

## GSJ におけるエアロゾル中放射性核種の 2012 年観測と 環境要因の再検討

金井 豊<sup>1,\*</sup>・土井妙子<sup>2</sup>・榎本和義<sup>3</sup>

Yutaka Kanai, Taeko Doi and Kazuyoshi Masumoto (2013) Observation of radionuclides transported with aerosols at the GSJ in 2012 and re-examination of meteorological factors. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 64 (5/6), p. 139–150, 9 figs, 3 tables.

**Abstract:** In order to obtain the geochemical knowledge of material cycle as a tracer and to contribute the concern of inhabitant about safety after the accident of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP), the aerosol observation at the GSJ was continued and the new data in 2012 are reported in this paper.

The Cs radioisotope concentrations in the air decreased from April 2012 when the southerly wind often blew instead of northerly wind and rainy day increased. Several increases in the observed concentration were ascribed to the re-suspension of deposited particles by strong wind. The meteorological effect on variation of Cs-137 concentration in 2011 was re-examined in this study by the use of back trajectory analysis, which clarified that the air mass which had passed over the FDNPP arrived at the GSJ when the high concentration was observed. Measurement of the samples with known concentration showed that there seemed to be no problem on measurement system in this study.

**Keywords:** Aerosol, Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, Cs-134, Cs-137, Pb-210, Be-7, Geological Survey of Japan, 2012, Meteorological factor, Back trajectory

### 要 旨

物質循環のトレーサーとしての地球科学的知見を得ると同時に、福島第一原子力発電所事故後の地域住民の不安感の払拭にも貢献するため、地質調査総合センターにおいてエアロゾル中の放射性核種の観測を2012年も継続して行った。前報告(本誌, 63, 107-118)に引き続き2012年1月から2012年12月までの観測データを報告する。放射性Cs同位体のエアロゾル濃度は、2012年4月より低下しており、北よりの風から南よりの風に変わり降雨の日が多くなったことと良く対応していた。また、幾つかの濃度増加は強風時の再飛散によるものと推定された。前報告では2011年のエアロゾル中Cs-137濃度に対する気象の影響は不明瞭であったが、本研究では後方流跡線解析を適用することで、濃度変化が気象状況の影響を受けていたことをより明瞭に示すことができた。また、濃度既知の試料を本研究において再測定した結果、測定上の大きな問題点は無いものと考えられた。

### 1. はじめに

2011年3月11日14時46分に発生したM 9.0の東北地方太平洋沖地震とその後におそった大津波によって起きた東京電力株式会社福島第一原子力発電所(FDNPP)の事故により、環境中にヨウ素-131(I-131)やセシウム-137(Cs-137)などの大量の人工放射性核種が放出された(例えば、内閣官房内閣広報室, 2011a; 経済産業省, 2011)。地質調査総合センター(GSJ)では、環境中の放射性核種の動態を解明する研究の一環として、また、事故後の放射性核種のモニタリングを通じて地域住民の放射線被ばくに対する不安感を払拭するため、事故後20日経過した3月末から大気中エアロゾルの放射性核種の観測を開始し、2011年の観測結果を報告してきた(金井, 2012a; Kanai, 2012)。2011年12月には放出量が事故直後の1/1300万に収まり(経済産業省, 2011)、「冷温停止状態」宣言もなされたが(内閣官房内閣広報室, 2011b)、FDNPPでは依然として放射性核種の放出が続いていたため、2012年も継続して観測を行った。

<sup>1</sup> 地質情報研究部門 (AIST, Geological Survey of Japan, Institute of Geology and Geoinformation)

<sup>2</sup> 国立環境研究所 (National Institute for Environmental Studies)

<sup>3</sup> 高エネルギー加速器研究機構 (High Energy Accelerator Research Organization, KEK)

\* Corresponding author: Y. KANAI, Central 7, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan. E-mail: y.kanai@aist.go.jp

第1表 GSIにおけるエアロゾル採取日とエアロゾル中の放射性核種の濃度.

Table 1 Aerosol sampling dates and radioactive nuclide concentrations in aerosols collected at the GSI in 2012.

No.*	Start		Stop		Volume (m <sup>3</sup> )	Activity ( Bq / m <sup>3</sup> )			
	Y / M / D	H : M	Y / M / D	H : M		Cs-134	Cs-137	Be-7	Pb-210
						605 keV	662 keV	478 keV	46.5 keV
66	2011/12/28	14:27	2012/1/4	16:14	10187	5.3E-05 ± 3E-06	7.0E-05 ± 4E-06	3.6E-03 ± 6E-05	6.7E-04 ± 5E-05
67	2012/1/4	16:16	2012/1/12	11:05	11209	5.5E-05 ± 3E-06	7.1E-05 ± 4E-06	2.9E-03 ± 5E-05	4.2E-04 ± 5E-05
68	2012/1/12	11:08	2012/1/19	11:50	10122	9.5E-05 ± 4E-06	1.3E-04 ± 5E-06	4.7E-03 ± 7E-05	8.4E-04 ± 6E-05
69	2012/1/19	11:52	2012/1/26	14:26	10234	4.4E-05 ± 3E-06	4.8E-05 ± 4E-06	2.7E-03 ± 6E-05	7.4E-04 ± 5E-05
70	2012/1/26	14:27	2012/2/2	10:56	9869	8.6E-05 ± 4E-06	1.1E-04 ± 5E-06	3.5E-03 ± 6E-05	9.8E-04 ± 6E-05
71	2012/2/2	10:59	2012/2/10	13:35	11676	5.6E-05 ± 3E-06	7.7E-05 ± 4E-06	3.2E-03 ± 6E-05	5.7E-04 ± 5E-05
72	2012/2/10	13:59	2012/2/16	16:53	8814	1.2E-04 ± 5E-06	1.5E-04 ± 6E-06	5.0E-03 ± 8E-05	6.1E-04 ± 7E-05
73	2012/2/16	16:55	2012/2/24	15:05	11409	7.8E-05 ± 3E-06	9.5E-05 ± 4E-06	4.8E-03 ± 6E-05	8.2E-04 ± 5E-05
74	2012/2/24	15:06	2012/3/2	9:37	9751	9.0E-05 ± 4E-06	1.0E-04 ± 4E-06	4.8E-03 ± 7E-05	7.0E-04 ± 5E-05
75	2012/3/2	9:40	2012/3/8	14:42	8942	4.3E-05 ± 3E-06	4.5E-05 ± 4E-06	2.9E-03 ± 5E-05	6.1E-04 ± 6E-05
76	2012/3/8	14:44	2012/3/13	15:07	7223	2.8E-05 ± 3E-06	3.4E-05 ± 5E-06	1.7E-03 ± 6E-05	4.6E-04 ± 7E-05
77	2012/3/13	15:09	2012/3/22	15:01	12952	8.9E-05 ± 3E-06	1.2E-04 ± 4E-06	5.3E-03 ± 6E-05	8.8E-04 ± 5E-05
78	2012/3/22	15:03	2012/4/2	8:53	15469	6.4E-05 ± 3E-06	8.2E-05 ± 4E-06	4.9E-03 ± 6E-05	9.6E-04 ± 7E-05
79	2012/4/2	8:54	2012/4/13	7:42	15768	9.1E-05 ± 3E-06	1.3E-04 ± 3E-06	5.9E-03 ± 6E-05	6.4E-04 ± 4E-05
80	2012/4/13	7:45	2012/4/25	17:17	17852	2.4E-05 ± 2E-06	3.6E-05 ± 2E-06	4.0E-03 ± 5E-05	6.1E-04 ± 4E-05
81	2012/4/25	17:19	2012/5/7	11:44	16945	2.6E-05 ± 2E-06	3.5E-05 ± 2E-06	3.4E-03 ± 5E-05	4.5E-04 ± 4E-05
82	2012/5/7	11:45	2012/5/21	10:36	19674 1)	2.6E-05 ± 2E-06	3.5E-05 ± 2E-06	3.4E-03 ± 5E-05	4.5E-04 ± 4E-05
83	2012/5/21	10:38	2012/6/6	13:21	23203	2.4E-05 ± 1E-06	3.4E-05 ± 2E-06	5.4E-03 ± 4E-05	7.4E-04 ± 4E-05
84	2012/6/6	13:23	2012/6/20	10:26	19983	2.1E-05 ± 9E-07	3.0E-05 ± 1E-06	3.0E-03 ± 2E-05	3.0E-04 ± 2E-05
85	2012/6/20	10:29	2012/7/4	15:13	20444	2.5E-05 ± 1E-06	3.5E-05 ± 2E-06	1.8E-03 ± 2E-05	2.1E-04 ± 3E-05
86	2012/7/4	15:18	2012/7/19	8:44	21206	2.3E-05 ± 2E-06	2.7E-05 ± 2E-06	1.7E-03 ± 3E-05	3.1E-04 ± 4E-05
87	2012/7/19	8:46	2012/8/1	14:40	19074	1.9E-05 ± 1E-06	3.0E-05 ± 2E-06	2.1E-03 ± 2E-05	3.7E-04 ± 2E-05
88	2012/8/1	14:42	2012/8/15	10:52	19930	3.0E-05 ± 1E-06	4.6E-05 ± 2E-06	2.4E-03 ± 3E-05	3.2E-04 ± 3E-05
89	2012/8/15	10:54	2012/8/29	14:39	20385	1.9E-05 ± 8E-07	3.1E-05 ± 1E-06	2.9E-03 ± 2E-05	2.8E-04 ± 2E-05
90	2012/8/29	14:42	2012/9/13	14:37	21595	2.3E-05 ± 8E-07	3.4E-05 ± 1E-06	3.1E-03 ± 2E-05	3.6E-04 ± 1E-05
91	2012/9/13	14:39	2012/9/28	10:35	21356	1.8E-05 ± 1E-06	3.1E-05 ± 2E-06	3.6E-03 ± 4E-05	4.2E-04 ± 3E-05
92	2012/9/28	10:42	2012/10/11	15:03	18981	4.4E-05 ± 2E-06	7.5E-05 ± 2E-06	3.0E-03 ± 4E-05	4.0E-04 ± 4E-05
93	2012/10/11	15:10	2012/10/25	11:21	18853 2)	1.1E-05 ± 8E-07	2.3E-05 ± 8E-07	5.0E-03 ± 2E-05	8.5E-04 ± 2E-05
94	2012/10/25	11:23	2012/11/8	11:19	20156	1.3E-05 ± 8E-07	2.4E-05 ± 8E-07	4.6E-03 ± 2E-05	7.8E-04 ± 2E-05
95	2012/11/8	11:22	2012/11/28	9:47	28705	1.3E-05 ± 8E-07	2.4E-05 ± 9E-07	3.3E-03 ± 2E-05	5.9E-04 ± 2E-05
96	2012/11/28	9:50	2012/12/12	11:55	20285	1.6E-05 ± 2E-06	2.7E-05 ± 2E-06	2.9E-03 ± 4E-05	5.5E-04 ± 5E-05
97	2012/12/12	11:57	2012/12/26	10:43	20086	2.0E-05 ± 1E-06	3.7E-05 ± 2E-06	3.5E-03 ± 4E-05	6.1E-04 ± 4E-05

