特集「東日本大震災から1年」

# 福島第一原子力発電所の事故により 放出された放射性物質の大気中での動態

鶴 田 治 雄\*·中 島 映 至\*

(2012年6月1日受付, 2012年6月11日受理)

# Radioactive materials in the atmosphere released by the accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

Haruo TSURUTA\* and Teruyuki NAKAJIMA\*

\* Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8568, Japan

Massive radioactive materials were released into the atmosphere after the accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FD1NPP) caused by the Tohoku Earthquake and Tsunami on 11 March 2011, and transported and deposited to the land surface in a regional scale. A large amount of dataset has been opened such as the routine monitoring of radiation dose, fallout, and the regional map of radionuclides deposited to the surface soils by an intensive field measurement and aircraft monitoring by MEXT. In contrast, continual field measurements for atmospheric radioactivity were made only at seven stations in the Kanto area, while they are necessary to evaluate the initial radiation exposure, to validate results of atmospheric transport models, and to estimate the emission inventory of radionuclides. In this review, the following five points are introduced. (1) Summary of release rate estimation from the FD1NPP by the combination of WSPEEDI-II with atmospheric radioactivity of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs and radiation dose. (2) The possible mechanisms of many peaks of radiation dose during 11-16 March 2011 which were measured at the monitoring posts near the FD1NPP. (3) Possible mechanism of regional transport and the surface deposition of radionuclides. (4) Summary of atmospheric <sup>131</sup>I in aerosols and gases, and <sup>131</sup>I/<sup>137</sup>Cs in the atmospheric radioactivity. (5) An intensive one-year field measurement of atmospheric radioactivity of <sup>137</sup>Cs at Fukushima and Koriyama since May 2011.

Key words: Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Atmospheric radioactivity, Radiation dose, <sup>131</sup>I, <sup>137</sup>Cs, Regional air pollution, Re-suspension

#### 1. はじめに

2011年3月11日の東日本大震災と津波によって引き 起こされた福島第一原子力発電所の事故により,大量 の放射性物質が大気中に放出され,広範囲に輸送さ れ,地表へ沈着した。それによる人への内部・外部被 ばくだけでなく,環境への影響は,2011年3月下旬に 水道水中から大量の放射性物質が検出された(厚生労 働省,2011) ことをはじめ,野菜などの食品やお茶 の葉,農地の牧草や稲わらなど,また河川中の淡水魚 や,太平洋沿岸の海域で獲れた魚にも,基準以上の放 射性物質が含まれていた(厚生労働省,2012;農林水 産省,2012;水産総合研究センター,2012)。さらに, 下水汚泥や焼却灰などでも,大量の放射性物質が含ま れているデータが報告され(環境省,2011),その影 響が様々な分野に広範囲に及んでいることが明らかに なっている。一方,環境中での放射性物質の測定デー タは,文部科学省が各自治体に委託している空間放射

<sup>\*</sup> 東京大学大気海洋研究所

<sup>〒277-8568</sup> 千葉県柏市柏の葉5-1-5 総合研究棟

線量率や大気降下物などの様々なモニタリングデータ をはじめ、多くの研究機関が独自に調査した結果を含 めて、膨大なデータが、それぞれのホームページなど で公表されている。そこで、それらのデータをもと に、放射性物質の放出率推定、放射性物質の原発周辺 での挙動、そして広域汚染の概要、最後に、その後の 大気中での放射性物質の長期変化を中心に、これまで にわかったことをまとめて、陸域を対象として、本総 説で報告する。なお本稿は、最新のデータを盛り込む ため、最近の学会・シンポジウム等で発表されたデー タも多く含めており、学術論文以外からの引用が多い こと、また、使用した多くのデータはそれぞれの機関 のHPに掲載されているので文献に引用していないこ と、をお許し頂きたい。

# 福島第一原子力発電所からの放射性物質 の放出量推定

原発事故により、大気中に放出された放射性物質量

の時間変化は、対象領域が25 km×25 km で設定され た緊急時迅速放射能影響予測ネットワークシステム, いわゆる SPEEDI (The System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information) (MEXT, 2007) や、さらに広域で放射性物質量を予測可能に するために、日本原子力研究開発機構(JAEA)が開 発した WSPEEDI-II (Worldwide Version of System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information-II) (Terada et al., 2008) と, 空間放射 線量率やダストサンプリングによるヨウ素-131とセ シウム-137の大気中の放射能濃度を用いて推定され た (Chino et al., 2011; Katata et al., 2011)。その 後,原子炉で起こった事象からの放出量推定も一部取 り入れられており (Katata et al., 2012; Terada et al., 2012), それらをとりまとめたもの(茅野, 2012) を, Fig.1に示す。放出率が一定の期間は,用いた大 気観測データの時間分解能に依存しているところが大 きい。ヨウ素-131とセシウム-137の放出率比は、3月



Fig. 1 Summary of estimated release rates of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs into the atmosphere after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident (Chino, 2012) (This figure is quoted from the website of JAEA Open Workshop, 2012).

