東電福島第一原発事故で大気中に 放出された放射性物質の話

_{筑波大学} 末木啓介

自己紹介

- 1979年3月 信州大学理学部化学科卒
- 1982年3月 東京都立大学大学院理学研究科化学専攻修士修了
- 1985年3月 東京都立大学大学院理学研究科化学専攻博士課程単位取得退学
- 1985年4月-12月 東京大学原子核研究所核研研究員

1986年1月-2002年3月東京都立大学理学部助手

2002年3月-2013年3月筑波大学化学系助教授→数理物質科学系准教授

2013年4月-2022年3月筑波大学数理物質科学系教授

2022年4月-2024年3月筑波大学数理物質科学系特命教授

アイソトープ(総合)センター(主任者) アイソトープ環境動態研究センター(主任者)

- 2024年4月-現在 筑波大学数理物質科学系特令教授
- 專門: 核•放射化学

研究テーマ: 重イオン核反応、陽子誘起核分裂、即発γ線分析、金属内包フラーレンの放射化学研究 超重元素(新元素、超アクチノイド元素)、加速器質量分析(³⁶Cl, ¹²⁹l) 福島核事故で放出された放射性核種

本日の話のあらすじ

- 原子炉では何をしてるのか
- 東電福島第一原発で何が起こったのか
- •3つの原子炉からどのような放射性核種が放出されたのか
- 東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか
- 放射性物質が放出された時間経過は
- •3つの原子炉からどのような物質が放出されたか
 - 放射性セシウム微粒子(セシウムボール)と放射性粒子

原子炉では何をしてるのか

- ・ウラン235、プルトニウム239が中性子を利用して核分裂を起こす。
- 核分裂は大量の熱を発生させる。それを用いて 水を加熱し、得られる水蒸気を用いてタービン を回転させて電気を発生させる。





原子炉では何をしてるのか

核分裂で何が生成する 必要なのは熱だけです 放射性核種も生成する

表 ウラン235・プルトニウム239の熱中性子による 核分裂で生じる主な核分裂生成物

生成物	ウラン235 の収率	プルトニウム 239の収率	半減期	ー部は中性子捕獲により半減期約 2年のセシウム134になる
セシウム133	6.70%	7.02%	安定	
ヨウ素135	6.28%	6.54%	6.57 h	β崩壊で生成するキセノン135は 度ったでたっとたき悪な害物等
ジルコニウム93	6.30%	3.80%	1.53 My	で10-50%が中性子捕獲により
セシウム137	6.19%	6.61%	30.17 у	キセノン136になり、残りは半 減期9146でセシウム135にな
テクネチウム99	6.05%	N/A	211 ky	3
ストロンチウム89	4.73%	1.72%	50.53 d	
ストロンチウム90	5.75%	2.10%	28.9 у	
ヨウ素131	2.83%	3.86%	8.02 d	
プロメチウム147	2.27%	N/A	2.62 у	
サマリウム149	1.09%	1.22%	安定	核燃料の交換に関わる、主要な毒
ヨウ素129	0.543%	1.37%	15.7 My	物質のひとつ。他にはサマリウム
キセノン133	6.70%	7.02%	5.247 d	がある



図 低エネルギー中性子による核分裂 の質量分布

稼働していた原子炉が停止すると

発電に必要だった熱が邪魔です→ある程度の温度に下がるまで冷却する必要 生成した放射性核種からは放射線が発生します→環境に出ないように隔離



東電福島第一原発で何が起こったのか

• 地震→津波→電源喪失→冷却機能喪失→炉心溶融→水素爆発 2011/3/11 14:46





水素爆発



3つの原子炉からどのような放射性核種が放出されたのか

原発から160-170km離れたつくばで

筑波大RICの管理区域内に設置された屋外モニタ リングポストの線量率変化





K. Sueki et al., *KEK Proceeding 2013-7*, 99-104 (2013)



東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか 文部科学省による航空機モニタリングの結果 第4次航空機モニタリングの測定結果を反映した東日本全域の地表面から1m高さの空間線量率 (福島第一原子力発電所から80km圏内の地表面から1m高さの空間線量率) 2011年11月5日現在 2011年4月29日現在











0-15

2218**8**

10 20 km

東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか



N. Kinoshita et al., PNAS 108(49), 19526-19529 (2011).

原子炉からの放射性核種の放出量(推定値)