\* "No." continues from Table 1 in the previous report (Kanai, 2012a)

1) stopped on 20 May during electric power failure

2) stopped on 13 and 21 October during electric power failure

第2表 本研究で測定した国立環境研究所で2011年採取されたエアロゾル試料.

Table 2 Aerosol samples collected at the National Institute for Environmental Studies in 2011.

No.	Start	Stop	Velocity (l / m)	Volume (m <sup>3</sup> )	Number of ACF *
1	2011/3/15 14:39	~ 2011/3/15 17:34	600	105	1
2	2011/3/15 17:48	~ 2011/3/16 8:48	600	540	1
6	2011/3/18 10:16	~ 2011/3/20 9:55	600	1715	1
7	2011/3/20 10:00	~ 2011/3/22 9:54	600	1724	2
10	2011/3/24 11:15	~ 2011/3/25 10:43	600	845	2
14	2011/3/28 10:59	~ 2011/3/30 10:10	600	1698	2
18	2011/4/5 11:18	~ 2011/4/7 10:24	600	1691	2

\* ACF : Activated Carbon Fiber filter (for collection of gaseous iodine)

前報(金井, 2012a)では, エアロゾル中の人工放射性核種濃度が発生源での放出量変化や気象条件などによって変動すると考え検討を行ったが, サンプルング期間中の雨量や風向が影響している傾向は認められたものの, 明瞭にそれを示すことができなかった. そこで, 濃度の変動要因をより明らかにするため, 新たに後方流跡線解析の適用を試みてその一部を発表した(金井, 2013).

本報告では, 金井(2012a)以降に継続してエアロゾル中の放射性核種の監視を続けた2012年の観測結果と共に, 2011年の観測結果に対して後方流跡線解析を適用して詳細に検討した事項を報告する. 更に, 測定値の信頼性向上のために, 濃度既知試料を用いてデータの比較検討した結果についても報告する.

## 2. 試料と実験装置

### 2.1 試料採取

試料採取に用いた装置・用具等は, 前報(金井, 2012a; 2012b; Kanai, 2012)と同様で, 産業技術総合研究所地質調査総合センター第7事業所C-8棟の屋上(地上14 m)に設置されたハイボリュームエアサンプラー(HV-1000F, Shibata Scientific Co., Ltd.)を用いた. 2012年に観測されるエアロゾル中の人工放射性核種は, 放射性セシウム同位体(Cs-137, Cs-134)に限定されてきているので, その濃度レベルを考慮し, 試料採取時間は3月中旬あたりまでは1週間前後, その後は10日前後, 5月中旬あたりからは2週間前後に設定して採取した. 各試料の採取開始時間, 終了時間, 採取空気量などを第1表に示した. エアロゾルを採取したポリフロンフィルター(ADVANTEC製PF040; 約25 cm x 20 cm x 0.95 mm厚)は, 1/16のサイズに折りたたんでポリエチレン袋に封入し, 更にポリエチレン容器に入れて放射能測定に供した.

### 2.2 測定装置と測定試料

放射能測定装置も前報と同様で, 井戸型Ge半導体検出器を備えたMCA7600システムを使用した(金井, 2012a). 測定時間は, おおむね1日から4日間である. 測定結果は, 崩壊補正してサンプルングの開始時間における核種濃度として求めた. 測定試料には, GSJで採取した試料の他に, 今回は濃度既知の比較試料として, 国立環境研究所において採取された7試料も同様に測定を行った. 国立環境研究所では, 地上から10mの屋上において, 当所で使用したポリフロンフィルターと異なる石英繊維フィルター(ADVANTEC製QR-100; 約25 cm x 20 cm)を用い, 気体状放射性ヨウ素の採取に用いる活性炭フィルターとの2段階で, 毎分600 lの吸引速度で空気が採取された(国立環境研究所, 2011; 土井, 2012; Doi *et al.*, 2013). 主にGSJが観測を開始する以前に採取された試料で, その試料採取の詳細を第2表に示した. 更に, 参考のために日

本分析化学会(2012)で発行しているU8容器((外径50 mm  $\phi$  x 高さ55 mm)に入った放射能分析用土壌標準物質3試料(JSAC0471 ~ JSAC0473)も測定を行った.

