

令和元年6月20日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2018

課題番号：26286076

研究課題名(和文)原子炉・加速器を用いた放射性エアロゾルの開発と生成メカニズム

研究課題名(英文) Generation mechanism and simulation of the radioactive aerosols using nuclear reactor and/or accelerator

研究代表者

大槻 勤(Ohtsuki, Tsutomu)

京都大学・複合原子力科学研究所・教授

研究者番号：50233193

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,400,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原子力発電所事故サイトから放出された放射性エアロゾル(主にCs-134, Cs-137, I-131など)やプルームの粒径分布やその化学的組成はほとんど知られていない。今回、本研究では放射性プルームやエアロゾルさらに放射性微粒子の生成および環境移行過程を調べるための基礎研究がなされた。まず、福島事故原発周辺の土壌調査が行われ、放射性微粒子の組成を調べられた。また、実験室内で放射性エアロゾルや微粒子の粒径や生成速度をいろいろな金属エアロゾルを利用して、成長過程のメカニズムを解き明かす基礎実験が行われた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

福島第一原子力発電所から放出された放射性エアロゾルや微粒子は複雑系の中での環境への移行であると考えられるが、ここでは実際に環境中の微粒子の化学的組成等を調べることと、実験室中での単純な放射性エアロゾルや微粒子の生成機構から環境中のエアロゾル生成モデルの基礎データを取得することを目的とした。放射性微粒子の性状や溶液エアロゾルの成長に関して、その種類や密度・濃度に着目し、核分裂生成物が物質に付着し、放射性エアロゾルや微粒子が生成するメカニズムの解明を試みた。その結果から実際の環境系と比較しながら事故直後の状況から現在、そして未来予測までの知見を得ることの基礎データが得られた。

研究成果の概要(英文)：Various characteristics such as size distribution, chemical component and radioactivity have been analyzed for small particles and radioactive aerosols released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. The size distribution and/or elements were investigated by SEM-EDX and TIMS etc. Next for radioactive aerosols in simulated experiments, the measured radioactive aerosols suggest that the potential transport medium for radioactive cesium was non-sea-salt sulfate. This result indicates that cesium and other isotopes would preferentially attach with sulfate compounds. In the present work, the attachment behavior of fission products to aqueous solution aerosols of sodium salts etc. has been studied using a generation system of solution aerosols and spontaneous fission source of Cf-252 etc.

研究分野：放射化学

キーワード：原発事故 放射性微粒子 放射性エアロゾル 核分裂生成物 環境放射能 事故時シミュレーション

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所事故サイトから放出された放射性エアロゾル(おもに $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{131}\text{I}$ など)やブルームの粒径分布やその化学的組成はほとんど知られていない。今、多くの研究者によって放射性ブルームやエアロゾルさらに放射性微粒子の生成および環境移行過程が議論され、それらの解明にあたっている[1]。そのためには実験室内で放射性エアロゾルや微粒子の粒径や生成速度をいろいろな金属エアロゾルを利用して、成長過程のメカニズムを解き明かすことが必要である。原子炉内の核分裂生成物(Fission Product, 以下FP)などの放射性物質が環境中に大量に放出されたが、中でも放射性エアロゾルや微粒子として大気中に放出され、輸送された物質は、降雨等により広範囲の環境汚染を引き起こした。このような環境中に移行した放射性エアロゾルや微粒子の動態を解明するためには、これらの物理的、化学的性状を調査する必要がある。

### 2. 研究の目的

本研究では、土壌の観察・分析や人工放射性エアロゾルや微粒子の発生実験を行う。まず、環境中に放出された放射性微粒子の性状を調べるため、まずイメージングプレート等を用いて土壌中の放射性微粒子探索を行う。次に複数の核種を含む放射性エアロゾルの成長・輸送機構の解明により炉内に残留する放射性微粒子の挙動を推測するため、原子炉や加速器を有効かつ効率的に用い、手法や金属を変えて比較的単純なエアロゾルや微粒子を合成しながら、放射性同位体をプローブとしてエアロゾルや微粒子の成長過程のメカニズムを解き明かす。福島第一原子力発電所から放出された放射性エアロゾルや微粒子は複雑系の中での環境への移行であると考えられるが、ここでは実験室中での単純な放射性エアロゾルや微粒子の生成機構から環境中のエアロゾル生成モデルの基礎データを取得し、実際の環境系と比較しながら事故直後の状況から現在、そして未来予測までの知見を得ることを目的とする。

