

厚生労働科学研究費補助金（労働安全衛生総合研究事業）

総括研究報告書

除染等作業での内部被ばく防止措置等の最適化のための研究

研究代表者 甲田茂樹 独立行政法人労働安全衛生総合研究所 首席研究員

研究要旨

本研究の目的は、福島第一発電所の事故により放射性セシウムで汚染された土壤の除染処理業務を対象に、作業者がばく露する土壤粉じんの濃度測定を実施し、内部被ばくに関与する粉じんばく露を評価することである。具体的には、除染業務を実施する土質の違い等によりK値が影響を受けるのかどうか、粉じん濃度と比放射能を測定することで空气中放射性物質の推定の精度を検証する。そして、粉じんの粒度別の比放射能を測定することで、粉じんばく露に伴う内部被ばくの防止に効果的な対策が存在するのかについての知見を得る。

帰還困難区域にある常磐高速道工事現場での除染業務において土壤粉じんの濃度を測定し、内部被ばくに関与する粉じんばく露を評価した。除染業務にあたる2名の作業者の協力を得て、IOM サンプラーを用いてインハラブル粉じん（粒径は100 μ m以下）の個人ばく露測定を行い、さらにIOM サンプラーやアンダーセンサンプラーを用いて定点の粉じんばく露及びその粒度分布を測定評価した。K値はIOM サンプラーとデジタル粉じん計LD-5での併行測定で求めた。粉じん捕集にはフッ素樹脂処理ガラス繊維フィルター（T60A20）を用い、捕集前後のフィルター重量をウルトラマイクロ天秤により秤量した。ゲルマニウム半導体検出器を用いたセシウム137濃度(Bq/g)の測定は、日本原子力研究開発機構・東海研究開発センター・核燃料サイクル工学研究所で実施した。また、汚染土壤を研究所に持ち帰って、実験室レベルで再発じん実験を行い、粉じん濃度やその粒径分布、さらには、セシウム137濃度の測定評価を実施した。土壤の汚染度合いによる違いを検討するため、高濃度汚染が予想される福島第一原発近傍の土壤も研究所に持ち帰って同様の測定評価を実施した。再発じん実験には今回の研究専用に土壤再発じん装置（DF-3、柴田科学製）を作成して用いた。現場等から持ち帰った汚染土壤はあらかじめふるい等で106 μ m以下に前処理したものを再発じん実験装置に投入し、粉じんの測定評価にはIOM・アンダーセン・NWPS245・LD-6Nなどを用いた。常磐高速道工事現場と福島第一原発近傍の土壤については、粉末X線回折装置（RINT2200、リガク）を用いた鉱物分析と分析透過電子顕微鏡（EDS検出器装着のJEM-2100、日本電子）による観察を行い、土壤の性質等を比較検討した。

常磐高速道工事現場の現場調査で得られた個人ばく露測定結果をみると、0.67-1.82mg/m³で、セシウム137濃度は124-241Bq/gであった。今回実施し得た現場調査は重機による除染業務であり、過去に申請者たちが測定してきた除染業務に比べて大がかりなものであることから、通常の除染業務よりは土壤の発じんの程度が強いことが予想され

た。また、今回測定された例数は限られてはいるものの、粉じん濃度除染作業時のばく露粉じん濃度とセシウム 137 濃度との相関が認められなかった。常磐高速道の工事現場と福島第一原発近傍で採取した汚染土壌の再発じん実験結果から、粉じんの粒径分布等とセシウム 137 濃度との関係を検討した結果、粉じんの粒径の大きさによって両者の間に異なる関係が存在することが確認された。すなわち、粉じんの比表面積が小さい場合には、セシウム 137 濃度との間に比例関係を認めたが、比表面積が大きくなると、セシウム 137 濃度と比表面積との関係は無関係となり、粒径の大きさによって粉じんと放射性セシウム含有鉱物との関係が異なる状態にあることが示唆された。また、除染作業における K 値についても、昨年度の非汚染土壌を用いた模擬作業や除染作業の現場で測定調査から、得られた K 値は 0.0039-0.0044 mg/m³/cpm であった。ちなみに、投入された土壌サンプルが 106μm 以下と均一な試料で実施した再発じん実験で得られた K 値も 0.0041-0.0111 mg/m³/cpm であった。粉じん濃度が 10mg/m³ を下回る環境では、除染電離則で想定していた値に比べて、K 値はさらに一桁低い値であり、土壌の違い等によってもさほど影響されないことがわかった。

除染業務の際の粉じんばく露を評価する際に質量濃度変換係数（K 値）が用いられるが、この K 値を活用したリスク管理が空気中の放射性物質濃度を推定する指標として活用できるか検討した結果、困難であることが判明した。土壌粉じんにセシウム 137 がどのように付着しているのかを検討した結果、粉じんの比表面積が小さい場合にはセシウム 137 濃度との間に比例関係を認めたが、粉じんの比表面積が大きくなるとセシウム 137 濃度と比表面積との関係は無関係となり、粒径の大きさによって粉じんと放射性セシウム含有鉱物との関係が異なる状態にあることがわかった。今回の現場での測定結果などを参考にすると、粉じん濃度が 10mg/m³ を下回る環境では、除染電離則で想定していた値に比べて、K 値はさらに一桁低い値であり、土壌の違い等によってもさほど影響されないことがわかった。

