

令和 5 年 3 月 24 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2021

課題番号：18K14161

研究課題名（和文）ストロンチウムを含むガラス質粒子の形成過程の解明

研究課題名（英文）Formation mechanism of strontium bearing glassy microparticles

研究代表者

萩原 大樹 (Hagiwara, Hiroki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター・研究副主幹

研究者番号：20773914

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：福島第一原子力発電所の事故により放出された、ガラス質放射性微粒子の起源および形成メカニズムを解明することを目的とし、粒子の化学組成、放射能を分析するとともに、炉内構造物を用いたガラス質微粒子の形成実験を行った。ガラス質微粒子中の放射性ストロンチウムの含有量は小さいことが認められた。さらに、放射性セシウム含有微粒子の内、Type-A粒子は、形状からさらに2種類に分類できたが、ともに同一のプロセスで形成されたことが示唆された。また、フィルター材を加熱することで、Type-A粒子と形状が類似する微粒子を形成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

ガラス質放射性微粒子の起源を特定することは、環境中に飛散したガラス質放射性微粒子の放出量の定量化、事故当時の炉内事象の解明および廃炉作業に係る内部被ばく評価を行う上で重要である。本研究において、環境中から採取したガラス質放射性微粒子の特徴を把握し、起源物質として考えられる炉内構造物と比較することで、その起源を特定できる可能性が示唆された。

研究成果の概要（英文）：We analyzed chemical composition and radioactivity in radioactive micro glass particles from Fukushima Daiichi nuclear power plant and also conducted in-situ experiment to identify the source and formation mechanism. The results showed that quantity of radioactive strontium-90 in glass particles was small. The Type-A particles were newly classified as two types base on these morphologies and these particles formed by similar processes. We succeed that glass fiber can form micro particle similar with Type-A particles due to heating.

研究分野：鉱物学、地球化学

キーワード：福島第一原子力発電所事故 ガラス質放射性微粒子 放射性セシウム ストロンチウム

### 1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性セシウムを含むガラス質放射性微粒子が環境中に分布している[1]。ガラス質放射性微粒子は、粒子中の放射性セシウム比 ( $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ) を基に、相対的に粒径の小さい(数 100nm-数  $\mu\text{m}$  サイズ) Type-A 粒子と粒径の大きい(数 10 $\mu\text{m}$ -数 mm サイズ) Type-B 粒子に大別されている[2]。さらに、ガラス質放射性微粒子中には、放射性ストロンチウムを含む報告もある[3,4]。これらの粒子の起源は、Type-B 粒子は 1 号機と推察されているが、Type-A 粒子は、粒子中の  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  の測定誤差の範囲内に、2 号機および 3 号機から放出された  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  が含まれ明瞭に区分できないため、議論が収束していない。ガラス質放射性微粒子の特徴や起源を特定することは、環境中に分布した粒子の放出量の見積りの算出に貢献するとともに、事故時の炉内事象および事故進展の考察、廃炉作業者の内部被ばくの低減対策にも役立てることができる。

### 2. 研究の目的

本研究では、ガラス質放射性微粒子の特徴及び粒子形成メカニズムを明らかにすることを目的とする。ガラス質放射性微粒子の内、特に Type-A 粒子は、粒径が小さいため単離が難しく、放射能や化学組成等の特徴を把握した分析例が乏しい。さらに、炉内構造物を用いて、それらの粒子を実験的に形成した例はない。本研究では、複数の地点ごとに、比較的多くのガラス質放射性微粒子を特定、分析することにより、粒子の大きさ、元素組成、放射エネルギーを把握した。さらに、ガラス質放射性微粒子の Si 源の特定や形成メカニズムを解明するため、ガラス質放射性微粒子が形成された温度範囲の見積もりや形成環境について、電子顕微鏡を用いた実験から考察した。

### 3. 研究の方法

ストロンチウムを含む粒子については、福島第一原子力発電所近傍に堆積した土壌から、2 $\mu\text{m}$  以下に分画した試料を、透過型電子顕微鏡 (TEM) により、粒形、形状を基に分析対象物を定め、エネルギー分散型 X 線分光法でストロンチウムを含む粒子を約 20 個確認した。そのうち、ストロンチウムの存在割合が大きいとされた試料について、フェザー法を用いた  $\beta$  線のエネルギー推定を行った。