### 3. 研究の方法

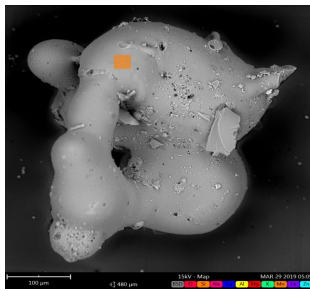
(1)福島第一原子力発電所周辺の土壌中に存在する放射性微粒子の性状分析を行い、その元素組成等の化学的性質の調査を行った。複数の核種を含む放射性エアロゾルの成長・輸送機構の解明により炉内に残留する放射性微粒子の挙動を推測するため、土壌の観察・分析実験を行う。環境中に放出された放射性微粒子の性状を調べるため、2016年に福島第一原子力発電所の周辺で採取した土壌試料を用いて実験を行った。まず、イメージングプレート(BAS IP MS 2025)を用いて土壌試料の放射能の局在が見られる部分を逐次的に弁別し、放射性粒子を特定した。この放射性粒子の性状を分析するために、Ge半導体検出器を用いた放射能測定、光学顕微鏡およびSEMを用いた外観観察、EDXによる元素分析を行った。

(2)溶液エアロゾルに付着させるFPの発生源として自発核分裂核種である $^{252}\text{Cf}$ 線源を用いた実験を行った。溶液エアロゾルの原料には、陽イオンと陰イオンの影響を系統的に調べるために、濃度調製したNaCl、NaBr、NaI、KCl等の水溶液を用い、溶液エアロゾルを発生させた。濃度変化による付着率の変化を調べるため異なる溶液を実験に用いる。3種類の濃度のアトマイザー(Fig.1-)を用いて発生させたエアロゾルはDMAによる分級を行った。これにより単位体積あたりのエアロゾル粒子の表面積の総和(全表面積)を変化させ、チャンバー内でFPと混合させた。チャンバー内で $^{252}\text{Cf}$ から放出されるFPが溶液エアロゾル粒子に付着し、放射性エアロゾルが生成する。生成した放射性エアロゾルはポリカーボネート製フィルターを用いて30分間捕集し、Ge半導体検出器を用いて線スペクトルを1時間測定した。また、 $^{252}\text{Cf}$ 線源の直上にグリスを塗布したセルロースろ紙を設置し、 $^{252}\text{Cf}$ 線源から放出されるすべてのFPを30分間捕集し、同様の測定を行った。それぞれの線スペクトロメトリにより得られたFPのひとつである $^{104}\text{Tc}$ ( $T_{1/2} = 18.3 \text{ min}$ , 独立核分裂収率約0.1%)の計数率の比をもとに、 $^{104}\text{Tc}$ が溶液エアロゾルに付着した割合を付着率として算出した。DMAとCPCから成るSMPSを用いて溶液エアロゾルの粒径分布を測定した。

### 4. 研究成果

(1)土壌の観察・分析:炉内に残留する放射性微粒子の挙動を推測するため、炉内に存在する放射性物質を含む様々な物質を材料として放射性微粒子が生成し成長する過程を解明することが本研究の目的である。そのため、まずは福島第一原子力発電所周辺の土壌中に存在する放射性微粒子の性状分析を行い、その元素組成等の化学的性質の調査を行った。図1に採取した放射性微粒子のSEMイメージを示す。長手方向が500 $\mu\text{m}$ 程度の大きさのいびつな形状をしており、滑らかな部分と泡立ったような穴が開いている部分がみられた。このうち比較的滑らかな表面

を持つ図中のオレンジ矩形の部分について、EDX 分析を行ったところ、粒子本体を構成する主要な元素は酸素、ケイ素、ナトリウムであり、少量のカルシウム、アルミニウム、マグネシウムなどを含むことが明らかとなった。ほかの部分についても分析を行ったが、全体的にはほぼ均質な組成であった。この組成は、二酸化ケイ素を主成分とする玄武岩系コンクリートにナトリウムを足したような組成となっている。この結果のみから粒子生成のプロセスを特定することはできないが、次のような仮説を立てることはできる。つまり、原子炉格納容器内部で原子炉圧力容器を支えるペDESTALはコンクリート製であり、事故当時海水の注入により原子炉内に海水が存在する状況であった。そのような状況でペDESTALのコンクリートが炉心溶融物に触れて加熱されると、分解・溶融・飛散・再冷却などのプロセスを経て微粒子が生成される可能性がある。今後は、このような粒子生成のプロセスを想定し、コンクリートと塩化ナトリウムなどの混合物を加熱して微粒子を模擬的に作成する手法を検討し、放射性微粒子が生成し成長する過程の解明を目指す。



Element	Atomic percentage	Certainty
O	66.4 %	1.00
Si	18.8 %	1.00
Na	9.4 %	1.00
Ca	1.8 %	1.00
Al	1.7 %	1.00
Mg	1.4 %	1.00
K	0.2 %	0.99
Mn	0.2 %	0.99
Fe	0.1 %	0.97
Zn	0.1 %	0.92