研究協力者指名・所属研究機関名及び所属研究機関における職名

菅野 誠一郎	独立行政法人労働安全衛生総合研究所	特任研究員
篠原 也寸志	独立行政法人労働安全衛生総合研究所	上席研究員
鷹屋 光俊	独立行政法人労働安全衛生総合研究所	上席研究員
中村 憲司	独立行政法人労働安全衛生総合研究所	研究員
山田 丸	独立行政法人労働安全衛生総合研究所	任期付研究員

A. 研究目的

除染作業者の健康障害防止を目的として

制定された除染電離則では、汚染土壌の比放射能と除染作業に伴う粉じん濃度を基準として内部被ばくのリスク管理を行っている。しかしながら、これらが空気中の放射性物質濃度を推定する指標として適切であるかどうかを示すデータはない。本研究は、除染作業者の内部被ばくを防止するため、除染作業時に発生する粉じんに含まれる放射性物質濃度の測定・評価を簡潔かつ適正に実施できるに資するための基礎的なデータ等を収集することを目的としている。

作業環境測定における粉じん濃度の測定は、粒径がレスピラブルのレベルの粉じん（以下、レスピラブル粉じんとする）の質量濃度測定とデジタル粉じん計による相対濃度測定の併行測定から質量濃度変換係数（K 値）を定め、粉じん計の指示値を質量濃度に換算するが、内部被ばくを考慮するためにはより大きな粒径のインハラブルのレベルの粉じんの（以下、インハラブル粉じんとする）測定を行う必要がある。申請者らは、過去に厚生労働省より要請された行政要請研究「除染作業における内部被ばく線量管理のための浮遊粉じん濃度評価手法」（労働安全衛生総合研究所）で実施した現地調査及び模擬作業実験により、除染作業時に土壌から発生するインハラブル粉じんに対する K 値を定める方法について検討を行った。現在のところ、除染作業時のインハラブル粉じんに対する K 値の推定は可能であろうという中間的な結果を得ている。ただし、内部被ばくのリスクを管理するためには、基準となる粉じん濃度 $10\text{mg}/\text{m}^3$ 前後の高濃度粉じんが模擬作業実験データのみであることや、粉じん測定を対象とした調査を行ったため比放射能に関

するデータがないという点で不十分である。

本研究では申請者らが実施してきた先行研究結果を踏まえて、汚染地域内における除染作業を対象にして、汚染土壌由来の粉じん及び粉じんに含まれる放射性物質濃度を測定することにより、以下の 2 点を明らかにしたいと考えた。放射能汚染の度合いや土質の違い等により K 値が影響を受けるのかどうかについて、実際の除染作業現場における測定から検証する。粉じん濃度と比放射能を測定することにより、空气中放射性物質の推定の精度を検証する。また、粉じんの粒度別の比放射能を測定することにより、内部被ばく防止にどの粒径の粒子の対策を重点に行うべきかについての知見を得る。

しかしながら、研究初年度には、高濃度の放射線に汚染されている地域、すなわち、帰還困難区域における除染処理作業の測定評価や模擬作業実施が困難であったため、除染等作業あるいは除染業務を模した模擬作業を対象とした粉じん測定等、すなわち、除染作業時に発生する土壌粉じんの質量濃度測定（インハラブル粉じんとレスピラブル粉じん）および粉じん計による併行測定の実施など、測定評価系の確立を研究初年度に行った。現場での測定は中程度の汚染土壌の除染業務を実施している地域（福島県楢葉町）において実施した。さらには、土壌の性質の違いが K 値に影響を与えるかどうか検討するために、非汚染土壌を用いた除染業務の模擬実験を行い、発生した土壌の粉じん濃度及び粉じんの粒径分布等を測定評価した。これらの研究初年度の成果を踏まえて、関係省庁及び所在する市町村

の協力を得て、帰還困難区域における除染作業時に発生する粉じん量の測定や粉じんに含まれる放射性物質濃度の測定を実施する。さらには、帰還困難区域において高濃度に汚染された土壌の除染業務はさほど頻繁に行われているわけではなく、同地域への立入りが頻繁に行えないことなどから、汚染土壌自体を研究所に持ち込み、再発じん装置を用いたラボレベルの実験を実施して、粉じん量の測定や粉じんに含まれる放射性物質濃度の測定を行うことで、除染作業時の内部被ばくを評価するために必要なデータを得ることとした。

B. 研究方法

(1) 除染等作業での内部被ばくの推定

重機を用いたセシウム汚染土壌除染作業時における粉じん及び放射能濃度の測定評価

除染作業時の内部被ばくの程度を推定するためには、除染作業者が放射性セシウムを含む土壌の吸入による内部被ばくの程度、すなわち、放射能汚染された土壌粉じんばく露の定量的な評価を実施する必要がある。

