Deposition of fission and activation products after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident 福島原発事故後の核分裂と活性化⽣成物の堆積

Katsumi Shozugawa ^{a, *}, Norio Nogawa ^b, Motoyuki Matsuo ^a

^a Graduate School of Arts and Sciences, The University of Tokyo, 3-8-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8902, Japan b Radioisotope Center, The University of Tokyo, 2-11-16 Yayoi, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

Abstract

The Great Eastern Japan Earthquake on March 11, 2011, damaged reactor cooling systems at Fukushima Dai-ichi nuclear power plant. The subsequent venting operation and hydrogen explosion resulted in a large radioactive nuclide emission from reactor containers into the environment. Here, we collected environmental samples such as soil, plant species, and water on April 10, 2011, in front of the power plant main gate as well as 35 km away in Iitate village, and observed gamma-rays with a Ge(Li) semiconductor detector. We observed activation products $\binom{239}{137}$ Cs, $\frac{110\text{m}}{29}$ Ag ($\frac{109}{32}$ Ag), $\frac{132}{16}$ Te, $\frac{132}{14}$, $\frac{140}{16}$ Ba, $\frac{140}{16}$ La, $\frac{91}{16}$ Sr, $\frac{91}{17}$, $\frac{95}{27}$ r, and $\frac{95}{16}$ Nb). $\frac{239}{16}$ Np is the parent nuclide of are presumably activation products of ⁵⁸Fe obtained by corrosion of cooling pipes. The results show that these activation and fission products, diffused within a month of the accident.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved

概要

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災は福島第一原子力発電 所の冷却システムにダメージを与えた。続いて穴をあける 操作と水素爆発は結果、環境中に原子炉容器から多量の放 射性核種が放射された。ここで、我々は飯舘村の 35 km の 方向と同等な原子炉のメインゲート(正門)の土壌、植物種、 そして水を 2011 年4月 10日に環境試料を収集し、そして Ge(Li)半導体検出器を使用してγ線を観測した。我々は活性 化した生成物(239Np and 59Fe)と核分裂生成物(¹³⁷Cs, ^{110m}Ag (¹⁰⁹Ag), ¹³²Te, ¹³²I, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰La, ⁹¹Sr, ⁹¹Y, ⁹⁵Zr, and
⁹⁵Nb)を観測した。²³⁹Np は ²³⁹Pu の親核種で、⁵⁹Fe は多分冷却 パイプの腐食によって得られた⁵⁸Fe の活性生成物である。 結果は事故の後 1 ヶ月以内に撒き散らされた活性化と核分 裂による生成物と示す。

1. Introduction

The Great East Japan Earthquake and the subsequent Tsunami on March 11, 2011, caused the cooling systems of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant to break down. The cooling of some of the nuclear reactors thus became impossible, and the pressure in the nuclear reactor container rose because of hydrogen buildup. Despite the venting operation performed for reactor No. 1 on March 12, the building was damaged by a hydrogen explosion. Immediately thereafter, ¹³⁷Cs was detected from dust collected within the premises of the power plant. Although a venting operation was performed for reactor No. 3 on March 13, a large-scale hydrogen explosion occurred the

following day. On the other hand, dry venting was performed for reactor No. 2 without a hydrogen explosion, and a hydrogen explosion occurred in reactor No. 4 on March 15. For these reasons, the nuclear-reactor fuel rods and container underwent damage between March 12 and 15, and a large amount of radioactive nuclides was emitted into the environment. As of April 12, it was confirmed that the cores for the No.1 to No. 3 reactors were damaged and that the fuel pellet had melted. In light of this, the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident was elevated to a level 7 event on the International Nuclear Event Scale (INES) (Releases, 2011). The radioactive contamination in the environment is become a great concern in Japan for our survival.

