

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 6 日現在

機関番号：82645

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2012～2016

課題番号：24110002

研究課題名(和文)放射性降下物大気輸送モデリングと移行過程の理解

研究課題名(英文) Atmospheric transport modeling of radioactive fallout materials and understanding of its transfer process

研究代表者

中島 映至(Nakajima, Teruyuki)

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構・第一宇宙技術部門・センター長

研究者番号：60124608

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 95,200,000円

研究成果の概要(和文)：SPM観測網、NaI(Tl)検出器網のデータから、放射性物質の大気濃度を評価する手法を開発した。データ解析を通して、福島原発事故による放射性物質の新たな排出シナリオを提案した。3つのモデルによるCs-137大気濃度の計算値を観測値と比較して、ブルームの経路と動態を明らかにした。また、土壌及び植生起源物質の大気への再飛散のモデル計算を行い、再浮遊による系からの除去率は他要因に比べて2～3桁小さいことを示した。学術会議と協力して国際モデル比較を実施した。また、気象学会等と協力して数値モデルの放射線防護への活用の重要性を提言した。3回の若手研究者のためのモデル講習会を実施した。

研究成果の概要(英文)：Retrieval methods were developed for atmospheric concentration of radioactive materials from SPM and NaI(Tl) data. From these data analyses, a new emission scenario was proposed. Three model simulations were performed and compared with observed values to depict plume routs and their dynamics. A model evaluation was also performed to evaluate the amount of re-suspension of the deposited radioactive materials in a form of mineral dust and organic materials from vegetation and found the removal of radioactive materials from the environmental system through re-suspension is two to three order smaller than those of other removal processes. We contributed to the international model inter-comparison of Science Council of Japan. In cooperation with the Japan Meteorological Society and other academic communities, we also contributed to issuing recommendations for numerical model use of the radiation protection operation. We held three numerical model training courses for young scientists.

研究分野：大気科学、気候科学

キーワード：東日本大震災 福島第一原子力発電所事故 放射能汚染 放射性核種 エアロゾル 大気物質輸送モデリング

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所事故（以下、福島原発事故）によって、領域から世界の広い範囲で放射性物質が環境中に拡散した。観測された放射性降下物の分布は複雑であり、その分布メカニズムを把握するためには、放射性物質の物性に関する知識とともに、地球科学の知識が不可欠である。SPEEDIによるシミュレーション結果を学術研究に利用する道筋が明らかで無かった当時の状況では、その評価や、対策のための様々な情報提供、さらに国民の理解増進のためには、これとは独立に学術界による多面的な観測とモデル研究が必要であった。当時のモデル比較によると、大気からの除去過程におけるモデル間の差異、及び沈着量のモデルと観測値との差が大きかったので、モデルコミュニティ、特に同様の拡散現象を扱う大気汚染モデリングコミュニティの貢献が必要だった。

2. 研究の目的

原発事故により環境中に拡散した放射性物質の大気輸送と沈着過程を、次の研究課題を通して理解する。(1) 複数モデルによる大気循環の数値計算、(2) 放射性物質の微物理特性と沈着・再巻き上げ過程のモデリング、(3) 放射性物質のデータ同化と発生源強度の推定、(4) 放射性物質の広域分布特性の再現と将来予測。本研究の対象はセシウム 137 (Cs-137)だけでなく、内部被曝への影響が大きいヨウ素 131 (I-131)などの核種も、数少ない現存スペクトルデータとモデル結果を組み合わせて推定する。さらに、得られた研究結果を基に、点状発生源型の甚大な大気汚染問題のためのモニタリングシステムのデザインを行う。

3. 研究の方法

研究目的を達成するために、観測データの解析と数値モデルによるシミュレーションの両方を用いる研究戦略を立てた。すなわち、(1) 観測データから放射性物質の大気中濃度の復元を行い、並行して、(2) 放射性物質の大気輸送モデルの開発と輸送過程の再現を実施して、両者を比較することにより輸送プロセスを明らかにする。またその過程で、(3) 原発事故に伴う放射性物質の放出シナリオ構築を行う。さらに長期的な変動を把握するために、(4) 放射性物質の再浮遊過程の評価を行う。最後に (5) これらの知見の発信とアウトリーチ活動を行う。

