

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：17301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24248060

研究課題名(和文) 汚染地域の人の営みの中で推移する放射性核種を追う

研究課題名(英文) Tracking radioactivity transforming in the life of residents in radioactive contamination area

研究代表者

高辻 俊宏 (TAKATSUJI, Toshihiro)

長崎大学・水産・環境科学総合研究科(環境)・教授

研究者番号：70163219

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,300,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原発事故によって当初もたらされた放射能汚染の地理的な分布は核種ごとに違いがあるため、減衰して不明となった放射性ヨウ素濃度等の推測は難しい。原発前の海の調査では、2013年9月時点でも放射能が大量に漏出していることがわかった。放射性降下物は状況に応じて様々なものに濃縮されて現れ、川の上流から下流に流れ下り、遠く離れた地点で、高濃度になったりする。東京湾では河口付近の海底で高濃度の汚染があるが、今後、湾の中央や南部に広がっていくものと推定される。事故由来放射能はコケから全国で検出され、長崎の大気浮遊物から検出され続けており、陸域からの再浮遊と推定される。住民の被ばく管理は当然必要である。

研究成果の概要(英文)：It is difficult to estimate amounts of radioactive nuclides lost for the reason of the short half-lives including radioactive iodine due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident because the geographic distributions of radionuclides are different each other. Radioactivity was found largely leaking from the power plant to sea in the field survey on September 2013. Radioactivity from the fallout was found occasionally concentrated in various materials depending on situations and flowed with river water and made hot spots at the distant places. In Tokyo bay, relatively higher radioactivity was found in the sediments near the mouths of rivers. It is expected spreading to the center and the southern part of the bay from natural radioactivity lead 210 data. The radioactivity was found throughout Japan in moss. The radioactivity continues to be found in aerosol at Nagasaki over 1,000 km distant from the power plant. Exposure management of the residents are continuously necessary.

研究分野：放射線生物物理学

キーワード：環境汚染 放射能汚染

### 1. 研究開始当初の背景

われわれは、福島第一原子力発電所事故直後の3月16日から発電所周辺で土壌、松葉、コケ、雪、地下水などの試料を収集し、長崎大学と広島大学のゲルマニウム半導体検出器により放射能を測定するとともにサーベイメーターや可搬型の測定器による車中サーベイなどにより、空間線量の測定を行った。その結果、初期の段階における汚染分布の概要を明らかにし、住民に対しては、被曝の低減をはかるための対策を提案し、早期に社会に情報を流すことによって、一定の成果を上げることができた。特に、発電所北西に位置する飯館村が、発電所からの距離の割には汚染が大きいことを住民や社会に知らせ、避難を促すことができたことは大きい。このことは、NHK ETV 特集「ネットワークでつくる放射能汚染地図～福島原発事故から2ヶ月～」、NHK 教育テレビ 2011年5月15日、ETV 特集「続報放射能汚染地図」、NHK 教育テレビ 2011年6月5日、ETV 特集「ネットワークでつくる放射能汚染地図3」2011年8月28日などにより、報道された。

同定した放射性物質において、Te-129m、Te-129、Cs-134、Cs-137、Cs-136 はいずれの試料でも、放射能の比率がほぼ等しく、類似の挙動で拡散したと考えられるのに対し、I-131、Te-132、I-132、Ba-140、Tc-99m は比率が異なり、別の挙動で拡散したと考えられた。初期調査の後もホットエリアの土壌サンプル測定、住民のホールボディカウンタによる体内放射能測定、海中生物の汚染測定などについて、継続的に調査を続けていた。また、民家の除染試験を行い、除染の効果を調べた。海中の調査では、アワビに高濃度のAg-110mを検出し、著しい生物濃縮が起こることを見出した。

### 2. 研究の目的

福島第一原子力発電所周辺の農地、山林、海洋、居住地において、発電所事故に伴い放射性物質が拡散し、甚大な被害を及ぼしつつある。この状況を明らかにすることによって、被害を最小限にとどめることが本研究の目的である。そのために、人の営みの中で推移する放射性物質を追い、明らかにする。現地の人々と対策を考え、実行する。また、人手が入ることによって、自然と人の関わりの中でどのように放射性物質が推移したかを調べ、事故の実態を見過ごすことなく明らかにし、被災地の今後の復興を目指し状況をよりよいものにしていくことを目的とする。