放射性セシウム含有ガラス質微粒子は、オートラジオグラフィおよび電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) を組み合わせて堆積物から抽出した。特定した粒子の形状の観察、放射能および化学組成を分析し、それぞれの粒子の特徴を把握した。

また、ガラス質放射性微粒子の Si 源の候補の一つと提案されている、軽水炉で一般的に使用されるフィルター材について、化学組成の評価およびそれらを使った粒子の形成実験を行った。さらに TEM に用いる加熱ホルダを利用し、模擬的にホルダ内でガラス質微粒子を作成し、その場観察をすることで、形成メカニズムを考察した。

### 4. 研究成果

#### (1) ストロンチウムを含む粒子の特徴

試料から放出される  $\beta$  線エネルギーは <1.0 MeV と推定され、Sr/Y の放出する 2.28 MeV と一致しなかった。この結果から、TEM でストロンチウムを確認した粒子中の放射性ストロンチウムの割合は小さいと推定できる。また、ストロンチウムを含む粒子は、Fe に富むガラス質な粒子であった。Fe の起源は、格納容器内に使用されている鋼材の可能性も考えられ、炉内の放射性物質と鋼材が接触した後、粒子が形成し環境中へ放出された可能性もある。

#### (2) 放射性セシウム含有ガラス質微粒子の特徴[5]

福島第一原子力発電所から方位の異なる 3 地点で採取した堆積物を対象に、放射性セシウム含有ガラス質微粒子を合計 37 個抽出し、放射能測定および元素分析を行った。

抽出した放射性セシウム含有微粒子は、すべて Type-A 粒子に分類することができた。粒子の形状から、Type-A 粒子を球形粒子と非球形粒子の 2 種類に分けた。そのうち、非球形粒子のほうが、含有する放射性セシウム量が多く、Si に対する C、Zn、Cs の存在比の分布幅が大きかった (図 1)。また、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  を用いた放射性セシウムの存在比では、それぞれの採取地点で差異はないため、起源と考えられる原子炉を特定することは難しいが、球形および非球形粒子の放射能と体積の関係式の傾きがほぼ一致することから (図 2)、どちらも同一の過程で形成されたことが考えられる。また既存

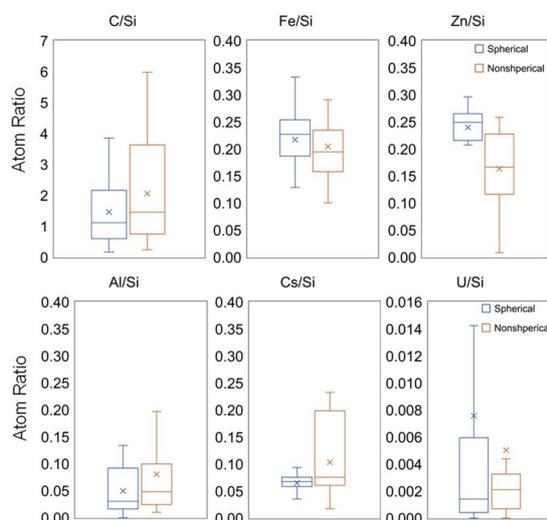


図 1 粒子の形状と元素組成の関係

の報告と比較した結果、粒子の放射能と体積の関係式を新たに算出することができた。さらに、放射性セシウム含有微粒子の一部に、直径 280nm で 58% の U を含む粒子を確認し、原子炉内で形成された粒子であることを明らかにした。さらに、チェルノブイリ原発事故の際に形成されたホットパーティクルと比べると、Si に富む粒子に、U 含有粒子が覆われるという点で異なり、福島第一原子力発電所事故に特有な粒子であることが示唆された。

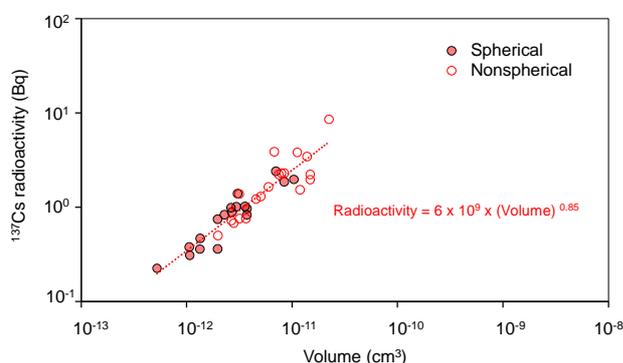


図 2 粒子の放射能と体積の関係

### (3) ガラス質放射性微粒子の形成メカニズムの解明[6]

フィルター材の化学組成は、Si に富み、フィルター材を構成する元素は全て Type-A 粒子に含まれた。さらに、C を多く含むフィルター材も確認され、堆積物から抽出した放射性セシウム含有微粒子中の C の存在要因を説明できる可能性がある。