## 3. 結果と考察

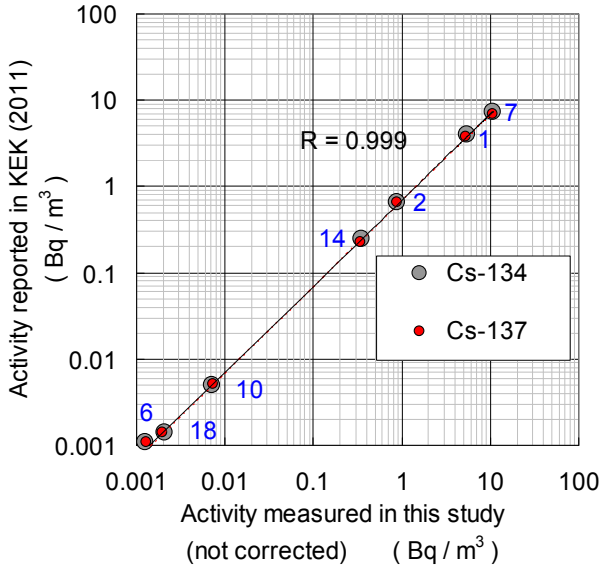
### 3.1 エアロゾル試料による測定値の相互比較

FDNPP事故後には, 数多くの放射能測定機関において環境試料の放射能測定がなされ, 多くの報告値がある. しかし, これらは測定手法や精度などに問題のあることが多く, 信頼性向上のために相互比較は有効な方法である.

国立環境研究所においては, 原発事故直後の2011年3月15日からエアロゾルを採取し, 高エネルギー加速器研究機構と共同で放射性核種濃度を報告した(国立環境研究所, 2011; 高エネルギー加速器研究機構, 2011; 土井, 2012; Doi *et al.*, 2013). そこで, 測定値の相互比較のために, 国立環境研究所において採取された濃度既知の7試料について, 当所の測定装置を用いて測定を行った. 測定時には採取後1年半近く経過していたことから短寿命核種はほとんど消失しており, 検出された核種は放射性セシウム同位体(Cs-134, Cs-137)と鉛-210に限定されていた.

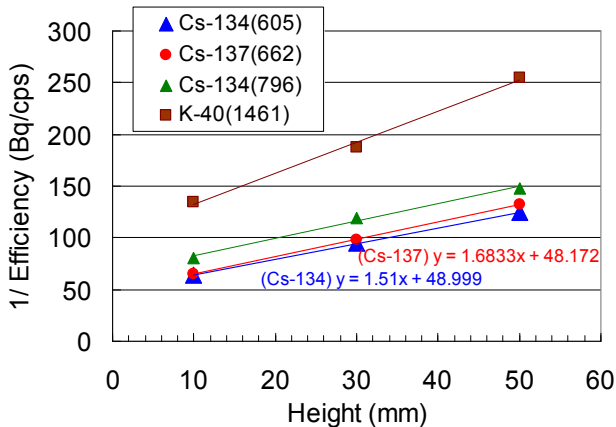
第1図には, 試料厚みによる自己吸収が未補正の当所で測定した形式的な放射性セシウム同位体の計測値と高エネルギー加速器研究機構で報告された定量値との関係を示した. Cs-134, Cs-137のいずれについても両者の測定値の相関係数が0.999と良い比例関係にあることから, 測定機器類や試料の保存に特に大きな問題は無いと考えられる. しかし, 未補正の形式的な計測値と高エネルギー加速器研究機構による定量値との間には平均約1.4倍の開きがある. 国立環境研究所でのフィルターは石英繊維フィルター製のものであり, 本装置での測定時における形状(フィルターの厚みなど)も当所で設定した観測試料の形状と異なっているため, 定量のためには形状等による補正を必要とする.

当所での測定の標準的な形状(1/16に折りたたみ)は, おおよそ15 mmの厚みであった(金井, 2012a). 一方, 国立環境研究所での試料は1/16にたたんだ時の厚みは平均で約7.5-9 mmであった. ここで, JSACから発行されているU8容器に入った標準試料を用いて算出した検出効率の試料量による変化を第2図に示した. 検出効率の逆数が試料の厚み(容器内の試料の高さ)と一次関係にあるとして(科学技術庁, 1992), 近似直線が示されている. 試料の違い(エアロゾルフィルターと土壌)と容器形状の違い(約5.5 cm x 6.5 cmの長方形底面と直径43 mmの円形底面)からこの第2図の関係を直接利用できないものの, これから試料の厚みが15 mmと7.5-9 mmの検出効率の違いを計算すると, その比は約1.2となった.



第1図 本研究での測定値とKEKでの報告値の関係. 数字は第2表の試料番号.

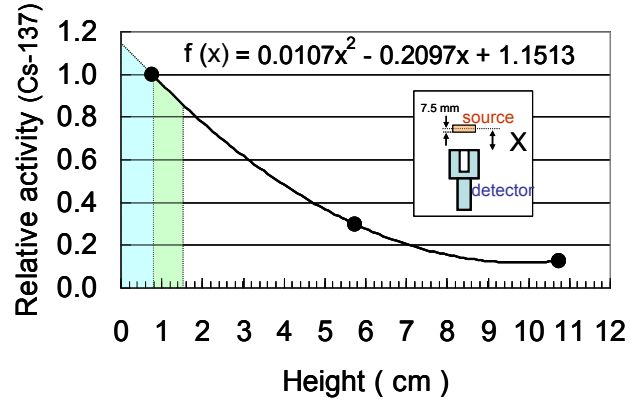
Fig. 1 Correlation between activities measured in this study and those reported by KEK. Number indicates the sample number in Table 2.



第2図 JSAC標準試料(U8容器)を用いて算出した検出効率と試料厚みとの関係.

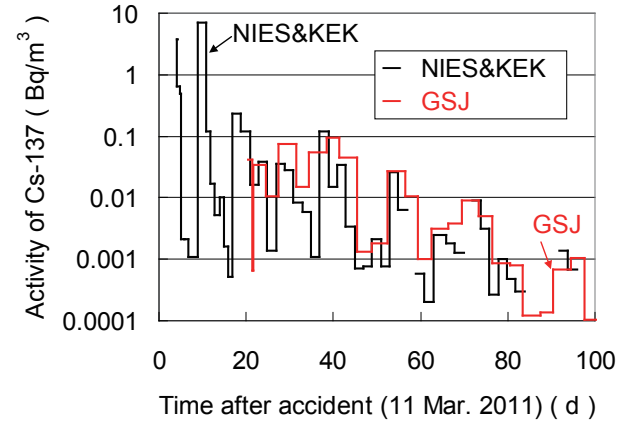
Fig. 2 Correlation between detection efficiency of standard sample provided by JSAC (U8 container) and sample thickness.

前報(金井, 2012a)では, 折りたたんだ試料を用い検出器からの距離と放射線強度の関係を報告した. 金井(2012a)のデータから, 厚みのある試料の中央を面線源と仮定して計算した, 実試料の面線源の相対的な放射線強度と距離(検出器の上に直接載せた場合を高さ7.5 mm, 相対放射線強度の基準としている)の関係を第3図に示した. 実際の厚みのある試料における検出効率



第3図 面線源と仮定してCs-137の相対検出効率と検出器からの距離の関係.

Fig. 3 Correlation between relative efficiency of Cs-137 and distance from detector.