今回実施した調査研究は、放射能に汚染された土壌を重機によってはぎ取るタイプの除染作業に注目した。実施した場所は常磐高速道工事現場、所在地的には福島県双葉町大字山田から大字寺沢にかけての工事現場であり、帰還困難区域に指定されている場所である。現場調査を実施した地域に関する詳しい情報は図1に示した。測定調査を実施した日時は2014年5月30日である。

常磐道において行われている除染作業は

重機（Wirtgen社の路面切削機W200Hi）による表土のはぎ取りである。除染作業時の粉じん捕集は定点及び作業者の（呼吸域における）個人ばく露測定という手法を用いた。用いた機器は定点の測定においてはオープンフェースによってインハラブル粉じん（粒径は100 μ m以下）を、さらにアンダーセンサンプラーを用いて9区分の粉じん（分級カット径；>11, 7.0, 4.7, 3.3, 2.1, 1.1, 0.65, 0.43, <0.43 μ m）を捕集した。作業者については重機の運転手と重機周辺の作業者の二名の協力のもとに、IOM サンプラーを装着してもらい、インハラブル粉じん（粒径は100 μ m以下）を捕集した。さらに、私ども調査員が同様のIOM サンプラーとデジタル粉じん計LD-5の2種類の機器を装着し、インハラブル粉じん（粒径は100 μ m以下）を捕集した。定点および作業者等3名の呼吸域（個人ばく露）での粉じん捕集にはフッ素樹脂処理ガラス繊維フィルター（T60A20）を用い、捕集前後のフィルター重量をウルトラマイクロ天秤により秤量した。この手法は次の実験室における再発じん実験でも同様である。なお、除染作業及び粉じん採取作業の様子は図2に示した。

常磐道高速道工事現場の土壌を用いた実験室における再発じん実験

常磐高速道工事現場における現場調査結果からは貴重なデータが得られる反面、検出限界以下の試料や重機の排ガス等の妨害因子を存在などがあるため、より精度の高い結果を得るためには磐道高速道工事現場の土壌を用いた実験室における再発じん実験を実施することが望ましい。

常磐高速道の工事現場より土壌を研究所

に持ち帰って再発じん実験を室内で行った（現地であらかじめ 2.0mm のふるいで処理したため、持ち帰った土壌は 2.0mm 以下のものである）。再発じん実験を行う前の準備として、持ち帰った土壌サンプル調整を実施するため、ステンレス製試験ふるい（JIS Z 8801, SANPO 製、目開き 2.00mm, 1.0mm, 500 μ m, 250 μ m, 150 μ m, 106 μ m）を用いて粉体容量的には約 4L（<2.0mm）を 0.1L（<106 μ m）まで減量した（**図 3** 参照）。なお、ふるいはロータップ型ふるい振とう機（10 分間、約 800g/回）を用いた。また、常磐高速道の工事現場から持ち帰った土壌の放射線量は NaI(TI)シンチレータ（Techno AP 社製 TN100）で計測した結果、4L 缶入り土壌表面（事前処理前）で 0.75 μ Sv/h（環境レベルは 0.045 μ Sv/h）であった。

再発じんの室内実験は土壌再発じん装置 DF-3(柴田科学製)を用いて実施し(**図 4**)、そのフローチャート**図 5**に示した。実験条件はターンテーブルの目盛りが 50、パイプレーションの目盛りが 7、試料供給リングには TA-34 を用い、purge flow: 20L/min, ejector flow: 15L/min, 排気流量は 40L/min 以下と 150L/min とした。なお、排気流量を 2 種類設定した理由はこの違いが、再発じんした粉じんの粒径分布の違いに影響するかどうかを確認するためであったが、両者の粒径分布にほとんど違いが認められなかったため、排気流量を 150L/min とした結果を採用した。

再発じん実験における粉じん等の測定には IOM、アンダーセン、NWPS254 を用いた質量計測と LD-6N を用いたデジタルデータの計測を行ったが、それぞれの測定機

器と土壌再発じん装置との測定点及び位置関係、さらには、吸引流量等について**図 6**の配管概念図に示した。

前出の重機を用いたセシウム汚染土壌除染作業時における粉じん中の放射能濃度と実験室での再発じん実験における粉じん中の放射能濃度の測定にはゲルマニウム半導体検出器を用いて ^{137}Cs 濃度(Bq/g)を行い、粉じん濃度をかけることによって空気中の ^{137}Cs 濃度を計算することとした。なお、ゲルマニウム半導体検出器を用いた ^{137}Cs 濃度(Bq/g)の測定は、研究協力者である日本原子力研究開発機構・東海研究開発センター・核燃料サイクル工学研究所の辻村憲雄氏と吉田忠義氏の協力を得て実施した。

福島第一原発近辺の汚染土壌を用いた粉じん及び放射能濃度の測定について放射線の汚染度の違いによって、粉じんばく露に伴う内部被ばくの程度がどの程度異なるのか検討するために、前述した常磐高速度工事現場で採取した汚染土壌より高度濃度に汚染されていると推測される福島第一原発近辺の汚染土壌を用いた再発じん実験を行い、その結果を **図 7**の結果と比較検討した。なお、福島第一原発近辺の汚染土壌は 2015 年 3 月 12 日に関係省庁や東京電力の協力の下で採取させていただいた。現地で採取した土壌はふるい分級無しに研究所に持ち帰り、土壌の水分が多かったため、オープン乾燥させてから、ステンレス製試験ふるい（JIS Z 8801, SANPO 製、目開き 2.00mm, 1.0mm, 500 μ m, 250 μ m, 150 μ m, 106 μ m）を用いて粉体容量的には約 4L（<2.0mm）を 0.1L（<106 μ m）まで減量した。なお、ふるいにはロータップ型ふるい振とう機（10 分間、約 800g/回）を用

