

令和 5 年 5 月 24 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K12306

研究課題名（和文）避難指示区域内の家屋内における放射性セシウムの経時的変化

研究課題名（英文）Long-term variations of radiocesium in houses inside the Fukushima evacuation zones

研究代表者

小豆川 勝見（Shozugawa, Katsumi）

東京大学・大学院総合文化研究科・助教

研究者番号：00507923

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：帰還困難区域内の家屋内の汚染状況を時系列で明らかにすることを目的として、家屋内に設置した簡易トラップに含まれる放射性セシウムを定期的に測定し、時間軸に対する家屋内の混入の程度を定量評価しました。その結果、家屋内の汚染に最も寄与する因子は、家屋周辺の汚染度よりもむしろ、家屋そのものの気密性や出入りの頻度に依存することが示されました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって家屋内の汚染の要因は家の気密性や窓やドアを開ける頻度に依存することが強く推測されました。気密性が高く、かつ出入りがほとんどない家屋の場合には、家屋周りの汚染度が高い場合でも家屋に放射性セシウムが混入してくる割合は低いこととなります。一方で破損等で気密性が落ちてしまった家屋の場合、あるいは頻繁に出入りがあった場合には、家屋外の沈着量と差が生じない可能性もあります。この観測結果は中長期的な避難指示解除後の被ばく量を低減させるうえでも重要な基礎的知見になると考えられます。

研究成果の概要（英文）：In order to clarify the state of contamination in houses in Fukushima evacuation zone over time, radioactive cesium trapped on clothes in a house was periodically measured and the degree of contamination in the house was quantitatively evaluated against the time scale. It was found that the factors most affecting the contamination in a house depended on the airtightness of the house itself and the frequency of entry and exit, not on the degree of contamination outside the house.

研究分野：環境分析化学

キーワード：放射性セシウム 家屋内汚染 帰還困難区域

1. 研究開始当初の背景

2011年の福島第一原子力発電所事故以来、精力的な除染活動によって避難指示区域の解除が順次行われています。しかし、自宅がある地域の避難指示が解除されても、帰還に戸惑いがある方が少なからずいらっしゃることを、各機関による調査・研究に限らず、私自身も現地調査を続ける中で実感してきました。その戸惑いの理由の一つに、家屋内汚染の情報が不足しているのではないかと我々は考えています。除染によって家屋外の空間線量率は低減しますが、一方で家の中の汚染は定量的に評価する研究例が圧倒的に少ないことが実情で、「家では安心できるのか」「どのような対策が求められているのか」といった不安に対する基礎的な情報が避難指示解除前には十分に明示されていなければなりません。

家屋内の汚染は、放射性セシウムがダストとして家屋外から混入することが原因であることは既によく知られている事実ですが、帰還後の居住を見据えた、時系列の情報が欠けています。私たちの研究では研究期間内に避難指示が緩和または解除される予定のエリアを中心に、様々な家屋に入り込む放射性物質を時系列で解析することが必要であると考えていました。

2. 研究の目的

本研究では家屋内の汚染について、既に汚染されてしまった物品の汚染の程度、および、帰還後に時間の経過とともに家屋内に混入する放射性セシウムを定量的に解析します。特に後者については1日単位ではなく中長期的な放射性セシウムのフローを解析する必要があると考えました。

一般的に放射性物質の降下物調査では水盤を用いますが、当時の調査地域にはインフラが未開通である地域も多く、電気や水道が十分に使えない環境下です。また個人宅への訪問や自治体からの許可の都合上、連続した調査は困難で月単位での調査が物理的に限界になります。

そこで本研究の独自性として、本研究の独自性として、降下物の調査には水盤を用いず、一般的なサイズの清浄な布を部屋に複数枚設置し、一定期間後に一枚ずつ回収する方法を採ることとしました。家屋内の部屋ごとに清浄な布を複数枚設置し、それらを一定期間後に回収し、差分を取り続けることで汚染の経時的変化について定量的評価を行うことが可能になります。

以上の観察・測定によって、本研究は家屋単位で、かつ、時間列を追った放射性物質の混入プロセスを解明することが期待される。家屋内のどこに、どれだけの汚染がどれくらいの時間で発生するのか、を定



