題があることが示唆される。

②3月15～16日：福島県中通りににおける濃度変動はWD2が、関東地方の多地点における濃度はMET2が、STDと比較してより良好に再現していた。このように、湿性沈着プロセスのモデリングに課題があると考えられる。

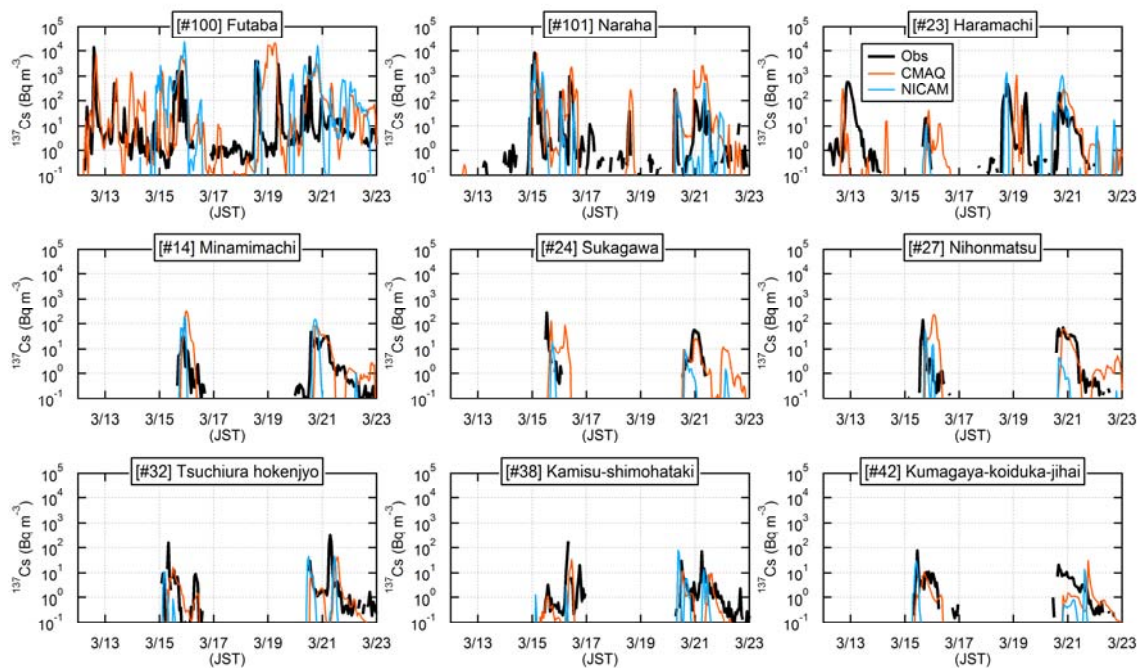
③3月19日：福島県浜通り北部へのプルームはST2が良好に再現している。このことは、18日21時～19日15時の放出率をKatata et al.(2015)³⁾の1/20に下げる補正をする必要性を指摘している先行結果¹⁷⁾と整合的であり、この期間の放出率推計が海面濃度に基づいていることを考慮すると、今後、放出率の見直しが必要であると考えられる。

④3月20～21日：特に福島県中通りや関東地方においてMET2やWD2よりもSTDが良好に再現していた。

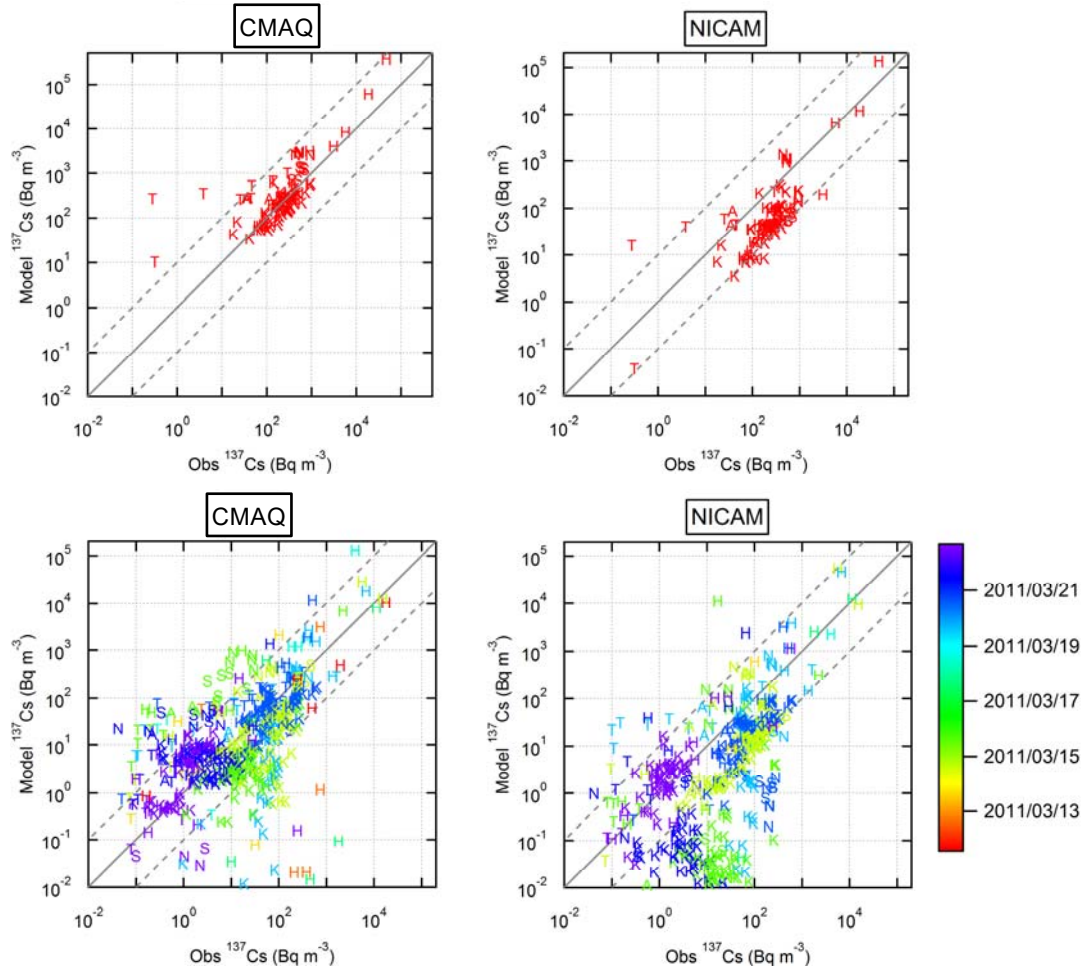
以上に示したように、今回感度評価を実施した気象モデル・ソースターム・湿性沈着モジュールにおいて、いずれかの設定がもう一方よりも顕著に再現性が優れているということはなかった。そのことを反映して、これら4つの感度実験に基づくアンサンブル平均は、比較的安定にいずれの事例も再現しており(図(5)-11)、不確実性低減の方法として有用であると示唆された。

更に、CMAQで計算したI-131の大気濃度を実測値と比較検証した(図(5)-12)。ここで、実測では粒子態のI-131のみを測定していることに注意が必要である。実測されたI-131(a)/Cs-137の比が概ね1～20の間にあり、I-131濃度のピークは全てCs-137濃度のピークと対応している。そのため、当然ながらモデ

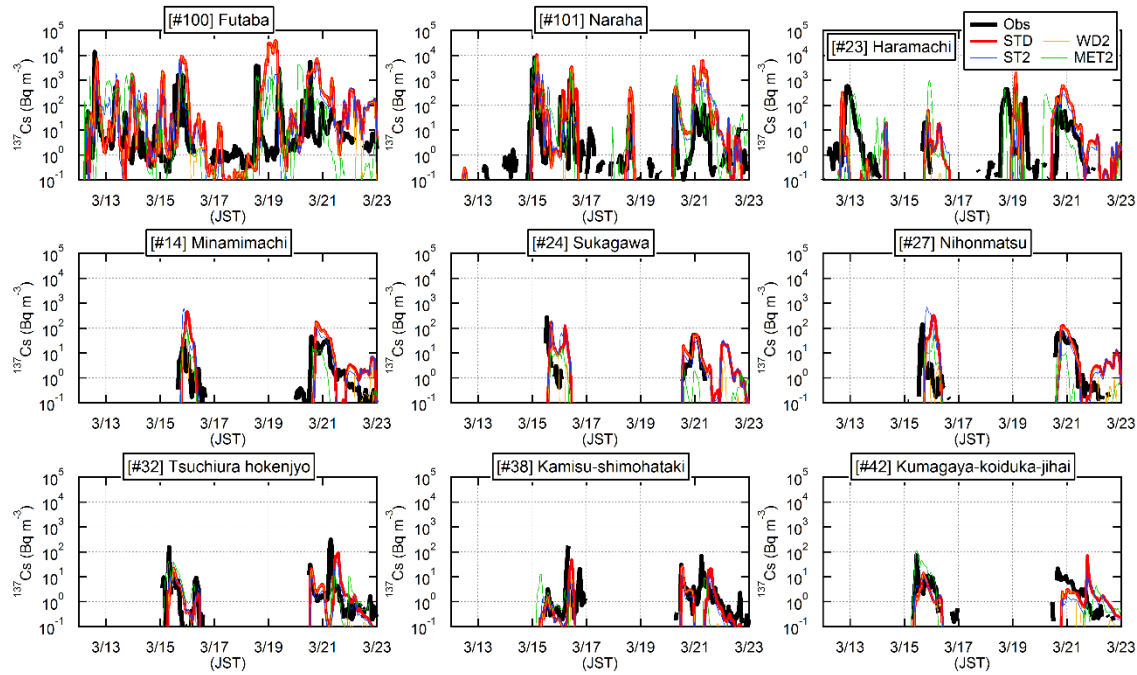
ルで計算されたI-131濃度の再現性はCs-137濃度と同傾向である。なお、Katata et al. (2015)³⁾に従ってI-131のガス・粒子の排出比は殆どの時刻で1:1として与えている。ガス粒子変換係数が0.04および0.4(/hr)（それぞれ25時間と2.5時間の時定数に相当）で起こると仮定した感度計算では、I-131粒子濃度が最大で5割から6割増大していた。なお、この濃度増大は発生源から離れた福島県中通りや関東地方で顕著であったが、発生源近傍の地域でも見られており、大気濃度計算の不確実性要因の一つである。