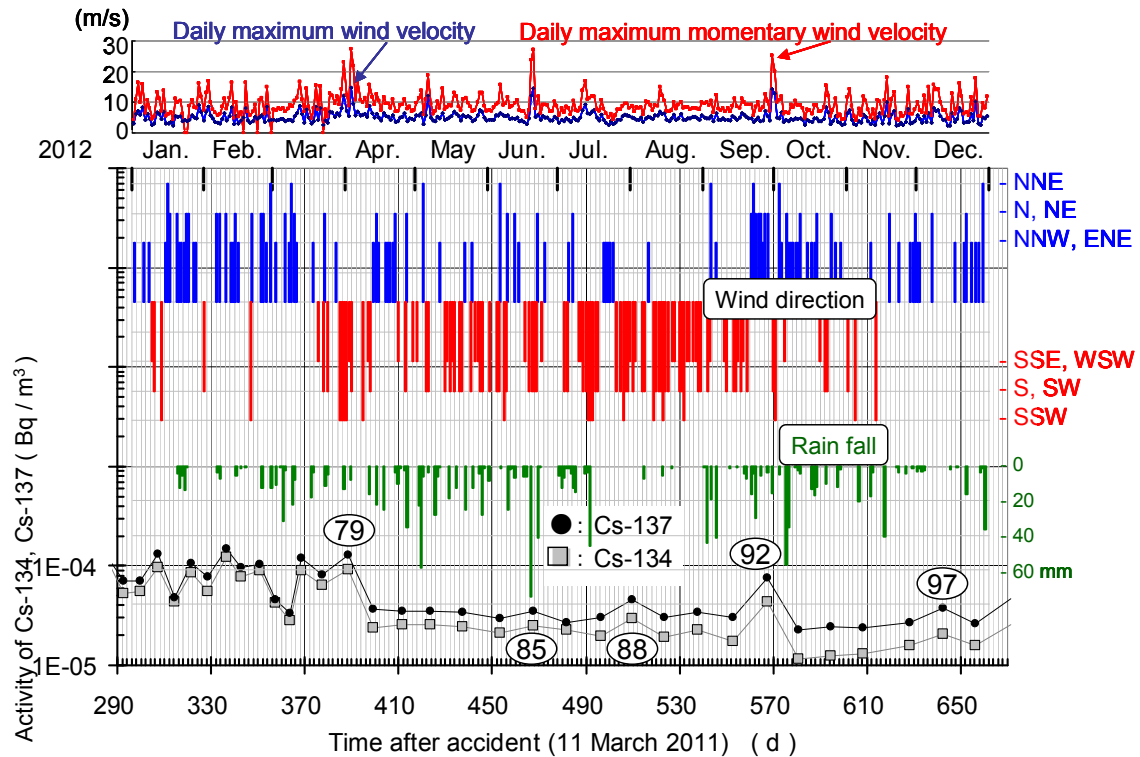
第4図 国立環境研究所で観測された2011年のCs-137濃度変化(“NIES&KEK”と表示; 高エネルギー加速器研究機構(2011)による)とGSJでの観測結果(“GSJ”と表示; 金井(2012a), Kanai(2012)による).

Fig. 4 Variations of Cs-137 concentrations in 2011 observed at the National Institute for Environmental Studies (denoted by “NIES&KEK”; from KEK(2011)) and the GSJ (denoted by “GSJ”; from Kanai(2012a) and Kanai(2012)).

は, その厚みまでの面線源の効率を積算して平均化したものと近似的に同じとみなせる (Average efficiency =

$$\frac{1}{x} \int_0^x f(x) dx )$$

ことから, 第3図を用いて15 mmと7.5-9 mmの相対検出効率の比を計算するとその比の値は約1.5-1.3, 約8 mmとすると約1.4となった. この値は,



第5図 GSJにおけるエアロゾル中の放射性セシウム同位体の2012年濃度変化と気象状況. 丸の中の数字は, 第1表の試料番号を示す.

Fig. 5 Variations of radioactive Cs in aerosols collected at the GSJ and weather condition in 2012. Number in circle denotes the sample number in Table 1.

未補正の形式的な計測値と高エネルギー加速器研究機構による定量値との比と整合的である. 折りたたんだ実試料と同じ面サイズの試料を用いて計算しているため, この比は実際の試料の厚みに起因する検出効率の違いをより正しく反映しているものと考えられる.

KEKでの報告値でも20%以下の不確かさが見積もられており (Doi *et al*, 2013), 標準線源における不確かさでも $\pm 3 \sim 6\%$ 程度 ( $k=2$ ) が一般的であることから (山田・中村, 2005), 試料厚みの誤差や測定の実験条件なども含めて放射線計測の全体の誤差を考えると, 当所での測定値は高エネルギー加速器研究機構での報告値とは大きくは矛盾していないと推定され, 本研究でのこれまでの報告値に測定上の大きな問題は無いものと考えられる.

第4図には, 国立環境研究所で採取観測された3月からのCs-137濃度の変化 (高エネルギー加速器研究機構, 2011) と, GSJでの観測結果 (金井, 2012a; Kanai, 2012) とを重ねて表示した. 試料採取地点や採取時間が異なるため, 大きな変動パターンは類似しているが, 細かい測定結果は異なっている. 同一観測地点でも3-4桁に及ぶような桁違いに大きな時間変動があることから, 高濃度エアロゾルを含むプルームが不均一で, 空間的にも時間的にも変動が大きかったために, 第4図に示されるように観測期間の長短や時間差・採取場所の違いなどで両

者間に相違ができたのではないかと考えられる.

### 3.2 2012年におけるエアロゾル中の人工放射性核種の観測結果

2012年1月から12月末までのGSJにおける観測結果を第1表及び第5図に示す. 2011年の観測結果は金井 (2012a) で報告済みである. 放射性セシウム同位体の濃度は, 2011年の10月あたりから  $10^{-4}$  Bq/m<sup>3</sup> 前後の濃度レベルを保ちながら変化してきたが, 2012年の4月中旬あたりから約半分のレベルに低下し, その後もそのレベルを保ってきている.

GSJで観測されたエアロゾル中の放射性セシウム濃度の変動要因としては, 冷温停止状態になったとはいえ未だ続く環境への放出量変化, FDNPPから拡散・移流を支配する気象条件, そして事故時の大量放出で飛散・沈積した粒子の再飛散と移動などが考えられる. 発生源であるFDNPPにおいては, 2011年12月に  $6 \times 10^7$  Bq/h, 2012年の9月時点でも  $1 \times 10^7$  Bq/hの放射性物質が放出されているとされている (経済産業省, 2011; 東京電力株式会社, 2012a). 東京電力株式会社によると, 4号機の原子炉建屋に燃料取り出し用カバー設置の本工事を4月17日に開始し, このカバーは放射性物質の放出拡散を防ぎ, 換気設備によって内部の放射性物質の大気への放出を低減で

きるとしているが(東京電力株式会社, 2012b), 完成は2013年度半ばを目指しており, また, 1-3号機からの大量の放出はあったものの(大原ほか, 2011; 鶴田・中島, 2012) 4号機は放出の可能性も指摘されたが(Stohl *et al.*, 2012) 災害時に停止中であったためにおそらく低いであろうから, これが観測値の低下の原因とは考えられない。ちなみに, 4号機南方のモニタリング地点MP8において, 4月16日の朝に42  $\mu\text{Sv/h}$ であった空間線量率が午後には8  $\mu\text{Sv/h}$ に低下していることが報告されているが(東京電力株式会社, 2012c), これも周辺域の森林伐採・表土除去・遮へい壁設置等の工事の影響とみられている(東京電力株式会社, 2012d)。4月に観測された濃度低下の原因としては, 工事に関連する事項は不明である。FDNPPにおいては, 既に1号機の原子炉建屋に放射性物質飛散防止のカバー掛け工事が2011年10月14日に行われ, 10月28日に排気設備等の工事も完了している(東京電力株式会社, 2011)。しかし, その前後においては, 周辺の放射線量の大幅な低下はみられず, また, GSJにおけるエアロゾルの観測データにおいても, 大きな変動はなくなったものの濃度低下は認められておらず(第8図を参照のこと), 当時の1号機では放射性物質の放出拡散は他の原子炉ほど多量ではなかったと推定される。

第5図には, つくば市館野における最大風速の風向・降雨などの気象状況(気象庁, 2012)も図示してある。これをみると, 4月以降は北よりの風が少なく南向きに変わり, 降雨が多い気候になっていることから, 4月以降の濃度低下はFDNPP経由した空気塊の到来が少なく, また降雨の影響で空气中濃度が低濃度となったためではないかと定性的に説明される。