いた。再発じん実験の進め方、さらには、使用した再発じんシステムや分析項目、粉じん中の放射能濃度の計測等についてはで実施した方法と同じである。

常磐高速道工事現場等で採取した土壌に関する鉱物分析及び電子顕微鏡観察

採取した試料の性状を確認するため、フルイ分けで分級した粒度ごとの試料の粉末 X 線回折分析を行い、鉱物組成を確認するとともに、分析透過電子顕微鏡による構成粒子の形状、化学組成分析を行った。

また、2カ所の調査地点での採取試料の由来(現地土壌あるいは他所からの搬入土)を確認するため、地質図(久保ら(1994))による該当地点に分布する地層の確認を行った。試料採取地の常磐道と福一敷地の周辺には、新第三系(=新第三紀の地層)が分布しており、これらは久保ら(2002)による鮮新世の仙台層群大年寺層(竹谷ら(1986)の多賀層群富岡層と同一で、数百万年以前の堆積岩層)に相当する。大年寺層は海成の砂岩、砂質泥岩、泥岩からなり、該当地域には泥質極細粒砂岩が分布するとみられる。

各粒度分け試料は、乳鉢で摩砕し X 線回折用試料ホルダーに充填できる粒度に調製した後、粉末 X 線回折装置(RINT2200、リガク)を使い、管球出力 36kV-24mA の CuK 線(検出器側モノクロメータ使用)により、回折角度 2~70度の範囲を 2°/min の走査速度で測定した。測定データの処理と定性分析は、装置付属の解析ソフトウェア(PDXL2、リガク)を使用した。

0.25mm 未満の粒度分け試料について、含有粒子の観察と分析を行った。透過電子顕微鏡用試料は、粒度分け試料の微量を蒸

留水中で超音波分散し、コロジオン膜を張った Cu メッシュに滴下し乾燥させて調製し、分析透過電子顕微鏡(EDS 検出器装着の JEM-2100、日本電子)を使い、粒子形状、化学分析と電子回折パターンによる同定を行った。

(2) 質量濃度変換係数(K 値)の検討

昨年度に実施した模擬実験において、土壌の性質、すなわち、山砂、耕作地(畑)、水田の土壌の違いにより K 値に違いがみられるかどうかを確認するために、粉じんの質量分析と併行して実施したデジタル粉じん計の計測値とを比較して K 値を算出した。さらに、今年度、帰還困難区域にある常磐高速道工事現場の除染業務で粉じん等の測定を実施した事例で粉じんの質量濃度とデジタル粉じん計の計測結果から、K 値を算出した。なお、常磐高速道工事現場の除染業務での併行測定については、作業者に二つの測定機器を携帯させることができないことから、調査員(当研究所の研究員)が IOM サンプラーとデジタル粉じん計の二つを携帯して実施したため、作業者の発じん源とは離れているため、ばく露した粉じん量自体は過小評価となる。現場調査や模擬実験において粉じんの質量濃度測定とデジタル粉じん計の計測結果より K 値を算出方法で指摘される問題点は、近傍に重機などが動いている場合には排ガスの影響を受けることや偶発的にサンプラーに飛び込む大きな粒子の存在などが K 値に影響を与えていると言われている。そこで、今年度は、実験室での再発じん実験で粉じんの質量濃度の測定と同時にデジタル粉じん計による測定を行い、K 値を求めて現場調査や模擬実験で得られた K 値と比較検討した。

室内における再発じん実験で K 値を求めたサンプルは、昨年度の模擬実験で使用した耕作地（畑）の土壌と山砂土壌、さらには常磐高速道工事現場の土壌、福島第一原発横の土壌の四つである。これらの土壌は現地であらかじめ 2.0mm のふるいで処理し、研究所に持ち帰った土壌サンプル調整を実施するため、ステンレス製試験ふるい（JIS Z 8801, SANPO 製、目開き 2.00mm, 1.0mm, 500 μ m, 250 μ m, 150 μ m, 106 μ m）を用いて粉体容量的には約 4L（<2.0mm）を 0.1L（<106 μ m）まで減量した（**図 3** 参照）。なお、土壌のふるいにはロータップ型ふるい振とう機（10 分間、約 800g/回）を用いた。

再発じんの室内実験は土壌再発じん装置 DF-3（柴田科学製）を用いて実施し（**図 4**）、そのフローチャート**図 5**に示した。今回現場から持ち帰った土壌の再発じん実験における配管概念図は**図 6**に示すとおりで、土壌サンプルの捕集時間はおおよそ 180～250 分程度であった。

