



Title	Investigation of radioactive material release behavior in the FDNPP accident through distribution of ^{90}Sr , ^{140}Ba and ^{137}Cs in the nuclear reactors and environment
Author(s)	張, 子見
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/61483
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 ＜a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed >大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名	(張 子 見)
論文題名	Investigation of radioactive material release behavior in the FDNPP accident through distribution of ^{90}Sr , ^{140}Ba and ^{137}Cs in the nuclear reactors and environment (原子炉内外の ^{90}Sr , ^{140}Ba , ^{137}Cs の分布評価による福島第一原子力発電所事故における放射性物質の放出挙動の解明)
論文内容の要旨	2011年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所(FDNPP)の原子力過酷事故は、史上初の沸騰水型原子炉で起きた過酷事故であった。この事故の進展に関する詳細な知見を後世へ伝えることは科学者の責務であり、現在までにさまざまな科学の分野で研究が進んでいる。原子炉工学や気象学の分野では、事故当時の炉内事象の進展や放出された放射性物質の移行や沈着がシミュレーション等により推定され、炉内のパラメーターや環境試料の測定結果との整合性を評価している。しかし、放射能の「量」に関する議論が中心であり、放射線を出す「物質」である放射性核種の個々の性質に関する議論は欠けている。本論文ではFDNPP事故で放出された放射性核種について化学の視点に立ち、原子炉から直接放出されたであろうエアロゾルと放射性粒子内の放射性核種(^{90}Sr, ^{137}Cs, ^{140}Ba)の放射能定量を通じて、FDNPPの一号機、二号機、三号機それぞれの事故事象に関する情報を引き出す新規の研究を行った。 2011年の3月11日から、関東地方の4地点と大阪で、エアロゾル試料を採取した。高純度ゲルマニウム半導体検出器によりγ線測定を行い、^{137}Csと^{140}Baの大気中放射能濃度(Bq/m^3)を求めた。また、化学分離によって試料から^{90}Srを分離し、チェレンコフ光測定により、^{90}Srの大気中放射能濃度を求めた。アルカリ金属とアルカリ土類金属の化学的性質の違いに着目した比較の観点から、$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$, $^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$の放射能比を求めた。同日に異なる地点で採取された試料の放射能比は、互いに良い一致を示したことから、^{90}Srおよび^{140}Baと、^{137}Csが大気中を輸送・拡散する際に、同じ挙動を取っていることがわかった。放射性核種の放出ならび陸域への沈着が顕著に発生した3月15日と20日の放射能比は低く、土壌で観測された放射能比とも一致した。両日のメインの放出源は二号機と三号機とされており、両原子炉から放出された放射性プルームの放射能比は低いと推測できる。$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比は2011年の間に$10^{-3}$から、最大$10^{-1}$まで有意に上昇した。これは、2011年の後半に、比較的$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比の高い一号機の原子炉建屋からの放射性核種の継続的な放出を示唆している。 FDNPPから北西に3kmの地点で採取されたダスト試料から、放射性粒子を合計13個発見した。それぞれγ線測定によって、$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$放射能比を求めところ、これらの放射性粒子はすべて一号機由来であることがわかった。放射性粒子について電子顕微鏡による表面を観察と、特性X線分析による元素組成の測定をおこなった。その結果、主な元素の組成がSiとOであることと、粒子の表面に繊維状の構造があることから、格納容器内に存在した保温材のロックウールが、その生成源であると推測した。アルカリ溶融によって、6つの放射性粒子を分解し、エアロゾルと同様の化学分離をすることで、^{90}Srの放射能を定量した。得られた$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比は$10^{-4}$と低く、エアロゾルの測定を通して得られた、一号機が10^{-1}程度であるという結果と一見して矛盾する。しかし事故進展を詳細に検討し、本放射性核種の持つ化学的性質を考慮することでこの矛盾は解決する。すなわち、放射性粒子はその大きさから水素爆発のタイミングでのみ放出されるが、水素爆発前は、$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比が低い压力容器内での反応(In-vessel)による放射性の反応で、放射性粒子が生成され、一方で、水素爆発後は$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比が高い放射性蒸気が生成する压力容器外での反応(Ex-vessel)が起これ、原子炉建屋の高$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比の汚染を引き起こしたと考えられる。 本論文の成果として、原子炉から直接放出されたエアロゾルおよび放射性粒子の、$^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$, $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$放射能比の測定から、FDNPP事故における炉内事象の進展に関する詳細な考察を行うことにはじめて成功した。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (張 子 見)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教授	篠原 厚
	副 査	教授	中野 元裕
	副 査	教授	吉村 崇
	副 査	室長	五十嵐 康人