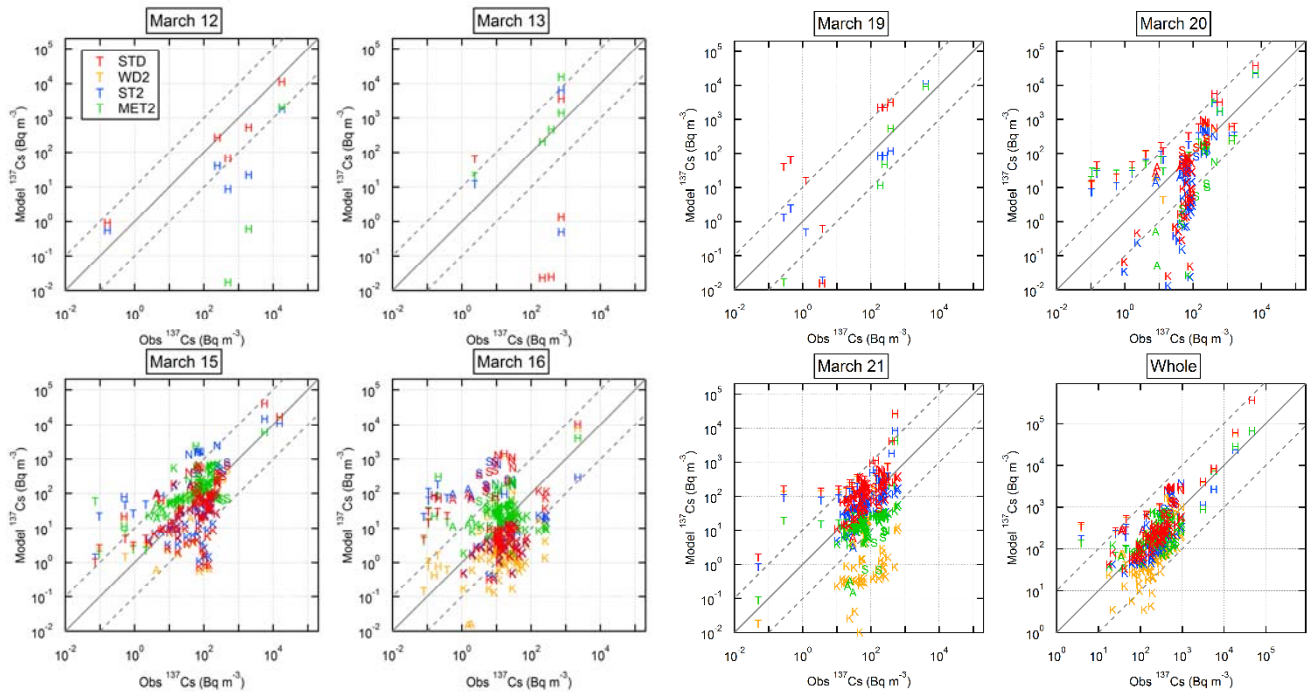
図(5)-7 CMAQ、およびNICAMで計算されたCs-137濃度(1時間値)の経時変化図



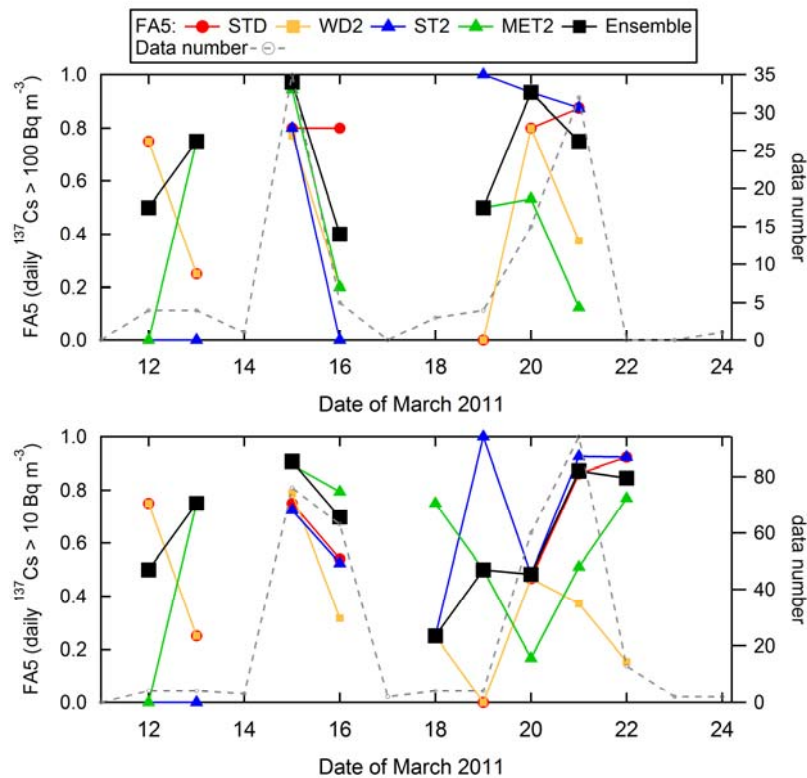
図(5)-8 Cs-137の期間積算濃度(上)と日積算濃度(下)のCMAQ(左)、およびNICAM(右)による計算値と観測値との散布図。文字はHが福島県浜通り、Nが福島県中通り北部、Nが福島県中通り南部、Aが福島県会津地方、Tがその他東北地方、Kが関東地方の観測地点を表す。



