

福島原発事故における燃料および核分裂生成物の挙動

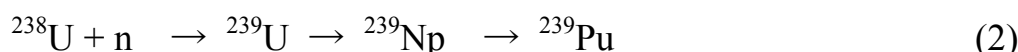
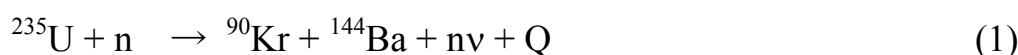
東北大学多元物質科学研究所 佐藤 修彰

1. はじめに

平成 23 年 3 月 11 日の東日本大震災により発生した福島第一原子力発電所事故に伴い、原子炉の破損により、大量の放射性物質が放出された。発電所サイト内では、高濃度放射能汚染水が発生し、除染処理システムの稼働により、原子炉冷却水を循環している。一方、サイト外においては、揮発性放射性物質の飛散による大気汚染とその拡散に伴う地表の汚染や、排水系を經由した海洋汚染を起こしている。最近、空間線量率測定や、2km メッシュでの土壌中の γ 線測定による汚染マップの作成により、広範囲にわたる汚染の状況が明らかになり、市街地や田畑等のセシウムの除染対策が検討され、一部実施されている。事故の詳細、対応等については政府報告書等^{1,2)}を参照されたい。ここでは、原子炉における燃料の挙動や核分裂生成物の状態と事故後の挙動について述べ、放射性核種の揮発挙動やそれらの放射能測定について紹介する。

2. 核燃料と核分裂生成物

原子力発電所ではウラン酸化物を燃料として、(1)式に示される核分裂反応により生成する熱(Q)を利用してタービン発電を行っている。現行の軽水炉には、沸騰水型 (BWR) と加圧水型 (PWR) があり、福島第一原発は BWR である。天然ウラン中には核分裂を起こす²³⁵U が 0.72%しか含まれていないため、遠心分離法などにより 3~4%に濃縮して軽水炉の燃料としている。また、残りの²³⁸U は非核分裂性であるが、(2)式のように中性子を吸収して、2 回の β 崩壊の後、新たな核燃料となる²³⁹Pu を生成する、



核分裂反応により燃料内部では放射能をもつ核分裂生成物が生成される。これらの放射性物質 (放射性同位元素) は、周期律表の種々の元素に対応して、アルカリ金属 (セシウム, Cs)、以下、アルカリ土類金属 (ストロンチウム, Sr、バリウム, Ba)、希土類 (ランタン, La、セリウム, Ce)、金属群 (モリブデン, Mo、パラジウム, Pd)、ハロゲン群 (ヨウ素, I)、希ガス (クリプトン, Kr、キセノン, Xe) がある。このほか、ウランや(2)式で生成されるプルトニウムといった燃料成分が存在する。核反応による生成核種としては、例えば、Cs-134, Cs-137 のように同じ元素でも重さ (質量数) の異なる核種が生成される。核燃料は二酸化ウラン(UO₂)ペレットをジルコニウム被覆管に封入した燃料棒の形で使用される。燃焼後は、希土類は UO₂ に混合した状態で存在し、ジルコニウムやバリウムが一部酸化物として、また、モリブデンおよび白金族元素が金属状態で存在するが、事故後の破損状況、雰囲気、温度等により燃料および核分裂生成物の挙動が異なる。表 1 に燃料中の FP の存在状態を示した。燃焼後の燃料は大部分が UO₂ 固溶体相であり、一部や、金属酸化物相、合金相、その他希ガス等気相が存在する。

表1 燃料中の燃料および核分裂生成物の存在状態

UO ₂ 固溶体	複合酸化物	合金	気体等
希土類	アルカリ金属	モリブデン	キセノン
アクチノイド	アルカリ土類	パラジウム	セシウム
アルカリ土類	ジルコニウム	ルテニウム	テルル
IV 価金属	モリブデン	ロジウム	ヨウ素

3. 事故後の放射性物質の挙動

震災直後、原子炉内では、自動停止し、核反応は停止した。その後、冷却材喪失事故が起こり、炉心温度上昇により燃料棒の構成成分であるジルカロイ被覆管と水蒸気により被覆管の減肉、破断、FP ガス放出、ペレット被覆管反応、被覆管溶融、ペレット溶融といった現象が進行する。その後、核分裂生成物の中で、ヨウ素やキセノンなど、燃料棒内で気体として存在するものが、爆発や水蒸気とともに大気中に放出された。被覆管の破断以降、燃料は水蒸気や空気に曝される。酸素雰囲気における UO₂ の熱重量 - 示差熱分析

(TG-DTA) の結果を示す。この図を見ると 250°C 付近より発熱を伴う緩やかな重量増加がみられ、その後、450°C において急激な酸化反応がみられる。前者は UO₂ から U₄O₉ への酸化、後者は U₄O₉ から U₃O₈ への酸化に対応する。とくに後者の場合、急激な体積増加を伴い、燃料酸化物が微粉化するとともに、固溶していた核分裂生成物が別相として挙動するようになる。