12日~15日までは約10であるが、3月15日17時から3 月19日15時にかけて70から40と大きな値となってい る。しかし、その後は3月21日21時まで再び約10と小 さくなるが、3月21日21時から3月26日11時までは、 87から45と再び大きな値が続いている。これらの放 出率の時間変化と、5節で後述する大気中のヨウ素-131とセシウム-137の放射能濃度比の経日変化とは、 よく似ていることに注意されたい。大気化学輸送モデ ルの計算では、放出量はこれらの数値を用いて、大気 中の濃度や大気からの沈着量が推定されているので、 今後は、原子炉内部で起こった事象の詳細な解析か ら、どのくらいこれらの放射性核種が放出されたかを 推定していく必要がある。

## 福島第一原子力発電所周辺での放射性 物質の挙動

東京電力株式会社(東電)による福島第一原子力発 電所(F1)のモニタリングポストで,主にMP-4(F1 から約1.5 km 北西方向)と正門(MG, F1から西南 西約1 km)における空間線量率の時系列を,Fig.2に

示した(3月17日以降は省略)。また、その他に、福 島県原子力センターが設置したモニタリングポスト で、F1の事務本館から約5kmほど西南西に位置する 大野, また F1から南側12 km にある福島第二原子力 発電所(F2)のモニタリングポストの MP-4で測定さ れた空間線量率も, Fig. 2に示した。これらのデータ と、東電から公表されている事故時の対応と、F1内 のモニタリングカー,大野,および気象庁の AMeDAS 地点で測定された地上風のデータとを併せ て解析した(これらの地点の場所をFig.3に示し た)。さらに、炉内の状況やベントの開始などは、 (独)原子力安全基盤機構の報告(2011),日本原子力 学会の特別セッションの報告(東電, 2012)および Tanabe (2012a, 2012b) を参照した。これらを詳細 に検討して、4地点の空間線量率のピークの多くは、 ベントや炉内建屋の異常や風向の変化などによって説 明が可能となったが、原因が不明のピーク(たとえ ば, Fig. 2の?) もいくつか存在する。

これらから総合的に判断すると、3月11日~16日までは、最初に第1号機、つぎに第3号機、そして第2号



Fig. 2 Time series of radiation dose measured at 4 monitoring posts near the FD1NPP and main reactors who could cause massive release of radionuclides into the atmosphere following high peaks of radiation dose at the monitoring sites (11-16 March, 2011). Some high peaks could be caused by the shift of wind direction such as from S to N. 4 monitoring posts: Ohno, F1 (MG, Main Gate), F1 (MP4), and F2 (MP4). V: Vent; H. E.: Hydrogen explosion, ?: the cause of high peaks is unkown.

機からの放射性物質の放出が,主な放出源と推測される。3月12日は,午前4時頃から,正門での放射線量が増加し始めたので,大気中への放出が始まったと推



Fig. 3 Map of 4 monitoring posts (MPs) near the FD1NPP and FD2NPP. MP-Ohno was established by the Environmental Radioactivity Monitoring Center of Fukushima (ERMCF). F1 (MP-4) and F1 (Main Gate) in the area of FD1NPP, and F2 (MP-4) in the area of FD2NPP, were established by Tokyo Electric Power Company. The original map is quoted from a brochure made by the ERMCF in Japanese. 測され、これは10時17分のベントによる大きなピー クの前であり、すでに1号機で異常が起こっていた可 能性が大きい。また、3月14日の21時ごろから正門、 大野,および F2の MP-4での空間線量率が増大し始 めており、2号機のベント開始とされる3月15日0時02 分(なお、東電(2012a)によれば数分後に弁閉であ ることを確認,と報告されている)よりも早く放出が 始まっているが、その放出の原因はまだよくわかって いない。なお, F2の MP-4での空間線量率は, 正門や 大野と同じころに急激に増加し始め、3月15日の2~3 時頃に最大となり、この汚染気塊はその後、関東地方 に輸送された。これらのデータと地上風系とから、原 発から放出された放射性物質が南方の陸上に輸送され たのは、この時が初めてであり、それまでは、北西風 や南よりの風のため、北方や海上に輸送されたと推測 される。

#### 4. 広域汚染の概要

放射性物質による広域汚染の実態では, 文科省が公 表した航空機モニタリングから推定した土壌への沈着 量マップ(文部科学省, 2012)が、よく用いられる (Fig. 4)。これは、2011年6月~7月前半に実施した 福島県東部の2kmメッシュでの調査(1地点あたり 5ヶ所の土壌を採取・分析)で得られた土壌中のセシ ウム-134とセシウム-137と、航空機で測定された空 間線量率とが良い対応関係があることを利用して、航 空機観測から作成した広域の土壌への沈着量マップで ある。このマップから、放射性物質の沈着量がいかに 多いかが一目瞭然となった。現在、この沈着量分布を 再現するために、多くの領域モデルによる数値シミュ レーションが行われ、その結果(たとえば、Morino et al., 2011) とモデル間の相互比較については、JAEA (2012)が開催した公開ワークショップ「福島第一 原子力発電所事故による環境放出と拡散プロセスの再 構築」で詳しく報告されているので、その資料を参照 して頂きたい。また、全球での輸送に関しては、Takemura et al. (2011) は、MIROC と SPRINTARS モデ ルを用いて、原発からの放射性物質がどのように地球 規模で輸送されているかを、世界の数地点での観測結 果と比較しながら,議論している。また, Stohl et al. (2011) は、世界各地の CTBT の観測データなどを用 いて、逆に放出源からキセノン-133とセシウム-137 が、いつごろどのくらいの量が放出されたかを推定し ている。なお,その後,観測データも飛躍的に増えて

