原著論文

福島第一原子力発電所において採取した瓦礫試料の放射化学分析

佐藤 義行^{*1}, 田中 究^{*1}, 上野 隆^{*1}, 石森 健一郎^{*1}, 亀尾 裕^{*1}

(2015 年 8 月 31 日受理)

(2016 年 9 月 14 日再受理)

Radiochemical Analysis of Rubble Collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Yoshiyuki SATO,^{*1} Kiwamu TANAKA,^{*1} Takashi UENO,^{*1} Ken-ichiro ISHIMORI^{*1} and Yutaka KAMEO^{*1}

A large amount of contaminated rubbles were generated by the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (F1NPS). For safe decommissioning of F1NPS, it is important to evaluate the composition and concentration of radionuclides in the rubbles. In this paper, to characterize the rubbles collected at F1NPS, radiochemical analysis was operated. As a result of radiochemical analysis, gamma-ray-emitting nuclides ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{154}Eu , beta-ray-emitting nuclides ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr and ^{99}Tc , and alpha-particle-emitting nuclides $^{238, 239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm were detected. In contrast, ^{94}Nb and ^{152}Eu concentrations were below the detection limit. Measured radioactive concentrations implied that ^{60}Co and ^{90}Sr concentrations depended on ^{137}Cs concentration respectively. This analysis was characterized the radioactivity concentrations of the rubbles.

KEY WORDS: radiochemical analysis, Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, decommissioning, rubble, boring core.

I 緒 論

2011 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震に起因し、福島第一原子力発電所（以下、「福島発電所」という。）では、核燃料が冷却できなくなり、 ^{137}Cs や ^{90}Sr 等の放射性核種が原子炉内部から放出された¹⁻³⁾。この放出により、原子炉建屋、タービン建屋等の構造物や機器、原子炉建屋周辺の樹木等が広範囲に汚染された⁴⁾。これらの汚染物に加え、今後、廃止措置の本格化に伴い、瓦礫類が大量に発生すると予想される。また樹木についても、水処理装置や保管タンクを設置するために伐採され、敷地内で保管されている。2015 年 6 月 30 日現在、保管されている瓦礫類は、156,600 m³、伐採木は、

82,500 m³ となっており⁵⁾、今後、発生する瓦礫等を含め、処理処分方策の整備が緊急の課題となっている。このためには、瓦礫等に付着した放射性核種の種類や濃度等の情報を明らかにし、事故により発生した廃棄物（以下、「事故廃棄物」という。）の性状を把握することが重要である。測定が容易な γ 線放出核種のみならず、 α 線及び β 線放出核種に対する放射化学分析データが必要である。

これまで著者らは、日本原子力研究開発機構から発生する放射性廃棄物を対象に、簡易かつ迅速な分析法の開発を行ってきた⁶⁾。この分析法に基づき、事故廃棄物に対しても伐採木や原子炉建屋周辺の瓦礫等の分析を実施している⁴⁾。一方、廃炉プロジェクトにおいては、原子炉透視技術及び無人探査ロボットによる調査が進められ、原子炉建屋内の放射能分布についても関心が寄せられている。しかし、原子炉建屋内部に飛散した放射性核種の種類及び量は十分に把握されておらず、事故廃棄物対策のみならず、廃止措置を加速するためにも、詳細な放射能データの収集が求められている。

そこで本検討では、原子炉建屋内で採取された瓦礫の放射化学分析を実施し、その核種組成を明らかにするこ

^{*1} 技術組国際廃炉研究開発機構 / 日本原子力研究開発機構バックエンド研究開発部門原子力科学研究所バックエンド技術部；茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4 (〒319-1195)

International Research Institute for Nuclear Decommissioning/
Department of Decommissioning and Waste Management, Nuclear
Science Research Institute, Sector of Decommissioning and
Radioactive Waste Management, Japan Atomic Energy Agency; 2-4
Ozasirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195, Japan.

E-mail: Sato.yoshiyuki21@jaea.go.jp

とを目的とした。分析対象核種は、 ^3H , ^{14}C , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{99}Tc , ^{137}Cs , $^{152,154}\text{Eu}$, $^{238,239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , 及び ^{244}Cm の計 14 核種とした。取得した放射能データは、核種間の相関性等を評価することにより、号機ごとの核種組成や放射能濃度を比較し考察した。