図1. 福島原発周辺で発見された土壌のSEM像とその構成成分

(2) 溶融した燃料デブリから放出された FP (Fission Product 核分裂生成物) が放射性エアロゾルとして成長し、炉内材料とともに放射性微粒子を形成・輸送される過程の機構を実験的に解明することを目的とした放射性エアロゾルとして成長する過程を解明するための模擬実験：複数の核種を含む放射性エアロゾルの成長・輸送機構の解明により炉内に残留する放射性微粒子の挙動を推測するため、土壌の観察・分析や人工放射性エアロゾルの発生実験を行った。環境中に放出された放射性微粒子の性状を調べるため、まずイメージングプレート等を用いて土壌中の微粒子探索を行った。また、核分裂生成物を含む人工放射性エアロゾルの成長・輸送の模擬実験を行った。カリフォルニウム( $^{252}\text{Cf}$ )を用いた FP 付着実験：チェンバー内を通過したエアロゾル粒子の全表面積と  $^{104}\text{Tc}$  のエアロゾル粒子への付着率の相関から付着挙動について考察を行った。付着率は全表面積の増加に伴い増加し、全表面積が  $10^3 \text{ cm}^2$  を超える領域では一定の値に近づく傾向が見られた。そこでエアロゾル粒子の全表面積と FP の付着率の間には吸着平衡が成立していると仮定し[3]、吸着平衡式でフィッティングすることにより平衡定数を求め、考察を行った。但し、 $K$  は平衡定数  $[=k/k']$  ( $\text{cm}^2$ )、 $S$  はエアロゾルの全表面積 ( $\text{cm}^2$ )、 $N(S)$  はある表面積 ( $S$ ) における FP の付着率 (%),  $N_s$  は飽和した際の FP の付着率 (%) を示している。溶質の種類による影響：まず異なる溶質間での付着挙動の比較を行うために 0.01 M の NaCl, NaBr, NaI を用いて実験を行った。これらのエアロゾル粒子の全表面積に対する  $^{104}\text{Tc}$  の付着率の相関と式 (1) によるフィッティングの結果を図.2 (左) に、各溶質について得られた平衡定数を図.2 (右) に示す。図.2 (右) から平衡定数の大きさには  $\text{NaCl} \leq \text{NaBr} < \text{NaI}$  となる傾向が見られた。この傾向の要因は、エアロゾル粒子中では原子番号が大きいハロゲン化物イオンほど表面近傍の陰イオンの存在量が大きくなること[4]が原因のひとつであると考えられる。エアロゾル粒子の表面付近におけるハロゲン化物イオンの分布が異なるために、陽イオンとして存在する FP ( $^{104}\text{Tc}$ ) との間の静電相互作用の大きさに差異が生じ、このような傾向が見られたと考えられる。この微小液滴におけるイオンの表面配向性は溶質の分極率が大きく影響していると考えられる[2]。

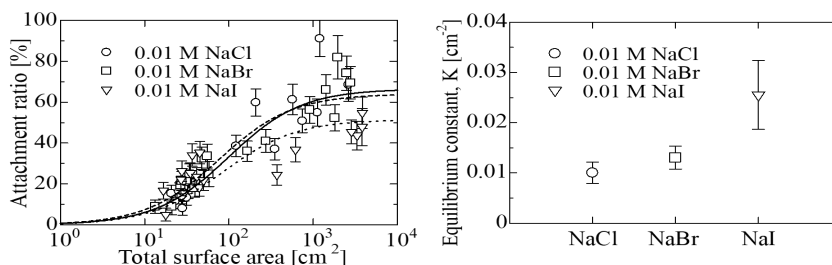


図2. 全表面積に対する  $^{104}\text{Tc}$  の付着率の相関

## 参考文献

- [1] K. Adachi et al., Sci. Rep. 3 (2013) 2554.  
[2] P. Jungwirth et al., Chem. Rev. 106 (2006) 1259-1281.

〔雑誌論文〕(計 17 件)

### 5 . 主な発表論文等

M. Sato, H. Akai, Y. Saito, T. Takase, H. Kikunaga, N. Sekiya, T. Ohtsuki, K. Yamaguchi,  
Use of different surface covering materials to enhance removal of radiocaesium in plants and upper soil from orchards in Fukushima prefecture. Journal of Environmental Radioactivity 196, 204-211(2019).

K. Takamiya, Y. Nishizawa, S. Sekimoto, Y. Oki and T. Ohtsuki,  
Effect of Solute on Attachment Behavior of Fission Product to Solution. AerosolParticle, KURRI Progress Report 2017, 13 (2018).

M. Onodera, A. Kirishima, S. Nagao, K. Takamiya, T. Ohtsuki, D. Akiyama, N. Sato,  
Desorption of radioactive cesium by seawater from the suspended particles in river water. Chemosphere 185, 806-815(2017).

