

数理物質科学研究科 博士論文の要約

専攻名 化学
学籍番号 201330107
学生氏名 佐藤 志彦
学位名 博士 (理学)
指導教員 末木 啓介

博士論文題目 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)

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、一部が地上に沈着した。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。この北西地域が汚染したほぼ同時期に、つくば市で採取した大気浮遊塵から福島事故由来のCsを含む微粒子が見つかった。このような放射性粒子が原子力発電所の事故で放出されることは、以前から知られており、1986年のチェルノブイリ原発事故でも、広範囲に核燃料の断片が飛散した。しかし福島第一原発事故では、炉心の爆発や火災の発生は無く、事故当初において放射性粒子の放出はそもそも検討されていなかった。また検出された放射性核種は放射性セシウムのみで、他の核分裂生成核種の報告はなかった。加えて放射性粒子はつくば以外の場所では報告事例がなく、粒子の存在自体に複数の疑問を有していた。チェルノブイリ周辺で放射性粒子が大量に見つかった場所は、周囲の中でも特に汚染が深刻なエリアである。しかし福島事故において、高線量地域にて放射性粒子を探索するような研究は行われていない。また、北西地域は文科省の土壌調査で、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。通常、単一イベントによる汚染であれば放射能比に分岐が生じるようなことは考えにくく、汚染発生時の何らかの要因で発生したと考えられるが、その原因も未だ明らかにされていない。したがって大量の放射性物質で汚染した帰還困難区域では、福島事故に関する調査はほとんど進んでいない。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

福島第一原発から北西方向に広がる帰還困難区域は、3月15日午後のプルームが降雨とともに放射性物質による汚染が生じたとされている。しかし文部科学省の実施した地上調査の結果から、福島第一原発から北西方向に、北と西に ^{110m}Ag と ^{137}Cs の比に1桁近い差が確認されている。単独放出源に起因する汚染であれば、このように放射能比が方位ごとに変化するとは考え難い。そこで本研究では文科省調査による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。

調査方法は文科省の土壌調査と同じく、1地点5個の土壌を採取し、 $^{134,137}\text{Cs}$ と $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 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。 ^{137}Cs の沈着量と $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比を図1に示した。文科省調査では認められなかった、放射能比0.0050付近に属する集団が新たに確認された。この集団を含む沈着量が極めて大きい10 MBq/m²以上の試料を基準に、3つのグループの放射能比を算出し、3つの独立したグループ、0.018(赤)、0.0048(緑)、0.0019(青)を得た。赤グループのみ炉内残留放射性核種量の理論計算(Nishihara et al. 2012)とよく合うこと確認された。3つのグループにそれぞれ3 σ の範囲と、各グループ間の中間色を設定し、地図上にプロットした(図2)。赤グループは原発から17km圏内の最も北側にのみ存在し、青グループは南側に原発近傍から福島市方向へ向かう状況が確認された。一方、緑グループは原発15km以遠から北西方向へ向かっており、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、図1で見出されたグループは、それぞれが独立した汚染によるものと考えられる。

図3に $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ と $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比を示した。計算で $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は1号機から0.94、1.08、1.05となっており、実測と計算結果は同一傾向を示した。最初に北西地域において空間線量が上昇したのは3月12日の1号機水素爆発時である。赤グループに属するデータはいずれも $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比が0.90付近に存在しており、1号機の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比とほぼ一致した。また $^{110\text{m}}\text{Ag}$ の放出率は放出源となる核燃料の温度に依存することが知られている(Pontillon et al. 2010)。1号機は地震発生から短時間で炉心損傷に至ったことで、炉心の除熱がなされる前に放射性物質が燃料棒から放出した。そのため理論計算の $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ に近い値を示したと考えられる。ゆえに赤グループは1号機に由来する汚染と断定した。緑グループの北端にある飯舘村の空間線量が最初に上昇したのは3月15日の午後4時頃からである。15日は朝から2号機の放出が続いており、16時以降にプルームが北西方向へ向かったタイミングで降雨が生じたことがモデル計算により判明している(Katata et al. 2015)。したがって緑グループは、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。青グループの存在についてこれまで指摘した研究はなかった。2号機からの連続放出が落ち着いた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(図4)。また福島市で採取したフィルターで16日0時すぎに2つめのピークが確認されている(Tsuruta et al. 2014, Oura et al., 2015)。さらにシミュレーションでも北西方向へ向かうプルームが再現されている(Katata et al., 2015)。したがって青グループは