1. はじめに

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災と2次の津波が福島第 一原子力発電所の冷却システムを破壊した。原子炉の幾つ かの冷却はつまり不可能になり、そして原子炉容器内の圧 力は水素増進のため上昇した。3月12日に1号機の原子炉 は穴を開ける操作(ベント)を実行したにもかかわらず、建屋 は水素爆発して崩壊した。その後直ちに、原子炉建屋内で収 集された塵から 137 Cs が検出された。ベント操作は 3 月 13 日に3号機に実行されたが、次の日に大規模な水素爆発が 起きた。一方、乾燥ベントは2号機で水素爆発せず実施さ れ、そして3月15日に4号機で水素爆発した。これらの理 由のため、原子炉燃料棒(fuel rods)と容器は 3月 12-15 日の 間ダメージを受け、そして多量の放射性核種が環境中に放 射された。4月12日に、1号機と3号機の原子炉コアがダ メージを受け、燃料の⼩球が溶けていることがわかった。こ の観点から、福島第一原発事故は国際原子力事象評価尺度 (INES)でレベル 7 と評価された(2011 公表)。環境中の放射 能汚染は我々が生存している日本にとって大きな重要事項 になった。

In this study, environmental samples of soil, plant species, and water were collected on April 10-about one month after the accident-in front of the main gate of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant and 35 km away at Iitate village in Fukushima prefecture. Doses of radioactive nuclides were then measured by a Ge(Li) semiconductor detector without any chemical modification of the samples in order to comprehensively identify the nuclides that diffused into the environment.

この研究では、4月10日から事故後約1ヶ月に福島県飯舘 村の35 kmの距離と福島第一原子力発電所の正門前で土壌、

植物種、そして⽔の環境試料が収集された。放射性核種の船 ⻑はその後Ge(Li)半導体検出器によって測定した。ただし環 境に撒き散らされた核種の包括的な同定のために、幾つか の化学修飾は除いている。

2. Methods

Soil, plant species, and water in the environment were collected on April 10, 2011 in front of the main gate of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant (located at Okuma-machi, Futaba-gun) and at Iitate village, Soma-gun, Fukushima prefecture, shown in Table 1. From paddy and thicket soils, $30-80$ g of soils from the surface $(0-10$ cm) was collected after removing plant species. From pine and straw leaves, ca. 10 g of plant were collected while ensuring the absence of attached soil. From paddy fields and puddles, we collected ca. 100 ml of water per sample using a 50-ml syringe. The skies were clear and there was hardly any wind on the sampling day. The sampling sites and spatial radiation dose at each site are shown in Fig. 4. The latter was measured by an ion-chamber-type gammaray detector and GM counter.

環境中の土壌、植物の種、そして水は 2011 年 4 月 10 日 に表 1 に示す福島第一原子力発電所 (双葉郡大熊町)の正 門前と飯舘村、相馬郡、そして福島市で採取された。水田と 茂み(雑木林)の土壌から表面(0-10 cm)から 30-80 g が植物の 種を取り除いて採取された。松と藁の葉、直物の約 10 g が 収集された。ちなみに土壌が付着していないことは保証す る。水田領域と水たまりから、50 ml の注射器を使用してサ ンプルの水を 100 ml 収集した。天候は晴れで、風がありサ ンプリングは⼤変だった。サンプリングした敷地とそれぞ れの敷地での空間線量図 4 に示す。あとはイオン電離箱型 γ線検出器と GM 検出器によって測定された。

Gamma-rays from collected samples were measured using a Ge(Li) semiconductor detector (Princeton Gamma-Tec). The device, located at the Radioisotope Center in the University of Tokyo, has a relative efficiency of 34.4% at 1332 keV, and FWHM of 1.78 keV on the 1332 keV ${}^{60}Co$ g-line and 743 eV on the 122 keV $57C$ o gline. Measurements were performed on April 14 and April 22. The sample was sealed in a 100 ml vial made of polyethylene and subjected to measurement without chemical modification. The measurement time was 3000- 3600 s. Spectrum navigator (SEIKO E&G Co., Ltd.) and a

Table 1
Sampling sites and spatial dose of radiation.

nuclide library generation program (NucLib ver 1.12) were used as the gamma-ray libraries for nuclide identification, together with the IAEA Handbook of Nuclear Data for Safeguards. A nuclide was identified when two or more clear and independent peaks greater than 3 s above baseline were present in the spectrum. The half-life correction of each nuclide was made assuming a sampling time of 0 s of the elapsed time.

