



福島第一原発で制御棒が揮発した証拠を初めて明らかに！ ～高濃度放射性セシウム含有微粒子中のホウ素—リチウム同位体組成が示す新事実～

ポイント

- ① 福島第一原発の燃料デブリの中には制御棒 (B_4C) が残っていて、中性子を吸収して核分裂連鎖反応を抑制する一因と考えられています。しかし、これまでに福島第一原発炉内における燃料デブリ中のホウ素に関する知見はほとんど得られていませんでした。
- ② メルトダウン時に炉内で形成され、環境中に放出された高濃度放射性セシウム含有微粒子中のホウ素を初めて検出し、濃度を決定しました。そのホウ素同位体組成 $^{11}B/^{10}B$ を精密に決定し、 B_4C 制御棒が部分的に揮発した直接的な証拠を世界で初めて示しました。
- ③ “福島第一原発で制御棒の揮発が起きた” という新事実は、燃料デブリ中に残存するホウ素の状態に注意しながら慎重に取り出し作業を行う必要があることを強く示唆します。今後、実際に炉内から取り出されるデブリ片を精密に分析して、炉内の B_4C の残存量、化学形態、分布をより高い精度で解析し、より安全な廃炉工程に応用されることが期待されます。

九州大学大学院理学研究院の宇都宮聡准教授、理学府修士課程1年の笛田和希大学院生らの研究グループは、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微粒子(CsMP)に含まれるホウ素同位体(^{10}B , ^{11}B)とリチウム同位体(6Li , 7Li)の精密分析を行い、中性子捕獲の役割をしていた制御棒(B_4C)の一部がメルトダウン時に揮発した証拠を初めて示しました。国立極地研究所、筑波大学、東京大学、東京工業大学、日本原子力研究開発機構、フィンランド Helsinki 大学、仏 Nantes 大学、米 Stanford 大学との共同研究の成果です。

2011年、福島第一原発炉内で起きたメルトダウンで核燃料と原子炉構造物が混ざり合いながら溶け落ちて燃料デブリとなりました。中性子を吸収して核分裂反応を制御していた制御棒(炭化ホウ素(B_4C)で構成される)も燃料デブリ中に残存し、核分裂の連鎖反応を防ぐ重要な要因になっています。一方でメルトダウン時には揮発したケイ素とセシウムが凝縮して原子炉内で大量のCsMPが生成し、環境中に放出されました。我々はこのCsMPを土壌試料から単離して、高分解能透過型電子顕微鏡、二次イオン質量分析計を駆使してそれらの構造、同位体組成を分析しました。

今回分析した4つのCsMPは図1に示すように数ミクロンから数十ミクロンの大きさで、これまでに発見されてきたCsMPと同様にケイ素、セシウム、亜鉛、鉄を主成分として、微量のアルミニウムやナトリウムを含みます。国立極地研究所にある高感度高分解能イオンマイクロプローブ(SHRIMP)を用いて、これらの粒子に含まれるホウ素同位体、 ^{10}B と ^{11}B 、リチウム同位体、 6Li と 7Li を初めて定量することに成功し、 $^{10+11}B$ は1518~6733 mg kg $^{-1}$ 、 7Li は11.99~1213 mg kg $^{-1}$ 含まれることを示しました(表1)。またCsMP中の $^{11}B/^{10}B$ 同位体比は4.15~4.21と分析され、天然存在比4.05よりも高くなりました。さらに $^7Li/^6Li$ 同位体比も213~406と分析され、天然存在比12.5よりも大幅に高い値となりました(図2)。これはメルトダウン以前に B_4C 制御棒の中で $^{10}B(n, \alpha)^7Li$ という核反応(ホウ素-10が中性子を吸収した後に α 粒子を放出してリチウム-7に変化する反応。中性子の量を制御して核分裂反応を維持する重要な反応。)が起きていた証拠であり、ケイ素やセシウムが揮発、凝縮してCsMPが生成する時に B_4C 制御棒から揮発していたホウ素とリチウムが同時に取り込まれたことを示しています。その時、ホウ素よりもリチウムの方がより揮発して取り込まれたことも分かりました(表1)。また、熱力学計算コードを用いてメルトダウン時の揮発相を計算したところ、揮発したホウ素の主要な化学形態がCsBO $_2$ であると示唆されました。

一方でCsMPのホウ素含有量に基づき、CsMPの飛散量($>3 \times 10^{12}$ 個)から原発から外部に放出されたホウ素量を計算すると0.024g程度、放射性核種を大量に含んだ2011年3月14~16日頃に放出された大気流(プルーム2と3)のほとんどがCsMPだったと仮定しても放出されたホウ素量は62gと計算されました。これらの値から、原子炉内には B_4C (メルトダウン時に2号機と3号機にはそれぞれ960kgあった)が十分な量残留し、核分裂の連鎖反応を防ぐ重要な要素の一つになっていることが分かります。しかしながら、揮発したホウ素は原子炉内部、周辺で容易に凝縮、沈積する性質があるため、デブリ内部と周囲における不均一なホウ素分布に注意しながらデブリの取り出し方法を選定し、安全に遂行する必要があります。