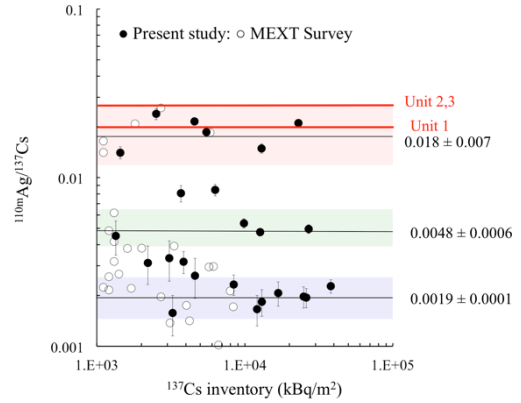


図1 ^{137}Cs の地表面沈着量と $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ 比の関係

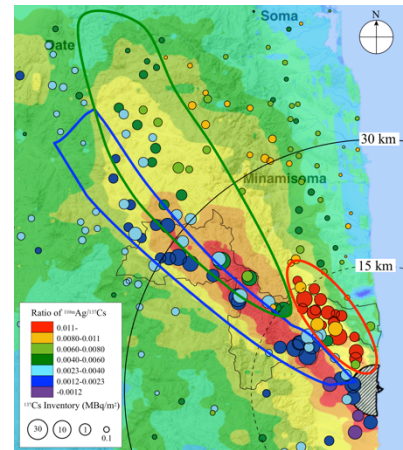


図2 帰還困難区域区域における $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ の分布

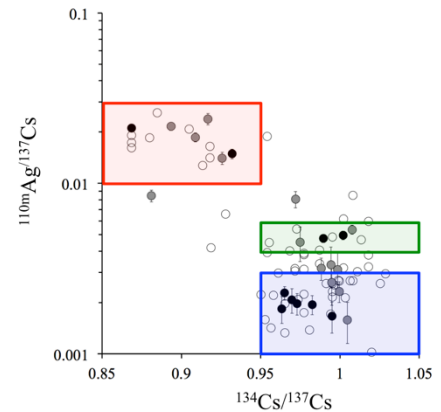


図3 $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{137}\text{Cs}$ と $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の関係。黒丸(5MBq/m²以上)と灰丸(それ以外)は本研究の結果。白丸は文科省データ。

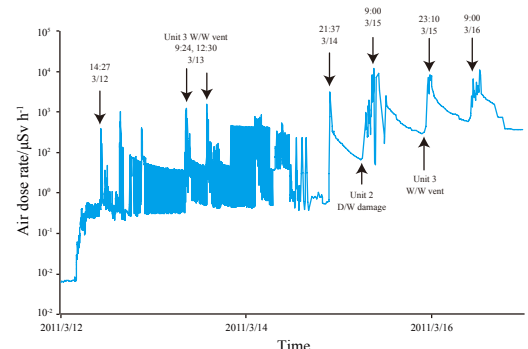


図4 原発正門付近の空間線量率変動 (TEPCO 2011)

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が3月14日から15日早朝にかけてつくば市に飛来したことが確認されていた(Adachi et al., 2013)。この放射性粒子は高酸化状態の非晶質であることが分かっており、原子炉の構造材に含まれる元素も見られた(Abe et al., 2014)。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

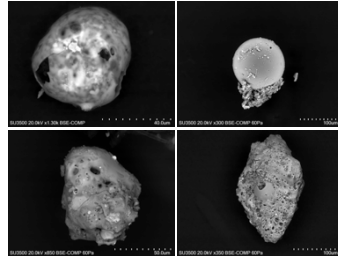


図5 代表的な放射性粒子(1号機由来)