きたので、これらのモデルの高精度化が望まれる。

さて、これらの領域モデルの結果を参考にしなが ら、前述した土壌への沈着量マップに示された広域汚 染の実態を、文科省などの空間線量率や大気降下物の データ、および自治体などで非常に密に測定された空 間線量率マップ(鶴田ほか,2012a)などや、AMeDAS などの気象データを主に用いて解析した(Figs. 2~4 を参照)。また、福島県の地上風系のメソ解析結果(中



Fig. 4 Major pathways and dry/wet deposition of radioactive materials released by the FD1 NPP accident in a period of 12-21 March 2011 estimated from numerical simulations by atmospheric transport models (The figure is quoted from the website of JAEA Open Workshop, 2012). The original map used in the figure, the regional deposition of <sup>137</sup>Cs (Bq m<sup>-2</sup>) on the surface soils from the aircraft monitoring, was published by MEXT (2011).

村ほか,私信)も随時参考にした。よく知られている ように,関東地方や東北地方南部まで広範囲に汚染気 塊が輸送されたのは,3月15日~16日と3月20日~23 日である。しかし,その他の3月12日~14日および3 月18日~19日でも原発から北側への輸送がしばしば 見られたが,降水がほとんどなかったので,地表面へ の沈着は少なかったと推測される。

(1) 3月12日~13日:原発から北側へ東北地方南東 部までの沿岸域への輸送:関東北部から東北南部の太 平洋沿岸域に吹いていた南よりの風で、原発でのベン トや水素爆発などで放出された放射性物質は、北方に 輸送されて宮城県南東部を南から北へ通過したと推測 された(降水は無し)。すでに3月12日午前9時前後に は原発から北西5~6 km の浪江町高瀬で約15 uSv h<sup>-1</sup> の空間線量率が測定されており、また、原発から北へ 約24 km に位置する南相馬市で,3月12日の20時頃空 間線量率が急上昇(最大20µSvh<sup>-1</sup>)し,約100 km 北北東の女川原発でも13日0~2時頃に急上昇(最大 21µSvh<sup>-1</sup>) した (Fig. 4の黄色の曲線)。3月13日か ら14日にかけて、移動性高気圧の通過に伴い、東北 地方太平洋沿岸域の沖合では南よりの風となり,一 方,陸上では西よりの強い風でフェーン現象となっ た。そのため、3月13日も、原発周辺では午前3時ご ろから南風となっており(なお10~13時は北西風), 12時頃には原発から約12 km 北北西の地点では,30 μSvh<sup>-1</sup>以上と増大し、仙台市内でも18時半に0.65μ Svh<sup>-1</sup>と増加し、汚染気塊が通過した。

(2) 3月15日~16日:福島県, 東北南部, 関東甲信 越静地方の広範囲な地域への輸送:早朝は原発から関 東南部へ輸送され(乾性沈着, Fig. 4の赤い曲線), そして関東北部に輸送されてさらに中通り南部に到達 するとともに降水により地表面に沈着したと推定され る(湿性沈着, Fig. 4の橙色の点線)。また, 汚染気 塊の一部は,関東地方を取り囲む山塊を越えて,静岡 市,長野市,南魚沼市などへも輸送された。一方,午 後には、南東風により原発から北西方向へ輸送される とともに、福島市から中通りを南へ輸送され降水によ り地表面に沈着した(湿性沈着, Fig. 4の原発から北 西方向の赤い曲線)。中通りへは、汚染気塊が北方と 南方から輸送され降水により沈着されたと推定される が、モデルではその再現がまだ不充分で、今後の研究 課題である。また、その一部は、会津から新潟県の阿 賀町へ、北方には3月15日の夜から3月16日の早朝 に,山形・宮城方面に輸送された。

(3)3月16日:原発から南方向に北茨城方面への輸送:3月16日の午前中に,F2のMP-4 (Fig.3),およびいわき市や北茨城方面で放射線量の増大が見られたが,その後風系が変化したので,それより南の陸上には到達しなかった。

(4) 3月18日~19日:原発から北側への輸送:主に 南よりの風で、北方に輸送されたことが、南相馬の空 間線量率の増加により観測された。3月18日は、 AMeDASの相馬でのデータでは17時から南風とな り、南相馬でも18時に7μSvh<sup>-1</sup>のピークが観測された。3月19日も同様に北側に輸送された。

(5)3月20日~23日:福島県,東北中部,関東甲静 地方の広範囲な地域への輸送:3月20日午後の南東風 により,汚染気塊は福島市に輸送され(降水は無し で,中通り南部には輸送されなかった),20日の夜か ら21日の未明にかけて,山形県東部や盛岡などの東 北中部まで輸送され,降水により沈着されたと推定さ れる(Fig.4の緑の曲線)。一方,関東南部では3月21 日早朝から吹き始めた北東風で汚染気塊が輸送され, 長時間の降水により広域に沈着し,また,静岡県東部 まで輸送された(Fig.4の青の曲線)。しかし,関東 北部へはほとんど輸送されなかった。

