

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（図1）。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

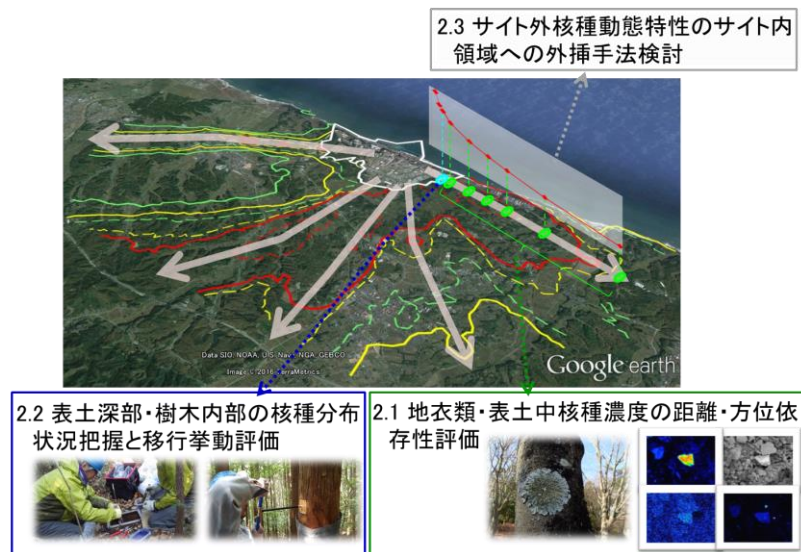


図1 本研究の概念図

発生す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。

走行サーベイや無人ヘリによる線量率分布に基づく、放射性ブルームが通った軌跡は、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。それらの軌跡上で、地衣類を採取し、その γ 放射能を測定して、 ^{137}Cs 放射能濃度および $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の分布を調べた。

放射能比をみると、概ね①0.91 程度のエリア、②0.95～0.99 のエリア、③0.99 以上のエリアに分けることができ、プルームの発生

源の違いを反映していると考えられる（図2）。また、西-南および西-北プルームでは、最も発電所に近い地点に比べて、発電所から遠い地点の方が、比が大きい。 ^{137}Cs 濃度を見ると、発電所に近い地点より、発電所から遠い地点の方が高い。このことから、同じ西-南および西-北プルーム上であっても、発電所に近い地点と遠い地点の汚染源が異なる可能性がある。

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た。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、重金属を含む粒子状物質の元素組成分析を行った。北北西プルーム軌跡上の地点で採取した地衣類試料のうちPbを含む粒子状物質（約 $50\mu\text{m}$ 径）については、粒子を取り出し、飛行時間型二次イオン質量分析装置（TOF-SIMS）にて質量分析を行った。その結果、EPMA では検出されなかったCs同位体（ ^{133}Cs 、 ^{135}Cs 、 ^{137}Cs ）

が検出され、各同位体の含有比は $^{133}\text{Cs} : ^{135}\text{Cs} : ^{137}\text{Cs} = 3.8 : 1.0 : 2.5$ であった。一方、事故後に炉心に含まれる同位体組成の計算結果に基づくと、事故6年後の1号機炉心（北北西プルームの起源）の同位体含有比は $^{133}\text{Cs} : ^{135}\text{Cs} : ^{137}\text{Cs} = 2.5 : 1.0 : 2.2$ と推測され、同程度の値であることが分かった。

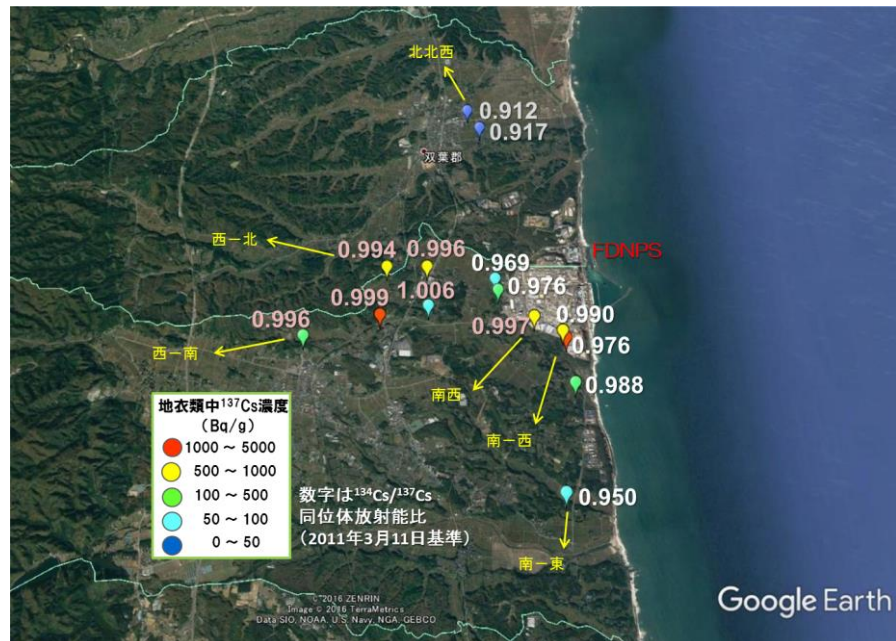


図2 各放射性プルーム上で採取された地衣類中の ^{137}Cs 濃度と $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の分布