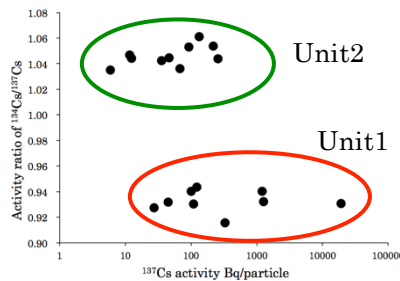


図7 粒子の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比と放射能

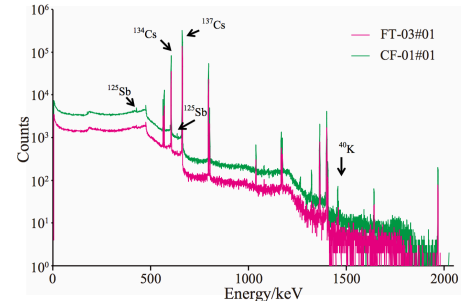


図6 粒子の γ 線スペクトル

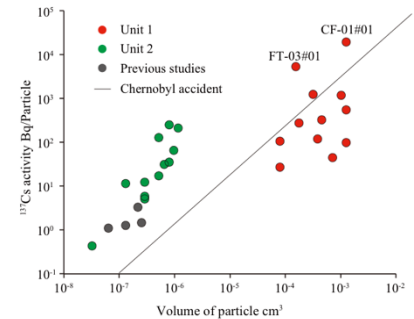


図8 粒子体積と放射能の関係

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。

代表的な粒子の例を図5に示した。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 のみ検出されたが、1号機由来の2粒子に限り、わずかに ^{125}Sb も検出され、(図6) 同一粒子からは ^{90}Sr の存在を示唆する β 線スペクトルも得た。粒子中の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比を図7に示した。すべての粒子は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見つからず、3号機からの汚染があった箇所の試料からは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日の水素爆発時にはすでに生成しており、事故から比較的早い段階で生成することが判明した。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しては一致しており、Zn、Fe、CsがEDSで共通して検出された。また比放射能も先行研究とほぼ直線上に分布した(図8)。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(図9)、それらの粒子のCsは μ ビーム分光分析で検出した。また1号機粒子はBaが際立って多く検出された。しかしながら二次イオン質量分析(SIMS)でBaの同位体比を測定したところ、天

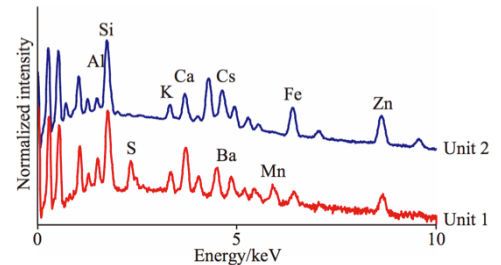


図9 代表的な粒子のEDSスペクトル

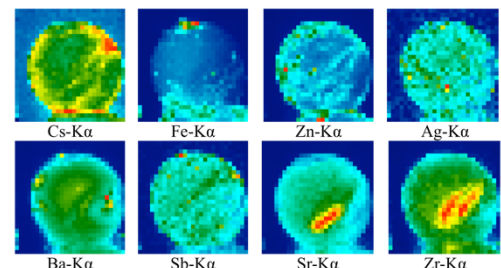


図10 μ -XRF マッピングの結果

然ながら二次イオン質量分析(SIMS)でBaの同位体比を測定したところ、天

然由来であることが確認された。2号機由来の粒子ではSi、O、Fe、ZnそしてCsは均一だが、1号機粒子ではSi、O以外の元素については分布に濃淡があることが判明した(図10)。そしてこれまで必須だと考えられていたFeが1号機粒子では少ない例も見つかった(図9)。さらに230万年の半減期を有する ^{135}Cs の検出をSIMSで行った。概算で得られた $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は0.055となり、Nishihara et al.が報告した0.045と類似していた。またEDSで半定量的に検出したCsとSIMSの結果から概算されたCs同位体の原子数とほぼ一致した。この結果はEDSで見られるCsの蛍光X線が原発で生成した放射性Csによるものであることを示している。一方、2号機粒子の一部からUが検出されたが、全体に占める割合は0.5wt%未満で、粒子の主たる組成でないことが明確になった。また1号機粒子のいずれからもUは認められなかった。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。しかし炉心にケイ素は使用されていない上に、粒子に含まれる放射性核種はほぼCsで、さらに3号機由来の粒子は北西地域から見つっていない。福島事故と放射性粒子を結びつけるためには、これらの合理的な説明が不可欠である。