C. 研究結果

（1）除染等作業での内部被ばくの推定

常磐高速道工事現場における現場調査
常磐高速道工事現場における粉じんばく露の測定結果を**表 1**に示す。IOM サンプラーを用いた粉じん測定はインハラブル粉じんを対象としているが、重機運転席（重機のオペレーターの粉じんばく露を想定する）と重機周辺部の作業員レベルで 1.82mg/m³と 1.47mg/m³であった。調査員は**図 2**からもわかるように実際の除染作業現場からは少し離れているため、低い値となっていた。定点（オープンフェース）で

測定した場合も調査者とほぼ同様の結果であった。常磐高速道工事現場での現場調査で得られたフェルターを日本原子力研究開発機構・東海研究開発センター・核燃料サイクル工学研究所に送り、ゲルマニウム半導体検出器を用いた ¹³⁷Cs 濃度（Bq/g）の測定を実施した結果を**表 3**に示したが、粉じん単位質量あたりでは、インハラブル粉じんでは 120～250Bq/g 程度、アンダーセンで捕集した粉じんのうち、インハラブルよりは粒径が小さくなると、ステージ 2 の 4.7-7.0 μ m で 262Bq/g、ステージ 3 の 3.3-4.7 μ m で 319Bq/g と高くなる傾向にあった。その一方で空気中の ¹³⁷Cs 濃度（Bq/m³）に注目すると、インハラブル粉じんでは粉じん中の ¹³⁷Cs 濃度に影響を受けて、粉じん濃度が高いほど空気中の ¹³⁷Cs 濃度も高くなっていたが、粒径の小さな粉じんでは空気中の ¹³⁷Cs 濃度は一桁少ない結果となっていた。

なお、空気中の放射性物質濃度は以下の式から求めた。

$$\begin{aligned} \text{空気中の } ^{137}\text{Cs 濃度 (Bq/m}^3\text{)} &= \\ \text{粉じん濃度 (g/m}^3\text{)} \times ^{137}\text{Cs 濃度 (Bq/g)} & \\ \text{常磐道高速道工事現場の土壌を用いた} & \\ \text{再発じん実験} & \end{aligned}$$

表 4と**表 5**に排気流量が 40L/min 以下と 150L/min の場合の粉じん捕集量、質量濃度及びフィルター試料を示した。インハラブル粉じんを IOM サンプラーの場合で検討すると、4.55mg/m³（40L/min 以下）と 1.89mg/m³（150L/min）の二つの結果が得られた。後者が現場調査における除染作業員の粉じんばく露量に近い値であった。さらには、**図 7**では再発じん実験中の LD-6 の測定結果をリアルタイムで示している

が、終始安定的に粉じんが発生していることを示している。

アンダーセンサンプラーによって得られた粉じんの粒径分布とその重量の関係を図 8 に示したが、青色のグラフは再発じん実験の結果で、40L/min 以下と 150L/min の場合でほぼ粉じん重量の粒径分布は一致していると考えられた。また、赤色で示したグラフは、常磐高速道工事現場における現場調査から得られたデータである。ステージ 0 (>11 μm) から 5 (1.1-2.1 μm) のフェルターで捕集できた粉じん量の変化は再発じん実験で得られた結果とよく一致していた。ステージ 7 (0.43-0.65 μm) の粉じんが現場調査で多く捕集されているようだが、重機の排ガスによるものと推測される。

今回、アンダーセンサンプラーで捕集したフィルターを日本原子力研究開発機構・東海研究開発センター・核燃料サイクル工学研究所に送り、ゲルマニウム半導体検出器を用いた ^{137}Cs 濃度 (Bq/g) の測定を実施した結果から、アンダーセンサンプラーの各ステージで捕集された粒径別の粉じん濃度と ^{137}Cs 濃度から空気中の ^{137}Cs 濃度を算出し図 9 に示したが、おおよそ 2-3 μm 近辺で ^{137}Cs 濃度はピークを示し、その後粒径が大きくなっても低い値で推移していた。すなわち、放射性濃度と粉じんの粒径との関係は、粒径が 2-3 μm あたりで変化している可能性がある。2-3 μm までは粉じん質量濃度とそれに対応する空気中 ^{137}Cs 濃度が一致するが、それ以上の粒径の粉じんでは質量濃度が大きくなると空気中 ^{137}Cs 濃度が減少するようである。

次に、比表面積と ^{137}Cs 濃度との関係をみたものが図 10 である。左図からわかるよう

に、粒径が 0.1-2.0mm の比較的大きな粉じんでは、比表面積の増加に伴って ^{137}Cs 濃度も増加しており、粉じんの粒子表面への ^{137}Cs 含有粒子の付着が原因であることが示唆された。しかしながら、アンダーセンサンプラーで捕集される範囲の微少な粉じん (<10 μm) では、比表面積と ^{137}Cs 濃度との関係が不明瞭であった。このことから、粉じんの大きさによって ^{137}Cs の粉じん中での存在が異なることが予想された。