図(5)-9 CMAQで計算されたCs-137濃度の経時変化図。計算ケースは表(5)-1を参照のこと



図(5)-10 Cs-137の日積算濃度及び期間積算濃度（”Whole”）に対するCMAQ計算値と観測値との散布図

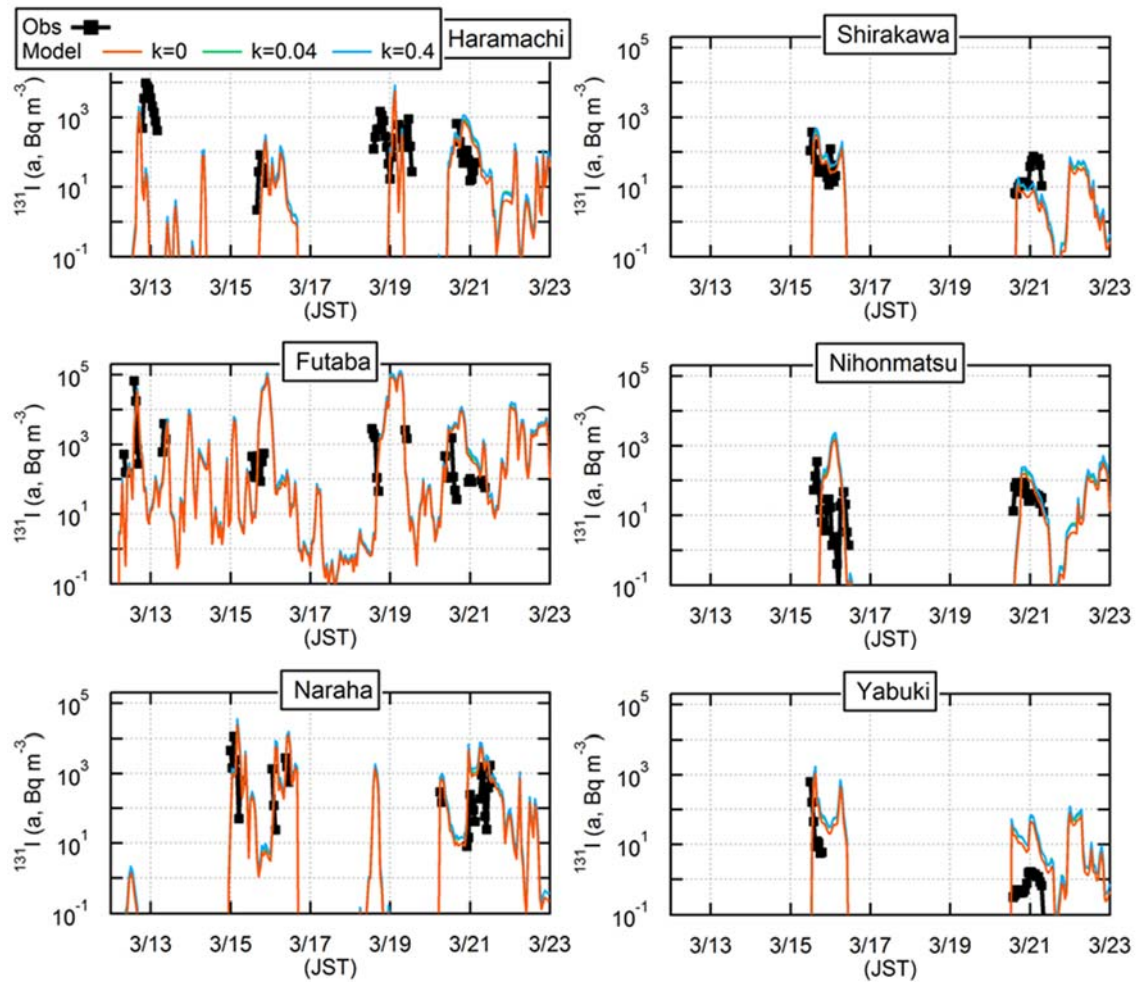


図(5)-11 CMAQで計算されたCs-137日積算濃度の再現性評価

（上）日積算濃度が100 Bq m⁻³以上のケース、（下）日積算濃度が10 Bq m⁻³以上のケース

FA5はモデル値と実測値の比がファクター5以内(0.2～5)である測定局数の割合。

“Ensemble”は4つの感度実験に基づくアンサンブル平均を意味する。



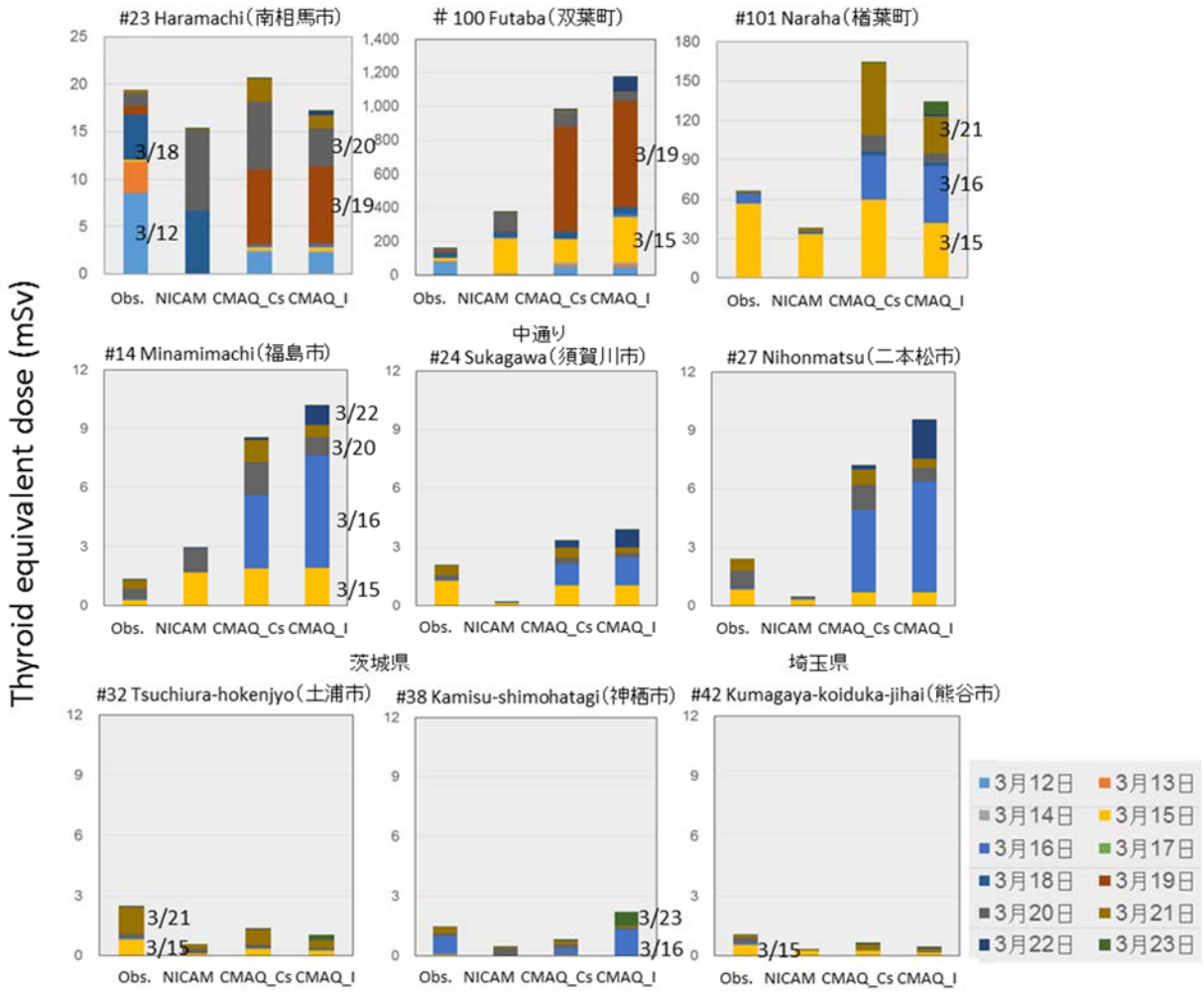
図(5)-12 CMAQで計算された粒子態I-131濃度の経時変化図
(ガス粒子変換速度 k を0, 0.04, 0.4 (/hr)と変更して計算)

(2) ばく露評価モデルによる甲状腺等価線量推計

1) SPM実測値に基づく推計結果、並びにATDMに基づく推計との比較

SPM測定地点の屋外に滞在し続けたと仮定した場合の甲状腺等価線量について、SPMろ紙のCs-137実測値をもとに、ベースケースとしてI-131/Cs-137比=10、I-131のガス粒子比=1:1を使って推計（Obs.）し、ATDMに基づく推計値（NICAM_Cs-137_based, CMAQ_Cs-137_based, CMAQ_I-131_based）と比較した。図(5)-7と同じ9地点（浜通り、中通り、北関東の各3地点）における1歳児の推計結果を図(5)-13に示す。

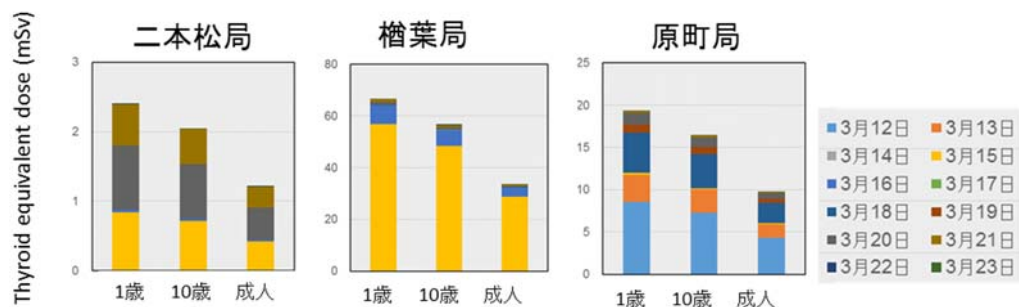
Cs-137実測値に基づく甲状腺等価線量は、双葉で約160 mSv、檜葉で約70 mSv、原町で約20 mSvであり、中通りの3地点では1.3～2.4 mSv程度、北関東の3地点では1.1～2.5 mSv程度と推計された。日別に見ると、原発北側の双葉と原町では3/12と3/18、原発南側の檜葉では3/15、中通りでは3/15と3/20-21、北関東では3/15-16と3/21の被ばく量が多い。関東の測定地点における甲状腺等価線量は、茨城県（9地点）で0.3～2.5 mSv（最高地点は土浦）、埼玉県（16地点）で0.6～1.1 mSv（同、熊谷）、千葉県（21地点）で<0.1～1.6 mSv（同、成田）、東京都（11地点）で0.4～1.0 mSv（同、青梅）、神奈川県（10地点）で<0.1～0.6 mSv（同、伊勢原と秦野）と推計された。また、檜葉、原町、二本松についてCs-137実測値に基づく、1歳児、10歳児、成人の甲状腺等価線量をそれぞれ図(5)-14に示す。1歳児>10歳児>成人の順に大きく、成人は1歳児の半分程度であった。これは、線量係数Kが子供の方が大きいことに主に起因する。



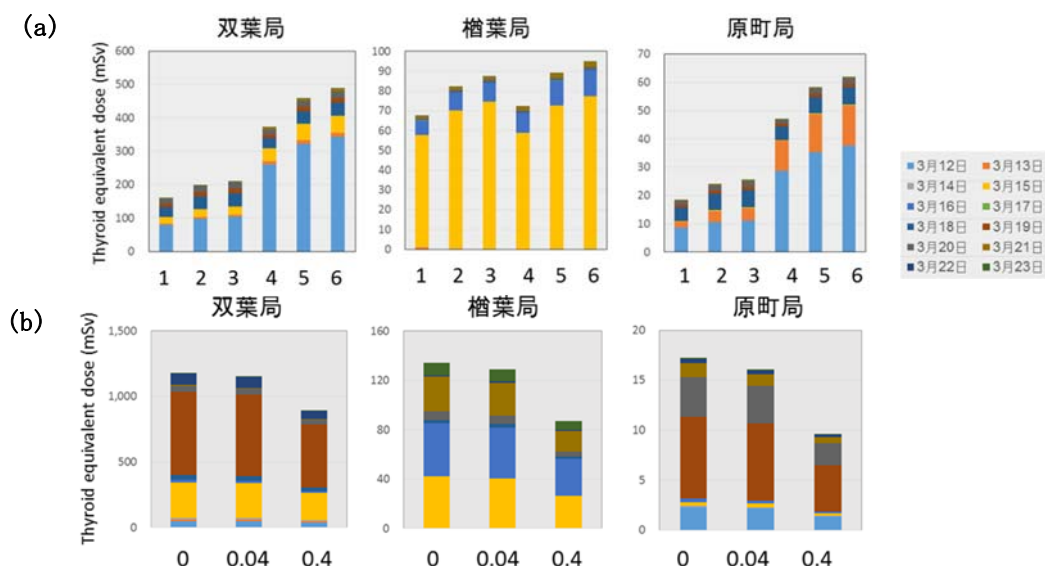
図(5)-13 大気濃度測定地点におけるCs-137実測値に基づく推計値とATDMに基づく推計値の比較
(対象は1歳児；I-131/Cs-137=10、I-131g=I-131pと設定したベースケースの結果)
中通りと関東の観測局のCs-137実測は3/15-16、3/20-23のみであることに注意。