4. 研究成果

(1) 放射性物質の大気観測からの復元

A04-8 班と A01-2 班と協力して、線吸収法大気浮遊粒子状物質 (SPM) モニタリング網の試料テープを発掘し、Cs-137 と I-129 の大気中濃度を分析・測定する新手法を開発した。自治体が管理する大気汚染監視用の SPM モニタリングサイトは全国に多数分布して

いる。本研究では 99 地点からの試料テープに採集された 1 時間毎の試料を分析して、Cs-137 の大気中濃度を復元できた。その結果、高濃度 (10 Bq m⁻³) の Cs-137 を含むプルームが 3 月 12-23 日の期間中に、福島県を含む東北地方南部と関東地方に少なくとも 9 つ存在したことが明らかになった (図 1)。風ベクトルを重ねてみると、当時のプルームの動きが詳細に把握できる。図に示す 2011 年 3 月 21 日 9 時の事例では、関東域中西部に 100 Bq m⁻³ に達する高濃度が観測された。この時、関東の南側に前線による風の収束帯が見られ、プルームがそれに衝突して南進を妨げられ、上層に運ばれたという描像を得ることができる。また、当時稼働していたモニタリングポストの NaI (TI) 検出器の波高分布測定値から、Xe-133、Te-132、I-131,132,133 の大気中濃度の評価手法を開発し、検証した。

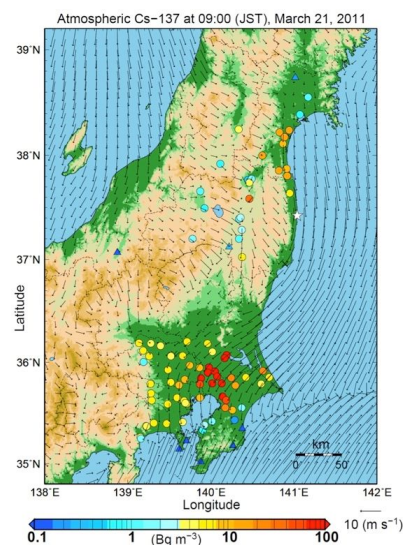


図 1. 北東風により関東南部に輸送されたプルーム (No. 9) の水平分布。赤丸 (Cs 137 濃度が 100 Bq m⁻³ 前後) で示された地点がプルームの中心域。2011 年 3 月 21 日 9 時における、SPM 試料テープの分析による Cs-137 濃度と、気象庁客観解析データによる 1000hPa での水平風の空間分布。

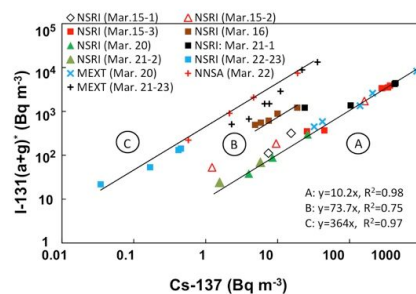


図 2. 既存の公表データの解析による事故直後の大気中 Cs-137 濃度と I-131(a+g)*濃度との関係。(a: 粒子、g: 気体、*: 事故直後の日時に半減期補正済み)、NSRI: 日本原子力研究開発機構-原子力科学研究所 (茨城県東海村での測定データ) (Ohkura et al., 2012)、MEXT: 文部科学省ダストサンプリングの測定結果 (福島県東部での測定データ)、NNSA: 米国国家核安全保障局/エネルギー省の野外調査結果 (福島県東部での測定データ)。

以上の結果等から、放射性ヨウ素とセシウムの同位体比を決定することにより、事故当時の広域での I-131 大気濃度の推定手法も開発した。この場合、同位体比は原子炉の事象に依存してプルームごとに大きく異なっていたが、概ね3つの値で分類できることがわかった(図2)。また、Xe-133/I-131 比も気塊によって大きく異なっていた(図3)。

(2)大気輸送モデルの開発と輸送過程の再現

1節で示した観測値をシミュレーションするために、複数の放射性物質の大気輸送モデルの開発、あるいは利用を行った。これらは、国立環境研究所(WRF-CMAQ)、東京大学(NICAM-Chem)、気象研究所(NHM-Chem)、海洋研究開発機構(WRF/Chem)、名古屋大学(WRF及び、ラグランジュモデル)である。これらのモデルによるシミュレーション結果の相互比較と観測値との比較を行い、プルームの動態を把握した。その結果、モデルはプルームの消長と動きの特徴を連続的に捉えることができるが、モデル特有のバイアスがあることがわかった。その一例として、図4に