### 3. 研究の方法

完全には逃れることのできない放射能汚染において、防護対策を行いながら暮らす人の

営みの中で、人体、農林漁業の生産物、動物、土壌その他の環境へ放射性物質がどのように推移するかを追跡し、実態を明らかにする。そのため、海、山、田畑の放射能汚染の推移、線量率分布の時間的変化・植物への放射能の移行・人体のホールボディカウンタ測定・地元で取れた食物、住民の食物の放射能濃度の調査などを行う。以上のため、本助成事業で得た経費により、サンプルチェンジャが備わった、ゲルマニウム半導体検出器による放射能測定システムを購入し、二本松市放射線被ばく測定センターに設置した。

### 4. 研究成果

#### (1) 汚染地域の調査でわかったこと

地上に降り注いだ放射性核種の比率は地域によって異なることがわかった。図1に土壌中のセシウム137の濃度(面積あたり)、図2にヨウ素131の濃度とセシウム137の濃度の比を値によって色分けし、地図上にプロットしたものを示す。比は北西方面では小さく、南東方面では大きい。このように、短半減期であるために知ることのできなかつたヨウ素131の汚染度は、他の核種の汚染度から類推



図1. 土壌中のセシウム137の濃度の分布。濃度の値によって色分けしている。「定食喫茶春風前の道」は発電所のすぐ前であり、そこから北西方向に濃度が高い地域が広がっていることがわかる。



図2. ヨウ素131の濃度とセシウム137の濃度の比。いずれの試料の値も2011年2月15日に半減期補正した。

することは困難であることがわかった。

フォールアウトによってもたらされた放射性物質は土壌に強く吸着され、表面から5 cmの範囲内に局在することが多いが、ときに農産物などに不均一な汚染を生じさせることがある。米一粒のみ強い放射能汚染が見られるなど、通常の放射能測定では正確な測定ができない状況を作るので、放射能測定による内部被ばくの管理には限界があることがわかった。森林においては樹木の根元付近に高濃度の放射能汚染が見られ、避難指示区域以外でも10  $\mu\text{Sv/h}$  を越えていることがある。汚染された薪を暖房に用いると、室内の空気が汚染し、体内に取り込まれたことがホールボディカウンタで確認できた。放射線被ばくの要因には予測の困難な事が多いので、少なくするためには、丁寧な測定を継続することが必要である。

## (2) 阿武隈川流域の放射能調査

2011年11月～12月に阿武隈川流域で採取した試料を測定した結果、上流から放射能が流れ下り、河口にまで到達していることがはっきりした(図3)。標高の高い川の上流より

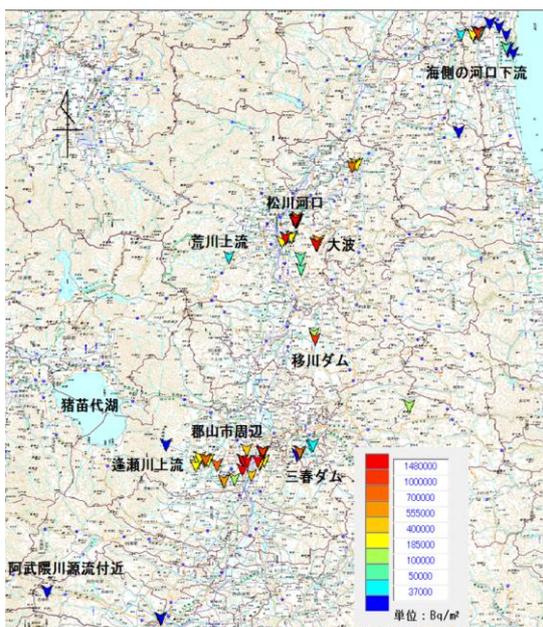


図3. 2011年11月～2012年12月に、阿武隈川河岸で採取した土壌の単位面積当たりの放射能(Cs-134とCs-137の合計。採取日の放射能に半減期補正した。)

も標高の低い川の下流(町の平野部)の方が、明らかに放射能が高い傾向にある。放射能濃度はフォールアウトによる放射能濃度とは一致せず、水流によって流され、下流に濃縮されたことが明らかである。狭い範囲を個別に検討すると、池、ダムなどでは高濃度である一方、水流のある川底などの濃度は低いことがわかった。一方、水流との関係の薄い田畑

