

福島原発事故により放出された放射性 Cs 濃集粒子に含まれる Sr, Pu 量から推測される生成過程

The formation processes of highly concentrated radioactive Cs particles released by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power plant accident from the view point of the amounts of Sr and Pu.

*五十嵐淳哉¹、鄭建²、張子見¹、二宮和彦¹、佐藤志彦³、福田美保²、倪有^{2,4}、
青野辰雄²、末木啓介⁵、篠原厚¹

¹阪大院理、²量研、³原子力機構、⁴北京大物理、⁵筑波大院数理物質

福島原発事故で放出された放射性 Cs が濃集した放射性微粒子に含まれる Sr と Pu を放射化学的手法により定量した。これらの核種の含有量については、放出元の原子炉が異なる放射性微粒子毎に違いが現れることが明らかになった。このことは各原子炉内での粒子の生成過程に違いがあることを示している。

キーワード：福島第一原子力発電所、放射性微粒子、放射化学分析、ストロンチウム、プルトニウム

1. 緒言

福島原発事故では放射性 Cs を高濃度に含む不溶性の放射性微粒子が放出され、Cs の放射能比の違いから放出元の原子炉がそれぞれ異なる放射性微粒子の存在が指摘されてきた[1,2,3]。この粒子は不溶性であることから放出時の物理化学状態を保持していると考えられ、粒子の組成元素分析を行うことで事故時の炉内環境についての情報を得ることが期待される。核燃料内に存在する核種の中で Sr や Pu は、Cs よりも揮発性の低い元素であり、これらの核種は事故進展に応じて変化する炉内の酸化還元雰囲気の違いにより揮発性が変化する性質が知られている[4,5]。本研究では、放出元の原子炉がそれぞれ異なる放射性微粒子に含まれる Sr や Pu を定量することで、各原子炉における放射性微粒子の生成過程の推測を試みた[6]。

2. 実験

本研究では、放射化学的手法と ICP-MS 質量分析により、放射性微粒子からの Sr と Pu の定量を行った。まず Cs の放射能比から 1 号機由来と推測された放射性微粒子 (P1) と、2,3 号機由来と推測された放射性微粒子 (P2) を抽出後アルカリ溶融により溶液化し、Sr-Rad disk により Sr を分離し液体シンチレーションカウンタによって ⁹⁰Sr を定量した[3]。次に Sr-Rad disk を通過した溶液成分についてレジンをを用いたクロマトグラフィーにより Pu を分離し、精製した溶液について SF-ICP-MS により Pu (²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu) を定量した[7]。

3. 結果・考察

定量の結果、P1 では ⁹⁰Sr/¹³⁷Cs と ²³⁹⁺²⁴⁰Pu/¹³⁷Cs の値がそれぞれ $10^{-4} \sim 10^{-3}$ 、 $10^{-8} \sim 10^{-7}$ であった。一方で P2 では、⁹⁰Sr/¹³⁷Cs の値は P1 と同程度であったが、²³⁹⁺²⁴⁰Pu/¹³⁷Cs の値は P1 よりも低く、²³⁹⁺²⁴⁰Pu/¹³⁷Cs の値には放出元の原子炉が異なる粒子毎で違いが現われることがわかった。これらの Sr, Pu 量の違いから推測される各原子炉における粒子生成過程の違いについて講演では議論する。

参考文献 [1] K. Adachi et al., Sci. Rep. (2013) 3, 2554. [2] Y. Satou et al. Geochim. J. (2018) 52, 0514. [3] Z. Zhang et al., Environ. Sci. Technol. (2019) 53, 10, 5868-5876. [4] Y. Pontillon et al. Nucl. Eng. and Design. (2010) 240, 1853-1866. [5] S. Miwa et al. Nucl. Eng. and Design. (2018) 326, 143-149. [6] J. Igarashi et al., Sci. Rep. (2019) 9, 11807. [7] Z. Wang et al., Anal. Chem. (2017) 89, 2221-2226.

* Junya Igarashi^{1*}, Jian Zheng^{2*}, Zijian Zhang¹, Kazuhiko Ninomiya¹, Yukihiro Satou³, Miho Fukuda², Youyi Ni^{2,4}, Tatsuo Aono² Keisuke Sueki⁵ & Atsushi Shinohara¹. ¹Osaka Univ., ²QST, ³JAEA, ⁴Pekin Univ., ⁵Tsukuba Univ.