

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05209

研究課題名（和文）鉱物の内部性質に着目したラドン散逸現象の追究

研究課題名（英文）Study of radon emanation with a focus on internal properties

研究代表者

迫田 晃弘（Sakoda, Akihiro）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核燃料・バックエンド研究開発部門 人形峠環境技術センター・研究職

研究者番号：50603221

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：ラドン（Rn-222）やトロン（Rn-220）は希ガスの天然放射性元素で、鉱物などに含まれるラジウムを起源とする。あらゆる場所に存在するため、これまでに健康影響やトレーサ利用等の観点から、多様な研究の取り組みがなされてきた。本研究では、ラドンの環境動態の最初のプロセスであるラドン散逸現象の理解を目的に、鉱物粒子の性質がラドンやトロンの散逸に及ぼす影響を実験や計算に基づいて検討した。その結果、鉱物を加熱処理（400～800℃、6時間）することで、アニーリング効果によって散逸が抑制された。また、モデル計算から、アルファ反跳に比べて固体内拡散の散逸への寄与は小さいと考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ラドン・トロン散逸の理解の深化によって、環境動態の最初のプロセスである「発生」の特徴が明らかになり、環境影響評価の向上による放射線防護分野への貢献が考えられる。また、ラドンを境界とした鉱物中の放射非平衡の理解にも貢献し、年代測定の精度向上など地球科学分野への貢献も考えられる。

研究成果の概要（英文）：Radon (Rn-222) and thoron (Rn-220) are natural radioactive inert gases, originating from radium in solids such as minerals. Since they exist everywhere, various research efforts have been made from the viewpoint of health effects and tracer use. To better understand radon and thoron emanation phenomenon, which is the first process of their environmental dynamics, the present study discussed it experimentally and numerically in light of the effects of properties of mineral particles. The heating treatment of powdered mineral samples (400 to 800 °C for 6 hours) suppressed the emanation power of both radon and thoron due to the annealing effect. The model calculation also found that the contribution of solid diffusion to the emanation was much smaller than that of alpha recoil.

研究分野：環境放射能

キーワード：ラドン トロン 散逸 鉱物

1. 研究開始当初の背景

ラドン (Rn-222) は希ガスの放射性元素で、その起源は鉱物・岩石・土壌などに含まれるラジウム (Ra-226) である。あらゆる場所に存在し、我々は常に吸入被ばくしている。ラドンはタバコに次ぐ 2 番目の肺がんリスク因子で、近年、リスクが従前の 2 倍以上に見直されたこともあり、放射線防護における国際的関心は非常に高い。また最近では、ラドンの同位体のトロン (Rn-220) にも注意が払われている¹⁾。一方で、ラドンに富む放射能泉 (療養泉) として、治療目的に供されてきた歴史もある²⁾。

ラドンやトロンの環境影響評価には環境動態 (散逸～移行～曝露) の理解が必要で、本研究では散逸に着目する。これまで多様なサンプルのラドン散逸能の実測データが報告されており、ラドン散逸能 (代表値)³⁾ として鉱物 3%、岩石 13%、土壌 20%、トロン散逸能 (代表値)⁴⁾ として鉱物 1%、岩石 11%、土壌 14% が報告されている。散逸現象はアルファ反跳が駆動力と考えられており、実測で観察される外的影響 (水分など) は理論計算で説明されてきた。しかし、多くの場合で実測値は理論的な期待値より高く、定量的に説明するのは難しい。

2. 研究の目的

上述の散逸能 (代表値) の大小関係から、散逸現象の理解には、粒子を特徴付ける内的要因と関連付けた考察が必要であることが示唆される。そこで本研究では、ラドン・トロン散逸能の測定系を構築し、起源の異なる複数の同一鉱物に対して、加熱処理による散逸能の変化を観察した。また、アルファ反跳をベースにした既存のモデル⁵⁾ に固体内拡散を組み込んだモデルを作成し、パラメータの変化による散逸能の感度分析を行った。

3. 研究の方法

本研究における散逸能の測定法は、従来よく適用されてきた閉鎖系ではなく、開放系に基づいている。つまり、サンプルとラドン・トロン測定器 (RAD7, DurrIDGE 社) を直列に接続し、外気をサンプルに送るものである。サンプル (数グラム) は約 2mm のスペーサ内に置かれ、両面を PTFE フィルターで封入し、スウィネクスフィルターホルダーに収納した。本方法では、対象サンプルは放射能が比較的高いものに限られるが、システムが簡易で解析も簡便に済む。

サンプルには、リン酸塩鉱物 (日本、オーストラリア、ブラジル、ノルウェー産) を用意した。それぞれ粉末化処理をして、105℃ で 24 時間乾燥させた後、高純度ゲルマニウム検出器で Ra-226 と Ra-224 濃度を測定した。次いで、加熱処理前と処理後 (400～800℃、6 時間) でラドン・トロン散逸能を測定した。また、加熱処理毎のサンプルは、X 線回折による結晶構造、および電子顕微鏡による表面観察にも供した。

理論計算では、アルファ反跳に加えて固体内拡散を組み込んだモデルを作成した。つまり、親核種ラジウムのアルファ壊変に伴う生成時の反跳エネルギー (ラドン 86 keV、トロン 103 keV) による固体内輸送、および、その後のランダムウォークによる固体内拡散を考慮した。本モデルによる散逸能は、モンテカルロシミュレーションによって計算した。