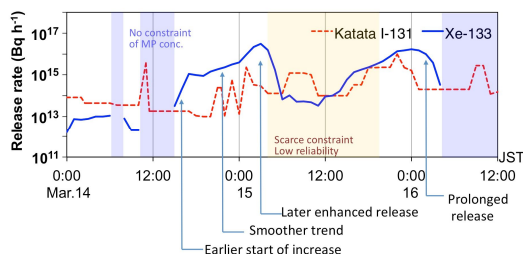


図3. モニタリングポストでの大気中濃度から推定された Xe-133 放出率。Katata(2015)の I-131 放出率と比べてより長時間かつ急激な変動の少ない放出率となっている。

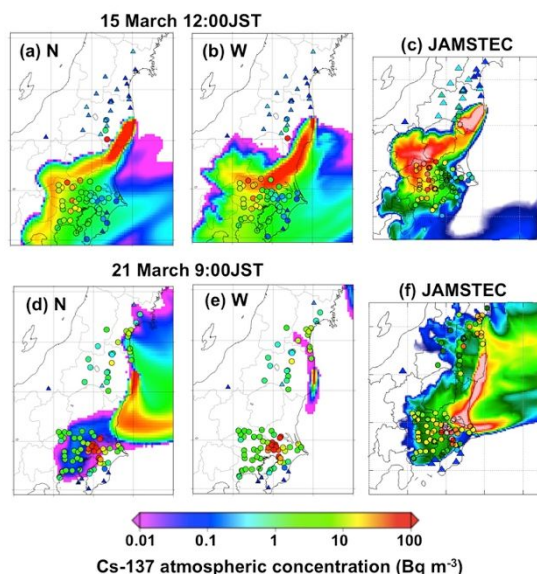


図4. 地表付近の Cs-137 大気中濃度分布のモデル計算結果と SPM 観測網データ(丸印)との比較。NICAM-Chem (N モデル)、WRF-CMAQ (W モデル)、WRF/Chem (JAMSTEC モデル)の結果。2011年3月15日12時(日本標準時)と21日9時の事例。

NICAM、WRF-CMAQ、WRF/Chem モデルの結果を示す。3月15日-16日と20日-21日には低気圧が日本列島を通過して、顕著なプルームが東北域から関東域に広がった。この内、3月15日は前線の前面における降雨を伴わない比較的単純な輸送プロセスが支配的であった。この場合、3つのモデルの結果は比較的一致していることがわかる。また若干の位置ずれがあるが、SPM 網が示す高濃度分布とモデルプルームの分布は整合的であり、プルームが通過する様子が把握できる。しかし図には示さないが、3つのモデルとも朝9時にはプルームは関東域中部に到着しているが、その時間帯では SPM 観測値はピーク濃度前の小さな値をとっており、比較的簡単な輸送プロセスにも関わらず、モデルと観測の差が大きいことがわかった。そのため、原発からの放射性物質の放出シナリオを Terada et al. (2012)から Katata et al. (2015)に変えた数値実験を行なったところ、プルームの関東域への到達時間が観測値に近づくことが確認できた。しかし、モデルと観測の差は完全には解消されておらず、放出シナリオの改訂が今後も必要であることを示唆している。

一方、3月21日朝の事例では、前線の通過に伴う降雨の発生や低い境界層の形成のためにモデル再現性が悪かった。このような複雑な大気場中の輸送過程を理解するために、気象庁の客観解析データを用いた流跡線解析による気塊の追跡を行った(図5)。図によると21日10時の事例では、福島原発を出た放射性物質は高度200mという低い境界層の

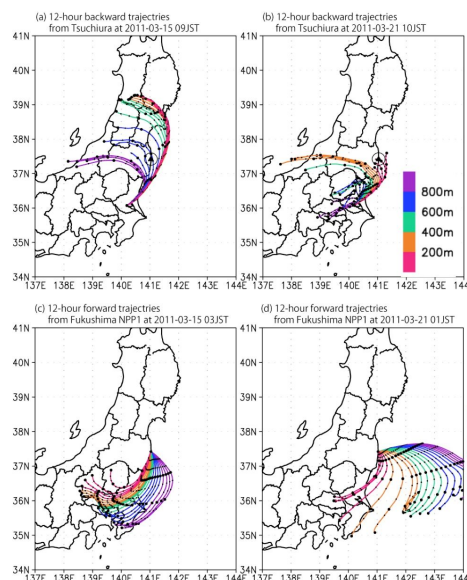


図5. 気象庁メソ解析風速データを用いた後方流跡線と前方流跡線。15日9時と21日10時に土浦の上空50~1000mの気塊の後方流跡線と、それに基づいて福島第一原発付近に存在した時刻を推定し、その時刻から福島第一原発の上空の気塊の前方流跡線を評価。流跡線の色は初期時刻での気塊の高度、小黒丸は1時間毎の、大黒丸は3時間毎の位置。