II 分析法の概要

1. 試料

本検討で用いた瓦礫の材質、表面線量率及び重量を Table 1 に示す。Table 1 に示した 1 号機の瓦礫 (1RB-AS-R1, 1RB-AS-R3, 1RB-AS-R4, 1RB-AS-R6, 1RB-AS-R10) 及び 3 号機の瓦礫 (3RB-AS-R3, 3RB-AS-R4, 3RB-AS-R6, 3RB-AS-R8) は、原子炉建屋 1 階で実施された、遠隔操作重機「ASTACO-SoRa」による障害物撤去作業において回収された瓦礫から採取された、コンクリート片 (8 試料) 及び保温材 (1 試料) である。また、建屋内の遠隔除染技術の開発では、遠隔除染装置「MEISTeR」を用いて 2 号機原子炉建屋 5 階でボーリングコア (2RB-DE-C2) が採取されており、これを分析に供した (1 試料)。ボーリングコアについては、汚染が表面に限定されていることがわかっているため⁷⁾、表面の塗膜部分のみを分析した。各瓦礫については、全量を粉碎・均質化した後、それぞれの核種について放射化学分析を実施した。以後、1, 2 及び 3 号機の瓦礫を、それぞれ、1RB, 2RB 及び 3RB と呼ぶ。

2. 分析操作

本検討で適用した分析手法は、建屋周辺瓦礫及び伐採木を分析した前報⁴⁾と同様である。以下、分析法の概要を示す。

1RB, 2RB 及び 3RB は遊星型ボールミル (FRITSCH

JAPAN 社製, P-7) を用いて、500 rpm, 3 分間の条件で粒径 0.5 mm 以下になるまで粉碎及び均質化した。粉碎した 1RB, 2RB 及び 3RB は、高純度ゲルマニウム検出器 (HPGe, Canberra 社製, GC3519) を用いて ^{137}Cs の放射能濃度を測定した。その後、粉碎した 1RB 及び 3RB は、1 g ずつ 6 個分取し、これを分析用の試料とした。2RB については試料量が少なく、秤量が困難であったため、精製水を 28 g 加えてスラリー状にした後、ピペットで 1 g ずつ 6 個分取し、これを分析用の試料とした。6 個の試料は以下の①～⑥の各分析、すなわち① ^3H 及び ^{14}C , ② ^{60}Co , ^{94}Nb 及び $^{152,154}\text{Eu}$, ③ ^{90}Sr , ④ ^{99}Tc , ⑤ $^{238,239+240}\text{Pu}$, ⑥ ^{241}Am 及び ^{244}Cm , に使用した。試料は均質性の確認のため HPGe を用いて ^{137}Cs の放射能濃度を測定し、各試料 6 個における変動係数が 5% 以下であることを確認した。

(1) ^3H , ^{14}C 分析法

試料を O_2 気流下の石英管内で 900°C に、下流側の石英管にはホプカライト I を詰めて 500°C に加熱した。発生した ^3H を含む水をドライアイス—エタノールで冷却したコールドトラップに回収し、 ^{14}C を含む CO_2 は水酸化ナトリウム水溶液に通気させて回収した。 ^3H 回収液は、蒸留により精製した後、Ultima Gold LLT (Perkin Elmer 社製) を加え測定試料溶液とした。 ^{14}C を回収した水酸化ナトリウム水溶液は、硝酸を加え、発生した CO_2 を Carbo-Sorb E (Perkin Elmer 社製) で回収することにより精製し、Permafluor E+ (Perkin Elmer 社製) を加え、測定試料溶液とした。 ^3H 及び ^{14}C の測定試料溶液は、液体シンチレーションカウンタ (LSC, Perkin Elmer 社製, TriCarb 2910TR, 3110TR) により放射能濃度を測定した。

Table 1 Description of samples analyzed in this study.

Sample name	Sampling Date	Form	One centimeter dose equivalent rate ($\mu\text{Sv/h}$)	Weight (g)
1RB-AS-R1	October 2013	Concrete	100	50.9
1RB-AS-R3	October 2013	Concrete	74.5	50
1RB-AS-R4	October 2013	Concrete	87	51
1RB-AS-R6	October 2013	Concrete	93	26
1RB-AS-R10	October 2013	Lagging material	970	26
2RB-DE-C2	May 2014	Surface paint ¹⁾	73	5
3RB-AS-R3	March 2014	Concrete	340	26
3RB-AS-R4	March 2014	Concrete	17	26
3RB-AS-R6	March 2014	Concrete	13	26
3RB-AS-R8	March 2014	Concrete	91	26

¹⁾ Core boring sample at operation floor.

(2) ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{94}Nb , $^{152, 154}\text{Eu}$, $^{238, 239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm 分析法

試料に王水を加え、マイクロ波加熱分解装置(Milestone 社製, ETHOS One)を用いて加熱・溶解した。 γ 線測定により ^{137}Cs が90%以上抽出できていることを確認した。 ^{60}Co , ^{94}Nb 及び $^{152, 154}\text{Eu}$ については溶解溶液をりんモリブデン酸アンモニウム(以下、「AMP」という。)を用いた ^{137}Cs との沈殿分離を行い、 ^{137}Cs を除去した試料溶液をガラスバイアルに乾固し、HPGe測定により ^{60}Co , ^{94}Nb , 及び $^{152, 154}\text{Eu}$ の放射能濃度を測定した。 ^{90}Sr については Sr Resin (Eichrom 社製)による分離精製を行い、分離精製した ^{90}Sr に対して Ultima Gold LLT を加え、LSCによって放射能濃度を測定した。 $^{238, 239+240}\text{Pu}$ については UTEVA-Resin (Eichrom 社製)により分離精製し、タンタル板に焼き付け測定試料とした。 ^{241}Am 及び ^{244}Cm は TRU-Resin (Eichrom 社製)により分離精製し、Pu と同様にタンタル板に焼き付け測定試料とした。Pu, Am 及び Cm の測定試料はシリコン半導体検出器 (AMETEK 社製, 576-VM) を用いて放射能濃度を測定した。

