# 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 2024年4月-現在 筑波大学数理物質科学系特令教授

専門: 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(<sup>36</sup>Cl, <sup>129</sup>l)

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)

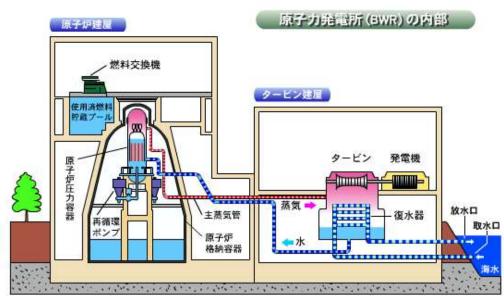
福島核事故で放出された放射性核種

### 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。



沸騰水型原子炉(BWR)

東京電力HPより

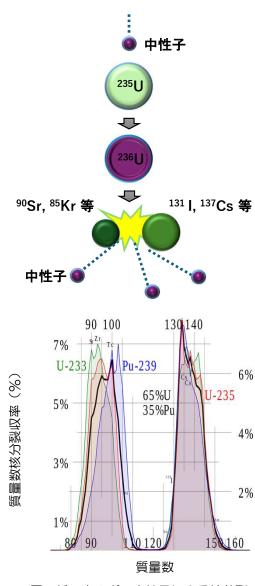


図 低エネルギー中性子による核分裂の質量分布

### 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<br>の収率 | プルトニウム<br>239の収率 | 半減期     | 一部は中性子捕獲により半減期約<br>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<br>原子炉でもっとも主要な毒物質   |
| 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 y | キセノン136になり、残りは半<br>減期9.14h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 y  |                                      |
| ヨウ素131    | 2.83%         | 3.86%            | 8.02 d  |                                      |
| プロメチウム147 | 2.27%         | N/A              | 2.62 y  |                                      |
| 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 | 151、ガドリニウム157など<br>がある               |

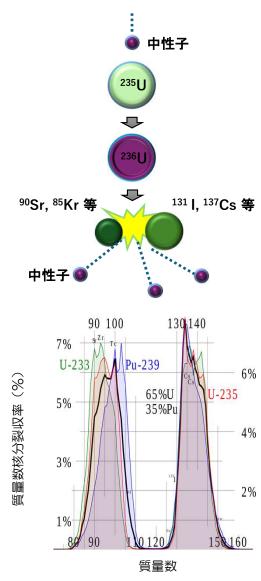
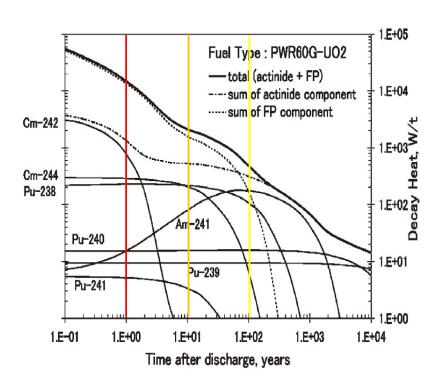


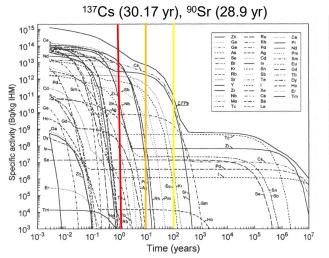
図 低エネルギー中性子による核分裂の質量分布

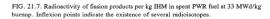
### 稼働していた原子炉が停止すると

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



使用済核燃料の崩壊熱変化





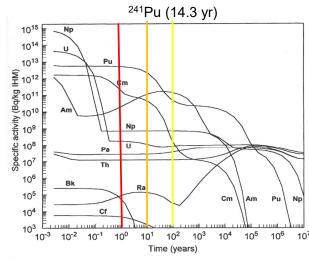


Fig. 21.8. Radioactivities of actinides and radium per kg IHM in spent PWR fuel after 33 MWd/kg burnup (see Tab. 21.2). Inflection points indicate the presense of several radioisotopes of the element.