中を伝搬していた可能性がある。この経路上には降雨も存在していた。図 4 によると、NICAM-Chem と WRF/Chem モデルでは、プルームが関東に到達する様子が再現されているが、WRF-CMAQ では降雨による除去が過大で関東域には到達していないことがわかる。そこで、除去モデルを JAEA-SPEEDI で採用されているものに装換した結果を図 6 に示すが、図によるとプルームが関東域に到着して観測値に近い値を示すことがわかる。名古屋大学の WRF 及び独自のラグランジュ型拡散モデルによる輸送計算においても、弱い雨による除去や雨滴の衝突・併合・蒸発過程のモデルを見直したところ、概ね東日本域での沈着量分布を再現できることを確認した。しかし、流跡線解析で示されたような 200m とした非常に低い境界層が形成される大気場の再現についてはどのモデルによっても難しく、プルームの再現性を悪くする要因の一つになっていることを確認した。

以上のようなモデルの問題は、2014 年に行われた日本学術会議の国際モデル比較でも指摘されており、他のモデルにおいても大なり小なり内在する問題であるので、今後の改良が必要である。この学術会議のモデル比較

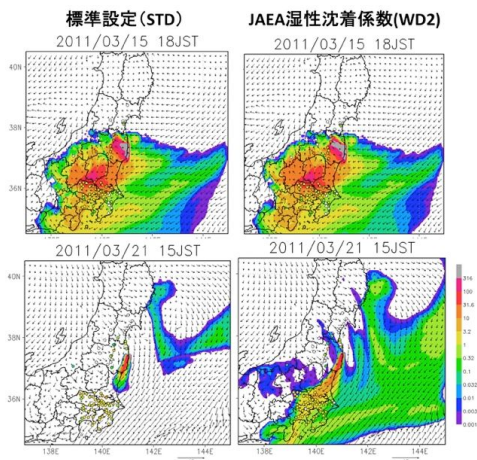


図 6. WRF-CMAQ モデルによる Cs-137 の大気濃度の計算値と観測値の比較。標準 (STD) 及びの JAEA 湿性沈着係数 (WD2) による湿性沈着パラメタリゼーションによる結果を示す。

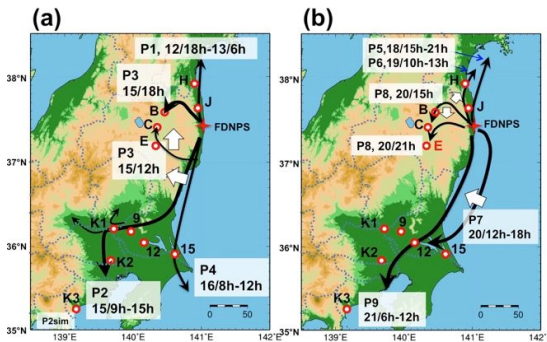


図 7. Tsuruta et al. (2014) によって同定されたプルーム 1 から 9 の経路とその動き (白矢印)。丸印は比較のために用いられた検証点の位置を示す。Nakajima et al. (2017) から転載。

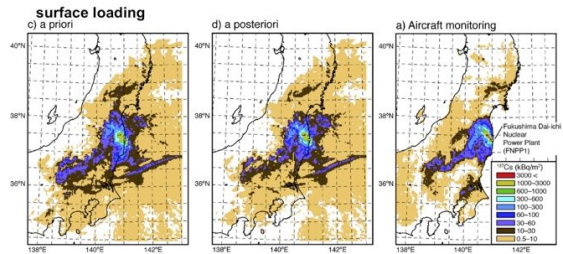


図 8. 文部科学省等の航空機観測によって得られた Cs-137 地表沈着率 (a) 気象研究所モデルによるモデル計算値 (c) 逆推計によって得られた放出量を用いた計算値 (d) の比較。Yumimoto et al. (2016) から転載。