Fig. 1 帰還困難区域内の家屋内におけるスミアテスト。家屋の気密性と家屋内への放射性セシウム濃度の間には強い正の相関があることは明らかであったが、「どのタイミングで放射性セシウムが吹き込むか」といった時系列の情報が欠けていた。[公益立ち入り許可、住民の同意有]



Fig. 2 帰還困難区域内の家屋内における放射性セシウムによる汚染沈着量調査の様子。清浄な布を用いて、一定時間於きに布を回収し、その差分を求めることで経時的な汚染度を評価した。

量的に明らかになることが期待できる。汚染を定量的に明らかにすることによって、年単位の中長期的な汚染管理を可能としました。既存の個人被ばく線量計では家屋内の時系列の汚染は明らかにすることができないことも、本研究の特長です。

3．研究の方法

物品・布の汚染度測定

家屋内の物品・布はともに GM 管(日立 Aloka TGS-146B)による表面サーベイを実施したのち、オートラジオグラフィによって、放射性物質の存在形態を確認します。露光時間は表面汚染度によって 1 日から 1 週間と設定しました。物品はジオメトリが決定できないため、家財に付着した放射性セシウムの定量の前処理には、1M HNO₃ による酸抽出(4 時間, 80 度)を行い、抽出溶液 2L をマリネリ容器に封入後、HPGe 半導体検出器(Canberra GC2518)によるガンマ線測定によって、放射性セシウム(¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs)を定量します。汚染の大元は土壌粒子であることから、調査家屋の周辺土壌(表層 2.5 cm 以内)からの棧抽出による放射性セシウムの回収率は 41.7%(家屋 A), 28.4%(家屋 B)であり、これを直接測定が可能な食材以外の測定結果に反映させました。放射能は個体あたりの放射能(Bq/個)、および、単位重量あたりの放射能(Bq/kg)として示しました。また、布の放射能は布の面積および設置時間から、1 日あたり、かつ 1cm² 当たりの放射能として算出しました。

4．研究成果

4.1 家屋内の物品の汚染実態

帰還困難区域内の家屋(A,大熊町)および、避難指示解除準備区域内の家屋(B, 浪江町)について、以下の 2 項目を経て測定値を示しました。

[放射性物質の存在形態]家屋 A および家屋 B とともに、換気扇(トイレ・台所)に取り付けた不織布フィルターをオートラジオグラフィで露光したところ、両試料から粒子状の放射性物質を確認しました。東日本大震災(2011 年)の発生直後から、A,B 両家屋ともに定期的な立ち入り以外には施錠され、窓やドアを開放する機会はなかったと確認しています。そのため、放射性セシウムを含んだ家屋周辺の表層土壌が風で巻き上がり、換気扇などを通じて家屋内に侵入したものと推定しました。家屋 A 内で震災前から壁に掛けていたフリース地のコートの右袖の一部をオートラジオグラフィに供したところ、フィルターと同様の形態である粒子状の放射性物質を確認しています(Figure 参照)。

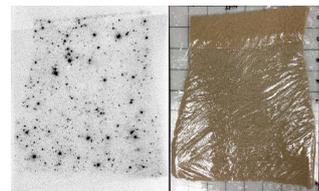


Fig. 3 浪江町の帰還困難区域内の家屋内に掛けてあったフリース地のコートの袖部分(右)およびオートラジオグラフィによる放射性物質の分布(左)

[家財の汚染] 家屋 A より 3 試料(コート、座布団、流木オブジェ)、家屋 B より 12 試料(エプロン、白布巾、古新聞、麦わら帽子、鍋敷き、白タオル、毛糸のコースター、キッチンペーパー、盆ざる、月桂樹、岩茸、砂糖)について、酸抽出を行い、含まれる放射性セシウム濃度を定量したところ、Table の結果を得ました。全般に家屋 A の家財は家屋 B よりも汚染度が高く、周辺土壌の影響を強く受けていると考えられます。白布巾や座布団など粒子を捉えやすい材質・形状のものは高濃度になる傾向も確認できました。また、密封容器に保管してあった食材(調味料としての月桂樹、砂糖、岩茸)でも、放射性セシウムの混入があることも明らかとなりました。本研究によって、スクリーニングでは持ち出しには問題が無かったとしても、単位重量あたりの放射能が指定廃棄物や食品の基準値に該当する場合があるこ

とが示された点は重要です。家財は持ち出し後に継続して使用する可能性があることや、保管食材にも放射性セシウムが含まれる可能性があることから、注意喚起が必要になります。