2012年の9月末から10月にかけて濃度が一時的に上昇し(試料No.92), その後10月中旬からは以前よりも幾分低下している傾向がみられる。これに関しては, 2号機で9月9日にダクト損傷が報告されているが(東京電力株式会社, 2012e) 発電所内のモニタリング地点ではバックグラウンドが高いためか有意な変動は認められておらず, GSJでの濃度変化と時間的なずれもあることから今のところその影響は不明である。また, 3号機でも6月19日にダクト損傷が見つまっているが(東京電力株式会社, 2012f), GSJでの観測値の僅かな濃度変動(No.85)がこれに起因するかも不明である。

これらに関しては, 工事に関連する事項よりは, むしろ強風による再飛散を考慮した方が合理的である。つくばでは最大風速が10 m/sを超える気象状況の日が, 3月31日(風向(以下同様): SSW, 降雨有り), 4月3日(S), 5月6日(S, 降雨有り), 6月19日(S, 降雨有り), 6月20日(S), 9月30日(S, 降雨有り), 10月1日(SSW), 12月26日(NNW)であった(第5図参照)。12月26日を除くとほとんどが南よりの強風であり, FDNPPからの直接的な飛散は考えにくい。強風に伴って降雨もあるため土壌

が湿って飛散しにくい環境となるため単純に結論づけられないが, 4月初め(試料No.79)や微増ではあるが6月末(No.85), 9月末(No.92)等で観測された高濃度は, このような強風による近傍からの再飛散が一つの原因であった可能性が高い。

### 3.3 2012年におけるエアロゾル中の天然放射性核種

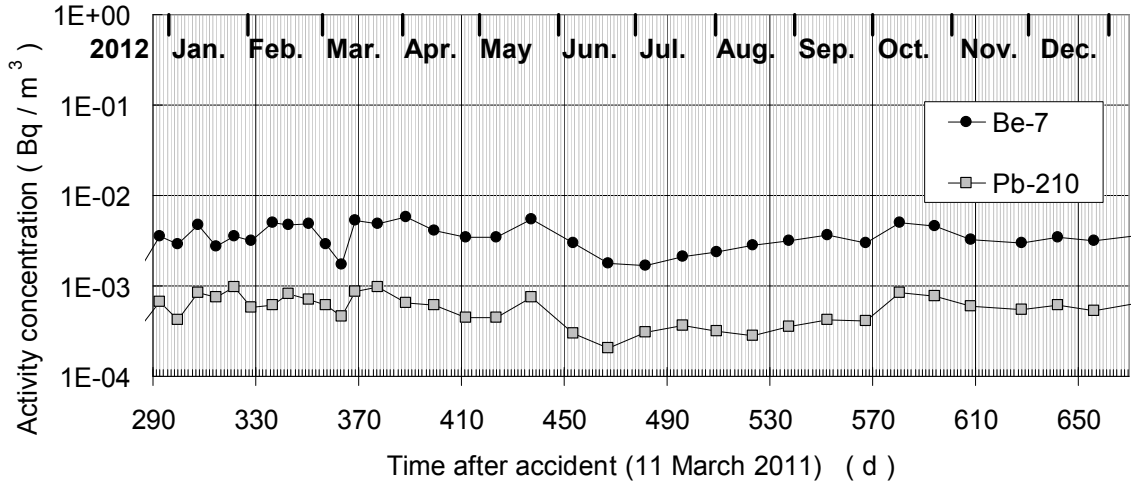
エアロゾル中には, 天然起源の核種としてウラン系列・トリウム系列の核種や大気上層部において宇宙線による酸素・窒素の核破砕反応によって生じるベリリウム-7(Be-7)が観測されるので, ここでは半減期の比較的に長いPb-210とBe-7について報告する。

2012年におけるPb-210とBe-7の観測結果を, 第6図及び第1表に示す。Pb-210は0.2–1.0  $\text{mBq/m}^3$ , Be-7は1.7–5.8  $\text{mBq/m}^3$ の範囲にあり, 2011年よりもその変動幅は小さかった。全体でも両者の間に1%の危険率で有意な相関が認められた(相関係数 $R=0.72$ )。両者の起源が異なるにもかかわらず高い相関を示すことから, エアロゾルに対する両者の挙動が類似していることが推定される。

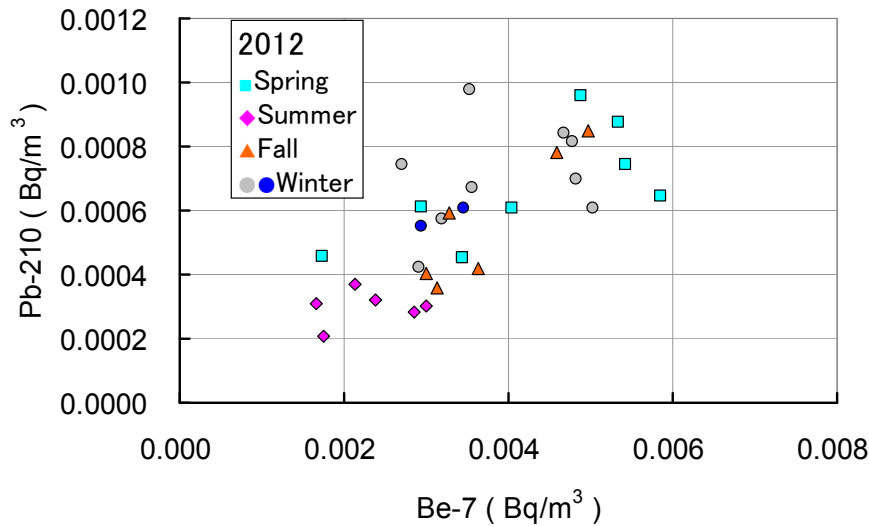
3月から5月までを春季, 6月から8月までを夏季, 9月から11月までを秋季, 12月から2月を冬季として2012年の測定結果を分類して図示すると, 第7図に示されるように両者とも夏季に低くなるパターンが認められた。全体の変動幅が小さく春季・秋季・冬季の広がりが大きいため, 2011年のように春季・秋季に高く夏季・冬季に低下するという明確なパターンは確認できなかった。しかし, 平均値で見ると, Pb-210は春季 $4.1 \text{ mBq/m}^3 >$  冬季 $3.8 \text{ mBq/m}^3 \approx$  秋季 $3.8 \text{ mBq/m}^3 >$  夏季 $2.3 \text{ mBq/m}^3$ , Be-7は春季 $0.64 \text{ mBq/m}^3 >$  冬季 $0.58 \text{ mBq/m}^3 \approx$  秋季 $0.57 \text{ mBq/m}^3 >$  夏季 $0.30 \text{ mBq/m}^3$ となっており, 平均として春季に高濃度であったことが確認できる。2012年は冬季のエアロゾル中の濃度が2011年よりも高い傾向にあったこと, 夏には低濃度の気団が優勢であったことなどが推定される。

このように, GSJで観測されたエアロゾル中の天然放射性核種であるPb-210とBe-7は, 冬季を除くとこれまでとほぼ同様の季節変動パターンを示していることが確認された。

ちなみに, 分析の信頼性向上のために行った3月に国立環境研究所で採取された試料における鉛-210の測定は, エアロゾル試料の採取時間(約3時間~2日)が短かったために検出限界以下である試料が多く, 2試料(第2表のNo.6, 18)についてのみ検出が可能であった。これらの測定値(未補正で $0.6\text{--}0.9 \text{ mBq/m}^3$ )は試料形状の補正を必要とするが, おおむねこれまでに報告してきたGSJでの採取試料の濃度範囲( $0.2\text{--}1.0 \text{ mBq/m}^3$ ; 本研究,  $0.2\text{--}3.2 \text{ mBq/m}^3$ ; 金井, 2012a)にあり, 前報(金井, 2012a)と同様に原発事故によってエアロゾル中の鉛-210濃度は影響を受けないことを裏付ける結果が得られた。



第6図 GSJにおけるエアロゾル中のPb-210, Be-7の2012年濃度変化。  
 Fig. 6 Variations of Pb-210 and Be-7 in aerosols collected at the GSJ in 2012.