Cs-137濃度からI-131濃度をより実態に即して推計するためには、I-131/Cs-137比、ガス粒子比の設定が重要である。サブテーマ3の結果により、3/12の14-16時に放出された北方へのプルーム、および3/15の20時から3/16の6時ころ放出された北方へのプルームのI-131/Cs-137比は10ではなく30程度（その時点での比率）であったこと、また、3/21の午後に放出された南方へのプルームでの比率は100程度の可能性がある。また、ガス粒子比もプルーム、あるいは原発からの距離によって変化している可能性がある。そこで、Cs-137実測ベース推計において、これらの3つのプルームが到達する時間帯のI-131/Cs-137比とガス粒子比をベースケースから変えて感度解析を行った結果を図(5)-15(a)に示す。原発北側の双葉と原町では、3/12の寄与が大きくなり、甲状腺等価線量が2倍程度になる可能性がある。一方、南側の檜葉では、3/20の寄与はほとんど変わらず、影響は小さい。一方、ガス粒子比による影響は大きくても+25%程度であった。

Cs-137実測値とATDM計算値をもとにした3種類の推計線量を比較すると、最大で1オーダー程度異なる。地点別に見ると、CMAQは双葉と檜葉では過大評価傾向が大きく、中通りでも過大傾向である一方、北関東では過小傾向を示す。特に、双葉では3/19、檜葉では3/16と21、中通りでは3/16に過大傾向が大きい。これらは大気濃度の再現性を反映している（4.(1)の1）参照）。更に、CMAQ_I-131_basedの感度解析について、ガス粒子転換率を0.4および0.04(/hr)と設定したモデル結果に基づく推計と比較した（図(5)-15 (b)）。ガス粒子転換による影響は、場所によって異なることが予想されるが、原町と檜葉では、0.4/hrの場合には甲状腺被ばく線量が1/2～2/3程度小さくなる。



図(5)-14 大気濃度測定地点の年齢群ごとの甲状腺等価線量の比較（Cs-137実測値に基づく推計）

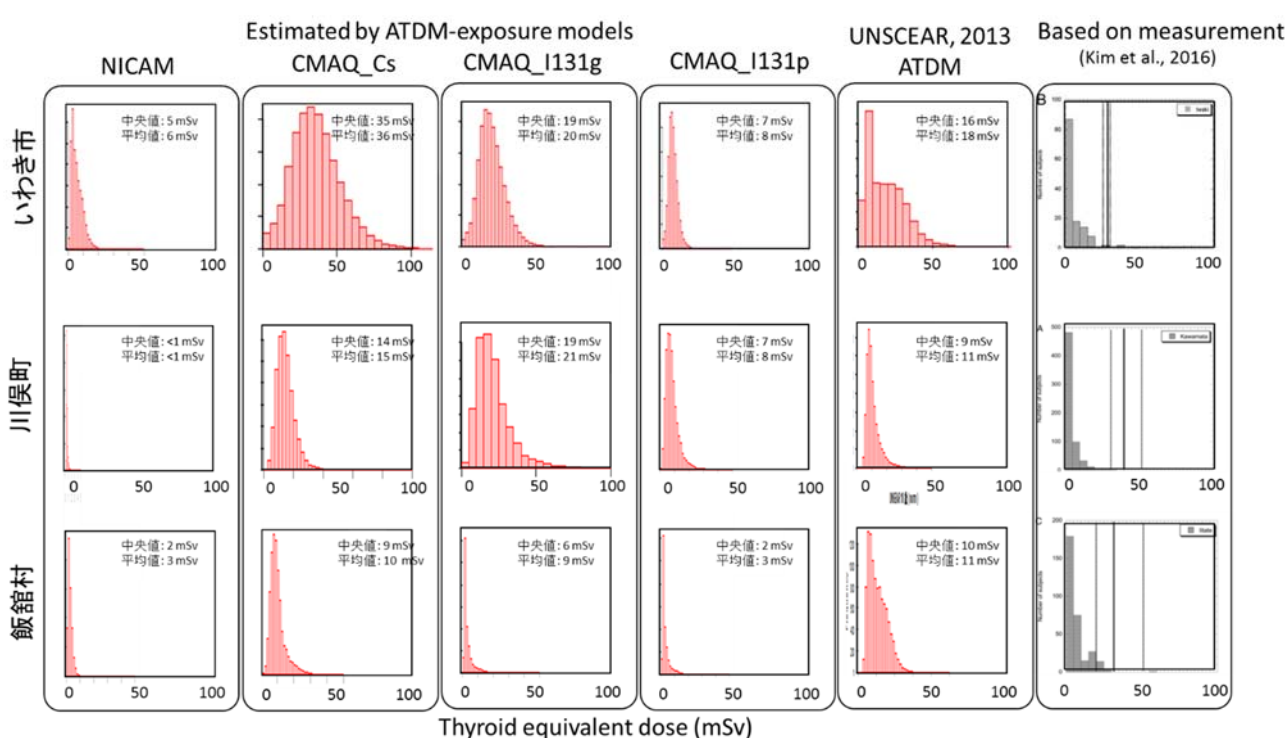


図(5)-15 大気濃度測定地点別の甲状腺等価線量の感度解析結果（1歳児の推計）

- (a) Cs-137実測に基づく推計結果 1：ベースケース、2：g/p=4、3：g/p=9、4,5,6：1,2,3のI-131/Cs-137を30（3/12 14-16時,3/15 20-3/16 06）と100（3/21午後）にしたケース
 (b) CMAQ_I-131_basedのガス粒子転換率の感度解析結果 0（ベースケース）、0.04/hr、0.4/hr

2) 小児甲状腺スクリーニング測定に基づく評価結果との比較

小児甲状腺スクリーニング測定に基づく評価結果（以下、甲状腺測定に基づく評価値）が報告されている（Kim et al., 2016）¹⁴⁾、いわき市、川俣町、飯館村について、ATDMに基づくこれら市町村の確率分布と甲状腺測定に基づく評価値の分布を比較した（図(5)-16）。全体的に実測より、CMAQ_Cs-137_based、CMAQ_I-131_basedは高めに、NICAM_Cs-137_basedは低めに偏りのある分布となった。屋内退避による線量の低減を考慮すれば、川俣町、飯館村では、CMAQは比較的近い分布といえる。一方で、甲状腺測定に基づく評価結果は非常に貴重なデータであり、評価の上で優先されるべきものであるが、これらにも不確かさが存在する。具体的には、①検査を受けられなかった子どももいること、②避難先に滞在していた子どもも含む可能性、③バックグラウンドの寄与、④甲状腺測定から線量評価を行う際の摂取シナリオの不確実性などが考えられる。また、UNSCEARのATDM(UNSCEAR, 2013, attached file C-9)¹²⁾に基づく確率分布と比較した結果、平均値で見ると、おおまかにCMAQ_I-131_based ≒ CMAQ_Cs-137_based > UNSCEAR ATDM > NICAM_Cs-137_basedの関係がみられた。CMAQとUNSCEAR_ATDMは比較的近い分布傾向であった。



図(5)-16 甲状腺等価線量の評価結果の比較（いわき市、川俣町、飯館村）

ATDM-exposure modelに基づく推計は、10歳児とした。

3) 避難シナリオごとの甲状腺等価線量推計

表(5)-3に示した避難シナリオ別の甲状腺等価線量推計結果を図(5)-17に示す。また、WSPEEDI IIに基づいて推計したKim et al. (2016)¹⁴⁾の報告値と比較した。なお、WSPEEDI IIのソースタームはTerada et al.(2012)⁵⁾に基づいており、本研究とは異なることに注意を要する。図(5)-17で示すように、モデル間の違いが大きく、NICAMは全体的に低く評価している。

ここでは、幾つかのシナリオについて議論する。

①シナリオ1、11

これらのシナリオでは、2種類のCMAQ推計（CMAQ_Cs_basedとCMAQ_I131_based）による推計結果が非常に高い。シナリオ1は、12日早朝に富岡を出発し、16日の昼まで川内村役場に滞在したシナリオで、シナリオ11は、川内村20 km圏内から13日の昼前に移動し、川内村小学校に16日昼まで滞在したシ

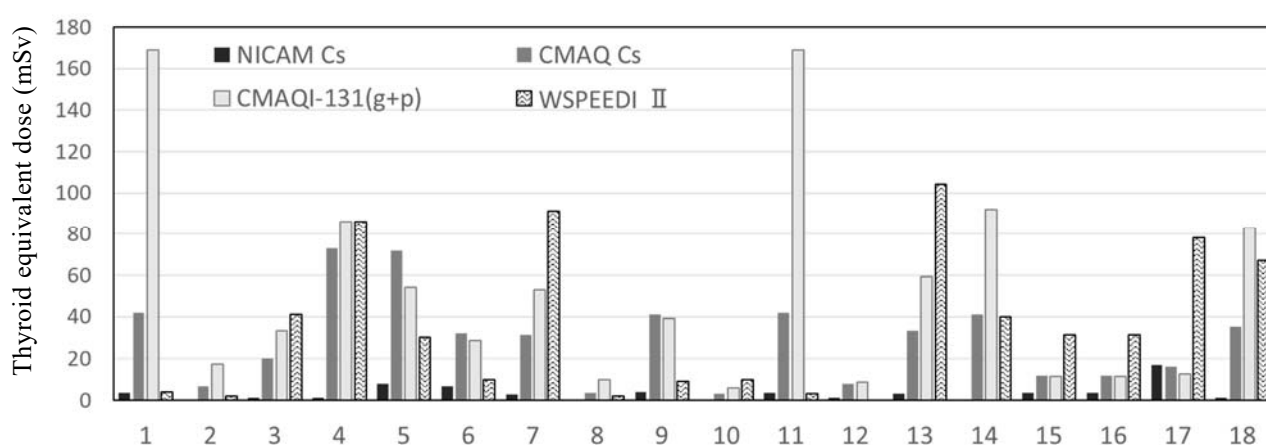
ナリオである。CMAQの計算結果によれば、両シナリオにおける甲状腺等価線量の大部分は、16日の0～9時（ピークは16日未明）に避難先の川内村小学校において被ばくしている。実際にCMAQで計算されたような高濃度プルームが通過したかどうかを今後検証する必要があるが、可搬型モニタリングポスト（川内村役場、川内村診療所、川内村県道小野・富岡線割山トンネル出口）^{18,19,20)} やモニタリングポスト（川内、山田、大野、松館）による空間線量の時間変化から判断すると、16日2時頃に川内村小学校付近をプルームは通過してはいるが、CMAQはI-131濃度やCs-137濃度を過大評価している可能性が高い。なお、CMAQによる過大評価の要因としては、降水による湿性沈着が過小なこと（例えば、降水再現性や湿性沈着モデルの問題等）、気流場の再現性の問題（例えば、風が内陸に入りすぎている等）が考えられる。一方で、プルームは16日未明に通過したため、人々は屋内にあり、屋外滞在を仮定した本推計値よりもさらに低いと考えられる。

