

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 5 月 22 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07008

研究課題名(和文)環境データ高度利用による大気中放射能濃度の評価

研究課題名(英文)Evaluation of atmospheric concentration of radionuclides by extensively analyzing environmental data

研究代表者

山澤 弘実(Yamazawa, Hiromi)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：70345916

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：コンプトン散乱成分を利用したNaI(Tl)検出器in situ測定からの土壤中Cs-134, 137濃度深さ分布評価法を考案し検証した。また、常設放射線監視施設線波高分布からI-131、Xe-133を含む複数の放射性核種濃度を評価する方法を開発し、茨城県中央部を対象に原発事故初期の大気中濃度を復元した。その結果、詳細なブルーム内濃度分布と核種組成を把握した。

ガス状(有機、無機)、粒子状I-131, 132, Te-132対象の大気中動態モデルを開発し、大気中濃度実測データから放出時点の物理性状及び移流過程での沈着速度を推定し、放出号機及び移流経路と整合する結果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

常時測定されているデータあるいは容易に測定可能なデータから従来より詳細な情報を得るための学術的な基盤が作られた。これにより、現在でも内部被ばく評価で課題とされている福島原発事故初期の主要核種大気中濃度データを拡充することができた。また、詳細なモデル化により、事故初期のブルーム動態に関してこれまでほとんど知見がなかった物理性状別の動態評価が可能となり、大気輸送モデルを用いた内部被ばく評価に必要な放出時点の物理性状や輸送過程での乾性沈着に関するパラメータが評価された。

研究成果の概要(英文)：A method for estimating the depth profiles of Cs-134 and 137 utilizing the Compton scattering component was developed and validated. A method for estimating the atmospheric concentration of multiple nuclides including I-131 and Xe-133 from gamma-ray pulse height distributions was developed and was applied to the plumes observed at the central part of Ibaraki Prefecture at the early stage of the nuclear accident to obtain their concentrations and nuclide composition.

A model describing the atmospheric behavior of I-131, 132 and Te-132 was developed, in which gaseous-organic, gaseous-inorganic and particulate components are separately described with their interactions. The property of the nuclides on release and the deposition velocity during the atmospheric transport were obtained by applying this model to observed atmospheric concentration data

研究分野：大気環境学

キーワード：原子力事故 環境放射能 モニタリングポスト NaI波高分布 大気中濃度 大気中動態 物理性状

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

福島原発事故では、大気中放出が継続している間のFP核種を含むプルームの動態が把握できず、事故影響が時間・空間的に急速に広がる中で適切なオフサイト対応が困難な状況であった。また、現在でもI-131による内部被ばく線量の再構築には大きな不確かさがある。これらの問題点の主要因は、1)当時得られたデータ、特にプルーム飛来状況を把握できる実測の大気中濃度データの数が圧倒的に少ないことと、2)放出源に関する情報(核種、率、性状)が得られなかったことにある。事故後、線量率測定が目的のNaI(Tl)検出器を主とするモニタリングポスト等の設備(以下、MP)の増設が進められているが、大気中濃度が得られない状況は残されている。

MPで主に用いられているNaI(Tl)検出器の波高分布は、エネルギー分解能は低いものの、核種組成及び濃度の情報を潜在的に含んでいる。この観点から、代表者らは以前に福島原発事故の影響を捉えた静岡県MPデータからFP核種の地表面濃度の推定が可能であることを実証した。また、茨城県MPについても濃度推定の検討を行い、妨害要因のない理想的なMPについてはNaI(Tl)波高分布からXe-133、I-131,132,133、Te-132、Cs-134,136,137の地表面濃度と大気中濃度を分けて推定できる可能性を示すとともに、波高分布に対する大気中核種寄与(以下、CS)と地表面上核種寄与(GS)の弁別および樹木等のMP周辺地物の影響排除が課題であることを明らかにした。

2. 研究の目的

本課題では、1)MPで実時間・オンラインで得られる線波高分布からの希ガス、ヨウ素、セシウム等のFP核種の大気中濃度及び地表面濃度を推定する方法を確立することと、2)福島第一原発事故初期のプルーム動態を多核種および核種の性状の観点から明らかにすることにより、原子力環境防災上の課題に関する学術領域の基盤を構築・強化する。