(3) ^{99}Tc 分析法

試料に対し過剰量の水酸化ナトリウム粉末を加え、 550°C で30分間加熱してアルカリ溶融し、冷却後精製水に溶解した。HPGe測定により ^{137}Cs がアルカリ溶融により90%以上抽出できていることを確認した。アルカリ溶融後の溶液を酸性にし、AMPを加えて ^{137}Cs を分離した後、TEVA-Resin (Eichrom 社製)によって ^{99}Tc を分離した。溶離した ^{99}Tc に Ultima Gold LLT を加え、LSCにより放射能濃度を測定した。

III 結果と考察

1. 建屋内瓦礫の放射能濃度

各原子炉建屋で発生した瓦礫試料の分析結果を以下

に示す。放射能濃度は2011年3月11日で補正した。Table 2 に γ 線放出核種の放射能濃度を示した。 ^{137}Cs は、分析した10試料すべてで検出され、その濃度範囲は $4.2 \times 10^3 \sim 1.1 \times 10^6 \text{ Bq/g}$ であった。 ^{60}Co は、8試料から $1.5 \times 10^{-1} \sim 1.1 \times 10^3 \text{ Bq/g}$ の範囲で検出された。 ^{94}Nb 及び ^{152}Eu はすべての試料で検出限界値以下であった。 ^{154}Eu は2RBのみ検出され、その濃度は $3.5 \times 10^2 \text{ Bq/g}$ であった。

Table 3 に β 線放出核種の放射能濃度を示す。 ^3H 及び ^{90}Sr はすべての試料で検出され、その濃度範囲はそれぞれ、 $4.9 \times 10^{-1} \sim 3.5 \times 10^2 \text{ Bq/g}$ 及び $3.6 \times 10^0 \sim 2.1 \times 10^4 \text{ Bq/g}$ であった。 ^{14}C は8試料から $5.5 \times 10^{-1} \sim 2.5 \times 10^1 \text{ Bq/g}$ の範囲で検出された。一方、 ^{99}Tc は2RBのみ検出され、その濃度は $7.6 \times 10^1 \text{ Bq/g}$ であった。

Table 4 に α 線放出核種の放射能濃度を示す。 ^{238}Pu 及び $^{239+240}\text{Pu}$ はすべての試料で検出され、その濃度範囲はそれぞれ、 $1.7 \times 10^{-3} \sim 6.1 \times 10^1 \text{ Bq/g}$, $1.0 \times 10^{-3} \sim 2.5 \times 10^1 \text{ Bq/g}$ であった。 ^{241}Am は4試料から検出され、その濃度範囲は $4.7 \times 10^{-3} \sim 2.4 \times 10^1 \text{ Bq/g}$ であった。 ^{244}Cm は5試料から検出され、その濃度範囲は $2.5 \times 10^{-3} \sim 5.1 \times 10^1 \text{ Bq/g}$ であった。

2. 号機ごとの核種組成の比較

放射性廃棄物を処分する際には、その中に含まれる放射性核種の種類と濃度が、技術基準に適合していることを確認する必要がある^{8,9)}。評価対象となっている核種のうち、いわゆる難測定核種と呼ばれる $\alpha \cdot \beta$ 線放出核種は非破壊測定が困難であるため、その分析には多大な時間を要する。このため、難測定核種と非破壊測定が容易な γ 線放出核種の放射能濃度比をあらかじめ求めておき、これを基に個々の廃棄物中の放射能量を推定する方法が適用されている⁸⁾。また、 γ 線放出核種と難測定核種に相関関係がない場合は、平均放射能濃度により評価

Table 2 Concentrations of gamma-ray-emitting nuclides on 11 March 2011.

Sample name	Radioactivity concentration (Bq/g)				
	^{60}Co	^{94}Nb	^{137}Cs	^{152}Eu	^{154}Eu
1RB-AS-R1	$(4.0 \pm 0.4) \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(2.6 \pm 0.1) \times 10^4$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
1RB-AS-R3	$< 2 \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(1.8 \pm 0.1) \times 10^4$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
1RB-AS-R4	$(4.7 \pm 0.5) \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(2.3 \pm 0.1) \times 10^4$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
1RB-AS-R6	$(7.3 \pm 0.7) \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(6.1 \pm 0.1) \times 10^4$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
1RB-AS-R10	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^0$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(5.7 \pm 0.1) \times 10^5$	$< 7 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
2RB-DE-C2	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^3$	$< 1 \times 10^0$	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^6$	$< 9 \times 10^0$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^2$
3RB-AS-R3	$(4.0 \pm 0.1) \times 10^0$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(1.2 \pm 0.1) \times 10^5$	$< 7 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
3RB-AS-R4	$< 2 \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(5.8 \pm 0.1) \times 10^3$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
3RB-AS-R6	$(1.5 \pm 0.3) \times 10^{-1}$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(4.2 \pm 0.1) \times 10^3$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$
3RB-AS-R8	$(1.2 \pm 0.1) \times 10^0$	$< 7 \times 10^{-2}$	$(4.9 \pm 0.1) \times 10^4$	$< 6 \times 10^{-1}$	$< 3 \times 10^{-1}$

