

## 福島第一原発由来デブリ片中のプルトニウム存在状態

Particulate plutonium released from the Fukushima Daiichi meltdowns

\*宇都宮 聡<sup>1</sup>、山崎 信哉<sup>2</sup>、堀江 憲治<sup>3</sup>、竹原 真美<sup>3</sup>、大貫 敏彦<sup>4</sup>、Law Gareth<sup>5</sup>、  
Grambow Bernd<sup>6</sup>、Ewing Rodney<sup>7</sup>

<sup>1</sup>九州大、<sup>2</sup>筑波大、<sup>3</sup>国立極地研、<sup>4</sup>東工大、<sup>5</sup>ヘルシンキ大、<sup>6</sup>ナント大、<sup>7</sup>スタンフォード大

福島第一原発由来高濃度放射性 Cs 微粒子に含まれる燃料デブリ片からプルトニウムを初めて発見し、高精度二次イオン質量分析計、放射光マイクロ X 線分析によってその存在状態を明らかにした。プルトニウムは二酸化ウラン粒子内にミクロな濃集を呈した。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  と  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  の比は $\sim 0.347$ 、 $\sim 0.065$ と決定され、ORIGEN の計算結果と一致した。

**キーワード：**福島第一原発、燃料デブリ、プルトニウム、同位体、シンクロトロン放射光、XANES

### 1. 緒言

2011 年 3 月に福島第一原子力発電所(FDNPP)で起きた原子力災害によってプルトニウム(Pu)も環境中に放出された。Pu は揮発性が低いため放出量は炉内の $\sim 2.0 \times 10^{-5}\%$ と微量であると推定されているが、その同位体の半減期の長さを実効線量係数の大きさから内部被ばくによる人体への影響が懸念されている。また、廃炉工程における燃料デブリの取り出し前に必要な物理的・化学的性状、特に Pu の存在状態に関する情報は得られていない。本研究では原子炉から放出された高濃度放射性 Cs 含有微粒子(CsMP)からデブリ片を発見し、U と Pu の同位体の分析と存在形態の同定に初めて成功した結果を発表する。

### 2. 実験

福島県で採取した土壌から 2 つの CsMP (AQC, OTZ)を単離して、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  放射能比を測定した後に、国立極地研で二次イオン質量分析装置 (SIMS)、英ダイヤモンド放射光/スイス放射光でマイクロ X 線分析( $\mu\text{XRF}$ )、高分解能 TEM 観察を行って Pu や U の同位体比分析と存在形態を決定した。

### 3. 結果・考察

本研究対象の CsMP は、その  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  放射能比がそれぞれ 1.05 (AQC)、1.12 (OTZ)で FDNPP の 2 または 3 号機由来と分かる。SIMS の結果から、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、および  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  の同位体比がそれぞれ $\sim 0.0193$ 、 $\sim 0.347$ 、および $\sim 0.0650$ と決定され、ORIGEN2 によって計算された値と近くなっており、照射された燃料微粒子の一部が含まれていることが示唆された。また  $\mu\text{XRF}$  の結果から、CsMP 中にサブミクロンサイズの Pu 酸化物の濃集を含む $\sim 20 \mu\text{m}$ 程度の  $\text{UO}_2$  と被覆管の主成分である Zr の局在した濃集帯が確認された。 $\mu\text{XANES}$  スペクトルより U は  $\text{UO}_2$ 、Pu は酸化物として存在することが示唆された。使用済み燃料の縁の部分では  $\text{UO}_2$  結晶格子の U が Pu に置換されて Pu が濃集することが知られており、このデブリ片は燃料ペレットの縁の一部がナノ粒子として MCCI 時に CsMP に取り込まれたものと考えられる。

### 4. 結論

本研究の結果から、Pu は揮発過程を経ずに燃料微粒子の一部として CsMP に取り込まれて環境中に放出されたと考えられ、主要な Pu の長距離輸送メカニズムであったと考えられる。また、デブリ中の Pu の性状は使用済み燃料中の Pu と同様の組織を保持していることが示唆された。

\*Satoshi Utsunomiya<sup>1</sup>, Shinya Yamasaki<sup>2</sup>, Kenji Horie<sup>3</sup>, Mami Takechara<sup>3</sup>, Toshihiko Ohnuki<sup>4</sup>, Gareth Law<sup>5</sup>, Bernd Grambow<sup>6</sup>, Rodney Ewing<sup>7</sup>

<sup>1</sup>Kyushu Univ., <sup>2</sup>Tsukuba Univ., <sup>3</sup>NIPR, <sup>4</sup>TITECH, <sup>5</sup>Helsinki Univ., <sup>6</sup>Nantes Univ., <sup>7</sup>Stanford Univ.