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(図11)。これらの部材が使用されている場所として格納容器内(PCV)のドライウエル(D/W)で使用されている保温材を見出した。炉心を包含する圧力容器(RPV)にケイ酸は使用されておらず、原子炉の構造で触れられることはないが、PCV内部では配管や機器類を効率向上あるいは熱から保護するために多種多様な保温材が用いられている。特に1、2号機はケイ酸カルシウムの保温材が大量に使用されていることが判明している(NRC 2007)。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。

次にセシウムの選択的吸着について、ケイ酸建材との親和性について発見した。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の結果を図12に示した。建屋内に放置されていた保温材であるにもかかわらず、事故由来のCsが繊維に均一な付着をしていた。これまでロックウールのようなケイ酸建材にCsが吸着する報告はなく、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(図13)。Csの燃料棒からの放出はシビアアクシデントを想定した実験で、燃料棒が2700Kに達すると内包するCsが全量放出する(Pontillon et al. 2010)。特に福島事故では崩壊熱に加え、 $\text{H}_2\text{O-Zr}$ 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。さらにウール系断熱材は吸湿する性質も知られている。

1号機と2号機の比放射能の違いについて、1号機は原子炉停止から放射性粒子の放出まで約24時間、一方、2号機は最初の放出があったイベントまで最低でも72時間以上が経過している。炉心の水位が低下し燃料損傷が発生してから、保温材にCs蒸気が接触していた時間は、2号機の方が長く、特に保温材がCsを吸

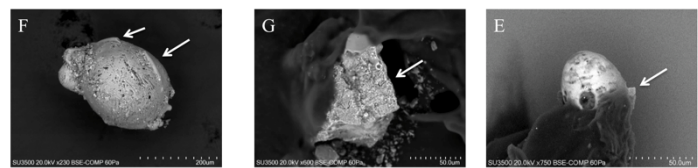


図11 原料情報を含む放射性粒子

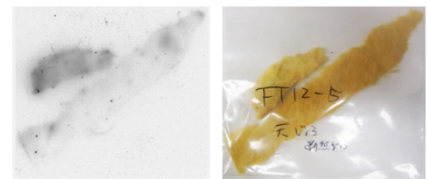


図12 Csを吸着したロックウール

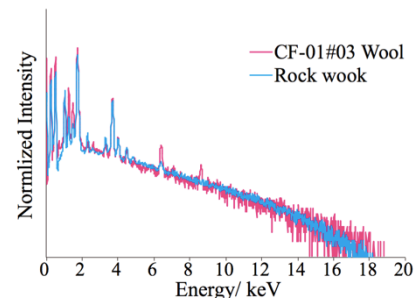


図13 ロックウールと粒子に付着したケイ酸繊維のEDS比較

着し始めてから、高圧、多湿条件の下で、長期間 Cs 蒸気にさらされたことで、Cs の吸着が進んだと考えられる。原料の熔融は燃料熔融に伴う熱か、熱水蒸気が考えられるが、どちらの場合であっても、保温材の熔融温度(約 1000℃)よりも高温になるため、D/W 内部はケイ酸系素材が熔融するためには十分な高温であった。

最後に 3 号機由来粒子が見つからなかった原因について、3 号機に由来する汚染は W/W ベントによる放出だと推定される(2 章)。この場合、高濃度の汚染ガスは D/W を通過せず、RPV から W/W でバブリングされてから排気されている。したがってこの過程で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(図 14)。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。さらに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。

北西地域に於ける最も合理的な説明

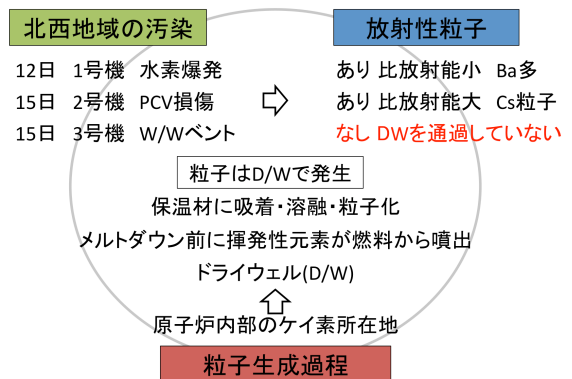


図 14 北西地域の汚染と放射性粒子放出の関係