(6)気象場の特徴:大気の安定度は、汚染物質の 挙動に大きな影響を与えるが、気温などの鉛直分布の 測定は、福島県内ではなされていなかった。茨城県館 野の高層気象データによれば、3月15日は、気温の逆 転層が高度500~1,000 m に存在していたので、福島 県内も同様の逆転層が存在していた可能性があり、特 に中通りで沈着量が多かった原因として、この逆転層 により、汚染気塊が下層に滞留して輸送されたため と、推測される。一方、関東地方ではこの時期に多い 北東気流が、3月15日や3月21日~23日にも形成され、 そのため、関東地方に原発からの汚染気塊が輸送さ れ、降水により広範な地域で沈着するとともに、千葉 の東葛地域に最も多く沈着した。

(7) 稲わら汚染:放射性物質は、このように広域 に輸送されて地表面に沈着後土壌が汚染され、環境へ 大きな影響を与えたので、ここではその事例解析を紹 介する。収穫後に水田に放置されていた稲わらが、高 濃度の放射性セシウムに汚染されていた事実が明らか になったので、このような汚染が起こり得るものかを 検討するため、同一地点で、公表された稲わらの放射 性セシウム濃度(<sup>134</sup>Cs と<sup>137</sup>Cs の合計)と、土壌に沈 着した量とを比較した。一般によく用いられている、 稲わらの収穫後の土壌表面への散布量を5 ton ha<sup>-1</sup>と すると、この量は500 g m<sup>-2</sup>に相当する。ある地点で 汚染された稲わらの放射性セシウム(<sup>134</sup>Cs+<sup>137</sup>Cs) 濃度は、22,045 Bq kg<sup>-1</sup>であり、この量は稲わらへの 沈着量11.02 kBq m<sup>-2</sup>に相当する。一方、この地点で の土壌への沈着量は、126.5 kBq m<sup>-2</sup>だったので、土 壌への沈着量の約10%が、稲わらの表面に付着した ことになる。同様にして、稲わらの放射性セシウム濃 度が3,647 Bq kg<sup>-1</sup>の場合は、稲わらへの沈着量は1.82 kBq m<sup>-2</sup>となり、土壌への沈着量30.9 kBq m<sup>-2</sup>の6% だった。このように、これらの2地点での稲わらへの 沈着量は、土壌への沈着量の約10%であり、十分に 起こり得ることを示している。

## 5. 大気中のヨウ素-131とセシウム-137 の放射能濃度の経日変化

大気中を放射性物質がどのように輸送されたかにつ いては、いろいろなモデルによる数値シミュレーショ ンの結果は示されているが、観測値が非常に少ないた め、その実態の解析は不十分である。これまでに紹介 してきたように、土壌への沈着量分布や、空間線量率 の分布については、広域な調査結果が得られている が、それらから、大気中の放射性物質の量を推定する ことは困難である。その理由は、大気中を輸送された 放射性物質の一部が、降水によって沈着したものであ り、また空間線量率はその地点を通過した大気中の放 射性物質だけでなく、地表面に沈着した物質からの影 響も受けるからである。大気中の放射能濃度の時空間 分布は、内部被曝にとっても、大気モデルの検証に とっても、重要であるにもかかわらず、検討がまだあ まり進んでいない。

(1) 大気中の放射能濃度の連続測定地点:原発周 辺では、福島県原子力センター、東電や文科省など が、いろいろな地点で短時間のダストサンプリングを しているが、事故直後から大気を連続採取して放射性 核種の分析をして、データを公表している機関とその 地点は、すべて関東地方に存在する(Table 1)。その なかで、エアロゾルと気体とに含まれるヨウ素-131 を別々に採取・分析したのは、東海村のJAEA 核燃 料工学サイクル研究所(古田ほか、2011)と、つく ばの国立環境研究所/高エネルギー加速器研究機構 だった(土井ほか、2011)。なお日本分析センターで は、採取は別々にされたが分析はいっしょにされた (Amano *et al.*, 2011)。一方、高崎では、CTBT(包

Sampling Station Sa (Sampling/Measurement G	mpling Equipment (Filters) Org.)	Radioactivity of <sup>131</sup> I in aerosols(A) & gases(G)	Ref.
Tokaimura (Ibaraki pref.) (JAEA-TRDC)	L.V. (HE-40T & CHC-50)	A & G (separated)	Furuta et al. (2011)
Tsukuba (Ibaraki pref.) (NIES/KEK)	H.V. (QF & ACF-TG)	A & G (separated)	Doi et al. (2011)
Takasaki (Gunma pref.) (CTBT)	RASA (PP-filter)	A	Yonezawa and Yamamoto (2011)
Wako (Saitama pref.) (RIKEN)	L.V. (HE-40T)	А	Haba et al. (2012)
Chiba (Chiba pref.) (JCAC)	L.V. (HE-40T & CP-20)	A+G (total)	Amano et al. (2011)
Setagaya (Tokyo M.) (TMITRI)	H.V. (GB100R)	A	Nagakawa et al. (2011)
Tajima (Kawasaki City) (KMRIEP & AORI (Univ. of Tokyo)/Osaka U	H.V. (QF) Jniv.)	Α	Kawasaki City (2012)

Table 1Measurements of radionuclides in the atmosphere after the Fukushima<br/>Daiichi Nuclear Power Plant accident.

L. V.: Low-volume air sampler. H. V.: High-volume air sampler. QF: Quartz fiber filter. JAEA-TRDC : Japan Atomic Energy Agency, Tokai Research and Development Center.