また、フィルター材を加熱すると、堆積物から抽出した放射性セシウム含有微粒子と形状や大きさが類似する粒子が形成された(図 3)。これは、加熱反応により、フィルター材を構成するグラスファイバーの端部が溶解して、グラスファイバーの大きさに依存した粒子が形成したと推測される。フィルター材は放射性セシウム含有微粒子の起源の有力な候補の一つとして考えられる。

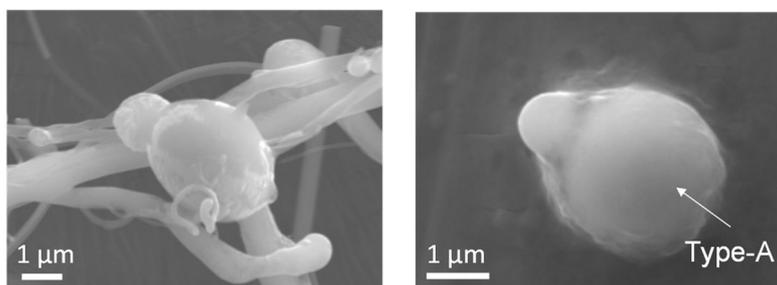


図 3 フィルター材から形成した粒子(左)と Type-A 粒子(右)を比較した 2 次電子像

### <引用文献>

1. Adachi K, Kajino M, Zaizen Y, Igarashi Y (2013) Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci Rep-Uk* 3. doi:Artn 255410.1038/Srep02554
2. Igarashi Y, Kogure T, Kurihara Y, Miura H, Okumura T, Satou Y, Takahashi Y, Yamaguchi N (2019) A review of Cs-bearing microparticles in the environment emitted by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J Environ Radioactiv* 205:101-118. doi:10.1016/j.jenvrad.2019.04.011
3. Nakamura S, Kajimoto T, Tanaka K, Yoshida H, Maeda M, Endo S (2018) Measurement of <sup>90</sup>Sr radioactivity in cesium hot particles originating from the Fukushima Nuclear Power Plant Accident. *Journal of Radiation Research* 59 (6):677-684. doi:10.1093/jrr/rry063
4. Zhang Z, Igarashi J, Satou Y, Ninomiya K, Sueki K, Shinohara A (2019) Activity of <sup>90</sup>Sr in Fallout Particles Collected in the Difficult-to-Return Zone around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Environ Sci Technol* 53 (10):5868-5876. doi:10.1021/acs.est.8b06769
5. Hagiwara H, Funaki H, Shiribiki N, Kanno M, Sanada Y (2021) Characterization of radiocesium-bearing microparticles with different morphologies in soil around the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *J Radioanal Nucl Ch*. doi:10.1007/s10967-021-08061-8
6. Hagiwara H, Kondo K, Hidaka A (2022) The formation mechanism of radiocesium-bearing microparticles derived from the Fukushima Daiichi nuclear power plant using electron microscopy. *J Radioanal Nucl Ch* 331 (12):5905-5914. doi:10.1007/s10967-022-08434-7

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Hagiwara Hiroki、Funaki Hironori、Shiribiki Natsu、Kanno Marina、Sanada Yukihisa	4. 巻 331
2. 論文標題 Characterization of radiocesium-bearing microparticles with different morphologies in soil around the Fukushima Daiichi nuclear power plant	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 415 ~ 426
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10967-021-08061-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hagiwara Hiroki、Kondo Keietsu、Hidaka Akihide	4. 巻 331
2. 論文標題 The formation mechanism of radiocesium-bearing microparticles derived from the Fukushima Daiichi nuclear power plant using electron microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 5905 ~ 5914
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10967-022-08434-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 萩原 大樹、井元 純平、日高 昭秀
2. 発表標題 Type A不溶性Cs粒子のケイ酸塩ガラスと3号機SGTSのフィルタ材との類似性
3. 学会等名 2019年 日本原子力学会
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
---------	---------