表 家屋 A(帰還困難区域)および家屋 B(避難指示が解除された区域)内の物品における放射セシウム濃度

Location	Samples	Counts by GM	Radioactivity per sample		Radioactivity per weight	
		meter (cpm)	(Bq/sample)		(Bq/kg)	
		(Background: 60 cpm)	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs
House A	Fleece coat	100	658 ± 8.0	2660 ± 22	1230 ± 15	4960 ± 43
	Cushion	140	58.2 ± 0.96	225 ± 2.6	1400 ± 21	5880 ± 55
	Wooden ornament	180	207 ± 1.7	825 ± 4.8	4440 ± 36	17600 ± 106
House B	Apron	60	67.3 ± 1.1	284 ± 3.5	295 ± 4.9	1250 ± 15
	Dishcloth	100	218 ± 2.1	887 ± 6.0	5040 ± 46	20600 ± 133
	Newspaper	60	56.3 ± 0.70	231 ± 2.5	518 ± 7.8	2120 ± 24
	Straw Hat	100	118 ± 1.1	475 ± 3.5	1570 ± 16	6300 ± 49
	Pot stand	60	26.1 ± 0.35	102 ± 1.4	338 ± 6.3	1320 ± 18
	Towel	60	30.3 ± 0.70	119 ± 1.8	511 ± 11	2020 ± 31
	Wool coaster	60	9.16 ± 0.35	37.0 ± 0.70	785 ± 24	3210 ± 70
	Kitchen paper	60	35.2 ± 0.70	145 ± 2.1	567 ± 11	2320 ± 32
	Bamboo colander	60	21.5 ± 0.70	86.6 ± 1.4	588 ± 15	2370 ± 42
	Laurel	60	-*	-*	140 ± 12	545 ± 30
	Mushroom	60	0.140 ± 0.020	2.64 ± 0.060	3.50 ± 0.50	65.9 ± 1.5
	Sugar	60	0.800 ± 0.030	3.30 ± 0.11	2.50 ± 0.10	10.4 ± 0.30

*試料 1 枚当たりの重量のばらつきが大きいため、算出に不適と判断した

4.2 時系列に対する家屋内の汚染

福島県双葉郡大熊町、同浪江町の帰還困難区域内および避難指示が解除された区域の 5 地点(5 家屋)の中の代表的な 2 家屋について、時間軸に対する家屋内の汚染状況を Fig.3 に示しました。

大熊町の家屋において、夏から春にかけての 207 日間に亘って布を設置した結果、家屋 1 階中央のリビングには 1 cm² かつ 1 日あたり 1.1 × 10⁻⁴ Bq から 4.7 × 10⁻⁶ Bq の放射性セシウム(¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs の合算)が室内に新たに沈着する事が分かりました。これは同時期の屋外の沈着量と比較すると 10¹-10³ の差があり、外部からのダストの混入が極めて低い特徴が明らかになりました。この家屋は、築浅(10 年以内)かつ、気密性の高い家である特徴があることがこの原因と考えられます。また検出された ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 放射能比から、そのほぼ全量が福島第一原子力発電所由来であることも確認しました。

一方で浪江町の避難指示が解除された区域内の家屋では、7.0 × 10⁻⁵ - 1.0 × 10⁻⁵ Bq/cm²/day の沈着量を確認しています。同時期の屋外の沈着量と比較してその差は 10⁰-10¹ 程度であり、その差は大熊町の帰還困難区域内と比較して小さい値を観測しました。この家屋の場合、避難指示が解除されたことで、片付け等のために何度となく窓やドアを開放する機会があったことがこの差の原因であると想定しています。

