

発電所隣接サイト外領域における放射性核種の環境動態特性に基づく サイト内放射性核種インベントリ評価に関する研究

(受託者) 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 飯島和毅 福島研究開発部門 福島環境安全センター

(再委託先) 独立行政法人 国立科学博物館、国立大学法人 京都大学、国立大学法人 福島大学

(研究期間) 平成27年度～29年度

1. 研究の背景とねらい

福島第一原子力発電所 (FDNPS) の廃炉作業を進める際に、サイト内で発生する多種多様な固体廃棄物 (土壌、樹木等) 中の放射性核種のインベントリ評価に向け、様々な核種について、廃棄物ごとに最も定量しやすい ^{137}Cs との濃度比 (輸送比) を評価する試みが進められている。輸送比を用いれば、発生した固体廃棄物中の ^{137}Cs 濃度から他の放射性核種濃度を推定することができる。しかし、これまでの調査結果から、FDNPS サイト内の場所によって、同じ固体廃棄物でも輸送比が1桁以上異なること、Srは時間とともに輸送比が小さくなっている可能性があることが示唆されており、インベントリ評価に当たってはこの輸送比のばらつきの原因を解明し、定量性を向上させた評価手法を確立する必要がある。

本研究では、FDNPS サイト外領域における核種の濃度、表土中・樹木中の分布状況、飛散物の化学形態等の距離依存性、方位依存性および時間依存性を系統的に評価し、その依存性に基づくサイト内各地点における核種インベントリを評価する手法の確立を目指す。これにより、サイト内の各地点において、廃炉に向けた過去の作業で発生した、あるいは、将来の作業で発生す

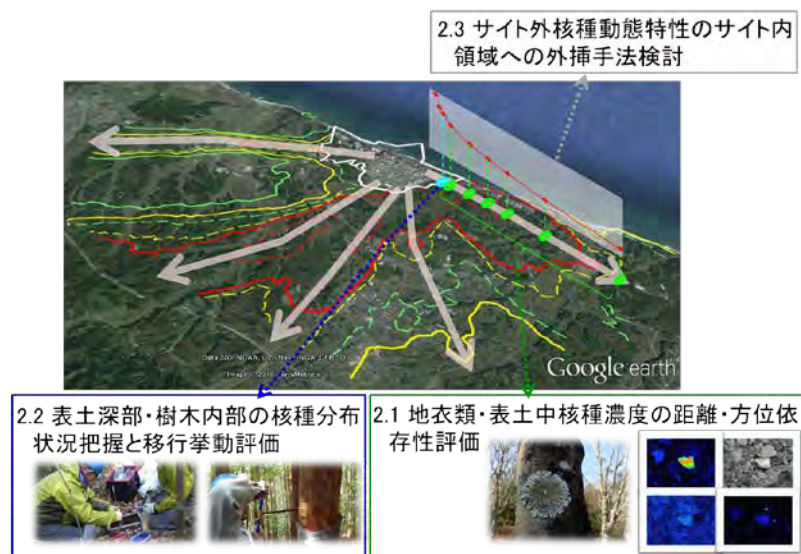


図1 本研究の概念図

る様々な固体廃棄物中の核種インベントリを定量的に評価でき、実際の固体廃棄物管理の現場で抜き取り検査等により行われるインベントリ確認を大幅に効率化できると考えられる。

2. これまでの研究成果

2.1 地衣類・表土中放射性核種の濃度・化学形態分布の距離依存性評価

核種を取り込み保持しやすいという地衣類の特性を生かし、地衣類中の核種濃度を評価するとともに、核種含有粒子のうち、炉内起源である可能性が高い重元素含有粒子にターゲットを絞り、電子線やX線を用いた分析手法により元素組成、元素結合状態等を明らかにし、化学形態を推定、同様な粒子のブルーム軌跡上の分布の距離依存性を評価する。

大熊町および双葉町内において走行サーベイを実施し、得られた空間線量率分布から放射性プルームの中心が通った軌跡は、概ね北から反時計回りに北北西、西―北、西―南、南西、南―西、南―東の6本に大別できることを明らかにした。それらの軌跡上で、地衣類の生育状況に基づき、調査候補地点を選定した。

西および南のプルーム軌跡上のうち、最も発電所に近い場所において採取された地衣類（樹皮付）中の放射性セシウム濃度を測定した(図2)。 ^{137}Cs 濃度は、0.45 – 10.4 kBq g^{-1} で、南④で最も濃度が高かった。採取日基準の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比をみると、地点間で有意な差はないと考えられるが、南③および④では他の地点に比べて、やや大きい傾向があり、他の地点とは異なるプルームの影響を受けている可能性がある。