②シナリオ4

双葉を12日夜に出発し、19日昼まで川俣に滞在したシナリオである。CMAQ_Cs_based、CMAQ_I_based、WSPEEDI IIの線量推計結果が70～85 mSvで一致しているが、このシナリオでは、12日の避難前もしくは避難中に高濃度プルームに遭遇している可能性があるため、実際の避難とプルームのタイミングに関する精査を要する。

④ シナリオ9

南相馬市20 km圏内を15日昼前に出発し、伊達市役所に移動したシナリオである。図(5)-13の原町の結果で示されるように、このシナリオでは避難前の12日夕～夜に原発北側に流れた高濃度プルームの影響を大きく受けていると考えられる。原町におけるCs-137実測濃度に基づく線量推計値との比較結果から推測すると、ATDMによる本推計結果は過小評価している可能性がある。一方、WSPEEDI IIの推計値は本推計値よりも更に低く、大幅に過小評価している可能性が高い。



図(5)-17 避難シナリオ（1～18）別の甲状腺等価線量推計値（1歳児、屋外滞在を仮定）

注)その後、NICAMとCMAQによるCs濃度計算結果のアンサンブル平均とプルームごとのI/Cs比を精査した線量推計値を公開 <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0265931X19309920#fig6>

4) 甲状腺等価線量のまとめ

福島県内の市町村別、避難指示区域内外別に甲状腺等価線量を推計した結果を、表(5)-4にまとめた。本研究の推計値は全てベースケースの結果である。また、同表には、UNSCEAR(2013)¹⁵⁾ による年間甲状腺等価線量の平均値（以下、推計値U）と放射線医学総合研究所のWSPEEDI IIに基づく避難シナリオごとの推計甲状腺被ばく線量¹⁴⁾（以下、推計値K1）、および甲状腺測定に基づく評価値、ホールボディカウンタによる放射性Cs実測値からの推計値、ATDMに基づく推計値を総合的に評価した90パーセンタイル値¹¹⁾（以下、推計値K2）も示す。

市町村の一部に20km圏内を含む場合は20km圏内と外に区別し、圏内については全域が避難指示区域となった市町村と同じ考え方に基き推計した。圏外については、本研究の評価期間である3月23日まで

には避難指示がでていないため、避難なしとして扱った。計画的避難区域として後に避難した飯館村や川俣町、避難指示は出ていないが浜通りで比較的、甲状腺被ばくが大きいと考えられるいわき市についても、避難なしとして扱い、パーセンタイル値を示した。なお、表(5)-4における推計値の幅は、NICAM_Cs_based, CMAQ_Cs_based, CMAQ_I-131_basedの3つの推計値の最小と最大を示しており、おおむね、NICAM_Cs_based<CMAQ_Cs_based≒CMAQ_I-131_basedの傾向であった。

表(5)-4における避難シナリオでの被ばく線量について見ると、本研究による推計値の最大値は、シナリオ1、3、4、11において推計値Uよりも大きくなる。また、推計値K1と比較すると、前項3)で示したとおり、シナリオ1、2、9、11、12について、本研究の推計値の最大値は大幅に大きく、今後精査が必要である。さらに、推計値K2と比較すると、シナリオ1、3、4、5、6、7、9、11において本推計の最大値の方が大きかった。

避難なしの地域においては、本研究の推計値（平均値）の幅の中に推計値Uが入る（推計値Uは吸引以外の被ばくも含む場合もあるが、その寄与は小さい）。推計値K2は、南相馬市と浪江町以外は、本研究による推計値（90パーセンタイル値）の幅に入っているものの、本推計の最大値が推計値K2よりも大幅に大きくなる市町村（例えば、浪江町、川俣町）もある。ATDMにおける不確実性は4(1)で示したとおりであるが、推計値Uや推計値K2が過小評価している可能性もあり、今後の検討課題である。

福島県中通り、会津地方の甲状腺等価線量分布のパーセンタイル値を、表(5)-5に示す。本推計結果（平均値）は、推計値Uよりも、全体的に低めであった。なお、中通り地方における、CMAQ_I-131_basedによる98パーセンタイル推計値が90 mSv近くになっており、今後精査する必要がある。

避難したことで回避された線量の推計値をまとめた結果を、表(5)-6に示す。市町村の全域が避難指示区域となった市町村は、基本的には避難指示に従い避難していると想定している。推計値U、Kも同様である。表(5)-6の避難なしの場合の推計値は、避難シナリオの各市町村における出発地点に滞在した場合の推計値であり、回避線量は避難なしの場合の線量と避難シナリオに従い避難した場合の線量の差として示す。また、UNSCEAR(2013)¹⁵⁾も同様の考え方にに基づき回避線量を推計しているため、併記した。一方で、20km圏内で避難しなかったケースも想定される。そこで、それぞれの地区において、居住地点に滞在し続けたと仮定して、本研究のATDMに基づく甲状腺等価線量を地区内のパーセンタイル値で示した（表(5)-6のグレーの部分）。特に双葉町、大熊町、浪江町では、UNSCEAR(2013)¹⁴⁾の回避線量推計値より本研究で推計した最大値の回避線量の方が大幅に大きい場合があった。なお、本研究のATDM（特にCMAQ）は、4(1)で示したように、3月18日～19日の大気中濃度を過大に見積もっている可能性が高い。仮に、当該区域で18-19日の寄与を除いた場合、最大で、双葉町では11～86%程度、大熊町では1～79%程度、富岡町では0～34%程度、南相馬市では47～91%程度、浪江町では57～90%程度、線量が低くなる可能性がある（範囲はATDMの違いによる）。

表(5)-4 避難区域等における甲状腺等価線量 (1歳児)

mSv (3/11-3/23, 2011)*¹

	避難指示 区域	避難シナリオ ごとの推計値	Mean	P*250	P90	P95	P98	UNSCEAR, 2013 Mean* ³	放医研推計値	
									ATDMによる推計* ⁴	P90* ⁵
双葉町	全域	③	1-33					15	41	30
		④	1-86					19	86	
大熊町	全域	②	<1-17					36	2	20
富岡町	全域	①	4-(170)* ⁷					47	4	10
檜葉町	全域	⑤	8-72					82	30	10
		⑥	7-32					69	10	
広野町	全域	⑩	<1-6					34	10	20
南相馬市	内	⑨	4-41					53	9	20
	外			17-63	16-58	31-110	35-130	40-150		
浪江町	内	⑦	3-53					81	91	20
	外			2-72	2-64	4-130	5-150	7-180		
田村市	内	⑧	<1-10					44	2	<10
	外			<1-55	<1-21	<1-160	1-220	2-320		
川内村	内	⑪	4-(170)* ⁷					47	3	<10
	外			4-160	3-150	6-280	7-320	9-370		
葛尾村	内	⑫	1-9					49	0	20
	外			2-120	1-110	3-210	4-240	5-270		
いわき市	—			9-57	7-52	19-100	22-120	27-140	17.76* ⁶	30
飯舘村	—			4-19	4-14	8-39	11-55	12-77	56	30
川俣町	—			<1-46	<1-40	1-86	2-110	2-140	9.54* ⁶	10

*1:数値は整数値2桁で丸めた値。また、幅は、NICAM_Cs_based, CMAQ_Cs_based, CMAQ_I131_basedに基づく推計値の最小値と最大値を示す。屋外濃度＝屋内濃度と仮定。
 *2:パーセンタイル *3:UNSCEAR,2013, Table C12, いわき市と川俣町はAttachment C-16より引用（事故後一年間の甲状腺等価線量、Gy=Svとして表示、いわき市と川俣町以外はinhalation以外の寄与も含まれる。）、*4: Kim et al., (2016)¹⁴ のWSPEEDI IIに基づく推計値、*5: Kim et al. (2016)¹¹ Table 4より引用。甲状腺測定に基づく評価値、ホールボディカウンタによる体内の放射性Cs実測値からの推計値、ATDMに基づく推計値を総合的に評価したもの。
 *6:Plumeのinhalationのみ。
 *7: 4(2)の3)参照

表(5)-5 それぞれのATDMに基づく中通りおよび会津地方における甲状腺等価線量（1歳児） mSv（3/11-3/23, 2011）

	Mean	P*150	P95	P98
NICAM_Cs_based				
中通り	<1-3.9	<1-3.9	<1-7.1	<1-8.0
会津	<1	<1	<1	<1
CMAQ_Cs_based				
中通り	1.6-9.5	1.5-8.6	2.8-18	3.2-29
会津	<1-1.3	<1-1.3	<1-2.3	<1-2.6
CMAQ_I-131_based				
中通り	1.7-17	1.7-13	3.1-37	3.4-90
会津	<1-1.6	<1-1.6	<1-2.8	<1-3.1
UNSCEAR, 2013*2	0.2-19			

*1: パーセンタイル *2: UNSCEAR(2013)¹⁵⁾ Table C10 (事故後一年間の甲状腺等価線量、Gy=Svとして表示、Internal+inhalation の推計値)