Table 3 Concentrations of beta-ray-emitting nuclides on 11 March 2011.

Sample name	Radioactivity concentration (Bq/g)			
	^3H	^{14}C	^{90}Sr	^{99}Tc
1RB-AS-R1	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^0$	$(5.9 \pm 0.1) \times 10^0$	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^2$	$< 5 \times 10^{-2}$
1RB-AS-R3	$(6.9 \pm 0.1) \times 10^0$	$(6.4 \pm 0.1) \times 10^0$	$(5.9 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 5 \times 10^{-2}$
1RB-AS-R4	$(7.2 \pm 0.1) \times 10^0$	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^1$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 5 \times 10^{-2}$
1RB-AS-R6	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^0$	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^1$	$(2.0 \pm 0.1) \times 10^2$	$< 5 \times 10^{-2}$
1RB-AS-R10	$(3.2 \pm 0.1) \times 10^1$	$(7.9 \pm 0.1) \times 10^0$	$(2.4 \pm 0.1) \times 10^3$	$< 5 \times 10^{-2}$
2RB-DE-C2	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^2$	$(2.5 \pm 0.1) \times 10^1$	$(2.1 \pm 0.1) \times 10^4$	$(7.6 \pm 0.1) \times 10^1$
3RB-AS-R3	$(8.8 \pm 0.3) \times 10^{-1}$	$(2.7 \pm 0.1) \times 10^0$	$(5.4 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 5 \times 10^{-2}$
3RB-AS-R4	$(4.9 \pm 0.3) \times 10^{-1}$	$< 5 \times 10^{-2}$	$(3.6 \pm 0.1) \times 10^0$	$< 5 \times 10^{-2}$
3RB-AS-R6	$(6.8 \pm 0.3) \times 10^{-1}$	$< 5 \times 10^{-2}$	$(4.0 \pm 0.1) \times 10^0$	$< 5 \times 10^{-2}$
3RB-AS-R8	$(6.7 \pm 0.3) \times 10^{-1}$	$(5.5 \pm 0.2) \times 10^{-1}$	$(8.1 \pm 0.1) \times 10^1$	$< 5 \times 10^{-2}$

Table 4 Concentrations of alpha-particle-emitting nuclides on 11 March 2011.

Sample name	Radioactivity concentration (Bq/g)			
	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{244}Cm
1RB-AS-R1	$(4.6 \pm 0.8) \times 10^{-3}$	$(3.6 \pm 0.6) \times 10^{-3}$	$< 3 \times 10^{-3}$	$< 4 \times 10^{-3}$
1RB-AS-R3	$(2.2 \pm 0.5) \times 10^{-3}$	$(1.5 \pm 0.4) \times 10^{-3}$	$< 3 \times 10^{-3}$	$< 4 \times 10^{-3}$
1RB-AS-R4	$(2.1 \pm 0.4) \times 10^{-3}$	$(1.0 \pm 0.3) \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^{-3}$	$< 3 \times 10^{-3}$
1RB-AS-R6	$(1.7 \pm 0.4) \times 10^{-3}$	$(1.1 \pm 0.3) \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^{-3}$	$< 4 \times 10^{-3}$
1RB-AS-R10	$(8.2 \pm 0.9) \times 10^{-3}$	$(2.4 \pm 0.5) \times 10^{-3}$	$(4.7 \pm 1.0) \times 10^{-3}$	$(1.0 \pm 0.2) \times 10^{-2}$
2RB-DE-C2	$(6.1 \pm 0.3) \times 10^1$	$(2.5 \pm 0.2) \times 10^1$	$(2.4 \pm 0.2) \times 10^1$	$(5.1 \pm 0.3) \times 10^1$
3RB-AS-R3	$(2.7 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^{-2}$	$(2.4 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	$(2.2 \pm 0.2) \times 10^{-2}$
3RB-AS-R4	$(2.7 \pm 0.8) \times 10^{-3}$	$(1.3 \pm 0.6) \times 10^{-3}$	$< 4 \times 10^{-3}$	$< 5 \times 10^{-3}$
3RB-AS-R6	$(2.9 \pm 0.7) \times 10^{-3}$	$(1.2 \pm 0.5) \times 10^{-3}$	$< 2 \times 10^{-3}$	$(2.5 \pm 0.7) \times 10^{-3}$
3RB-AS-R8	$(1.5 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	$(5.4 \pm 0.8) \times 10^{-3}$	$(5.6 \pm 0.9) \times 10^{-3}$	$(1.0 \pm 0.2) \times 10^{-2}$

