

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2023

課題番号：18K11643

研究課題名（和文）照射ウランを用いた原子炉事故で生成する放射性エアロゾルの生成過程の解明

研究課題名（英文）Elucidation of the production process of radioactive aerosol generated in a nuclear reactor accident using neutron-irradiated uranium

研究代表者

高宮 幸一（TAKAMIYA, Koichi）

京都大学・複合原子力科学研究所・教授

研究者番号：70324712

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）：研究用原子炉でウラン試料を照射して核分裂生成物の供給源とし、放射性エアロゾルを模擬生成する装置の開発に成功した。本装置により、溶液エアロゾル粒子の化学組成や濃度よりも付着する放射性物質の性質の違いの方が、放射性溶液エアロゾル粒子の生成効率に大きく寄与することを定量的に明らかにした。

また、重液分離による粒子弁別とフィッシュトラック法を組み合わせ、環境中に存在するウラン含有粒子を識別する手法を開発した。本手法の有効性確認のため、ウラン含有粒子が存在する可能性の高い環境試料を分析し、固体検出器上にトラックの集合体を検出することでウラン含有粒子を間接的に検出することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

研究用原子炉を活用することで、放射性エアロゾルの生成過程を定量的に検証する新規手法を確立し、環境試料から微小なウラン含有粒子を識別する手法の開発にも成功した。これらの手法を用いることで、原発事故や核爆弾の投下などの大規模な核事象の発生により大量の放射性溶液エアロゾルやウラン含有粒子が生成、拡散する場合において、それらの環境中への拡散を抑制する手法の開発や拡散後の分布測定に寄与することが期待される。

研究成果の概要（英文）：The method of generating radioactive aerosol using neutron-irradiated uranium has been developed. Using this device, it was clarified that differences in the properties of attached radioactive substances contribute more to the generation efficiency of radioactive solution aerosol particles than the chemical composition and concentration of solution aerosol particles.

The method to identify uranium-containing particles in the environment by combining heavy liquid separation with the fission track method has been also developed. In order to confirm the effectiveness of this method, we tried to analyze environmental samples that might contain uranium-containing particles and indirectly detected uranium-containing particles by detecting cluster of fission tracks on a solid-state detector.

研究分野：放射化学

キーワード：放射性エアロゾル 核分裂生成物 溶液エアロゾル粒子 フィッシュトラック

1. 研究開始当初の背景

2011年に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故では放射性セシウムなどを含んだ大量の放射性エアロゾルが大気中に放出され、広域に渡る環境の放射能汚染と内部被ばくを引き起こした。事故後の土壌や河川、海洋における環境調査等から、環境中に放出された放射性エアロゾルが輸送した放射性物質の種類や量といった、事故の「終状態」は明らかにされつつあった。例えば事故の数週間後に行われた大気モニタリングの分析結果から、原子炉から放出された放射性セシウムは硫酸塩エアロゾルによって輸送されたという分析結果が報告された[引用文献 1,2]。一方で、本研究の代表者らは、放射性エアロゾルの生成過程や化学形態といった事故の「始状態」についての知見を得るために、放射性エアロゾルを生成する装置を開発して実験的なアプローチを試みていた。その結果、放射性エアロゾルの生成過程における化学的相互作用の存在を実験的に明確にすることができた[引用文献 3,4]。しかし、この実験での放射性エアロゾルの生成には自発核分裂核種である²⁵²Cfから高い運動エネルギーを持って放出される核分裂生成物を用いていたため、物理的な衝突による放射性エアロゾルの生成過程が混在していたため、生成過程に含まれる化学的相互作用だけを抽出し、定量的に議論するには至っていなかった。

2. 研究の目的

(1) 放射性エアロゾルが生成する「始状態」が明らかになれば、事故時における炉内の状況の推定や原子炉周辺での内部被ばく線量の推定精度の向上への貢献が期待できると考え、実験的に「始状態」のプロセスを解明することを目的とした。