原子力発電所を停止したときからの燃料中の放射能の時間変化 (左:核分裂生成物、右:アクチノイド元素)

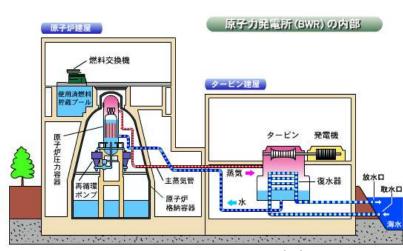
### 東電福島第一原発で何が起こったのか

• 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







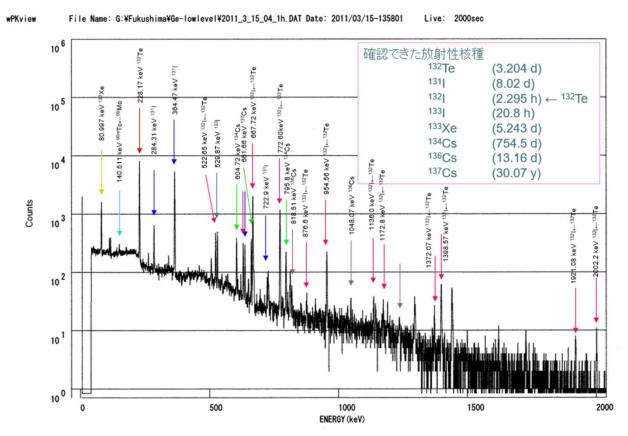
東京電力HPより

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

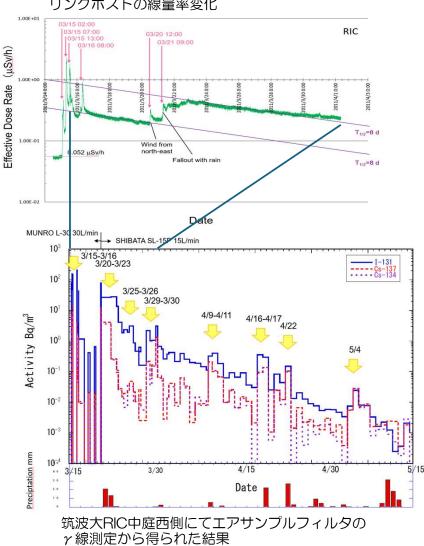
#### 原発から160-170km離れたつくばで



2011年3月15日12:33-13:30 30 L/min 筑波大RIC中庭西側にて捕集したエアサンプラー試料の γ 線スペクトル

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

#### 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

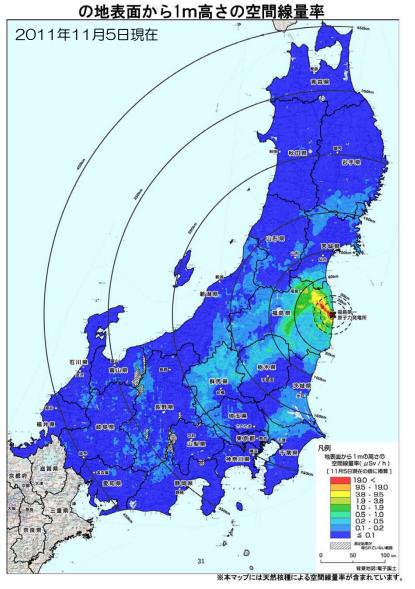


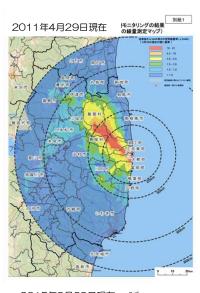
#### 東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか

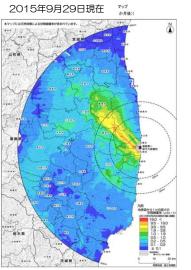
#### 文部科学省による航空機モニタリングの結果

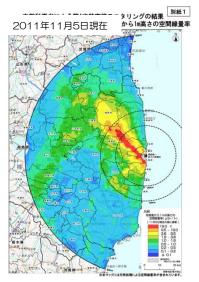
第4次航空機モニタリングの測定結果を反映した東日本全域の地表面から1か寛大の空間線景変