3. 研究の方法

(1)NaI(Tl)波高分布データからの濃度推定法の開発と検証に関し、a)福島県内の汚染環境下でのNaI(Tl)波高分布データ取得、b)同地点での土壌採取による核種濃度深度分布の取得、c)光子輸送計算による波高分布再現計算を主要手段として、NaI(Tl)波高分布データからの土壌中濃度分布評価法の検討を実施する。また、大気中濃度推定でのCS-GS分離法の検討として、コンプトン散乱部分を利用する方法に加えて、プルーム通過によるGS増分を勘案する方法を検討する。

(2)福島第一原発事故初期(2011年3月)主要プルームを対象として、a)茨城県内MP周辺環境調査及び事故時データからの多核種大気中濃度を上記で開発する方法を用いて、未解析MPを対象に濃度を解析する。この解析は、内部被ばく評価およびモデル検証データとして重要視されているプルーム2(3月15日)等の事故後数日間のプルームを主対象とし、茨城県中央部の濃度未解析MPについて実施する。

(3)本研究で得られる大気中濃度と既存データを総合的に解析し、プルーム中核種組成と性状を含めた動態解析を行う。特に、内部被ばく寄与が大きく、大気中の物理・化学性状が複雑な放射性ヨウ素(I-131、I-132およびその親核種のTe-132)について、有機体(ガス状)、無機態(ガス状および粒子状)に分けた動態評価と放出時の核種比および性状の評価が可能であるか、文献調査による対象核種の性状変化に関する知見及びデータの集約にも続き、数値モデルを構築し大気拡散計算との組み合わせにより検討する。

4. 研究成果

(1)地表面上放射能濃度及び土壌中深度分布の推定方法については、線の全吸収ピーク(直達線)とコンプトン散乱部の計数率の比が、核種の土壌中深度分布に依存することを利用する方法を考案した。この手法検証のための参照データ用として、福島県内測定結果の解析では、採取した土壌試料のGe半導体検出器による線スペクトロメトリによる分析により、地表直下(重量深度1-2 g cm⁻²)にピークを持ち、概ね双曲線正割関数に従うCs-134、137濃度分布を得た。土壌採取と同じ場所でのNaI(Tl)検出器 in-situ 測定で得た波高分布に対して本研究の推定法を適用して濃度及び深度分布を評価した結果、推定された濃度値は20-30%(水平分布の不均一性を考慮するとファクター2程度)で実測と一致すること、深さ方向の濃度減少を表す重量緩衝深度は約35%の不確かさで推定できることが示された(図1)。また、水平一様を仮定する範囲の設定が推定精度に大きな影響を与えることが示された。

CS-GS分離法については、これまでのコンプトン散乱成分の計数率を用いた分離とプルーム通過前後の計数率増加に基づく分離の両者を利用した方法を検

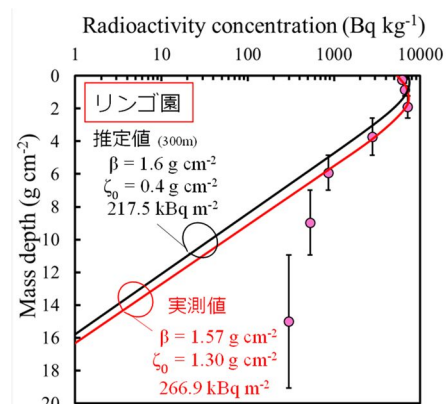


図1 Cs-137 土壌中濃度分布の推定値と実測値の比較例

討し、両者を組み合わせた濃度評価法を開発した。この方法により、周辺に樹木等が存在してこれまで濃度推定ができなかった MP に対しても、Xe-133、I-131,132,133、Te-132、Cs-134,136,137 の濃度を推定できることを確認した。

(2)大気中放射性核種濃度の解析では、上記の方法により、2011年3月15日午前中に茨城県を南下するプルーム(放出率が最大のプルーム)について、濃度推定済みのMP6局に加えて、周辺環境に問題があり濃度評価ができていなかった15局の濃度を新たに評価し、以下の結果を得た。まず、同日5:00に内陸部でI-131濃度が 5.5 kBq m^{-3} であることが示され、これは数時間後の海岸部に見られる従来研究で把握された最高濃度 $2\text{--}3 \text{ kBq m}^{-3}$ と比較して2倍程度である。また、3:00以前のプルーム(前半部)とそれ以降の後半部の核種組成が明らかに異なることが確認され、前半部に比べて後半部では対I-131放射能比ではXe-133及びTe-132が多いという特徴が見出された。(表1及び図2)、一時的に海岸部で評価下限値以下の低濃度の空気塊が海側から短時間入り込んでいること等のプルームの時空間構造が明らかとなった。これらの結果は原子放射線の影響に関する国連科学委員会(UNSCEAR)での福島原発事故内部被ばく評価及び大気拡散モデル評価の基礎資料として要請を受けて提供するとともに、データセットとして公開した。