が行われる⁸⁾。したがって、事故廃棄物についても、あらかじめ核種間の相関等の情報を把握しておくことが重要となる。そこで、 ^{137}Cs と $\alpha \cdot \beta$ 線放出核種との相関を調べるとともに、号機ごとに ^{137}Cs との放射能濃度比を求めた。前報⁴⁾との比較を行うため、放射能濃度は2011年3月11日で補正した。また、号機ごとの平均濃度比を算出する場合は、検出されたデータの対数の相加平均として評価した。計算式を(1)式及び(2)式に示す。

$$\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \log x_i \quad (1)$$

$$\bar{x} = 10^{\bar{y}} \quad (2)$$

ここで、 x は分析値、 $\bar{y}$ は分析値の対数の相加平均値、 $\bar{x}$ は分析値の対数平均値を表している。放射能濃度比のばらつきを評価するため、対数の相加平均を算出した際の標準偏差(σ)を求めた。なお、検出された試料が2試料以下の放射能濃度比については統計学的に有意な σ が得られないため算出していない。Fig. 1に ^{137}Cs 放射能濃度に対する ^3H 、 ^{14}C 、 ^{60}Co 及び ^{90}Sr 放射能濃度との関係を示す。 ^{137}Cs との相関の有無を判定する際には、相関係数の t 検定を行った。

(1) ^3H について

号機ごとに $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比を求めると $(1.2 \pm 1.2) \times 10^{-4}$ (1RB)、 3.2×10^{-4} (2RB)、及び $(3.4 \pm 5.0) \times 10^{-5}$ (3RB)となり、 $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比の号機ごとの違いは1桁以内であった。また、ORIGEN2により求められた照射後燃料、及び被覆管の放射化物から算出した(以下、「炉内計算」という。) $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比は 4.8×10^{-3} であり¹¹⁾、分析結果から求めた $^3\text{H}/^{137}\text{Cs}$ 比より1桁高い値であった。

^3H と ^{137}Cs との相関について t 検定を行うと、1RBのみ相関が認められ、2RB及び3RBについては相関が認められなかった。一般に放射性廃棄物中の ^3H 濃度は、 ^{137}Cs との比例関係は無く、平均的に分布するとされている^{8,9)}。これは、廃棄物に付着した ^3H が、吸着と脱離を繰り返しながら拡散するためと考えられる¹⁰⁾。著者らが前報⁶⁾で報告した原子炉建屋周辺瓦礫の分析結果では、 ^3H 濃度は1桁の範囲で平均的に分布している。今回分析した1RBの ^3H 濃度は、原子炉建屋周辺瓦礫と同様に1桁の範囲で分布し、ばらつきの範囲とも考えられる。また、 ^3H と ^{137}Cs の化学的性質は異なるため ^3H は水素ガスや水蒸気などの気体として、 ^{137}Cs は固体として飛散すると考えられ、移行の挙動は異なると推測され

Fig. 1 Concentrations of detected radionuclides (a) ^3H , (b) ^{14}C , (c) ^{60}Co , (d) ^{90}Sr as a function of those of ^{137}Cs .

る。 t 検定では相関があるものの、比例しているとする科学的根拠に乏しいため、明確に ^3H は ^{137}Cs に比例するとは言えない。

(2) ^{14}C について

^{14}C は、1RB、2RB 及び 3RB を含めた全体として評価した場合 ^{137}Cs との相関が認められ、号機ごとに ^{137}Cs との相関を評価した場合 3RB のみ相関が認められた。 ^{14}C も一般的な放射性廃棄物では ^{137}Cs との比例関係がないとされている^{8,9)}。 ^3H と同様に比例すると明言するに足り得るデータ数に乏しいため、比例していると現時点では判断できない。

$^{14}\text{C}/^{137}\text{Cs}$ 比は $(1.6 \pm 2.2) \times 10^{-4}$ (1RB), 2.3×10^{-5} (2RB) 及び $(1.6 \pm 0.8) \times 10^{-5}$ (3RB) であり、 $^{14}\text{C}/^{137}\text{Cs}$ 比の号機ごとの違いは 1 桁以内であった。炉内計算による $^{14}\text{C}/^{137}\text{Cs}$ 比は 9.7×10^{-6} であり^{10,12)}、分析結果から求めたそれよりも小さい値であった。このことは、 ^{14}C の炉内から原子炉建屋への移行率が ^{137}Cs より高いことを示唆している。