採取されたサンプルからの γ 線は Ge(Li)半導体検出器 (Princeton Gamma-Tec)を使⽤して測定された。この装置は東 京⼤学ラジオアイソトープセンターにあり、1332 keV に対 して 34.4%の相対感度と FWHM 1.78 keV (0.13%)の分解能 (60Co-γ 線)と 122keV に対して FWHM 743 eV (0.61%)の分解 能(⁵⁷Co-γ 線)をもつ。4 月 14 と 22 日に測定が実施された。 サンプルはポリスチレン製の 100 ml の小瓶に封入され、化 学的修飾なしに測定にかけられた。測定時間は 3000-3600 秒。 スペクトルナビゲーション(SEIKO E&G 株式会社)と原子核 ライブラリ生成プログラム(NucLib ver. 1.12)が原子核同定 のためのγ線情報として保護のための原子核データのIAEA ハンドブックと⼀緒に使⽤された。核種はスペクトラムで ベースラインの上に 3σ より⼤きい独⽴で2倍以上明らか なピークが現れた時に同定される。それぞれの核種の半減 期補正は経過した時刻をサンプル時刻 0 秒と仮定する。

The doses of identified nuclides in soil, plant species, and water samples collected in front of the power plant and at Iitate village are shown in Figs. 1 and 2. The fission products are listed in Fig. 1, and the activation products are listed in Fig. 2. The doses of nuclides in the surface soil collected on April 7 within the premises of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant, which were reported by Tokyo Electric Power Company; TEPCO (three fixed observation points within the plant; point A, playground; point B, in the woods; point C, disposal site), are also included in both Figures.

飯舘村と原発前で収集された土壌、種、水サンプルの同定 した核種の線量は図 1, 2 に示される。核分裂生成物は図 1 に表にされ、活性化生成物は図2に表にされる。4月7日に 福島原発の構内で採取された土壌表面の原子核の線量は東 京電力株式会社(TEPCO)によって報告され(3つの場所: A. 運動場; B. ⽊の中; C. 廃棄処理施設)、どちらの図も含んで いる。

Radioactive elements, which were ¹³¹I, ¹³⁴Cs (¹³³Cs), ¹³⁷Cs, ^{110m}Ag (¹⁰⁹Ag), ¹³²Te, ¹³²I, ¹⁴⁰Ba, ¹⁴⁰La, ⁹¹Sr, ⁹¹Y, ⁹⁵Zr, and ⁹⁵Nb were identified from each environmental sample. The nuclear data for these radionuclides are shown in Table 2. In the case of ^{132}I , which has a short half-life, its parent nuclide 132 Te was used to estimate the half-life based on the radiation equilibrium. In the cases of 140 Ba-La, 91 Sr-Y, and 95 Zr-Nb, the doses for both nuclides are listed in Fig. 1 because the differences between them were small. For all nuclides, the doses in plant species were about 10 times higher than those in soil, which in turn were higher than those in water. In the case of 131 , which is one of the main fission products, the dose was 49 kBq kg⁻¹ in the soil collected in front of the main gate of the power plant, and 150 kBq kg^{-1} in plant species. On the other hand, the dose of 131 I in the soil at Iitate village (s4) was 4.1 kBq kg^{-1} , and of the same grade to that in the soil sample $(s2)$ collected in a paddy field 4.1 km away from the nuclear power plant $(4.3 \text{ kBq kg}^{-1})$. In the soil collected within the premises of the nuclear power plant site, the maximum observed dose was 2.3 \overline{MBq} kg⁻¹ reported by TEPCO on April 22.