採取した地衣類試料を、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィで3分間露光させ、放射性核種含有粒子の地衣類上の位置を特定し、南側および西側で採取した試料それぞれ

の露光の強い部分について、走査型電子顕微鏡/エネルギー分散型スペクトロメーター(SEM/EDS)を用いて粒子状物質の分析を行った。その結果、西側の試料ではFe, Zn, Cr, Ti, Ni, Zr等を含む粒子が確認され、南側の試料については、Fe, Zn, Cr, Ti, Ni, Zr, Cu, Cd, Ba, Ce, La, Mo, Mn, Y等を含む粒子が確認された。西側試料1断片および露光の強い試料が多くみられ

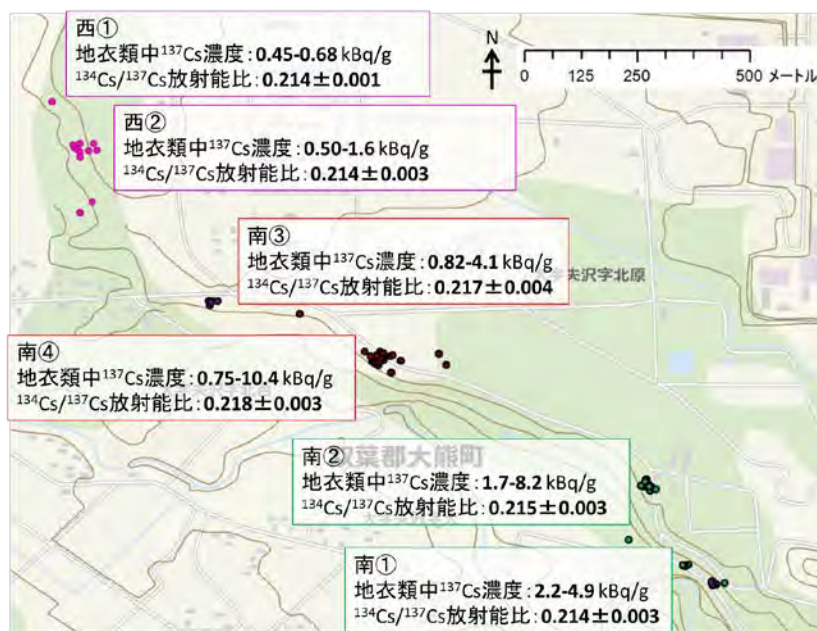


図2 地衣類中の ^{137}Cs 濃度と $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の分布

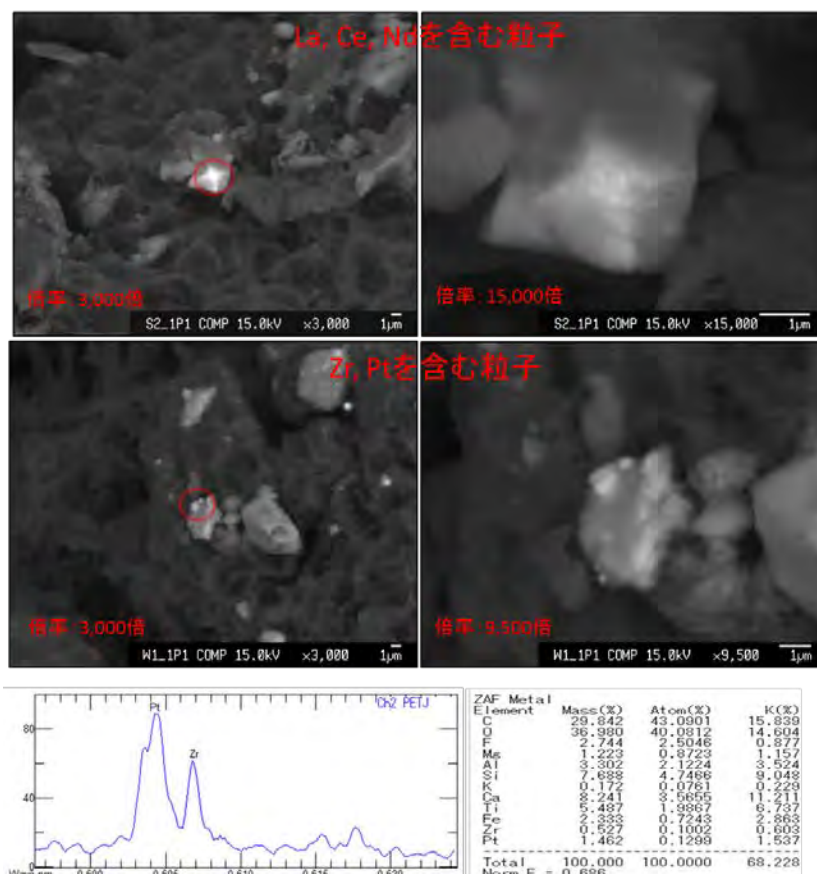


図3 地衣類表面で認められた重元素含有粒子の反射電子像とZr, Ptを含む粒子の点分析結果

た南側試料 4 断片について、電子線プローブマイクロアナライザ（EPMA）により元素分析を行ったところ、La, Ce, Nd などのランタニド元素を含む粒子、Zr 及び Pt を含む粒子が検出された（図 3）。今後、これらの粒子状物質の分布傾向を明らかにするとともに、これらの重元素含有粒子の取り出しを試みる。

2.2 表土深部・樹木内部における放射性核種の濃度分布状況把握と移行挙動評価

処理処分時の影響評価上重要だが測定が困難なストロンチウムやアクチニド核種等の核種の測定手法を確立しつつ、表土中深さ方向や樹木中各部位の核種濃度分布を測定する。さらに一部定期的な調査を行い、濃度分布の時間変化を評価するとともに、室内実験等で得られた核種の溶解度や吸着分配係数等の特性値を用いた移行モデル解析により、表土中・樹木中の移行現象を理解、各時点における核種濃度分布の推定をサポートする。

