

環境研究総合推進費 平成29年度終了課題研究成果報告会
平成30年3月9日(金) 13:00-13:20
砂防会館別館 第3会場 安全確保部会

課題番号 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

平成27～29年度予算合計 106,002千円

アドバイザー: 鈴木元氏(国際医療福祉大)、本間俊充氏(元JAEA)、山澤弘実氏(名古屋大)

◎研究代表者・○サブテーマ代表者・研究分担者・(派遣/委託)

- | | |
|----------------|--|
| (1) 東京大学工学系研究科 | ◎森口祐一・(鶴田治雄) |
| (2) 首都大学東京 | ○海老原充・大浦泰嗣・白井直樹 |
| (3) 宇宙航空研究開発機構 | ○中島映至・(鶴田治雄) |
| (4) 日本保健物理学会 | ○甲斐倫明・石川徹夫・佐藤達彦・反町篤行・松本雅紀・
真辺健太郎・山口一郎 |
| (5) 国立環境研究所 | ○大原利真・森野悠・五藤大輔・中山祥嗣・高木麻衣 |

研究協力者 五十嵐康人・足立光司(気象研究所)、中井泉・阿部善也(東京理科大)
松崎浩之(東大・総合博物館)
打田純也(東大・大気海洋研)、佐藤陽祐(名大工)

謝辞: SPM測定用のテープろ紙を提供いただいた自治体に感謝します。

研究の概要と目的

- 本研究は、原発事故により大気中に放出された**放射性物質の性状と時空間分布を再現し、吸入ばく露**に伴うリスクの評価の高度化に必要な、より精緻な線量評価手法の提示を目的とする。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す。
- 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する。
- とくに、放射性核種の時空間分布などの最新の情報を活用し、より精緻な線量評価を行う点に特徴がある。こうした成果を、**別途実施されている放射線の健康影響に係る調査研究事業に反映**させることで、**リスク評価の高度化**を実現する役割を担う。

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

サブ(1) 東京大学
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

サブ(3) 宇宙航空研究開発機構
大気中放射性核種の時空間分布の再現

サブ(5) 国立環境研究所
大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築

炉内事象の専門家
との情報交換

拡散・沈着モデル
の検証・改良

ばく露評価モデルの構築
と拡散モデルとの結合

福島県内外における
被ばく線量評価

I-131の時空間分布の再現

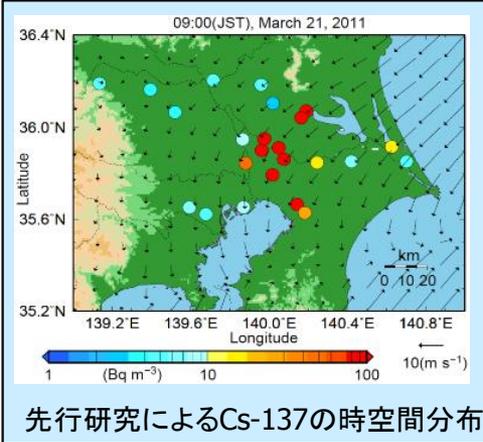
放出源
の情報

大気中濃度
の再現

吸入被ばく
量の推定

被ばく線量
評価

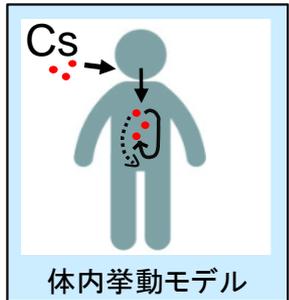
リスク
評価



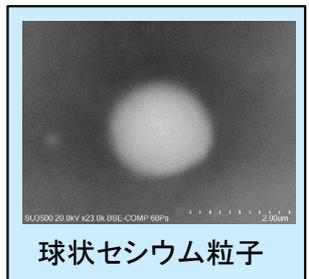
I-131/Cs-137比の再現
のためのI-129質量分析



不溶性粒子の体内挙動
説明、局所線量評価



不溶性セシウム粒子
測定の研究協力



サブ(2) 首都大学東京
ろ紙分析による放射性核種比の再現

サブ(4) 日本保健物理学会
微粒子性状を考慮した線量評価の精緻化

中間評価までの主な成果と後半の計画 [()は担当サブテーマ]

中間評価時までの主な成果

- 外部機関との研究協力も含めた研究の枠組みの詳細な設計(1)
- SPMろ紙上に捕集された大気中微粒子のI-129の測定法の確立(2)
- I-131の時空間分布再現のためのヨウ素/セシウム比、ガス/粒子比の解析、SPMろ紙のI-129測定結果と事故後初期のモニタリング結果の比較(3)
- SPMデータによる大気拡散沈着モデルによる大気中濃度の再現性確認(3,5)
- 実測データ・大気拡散沈着モデルの結果を用いた内部被ばく線量の試算(5)

中間評価結果

総合評点 A 必要性 A 有効性 A 効率性 A

サブテーマ毎の評価 (1) A (2)A+ (3)A (4)A- (5) A-

中間評価後の計画

- 空間線量など他の測定データとの整合性確認、外部機関との協力強化(1)
- 幅広い濃度範囲にわたるI-129の測定継続、粒子の性状の影響検討(2)
- 実測データと拡散モデルによるI-131の時空間分布の再現(3)
- 大気拡散沈着モデルの更なる検証と改良(3,5)
- 球状粒子などの核種の性状を考慮した内部被ばく線量評価手法構築(4)
- 住民の行動を考慮した被ばく線量評価と不確実性評価(5)
- 研究成果のわかりやすい提示方法を含めたアウトリーチ(1,課題全体)

サブ(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

○役割: 課題全体の目標達成に必要な「情報のInput-Outputの設計」

・サブテーマ担当機関＋外部からの研究協力＋既往のデータ活用による全体の枠組みの設計

・成果の公表にあたっての関係機関への事前説明、調整、マスメディア対応

○特筆すべき事項

◆ **不溶性セシウム粒子(通称:セシウムボール)**の測定に関する研究協力体制の構築、横断的な情報交換、成果公表[気象研究所、東京理科大学等との協力]

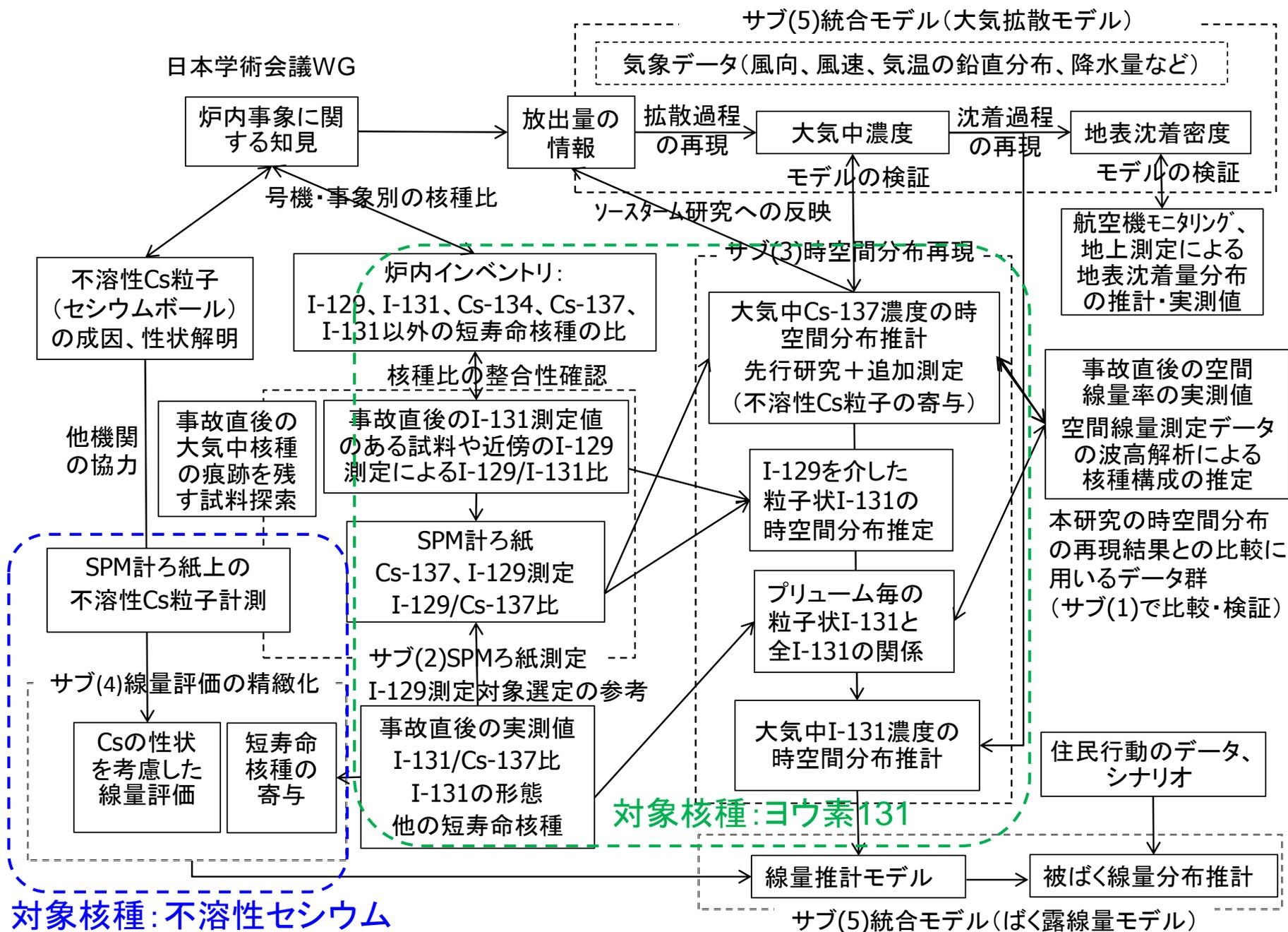
◆ **日本学術会議総合工学委員会原発事故による環境汚染調査に関する検討小委員会「事故と環境情報の交流ワーキンググループ」**
(炉内事象に関する情報、事故後初期の測定データの情報を収集)

◆ **ソースターム、大気移流・拡散・沈着モデル、線量評価の研究者との情報交換**

- ・ 初期内部被ばく評価において重視すべき地域、日時 of 現象の再現性の確認
- ・ 甲状腺測定、WBC測定などから求めたI-131/Cs-137比と環境中での比の関係