それぞれの環境中の試料から 131 I, 134 Cs (133 Cs), 137 Cs,
 110m Ag (109 Ag), 132 Te, 132 I, 140 Ba, 140 La, 91 Sr, 91 Y, 95 Zr, and
 95 Nb の放射性核種が同定された。表2 にこれら放射性核種 のデータを示す。132I の場合、半減期が短く、放射平衡状態

をもとに親核の ¹³²Teの半減期を使用した。140Ba-La と 91Sr-。
Cs) Y、そして95Zr-Nbの場合、どの核種の線量も図1に示され ⁹¹Y. ている。なぜなら、これらの間が小さいからである (半減期 ental の事?)。すべての核種において、植物種の線量は土壌より own 約10倍高く、水のそれよりも高い。核分裂生成物の主な一 つとして 131I の場合、原子炉の正門前で採取した土壌の線量 は 49 kBq/kg で、そして植物種では 150 kBq/kg であった。 一方、飯舘村の土壌(s4)の ¹³¹I の線量は 4.1 kBq/kg で原子炉 から 4.1 km 離れた水田領域で取れた土壌(s2)と同じ大きさ (4.3 kBq/kg)であった。福島原発敷地構内で採取された土壌 で、最⼤ 2.3 MBq/kg の線量が観測されたことが 4 ⽉ 22 ⽇ に TEPCO によって報告された。 どの核種の線量も図1に示され って、植物種の線量は土壌より

Table 2

Nuclear data for radionuclides by Evaluated Nuclear Data File, IAEA, in the environmental samples around Fukushima Dai-ichi nuclear power plant.

	Nuclide	Gamma	Abundance	Half life (y: year)
		(keV)	$(\%)$	(d: day)(h: hour)
Fission	131 _l	364.48	81.0	8.04(d)
	134Cs(133Cs)	604.66	97.6	2.06(v)
	137 Cs	661.64	85.0	30.2(v)
	110mAg(109Ag)	884.67	72.8	252(d)
	132 Te	228.16	88.0	78.2(h)
	132 ₁	667.69	98.7	2.28(h)
	140 Ba	537.27	23.6	12.8(d)
	140 _L	1596.49	95.5	40.3(h)
	91 Sr	555.57	61.0	9.48(h)
	91 _V	1208.00	0.3	58.5(d)
	95Zr	756.72	54.6	64.0(d)
	^{95}Nb	765.79	99.8	35.0(d)
Activation	239 Np	106.14	27.8	2.35(d)
	59Fe	1099.22	56.5	44.6(d)

These observations as of April 10 suggest that the dose of 131I depended on the distance from the nuclear power plant. However, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs, which have long half-lives, did not depend on the sampling point, as the dose ranges were 0.53-2.8 kBq kg⁻¹ and 0.54-2.9 kBq kg⁻¹, respectively.
¹³⁴Cs is produced by neutron activation of 133Cs, a stable fission product, whereas 137Cs is produced directly from fission (Lin and Skarpelos, 1997). The $^{134}Cs/^{137}Cs$ ratio was ca. 1 at each sampling point. In particular, the highest dose was observed in a soil sample collected at Nagadoro in Iitate village. Based on a consideration of these measurements and half-life, we suggest that there was a very large but temporary diffusion of these radioactive nuclides. The same tendency is also observed for $110m\text{Ag}$. The production of $110m\text{Ag}$ is confirmed by the 109Ag (n, γ) to $110m$ Ag reaction in the more mobile fission products of the Dragon gas-cooled reactor at Winfrith, UK (Flowers, 1986). After the Chernobyl accident, the dose of $110m\text{Ag}$ in the soil was raised from 4.5 to 46.1 Bq kg^{-1} (average 14.3) Bq kg⁻¹) in Greece eight weeks (Papastefanou et al., 1988). Like typical fission products, this nuclide is characterized by fast diffusion.