福島第一原発近辺の汚染土壌を用いた粉じん及び放射能濃度の測定

福島第一原発近傍で採取した土壌の放射線による汚染の度合いを確認する意味で、ふるい等で前処理済みの土壌 (106 μm 以下) を採取瓶に入れた状態でスペクトラムサーベイメーター TS100 (テクノ AP 社製) で被ばく線量を計測した結果を図 11 に示したが、常磐高速道の工事現場の土壌 0.2 $\mu\text{Sv/h}$ 、福島第一原発近傍の土壌 2.3 $\mu\text{Sv/h}$ と約 10 倍以上であった。

再発じん実験は捕集時間 142 分と 241 分の 2 回実施した。アンダーセンサンプラー、IOM、NWPS245 で採取した粉じん捕集状況を表 6 に示した。また、ふるい分級の処理が行われてそれぞれの大きさの土壌サンプルごとの ^{137}Cs 比放射能レベル (Bq/kg) を図 12 に示したが、土壌サンプルがふるわれて、その粒径が小さくなるほど放射能レベルは高くなっていた。

再発じん実験で得られた粉じんの粒径分布と重量との関係を図 13 に、粉じんの粒径と空気中 ^{137}Cs 濃度を図 14 に示した。粉じんの粒径と空気中 ^{137}Cs 濃度との関係では、常磐高速道工事現場の土壌を用いた再発じん実験で得られたものとは異なる結果を示

していた。すなわち、放射性濃度と粉じんの粒径との関係は、粉じんの粒径が 4-5 μm までは粉じん質量濃度と空气中 ^{137}Cs 濃度が一致するが、4-5 μm 以上の粒径の粉じんでは粉じんの質量濃度が大きくなると空气中 ^{137}Cs 濃度が減少していた。福島第一原発近傍と常磐高速道の工事現場で採取された土壌では、粉じん質量濃度と空气中 ^{137}Cs 濃度が一致するピークがずれており、放射能汚染の程度が関連している可能性がある。

次に、比表面積と ^{137}Cs 濃度との関係をみたものが **図 15** である。粒径が 0.1-2.0mm の比較的大きな粉じんでは、比表面積の増加に伴って ^{137}Cs 濃度も増加しており、粉じんの粒子表面への ^{137}Cs 含有粒子の付着が原因であることが示唆されたが（左図）、アンダーサンプリングで捕集される範囲の微少粉じん (<10 μm) では、比表面積と ^{137}Cs 濃度との関係が不明瞭であった（右図）。このことは、常磐高速道工事現場の土壌を用いた再発じん実験と同様の結果を示していた。

図 16 と **図 17** は常磐高速道工事現場及び福島第一原発近傍で採取した土壌を用いた再発じん実験と現場調査で採取した粉じんの比表面積と ^{137}Cs 濃度との関係を一つにまとめたものであるが、**図 16** は比表面積が小さい粉じんの場合で、土壌汚染の違いによらず ^{137}Cs 濃度と比表面積が比例関係にあることがわかる。それに対して比表面積が大きい場合（**図 17**）には、比表面積が一定以上に大きくなると、 ^{137}Cs 濃度は上昇しなくなり、比表面積と無関係になることを示している。その関係は土壌の汚染レベルによっても異なることもわかる。

常磐高速道工事現場等で採取した土壌に関する鉱物分析及び電子顕微鏡観察

粉末 X 線回折分析では、**図 18・19** に示すように、常磐道、福一敷地で採取した試料の鉱物組成は互いに類似しており、石英、斜長石、緑泥石、方解石、濁沸石（ローモナイト）が同定された。常磐道では石英と斜長石が主な鉱物で、緑泥石と方解石がこれに次いで多いとみられる。福一では石英、斜長石、緑泥石、方解石が主な鉱物である。これ以外に少量の濁沸石（ローモナイト）、角閃石、雲母鉱物が存在するとみられる。緑泥石の 6° 付近の回折ピークの低角度側に非対称性が認められ、緑泥石の変質あるいはパーミキュライトの存在を示す可能性もあるが、明確な特徴とまでは言えない。

図 20・21 に、粒度分け試料ごとの鉱物組成を示したが、粒度の細かい部分に濁沸石がやや多くなる傾向が認められるが、全体として主な鉱物組成とその含有量比は、粒度の違いに関係せず同程度と判断される。なお、常磐道試料では一部の粒度範囲で他の粒度範囲には認められない帰属不明の回折ピークが認められるが、その理由は不明である。

電子顕微鏡観察は、粒径の細かい粒子の分析に留まるが、塊状粒子、柱面の発達した粒子、板状粒子などが認められる。分析透過電子顕微鏡による分析から、塊状粒子は石英あるいは斜長石、柱面の発達した粒子（**写真 1**）は化学組成から角閃石と考えられる。また板状粒子は緑泥石あるいは雲母鉱物とみられる（**写真 2、3**）。緑泥石は Fe-Mg-Al を含む組成であり、造岩鉱物として一般的なものである。なお電子顕微鏡分