や河川敷などでは、初期のフォールアウトの影響に従っているような濃度が得られた。川岸では、左岸と右岸で大きな違いのあるところがある。これは、内陸の汚染度の違いを反映しているようである。

## (3) 福島第一原子力発電所前の海洋調査

相馬双葉漁協の協力を得て、2013年9月の調査では、海底の調査に水中プローブによるリアルタイム海底ガンマ線スペクトル計測を行った。底質を実験室に持ち帰り、ゲルマニウム半導体検出器により放射能測定を行った。海底堆積物からは、800～3600 Bq/kgの放射性セシウムが検出され、海水からも0.27～3.7 Bq/Lが検出された。底質から放射能が検出されても海水からこの程度の濃度が検出されることは希で、水溶性のあるいは極微のコロイドに吸着した放射性セシウムが海水に含まれているものと考えられる。このようなものにシルトフェンス(シルトの拡散を防ぐための港湾出入り口に設けられた水中カーテン)は有効でなく、汚染が港湾内でブロックされているという事実はなかった。港湾内の海水は毎日150万リットル程度が入れ替わっていることから、仮にその濃度が測定値の3.7 Bq/Lと同じであり、港湾内の半分の海水が入れ替わっているとすれば(東京電力発表による)、毎日5.5ギガベクレルの放射性セシウムが湾外に流出していることになる。海底堆積物および海水からは、放射性ストロンチウム、プルトニウム、トリチウムも検出された。このように、当該発電所からは、大量の放射性物質が流出拡散し続けており、放射線被ばくによるリスクが地球レベルで広く薄く拡散しつつあることがわかった。

## (4) 東京湾における海洋調査

2015年9月に実施した東京湾の調査では、



図4. 東京湾底質の放射性セシウム濃度

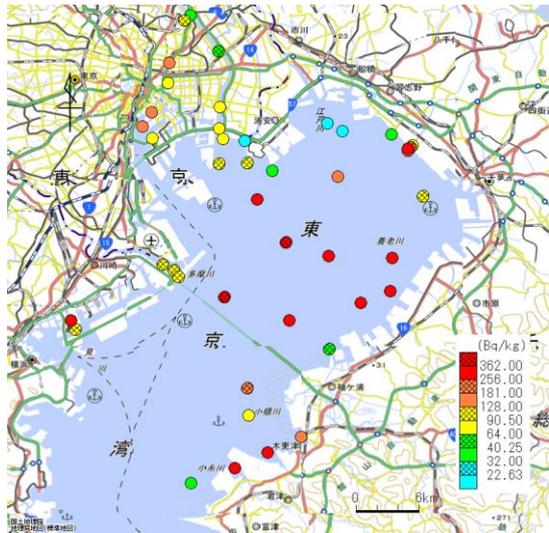


図 5. 東京湾底質の Pb-210 濃度

花見川、荒川、隅田川、多摩川、鶴見川の河口付近の底質の放射性セシウム濃度が高く、木更津周辺や湾央の濃度は低かった (図 4)。しかしながら、大気中ラドンを由来とする放射性物質 Pb-210 の濃度は木更津付近や湾央で高い (図 5)。Pb-210 は、天然の放射性物質であるが、上空から東京湾に到った経路は事故由来の放射性セシウムと同様であると考えられる。しかし、半減期が 22.3 年であるから、事故よりかなり前に東京湾に流入したものが含まれると考えられる。したがって、その分布は今後の放射性セシウムの動きに先行しているものと考えられる。放射性セシウムは、Pb-210 同様、今後、北部河川の河口付近から湾央へ移動し、湾南部でも濃度が高まってくるものと推測される。

(5) 長崎に飛来した福島第一原子力発電所の放射性物質

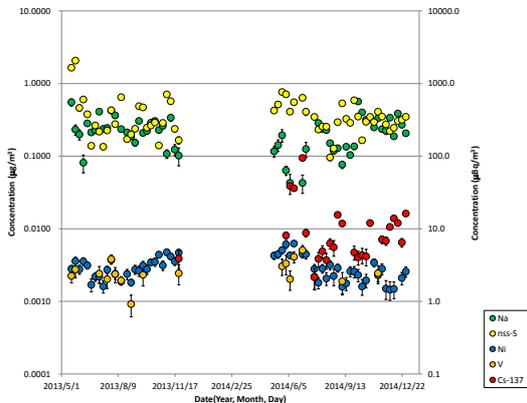


図 6. エアロゾルから検出された放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ ) とナトリウム (Na), イオウ (海塩由来を除く) (nss-S), ニッケル (Ni), バナジウム (V) の濃度の時間的推移。  $^{137}\text{Cs}$  が頻繁に現れている。