本研究成果は、2022年1月15日(土)に国際誌「Journal of Hazardous Materials」に掲載されました。

【研究者からひとこと】

今後燃料デブリの取り出しが計画されていますが、核分裂連鎖反応を起こさないように安全に取り出す必要があります。その時に燃料デブリの中に残っている制御棒成分は核分裂の連鎖反応を防ぐ重要な要素の一つです。今回「メルトダウンの時に制御棒が揮発した」直接的証拠を初めて明らかにすることができました。これは中性子を吸収するホウ素-10の部分的な損失が実際に起こったという非常に重要な意味を持ちます。今回はさらに炉内から放出された量と原子炉に残る制御棒の量を概算しましたが、まだ初期段階です。今後は実際に炉内から取り出されるデブリ片を同じように精密に分析して、炉内のB₄Cの残存量、化学形態、分布をより高い精度で解析し、安全性を高めていく必要があるでしょう。

【参考図】

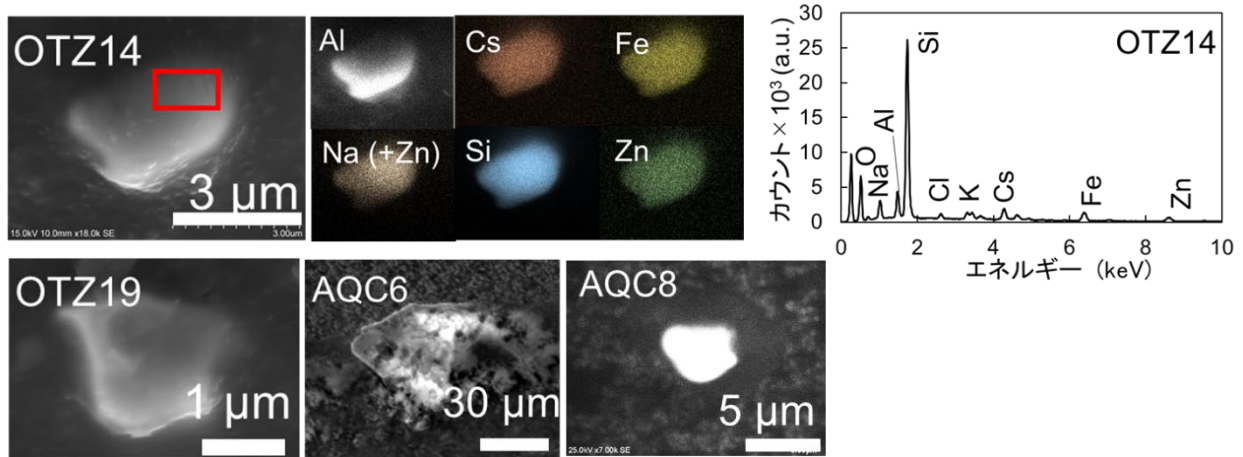


図1. 本研究で分析したCsMPsの走査電子顕微鏡分析結果

(上段)CsMP(ラベル OTZ14)の二次電子像と元素マップ、そして赤い四角で囲まれた領域から得られたエネルギー分散型 X 線スペクトルを示しています。

(下段)3つのCsMPs(ラベル OTZ19、AQC6、AQC8)の二次電子像です。

表1. CsMPsの二次イオン質量分析(SIMS)測定結果から計算されるメルトダウン時のホウ素—リチウム同位体組成に関連するパラメータ。

CsMP No.	CsMP中の ¹⁰ B濃度 (mg kg ⁻¹)	CsMP中の ¹¹ B濃度 (mg kg ⁻¹)	CsMP中の ¹⁰ B + ¹¹ B濃度 (mg kg ⁻¹)	メルトダウン時におけるB ₄ C中の ¹¹ B/ ⁷ Li比(計算値)	メルトダウン時におけるB ₄ C中の ⁷ Li濃度 (wt.%) (計算値)	CsMP中の ⁶ Li濃度 (mg kg ⁻¹)	CsMP中の ⁷ Li濃度 (mg kg ⁻¹)	CsMP中の ⁶ Li + ⁷ Li濃度 (mg kg ⁻¹)	CsMPに含まれる制御棒由来 ⁷ Li割合 (%)	CsMP中のB/Cs物質比	CsMP中の ¹¹ B/ ⁷ Li比(測定値)	B ₄ CとCsMPを比較した ⁷ Liの濃縮係数
OTZ14	1210	5524	6733	164.7	0.2485	*1.96 – 3.73	925.9	*927.9 – 929.6	*94.3 – 97.0	0.977	3.80	43.3
OTZ19	349	1603	1952	135.2	0.3029	*0.025 – 0.048	11.99	*12.01 – 12.04	*94.3 – 97.0	0.098	85.2	1.59
**AQC6-1	270	1248	1518	109.6	0.3743	1.71	427.4	429.1	94.3	0.06	1.86	58.9
**AQC6-2	272	1248	1520	134.2	0.3053	2.09	519.5	521.6	94.3	0.06	1.53	87.6
AQC8	321	1480	1800	110.1	0.3725	2.56	1213	1216	97.0	0.278	0.78	141.6
平均値	484	2221	2705			1.73	619.6	578.3				