析では、濁沸石に該当する粒子は確認できなかった。

(2) 質量濃度変換係数 (K 値) の検討

昨年度に実施した模擬実験で算出した K 値を土壌の違い等で比較検討した結果を表 7 に示した。土壌が山砂である場合には K 値は 0.004-0.006mg/m³/cpm と安定していた。耕作地(畑)の場合は 0.001 mg/m³/cpm と 0.06mg/m³/cpm と測定日によって異なる値が得られた。水田では 0.02-0.06 mg/m³/cpm 程度であった。この結果には、少なからず模擬実験を実施した際の天候等が影響していることが考えられる。特に 2 月 5 日は強風を伴う吹雪であったため、粒径の大きな粉じんがサンプラーに飛び込んだ形跡があり、K 値の算出にあたっては過大評価した可能性がある。

常磐高速道の工事現場において調査者に実施した併行測定の結果、粉じんの質量濃度が 0.6367mg/m³、平均相対値 89cpm から K 値を求めると 0.0072mg/m³/cpm となる。なお、粉じんの質量濃度測定は IOM、デジタル粉じん計は LD-5 を用いた。

最後に、本来の測定環境とはかなり異なるが、ラボにおける再発じん実験で K 値を求めた結果を表 8 に示した。得られた K 値は 0.0041-0.0111mg/m³/cpm であった。もちろん、再発じん実験を実施する際には使用する土壌をあらかじめふるいで 106μm 以下に前処理した土壌サンプルを使用したため、現場調査とは異なる条件であるが、ここで注目したいことは土壌の種類や粉じんの質量濃度の違いによっても大きな違いは認められず、比較的安定した K 値が得られており、しかも、前出の行政要請研究「除染作業における内部被ばく線量管理のため

の浮遊粉じん濃度評価手法」で得られたインハラブル粉じんに対する K 値の推定値より低い値になっていた。なお、粉じんの質量濃度測定は IOM、デジタル粉じん計は LD-6N を用いた。

D. 考察

今回実施した常磐高速道の工事現場における現地調査から、除染作業者がばく露する粉じん中の ¹³⁷Cs 濃度は 2mm 以下にふるって前処理された現場土壌の ¹³⁷Cs 濃度のおおよそ 10-20 倍であった。インハラブル粉じんのばく露濃度は 0.60-1.82mg/m³ 程度であることから、空気中 ¹³⁷Cs 濃度は 0.104-0.439Bq/m³ と推定された。この現場調査で実施したアンダーセンサンプラーによる粒度分布と持ち帰った土壌の再発じん実験による粒度分布が一致していたこと、さらには、常磐高速道工事現場と福島第一原発近傍で採取した土壌について、地質図による地層の確認や粉末 X 線回折分析結果から両者は地質的に同一のものであると見なせることから、両者の土壌サンプルをラボでの再発じん実験によって得られた ¹³⁷Cs 濃度や空気中 ¹³⁷Cs 濃度の結果等が比較検討可能であると考え、研究結果の考察を進めていくこととする。

空気中 ¹³⁷Cs 濃度と粉じんの粒径分布との関連では、微少粒径の粉じんレベルでは両者が一致するが、粒径が大きくなると空気中 ¹³⁷Cs 濃度は低下することが確認されており、放射線の汚染の度合いによっても異なっていた(図 9 と 図 14)。すなわち、汚染度の高い土壌の方がより粒径の大きなレベルの粉じん粒子まで、空気中 ¹³⁷Cs 濃度と粉じんの粒径分布は一致していた。それ

以上大きな粒径の粉じんにおいては、空气中 ^{137}Cs 濃度と粉じんの粒径分布とに関連は認められなかった。

そこで、比表面積に着目して結果を考察すると、比表面積が小さい場合、すなわち、粒径の大きな粉じん (0.106-2mm) では、 ^{137}Cs 濃度との間に比例関係を認めたが、比表面積がそれ以上大きくなると、 ^{137}Cs 濃度と比表面積との関係は無関係となった。図 17 からわかるように、 ^{137}Cs 濃度が 500-800Bq/g に濃度上限がみられ、それ以上高い値を示さなかった。この値を図 16-1 で示した回帰直線に代入すると、常磐道で $3\mu\text{m}$ 、福島第一原発で $30\mu\text{m}$ の粒径の比表面積に相当する。図 9 と図 14 で得られた結果に近い内容となっていた。すなわち、比表面積と ^{137}Cs 濃度との関係は、比表面積が小さい (粉じん粒径が大きい) 場合には比例関係にあり、放射性セシウム含有鉱物 (形態は不明であるが) が母体となる粒子に付着しており、比表面積が大きい (粉じん粒径が小さい) 場合には無関係であり、放射性セシウム含有鉱物が単体で浮遊している可能性が示唆された。

そこで、電子顕微鏡的に粒径の比較的大きな粉じん粒子を観察してみる。2 地点での採取試料の鉱物組成は互いに類似している。石英、斜長石の他に緑泥石・角閃石などの苦鉄質鉱物を含む点と、周辺の地質環境を考慮すると、阿武隈山地を後背地としてその構成粒子が運ばれて形成された堆積岩の構成物質として矛盾せず、現地由来の土壤と考えられる。緑泥石に著しい変質は認められず、バーミキュライト、スメクタイトなどの吸着性を有する粘土鉱物の含有・生成も明確には認められない。方解石は