(3) ^{60}Co について

^{60}Co は 1RB 及び 3RB において ^{137}Cs との比例関係が見られ、2RB を含めた全体としても ^{137}Cs との比例関係が見られる。 $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 比はそれぞれ、 $(9.2 \pm 9.8) \times 10^{-6}$ (1RB), 1.0×10^{-3} (2RB) 及び $(3.1 \pm 0.6) \times 10^{-5}$ (3RB) であり、1RB と 3RB との間では 1 桁以内の差であった。一方、炉内計算による $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 比は 1.3×10^{-5} であった¹¹⁾。1RB 及び 3RB については分析結果から求めた $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 比と炉内計算から求めた $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ 比は、 3σ の範囲で一致した。この結果は ^{60}Co 及び ^{137}Cs の炉内から原子炉建屋への移行率が同程度である可能性を示している。

(4) ^{90}Sr について

^{90}Sr は ^{137}Cs との比例関係が認められ、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比は、それぞれ、 $(3.2 \pm 1.5) \times 10^{-3}$ (1RB), 1.9×10^{-2} (2RB) 及び $(8.1 \pm 4.6) \times 10^{-4}$ (3RB) であった。 ^{90}Sr に関しては事故後、原子力発電所サイト外でも多数の分析が行われており、発電所の 30 km 以内から採取した環境土壌では $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比が $10^{-4} \sim 10^{-1}$ となっており^{13,14)}、建屋内瓦

の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比 ($10^{-4} \sim 10^{-2}$) と同程度であることがわかった。号機ごとに $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比を比較すると、著者が前報⁴⁾で報告した1, 3及び4号機原子炉建屋周辺瓦礫の結果では、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比が 3.5×10^{-3} (1号機周辺), 7.2×10^{-5} (3号機周辺) となっており、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比は3号機に比べ1号機の方が $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比が高い傾向となっている。今回得られた原子炉建屋内の瓦礫についても、1RBのほうが3RBよりも $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比が高い傾向であり、1及び3号機周辺瓦礫は各号機の建屋内瓦礫と汚染の傾向が近いことを示している。

分析結果から求めた $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比は、炉内計算による $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比0.75に比べ¹¹⁾, 1～3桁程度小さく、 ^{90}Sr は ^{137}Cs に比べ炉内から原子炉建屋への移行率が小さいと推定される。このことは、SrがCsよりも融点や沸点が高く揮発しにくい元素であることと一致する。

^{90}Sr に関しては、旧原子力安全保安院が原子炉建屋から放出された放射エネルギーをシミュレーションにより求めている¹⁵⁾ (以下、「保安院推定」という。)。この結果は、建屋内への放出量ではないが、核種間の放射能比については参考になると考えられる。保安院推定では、1, 2, 及び3号機から放出された ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の放射エネルギーの比は、それぞれ、 1.0×10^{-2} (1号機), 3.4×10^{-3} (2号機), 及び 1.2×10^{-1} (3号機) と見積もっている¹⁵⁾。分析結果と比較すると、1RB及び2RBの $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比については1桁の差が見られた。保安院推定ではシミュレーションの初期設定により ^{137}Cs の放出割合が1桁程度増減することを考慮すると、誤差の範囲で一致していると言える。一方で3RBでは保安院推定と比較し分析値の濃度比が3桁小さかった。この理由としては、①3号機の放出量について、 ^{90}Sr を過大評価、② ^{137}Cs を過小評価、③原子炉施設から環境中への放出と建屋内瓦礫への付着挙動に差がある、等が考えられる。環境への放出量に関して3号機の寄与は小さいが、事故廃棄物対策の観点からは分析データの蓄積とともに、事故解析の精度向上が望まれる。

(5) α 線放出核種 ($^{238,239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) について

Fig. 2 に ^{137}Cs 放射能濃度に対する α 線放出核種の放射能濃度の関係を示す。Puについては、1RB及び3RBにおいて ^{238}Pu 濃度が低く、 ^{137}Cs との明確な比例関係は判断できないが、 $^{238}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比は、 $(6.0 \pm 6.4) \times 10^{-8}$ (1RB), 5.5×10^{-5} (2RB) 及び $(3.9 \pm 1.9) \times 10^{-7}$ (3RB) と求められた。一方で、保安院推定による $^{238}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比は 9.8×10^{-7} (1号機), 1.3×10^{-6} (2号機) 及び 3.5×10^{-7} (3号機) であり¹⁵⁾, 3RBは1 σ の範囲内で一致し、1RB及

び2RBは1桁の差が見られた。このことは、Puの放出量について保安院推定が妥当であることを支持し、事故解析に基づく情報も廃棄物インベントリを推定するうえで有益な情報となることを示している。

炉内計算による $^{238}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比は、 2.1×10^{-2} であり¹¹⁾, これらの値と比較し、分析結果から求めた $^{238}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比は、3～6桁程度小さい値であった。このことは ^{137}Cs に比べ ^{238}Pu は炉内からの原子炉建屋への移行率が小さいことを示している。また $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比について分析結果と炉内計算を比較したところ、 $^{239+240}\text{Pu}$ の炉内からの移行率は ^{238}Pu と同程度と評価された。