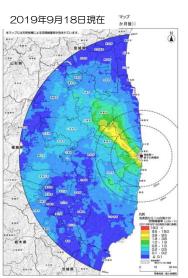
(福島第一原子力発電所から80km圏内の地表面から1m高さの空間線量率)

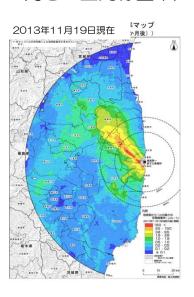


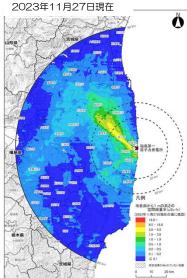




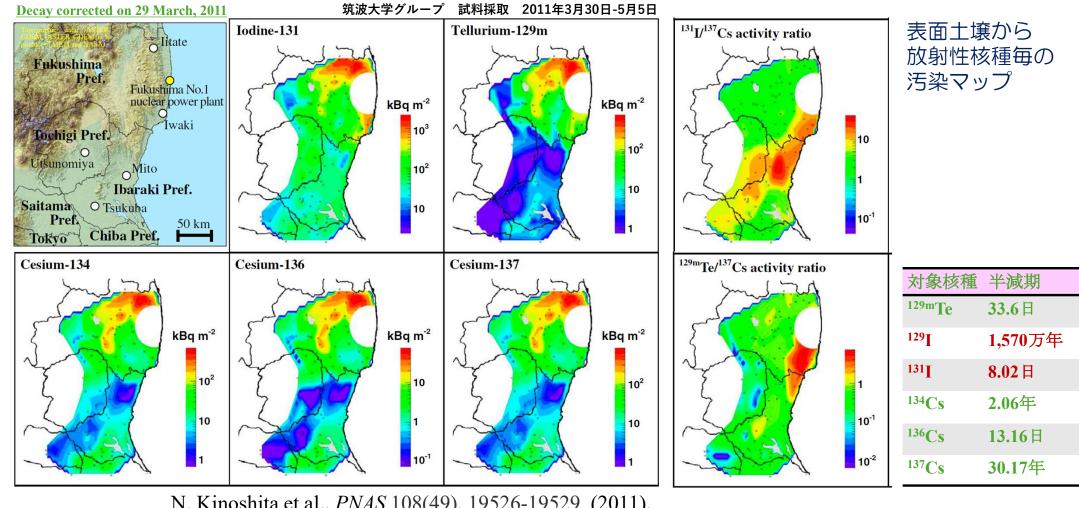








### 東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか



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

|                                    | チョルノービリ原発4号機  |             | 福島第一原発     |             |
|------------------------------------|---------------|-------------|------------|-------------|
|                                    |               |             | (1-3号機の合計) |             |
| 放射性核種                              | ヨウ素<br>131    | セシウム<br>137 | ヨウ素<br>131 | セシウム<br>137 |
| 炉心インベントリー<br>(10 <sup>15</sup> Bg) | 3200          | 280         | 6100       | 710         |
| 放出量(10 <sup>15</sup> Bq)           | about<br>1760 |             | 160        | 15          |
| 放出割合(%)                            | 50-60         | 20-40       | 2.6        | 2.1         |