NIES: National Institute for Environmental Studies.

KEK: High Energy Accelerator Research Organization.

 $CTBT: Comprehensive \ Nuclear \ Test \ Ban \ Treaty.$ 

RIKEN: RIKEN Wako Institute.

JCAC: Japan Chemical Analysis Center.

TMITRI: Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute.

KMRIEP: Kawasaki Municipal Research Institute for Environmental Protection.

AORI: Atmosphere and Ocean Research Institute, the University of Tokyo.

括的核実験禁止条約)の国際監視制度により,世界共 通の放射性核種観測機器で測定されているが,関東地 域の他の測定地点の採取方法と質的に異なっており, また,機器内の汚染がみられ,まだ確定データが公表 されていない(米沢・山本,2011)ので,ここでは 検討の対象としなかった。また,東京都と川崎市の データは,それぞれ,永川ほか(2011)と川崎市原 子力施設安全対策協議会(2012)により,すでに公 表されている。さらに,理研和光研究所でのデータ は,Haba et al.(2012)で公開されている。

(2) ヨウ素-131のエアロゾルと気体での存在割合: つくばと東海村で測定された,エアロゾル中のヨウ素 -131が全ヨウ素-131 (気体中のヨウ素-131(G)とエ アロゾル中のヨウ素-131(A)の和)に占める割合(R) は,Fig.5に示すように,採取方法が質的に異なって いるにもかかわらず,汚染気塊中では0.5~0.8で,他 の時期は0.2~0.4だった。なお,そのときの両地点で のヨウ素-131とセシウム-137の放射能濃度の経日変 化を,Fig.6に示す。汚染気塊中で粒子状ヨウ素が多 かった原因は,放出時の形態と,その後の大気中での 気体からエアロゾルへの変質によると推定される。原 発事故直後になされたベントがウェットベントであれ ば,圧力調整容器中で,高温の気体状ヨウ素の大半が 冷やされて粒子状に変化した後に,大気中に放出され た可能性もある。(なお,全部のベントがウェットベ ントであったという確証はない)。なお,千葉の柏で も気体状と粒子状のヨウ素-131を2011年5月に測定し たが,Rは0.1~0.3と小さかった(鶴田ほか,未発 表)。

(3) 測定地点中で原発に一番近い東海村では,3月 15日の6~9時に1,600 Bqm<sup>-3</sup>という非常に高濃度の ヨウ素-131が観測された(Fig.6)。なお,東京の世 田谷でも1~2時間毎に大気エアロゾルが採取されて おり,3月15日の10~11時にヨウ素-131の濃度は約 240(R=0.5とすると,約480) Bqm<sup>-3</sup>で,東海村の 約15%(30%)という最高濃度が測定されており, 短時間では大量の放射性物質が放出されていたことが わかった(Fig.7)。一方,東海村では3月20日21時か



Fig. 5 Time series of the ratio of particulate <sup>131</sup>I (A) to the total <sup>131</sup>I (sum of A and gaseous <sup>131</sup>I (G)) measured at Tokaimura and Tsukuba (14-31 March, 2011). These graphs were made based on the data (Furuta *et al.*, 2011) and the figure (Doi *et al.*, 2011).



Fig. 6 Time series of (top) atmospheric radioactivity of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs and (bottom) radiation dose (R.D.) and precipitation (P) at (left) Tokai-mura (Furuta *et al.*, 2011) and (right) Tsukuba (Doi *et al.*, 2011), in a period of 13-31 March, 2011.

ら3月21日6時の間に,再び740 Bq m<sup>-3</sup>と高濃度が測 定されたが,東京では3月21日の8~10時に約15(30) Bq m<sup>-3</sup>の最高濃度が測定され,東海村の4%と小さ かった。これは,東海村では3月21日の6時までは雨 が降っていなかったが,東京では8~10時に5.5 mm の雨が降り始めたので,降水に取り込まれたために, 大気中の放射能濃度が低かったためと推測されるが, 東海村の高濃度の汚染気塊が通過しなかった可能性も ある。

(4) 大気中のヨウ素-131とセシウム-137の特徴: 汚染気塊が関東地方に輸送された3月15日~16日と3 月20日~23日に、すべての地点で放射性物質の濃度 が高くなり、またどの地点でも常に、ヨウ素-131は セシウム-137より濃度が高かった。例としてFig.7 に、東京と千葉の大気中の1時間~1日間の平均濃度 と日降下量の経日変化を示す。ヨウ素-131とセシウ ム-137の濃度比は、日によって異なり、3月20日~21 日と3月21日~22日は小さく,その他の日は,非常に 大きかった。また,3月22日~23日は,セシウム-137 の濃度は非常に低くなったが,ヨウ素-131は高く, 地点によっては3月15日~16日よりも高かった。つぎ に,汚染気塊中での東京の全ヨウ素-131を,仮りに R=0.5としてA=Gの関係を用いて求めた。これら から,全ヨウ素-131とセシウム-137との比は,東海 村,東京,千葉ではそれぞれ,3月15日は14,12,34, 3月20日は6,5,3,3月21日は8,6,6,3月22日は98, 101,92となり,3地点での比は,日の違いによる差 の方が地点間の差よりも大きかった。

(5) つぎに、大気中と降下物中の濃度が同時に測定された千葉での結果によれば、降水がほとんどなかった3月15日~16日の降下物は非常に少なかったが、3月20日~23日にかけては、降水により大量の放射性物質が沈着した(Fig.7)。なお、ヨウ素-131とセシウム-137の比は、大気中と降下物中で良く一致



Fig. 7 Time series of (top) atmospheric radioactivity and (bottom) fallout (F) of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs in daily average from 9:00 to 9:00 in the following day, radiation dose (R.D.) and hourly precipitation at (left) Tokyo (Nagakawa *et al.*, 2011) and (right) Chiba (Amano *et al.*, 2011). The fallout measurement at Tokyo started from 18 March, 2011, with no data available before that day.