これらの検出されたPuは、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を比較することでPuの起源について評価した。分析結果から $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を求めると 1.8 ± 0.7 (1RB), 2.4 (2RB) 及び 2.3 ± 0.3 (3RB) となり、炉内計算による $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比2.9 (1号機), 2.4 (2号機) 及び 2.3 (3号機) でありほぼ (1RB及び3RBにおいて 2σ の範囲内で) 一致した。一方、核実験によるフォールアウト由来の $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比は1981年から2003年の分析において $0.019 \sim 0.068$ と報告されている^{16,17)}。したがって今回分析した瓦礫において検出されたPuは、明確に事故に由来するものと判断される。

その他のアクチニド核種の挙動を評価するため、Table 5に分析結果及び炉内計算から求めた $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{238}\text{Pu}$ 及び $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$ の各比を示す。なお ^{241}Am の炉内計算については、 ^{241}Pu の崩壊による寄与を考慮した分析日における放射エネルギーを求め、これを2011年3月11日に半減期補正した。炉内計算による ^{241}Am 放射エネルギーの内訳は、炉心燃料に存在していた ^{241}Am が3割、事故後の ^{241}Pu の崩壊による寄与が7割となっている¹¹⁾。したがって、AmがPuに比べ極端に大きな移行率でない限り、分析結果における ^{241}Am と ^{238}Pu の放射能比は、炉内計算結果と同程度になると予想される。

$^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ 比について分析結果と炉内計算との比を求めるとそれぞれ1.5 (1RB), 0.89 (2RB) 及び1.4 (3RB) であった。AmとPuの炉内から本分析時点では、 ^{241}Am として飛散した分と ^{241}Pu の崩壊により生成した ^{241}Am とを区別できないが、1桁以上AmとPuの移行率に差があった場合、分析値と炉内計算の比は0.7以下もしくは3.7以上となるため、原子炉建屋内への移行率の差は1桁以内と考えられる。一方、 ^{244}Cm は他の核種の崩壊の寄与を受けないため、検出された ^{244}Cm は炉内から放出された ^{244}Cm のみが起源と考えられる。 $^{244}\text{Cm}/^{238}\text{Pu}$ 比について分析結果と炉内計算の比を求めると、それぞれ

Fig. 2 Concentrations of detected radionuclides (a) ^{238}Pu , (b) $^{239+240}\text{Pu}$, (c) ^{241}Am , (d) ^{244}Cm as a function of those of ^{137}Cs .

Table 5 Comparison of radioactive concentration ratios of alpha-particle-emitting nuclides.

	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$		$^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$		$^{244}\text{Cm}/^{238}\text{Pu}$		$^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$	
	analytical result	prediction by ORIGEN2 ⁽¹⁾	analytical result	prediction by ORIGEN2 ⁽¹⁾	analytical result	prediction by ORIGEN2 ⁽¹⁾	analytical result	prediction by ORIGEN2 ⁽¹⁾
1RB	1.8	2.9	0.57	0.40	1.2	0.59	0.47	0.68
2RB	2.4	2.4	0.39	0.44	0.84	0.70	0.47	0.62
3RB	2.3	2.3	0.58	0.42	0.78	0.49	0.78	0.85

2.0 (1RB), 1.2 (2RB) 及び 1.6 (3RB) であり, 分析結果と炉内計算の $^{244}\text{Cm}/^{238}\text{Pu}$ 比の差は 2 倍以内であった。同様に $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$ 比について分析結果と炉内計算の比を求めると, それぞれ 0.69 (1RB), 0.76 (2RB) 及び 0.91 (3RB) であり, 分析結果と炉内計算の $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$ 比の差は 2 倍以内であった。これは, Cm も Pu 及び Am と同程度の移行率であることを示している。

IV 結 論

事故廃棄物の性状把握を目的として, 原子炉建屋内瓦礫の放射化学分析を行い, ^3H , ^{14}C , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{94}Nb ,

^{99}Tc , ^{137}Cs , $^{152,154}\text{Eu}$, $^{238,239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , 及び ^{244}Cm の放射能濃度データを得た。 ^{60}Co 及び ^{90}Sr に 1RB, 3RB 及び 2RB を含めた全体について, それぞれ ^{137}Cs 濃度との比例関係の傾向が認められた。建屋内瓦礫とその周辺の瓦礫を比較した結果, 建屋内瓦礫と周辺瓦礫の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比の違いは 2 桁以内であり, 原子炉建屋周辺の瓦礫は各号機の建屋内の汚染状態に近い可能性が示唆された。これらのデータは, 廃止措置作業における被ばく評価及び環境影響評価等に対しても活用が期待できる。また旧原子力安全保安院による放出量推定から求めた放射能比と, 今回の分析結果との違いは 1 桁以内であったものの,