次に揮発性核分裂生成物の挙動について述べる。セシウムは核分裂時は元素状態であるが、酸素により酸化物となる。また、UO₂ と複合酸化物を生成、さらには CsI も生成する。これらの化合物は常温では固体であるが、高

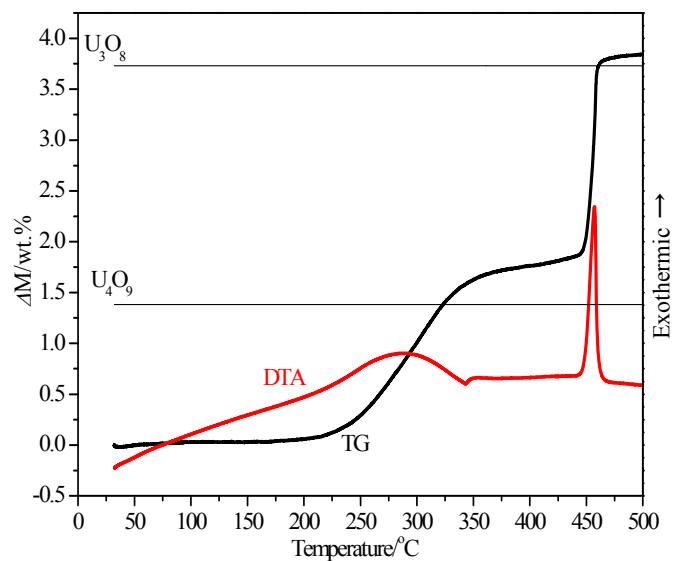


図1 酸素雰囲気における UO₂ の TG-DTA 結果

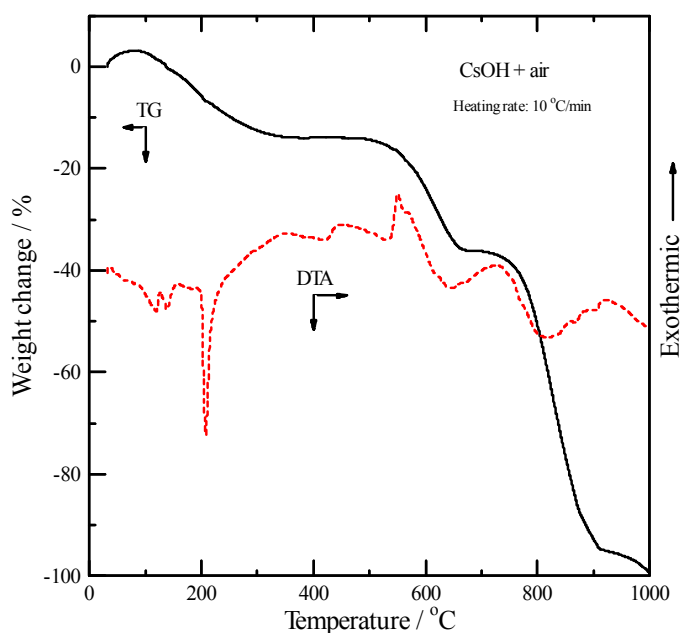


図2 空気雰囲気における CsOH の TG-DTA 結果

温においては揮発する。図2には、空気雰囲気におけるCsOHのTG-DTA測定結果を示す。セシウム化合物は極めて吸湿性が高いため、アルゴン雰囲気グローブボックス内で取り扱っているものの、試料瓶開封後から試料重量は増加した。100℃付近から付着水の蒸発に伴う重量減少が見られた後、450℃付近より脱水による酸化物を生成し、800℃付近で揮発することが分かる。酸素あるいは水蒸気雰囲気においても同様の揮発挙動を示すことが分かった。これに対し、モリブデンでは、空気雰囲気では金属および酸化物とも800℃以上で揮発したが、水蒸気雰囲気では金属の揮発が抑制されることが分かった。テルルは、空気、水蒸気いずれの場合にも500℃付近より揮発した。テクネチウムの模擬として、レニウムを用いたところ、モリブデンの場合と同様に、空気雰囲気においては600℃にて揮発するものの、水蒸気雰囲気では揮発が抑制された。セシウムの場合、酸化物として揮発後、加水分解により、エアロゾルとして、低温においても水蒸気等とともに移動し、大気中に拡散する。

他の核分裂生成物は、酸化物が安定であり、蒸気圧も低いことから、燃料成分と同様、揮発はしないものの、粉体化しているような場合には、爆発等により舞い上がり、ある程度拡散後、堆積するものと考えられる。これらをまとめると表2のようになる。