論文審査の結果の要旨

2011 年 3 月に発生した東京電力福島第一原子力発電所(FDNPP)の原子力過酷事故は、史上初の沸騰水型原子炉で起きた過酷事故であった。この事故の進展に関する詳細な知見を後世へ伝えることは科学者の責務であり、現在までにさまざまな科学の分野で研究が進んでいる。原子炉工学や気象学の分野では、事故当時の炉内事象の進展や放出された放射性物質の移行や沈着がシミュレーション等により推定され、炉内のパラメーターや環境試料の測定結果との整合性を評価している。しかし、放射能の「量」に関する議論が中心であり、放射線を出す「物質」である放射性核種の個々の性質に関する議論は欠けている。本論文では FDNPP 事故で放出された放射性核種について化学の視点に立ち、原子炉から直接放出されたであろうエアロゾルと放射性粒子内の放射性核種(^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{140}Ba)の放射能定量を通じて、FDNPP の一号機、二号機、三号機それぞれの事故事象に関する情報を引き出す新規の研究を行った。

2011 年の 3 月 11 日から、関東地方の 4 地点と大阪で、エアロゾル試料を採取した。高純度ゲルマニウム半導体検出器により γ 線測定を行い、 ^{137}Cs と ^{140}Ba の大気中放射能濃度(Bq/m^3)を求めた。また、化学分離によって試料から ^{90}Sr を分離し、チェレンコフ光測定により、 ^{90}Sr の大気中放射能濃度を求めた。アルカリ金属とアルカリ土類金属の化学的性質の違いに着目した比較の観点から、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$, $^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比を求めた。同日に異なる地点で採取された試料の放射能比は、互いに良い一致を示したことから、 ^{90}Sr および ^{140}Ba と、 ^{137}Cs が大気中を輸送・拡散する際に、同じ挙動を取っていることがわかった。放射性核種の放出ならび陸域への沈着が顕著に発生した 3 月 15 日と 20 日の放射能比は低く、土壤中で観測された放射能比とも一致した。両日のメインの放出源は二号機と三号機とされており、両原子炉から放出された放射性プルームの放射能比は低いと推測できる。 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 2011 年の間に 10^{-3} から、最大 10^{-1} まで有意に上昇した。これは、2011 年の後半に、比較的 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の高い一号機の原子炉建屋からの放射性核種の継続的な放出を示唆している。

FDNPP から北西に 3km の地点で採取されたダスト試料から、放射性粒子を合計 13 個発見した。それぞれ γ 線測定によって、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を求めところ、これらの放射性粒子はすべて一号機由来であることがわかった。放射性粒子について電子顕微鏡による表面を観察と、特性 X 線分析による元素組成の測定をおこなった。その結果、主な元素の組成が Si と O であることと、粒子の表面に繊維状の構造があることから、格納容器内に存在した保温材のロックウールが、その生成源であると推測した。アルカリ溶融によって、6 つの放射性粒子を分解し、エアロゾルと同様の化学分離をすることで、 ^{90}Sr の放射能をはじめて定量した。得られた $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は 10^{-4} と低く、エアロゾルの測定を通して得られた、一号機が 10^{-1} 程度であるという結果と一見して矛盾する。この結果と核種の化学的性質を踏まえた考察から、炉内の事故進展の推定に大きな実験的評価を与えた。すなわち、放射性粒子はその大きさから水素爆発のタイミングでのみ放出されるが、水素爆発前は、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が低い圧力容器内での反応(In-vessel)による放射性の反応で、放射性粒子が生成され、一方で、水素爆発後は $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が高い放射性蒸気が生成する圧力容器外での反応(Ex-vessel)が起こり、原子炉建屋の高 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の汚染を引き起こしたと考えられる。

このように、本論文は、原子炉から直接放出されたエアロゾルおよび放射性粒子の、 $^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$, $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の測定から、FDNPP 事故における炉内事象の進展に関する詳細な考察を行うことにはじめて成功したものである。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として十分価値あるものと認める。