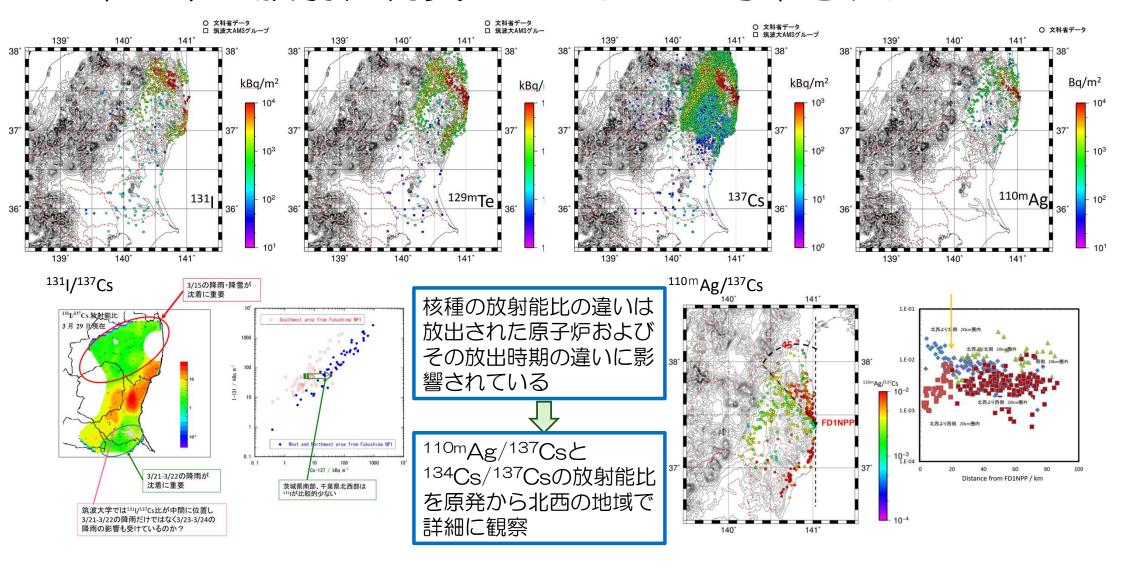
主な放射性物質放出量の比較

|                   | チョルノービリ    | 福島第1原発    |
|-------------------|------------|-----------|
| <sup>137</sup> Cs | 85 PBq     | 15 PBq    |
| <sup>90</sup> Sr  | 10 PBq     | 0.14 PBq  |
| 131               | - 1760 PBq | 160 PBq   |
| <sup>239</sup> Np | 400 PBq    | 0.076 PBq |
| <sup>239</sup> 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。

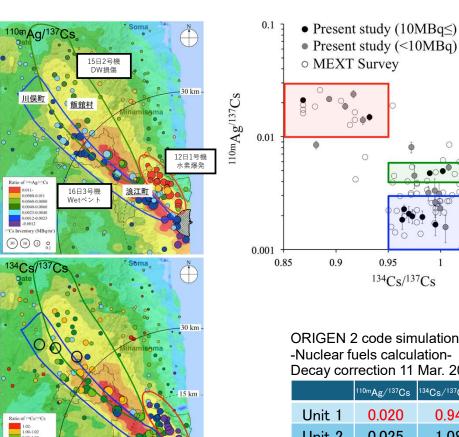
しかし事故の形態が異なるためチョルノービリ原発に比べて福島第一原発の方が放出量は少なく済んでいる。 特に融点が高い元素の放出量は小さい。

### 東日本は放射性物質でどのように汚染されたのか



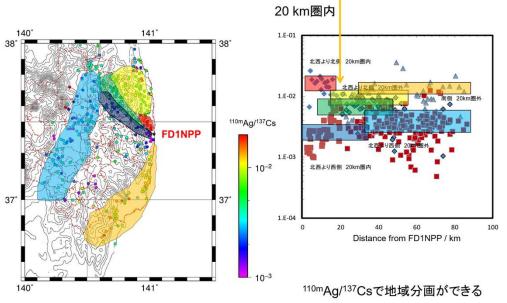
#### 110mAg/137Csと134Cs/137Csの放射能比(原発から北西地域)

1.05



(30) (10) (1) (0)

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



ORIGEN 2 code simulation Decay correction 11 Mar. 2011

|                          | <sup>110m</sup> Ag/ <sup>137</sup> Cs | <sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs |  |
|--------------------------|---------------------------------------|--------------------------------------|--|
| Unit 1                   | 0.020                                 | 0.94                                 |  |
| Unit 2                   | 0.025                                 | 1.08                                 |  |
| Unit 3                   | 0.025                                 | 1.05                                 |  |
| Nishihara et al., (2012) |                                       |                                      |  |