K. Takamiya, T. Tanaka, S. Nitta, S. Itosu, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki,  
Attachment Behavior of Fission Products on Solution Aerosol  
Journal of Radiation Protection and Research 41, 350-353(2016).

DOI: <https://doi.org/10.14407/jrpr.2016.41.4.350>.

K. Takamiya, T. Tanaka, S. Nitta, S. Itosu, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki,  
Observation of attachment ratio of fission products on solution aerosol.  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 307, 2227-2230 (2016).  
DOI:10.1007/s10967-015-4574-7

Y. Oki, T. Tanaka, K. Takamiya, N. Osada, S. Nitta, Y. Ishi, T. Uesugi, Y. Kuriyama, M. Sakamoto, T. Ohtsuki,  
Journal of Radiation Protection and Research, 41, 216-221 (2016).  
DOI: <https://doi.org/10.14407/jrpr.2016.41.3.216>.

K. Takamiya, T. Tanaka, S. Nitta, S. Itosu, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki,  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 307, 2227-2230 (2015).  
DOI:10.1007/s10967-015-4574-7

M. Sato, K. Abe, H. Kikunaga, D. Takata, K. Tanoi, T. Ohtsuki, Y. Muramatsu,  
The Horticulture Journal, 84, 295-304 (2015).  
DOI:10.2503/hortj.mi-054

M. Sato, D. Takata, K. Tanoi, T. Ohtsuki, Y. Muramatsu  
Radiocesium transfer into the fruit of deciduous fruit trees contaminated during dormancy. Soil Science and Plant Nutrition 61, 156-164 (2015).  
<https://doi.org/10.1080/00380768.2014.975103>.

他 8 件

〔学会発表〕(計 30 件)

K. Takamiya, Y. Takeuchi, M. Inagaki, T. Ohtsuki,  
Development of method for generating radioactive aerosols using neutron-irradiated UO<sub>2</sub>. Ibaraki University-Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire (IRSN)/Japan-UK EICHI-project joint international workshop on radioactive particles. March 18-19, 2019 .

Y. Nishizawa, K. Takamiya, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki,  
Concentration Dependence of Attachment Ratio of Fission Products to Sodium Chloride Solution Aerosol Particles.  
Ninth International Symposium On Radiation Safety and Detection Technology, (Nagoya) 2017/07/10 - 2017/07/14.

西澤佑介、高宮幸一、関本 俊、沖 雄一、大槻 勤、  
模擬放射性エアロゾル生成実験の現況。  
京都大学原子炉実験所 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」  
2017/12/04.

K. Takamiya, T. Tanaka, S. Nitta, S. Sekimoto, Y. Oki, T. Ohtsuki,  
Chemical effects on production mechanism of fission product aerosols.  
9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (Helsinki)  
2016/08/29.

新田 真之介, 田中 徹, 関本 俊, 高宮 幸一, 沖 雄一, 大槻 勤,  
金属塩の加熱により発生したエアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動.  
日本放射化学会年会・第 59 回放射化学討論会 (仙台), 2015/09/25.

田中 徹, 高宮 幸一, 新田 真之介, 関本 俊, 沖 雄一, 大槻 勤,  
溶液エアロゾルに対する核分裂生成物の付着挙動.  
日本放射化学会年会・第 59 回放射化学討論会 (仙台) 2015/09/25.  
他 24 件

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/IPA/>

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名: 沖 雄一

ローマ字氏名: OKI Yuichi

所属研究機関名: 京都大学

部局名: 複合原子力科学研究所

職名: 准教授

研究者番号 (8 桁): 40204094

研究分担者氏名: 高宮 幸一

ローマ字氏名: TAKAMITA Koichi

所属研究機関名: 京都大学

部局名: 複合原子力科学研究所

職名: 准教授

研究者番号 (8 桁): 70324712

研究分担者氏名: 関本 俊

ローマ字氏名: SEKIMOTO Shun

所属研究機関名: 京都大学

部局名: 複合原子力科学研究所

職名: 助教

研究者番号 (8 桁): 10420407

### (2)研究協力者

研究協力者氏名: 笠松 良崇

ローマ字氏名: (KASAMATSU Yoshitaka)

研究協力者氏名: 田中 徹

ローマ字氏名: (TANAKA Toru)

研究協力者氏名: 新田真之介

ローマ字氏名: (MNITTA Shin-nosuke)

研究協力者氏名: 糸洲 慧視

ローマ字氏名: (ITOSU Satoshi)

研究協力者氏名: 西澤佑介

ローマ字氏名: (NISHIZAWA Yusuke)

研究協力者氏名: 二上文也

ローマ字氏名: (FUTAGAMI Fumiya)

研究協力者氏名: 佐藤守

ローマ字氏名： (SATO Mamoru)  
他.

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。