スクレイパープレートを用いて土壌試料を採取し、深さ方向の ^{137}Cs 沈着量のプロファイルの評価した（図 4）。各地点の総沈着量で 1 cm 当たりの沈着量を規格化して比較してみると、地点間で大きな違いはなく、いずれの地点においても放射性セシウムの深さ方向への移行挙動は同様であると考えられた。

樹木試料の中で最も高い濃度を示したのは外樹皮であるが、表土中の ^{137}Cs 総沈着量および樹皮中の濃度を用いて南②および南④のスギ樹皮への移行係数を求めたところ、それぞれ 2.68～19.1 および 2.99～12.46 であった。樹種や場所が同じであっても、プルームの当

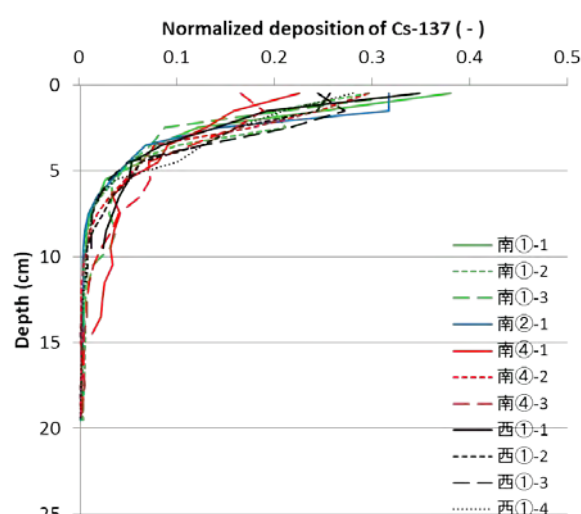


図 4 ^{137}Cs 沈着量の深さ方向プロファイル

たり方、周囲の植生等によって、初期沈着濃度や沈着後の流出挙動が異なる可能性がある。今後は、同一地点内でのサンプル数や経時変化データを取得し、このばらつきの原因を明らかにしていく。また、西①、南②および南④における 0～1 cm 深さの土壌の γ 放出核種以外の核種を測定したところ、 ^{90}Sr 、 ^{238}Pu および $^{239+240}\text{Pu}$ については全地点で、 ^{241}Am および ^{244}Cm については比較的放射性セシウム濃度が高かった南の 2 地点で、それぞれ検出された（2.3 参照）。

2.3 サイト外における放射性核種動態特性のサイト内領域への外挿手法の検討と評価

各プルームの核種の濃度や化学形態の距離依存性に基づき、サイト内およびサイト近傍における初期の汚染分布を推定する。また、表土や植物に係る核種の移行を考慮して、核種濃度分布の時間変化を評価する手法を検討するとともに、別途実施されているサイト内採取試料の測定結果等を用いて手法の適用性を評価する。