表1 2011年3月11日午前の茨城県中央部でのプルーム中核種放射能比(括弧内は幾何標準偏差)

plume	$^{133}\text{Xe}/^{131}\text{I}$	$^{132}\text{Te}/^{131}\text{I}$
P2A(1:00 ~ 3:00)	16.3(1.2)	0.63(1.4)
P2B(4:00 ~ 5:50)	41.7(1.2)	0.95(1.2)
P2C(6:00 ~ 9:00)	40.3(1.3)	1.02(1.2)

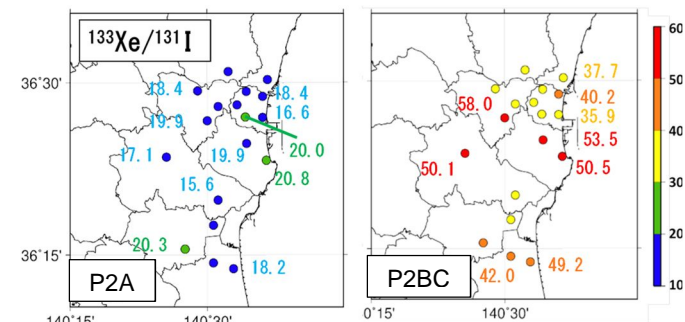


図2 MPデータから推定されたプルーム2前半(左)及び後半(右)のXe-133/I-131放射

(3)プルーム動態解析については、まず、環境中にて親核種の壊変による供給がないI-131について、茨城県東海村で測定された粒子状及びガス状I-131濃度を対象に、文献調査の結果にも続き作成したモデルによる解析を行い、以下の大気中動態の特徴を得た。大気中有機態ヨウ素の消失過程は主に光り化学反応であり、半日程度の時間ではほとんど変化せず、放出時点の濃度を維持すること、無機のガス態と粒子態は4.5時間でほぼ吸脱着平衡に達することが、反応速度等の文献値を用いたモデル計算で明らかとなった。この結果は事故初期プルームのI-131ガス/粒子比が事故サイト近傍を除きほぼ1:1であった測定事実と一貫性がある。また、この結果から、環境中で得られたI-131の粒子:ガス比(ガスは有機及び無機の両方を含む)から、放出時点の3態の放射能比が、有機態0-10%、無機ガス状60-80%、無機粒子状20-30%と推定可能であることが示された。

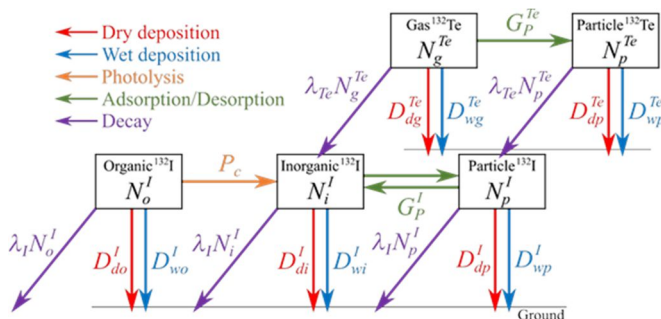


図3 大気中I-131・Te-132性状別動態モデルの概念図。I-131については、この図で上段のTe-132部分を含まない形である。

親核種が存在するI-132については、測定されたI-132粒子割合、Te-132/I-132放射能比、I-132/I-131比の実測データに基づき、上記I-131動態モデルを拡張したモデルを用いて、放出時点でのTe-132/I-132放射能比及び大気輸送中のTe-132沈着速度の推定可能性を検討した。前述の2011年3月15日のプルーム2を対象として茨城県中央部での測定結果を用いた解析では、プルーム前半部は後半部と比べて放射能比及び沈着速度が有意に小さいことが明らかとなった(図4)。この結果は、プルーム前半部が放出が長時間継続した1号炉からの放出で主に海上経路を経て茨城県中央部に達したこと(大気拡散計算を用いた解析結果:図5)、プルーム後半部の放出開始直後の2号炉からの放出で主に陸上を経由した後半部とに矛盾なく対応している。