には、本研究グループも積極的な貢献を行った。現在、当グループが中心となって呼びかけた第 2 回の国際モデル比較実験が、12 の大気領域モデルの参加を得て実施中である。今回のユニークな点は気象研究所の 1km 格子高分解能気象客観解析データと SPM 観測網データの利用であり、近い将来、モデル改良につながる新しい知見が得られると期待される。

(3) 放射性物質の放出シナリオの構築

前 2 節で示した観測値とモデル値を用いて、事故当時のプルームの発生・消長・変動を把握した。その結果、大気中濃度が 10 Bq m^{-3} を超える 9 つの顕著なプルームを検出した。図 7 にその経路の概略を示す。前節で明らかになったように、低気圧に伴う前線の前面と後面ではプルーム形成過程とその経路の時間的変化の特徴が異なっていることがわかる。3 月中のイベントを総観すると、3 月 15 日と 20 日、それらに続く 16 日と 21 日のプルーム群は、前線との位置関係で大まかな動態が相似していることがわかった。

本研究では並行して、放射性物質の原発からの放出時系列 (シナリオ) を、文科省等の航空機観測によって評価された沈着量の時系列を再現するように逆推計によって復元した。復元された放出シナリオに基づいて計算された Cs-137 の沈着量の分布を図 8 に示すが、逆推計によって最適化された放出シナリオによって、沈着量の水平分布の再現度が改善されていることがわかる。本研究ではこの結果や本研究で得られた他核種の放出率 (図 3) を総合的に分析して A01 班統一放出シナリオを作成した (図 9)。現在、複数輸送モデルによる比較計算を実施中である。

(4) 再浮遊過程の把握

環境に沈着した放射性物質の長期変動を把握するために、大気を通した再飛散の調査を A01-2 班と A03 班と協力して行った。その結果、2013 年に浪江等で観測された放射性セシウム大気濃度は、寒候期には土壤粒子の再飛散で説明できるオーダーであった (観測の約 20%) が、暖候期に観測された 1 mBq m^{-3} Cs-137 程度の大きな大気濃度を説明することができないことが明らかになった (2 桁程度の過小評価)。この差を説明するために、

森林からの 10^{-7} /h 程度の発生係数を仮定する必要があることが、気象研の輸送モデル計算によって示された(図 10)。さらに、土壌発生値 $\times 5$ 倍 + 森林 (10^{-7} /h) のように調整した感度実験を行ったところ、2013 年の年間再浮遊量は 1.28 TBq と、航空機観測から得られた Cs-137 の一次沈着量 2.68 PBq の 0.05% 程度であった。このことは、放射性物質の長期変化において、沈着したものが再浮遊して除去される過程は重要ではないことを示唆している。ただし、本評価は発生係数の調整が含まれており、今後、このように大きな発生プロセスの調査が必要である。

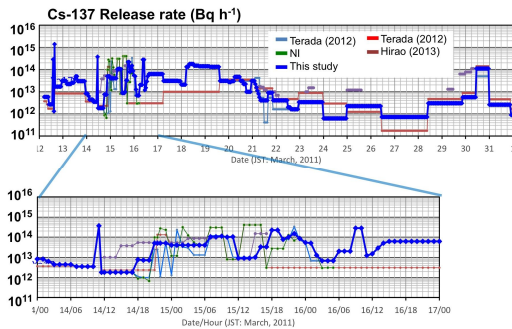


図 9. 文献値および本研究の結果を総合した放出シナリオの推定結果。NI は本研究による I-131 放出率推定値に基づく Cs-137 の放出率の推定値。これまで広く用いられてきた Katata(2015) とは主に 14-16 日の期間で変動が少なくより長時間放出が継続している点で異なる。

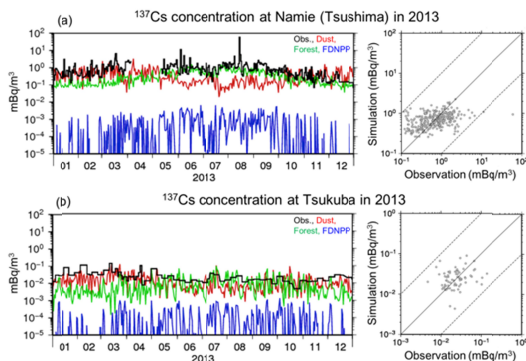


図 10. 浪江(a)とつくば(b)における Cs-137 大気濃度。左は時系列(黒:観測値、カラー:計算値。赤: Ishizuka et al. (2016) の土壌粒子発生モデルを 5 倍したもの、緑: 森林からの再飛散を 10^{-7} /h で仮定したもの、青: 原発建屋からの追加的放出量(東電報告) 10^6 Bq/h で一定を仮定したもの)。右は比較散布図(計算値は、赤、緑、青の 3 つの発生源の総和)。

