

氏名	佐藤 志彦
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第 7647 号
学位授与年月日	平成 28 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	

Study of relationship between deposition of radioactive materials and radioactive particles in the difficult-to-return zone caused by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident (福島第一原発事故で生じた帰還困難区域における放射性物質の沈着と放射性粒子の関係の研究)

主査	筑波大学教授	博士(理学)	末木 啓介
副査	筑波大学教授	Ph.D.	山本 泰彦
副査	筑波大学教授	理学博士	大塩 寛紀
副査	筑波大学教授	工学博士	中谷 清治

論 文 の 要 旨

本学位論文は 5 章から構成されている。

「1 章序論」 2011 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震と地震に伴う津波によって、東京電力(株)福島第一原子力発電所は原子炉を安全に停止させるために不可欠な冷却機能を維持不能になり、重大過酷事故へと至った。損傷した原子炉は全部で 3 機あり(1-3 号機)、それぞれの原子炉が異なる時期に別々の要因で環境中に大量の放射性物質を放出した。大部分の放射性物質は太平洋側へ抜けたが、一部が陸域上に沈着した。そして最も深刻な汚染は 15 日午後から 16 日未明にかけ、原発から北西に向かう地域で、降雨に伴って発生したことが知られている。北西の帰還困難区域では文科省の土壤調査で、当該地域を北と西に分断するような銀-110m(^{110m}Ag)とセシウム 137(^{137}Cs)の放射能比の分岐が確認された。これは複数イベントによる汚染を示唆するが、その原因も未だ明らかにされていない。またこの北西の高線量地域にて放射性粒子を探索するような研究も行われていない。その一方で汚染発生と放射性粒子を関連付けた研究を展開することは、福島第一原発事故の解明に大きく寄与することが期待される。そこで本研究では帰還困難区域を対象に、環境中に放出した放射性物質と、そこから見つかった放射性粒子の関係性を明らかにすることで、福島事故の実態解明を試みた。

「2 章帰還困難区域を汚染した放出源の推定」 本研究では、福島第一原発から北西方向に広がる帰還困難区域を既に行われていた文科省調査の隙間を埋める地上調査を敢行し、北西地域の汚染を形成した原因を解明した。

調査方法は 1 地点 5 個の土壤を採取し、 $^{134,137}\text{Cs}$ と ^{110m}Ag を定量した。データの解析には本研究独自のデータに文科省の調査結果を加え、2011 年 3 月 11 日に壊変補正を実施し比較した。沈着量が 10 MBq/m^2 以上と極めて大きい試料を基準に、 $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 0.018、0.0048 と 0.0019 の 3 つ

の独立したグループを得た。 $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比別に地図上に図示するとそれぞれを帯状に示すことができた。これらのグループは原発から離れても存在することから、それぞれが独立した汚染によるものと考えられる。 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比についても併せて汚染原因を検討した。

$^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 0.018 グループは最初に北西地域において空間線量が上昇した 3 月 12 日の 1 号機水素爆発時由来する汚染と断定した。 $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 0.0048 グループは一般的に指摘されていた北西方向の主たる汚染であり、2 号機に由来する汚染であると考えられる。 $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 0.0019 グループの存在はこれまで指摘した研究はなかった。15 日 23 時に 3 号機圧力容器のウェットウェル(W/W)ベントが実施されている。また福島市で採取したフィルターの結果およびシミュレーションによる北西方向へ向かうプルームが再現されていることから、このグループは 3 号機から放出された W/W ベントによるプルームと考えられる。以上より帰還困難区域の大規模汚染は、 $^{110m}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比を用いることで少なくとも 3 回に分けることが可能で、さらに ^{110m}Ag の放出率は緊急停止してからの炉内状況を反映している可能性が示唆された。

「3 章放射性粒子と放出炉の関係」Cs を高濃度に含む球状の放射性粒子の存在が確認されている。しかし、最初に見つかったつくば市以外で粒子発見の報告はまだなく、さらに同一日に汚染した北西地域を対象に粒子の探索は行われてこなかった。本研究では放射性粒子の分布と放出源を特定するため、2 章の結果を基に 1、2、3 号機に由来する環境試料から粒子を探索し、それらの分析を実施した。

走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察により粒子の形状は、先行研究で報告された球体に加え、不定形の粒子も複数見られた。また粒子に含まれる γ 線核種は、ほとんどの粒子で ^{134}Cs と ^{137}Cs のみが検出された粒子中の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は 2 つのグループに集約され、それぞれが 1 号機と 2 号機由来の Cs 同位体比に一致した。3 号機由来の粒子はどの試料からも見つからず、3 号機からの汚染があったと推定される箇所の試料からは 2 号機由来の放射性粒子が見つかった。また 1 号機粒子は 12 日に放出されており、事故から比較的早い段階でこれらの粒子が生成することが判明した。エネルギー分散型 X 線分析 (EDS) の結果から、すべての放射性粒子に共通する元素は Si、O、および Ca であり、特に Si と O はすべての粒子において全質量の 80% を占めていた。2 号機粒子の特徴は、つくば市で見つかった粒子と元素組成と比放射能ともによく一致し、Zn、Fe、Cs が共通して検出された。一方、1 号機粒子は 1 粒子あたりの放射能は強いものの、体積も大きく、比放射能は 2 桁程度 2 号機粒子よりも小さかった。そのため EDS で Cs が検出できない粒子が大多数であり、それらの粒子の Cs は μbeam 分光分析で検出することができた。2 号機由来の粒子では Si、O、Fe、Zn そして Cs が均一に分布しているが、1 号機粒子では Si、O 以外の元素分布には濃淡があり、Fe が少ない例も見つかった。2 号機粒子について ^{135}Cs の検出を SIMS で行い、概算で得られた $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は 0.055 となり、Nishihara et al. の理論計算 0.045 と類似していた。この結果から概算された Cs 同位体の原子数から、EDS で見られる Cs の蛍光 X 線が原発で生成した放射性 Cs であることを示した。一方、2 号機粒子の一部から 0.5wt% 未満の U が検出されたが、粒子の主たる組成でない。また 1 号機粒子からは U が認められなかった。ゆえに福島事故で放出した放射性粒子は、Cs の放射性同位体を高濃度に濃縮した、ケイ酸であることが本研究によって新たに判明し、チェルノブイリ事故で観測された核燃料の断片とは明らかに異なっていた。