3号機の $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比の様により、事故解析結果と分析値に乖離がみられることもわかった。今後も、原子炉建屋内の各種試料を採取、分析することにより、より詳細な事故廃棄物の性状把握を行い、事故廃棄物対策のみならず、事故解析の精度向上、より詳細な炉内状況把握にも繋げて行く予定である。

謝 辞

この成果は、平成25年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（事故廃棄物処理・処分技術の開発）」成果の一部が含まれている。また、本論文を執筆するにあたり、放射能分析に協力して頂いた佐藤賢二、君山和宏、畔野俊道、梶尾政利、米川直樹、新山拓也、関 周平、徳永貴仁の各氏に感謝する。

参 考 文 献

- 1) T. KOBAYASHI, H. NAGAI, M. CHINO and H. KAWAMURA; Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, 255–264 (2013).
- 2) S. HIRAO, H. YAMAZAKI and T. NAGAE; Estimation of release rate of iodine-131 and cesium-137 from the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, 139–147 (2013).
- 3) N. KOZAI, T. OHNUKI, M. ARISAKA, M. WATANABE, F. SAKAMOTO, S. YAMASAKI and M. JIANG; Chemical states of fallout radioactive Cs in the soils deposited at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **49**, 473–478 (2012).
- 4) K. TANAKA, A. SHIMADA, A. HOSHI, M. YASUDA, M. OZAWA and Y. KAMEO; Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, 1033–1043 (2014).
- 5) Ministry of Economy, Trade and Industry; Storage conditions of the rubble and tree. Available at: http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2015/pdf/0730_3_4b.pdf, 閲覧 2015 年 8 月 18 日.
- 6) 亀尾 裕, 石森健一郎, 原賀智子, 島田亜佐子, 片山 淳, 中嶋幹雄, 高橋邦明; 研究施設から発生する廃棄物に対する体系的な放射能分析法, 日本原子力学会論文誌, **10**, 216–225 (2011).
- 7) Ministry of Economy, Trade and Industry; Radiochemical analysis of rubble collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. Available at: http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2015/pdf/1001_3_4d.pdf, 閲覧 2016 年 3 月 18 日.
- 8) T. TSUJI, Y. KAMEO, A. SAKAI, A. HOSHI and K. TAKAHASHI; Study on the evaluation method to determine the radioactivity concentration in low-level radioactive wastes generated at JPDR Facilities –part 1–, *JAEA-Technology* 2012–045 (2012).
- 9) A. SAKAI, H. AMAZAWA, H. NAKATA, K. TAKAHASHI and S. KIHARA; Selection of main nuclides from the viewpoint of safety assessment for surface disposal of low-level radioactive waste generated from research, industrial and medical facilities –Part3–, *JAEA-Technology* 2010–021 (2010).
- 10) K. KOBAYASHI, Y. IWAI, T. HAYASHI and T. YAMANISHI; Study of the behavior of tritiated water vapor in concrete materials, *J. Nucl. Mater.*, **417**, 1183–1186 (2011).
- 11) K. NISHIMURA, H. IWAMOTO and K. SUYAMA; Estimation of fuel compositions in Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *JAEA-Data/code* 2012–018 (2012).
- 12) K. OKUMURA, K. KOJIMA, T. OKAMOTO, H. HAGURA and K. SUYAMA; Nuclear data for severe accident analysis and decommissioning of nuclear power plant, *JAEA-conf*, 2013–002 (2013).
- 13) S. MISHRA, S. K. SAHOO, H. ARAE, Y. WATANABE and J.W. MIETELSKI; Activity ratio of cesium, strontium and uranium with site specific distribution coefficients in contaminated soil near vicinity of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *J. Chromatogr. Sep. Tech.*, **5**, 250–256 (2014).
- 14) N. KAVASHI, S. K. SAHOO, A. SORIMACHI, S. TOKONAMI, T. AONO and S. YOSHIDA; Measurement of ^{90}Sr in soil samples affected by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **303**, 2565–2570 (2015).
- 15) Ministry of Economy, Trade and Industry; Evaluation of Unit-1, 2 and 3 reactor core state such of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Available at: <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/20110606-1nisa.pdf>, 閲覧 2015 年 7 月 28 日.
- 16) H. FUJITA, H. WATANABE and M. TAKEISHI; Annual variation of concentrations of Pu isotopes and Am in surface soil,

Cycle Eng. Labs Giho, **25**, 45–48 (2004), (in Japanese).

- 17) R. H. CLARKE; Exposures resulting from nuclear explosions, *UNSCEAR REPORT*, p. 211–248 (1982)
Available at: http://www.unscear.org/docs/reports/1982/1982-E_unscear.pdf, 閲覧 2015 年 7 月 21 日.

佐藤 義行（さとう よしゆき）

2013 年埼玉大学大学院理工学研究科応用化学専攻を修了。現在、（国研）日本原子力研究開発機構原子力科学研究所バックエンド技術部において、放射性廃棄物の放射化学分析に関する業務に従事。

事。

E-mail: sato.yoshiyuki21@jaea.go.jp