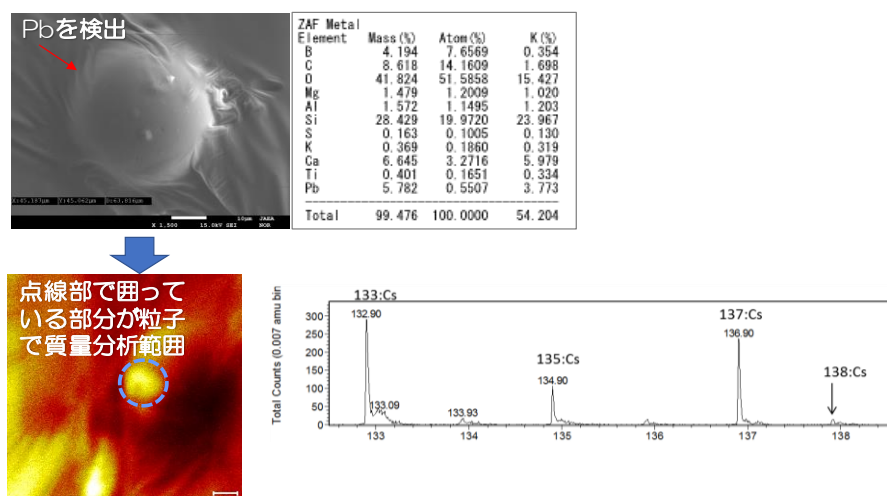


図3 地衣類表面で認められた重金属含有粒子の反射電子像とZr, Ptを含む粒子の点分析結果

今後、このような TOF-SIMS を用いた方法により、粒子に含まれる放射性核種の同位体情報についても評価を進めていく。

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、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 および ^{90}Sr 濃度のプロファイルの評価した (図 4)。 ^{137}Cs 濃度は γ スペクトル法により測定した。

^{90}Sr 濃度は、灰化した土壌試料を高温 (200℃) 下の密閉容器中で 20%硝酸に 1 時間浸漬し、溶出液中の濃度をカラム濃縮・ICP-MS 法により測定した。2016 年 1 月と 8 月のプロファイルと比較すると、プロファイルに大きな変化はなく、いずれの核種も移動速度は極めて遅いと考えられる。

それぞれの核種の濃度プロファイルを移流拡散モデルにより解析したところ、いずれの核種のプロファイルも単一のパラメータでは説明できず、移行挙動の異なる複数

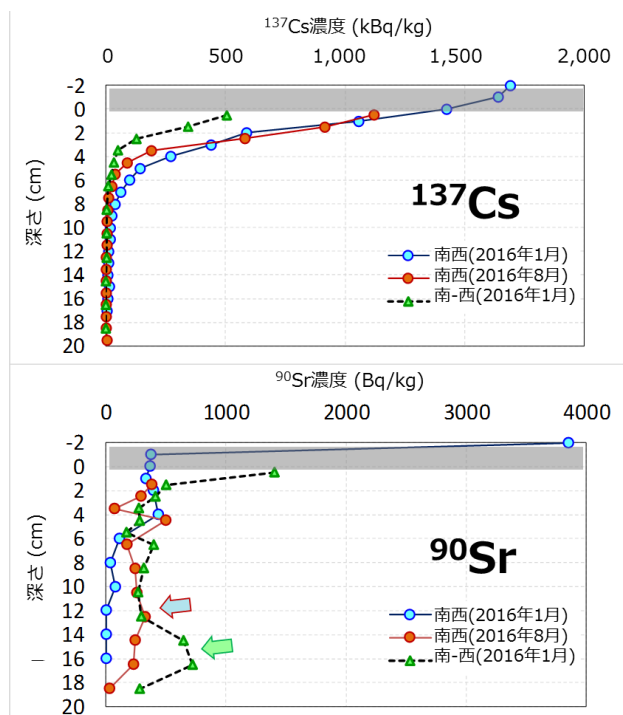


図 4 ^{137}Cs ・ ^{90}Sr 濃度の深さ方向プロファイル

のプロファイルが重畳したものであると推測された (図 5)。これは、移動速度が異なる複数の移行経路が存在するか、移行挙動が異なる複数の化学種が存在することを示している。このように、Cs および Sr の土壌中移行モデルを確立し、過去および将来の深さ方向のプロファイルを推測することができるようになった。