第7図 2012年におけるエアロゾル中のPb-210とBe-7の季節変動。  
 Fig. 7 Seasonal variation of Pb-210 and Be-7 in aerosols collected in 2012.

### 3.4 後方流跡線解析によるエアロゾル濃度変動の検討

2011年のエアロゾル中の人工放射性核種濃度、特に放射性セシウム同位体(Cs-137, Cs-134)濃度は、第8図に示すように低下傾向にあるものの大きな変動を示し、これらの変動は9月末までにおおよそ12回ほど確認された。その観測試料番号、観測期間などを第3表に示した。濃度変動は発生源での放出量変化や気象条件などの影響を受けると考えられ、前報(金井, 2012a)では雨量や風向を検討した結果、これらが影響している傾向は認められたものの、明瞭に示すことができなかった。

ところで物質移動を伴う気象モデルでは、時々刻々変

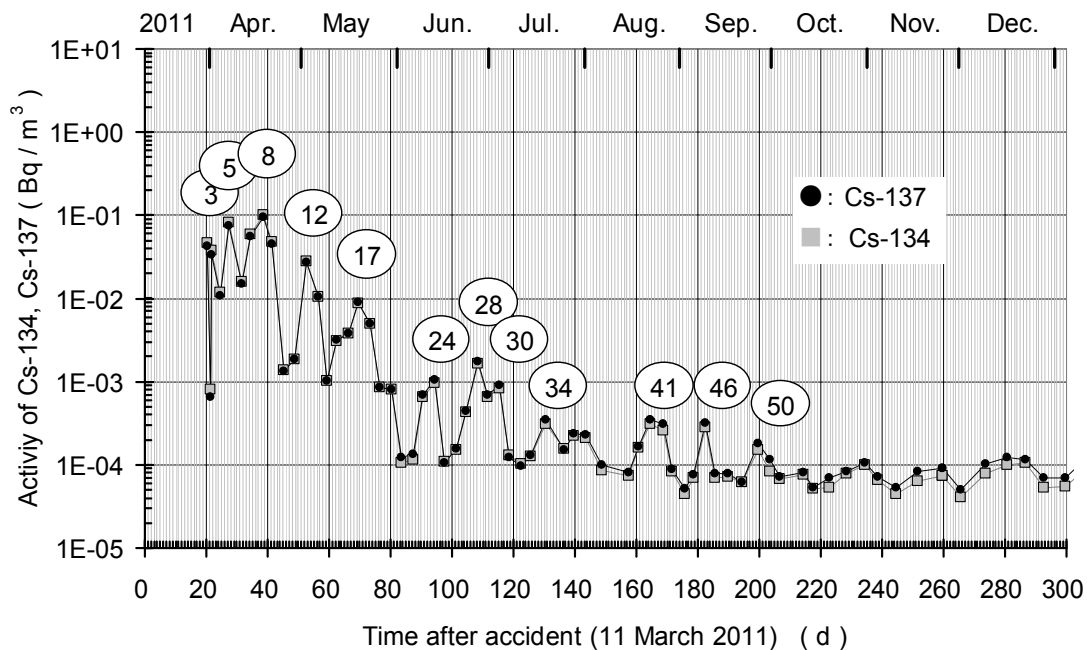
動する風向、風速などの気象条件を考慮して、ある空気塊が大気の流れによって移動する軌跡である「流跡線」を利用するのが便利である。その解析手法には、ある地点の空気塊がその後各地の風速風向によってどのような経路で輸送されるのかを推測する「前方流跡線解析」と、ある地点に到達した空気が、風の流れをさかのぼりどのような経路を通ってきたかを推測する「後方流跡線解析」とがあり、定点での汚染物質の起源を探るような場合には後者の解析手法が有効であるため、本研究にそれを適用した。

本研究における後方流跡線解析には、NOAA HYSPLIT model (Draxler and Rolph, 2012 ; Rolph, 2012)を利用し

第3表 2011年にGSJで高濃度となった観測期間と、FDNPPを経由した空気塊がGSJを通過したとみられる推定日。

Table 3 Supposed transit date when the air mass via the FDNPP passed over the GSJ in 2011.

No.	Sample collection (JST)				Supposed transit date of high content aerosol at the GSJ	
	Start		~	Stop		
	M/D	H:M		M/D		H:M
3	4/1	16:03	~	4/4	9:44	4/3
5	4/7	9:50	~	4/11	9:50	4/10
8	4/18	10:31	~	4/21	10:32	4/19-21
12	5/2	11:42	~	5/6	9:20	5/3-5
17	5/19	10:27	~	5/23	10:07	5/22-23
24	6/13	10:39	~	6/16	16:19	6/15
28	6/27	10:02	~	6/30	10:34	?
30	7/4	10:13	~	7/7	10:45	7/6
34	7/19	10:47	~	7/25	10:22	7/24-25
41	8/22	11:58	~	8/26	15:12	8/22
46	9/9	15:09	~	9/12	17:19	?
50	9/26	13:13	~	9/30	13:28	9/27-29