これらの 4/10 の観測は 131I の線量が福島原発からの距 **離に依存していることを指摘する。しかし、比較的半減期が** 長い 134Cs と 137Cs はサンプリング位置に依存せず、それぞ れ 0.53-2.8 kBq/kg と 0.54-2.9 kBq/kg であった。¹³⁴Cs は核分 裂安定核種 133Cs の中性子活性によって生成され、137Cs は 直接核分裂⽣成される(Lin and Skarpelos, 1997)。それぞれの サンプリング位置で 134Cs/137Cs の⽐は約 1 であった。特に 飯舘村の長泥地区で採取された土壌に高い線量が観測され た。これらの測定と半減期の考察に基づいて、これらはとて も大きいが、放射性核種の一時の拡散であると指摘する。同 じ傾向が 110mAg でも観測された。110mAg の⽣成は Winfith UK でドラゴン気体冷却反応のほとんどの可動性核分裂⽣ 成の 109Ag (n, γ) to 110mAg 反応によって確認されている (Flowers, 1986)。チェルノブイリ事故の後、土壌の 110mAg の線量が 4.5 から 46.1 Bq/kg へ上昇した、平均 14.3 Bq/kg で、ギリシア、8 週間で(Papastefanou et al., 1988)。典型的 な核分裂のように、この核種は最初の拡散によって特徴付 けられる。

Fig. 3 shows the spatial dose continuously observed in front of the nuclear power plant, as reported by TEPCO. Observations at the main gate were not conducted from March 17 to March 20. However, it is seen that the spatial dose rose dramatically several times before March 14. We assume that each nuclide spread during these events.

図 3 は TEPCO による報告として原子炉の前の連続して 観測した空間線量を⽰す。正⾨での観測は 3 ⽉ 17 から 20 日に実行された。しかし、3月14日以前の数時間に空間線 量が劇的に上昇したように思える。これらの事象の間にそ れぞれ核種は拡散したと仮定した。

The activation products, 239 Np and 59 Fe were identified $\frac{\text{age}}{\text{198}}$ from each environmental sample. As in the fission products, (1988) . the doses in plant species were high. Naturally, 239 Np does not normally exist because of its short half-life. $237Np$, which is a daughter nuclide of 241 Am, is distributed throughout the world in very slight amounts (Kelley et al., ³⁵ $\frac{1999}{1999}$. However, ²³⁹Np is known to have spread at least 半減期が 1500 km only two weeks after the Chernobyl accident $\zeta h \zeta$ (Henriksen and Saxebol, 1988). cterized not normally exist because
which is a daughter nucli its short half-life. ^{237}Np ,
of ^{241}Am , is distributed mental sample. As in the fission products, the doses in plant species were high.

137Cs は 活性化生成核 ²³⁹Nb と ⁵⁹Fe はそれぞれの環境サンプルか ら同定された。核分裂生成物として、植物種の線量は高かっ た。当然、239Nb は半減期が短いため普通存在しない。241Am の娘核の²³⁷Nb はとてもわずかな量世界のいたるところに 散布された(Kelley, 1999)。しかし、239Nb はチェルノブイリ 事故の後2週間のみ少なくとも 1500 km は広がったことが 知られている(Henriksen and Saxebol, 1988)。

²³⁹Np was identified by each of the following peaks: 106.14 keV (27.8% of emission rate), 277.60 keV (14.5%), and 120.60 keV (2.77%) by Evaluated Nuclear Data File, $\frac{4.4}{40}$ IAEA, all of which show clear separation in the spectrum. The peaks at 117.26 and 228.20 keV were not used for identification because they are interfered by 132 Te. Given that 239 Np has a short half-life of 2.3 days, the gamma-ray spectrum was measured again nine days after the first measurement. By this time, all of the peaks decreased below the minimum limit of detection. 239 Np is a beta decay nuclide of ^{239}U , and ^{239}U is generated in large quantities by the neutron capture of 238 U in a nuclear reactor, as in the reaction ²³⁸U(n, γ)²³⁹U $\stackrel{\beta}{\rightarrow}$ Np $\stackrel{\beta}{\rightarrow}$ ²³⁹Pu. Although it is unknown whether this nuclide spread between March 12 and March 15, it spread at least to Iitate village on April 10dthe time of sample collection. In particular, a 3.6 kBq kg⁻¹ dose of ²³⁹Np was detected in the straw sample collected at the Komiya area in Iitate village. This dose was one third of that in the pine leaves in front of the main gate (9.2 kBq kg⁻¹). As the daughter nuclide of 239 Np is 239 Pu, diffusion of the former may cause serious contamination. From 1945 to 1980, 6500 TBq of 239 Pu was