どこから、いつ、どこへ放出されたのか 原発周辺ではわかりそうだが、遠方へは



放出時期と放射性核種の情報を持つ資料の存在 環境省の大気環境常時測定局のSPM計

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

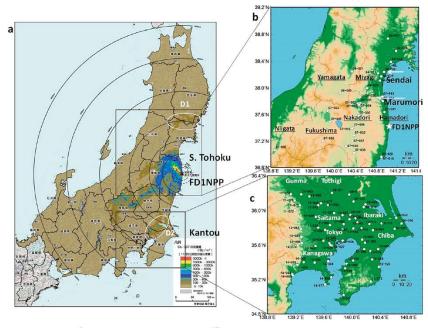


Fig. 1 SPM monitoring sites<sup>6)</sup>. (a) The deposition density of <sup>137</sup>Cs on the ground surface in eastern Japan from the Fourth Airborne Monitoring Survey by MEXT<sup>1)</sup>. D1 and D2 are a hot spot area of relatively high deposition density in southern Tohoku and eastern Kantou, respectively. (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).

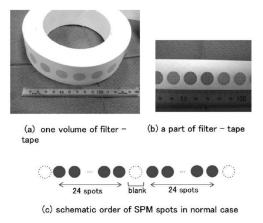


Fig. 1 Examples of a filter-tape made of glass fiber



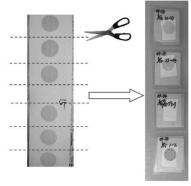


Fig. 2 Preparation of SPM samples for γ-ray

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

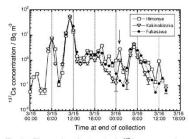


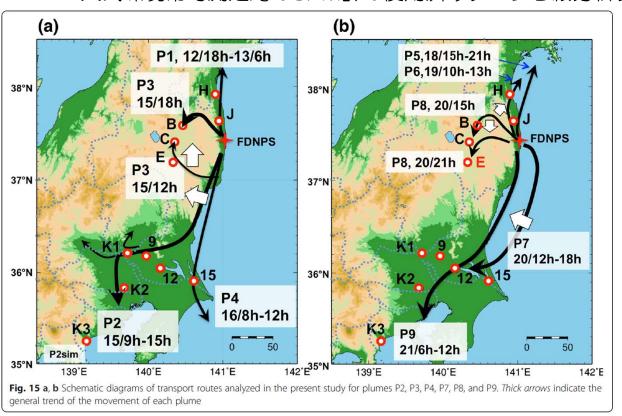
Fig. 4 Time series of atmospheric <sup>137</sup>Cs concentrations from Mar. 15 to Mar. 16, 2011 at Himonya and Kakinokizaka SPM stations, Tokyo, together with that at Fukasawa, Tokyo, determined by TIRI

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



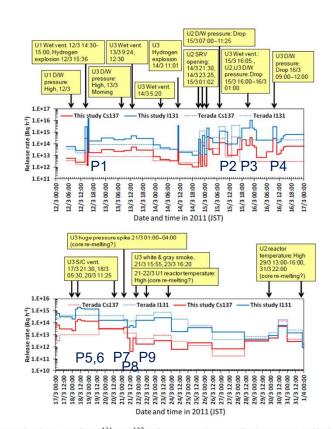


Figure 5. Temporal changes in release rate of total <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 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

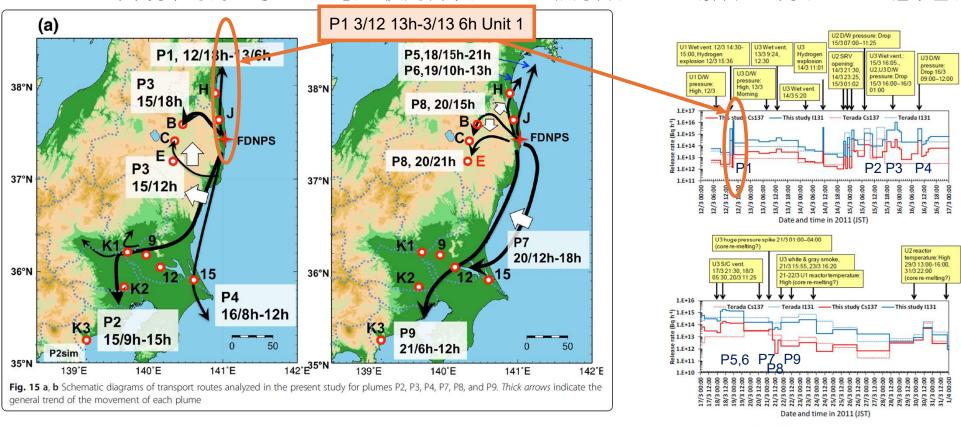


Figure 5. Temporal changes in release rate of total <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 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