しており、この関係は東京でも同様に見られた(なお、東京の降下物のデータは、新宿にある文科省のモニタリングポストで測定された値であり、他のモニタリングポストと同様に2011年3月18日から測定が開始されたため、それ以前のデータはない)。

(6) これらから,大気中でのヨウ素-131とセシウム-137の挙動は,地点による違いよりも,日による 違いの方が大きかったことがわかる。これは,放出時 の状況をより強く反映しているためと推測される (Fig. 1参照)。

#### 6. 大気中の放射性物質の長期変化

日本地球惑星科学連合・日本地球化学会・日本放射 化学会連携緊急放射性物質調査研究チーム(代表:首 都大学東京海老原充教授)では、大気中の放射性物質 の挙動を、原発事故後の2011年3月下旬ごろから福島 県を含む広範な地域で観測中であり、本報告ではその なかで3地点(福島県福島市,福島県郡山市,宮城県 南部の丸森町)の結果の概要を紹介する(鶴田ほか, 2012b)。これらの3地点では、2011年5月後半から現 在まで(なお丸森町は、仙台市での観測を引き継いだ ため、2011年12月から開始)、ハイボリュームエアサ ンプラーで1~3日間連続で大気中のエアロゾルを石 英繊維フィルターに採取し、ゲルマニウム半導体検出 器で、セシウム-134とセシウム-137(初期はヨウ素-131も)を計測した。

(1) 福島と郡山では、大気中のセシウム-137の放 射能濃度は、Fig. 8に示すように、2011年5月から次



Fig. 8 Long-term trends of atmospheric radioactivity of <sup>137</sup>Cs at (top) Fukushima University (65 km northwest of FD1NPP) and (bottom) College of Engineering, Nihon University in Kohriyama (60 km west of FD1NPP) from May 2011 to Feb./Mar. 2012. Atmospheric aerosols were collected on quartz fiber filter by a high-volume air sampler for a 1-3 day sampling duration at both sites.

第に減少して秋期に最低となった。この減少割合は, 原発付近の東電モニタリング地点でのダストサンプリ ングによる大気中の放射能濃度との比較から,原発か らの直接の放出量の減少傾向とほぼ一致した(北ほ か,2012)。なお,滝川(2012)のモデルによる計算 値は,時間の経過とともに,実測値より小さくなった が,これは土壌からの再飛散などの間接的な影響をモ デルでは考慮していないため,と推測される。

(2)福島と郡山の2地点では、セシウム-137は、冬期の2011年12月16日(福島は12月22日から)から 2012年2月22日まで再び増大した。福島と郡山におけ る、冬期(2011年12月~2012年2月)のセシウム-137 の平均濃度は、秋期(2011年9月~11月)のそれぞれ 3倍と4倍だった。東電(2012b)によれば、2012年1 月の1時間当たりの放出量は前月の1.1倍だったが、2 月の放出量は1月の14%に減少したので、この冬期の 放射能増大が原発からの放出による直接の影響ではないことがわかった。一方,丸森町では,放射能濃度の 冬期の増大はみられず,福島と郡山より低かった(図は省略)。この期間は,冬の強い寒気流入時期と一致し,3地点とも気温が平年よりも低くなった(気象庁,2012)。

(3) Fig. 9に示すように,福島の冬期のセシウム-137は,降水量の多い日は低下し,降水がなく風速の 大きいときに増大した。

(4) なお2012年1月21日の降雪後の約25日間の積 雪期間中(Fig. 9の上段のA),セシウム-137はほと んど減少しなかったが,この期間は風速が大きく湿度 が低かった。一方,2月24日から3月10日までも積雪 期間だったが,セシウム-137は前述した積雪期間 (Fig. 9の上段のB)よりも約1/10に減少した。なお, この期間は風速が小さく湿度も高かった。



Fig. 9 Time series of (top) atmospheric radioactivity of <sup>137</sup>Cs and (bottom) relative humidity (R. H.), instantaneous maximum wind speed (W. S., x 2), snowfall amount (S), and precipitation (P) at Fukushima (Dec. 2011-Apr. 2012). Daily meteorological data used was measured at the Fukushima AMEDAS station by Japan Meteorological Agency.

