

福島第一原発から放出された高濃度放射性セシウム含有粒子の生成過程

Unraveling the formation processes of Cs-rich microparticles

in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

*井元 純平¹, 古木 元気¹, 落合 朝須美¹, 山崎 信哉², 難波 謙二³,

大貫 敏彦⁴, Bernd Grambow⁵, Rodney C. Ewing⁶, 宇都宮 聡¹

¹九大院理, ²筑波大, ³福島大, ⁴東工大, ⁵ナント大, ⁶スタンフォード大

福島第一原発から高濃度の放射性セシウムを含有する粒子が放出されている。この粒子は放射性セシウムの化学状態や MCCI に関する重要な情報を有していると考えられる。本研究では電子顕微鏡技術を駆使して、この粒子の内部構造と元素分布を明らかにし、粒子生成過程と事故時の炉内環境を考察した。

キーワード：高濃度放射性セシウム含有粒子、MCCI、透過型電子顕微鏡

1. 緒言

高濃度の Cs を含有する粒子(Cs-rich micro-particles : CsMPs)は Si を主成分として炉内構成物や核分裂生成物から構成されており^{1,2}、原子炉内で起こった化学反応に関する有用な情報を保持していると考えられる。CsMPs を高分解で詳細に分析することで、未解明の初期段階の Cs 化学種や反応プロセス、炉内環境の解明が可能になる。本研究では電子顕微鏡技術を用いた CsMPs のナノスケール分析により内部構造、構成元素、元素分布を解析し、CsMPs の生成過程と炉内で起きた反応の解明を目的とした。

2. 実験

本研究では CsMPs を東京都で採取した大気フィルターと福島県で採取した土壌から単離した。各々の試料のオートラジオグラフィを行い、放射能を放つスポットをカーボンテープで分離した。そのカーボンテープを細分化して走査型電子顕微鏡とエネルギー分散型 X 線分光装置により粒子を検出した。ゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能測定後に集束イオンビームにより粒子を 200 nm 以下まで薄片化した。その超薄切片を透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて詳細に分析した。

3. 結果および考察

TEM-EDX の結果より CsMPs は主に O、Si、Fe、Zn、Cs、Sn、K、Rb、Cl、Mn、Pb の元素から構成され、粒子内部ですべての元素がほぼ均一に分布していた。しかし Cs は部分的に不均一に分布していた。また高分解観察を行ったところ、マトリックスは SiO₂ で構成され非晶質であったがその内部に多数の結晶性を有する Fe-Zn 酸化物ナノ粒子が SiO₂ に溶解せずに取り込まれていた。また、Fe-Zn 酸化物ナノ粒子には Cs、Sn、Cl が吸着し、U もそれらの粒子に吸着する形で粒子内に存在することが明らかになった。さらに粒子内部には核分裂生成物により構成されるナノ粒子の内包物が同定された。以上の結果から CsMPs が形成される前に Fe-Zn 酸化物および核分裂生成物ナノ粒子が炉内で生成し、溶融燃料とコンクリートが接触した際に生じる SiO ガスがそれらを取り込み凝縮することで粒子形成が起こったことが示唆された。

参考文献

[1] K. Adachi, M. Kajino, Y. Zaizen, Y. Igarashi, Sci. Rep. 3, 2554/1-5 (2013)

[2] Y. Abe, Y. Iizawa, Y. Terada, K. Adachi, Y. Igarashi, I. Nakai, Anal. Chem. 86, 8521-8525 (2014).

*Junpei Imoto¹, Genki Furuki¹, Asumi Ochiai¹, Shinya Yamasaki², Kenji Nanba³, Toshihiko Ohnuki⁴, Bernd Grambow⁵, Rodney C. Ewing⁶ and Satoshi Utsunomiya¹

¹Kyushu Univ., ²Tsukuba Univ., ³Fukushima Univ., ⁴Tokyo Inst. Tech., ⁵Nantes Univ., ⁶Stanford Univ.,