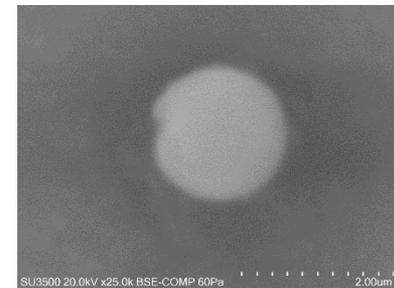
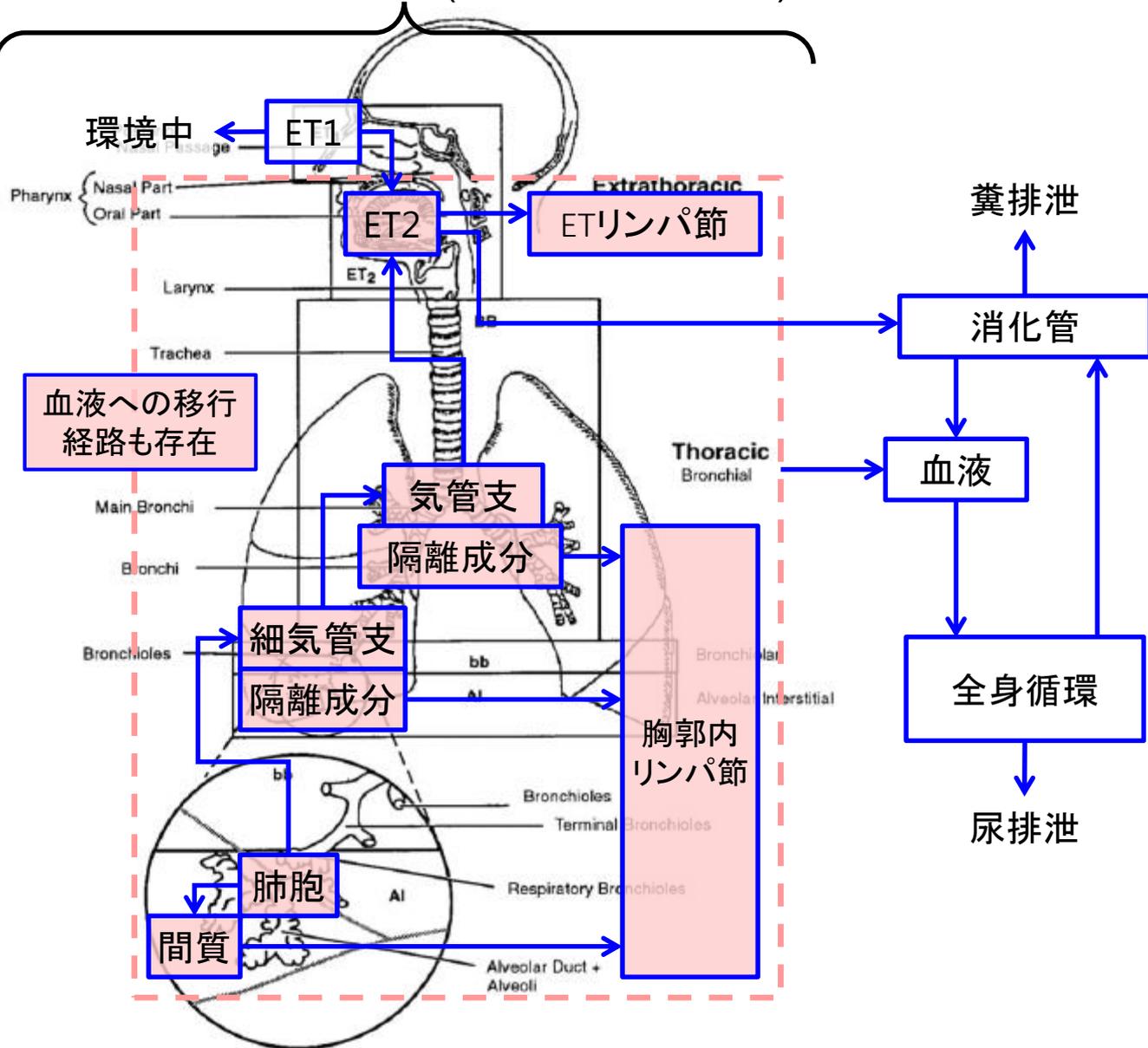
→2017年9月、2018年3月の2度実施

本研究の枠組(サブテーマ間の連携、他の知見との統合)の設計



サブ(4)不溶性粒子の線量評価:ICRPの吸入摂取タイプSモデル

改訂呼吸気道モデル (ICRP Publ. 130)



不溶性セシウム粒子の電顕画像

(協力: 気象研究所、東京理科大学)

Cs-134, Cs-137
各0.5Bq
粒径2μmを想定

Cs動態モデル
(ICRP Publ. 137)