「4 章 放射性粒子の生成過程」福島事故で放出した放射性粒子は本研究によりケイ酸の塊であることが明らかになった。原発事故と放射性粒子を結びつけて、これらを合理的に説明することを試みた。

本研究で繊維状のケイ酸が付着した粒子や、Ca が相対的に多いケイ酸が1号機由来の汚染を生じた場所から複数見つかった。これらの部材は格納容器 (PCV)を構成するドライウエル(D/W)で使用されているケイ酸カルシウム等の保温材に見出された。またZnメッキを施した鋼管などもD/Wには存在しており、粒子の原料となるすべての物質がPCVに揃っている。

セシウムの選択的吸着について、帰還困難区域の建屋内で採取したロックウール保温材とそのオートラジオグラフィーの結果から、ケイ酸建材はガス状のCsに対し優れた吸着性を示すことが判明した。また放射性粒子に付着した繊維質とロックウール保温材のEDSが一致した。福島事故では崩壊熱に加え、 $H_2O \cdot Zr$ 反応に伴い発生した熱が、高温の熱水蒸気となり放射性物質と共にPCV内に放出し、保温材に吸着したと考えられる。

1号機と2号機の放射性粒子の比放射能の違いは、原子炉停止から放射性粒子の放出までの時間の差により保温材にCs蒸気が接触していた時間で説明される。3号機由来粒子が見つからなかった原因は、3号機に由来する汚染がW/Wベントによる放出だと推定されることから、高濃度の汚染ガスはケイ酸材料があるD/Wを通過することはないので、放射性粒子は生成しなかったものと考えられる。以上から福島事故で放出した粒子は、D/W内で使用されていたケイ酸系保温材にCsが吸着し、熔融した後、粒子化したプロセスが提案された。

「5章 研究の総括」福島事故で汚染した帰還困難区域における汚染の実態を明らかにすることで、北西地域の汚染原因の解明並びに分布を明らかにした。さらに放出源を帰属することで、放射性粒子の有無により、粒子生成過程に対する最も合理的な仮説を立てるための重要な基礎情報を得た。これにより福島事故で、その存在自体が懐疑的であった放射性粒子の存在が明瞭になった。加えて本研究により一部の沸騰水型軽水炉の欠点が浮上した。今後、必要処置を講じるための足がかりとなることが期待される。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震と地震に伴う津波によって起きた東京電力(株)福島第一原子力発電所の重大過酷事故により、環境中に大量の放射性物質を放出した。この事故によってもたらされた原発から北西方向の帰還困難区域を対象に土壌表層試料を独自に採取し、環境中に放出した放射性物質と、そこから見つかった放射性粒子の関係性を明らかにすることで、福島事故の実態解明を試みている。

本研究では文科省調査による隙間を埋める地上調査を行い、福島第一原発から北西方向に広がる帰還困難区域の汚染を形成した原因を解明した。帰還困難区域の大規模汚染は、 $^{110m}Ag/^{137}Cs$ 放射能比と $^{134}Cs/^{137}Cs$ 比を用いることで少なくとも3回に分けることが可能であり、既存の放射線モニタリングの結果および炉内残留放射性核種量の理論計算と合わせることで、いつ何号機からの汚染によるものかを推測した点は独自性に富み非常に評価される。

並行して行われた、土壌試料から取り出した放射性粒子に関する研究では、その発生源の違いに起因する特徴をSEMによる形状観察からEDSおよび μ ビーム分光分析による元素分析及びマッピング観察を通して明らかにした。福島事故で放出した放射性粒子は、Csの放射性同位体を高濃度に濃縮した、ケイ

酸であることが本研究によって新たに判明し、チェルノブイリ事故で観測された核燃料の断片とは明らかに異なっていることを明確に示した。これだけ多くの放射性粒子を取り出し分析した結果は福島原発事故ではなく非常に独自性の高い結果が得られている。

福島事故で放出した放射性粒子がどのような過程で生成したかを原子炉の構造および使用素材と関連づけて推測することを行い。現在でも全く様子が分かっていない炉心周辺で事故直後に起こったことを推測することを可能にした。

福島事故で汚染した帰還困難区域における汚染の実態を明らかにすることで、北西地域の汚染原因の解明並びに分布を明らかにした。さらに放出源を帰属することで、放射性粒子の有無により、粒子生成過程に対する最も合理的な仮説を立てるための重要な基礎情報を与えた。これはこれから行われる福島第一原発事故における環境周辺での除染への情報及び廃炉に向けての炉内情報の推定に大きくかかわる成果である。本論文は博士(理学)の学位に相当していると評価される。

〔最終試験結果〕

平成28年 2月12日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。