表2 燃料および核分裂生成物の挙動

元素	化合物	破損後の挙動	影響
ウラン	UO ₂	・酸化によりU ₃ O ₈ 微粉末を生成 ・被覆管破損より炉底にデブリ形成 ・水蒸気や冷却材により移動の可能性	サイト内および近傍に堆積
アクチノイド	固溶体	・PuO ₂ 粉末生成、U ₃ O ₈ と同様の挙動	同上
希土類	固溶体	・Ln ₂ O ₃ 粉末、U ₃ O ₈ やPuO ₂ より溶解性	同上
アルカリ土類	固溶体 ウラン酸塩	・BaO, SrOは海水等へ溶解	土壌、海洋を汚染
アルカリ金属	ウラン酸塩 ハロゲン化物	・酸化物として揮発(500~800℃) ・海水等へ容易に溶解	広範囲に拡散
Mo, Te, Tc等	金属 酸化物	・酸化物の揮発および溶解による移動 ・水蒸気混在下では金属揮発抑制	広範囲に拡散
ハロゲン	ハロゲンガス ハロゲン化物	・燃料破損時に揮発 ・海水等へ溶解(I ⁻ , IO ₃ ⁻)	広範囲に拡散

一方で、セシウムやストロンチウムのように、溶解しやすいものは海水放出のように排水により環境へ放出される。また、元素が同じでも核種が異なれば、半減期も異なるので、放射能の影響は異なる。たとえば、原子炉からは、環境に放出されたセシウムにはCs-134とCs-137があり、それぞれ半減期は2年と30年と異なるものの、化学的性質が同じであり、環境への移行においても同様の挙動をとる。当初、発電所から放出されたCs-134とCs-137の放射能は同程度であるが、震災後から時間が経過することにより、半減期の短いCs-134が早く減衰し、2年後にはCs-134の放

射能 Cs-137 の放射能のほぼ半分となる。震災直後(3/19)に仙台市青葉区片平にある東北大学多元研にて土壌を採取し、 γ 線測定を行ったところ、上記 Cs-134 や Cs-137 のほかに、ヨウ素 (I-131, I-132) のピークが存在している。I-132 は核分裂生成物である Te-132 から β 崩壊により生成したものである。大気中において広範囲に拡散したが、短半減期(8日)のため、半年後にはほとんど消滅した。このように、放射性物質の挙動を評価するには、化学的性質と放射能の影響とを分けて考慮する必要がある。表3にはこれら揮発性核種の半減期を示した。

表3 揮発性核分裂生成物の核種と半減期

核種	半減期	核種	半減期
Cs-134	2.06 y	I-129	1.57×10^7 y
Cs-137	30.2 y	I-131	8.02 d
Te-132	3.20 d	I-132	2.30 h
Mo-99	65.9 h	Tc-99	2.11×10^5 y

4 放射能の測定と汚染状況の評価

大気中に放出された放射性物質は、風などにより移動し、その後、雨により地表へ堆積する。対象とする場所や物について汚染状況に応じて放射性物質を分離・除染することが必要となるが、その際放射能の正確な測定が必要不可欠となる。放射性物質はアルファ(α)線、ベータ(β)線、ガンマ(γ)線などを放出する。 α 線は紙1枚で遮蔽されるが、 β 線にはアルミ板、 γ 線は鉄板や鉛板が必要となる。このことは、 α 線や β 線の測定が難しいことを示すとともに、いろいろな障害物が存在するガレキ等においては、 γ 線の測定にも注意が必要となる。サーベイメーター (NaI シンチレータなど) は空間線量率 (μ Sv/h) を測定するのに適しているが、作物等のセシウム放射能濃度 (Bq/kg) などを求めることには適していない。この場合には、放射線のエネルギーに対応した測定システム (Ge 半導体検出器など) が必要であり、Cs-134 と Cs-137 の γ 線を分けて測定し、それぞれの放射能強度から汚染状況の評価できる。表3に示した I-129 は γ 線エネルギーが 40keV と低く、また、100% β 線を放出するものの、その測定は手間がかかる。さらに I-129 の放射能を求めたとして、核実験等のフォールアウトによる寄与も無視できず、福島由来の I-129 の定量を難しくしている。従って、放射線測定では測定場所の自然の放射能数値 (バックグラウンド) を適切に評価し、測定値の精度についても考慮し、公開されている空間線量率マップや、土壌放射能測定マップを参考にして、正しい放射能数値を用いて汚染状況を適切に評価する必要がある。

6 まとめ

以上、福島第一原子力発電所事故に関わる燃料および核分裂生成物の挙動について、燃焼中の状態や、事故後の挙動について、揮発性核分裂生成物を中心に述べた。汚染状況の評価においては正確な放射能測定的重要性であり、住民、自治体、業者が情報を共有しながら、対象地域、対象物に適した除染方法の検討を行い、適切な対応を進める必要がある。

参考文献

- 1) 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書(2011.6)
- 2) 国際原子力機関に対する日本国政府の追加報告書(第2報)(2011.9)