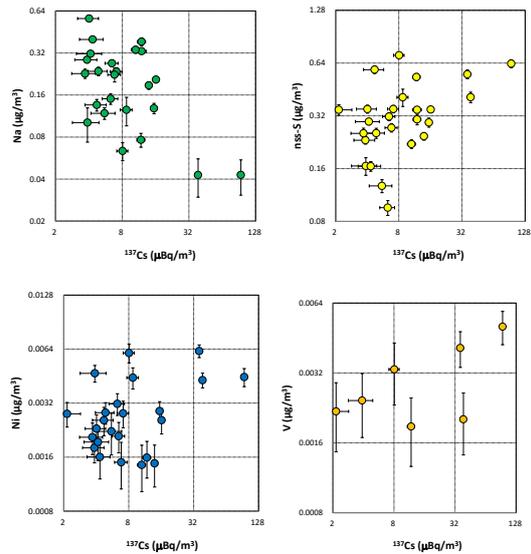


図 7. エアロゾルから検出された  $^{137}\text{Cs}$  と Na, nss-S, Ni, V の相関。  $^{137}\text{Cs}$  と Na は逆相関、他は相関している。

事故発生直後の 2011 年 4 月 6 日～4 月 13 日に長崎でもエアロゾル中から比較的高い濃度の放射能が検出された。これは、流跡線解析によって、当該発電所付近の大気が直接長崎に向かったためであることが明らかになった (主な発表論文等 [雑誌論文] ⑨)。その後も 2015 年に至るまで時おり当該発電所事故由来と推測される放射性セシウムが飛来している (図 6 の赤い点)。しかしこれらに関しては当該発電所付近の大気が直接飛来していることは少ないことが流跡線解析から明らかになった。多くは朝鮮半島などの陸域を経由しているの、いったんこれらの陸域に降下堆積した放射性セシウムが再浮遊し飛来したものと考えられる (主な発表論文等 [雑誌論文] ②)。放射性セシウムが広く国内の陸域全般に分布していることは蘚苔類の汚染状況から明らかであり、朝鮮半島も同様であると推測される。エアロゾル中に含まれる元素の濃度からもそのことが考えられる。粒子線励起 X 線分析 (PIXE) によりエアロゾルの元素分析を行ったところ、放射性セシウムとナトリウムは逆相関を示し、放射性セシウムとイオウ (海塩由来を除く)、ニッケル、バナジウムは相関を示すことがわかった。ナトリウムは海塩由来であるから、これが少ないほど大気は陸域を長く経過していきと考えられ、イオウ、ニッケル、バナジウムは人為的な大気放出物に多いことから、これが多いと陸域を長く経過してきたと考えられる (主な発表論文等 [雑誌論文] ①)。