(5) 知見の発信とアウトリーチ活動

得られた知見の発信とアウトリーチ活動も積極的に進めた。SPM99 点のデータは成果論文とともに一般公開され、試料テープを提供してくれた自治体には個別に説明会を開いてデータと研究成果を還元した。また、モデル改善のための第 2 回の国際モデル比較も世界に呼びかけて実施中である。また、放射線防護へのモニタリングシステムや数値拡散モデルの活用法についての情報発信を

気象学会と連携して行った。すなわち、原子力規制庁が予測情報を持たない状況下では、モデル開発者の協力を得ることを前提に、予測情報は防災予測情報の経験豊富な気象庁、または防災・救護活動を実施する防衛省等で情報を一元管理し、原子力規制庁等が行うモニタリング情報とつぎ合わせていく作業を、たとえば内閣府政策統括官の下で実施していく省庁連携が今後必要である。

計 3 回の若手研究者のためのモデル講習会を実施し、毎回定員 40 名を超える応募があった。その構成も学生、教員・研究員、地方自治体職員、企業と幅広く分布していた。

さらに、福島原発事故による環境汚染研究とコミュニティの教訓をまとめた書籍(東大出版会、2014 年)の刊行に貢献した。その英語版をケンブリッジ大学出版会から刊行する契約が成立し、2017 年中に刊行予定である。

引用文献

Katata, G. et al., 2015, *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 1029–1070.
 Ishizuka, M. et al., *J. Environ. Radioact.*, **166**, 436-448.
 Ohkura et al., 2012: JAEA-Data/Code 2012-010.
 Terada, H., et al., 2012: *J. Environ. Radioact.*, **112**, 141-154.

5. 主な発表論文等

(計 105 件 うち査読付き 93 件)

Nakajima, T., S. Misawa, Y. Morino, H. Tsuruta, D. Goto, J. Uchida, T. Takemura, T. Ohara, Y. Oura, M. Ebihara and M. Satoh, 2017: Model depiction of the atmospheric flows of radioactive cesium emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident. *Prog. Earth Planet. Sci.*, **4**, 1-18, doi 10.1186/s40645-017-0117-x. 査読あり。

Yumimoto, K., Y. Morino, T. Ohara, Y. Oura, M. Ebihara, H. Tsuruta, and T. Nakajima, 2016: Inverse modeling of the ^{137}Cs source term of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident constrained by a deposition map monitored by aircraft. *J. Environ. Radioactivity*, **164**, 1-12. 査読あり。

Kajino, M., M. Ishizuka, Y. Igarashi, K. Kita, C. Yoshikawa, and M. Inatsu, 2016: Long-term assessment of airborne radiocesium after the Fukushima nuclear accident: Re-suspension from bare soil and forest ecosystems. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 13149-13172, doi:10.5194/acp-16-13149-2016. 査読あり。

Hirouchi, J., H. Yamazawa, S. Hirao, J. Moriizumi, Estimation of surface anthropogenic radioactivity concentrations from NaI(Tl) pulse height distribution observed at monitoring station, *Radiation, Protection Dosimetry* (2015) 164 (3), 304-315, doi:10.1093/rpd/ncu305. 査読あり。

Tsuruta, H., Y. Oura, M. Ebihara, T. Ohara, and T. Nakajima, 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. 査読あり.

中島映至, 鶴田治雄, 滝川雅之, 森野 悠, 関山剛, 梶野瑞王, 渡邊 明, 篠原 厚, 北 和之, 2013: 地球科学分野における活動と緊急災害時における研究者の対応. *Radioisotope*, **62**, 761-766. 査読なし.

[学会発表](計 202 件)

Yamazawa, H. et al.: Improvements and limitations on understanding of atmospheric processes of Fukushima Daiichi NPS radioactivity, *EGU General Assembly*, 28 Apr. 2017, Vienna, Austria (招待).