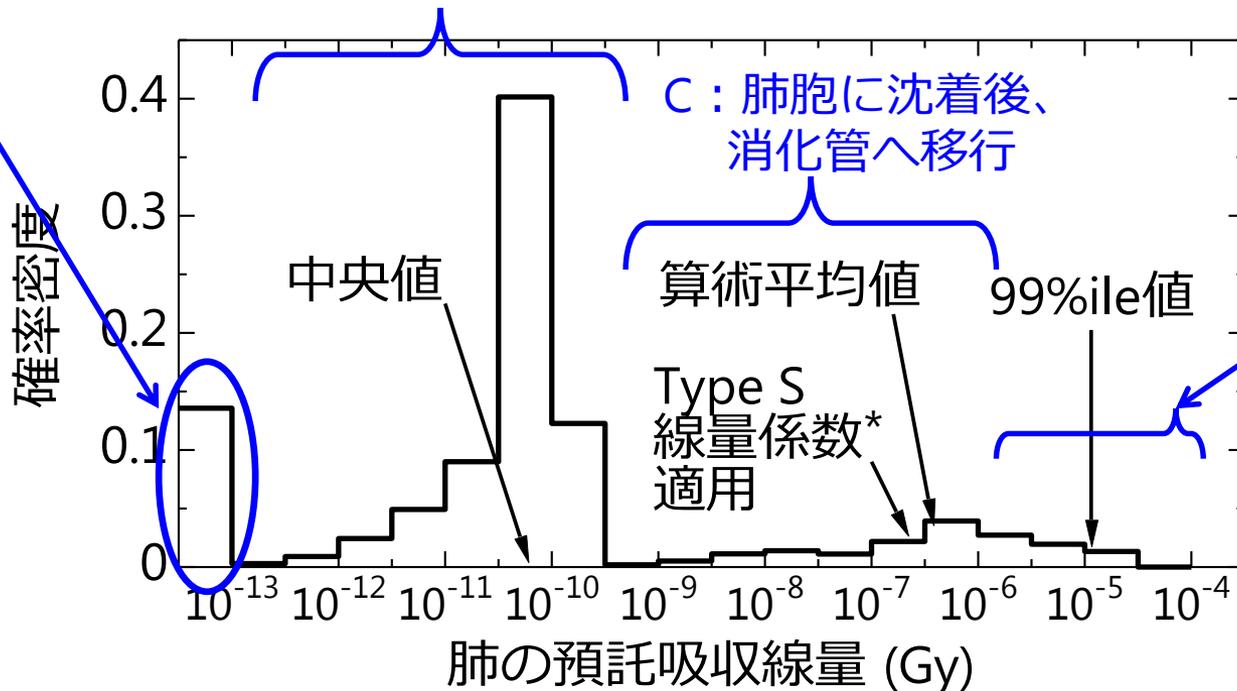
肺預託吸収線量 確率密度分布: 1個吸入の場合

A: 呼吸気道に沈着せず

B: 肺胞より上流に沈着後、消化管へ移行

C: 肺胞に沈着後、消化管へ移行

D: 肺胞から間質に移行後、長期間残留



*ICRP Publ. 72

発生比率 A : B : C : D = 13 : 75 : 8 : 4

呼吸気道の各領域への沈着確率、沈着後の移行経路に依存

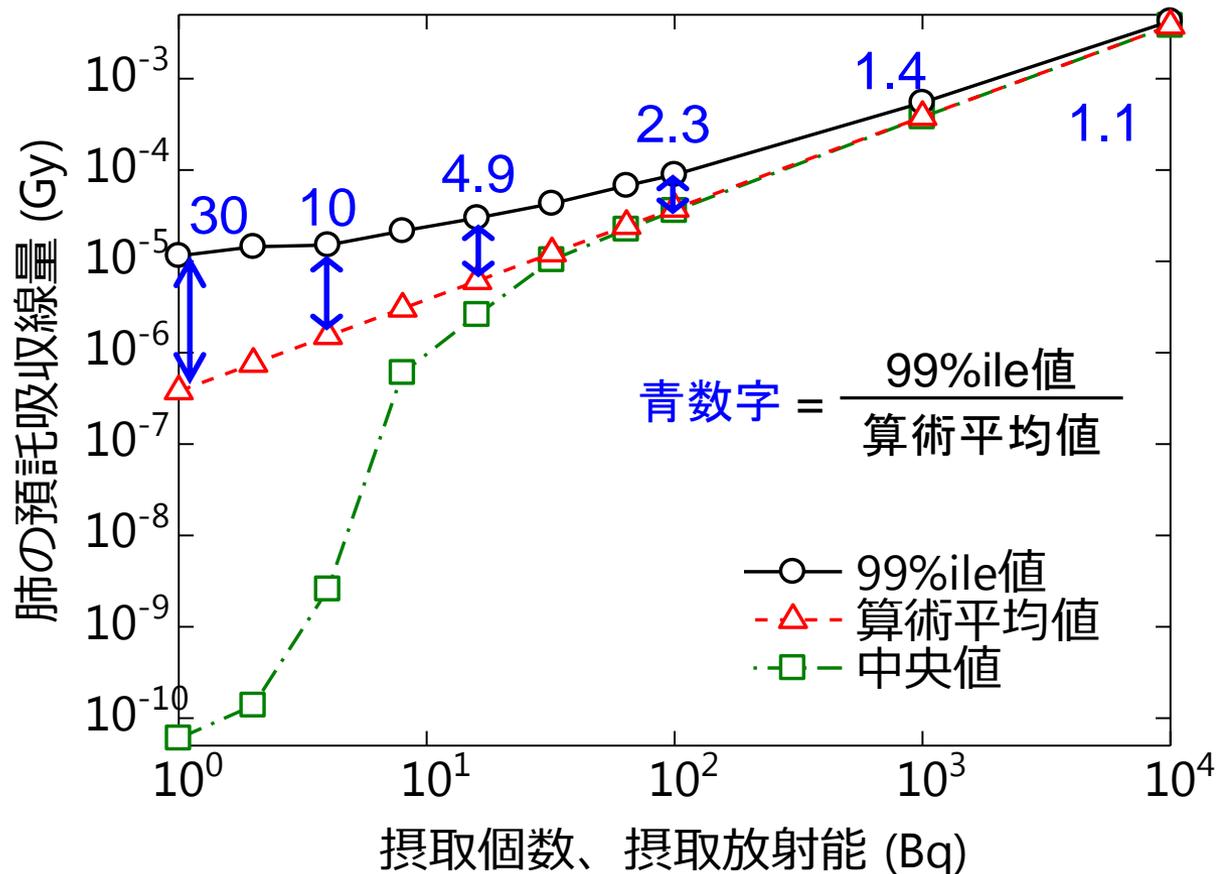
1個の粒子を吸入した場合

- 線量はかなり幅広い分布を取り得る
- 線量は、粒子が沈着した領域とその後の移行シナリオに大きく依存する

複数個摂取時の確率密度分布の変化

計算条件

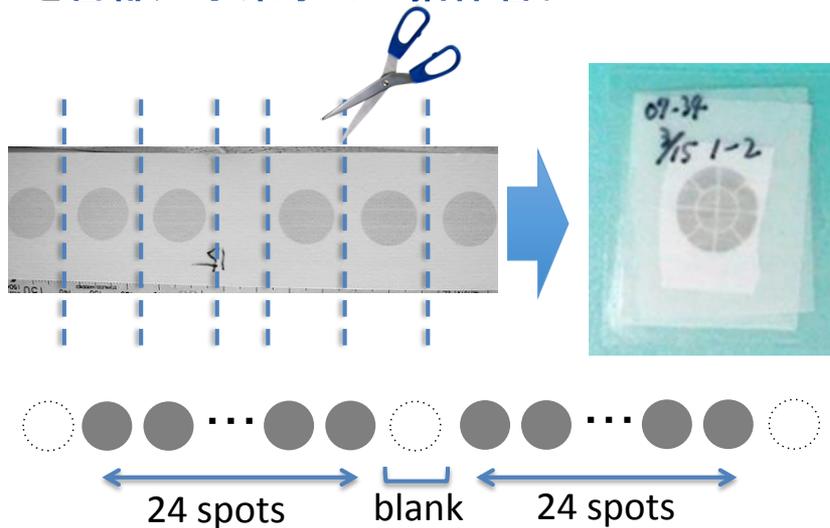
- 同時に摂取された粒子は独立して移行
- 各粒子による線量を総和



- 摂取個数の増加に伴い、線量の分布幅(不確かさ)は縮小
- 1個摂取では不確かさは非常に大きいですが、線量の絶対値は十分小さい。
- 1 mGy程度の被ばくレベルでは、粒子の不溶性に起因する不確かさは十分小さい。

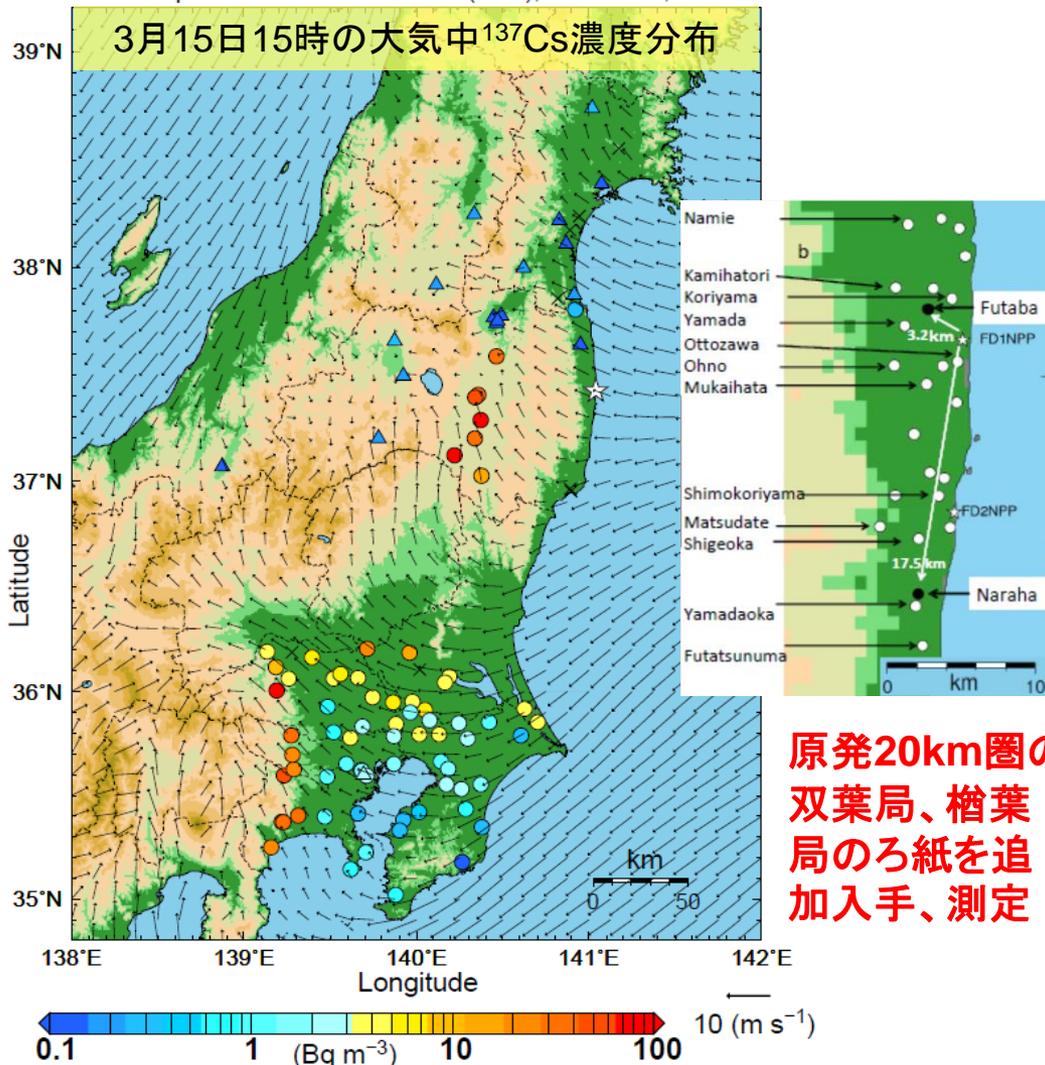
本研究の強み: 大気常時監視局のSPMろ紙試料を用いた核種の時空間分布再現

環境省の依頼により地方自治体の400地点以上の測定局から**収集**されたSPM計のろ紙を**首都大学東京**で**一括保管**。



テープ状ろ紙

Atmospheric Cs-137 at 15:00 (JST), March 15, 2011



原発20km圏の
双葉局、楢葉
局のろ紙を追
加入手、測定

先行研究の
成果:

Tsuruta, H. et al. (2014) *Sci. Rep.* 4, 6717

Oura, Y. et al. (2015) *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, 15

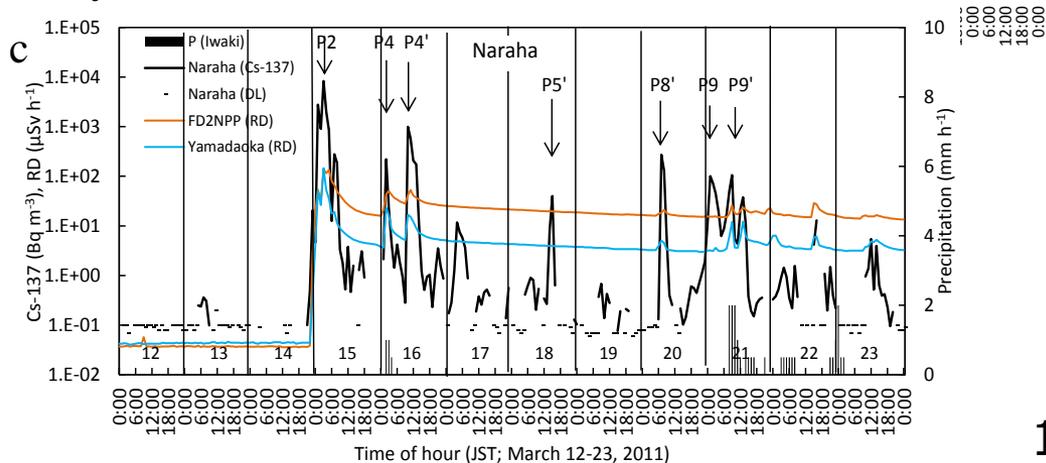
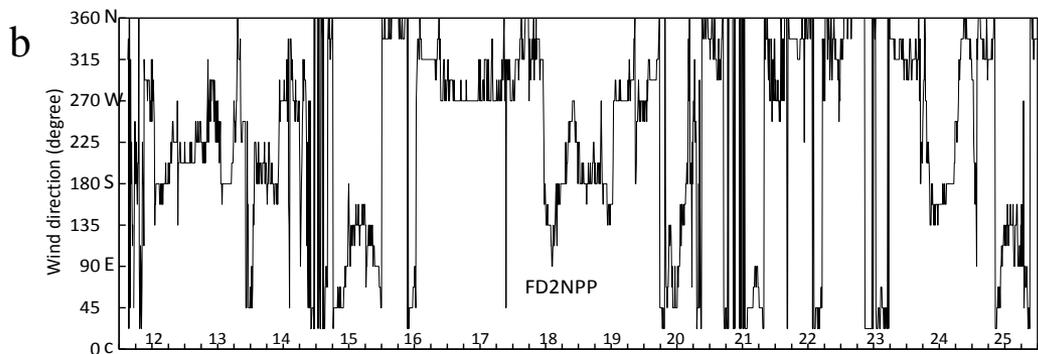
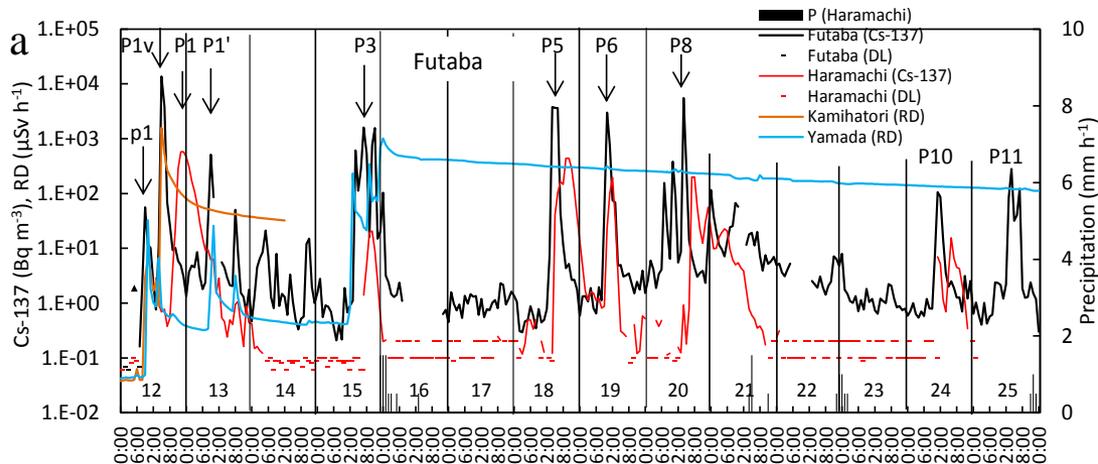
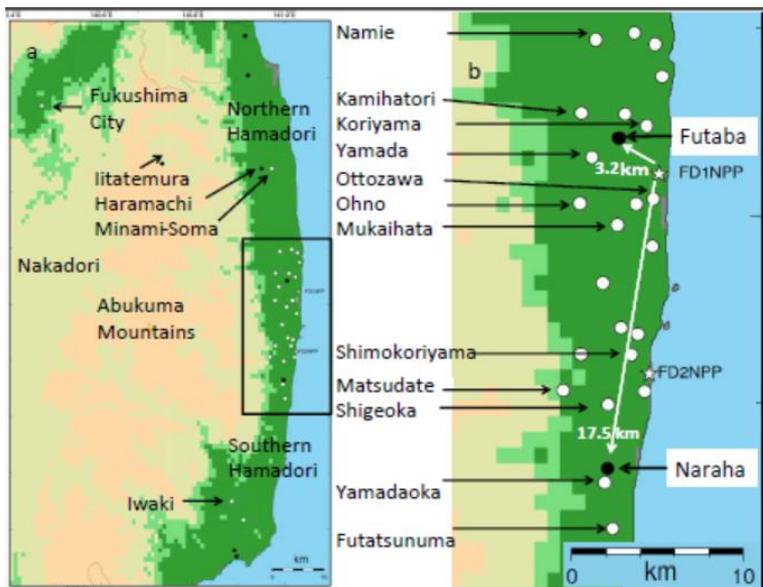
本研究の成果:

Tsuruta, H. et al. (2018) *Geochem*, 52

双葉、楢葉、原町局およびその周辺のMPの測定値の解析

(Tsuruta et al., *Geochemical Journal*, 52, 2018) =2018年3月8日 論文全文・データをオープンアクセス公開

- 大気中Cs-137濃度の最大値は3月12日14-15時(水素爆発前)の双葉局の13,600Bq/m³,
→夕～夜に南相馬にも到達
- それに次ぐのは、15日未明の楢葉局の8,300Bq/m³
→首都圏、北関東、中通りへも移流
- これらはMPの線量ピークと一致。MPが測定不能となった後も含め原発北側、南側ともに断続的に多くのプルームが通過したことを解明
(MP: 福島県原子力センターのモニタリングポスト)



これまでの解析で明らかになったプルームとその到達地域と到達日(p1-P11)

Plume	Day of March, 2011															Range of plumes			Source	Ref.
	No.	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

双葉と櫛葉を追加

No.: Number of major plumes transport from the FD1NPP just after the accident.

● : Maximum ^{137}Cs concentrations $\geq 100 \text{ Bq m}^{-3}$.

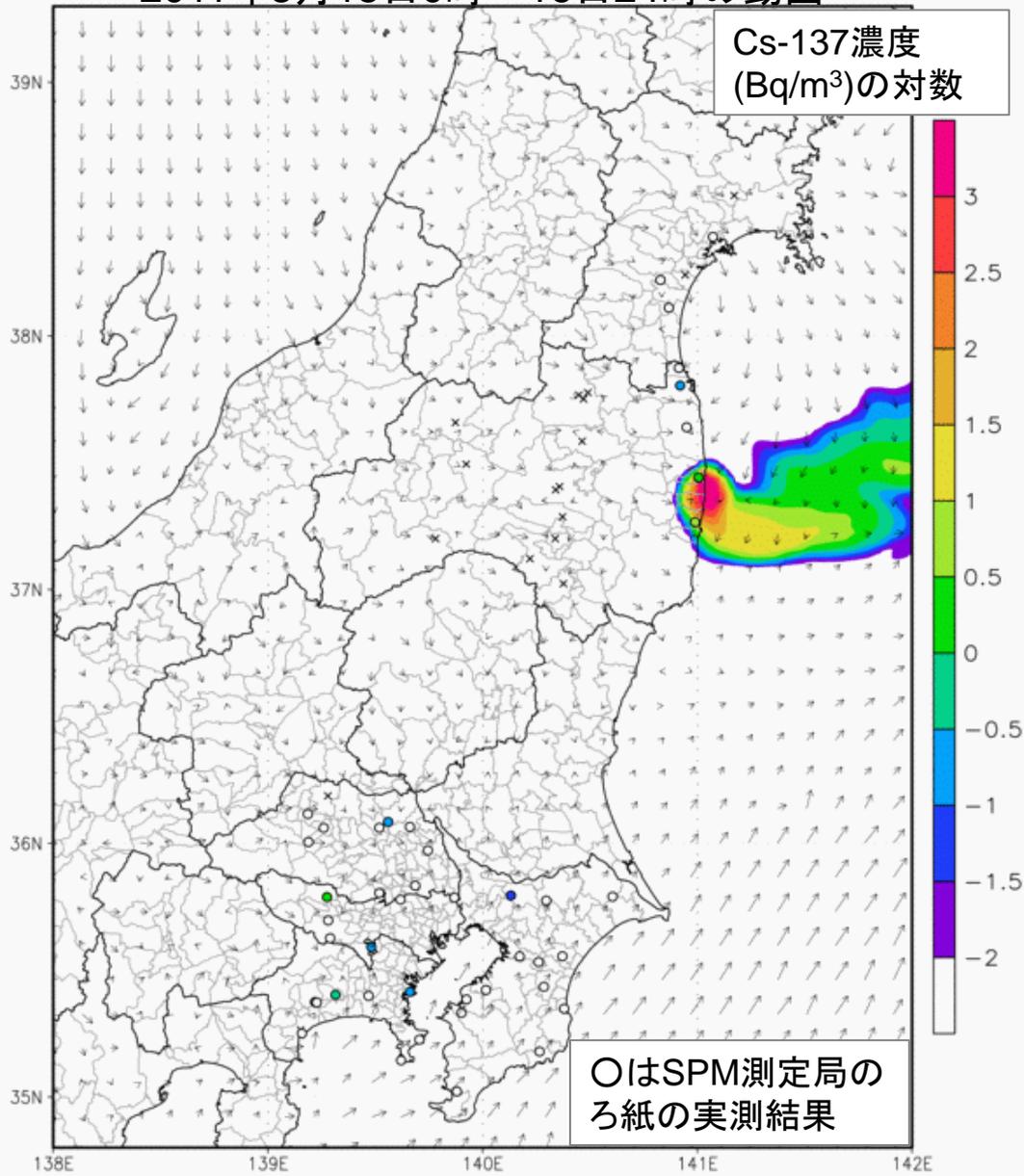
○ : Maximum ^{137}Cs concentrations $< 100 \text{ Bq m}^{-3}$.

→: High ^{137}Cs concentrations continued to the following morning. ●: Precipitation was observed in the area.

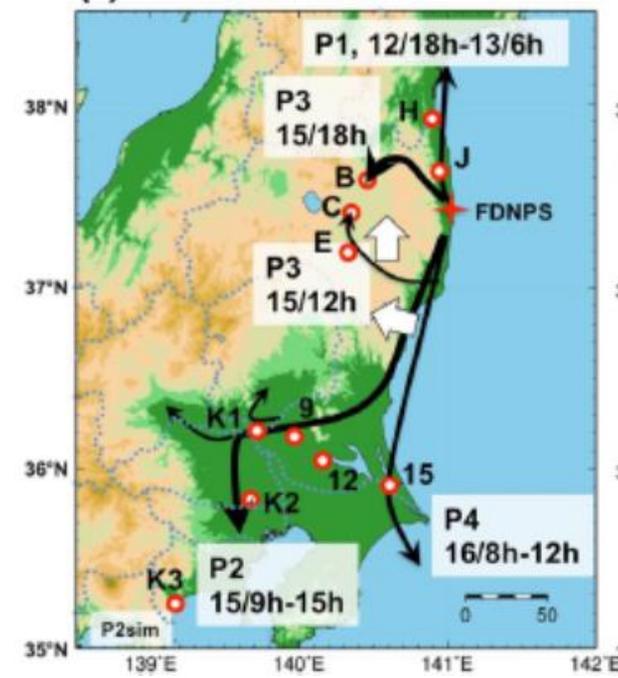
Ref. 1: Tsuruta et al., 2014. Ref. 2: Tsuruta et al., 2017. Ref.3 Tsuruta et al., Geochemical J., 2018