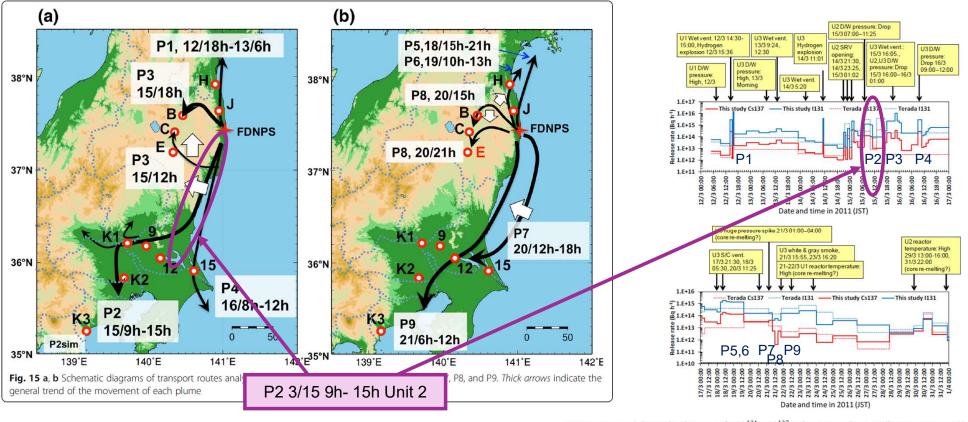


Figure 5. Temporal changes in release rate of total <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 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

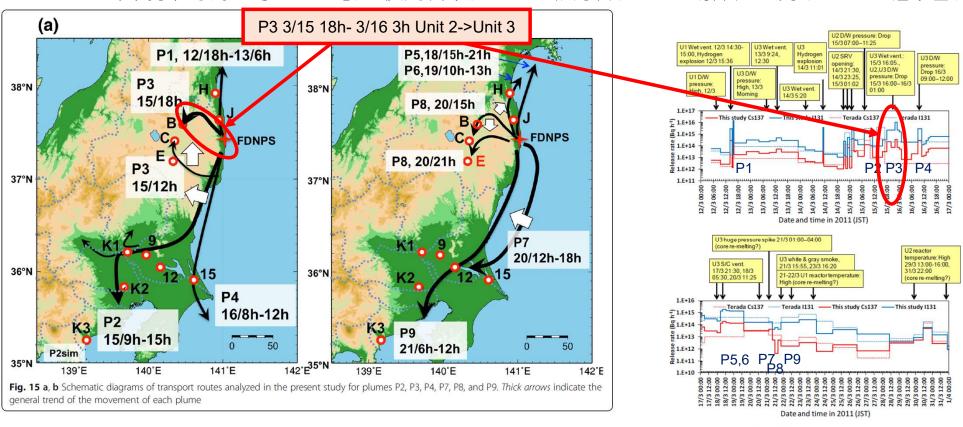


Figure 5. Temporal changes in release rate of total <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 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