Nakajima, T.: Earth observation satellites and modeling: Current and future issues, *Intern. Rad. Symposium*, 16-22 Apr. 2016, Auckland, New Zealand (招待).

Tsuruta, H. et al.: First retrieval of hourly atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations, *EGU General Assembly*, 17 Apr. 2015, Vienna, Austria.

近藤裕昭等: Summary of Fukushima special symposium at AMS 2013 annual meeting and efforts at scientific communication with the public in Japan, *AMS Annual meeting*, 3 Feb. 2014, Atlanta, USA.

Nakajima, T.: What we learn from Fukushima nuclear power plant accident? *European Research Course on Atmospheres*, 27-28 Jan. 2014, Grenoble, France (招待).

Tsuruta, H. et al.: Summary of atmospheric measurements of radioactive materials released after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and their transport pathways, *AMS Annual meeting*, 6 Jan. 2013, Austin, USA.

Yamazawa, H., S. Hira: Atmospheric Dispersion of Radioactive Materials Discharged from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *12th Intern. Conf. on Radiation Shield.*, 3 Sept. 2013, 奈良県新公会 (招待).

[図書](計 2 件)

中島映至, 大原利真, 植松光夫, 恩田裕一 (篇), 2014: 原発事故環境汚染-福島第一原発事故の地球科学的側面-, 東大出版会, 東京, 310pp, ISBN 978-4-13-060312-6.

[その他: メディア発表](計 10 件)

中島映至, 2014: がれき粉じん 7 回宮城へ、東大など調査 福島第一原発 59 キロ先、朝日新聞朝刊, 2014.7.31.

大気海洋研グループ: 「原子炉は 2 度壊れたか 足りない事故の全容解明」, 日本経済新聞朝刊, 2013 年 3 月 18 日.

鶴田治雄, 滝川雅之, 2013: 東北放送、「震災の記憶~復興への羅針盤~」, 2013 年 3 月 11 日.

中島映至, 2013: 日経新聞記事「内部被曝、大気データから推定」で、ベータ線のデータ解析

結果について報道。2013 年 3 月 5 日.

鶴田治雄・滝川雅之, 2013: NHK スペシャル、東日本大震災「空白の初期被ばく~消えたヨウ素 131 を追う」, 2013 年 1 月 12 日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中島 映至 (NAKAJIMA, Teruyuki)
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 研究者番号: 60124608

(2) 研究分担者

梶野 瑞王 (KAJINO, Mizuo)
気象庁気象研究所・環境・応用気象研究部・研究官 研究者番号: 00447939

滝川 雅之 (TAKIGAWA, Masayuki)
海洋研究開発機構・北極環境変動総合研究センター 研究者番号: 30360754

山澤 弘美 (YAMAZAWA, Hiromi)
名古屋大学・工学研究科・教授
研究者番号: 70345916

五藤大輔 (GOTO, Daisuke)
国立環境研究所・地域環境研究センター・主任
研究員 研究者番号: 80585068

(3) 連携研究者

速水 洋 (HAYAMI, Hiroshi)
電力中央研究所・環境科学研究所・上席研究員
研究者番号: 70371359

森野 悠 (MORINO, Yu)
国立環境研究所・地域環境研究センター・主任
研究員 研究者番号: 50462495

中村 尚 (NAKAMURA, Hisashi)
東京大学・先端科学技術研究センター・教授
研究者番号: 10251406

竹村 俊彦 (TAKEMURA, Toshihiko)
九州大学・応用力学研究所・教授
研究者番号 90343326

若月 泰孝 (WAKAZUKI, Yasutaka)
茨城大学 理学部 准教授
研究者番号: 70455492

弓本 桂也 (YUMIMOTO, Keiya)
九州大学・応用力学研究所・准教授
研究者番号: 50607786

近藤 裕昭 (KONDO, Hiroaki)
産業技術総合研究所・環境管理研究部門 大気
環境動態評価研究グループ・招聘研究員
研究者番号: 60357051

(4) 研究協力者

鶴田 治雄 (TSURUTA, Haruo)・リモート・センシング技術センター・特任首席研究員
打田 純也 (UCHIDA, Junya)・東京大学大気海洋研究所・研究員

三澤 翔太 (MISAWA, Shota)・東京大学大気海洋研究所(当時)

平尾 茂一 (HIRAO, Shigekazu)・名古屋大学・助教

宮坂 貴文 (MIYASAKA, Takefumi)・東京大学先端科学技術センター・特任助教