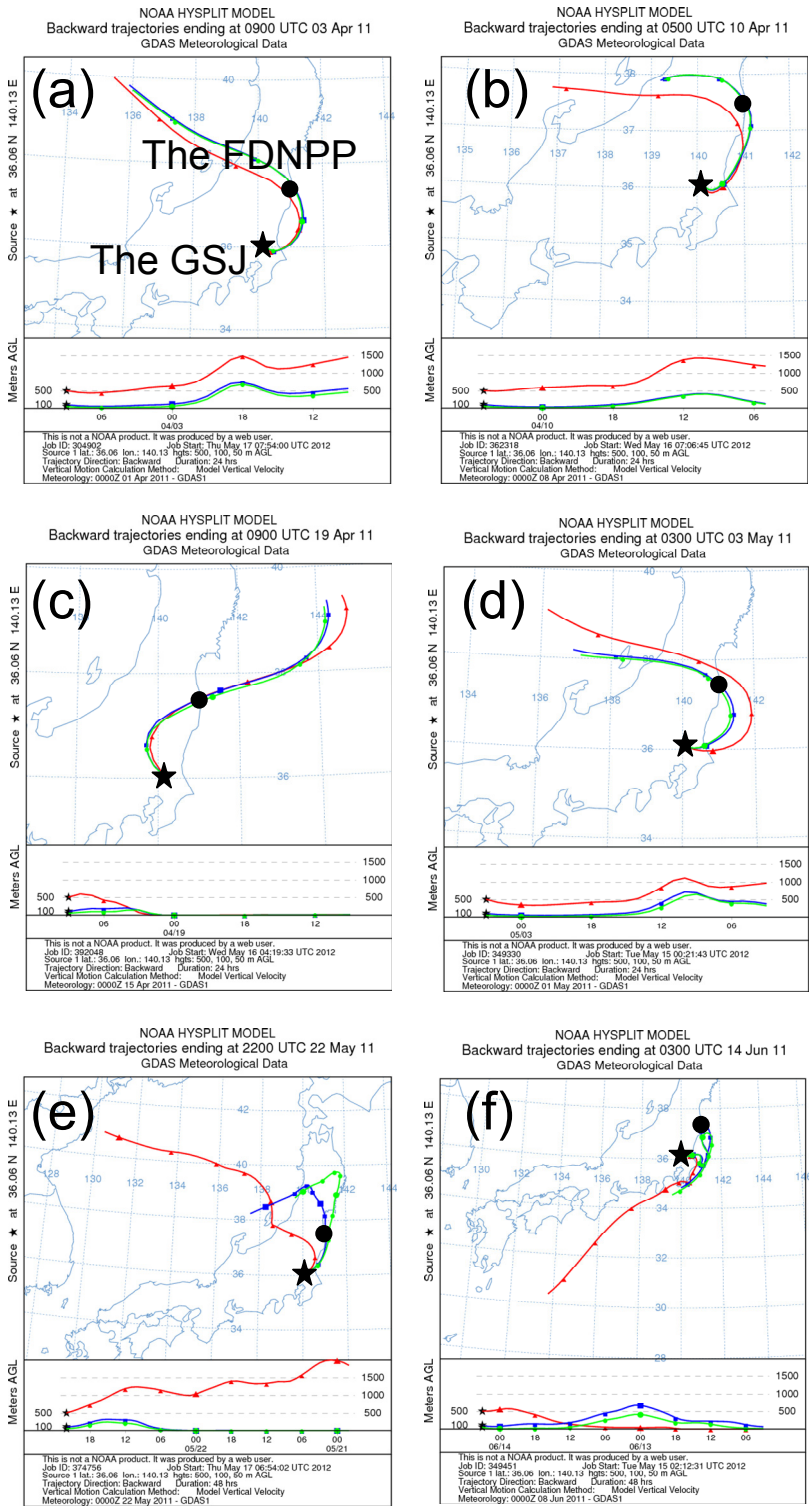


第8図 GSJにおける2011年放射性Cs同位体の観測値の変動(金井, 2012a). 丸の中の数字は試料番号を示す。  
 Fig. 8 Variation of radioactive Cs concentrations at the GSJ in 2011 (Kanai, 2012a). Number in circle indicates the sample number.

て気象との関係を検討した。Air Resources Laboratory (ARL) のウェブページ (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>) から、「HYSPLIT-WEB (Internet-based) Run HYSPLIT Trajectory Model」に進み、各種条件を選択して計算させ図化した。気象データとしては、「GDAS(global, 2006-present)」を用い、鉛直移動計算方法として気象学モデルの鉛直速度場を用いる「Model Vertical Velocity」を

選択し、地表から500 m, 100 m, 50 mの高さ条件とした。対象とした事象は、第8図と第3表で示した高濃度ピークとなった12回の観測期間で、この期間にGSJ(緯度: 36.06°N, 経度: 140.13°E)に到達した空気塊がFDNPPを通過してきたかを検討した。その結果、高濃度となった12回のうち、試料番号28と46を除き、その多くはFDNPP付近の上空を経由した気団が観測期間中にGSJを通過し





第9図 逆流跡線解析の結果の一例。★：GSJ，●：FDNPP。

- (a) 18:00 JST on 3 April 2011
- (b) 14:00 JST on 10 April 2011
- (c) 18:00 JST on 19 April 2011
- (d) 12:00 JST on 3 May 2011
- (e) 7:00 JST on 23 May 2011
- (f) 12:00 JST on 14 June 2011
- (g) 15:00 JST on 6 July 2011
- (h) 0:00 JST 24 July 2011
- (i) 12:00 JST on 22 August 2011
- (j) 12:00 JST on 27 September 2011

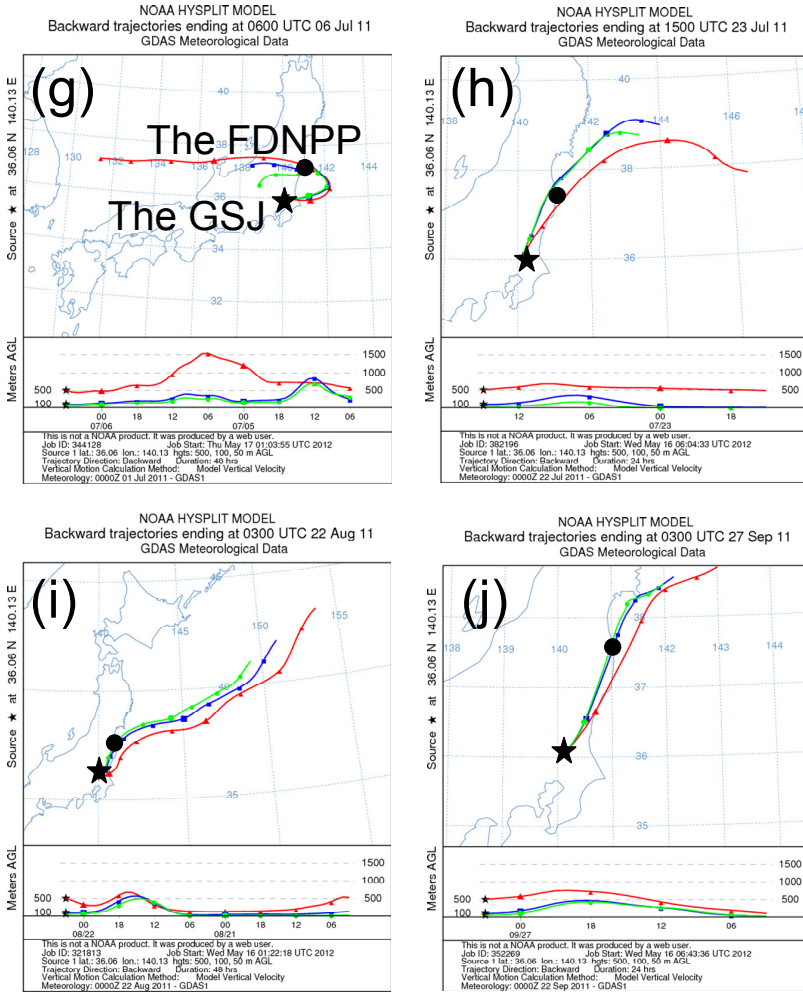
Fig. 9 Examples of back trajectory analysis. ★：GSJ，●：FDNPP.

- (a) 18:00 JST on 3 April 2011
- (b) 14:00 JST on 10 April 2011
- (c) 18:00 JST on 19 April 2011
- (d) 12:00 JST on 3 May 2011
- (e) 7:00 JST on 23 May 2011
- (f) 12:00 JST on 14 June 2011
- (g) 15:00 JST on 6 July 2011
- (h) 0:00 JST 24 July 2011
- (i) 12:00 JST on 22 August 2011
- (j) 12:00 JST on 27 September 2011

ていたことが判明した。この推定されたGSJの通過日を第3表に示した。また、この観測期間における逆流跡線解析の結果の一例を第9図に示した。そのほとんどは北よりの風に乗ってGSJに到達しているが、(f)のように風向変化で一度南下した空気塊が南よりの風で到達する場合もあることが示された。また、モデル計算では地球規模での気象データを使用しているが、非常にローカルな

気象変動もありうるので、今回の後方流跡線解析で解明できなかったケースではそうしたローカルな気象が影響していたのかも知れない。

前回解析したように濃度変化に降雨の影響もあるだろうが(金井, 2012a), エアロゾルは空気塊と共に移動するので、大きな放出源であるFDNPP付近の上空を經由した気団が観測期間中にGSJを通過したためにGSJでの観



第9図 続き。  
 逆流跡線解析の結果の一例。★：GSJ，  
 ●：FDNPP。  
 (a) 18:00 JST on 3 April 2011  
 (b) 14:00 JST on 10 April 2011  
 (c) 18:00 JST on 19 April 2011  
 (d) 12:00 JST on 3 May 2011  
 (e) 7:00 JST on 23 May 2011  
 (f) 12:00 JST on 14 June 2011  
 (g) 15:00 JST on 6 July 2011  
 (h) 0:00 JST 24 July 2011  
 (i) 12:00 JST on 22 August 2011  
 (j) 12:00 JST on 27 September 2011