SIMS測定時のCsMPに対するイオン化効率率はSRM NIST標準ガラスサンプルのものとほぼ同じあることがImoto *et al.* (2018)で示されていることから、NIST標準試料中の組成、³⁰Si濃度との比較によってBとLi同位体の濃度を算出しました。³⁰Siの濃度はSEM-EDXによる分析結果をもとに天然存在比を用いて求めました。
 *OTZ14およびOTZ19の⁷Li/⁶Li同位体比は測定できなかったため、これら粒子の⁶Li濃度範囲は、AQC6とAQC8の⁷Li/⁶Li同位体比213と406の値を用いて二つのケースを仮定して計算を行いました。
 **AQC6に関しては、CsMP一粒子中の二つの異なる分析点において分析を行っています。

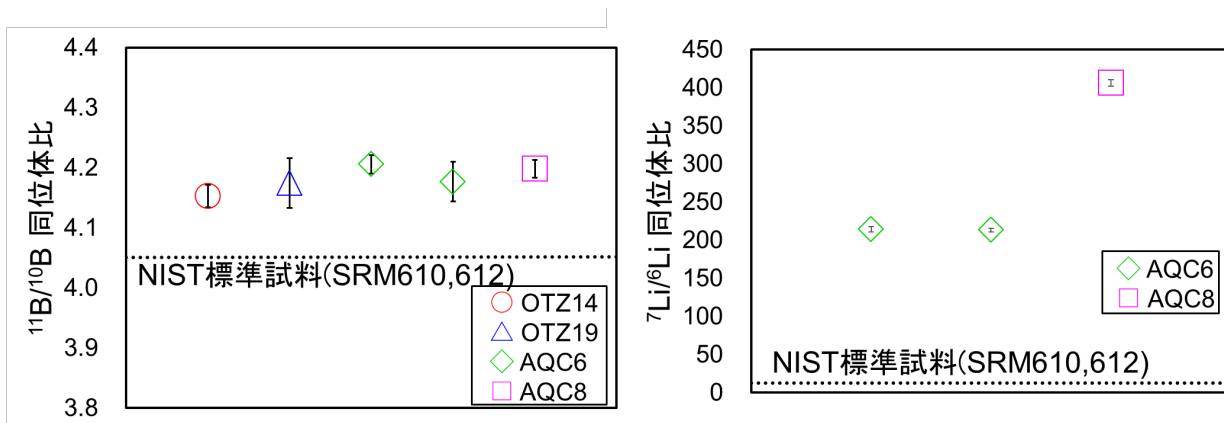


図2. CsMPs の二次イオン質量分析(SIMS)測定で得られた $^{11}\text{B}/^{10}\text{B}$ 同位体比と $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ 同位体比
破線は NIST 標準試料に対するそれぞれの同位体比を表しています。

【論文情報】

掲載誌: *Journal of Hazardous Materials*

タイトル: Volatilization of B_4C control rods in Fukushima Daiichi nuclear reactors during meltdown: B-Li isotopic signatures in cesium-rich microparticles

著者名: Kazuki Fueda,* Ryu Takami,* Kenta Minomo, Kazuya Morooka, Kenji Horie, Mami Takehara, Shinya Yamasaki, Takumi Saito, Hiroyuki Shiotsu, Toshihiko Ohnuki, Gareth, T. W. Law, Bernd Grambow, Rodney C. Ewing, and Satoshi Utsunomiya

(*Two authors contributed equally as the first author.)

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2022.128214>

50 日間無料ダウンロードサイト(2022/3/6 まで) <https://authors.elsevier.com/a/1eQDc15DSINoUO>

【お問合せ先】

<研究に関すること>

九州大学 大学院理学研究院 准教授 宇都宮 聡(うつのみや さとし)

TEL:092-802-4168 FAX:092-802-4168

Mail: utsunomiya.satoshi.998@m.kyushu-u.ac.jp

<報道に関すること>

九州大学 広報室

TEL:092-802-2130 FAX:092-802-2139

Mail: koho@jimu.kyushu-u.ac.jp