20110315 00JST

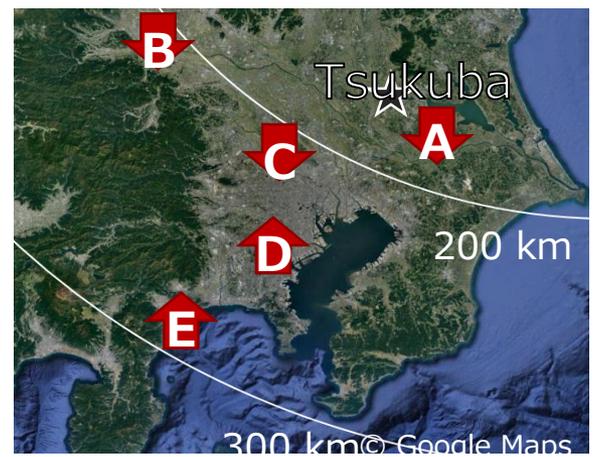
2011年3月15日0時～16日24時の動画



移流拡散沈着モデルによる 大気中Cs-137濃度の再現



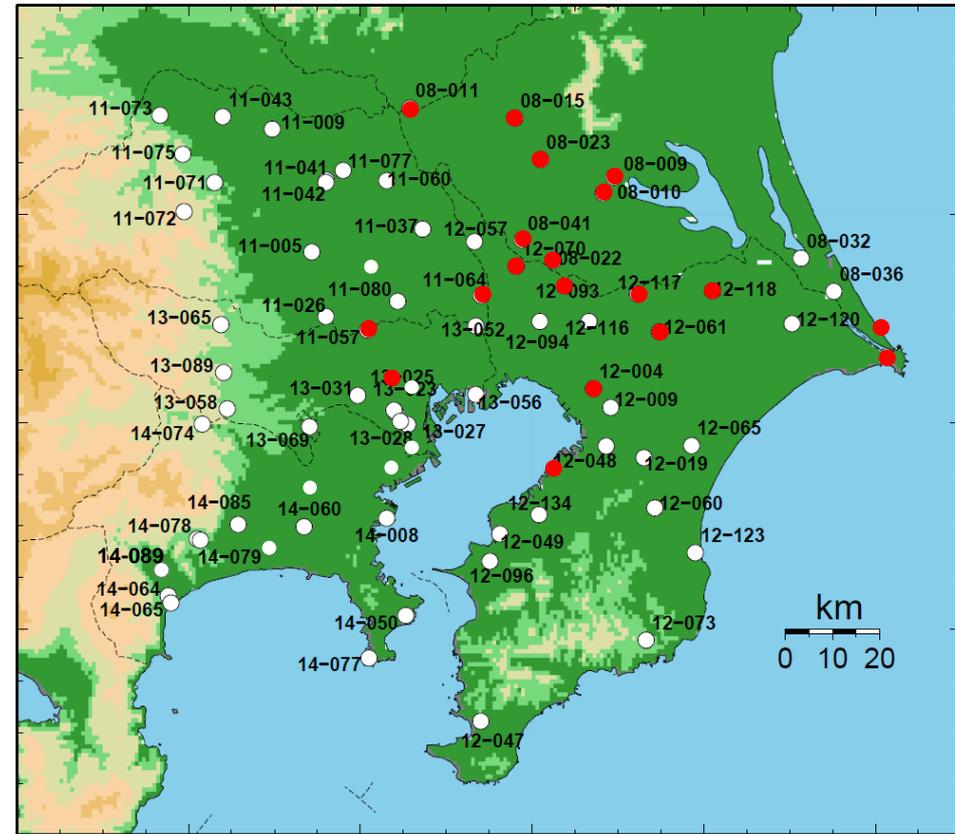
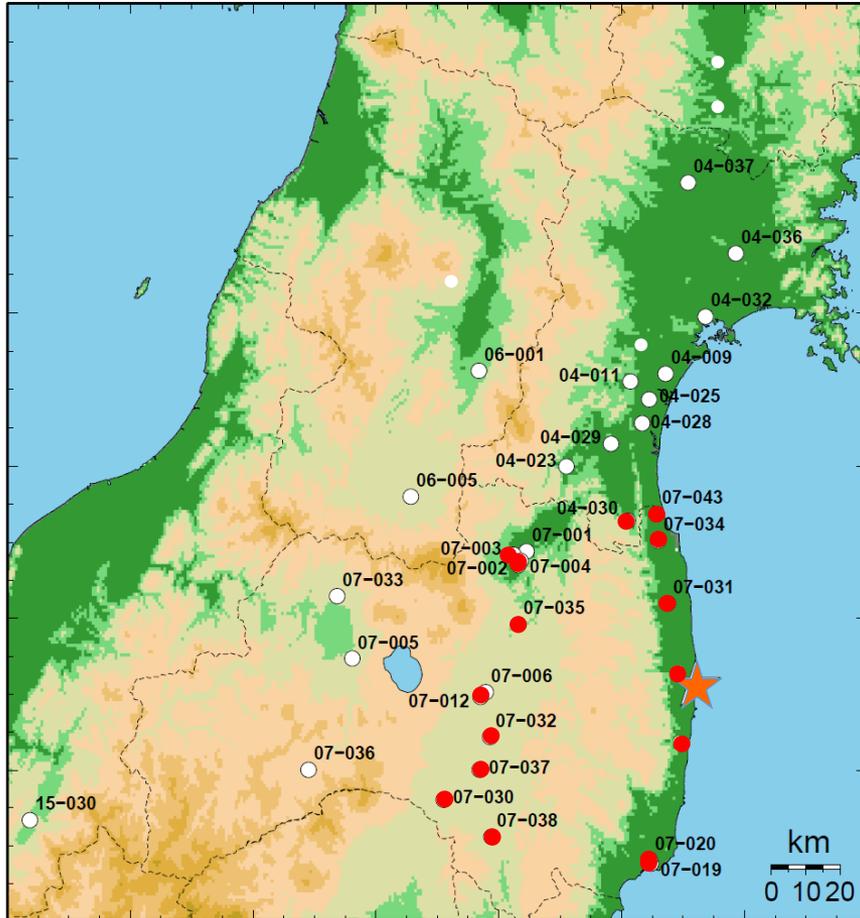
SPMろ紙からの不溶性Cs粒子の検出



大気汚染常時監視局のSPMろ紙の測定対象地点

○ Cs-134, Cs-137

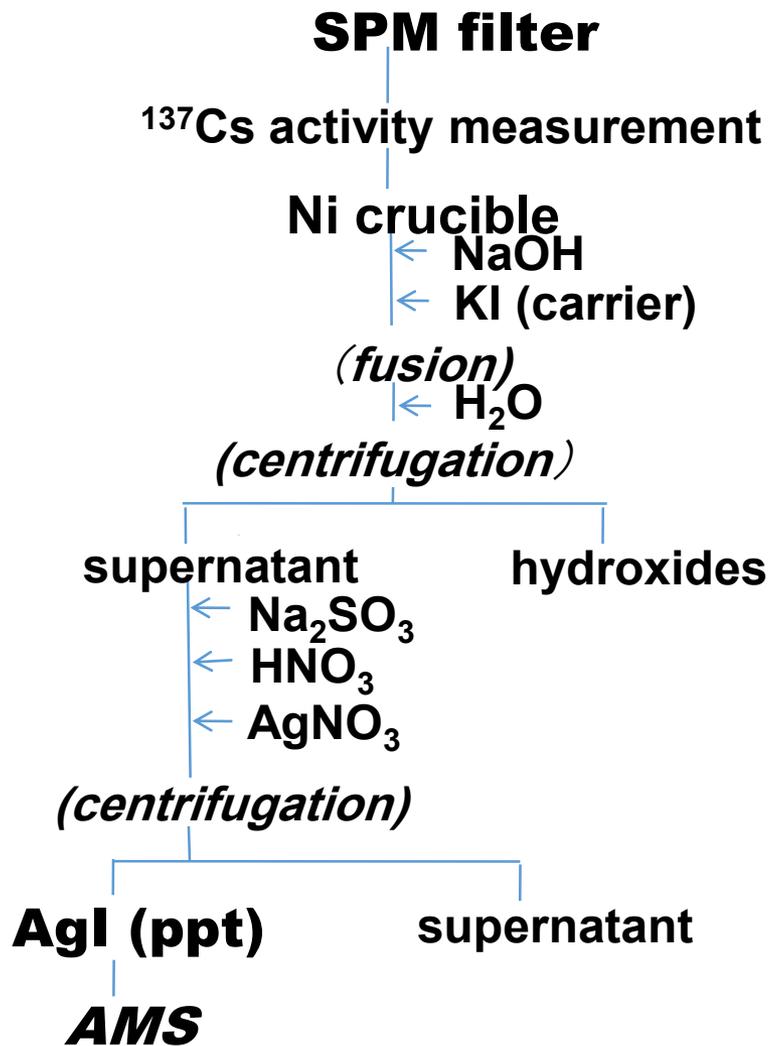
● Cs-134, Cs-137, I-129



先行研究以来、ゲルマニウム半導体検出器で測定してきたCs-134、Cs-137に加え、短半減期のため直接測定不可能なI-131に代わる指標としてI-129を測定

サブ(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)

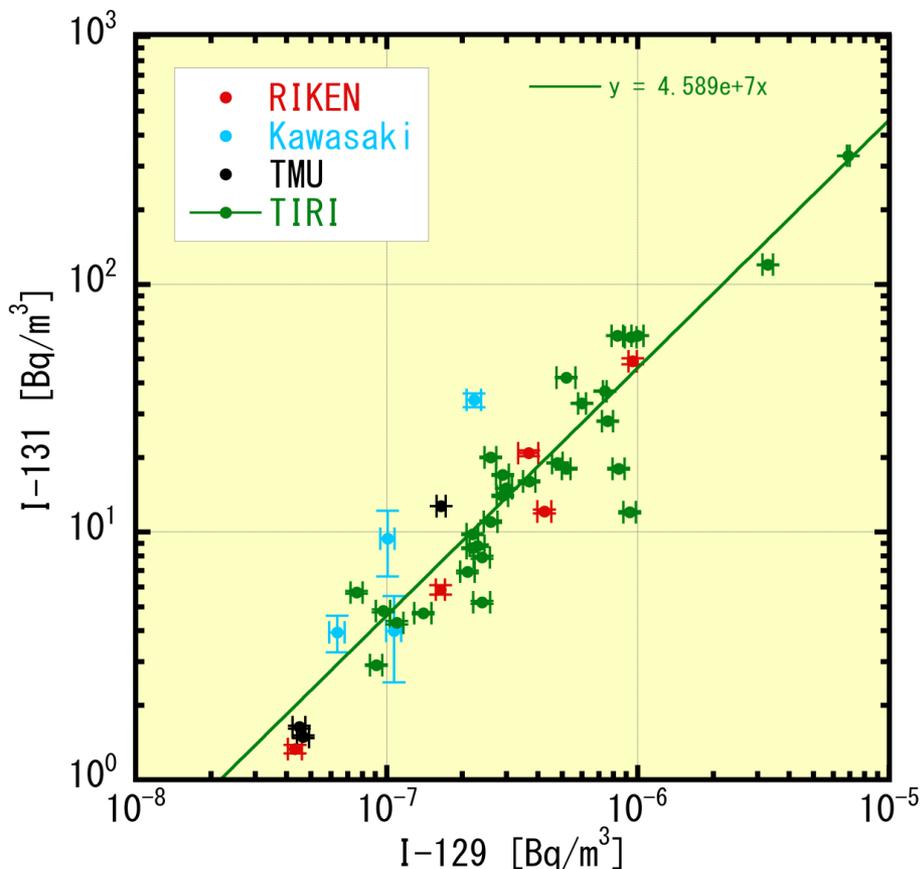
AMSによる ^{129}I 測定のための試料調製化学操作
(AMS:加速器質量分析計)