これらの結果から、測定データが極めて限られている大気中放射性核種の濃度及びその他の性状に関する情報を高度によりすることにより、より詳細な放出源情報および環境動態が議論できることが示された。

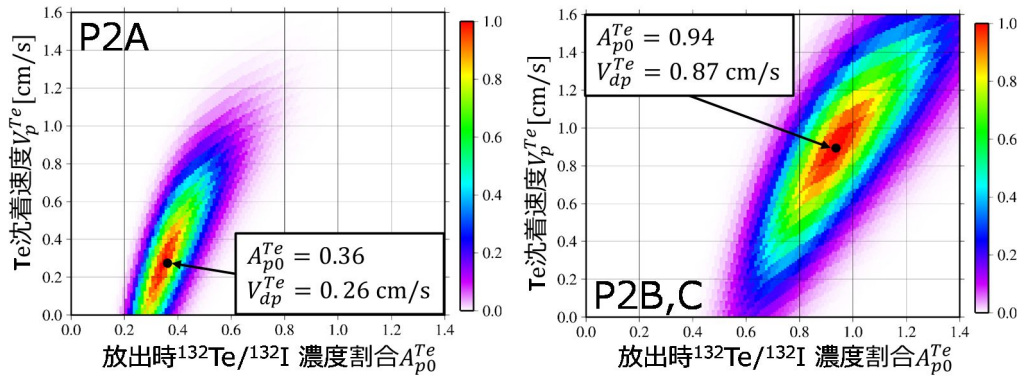


図 4 放出時点での Te-132/I-132 放射能比及び大気輸送中の Te-132 沈着速度の推定結果 (2011 年 3 月 15 日午前 of プルーム 2、左：前半部、右後半部)。カラーコンターは、測定値のばらつきを反映した推定値の相対確率を表し、黒丸が最尤推定値。