4. 研究成果

本研究で適用した開放系の測定法は、従来の閉鎖系との比較試験から、その妥当性が認められた。また、今回用意したサンプルにおいて、散逸能の測定の不確かさの観点から、トロン散逸能はいずれも良好であったが、ラドン散逸能では注意を要する場合があった。

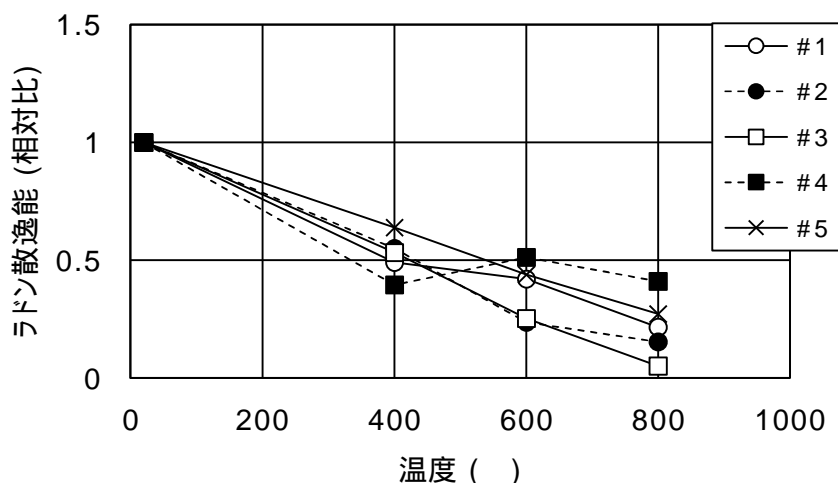


図1 加熱処理後のラドン (Rn-222) 散逸能

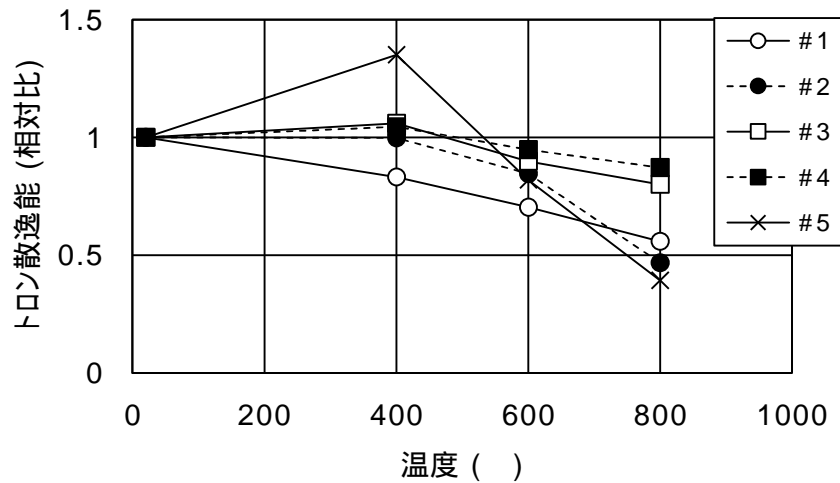


図2 加熱処理後のトロン (Rn-220) 散逸能

図1に加熱処理後のラドン散逸能の変化、図2に同じくトロン散逸能の変化を示す。ラドンは温度上昇で単調に低下する傾向があったが、トロンは400であまり変化はなく、600以降で徐々に低下する傾向がみられた。アニーリングによって結晶構造が回復し、散逸現象が抑制されたと考えられた。しかし、今回のサンプルは比較的放射能が高いが、X線回折の結果、メタミクト状態にはないことがわかっており、今回観察された散逸能低下には更なる検討を要する。なお、メタミクト状態にあるサマルスキー石では、温度300~1400において、加熱処理に伴う結晶構造の変化に追従するようにラドン・トロン散逸能も変化することが報告されている⁶⁾。

モンテカルロシミュレーションによる散逸能の計算では、ラジウムの存在位置や拡散係数をパラメータに感度分析を行った。半減期の違いから(ラドン3.8日、トロン56秒)両者における固体内拡散の影響は大きく違ったが、いずれにしてもラジウムの粒子表層への存在、および大きな拡散係数を仮定しなければ散逸現象への寄与は極めて小さいことがわかった。

<引用文献>

- 1) International Commission on Radiological Protection (ICRP). Lung cancer risk from radon and progeny and statement on radon. ICRP Publication 115, Annals of the ICRP 40 (2010).
- 2) A. Maier, J. Wiedemann, F. Rapp, et al. Radon exposure - Therapeutic effect and cancer risk. International Journal of Molecular Sciences 22, 316 (2021).
- 3) A. Sakoda, Y. Ishimori, K. Yamaoka. A comprehensive review of radon emanation measurements for mineral, rock, soil, mill tailing and fly ash. Applied Radiation and Isotopes 69, 1422-1435 (2011).
- 4) International Atomic Energy Agency (IAEA). Measurement and calculation of radon releases from NORM residues. Technical Report Series No. 474 (2013).
- 5) A. Sakoda, Y. Ishimori, K. Hanamoto, et al. Experimental and modeling studies of grain size and moisture content effects on radon emanation. Radiation Measurements 45, 204-210 (2010).
- 6) D. Malczewski, M. Dziurawicz. ²²²Rn and ²²⁰Rn emanations from powdered samples of samarskite as a function of annealing temperature. American Mineralogist 105, 708-715 (2020).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 迫田晃弘、田中裕史、神崎訓枝
2. 発表標題 岡山県人形峠における空气中 ²²² Rn、 ²¹⁰ Pb、 ⁷ Be濃度の変動
3. 学会等名 第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------