半減期 ^{131}I :約8日 ^{129}I :約1570万年

東京都立産業技術研究センター(TIRI)ほか首都圏数地点で事故後初期に ^{131}I が実測されていた。
→保存されていたろ紙を入手し、ろ紙上の ^{129}I を測定し、当時の ^{131}I を再現できることを確認。

事故直後の測定



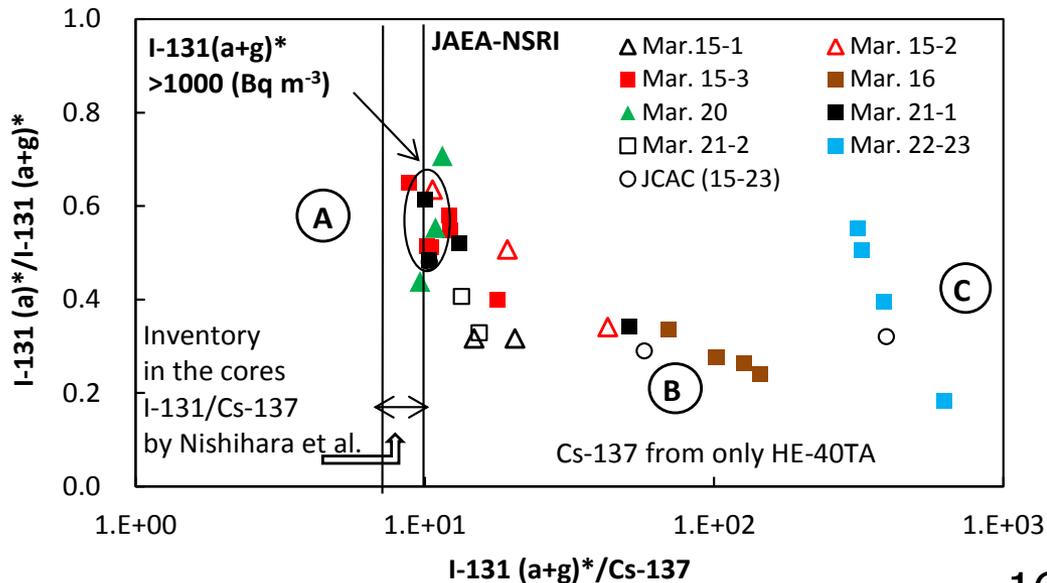
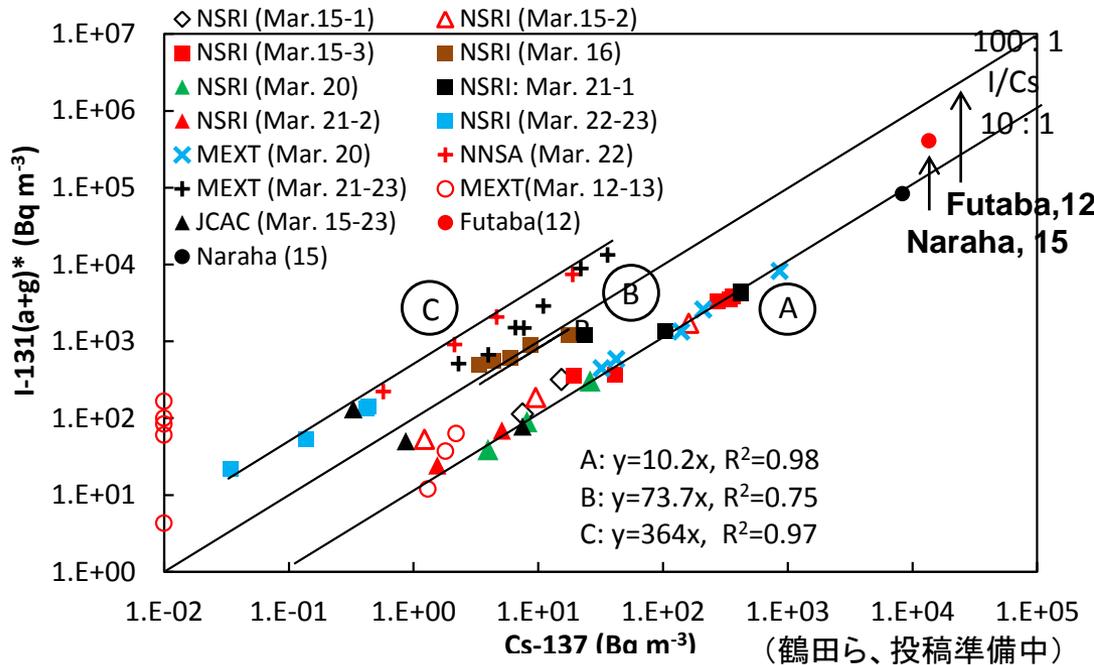
事故後数年を経て本研究で測定

事故直後の実測値を用いたI-131/Cs-137比、ガス:粒子比の解析 サブ(3)

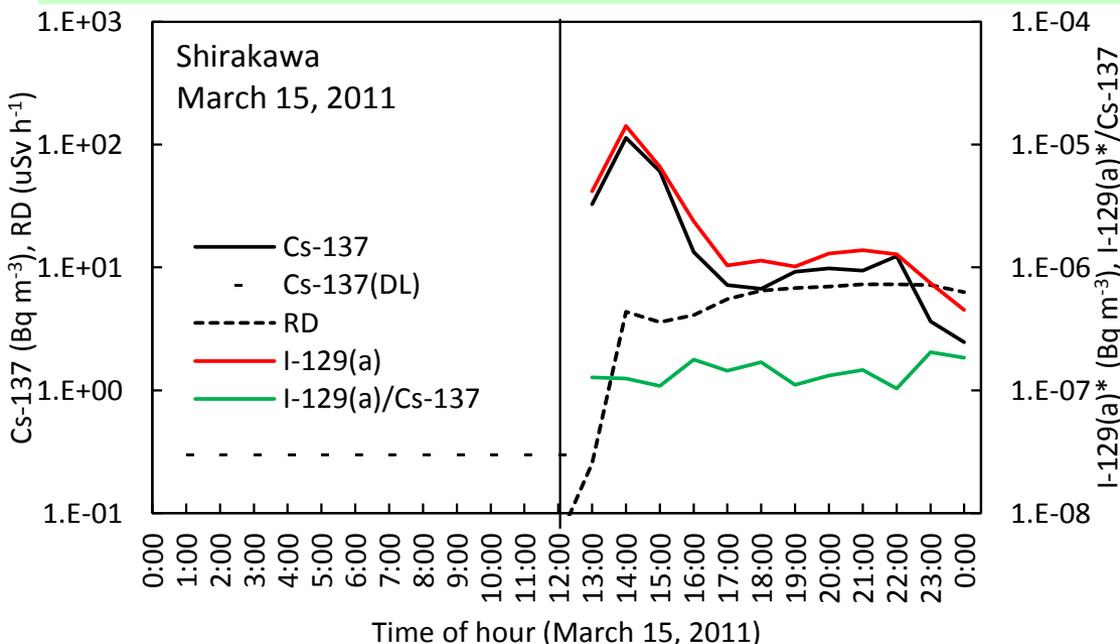
(a): aerosol 粒子状
(g): gas ガス状

I-131 (a+g)*の推定手法(その1):
 I-131(a+g)*/Cs-137が3グループ
 (10、70、360)に大別された(右図)。
 実測値のCs-137濃度を用いて
 I-131(a+g)*推定。
 I-131(a)*/I-129(a) *比から求めた
 I-131(a)*を用いて、I-131(g)*を
 $I-131(g)^* = I-131(a+g)^* - I-131(a)^*$

I-131 (a+g)*の推定手法(その2):
 ガス状I-131(g)*と粒子状I-131(a)*
 は平衡に達したと仮定し、NSRI
 (原子力科学研究所)での比、
 例えば約0.5と同じとして(右図)、
 $I-131(g)^* = I-131(a)^*$ とした。次に、
 $I-131(a+g)^* = I-131(a)^* + I-131(g)^*$
 を求めた。別に、Cs-137濃度から
 $I-131(a+g)^*/Cs-137$ を求め、
 妥当かどうか検討。



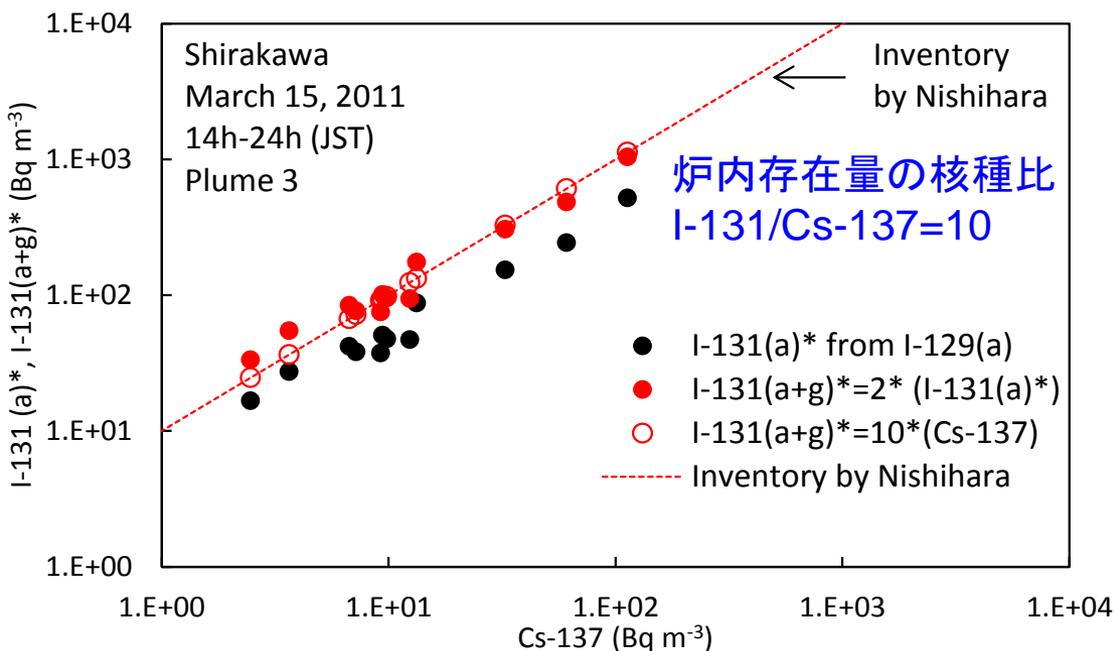
SPMろ紙測定によるI-131/Cs-137比の推定: 中通り白河局の例



3月15日13時に風が東寄りに変化してCs-137濃度が急激に上昇し、14時に最高113 Bq/m³に達した。

I-131(a+g)*の求め方

次の二つの方法で独立に求めたI-131(a+g)* (○と●)は、良く一致。



1. I-131(a)* (●)をI-129(a)の実測値から計算。

十分に平衡に達していると推測してプルーム3では

$I-131(g)^* : I-131(a)^* = 1 : 1$

$I-131(a+g)^* = 2 \times I-131(a)^*$ (○)