代表的な核種における炉心インベントリーおよび 放出割合の比較

主な放射性物質放出量の比較

	チョルノービリ原発4号機		福島第一原発			チョルノービリ	福島第1原発
		ヤシウム	<u>(1 - 3号</u> ヨウ素	機の合計) セシウム	¹³⁷ Cs	85 PBq	15 PBq
放射性核種	131	137	131	137	⁹⁰ Sr	10 PBq	0.14 PBq
炉心インベントリー (10 ¹⁵ Bq)	3200	280	6100	710	131	- 1760 PBq	160 PBq
放出量(10 ¹⁵ Bq)	about	about	160	15	²³⁹ Np	400 PBq	0.076 PBq
放出割合(%)	50-60	20-40	2.6	2.1	²³⁹ Pu	0.013 PBq	極微量

福島第一原発は3つの原子炉による事故のため炉心内に存在する放射性核種の量はチョルノービリ原発に比べて大きい。

しかし事故の形態が異なるためチョルノービリ原発に比べて福島第一原発の方が放出量は少なく済んでいる。 特に融点が高い元素の放出量は小さい。

東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか



^{110m}Ag/137Csと¹³⁴Cs/137Csの放射能比(原発から北西地域)





ORIGEN 2 code simulation -Nuclear fuels calculation-Decay correction 11 Mar. 2011

	^{110m} Ag/ ¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs			
Unit 1	0.020	0.94			
Unit 2	0.025	1.08			
Unit 3	0.025	1.05			
Nishihara et al., (2012)					

^{110m}Ag/¹³⁷Cs (文科省放射線量等分布マップ(土壌濃度マップ等)より)





大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析



Fig. 1 SPM monitoring sites⁶⁾. (a) The deposition density of ¹³⁷Cs on the ground surface in eastern Japan from the Fourth Airborne Monitoring Survey by MEXT¹⁾. D1 and D2 are a hot spot area of relatively high deposition density in southern Tohoku and eastern Kantou, respectively. (b) SPM monitoring sites in Southern (S.) Tohoku area where filter-tapes were used for measurement of radiocesium. Hamadori and Nakadori are located in the east coast and central area of the Fukushima prefecture, respectively. Sendai and Marumori are located in Miyagi prefecture. (c) The same as b but in Kantou area.

H. Tsuruta et al., Earozoru Kenkyu, 32(4), 244-254 (2017).



(a) one volume of filter tape

24 spots blank 24 spots

(c) schematic order of SPM spots in normal case

Fig. 1 Examples of a filter-tape made of glass fiber







Fig. 2 Preparation of SPM samples for γ -ray measurements.

After cutting, a piece of filter-tape including a SPM spot was sandwiched with a weighing paper, and was fixed on a thin plastic sheet with an adhesive sheet



Fig. 4 Time series of atmospheric ¹⁵⁷Cs concentrations from Mar. 15 to Mar. 16, 2011 at Himonya and Kakinokizaka SPM stations, Tokyo, together with that at Fukasawa, Tokyo, determined by TIRI

The small peaks of the concentrations, shown by an arrow for Himonya and Kakinokizaka, were not found at the same time for Fukasawa, and are assumed to be false (see the text). (from ref. 9)

Y. Oura et al., *Bunseki Kagaku*, 69(1,2), 1-9 (2020).
Y. Oura et al., *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 15, 15-26 (2015).

大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析と気象データと組み合わせて



Figure 5. Temporal changes in release rate of total ¹³¹I and ¹³⁷Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 2012) are shown above the figure. G. Katata et al., Atoms. Chem. Phys., 15, 1029-1070, 2015

大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析と気象データと組み合わせて



Figure 5. Temporal changes in release rate of total ¹³¹I and ¹³⁷Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 2012) are shown above the figure. G. Katata et al., Atoms. Chem. Phys., 15, 1029-1070, 2015

大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析と気象データと組み合わせて



Figure 5. Temporal changes in release rate of total ¹³¹I and ¹³⁷Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 2012) are shown above the figure. G. Katata et al., Atoms. Chem. Phys., 15, 1029-1070, 2015

大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析と気象データと組み合わせて



Figure 5. Temporal changes in release rate of total ¹³¹I and ¹³⁷Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 2012) are shown above the figure. G. Katata et al., Atoms. Chem. Phys., 15, 1029-1070, 2015

大気環境常時測定局のSPM計の使用済みテープろ紙分析データの解析と気象データと組み合わせて



Figure 5. Temporal changes in release rate of total ¹³¹I and ¹³⁷Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 2012) are shown above the figure. G. Katata et al., Atoms. Chem. Phys., 15, 1029-1070, 2015