(2) 研究開始後に前述の原子力発電所の事故で放出された放射性エアロゾル粒子中に核燃料由来のウランが含まれていたという研究報告があったため、ウランを含有するエアロゾル粒子の生成過程を明らかにすることも目的の一部とした。

3. 研究の方法

(1) 実験を行うにあたっては、前述の放射性エアロゾルの生成過程における物理的衝突による寄与を抑制する必要があるため、放射性エアロゾルの生成に用いる核分裂生成物を、研究用原子炉 KUR にて中性子照射したウランを石英管内で加熱し揮発させることで抽出する手法を採用することとした。また、溶液エアロゾル発生装置および粒径分級を用いることで、一定の粒径をもった溶液エアロゾルを生成し、これを気相中で核分裂生成物と混合することで放射性エアロゾルの生成を行った。生成したエアロゾルはフィルターで捕集し、Ge 半導体検出器を用いたガンマ線分光分析によりエアロゾル粒子に付着した核分裂生成物を定量することで、溶液エアロゾル粒子への核分裂生成物の付着率を見積もった。このように粒径を制御し、エアロゾル粒子の表面積の大きさと放射性エアロゾルの生成率(核分裂生成物の付着率)の相関を得ることで、エアロゾル粒子表面と核分裂生成物との間の化学的相互作用を定量的に議論することが可能となった。実験では溶液エアロゾルの原料として様々な種類および濃度の溶液を用いることで、核分裂生成物の溶液エアロゾル粒子への付着過程において、エアロゾル粒子を形成する溶液の種類および濃度、核分裂生成物の種類の違いがどのように影響を及ぼすかを明らかにした。

(2) ウランを多く含むエアロゾル粒子は、核分裂生成物を主成分とする放射性エアロゾル粒子と異なりガンマ線分光分析による検出が困難であるため、まずはウラン含有粒子の検出方法の開発を行った。ウラン含有粒子のもつ物理的性状を推測し、重液分離とフィッシュントラック法を組み合わせた検出法を開発した。また、ウラン含有粒子が存在すると考えられる環境試料の分析を試みることで本手法の有効性を検証した。

4. 研究成果

(1) 溶液エアロゾルの原料として濃度の異なる3種類のハロゲン化ナトリウム溶液から生成する溶液エアロゾルを用いた実験を行い、溶液エアロゾル粒子への核分裂生成物の付着挙動を比較した。核分裂生成物のエアロゾル粒子への付着率とエアロゾル粒子の表面積の総和との相関が得られ、これを吸着平衡式によりフィッティングすることで吸着平衡定数(K)を見積もった。図1に0.01 Mに調製した塩化ナトリウム、臭化ナトリウム、ヨウ化ナトリウムから生成した

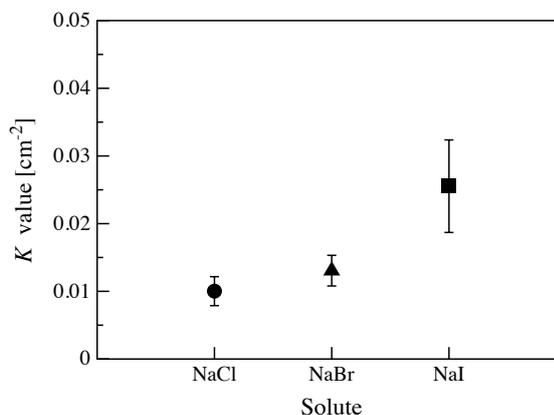


図1 0.01 MのNaCl、NaBr、NaI溶液からなるエアロゾルに対する核分裂生成物¹⁰⁴Tcの吸着平衡定数。

溶液エアロゾルに対する核分裂生成物 ^{104}Tc の吸着平衡定数を示す。この結果から、 ^{104}Tc のハロゲン化ナトリウム溶液エアロゾル粒子への付着挙動における吸着平衡定数は、 $\text{NaCl} \leq \text{NaBr} < \text{NaI}$ となる傾向が見られ、溶質の種類が付着挙動に影響を与えることが示された。同様の実験を、濃度を 0.005、0.01、0.02 M に調製したハロゲン化ナトリウム溶液から生成した溶液エアロゾルに対して行うことで、図 2 に示した 3 種類の溶質ごとの溶液の濃度と吸着平衡定数の相関が得られた。いずれの溶質においても 0.005 M から 0.01 M に濃度が増加する際には平衡定数が増加する傾向が見られるが、0.02 M では平衡定数の減少が見られた。