放射性核種の分布は一樣ではなく、濃度もばらつくため、容易に測定できる核種を基準とした比を用いることが効果的である。また、分析により検出されない核種のふるまいも推定することが必要であり、化学的な性質に基づいて類推するために、ソースタームの組成による規格化が合わせて行われる。濃度にこれらの操作を加えた量は輸送比と呼ばれ、次式により定義される(1)。

$$T_x = \frac{N_{x,\text{sample}}/N_{x,\text{fuel}}}{N_{\text{std},\text{sample}}/N_{\text{std},\text{fuel}}} = \frac{c_{x,\text{sample}}/A_{x,\text{fuel}}}{c_{\text{std},\text{sample}}/A_{\text{std},\text{fuel}}}$$

ここで、 N は原子数、 A は放射能 (Bq) [2]、 c は放射能濃度 (Bq/g, Bq/cm³)、添字の x は対象とする核種、std は標準の核種、sample は試料 (汚染物)、fuel はソースタームの一である損傷した核燃料をそれぞれ示す。基準とする核種は、¹³⁷Cs が選ばれる。

2011 年 3 月 15 日基準の濃度に基づき、サイト内の 3 地点 (1) およびサイト周辺の 3 地点 (本研究) で採取された土壌試料中の各核種の輸送比を求めた (図 5, 6)。⁹⁰Sr の輸送比は 10^{-4} から 10^{-3} 程度であり、サイト内のデータのうち、北西側や南側で採取された試料の値に近い。その他の ²³⁸Pu、²³⁹⁺²⁴⁰Pu、²⁴¹Am および ²⁴⁴Cm についても、 10^{-6} から 10^{-5} のオーダーで、サイト内の北西側や南側で採取された試料の値に近い。サイト内の場合、南側で採取された試料に比べて西側で採取された試料では、1~2 桁高い ⁹⁰Sr、²³⁸Pu および ²³⁹⁺²⁴⁰Pu 輸送比が得られていた。今回サイト周辺で得られた試料でも、南側試料に比べて西側試料の方が輸送比は大きく、同様の傾向が認められたが、その差は 1 桁以内である。

また、²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu 放射能比については、いずれの場所でも 1 前後の値が観測され、事故により沈着した Pu の寄与が示唆された。特に、南側④では ²³⁸Pu の比が比較的大きく、事故による核種沈着量が最も多いと推測された。



図 5 サイト内 (定点 1~3) およびサイト周辺 (西側①、南側④および②) の試料採取地点

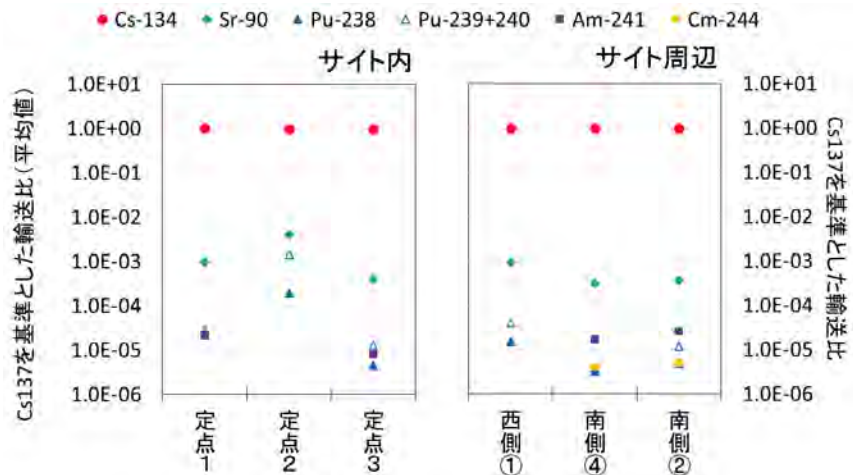


図 6 サイト内およびサイト周辺土壌中の各核種の輸送比

3. 今後の展望

今年度は、異なるプルームや FDNPS から離れた調査地点における調査・試料採取を進め、方位依存性や距離依存性を明らかにしていく。また、より簡便かつ迅速な Sr や α 放出核種の濃度測定手法を確立するとともに、放射性 Cs 除去後の γ 放射能測定により、放射性 Cs 以外の γ 放出核種の同定・濃度測定を試みる。これらにより、より多くの核種分布について、FDNPS からの距離・方位依存性を明らかにし、サイト内の放射性核種分布を推測するためのモデル検討を進める。

4. 参考文献

- (1) 駒 義和, 福島第一原子力発電所内の土壌への放射性核種の移行, JAEA-Data/Code 2014-015 (2014).