表(5)-6 避難しなかった場合の線量および回避線量（1歳児）

mSv*1/（3/11-3/23, 2011）

	避難指示区域	避難シナリオごとの推計値	Mean	P*250	P90	P95	P98	避難なし*3	回避線量*4	UNSCEAR, 2013 Averted dose*5
双葉町	全域	③ 1-33 ④ 1-86	300-1200 ^注	300-1000 ^注	570-2300 ^注	640-3000 ^注	710-3800 ^注	380-1200 ^注	380-1100 ^注	270 270
大熊町	全域	② <1-17	93-6100 ^注	70-3700 ^注	190-15000 ^注	280-17000 ^注	390-20000 ^注	75-1900 ^注	74-1900 ^注	470
富岡町	全域	① 4-(170) *6	64-1400 ^注	47-950 ^注	130-3500 ^注	160-4200 ^注	200-4900 ^注	74-900 ^注	70-860 ^注	750
楢葉町	全域	⑤ 8-72 ⑥ 7-32	31-280	28-270	56-460	65-520	76-610	20-300	12-270	60 70
広野町	全域	⑩ <1-6	27-180	26-180	47-280	54-310	61-340	33-180	32-170	40
南相馬市	内	⑨ 4-41	55-150 ^注	46-140 ^注	99-240 ^注	124-280 ^注	163-340 ^注	90-160 ^注	86-120 ^注	-
浪江町	内	⑦ 3-53	250-390 ^注	99-350 ^注	290-700 ^注	440-810 ^注	930-3300 ^注	200-550 ^注	200-510 ^注	60
田村市	内	⑧ <1-10	3-340	3-290	5-650	5-760	7-850	2-230	1-220	-
川内村	内	⑪ 4-(170) *6	6-230	5-180	10-490	12-640	14-790	8-130	4-39	-
葛尾村	内	⑫ 1-9	3-120	3-110	5-190	6-210	7-240	4-82	3-73	12

*1:数値は整数値2桁で丸めた値。また、幅は、NICAM_Cs_based, CMAQ_Cs_based, CMAQ_I131_basedに基づく推計値の最小値と最大値を示す。屋外濃度＝屋内濃度と仮定。*2:パーセンタイル、*3:避難なしは、避難パターンの出発地点に滞在した場合の線量、*4:避難なしの推定被ばく線量から避難シナリオに基づく推定被ばく線量を差し引いた値、*5: UNSCEAR,2013, Table C12（Averted, Gy=Svとして表示）、*6: 4(2)の3)参照

注: これらのATDMに基づく推計値については、4(1)で示しているとおり、3月18日～19日の大気中濃度を過大に見積もっている可能性が高い。仮に、当該区域で18-19日の寄与を除いた場合、最大で、双葉町では11～86%程度、大熊町では1～79%程度、富岡町では0～34%程度、南相馬市では47～91%程度、浪江町では57～90%程度、線量が低くなる可能性がある（範囲はATDMの違いによる）。

5) 不確実性の評価

本研究における甲状腺等価線量の推計結果には、多くの不確実性が存在する。その主要な要因としては、①ソースターム（時間変動、核種構成比、物理的・化学的形態、放出高度）、②モデル計算との比較に用いる濃度実測データの不確実性、③ATDMによる大気濃度の再現性、④Cs-137から推計する際のI-131/Cs-137比、I-131の形態の設定、⑤屋内・屋外の濃度比、⑥人の行動（滞在場所）データ、⑦吸入した後の体内動態（甲状腺への集積率など）などが考えられる。本研究では②～④に重点を置いて検討し、②についてはサブテーマ2で議論した。また、本サブテーマにおいて、③と④の不確実性を、ATDM濃度の再現性の検証（4.(1)の1））、並びにATDMと線量評価の感度解析（前者は4.(1)の1）、後者は4.(2)の1））によって評価した。ここでは、③と④の不確実性について整理するとともに、⑤と⑥について若干の考察を加える。

・ ATDMによる大気濃度の再現性

期間積算濃度（3月12～23日）と日積算濃度は、ほとんどの地点で期間積算濃度を0.1～10倍の範囲で再現しており、日平均濃度に対しても多くの地点で0.1～10倍の範囲で再現している。期間積算濃度に対するモデル／実測比の地域別平均値は、CMAQとNICAMの各々について、浜通りで3.4と1.0、中通りで3.3と0.9、北関東で1.0と0.3となり、線量評価結果において同程度のバイアスを生じると考えられる。

日積算Cs-137濃度が100 Bq m⁻³以上の高濃度地点におけるCMAQの再現性を評価したところ、全ての高濃度日においていずれかの感度計算ケース（気象モデル・ソースターム・湿性沈着モジュールを変えた4ケース）が70%以上の再現性（モデル値と実測値の比がファクター5以内で評価）を示したものの、全ての日で30%以上の再現性を示した単一の感度計算は存在しなかった。これら4つの感度実験に基づくアンサンブル平均は、比較的安定にいずれの事例も再現しており、不確実性低減の方法として有用であると示唆された。

CMAQで計算したI-131の粒子濃度を実測値と比較した結果、I-131濃度の再現性はCs-137濃度と同傾向である。また、I-131のガス粒子変換を仮定した感度計算では、I-131粒子濃度が最大で5割から6割増大し、この濃度増大は発生源から離れた福島県中通りや関東地方で顕著であったが、発生源近傍の地域でも見られており、大気濃度計算の不確実性要因の一つと考えられる。

Cs-137実測値に基づく線量推計とATDM計算値をもとにした3種類の推計線量を比較すると、最大で1オーダー程度異なる。地点別に見ると、CMAQは双葉と檜葉では過大評価傾向が大きく、中通りでも過大傾向である一方、北関東では過小傾向を示すが、これらは大気濃度の再現性を反映している。更に、I-131のガス粒子転換による影響は場所によって異なるが、速いガス粒子転換を仮定すると原発近くでは甲状腺被ばく線量が1/2～2/3程度小さくなる可能性もある。

・ Cs-137から推計する際のI-131/Cs-137比、I-131の形態の設定

4.(2)の1) で示したように、サブテーマ3の結果をもとに特定のプルームについてI-131/Cs-137比を高く設定すると、原発北側の双葉と原町における甲状腺等価線量は2倍程度になる可能性がある。一方、南側の檜葉ではその影響が小さい。また、I-131のガス粒子比の変化に伴う影響は大きくても+25%程度と考えられる。

・ 人の行動（滞在場所）データ

本研究では、放射線医学総合研究所による18パターンの避難シナリオをもとに線量を推計したが、避難住民の避難行動による不確実性は高いと考えられる。実際には、個別に避難したケース、シナリオとはやや異なる時刻や経路で避難したケース、避難せずにその場にとどまったケースなどが想定され、今後、住民の行動データをもとにした精緻な推計が必要である。

・ 屋内・屋外の濃度比

本報告書の数値は、24時間屋外で滞在したことを仮定している（屋内濃度＝屋外濃度）。しかし、実際には建物内では濃度が低くなるのが一般的であるため、過大な評価となっていることが考えられる。今回の事故に関する放射性ヨウ素の屋内濃度の調査結果はIshikawa et al.(2012)²¹⁾のみに報告されている。この結果によると、平均的な屋内／屋外濃度比(I/O比)は0.6であるが、この研究は鉄筋コンクリートの建物を対象としており、一般的な住宅とは異なる建物構造であるため、これを一律に適用することはでき

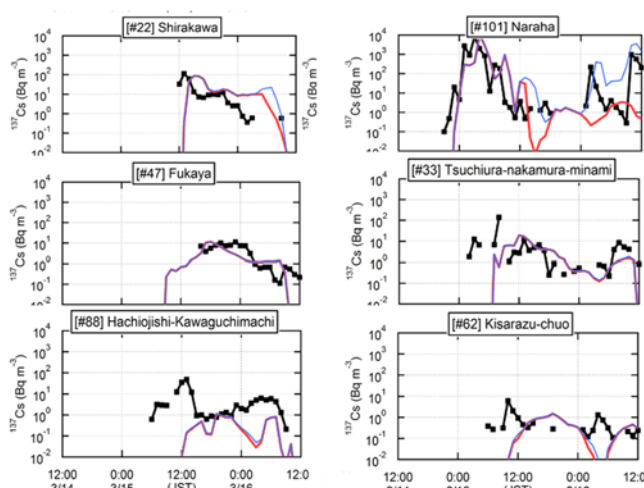
ない。一方、環境省の「局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査—そら（SORA）プロジェクト—」の調査結果²²⁾によれば、対象者家屋のI/O比は、元素状炭素（EC）については0.6程度、窒素酸化物（NO_x）については0.9程度であった。しかし、これらの結果は長時間の平均的な濃度比であり、放射性プルームによる短時間被ばくにおいては、プルーム通過時の換気状態や窓の開閉状態等によってI/O比が大きく変化することに注意を要する。

（３）不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布と被ばく線量の推計

図(5)-14は、CMAQによって計算された不溶性粒子放出期間と全放出期間のCs-137濃度を実測濃度と比較した結果を示す。CMAQは、不溶性粒子放出期間に放出されたと考えられるCs-137粒子濃度の時間変動の基本的特徴をほぼ再現している。図(5)-15は、不溶性Cs粒子の影響が大きいと考えられる3月15日の0時～24時の6時間間隔のCs-137地上濃度分布を示す。ここで、12時以降の濃度分布には、3月15日朝方から昼前の2号機由来の、更には夕方以降の3号機由来の新たな放出（不溶性粒子放出期間以外の放出）の影響（図(5)-14の赤線と青線の差がその影響を示す）を含んでいることに留意されたい。図(5)-15の濃度分布の時間変化に着目すると、不溶性粒子放出期間のCs-137を含む放射性プルームは3月15日午前中に南下し、その後、関東北部を中心として関東全域に拡散した後、夕方以降、福島県南部方向に輸送されている。この間、大気中の不溶性粒子は、関東北部山岳地域や福島県南部における降水等によって湿性沈着したと考えられる（図には示さない）。