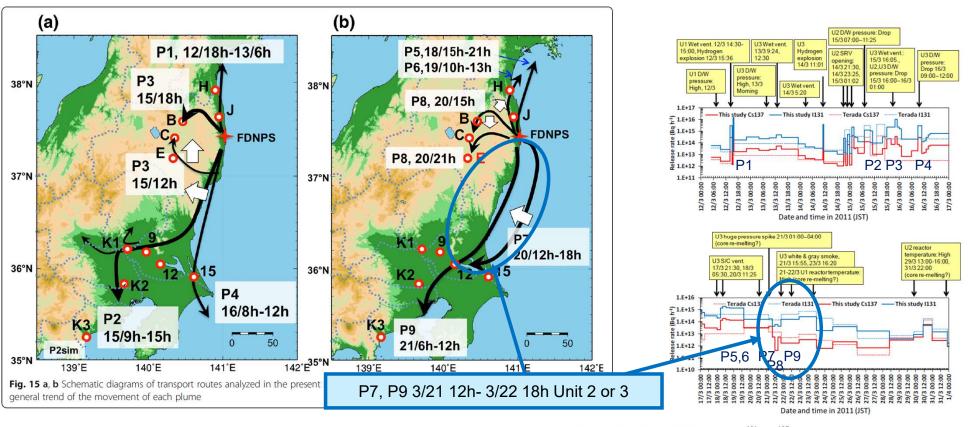


Figure 5. Temporal changes in release rate of total <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs from 12 March to 1 April 2011 reconstructed in this study (solid lines) and Terada et al. (2012) (dashed lines). The recognized events in the reactors (Prime Minister of Japan and His Cabinet, 2011; TEPCO, 2011a; 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

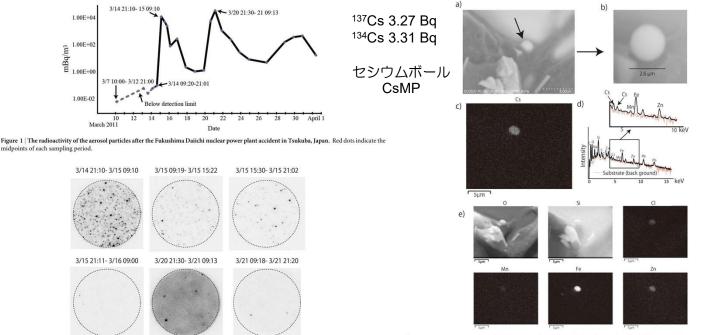


Figure 2 | The distribution of radioactive materials on the filter samples measured with the IP. Black dots indicate the presence of radioactive materials. The outer rims (dotted line) of the filters were added artificially. This study focused on the filter samples from March 14, 21:10 to March 15, 09:10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

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) 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. (e) An elemental mapping of the other elements within the area. O, Si, Cl, Mn, Fe, and Can are possibly coexistent with Cs within the particle.

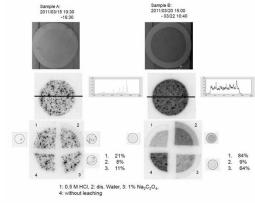
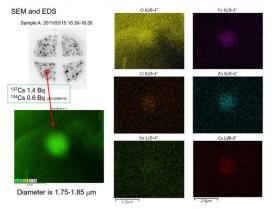


Figure 4. Photos (top) of air-dust filters, IP images (middle) of air-dust filters, and IP images (bottom) of leached filters (1: 0.5 M HCl, 2: pure water, 3: 1% Na<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, 4: without leaching).