堆積作用の中で生成したものと考えられる。

Cs の吸着性については土壤に含まれる特定の微小鉱物との関係が推定され、バーミキュライトのような粘土鉱物や斜プロチロル沸石などのイオン交換性を持つ沸石鉱物の存在が注意される。採取試料の中には該当する粘土鉱物が存在したとしても微量と推定される。沸石に関しては、濁沸石と考えられる沸石鉱物が少量存在するとみられる。国内では凝灰岩あるいは火山ガラスから変質した Na、K 質の沸石の存在が普通で、濁沸石とすればやや特異である。濁沸石は Ca 質沸石で、変成温度の高い堆積岩中で自成することがあるが、後背地の苦鉄質岩石中で生成したものが運ばれて堆積した可能性も考えられる。

結論として、2 地点で採取した土壤中には、 Cs を特異的に吸着する鉱物粒子の存在と、それらが粒径的に偏在する可能性は少ないものと考えられる。

最後に、質量濃度変換係数 (K 値) について考察する。模擬実験や常磐高速道の工事現場における現地調査の結果からみると、得られた K 値はばらばらであった。現場調査では、測定の際の天候や粉じんの発生状況などから、意図せずに大きな粉じんがサンプラーに飛び込むことにより、高い K 値が算出されることがある。いわば、これはアクシデントに伴う異常値とも考えられる。そこで、そのようなアクシデントの少なかった常磐高速道の工事現場での現場調査や山砂を用いた模擬実験の結果などを見ると $0.0039\text{-}0.0072\text{mg/m}^3/\text{cpm}$ と比較の変動の少ないことがわかる。また、測定環境は異なるものの、前処理した粉じんの再

発じん実験における K 値をみると、これも 0.0044-0.0110mg/m³/cpm と変動の少ないこともわかる。特に、この再発じん実験における K 値で注目すべきは、土壌の違い（耕作地・畑 0.0063mg/m³/cpm vs 山砂 0.0041mg/m³/cpm）や粉じんの質量濃度の違いでもあまり大きな違いはなかったということである。ただし、このことを確認するためには、現場での測定調査をさらに重ねる必要があり、今回の結果だけで結論を得るのは早計であろう。しかしながら、当研究所が実施した「除染作業における内部被ばく線量管理のための浮遊粉じん濃度評価手法」を参考に推定したインハラブル粉じんに対する K 値に比べて、実際の除染作業での K 値はこれより一桁近く低い値である可能性が高い。

E. 結論

除染作業者の健康障害防止、とりわけ、内部被ばくのリスク管理を行う目的で放射能汚染された粉じんばく露を低減させることが重要である。実際の除染作業の現場では、粉じんばく露の程度を評価するためにデジタル粉じん計で計測して提案された K 値から粉じん量を予測することが行われている。本研究では、この K 値を用いたリスク管理が空気中の放射性物質濃度を推定する指標として活用できるか検討した結果、困難であることが判明した。その理由としては、粉じんの粒径分布等と ¹³⁷Cs 濃度との関係を検討した結果、粉じんの粒径の大きさによって両者の間に異なる関係が認められた。すなわち、粉じんの比表面積が小さい場合には、¹³⁷Cs 濃度との間に比例関係を認めたが、比表面積が大きくなると、¹³⁷Cs

濃度と比表面積との関係は無関係となり、粒径の大きさによって粉じんと放射性セシウム含有鉱物との関係が異なる状態にあることが示唆された。

除染作業における K 値についても、現場で測定調査を実施した結果、粉じん濃度が 10mg/m³を下回る環境では、除染電離則で想定していた値より一桁低い値であり、土壌の違い等によってもさほど影響されないことがわかった。

F. 健康危機情報

今回の調査研究は応用研究であるため、帰還困難区域に立ち入ったの調査研究となった。その際の研究員の被ばく管理について報告する。2014年5月30日に常磐高速道の工事現場に立ち入った際の携帯線量計による6名の積算被ばく線量は24-34μSvであった。2015年3月12日に福島第一原発近傍の汚染土壌採取の際は、3名の積算被ばく線量は7-9μSvであった。常磐高速道の工事現場や福島第一原発近傍の汚染土壌の再発じん実験を実施した研究員の被ばく線量を計測した結果、実験中の被ばく線量はN.D.であった。

これらの被ばく量は外部被ばくを計測したものであるが、研究期間中の内部被ばくについても日本原子力研究開発機構・東海研究開発センター・核燃料サイクル工学研究所において計測した。6名のWBC（ホールボディカウンター）による内部被ばく測定の結果は記録レベル（預託実効線量1mSv）未満であった。

G. 学会発表

1.山田 丸*、鷹屋光俊*、辻村憲雄**、吉

田忠義**、菅野誠一郎*、篠原也寸志*、中村憲司*、甲田茂樹*（*：労働安全衛生総合研究所、**：日本原子力研究開発機構）、重機を用いたセシウム汚染土壌除染作業時における粉じんおよび放射能濃度、第88回日本産業衛生学会、2015年5月16日、産業衛生学雑誌第57巻臨時増刊号 p456、大阪市

H．知的財産権の出願・登録状況

1．特許取得

なし

2．実用新案登録

なし

3．その他

なし