これらの結果から、溶液エアロゾル粒子に含まれる溶質の種類が付着挙動に影響を与える要員は、溶液エアロゾル粒子の表面付近の陰イオンの濃度の差異により[引用文献 5-7]、核分裂生成物とエアロゾル表面との間の静電相互作用の大きさに差異が生じるためであると結論した。また、溶液エアロゾル粒子中の溶質の濃度が、核分裂生成物の付着挙動に影響を与えることも示された。これらの実験結果から、福島第一原子力発電所の事故によって環境中に放出されたような放射性エアロゾルの初期の生成過程においては、溶液エアロゾル粒子に含まれる溶質の種類や濃度などの化学状態が重要な役割を担うことを明確にした。

(2) 環境中に存在するウラン含有粒子を検出する手法として、重液分離法とフィッシュトラック法を組み合わせた手法の開発に成功した。まず、SPT(ポリタングステン酸ナトリウム)重液を用いて環境試料中から高比重の粒子を分離し、固体飛跡検出器に密着させた状態で研究用原子炉にて中性子照射を行う。照射後の固体飛跡検出器を 70°C に加熱した 8M の水酸化ナトリウム水溶液に 30 分浸漬することでエッチングを行い、光学顕微鏡で固体飛跡検出器表面を観察する。試料中にウランを高濃度で含有する粒子が存在する場合は、粒子を中心とした多数の飛跡が観察されるため、この飛跡の集合体を検出することにより、ウラン含有粒子の存在を特定することができる。本手法の有効性を検証することを目的とし、ウラン含有粒子が存在する可能性の高い環境試料に対して前述の分析を行った。図 3 に分析の結果として得られた飛跡の集合体の例を示す。

本手法を適用することで、環境試料中からウラン含有粒子を非破壊で特定することが可能となり、SEM と組み合わせたマイクロマニピュレータ等を用いれば「1 粒子」のウラン含有粒子の単離も可能となる。福島第一原子力発電所事故で発見された放射性セシウムを高濃度で含有する不溶性エアロゾル粒子に対して行われたような、粒子中の元素組成や内部構造などの分析へと展開することができれば、原子力発電所事故だけでなく核実験のような大規模核事象によって生成するウラン含有粒子の生成過程の解明も可能となる。