emitted in a global fallout, whereas the fallout from Chernobyl was 30 TBq (Beasley et al., 1998; Radiation, 2000). Although 239Np emission from the Fukushima Daiichi nuclear power plant cannot be presumed at present, it is expected that 239 Pu will be detected at high doses around the power plant in the future. In addition, 59 Fe is the activation product from fuel cladding and impurities in structural materials (Thind, 2001). 59 Fe are presumed to be the activation products of ${}^{58}Fe$ obtained by the corrosion of cooling pipes. These nuclides spread into the environment by the venting operation or hydrogen explosion. ${}^{59}Fe$, which is a typical neutron-induced nuclide, was also detected in the soil near the site of the critical accident at Tokai-mura, Japan, in 1999 (Nakanishi et al., 2000). This constitutes circumstantial evidence of 59 Fe being generated by neutron activation. At present, it is difficult to identify the nuclear reactor from which these nuclides were emitted. As MOX fuel is used in reactor No. 3, the quantification of Pu may yield information on this issue. However, as this is a time-consuming process, we do not address this here.

²³⁹Nb はスペクトラムで明らかな区別ができる IAEA の原 子核評価データファイルによる 106.14 keV (放射率: 27.8%), ・。…………
277.60 keV (14.5%), 120.60 keV (2.77%)の各ピークによって 同定された。 117.26 と 228.20 keV のピークは ¹³²Te によって 妨げられるため、同定には仕様されなかった。2.3 日という 短い半減期を持つ 239Nb を取得するために、γ 線スペクトラ distance from the nuclear power plant. However, 134Cs and 137Cs, which have long half-lives, did not depend on the sampling point, as the dose ranges were ムは最初の測定の 9 日後に再度測定した。このときまで、 ピークのすべては最小の検出限界以下に減少した。239Nb は

 239 U の β 崩壊核種で、 239 U は原子炉内の 238 U の中性子捕 獲 (反応: ²³⁸U(n,γ)²³⁹U→Np^β2³⁹Pu) によって大量に生成 される。この核種が 3/12-15 の間に広がったかどうかは不 明だが、4/10 の飯舘村でのサンプル採集した時には少なく とも広がっていた。特に 239Nb の線量 3.6 kBq/kg は飯舘 村の⼩宮エリアで採集したわらで検出された。この線量は 正⾨前の松の⽔準(9.2 kBq/kg)の 1/3 だ。239Nb の娘核は 239Pu であるとして、以前の拡散は重大な(ゆゆしき)汚染を 引き起こすだろう。1945 から 1980 年、²³⁹Pu の 6,500 TBq が世界中に放射された。チェルノブイリからの死の灰(放射 性降下物) は 30 TBq であった (Beasley et al., 1998; Radiation, 2000)。現在は福島第⼀原発から 239Nb が放出し たことは仮定できないが、将来原子炉周りの高い線量で 239Pu が検出されると予期している。加えて⁵⁹Fe は構造上 rt present, it is unificant to facility
which these nuclides were emitted の物質で燃料と不純物からの活性化生成物である(Thind, 2001)。59Fe は冷却パイプの腐食によって得られた 59Fe の **活性化生成物と仮定された。これら核種は水素爆発のベン** ト操作によって環境中に広がった。⁵⁹Fe は典型的な中性子 捕獲生成物で、1999年の東海村の臨界事故があった現場に Thit Creece eight weeks the second fission products is second fission in the second of the second fission of th
近い土壌で検出された (Nakanishi et al., 2000)。これは中性 子活性によって生成される 59 Fe の状況証拠を構成する。現 在、これら核種が放出したものから原子炉を同定すること ー・・・・・・・・・・・。
は困難である。3 号機は MOX 燃料を使用しているとして、 Pu の量はこの問題において情報を与える。しかし、これが 時間消費過程であるとして、我々はここでこれについては i 扱えない。 is a daughter nuclide of 241Am, is distributed throughout throughout throughout the world in very set

Fig. 4. Sampling sites and spatial dose of radiation. The value in square brackets, such as [100], is the value of the spatial dose of radiation (μ Sv h⁻¹) 1 m above ground on the day of sampling (April 10, 2011).