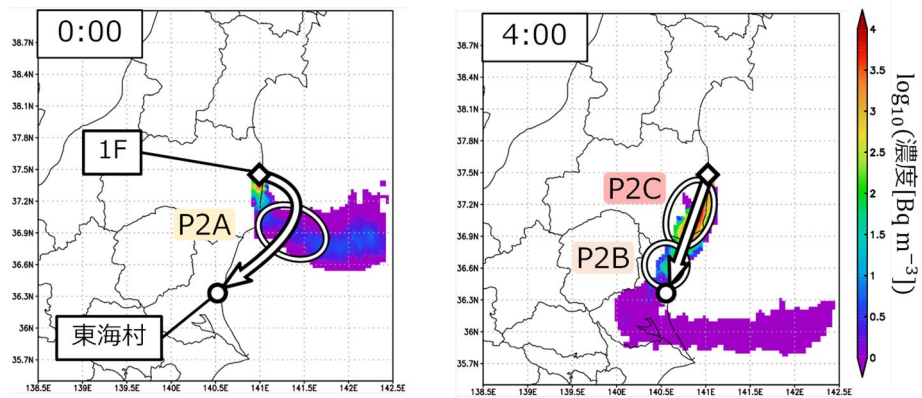


図 5 大気拡散モデルによるプルーム 2 (2011 年 3 月 15 日午前) の Cs-137 大気中濃度の計算結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 山澤弘実	4. 巻 2018.3
2. 論文標題 モニタリングと大気拡散計算による原子力事故影響の把握とその事故対応への反映	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 学術の動向	6. 最初と最後の頁 30-34
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 青山道夫, 山澤弘実, 永井晴康	4. 巻 60
2. 論文標題 福島第一原発事故の大気・海洋環境科学的研究の現状 - 事故の何が分かったか, 事故から何が分かったか	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 日本原子力学会誌	6. 最初と最後の頁 115-120
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Moriizumi Jun, Oku Atomu, Yaguchi Naoki, Kuwahara Yu, Yamazawa Hiromi	4. 巻 57
2. 論文標題 Spatial distributions of atmospheric concentrations of radionuclides on 15 March 2011 discharged by the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant Accident estimated from NaI(Tl) pulse height distributions measured in Ibaraki Prefecture	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 495 ~ 513
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00223131.2019.1699191	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Iwasaki Toshiki, Sekiyama Tsuyoshi Thomas, Nakajima Teruyuki, Watanabe Akira, Suzuki Yasushi, Kondo Hiroaki, Morino Yu, Terada Hiroaki, Nagai Haruyasu, Takigawa Masayuki, Yamazawa Hiromi, Qu?lo Denis, Mathieu Anne	4. 巻 214
2. 論文標題 Intercomparison of numerical atmospheric dispersion prediction models for emergency response to emissions of radionuclides with limited source information in the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Atmospheric Environment	6. 最初と最後の頁 116830 ~ 116830
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.atmosenv.2019.116830	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yamazawa Hiromi, Igarashi Yasuhito	4. 巻 69
2. 論文標題 Recent Understanding on the Release of Radionuclides and Their Behavior in the Atmosphere	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RADIOISOTOPES	6. 最初と最後の頁 19 ~ 30
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3769/radioisotopes.69.19	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 H. Yamazawa, A. Oku, N. Yaguchi, J. Moriizumi and Y. Sato
2. 発表標題 Evaluation of Atmospheric Concentrations of Fukushima Daiichi NPP 1-131 and Other FP Nuclides from Nai Pulse Height Distribution Data
3. 学会等名 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山澤弘実、佐藤陽祐
2. 発表標題 原子力事故を対象とした大気拡散モデルの特性評価
3. 学会等名 日本原子力学会2018年秋の大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 市川 寿、山澤弘実、森泉 純、平尾茂一
2. 発表標題 波高分布を用いた土壤中放射能濃度の深度分布推定法の検討
3. 学会等名 日本原子力学会2018年秋の大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山澤弘実
2. 発表標題 原子力事故データの総合解析・事故時の有害物質大気中動態評価法の高度化
3. 学会等名 第59回大気環境学会年会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山澤弘実
2. 発表標題 原子力防災の科学技術
3. 学会等名 日本学術会議 原子力総合シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤陽祐、山澤弘実、足立振一郎
2. 発表標題 福島第1原子力発電所事故起源の放射性物質を対象とした大気拡散モデルの特性評価
3. 学会等名 日本気象学会2018年度秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiromi Yamazawa, Yuta Terasaka, Kenta Mizutani, Hiroki Sugiura, Shigekazu Hirao
2. 発表標題 Improvements and limitations on understanding of atmospheric processes of Fukushima Daiichi NPS radioactivity
3. 学会等名 EGU General Assembly 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hiromi Yamazawa, Atomu Oku, Kyosuke Saito, Jun Moriizumi
2. 発表標題 Estimation of atmospheric concentration of radionuclides from pulse height distribution measured by monitoring station NaI(Tl) detectors
3. 学会等名 ISORD 8 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山澤弘実
2. 発表標題 モニタリングと大気拡散計算による原子力事故影響の把握とその事故対応 への反映
3. 学会等名 日本学術会議主催学術フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山澤 弘実, 奥 安人夢, 森泉 純
2. 発表標題 NaI(Tl)波高分布からの放射性物質大気中濃度推定法の検討
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山澤弘実、矢口直樹、森泉 純、桑原雄宇
2. 発表標題 2011年3月15日早朝に南下したブルームの大気中濃度分布と核種組成の特徴
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森泉 純、市川 寿、平尾茂一、山澤弘実
2. 発表標題 地上NaI(Tl)波高分布による放射性セシウムの地表面濃度および土壌中濃度深度分布の同時推定法
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 西山暉, 紙田峻輔, 山澤弘実, 森泉純
2. 発表標題 東電福島原発事故での大気中I-132及びTe-132の動態解析
3. 学会等名 日本原子力学会中部支部 第51回研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 紙田峻輔、山澤弘実、森泉 純
2. 発表標題 福島原発事故起因の大気中ヨウ素131の性状別動態解析
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Hiromi Yamazawa et al., (Teruyuki Nakajima et al., ed.)	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Cambridge University Press	5. 総ページ数 356
3. 書名 Environmental Contamination from the Fukushima Nuclear Disaster	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	森泉 純 (Moriizumi Jun) (90303677)	名古屋大学・工学研究科・准教授 (13901)	