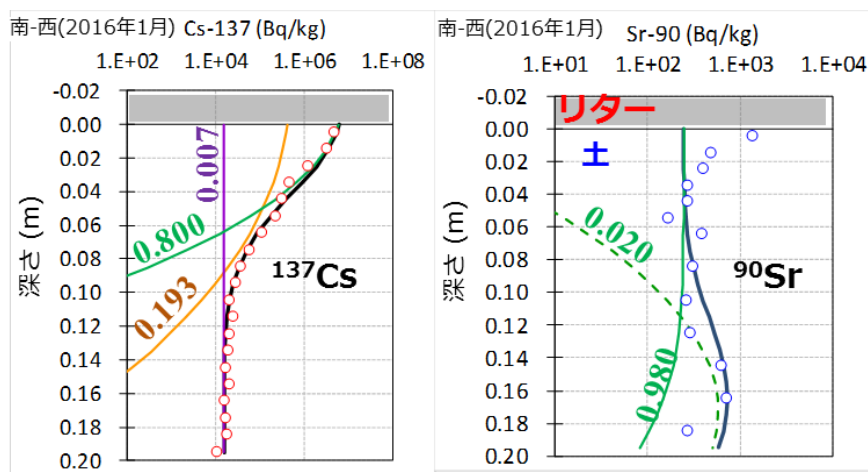


図 5 ^{137}Cs ・ ^{90}Sr 濃度の深さ方向プロファイルの移流拡散モデルによる解析結果

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

各ブ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周辺における汚染分布を推定する。また、表土や植物への移行を考慮して、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、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様ではなく、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)、 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 (¹³⁷Cs)、sample は試料 (汚染物)、fuel は損傷した核燃料を示す。

サイト内およびサイト周辺で採取された土壌試料中の各核種の輸送比を求めた (図 6)。⁹⁰Sr の輸送比は西ブルーム沿いで大きく、南方向では小さい。これは、サイト内の試料について得られた輸送比の傾向と同様である。また、南一西のブルームについては、各核種の輸送比はよく一致していることから、汚染の状況はサイト内からサイト周辺まで連続しており、サイト周辺のデータに基づきサイト内の汚染状況を推測するという本アプローチは有効と考えられた。

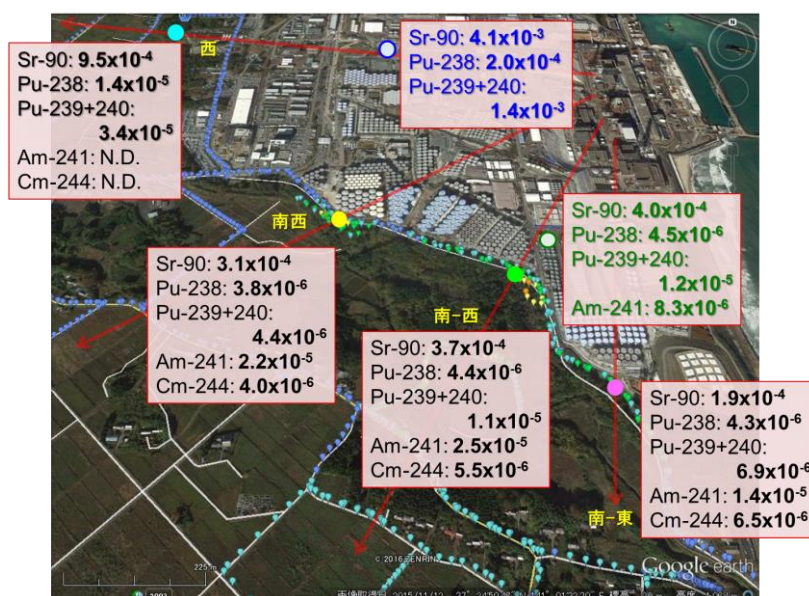


図 6 サイト内およびサイト周辺で採取された土壌中の各放射性核種の輸送比 (2011 年 3 月 15 日基準)

3. 今後の研究

今後、無人ヘリ観測等で得られたサイト周辺 5 km 程度の詳細な空間線量率分布に基づき、各ブルームの拡散挙動を簡易な拡散モデルで解析する。得られた拡散、輸送比、土壌中移行および樹木内移行の各モデルを組み合わせ、サイト内における放射性核種分布の推測モデルを確立する。

4. 参考文献

(1) Koma, Y., et al., “Radioactive contamination of several materials following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident”, Nucl. Mat. Energ., 10, p.35 (2017).