2. プルーム3のインベントリ値から $I-131(a+g)^*/Cs-137 = 10$ (●)

2011年3月12日の1号機水素爆発前後のI-131/Cs-137比の推定

双葉: 1号機爆発直前ベントによる放出

原町: 1号機爆発後の放出

I-131(a+g)* / Cs-137は、どちらも
インベントリ比(6.7:1)より大きいと推定

双葉

● I-129(a)から求めたI-131(a)*

$I-131(g)^* / I-131(a)^* = 3$

$I-131(a+g)^* = I-131(a)^* + I-131(g)^*$

○ I-131(a+g)* / Cs-137 = 20

$I-131(g)^* / I-131(a)^* = 5$

△ I-131(a+g)* / Cs-137 = 30

原町

● I-129(a)から求めたI-131(a)*

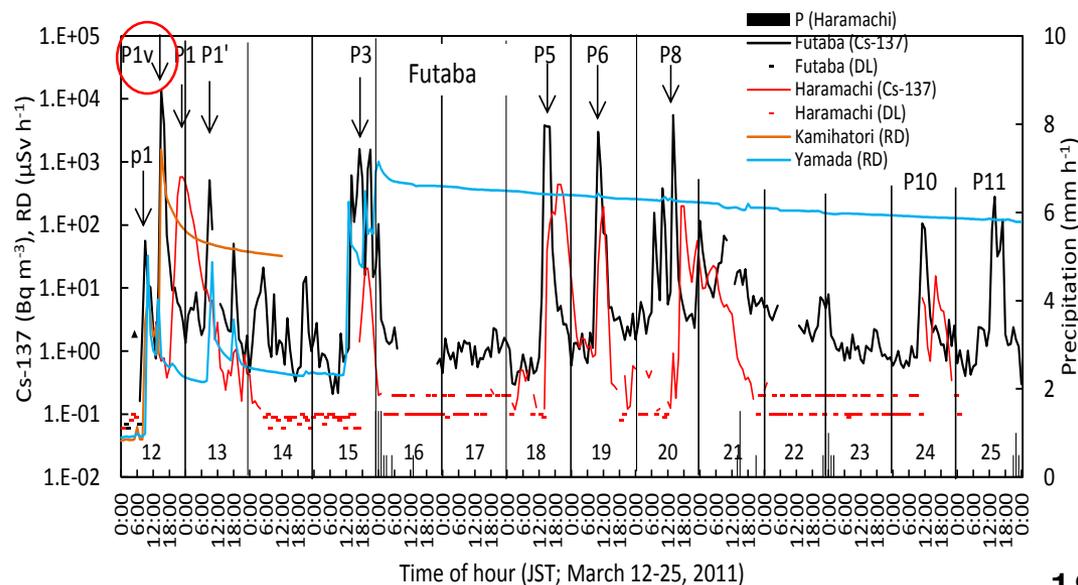
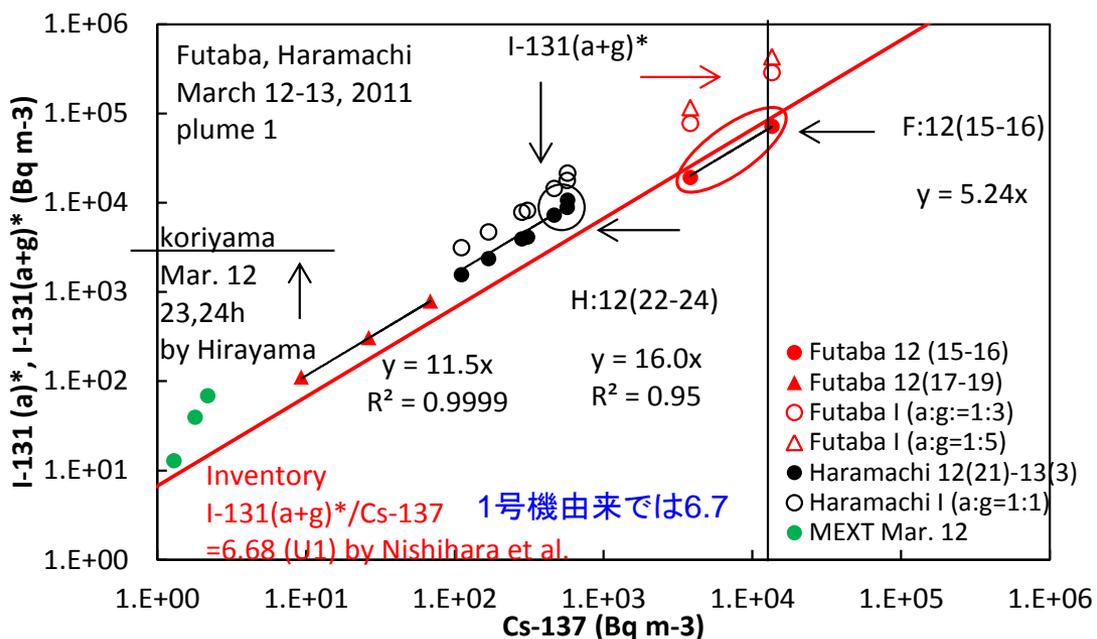
ガス・粒子は平衡を仮定

$I-131(g)^* / I-131(a)^* = 1$

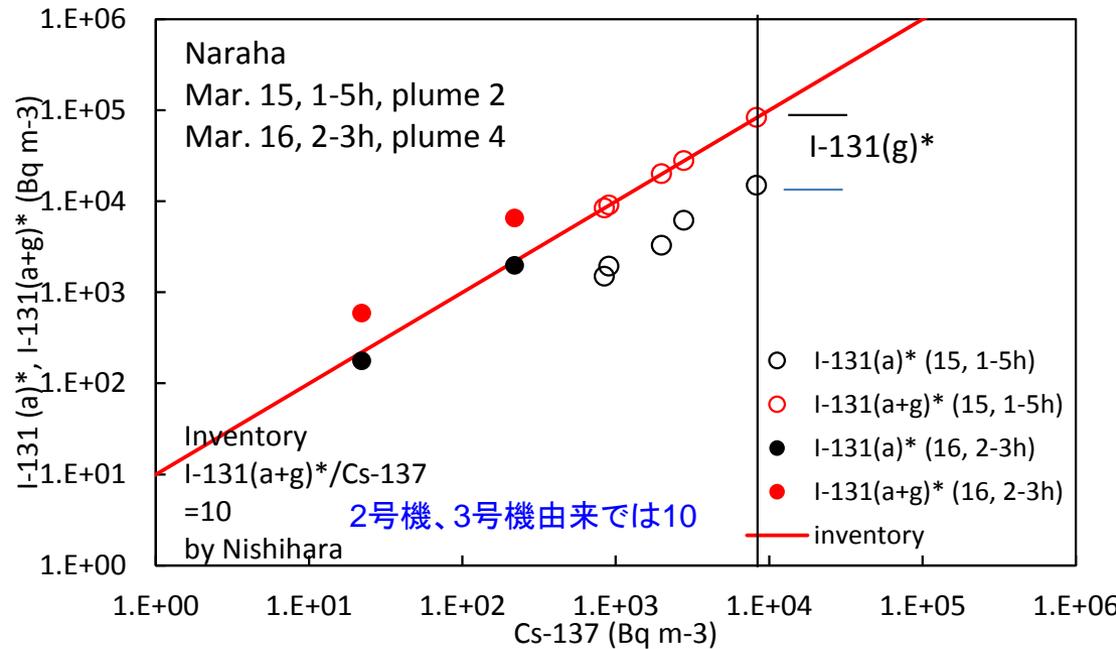
$I-131(a+g)^* = I-131(a)^* + I-131(g)^*$

○ 次に、I-131(a+g)* / Cs-137を
求めたところ、約30となった。

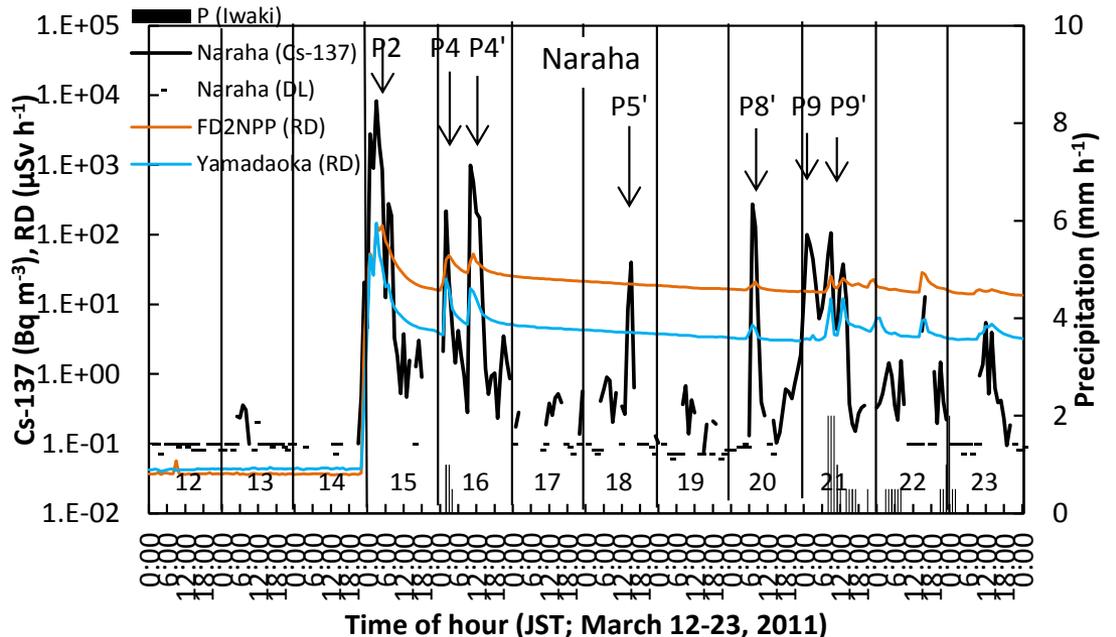
なお、a:g=4:1とすると、比は20



櫛葉局でのI-131/Cs-137比の推定 3月15日早朝と16日未明



3月15日早朝のプルーム2
インベントリの比は10
I-131(a+g)* = 10x Cs-137 (○)
実測のI-129(a)から求めたI-131(a)* (○)
I-131(g)* = I-131 - (a+g)* - I-131(a)* とすると
I-131(a)* : I-131(g)* = 1 : 5
となり、ガス状が80% (不確実性が大)
放出時のガス状 : 粒子状の比が不明
なことも、不確実性の大きな要因