(6) 全国の蘚苔類に含まれる放射性セシウム  
蘚苔類は、至る所に生息し、放射性セシウ

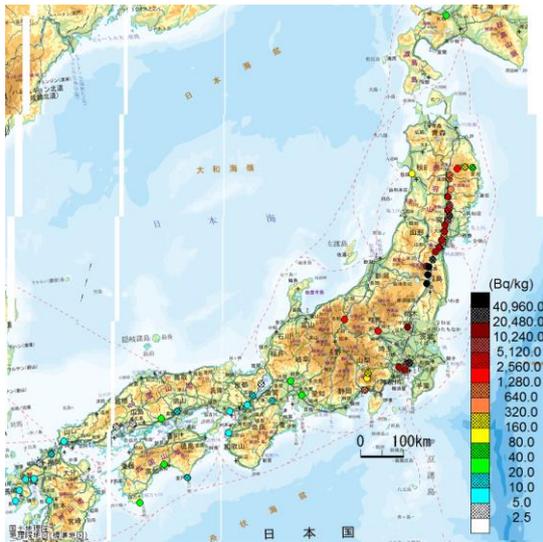


図 8. 全国の蘇苔類に含まれる放射性セシウム

ムを集め、世代を経ても一箇所に保持する性質がある。図 8 に示すように、放射能測定により、濃度には大きな違いはあるものの、日本全国において、放射性セシウムが広く分布していることがわかった。遠隔地で栽培された茶などの農作物からも同程度の汚染が検出されることから、蘇苔類の汚染から、農作物の汚染の程度を粗く推測することができる。福島第一原子力発電所の事故では、空中に放出された放射性セシウムは 1%未満であると見積もられており、その大部分が東方海上に向かったことから、大部分の放射性セシウムが空中に飛散するような大事故が今後発生した場合には、日本全国の農作物が 100 Bq/kg を超えるような甚大な放射能汚染に見舞われる可能性があることがわかった。

(7) 最尤法を用いたホールボディカウンタシステムの開発

ホールボディカウンタに広く用いられているヨウ化ナトリウム検出器は、ゲルマニウム

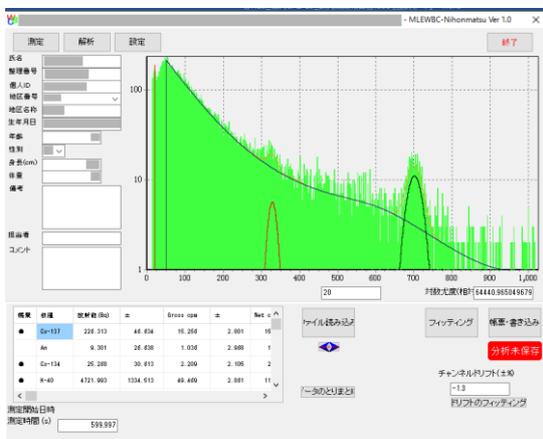


図 9. 独自に開発したホールボディカウンタ測定解析システムによる解析結果。セシウム 137 とカリウム 40 が検出されている。

半導体検出器と比べて安価であり、感度が比較的良好、常温で使用できるなどの長所があるが、エネルギー分解能が悪く、従来利用されている解析法では、測定されたガンマ線エネルギースペクトルにおいて、定量に用いられる光電ピーク部分と電子のコンプトン散乱などによる連続スペクトル部分の弁別に困難があり、このことが測定の誤差や不安定性の原因となっている。二本松放射線被ばく測定センターのホールボディカウンタの改修に伴い、最尤法に基づいて光電ピーク部分と連続スペクトル部分の弁別を行う測定解析ソフトウェアを独自に開発し、測定精度の向上を図ることができた (図 9)。校正用のファントムは、ウエットスーツを改造した人型の袋にゲルマニウム半導体検出器であらかじめ測定した汚染米を詰めて作成した。放医研 GOMAB ファントムを測定したところ、セシウム 137 測定結果は校正値の 5%未満で一致した。最尤法によるスペクトル解析は、ゲルマニウム半導体検出器を用いた高分解能ガンマ線スペクトロメトリにも応用できる。特に、セシウム 134 などの、複数のエネルギーのガンマ線を発する放射性核種の測定精度を格段に高めることができる。このことは 2014 年の 20th IMEKO TC-4 で発表した (主な発表論文等 [学会発表] ①)。しかし、光電ピークの計数を正確に見積もるためには、測定ごとのピーク的位置や半値幅の微細な変動に追従する必要がありそうなことなど、実用化にはまだ課題が残っているため、現在検討中である。

5. 主な発表論文等

- [雑誌論文] (計 6 5 件)
- ① 高辻俊宏, 袁 軍, 世良耕一郎, 長崎に飛来する大気中浮遊物質に含まれる原発事故由来放射性物質と天然放射性物質、安定元素, NMCC 共同利用研究成果報文集, 査読無, 21(2014), pp.146-152; 2016 <https://www.jrias.or.jp/report/pdf/21J1.2.13.pdf>
- ② 袁軍, 世良 耕一郎, 高辻 俊宏, 大規模原子力事故時の遠隔地における放射線被ばくへの対処 —長崎に飛来した福島第一原子力発電所の放射性物質からの推測—, 日本衛生学雑誌, 査読有, 70 巻, 2015, 149-160, [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jjh/70/2/70\\_149/\\_article/-char/ja/](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jjh/70/2/70_149/_article/-char/ja/),
- ③ S. Endo, T. Kajimoto, K. Tanaka, N. T.Thanh, T. Imanaka, Mapping of the cumulative  $\beta$ -ray dose on the ground surface surrounding the Fukushima area, Journal of Radiation Research, 査読有,