3つの原子炉からどのような物質が放出されたか

- ・放射性核種は1ミクロン程度の硫酸塩の微粒子によって運ばれた。
 - N. Kaneyasu et al., *Environmental Science and Technology* **46**(11), 5720-5726 (2012)
- ・放射性ヨウ素は粒子性と気体との両形態が存在、事故から時間 がたつにつれて気体の割合が増えた。
 - T. Doi et al., J Environmental Radioactivity 122, 53-62 (2013)
- •オートラジオグラフィーによる不溶性の粒子の存在。
 - 電子顕微鏡と蛍光X線分析と放射能測定による単離に成功
 - K. Adachi et al., Scientific Reports 3, 2554 (2013)
 - Y. Satou et al., *Geochem. J* **52**(2), 137-143 (2018)

放射性セシウム微粒子(セシウムボール)と放射性粒子

放射性セシウム微粒子(セシウムボール)と放射性粒子

つくば市にある気象研が採取したハイボリュームダストサンプラーのフィルタから放射性微粒子を見出した。



Figure 1 | The radioactivity of the aerosol particles after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident in Tsukuba, Japan. Red dots indicate the midpoints of each sampling period.



Figure 2 | The distribution of radioactive materials on the filter samples measured with the IP. Black dots indicate the presence of radioactive materials. The outer rims (dotted line) of the filters were added artificially. This study focused on the filter samples from March 14, 21:10 to March 15, 09:10 (upper left), and from March 20, 21:30 to March 21, 02:13 (bottom center).





Figure 4. Photos (top) of air-dust filters, IP images (middle) of air-dust filters, and IP images (bottom) of leached filters (1: 0.5 M HCl, 2: pure water, 3: 1% Na₂C₂O₄, 4: without leaching).



Figure 3] SEM and EDS mapping images of a radioactive Cs-bearing particle from the sample collected during March 14, 21:10 and March 15, 09:10. (a) A Cs-bearing particle partially embedded within a carbon paste. (b) The same Cs-bearing particle as a) but measured the next day. The particle shows a spherical shape. (c) An elemental mapping (Cs) of the particle (a). (d) The EDS spectrum of the particle a) (black line). The red line shows the spectrum from the glass substrate. The Cs in the particle shows multiple peaks. (c) An elemental mapping of the other elements within the area. O, Si, Cl, Mn, Fe, and Cn are possibly coexistent with Cs within the particle.

K. Adachi et al., Scientific Reports 3, 2554 (2013)

筑波大RICローボリュームダストサンプラーのフィルタ上にもK. Sueki et al., *KEK Proceeding 2013-7*, 99-104 (2013)

放射性セシウム微粒子(セシウムボール)と放射性粒子

・原発から北西の地域で2種類の異なる放射性粒子を見出す。



粒子内の気泡 Type B







P.G. Martin et al., Scientific Reports (2020) 10:1036



ブリストル大のグループから提供

放射性セシウム微粒子(セシウムボール)と放射性粒子

	Particle type		
Characteristic	А	В	
Size distribution (observed)	$1-10 \ \mu m$	70–400 μm	
¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs (mean)	1.04	0.93	
Other radionuclides	N/A	Antimony-125 (125Sb)	
Distribution	wide limited (North)		
Suspected emission date	March 15, 2011 March 12, 201		
Source reactor(s)	Unit 2 or 3	Unit 1	
Specific radioactivity	high 5000 MBq	/g Low 2-70 MBq/g	
Cs detection method of	SEM-EDS 主成分	synchrotron X-ray 微量成分	
Elements contained	Fe, Sn, Cl	Na, Mg, Ca, Ba	
Elements in common	Si, O, Zn		

Table 2. Characteristics of Type A and Type B particles

Satou et al., Geochem. J. 52 (2018) 137-143

放射性セシウム微粒子(セシウムボール)と放射性粒子

• 原発から様々な場所で見出されている

Classification of radioactive particles

	Unit 1	Unit 2	Unit 3
¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs at 2011/3/11	~ 0.93	~ 1	.04
	Onozaki et al. 2019	Туре А	148) 00 0.00 00
Size = 1 - 10 μm	Table 1 Bocarconnected artifities (as of 11 16 [Sr. The Mark 2011) of "PC, "Co, and "VC," Co, assumed arrow of holoholad " Image: Constant Cons	O, Si, Cl, Fe, Zn, Cs Adachi et al. 2013	
	Туре В		Kubo et al. 2020 Martin et al. 2020
Size = 20 - 1000 μm	O, Na, Mg, Al, Si, Ca, Zn Satou et al. 2018		

共通な性質:ガラス質 異なること:主要成分が異なる→生成過程が異なる

ご清聴ありがとうございます