3月16日未明のプルーム4
インベントリの比を使えない場合
東海村 (NSRI) では
I-131(a)* : I-131(g)* = 3 : 7 を用いて、
実測のI-129(a)から求めたI-131(a)* (●)
からI-131(a+g)* (●) を求めた。
なお、東海村 (NSRI) の次の関係
I-131(a+g)* = 60x Cs-137
が櫛葉でも保存されると仮定した場合、
I-131(a+g)* は、ガス状と粒子状の合計から
求めた値の2倍となり、一致せず不確実
性が大きい。
なお、降水による放射性物質の除去の可
能性もある。

サブ(5)大気拡散・ばく露評価統合モデルの構築：甲状腺等価線量の推計

ATDMに基づく毎時の大気中(Cs-137 or I-131)濃度1 kmメッシュデータ

頻度分布推計;人口密度メッシュデータ (H22国勢調査)

Cs-137計算濃度から推計する場合には、
 ・I-131/Cs-137=10(3プルームについて変更した感度解析)
 ・ガス・粒子比:1:1(9:1、4:1のケースで感度解析)

1kmメッシュ別甲状腺等価線量

$$E_{\text{inhalation}}(\text{I-131}) = \text{大気中濃度}_{\text{I-131}}(\text{Bq/m}^3) \times \text{曝露時間}(\text{day}) \times \text{呼吸率}(\text{m}^3/\text{day}) \times \text{係数}(\text{Sv/Bq})$$

3/11-3/24 屋外に滞在

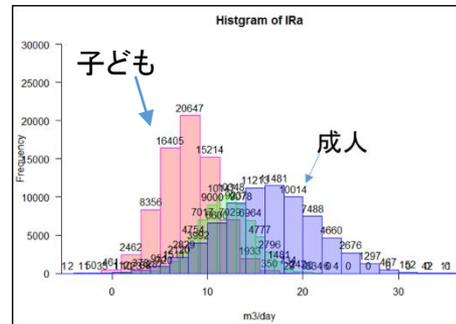
代表値 (m³/day, ICRP, Pub. 71)

	1-year-old	10-year-old	Adult
Inhalation rate	5.16	15.3	22.2

甲状腺等価線量係数 (Sv/Bq, ICRP, Pub71)

I-131	1-year-old	10-year-old	Adult
Thyroid p 1mm, Type F	1.4×10^{-6}	3.7×10^{-7}	1.5×10^{-7}
Thyroid Elemental I	3.2×10^{-6}	9.5×10^{-7}	3.9×10^{-7}

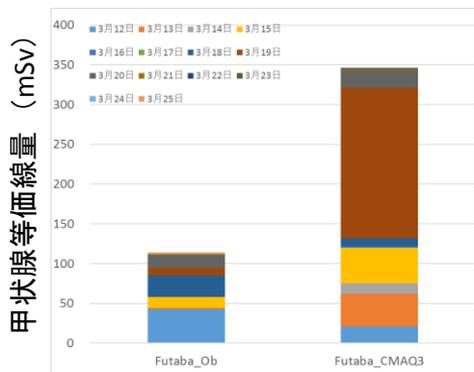
頻度分布:
(US EPA, 2011
のデータに基づ
き分布推計)



甲状腺等価線量の評価ケース

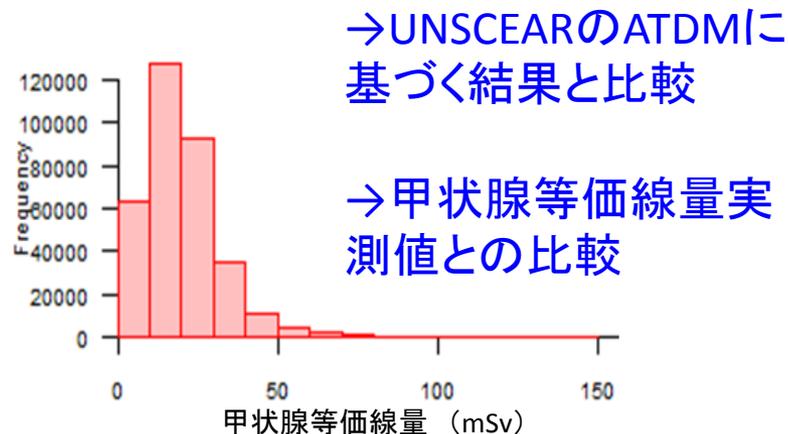
①地点別、②市町村別、③避難パターン別

①大気濃度測定地点における日別の線量



→Cs-137観測値に基づく結果とATDMに基づく結果とを比較

②市町村別(20km圏外)の線量ヒストグラム(地域内分布)



→UNSCEARのATDMに基づく結果と比較

→甲状腺等価線量実測値との比較

③避難パターン(放医研作成)ごとの線量、避難による回避線量

避難18パターン(放射線医学総合研究所)

1 富岡町役場(12日03時->06時)川内村役場(16日10時->16時)ビッグパレットふくしま	10 広野町20km圏内(12日01時->08時)小野町役場
2 大熊町役場(12日10時->13時)船引就業改善センター	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)ビッグパレットふくしま
3 双葉町役場(12日03時->08時)川俣小学校(19日10時->16時)さいたまスーパーアリーナ	12 葛尾村20km圏内(14日10時->18時)あづま総合体育館
4 双葉町役場(12日16時->21時)川俣小学校(19日10時->17時)さいたまスーパーアリーナ	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
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	14 葛尾村役場(21日10時->12時)あづま総合体育館
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	15 飯館村役場(5/29日10時->11時)福島市役所飯野支所
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	16 飯館村役場(6/21日10時->11時)福島市役所飯野支所
8 田村市20km圏内(12日07時->08時)デンソウ東日本	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
9 南相馬市20km圏内(15日10時->16時)伊達市役所	18 川俣町計画避難区域(6/1日10時->10時半)川俣町役場

→先行研究結果(WSPEDI IIに基づく推計、鈴木班)と比較
→避難による回避線量の試算

甲状腺等価線量評価のケースと地点・地域との関係



①地点における推計 ⇒ SPM測定点 ●

②市町村別の推計 ⇒

避難指示区域*を含む市町村 ⇒ 避難指示区域を除いた地区で推計

避難指示区域*を含まない市町村 ⇒ 市町村単位で推計

③避難パターンごとの推計 ⇒ ①～⑱ 避難パターン初期地点

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

ソース側

- 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)
- モデル計算との比較に用いる濃度実測データ自身の不確実性
- Csの分布から推計する際のI-131/Cs-137比、ヨウ素の形態の設定
- 屋内、屋外の濃度比
- 人の行動(滞在場所)データ
- 吸入した後の体内動態(甲状腺への集積率など)

レセプター側

移流・拡散・沈着モデルの精度に大きな影響を与える要因

- 気象場(海陸風、地形の影響、大気安定度)の再現性
- モデルの空間分解能(とくに発生源近傍)
- 拡散、沈着などの係数設定

国民・社会との対話(学会の特別企画、マスメディア報道)

○本研究のテーマに焦点をあてた学会の企画行事

➤第56回大気環境学会特別集会(2015年9月、東京)

「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」

(本研究課題の国民への公開のため、学会への参加登録費なし・無料で一般の参加者が聴講できるように、主催者の大気環境学会の協力・理解を得て開催。)

➤日本放射線影響学会

- 2016年広島大会 「福島原発事故から5年、線量再評価の現状」
- 2017年千葉大会 「福島原子力発電所事故の影響を考える
ー放射性ヨウ素からの甲状腺被ばく線量の推定ー」

➤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」
- 「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」

○行政向け成果報告会

➤SPM測定ろ紙の提供元自治体への進捗状況報告会(2017年5月)

福島会場、東京会場、仙台会場 関係都縣市職員ら延べ約80名参加

○マスメディア報道

- 2016年4月2日 毎日新聞朝刊 「土記 ろ紙は語る」(本研究に関する紹介)
- 2017年6月6日 NHK 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」
出演ほか不溶性セシウム粒子報道への取材協力
- 2018年3月17日放映予定 NHKスペシャル 「メルトダウン File. 7」への取材協力

本研究により得られた主な成果(まとめ)

○科学的意義

- 大気汚染常時監視局のSPM測定用ろ紙に採取された事故後初期の大気中浮遊粒子中のI-129を前処理して分離し、加速器質量分析計(AMS)で測定することで、事故後数年を経た後でも、当時の大気中粒子状I-131濃度の時空間分布の再現が可能であることを示した。
- 上記の実測データを活用した大気拡散沈着モデルの再現性向上、不溶性粒子の体内動態モデルの開発など、被ばく線量評価の基礎となる数理的手法を発展させた。
- 上記ろ紙のI-129の多地点での測定および事故後初期に他機関で実測された大気中I-131濃度の実測データの総合解析により、I-131/Cs-137比は、炉内インベントリの値(2,3号機で約10)と同等である場合が多いが、これを大きく上回るブルームも存在したこと、I-131のガス対粒子比の値が被ばく線量推計の不確実性の大きな要因であることを示した。

○環境政策への貢献

- 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、本課題が所期の成果を挙げることで、原発事故影響の科学的解明における国際貢献を果たす。
- 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る。