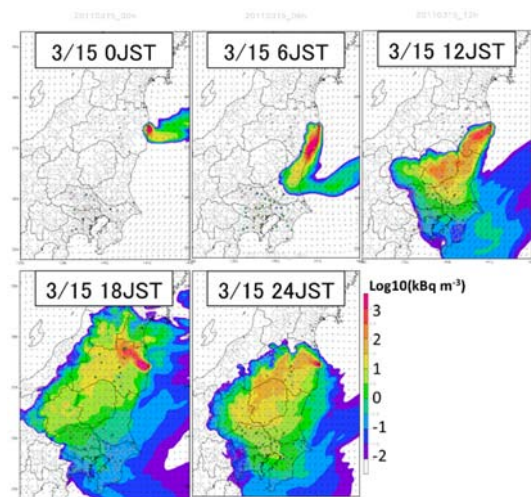
CMAQによって計算された不溶性粒子放出期間中のCs-137濃度を用いて、肺等価線量の地域別確率分布を推計した結果、福島県内（20km圏内を含む市町村を除く）の市町村別平均で0.01～1.4mSv、北関東の6地域別平均で0.04～0.36mSv、南関東の10地域別平均で0.01～0.07mSvと推計された。また、20km圏内を含む市町村において、仮に避難しないケースで試算すると、原発南側の地域で高線量となった。

本推計結果は、不溶性Cs粒子（微小粒子）の放出時間帯、プルームの到達時間帯、到達した地域が解明されつつある中で、ATDMを用いて、地域別の線量推計の試算が可能になりつつあることを示した。今後の課題としては、不溶性粒子の放出期間や放出率の検証、ATDMによる大気濃度再現性の向上、不溶性粒子の線量評価手法の検討（体内動態モデルや線量評価モデルの開発、不溶性粒子近傍の局所線量評価など）などがあげられる。



図(5)-18 Cs-137濃度の実測とモデルの比較
(3月14日12時～3月16日12時)

黒線は実測値、赤線は不溶性粒子放出期間の計算濃度、青線は全放出期間の計算濃度を示す。



図(5)-19 Cs-137地上濃度分布の時間変化
(図中の○印は実測、矢印は風ベクトルを示す)

(4) まとめと今後の課題

1) まとめ

①ATDMの大気濃度再現性

- ・ ATDM (CMAQとNICAM) は福島県や関東地方へ輸送された多くのCs-137プルームの到達を捉えているものの、3月12～13日や3月19日にかけての原町へのプルームなど再現できていない事例もある。
- ・ 期間積算濃度 (3月12～23日) と日積算濃度は、ほとんどの地点で期間積算濃度を0.1～10倍の範囲で再現しており、日積算濃度に対しても多くの地点で0.1～10倍の範囲で再現している。
- ・ 地域別の期間積算濃度に対して、CMAQは浜通り・中通りで過大傾向、北関東で実測値と同程度であるのに対して、NICAMは浜通り・中通りで同程度、北関東で過小評価となり、全域的にCMAQ 計算値>NICAM計算値であり、また、両モデルとも浜通り・中通りと北関東の濃度差を過大に評価する傾向がある。
- ・ 日積算Cs-137濃度が100 Bq m⁻³以上の高濃度地点におけるCMAQの再現性を評価したところ、全ての高濃度日において再現性の高い単一の感度計算ケース (気象モデル・ソースターム・湿性沈着モジュールを変えた4ケース) は存在せず、4ケースのアンサンブル平均は、比較的安定にいずれの事例も再現しており、不確実性低減の方法として有用であると示唆された。
- ・ CMAQによるI-131の粒子濃度を実測値と比較した結果、I-131濃度の再現性はCs-137濃度と同程度である。また、I-131のガス粒子変換を仮定した感度計算の結果、I-131粒子濃度の増大は発生源から離れた福島県中通りや関東地方で顕著であったが、発生源近傍の地域でも見られ、大気濃度計算の不確実性要因の一つと考えられる。

②甲状腺等価線量の推計結果

- ・ Cs-137実測値を基にした推計線量とATDM計算値を基にした3種類の推計線量を比較すると、最大で1オーダー程度異なる。地点別に見ると、CMAQは双葉と楢葉では過大評価傾向が大きく、中通りでも過大傾向である一方、北関東では過小傾向を示すが、これらは大気濃度の再現性を反映している。更に、I-131のガス粒子転換による影響は場所によって異なるが、速いガス粒子転換を仮定すると原発近くでは甲状腺等価線量が1/2～2/3程度小さくなる可能性もある。
- ・ いわき市、川俣町、飯舘村における甲状腺測定に基づく評価結果と本推計結果を比較したところ、CMAQに基づく推計結果では高めに、NICAMに基づく推計結果は低めに偏りがある。また、UNSCEARのATDMに基づく推計結果との比較でも同様な傾向が見られた。
- ・ 避難シナリオに対する推計結果によると、ほとんどのシナリオにおいて原発20km圏内から避難したことによって線量が大幅に低減したと考えられる。しかし、幾つかの避難パターンにおいては高線量が推計された。この原因は、避難前・中あるいは避難先で、3/12、15、16に高濃度プルームに遭遇した可能性が考えられるが、今後、ソースタームやATDMの精査が必要である。また、先行研究による推計結果と比較すると、本推計値の方が高線量となるシナリオがあり、今後の検討課題である。
- ・ 20km圏内から避難しなかったケースを仮定して試算した結果、原発周辺域 (特に北部) において非常に高線量になることが示されたが、ATDMは3/18～19に過大評価している可能性が高く、今後の検討課題である。
- ・ 避難なしの地域においては、概ね、先方研究結果と整合的であるが、本推計の最大値が先行研究よりも大幅に大きい市町村もあり、今後の検討課題である。

③不溶性Cs粒子の大気濃度・沈着分布と被ばく線量の推計結果

- ・ 不溶性Cs粒子の放出期間を仮定したATDMシミュレーション結果によると、不溶性粒子は3月15日午前中に南下し、その後、関東北部を中心として関東全域に拡散した後、夕方以降、福島県南部方向に輸送され、関東北部山岳地域や福島県南部における降水等によって湿性沈着したと推測される。
- ・ ATDM計算濃度をもとに肺等価線量の地域別確率分布を推計した結果、福島県内 (20km圏内を含む市町村を除く) の市町村別平均で0.01～1.4mSv、北関東の6地域別平均で0.04～0.36mSv、南関東の10地

域別平均で0.01～0.07mSvと推計された。また、20km圏内を含む市町村において、仮に避難しないケースで試算すると、原発南側の地域で高線量となった。

2) 今後の課題

事故初期のI-131による内部被ばく評価に関する今後の課題としては以下のとおりである。

- ①ATDMの更なる検証・改良、モデル相互比較によるモデル間の違いの原因解析を進めるとともに、モデルアンサンブル平均など、複数のモデル結果をばく露評価に適用する手法を検討する必要がある。
- ②放射性プルームに被ばくしたと考えられる複数の高線量ケースにおける被ばく実態を、実測された空間線量、大気濃度、沈着量などの実測データとATDM解析により、総合的に解明することが重要である。
- ③現在のI-131ソースタームは、事故後の比較的初期に使用可能なデータによって推計された結果であり、その不確実性は大きい。本研究によって得られた大気濃度データや解析結果を含む、より最近の知見をもとに、I-131ソースターム（I-131/Cs-137比、ガス/粒子比を含む）を継続的に改良することは、優先的に取り組む必要がある課題である。
- ④本研究（サブテーマ3）によって、放射性プルームのI-131/Cs-137比とI-131の存在形態が複雑に時空間変化することが明らかとなった。これらは線量評価において非常に重要なパラメータであり、今後その実態解明が必要である。

このほかに、避難住民の行動、屋内・屋外濃度比、吸入した後の体内動態（甲状腺への集積率など）を把握・解析・モデル化することも重要な課題である。

また、不溶性Cs粒子については、その放出期間や放出率の検証、ATDMによる大気濃度再現性の向上、不溶性粒子の線量評価手法の検討（体内動態モデルや線量評価モデルの開発、不溶性粒子近傍の局所線量評価など）などがあげられる。

5. 本研究により得られた成果

（1）科学的意義

サブテーマ2、3における大気濃度の実測データをもとに、複数の方法に基づき呼吸由来の甲状腺等価線量を新たに推計し、その結果の不確実性を示した。

（2）環境政策への貢献

<行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政が活用することが見込まれる成果>

本研究によって得られた成果は「東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う住民の健康管理のあり方に関する専門家会議」中間取りまとめにおける「国による今後の調査研究の方向性」の一つとして言及されていた「高い被ばくを受けた可能性のある集団の把握」に直接貢献するものである。また、呼吸由来の甲状腺等価線量に関する方法論と推計結果は、UNSCEAR（原子放射線の影響に関する国連科学委員会）の報告書等において活用されることが見込まれる。

6. 国際共同研究等の状況

大気輸送沈着モデルによるCs-137の大気濃度・沈着量の再現精度の一般性や不確実性を評価するにあたり、日本学術会議(2014)²³⁾による国際モデル相互比較のデータを活用した。この相互比較には、フランス放射線防護・原子力安全研究所(IRSN)も参加しており、国内外の研究グループが構築した大気モデル・ソースタームに基づくシミュレーションの再現性評価を実施した。

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文(査読あり)>

- 1) Tsuruta H., Oura Y., Ebihara M., Moriguchi Y., Ohara T., Nakajima, T.: Geochemical Journal, 52, 103-121 (2018), Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011.
- 2) 鶴田治雄, 大浦泰嗣, 海老原 充, 森口祐一, 大原利真, 中島映至: エアロゾル研究, 32, 244-254(2017), 東電福島第一原子力発電所事故直後の東日本における放射性セシウムの時空間分布—大気環境常時測定局の SPM 計の使用済みテープろ紙分析データの解析—.
- 3) Morino, Y., and Ohara, T.: Global Environmental Research, 20, 23-31 (2017), Atmospheric modeling of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident.
- 4) Nakajima T., Misawa S., Morino Y., Tsuruta H., Goto D., Uchida J., Takemura T., Ohara T., Oura Y., Ebihara M., Satoh M.: Progress in Earth and Planetary Science 2017 4:2, DOI: 10.1186/s40645-017-0117-x (2017), Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident.