そのため、本研究では、家屋の汚染に影響するのは、家屋外の汚染のレベルよりも、家屋

の気密性や窓やドアなどの開口部の人為的な開け閉めの頻度や時間が家屋内の汚染の重要な因子であること示唆しています。

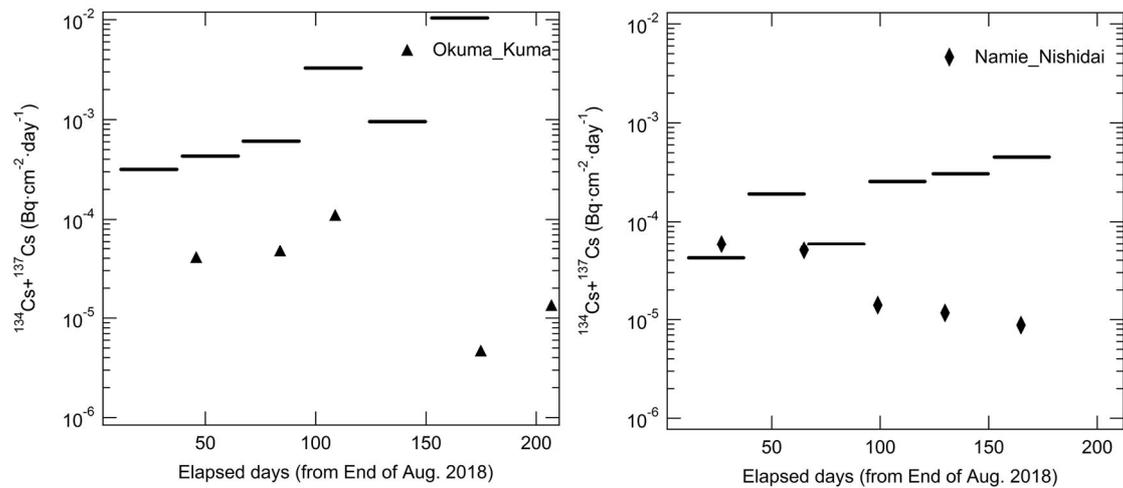


Fig.4 家屋内における $1\text{cm}^2 \cdot 1$ 日あたりの放射性セシウム($^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$)沈着量($\text{Bq}/\text{cm}^2/\text{day}$)。左 大熊町熊(帰還困難区域・当時)、右 浪江町西台(避難指示解除)。三角、ひし形が家屋内の汚染。比較として、棒線が家屋外における沈着度を示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Katsumi Shozugawa, Mayumi Hori, Thomas. E. Johnson, Naoto Takahata, Yuji Sano, Norbert Kavasi, Sarata K. Sahoo & Motoyuki Matsuo	4. 巻 10
2. 論文標題 Landside tritium leakage over through years from Fukushima Dai-ichi nuclear plant and relationship between countermeasures and contaminated water	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific reports	6. 最初と最後の頁 19925
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-76964-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Rebecca Querfeld, Mayumi Hori, Anica Weller, Detlev Degering, Katsumi Shozugawa, and Georg Steinhauser	4. 巻 54(18)
2. 論文標題 Radioactive Games? Radiation Hazard Assessment of the Tokyo Olympic Summer Games	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science & Technology	6. 最初と最後の頁 11414-11423
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.est.0c02754	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 該当する

1. 著者名 Macsik Zsuzsanna, Hudston Lisa A., Wurth Kimberly N., Meininger Daniel, Jesinghaus Christian, Tenner Travis J., Naes Benjamin E., Boswell Mitzi, Shozugawa Katsumi, LaMont Stephen P., Steiner Robert E., Steinhauser Georg	4. 巻 331
2. 論文標題 Identification, isolation, and characterization of a novel type of Fukushima-derived microparticle	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 5333 ~ 5341
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10967-022-08561-1	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3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 A. Diacre, P. Fichet, P. Sardini, J. Donnard, A.L.Faure, O. Marie, K. Shozugawa, M. Susset, M. Hori, T. Tsutomu, F. Pointurier, O. Evrard
2. 発表標題 Localization of actinide-bearing particles in sediment samples from the Fukushima restriction zone
3. 学会等名 The EGU General Assembly 2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A. DIACRE, P. FICHET, P. SARDINI, J. DONNARD, A-L. FAURE, O. MARIE, K. SHOZUGAWA, M. SUSSET, M. HORI, T. TAKIZAWA, F. POINTURIER, O. EVRARD
2. 発表標題 Localization of uranium-bearing particles in soil samples from the Fukushima restriction zone
3. 学会等名 Fukushima and the Ocean (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 R. Takakura, K. Shozugawa, M. Hori, M. Matsuo
2. 発表標題 Seasonal deposition of radiocesium in wooden houses from summer to winter seven years after the Fukushima nuclear accident
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔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	堀 まゆみ (Hori Mayumi) (50782869)	東京大学・教養学部・特任助教 (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------