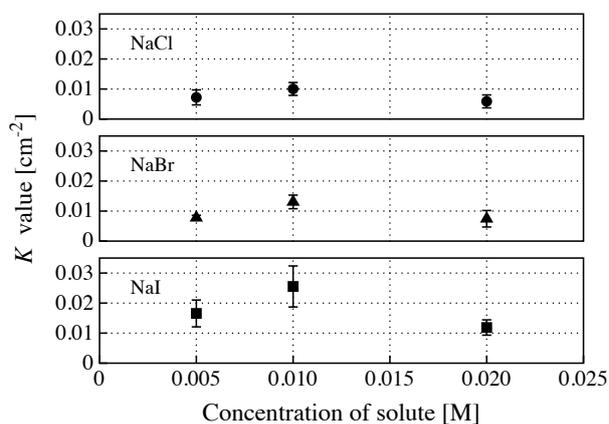


図 2 濃度の異なる NaCl、NaBr、NaI 溶液からなるエアロゾルに対する核分裂生成物 ^{104}Tc の吸着平衡定数。

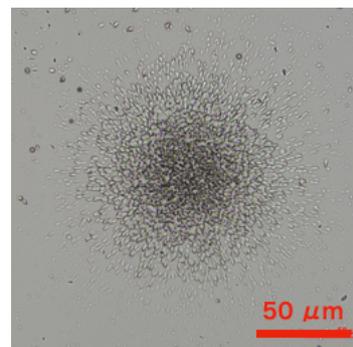


図 3 ウラン含有粒子に由来すると考えられる飛跡の集合体の例。

- 1) N. Kaneyasu et al., *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 5720-5726 (2012).
- 2) Y. Miyamoto et al., *J. Environ. Radioact.*, **132**, 1-7 (2014).
- 3) K. Takamiya et al., *J. Radiat. Prot. Res.* **41**, 350-353 (2016).
- 4) K. Takamiya et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **307**, 2227-2230 (2016).
- 5) P. Jungwirth et al., *Chem. Rev.*, **106**, 1259-1281 (2006).
- 6) L. Vibka et al., *Current Opinion in Colloid and Interface Science*, **9**, 67-73 (2004).
- 7) P. Jungwirth, D. J. Tobias, *J. Phys. Chem. B*, **105**, 10468-10472 (2001).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 竹内佑、高宮幸一、稲垣誠、関本俊、沖雄一、大槻勤
2. 発表標題 放射性エアロゾル模擬生成実験における対象核種の拡張
3. 学会等名 日本放射化学会第64回討論会(2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高宮 幸一、竹内裕也、竹内佑、平松有沙、稲垣誠、関本俊、沖雄一、大槻勤
2. 発表標題 放射性溶液エアロゾルの模擬生成による生成過程の解明
3. 学会等名 京都大学複合原子力科学研究所「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的分析」専門研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 竹内裕弥、高宮幸一、関本俊、沖雄一、大槻勤
2. 発表標題 照射ウランを用いた放射性エアロゾル生成模擬実験
3. 学会等名 日本放射化学会第63回討論会(2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 竹内裕弥、竹内佑、高宮幸一、稲垣誠、関本俊、沖雄一、大槻勤
2. 発表標題 核分裂生成物と溶液エアロゾル粒子の静電相互作用による吸着挙動
3. 学会等名 第54回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 竹内佑, 竹内裕弥, 高宮幸一, 稲垣誠, 関本俊, 沖雄一, 大槻勤
2. 発表標題 短寿命核分裂生成物の溶液エアロゾルへの付着挙動
3. 学会等名 第54回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高宮 幸一, 西澤 佑介, 関本 俊, 沖 雄一, 大槻 勤
2. 発表標題 溶液状エアロゾル粒子への核分裂生成物の付着過程における化学的效果
3. 学会等名 日本放射化学会第63回討論会(2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高宮幸一, 竹内裕弥, 竹内佑, 関本俊, 沖雄一, 大槻勤
2. 発表標題 核分裂生成物と溶液状エアロゾルによる放射性エアロゾルの生成
3. 学会等名 京都大学複合原子力科学研究所「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的分析」専門研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高宮幸一
2. 発表標題 核分裂生成物を用いたエアロゾル模擬実験
3. 学会等名 京都大学複合原子力科学研究所 専門研究会「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的分析」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 竹内裕弥、高宮幸一、関本俊、沖雄一、大槻勤
2. 発表標題 照射ウランを用いた放射性エアロゾル生成模擬実験のための装置開発
3. 学会等名 第20回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 東江直樹、高宮幸一、稲垣誠、沖雄一、福谷哲、八島浩、芝原雄司、足立友紀、五十嵐康人
2. 発表標題 広島原爆によって生成したウランを含有する降下物粒子の検出手法の開発
3. 学会等名 日本放射化学会第67回討論会(2023)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 東江直樹、高宮幸一、稲垣誠、沖雄一、福谷哲、八島浩、芝原雄司、足立友紀、五十嵐康人
2. 発表標題 フィッシュトラック法を用いた広島原爆由来のウラン含有粒子の探索
3. 学会等名 第 25 回「環境放射能」研究会
4. 発表年 2024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
---------	---------