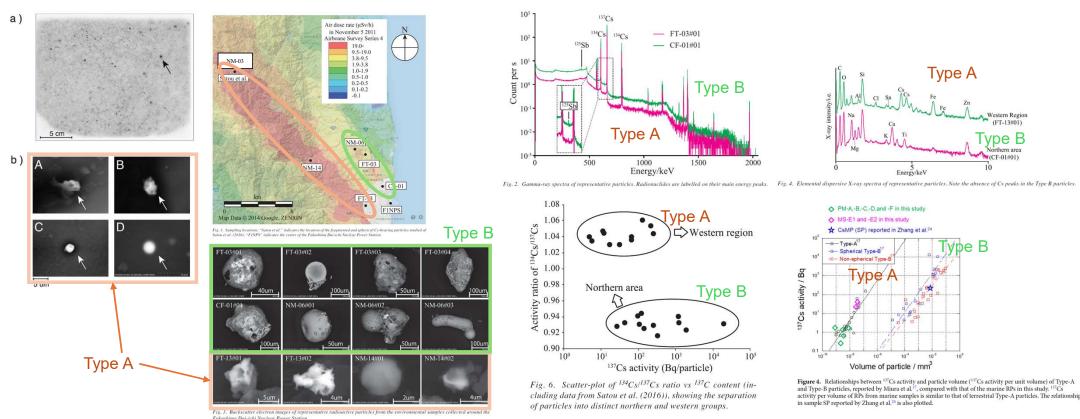


筑波大RICローボリュームダストサンプラーのフィルタ上にも

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。



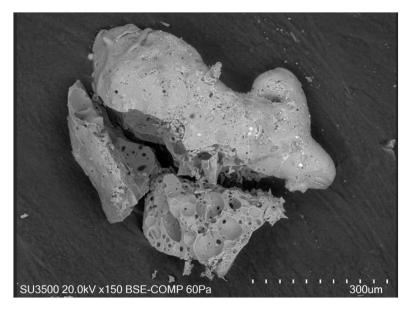
- Y. Satou et al., *Anthropocene* **14**, 71-76 (2016)
- Y. Satou et al., *Geochem. J* **52**(2), 137-143 (2018)

H. Miura et al., Scientifif Reports (2020) 10:11421

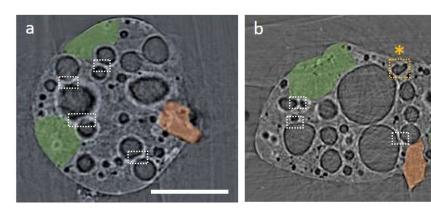
H. Miura et al., Scientific Reports (2021) 11:5664

表層土壌から取り出した粒子

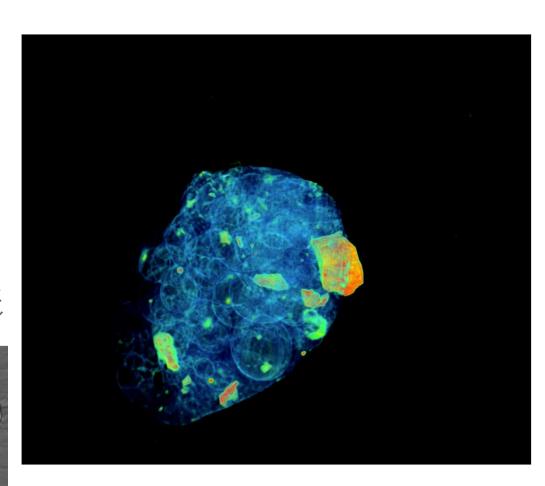
# 粒子内の気泡 Type B



断層撮影



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

Table 2. Characteristics of Type A and Type B particles

|   | Particle type  |                           |  |
|---|----------------|---------------------------|--|
| Characteristic                              | A              | В                         |  |
| Size distribution (observed)                | 1–10 μm        | 70–400 μm                 |  |
| <sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> 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, 2011            |  |
| Source reactor(s)                           | Unit 2 or 3    | Unit 1                    |  |
| Specific radioactivity                      | high 5000 MB   | Bq/g Low 2-70 MBq/g       |  |
| Cs detection method of                      | SEM-EDS<br>主成分 | synchrotron X-ray<br>微量成分 |  |
| Elements contained                          | Fe, Sn, Cl     | Na, Mg, Ca, Ba            |  |
| Elements in common                          | S              | i, O, Zn                  |  |

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                                   |
|---|--|--|--|
| <sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs at 2011/3/11 | ~ 0.93   | ~ 1.04   |  |
| Size = 1 - 10 μm                                  | Onozaki et al. 2019  Tald I. Bernermeré endinis far di 11 lé NT.  The Mark 2011 of "Co. "Co. and concerne di fundada pointes.  The Mark 2011 of "Co. "Co. and concerne di fundada pointes.  The Mark 2011 of "Co. "Co. and Co. "Co. and Co. "Co. and Co. "Co. and Co. "Co. "Co. and Co. "Co. "Co. "Co. "Co. "Co. "Co. "Co. | Type A O, Si, Cl, Fe, Zn, Cs  Adachi et al. 2013 | 19 (19 (19 (19 (19 (19 (19 (19 (19 (19 ( |
| Size = 20 - 1000 μm                               | Type B  O, Na, Mg, Al, Si, Ca, Zn  Satou et al. 2018   |  | Kubo et al. 2020<br>Martin et al. 2020   |

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