<査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) 大原利真、高木麻衣、森野悠、五藤大輔、中山祥嗣、森口祐一、鶴田治雄：第19回環境放射能研究会 (2018)
「大気拡散・ばく露評価統合モデルを用いた事故初期の経気道ばく露推計」
- 2) 森野悠、滝川雅之、中島映至、大気モデル相互比較研究チーム：日本放射線影響学会第 59 回大会 (2016)
「大気モデル相互比較に基づく福島原発事故起源の Cs-137 の動態解析」
- 3) Morino, Y.: Ibaraki Univ.-IRSN joint symposium for environmental radioactivity studies on the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident (2016)
"Model inter-comparison study on atmospheric 137Cs from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident"
- 4) Ohara, T.: Ibaraki Univ.-IRSN joint symposium for environmental radioactivity studies on the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident (2016)
"Current status and future direction of atmospheric environmental research on the 1F accident"
- 5) 森野悠, 北山響, 滝川雅之, 中島映至, 速水洋, 永井晴康, 寺田宏明, 斉藤和雄, 新堀敏基, 梶野瑞王, 関山剛, Damien Didier, Anne Mathieu, 大原利真, 鶴田治雄, 海老原充, 大浦泰嗣, 柴田徳思: 日本気象学会2017年度春季大会 (2017)
「大気モデル相互比較に基づく福島原発事故起源の¹³⁷Csの動態解析」

(3) 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

(4) 「国民との科学・技術対話」の実施

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

- 1) NHKスペシャル (2018年3月17日、大気輸送沈着モデルの成果について5分ほど紹介)

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

8. 引用文献

- 1) Morino Y., Ohara T., Watanabe M., Hayashi S., Nishizawa T. (2013) Episode Analysis of Deposition of Radiocesium from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, *Environmental Science Technology*, **47**, 2314-2322.
- 2) Uchida J., Mori M., Hara M., Satoh M., Goto D., Kataoka T., Suzuki K., Nakajima T. (2017) Impact of lateral boundary errors on the simulation of clouds with a non-hydrostatic regional climate model, *Monthly Weather Review*, **145**, 5059-5082, doi:10.1175/MWR-D-17-0158.1
- 3) Katata G., Chino M., Kobayashi T., Terada H., Ota M., Nagai H., Kajino M., Draxler R., Hort M.C., Malo A., Torii T., Sanada Y. (2015) Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15**, 1029-1070.
- 4) Sekiyama, T.T., M. Kajino & M. Kunii (2017). The Impact of Surface Wind Data Assimilation on the Predictability of Near-Surface Plume Advection in the Case of the Fukushima Nuclear Accident. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, **95**, 447-454
- 5) Terada, H., Katata, G., Chino, M., & Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *Journal of Environmental Radioactivity*, **112**, 141-54.
- 6) Morino, Y., Ohara, T., & Nishizawa, M. (2011). Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011. *Geophysical Research Letters*, **38**, L00G11.
- 7) Oura, Y., Ebihara, M., Tsuruta, H., Nakajima, T., Ohara, T., Ishimoto, M., Sawahata, H., Katsumura, Y., Nitta, W. (2015) A database of hourly atmospheric concentrations of radiocesium (¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs) in suspended particulate matter collected in March 2011 at 99 air pollution monitoring stations in eastern Japan. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, **15**(2), 1-12.
- 8) Tsuruta, H., Oura, Y., Ebihara, M., Moriguchi, Y., Ohara, T. and Nakajima, T. (2018) Time-series analysis of atmospheric radiocesium at two SPM monitoring sites near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant just after the Fukushima accident on March 11, 2011, *Geochemical Journal*, **52**, 103-121.
- 9) ICRP (1995) Publication 71, Age-dependent Dose to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 4 Inhalation Dose Coefficients.
- 10) US EPA (2011) Exposure Factors Handbook.
- 11) Kim, E., Kurihara, O., Kunishima, N., Momose, T., Ishikawa, T., Akashi, M. (2016) Internal thyroid doses to Fukushima residents - estimation and issues remaining, *Journal of Radiation Research*, **57**, S1, i118-i126
- 12) United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) (2013) Levels of effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami, 2014, UNSCEAR 2013 Report Volume 1. Scientific Annex A. UNSCEAR_2013_Annex-A_Attach_C-9.

- 13) 放射線医学総合研究所 (2013) 平成24年度原子力災害影響調査等事業「事故初期のヨウ素等短半期による内部被ばく線量評価調査」成果報告書
- 14) Kim, E., Tani, K., Kunishima, N., Kurihara, O., Sakai, K., Akashi, M. (2016) Estimation of early internal doses to Fukushima residents after the nuclear disaster based on the atmospheric dispersion simulation, *Radiation Protection Dosimetry*, **171**, 3, 398-404.
- 15) United Nation Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) (2013) Levels of effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 Great East-Japan Earthquake and Tsunami, 2014, UNSCEAR 2013 Report Volume 1. Scientific Annex A.
- 16) 足立光司 (2017) 原子力発電所事故で放出された不溶性放射性粒子の形態と組成, エアロゾル研究, **32**(4), 255-260.
- 17) 鈴木元ら:4-1東京電力福島第一原子力発電事故における住民の線量評価に関する包括研究, テーマ(4)事故後の住民の被ばく線量の包括的な把握に関する研究, 平成28年度原子力災害影響調査等事業(放射線の健康影響に係る研究調査事業) 報告書, 公益財団法人原子力安全研究協会, 411-542 (2016) http://www.env.go.jp/chemi/rhm/reports/h2903e_5.pdf (平成30年4月22日確認)
- 18) 福島県原子力安全対策課 (2013) 事故初期の可搬型モニタリングポストについて <https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/41323.pdf> (平成30年4月30日確認)
- 19) 福島県原子力安全対策課 (2013) 可搬型モニタリングポスト未公表データ一覧表について <https://www.pref.fukushima.lg.jp/uploaded/attachment/41342.pdf> (平成30年4月30日確認)
- 20) 福島県災害対策本部 川内村線量 20 km～50 km 圏付近環境放射能測定結果 (暫定値) https://www.pref.fukushima.lg.jp/sec_file/monitoring/m-3/20-50km0312-0331.pdf (平成30年4月30日確認)
- 21) Ishikawa, T., Sorimachi, A., Arae, H., Sahoo, S. K., Janik, M., Hosoda, M., Tokonami, S. (2014) Simultaneous Sampling of Indoor and Outdoor Airborne Radioactivity after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, *Environmental Science and Technology*, **48**, 2430-2435.
- 22) 環境省環境保健部 (2011) 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査報告書, https://www.env.go.jp/chemi/sora/report/report_all.pdf (平成30年4月30日確認)
- 23) 日本学術会議総合工学委員会原子力事故対応委員分科会 (2014): 報告「東京電力福島第一原子力発電所事故によって環境中に放出された放射性物質の輸送沈着過程に関するモデル計算結果の比較」、日本学術会議、<http://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-22-h140902-j1.pdf>. (平成30年4月30日確認)

III. 英文Abstract

Interdisciplinary Study on Inhalation Exposure and Risk Assessment Focusing on Suspended Particles Derived from the Nuclear Accident

Principal Investigator: Yuichi MORIGUCHI

Institution: The University of Tokyo
 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, JAPAN
 Tel: +81-3-5841-6237/ Fax: +81-3-5841-8534
 E-mail: yuichi@env.t.u-tokyo.ac.jp

Cooperated by: Tokyo Metropolitan University, Japan Aerospace Exploration Agency, Japan Health Physics Society, National Institute for Environmental Studies

[Abstract]

Key Words: Radiocesium, Radioiodine, Suspended Particulate Matter (SPM), Insoluble cesium-bearing particles, Atmospheric Transport Deposition Model (ATDM), Dose assessment, Internal exposure

The early internal doses to the residents by the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident suffer from a large amount of uncertainty owing to the limited availability for human and environmental measurement data. This study proposes an inhalation dose assessment model that integrates most of the up-to-date experimental and numerical approaches.

After systematically determining the radiocesium contents in the suspended particulate matter (SPM) samples, the ^{129}I content in the SPM samples were determined. At the first stage, we determined the ^{129}I content in the airborne particulate matter (APM) whose ^{131}I content had been previously measured immediately after the nuclear accident at Fukushima. Because ^{129}I -content measurement was confirmed as a good proxy of ^{131}I -content measurement in both APM and SPM, the ^{129}I content in SPM samples were routinely determined by wet-chemical separation of ^{129}I from the SPM samples coupled with accelerator mass spectrometry.

The hourly gaseous and particulate ^{131}I concentrations were estimated by SPM monitoring stations during March 12–23, 2011. The estimation data were the particulate ^{129}I content measured in this project and the published ^{131}I and ^{137}Cs concentrations measured by several organizations just after the accident. We found that near FDNPP, the gaseous ^{131}I concentrations were much higher than the particulate ^{131}I concentrations, suggesting that the reported source terms should be re-evaluated.

We also developed a stochastic biokinetic method that estimates the inhaled doses of insoluble cesium-bearing particles by calculating the probability density function of the dose. The model employs the human respiratory-tract model revised by ICRP. The doses of small numbers of SBM particles varied widely, but doses above 1 mGy were more consistent. Small populations of cells in the micro area targeted by particles with total activities of a few tens of Bq received 0.1 Gy/day per mm^2 .

The internal dose was estimated by an atmospheric transport deposition model (ATDM) coupled with an internal exposure model. The ATDM calculations were validated and improved using the time series of air-concentration data acquired at the atmospheric monitoring stations.

The estimated doses tended to be higher than those published in previous works. This study presents the methodology for estimating the internal dose based on the ATDM simulations.