56(Suppl 1), 2015, i48-i55,  
DOI: 10.1016/j.envpol.2015.01.018

- ④ Kimura S, Takatsuji T, Uchiyama K, Komasa Y, Kitamura A, Sato H, Buzinny H, Current Situation and Challenges at Fukushima : Hands-on Measurements of Radiation, Contamination after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident., Proceedings of 20th IMEKO TC4 International Symposium and 18th International Workshop on ADC Modelling and Testing Research on Electric and Electronic Measurement for the Economic Upturn, 査読有, 2014, 291-294  
<http://www.imeko.org/publications/tc4-2014/IMEKO-TC4-2014-800.pdf>
- ⑤ S. Endo, K. Tanaka, T. Kajimoto, N. T. Thanh, J. M. Otaki, T. Imanaka, Estimation of  $\beta$ -ray dose in air and soil from Fukushima Daiichi Power Plant, Journal of Radiation Research, 査読有, 55, 2014, 476-483,  
DOI: 10.1093/jrr/rrt209
- ⑥ Yukako Komasa, Akiko Kitamura Hasebe, Masao Tsuboi, Masamine Jimba, Shinzo Kimura, Prioritizing Mental Health Issues of Community Residents Affected by Fukushima Daiichi nuclear powerplant accident, Clinical Neuropsychiatry, 査読有, 10,6, 2013, 241-244  
<http://www.clinicalneuropsychiatry.org/pdf/komasa.pdf>
- ⑦ Imanaka T, Endo S, Sugai M, Ozawa S, Shizuma K, Yamamoto M, Early radiation survey of the Iitate Village heavily contaminated by the Fukushima Daiichi accident, conducted on March 28th and 29th, 2011, Health Physics, 査読有, 102, 2012, 680-686,  
DOI: 10.1097/HP.0b013e31824cfe18
- ⑧ Endo S, Kimura S, Takatsuji T, Nanasawa K, Imanaka T, K. Shizuma K, Measurement of soil contamination by radionuclides due to Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and associated cumulative external dose estimation, Journal of Environmental Radioactivity, 査読有, 111, 2012, 18-27,  
DOI: 10.1016/j.jenvrad.2011.11.006.
- ⑨ Yuan J, Zeng Z, Takatsuji T, Radioactivity of the aerosol collected in Nagasaki City due to the Fukushima

Daiichi Nuclear PowerPlant Accident, Proceedings of the 17th Hiroshima International Symposium - Lessons fromunhappy events in the history of nuclear power development - January 25-26, 2012 Kojin-Kaikan, Hiroshima University, 査読無, IPSHU ERRS. 28, 2012, 79-86  
<http://ir.lib.hiroshima-u.ac.jp/00033629>

[学会発表] (計 4 7 件)

- ① Takatsuji T, Kimura S, Maximum likelihood method improves accuracy of gamma ray spectrometry analysis, 20th IMEKO TC-4 International Symposium, Special Session on Measurements for Sustainable Development and Health, 2014年09月15日~2014年09月17日, University of Sannio, Benevento, Italy

[図書] (計 2 件)

- ① 木村真三, 講談社, 「放射能汚染地図」の今, 2014, 244
- ② 今中哲二, 明石書店, 放射能汚染と災厄 - 終わりになきチェルノブイリ原発事故の記録, 2013, 475

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高辻 俊宏 (TAKATSUJI, Toshihiro)  
長崎大学・水産・環境科学総合研究科 (環境)・教授  
研究者番号 : 7 0 1 6 3 2 1 9

### (2) 研究分担者

木村 真三 (KIMURA, Shinzo)  
獨協医科大学・医学部・准教授  
研究者番号 : 5 0 3 2 1 8 4 9

今中 哲二 (IMANAKA, Tetsuji)  
京都大学・原子炉実験所・助教  
研究者番号 : 9 0 1 0 9 0 8 3

遠藤 暁 (ENDO, Satoru)  
広島大学・工学 (系) 研究科 (研究院)・教授  
研究者番号 : 9 0 2 4 3 6 0 9

佐藤 斉 (SATO, Hitoshi)  
茨城県立医療大学・保健医療学部・教授  
研究者番号 : 9 0 2 8 5 0 5 7