Fig. 9 continued.  
 Examples of back trajectory analysis. ★：  
 GSJ, ●：FDNPP.  
 (a) 18:00 JST on 3 April 2011  
 (b) 14:00 JST on 10 April 2011  
 (c) 18:00 JST on 19 April 2011  
 (d) 12:00 JST on 3 May 2011  
 (e) 7:00 JST on 23 May 2011  
 (f) 12:00 JST on 14 June 2011  
 (g) 15:00 JST on 6 July 2011  
 (h) 0:00 JST 24 July 2011  
 (i) 12:00 JST on 22 August 2011  
 (j) 12:00 JST on 27 September 2011

測値が高濃度となったことが、このような逆流跡線解析の結果から明らかにすることができた。

#### 4. まとめ

大気中エアロゾルの放射性核種のモニタリングは、物質循環や堆積物への物質移動のトレーサーとして地球科学的に有用であるばかりでなく、地域住民の放射能被曝に対する不安感の払拭、万が一の場合の線量評価にも貢献する。このため、著者らは2011年に引き続き2012年も大気中のエアロゾルの放射性核種の観測を続けた。

原発事故で環境中に放出された人工放射性核種のCs-137は、2011年10月あたりから $10^{-4}$  Bq/m<sup>3</sup>前後を推移してきたが、2012年4月中旬あたりから約半分のレベルに低下し、その後もそのレベルを保ってきている。これは北よりの風から南よりの風になり降雨の日が多くなったことと良く対応しており、2012年の変動はFDNPPでの工事等の影響よりも気象条件や再飛散が大きく作用していたものと考えられる。また、天然放射性核種であるPb-210とBe-7は、2011年よりも変動幅が幾分小さく冬季

が高濃度であった点を除くと、これまでとほぼ同様の季節変動パターンを示した。

2011年の観測で放射性セシウム同位体濃度の比較的大きなピークが期間中約12回確認されたが、NOAA HYSPLIT modelを利用して逆流跡線解析を行い気象との関係を再検討したところ、その多くはFDNPP付近の上空を經由した気団であり、降雨の影響も受けたことが判明した。

また、濃度既知の試料を本研究において再測定して相互比較した結果、これまでの報告値に測定上の大きな問題点はないものと考えられた。

謝辞：本論文をとりまとめる上で、研究環境安全本部環境安全管理部の上岡 晃氏及び資源環境研究部門の月村勝宏氏から貴重なコメントをいただいた。ここに記して、深く感謝申し上げる。

## 文 献

- 土井妙子(2012) 放射線 第3講－大気中の放射能の測定・モニタリング－. 大気環境学会誌, **47**, A29-A36.
- Doi, T., Masumoto, K., Toyoda, A., Tanaka, A., Shibata, Y. and Hirose, K. (2013) Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: characteristics of the radionuclides derived from Fukushima. *J. Environ. Radioact.*, **122**, 55-62.
- Draxler, R.R. and Rolph, G.D. (2012) HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- 科学技術庁(1992) 放射能測定法シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリ－, 日本分析センター発行, 平成4年改訂(1992).
- Kanai, Y. (2012) Monitoring of aerosols in Tsukuba after Fukushima Nuclear Power Plant incident in 2011. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 33-37.
- 金井 豊(2012a) エアロゾルにより輸送された放射性核種の観測(2011)－福島第一原子力発電所事故に関連して－. 地質調査研究報告, **63**, 107-118.
- 金井 豊(2012b) エアロゾル中の人工放射性核種に関する観測・測定の試み. Proceedings of the 13th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings **2012-6**, 108-116.
- 金井 豊(2013) 地質調査総合センターにおけるエアロゾル中放射性核種の継続観測. 第14回「環境放射能」研究会要旨論文集, P-30.
- 経済産業省(2011) 添付2 福島第一原子力発電所における現状の放射性物質の放出量評価及び敷地境界における被ばく線量評価について, <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/111216e.pdf> (2013/4/25)
- 気象庁(2012) 気象統計情報, 過去の気象データ検索, <http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php> (2013/4/25)
- 国立環境研究所(2011) I-7. (1) つくば市内における放射性物質及び放射線の測定, 1. 高エネルギー加速器研究機構との協力による, 大気中の放射性物質の測定, <http://www.nies.go.jp/shinsai/1-7-1.html> (2013/4/25)
- 高エネルギー加速器研究機構(2011) 環境放射線の測定結果, (1)つくば市で観測された空気中の放射性物質の種類と濃度の測定結果, <http://www.kek.jp/ja/Research/ARL/RSC/Radmonitor/> (2013/4/25)
- 内閣官房内閣広報室(2011a) VI. 放射性物質の環境への放出. 内閣官房内閣広報室, <http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/pdf/06-kankyo.pdf> (2013/4/25)
- 内閣官房内閣広報室(2011b) 平成23年12月16日 野田内閣総理大臣記者会見. 内閣官房内閣広報室, <http://www.kantei.go.jp/jp/noda/statement/2011/1216kaiken.html> (2013/4/25)
- 日本分析化学会(2012) 放射能分析用土壌標準物質の頒布開始について, <http://www.jsac.jp/sites/default/files/20120605.pdf> (2013/4/25)
- 大原利真・森野 悠・田中 敦(2011) 福島第一原子力発電所から放出された放射性物質の大気中の挙動. 保健医療科学, **60**, 292－299.
- Rolph, G.D. (2012) Real-time Environmental Applications and Display sYstem (READY) Website (<http://ready.arl.noaa.gov>). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhart, J.F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A. and Yasunari, T.J. (2012) 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. *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 2313–2343.
- 東京電力株式会社(2011) プレスリリース 2011年「福島第一原子力発電所1号機原子炉建屋カバー工事の完了について」. 平成23年10月28日, 東京電力株式会社, <http://www.tepco.co.jp/cc/press/11102804-j.html> (2013/4/25)
- 東京電力株式会社(2012a) 東京電力(株)福島第一原子力発電所1～4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ進捗状況(概要版), [http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/m120924\\_06-j.pdf](http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/m120924_06-j.pdf) (2013/4/25)
- 東京電力株式会社(2012b) プレスリリース「2012年福島第一原子力発電所4号機燃料取り出し用カバー計画概要と本工事の着手について」. 平成24年4月16日, 東京電力株式会社, [http://www.tepco.co.jp/cc/press/2012/1201925\\_1834.html](http://www.tepco.co.jp/cc/press/2012/1201925_1834.html) (2013/4/25)
- 東京電力株式会社(2012c) 福島第一原子力発電所構内での計測データ 2012年 | アーカイブ. 2012年4月16日 福島第一原子力発電所の現状について【午後11時50分時点】, <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/data/2012/index-j.html> (2013/4/25)
- 東京電力株式会社(2012d) 福島第一原子力発電所構内でのモニタリングポスト計測状況. お知らせ, <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/index-j.html> (2013/4/25)
- 東京電力株式会社(2012e) 福島第一原子力発電所 2号機の現状, 原子炉格納容器ガス管理システムのダクト損傷について(10月15日追記), <http://www.tepco>

co.jp/nu/fukushima-np/fl/genkyo/fp\_reactor/fp\_no02/  
index.html (2013/4/25)

東京電力株式会社(2012f) 福島第一原子力発電所 3  
号機の現状, 原子炉格納容器ガス管理システムの  
ダクト修理作業について, [http://www.tepco.co.jp/nu/  
fukushima-np/fl/genkyo/fp\\_reactor/fp\\_no03/index.html](http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/genkyo/fp_reactor/fp_no03/index.html)  
(2013/4/25)

鶴田治雄・中島映至(2012) 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. 地球化学, **46**, 99-  
111.

山田崇裕・中村吉秀(2005) 放射能標準体積線源に用い  
るポリプロピレン製U8容器の検討. Radioisotopes,  
**54**, 105-110.

( 受 付 : 2013年5月1日 ; 受 理 : 2013年8月21日 )