(5) これらから, 冬期の増大の主要因は, 大気が乾燥して風速が大きくなったため, 汚染された土壌や森林などからの放射性物質の再飛散によると推測された。しかし, この推測は, 他のデータによる検証が必要であり, 今後も総合的で長期的な調査が必要である。

#### 7. 今後の課題

原発事故から1年以上が経過し,何がまだわからな いのか,また,今後何を明らかにすべきかについて, いろいろな機関や研究者が議論されているが,その重 要な課題を次に示す。

(1) 原発からの放出量推定:2012年3月の原子力学 会で,原子炉容器内のいろいろなデータの解析結果が 示され,当時何が起こったか,議論が深まってきた。 しかし,依然として,いつ頃,原子炉内がどのような 状況になって,どのような物質が,どこから,どのく らい,どのような形態で,大気中への放出されたか, については不確実性が非常に大きいので,ぜひとも, さらに解析を深めて,その結果を公表することが望ま れる。

(2) 初期の大気中の放射性物質の濃度および土壌 などへの沈着量のデータの発掘:2012年3月の JAEA 公開ワークショップ(2012)で、放射性物質の汚染 気塊の拡散と輸送経路と、モデルによる数値シミュ レーション結果との比較についての理解が深まった。 しかし、事故直後の大気中の放射能データは、NaI シンチレーションスペクトルデータなど、未だに発掘 途上であり、ぜひとも、それらのデータを早急に公表 することが望まれる。また、事故直後の土壌への沈着 量で、未公開なものは、初期被曝を考慮する上で、な くてはならない貴重なデータなので、できる限り早急 に公開することが望まれる。

(3) モデルと観測結果との比較検討:本稿では, モデルによる数値シミュレーションについて詳しく紹 介するスペースはなかったが,放出量の推定値に大き な不確実性があるため,モデルによる大気中の放射能 濃度や土壌への沈着量などの推定値にも影響を与え る。また,乾性沈着と湿性沈着とをよりよい精度で求 める工夫が必要であり,さらに,福島県中通りの沈着 量の再現には,空間分解能のさらに細かいモデルも必 要となってくるので,モデルの高精度化が望まれる。

(4)環境影響の総合的な長期調査:放射性物質の 生態系や森林土壌および河川などへの移行過程など, 今後,長期的に取り組むべき課題が山積しており,分 野横断的な総合調査が必要である。また、大気中での 再飛散などを監視するモニタリングも引き続き長期的 な視点にたって、再構築して継続することが望まれ る。

#### 引用文献

- Amano, H., Akiyama, M., Chunlei, B., Kawamura, T., Kishimoto, T., Kuroda, T., Muroi, T., Odaira, T., Ohta, Y., Takeda, K., Watanabe, Y. and Takao, M. (2011) Radiation measurements in the Chiba metropolitan area and radiological aspects of fallout from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants accident. Journal of Environmental Radioactivity, 111, 42–52.
- Chino, M., Nakayama, H., Nagai, H., Terada, H., Katata, G. and Yamazawa H. (2011) Preliminary estimation of release amounts of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into atmosphere. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 48, 1129–1134.
- 茅野政道(2012)大気放出量推定.公開ワークショップ「福島 第一原子力発電所事故による環境放出と拡散プロセスの再 構築」,2012/3/6,東京,http://nsed.jaea.go.jp/ers/environment/envs/FukushimaWS/jaea1.pdf
- 土井妙子・桝本和義・豊田晃弘・田中敦・柴田康行(2011)福 島第一原子力発電所事故後に茨城県つくば市で検出された 大気中放射性核種濃度.日本放射線安全管理学会第10回学 術大会,2011/11/30~12/2.
- 独立行政法人原子力安全基盤機構(2011)東京電力株式会社福 島第一原子力発電所の事故に係る1号機,2号機及び3号機 の炉心の状態に関する評価 報告書 平成23年9月.
- 古田定昭・住谷秀一・渡辺均・中野政尚・今泉謙二・竹安正 則・中田陽・藤田博喜・水谷朋子・森澤正人・國分祐司・ 河野恭彦・永岡美佳・横山裕也・外間智規・磯崎徳重・根 本正史・檜山佳典・小沼利光・加藤千明・倉知保(2011) 福島第一原子力発電所事故に係る特別環境放射線モニタリ ング結果—中間報告(空間線量率,空気中放射性物質濃 度,降下じん中放射性物質濃度)—. JAEA-Review, 2011 -035, 1-89.
- Haba, H., Kanaya, J., Mukai, H., Kambara, T. and Kase, M. (2012) One-year monitoring of airborne radionuclides in Wako, Japan, after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident in 2011. *Geochemical Journal*. (in press).
- JAEA 公開ワークショップ資料(2012)日本原子力研究開発機 構 公開ワークショップ「福島第一原子力発電所事故によ る環境放出と拡散プロセスの再構築」,東京,http://nsed. jaea.go.jp/ers/environment/envs/FukushimaWS/index. htm
- 環境省(2011)16都県の一般廃棄物焼却施設における焼却灰の 放射性セシウム濃度測定結果一覧.http://www.env.go.jp/ jishin/attach/waste-radioCs-16pref-result 20110829.pdf
- Katata, G., Terada, H., Nagai, H. and Chino, M. (2011) Numerical reconstruction of high dose rate zones due to the

Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Journal of Environmental Radioactivity, **111**, 2–12.

- Katata, G., Ota, M., Terada, H., Chino, M. and Nagai, H. (2012) Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident: Part I: Source term estimation and localscale atmospheric dispersion in early phase of the accident. Journal of Environmental Radioactivity, 109, 103– 113.
- 川崎市原子力施設安全対策協議会(2012)川崎市における福島 第一原子力発電所事故に関する環境放射能調査結果.平成 22年度(2010年度)川崎市における環境放射能調査報告 書, 16-18.
- 気象庁(2012)平成24年冬の天候と大気の流れの特徴につい て、気象庁発表資料,平成24年2月27日.
- 北和之・笠原理絵・渡邊明・鶴田治雄・植松光夫・桧垣正吾・ 吉田尚弘・豊田栄・山田桂大・篠原厚・三上正男・五十嵐 康人・恩田裕一・末木啓介・滝川雅之・日本地球化学会・ 日本地球惑星科学連合・日本放射化学会連携緊急放射性物 質サンプリングチーム大気班および分析班(2012)2.2 大気放射性物質の広域観測と土壌からの再飛散の影響, 2011年秋季大会スペシャルセッション「放射性物質輸送モ デルの現状と課題」報告(近藤裕昭ほか).天気,59,240 -241.
- 厚生労働省(2011)水道水における放射性物質対策中間取りま とめ.平成23年6月.
- 厚生労働省(2012)食品中の放射性物質検査の結果について (平成24年3月31日以前に採取された検体分).http:// www.mhlw.go.jp/stf/houdou/2r9852000002bxys-att/2r 9852000002by4f.pdf
- MEXT (2007) SPEEDI System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information, A pamphlet of SPEEDI. http://www.bousai.ne./jp/vis/torikumi/download \_data/speedi.pdf
- 文部科学省(2012)平成23年度科学技術戦略推進費「放射性物 質による環境影響への対策基盤の確立」『放射性物質の分 布状況等に関する調査研究』報告書.平成24年3月13日.
- Morino, Y., Ohara, T. and Nishizawa, M. (2011) Atmospheric behavior, deposition and budget of radioactive materials from Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011. Geophysical Research Letters, 38, L00G11.
- 永川栄泰・鈴木隆司・金城康人・宮崎則幸・関口正之・櫻井 昇・伊勢洋昭(2011)福島第一原発事故による放射性物質 漏洩に関わる都内環境放射能測定及び被曝線量測定. Radioisotopes, 60, 467-472.
- 農林水産省(2012) 平成23年度農産物に含まれる放射性セシウム 濃度の検査結果.http://www.maff.go.jp/j/kanbo/joho/ saigai/s\_chosa/23index.html
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, G., Burkhart, I. F., Eckhaldt, S., Tapia, C., Vargas, A. and Yasunari, T. J. (2011) Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. Atmospheric Chemistry and

Physics, 11, 28319–28394.

- 水産総合研究センター(2012) 放射性物質影響解明調査事業報 告書. 平成24年3月.
- Takemura, T., Nakamura, H., Takigawa, M., Kondo, H., Satomura, T., Miyasaka, T. and Nakajima, T. (2011) A numerical simulation of global transport of atmospheric particles emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. SOLA, 7, 101–104, doi:10.2151/sola.2011-026.
- 滝川雅之(2012)2.8 領域化学輸送モデルを用いた放射性物 質沈着量の推定,2011年秋季大会スペシャルセッション 「放射性物質輸送モデルの現状と課題」報告(近藤裕昭ほ か).天気,59,244-245.
- Tanabe, F. (2012a) Analyses of core melt and re-melt in the Fukushima Daiichi nuclear reactors. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 49, 18–36.
- Tanabe, F. (2012b) A scenario of large amount of radioactive materials discharge to the air from the Unit 2 reactor in the Fukushima Daiichi NPP accident. Journal of Nuclear Science and Technology, 49, 360–365.
- Terada H., Nagai, H., Furuno, A., Kakefuda, T., Harayama, T. and Chino, M. (2008) Development of worldwide version of system for prediction of environmental emergency dose information: WSPEEDI 2nd version. Atomic Energy Society of Japan, 7, 257–267. (in Japanese with English abstract)
- Terada, H., Katata, G., Chino, M. and Nagai, H. (2012) Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and regionalscale atmospheric dispersion. J. Environ. Radioact., 112, 141–154.
- 東京電力(2012a)(3)福島第一原子力発電所事故 3)事故 時の対応状況とプラント挙動.原子力学会春の年会・福島 第一原子力発電所事故特別セッション,1-30 (pdf),福 井,http://www.aesj.or.jp/information/2012spr\_spsession /3-3miyata.pdf
- 東京電力(2012b)1~3号機格納容器からの放射性物質(セシ ウム)の1時間当たりの放出量.政府・東京電力中長期対 策会議資料.
- 鶴田治雄・司馬薫・佐藤陽祐・橋本真喜子・荒井俊昭・山田裕子・中島映至(2012a) 2.3 原発事故による放射性物質の 地表面沈着の広域分布とその要因.2011年秋季大会スペシャルセッション「放射性物質輸送モデルの現状と課題」 報告(近藤裕昭ほか).天気,59,241.
- 鶴田治雄・荒井俊昭・山田裕子・中島映至・渡邊明・長林久 夫・谷津俊幸・石田真士・篠原厚・横山明彦・桧垣正吾・ 本多照幸・日本地球惑星科学連合・日本地球化学会・日本 放射化学会連携緊急放射性物質調査研究チーム(2012b) 大気中の放射性物質の長期変化.第1回環境放射能除染研 究発表会講演要旨集, 4.
- 米沢仲四郎・山本洋一(2011)核実験監視用放射性核種観測網 による大気中の人工放射性核種の測定.ぶんせき,8,451 -458.